arXiv:2305.00710v3 [cs.CE] 7 Jul 2023

多保真数据驱动的反应器与管道仿真设计与分析

Tom Savage化学工程系 伦敦帝国学院 英国伦敦
trs20@ic.ac.uk

Nausheen Basha化学工程系 伦敦帝国学院 英国伦敦
n
ausheen.basha@imperial.ac.uk

Jonathan McDonough
工程学院 纽卡斯尔大学 英国纽卡斯尔
jonathan.mcdonough@ncl.ac.uk

Omar K Matar
伦敦帝国学院化学工程系，英国伦敦 o.matar@imperial.ac.uk

EhecatlAntoniodelRio Chanona*
伦敦帝国学院化学工程系，英国伦敦
a.
del-rio-chanona@imperial.ac.uk

摘要

优化复杂反应器几何结构对于提升效率至关重要。我们提出了一种框架，用于解决这一非线性、计算成本高且无需导数的问题。我们使用高斯过程学习反应器仿真的多保真度模型，以关联多个连续网格保真度。通过低保真度仿真探索反应器几何结构的搜索空间，并依据加权采集函数进行评估，在信息增益与成本之间权衡。在我们的 DARTS 框架中，我们推导出一种新的优化终止判据，确保在预算耗尽前返回高保真度解。我们研究了脉动流条件下螺旋管反应器的设计，这类反应器已展现出优异的混合特性。为验证结果，我们通过 3D打印制造最优反应器几何结构并进行实验验证，证实了其混合性能。我们的框架适用于各种计算成本高昂的基于模拟的优化问题，可支持新一代高参数化学反应器的设计。

1 引言

将原材料转化为有价值产品的过程始终不可或缺；随着市场不断扩大，从业者致力于寻找新颖且经济、环保的方案，以替代现有解决方案。在这些过程的核心，化学反应器长期以来一直是工业化学合成研究与优化的重点。然而，随着间歇过程逐渐转向连续化[42, 37], , 以及生物衍生化学品等特种产品具备工业化应用的可行性 [50],, 人们需要设计新颖且针对具体情况的反应器。

新型反应器构型日益受到化学合成领域的关注，例如微流控反应器 [8, 25], 和介观尺度反应器 [41]。微流控反应器能够实现对局部条件更精细的

预印本。审稿中。

控制，从而提高产物选择性，并改善传热性能，使工艺更加可持续 [8]。3D打印介观尺度反应器已被提出作为传统制造设计的下一代替代方案，其巨大的设计空间赋予了它们广阔的应用潜力。研究表明，用于生物柴油生产的3D打印反应器能够实现较高产率[41], ；此外，原本无法通过其他方式制造的螺旋盘管套盘管反应器也已被证明具有“出色的活塞流行为” [31, 28, 29]。

传统化学反应器的建模与设计在很大程度上一直被视为一门艺术 [15],，性能的微小提升也会对产品产率、可持续性和经济成本产生更广泛的影响。然而，新型反应器带来了新的希望，也因此需要新的分析技术，以便在日益复杂的设计空间中进行建模和优化。

人们通过计算流体力学（CFD）仿真研究化学反应器：在具有大量自由度的偏微分方程（PDE）系统中，通过迭代求解，导致计算成本高昂。除了成本高之外，实际上也无法获得梯度信息。在某些基于仿真的场景中，优化量可以直接从仿真中获得 [24]。因此，可以应用伴随方法推导梯度量，并将其用于基于梯度的局部优化方案，例如牛顿法或 BFGS [22, 33, 36]。然而，在化学反应器领域，性能通常通过一个次级量来量化。例如，对示踪剂通过反应器的过程进行仿真，随后再通过额外的拟合过程，根据浓度分布推导出一个值[2] [44]。因此，仿真的梯度实际上无法获取，必须采用无导数优化。

无导数优化在无法获得数学表达式或梯度的领域中得到了广泛应用。例如，专有化学过程软件的优化 [43, 4], 化学反应优化 [10], 实时优化 [51, 7], 以及二维化学反应器通道的拓扑优化 [5]。随着反应器设计中新技术的出现，反应器几何结构的参数化程度日益提高，导致无导数优化问题维度更高、复杂性更强。因此，亟需一种稳健且针对特定领域的方法，用于优化模拟化学反应器，以支持新一代可持续化学过程。

在许多真实和模拟的工程系统中，感兴趣量存在质量各异的评估方式。反应器性能可通过无量纲数的相关关系、计算流体力学模拟或中试实验来量化。这些方式都试图捕捉系统的真实潜在性能，但准确性各不相同，相关成本也有所差异。如果认为只有在预定工况下运行的工业规模反应器才能真正评估其性能，那么对此的任何近似，包括中试和实验室规模实验、仿真以及基础计算，都可视为有效的低保真度评估，并可同时用于设计与优化。对于反应器的计算流体力学模拟，保真度通常与模拟中的有限元单元数量相关，因为单元数量决定了准确性和计算成本。基于这样一种观点：所有预测得到但未经测量的量，均源自对目标高保真度函数的低保真度近似，因此有必要研究如何运用这些近似来了解所关注系统的真实情况。

本文旨在将模拟螺旋管反应器的设计表述为一个多保真度黑箱优化问题。我们提出了一种基于前期工作的创新方法，并通过将其应用于螺旋管反应器几何结构与操作条件的同步优化，展示了我们的反应器与管道模拟的设计与分析（DARTS）框架。为阐明我们的方法，我们推导出若干新准则，用于监测多保真贝叶斯优化的进展并确定其终止时机。我们的方法可扩展至大量基于仿真的设计问题；从独立保真度和决策变量的数量来看，我们这一与工业应用相关的案例也是多保真贝叶斯优化文献中规模最大的案例之一。最优反应器几何结构经过3D打印，并使用相应的最优操作条件进行了实验验证。

本文其余部分的结构如下。第2节介绍多保真贝叶斯优化方法的相关背景。第3节概述我们的方法，从问题设定开始，并详细介绍模拟属性、反应器参数化和保真度。我们

[2]例如，串联等效槽的数量 ies

随后详细说明我们针对模拟化学反应器的多保真贝叶斯优化方法。第4节介绍我们的结果，包括通过3D打印进行的实验验证。最后，第5节概述我们的结论和未来工作。

2 背景

2.1 符号约定

在本文余下部分中，我们采用以下记号。$\mathbf{x} \in \mathcal{X} \subseteq \mathbb{R}^n$ 表示决策变量或输入，其中 $\mathcal{X}$ 表示可行输入区域。类似地，$\mathbf{z} \in \mathcal{Z} \subseteq \mathbb{R}^m$ 表示保真度参数，定义在连续集或离散集 $\mathcal{Z}$内； m 可能大于 1，并且我们不限制可用连续/离散保真度的数量 [3]。为使这一区别更加清晰，当 $\mathbf{z} \in \mathbb{R}^1$时，我们用“普通”字体表示，即 z。当 $m > 1$时， $\mathcal{Z}$是一个无序集合。因此，按照 Kandasamy 等人 [21]的惯例，我们将 $\mathbf{z}_\bullet$ 记为最高保真度的分量向量。我们将待优化函数记为 f^*，它以 $\mathbf{x}$ 和 $\mathbf{z}$ 为参数，并返回目标值 y 及其对应的计算成本 c。在给定迭代 t时，先前评估过的输入、保真度和目标值的集合（对应于可用数据总数 D）记为 $\mathcal{D}_t := \{(\mathbf{x}_i, \mathbf{z}_i, y_i, c_i)\}_{i=1}^{D}$。在迭代 t 时，目标函数 f 的模型记为 f_t；在迭代 t 时，成本模型记为 λ_t。鉴于本文中 λ 和 f 将使用高斯过程建模，其均值和标准差分别记为 μ 和 σ，并按各自的模型标记。例如，对 f 建模的后验高斯过程的均值记为μ_{f_t}。

2.2 高斯过程

高斯过程是多元高斯分布[53]的无限维推广。均值向量和协方差矩阵分别由均值函数和核函数取代。高斯过程可描述为

$$f(x) \sim \mathcal{GP}(m(\mathbf{x}), k(\mathbf{x}, \mathbf{x}^{'})).$$

核函数 k 决定了该分布所对应函数的行为，并可由包括长度尺度在内的超参数进行参数化。将高斯过程基于数据集$\mathbf{X}_*$进行条件化后，可得到函数的后验分布。对于输入$\mathbf{X}$以及先前评估得到的函数值$\mathbf{y}$，后验预测均值和标准差为

$$\mu_f(\mathbf{X}) = K(\mathbf{X}, \mathbf{X}_*)K(\mathbf{X}, \mathbf{X})^{-1}\mathbf{y}$$
$$\sigma_f(\mathbf{X}) = K(\mathbf{X}_*, \mathbf{X}_*) - K(\mathbf{X}_*, \mathbf{X})K(\mathbf{X}, \mathbf{X})^{-1}K(\mathbf{X}, \mathbf{X}_*)$$

其中， K 是由核函数 k导出的协方差矩阵。能够得出解析概率预测这一特性，使高斯过程成为一种极具吸引力的建模框架。

2.3 贝叶斯优化

Bay叶斯优化是一种基于模型的方法，用于求解代价高昂的黑箱优化问题 -
tion 问题。黑箱优化问题表述如下

$$\mathbf{x}^* = \underset{\mathbf{x} \in \mathcal{X}}{\operatorname{argmax}} \ f(\mathbf{x}), \tag{1}$$

其中，黑箱函数 f 由决策变量 $\mathbf{x}$ 进行评估，并受集合 $\mathcal{X}$约束 .

