

限值响应过程的超平面识别模型 ——顺丁橡胶聚合过程的优化研究

张未名 陈念贻

(中国科学院上海冶金研究所)

李再琮 李建平 茅仁杰

(上海高桥石化公司化工厂)

摘 要

本文基于模式识别之观点研究了顺丁橡胶聚合反应过程,直接在由输入参量构筑的空间中,根据最佳输入模式的聚类特征筛选关键控制量,按本征值分解法拟合聚合物 ML 值符合控制要求 45 ± 2 的模式代表点的分布结构,从而在新的坐标表象中以超平面识别模型优化控制聚合过程。

一、引 言

顺丁橡胶聚合过程是一复杂的多元系统,目前尚无法以宏观化学动力学理论建立能准确描述其内在规律的机理模型。因此需要在预先设定的约束条件内,以线性或低阶拟线性模型对系统作近似描述,实现对反应过程的最佳控制^[1,2]。橡胶聚合物优级品的门尼 (ML) 值需控制在 45 ± 2 的范围内,若按直接拟合输入-输出数据的经典系统分析方法^[3,4] 建立模型,则往往需要扩展研究的范围,在较大的散布空间中维持所经历的各种状态,并获得准确对应的输入-输出信息。但这就会在模型的建立和修正的过程干扰系统的正常运行,甚至由于长时间地维持界外的状态而造成许多劣质产品。

模式识别基于对同类模式数据结构特征上的相似性分析,以分割空间的方式辨认模式的类别^[5-7]。将其应用于化学反应过程的研究,可直接在筛选而得的有关输入量构筑的空间中,拟合具有高产优质输出结果的模式代表点于空间的分布结构,从而确立能对过程的输出进行预测和控制的有效模型。笔者基于模式识别之观点研究了顺丁橡胶聚合过程,根据模式在空间的聚类特征从 40 多个输入量中筛选出 5 个主要因素,以 FISHER 判别法^[8] 划分出优化状态的可能分布域,并由本征值分解法(或称 $K-L$ 展开,主成分分析等)^[9-11] 获得了优化输入模式的散布矩阵的本征信息,用嵌入优化模式分布层的超平面模型确立了聚合物 ML 值的高维识别系统。通过对各输入量作综合调节,使输入状态稳定

本文于 1986 年 10 月 20 日收到。

本文已被接受参加第八届 ICCCRE 国际会议。

于超平面 ± 0.03 的界面内,在不干扰正常生产的情况下实现了对顺丁橡胶聚合过程的离线优化控制,产品优级率提高约 20%,丁二烯转化率提高约 4.7%。

二、顺丁橡胶聚合过程分析

本工作所研究的顺丁橡胶聚合系采用镍催化体系的生产流程(图 1)。丁二烯和溶剂油在管道内按一定比例混合后送入预冷(预热)器,在出口加入铝镍老化液,并与稀硼溶液在聚合首釜底部相遇而进入串联的搅拌釜,使丁二烯连续进行定向聚合反应,得到顺式聚丁二烯的高聚物。由聚合末釜产出的胶液进入终止釜时,在终防剂作用下断开聚合链,然后顺丁胶液由终止釜送至后道工序处理。同聚合过程有关的数据主要来源于成品丁二烯和成品溶剂油的处理条件和分析数据,以及聚合反应系统本身的操作因素,可获得记录的有 40 多项,所需控制的产品质量指标为:(1) ML 值,(2)抗张强度,(3)300% 定伸强度,(4)扯断伸长率,(5)凝胶含量。原生产工艺由于无法综合大量变化中的信息,操作主要依据有关单个输入量变动的大小和方向对反应影响的经验知识,按分析结果反馈调节。因此输入状态在相当大的空间范围内变化,经常造成生产不稳定。

