



端边云协同的氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法

高愫婷 柴天佑

Intelligent Forecasting Method of Caustic Concentration in Alumina Production Process Based on End-edge-cloud Coordination

GAO Su-Ting, CHAI Tian-You

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.16383/j.aas.c220227>

您可能感兴趣的其他文章

[云边智能: 电力系统运行控制的边缘计算方法及其应用现状与展望](#)

Cloud-edge Intelligence: Status Quo and Future Prospective of Edge Computing Approaches and Applications in Power System Operation and Control

自动化学报. 2020, 46(3): 397–410 <https://doi.org/10.16383/j.aas.2020.y000001>

[深度卷积记忆网络时空数据模型](#)

Deep Spatio-temporal Convolutional Long-short Memory Network

自动化学报. 2020, 46(3): 451–462 <https://doi.org/10.16383/j.aas.c180788>

[基于语义嵌入模型与交易信息的智能合约自动分类系统](#)

Towards Automatic Smart-contract Codes Classification by Means of Word Embedding Model and Transaction Information

自动化学报. 2017, 43(9): 1532–1543 <https://doi.org/10.16383/j.aas.2017.c160655>

[含未知动态与扰动的非线性系统神经网络嵌入学习控制](#)

Neural Network Embedded Learning Control for Nonlinear System With Unknown Dynamics and Disturbance

自动化学报. 2021, 47(8): 2016–2028 <https://doi.org/10.16383/j.aas.c200186>

[智能交通信息物理融合云控制系统](#)

Intelligent Transportation Cyber-physical Cloud Control Systems

自动化学报. 2019, 45(1): 132–142 <https://doi.org/10.16383/j.aas.c180370>

[绿色能源互补智能电厂云控制系统研究](#)

Green Energy Complementary Based on Intelligent Power Plant Cloud Control System

自动化学报. 2020, 46(9): 1844–1868 <https://doi.org/10.16383/j.aas.c190581>

端边云协同的氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法

高愫婷¹ 柴天佑^{1, 2}

摘要 苛性碱溶液浓度是氧化铝生产过程中的重要运行指标, 由于苛性碱溶液的温度和浓度频繁波动, 导致目前的浓度检测仪表检测精度低, 只能采用人工化验获得苛性碱浓度值, 化验结果的严重滞后导致无法实现苛性碱浓度的自动控制, 影响氧化铝产品质量。在分析苛性碱溶液浓度控制过程动态特性的基础上建立了由线性模型和未知非线性动态系统描述的苛性碱浓度预报模型, 将参数辨识与自适应深度学习相结合, 提出端边云协同的氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法, 并采用氧化铝生产企业的实际生产数据对本文所提方法进行应用验证。应用结果表明, 所提的苛性碱浓度智能预报方法可以实时、准确预报苛性碱浓度, 为实现苛性碱浓度的闭环运行优化控制创造了条件。

关键词 苛性碱浓度, 未知非线性动态系统, 端边云, 自适应深度学习, 长短周期记忆

引用格式 高愫婷, 柴天佑. 端边云协同的氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法. 自动化学报, 2023, 49(5): 964–973

DOI 10.16383/j.aas.c220227

Intelligent Forecasting Method of Caustic Concentration in Alumina Production Process Based on End-edge-cloud Coordination

GAO Su-Ting¹ CHAI Tian-You^{1, 2}

Abstract Caustic concentration is an important operating indicator in alumina production process. Due to frequent fluctuations in terms of the temperature and concentration of caustic solution, the precision of current concentration meters can not be guaranteed. High precision caustic concentration can only be obtained through manual assay. However, the severe lag of assay results will lead to the failure of automatic control of caustic concentration, which affects the quality of alumina products. In this paper, the dynamic characteristics of caustic concentration are analysed, and a caustic concentration forecasting model described by a linear model and an unknown nonlinear dynamic system is established. Then a novel intelligent forecasting method for caustic concentration of alumina production process based on end-edge-cloud cooperation is established by incorporating parameter identification with adaptive deep learning. The application verification of the proposed method is performed on actual production data from an alumina manufacturer. The results show that the proposed intelligent forecasting method is able to forecast caustic concentration accurately in real time, providing conditions for achieving the closed-loop optimal control of caustic concentration.

Key words Caustic concentration, unknown nonlinear dynamic system, end-edge-cloud, adaptive deep learning, long-short term memory (LSTM)

Citation Gao Su-Ting, Chai Tian-You. Intelligent forecasting method of caustic concentration in alumina production process based on end-edge-cloud coordination. *Acta Automatica Sinica*, 2023, 49(5): 964–973

氧化铝是金属铝的生产原料, 目前全球绝大多数

收稿日期 2022-03-29 录用日期 2022-06-21

Manuscript received March 29, 2022; accepted June 21, 2022

2020 年度辽宁省科技重大专项计划 (2020JH1/10100008), 国家自然科学基金委重大项目 (61991404, 61991400), 一体化过程控制学科创新引智基地 2.0 (B08015) 资助

Supported by Science and Technology Major Project 2020 of Liaoning Province (2020JH1/10100008), National Natural Science Foundation of China (61991404, 61991400), and 111 Project 2.0 (B08015)

本文责任编辑 邓方

Recommended by Associate Editor DENG Fang

1. 东北大学流程工业综合自动化国家重点实验室 沈阳 110819

2. 国家冶金自动化工程技术研究中心 沈阳 110819

1. State Key Laboratory of Synthetical Automation for Process Industries, Northeastern University, Shenyang 110819 2. National Engineering Research Center of Metallurgy Automation, Shenyang 110819

数氧化铝工厂采用拜耳法从铝土矿中提取氧化铝^[1-2]。苛性碱溶液在拜耳法氧化铝生产流程中具有重要作用, 一方面, 磨矿过程根据设定的配比将氧化铝生产原料即铝土矿、石灰和苛性碱溶液磨配成化学组分和物理性能都符合拜耳法工艺要求的矿浆; 另一方面, 溶出过程利用苛性碱溶液在高温、高压条件下将矿浆中的氧化铝水合物充分溶解转化为铝酸钠进入溶液中^[3]。苛性碱溶液浓度 (一般用 N_K 表示) 过低会导致铝土矿的溶出率降低和溶出速度下降, 影响最终的氧化铝产品质量; 而苛性碱浓度过高会增大蒸发过程的汽耗和碱耗, 还会导致蒸发器罐体结垢严重甚至腐蚀。因此, 苛性碱溶液的浓度对氧化铝生产过程具有重要意义^[4-7]。

目前, 苛性碱浓度的在线检测主要采用折光度温度法, 利用光的折射中的全反射现象进行溶液浓度测量^[8-10]. 研究表明, 溶液的折光度不仅受溶液的浓度影响, 还与溶液的温度、压力和入射光的波长有关. 在绝大多数情况下, 可以保证使用特定波长的光源在稳定的气压下进行折光度检测, 排除压力和光源波长对溶液折光度的影响, 因此, 在静态条件下, 影响溶液折光度的因素主要是溶液的浓度和温度^[7].