求解 Eq.1 可以采用多种方法。其中包括直接方法，这类方法仅依靠函数评估来决定下一步选择哪个$\mathbf{x} \in \mathcal{X}$进行评估[23]。或者，基于模型的方法利用先前的函数评估来学习一个关于 f 的模型 $\hat{}\hat{}\hat{}f$。鉴于评估 f 的成本通常低于评估 f，且根据设计可以获得 f 的梯度评估，因此可以对 f 进行有效优化，并据此选择下一个点。与直接方法相比，基于模型的方法在函数评估方面效率更高，

[3]按照“多保真度”的传统命名惯例，当 $m > 1$时，这类方法也可以称为“多重多保真度”，不过本文仍沿用传统惯例。

并且适用于 f 计算成本高昂、且每次评估都需要获取大量信息的情况 [23, 51, 52, 2]。

在贝叶斯优化中，会根据潜在解的初始数据集 [13]，将高斯过程训练为 f 的代理模型。随后，根据 f 的期望值和预测方差来选择下一个待评估点，因为高斯过程能够给出函数值的后验概率分布。方程 2 展示了用于选择下一个采样决策变量 x_{t+1} 的置信上界（UCB）准则：

$$\mathbf{x}_{t+1} = \underset{\mathbf{x}\in\mathcal{X}}{\operatorname{argmax}}\ \mu_{\hat{f}_t}(\mathbf{x}) + \beta^{1/2}\sigma_{\hat{f}_t}(\mathbf{x}), \tag{2}$$

其中，$\beta^{1/2}$ 是控制探索（σ）与利用（μ）之间权衡的超参数。研究者还提出并应用了其他采集函数，包括改进概率 [3], 、期望改进 [47], 和熵搜索 [18]。Garnett [13] 对其他贝叶斯优化方法进行了出色的综述。

近年来，人们开发了针对贝叶斯优化的领域特定改进，从而提升了其在特定应用中的表现 [34, 14, 12]。例如，有研究提出了其他形式，以适用于可并行进行函数评估的场景，从而带来更大的信息增益，并有望加快收敛速度 [14, 3, 35]。针对贝叶斯优化的其他领域特定改进，还包括适用于以下场景的方法：评估与先前评估结果相距较远的决策变量会产生额外成本 [12], ；此外，人们也开发了适用于高维 [9], 和多目标 [6] 贝叶斯优化的多种方法。

2.4 多保真贝叶斯优化

多保真方法利用一种或多种评估成本较低、但可能有偏且不确定性更高的函数评估。正确利用这些信息有助于加速设计与优化。在多保真度情境下，式 1 中给出的黑箱优化问题变为

$$\mathbf{x}^* = \underset{\mathbf{x}\in\mathcal{X}}{\operatorname{argmax}}\ f(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet), \tag{3}$$

其中，保真度参数 $\mathbf{z}$ 可能会影响函数评估的准确性和成本，无论是计算成本还是其他成本。式 3 强调了针对最高保真度$\mathbf{z}_\bullet$进行优化的重要性，因为该系统被视为“最真实”的系统。为求解式 3 而开发的多保真贝叶斯优化算法已应用于多个领域 [21, 17, 48, 11, 44, 39,54, 1]。这些方法都有一个共同特点：每次迭代都需要选择$\mathbf{x}$ 和$\mathbf{z}$ 。如何权衡所获得的信息与所付出的开销来做出这些选择，是多保真贝叶斯优化算法的关键方面。

Savage 等人 [44]在一种设定中应用了一种算法，其中单个离散保真度参数决定成本与信息之间的权衡，并采用深度高斯过程（DGP）对每种离散保真度下的目标函数进行建模。DGP 公式以及其他依赖序贯多保真模型的多保真贝叶斯优化公式，本质上都局限于离散保真度。同样，由于建模方面的限制，无法考虑多个独立保真度。Savage 等人 [44]建议，使用离散多保真贝叶斯优化方法时，应将保真度数量控制在 2 或 3 个。增加算法可用的保真度数量，可能会使多保真度模型更加复杂、难以训练，并可能降低其对设计空间的描述准确性。此外，为了获得用于优化的初始数据集，必须在每种离散保真度下进行仿真。随着离散保真度数量增加，所需的初始仿真也会增多，从而降低整个算法的效率。

Kandasamy 等人 [21] 假设输入和保真度均在连续空间中平滑变化，并使用单个高斯过程在联合空间 $\mathcal{Z}\times\mathcal{X}$中对二者进行建模。因此，该建模方法将 $\mathbb{Z}$视为连续形式或连续近似，而不将问题局限于离散保真度。通过在联合空间中对多保真度数据进行建模，不同保真度能够影响其他保真度下的目标预测。采用两步法来选择$\mathbf{x}_{t+1}$ 和 $\mathbf{z}_{t+1}$。首先，在最高保真度条件下执行标准的上置信界（UCB）步骤，以选择决策变量。为了选择$\mathbf{z}_{t+1}$，作者创建了一组候选保真度 $\mathcal{Z}_{t+1}$。

从该集合中，选择成本最低的保真度作为 $\mathbf{z}^{t+1}$。此方法可以优化由任意数量的连续保真度参数化的函数。然而，随着保真度数量增加，候选保真度 $\mathcal{Z}_{t+1}$ 的选择会更加困难，因为 $\mathcal{Z}$ 的大小呈指数级增长。此外，该方法假设给定保真度下模拟的成本 $\lambda(\mathbf{z})$ 与 $\mathbf{x}$ 无关。

He 等人 [17] 假设函数评估的成本同时是$\mathbf{x}$ 和$\mathbf{z}$的函数，并展示了一个合金铸造有限元热流体动力学模型的案例研究，每次模拟大约需要 10 分钟才能完成。为解决多保真度优化问题，作者提出了一个由模拟成本加权的增广采集函数。然而，所考虑的所有案例研究均为 2、3 或 4 维，并且每个案例研究仅包含一个离散保真度参数。同样，在获得结果时，作者放宽了$\mathbf{x}$ 影响 λ 的假设。Thodoroff 等人 [49]提出了一种成本调整准则，用于在冰盖模拟实验设计的背景下，在单个步骤中同时选择$\mathbf{x}_t$ 和$\mathbf{z}_t$。$\mathbf{x}$ 和$\mathbf{z}$ 在ˆ联合空间中由单个高斯过程 $f(\mathbf{x}, \mathbf{z})$建模。模拟成本被单独建模为$\mathbf{x}$ 和$\mathbf{z}$的函数，其中$\mathbf{x}_t$ 和$\mathbf{z}_t$ 在单个步骤中进行选择。实验设计准则经过修改，以便按模拟成本对预期信息增益进行加权；如果成本 λ 是$\mathbf{x}$ 和$\mathbf{z}$的函数，则必须在同一步骤中选择决策变量和保真度。Serani 等人 [45] 在计算流体力学领域内应用多保真度优化解决基准问题，包括翼型和船体设计。Huang 等人 [19]将一种基于贝叶斯优化的技术应用于顺序训练的多保真度模型，以优化金属成形有限元模拟。March 等人 [27] 使用信赖域方法对典型翼型设计问题执行多保真度优化。Mansour 等人 [26] 采用遗传算法方法优化不含脉冲流动条件的盘管反应器几何形状。该工作假设单一模拟保真度，而生成一个结果需要超过两周。

本文基于先前关于模拟化学反应器最优设计与运行的研究展开。我们的贡献主要有三点。首先，我们提出了一种新颖的框架（DARTS），用于对成本高昂的反应器和管式模拟进行多保真贝叶斯优化。我们的方法会在每次迭代时，根据经成本调整的预估信息密度选择一种模拟保真度，总体目标是在给定时间预算的前提下优化最高保真度。此外，该方法还采用了一种新颖的停止准则，以确保返回高保真度解。其次，我们将该框架应用于一个具有工业相关性的实际问题：同时优化模拟脉动流螺旋管反应器的几何形状和操作条件。与大多数方法不同，我们的框架允许将模拟成本建模为模拟保真度和决策变量的函数。我们还考虑了两种独立保真度，即模拟的轴向和径向单元数量，并将二者均视为联合连续变量。第三，我们使用实验数据验证了方法中的假设。我们对最优几何形状进行3D打印，并在相应的最优脉动流操作条件下进行评估，从而验证了框架的性能以及我们的多保真度模型。我们的方法可扩展至大量潜在的设计与优化问题，涵盖从微尺度到工业级反应器的各种应用。我们公开了全部代码，以促进研究的可复现性。

3 方法

3.1 参数化

螺旋管反应器由盘管半径、盘管螺距和反转参数化。盘管螺距（记为 ϕ）控制螺旋管的延展程度，盘管半径（记为 ρ）控制螺旋管内盘管的紧密程度，而反转参数（记为 δ）控制盘管方向的变化。研究表明，螺旋管反应器中的反转能够有效改善混合特性，见 McDonough 等人 [31]、Rossi 等人 [40]、Singh 和 Nigam [46]； δ 的取值介于 0 和 1 之间，用于指定盘管上发生反转的位置。盘管长度保持固定，因此所有参数化盘管的体积均相同。在参数化过程中，我们还为盘管设置了固定长度的入口和出口。入口和出口均为水平走向，并采用平滑插值，确保从入口到盘管、再从盘管到出口的过渡平滑。图 1 展示了本文采用的参数化方式。

反应器入口流的雷诺数为 50，预计此时发生的混合相对微弱。因此，需要叠加振荡速度，以便在

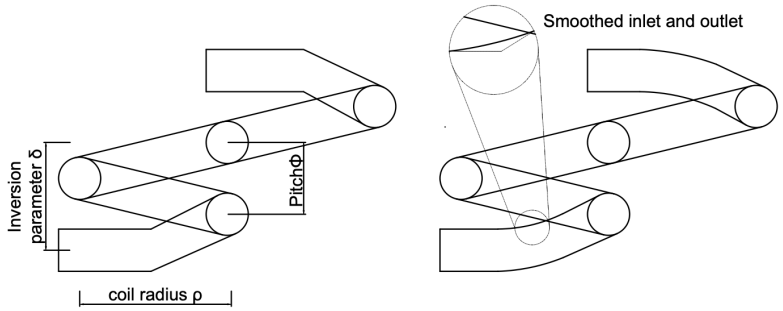


图 1：左侧：盘管半径、螺距和反转参数对给定盘管的影响侧视图，另有水平入口和出口。右侧：对带有水平入口和出口的盘管进行参数化时，我们基于各点的二次插值加入平滑过渡。

广泛的平推流条件下运行 [31]。振荡速度 v_o 通过表示振荡幅度 a 和频率 f的参数实现。振荡速度定义为

$$v_o = 2\pi f a \sin(2\pi f t).$$

在优化过程中，我们将振荡参数与设计参数一同调整。

3.2 保真度

除几何设计和振荡参数外，模拟输出还受到一个或多个保真度$\mathbf{z}$的影响。计算流体力学模拟中常用的一种保真度是网格中包含的离散有限元数量，也称为单元数量。由于瞬态涡结构的形成与消散会影响轴向和径向混合，脉动流螺旋管反应器中的流体行为十分复杂。因此，高质量模拟需要同时捕捉模拟分辨率：既要覆盖管道全长的轴向分辨率，也要覆盖管道横截面各处的径向分辨率。在本研究中，我们不将单元数量作为单一标量保真度参数，而是保留轴向和径向分辨率的独立调整能力，从而得到两种独立保真度。我们采用一种定制网格划分过程，使轴向保真度和径向保真度能够独立变化。作为最高保真度$\mathbf{z}_\bullet$ 的模拟，对应于轴向和径向保真度均达到最大值的情况。尽管在有限元语境下，轴向和径向保真度均为离散值，我们仍将其视为连续参数。生成网格时，两种保真度的取值都会四舍五入到最接近的整数。在求解计算流体力学问题时，有多种求解器选项可视为有效保真度。然而，由于其中许多选项取非连续值或布尔值，我们将其集成留待未来工作。