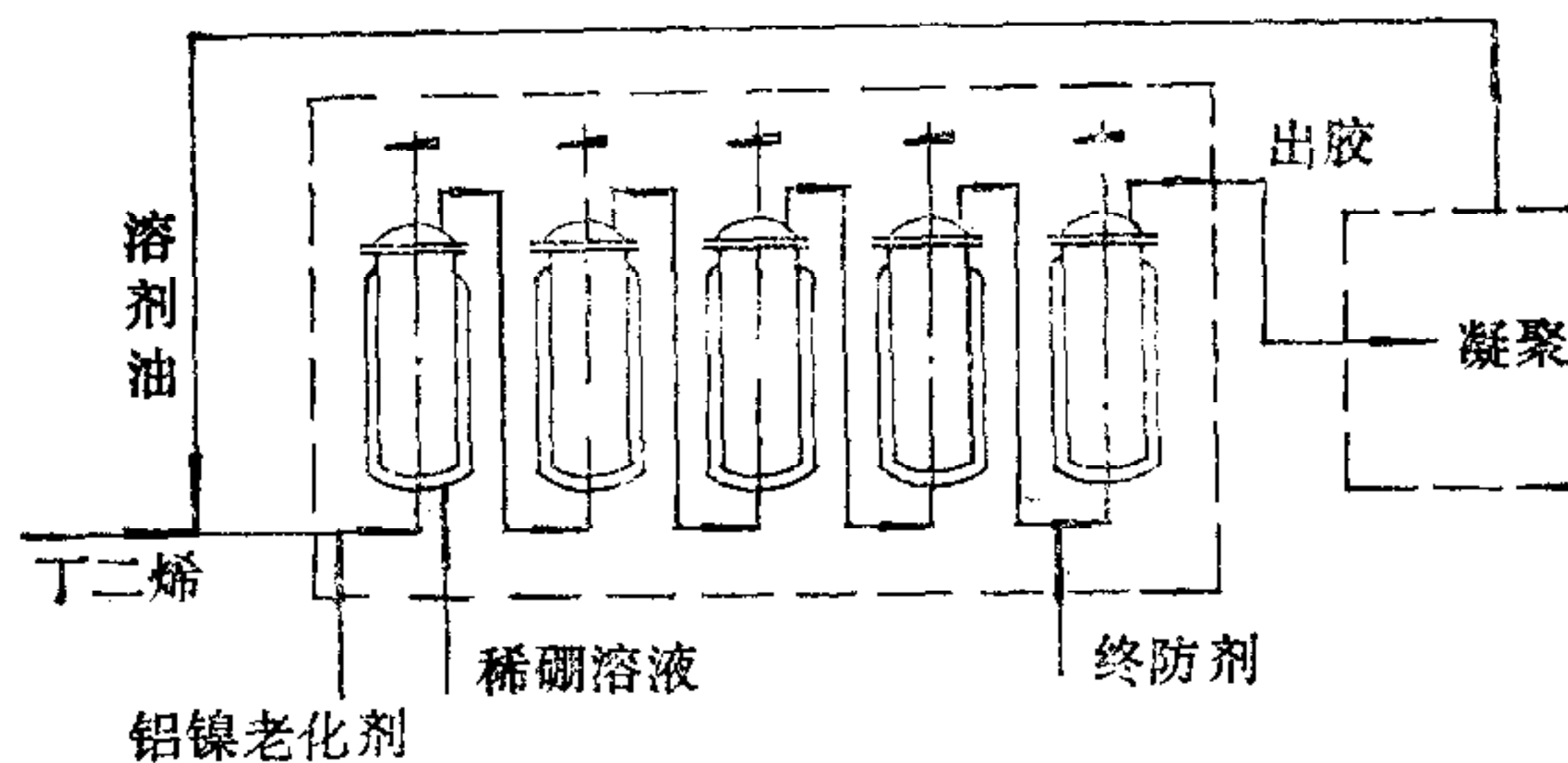


图 1 顺丁橡胶聚合流程示意图

根据对系统的模式识别分析结果,ML 值是一综合性质量指标。在正常的生产状况下,平稳反应产出的橡胶当 ML 值稳定在优级指标内时,其它物性指标一般亦能符合标准。但因橡胶聚合反应过程的滞后时间长,影响环节较多。若需确定与输出值的可靠对应态必须较长时间稳定输入状态,这只有对 ML 值为优级的状态才是许可的,否则将为了产生改进生产的信息反而造成许多产品降级,因而使收集的数据难以满足在当前状态的散布域内建立输入与 ML 值之间完整函数对应关系的要求。

三、模型与计算方法

1. 超平面识别模型

顺丁橡胶 ML 值与聚合物的分子量分布有关,在一定范围内应具有连续性,优级品 ML 值的控制范围是 45 ± 2 。该输出性质可同一个与 ML 值有关的 h -维特征空间中所存在的过渡分布层相联系,即符合控制限 45 ± 2 的模式代表点应落在某个具有一定“厚度”的超曲面之上,可表示为 $|f(\mathbf{x})| \leq d$ 。背离超曲面的两个发展方向分别对应于具有高或

低 ML 值的输入态之存在域,在预先设定的适当约束条件下,超曲面可由超平面作线性近似,超平面由法矢 $\mathbf{y} = (y_1, y_2, \dots, y_h)^t$ 确定(h 为空间的维数, t 表示矩阵或矢量的转置),任一输入模式 $\mathbf{x} = (x_1, x_2, \dots, x_h)^t$ 偏离超平面一侧的程度由矢量的内积 $y' = \langle \mathbf{x} - \mathbf{x}_0 | \mathbf{y} \rangle$ 度量(\mathbf{x}_0 指向平面上的坐标原点 o')。模糊分界面 $y' = \pm d'$ 对输入状态所对应的 ML 值是否符合控制要求具有最佳分辨率。当某些有关的可测不可控因素之变化造成状态偏离时,可在 y' 的指示下定向调节可测可控参量,使输入模式稳定于超平面上,进行优化控制。因此,确定一些与输出 ML 值稳定于 45 ± 2 控制限内相对应的输入状态,以超平面拟合其分布结构来建立控制模型是本方法的关键。

