arXiv:2611.30828v1 [physics.chem-ph] 23 Nov 2026

亮点

采用在线学习的变压吸附实时优化

Carine de Menezes Rebello、Marcio Fontana、Leizer Schnitman、Idelfonso B. R. Nogueira

- 利用在线重新训练的神经网络代理模型对变压吸附进行实时优化。
- 达成五个序贯目标，代理模型误差不超过 1.7 个百分点。
- 工厂相对于参考值的累积偏差触发了重新训练。
- 通过 43 个局部样本修正了代理模型输入中未包含的扰动。
- 在渐进扰动下，数据达到最终值时，最优点仍然可行。

采用在线学习的变压吸附实时优化

卡琳·德·梅内塞斯 雷贝洛[a]，*，马西奥 丰塔纳[b]，莱泽 施尼特曼[c] 和伊德尔丰索·B·R· 诺盖拉[a]，[d]

[a]*Puffin HUB*，特隆赫姆，挪威[b]坎皮纳斯州立大学（*UNICAMP*）电气与计算机工程学院，阿尔伯特·爱因斯坦大道*400*号，*13083-852*，坎皮纳斯，圣保罗州，巴西[c]巴伊亚联邦大学（*UFBA*）机电一体化研究生项目，*RuaProf. Aristides Novis 2*号，*40210-630*，萨尔瓦多，巴伊亚州，巴西[d]挪威科技大学（*NTNU*）化学工程系，特隆赫姆，挪威

文章信息

关键词：实时优化 在线学习 代理模型 变压吸附装置 - 模型失配 神经网络

摘要

变压吸附（PSA）装置的实时优化（RTO）需要一个能够在每次决策时进行大量评估的过程模型，因此，循环稳态的数据驱动代理模型更具优势。然而，代理模型只能表征训练数据所涵盖条件下的装置，未作为其输入的扰动则无法被其描述。本文提出了一种用于PSA的实时优化框架：当装置与模型出现偏差时，利用装置产生的数据，对通过粒子群算法优化的神经网络代理模型进行在线更新。一个严格的CH_4/CO_2分离动态模型经循环稳态处理后，在三种情景下作为虚拟装置。在第一种情景中，在无扰动条件下，针对不同目标函数连续进行了五次实时优化事件；所有约束均得到满足，代理模型与装置之间的最大偏差为1.7个百分点。在第二种情景中，CO_2进料分数由0.40变为0.50，使当前操作点的CH_4纯度从92.3%降至76.9%；利用43个局部样本对网络进行微调后，新的实时优化事件返回了一个纯度为90.3%的可行最优点。在第三种情景中，通过CH_4纯度相对于参考值的累积相对偏差检测到吸附剂容量逐渐损失，并在发生任何约束违反之前触发了重新训练。在剩余活性范围内生成的样本导致操作不可行，而在最终活性下生成的样本则使移动变更瞬态之后的纯度保持在92.4%以上。

1. 引言

工业装置在运行过程中会经历各种来源的变化：进料的流量和组成会发生变化，既可能是过程设计必须考虑的不确定参数 [1, 2] ，也可能是使用组成不定的新型原料所致 [3]；随着可再生电力占比不断上升，能价也会波动 [3]；设备和材料也会退化，例如催化剂失活、 [4], 传热表面结垢 [5] 以及老化吸附剂容量损失 [6]。投产时的最优操作点会变得次优，随着这些条件不断变化，甚至可能变得不可行 [7, 8]。当前操作点所获得的性能与当前工况下可达到的性能之间的差距，构成了经济裕度；若不更新操作点，这部分裕度就会损失 [7], ，而过程自动化优化层的目的正是恢复这部分裕度 [9, 10, 11, 12, 13]。

实时优化（RTO）定期通过优化过程的稳态模型来计算操作点，并在每次优化前根据工厂测量数据更新模型 [12, 13]。结果的好坏取决于模型的质量。只有模型足够准确时，基于模型的 RTO 系统才能达到工厂最优点；也就是说，模型能够预测出与工厂最优点相同位置的最优点 [14], 。当模型结构与工厂的结构不同时，更新模型参数并不能保证这一点 [15]。因此，人们提出了修正器适应及相关方案，利用工厂信息修正优化问题 [16, 17]。稳态 RTO 还必须等待工厂

*通讯作者 carine.m.rebello@ntnu.no (C.d.M. Rebello) ORCID：0000-0002-0796-8116 (C.d.M. Rebello)；0000-0001-9917-5887 (M. Fontana)；0000-0002-0399-6689 (L. Schnitman)；0000-0002-0963-6449 (Idelfonso B. R. Nogueira)

在每次操作变更及每次扰动后达到稳定状态，之后才能更新模型，这限制了系统跟踪变化的速度 [18]。

当模型由数据驱动时，模型更新便成为一个不同的问题。机器学习已用于化学工程中构建过程模型，既可以单独使用 [19]，也可以与混合模型中的第一性原理衡算相结合 [20],，还可用于设计分子 [21, 22]。在实时优化中，这类模型既可通过高斯过程来表征装置-模型失配 [23, 24]，也可直接作为过程模型 [25, 26]；研究表明，基于代理模型的实时优化能够在未测扰动发生后重新优化电潜泵，所需时间仅为第一性原理模型的一小部分 [26]。然而，数据驱动模型只能在其训练数据覆盖的条件范围内表征过程；超出这一范围后，其准确性会下降，吸附过程中的情况便是如此 [19]。工厂发生变化时，这类模型无法通过调整少数几个物理参数来修正，而需要借助新数据。数据驱动模型对过程变化的适应已在软测量中得到研究 [27],，也应用于采用在线学习和神经网络迁移学习的模型预测控制 [28, 29],，以及采用在线学习的数字孪生框架[30, 31],；其中一个框架跟踪吸附装置的行为，包括吸附剂劣化 [32],。这些研究是化学工业中人工智能与信息物理系统广泛融合 [33]，以及公用工程系统中传感器网络与数据分析应用 [34]的一部分。

变压吸附（PSA）是这些理念的一项极具挑战性的应用，因为其操作条件变化多端，且模型十分复杂。在变压吸附中，吸附剂床层在高压和低压之间循环：高压下吸附能力较强的组分会被保留，低压下则会释放出来 [35, 36]。在操作过程中，进料组成会发生变化；针对进料扰动时变压吸附装置的响应，已有实验研究[37]，也有研究通过优化装置来应对进料组成和流量的变化 [38, 39]。吸附剂容量也会随时间变化：水会降低沸石对 CO_2 的吸附能力 [40, 41],，而 H_2S 等杂质会影响吸附剂在多个循环中的性能和再生效果 [42]。在装置的使用寿命期间，这两种影响都会改变必须满足产品规格的操作条件。

确定变压吸附装置的最优操作点并非易事。其操作由一组相互耦合的变量决定，例如步骤持续时间、压力，以及各步骤之间回流的内部物流比例；这些变量的影响彼此交织 [35, 36],，移动床分离也有相关研究表明这一点 [43, 44]。其性能通过一系列彼此冲突的指标衡量：产品纯度与回收率、生产率与能耗 [45, 46]。因此，三十多年来，变压吸附设计与操作一直被视为优化问题 [47, 48, 49, 45],，相关研究从最优设计的构建 [47] 和周期性吸附过程的优化 [50]，发展到循环稳态（CSS）与优化问题的同步求解 [51, 52, 53, 48]，以及对纯度与回收率、能耗与生产率之间权衡关系的多目标优化[45, 54, 55]。这些研究均以离线方式进行，假设进料条件和吸附剂性质固定，并采用严格模型；其计算成本是阻碍模型在操作过程中应用的主要因素。

机理变压吸附模型通过偏微分代数方程组，将质量、能量和动量衡算与非线性吸附平衡和动力学耦合起来。求解该方程组会产生陡峭的浓度和温度前沿，因此需要精细离散化和刚性积分器 [48, 45]。此外，性能指标是在 CSS 下定义的，而只有在对模型进行数十至数百个循环的积分后才能达到 CSS。加速收敛至 CSS [56, 57] 或在优化问题中直接确定 CSS 的方法 [51, 58]可以减轻这一负担，但模型的每次评估仍然需要求解一个大型动态问题；而针对新型吸附剂和分离任务优化变压吸附装置 [59, 60],，包括同时选择吸附剂和操作条件 [61],，需要进行大量此类评估。据报道，使用详细模型对单一吸附剂的单一循环配置进行优化，成本约为 1500 核时 [62]。实时优化层必须在工厂运行期间针对每项决策多次评估模型，因此无法承受这样的成本。

这一局限促使人们采用代理模型 [63, 64],，以远低于机理模型的计算开销 [65, 62]近似操作变量与 CSS指标之间的映射。早期方法采用通过本征正交分解 [66] 和克里金法 [67, 68],获得的降阶模型，但近年来，人工神经网络（ANN）已成为变压吸附文献中最常用的选择。基于严格仿真训练的ANN代理模型已被用于优化甲烷-氮气分离 [69],、氢气纯化 [70, 71, 72, 73] 和CO_2 捕集 [65, 46, 74], 的变压吸附装置，以及采用真空变压吸附进行烯烃/烷烃分离的装置 [75],；据报道，计算开销的降低幅度从循环多目标优化中约一个数量级 [46]，到将上述核心小时预算缩短至数分钟 [62]。该方法已扩展到在训练中纳入模型方程残差的网络 [76, 77],、将吸附衡算与神经网络相结合的混合模型 [78, 79, 80]，以及符号回归代理模型

[81], 此外，人们还提出了采用高斯过程代理模型的贝叶斯优化，以及交替进行代理模型评估和严格评估的混合策略，以进一步减少仿真次数 [82, 83, 84, 85]。我们课题组已使用深度神经网络对变压吸附动态特性进行建模 [86, 19]，并将其作为变压吸附装置优化的代理模型 [87],，包括对最优点不确定性的映射 [88], 、可行操作区域和帕累托区域的定义 [89, 90, 91]，以及吸附剂筛选与过程优化的同步进行 [92], ，其中包括电摆动吸附 [93], ；此外，深度神经网络代理模型也被用于模拟移动床反应器的优化 [94]。

与此前的优化研究一样，这些代理模型只训练一次并离线使用，因此进料组成或吸附剂容量的变化超出了其表征范围，这正是上文所讨论的数据驱动模型的局限性。

对于变压吸附，模型的在线使用主要面向控制。人们开发了模型预测控制器，用于跟踪产品纯度和回收率，其中包括显式多参数形式 [95]，以及与装置优化相结合的形式 [96], ，用于快速变压吸附制氧机 [97, 98], ，基于混合系统理论的形式 [99],，采用鲁棒形式的形式 [100, 101]，以及嵌入式实现 [102]；在所有这些方法中，设定值均由另一层确定。基于人工智能模型的经济型非线性模型预测控制器已应用于用于合成气净化的变压吸附装置，但未报告对模型进行更新 [103]。相比之下，变压吸附装置的实时优化很少受到关注。已发现的唯一一项明确处理该问题的研究采用了无模型极值寻优方案，通过根据工厂测量数据估算的梯度调整操作点，而不使用过程模型；其作者将变压吸附的实时优化描述为一个尚未充分发展的研究领域 [104]。

这项研究揭示了一个重要的空白：一种能够在过程条件发生变化时更新模型的变压吸附自适应实时优化。用于优化变压吸附装置的代理模型均经过离线训练，而在线使用的模型用于控制；据作者所知，尚无研究将模型的在线更新与变压吸附装置操作点的重新优化结合起来。如果代理模型的输入不包括扰动变量，就无法通过重新估计少数参数来修正；必须利用来自工厂的新数据重新训练。因此，变压吸附的自适应实时优化是一个有待研究的开放机遇。

开发这种方法引出了两个循环吸附过程特有、且文献中尚未解答的问题。第一个问题是，在什么时机重新训练代理模型：工厂中的缓慢变化需要经过许多循环后才会在 CSS 下显现，而基于约束违反的判据只有在规格要求已经失效后才会起作用。第二个问题是，应在何种工厂工况下生成新数据，因为在渐进扰动下，采集数据时的工况并不是新操作点将要应用的工况。

本研究旨在为变压吸附装置开发一种自适应实时优化框架：在该框架中，利用粒子群算法对CSS指标的神经网络代理模型进行优化，并在工厂偏离该代理模型时在线重新训练；同时，在此框架下回答上述两个问题。重新训练由工厂指标相对于上一次实时优化事件后达到值的累积偏差触发，从而在约束被违反之前检测到缓慢漂移；新数据则通过工厂的局部样本生成，并在渐进扰动下比较两种工厂工况选择。

该框架应用于通过变压吸附分离CH_4和CO_2，并在三种情景下将严格动态模型集成到CSS中作为虚拟装置。第一种情景对未受扰动的工厂依次施加五次具有不同目标和约束集的实时优化事件，并将代理模型预测与工厂结果进行比较。第二种情景在进料组成上施加一个步骤变化，该扰动并非代理模型的输入。第三种情景施加吸附剂容量的渐进损失，并比较生成再训练数据时工厂工况的两种选择。

本文结构安排如下。第2节介绍方法：数据的获取与处理、神经网络的辨识、重新训练及优化。第3 节介绍作为案例研究的分离过程，严格模型见附录A。第4 节报告辨识得到的网络和三个情景，第5 节总结结论。

2. 方法

所提出的方法总结于图1中。该方法将基于过程数据离线构建的 CSS 工厂指标神经网络代理模型，与用于优化代理模型的实时优化层以及在线更新网络的重新训练流程相结合；当工厂偏离代理模型时，该流程便会启动。第 2.1 节介绍数据的采集与处理：数据源、通过优化拉丁超立方设计对严格模型输入进行采样，以及数据的处理、缩放和划分，包括训练集、验证集和测试集。第 2.2 节介绍辨识

神经网络，其架构通过 Hyperband 搜索选定，然后对其权重进行训练。第 2.3节介绍网络的重新训练：基于工厂相对于参考值的累积偏差设置触发器，在当前操作点附近生成强制局部样本，并利用当前权重对网络进行微调，而无需重新搜索架构。第 2.4 节介绍每次实时优化事件中求解的优化问题、粒子群优化器，以及最优点在工厂中的实施。

2.1. 数据采集与处理

用于构建神经网络的数据必须覆盖过程的操作限值。可单独使用或组合使用多种数据源，包括历史过程数据，以及通过过程严格模型仿真获得的合成数据。还可以针对特定情景生成合成数据，例如在历史数据中罕见或缺失的操作条件或过程条件下生成数据。使用严格模型时，会在各自允许的范围内改变其输入$\mathbf{u}$，以扰动机理模型并记录其在整个操作域内的响应。每组输入值都会作为操作点的阶跃变化施加于模型，从前一个操作点留下的状态开始，并对模型进行积分，直至达到 CSS；每次达到 CSS 的仿真都会产生一个数据点，该数据点由模型输入以及 CSS 时的指标构成。

