

研究论文

DOI: 10.11949/0438-1157.

基于改进海洋捕食者算法的乙苯脱氢反应动力学参数识别及其传质传热特性研究

唐仁实, 谢乐

(中南大学化学化工学院, 湖南 长沙 410083)

摘要: 固定床中乙苯脱氢制苯乙烯反应动力学-反应器耦合模型中包含大量的未知参数, 如何利用有限的实验数据高效校准这些参数具有重要意义。通过引入了线性种群缩减、特征坐标系旋转和停滞重启机制三种改进策略, 提出了一种改进的海洋捕食者算法 (IMPA)。首先利用两个标准测试函数对算法性能进行评价, IMPA 算法计算得到的残差平均值分别为 1.23 和 5.38, 远小于标准 MPA、遗传算法 (GA) 和灰狼算法 (GWO) 的残差平均值, 且 IMPA 迭代 100 代的平均 CPU 耗时小于 0.68 s。然后将 IMPA 算法用于固定床中乙苯脱氢反应动力学参数识别, 四个反应速率常数和温度之间均满足阿伦尼乌斯方程 ($R^2 > 0.90$), 计算得到主反应的活化能为 159.15 kJ/mol。最后利用模型研究固定床中乙苯脱氢过程的传质和传热特性。系统分析了轴向扩散系数、气-固相间传质系数、催化剂颗粒内扩散系数和颗粒粒径对乙苯转化率和苯乙烯产量的影响规律; 考察了气-固相间传热系数、壁面总传热系数和流速对固定床内气相温度分布的影响, 进而得到最优操作条件。IMPA 算法也可为其他反应器模型参数识别和操作条件优化提供一种有效的求解方法。

关键词: 固定床; 参数识别; 海洋捕食者算法; 乙苯脱氢

中图分类号: TQ 032

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (XXXX) XX-0001-14

Estimation of kinetic parameters and study on mass and heat transfer characteristics of ethylbenzene dehydrogenation based on improved Marine Predator Algorithm

TANG Renshi, XIE Le

(College of Chemistry and Chemical Engineering, Central South University, Changsha 410083, Hunan, China)

Abstract: The reaction kinetic-reactor coupled model of ethylbenzene dehydrogenation to styrene in fixed bed contains many unknown parameters. It is of great significance to efficiently calibrate these parameters using limited experimental data. This study proposes an improved Marine Predator Algorithm (IMPA) by introducing three improvement strategies: linear population reduction, feature coordinate system rotation, and stagnation restart mechanism. Firstly, two standard test functions were employed to evaluate the performance of the algorithm. The mean residual values obtained by the IMPA were only 1.23 and 5.38, respectively, which are significantly lower than those of the standard MPA, genetic algorithm (GA), and Grey Wolf Optimizer (GWO). Moreover, the average

收稿日期: 2026-03-04 修回日期: 2026-05-06

通信作者: 谢乐 (1989-), 男, 博士, 副教授, xiele2018@csu.edu.cn;

第一作者: 唐仁实 (2002-), 男, 博士研究生, 232312141@csu.edu.cn;

基金项目: 国家自然科学基金项目 (22578511); 中南大学研究生自主探索创新项目 (2025ZZTS0539)

引用本文: 唐仁实, 谢乐. 基于改进海洋捕食者算法的乙苯脱氢反应动力学参数识别及其传质传热特性研究[J]. 化工学报, XXXX, XX(X): 1-14

Citation: TANG Renshi, XIE Le. Estimation of kinetic parameters and study on mass and heat transfer characteristics of ethylbenzene dehydrogenation based on improved Marine Predator Algorithm[J]. CIESC Journal, XXXX, XX(X): 1-14

CPU time of IMPA over 100 iterations was less than 0.68 s. Then, the IMPA was applied to estimate the kinetic parameters. All the four reaction rate constants satisfied the Arrhenius equation as a function of temperature ($R^2 > 0.90$), and the activation energy for the main reaction was calculated to be 159.15 kJ/mol. Finally, the mass and heat transfer characteristics of ethylbenzene dehydrogenation process in fixed bed were investigated. The effects of axial diffusion coefficient, gas-solid phase mass transfer coefficient, catalyst particle internal diffusion coefficient, and particle size on ethylbenzene conversion and styrene production were analyzed; The effects of gas-solid interphase heat transfer coefficient, total wall heat transfer coefficient, and flow velocity on the temperature distribution of gas phase were also studied. The proposed IMPA can also provide an effective solution method for parameter estimation and operating condition optimization of other reactor models.