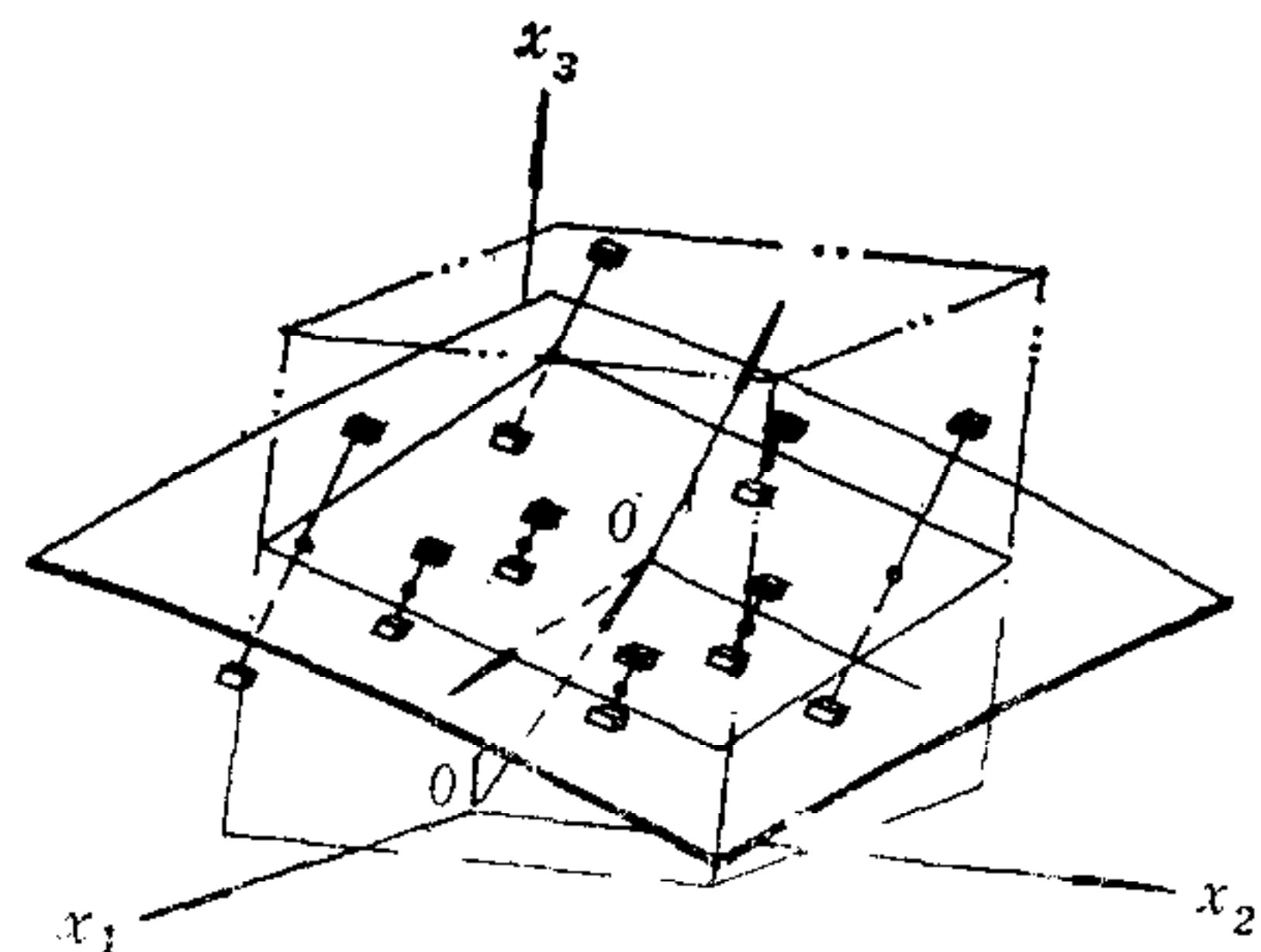


图2 超平面识别模型示意

2. FISHER 判别法优选输入模式

由于存在可测不可控的影响因素,故在系统运行过程中,若这些因素的变化造成输出结果超出控制限,就必需对输入状态进行干预。因此系统经常处在调节之中,难以在输入-输出信息之间建立起准确的对应关系。但由于一般仍能对与输入状态相对应的输出结果的发展趋势做出准确的判断,从而可对测量数据作以下划分:

$$G_1 = \{\mathbf{x} | \text{对应的输出肯定或可能有 } ML > 47\},$$

$$G_2 = \{\mathbf{x} | \text{对应的输出肯定或可能有 } ML < 43\},$$

$$G_3 = \{\mathbf{x} | \text{对应的输出稳定于 } 43 \leq ML \leq 47\}.$$

由 FISHER 判决矢量 \mathbf{p} 可以对子集合 G_1 和 G_2 中的模式的聚集特征作出识别,从而确定过渡分布层的空间位置,该判决矢量由下式确定:

$$\mathbf{p} = aW^{-1} \left(\frac{1}{\mathbf{x}^1} - \frac{1}{\mathbf{x}^2} \right). \quad (1)$$