文献 [11] 通过配置不同质量分数的溶液并使用 AHC5-2WAJ 阿贝折光度测量仪测量并记录溶液的折光度, 研究溶液折光度与浓度和温度的相关性, 数据分析结果显示, 在电解质溶液、极性溶液和非极性溶液的浓度和温度波动较小的情况下, 溶液的浓度与折光度和温度之间基本呈线性关系. 文献 [12] 在实验室可控条件下配置出多种浓度的常见溶液并使用 WAY 型阿贝折光度测量仪表测量每份溶液的折光度, 通过数据分析发现被测溶液的折光度与浓度在实验室条件下基本呈线性关系. 文献 [13] 考虑了溶液温度变化对折光度的影响, 在实验室可控条件下通过单一变量法实验得出乳化液的浓度、温度和折光度三者之间的关系, 实验结果显示在保持温度不变的情况下, 乳化液的折光度随浓度的增大而增大且近似呈线性关系, 在保持浓度不变的情况下, 乳化液的折光度随温度的升高而降低.

美国 EElectron Machine Corporation (EMC) 公司基于折光度温度法的检测机理, 结合数据分析技术, 研发并生产出 MPR E-Scan 型溶液浓度检测仪^[14], 该检测仪不仅参数校正算法保密, 而且不适合我国氧化铝生产过程的苛性碱浓度在线测量. 因为国内氧化铝生产过程的苛性碱溶液是通过采用多效蒸发生产工艺的蒸发过程和碱液调配过程获得的, 造成苛性碱溶液的温度和浓度频繁波动, 无法保证苛性碱浓度的检测精度, 只能采用人工化验的方法获得, 而化验结果严重滞后, 只能采取人工控制方式进行苛性碱浓度的运行控制. 苛性碱浓度化验结果的严重滞后使运行人员难以及时准确地决策蒸发进料控制系统以及补碱控制系统的指令, 从而难以将苛性碱浓度控制在生产工艺规定的目标范围内, 影响氧化铝产品质量. 因此, 苛性碱浓度的在线预报对于实现氧化铝生产过程的运行优化控制具有重要意义^[15].

本文将系统辨识与深度学习相结合, 采用端边云协同的方式, 提出了氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法, 采用某大型拜耳法氧化铝生产企业的实际生产数据进行了所提方法的实验, 验证了所

提方法的有效性.

1 氧化铝生产过程苛性碱浓度运行控制过程描述

氧化铝生产过程苛性碱浓度运行控制流程如图 1 所示^[16]. 铝土矿与石灰和苛性碱溶液经过磨矿过程产生矿浆, 然后将矿浆与苛性碱溶液送入溶出过程, 在高温高压条件下产生溶出液, 溶出液经过分解过程生产出氧化铝并产生苛性碱原液. 苛性碱原液经过蒸发过程, 利用蒸汽生产系统产生的蒸汽的热量蒸发掉苛性碱原液中多余的水分, 之后在碱液调配过程中将蒸发出料溶液与苛性碱原液和苛性碱母液进行调配、混匀, 生产出苛性碱浓度在工艺要求目标范围之内的苛性碱溶液, 用于磨矿和溶出过程.

国内氧化铝蒸发过程采用的是多效蒸发生产工艺, 蒸汽生产系统产生的新蒸汽进入管式降膜蒸发器与进入蒸发过程的苛性碱原液进行充分热交换后, 形成的二次蒸汽经蒸发器的分离室排出, 继续作为其他蒸发器的热源使用, 因此苛性碱溶液的温度受新蒸汽温度和原液温度影响而频繁波动. 蒸发过程的出料溶液在碱液调配过程与苛性碱原液和苛性碱母液进行调配与混匀, 产生浓度合格的苛性碱溶液, 加到磨矿和溶出过程. 为保证苛性碱溶液的苛性碱浓度在目标值范围内, 运行人员根据苛性碱浓度的目标范围 $[y_{\min}(k), y_{\max}(k)]$ 和实际值 $y(k)$ 调整蒸发过程苛性碱原液进料控制系统以及苛性碱原液和苛性碱母液补碱控制系统的设定值, 通过控制系统使被控过程的输出跟踪设定值, 将苛性碱浓度控制在目标值范围内. 苛性碱浓度运行控制导致苛性碱溶液的浓度频繁波动, 造成目前的浓度检测仪存在大的检测误差, 无法用于苛性碱浓度的运行控制, 只能采用人工化验获得准确的苛性碱浓度值, 人工化验结果的严重滞后导致运行人员难以及时、准确地决策苛性碱原液进料控制系统以及苛性碱原液和苛性碱母液补碱控制系统的流量设定值, 难以将苛性碱浓度控制在目标范围内, 从而影响氧化铝产品质量^[17].

2 苛性碱浓度动态模型

氧化铝生产过程的苛性碱溶液是通过采用多效蒸发生产工艺的蒸发过程和碱液调配过程获得的, 苛性碱溶液的温度和浓度频繁变化, 由于苛性碱溶液运行控制系统的作用, 苛性碱浓度 $y(k)$ 在目标区间附近波动, 因此采用折光度 $r(k)$ 和温度 $t(k)$ 为输入 $y(k)$ 为输出的线性模型和未知非线性动态系统

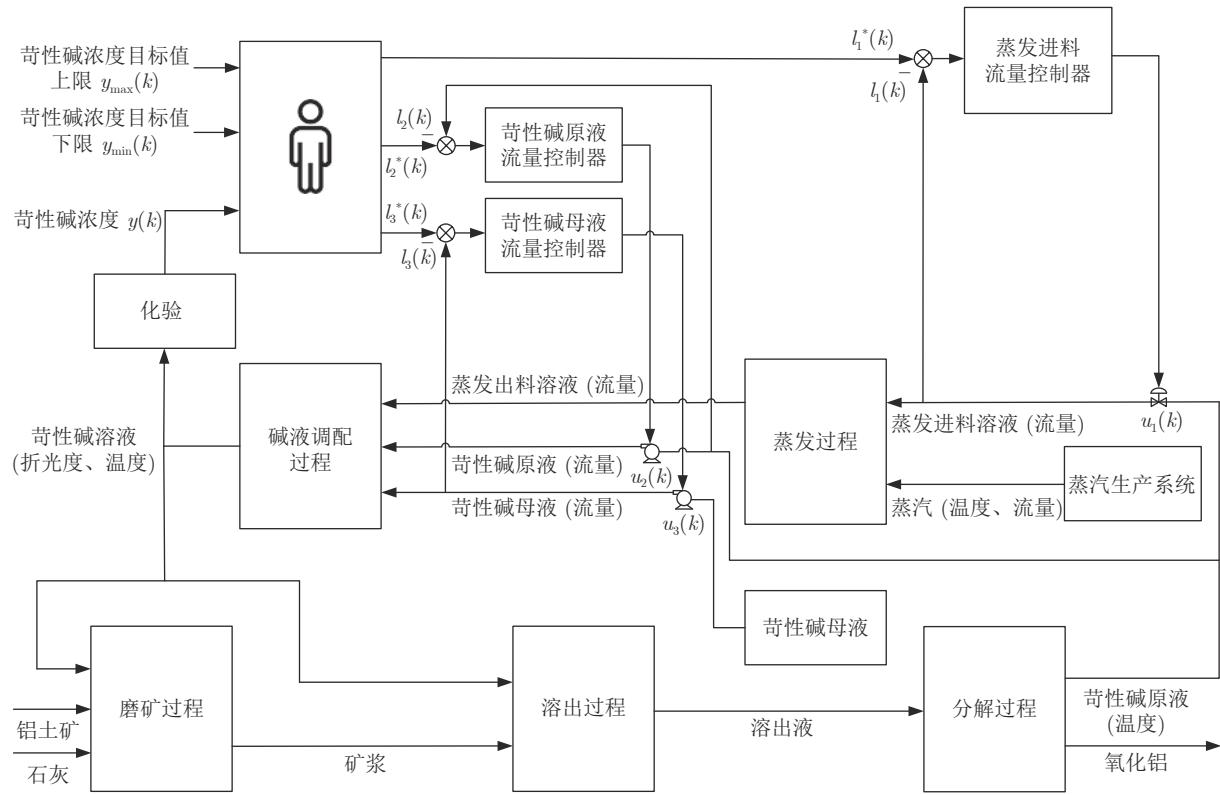


图 1 苛性碱浓度运行控制流程图

Fig. 1 Operation and control chart of caustic concentration

$v(k)$ 建立苛性碱浓度动态模型

$$y(k) = \bar{y}(k) + v(k) \quad (1)$$

$\bar{y}(k)$ 和 $v(k)$ 分别为:

$$\bar{y}(k) = ar(k) + bt(k) + c = \mathbf{x}(k)\boldsymbol{\theta} \quad (2)$$

式中, $\mathbf{x}(k) = [r(k), t(k), 1] \in \mathbf{R}^{1 \times 3}$, $\boldsymbol{\theta} = [a, b, c]^T \in \mathbf{R}^{3 \times 1}$.

$$v(k) = f(v(k-1), \dots, v(k-n_v), r(k), \dots, r(k-n_r), t(k), \dots, t(k-n_t)) \quad (3)$$

式中, $f(\cdot)$ 是未知非线性函数, n_v 、 n_r 和 n_t 为该动态系统输入变量的阶次, n_v 、 n_r 和 n_t 未知.

由式(1)和(2)建立 $\boldsymbol{\theta}$ 参数的辨识方程

$$y(k) = \mathbf{x}(k)\boldsymbol{\theta} + v(k) \quad (4)$$

采集到的折光度 $r(k)$ ($k = 1, \dots, m$), 温度 $t(k)$ ($k = 1, \dots, m$) 和苛性碱浓度化验值 $y(k)$ ($k = 1, \dots, m$), 由式(4)可得

$$\mathbf{Y}(k) = \mathbf{X}(k)\boldsymbol{\theta} + \mathbf{V}(k) \quad (5)$$

式中, 输出 $\mathbf{Y}(k)$ 为:

$$\mathbf{Y}(k) = [y(k), y(k-1), \dots, y(k-m)]^T \in \mathbf{R}^{m \times 1} \quad (6)$$

输入 $\mathbf{X}(k)$ 为:

$$\mathbf{X}(k) = \begin{bmatrix} \mathbf{x}(k) \\ \mathbf{x}(k-1) \\ \vdots \\ \mathbf{x}(k-m) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r(k) & t(k) & 1 \\ r(k-1) & t(k-1) & 1 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ r(k-m) & t(k-m) & 1 \end{bmatrix} \quad (7)$$

未知非线性项 $\mathbf{V}(k)$ 为:

$$\mathbf{V}(k) = [v(k), v(k-1), \dots, v(k-m)]^T \in \mathbf{R}^{m \times 1} \quad (8)$$

式中, m 为参数估计所采用的输入向量 $[x(k), x(k-1), \dots, x(k-m)]^T$ 的延时.

最小二乘目标函数为:

$$J = \min[\mathbf{Y}(k) - \mathbf{X}(k)\hat{\boldsymbol{\theta}}]^T[\mathbf{Y}(k) - \mathbf{X}(k)\hat{\boldsymbol{\theta}}] \quad (9)$$

模型参数 $\boldsymbol{\theta}$ 的估计值 $\hat{\boldsymbol{\theta}}$ 为:

$$\hat{\boldsymbol{\theta}} = (\mathbf{X}^T \mathbf{X})^{-1} \mathbf{X}^T \mathbf{Y} \quad (10)$$

由式(4)可知, 氧化铝生产过程苛性碱浓度的动态模型式(1)可以表示为:

$$y(k) = \mathbf{x}(k)\hat{\boldsymbol{\theta}} + \mathbf{x}(k)(\boldsymbol{\theta} - \hat{\boldsymbol{\theta}}) + v(k) = \hat{y}(k) + \bar{v}(k) \quad (11)$$

式中, $\hat{y}(k) = \mathbf{x}(k)\hat{\boldsymbol{\theta}}$ 表示线性模型式(2)的输出 $\bar{y}(k)$ 的估计值, $\bar{v}(k)$ 是由 $v(k)$ 和模型式(2)输出

$\bar{v}(k)$ 的估计误差组成的未知非线性动态系统, 表示如下

$$\bar{v}(k) = \mathbf{x}(k)(\boldsymbol{\theta} - \hat{\boldsymbol{\theta}}) + v(k) \quad (12)$$

由式(11)可知

$$\bar{v}(k-1) = y(k-1) - \hat{y}(k-1) \quad (13)$$

由式(3)和式(13)可知, $\bar{v}(k)$ 可以表示为:

$$\begin{aligned} \bar{v}(k) &= f_1(\bar{v}(k-1), \bar{v}(k-2), \dots, r(k), \\ &\quad r(k-1), \dots, t(k), t(k-1), \dots) \end{aligned} \quad (14)$$

式中, $\bar{v}(k)$ 是模型结构、阶次与模型参数未知的非线性动态系统.

3 苛性碱浓度智能预报方法

3.1 苛性碱浓度智能预报策略

本文在分析苛性碱溶液浓度动态特性的基础上, 将系统辨识与深度学习相结合^[18], 提出由图2所示的端边云协同的氧化铝生产过程苛性碱浓度智能预报方法. 氧化铝生产过程的大数据可测, 其中端-运行控制系统进行数据采集、边-边缘控制系统执行数据处理和苛性碱浓度在线智能预报模型和云-

数据服务器和人工智能计算平台执行苛性碱浓度自校正深度学习模型. 端实时采集氧化铝生产过程苛性碱浓度化验值 $y(k)$ 、折光度 $r(k)$ 和温度 $t(k)$ 组成 $\mathbf{x}(k)$; 边缘端的在线智能预报模型由 $\hat{\theta}\mathbf{x}(k)$ 计算线性模型的输出 $\hat{y}(k)$, 再由在线深度学习模型预报未知非线性动态系统 $\hat{v}_1(k)$, 从而由 $(\hat{y}(k) + \hat{v}_1(k))$ 获得苛性碱浓度预报结果 $\hat{y}(k)$; 云端的自校正深度学习模型采用当前时刻以及以前所有时刻下的 $(N+k)$ 个输入输出数据更新深度学习模型的全部权值参数和偏置参数, 采用自校正机制在线监控在线深度学习模型的预报精度, 当不满足精度要求时, 采用自校正深度学习模型的参数校正在线智能预报模型的参数, 从而保证苛性碱浓度的预报精度.