Keywords: fixed bed; parameter estimation; marine predator algorithm; ethylbenzene dehydrogenation

引 言

苯乙烯是一种重要的化工原料,广泛应用于生产塑料、离子交换树脂和合成橡胶^[1-3]。我国苯乙烯的年产量近年来持续增长,2024年其产量已超过1600万吨,位居全球第一。苯乙烯的工业化生产通常采用固定床工艺,根据反应体系的不同主要有乙苯直接脱氢、乙苯氧化脱氢和苯乙烯-环氧丙烷联产法等^[4-6]。其中,乙苯直接脱氢工艺具有高选择性、操作稳定的优点,是目前苯乙烯工业生产的主流工艺。固定床内乙苯脱氢制苯乙烯过程具有复杂的非线性、强耦合特征,涉及大量的未知动力学参数。利用有限的实验数据精确校准这些参数,对反应器设计、优化和放大具有重要意义。

近年来,研究者从自然界、物理现象或社会行为中汲取灵感提出了许多智能优化算法,用于解决复杂工程的计算和优化问题。主流的算法包括遗传算法^[7-9]、粒子群算法^[10]、差分进化算法^[11-12]、以及受生物群体行为启发的算法,例如灰狼算法、海洋捕食者算法、鲸鱼算法等。这些算法广泛应用在化学工程领域,用于优化换热器^[13-14]、精馏塔^[15-16]和各种类型的反应器^[17-19]。固定床中乙苯脱氢制苯乙烯是一个吸热反应,需要在较高的反应温度下进行,但受限于复杂的传质、传热和反应机理,直接研究本征反应动力学仍旧面临巨大挑战^[20-22]。一般情况下,是通过构建反应动力学-反应器耦合模型,将动力学参数识别问题转化为非线性目标函数的最优化问题。由于乙苯脱氢制苯乙烯过程具有复杂的反应网络,受众多操作条件参数的影响,包括反应温度、流速、入口浓度和反应器结构参数等,且各参数存在诸多物理约束,这对优化算法的性能有着较高的要求,才能实现多维参数的精准识别。

鉴于乙苯脱氢制苯乙烯工艺的重要性,研究者们基于数值模拟做了大量的工艺条件优化设计工作。Yee等人^[23]首次在工业苯乙烯反应器中使用遗传算法同时优化产率、转化率和选择性;Majumdar和Mitra^[24]使用遗传算法优化乙苯脱氢制苯乙烯反应网络,他们以活化能和反应温度作为决策变量,以最大限度地提高苯乙烯的选择性。此外,Elnashaie等人^[25]探究了四种不同结构的反应器装置用于乙苯脱氢制苯乙烯,所建立的耦合模型可用于指导反应器的放大。Sanz等人^[26]研究了副反应对乙苯脱氢催化性能的影响。他们在600℃的反应温度下获得了最大的苯乙烯选择性。最近,Leite等人^[27-28]研究了轴向和径向流动两种固定床反应器的性能,他们使用GDE3算法优化工艺条件来提高苯乙烯的选择性和乙苯转化率。可以看出,以往的研究几乎都停留在智能算法的应用层面,很少有对算法进行改进的研究工作。Faramarzi等人^[29]于2020年提出的一种基于自然界海洋生物捕食行为的海洋捕食者算法(Marine Predators Algorithm, MPA),该算法具有参数少、易于使用以及强大的全局搜索能力。虽然标准MPA在多个基准测试中表现出色,但在处理高维、强变量耦合复杂问题时,例如本文所研究的乙苯脱氢制苯乙烯反应动力学参数识别,仍存在容易陷入局部最优以及收敛速度慢的不足。为此,本文在标准MPA的基础上,引入了特征坐标系旋转^[30]、线性种群缩减^[31]和停滞重启机制^[32]三种改进策略,提出了一种改进的MPA算法(IMPA)。相较于常规的单一变异算子或扰动机制改进策略,本文提出的改进策略的差异化优势在于针对动力学参数识别中“高维与强变量耦合”特征进行了定制化设计。利用特征坐标系旋转策略解耦了参数间的强相关性,配合使用线性种群缩减与停滞重启机制