这里, W 为类内散布矩阵, a 是使 \mathbf{p} 归一的常数。

$$W = \sum_{c=1}^2 W^c, \quad (2)$$

$$W^c = \sum_{\mathbf{x}_i^c \in G_c} (\mathbf{x}_i^c - \bar{\mathbf{x}}^c)(\mathbf{x}_i^c - \bar{\mathbf{x}}^c)^t, \quad (3)$$

$$\bar{\mathbf{x}}^c = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_c} \mathbf{x}_i^c. \quad (4)$$

其中, \mathbf{x}_i^c 表示第 i 个模式属于第 c 类,集合 G_c 中所含的模式数为 N_c 。

3. 本征值分解法建立超平面识别模型

在集合 G_3 中所包含的是稳定过程的优化状态模式,这些模式代表点的分布结构可通过选择适当的坐标表象而得以直观表示。即对原空间的基 $\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \dots, \mathbf{u}_3$ 作线性变换 \hat{T} 而产生新的基 $\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2, \dots, \mathbf{v}_h$,使在新的坐标表象中能剖视其聚集特征。实际上,当 ML 值符合控制限的输入模式分布于超平面化的薄层之中时,其法向的离散度为最小。为此可

按最小二乘法则对该分布作最佳拟合,由一组正交坐标系确定嵌入薄的分布层的超平面子空间.面的法向矢量是输入-输出关系的可靠估计量.