由于每个数据点都需要进行一次这样的仿真，因此可生成的数据点数量有限；输入值的选取决定了这一有限样本集对操作域的代表性。选择这些值属于实验设计问题，不同的设计在操作域内分布样本的方式各不相同 [105]。全因子网格 [106] 可有规律地覆盖整个操作域，但随着变量数量增加，数据点数量会呈指数级增长，因此，五个变量各取十个水平就需要 10^5 次仿真。随机（蒙特卡罗）抽样不受变量数量的影响，但样本数量较少时，操作域内有些区域没有样本，而其他区域的样本则会聚集 [107, 108]。准随机序列（如 Sobol 序列 [109], 和拉丁超立方设计 [110]）兼顾了上述两方面的局限：与随机抽样相比，它们能更均匀地覆盖操作域，且样本数量可独立于变量数量进行选择。在这些设计中，本方法采用优化拉丁超立方设计。拉丁超立方抽样将每个变量的范围划分为概率相等的区间，并在每个区间内抽取一个样本；其优化形式能使样本在操作域内分布更均匀，同时降低输入之间的相关性 [111, 112]。

图 2 比较了绘制两个归一化变量的十个样本的三种方法。随机抽样（图 2a）会使样本聚集，十个区间中有六个区间的 u_1 和五个区间的 u_2 没有接收到样本。拉丁超立方抽样（图2b 和 c）在每个变量的每个区间内各放置一个样本，正如平坦的直方图所示，但这并不能防止样本排列成线：在图 2b 中，u_1 与 u_2 之间的相关性为 0.82。优化后的设计（图2c）将样本分散到整个域中，相关性为 -0.02，样本之间的最小距离为 0.27，而图 2a 和 b 中分别为 0.02 和 0.06。相互独立变化的输入使网络能够区分每个变量对指标的影响，而均匀覆盖则使其在优化器探索的区域内保持相近的准确性。相比之下，历史过程数据通常具有高度相关的输入，因为控制系统和操作实践会使操作变量联动变化 [113]。因此，将不同数据源结合起来，并利用通过采样设计生成的、用于补充历史数据的合成数据，是覆盖操作域的一种有效策略。

数据随后在训练前进行处理。历史数据需要处理缺失值、噪声和离群值，还需要处理以不同采样时间记录的变量，并将这些变量统一到一个共同的时间基准；由于代理模型表示的是工厂处于 CSS 状态时的指标，因此仅保留工厂处于 CSS 状态的时段 [113, 114]。输入和输出通过最小-最大归一化缩放至 $[0, 1]$。过程中的变量单位和量级各不相同，如果不进行缩放，数值较大的变量就会主导损失函数和权重更新，而较大的输入会使激活函数进入饱和状态，从而减慢训练；缩放能让所有输入在训练开始时具有相近的影响力，并使所有输出在损失中的权重相近 [115]。随后将数据点随机划分为训练、验证和测试子集，比例分别为 70%、15% 和 15%。

2.2. 网络辨识

神经网络的辨识分为两个阶段。第一阶段选择超参数，这些参数定义网络的结构及其训练条件，必须在训练前确定。第二阶段通过使用所选超参数训练网络，估计参数，即权重和偏置。在该方法中，所辨识的网络是一个具有多输入和多输出的前馈网络，它将输入 $\mathbf{u}$与过程的任何固定输入一同映射到 CSS 下的所有指标。这类网络可以逼近连续

表 1 Hyperband 搜索的搜索空间。

超参数	取值
隐藏层	1 至 5
每个隐藏层的神经元	64 至 512，步长为 64
激活函数	ReLU、双曲正切、ELU
批归一化	是、否
丢弃法	是，否
Dropout率	0.05 至 0.40，步骤为 0.05
学习率	10^{-4} 至 10^{-2}，对数刻度

有界域上的映射，精度可任意提高 [116], 而一个涵盖所有指标的单一网络，只需对优化器考察的每个候选点进行一次评估。

超参数（例如隐藏层的数量、每层神经元的数量、激活函数、正则化和学习率）决定了网络的容量以及训练的难易程度。层数或神经元数量过少的网络无法表示输入与指标之间的映射，而规模过大的网络则需要更多数据，并且往往会拟合训练点中的特征，而这些特征在该领域的其他地方并不成立。合适的组合取决于过程和数据，无法预先确定；通过试错法来选择，则会使结果取决于用户的经验，因此通常会在定义好的空间内进行系统搜索。由于每种待考察的配置都需要训练一个网络，各种方法的主要区别在于如何分配这项开销。随着超参数数量增加，网格搜索会变得不切实际。在训练次数相同的情况下，随机搜索会考察每个超参数的更多取值 [117],，但会将每种配置都训练至结束。

Hyperband [118], 在此采用，它会自适应地分配训练开销。从搜索空间中随机抽取候选配置，先训练若干轮次；在后续各轮中，仅让其中表现最佳的 $1/\eta$ 个配置（依据验证误差判断）继续训练 η 倍的训练轮数，其中 η 为缩减因子，直至达到最大训练轮数。随着训练推进，排名可能发生变化；学习较慢的配置可能会被过早淘汰，尽管延长训练后它本可以表现良好。因此，会运行多个这样的序列，从候选配置较少、训练轮数较多的序列开始，从而在考察的配置数量与花在每个配置上的开销之间取得平衡。这样，较差的配置会在训练几轮后被淘汰；与每种配置都训练至结束相比，在相同计算开销下可以考察更多配置 [118]。图3比较了两种超参数构成的空间中的三种策略：网格搜索预先固定取值，可能错过低误差的狭窄区域；随机搜索会覆盖每个超参数的更多取值；Hyperband 则像随机搜索一样采样，但只延长误差较低配置的训练。搜索空间见表1：候选配置的差异包括隐藏层数量、每层神经元数量、激活函数、是否对层输出进行批归一化 [119] 以及是否使用丢弃法 [120], 和学习率。搜索目标是验证子集上的平均绝对误差。

固定超参数后，通过最小化训练子集的缩放后的预测值与缩放后的指标之间的均方误差来估计参数。该损失是大量参数的非凸函数，并在数据的小批次上进行评估，因此采用随机梯度法。采用 Adam优化器 [121] ，因为它根据梯度一阶和二阶矩的运行估计值调整每个参数的步骤，适用于各层中尺度不同的梯度以及小批次梯度中的噪声；此外，除了学习率外，它几乎不需要调参，而学习率沿用第一阶段的设置。训练由验证子集控制：当验证损失不再下降时，降低学习率；当验证平均绝对误差连续给定数量的训练轮数未能下降时，停止训练，并恢复最佳训练轮次的权重，从而限制训练子集上的过拟合。训练后的网络使用测试子集进行评估；该子集既不用于训练，也不用于选择超参数。待预测值还原为物理单位后，使用决定系数、每个输出的平均绝对误差和均方根误差进行评估。

2.3. 神经网络的重新训练

重新训练由根据工厂指标计算得出的触发器启动，使用工厂在当前操作点附近生成的数据，并通过微调更新网络。

等待 CSS 处发生约束违反后再开始重新训练，意味着在工厂趋于稳定并生成再训练数据期间，工厂的运行状态已超出规格要求；而在渐进式扰动下，可能要经过许多循环才会出现违反。因此，触发器依据工厂相对于上次实时优化事件后所达到性能的偏差来设定。系统会监测一个工厂指标 y_{m}，将该事件后 CSS 处的指标值作为参考值 r，并逐循环累积工厂朝不利方向的相对偏差，

$$I(n) = \sum_{i=n_0}^{n} \max\left(0,\ \frac{r - y_{\mathrm{m}}(i)}{r}\right), \tag{1}$$

适用于数值降低表示不利的监测指标，例如纯度、回收率或生产率；对于数值升高表示不利的监测指标，例如每循环能耗，则分子的符号取反。在公式（1）中，n_0 不包括监测阶段的最初几个循环。当 $I(n) \geq I^{\star}$ 时触发重新训练，其中 $I^{\star}$ 为阈值；此外，还可以要求该条件持续若干个连续循环。只累积不利方向上的偏差，因此，工厂性能优于参考值的循环不会抵消已经累积的偏差。总和取决于偏差的幅度和持续时间。图 4展示了渐进扰动下的处理过程：当 $I(n)$ 达到 $I^{\star}$时触发重新训练；采用更新后的网络的实时优化会在监测指标违反其约束之前，将工厂移至新的操作点，并以新的参考值重新开始监测。

触发重新训练时，通过扰动当前采用的操作点来生成局部样本。每个样本均在各决策变量当前值周围的一个区间内随机抽取，且服从均匀分布；该区间受问题（2）的限值约束。随后，在为数据选定的工厂工况下，从当前状态运行，直至达到 CSS（下文将对此进行讨论）。未能在每个样本允许的最大循环次数内达到 CSS 的样本将被丢弃。

随后，使用 Adam优化器对网络进行微调，训练所用的是有效样本；微调从当前权重开始，并保留原始的输入和输出缩放，因此更新后的网络可直接替换优化器中的前一个网络，无需进一步更改。超参数搜索不会重复进行。由于目的是使网络适应新的工况，而非重新对其进行识别，因此采用较低的学习率；同时，部分样本留作验证，并用于早停。

生成局部样本所采用的工厂工况取决于扰动类型。对于阶跃扰动，该工况是实时优化将面临的工况。渐进扰动则不同：重新训练后选定的操作点将在扰动持续演变的过程中应用。本文考虑了两种重新训练工况的选择方式。

(i) 范围：每个样本中的扰动值均在尚未遍历的区间内取值，即从触发器触发时的扰动值到其最终值。(ii) 目标：所有样本均在扰动的最终值处生成，过程单调地趋近于该值。目标条件假设最终值已知。

样本可以通过一遍或两遍生成。进行两遍时，第一遍的样本在当前操作点周围的框域内生成，网络经过微调并求解问题（2）。随后，在由该优化提出的操作点周围更小的框域内生成更多样本，将重新训练前使用的网络基于两遍中的有效样本进行微调，并执行最终优化，使得第二遍在新操作点区域增加数据。

2.4. 优化

每个实时优化事件求解

$$\begin{aligned} \max_{\mathbf{u}} \quad & J\left(\hat{\mathbf{y}}(\mathbf{u})\right) \\ \text{s.t.} \quad & \hat{y}_j(\mathbf{u}) \ \geq \ y_j^{\min} + \beta, \qquad j \in C, \\ & \mathbf{g}(\mathbf{u}) \leq \mathbf{0}, \qquad \mathbf{u}^{\mathrm{L}} \leq \mathbf{u} \leq \mathbf{u}^{\mathrm{U}}, \end{aligned} \tag{2}$$

其中，$\hat{\mathbf{y}}$ 为代理模型预测，J 为目标函数，C 为受约束指标集合，β 为优化过程中应用于其下界的回退量，$\mathbf{g}$ 汇总了关于决策变量的约束。标称限值$y_j^{\min}$为在工厂处评估得到的限值。对于指标的上限（如有），则不应用回退量。

问题（2）通过粒子群优化器求解，[122] 并采用 HasanogluandDolen 提出的增强可行性的约束处理方法，[123, 124],其中，违反约束的粒子每次由其中一项约束引导。粒子

粒子群优化已应用于循环吸附过程，例如确定真实移动床单元的可行操作区域 [125] 以及对用于 CO_2 捕集的[68]真空变压吸附单元进行代理模型辅助优化 i。每个粒子 $\mathbf{x}_i$都有一个位置 $\mathbf{v}_i$（即候选操作点）和一个速度。粒子群通过对边界进行拉丁超立方抽样来初始化，并将一个粒子置于当前操作点，以确保当前点始终是候选点之一。初始化期间，受约束指标的限值会放宽，以便有可行粒子为粒子群提供引导；在第一次迭代前则采用实际限值。在每次迭代中，满足所有约束的粒子按以下方式移动：

$$\mathbf{v}_i \leftarrow w\,\mathbf{v}_i + c_1\,\mathbf{r}_1 \odot (\mathbf{g}^{\text{best}} - \mathbf{x}_i) + c_2\,\mathbf{r}_2 \odot (\mathbf{p}_i - \mathbf{x}_i), \qquad \mathbf{x}_i \leftarrow \mathbf{x}_i + \mathbf{v}_i, \tag{3}$$

其中， $\mathbf{g}^{\text{best}}$ 是群体找到的最佳可行位置， $\mathbf{p}_i$ 是粒子 i找到的最佳可行位置； $\mathbf{r}_1$ 和 $\mathbf{r}_2$是从 $[0,1]$中均匀分布抽取的随机数向量； c_1 和 c_2 是加速系数，惯性权重 w 则随迭代次数线性递减。违反约束的粒子会从中选取一项，并优先选择其以往选取次数最少的约束；如果有多个这样的约束，则选择被最多粒子违反的约束。随后，粒子向随机选取的、满足所选约束 $\mathbf{v}_i \leftarrow w\,\mathbf{v}_i + c_1\,\mathbf{r}_1 \odot (\mathbf{x}_k - \mathbf{x}_i)$的粒子 $\mathbf{x}_k$移动，并且仅更新影响所选约束的决策变量。这种依赖关系在初始化后通过扰动每个粒子的每个变量（扰动幅度为其范围的一部分）并记录哪些约束状态发生变化来确定。位置若超出边界，则沿移动方向将其移回；只有在可行位置处才评估目标函数。最优点是已存储的最佳位置和群体当前各粒子位置中最佳的可行点。

当工厂处于CSS状态时，会执行一次实时优化事件。问题（2）的最优点通过单次移动实现，不对决策变量施加信赖域或渐变控制约束；随后，工厂从当前状态开始进行积分，直至达到CSS，并继续运行固定数量的循环。最优点处的代理模型预测会与工厂在新的CSS状态下的工厂指标一同存储，从而直接衡量每次事件中的模型误差。不同事件之间的工厂积分是连续的，因此每次事件都从前一次事件留下的物理状态开始。

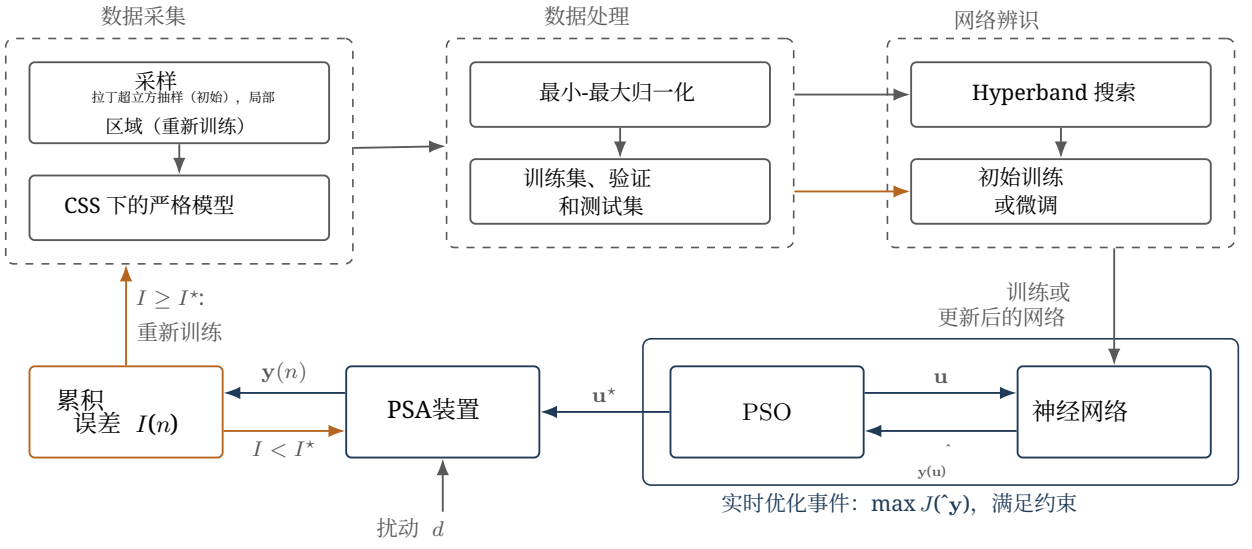

图 e 1:提出的方法：神经网络代理模型的构建与自适应 RT O.