3.2 $\bar{v}(k)$ 的自适应深度学习预报算法

氧化铝生产过程苛性碱溶液浓度的动态特性受温度、浓度等因素影响而变化, 导致未知非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 的模型结构和参数未知且变化, 输入、输出数据处于变化的、开放的、不确定的信息空间, 难以采用完备信息空间的深度神经网络和长短周期记忆 (Long short-term memory, LSTM) 深度学习方法, 然而可以获得苛性碱浓度动态模型的输入输

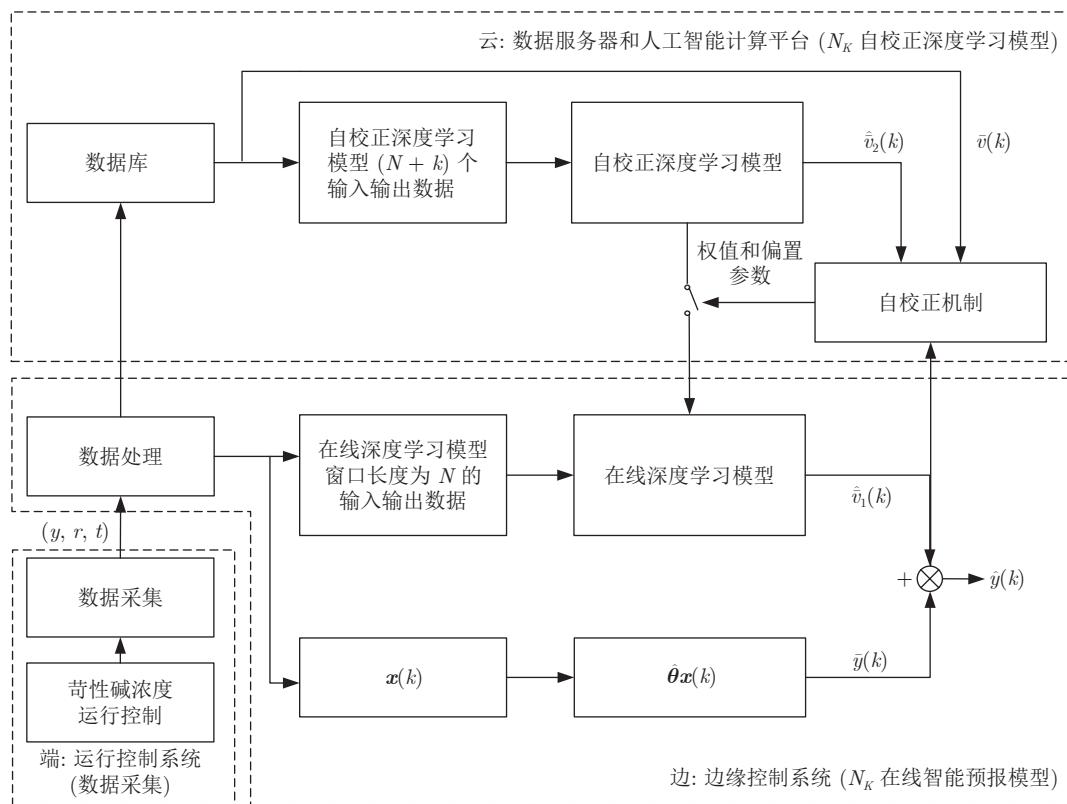


图2 端边云协同的苛性碱浓度智能预报结构

Fig.2 Intelligent forecasting structure of caustic concentration based on end-edge-cloud coordination

出大数据, 采用文献 [18] 的方法构建由在线深度学习模型、自校正深度学习模型和自校正机制构成的 $\bar{v}(k)$ 的自适应深度学习预报算法, 其中在线深度学习模型和自校正深度学习模型采用相同的基于 LSTM 的网络架构^[19-20], 为了消除模型训练过程中的过拟合现象并提高预报精度, 引入随机失活层^[21-22], 结合动态系统的特性, 将非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 的输入变量作为单个神经元的输入, 阶次 n 作为神经元的个数, 节点数为 \bar{h} , 网络层数为 L , 在线训练数据个数为 N , 采用输入、输出大数据离线训练确定上述网络的 n , \bar{h} , L 和 N . 采用窗口长度为 N 的输入输出数据实时更新在线深度学习模型, 采用当前时刻以及以前所有时刻的数据更新自校正深度学习模型的全部权值参数和偏置参数. 采用自校正机制校正在线深度学习模型的参数, 保证预报精度^[23-26].

3.2.1 构造深度学习模型结构

建立如图 3 所示的基于 LSTM 网络架构的 $\bar{v}(k)$ 深度学习模型结构, 采用如下训练方法确定该深度学习模型的神经元个数 n 、单个神经元的节点数 \bar{h} 、网络层数 L 和在线训练数据个数 N .

以式 (14) 中输入变量作为神经网络的输入, 系

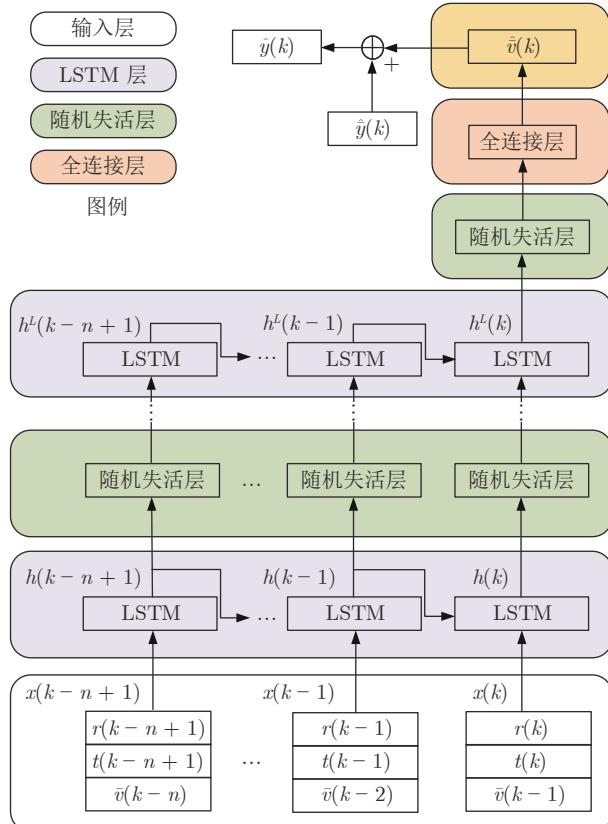


图 3 $\bar{v}(k)$ 深度学习模型结构

Fig.3 Deep learning model structure of $\bar{v}(k)$

统阶次 n 为神经元的个数, 第 j 个神经元的输入为:

$$\mathbf{x}(k+j-n) = \begin{bmatrix} r(k+j-n) \\ t(k+j-n) \\ \bar{v}(k+j-n-1) \end{bmatrix}, j=1, \dots, n \quad (15)$$

式中, $\bar{v}(k+j-n-1)$ 由式 (13) 获得, 以苛性碱浓度化验值 $y(k)$ 与线性模型输出值 $\hat{y}(k)$ 之间的误差值作为 $\bar{v}(k)$ 深度学习模型训练算法的标签数据, 利用式 (15) 所示的输入输出变量所构成的大数据样本, 采用使标签数据 $\bar{v}(k)$ 与深度学习模型的输出 $\hat{v}(k)$ 的误差尽可能小的训练算法, 来确定神经元的个数 n 、单个神经元的节点数 \bar{h} 、层数 L 和在线训练数据个数 N . 训练算法的目标函数为:

$$\mathcal{L} = \frac{\sum_{k=1}^m \|\bar{v}(k) - \hat{v}(k)\|_1}{m} \quad (16)$$

$\bar{v}(k)$ 深度学习模型的输出 $\hat{v}(k)$ 为:

$$\hat{v}(k) = \mathbf{W}_d \times \mathbf{h}(k) + b_d \quad (17)$$

式中, 权值参数 \mathbf{W}_d 为 $1 \times \bar{h}$ 向量, b_d 为偏置参数, 第 n 个神经元的输出 $\mathbf{h}(k)$ 为 $\bar{h} \times 1$ 向量, 计算公式为:

$$\mathbf{h}(k) = \mathbf{o}_k \odot \tanh(\mathbf{C}(k)) \quad (18)$$

式中, \mathbf{o}_k 为 $\bar{h} \times 1$ 向量, $\mathbf{C}(k)$ 为 LSTM 单元的长期记忆状态. \odot 为哈达玛积^[27], 计算方法为两个相同维度的向量中相同位置的元素相乘. $\tanh(\cdot)$ 为双曲线正切函数, 计算公式为:

$$\tanh(c_i(k)) = \frac{\sinh(c_i(k))}{\cosh(c_i(k))} \quad (19)$$

式中, $c_i(k)$ 为 $\mathbf{C}(k)$ 的第 i 个元素, $i \in [1, \dots, \bar{h}]$.