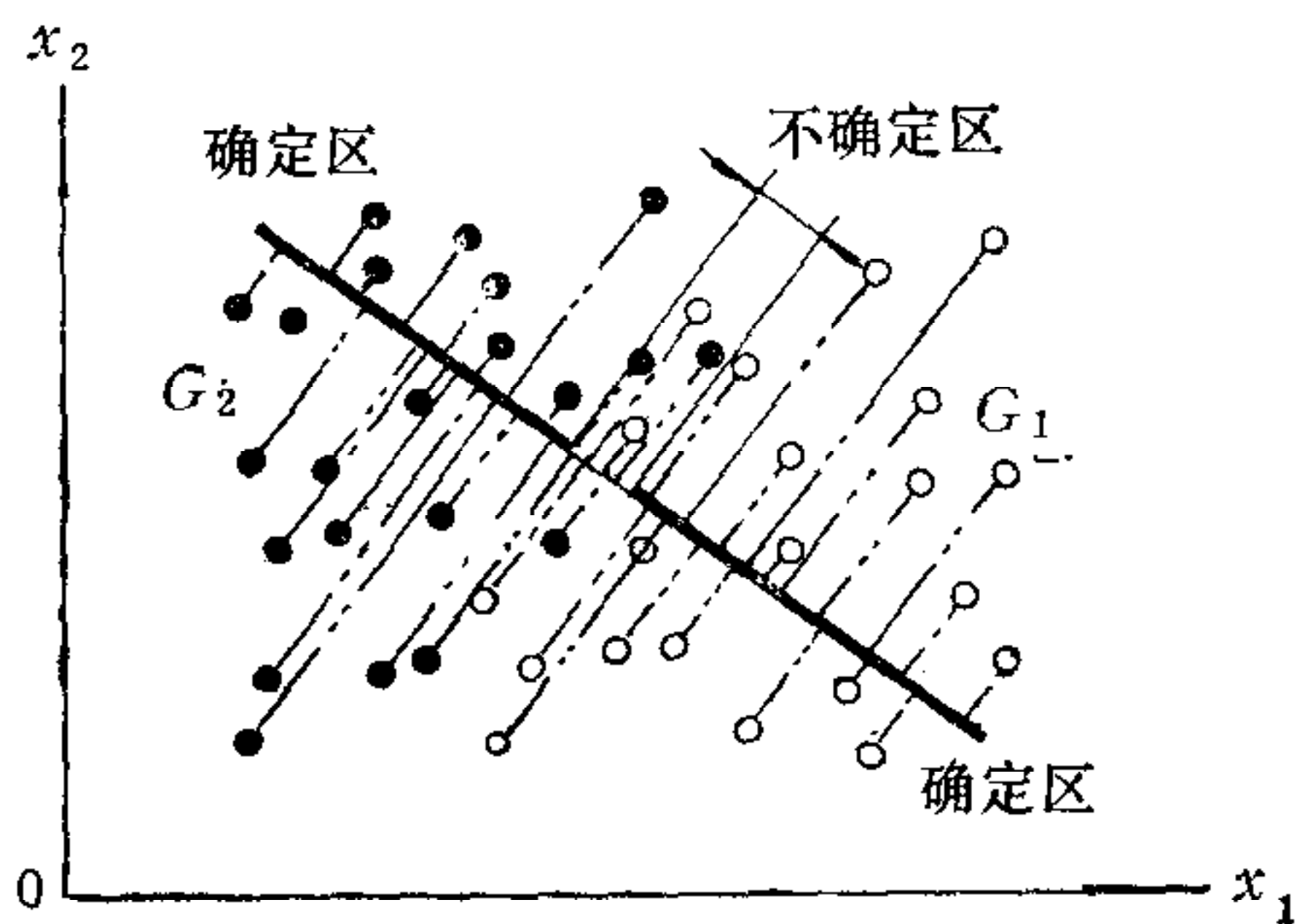


图3 判决面附近的不确定分布层

为了消除量纲的影响,引入标准化运算:

$$x'_{ij} = \frac{x_{ij} - \bar{x}_j}{\sigma_j}, \quad i = \overline{1, N}, j = \overline{1, h}, \quad (5)$$

其中 \bar{x}_j 和 σ_j 分别代表集合 G_3 中 \mathbf{x} 的平均值以及方差.满足以上要求的线性变换可以在使 G_3 中所有输入模式映射到各正交轴上的垂直距离平方和为最小的方式求得,此即

$$\min \left\{ T_r(S) - \sum_{i=1}^h \mathbf{v}_i^t S \mathbf{v}_i \right\}, \quad (6)$$

其中 S 为 G_3 中 \mathbf{x} 的散布矩阵, T_r 表示矩阵的求迹运算.

$$s_{ij} = \sum_{k=1}^{N_3} x'_{ki} x'_{kj}, \quad i, j = \overline{1, h}, \quad (7)$$

由式(6)则得本征值方程:

$$(S - \lambda I) \mathbf{v} = 0. \quad (8)$$

该方程可按雅可比法则求解,得一组本征值 $\{\lambda_i\} (i = \overline{1, h})$,经排布后有:

$$\lambda_{\max} = \lambda_1 \geq \dots \geq \lambda_h = \lambda_{\min}.$$

相应的一组正交归一的本征矢为 $\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2, \dots, \mathbf{v}_h$,将散布矩阵 S 按本征矢量 $\{\mathbf{v}_i\} (i = \overline{1, h})$ 展开^[13],常可得到如下分解式:

$$S = \sum_{i=1}^i \lambda_i \mathbf{v}_i \mathbf{v}_i^t + \lambda_k \mathbf{v}_k \mathbf{v}_k^t + \sum_{\substack{i=j+1 \\ (i \neq k)}}^h \lambda_i \mathbf{v}_i \mathbf{v}_i^t, \quad (9)$$

其中,第一部分拟合了超平面的最大散布信息,第二部分是面的法向散布的贡献,第三部分由噪声引起.根据对噪声来源的分析,可形成删除无关输入量或集中相关信息的判据.第一和第二部分对应的子空间中, \mathbf{v}_k 方向的本征值 λ_k 为最小,这与 G_3 中的输入模式在面的法向具有最小离散度的分布特征相联系,即 \mathbf{v}_k 确定了超平面的法矢.根据各输入量在 \mathbf{v}_k 上的载荷能够确定相互之间的协调关系,以及对输出结果的影响程度.这里,我们感兴趣的是与 ML 值有关的面的法向矢量,这是因为嵌入分布层的超平面所确定的输入状态与 ML 值的关系由模式矢量 \mathbf{x} 与超平面的法矢 \mathbf{v}_k 的内积表示.

四、计算结果

经过计算机模式识别对 97 组测量数据的处理,在由(1)丁二烯进料量,(2)溶剂油进料量,(3)铝催化剂进料量,(4)进料温度,(5)首釜下部温度五个输入量张成的空间中,确

立了超平面方程式. 各输入量的变化范围由生产工艺确定. 由图 4 可见, 聚合过程稳产优质的输入模式基本上落在各二维映射面上的一直线附近, 这正对应于模式空间中一个具有一定厚度的超平面. 由第五个本征值所对应的本征矢 $\boldsymbol{v}_5 = (v_0, v_1, \dots, v_5)^t$ (常量 v_0 亦作为一维) 定义:

$$\boldsymbol{v}_5 = (2.111, -0.661 \times 10^{-2}, -0.636 \times 10^{-2}, 3.737 \times 10^{-2}, 1.255 \times 10^{-2}, -2.397 \times 10^{-2})^t.$$

G_3 中的输入模式在 \boldsymbol{v}_5 方向的方差占总方差的比例为

$$r = \frac{\boldsymbol{v}_5^t S \boldsymbol{v}_5}{\sum_{i=1}^5 \boldsymbol{v}_i^t S \boldsymbol{v}_i} = \frac{\lambda_5}{\sum_{i=1}^5 \lambda_i} = 0.23\%.$$

这说明集合 G_3 中的输入模式分布于一薄层之中, 超平面的符合度较好.