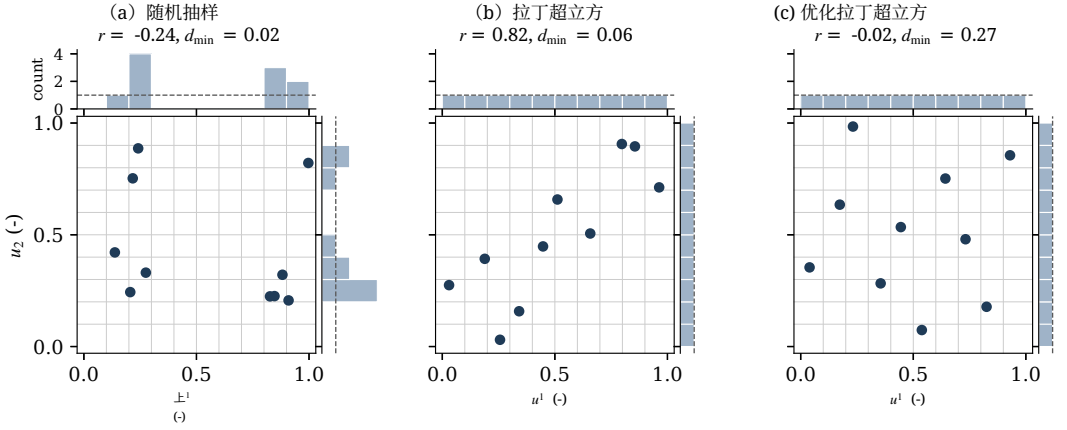

图 2: 两个归一化变量的采样，共 10 个样本：(a) 随机采样，(b) 拉丁超立方采样，(c) 优化拉丁超立方采样。直方图显示了每个变量各区间内的样本数，虚线表示每个区间有一个样本； r 是两个变量之间的相关系数， $d_{\min}$ 是两个样本之间的最小距离。

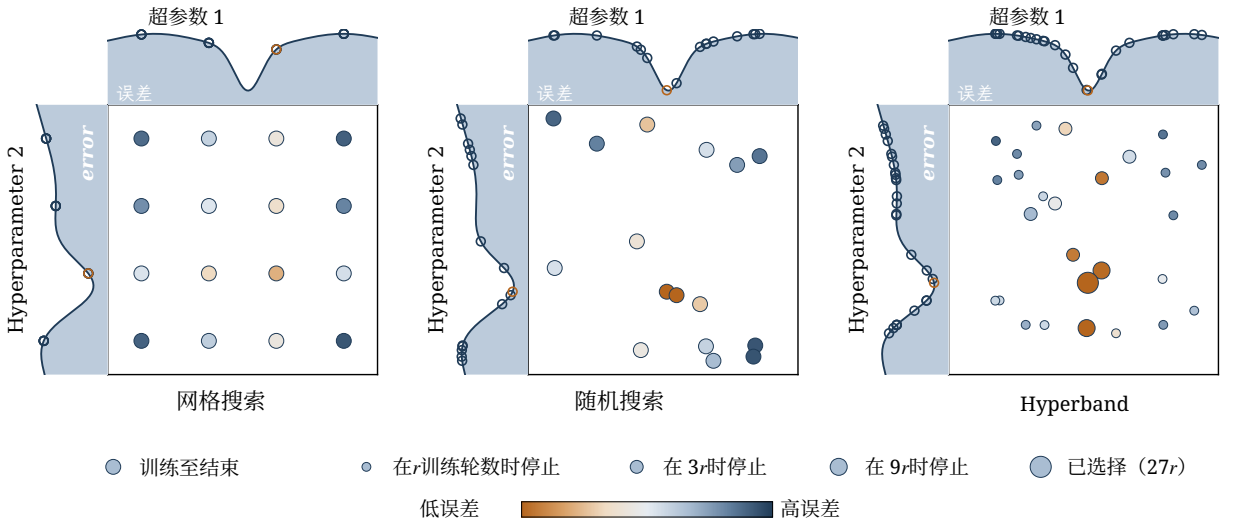

图 3： 在包含两个超参数的空间中进行网格搜索、随机搜索和 Hyperband；边缘显示沿各超参数变化的验证误差（示意值）。在 Hyperband 中，标记大小表示各配置获得的训练轮数。

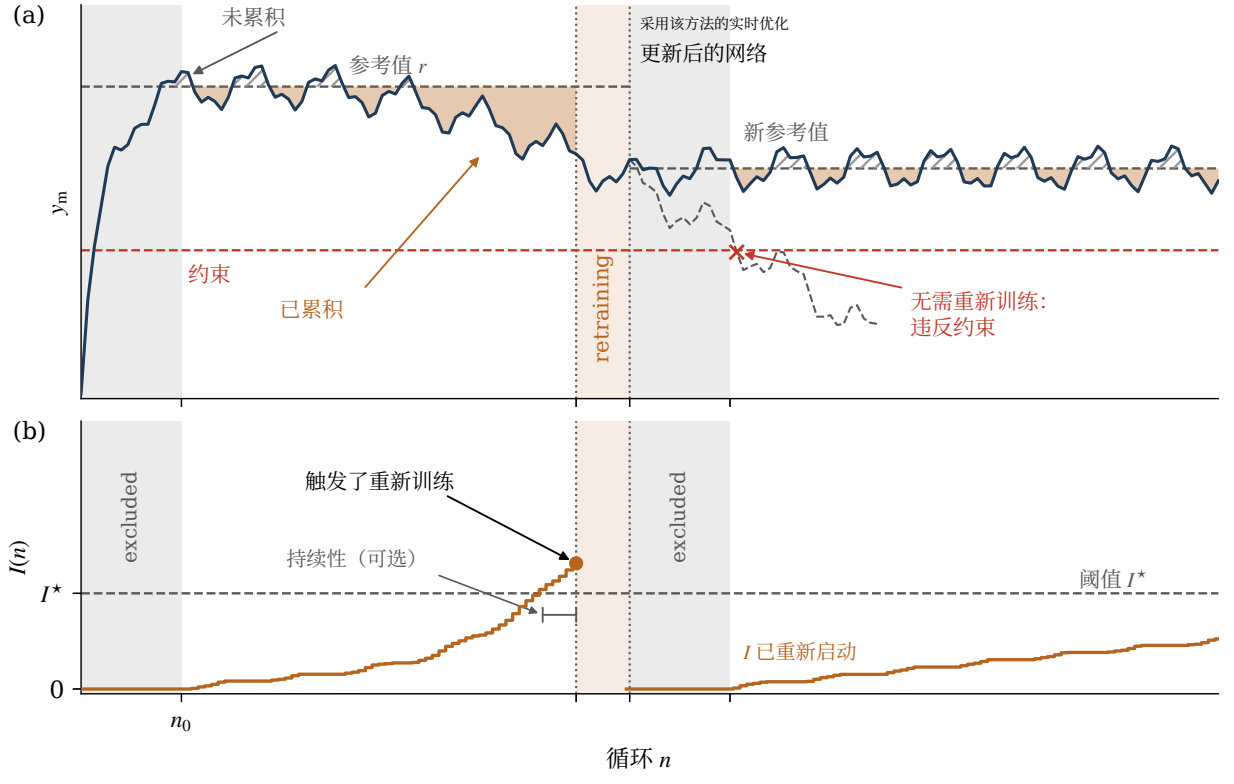

图 4： 再训练触发器与校正（示意值）。(a) 监测指标，其中显示低于参考值的累积偏差，以及虚线表示的未进行再训练时的轨迹。(b) 累积误差 $I(n)$ 和阈值 $I^\star$。

3. 案例研究：通过变压吸附分离 CH_4/CO_2

该方法应用于 CH_4 和 CO_2 的变压吸附分离。在沼气提纯过程中，必须将原料气处理至 CH_4 含量符合生物甲烷的规格要求，而变压吸附是用于这一分离过程的成熟技术之一 [126, 127], ，并已针对平衡吸附剂和动力学吸附剂以及不同的循环配置进行研究[128, 129]。本节介绍过程、虚拟装置、扰动以及性能指标。

3.1. 过程与虚拟装置

该装置采用 Skarstrom 型六步循环分离 CH_4/CO_2 进料，循环中包含重组分回流（冲洗）步骤，详见表 2。进料流量为 $F = 5.0\,\mathrm{mol\,s^{-1}}$，温度为 303.15 K，$CO_2$ 摩尔分数为 $y_{CO_2} = 0.40$；除非施加扰动（本节末尾将对此进行说明），条件均如此。高压和低压分别为 5.0 bar 和 0.1 bar。进料和冲洗期间，CH_4 作为轻组分产品回收；降压和吹扫期间，CO_2 作为重产品回收。

该循环由五个决策变量定义：进料步骤持续时间 t_F、冲洗与进料持续时间之比 r_R，以及三个分流比。冲洗持续时间为 $t_R = r_R t_F$，降压持续时间为 $t_B = t_F - t_R$。吹扫持续 t_F，加压在达到高压时结束，随后进入空闲步骤，使一个周期达到 t_F。因此，该循环持续 $4\,t_F$，在任意操作点，进料步骤均占四分之一。冲洗步骤由降压和吹扫流出的重产品中的一部分 s_R 供料。进料和冲洗产生的轻组分产品中，有一部分 s_L 作为轻组分回流返回塔内，并在吹扫和加压之间分配：吹扫接收 $s_L s_P$，加压接收 $s_L(1 - s_P)$。因此，决策变量向量为 $\mathbf{u} = [t_F, r_R, s_R, s_L, s_P]$。

虚拟装置是一个填充塔的一维非等温模型，采用线性推动力传质、朗缪尔平衡以及 Ergun 方程计算压降，并按循环逐次积分。该模型遵循我们先前工作中变压吸附模型 [91] 的假设，详见附录A。同一模型生成用于构建和重新训练代理模型的数据。

两种扰动 分别在各自的情景中加以考虑。它们都不是代理模型的输入 1.
进料组成阶跃。 进料中 CO_2 的摩尔分数从 0.40 变为 0.50，同时进料流量保持恒定 and
恒定操作点。

吸附剂老化。 容量损失通过方程 a （14）（附录A）中的活度表示，该活度按比例缩放两种组分的饱和容量，同时保持亲和常数不变。这对应于可接近位点的损失，同时选择性保持不变。活度随循环次数线性下降，每循环下降 0.003125，从 $a = 1.00$ 降至 $a = 0.50$，经过 160 个循环后达到该值。

3.2. 性能指标和循环稳态

这些指标根据一个循环中每个步骤进入和离开塔的各组分量计算：$N_{i,k}^{\mathrm{in}}$ 和 $N_{i,k}^{\mathrm{out}}$，分别是组分 i 在步骤 k进入和离开塔的量，N_k^{in} 和 N_k^{out} 是总量。CH_4 在步骤 1 和 2 收集，其中一部分在步骤 4 和 5 返回塔内；CO_2 在步骤 3 和 4 收集，其中一部分在步骤 2 返回。因此，一个循环中产生的净量为

$$N_{CH_4}^{\mathrm{net}} = N_{CH_4,1}^{\mathrm{out}} + N_{CH_4,2}^{\mathrm{out}} - N_{CH_4,4}^{\mathrm{in}} - N_{CH_4,5}^{\mathrm{in}}, \qquad N_{CO_2}^{\mathrm{net}} = N_{CO_2,3}^{\mathrm{out}} + N_{CO_2,4}^{\mathrm{out}} - N_{CO_2,2}^{\mathrm{in}}. \tag{4}$$

两种产品的纯度为

$$P_{CH_4} = \frac{N_{CH_4,1}^{\mathrm{out}} + N_{CH_4,2}^{\mathrm{out}}}{N_1^{\mathrm{out}} + N_2^{\mathrm{out}}}, \qquad P_{CO_2} = \frac{N_{CO_2,3}^{\mathrm{out}} + N_{CO_2,4}^{\mathrm{out}}}{N_3^{\mathrm{out}} + N_4^{\mathrm{out}}}, \tag{5}$$

每种组分的回收率和生产率 i为

$$R_i = \frac{N_i^{\mathrm{net}}}{N_{i,1}^{\mathrm{in}}}, \qquad Pr_i = \frac{N_i^{\mathrm{net}}}{t_c\, m_s}, \tag{6}$$

其中，$t_c = 4\,t_F$ 为循环持续时间，m_s 为吸附剂质量。每循环能耗是将进料和加压步骤中引入的气体从低压 P_L 压缩至高压 P_H所需的等熵功，

$$E = \frac{N_1^{\mathrm{in}} + N_5^{\mathrm{in}}}{\eta}\,\frac{\gamma}{\gamma - 1}\,R\,T_{\mathrm{in}}\left[\left(\frac{P_H}{P_L}\right)^{(\gamma-1)/\gamma} - 1\right], \tag{7}$$

表 2变压吸附循环的步骤。

Step	Name	相对于进料的流动方向	入口流
1	Feed	并流	新鲜进料
2	冲洗	并流	步骤 3 和 4 出口的 fraction s_{R}
3	降压	逆流	无（入口关闭）
4	吹扫	逆流	步骤 1 和 2 出口的比例 $s_{\mathrm{L}}s_{\mathrm{P}}$
5	加压	逆流	步骤 1 和 2 出口的比例 $s_{\mathrm{L}}(1-s_{\mathrm{P}})$
6	Idle	none	none

其中，$\eta = 0.72$ 为压缩机效率，T_{in} 为进料温度，γ 为进料混合物的热容比。由于 E 取决于循环持续时间，比能耗，

$$E_{\mathrm{s}} = \frac{E}{N_{CH_4}^{\mathrm{net}}}, \tag{8}$$

用于比较循环持续时间不同的运行点。

当连续五个循环的窗口内，每种纯度和回收率的相对振幅低于 0.25%，生产率和能耗的相对振幅低于 1%，且窗口内每个循环的各组分总质量平衡闭合误差均在 0.5% 以内时，即判定达到 CSS。

4. 结果与讨论

该神经网络有六个输入，即进料流量和五个决策变量；还有七个输出：两种组分各自的纯度、回收率和生产率，以及每循环能耗。数据的生成方式与第 2.1 节中的 $y_{CO_2} = 0.40$ 和 $a = 1$相同，采用了 11 000 个优化拉丁超立方设计样本，其中 $t_{\mathrm{F}} \in [10, 800]\,\mathrm{s}$，$r_{\mathrm{R}} \in [0.05, 0.95]$ 且分流比位于 $[0.01, 0.99]$。每个样本最多进行 150 个循环的积分，最终得到 8613 个达到 CSS 的点，其中 6029 个用于训练，验证集和测试集各有 1292 个点。数据中的进料流量为常数，在所有情景下均保持为 5.0 $\mathrm{mol\,s^{-1}}$。进料组成和吸附剂活性都不是网络的输入，因此，仅在 y_{CO_2} 或 a 上存在差异的两个工厂状态对应相同的输入，原始网络无法区分它们。