\mathbf{o}_k 的计算方式为:

$$\mathbf{o}_k = \sigma(\mathbf{W}_o \cdot [\mathbf{h}(k-1), \mathbf{x}(k)]^T + b_o) \quad (20)$$

式中, $[\mathbf{h}(k+j-n-1), \mathbf{x}(k+j-n)]^T, j=1, \dots, n$ 为 LSTM 单元的 n 个神经元的输入, $\mathbf{h}(k-1)$ 是第 $(n-1)$ 个神经元的输出, $\sigma(\cdot)$ 为 Sigmoid 函数, 计算方式为:

$$\sigma(z) = (1 + e^{-z})^{-1} \quad (21)$$

式中, z 表示向量 $[\mathbf{W}_o \cdot [\mathbf{h}(k-1), \mathbf{x}(k)]^T + b_o]$ 的元素.

长期记忆状态 $\mathbf{C}(k)$ 的计算公式为:

$$\mathbf{C}(k) = \mathbf{f}_k \odot \mathbf{C}(k-1) + \mathbf{i}_k \odot \tilde{\mathbf{C}}_k \quad (22)$$

式中, \mathbf{f}_k 、 \mathbf{i}_k 和 $\tilde{\mathbf{C}}_k$ 为 $\bar{h} \times 1$ 的向量, 计算公式为:

$$\begin{cases} \mathbf{f}_k = \sigma(\mathbf{W}_f \cdot [\mathbf{h}(k-1), \mathbf{x}(k)]^T + \mathbf{b}_f) \\ \mathbf{i}_k = \sigma(\mathbf{W}_i \cdot [\mathbf{h}(k-1), \mathbf{x}(k)]^T + \mathbf{b}_i) \\ \tilde{\mathbf{C}}_k = \tanh(\mathbf{W}_C \cdot [\mathbf{h}(k-1), \mathbf{x}(k)]^T + \mathbf{b}_C) \end{cases} \quad (23)$$

式中, LSTM 单元权值参数 \mathbf{W}_f 、 \mathbf{W}_i 、 \mathbf{W}_C 和 \mathbf{W}_o 为 $\bar{h} \times (\bar{h} + 3)$ 矩阵, 偏置参数 \mathbf{b}_f 、 \mathbf{b}_i 、 \mathbf{b}_C 以及 \mathbf{b}_o 为 $\bar{h} \times 1$ 向量。

采用梯度下降算法训练权值参数和偏置参数^[28], 其中 \mathbf{W}_d 的训练算法为:

$$\mathbf{W}_d(i) = \mathbf{W}_d(i-1) - \eta \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{W}_d(i-1)} \quad (24)$$

\mathbf{b}_d 的训练算法为:

$$\mathbf{b}_d(i) = \mathbf{b}_d(i-1) - \eta \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{b}_d(i-1)} \quad (25)$$

式中, η 表示参数训练的学习率, $i = 1, 2, \dots, 7$ 表示模型训练过程的迭代次数。采用相同的训练算法确定其他权值参数和偏置参数。

深度学习模型 n 、 \bar{h} 、 N 和网络层数 L 的训练算法的评价指标采用均方根误差 (Root mean squared error, RMSE), 平均绝对误差 (Mean absolute error, MAE) 和平均绝对百分比误差 (Mean absolute percentage error, MAPE) 三项指标^[29], 即

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{m'} \sum_{i=1}^{m'} (\bar{v}(i) - \hat{v}(i))^2} \quad (26)$$

$$MAE = \frac{\sum_{i=1}^{m'} |\bar{v}(i) - \hat{v}(i)|}{m'} \quad (27)$$

$$MAPE = \frac{1}{m'} \sum_{i=1}^{m'} \left| \frac{\bar{v}(i) - \hat{v}(i)}{\bar{v}(i)} \right| \quad (28)$$

式中, m' 表示验证集的数据量。

首先选择 LSTM 的层数为 1, 确定神经元的个数 n 和单个神经元的节点数 \bar{h} , 令 $n = 1, 2, \dots, 24$, $\bar{h} = 1, 2, \dots, 200$, 使用式 (15) ~ (25) 训练算法选择使评价指标极小的 n 和 \bar{h} , 从图 4 和图 5 的实验结果可知, $n = 20$, $\bar{h} = 180$. 令网络层数 $L = 1, 2, 3, 4, \dots$, 采用训练算法和评价指标选择使误差指标极小且模型训练用时较短的 L 为层数^[30]. 从表 1 的试验结果可知, $L = 2$. 令 $N = 500, \dots, 900$, 选择使误差极小的 N 为在线输入数据时间序列的长度, 由图 6 可以看出, $N = 820$.

深度学习模型第 1 层神经元单元节点数 \bar{h} 为 180, 随机失活层随机断开神经元的比例为 0.3, 第 2 层神经元单元节点数为 180, 随机失活层随机断开神经元的比例为 0.3, 由式 (17) 计算未知非线性动态系统的预报值 $\hat{v}(k)$.

3.2.2 在线深度学习模型

为了在线实时预报苛性碱浓度, 将离线建立的

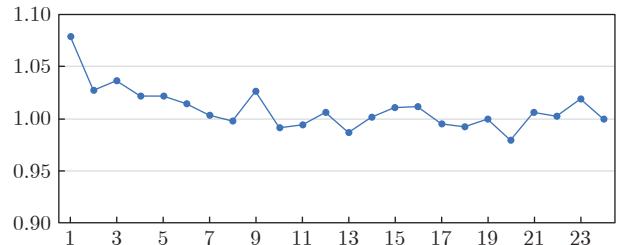


图 4 验证误差 MAE 与 n 的曲线

Fig. 4 Validation MAE and n

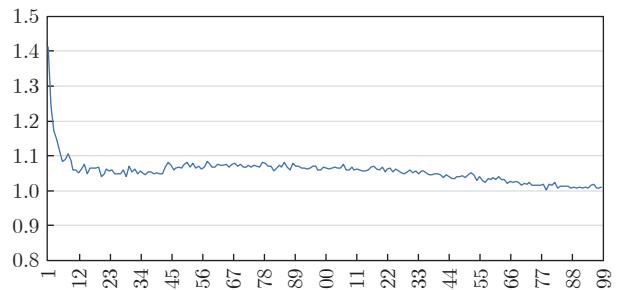


图 5 验证误差 MAE 与 \bar{h} 的曲线

Fig. 5 Validation MAE and \bar{h}

表 1 验证误差与深度神经网络中 LSTM 单元层数

Table 1 Validation error and the number of LSTM unit

LSTM 单元层数	1	2	3	4
RMSE	1.28	1.14	1.17	1.20
MAE	1.00	0.82	0.83	0.91
MAPE	0.53	0.47	0.48	0.51