图 2 展示了轴向保真度对最终网格的影响，并概述了网格划分过程。在所有径向保真度设置下，入口和出口壁面附近的网格密度均有所提高，以减少可能损害计算流体力学解准确性的数值扩散误差。图 3 展示了径向保真度对最终网格的影响，并通过创建块结构网格概述了网格划分程序。我们对壁面附近的网格进行细化，以更好地捕捉边界层以及影响流动特性的速度梯度。

3.3 模拟

为了评估给定的反应器网格和一组操作条件，使用开源代码 OpenFOAM [20] 进行模拟。将脉冲示踪剂作为标量场从入口注入反应器，并持续至 $t = 0.15$ s；介质为水。通过 scalarTransportFoam 求解对流扩散方程，追踪示踪剂的浓度。在此，将扩散系数设为常数，取较小值 $1\times e^{-10}\ m^2/s$，因为液体中的扩散速度较慢，且以对流为主。由于引入了随时间变化的振荡速度，因此使用压力-速度耦合的瞬态 pimpleFOAM 求解器求解非定常动量方程。pimpleFOAM 求解器通过“Solver♀♀♀♀♀♀

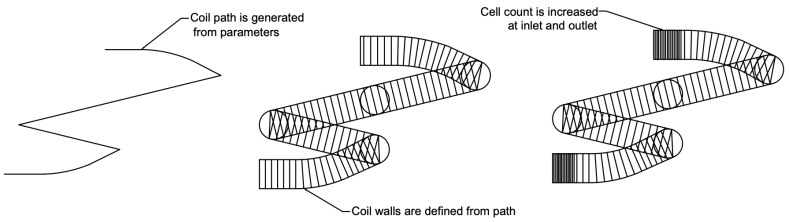


图 2：基于轴向保真度的盘管网格划分程序侧视图。首先，根据几何参数定义一条中心路径。随后，沿着该路径定义圆（管道横截面），其数量取决于轴向保真度。最后，通过增加圆的数量，提高入口和出口壁面附近的网格密度，从而更准确地追踪示踪剂浓度。

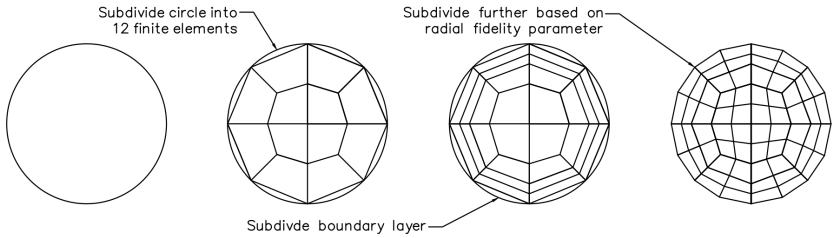


图 3：网格的径向横截面。首先，创建一个粗略的有限元拓扑。随后，增加管壁附近的单元数量，以便更好地捕捉边界层附近流体流动的影响。最后，根据径向保真度值进一步细分网格。

函数对象（Function Objects）。计算单元上的对流通量采用二阶离散格式进行计算，以确保解的数值精度。通过 swak4Foam 库 [16]使用 groovyBC 边界条件施加振荡速度。该振荡速度与稳态速度一起，以 Hagen-Poiseuille 抛物线速度分布的形式在入口处进行初始化，从而缩短流动发展所需的线圈长度并降低计算成本。此外，通过监测出口处的示踪剂浓度来终止求解；当示踪剂浓度连续 10 次迭代低于 $1\times e^{-7}$ 时，即执行终止操作。这种基于输出的可变提前停止准则加速了优化过程，不同于其他研究中采用固定迭代次数作为终止条件的方法 [26], ，但它也为模拟成本引入了另一种时间依赖性。该 OpenFOAM 求解器通过 PyFOAM Python库与优化算法集成。

PyFOAM 返回的模拟输出是一组反应器出口处的浓度值及其对应时间。这代表了反应器的停留时间分布。为了将该分布转换为单一的优化目标，需要将其转换为等效的串联全混流釜数量， N。首先，将时间和浓度值分别转换为无量纲量， θ 和 $E(\theta)$。方程 4 展示了如何将 $E(\theta)$表示为 θ 和 N [31]的函数：

$$E(\theta) = \frac{N(N\theta)^{N-1}}{(N-1)!}e^{-N\theta}. \tag{4}$$

通过对 N、 E（θ）和 θ进行拟合，得到 N 的取值。拟合可基于最小二乘误差（L_2 范数）进行；不过，我们发现，由于非理想性以及推导式 4 时所作的假设，采用最大预测值与模拟结果返回的最大值之差进行拟合，效果更为稳健。因此，估算的串联槽数 N^* 计算如下：

$$N^* = \arg\max_N \left| \max\left[E(\theta)\right] - \max\left[\frac{N(N\theta)^{N-1}}{(N-1)!}e^{-N\theta}\right] \right|. \tag{5}$$

图4展示了根据两组实验数据拟合 N 的值，并利用公式 5 得出的 $E(\theta)$ 与 θ 的关系。

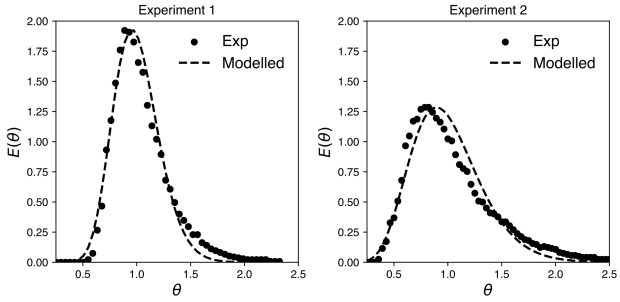


图4：实验停留时间分布与根据公式 4 给出的理想串联釜关系所建模的停留时间分布之间的关系，其中串联等效釜数的值由公式 5 得出

本文代码中包含所用的案例文件。尽管当前案例研究的是两种不发生反应且互溶、流体物理性质相同的液体的流动，该模型也可扩展至流体物理性质不同、以多相流形式建模的问题，或扩展至包含反应、未来可将化学动力学与计算流体力学模拟耦合的问题。

3.4 多保真贝叶斯优化

除了取决于模拟保真度之外，模拟成本还取决于化学反应器模拟域中的 $\mathbf{x}$。可变步长计算流体力学求解器与提前停止准则都会影响 $\mathbf{x}$ 如何影响模拟成本，尤其是在对操作条件进行优化的情况下。因此，无法采用 Kandasamy 等人[21] 提出的两步法：先选择 $\mathbf{x}$，再选择 $\mathbf{z}$；这是因为第二步中权衡信息与成本的过程会取决于 $\mathbf{x}$。因此，我们采用与 He 等人 [17] 和 Thodoroff 等人 [49]最为相似的方法，通过使用成本调整采集函数，在单一步骤中权衡信息增益与成本。为此，使用两个独立的高斯过程分别对优化目标 $\mathbf{y}$ 和ˆ 次仿真的成本 $\mathbf{c}$ 进行建模，f 和 λ分别对应二者。成本调整采集函数如下：

$$\mathbf{x}_{t+1}, \mathbf{z}_{t+1} = \underset{(\mathbf{x},\mathbf{z})\in\mathcal{X}\times\mathcal{Z}}{\operatorname{argmax}} \frac{\mu_{\hat{f}_t}(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet) + \beta^{1/2}\sigma_{\hat{f}_t}(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet)}{\gamma\mu_{\lambda_t}(\mathbf{x}, \mathbf{z})\sqrt{1 - k((\mathbf{x}, \mathbf{z}), (\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet))^2}}. \tag{6}$$

右侧分子表示在最高保真度下预期获得的信息，因为这才是我们关注的系统（$\mathbf{z} = \mathbf{z}_\bullet$）。分母则用该模拟的预测成本对预期信息加权，从而使较低保真度的解也能被选中。术语 $\sqrt{1 - k((\mathbf{x}, \mathbf{z}), (\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet))^2}$量化了在较低保真度下进行评估时损失的信息量。参数 γ 用于权衡较低成本的解与其所提供的信息之间的吸引力，而 $\beta^{1/2}$ 则按照 UCB 贝叶斯优化中的常见做法，对探索与利用之间的权衡进行加权。然而，采用成本调整采集函数时，并不能保证会选择高保真度模拟进行评估。我们将在下一小节讨论如何解决这一问题。

3.5 停止准则

在传统贝叶斯优化中，计算预算耗尽时，函数评估便会终止，并选择已评估数据点中目标函数值最高的点作为最终解。在多保真框架中，这一标准包含微妙的细节。由于关注的底层函数为 $f(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet)$，返回的最优解应是已评估函数值最高的点，其中 $\mathbf{z} = \mathbf{z}_\bullet$。在整个优化过程中，$f(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet)$ 通过较低保真度的模拟进行最大化，但无法保证会选择最高保真度的模拟进行评估。为在两步法中解决这一细节，Kandasamy 等人 [21]纳入了一些标准，以确保在某些情形下，优先选择$\mathbf{z}_\bullet$ 而非较低保真度。当

$f(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet)$ 已经“尽可能充分”地完成优化，并获取了最多的信息，但计算预算尚未耗尽，因此需要进行一次最高保真度的函数评估，以确保返回有效的最终解。因此，我们提出了贝叶斯优化的多保真度停止准则概念。返回最终最高保真度解的三个关键准则如下：

1. 该解无需通过权衡均值与方差来生成（如标准采集函数所做的那样），因此，既然它将是最终评估，就可以采用贪心方式生成。2. 该解应作为最后选定的解，以充分利用最多的信息。3. 必须有足够的剩余时间来评估该解。

根据决策者的倾向，第三项标准可以放宽，最终解也可以在未经评估的情况下返回。然而，我们假设有效解必须在真实高保真度函数上经过评估，其中$\mathbf{z} = \mathbf{z}_\bullet$。在每次迭代中，通过求解下式获得这一贪心的、可能作为最终解的解：

$$\mathbf{x}_g = \arg\max_{\mathbf{x}\in\mathcal{X}} \mu_{\hat{f}_t}(\mathbf{x}, \mathbf{z}_\bullet). \tag{7}$$