网络的确定方法如第2.2节所述。Hyperband 搜索采用缩减因子 $\eta = 3$，每种配置最多训练100轮，共评估了254种配置，选出的超参数列于表3：网络包含四个采用ReLU激活函数的隐藏层，不使用批归一化或丢弃法，后接一个线性输出层。选出的网络以每批32个数据点的小批次进行训练，最多训练1000轮；如果验证损失连续15轮未下降，学习率就减半，最低降至 10^{-6}；如果验证集平均绝对误差连续40轮未下降，则停止训练。在测试子集上，七个输出的决定系数范围为0.997至0.9998，其中CH_4 纯度的决定系数为0.997，每循环能耗的决定系数为0.9998。该网络是下文三个情景开始时使用的代理模型，也是情景2和3中触发重新训练时进行微调的网络。

4.1. 场景1：目标不断变化下的序贯实时优化

场景1在无扰动的情况下应用实时优化，以确定代理模型与工厂在描述同一过程时是否一致。工厂从操作点 $\mathbf{u}_0 = [200\,\mathrm{s}, 0.40, 0.30, 0.50, 0.20]$开始，经过14个循环后达到 CSS，此时 CH_4 纯度为87.35%。随后依次执行了五个实时优化事件，

表 3 Hyperband 搜索选定的超参数。

超参数	选定值
隐藏层	4
每个隐藏层的神经元	384，512，384，512
激活函数	ReLU
批归一化	no
丢弃法	no
学习率	4.9×10^{-4}

表4场景**1**：CSS 下的工厂指标，以及四项纯度和回收率中代理模型预测与工厂之间的最大绝对偏差。

阶段	P_{CH_4} (%)	R_{CH_4} (%)	P_{CO_2} (%)	R_{CO_2} (%)	Pr_{CH_4} (mmol s^{-1} kg^{-1})	E (MJ 循环$^{-1}$)	E_s (kJ mol^{-1})	偏差 (百分点)
初始	87.35	75.58	69.57	83.86	1.157	31.35	69.1	n.a.
RTO 1	92.20	96.77	94.73	87.52	1.481	26.77	66.4	0.69
实时优化 2	97.57	96.73	95.08	96.05	1.481	36.14	74.8	1.36
实时优化 3	99.73	90.82	87.80	99.58	1.390	32.72	81.1	0.42
RTO 4	83.61	99.44	98.79	70.41	1.522	23.73	69.6	0.56
RTO 5	82.88	79.04	70.72	76.12	1.210	10.95	61.0	1.70

其目标函数和标称约束如下：

$$\begin{aligned}
&\text{RTO 1:} \quad \max_{\mathbf{u}} \; Pr_{CH_4} \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 90\,\%,\; R_{CH_4} \geq 70\,\%,\\
&\text{RTO 2:} \quad \max_{\mathbf{u}} \; R_{CH_4} \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 95\,\%,\\
&\text{RTO 3:} \quad \max_{\mathbf{u}} \; R_{CO_2} \quad \text{s.t.} \quad P_{CO_2} \geq 85\,\%,\\
&\text{RTO 4:} \quad \max_{\mathbf{u}} \; Pr_{CH_4} \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 80\,\%,\; R_{CH_4} \geq 70\,\%,\; E \leq 30\ \text{MJ}\,\text{cycle}^{-1},\\
&\text{RTO 5:} \quad \min_{\mathbf{u}} \; E \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 80\,\%,\; R_{CH_4} \geq 70\,\%,\; P_{CO_2} \geq 50\,\%,\; R_{CO_2} \geq 50\,\%.
\end{aligned} \tag{9}$$

每个问题均以问题（2）的形式求解，其中 $\beta = 2$p.p. 决策变量的边界为$t_F \in [60, 800]$ s、 $r_R \in [0.05, 0.80]$、s_R、 $s_L \in [0.01, 0.99]$ 和 $s_P \in [0.05, 0.95]$，约束条件为 $\mathbf{g}$ $t_B \geq 60$ s、$t_R \geq 10$s、 $s_L s_P \geq 0.05$ 以及 $s_L(1 - s_P) \geq 0.02$。这些约束使循环保持在严格模型能够收敛至稳定CSS的区域内，因为较小的吹扫或加压流量会导致解在相邻循环之间发生交替振荡。粒子群算法包含100个粒子，运行200次迭代，其中 $c_1 = c_2 = 2$和 w 从0.9降至0.4；在初始化期间，受约束指标的限值放宽10个百分点，并通过对每个变量范围的 ±30 % 进行扰动来确定约束对决策变量的依赖关系。每次实时优化事件后，工厂均进行积分计算，直至达到CSS，并额外运行20个循环。情景2和3采用相同的设置。

该序列涵盖两种纯度规格下的 CH_4 产量、CO_2 回收率、能耗受上限约束时的 CH_4 产量，以及在放宽规格要求下的最低能耗，因此相邻最优点位于操作域的不同区域。

图 5 展示了工厂六项指标的逐周期轨迹，包括每个实时优化事件的目标函数、其约束，以及每个阶段在 CSS 处达到的数值。表 4列出了工厂在 CSS 处的指标及其与代理模型预测的偏差，表 5 列出了每个阶段的操作点。每次变更后，工厂在 18 至 20 个循环之间达到 CSS，并且在五个阶段中，所有名义约束均在 CSS 处得到满足。

理解这一过程的结果需要关注两个关系。首先，在 CSS 下，总物料衡算将四种纯度和回收率联系起来：未在重产品中回收的 CO_2 会随轻组分产品排出，并降低 CH_4 纯度；未回收的 CH_4 会随重产品排出，并降低 CO_2 纯度。其次，进料流量

表5场景1：各阶段的操作点。

阶段	t_F (s)	r_R	s_R	s_L	s_P
初始	200.0	0.400	0.300	0.500	0.200
RTO 1	138.8	0.328	0.705	0.577	0.138
RTO 2	166.4	0.291	0.708	0.639	0.086
RTO 3	148.0	0.151	0.692	0.671	0.107
RTO 4	114.4	0.277	0.796	0.573	0.089
RTO 5	75.7	0.166	0.541	0.500	0.466

是固定的，且进料步骤占循环的四分之一（见第 3.1节），因此各运行点的单位时间气体处理量相同。对于给定的进料组成，CH_4 生产率与 CH_4回收率成正比；每循环能耗是压缩进料步骤和加压步骤中所进气体所需的功，并会随 t_F增加；比能耗 E_s 则消除了循环持续时间的影响。

第一次事件使 CH_4 生产率较初始操作点提高了 28%，并将纯度从 87.4% 提高到 92.2%，超过了初始操作点未达到的 90% 规格要求。操作点的主要变化是冲洗步骤中回流的重产品比例增大（s_R 从 0.30 增至 0.71），以及进料步骤缩短（139 s，而非 200 s）。冲洗会将吸附床中滞留的 CH_4 在降压 [35], 前推向轻组分产品，从而减少随重产品排出的 CH_4：CH_4 回收率从 75.6% 提高到 96.8%，CO_2 纯度则从 69.6% 提高到 94.7%。较短的进料步骤使每个循环进入的 CO_2 减少，这与更高的 CH_4 纯度一致。

当纯度规格要求提高到 95%，并将回收率设为目标函数（RTO 2）时，纯度达到 97.6%，而生产率和回收率基本保持不变。轻组分回流增加（s_L 从 0.58 增至 0.64），且更大比例的回流被用于加压，使富含CH_4的气体从产品端充满塔。纯度的提高是以能耗为代价的：加压过程中需要重新压缩更多气体，且进料步骤更长（166 s），因此每循环能耗增加了 35%，比能耗增加了 13%。将目标函数转为 CO_2 回收率（RTO 3）后，回收率达到 99.6%，CO_2 纯度为 87.8%，接近其 85% 限值。几乎没有 CO_2 进入轻组分产品，其纯度达到 99.7%；但随重产品排出的 CH_4 增加：CH_4 回收率降至 90.8%，生产率比 RTO 2 低 6%，比能耗为该序列中最高，轻组分回流最大（$s_L = 0.67$），且回收的 CH_4 更少。

RTO 4较低的纯度下限使操作点朝相反方向移动。更多 CO_2 进入轻组分产品（CO_2 回收率为 70.4 %），重产品几乎为纯 CO_2（98.8 %），且几乎没有 CH_4 随之损失（回收率为 99.4 %），因此该序列的生产率达到最高，比 RTO 1 高 2.8 %，但纯度低 8.6 个百分点。在此最优点，能耗上限未发挥作用，因为工厂每循环消耗 23.7 MJ。最低能耗事件（RTO 5）将每循环能耗降至 10.9 MJ，比初始点低 65 %，且满足所有放宽后的规格要求。这一下降大部分源于循环时间缩短：进料步骤降至 76 s，接近其下限；用于加压的轻组分产品比例也是该序列中最低的。按每摩尔 CH_4 产品计，能耗从 69.1 降至 61.0 kJ mol^{-1}，比初始点低 12 %。

在前四个事件中，代理模型与工厂之间在任何纯度或回收率上的偏差均未超过 1.7 个百分点，预测能耗与装置值的差异在 1.5% 以内。对于最优点处处于激活状态的约束，在存在此类约束的四个事件中，装置值均高于预测值：RTO 1 中 CH_4纯度高出 0.10 个百分点，RTO 2 中高出 0.48 个百分点，RTO 3 中 CO_2 纯度高出 0.19 个百分点，以及 RTO 5 中 CH_4 纯度高出 0.85 个百分点。最大相对偏差出现在 RTO 5 的能耗上，工厂实际能耗比预测值高 4.4%，但未对该事件的约束产生影响。在这些设置下进行一次优化，在一台配备两个英特尔至强处理器核心、主频为 2.1 GHz 且无图形处理器的虚拟机上耗时 83 至 98 秒，低于表5 中任一运行点的一个循环时长（303 至 800 秒）。

每个最优点都通过单次调整来应用，随后出现的瞬态过程幅度较大。在 RTO 1 之后，CH_4纯度降至 74 %，并连续三个循环低于 90 %；在 RTO 3 之后，CO_2 纯度连续七个循环低于 85 %。问题（2）的约束针对 CSS 值，而这些偏离超出了稳态RTO层的范围。若要限制这些偏离，需要采用过渡策略，例如逐步改变决策变量或使用动态控制层；为直接观察 RTO 决策的响应，本研究未纳入此类策略。

在没有扰动的情况下，基于代理模型的实时优化针对五个目标返回了具有不同活跃约束的可行最优解；代理模型与工厂之间的偏差最大为 1.7 个百分点。情景2和3均从这一条件开始，因此，其中观察到的可行性丧失可归因于扰动。

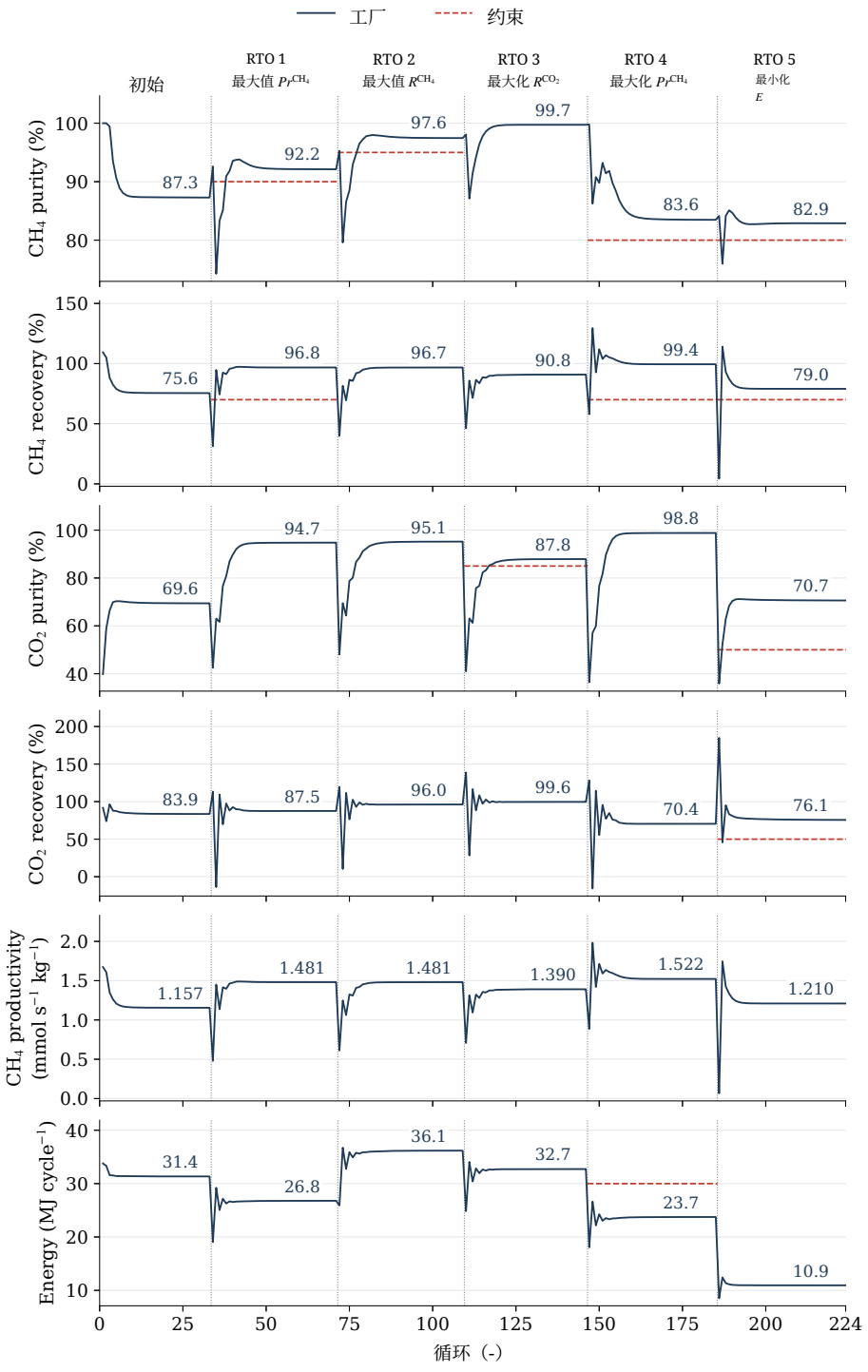

图5： 场景1：连续五个实时优化事件中的工厂指标，每个事件的目标函数显示在阶段上方。数字表示每个阶段在 CSS 下的数值，虚线表示公式 （9）中的约束。回收率超过100%或低于零的情况仅发生在移动后的最初几个循环中，此时吸附床的存量正在变化。

4.2. 情景2：进料组成发生阶跃变化后的在线学习

情景2引入了代理模型输入中未体现的扰动，即进料组成发生阶跃变化。该情景分为四个阶段（图6）：（I）在场景1的初始操作点启动 $\mathbf{u}_0$；（II）在标称进料组成下进行一次实时优化事件，其CSS纯度定义了式（1）的参考值；（III）CO_2 进料比例从0.40阶跃变为0.50，同时保持第二阶段的操作点并监测触发器；（IV）生成局部数据、进行微调并触发一次新的实时优化事件。第二阶段和第四阶段的实时优化事件求解

$$\max_{\mathbf{u}} \; Pr_{CH_4} \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 90\,\%,\; R_{CH_4} \geq 90\,\%,\; P_{CO_2} \geq 85\,\%, \tag{10}$$