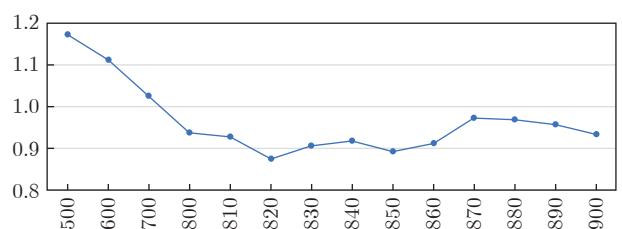


图 6 验证误差 MAE 与 N 的曲线

Fig. 6 Validation MAE and N

深度学习模型各层的权值参数和偏置参数作为在线深度学习模型的相应层的权值参数和偏置参数, 采用长度为 $N = 820$ 的输入输出数据 $r(k-i), t(k-i), \bar{v}(k-i-1)$ ($i = 0, 1, \dots, N-1$) 只校正 $\bar{v}(k)$ 的在线深度学习模型最后一层的权值参数和偏置参数 $\mathbf{W}_{d1}^2(k)$ 和 $\mathbf{b}_{d1}^2(k)$, 算法如下:

$$\mathbf{W}_{d1}^2(k) = \mathbf{W}_{d1}^2(k-1) - \eta \frac{\partial(\mathcal{L}^N(k))}{\partial \mathbf{W}_{d1}^2(k-1)} \quad (29)$$

$$b_{d1}^2(k) = b_{d1}^2(k-1) - \eta \frac{\partial(\mathcal{L}^N(k))}{\partial b_{d1}^2(k-1)} \quad (30)$$

式中, 目标函数 $\mathcal{L}^N(k)$ 为:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}^N(k) &= \frac{\sum_{i=0}^{N-1} \|\bar{v}(k-i) - \hat{v}(k-i)\|_1}{N} = \\ &\mathcal{L}^N(k-1) + \frac{1}{N} (\|\bar{v}(k) - \hat{v}(k)\|_1 - \\ &\|\bar{v}(k-N) - \hat{v}(k-N)\|_1) \end{aligned} \quad (31)$$

由下式求得未知非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 的预报值 $\hat{v}_1(k)$.

$$\hat{v}_1(k) = \mathbf{W}_{d1}^2(k) \times \mathbf{h}_1^2(k) + b_{d1}^2(k) \quad (32)$$

式中, $\mathbf{h}_1^2(k)$ 表示在线深度学习模型第 2 层第 20 个神经元的输出.

由下式求得苛性碱浓度的预报值 $\hat{y}(k)$.

$$\hat{y}(k) = \hat{y}(k) + \hat{v}_1(k) \quad (33)$$

3.2.3 自校正深度学习模型

由于未知非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 的输入、输出数据处于变化的、开放的、不确定的信息空间, 因此当苛性碱浓度发生大的动态变化时, 在线深度学习模型难以保证精度. 为提高预报精度, 建立未知非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 的自校正深度学习模型. 将离线建立的深度学习模型各层的权值参数和偏置参数作为自校正深度学习模型对应层的权值参数和偏置参数, 采用当前时刻以及以前所有时刻的输入输出数据在线校正 $\bar{v}(k)$ 自校正深度学习模型的全部权值参数和偏置参数, 参数的训练算法同第 3.2.1 节, 再将参数代入式 (34) 中, 计算得到 $\bar{v}(k)$ 自校正深度学习模型输出 $\hat{v}_2(k)$.

$$\hat{v}_2(k) = \mathbf{W}_{d2}^2(k) \times \mathbf{h}_2^2(k) + b_{d2}^2(k) \quad (34)$$

式中, $\mathbf{W}_{d2}^2(k)$ 和 $b_{d2}^2(k)$ 表示未知非线性动态系统自校正深度学习模型输出层的权值参数和偏置参数, $\mathbf{h}_2^2(k)$ 表示自校正深度学习模型第 2 层第 20 个神经元的输出.

3.2.4 自校正机制

为了保证苛性碱浓度预报模型的精度在生产工艺要求的目标范围内, 采用自校正机制在线监控在线深度学习模型的预报精度, 当不满足精度要求时, 采用自校正深度学习模型的各层权值参数和偏置参数校正在线深度学习模型对应的权值参数和偏置参数, 保证在线深度学习模型的误差在所设定的误差区间范围内.

氧化铝生产工艺要求苛性碱浓度测量精度上界

为 δ , 即苛性碱浓度预报值 $\hat{y}(k)$ 与化验值 $y(k)$ 的精度范围为:

$$|y(k) - \hat{y}(k)| < \delta \quad (35)$$

由式 (11) 和式 (33) 可知

$$\begin{aligned} |y(k) - \hat{y}(k)| &= |(y(k) - \hat{y}(k)) - (\hat{y}(k) - \hat{y}(k))| = \\ &|\bar{v}(k) - \hat{v}(k)| < \delta \end{aligned} \quad (36)$$

自校正机制采用未知非线性动态系统的预报误差 $\Delta \bar{v}(k)$, 上升趋势预报准确率 (True positive rate, TPR) 和下降趋势预报准确率 (True negative rate, TNR)^[31] 三项指标, 即

$$\Delta \bar{v}(k) = |\bar{v}(k) - \hat{v}(k)| \quad (37)$$

$$TPR(k) = \frac{\sum_{i=1}^k TP(i)}{\sum_{i=1}^k TP(i) + \sum_{i=1}^k FP(i)} \quad (38)$$

$$TNR(k) = \frac{\sum_{i=1}^k TN(i)}{\sum_{i=1}^k TN(i) + \sum_{i=1}^k FN(i)} \quad (39)$$

式中, TP 、 FP 、 TN 和 FN 的计算方式如表 2 所示.

表 2 TP 、 FP 、 TN 和 FN 的计算方式
Table 2 Formula of TP , FP , TN and FN

条件	$\bar{v}(k) - \bar{v}(k-1) \geq 0$	$\bar{v}(k) - \bar{v}(k-1) < 0$
$\hat{v}(k) - \hat{v}(k-1) \geq 0$	$TP(k) = 1$	$FN(k) = 1$
$\hat{v}(k) - \hat{v}(k-1) < 0$	$FP(k) = 1$	$TN(k) = 1$

当在线深度学习模型预报误差 $\Delta \bar{v}_1(k) \geq \delta$, 自校正深度学习模型预报误差 $\Delta \bar{v}_2(k) < \delta$ 且在线深度学习模型的上升和下降趋势预报准确率均小于等于自校正深度学习模型的上升和下降趋势预报准确率时, 采用自校正深度学习模型的各层权值参数和偏置参数校正在线深度学习模型对应的权值参数和偏置参数.

3.3 端边云协同的苛性碱浓度智能预报算法

采用端边云协同的方法实现苛性碱浓度智能预报算法:

1) 端-运行控制的数据采集系统采集氧化铝生产过程中的折光度 $r(k)$ 、温度 $t(k)$ 和苛性碱浓度化验值 $y(k)$;

2) 边-边缘控制器执行苛性碱浓度在线智能预报模型. 由 $\mathbf{x}(k)\hat{\theta}$ 计算线性模型的输出 $\hat{y}(k)$, 由式

(13) 计算预报误差 $\bar{v}(k-i)$ ($i = 1, 2, \dots, N$), 采用窗口长度为 N 的输入输出数据由 $\bar{v}(k)$ 的在线深度学习模型得出其预报值 $\hat{v}_1(k)$, 由式(33)得出苛性碱浓度预报结果 $\hat{y}(k)$;

3) 云-数据服务器和人工智能计算平台执行苛性碱浓度自校正深度学习模型. 采用 $(N+k)$ 个输入输出数据由 $\bar{v}(k)$ 的自校正深度学习模型得出其预报值 $\hat{v}_2(k)$; 采用自校正机制判断式(37)~(39)所示的3项指标, 当在线智能预报模型的指标超过精度上界 δ 时, 采用自校正深度学习模型的各层权值参数和偏置参数校正在线智能预报模型对应的权值参数和偏置参数.