其中，$\mathbf{x}_g$ 是满足最终解第一项标准的解。为确保遵循第二项和第三项标准，我们将评估$\mathbf{x}_g$的成本以及评估$\mathbf{x}_{t+1}$的成本与剩余时间或计算预算进行比较。由于模拟评估成本是通过高斯过程建模的，我们同时采用均值和标准差，从而得到各项评估成本的概率上界。公式 8 详细说明了评估下一个探索性解以及贪心高保真解所需的最长时间。

$$c_{\max} = \underbrace{\mu_{\lambda_t}(\mathbf{x}_{t+1}, \mathbf{z}_{t+1}) + p_\lambda \sigma_{\lambda_t}(\mathbf{x}_{t+1}, \mathbf{z}_{t+1})}_{\substack{\text{Predicted maximum cost of}\\ \text{next 'standard' evaluation}}} + \overbrace{\mu_{\lambda_t}(\mathbf{x}_g, \mathbf{z}_\bullet) + p_\lambda \sigma_{\lambda_t}(\mathbf{x}_g, \mathbf{z}_\bullet))}^{\substack{\text{Predicted maximum cost of}\\ \text{high-fidelity 'greedy' evaluation}}} \tag{8}$$

其中，p_λ 是对标准差进行加权的参数，使结果能够更加保守，并确保以更高的概率评估$\mathbf{x}_g$。如果 $c_{\max}$ 的值大于剩余的评估预算，则应将（$\mathbf{x}_g$，$\mathbf{z}_\bullet$）作为最终解进行评估。否则，应按通常方式评估（$\mathbf{x}_{t+1}$，$\mathbf{z}_{t+1}$），因为很有可能有足够的剩余时间同时进行标准评估和贪婪评估。

此外，由公式 7 的解返回的目标值，$\mu_{\hat{f}}$（$\mathbf{x}_g$，$\mathbf{z}_\bullet$），为监测多保真贝叶斯优化的进展提供了一个代理指标。由于不同保真度下的函数值无法进行直接比较，因此该指标使实践者能够观察优化进展。算法 1 展示了我们针对多保真贝叶斯优化所采用的方法。

4 结果

为了有效比较不同的反应器几何结构，给定螺旋盘管的长度固定为 75mm，管半径固定为 2.5mm。这确保设计空间内的所有反应器具有相同的体积，因此可以比较不同解之间等效的串联全混流釜数量。

4.1 参数化

参数根据物理上可实现的数值以及实验装置的约束所规定的范围，设定了合理的边界。参数 δ、ϕ和 ρ 的取值范围分别为0-1、7.5-15mm和3-12.5mm，而脉动流振幅、频率和雷诺数的取值范围分别为1-8mm、2-8 Hz和10-50。这些

算法 1： 用于模拟化学反应器的多保真贝叶斯优化

输入： 剩余预算 Λ，输入范围 $\mathcal{X}$，保真度范围 $\mathcal{Z}$，目标函数 f，数量初始样本数量 D，探索参数 $\beta^{1/2}$，成本参数 γ，核函数 k。

输出： $\mathbf{x}^*$，y^*

$\mathcal{D} = \{(\mathbf{x}_i, \mathbf{z}_i, y_i, c_i)\}_{i=1}^{D}$ // 通过 DoE 创建初始数据集

当 $\Lambda > 0$ **时**

  $\hat{f}_t \sim \{\mathcal{GP}(\mathbf{0}, k((\mathbf{x}, \mathbf{z}), (\mathbf{x}', \mathbf{z}'))\,|\mathcal{D}\}$ // 使用 $\mathcal{D}$训练目标函数 GP

  $\lambda_t \sim \{\mathcal{GP}(\mathbf{0}, k((\mathbf{x}, \mathbf{z}), (\mathbf{x}', \mathbf{z}'))\,|\mathcal{D}\}$ // 使用 $\mathcal{D}$训练成本 GP

  $\mathbf{x}^{t+1}$，$\mathbf{z}_{t+1} \leftarrow$ 方程 6 // 求解成本调整的上置信界

  $\mathbf{x}_g \leftarrow$公式 7 // 求解贪心高保真问题

  $c_{max} \leftarrow$公式 8 // 估算两次评估的最大预算

  如果 $\Lambda > c_{max}$ **then**

    $y_{t+1}, c_{t+1} = f(\mathbf{x}_t, \mathbf{z}_t)$ // 计算成本调整的上置信界解

  else

    $y_g, c_g = f(\mathbf{x}_g, \mathbf{z}_\bullet)$ // 计算贪心高保真解

    $\mathbf{x}^* \leftarrow \mathbf{x}_g$

    $y^* \leftarrow y_g$

    return $\mathbf{x}^*$，y^*

  end if

  $\Lambda \leftarrow \Lambda - c_{t+1}$ // 更新剩余预算

  $\mathcal{D} \leftarrow \mathcal{D} \cup (\mathbf{x}^{t+1}, \mathbf{z}^{t+1}, y_{t+1}, c_{t+1})$ // 更新数据集

结束 while 循环

这些边界确保管道不会发生自相交，否则将导致无约束问题。图 5、6、7 分别展示了 δ、ϕ 和 ρ 对螺旋盘管几何形状的影响。给定一组参数和保真度后，网格使用 Python 中基于 classy blocks 库的自定义网格生成方案生成，该库可在 https://github.com/OptiMaL-PSE-Lab/pulsed-reactor-optimization/ 获取。

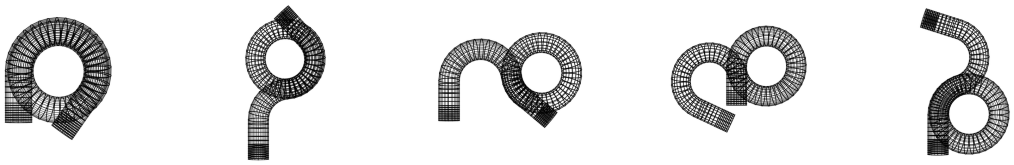


图 5：固定长度螺旋盘管的反转参数 δ 的影响，俯视图。从左至右：δ 取值分别为 0、0.15、0.3、0.6 和 0.75，盘管半径和螺距保持不变。



图 6：固定长度螺旋盘管的螺距 ϕ 的影响，侧视图。从左至右：ϕ 从 7.5 mm 变化至 15 mm，盘管半径和反转位置保持不变。

最低轴向保真度和径向保真度分别为 1 和 20，相应的最高保真度分别为 5 和 60。图 8 展示了在设计参数集固定的情况下，轴向和径向保真度对最终网格的影响。

4.2 模型验证

为了深入了解在固定几何形状和操作条件下，模拟保真度对 $f(\mathbf{x}、\mathbf{z})$ 准确性的影响，我们采用五种离散保真度进行了模拟

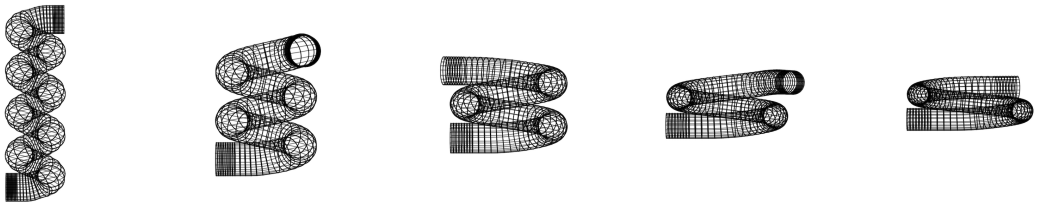
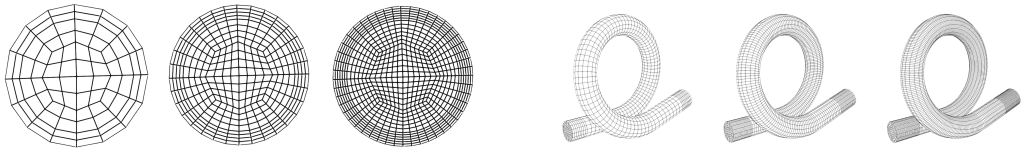


图7：固定长度螺旋盘管的盘管半径 ρ 的影响，侧视图。从左到右： ρ的取值从3mm变化到12.5mm，同时保持反转位置和螺距不变。

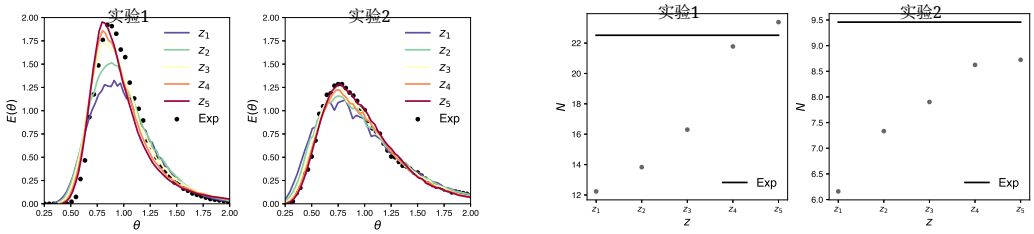


(a) 径向截面，显示此处的径向保真度取值为 *1*、*3* 和 *5*。

(b) 轴向保真度下完整反应器网格的视图取值为 *20*、*40* 和 *60*。

图 8：轴向和径向保真度对螺旋管反应器几何结构的影响示例 .

针对固定的 $\mathbf{x}$ 进行模拟，并与实验数据进行比较。在多保真度研究中，实验测量本身也可以视为可用的最高保真度评估。不过，我们将这一扩展留待未来工作，并继续假设最高保真度模拟是我们关注的函数。经验证的保真度组合为 $\{(z_{\text{axial}} = 20、\ z_{\text{radial}} = 1)、(z_{\text{axial}} = 30、\ z_{\text{radial}} = 2)、(z_{\text{axial}} = 40、\ z_{\text{radial}} = 3)、(z_{\text{axial}} = 50、\ z_{\text{radial}} = 4)、(z_{\text{axial}} = 60、\ z_{\text{radial}} = 5)\}$。图 9 展示了采用这五种选定保真度组合的模拟所得示踪剂浓度分布，并将其与两组实验数据进行了对比。实验数据来自一台 3D打印反应器，其长度为 75.3mm、盘管半径为 12mm、盘管螺距为 10mm，且未发生反转。实验采用脉动流操作条件，频率为 5 Hz，雷诺数为 50；两组实验的区别在于流动振幅分别为 2mm 和 4mm。根据各自得到的停留时间分布，分别计算了两组实验的等效串联釜数实验值，记为 N。



（a）五种保真度组合下示踪剂脉冲的出口浓度分布，并与实验数据进行对比；保真度从最低（$\mathbf{z}_1$）到最高（$\mathbf{z}_5$）。 E（θ）表示无量纲浓度随无量纲时间 θ的变化。

（b） N 对应于每种保真度下的浓度分布，在五种选定的保真度组合中的取值。随着整体保真度从$\mathbf{z}_1$ 提高到$\mathbf{z}_5$, ，实验推导得到的 N值ˆN 得以恢复。