问题（2），设置与场景1相同。在第四阶段的实时优化事件中，冲洗循环强度也受到 $s_R s_L \leq 0.45$的限制，原因将在下文说明。触发器监测CH_4 纯度，其中 $I^\star = 0.20$，阶跃变化后的前15个循环不计入式（1），持续性设为五个连续循环。

在标称组成下，实时优化返回的操作点预测纯度为 92.31 %，装置实际达到 92.27 %（表 6），并将其作为参考值。在该操作点，指标在每个循环之间交替变化（图 6），在该阶段最后十个循环中，CH_4 纯度的振幅为 0.41 个百分点，CO_2 回收率的振幅为 3.0 个百分点。冲洗步骤使用上一循环的重产品作为进料（附录A），这使连续循环相互耦合；当循环量较大（此处为 $s_R s_L = 0.50$）时，指标会在两个数值之间交替，而不是趋于稳定。因此，在阶段 IV 的实时优化事件中，冲洗循环强度被限制为 $s_R s_L \leq 0.45$；在该操作点，振幅低于 0.05 个百分点。场景3的实时优化事件也采用了此限值。场景1的操作点是在未施加此限值的情况下获得的，其 $s_R s_L \leq 0.46$，且未出现交替现象。由于 y_{CO_2} 并非代理模型的输入，且阶段 III 的操作点没有改变，因此该阶段的预测与第二阶段相同，而预测值与装置测量值之间的差异反映了步骤引入的失配。步骤发生两个循环后，CH_4 纯度降至 90 % 以下，并趋近于 77 %。在恒定操作点下，该步骤使进料步骤中加入的 CO_2 量增加了 25 %，从每循环 383 mol 增至 479 mol，而吸附床的容量保持不变，因此吸附床无法再将其全部截留，CO_2 便穿透进入轻组分产品。触发时的指标也与此一致：不受约束的 CO_2 回收率从 87.4 % 降至 69.4 %，这意味着额外的 CO_2 随轻组分产品流出；而 CH_4 回收率和 CO_2 纯度与第二阶段的差异不到 1.1 个百分点。CH_4 生产率下降了 17 %，这正是进料中 CH_4 摩尔分数从 0.60 降至 0.50 所造成的，因为回收率几乎没有变化。

累积误差在计数的第二个循环中越过了阈值，即步骤发生后第 17 个循环，并伴随$I = 0.325$。由于偏差持续存在，I 在后续循环中仍高于阈值；在该条件持续五个循环后，于步骤发生后第 21 个循环触发了重新训练，此时 $I = 0.975$ 且纯度为 76.95%，比参考值低 15.3 个百分点。

使用原始代理模型进行新的优化将返回相同的操作点，因为其输入均未发生变化。在 $y_{CO_2} = 0.50$ 处通过单次遍历生成了 45 个样本，这些样本取自操作点周围大小为 $\pm 40\,\%$ 的区域，并分别最多积分 40 个循环，起始状态为触发器触发时塔的状态；其中 43 个样本达到了 CSS。使用这些样本对网络进行微调，学习率为 2×10^{-4}；当验证损失连续 25 个训练轮次未下降时，学习率减半；批量大小为 8，并将 25% 的样本用于验证。当验证损失连续 60 个训练轮次未下降或达到 400 个训练轮次时，微调停止；本例完成了 400 个训练轮次。表 7 给出了网络在微调前后验证样本上的平均绝对误差。微调前，最大的误差出现在 CH_4 纯度（9.3 个百分点）和 CO_2 回收率（8.8 个百分点）上，这些指标反映了 CO_2，的穿透；微调后，所有纯度和回收率的误差均不超过 1.2 个百分点。能耗误差变化不大，从每循环 0.43 MJ 变为 0.33 MJ，约为其数值的 1%，因为每循环压缩的气体量受进料组成的影响很小。

采用微调后的网络进行实时优化，返回的操作点预测纯度为 92.17%；工厂在移动 16 个循环后达到 CSS 状态，纯度为 90.31%，恢复了可行性。四种纯度和回收率的预测值与工厂实际值之间的偏差最大为 1.9 个百分点，针对 CH_4 纯度而言，且所有指标的工厂实际值均低于预测值。移动后经历的瞬态过程中，纯度连续四个循环低于 90%。

新的操作点使进料步骤缩短了31%（132秒，而不是191秒），从而使每循环吸附的CO_2 量达到330 mol，低于第二阶段的383 mol，并使CO_2 回收率恢复至90.0%。由于循环按相同比例缩短，处理的进料流量保持不变。生产率为1.214 mmol s^{-1} kg^{-1}，比第二阶段低19%；其中17%归因于进料中较低的CH_4 含量，其余部分归因于较低的回收率（95.2%，而不是97.5%）。随着循环缩短，每循环能耗降至27.7 MJ，但比能耗从76.5升至88.2 kJ mol^{-1}，因为相近的单位进料压缩功如今产生的CH_4更少。

表6场景2：代理模型预测值和装置值。阶段II和IV处于CSS；阶段III处于触发重新训练的循环。

阶段	代理模型	y_{CO_2}	P_{CH_4} (%)		Pr_{CH_4} (mmol s^{-1} kg^{-1})	
			预测值	工厂	预测值	工厂
II	原始	0.40	92.31	92.27	1.485	1.492
III	原始	0.50	92.31	76.95	1.485	1.241
IV	微调	0.50	92.17	90.31	1.219	1.214

表7网络在验证样本上的平均绝对误差，微调前（原始）和微调后； n 为验证样本数量。

	场景2（$n = 11$）		场景3，范围（$n = 10$）		场景3，目标（$n = 9$）	
输出	原始	微调	原始	微调	原始	微调
P_{CH_4} （百分点）	9.34	0.86	1.72	0.57	2.05	0.51
R_{CH_4} (分压)	4.31	0.59	1.18	0.80	1.81	0.21
P_{CO_2} (分压)	7.06	1.15	2.40	0.98	3.20	0.35
R_{CO_2} (分压)	8.82	0.87	3.15	1.11	3.59	0.92
Pr_{CH_4} （mmol s^{-1} kg^{-1}）	0.165	0.009	0.019	0.011	0.027	0.002
Pr_{CO_2} （mmol s^{-1} kg^{-1}）	0.100	0.016	0.032	0.011	0.037	0.008
E (MJ 循环$^{-1}$)	0.43	0.33	0.53	0.28	0.25	0.23

如果保持第二阶段的操作点，只要新的进料组成持续存在，轻组分产品就会持续比90%规格低13.1个百分点；步骤改变后监测的21个循环中，有20个低于限值。采用自适应实时优化后，在移动操作点后模拟的35个循环中，只有瞬态过程的4个循环纯度低于限值，并且在CH_4 回收率比步骤改变前低2.3个百分点的情况下恢复了规格要求。

步骤之后，工厂保持在固定状态，因此之后收集的样本是在下一次实时优化事件所面临的相同状态下生成的。在场景3中，扰动在重新训练后仍会继续演变。

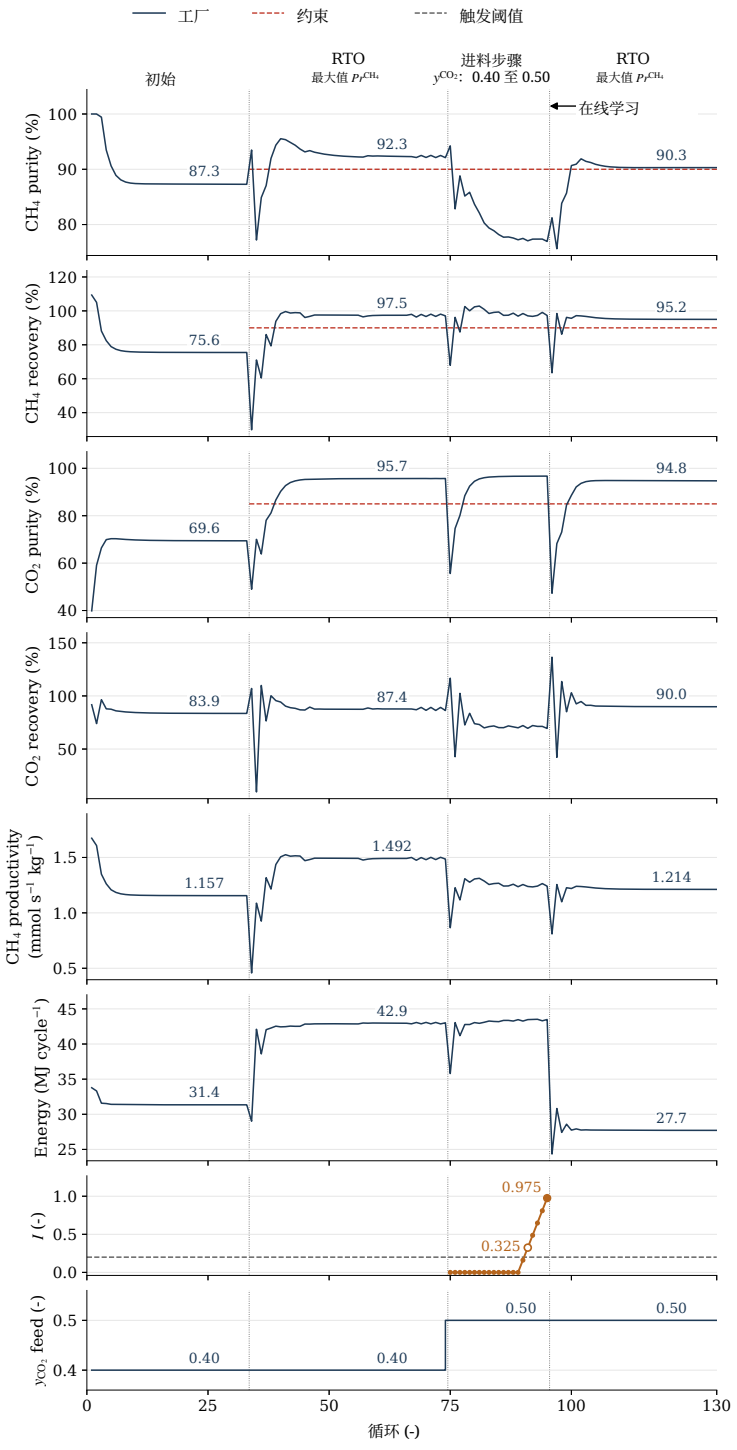

图 6： 场景2：阶段 I 至 IV 中的工厂指标、累积误差 I 和 CO_2 进料比例，以及各阶段上方每次实时优化事件的目标函数。数字表示各阶段达到 CSS 时的数值，虚线表示约束和触发阈值。空心圆标记 I 超过阈值的循环，实心圆标记触发重新训练的循环。

4.3. 情景3：吸附剂渐进老化下的在线学习

在情景3中，扰动是吸附剂容量逐渐损失，这一因素同样未包含在代理模型输入中。该情景也分为四个阶段（图7）：（I）使用新鲜吸附剂，在 $\mathbf{u}_0$ 启动；（II）进行一次实时优化事件，其 CSS 纯度定义了方程（1）的参考值 r；（III）在保持第二阶段操作点的同时发生活性衰减，并监测触发器；（IV）重新训练，进行一次新的实时优化事件，并继续衰减至 $a = 0.50$，随后在最终活度下运行30个循环。第二阶段和第四阶段的实时优化事件求解

$$\max_{\mathbf{u}} \; Pr_{CH_4} \quad \text{s.t.} \quad P_{CH_4} \geq 90\,\%,\; R_{CH_4} \geq 90\,\%,\; P_{CO_2} \geq 85\,\%,\; s_{\mathrm{R}} s_{\mathrm{L}} \leq 0.45, \tag{11}$$

形式为问题（2），设置与场景1相同。触发器采用场景2中的设置，但排除衰减开始后的前15个循环，且不设置持续性。

第二阶段的实时优化事件返回了一个预测纯度为92.67%的设定点；运行17个循环后，装置纯度达到92.68%，并将其作为参考值。第三阶段开始时，活度开始下降。由于代理模型不包含活度信息，其对当前操作点的预测仍为92.67%，而装置纯度则逐渐下降。方程（1）的累积误差在衰减47个循环后达到阈值，此时为 $a = 0.853$，$I = 0.207$，相对于参考值的瞬时偏差为0.87个百分点。此时装置纯度为91.81%，高于90%的限值。若保持该操作点，约65个循环后纯度将低于限值，即 $a \approx 0.65$；衰减结束时，纯度将降至83.27%（表8）。容量损失造成的影响与场景2中的进料步骤相同，但发生速度更慢：吸附床每个循环吸附的 CO_2 减少；若保持该操作点，衰减结束时 CO_2 回收率将从88.4%降至71.2%，而 CH_4 回收率和生产率则将维持在95.6%和1.463 mmol s^{-1} kg^{-1}。纯度下降幅度在整个衰减过程中并不均匀：容量损失最初15%期间下降0.9个百分点，随后20%期间下降2.1个百分点，最后15%期间下降6.4个百分点。

对于恒定偏差，阈值 $I^{\star} = 0.20$ 相当于低于参考值 1% 时运行 20 个循环，或低于 0.5% 时运行 40 个循环。在这种情况下，触发器比未重新训练时将会发生的首次约束违反提前了约 65 个循环。

表 8比较了第2.3节中两种再训练条件的结果。两种条件下，局部样本均分两轮生成：第一轮在以第二阶段操作点为中心、范围为 $\pm 40\,\%$ 的方框内生成 30 个样本，第二轮在以首次优化提出的点为中心、范围为 $\pm 10\,\%$ 的方框内生成 10 个样本；每个样本最多积分 40 个循环，并采用场景 2 的设置对网络进行微调。对于范围条件，β 设为 4.27 个百分点，即第二阶段操作点在剩余衰减期间纯度降幅的一半。

在覆盖活性范围的数据中，第一轮的 30 个样本有 28 个达到 CSS，全部 40 个样本中有 38 个达到 CSS。这些样本来自产能不同的工厂状态；由于活度不是网络的输入，决策变量相近而活度不同的样本对应相同的输入，但指标不同，因此微调后的网络只能拟合出折中结果。微调后的验证误差与目标条件下的结果相近（表 7），CH_4 纯度的验证误差为 0.57 个百分点，而目标条件下为 0.51 个百分点；不过，该误差是在覆盖相同活度范围的样本上测得的，因此不能反映最终活度下的误差。预测的最优点纯度为 95.35%。在工厂中，移动后最初几个循环该点的纯度为 98.3%，此时活度仍接近 0.85；随着衰减进行，纯度降至末期的 88.56%。预测值介于这两个数值之间，而衰减末期预测值与工厂实际值的偏差为 6.79 个百分点。在 $a \approx 0.54$，纯度跌破 90% 的限值，并在最后 44 个循环中一直低于该限值。该点的进料步骤比第二阶段的进料步骤短，但每个循环仍可处理 325 mol 的 CO_2，而目标条件下所得点为 219 mol。在最后 30 个循环中，即 $a = 0.50$，范围数据训练的最优点出现循环间振荡，纯度和生产率的振幅分别为 0.70 个百分点和 0.045 mmol s^{-1} kg^{-1}；目标数据训练的最优点相应振幅为 0.05 个百分点和 0.0002 mmol s^{-1} kg^{-1}。