输入模式 $\boldsymbol{x} = (1, x_1, x_2, \dots, x_5)^t$ (增广空间中) 在法矢 $\boldsymbol{v}_5 = (v_0, v_1, v_2, \dots, v_5)^t$ 上的得分可由矢量内积确定, 以度量输入模式相对于超平面的位置:

$$y' = \langle \boldsymbol{x} | \boldsymbol{v}_5 \rangle = \sum_{i=1}^5 x_i v_i + v_0. \quad (10)$$

以模糊分界面 $y' = \pm 0.03$ 分割出过渡分布层, 在该界限内识别稳态输入模式的准确率约为 93% (系统不受前道工序的干扰). $y' > 0.03$ 和 $y' < -0.03$ 分别对应于聚合物的 ML 值超出上、下限概率较多的区域, 与这两个区域相应的检验集中 $ML > 47$ 和 $ML < 43$ 模式的准确识别率为 84% 和 96%. 前者因在一阶段中, 系统输入不合格的溶剂油而使准确率有所下降. 由本征矢量 \boldsymbol{v}_5 的各载荷系数可知, 铝催化剂进料量和进料温度的系数符号与丁二烯进料量、溶剂油进料量和首釜下部反应温度的系数符号相反, 这与聚合反应的一般规律相一致. 当原料进料量因系统的要求而发生变化时, 调节铝催化剂可使状态保持在超平面上, 从而达到控制 ML 值的要求.