图9：在不同条件下，针对两组实验数据验证了五种离散网格保真度，这些网格保真度对应不同的单元格数量。

图9还展示了整体保真度（因此也包括单元数量）提高时，基于各个浓度分布得出的 N 实验值会得到更准确的逼近。对于两项实验，整体保真度提高时， N 趋近于 N 的方式表明，$f(\cdot,\ \mathbf{z})$ 平滑变化。保真度对 f 的影响是平滑的，这一信息验证了如下假设：$\mathbf{z} \in \mathcal{Z}$ 平滑且连续变化，因此可以应用高斯过程作为多保真度模型。

根据算法 1 的前几个步骤，我们生成一个由解组成的初始数据集 $\mathcal{D} = \{(\mathbf{x}_i,\ \mathbf{z}_i,\ y_i,\ c_i)\}_{i=1}^{D}$。为此，我们采用拉丁超立方试验设计方案 [32]，以最大化初始信息增益，共生成 25 个解（$D = 25$）。这一初始数量是一个超参数。在多保真度贝叶斯优化中，如何在各变量和保真度之间分配初始样本，以及多少样本才算合理，仍有待研究，我们将此留待未来探讨。每次迭代开始时，我们将所有输入和输出归一化，使其均值为零、标准差为 1。在评估解之前，我们会将输入重新缩放回其对应的物理量。初始时，我们将公式 6 的超参数设为 $\gamma = 1.5$ 和 $\beta = 2.5$，并在公式 8 中设定 $p_\lambda = 2$，从而得到具有 95% 置信度的最大成本预测。我们设定的最大计算预算为 64 小时，不包括用于采样初始解的预算，不过也可以将其纳入其中。图 10 展示了 64 小时内的优化进展。初始解的生成时间及其目标值以负的迭代次数和实际运行时间表示。因此，优化本身从迭代 0 和实际运行时间 0 开始。

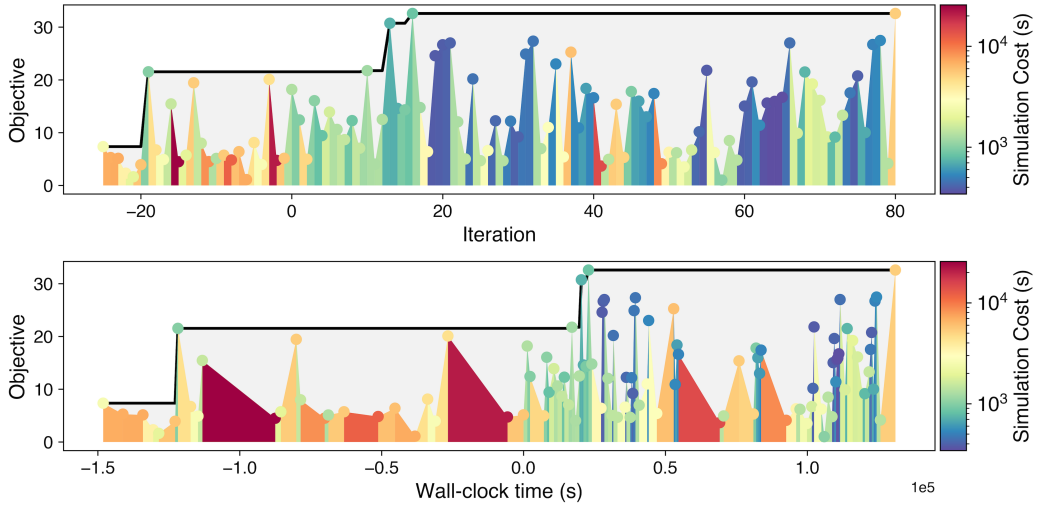


图 10：评估的等效串联釜数，颜色表示相应的模拟成本。图的上半部分展示这些量随迭代次数的变化，下半部分展示这些量随实际运行时间的变化，凸显了低成本模拟的重要性。

图中绘出了用于生成初始解数据集的模拟，并将其标记为在迭代次数和时间均为 0 时结束。优化开始后，可以看到搜索空间通过一系列低成本模拟得到探索。由于假设不同保真度下的目标函数值存在偏差，因此目标值无法直接进行同类比较。不过，图 10 展示了算法的推进过程。

图 11 展示了优化过程中评估的轴向保真度与径向保真度组合，以及各自的模拟成本。通常，采用较低径向和轴向保真度的模拟成本较低。然而，由于这种关系也取决于反应器几何结构和操作条件，一些低保真度模拟的成本反而较高。该框架倾向于在五个离散径向保真度值下，评估轴向保真度处于较低区间的模拟。这表明，具有不同轴向保真度的模拟之间的相关性，高于具有不同径向保真度的模拟之间的相关性。轴向保真度上的方差较小，会使采集函数倾向于较低的轴向保真度值，因为较高的相关性有助于获取有关最高保真度的信息。最终的高保真度解位于图 11 右上角，即各分量均处于最高保真度的位置。图 12 展示了优化过程中跟踪的各项量，以确保返回该解。

每项模拟的实际评估成本通常都低于其预测最大成本，只有少数模拟例外。因此，可以验证用于建模模拟成本的高斯过程是准确的。当剩余时间低于执行一次标准迭代和一次贪心最终迭代所需的最大预测时间时，便会评估贪心

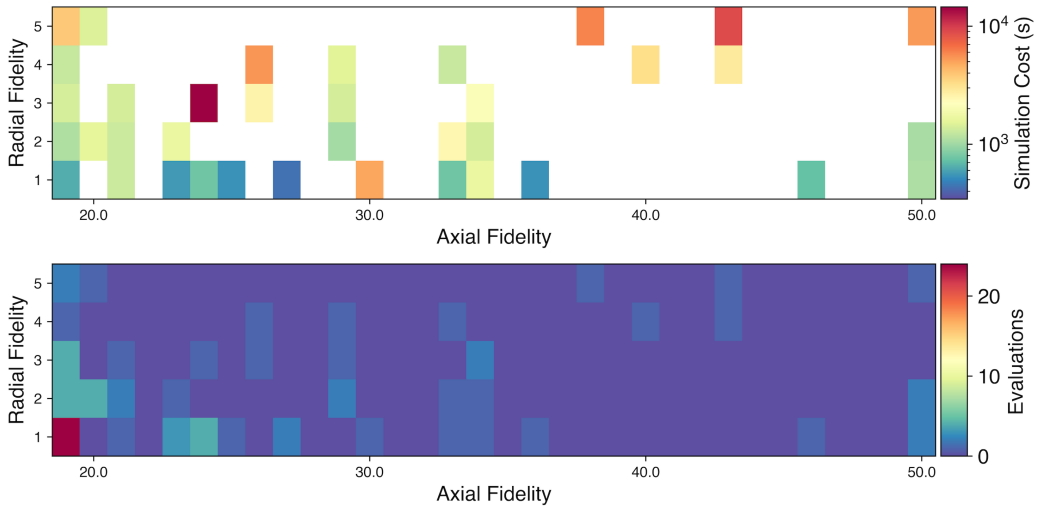


图 11：在 $\mathcal{Z}$ 中优化过程中所选取的保真度。上图展示了各保真度对应的平均模拟成本。由于我们采用连续近似的离散保真度，因此下图展示了每种离散保真度被评估的次数。结果证实，模拟成本不仅取决于保真度，还取决于$\mathbf{x}$，因为 $\mathcal{Z}$中的模拟成本并无明显分布。

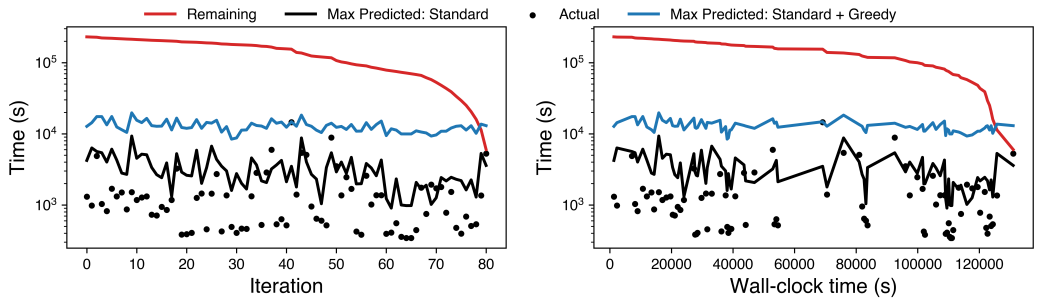
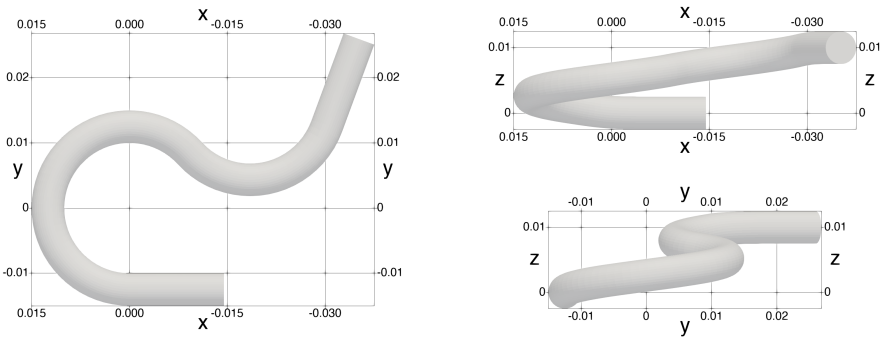


图 12：完成一次“标准”迭代的最大预测时间，与完成一次标准迭代和一次贪心迭代的最大预测时间、实际仿真时间以及剩余时间的对比。当蓝线高于黑线时，必须执行一次贪心迭代，因为剩余预算不足以同时进行一次贪心评估和一次标准评估。

解，并终止算法。图13展示了优化结束时返回的高保真度解。最优线圈几何结构的螺距为 1.04 cm，半径为 1.25 cm，反转位置在线圈长度的 66% 处。与之对应的最优操作条件为脉动流，振幅为 1 mm，频率为 2 Hz，雷诺数为 50。

图14突显了最优反应器在单个振荡周期内的特定流动行为。流线以示踪剂浓度着色，以显示示踪剂在盘管中的移动。在振荡周期的正向阶段，示踪剂以流线型方式向出口方向流动。重要特征始于振荡周期的负向阶段，此时二次流开始出现。图中显示了横截面流线因线圈弯曲处的离心力而转变为Dean型涡旋。这些反向旋转的Dean型涡旋促进示踪剂与水介质之间的径向混合，并使示踪剂充分混合至计算域壁面附近；没有留下示踪剂死区。此外，伴随反向流动，负向振荡周期内形成的旋流运动会将流动重新导向切向方向，从而限制示踪剂的轴向弥散。这种组合