使用目标活度生成的数据时，所有样本均代表衰减结束时的工厂工况。在第一轮中，30 个样本中有 25 个达到 CSS，网络经过 80 个训练轮次的微调。第二轮之后，共有 35 个有效样本，第二阶段的网络利用这些样本进行了 400 个训练轮次的微调；纯度和回收率的验证误差均降至不超过 0.9 个百分点（表 7）。预测的最优点为纯度 93.28%，工厂在 $a = 0.50$ 达到了 92.64%。预测值比装置值高 0.64 个百分点。在剩余的衰减过程中，活度高于再训练数据所代表的数值：移动后的几个循环中，工厂纯度升至 95.8%，随后逐渐下降至最终活度对应的数值。移动过程的瞬态阶段中，纯度有一个循环低于 90%；瞬态结束后，最低纯度为 92.42%，在衰减结束时达到。

表8场景3：衰减结束时（$a = 0.50$）不同再训练条件下的结果。

再训练数据	t_F (s)	预测值 P_{CH_4} (%)	工厂 P_{CH_4} (%)	最小值 P_{CH_4} (%)	Pr_{CH_4} (mmol s^{-1} kg^{-1})
不进行再训练	193.5	92.67	83.27	83.27	1.463
范围，$a \in [0.50, 0.853]$	162.6	95.35	88.56	87.86	1.508
目标，$a = 0.50$	109.7	93.28	92.64	92.42	1.481

表9在保持第二阶段操作点的操作，以及采用自适应实时优化的操作。场景2：在触发时保持设定点；在 CSS 下采用自适应操作。场景3：两者均在衰减结束时（$a = 0.50$）。最后一列给出扰动后（保持设定点）或 RTO 移动后（自适应）的 $P_{CH_4} < 90\,\%$ 循环数，统计范围为模拟的循环数。

情景	操作	t_F (s)	P_{CH_4} (%)	R_{CO_2} (%)	Pr_{CH_4} (mmol s^{-1} kg^{-1})	E_s (kJ mol^{-1})	以下循环限值
2	保持设定点	191.5	76.95	69.4	1.241	93.4	20/21
2	自适应实时优化	132.1	90.31	90.0	1.214	88.2	4/35
3	保持设定点	193.5	83.27	71.2	1.463	64.2	50/160
3	自适应实时优化	109.7	92.64	88.5	1.481	66.6	1，共 143 页

可行最优点的生产率为 1.481 mmol s^{-1} kg^{-1}，比不可行的范围数据训练的最优点低约 2%，比使用新鲜吸附剂的第二阶段最优点高 1.2%。该适应主要作用于进料步骤，其时长缩短了 43%（109.7 秒，而非 193.5 秒），容量损失为 50%，因此每循环吸附的 CO_2 从 387 mol 降至 219 mol，与剩余容量相符。由于循环时长按相同比例缩短，处理的进料流量保持不变，生产率得以保持，并且以更短的循环使用容量减半的吸附床。每循环能耗从 38.0 MJ 降至 21.2 MJ，比能耗从 68.6 kJ mol^{-1} 降至 66.6 kJ mol^{-1}。在终点已知的单调扰动下，于该终点生成再训练数据，得到的操作点在移动瞬态结束后的剩余轨迹中始终保持可行，仅需进行一次重新训练。

表 9 汇总了这两种扰动，并比较了保持第二阶段操作点时的操作情况（这也是不更新模型的实时优化所得结果）与自适应实时优化的结果。

保持操作点不变时，在衰减结束时，轻组分产品的纯度比规格要求低 6.7 个百分点；在衰减期间的 160 个循环中，有 50 个循环低于限值。相比之下，采用自适应实时优化时，仅在调整过程的瞬态过程中有一个循环低于限值。与进料步骤后的情况一样，损失体现在产品质量而非产量上：吸附床不再截留的 CO_2 随轻组分产品排出，而 CH_4 回收率的变化不到 0.3 个百分点；衰减结束时的生产率与使用新鲜吸附剂时相同，因此容量损失不会体现在产率上。

在这两种情景中，自适应实时优化都通过同一种方式恢复了规格要求：缩短进料步骤，减少每个循环的 CO_2 进料量。进料步骤扰动后减少了 14%，容量损失情景下减少了 43%，且对其他指标影响很小：在场景3中，生产率和比能耗与使用新鲜吸附剂时的数值相差均不超过 3%。因此，轻组分产品的纯度取决于每个循环的 CO_2 进料量与吸附床容量之间的关系。进料组成和吸附剂容量会在操作过程中改变这种关系，而在标称条件下识别出的 CSS 代理模型并不包含这两方面的信息，因此只有利用工厂当前工况的数据更新模型，才能修正操作点。渐进扰动还体现了触发器的作用：随着容量下降，纯度损失会加速；累积偏差使重新训练提前约 65 个循环启动，早于达到限值的时间。

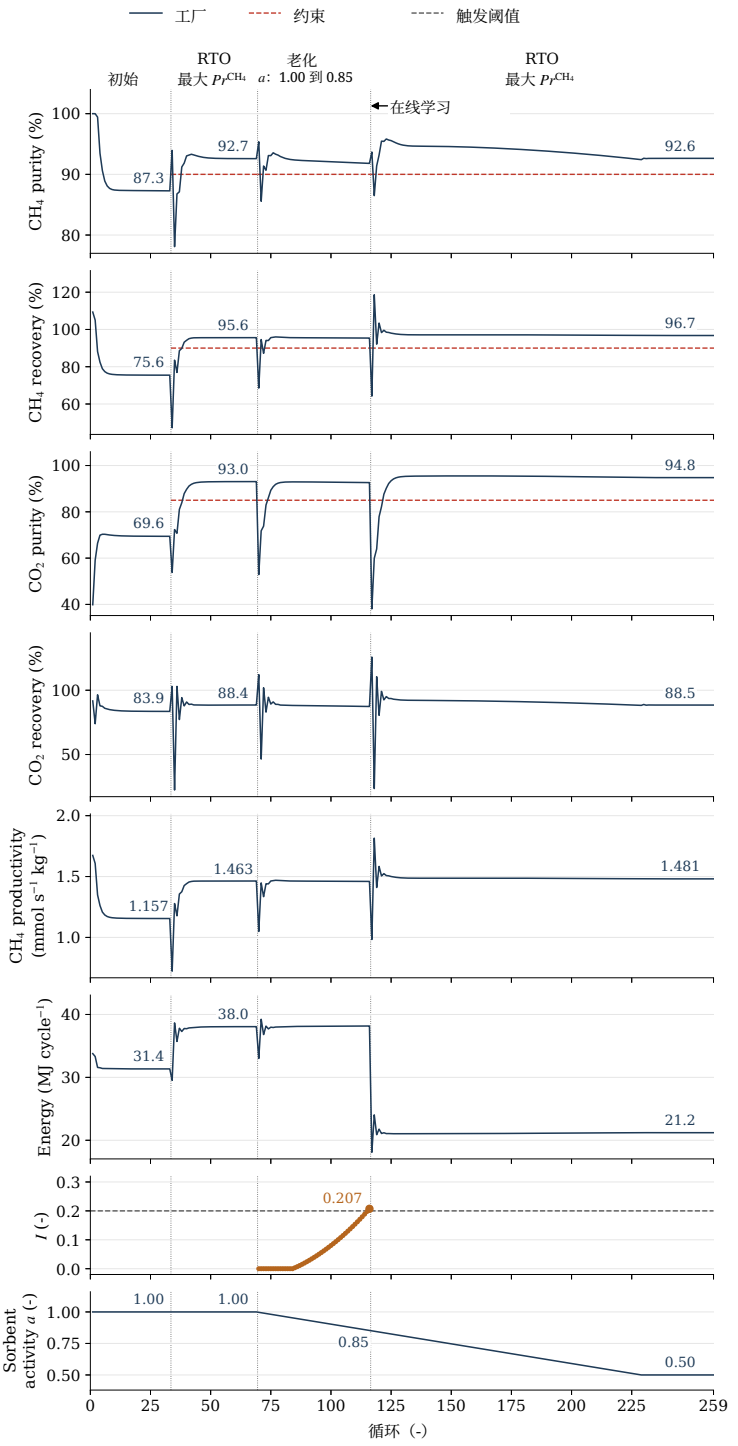

图7： 场景3：阶段 I 至 IV 的工厂指标、累积误差 I 和吸附剂活性 a，在目标条件下重新训练，且各实时优化事件的目标函数显示在阶段上方。数字表示各阶段 CSS 下的数值，其中阶段 IV 的数值位于衰减结束时（$a = 0.50$）；虚线表示约束和触发阈值。实心圆标记触发重新训练的循环。

5. 结论

开发了一种用于变压吸附装置的实时优化框架，其中通过粒子群算法优化 CSS 指标的神经网络代理模型，并利用工厂生成的样本进行微调，以实现在线更新。将该框架应用于 CH_4/CO_2 分离，在以严格动态模型作为虚拟装置的三种情景下，得出以下结论。

在无扰动情况下，针对不同目标函数进行的连续五次实时优化事件均得到了可行最优解，代理模型与工厂之间的偏差最大为 1.7 个百分点。对于所有限定最优点的约束，工厂的实际状态均处于预测的安全侧。

进料组成发生阶跃变化（该变量不是代理模型的输入）后，在恒定操作点下，CH_4 纯度从 92.3% 降至 76.9%，而代理模型预测保持不变。阶跃变化后 17 个循环时，累积误差超过阈值；在连续五个循环保持高于阈值后，触发了重新训练。利用 43 个局部样本进行微调后，纯度的验证误差从 9.3 个百分点降至 0.9 个百分点；随后进行的实时优化事件得到了可行最优解，纯度为 90.3%，比预测值低 1.9 个百分点。

随着吸附剂容量逐渐损失，相对于纯度参考值的累积相对偏差在活度降至初始值的 85% 时触发了重新训练，此时尚未发生任何约束违反，且比未进行重新训练时首次发生约束违反提前约 65 个循环。生成再训练数据时的条件决定了结果是否可行。若数据覆盖剩余活性范围，则衰减结束时最优点的纯度达到 88.56%，低于 90% 的限值。若数据是在最终活度下生成的，则在移动操作的瞬态过程结束后，最优点在整个衰减过程中始终可行；到衰减结束时，预测值与工厂实际值之间的偏差为 0.64 个百分点。

在两种受扰情景中，损失均体现在轻组分产品的纯度上：未再被吸附床截留的 CO_2 随之流出，而 CH_4 的回收率变化不到 0.3 个百分点。自适应实时优化主要通过缩短进料步骤来恢复规格要求：进料步骤缩短了 31%，容量损失 50% 时缩短了 43%；在老化情景下，生产率和比能耗仍保持在使用新鲜吸附剂时数值的 3% 以内。

未来的工作将研究测量噪声、在终点条件事先未知时对其进行估计，以及一种能够限制每次RTO移动后瞬态过程违规的过渡策略。

CRediT作者贡献声明

Carine de Menezes Rebello：概念化、方法、软件、验证、形式分析、调查、数据管理、可视化、撰写原始稿件。**Marcio Fontana：**撰写、审阅与编辑。**Leizer Schnitman：**撰写、审阅与编辑。**Idelfonso B. R. Nogueira：**概念化、方法、资源、监督、项目管理、撰写、审阅与编辑。

利益冲突声明

作者声明，他们不存在任何已知的可能影响本文所报告工作、且未在文中披露的经济利益冲突或个人关系。

数据可用性

数据可应要求提供。

致谢

作者感谢 Puffin HUB 的支持。

A. 变压吸附塔的严格模型

虚拟装置是一个填充塔的一维非等温模型。该模型采用了我们先前工作中的变压吸附模型所作的假设 [91]：理想气体行为；浓度、压力或温度不存在径向梯度；轴向弥散活塞流；吸附剂性质和床层孔隙率沿塔保持不变；气体与吸附剂之间处于热平衡；传质采用线性推动力（LDF）速率方程描述 [130]；以及

压降由 Ergun 方程给出。与该模型不同的是，这里的方程采用有量纲形式，并且加入了塔壁的能量平衡。

气相组分 i 的质量平衡为

$$\varepsilon \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\frac{\partial (u\, C_i)}{\partial z} + \varepsilon\, D_{\mathrm{ax}} \frac{\partial^2 C_i}{\partial z^2} - (1-\varepsilon)\, \rho_{\mathrm{p}} \frac{\partial q_i}{\partial t}, \tag{12}$$

其中，C_i 为气体浓度，q_i 为吸附量，u 为表观速度，ε 为床层孔隙率，ρ_{p} 为颗粒密度，D_{ax} 为轴向弥散系数。吸附速率由线性推动力模型给出：

$$\frac{\partial q_i}{\partial t} = k_i \left(q_i^{*} - q_i\right), \qquad k_i = \frac{15\, D_{\mathrm{p},i}}{R_{\mathrm{p}}^2} \frac{P_{\mathrm{H}}}{P}, \tag{13}$$

其中，$D_{\mathrm{p},\,i}$ 为粒子内的扩散系数，R_{p} 为颗粒半径，P 为局部压力，P_{H} 为循环的高压。平衡时的吸附量 q_i^{*} 遵循具有温度依赖的亲和力的朗缪尔等温线：

$$q_i^{*} = \frac{a\, q_{\mathrm{sat},i}\, b_i\, p_i}{1 + \sum_j b_j\, p_j}, \qquad b_i = b_{0,i} \exp\!\left(\frac{-\Delta H_i}{R\,T}\right), \tag{14}$$

其中，$p_i = C_i RT$ 为分压，$a \in (0,1]$ 为第3.1节引入的吸附剂活性，对新鲜吸附剂而言其值为 1。吸附床沿程的压降由 Ergun 方程给出：

$$-\frac{\partial P}{\partial z} = \frac{150\,\mu\,(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_{\mathrm{p}}^2}\, u + \frac{1.75\,(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3 d_{\mathrm{p}}}\, \rho_{\mathrm{g}}\, u\,|u|, \tag{15}$$

其中，μ 为气体黏度，d_{p} 为颗粒直径，ρ_{g} 为气体密度。

当 $C = \sum_i C_i$ 气体和吸附剂处于相同温度 T时，吸附床的能量平衡为

$$\begin{aligned}(\rho c)_{\mathrm{b}} \frac{\partial T}{\partial t} = &- \frac{\partial (u\, C\, C_{p,\mathrm{g}}\, T)}{\partial z} + \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + (1-\varepsilon)\, \rho_{\mathrm{p}} \sum_i (-\Delta H_i) \frac{\partial q_i}{\partial t} \\ &+ \left[\varepsilon + (1-\varepsilon)\, \varepsilon_{\mathrm{p}}\right] R\,T \frac{\partial C}{\partial t} - \frac{4\, h_{\mathrm{w}}}{D} \left(T - T_{\mathrm{w}}\right),\end{aligned} \tag{16}$$

其中，吸附床的单位体积热容为$(\rho c)_{\mathrm{b}} = \varepsilon C\, C_{v,\,\mathrm{g}} + (1-\varepsilon)\left[\varepsilon_{\mathrm{p}} \sum_i C_i\, C_{v,i} + \rho_{\mathrm{p}} \sum_i q_i\, C_{v,i} + \rho_{\mathrm{p}}\, C_{p,\mathrm{s}}\right]$。右侧各项分别表示对流、轴向传导、吸附热、气体浓度变化的影响以及与壁面的热交换；$C_{p,\,\mathrm{g}}$ 和$C_{v,\,\mathrm{g}}$ 分别为气体混合物的热容，$C_{v,\,i}$ 为组分 i的热容，$C_{p,\,\mathrm{s}}$ 为吸附剂的热容，ε_{p} 为颗粒孔隙率，λ 为轴向热导率，h_{w} 为气体与塔壁之间的传热系数，D 为塔径。壁温 T_{w} 满足

$$\rho_{\mathrm{w}}\, C_{p,\mathrm{w}} \frac{\partial T_{\mathrm{w}}}{\partial t} = \alpha_{\mathrm{w}}\, h_{\mathrm{w}} \left(T - T_{\mathrm{w}}\right) - \alpha_{\mathrm{wl}}\, U \left(T_{\mathrm{w}} - T_{\infty}\right), \tag{17}$$