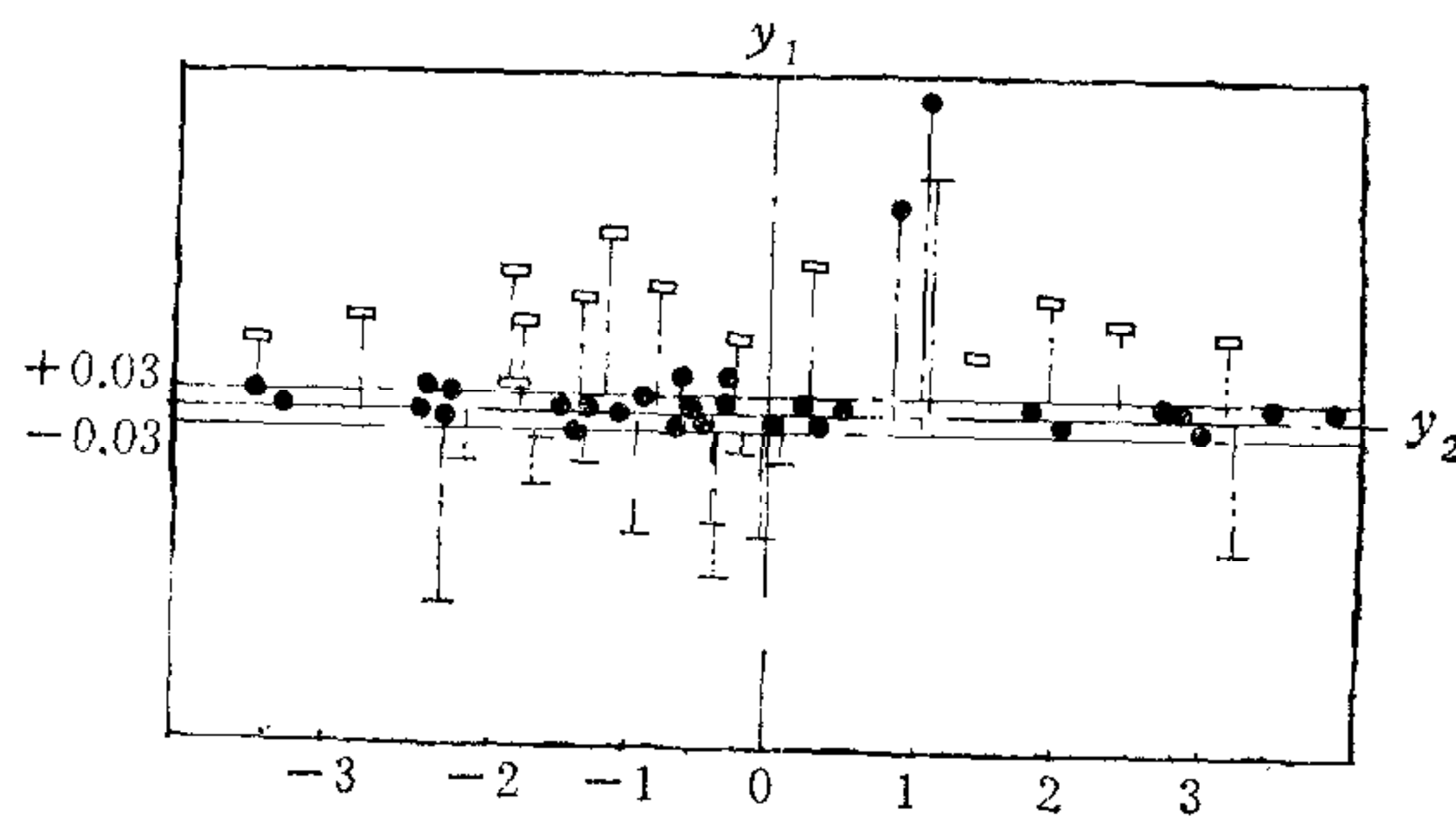


图 4 二维映照图(1—5 本征矢量)

“—”: $ML < 43$, “□”: $ML > 47$ “●”: $43 \leq ML \leq 47$.

五、过程优化控制

按所获得的超平面识别模型对 ML 值输出进行预测和控制, 根据 y' 值的变化和与

ML 的区域对应关系得到 y' 控制图(见图 5)。这样就可以对实际运行状态在高维空间所处的位置进行不断的监视,同时在系统偏离超平面优化界面时进行干预。在正常生产状况下,将操作设定于超平面的一些基点上进行,根据反馈信息适当修正设定条件,便能获得稳定的优质输出。若进料量需要改变,或模型中其它可测不可控因素(如首釜下部反应温度)发生变动时,则可协调其它参量,使变动轨迹沿超平面进行,平稳过渡到新的状态。