Fig图 13：从不同视角观察最优反应器几何结构。最优几何结构 y
con包含一次反转。

促进径向混合并抑制轴向混合的效果，使活塞流性能较高。对于振幅为 1 mm、频率为 2 Hz 的情况，这种流动循环具有周期性，并且模拟会持续进行，直至示踪剂离开计算域。

图 13 和图14 所示的最优构型中，出口前的反转有助于维持迪恩涡结构，直至流体流出计算域。而在标准构型中，靠近出口的迪恩涡可能会逐渐消失。此外，反转有助于释放被困在涡旋之间的高浓度示踪剂，使其进一步进行径向混合。因此，这种构型通过反转增强了径向混合，从而实现了最优的活塞流性能。

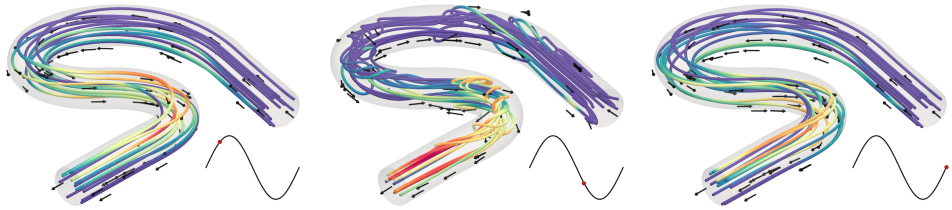
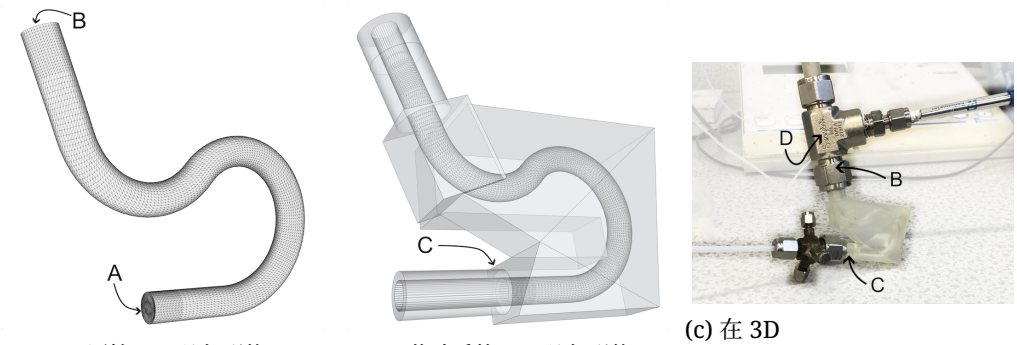


图14：流线显示了最优反应器内示踪剂浓度在持续 0.5 秒的单个振荡脉冲期间的变化。随着振荡速度从正值变为负值，迪恩涡形成，并促进径向各处的混合。盘管内的反转也使这些涡旋沿径向移动，从而增强混合特性。

4.3 解的验证

最优反应器几何结构导出为 STL 文件格式，并通过添加包围盒以赋予零件体积，将其修改为可进行 3D打印的模型。入口和出口处的直管段分别配有外径为 8 mm 和 10 mm 的管接头，以便连接实验装置；随后修剪包围盒，以减少打印所需的树脂量。入口区域还延长了 20 mm，以提供额外的充分发展长度，确保实验尽可能贴合仿真中使用的抛物线型入口速度。使用 FormLabs Form3+打印最优几何结构，采用 Clear V4 树脂和默认设置。后处理包括在 IPA 中清洗 20 分钟、干燥 24 小时，并在 FormCure 中以 60°C 后固化 30 分钟。图15展示了原始 STL 文件、修改后的几何形状以及打印出的几何结构。

我们采用了 McDonough 等人报道的相同停留时间分布方法 [31]。简而言之，通过向几何形状中注入 0.1 M KCl 水溶液示踪剂，并测量出口处电导率随时间的变化，测得停留时间分布。去离子水的净流量、振荡和示踪剂注入分别由三台 OEM 注射泵（C3000，TriContinent）控制；这些泵通过一段穿过定制 Swagelok接头的聚四氟乙烯管与反应器进行液压连接（如图



(a) 原始 STL 几何形状　(b) 修改后的 STL 几何形状　(c) 在 3D 打印的几何形状。

图15：通过增材制造，并在脉动流操作条件下运行，对最优反应器配置进行实验验证。

图15c 所示）。为尽量降低该 Swagelok接头内部混合不充分的影响，示踪剂在 C 点（图15）注入，即额外 20 mm 入口直管段之后；为此，聚四氟乙烯管穿过该接头（详情请参见 McDonough 等人 [31] ）。

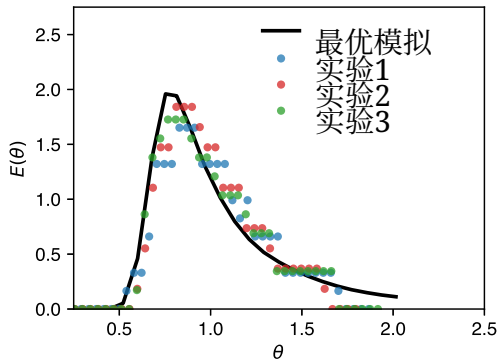


图 16：框架给出的最优高保真度解通过计算流体力学模拟预测的停留时间分布，以及使用3D打印反应器获得的 3 组实验数据。

图 16 展示了预测的停留时间分布，以及使用 3D打印的最优反应器在相应操作条件下获得的 3 组实验数据。我们推测，停留时间分布方法是对目标混合性能进行低保真度近似的另一个例子。首先，由于众所周知的阶梯效应，打印出的几何结构并非完全光滑；这种增强的粗糙度（壁面摩擦）会因方向变化而在盘管周围有所不同。其次，电导率探头的位置略微偏于模拟所用出口端面的下游（图15c 中的 D 点）。作为参考，在模拟中，示踪剂从 A 点注入，并在 B 点测量（图15a）。尽管如此，模拟得到的最优停留时间分布与实验中所有三次重复测量得到的“预期”分布高度吻合，表明用于指导优化过程的计算流体力学模拟具有良好的准确性。这使我们有理由相信，优化过程的输出对于在真实环境中运行的反应器几何结构具有实际意义。

5 结论与未来工作

在本文中，我们将螺旋管反应器的设计表述为一个多保真度黑箱优化问题。我们展示了一个通用框架，该框架利用不同质量的仿真，通过多保真贝叶斯优化来改进反应器模拟的优化。我们通过将该框架应用于优化螺旋管反应器的几何结-

何几何结构和操作条件。通过以获得高保真度解这一具体目标为框架提供依据，我们推导出了一种新的判据，用于监测多保真贝叶斯优化的进展并决定其终止时机。我们证明，该判据能够在计算预算耗尽之前获得高质量的最终解。随后，我们对最优反应器几何结构和操作条件进行3D打印，并通过实验验证其性能。我们的方法可扩展至大量基于仿真的设计问题。未来的工作将致力于应用该框架，研究其他反应器参数化方案以及更长系列的反应器。此外，我们还将优化不同的性能指标，以探究针对不同指标进行优化的反应器参数化方案之间的差异。

致谢

作者谨此感谢英国工程与自然科学研究委员会通过 PREMIERE（EP/T000414/1）提供的资助。Tom Savage 感谢帝国理工学院校长奖学金的支持，并感谢 Ilya Orson Sandoval 就本研究提供了有益的讨论。

参考文献

[1] Batra, R.、Pilania, G.、Uberuaga, B. P. 和 Ramprasad, R.（2019）。利用机器学习进行多保真信息融合：氧化铪中掺杂剂形成能的案例研究。*ACS Appl.Mater. Interfaces*，11(28)：24906–24918。[2] Boukouvala, F. 和 Ierapetritou, M. G.（2012）。使用自适应采样克里金方法对黑箱过程进行可行性分析。*Comput. Chem. Eng*，36：358–368。[3] B.Shahriari、Swersky, K.、Wang, Z.、Adams, R. 和 de Freitas, N.（2016）。将人类排除在循环之外：贝叶斯优化综述。*Proc.IEEE*，104(1)：148–175。[4] Caballero, J. 和 Grossmann, I.（2008）。一种在模块化流程图优化中使用代理模型的算法。*AIChE journal*，54(10)：2633–2650。[5] Cai, H.、Guo, K.、Liu, H.、Liu, C. 和 Feng, A.（2021）。利用格子玻尔兹曼方法对流道设计进行基于无导数水平集的多目标拓扑优化。*Chem.Eng.Sci.*，231：116323。[6] Daulton, S.、Eriksson, D.、Balandat, M. 和 Bakshy, E.（2022）。高维搜索空间上的多目标贝叶斯优化。载于 Cussens, J. 和 Zhang, K.（编），人工智能不确定性第三十八届会议论文集，第180卷，机器学习研究论文集，第507–517页。PMLR。[7] del Rio Chanona, E. A.、Petsagkourakis, P.、Bradford, E.、Graciano, J. E. A. 和 Chachuat, B.（2021）。实时优化与贝叶斯优化及无导数优化相结合：修正器自适应的故事。*Comp. Chem. Eng.*，147：107249。[8] Elvira, K.、i Solvas, X. C.、Wootton, R. 和 deMello, A.（2013）。微流体反应器技术在化学合成中的过去、现在与潜力。*Nat.Chem*，5(11)：905–915。[9] Eriksson, D.、Pearce, M.、Gardner, J.、Turner, R. 和 Poloczek, M.（2019）。通过局部贝叶斯优化实现可扩展的全局优化。载于 Wallach, H.、Larochelle, H.、Beygelzimer, A.、d'Alch´e-Buc, F.、Fox, E. 和 Garnett, R.（编），神经信息处理系统进展，第32卷。Curran Associates, Inc。[10] Felton, K.、Rittig, J. 和 Lapkin, A.（2021）。Summit：反应优化机器学习方法的基准测试。*Chemistry-Methods*，1(2)：116–122。[11] Folch, J.、Lee, R.、Shafei, B.、Walz, D.、Tsay, C.、van der Wilk, M. 和 Misener, R.（2022a）。多保真建模与异步批量贝叶斯优化的结合。[12] Folch, J.、Zhang, S.、Lee, R.、Shafei, B.、Walz, D.、Tsay, C.、van der Wilk, M. 和 Misener, R.（2022b）。SnAKe：采用路径探索的贝叶斯优化。[13] Garnett, R.（2023）。贝叶斯优化。剑桥大学出版社。[14] Gonz´alez, L. 和 Zavala, V.（2023）。利用贝叶斯优化开展并行实验的新范式。*Comput. Chem. Eng.*，170：108110。