其中，ρ_{w} 和$C_{p,\,\mathrm{w}}$ 分别为壁面的密度和热容，α_{w} 和 α_{wl} 分别为壁面与气体及周围环境进行热交换的比表面积，U 为与周围环境之间的总传热系数，T_{∞}为环境温度，取为进料温度。

速度和压力分布取决于步骤。在出口压力恒定且流体流经塔的步骤（进料、冲洗和吹扫）中，入口处的摩尔通量已指定，沿吸附床的通量由总质量平衡确定，而压力分布则由式（15）从出口开始积分得到。在降压步骤中，入口关闭，出口压力从高压到低压呈指数衰减。在加压步骤中，出口关闭，压力由理想气体定律确定，速度则由式（15）确定；当达到高压时，该步骤结束。在入口处，进入流的组成和温度是给定的；在出口处，弥散通量和传导通量为零。主要参数列于表 10中。

采用有限体积法将方程在空间上离散为 50 个单元，并使用一阶迎风对流；随后使用 DifferentialEquations.jl 的 KenCarp4 方法对所得常微分方程组进行积分[131, 132]，相对容差和绝对容差分别为 10^{-6} 和 10^{-8}。对单个塔进行循环仿真，并存储及重复使用各步骤之间交换的物流：冲洗步骤接收上一循环的重产品，而吹扫和加压步骤接收当前循环的轻组分产品。每个循环结束时的塔状态是下一循环的初始状态；操作点改变时，仿真则从当前状态继续进行。

表 10虚拟装置的塔、吸附剂和等温线参数。

参数	值	Unit
柱长；直径	1.5；0.9	m
吸附剂质量	490	kg
床层孔隙率；颗粒孔隙率	0.38；0.41	-
颗粒密度；颗粒半径	828；1.5	千克 米⁻³；毫米
q_{sat} (CO_2；CH_4)	6.377；7.381	$mol\ kg^{-1}$
b_0 (CO_2；CH_4)	1.55×10^{-5}；8.07×10^{-5}	bar^{-1}
$-\Delta H$ (CO_2；CH_4)	26.4；18.3	$kJ\ mol^{-1}$
D_p (CO_2；CH_4)	6.4×10^{-7}；8.93×10^{-7}	$m^2\ s^{-1}$
轴向弥散系数	2.6×10^{-6}	$m^2\ s^{-1}$
h_w；U	60；40	$W\ m^{-2}\ K^{-1}$
α_w；α_{wl}	1.69；4.4	m^{-1}
高压；低压	5.0；0.1	bar
进料温度	303.15	K

参考文献

[1] K. P. Halemane, I. E. Grossmann, 不确定性下的最优过程设计，AIChE期刊 29 (1983) 425–433. [2] R. E. Swaney, I. E. Grossmann, 化学过程设计中操作灵活性的指标。第一部分：表述与理论，AIChE期刊 31 (1985) 621–630.[3] A. Mitsos, N. Asprion, C. A. Floudas, M. Bortz, M. Baldea, D. Bonvin, A. Caspari, P. Schäfer, 新型原料与能源的过程优化挑战，计算机与化学工程 113 (2018) 209–221. [4] C. H. Bartholomew, 催化剂失活的机理，Applied Catalysis A: General 212 (2001) 17–60. [5] H. Müller-Steinhagen, 传热结垢：Kern和Seaton模型问世 50 年后，Heat Transfer Engineering 32 (2011) 1–13. [6] B. O. Nascimento, B. F. dos Santos, D. A. S. Maia, D. C. de Melo, E. Vilarrasa-García, A. E. B. Torres, M. Bastos-Neto, D. C. S. Azevedo, 新鲜与热老化沸石中的水吸附：平衡与动力学，Adsorption 27 (2021) 1043–1053. [7] S. Skogestad, 全厂控制：寻找自优化控制结构，过程控制期刊 10 (2000) 487–507. [8] J. Jäschke, Y. Cao, V. Kariwala, 自优化控制：综述，Annual Reviews in Control 43 (2017) 199–223. [9] M. R. Naysmith, P. L. Douglas, 化学过程工业实时优化综述，Developments in Chemical Engineering and Mineral Processing 3 (1995) 67–87. [10] S. Engell, 面向最优过程操作的反馈控制，过程控制期刊 17 (2007) 203–219. [11] P. Tatjewski, 多层结构中的先进控制与在线过程优化，Annual Reviews in Control 32 (2008) 71–85. [12] M. L. Darby, M. Nikolaou, J. Jones, D. Nicholson, 实时优化：现状概述与评估，过程控制期刊 21 (2011) 874–884.[13] M. Câmara, A. Quelhas, J. Pinto, 工业实时优化系统的性能评估，Processes 4 (2016) 44. [14] J. F. Forbes, T. E. Marlin, J. F. MacGregor, 优化工厂操作的模型充分性要求，计算机与化学工程 18 (1994) 497–510.[15] B. Chachuat, B. Srinivasan, D. Bonvin, 实时优化的自适应策略，计算机与化学工程 33 (2009) 1557–1567.[16] A. Marchetti, B. Chachuat, D. Bonvin, 实时优化的修正器自适应方法，《工业与工程化学研究》48 (2009) 6022–6033.[17] A. G. Marchetti, G. François, T. Faulwasser, D. Bonvin, 实时优化的修正器适应：方法与应用，Processes 4 (2016) 55.[18] D. Krishnamoorthy, B. Foss, S. Skogestad, 利用瞬态测量进行稳态实时优化，计算机与化学工程 115 (2018) 34–45. [19] C. M. Rebello, P. H. Marrocos, E. A. Costa, V. V. Santana, A. E. Rodrigues, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira, 面向过程工程应用的基于机器学习的动态建模：从感知器到深度学习的仿真与预测指南，Processes 10 (2022) 250.[20] F. A. R. D. Lima, C. M. Rebello, E. A. Costa, V. V. Santana, M. G. F. de Moares, A. G. Barreto, A. R. Secchi, M. B. de Souza, I. B. R. Nogueira, 利用通用微分方程改进结晶过程建模，Chemical Engineering Research and Design 200 (2023) 538–549.[21] L. P. Queiroz, C. M. Rebello, E. A. Costa, V. V. Santana, B. C. L. Rodrigues, A. E. Rodrigues, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira, 利用科学机器学习生成风味分子，ACS Omega 8 (2023) 10875–10887. [22] L. P. Queiroz, C. M. Rebello, E. A. Costa, V. V. Santana, B. C. L. Rodrigues, A. E. Rodrigues, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira, 一种用于发现天然风味分子的强化学习框架，Foods 12 (2023) 1147. [23] T. de Avila Ferreira, H. A. Shukla, T. Faulwasser, C. N. Jones, D. Bonvin, 通过修正器适应和高斯过程对不确定过程系统进行实时优化，载于：2018年欧洲控制会议（ECC），利马索尔，塞浦路斯，2018年，第466–471页。

doi:10.23919/ECC.2018.8550397.[24] E. A. del Rio-Chanona, P. Petsagkourakis, E. Bradford, J. E. A. Graciano, B. Chachuat，实时优化结合贝叶斯优化与无导数优化：修正器适应的故事，《计算机与化学工程》147 (2021) 107249。[25] J. Ehlhardt, A. Ahmad, I. Wolf, S. Engell，利用机器学习模型对4,4′-二苯基甲烷二异氰酸酯生产过程进行实时优化，Chemie Ingenieur Technik 95 (2023) 1096–1103。[26] E. A. Costa, C. d. M. Rebello, I. B. R. Nogueira，利用代理模型对电潜泵进行实时优化与先进过程控制，过程控制期刊161 (2026) 103683。[27] P. Kadlec, R. Grbić, B. Gabrys，数据驱动软测量仪表适应机制综述，《计算机与化学工程》35 (2011) 1–24。[28] C. Hu, Y. Cao, Z. Wu，具有预定模式转换的非线性系统在线机器学习建模与预测控制，AIChE期刊69 (2023) e17882。[29] M. S. Alhajeri, Y. M. Ren, F. Ou, F. Abdullah, P. D. Christofides，基于迁移学习循环神经网络的非线性过程模型预测控制，Chemical Engineering Research and Design 205 (2024) 1–12。[30] C. M. Rebello, I. B. R. Nogueira，化学工程中的数字孪生：涵盖辨识、实施、在线学习与不确定性评估的集成框架，《计算机与化学工程》200 (2025) 109178。[31] C. M. Rebello, J. Jäschke, I. B. R. Nogueira，用于气举作业自主决策的数字孪生：提高可靠性与适应性，IFAC-PapersOnLine 59 (2025) 55–60。[32] E. A. Costa, C. M. Rebello, L. Schnitman, J. M. Loureiro, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira，用于变压吸附系统的自适应数字孪生：集成新型反馈跟踪系统、在线学习与不确定性评估，以提升性能，Engineering Applications of Artificial Intelligence 127 (2024) 107364。[33] L. M. C. Oliveira, R. Dias, C. M. Rebello, M. A. F. Martins, A. E. Rodrigues, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira，人工智能与信息物理系统：化学工业的回顾与未来展望，AI 2 (2021) 429–443。[34] A. Santos Sánchez, K. P. Oliveira-Esquerre, I. B. R. Nogueira, P. de Jong, A. Aguiar Filho，通过智能水系统进行水损管理，载于：S. Patnaik, S. Sen, M. S. Mahmoud（编），《智能乡村技术：概念与发展》，科学与技术中的建模与优化第17卷，施普林格，查姆，2020年，第233–266页。doi:10.1007/978-3-030-37794-6_12。[35] D. M. Ruthven, S. Farooq, K. S. Knaebel，《变压吸附》，VCH出版社，纽约，1994。[36] S. Sircar，变压吸附，《工业与工程化学研究》41 (2002) 1389–1392。[37] M. P. S. Santos, C. A. Grande, A. E. Rodrigues，沼气提纯变压吸附过程的动态研究及其对进料扰动的响应，《工业与工程化学研究》52 (2013) 5445–5454。[38] M. M. F. Hasan, R. C. Baliban, J. A. Elia, C. A. Floudas，可变进料浓度与流量下燃烧后二氧化碳捕集的建模、仿真与优化。2. 变压吸附与真空变压吸附过程，《工业与工程化学研究》51 (2012) 15665–15682。[39] S. Kim, D. Ko, I. Moon，采用变压吸附过程分离CH4/CO2时进料组成变化下的动态优化，Chemical Engineering Transactions 45 (2015) 853–858。[40] F. Brandani, D. M. Ruthven，水对X型沸石吸附CO2和C3H8的影响，《工业与工程化学研究》43 (2004) 8339–8344。[41] G. Li, P. Xiao, P. Webley, J. Zhang, R. Singh, M. Marshall，利用13X沸石真空变压吸附从高湿度烟气中捕集CO2，Adsorption 14 (2008) 415–422。[42] A. Alonso-Vicario, J. R. Ochoa-Gómez, S. Gil-Río, O. Gómez-Jiménez-Aberasturi, C. A. Ramírez-López, J. Torrecilla-Soria, A. Domínguez，利用合成沸石和天然沸石通过变压吸附纯化和提纯沼气，Microporous and Mesoporous Materials 134 (2010) 100–107。[43] I. B. R. Nogueira, A. M. Ribeiro, A. E. Rodrigues, J. M. Loureiro，真实移动床分离过程的动态特性：采用正交化方法研究操作变量对性能指标的影响，《计算机与化学工程》86 (2016) 5–17。[44] I. B. R. Nogueira, A. M. Ribeiro, A. E. Rodrigues, J. M. Loureiro，过程扰动下的动态响应：瞬态工况下真实移动床/模拟移动床模型的比较，《计算机与化学工程》99 (2017) 230–244。[45] R. Haghpanah, A. Majumder, R. Nilam, A. Rajendran, S. Farooq, I. A. Karimi, M. Amanullah，通过有限体积模拟对用于燃烧后二氧化碳捕集的四步吸附过程进行多目标优化，《工业与工程化学研究》52 (2013) 4249–4265。[46] S. G. Subraveti, Z. Li, V. Prasad, A. Rajendran，基于机器学习的变压吸附多目标优化，《工业与工程化学研究》58 (2019) 20412–20422。[47] O. J. Smith, A. W. Westerberg，变压吸附系统的最优设计，《化学工程科学》46 (1991) 2967–2976。[48] L. T. Biegler, L. Jiang, V. G. Fox，变压吸附系统仿真与最优设计的最新进展，《分离与纯化评论》33 (2004) 1–39。[49] A. Agarwal, L. T. Biegler, S. E. Zitney，用于燃烧前二氧化碳捕集的变压吸附循环基于超结构的最优综合，《工业与工程化学研究》49 (2010) 5066–5079。[50] S. Nilchan, C. C. Pantelides，周期性吸附过程的优化，Adsorption 4 (1998) 113–147。[51] L. Jiang, L. T. Biegler, V. G. Fox，空气分离用变压吸附系统的仿真与优化，AIChE期刊49 (2003) 1140–1157。[52] D. Ko, R. Siriwardane, L. T. Biegler，利用13X沸石优化用于CO2封存的变压吸附过程，《工业与工程化学研究》42 (2003) 339–348。[53] D. Ko, R. Siriwardane, L. T. Biegler，二氧化碳捕集用变压吸附与分段真空变压吸附过程的优化，《工业与工程化学研究》44 (2005) 8084–8094。