4 实验结果

采用某大型拜耳法氧化铝生产企业的苛性碱浓度运行控制流程的实际数据进行了本文提出的苛性碱浓度智能预报方法的实验.

采用 44 567 组离线数据和式(10)所示的系统辨识方法得到苛性碱浓度线性模型参数估计值 $\hat{\theta} = [-0.03, -0.05, 250.84]^T$, 采用式(40)计算得到的线性模型的拟合优度^[32] R^2 为 0.98, 采用离线数据构造未知非线性动态系统 $\bar{v}(k)$ 深度学习模型, 神经元个数 $n = 20$, 单个神经元的节点数 $h = 180$, LSTM 网络层数 $L = 2$, 未知非线性动态系统在线深度学习模型在线训练数据个数 $N = 820$.

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^{m'} (\hat{y}(i) - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^{m'} (y(i) - \bar{y})^2} \quad (40)$$

式中, \bar{y} 表示苛性碱浓度 $y(i)$ 的平均值, $\hat{y}(i)$ 表示苛性碱浓度预报值, m' 表示验证集的数据量, m' 的取值为 11 141.

本文方法与式(11)中的线性模型和第 3.2 节的深度学习模型的精度指标对比如表 3 所示, 结果表明本文方法的预报精度明显优于其他两种方法.

表 3 苛性碱浓度预报效果

Table 3 Forecasting result for caustic concentration

方法	RMSE	MAE
本文方法	0.89	0.58
线性模型	2.76	2.21
深度学习模型	1.21	0.97

苛性碱浓度预报精度上界按生产工艺要求为 $\delta = 3$ (g/l), 采用端边云协同的氧化铝生产过程苛性

碱浓度智能预报方法进行了实验, 并与美国 EMC 公司生产的苛性碱浓度检测仪表进行了对比实验. 采用 36 000 组输入输出数据进行测试实验, 结果如图 7 所示.

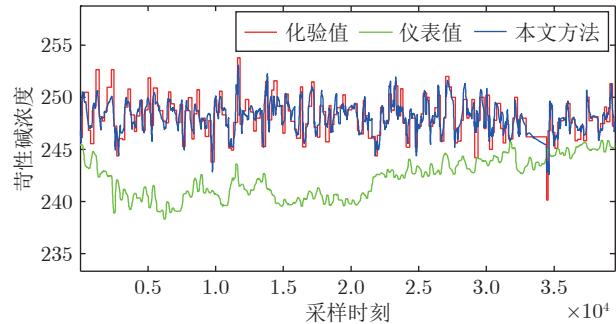


图 7 苛性碱浓度预报方法实验结果

Fig. 7 Experimental results of caustic concentration forecasting method

采用 RMSE、MAE、TPR 和 TNR 指标对本文所提方法与离线预报、在线预报和 EMC 公司的苛性碱浓度仪表的精度进行对比, 结果如表 4 所示.

表 4 苛性碱浓度预报方法的精度指标

Table 4 Accuracy index of forecasting method for caustic concentration

方法	RMSE	MAE	TPR (%)	TNR (%)
浓度检测仪表	6.87	6.38	55.17	63.64
离线预报模型	1.14	0.82	76.04	92.86
在线预报模型	0.94	0.67	84.38	93.85
本文方法	0.89	0.58	88.54	94.05

从表 4 可以看出, 浓度检测仪表的检测值与苛性碱浓度化验值之间的 RMSE 为 6.87, MAE 为 6.38, TPR 为 55.17%, TNR 为 63.64%, 本文提出的苛性碱浓度智能预报方法的预报值与苛性碱浓度化验值之间的 RMSE 为 0.89, MAE 为 0.58, TPR 为 88.54%, TNR 为 94.05%, 与浓度检测仪表相比, RMSE 降低了 87.04%, MAE 降低了 90.90%, TPR 提升了 33.37%, TNR 提升了 30.41%, 本文方法的苛性碱浓度预报精度明显高于离线预报模型和在线预报模型的预报精度. 本文方法的苛性碱浓度预报值与化验值的误差小于误差上界的比例是 94.61%. 对比实验结果表明, 本文所提苛性碱浓度智能预报方法不仅精度明显高于现场使用的苛性碱浓度检测仪表, 而且满足了氧化铝生产对苛性碱浓度的测量精度要求, 已成功应用于苛性碱浓度的闭环运行控制.

5 结论

本文利用氧化铝苛性碱浓度运行控制过程的特点,建立了由折光度和温度为输入的线性模型和未知非线性动态系统组成的苛性碱浓度预报模型,提出了由在线深度学习模型,自校正深度学习模型和自校正机制组成的未知非线性动态系统的智能预报方法。采用端边云协同方式提出了由苛性碱浓度在线智能预报模型和自校正深度学习模型组成的智能预报方法。实验结果表明所提方法的预报精度满足生产工艺对苛性碱浓度检测精度要求,为实现氧化铝苛性碱浓度的闭环运行优化控制创造了条件。