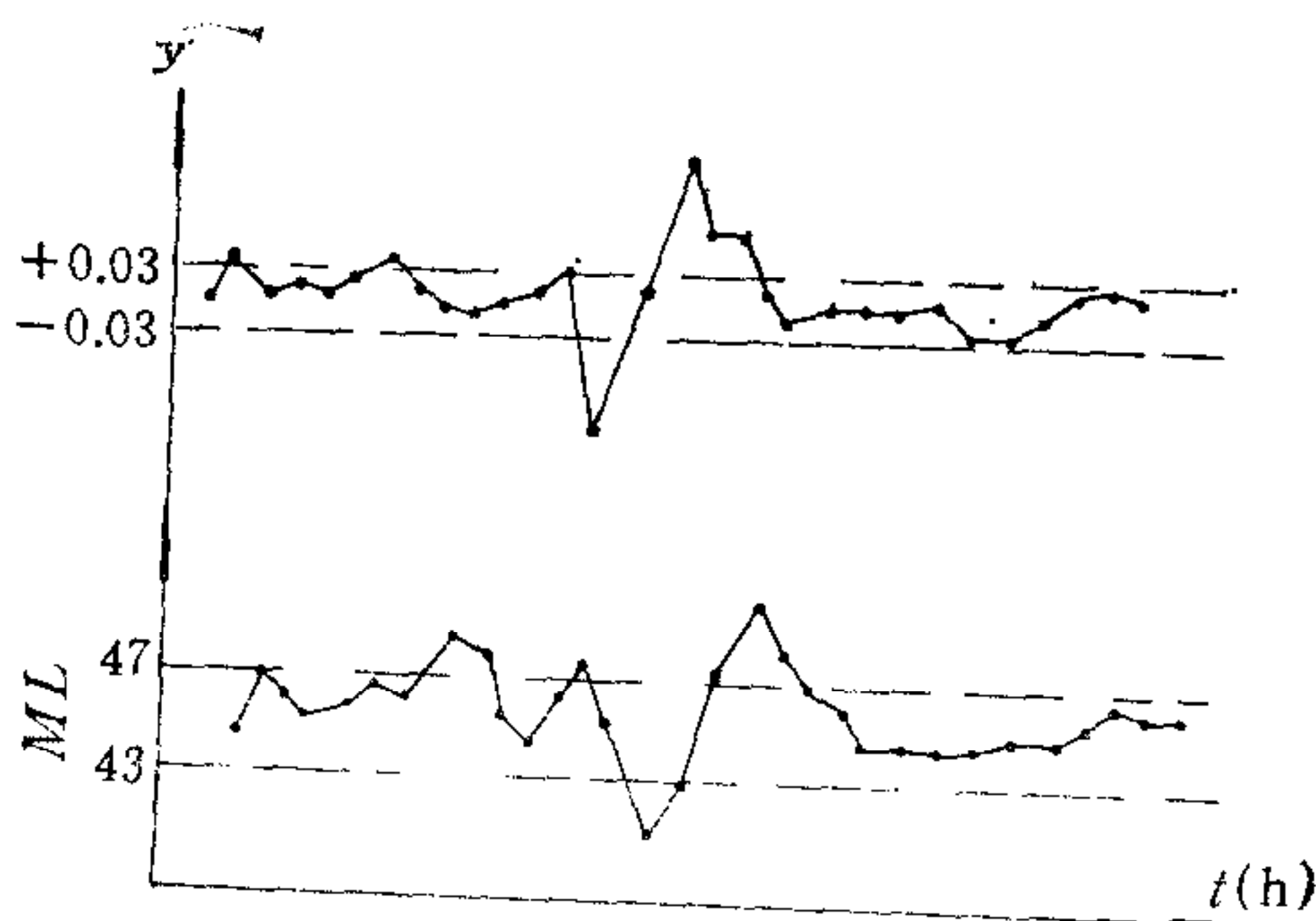


图 5 y' 与 ML 值控制图的对应关系(采样间隔为 2hr.)

生产系统正常时,以 $y' = \pm 0.03$ 为界限对稳定输入态的预测结果相当符合,系统可以在沿超平面实现状态改变时保持输出聚合物 ML 值的平稳性。前道工序送入不合格原料时,控制模型表现出失常,但依照模型可较快地给出反馈判据,消除干扰。这里按上述规则对过程进行离线优化控制。根据运转半年的统计数据,产品优级率提高约 20%,丁二烯转化率提高约 4.7%。

六、结 论

模式识别的判别分类方法可用以研究生产过程中化学反应的宏观动力学问题,通过对输入状态类特征的分析建立有效的区域模型。对于顺丁橡胶聚合物 ML 值在 45 ± 2 范围内的限值响应问题,为了保证正常生产过程,可以按本征矢量分解法,从拟合特定模式的分布结构出发建立输入-输出之间的联系,由小的本征值对应的本征矢所构成的 y' 控制图可建立高维识别系统,用以实现优化控制。

参 考 文 献

- [1] Ebert, K. H., Deuflhard, P., Jayer, W., Modelling of Chemical Reaction Systems, 337—354, Springer Verlag Berlin Heidelberg New York, 1981.
- [2] Schildknecht, C. E., Skeist, I., Polymerization Processes Wiley Interscience, New York, 1977.
- [3] Draper, N. R., Smith, H., Applied Regression Analysis, 2nd, ed., John Wiley and Sons, New York, 1981.
- [4] Danifel, C., Wood, F. S., Fitting Equations to Data, Wiley Interscience, New York, 1971.
- [5] Albano, C. et al., *ANAL. CHIM. ACTA*, 103(1978), 429.
- [6] Delaney, M. F., *ANAL. CHEM.*, 56(1984), 261.
- [7] Chien, Y. T., Interactive Pattern Recognition, Marcal Dekker, New York, 1978.
- [8] Foley, D. H., Sammon, J. W., An Optimal Set of Discriminat Vectors, *IEEE. Tras. on Comput.*; C-24, (1975), 281.
- [9] Jackson, J. E., *Journal of Quality Technology*, 12(1980), 201.

- [10] B. R., Kowalski, (ed), *Chemometrics: Mathematics and Statistics in Chemistry*, D. Reidel Publishing Company (1984), 17—95.
- [11] Wold, S., Pattern Recognition by Means of Disjoint Principal Components Models, *Pattern Recognition*, **8**, (1976), 127.
- [12] Varmuza, K., *Pattern Recognition in Chemistry*, Lecture Notes in Chemistry, 21, Bertin Heidelberg, New York, 1980.
- [13] Fukunaga, K., *Introduction to Statistical Pattern Recognition*, Academic Press (1972), 246—280.

A HYPERPLANE RECOGNITION MODEL FOR THE PROCESSES OF RESTRICTED RESPONSE —ON THE APPLICATION OF OPTIMIZING THE BUTADIENE RUBBER POLYMERIZATION PROCESS

ZHANG WEIMING CHEN NIANYI

(Shanghai Institute of Metallurgy, Academia Sinica)

LI ZAIZHONG LI JIANPING MAO RENJIE

(Gaoqiao Petrochemical Factory, Shanghai)

ABSTRACT

Based on the pattern recognition point of view, this paper concerns with the butadiene rubber polymerization process. The important manipulated variables were selected according to the clustering nature of the optimal input patterns in the pattern space. By fitting the distribution structure of optimal input patterns which have ML value of polymer satisfying the control limit 45 ± 2 , a hyperplane recognition model for ML value was built to optimize the polymerization process in the new coordinate representation system.