[54] R. Haghpanah, R. Nilam, A. Rajendran, S. Farooq, I. A. Karimi，燃烧后二氧化碳捕集用VSA过程的循环综合与优化，AIChE期刊59 (2013) 4735–4748。[55] F. Capra, M. Gazzani, L. Joss, M. Mazzotti，MO-MCS：一种用于吸附过程多目标优化的无导数算法，《工业与工程化学研究》57 (2018) 9977–9993。[56] O. J. Smith, A. W. Westerberg，加速变压吸附模型达到循环稳态的收敛，《工业与工程化学研究》31 (1992) 1569–1573。[57] Y. Ding, M. D. LeVan，吸附循环的周期状态 III：直接确定的收敛加速，《化学工程科学》56 (2001) 5217–5230。[58] M. A. Latifi, D. Salhi, D. Tondeur，基于优化的变压吸附过程仿真，Adsorption 14 (2008) 567–573。[59] J. S. Yun, K. H. Cho, M. K. Lim, J. W. Yoon, A. Ferreira, A. M. Ribeiro, P. Carmo, I. B. R. Nogueira, Y.-K. Park, J. Park, I.-H. Song, K. Kim, U.-H. Lee，采用Cu(Qc)2 MOF进行乙烷与乙烯分离的真空变压吸附过程建模与优化，分离与纯化技术326 (2023) 124711。[60] V. V. Santana, P. Carmo, R. Seabra, A. E. Rodrigues, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira, J. W. Yoon, K. H. Cho, J. S. Yun, U.-H. Lee, K. Kim, A. F. P. Ferreira，利用石蜡选择性金属有机框架DUT-8通过变压吸附纯化乙烯，《工业与工程化学研究》63 (2024) 2307–2319。[61] V. V. Santana, C. d. M. Rebello, I. B. R. Nogueira，用于燃烧后二氧化碳捕集的多材料变压吸附床：材料选择与过程优化同步进行——何时采用吸附剂分层有助于提升性能？，Chemical Engineering Research and Design 232 (2026) 387–402。[62] K. N. Pai, V. Prasad, A. Rajendran，用于快速仿真、优化和吸附剂筛选的通用、吸附剂无关人工神经网络框架，《工业与工程化学研究》59 (2020) 16730–16740。[63] A. Bhosekar, M. Ierapetritou，基于代理模型的建模、可行性分析与优化进展：综述，《计算机与化学工程》108 (2018) 250–267。[64] K. McBride, K. Sundmacher，化学过程工程中的代理建模概述，Chemie Ingenieur Technik 91 (2019) 228–239。[65] K. T. Leperi, D. Yancy-Caballero, R. Q. Snurr, F. You，110周年纪念：基于人工神经网络的代理模型，用于模拟和优化二氧化碳捕集变压吸附循环，《工业与工程化学研究》58 (2019) 18241–18252。[66] A. Agarwal, L. T. Biegler, S. E. Zitney，采用降阶建模的变压吸附系统仿真与优化，《工业与工程化学研究》48 (2009) 2327–2343。[67] J. Beck, D. Friedrich, S. Brandani, E. S. Fraga，采用代理模型对VPSA系统设计进行多目标优化，《计算机与化学工程》82 (2015) 318–329。[68] K. Alkebsi, W. Du，采用代理辅助多目标粒子群优化进行VPSA二氧化碳捕集操作，Energy 224 (2021) 120078。[69] H. R. Sant Anna, A. G. Barreto Jr., F. W. Tavares, M. B. de Souza Jr.，用于甲烷-氮气分离的PSA装置机器学习模型与优化，《计算机与化学工程》104 (2017) 377–391。[70] F. Ye, S. Ma, L. Tong, J. Xiao, P. Bénard, R. Chahine，基于人工神经网络的变压吸附氢气纯化性能优化，International Journal of Hydrogen Energy 44 (2019) 5334–5344。[71] J. Xiao, C. Li, L. Fang, P. Böwer, M. Wark, P. Bénard, R. Chahine，基于机器学习的分层吸附床变压吸附氢气纯化性能优化，International Journal of Energy Research 44 (2020) 4475–4492。[72] L. Tong, P. Bénard, Y. Zong, R. Chahine, K. Liu, J. Xiao，基于人工神经网络的六步双床变压吸附系统氢气纯化优化，Energy and AI 5 (2021) 100075。[73] X. Yu, Y. Shen, Z. Guan, D. Zhang, Z. Tang, W. Li，用于从蒸汽甲烷重整气中纯化氢气的基于ANN的PSA模型多目标优化，International Journal of Hydrogen Energy 46 (2021) 11740–11755。[74] K. N. Pai, V. Prasad, A. Rajendran，经实验验证的机器学习框架，可加速预测变压吸附过程的循环稳态并进行优化，分离与纯化技术241 (2020) 116651。[75] M. K. Lim, J. S. Yun, K. H. Cho, J. W. Yoon, U.-H. Lee, A. Ferreira, A. M. Ribeiro, I. B. R. Nogueira, J. Park, J.-K. Kim, K. Kim，用于乙烷与乙烯分离的基于ANN的真空变压吸附过程多目标优化，Journal of Industrial and Engineering Chemistry 143 (2025) 221–239。[76] S. G. Subraveti, Z. Li, V. Prasad, A. Rajendran，用于循环吸附过程仿真与综合的基于物理的神经网络，《工业与工程化学研究》61 (2022) 4095–4113。[77] Z. Wu, Y. Chen, B. Zhang, J. Ren, Q. Chen, H. Wang, C. He，利用迁移学习与标注数据，通过融入物理信息的机器学习进行变压吸附过程建模，Green Chemical Engineering 6 (2025) 233–248。[78] I. B. R. Nogueira, V. V. Santana, A. M. Ribeiro, A. E. Rodrigues，利用科学机器学习为多组分吸附分离系统开发通用微分方程，加拿大化学工程期刊100 (2022) 2279–2290。[79] V. V. Santana, E. Costa, C. M. Rebello, A. M. Ribeiro, C. Rackauckas, I. B. R. Nogueira，非线性平流-扩散-吸附系统的高效混合建模与吸附模型发现：系统化科学机器学习方法，《化学工程科学》282 (2023) 119223。[80] M. d. S. Gama, F. A. R. D. Lima, V. V. Santana, I. B. d. R. Nogueira, F. W. Tavares, A. G. Barreto Júnior，整合蛋白质吸附模型与深度神经网络的并行混合模型，Adsorption 30 (2024) 473–488。[81] C. M. Rebello, A. B. Botelho Junior, A. R. Dos Santos, I. B. R. Nogueira，通过符号回归对变压吸附系统进行多目标优化，系统与控制汇刊6 (2026) 2234–2242。[82] Z. Hao, A. Caspari, A. M. Schweidtmann, Y. Vaupel, A. A. Lapkin, A. Mhamdi，变压吸附的高效混合多目标优化，Chemical Engineering Journal 423 (2021) 130248。

[83] A. Ward、R. Pini，工业规模二氧化碳捕集变压变真空吸附过程的高效贝叶斯优化，《工业与工程化学研究》61（2022）13650–13668。[84] S. Ma、A. Wright、X. Fan、Y. Wu、J. Li，变压吸附的混合数据驱动优化方法，《分离与纯化技术》383（2026）136228。[85] L. Stander、M. Woolway、T. L. Van Zyl，应用于变压吸附系统的代理辅助进化多目标优化，《神经计算与应用》37（2025）739–755。[86] L. M. C. Oliveira、H. Koivisto、I. G. I. Iwakiri、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，利用深度学习和人工智能工具对变压吸附装置进行建模，《化学工程科学》224（2020）115801。[87] C. M. Rebello、E. A. Costa、A. Santos Sánchez、F. Vides、I. B. R. Nogueira，确保基于代理模型的优化达到最优：一种新定理及其在变压吸附优化中的实际应用，《加拿大化学工程期刊》103（2025）1036–1059。[88] I. B. R. Nogueira、M. A. F. Martins、M. J. Regufe、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、基于大数据的变压吸附装置合成气净化优化：关于元启发式技术中不确定性映射的研究，《工业与工程化学研究》59（2020）14037–14047。[89] C. M. Rebello、M. A. F. Martins、D. D. Santana、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，从帕累托前沿到帕累托区域：多目标优化的新视角，《数学》9（2021）3152。[90] C. M. Rebello、M. A. F. Martins、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，变压吸附过程多目标优化的新视角：基于可行操作区域映射的方法，《化学工程研究与设计》178（2022）590–601。[91] C. M. Rebello、I. B. R. Nogueira，变压吸附装置中的二氧化碳捕集优化：结合最优性评估和用于决策的操作图的深度神经网络方法，《分离与纯化技术》340（2024）126811。[92] I. B. R. Nogueira、R. O. M. Dias、C. M. Rebello、E. A. Costa、V. V. Santana、A. E. Rodrigues、A. Ferreira、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，基于深度神经网络和可行操作区域定义的嵌套循环优化问题新方法：材料筛选与过程优化的同步实现，《化学工程研究与设计》180（2022）243–253。[93] M. J. Regufe、V. V. Santana、M. M. Martins、A. F. P. Ferreira、J. M. Loureiro、A. E. Rodrigues、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，吸附材料组成与过程优化：一种基于深度学习的系统化方法，IFAC-PapersOnLine 54（2021）43–48。[94] V. V. Santana、M. A. F. Martins、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、L. P. Queiroz、C. M. Rebello、A. E. Rodrigues、I. B. R. Nogueira，基于深度神经网络模型和元启发式优化器的模拟移动床反应器优化新框架：一种具有最优性保证的方法，ACS Omega 8（2023）6463–6475。[95] H. Khajuria、E. N. Pistikopoulos，变压吸附系统的动态建模与显式/多参数模型预测控制，过程控制期刊21（2011）151–163。[96] H. Khajuria、E. N. Pistikopoulos，不确定性下变压吸附过程的优化与控制，AIChE期刊59（2013）120–131。[97] M. D. Urich、R. R. Vemula、M. V. Kothare，新型快速变压吸附系统的多变量模型预测控制，AIChE期刊64（2018）1234–1245。[98] M. D. Urich、R. R. Vemula、M. V. Kothare，新型医用制氧机中嵌入式模型预测控制器的实现，计算机与化学工程160（2022）107706。[99] M. Fakhroleslam、R. Bozorgmehry Boozarjomehry、S. Fatemi、E. De Santis、M. D. Di Benedetto、G. Pola，变压吸附过程混合控制器的设计，IEEE控制系统技术汇刊27（2019）1878–1892。[100] P. H. M. Oliveira、M. A. F. Martins、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，应用于变压吸附过程的鲁棒模型预测控制器：基于线性模型失配的分析，IFAC-PapersOnLine 54（2021）219–224。[101] M. A. F. Martins、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，处理合成气净化变压吸附装置控制中的模型不确定性：基于多模型分区控制方案的鲁棒模型预测控制策略，《分离与纯化技术》306（2023）122668。[102] T. P. G. Mendes、A. M. Ribeiro、L. Schnitman、I. B. R. Nogueira，基于PLC嵌入式改进Takagi-Sugeno-Kang模型预测控制器的变压吸附过程控制实现，Processes 12（2024）1738。[103] M. A. F. Martins、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro、I. B. R. Nogueira，面向人工智能的经济型非线性模型预测控制在变压吸附装置中的应用：以合成气净化为例，《分离与纯化技术》276（2021）119333。[104] B. C. da Silva、A. M. Ribeiro、A. F. P. Ferreira、D. Rodrigues、I. B. R. Nogueira，基于极值寻优的变压吸附装置最优控制，系统与控制汇刊4（2025）1257–1262。[105] S. S. Garud、I. A. Karimi、M. Kraft，计算机试验设计：综述，计算机与化学工程106（2017）71–95。[106] D. C. Montgomery，《试验设计与分析》，第9版，John Wiley & Sons，霍博肯，新泽西州，2017。[107] H. Niederreiter，《随机数生成与准蒙特卡罗方法》，CBMS-NSF应用数学区域会议系列第63卷，SIAM，费城，1992。doi:10.1137/1.9781611970081。[108] J. C. Helton、F. J. Davis，复杂系统分析中的拉丁超立方抽样与不确定性传播，《可靠性工程与系统安全》81（2003）23–69。[109] I. M. Sobol'，立方体中点的分布及积分的近似计算，《苏联计算数学与数学物理》7（1967）86–112。[110] M. D. McKay、R. J. Beckman、W. J. Conover，计算机代码输出分析中输入变量取值选择的三种方法比较，《技术计量学》21（1979）239–245。[111] R. L. Iman、W. J. Conover，在输入变量之间诱导秩相关的无分布方法，《统计通讯：模拟与计算》11（1982）311–334。

[112] M. D. Morris、T. J. Mitchell，计算试验的探索性设计，《统计规划与推断期刊》43（1995）381–402。[113] P. Kadlec、B. Gabrys、S. Strandt，过程工业中的数据驱动软测量仪表，计算机与化学工程33（2009）795–814。[114] S. Cao、R. R. Rhinehart，稳态在线辨识的高效方法，过程控制期刊5（1995）363–374。[115] Y. LeCun、L. Bottou、G. B. Orr、K.-R. Müller，高效反向传播，载于：G. B. Orr、K.-R. Müller（编），《神经网络：技巧与诀窍》，《计算机科学讲义》第1524卷，施普林格，柏林、海德堡，1998，第9–50页。doi:10.1007/3-540-49430-8_2。[116] K. Hornik、M. Stinchcombe、H. White，多层前馈网络是通用逼近器，《神经网络》2（1989）359–366。[117] J. Bergstra、Y. Bengio，超参数优化的随机搜索，《机器学习研究期刊》13（2012）281–305。[118] L. Li、K. Jamieson、G. DeSalvo、A. Rostamizadeh、A. Talwalkar，Hyperband：一种基于多臂老虎机的超参数优化新方法，《机器学习研究期刊》18（2018）1–52。[119] S. Ioffe、C. Szegedy，批归一化：通过减少内部协变量偏移加速深度网络训练，载于：《第32届国际机器学习会议论文集》，《机器学习研究论文集》第37卷，2015，第448–456页。[120] N. Srivastava、G. Hinton、A. Krizhevsky、I. Sutskever、R. Salakhutdinov，丢弃法：一种防止神经网络过拟合的简单方法，《机器学习研究期刊》15（2014）1929–1958。[121] D. P. Kingma、J. Ba，Adam：一种随机优化方法，载于：《第3届国际学习表征会议（ICLR）》，2015。[122] J. Kennedy、R. Eberhart，粒子群优化，载于：《ICNN'95论文集：国际神经网络会议》，第4卷，澳大利亚珀斯，1995，第1942–1948页。doi:10.1109/ICNN.1995.488968。[123] M. S. Hasanoglu、M. Dolen，面向受约束机械设计问题的可行性增强粒子群优化，《机械工程师学会会刊C辑：机械工程科学期刊》232（2018）381–400。[124] M. S. Hasanoglu、M. Dolen，多目标可行性增强粒子群优化，《工程优化》50（2018）2013–2037。[125] I. B. R. Nogueira、M. A. F. Martins、R. Requião、A. R. Oliveira、V. Viena、H. Koivisto、A. E. Rodrigues、J. M. Loureiro、A. M. Ribeiro，利用新型滑动粒子群优化对真实移动床单元进行优化并确定其可行操作区域，计算机与工业工程135（2019）368–381。[126] Q. Sun、H. Li、J. Yan、L. Liu、Z. Yu、X. Yu，适宜的沼气提纯技术选择：沼气净化、提纯与利用综述，《可再生能源与可持续能源评论》51（2015）521–532。[127] I. Angelidaki、L. Treu、P. Tsapekos、G. Luo、S. Campanaro、H. Wenzel、P. G. Kougias，沼气提纯与利用：现状与展望，《生物技术进展》36（2018）452–466。[128] C. A. Grande、A. E. Rodrigues，真空变压吸附制燃料沼气 I. 平衡型与动力学型吸附剂的行为，《工业与工程化学研究》46（2007）4595–4605。[129] R. Augelletti、M. Conti、M. C. Annesini，沼气提纯的变压吸附：一种分离生物甲烷和二氧化碳的新工艺配置，《清洁生产期刊》140（2017）1390–1398。[130] E. Glueckauf，色谱理论。第10部分：球体内扩散公式及其在色谱中的应用，《法拉第学会会刊》51（1955）1540–1551。[131] C. Rackauckas、Q. Nie，DifferentialEquations.jl：用于求解Julia微分方程的高性能、功能丰富的生态系统，《开放研究软件期刊》5（2017）15。[132] C. A. Kennedy、M. H. Carpenter，对流-扩散-反应方程的加性Runge-Kutta格式，《应用数值数学》44（2003）139–181。