References

- 1 Fu Yan, Zhang Yang-Chun. *Alumina Plant Design*. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2008.
(符岩, 张阳春. 氧化铝厂设计. 北京: 冶金工业出版社, 2008.)
- 2 Ma Y, Preveniou A, Kladis A, Pettersen J. Circular economy and life cycle assessment of alumina production: Simulation-based comparison of Pedersen and Bayer processes. *Journal of Cleaner Production*, 2022: Article No. 132807
- 3 Guo Wan-Li. *Alumina Preparation*. Taiyuan: Shanxi People's Publishing House, 2006.
(郭万里. 氧化铝制取工. 太原: 山西人民出版社, 2006.)
- 4 Wang Yong-Gang, Chai Tian-You. On nonlinear control of evaporation process via simulation. *Control Engineering of China*, 2010, **17**(2): 127–130, 134
(王永刚, 柴天佑. 蒸发过程的非线性控制仿真研究. 控制工程, 2010, **17**(2): 127–130, 134)
- 5 Li D, Jiang K, Jiang X, Zhao F, Wang S, Feng L, et al. Improving the A/S ratio of pretreated coal fly ash by a two-stage roasting for Bayer alumina production. *Fuel*, 2022, **310**: Article No. 122478
- 6 Wu Z, Lv H, Xie M, Li L, Zhao H, Liu F. Reaction behavior of quartz in gibbsite-boehmite bauxite in Bayer digestion and its effect on caustic consumption and alumina recovery. *Ceramics International*, 2022, **48**(13): 18676–18686
- 7 Cheng L, Wang Y, Zhou Q, Qi T, Liu G, Peng Z, et al. Scale formation during the Bayer process and a potential prevention strategy. *Journal of Sustainable Metallurgy*, 2021, **7**(3): 1293–1303
- 8 Jin Y, Chen J, Xu L, Wang P. Refractive index measurement for biomaterial samples by total internal reflection. *Physics in Medicine and Biology*, 2006, **51**(20): 371–379
- 9 Mahdieu M, Nazari T. Measurement of impurity and temperature variations in water by interferometry technique. *Optik*, 2013, **124**(20): 4393–4396
- 10 Sun Yu-Mei, Liu Ruo-Chen, Wang Mei-Chun, Jia Zhen-Jiang, Chen Xiang-Guang. On-line automatic measuring system for total sugar content in chlortetracycline fermentation tank based on refraction method. *Editorial Office of Optics and Precision Engineering*, 2016, **24**(10): 287–293
(孙玉梅, 刘若晨, 王美春, 贾振江, 陈祥光. 基于折光法的发酵罐总糖含量在线自动测量系统. 光学精密工程, 2016, **24**(10): 287–293)
- 11 Tan C, Huang Y. Dependence of refractive index on concentration and temperature in electrolyte solution, polar solution, non-polar solution, and protein solution. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 2015, **60**(10): 2827–2833
- 12 Bai Ze-Sheng, Liu Zhu-Qin, Xu Hong. An experienced formula about the connection of refraction index and consistence of several liquid. *Journal of Yanan University (Natural Science Edition)*, 2004, (1): 33–34, 36
(白泽生, 刘竹琴, 徐红. 几种液体的折射率与其浓度关系的经验公式. 延安大学学报(自然科学版), 2004, (1): 33–34, 36)
- 13 Li Wei, Yuan Hong-Bing, Lian Zi-Sheng. Study on detection of emulsion density based on refractive index method. *Coal Technology*, 2015, **34**(4): 299–301
(李伟, 袁红兵, 廉自生. 基于折光法检测乳化液浓度的研究. 煤炭技术, 2015, **34**(4): 299–301)
- 14 MPR E-SCAN [Online], available: <https://electronmachine.com>, March 26, 2022
- 15 Yang T, Yi X, Lu S, Johansson K, Chai T. Intelligent manufacturing for the process industry driven by industrial artificial intelligence. *Engineering*, 2021, **7**(9): 1224–1230
- 16 Tang Shi-Jian, Li Xiao-Li. The comparison of different spent liquor evaporation processes in alumina production. *Light Metals*, 2013, (4): 17–20
(唐时健, 李晓莉. 氧化铝生产中不同母液蒸发流程的比较. 轻金属, 2013, (4): 17–20)
- 17 Yu Li-Yi, Jia Yao, Chai Tian-You. Intelligent setting control based on RBR for alumina evaporation process. In: Proceedings of the 31st Chinese Process Control Conference. Xuzhou, China: 2020. 40
(于力一, 贾瑶, 柴天佑. 基于规则推理的氧化铝蒸发过程智能设定控制. 第 31 届中国过程控制会议. 徐州, 中国: 2020. 40)
- 18 Chai T, Zhang J, Yang T. Demand forecasting of the fused magnesia smelting process with system identification and deep learning. *IEEE Transactions on Industrial Informatics*, 2021, **17**(12): 8387–8396
- 19 Ren Jun-Chao, Liu Ding, Wan Yin. Hybrid integrated modeling based adaptive nonlinear predictive control of silicon single crystal diameter. *Acta Automatica Sinica*, 2020, **46**(5): 1004–1016
(任俊超, 刘丁, 万银. 基于混合集成建模的硅单晶直径自适应非线性预测控制. 自动化学报, 2020, **46**(5): 1004–1016)
- 20 Liu Chang-Yuan, Li Wen-Qiang, Bi Xiao-Jun. Research on EEG emotion recognition based on RCNN-LSTM. *Acta Automatica Sinica*, 2022, **48**(3): 917–925
(柳长源, 李文强, 毕晓君. 基于 RCNN-LSTM 的脑电情感识别研究. 自动化学报, 2022, **48**(3): 917–925)
- 21 Krizhevsky A, Sutskever I, Hinton G. Imagenet classification with deep convolutional neural networks. In: Proceedings of the 25th Advances in Neural Information Processing Systems (NIPS). Lake Tahoe, Nevada, USA: 2012. 1097–1105
- 22 Srivastava N, Hinton G, Krizhevsky A, Sutskever I, Salakhutdinov R. Dropout: A simple way to prevent neural networks from overfitting. *Journal of Machine Learning Research*, 2014, **15**(1): 1929–1958

- 23 Ren L, Wang T, Laili Y, Zhang L. A data-driven self-supervised LSTM-deepfm model for industrial soft sensor. *IEEE Transactions on Industrial Informatics*, 2021, **18**(9): 5859–5869
- 24 Quan R, Zhu L, Wu Y, Yang Y. Holistic LSTM for pedestrian trajectory prediction. *IEEE Transactions on Image Processing*, 2021, **30**: 3229–3239
- 25 Han Y, Qi W, Ding N, Geng Z. Short-time wavelet entropy integrating improved LSTM for fault diagnosis of modular multi-level converter. *IEEE Transactions on Cybernetics*, DOI: [10.1109/TCYB.2020.3041850](https://doi.org/10.1109/TCYB.2020.3041850)
- 26 Kong F, Li J, Jiang B, Wang H, Song H. Integrated generative model for industrial anomaly detection via bi-directional LSTM and attention mechanism. *IEEE Transactions on Industrial Informatics*, DOI: [10.1109/TII.2021.3078192](https://doi.org/10.1109/TII.2021.3078192)
- 27 Klaus G, Rupesh K, Jan K, Bas R, Jürgen S. LSTM: A search space odyssey. *IEEE Transactions on Neural Networks and Learning Systems*, 2016, **28**(10): 2222–2232
- 28 Rumelhart D, Hinton G, Williams R. Learning representations by back-propagating errors. *Nature*, 1986, **323**(6088): 533–536
- 29 Yang J, Chai T, Luo C, Yu W. Intelligent demand forecasting of smelting process using data driven and mechanism model. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2018, **66**(12): 9745–9755
- 30 Basheer I, Hajmeer M. Artificial neural networks: Fundamentals, computing, design, and application. *Journal of Microbiological Methods*, 2000, **43**(1): 3–31
- 31 Simon R, Mark G. *A First Course in Machine Learning*. Boca Raton: CRC Press, 2011.
- 32 Rahmatian M, Chen Y, Dunford W, Rahmatian F. Incorporating goodness-of-fit metrics to improve synchrophasor-based fault location. *IEEE Transactions on Power Delivery*, 2018, **33**(4): 1944–1953



高愫婷 东北大学流程工业综合自动化国家重点实验室博士研究生。主要研究方向为复杂工业过程关键生产指标测量方法。

E-mail: 2110266@stu.neu.edu.cn

(GAO Su-Ting Ph.D. candidate at the State Key Laboratory of Synthetical Automation for Process Industries, Northeastern University. Her main research interest is measuring method of key production index in complex industrial process.)



柴天佑 中国工程院院士, 东北大学教授. IEEE Life Fellow, IFAC Fellow, 欧亚科学院院士. 主要研究方向为自适应控制, 智能解耦控制, 流程工业综合自动化与智能化系统理论、方法与技术. 本文通信作者.

E-mail: tychai@mail.neu.edu.cn

(CHAI Tian-You Academician of Chinese Academy of Engineering, professor at Northeastern University, IEEE Life Fellow, IFAC Fellow, and academician of the International Eurasian Academy of Sciences. His research interest covers adaptive control, intelligent decoupling control, and theories, methods and technology of synthetical automation and intelligent system for process industries. Corresponding author of this paper.)