[15] Green, D. W. 和 Perry, R. H.（2007）。《Perry 化学工程师手册》，第八版。McGraw-Hill Professional，纽约州纽约市，第8版。[16] Gschaider, B.（2013）。不完整的 swak4foam 参考手册。技术报告，131：202。[17] He, X.、Tuo, R. 和 Wu, C.（2017）。通过 EQIE 准则优化多保真计算机实验。Technometrics，59(1)：58–68。[18] Hern´andez-Lobato, J.、Hoffman, M. 和 Ghahramani, Z.（2014）。用于高效全局优化黑箱函数的预测熵搜索。神经信息处理系统进展，27。[19] Huang, D.、Allen, T. T.、Notz, W. I. 和 Miller, R. A.（2006）。使用多保真评估进行序贯克里金优化。Struct. Multidiscipl. Optim.，32(5)：369–382。[20] Jasak, H.、Jemcov, A.、Tukovic, Z. 等（2007）。Openfoam：用于复杂物理仿真的 C++ 代码库。载于数值动力学耦合方法国际研讨会，第1000卷，第1–20页。[21] Kandasamy, K.、Dasarathy, G.、Schneider, J. 和 Poczos, B.（2017）。采用连续近似的多保真贝叶斯优化。[22] Kenway, G.、Mader, C.、He, P. 和 Martins, J.（2019）。用于计算流体力学的有效伴随方法。Prog. Aerosp.，110：100542。[23] Larson, J.、Menickelly, M. 和 Wild, S.（2019）。无导数优化方法。Acta Numerica，28：287–404。[24] Liebeck, R. 和 Ormsbee, A.（1970）。翼型最大升力优化。J. Aircr.，7(5)：409–416。[25] Losey, M.、Jackman, R.、Firebaugh, S.、Schmidt, M. 和 Jensen, K.（2002）。用于多相混合与反应的微流控器件设计与制造。J. Microelectromech. Syst.，11(6)：709–717。[26] Mansour, M.、Z¨ahringer, K.、Nigam, K.、Th´evenin, D. 和 Janiga, G.（2020）。采用与计算流体力学耦合的遗传算法对螺旋管中的液-液混合进行多目标优化。Chem. Eng.，391：123570。[27]March, A.、Willcox, K. 和 Wang, Q.（2011）。利用贝叶斯模型校准对飞机设计进行基于梯度的多保真度优化。The Aeronautical Journal (1968)，115(1174)：729–738。[28] McDonough, J.、Ahmed, S.、Phan, A. 和 Harvey, A.（2019a）。振荡流中螺旋涡对的形成——数值与实验研究。Chem. Eng. Process，143：107588。[29] McDonough, J.、Armett, J.、Law, R. 和 Harvey, A.（2019b）。盘管套盘管反应器：通过 3D 打印结合不同几何特征提升活塞流性能。Ind. Eng. Chem. Res.，58(47)：21363–21371。[30] McDonough, J.、Law, R.、Reay, D.、Groszek, D. 和 Zivkovic, V.（2020）。利用 3D打印实现环形流化概念的小型化。Chem. Eng. Res. Des.，160：129–140。[31] McDonough, J.、Murta, S.、Law, R. 和 Harvey, A.（2019c）。振荡流体运动使螺旋管式反应器能够在较低雷诺数下实现活塞流操作（Re $\leq$ 10）。Chem. Eng.，358：643–657。[32] McKay, M. D.、Beckman, R. J. 和 Conover, W. J.（1979）。在分析计算机代码输出时选择输入变量值的三种方法比较。Technometrics，21(2)：239。[33] M¨uller, J.-D. 和 Cusdin, P.（2005）。采用自动微分的离散伴随 CFD 代码性能研究。Int. J. Numer. Methods Fluids，47(8-9)：939–945。[34] Na, J.、Bak, J. H. 和 Sahinidis, N. V.（2021）。利用对抗机器学习和低复杂度代理模型进行高效贝叶斯推断。Comput. Chem. Eng.，151：107322。[35] Nguyen, T.、Nhat, T.、Takimoto, K.、Thakur, A.、Nishimura, S.、Ohyama, J.、Miyazato, I.、Taka- hashi, L.、Fujima, J.、Takahashi, K. 和 Taniike, T.（2019）。甲烷氧化偶联的高通量实验与催化剂信息学。ACS Catalysis，10(2)：921–932。

[36] Nocedal, J. 和 Wright, S.（2006）。数值优化。Springer 运筹学与金融工程系列。Springer 纽约。[37] Papathanasiou, M., Burnak, B., Katz, J., Shah, N. 和 Pistikopoulos, E.（2019）。通过下游纯化中的先进控制助力连续生物制造。*Comput.Chem. Eng.*，125：232–248。[38] Parra-Cabrera, C., Achille, C., Kuhn, S. 和 Ameloot, R.（2018）。化学工程与催化技术中的 3D 打印：结构化催化剂、混合器和反应器。*Chem.Soc.Rev.*，47(1)：209–230。[39] Petsagkourakis, P., Chachuat, B. 和 del Rio-Chanona, E. A.（2021）。使用多保真高斯过程进行安全实时优化。载于*2021 年第 60 届 IEEE 决策与控制会议 (CDC)*。IEEE。[40] Rossi, D., Gargiulo, L., Valitov, G., Gavriilidis, A. 和 Mazzei, L.（2017）。盘管式流动反转器中轴向弥散的实验表征。*Chem.Eng. Res.Des.*，120：159–170。[41] Santana, H., Rodrigues, A., Lopes, M., Russo, F., Silva, J. 和 Taranto, O.（2020）。用于过程强化的 3D打印毫米反应器。*Chin. J.Chem. Eng.*，28(1)：180–190。[42] Sarkis, M., Bernardi, A., Shah, N. 和 Papathanasiou, M.（2021）。药品制造与分销领域的新兴挑战与机遇。*Processes*，9(3)：457。[43] Savage, T., Almeida-Trasvina, F., del Rio Chanona, E., Smith, R. 和 Zhang, D.（2021）。一种用于全厂化学过程运行的降维与代理优化集成方法。*AIChE Journal*，67(11)。[44] Savage, T., Basha, N., Matar, O. 和 del Rio Chanona, E.（2022）。用于模拟化学反应器的深度高斯过程多保真贝叶斯优化。[45] Serani, A., Pellegrini, R., Wackers, J., Jeanson, C.-E., Queutey, P., Visonneau, M. 和 Diez, M.（2019）。基于计算流体力学的优化中通过径向基函数元模型进行自适应多保真采样。*Int. J. Comut. Fluid Dyn.*，33(6-7)：237–255。[46] Singh, J. 和 Nigam, K.（2016）。盘管式流动反转器有效传热面积的中试研究。*Chem.Eng.Process*，102：219–228。[47] Snoek, J., Larochelle, H. 和 Adams, R.（2012）。机器学习算法的实用贝叶斯优化。神经信息处理系统进展，25。[48] Stroh, R., Bect, J., Demeyer, S., Fischer, N., Marquis, D. 和 Vazquez, E.（2021）。多保真计算机实验的序贯设计：最大化逐步不确定性降低速率。*Technometrics*，64(2)：199–209。[49] Thodoroff, P., Kaiser, M., Williams, R., Arthern, R., Hosking, S., Lawrence, N., Byrne, J. 和 Kazlauskaite, I.（2022）。冰盖模拟的多保真实验设计。*NeurIPS* 高斯过程、时空建模与决策系统研讨会。[50] Tiwari, A., Rajesh, V. 和 Yadav, S.（2018）。微反应器中的生物柴油生产：综述。*EnergySustain.Dev.*，43：143–161。[51] van de Berg, D., Savage, T., Petsagkourakis, P., Zhang, D., Shah, N. 和 del Rio-Chanona, E.（2022）。过程系统工程应用的数据驱动优化。*Chem.Eng. Sci.*，248：117135。[52] Wang, K. 和 Dowling, A. W.（2022）。化学产品与功能材料的贝叶斯优化。*Curr. Opin. Chem.Eng.*，36：100728。[53] Williams, C. K. 和 Rasmussen, C. E.（2006）。用于机器学习的高斯过程，第 2 卷。麻省理工学院出版社，马萨诸塞州剑桥。[54] Winter, J., Abaidi, R., Kaiser, J., Adami, S. 和 Adams, N.（2023）。用于求解反斯特藩问题的多保真贝叶斯优化。*Comput. Methods Appl. Mech. Eng.*，410：115946。

A 增材制造

增材制造技术使得制造几何形状不再那么传统、更加复杂的反应器成为可能。为了还原这些反应器几何结构，必须建立参数高度细化的设计公式，从而形成庞大的设计空间。为了发现新的反应器构型

为了实现增材制造，必须探索并优化这些高维空间。Parra-Cabrera 等人 [38] 回顾了增材制造的应用，并重点探讨催化技术的未来。作者还阐述了优化在基于增材制造的设计中发挥的重要作用，并指出几何形状日益复杂所带来的挑战。螺旋管反应器 [31], 盘管套盘管反应器 [29]和环形反应器 [30]均已被提出。我们需要可靠的工具来设计和优化复杂几何形状，从而支持新一代增材制造的混合器和反应器。

B 脉动流螺旋管反应器

在脉冲流动条件下运行的螺旋管反应器是一类很有前景的反应器。研究表明，脉冲流动条件能够在螺旋几何形状内诱发迪恩涡。这些涡流可促进管内径向混合，同时抑制轴向混合，从而形成理想的活塞流混合特性 [31, 29]。有研究提出，脉动流的振荡强度会导致涡脱落或旋流，进而影响活塞流性能。[31] 通过实验证实了这一点，表明随着振荡强度的变化，活塞流行为会在“开启”和“关闭”之间切换。基于此，研究表明，对于该研究中采用的特定螺旋管反应器，最佳操作条件出现在迪恩数与雷诺数之比为 2 至 8、斯特劳哈尔数为 1 至 2 时。然而，对反应器几何结构的依赖性尚未得到研究，几何形状优化也尚未进行。

C 超参数的影响

为研究超参数的影响，我们多次重复了优化过程。这些参数包括 β 控制探索倾向的参数、γ 控制成本权重的参数，以及 p_λ 控制停止准则保守程度的参数。我们使用相同的初始数据集，以便更公平地比较各次运行。这里，我们降低了探索参数相对于成本调整参数的比重，并将二者相对于预期目标函数的比重都调低，$\gamma = 1/2$、$\beta = 1/2$。图 17 展示了已评估模拟的目标函数值和成本随时间的变化。

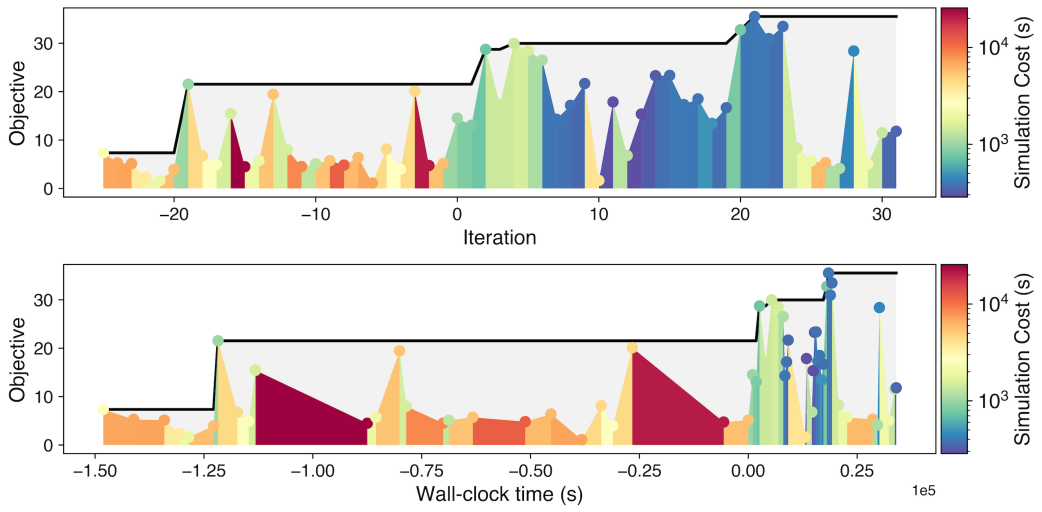


图 17：已评估的等效串联釜数，按各自的模拟成本着色。优化采用超参数 $\gamma = 1/2$ 和 $\beta = 1/2$。图的上半部分展示这些量随迭代次数的变化，下半部分展示这些量随实际运行时间的变化，突出体现了低成本模拟的重要性。

图 18 展示了优化过程中选择的保真度，以及平均模拟成本和评估次数。

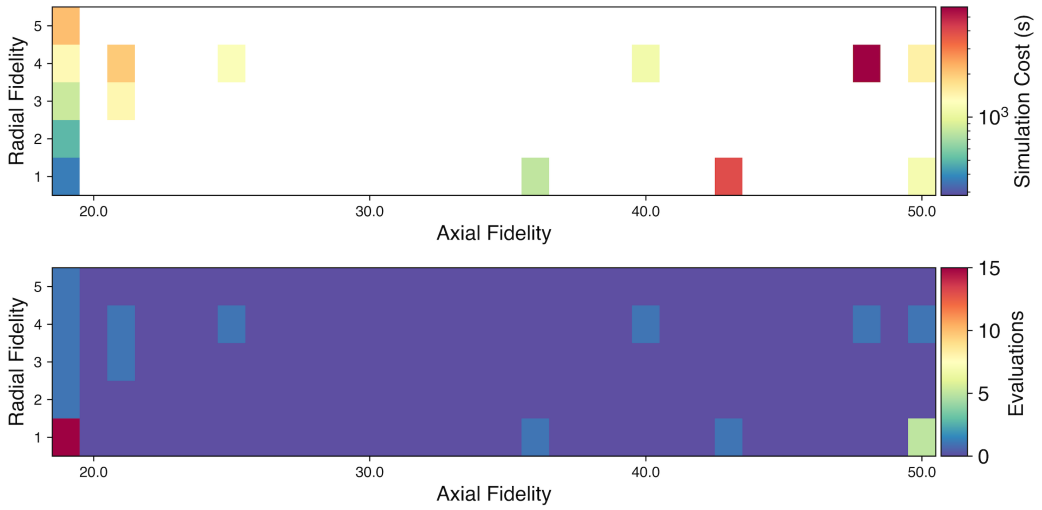


图 18：在 $\mathcal{Z}$ 中优化过程中所选择的保真度。上图展示了每种保真度下的平均模拟成本。优化采用超参数 $\gamma = 1/2$ 和 $\beta = 1/2$ 进行。

图 19 展示了使用这组超参数运行该框架后得到的最优反应器的几何形状。

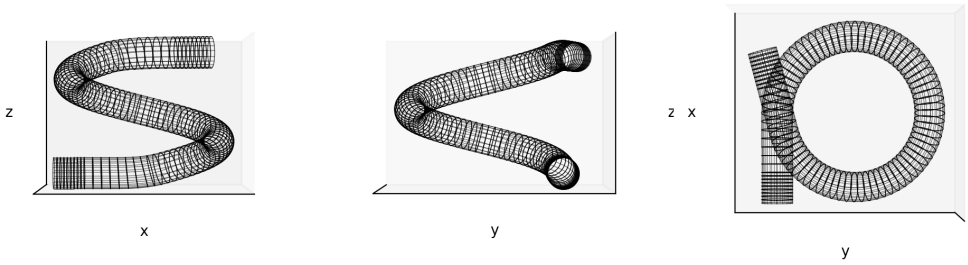


图 19：采用超参数 $\gamma = 1/2$ 和 $\beta = 1/2$ 进行优化得到的最优解；从视觉上看，该解与本文主体部分所展示的解相似。该构型在相应操作条件下的等效串联釜数为 34.5。

随后，我们提高探索参数相对于成本调整参数和预期目标函数的比值，其中 $\gamma = 1/2$、$\beta = 1$。图 20 展示了随时间变化的目标函数值和已评估模拟的成本。

图 21 展示了优化过程中所选择的保真度，以及平均模拟成本和评估次数。

图 22 展示了使用这组超参数运行该框架后得到的最优反应器的几何形状。

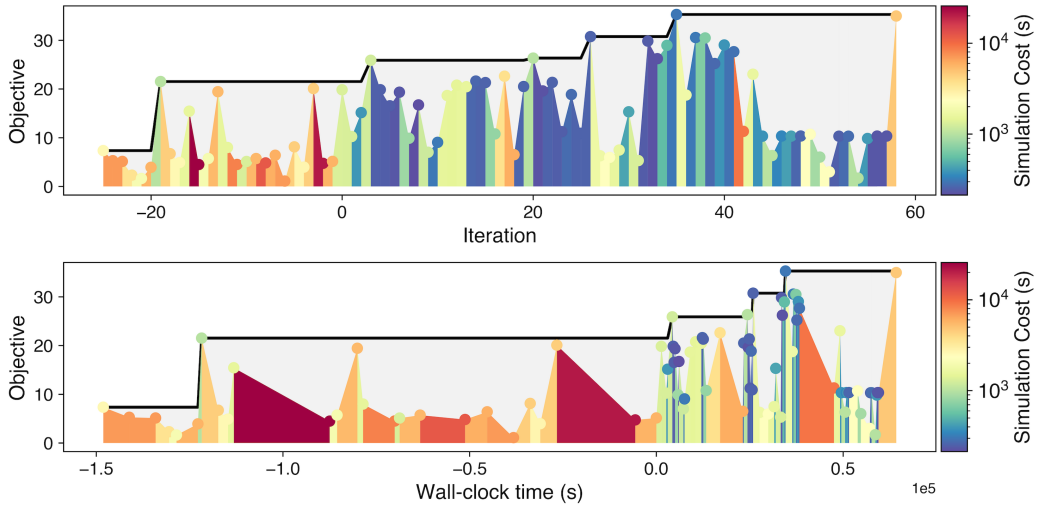


图 20：所评估的等效串联釜数，按相应模拟成本着色。优化采用超参数 $\gamma = 1/2$ 和 $\beta = 1$。图的上半部分展示这些量随迭代的变化，下半部分展示这些量随实际运行时间的变化，凸显了低成本模拟的重要性。

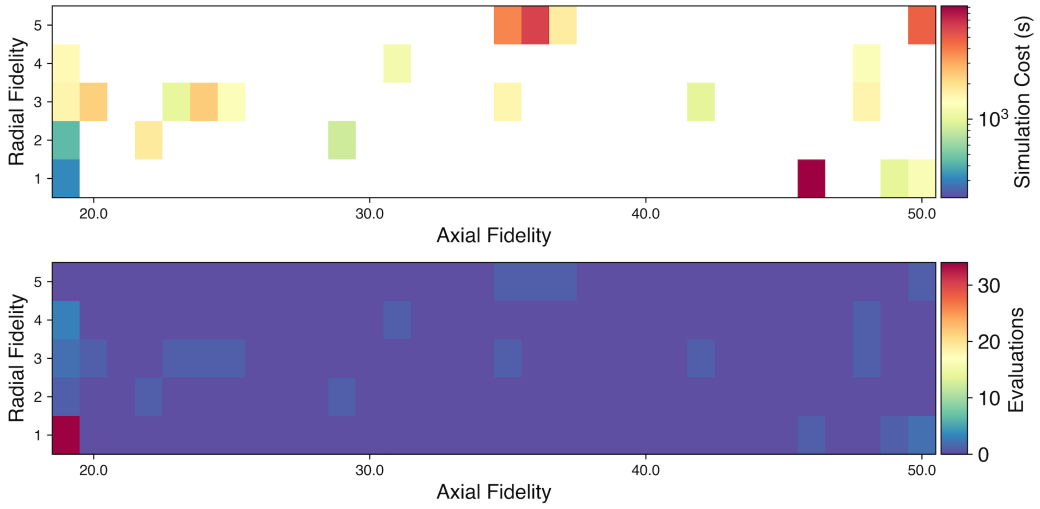


图 21：在 $\mathcal{Z}$ 中优化过程中选取的保真度。上图展示了每种保真度下的平均模拟成本。优化采用超参数 $\gamma = 1/2$和 $\beta = 1$。

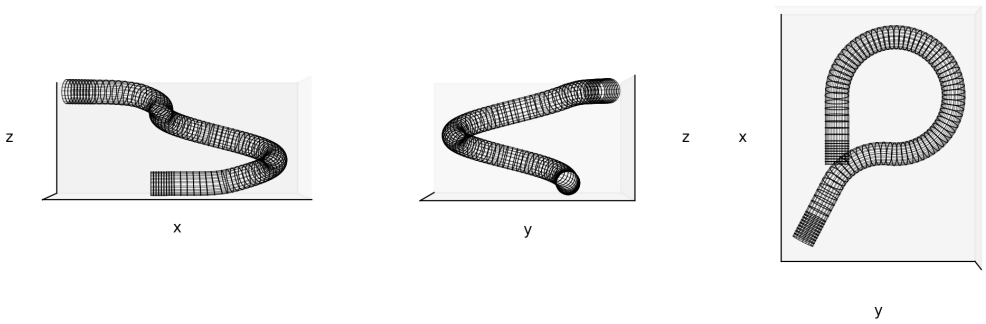


图 22：采用超参数 $\gamma = 1/2$ 和$\beta = 1$进行优化得到的最优解。该解的不同之处在于不包含反转，但盘管半径和操作条件与其他最优解一致。此配置及操作条件下的等效串联釜数为 26.8。