策略,在保障算法全局探索广度的同时兼顾了其在复杂非线性空间下的局部最优值逃逸能力。

本文以固定床内乙苯脱氢制苯乙烯为研究对象,首先构建一维异相反应动力学-反应器耦合模型,使用MATLAB编程对模型进行求解。然后使用两个测试函数对IMPA算法性能进行评价,进而将IMPA算法用于解决乙苯脱氢制苯乙烯反应动力学参数优化识别问题,并利用课题组前期发表的实验数据对模型参数进行验证。基于验证的模型,本文对乙苯脱氢固定床反应器的传质、传热性能进行了系统分析。

1 固定床中乙苯脱氢反应动力学-反应器耦合模型

1.1 反应动力学模型

在前期的研究中,本课题组成功制备了PBN/堇青石催化剂,实现了在无水无氧条件下乙苯直接脱氢制苯乙烯。PBN/堇青石负载型催化剂在宏观上为颗粒状,通过研磨和筛分,最终使用的催化剂颗粒目数控制在20-24目,这些颗粒催化剂均匀地装填在固定床内,床层内置有热电偶。固定床反应器的内径和高度分别为8 mm和520 mm,实际催化剂的装填高度为74 mm。在动力学实验中,使用氮气作为载气,考察的反应温度范围为773.15 K至873.15 K,乙苯入口分压范围为2860 Pa至14332.4

Pa,流速为10 mL/min。通过对该催化剂活性进行测试发现,在经过约8 h的诱导期后,催化剂性能逐渐趋于稳定,在随后的42 h内,苯乙烯的选择性和生成速率都基本保持不变^[33]。因此,本文在建立反应动力学模型时不考虑催化剂失活对反应速率的影响。乙苯脱氢过程主要包含如图1所示的1个主反应和3个副反应。该反应体系遵循Langmuir-Hinshelwood动力学模型,相应的反应速率表达式如式(1)-式(4)所示:

$$R_1 = \frac{k_1 K_{EB} (p_{EB} - \frac{p_{ST} p_{H_2}}{K_{eq}})}{(1 + K_{EB} p_{EB} + K_{ST} p_{ST} + K_{H_2} p_{H_2})^2} \quad (1)$$

$$R_2 = \frac{k_2 K_{EB} p_{EB}}{(1 + K_{EB} p_{EB} + K_{ST} p_{ST} + K_{H_2} p_{H_2})^2} \quad (2)$$

$$R_3 = \frac{k_3 K_{EB} p_{EB} K_{H_2} p_{H_2}}{(1 + K_{EB} p_{EB} + K_{ST} p_{ST} + K_{H_2} p_{H_2})^2} \quad (3)$$

$$R_4 = \frac{k_4 K_{ST} p_{ST} (K_{H_2} p_{H_2})^2}{(1 + K_{EB} p_{EB} + K_{ST} p_{ST} + K_{H_2} p_{H_2})^2} \quad (4)$$

进而得到各个物质的反应速率(R_i)表达式如式(5)-式(8):

$$R_{ST} = R_1 - R_4 \quad (5)$$

$$R_{BZ} = R_2 \quad (6)$$

$$R_{TO} = R_3 + R_4 \quad (7)$$

$$R_{H_2} = R_1 - R_3 - 2R_4 \quad (8)$$

在上述方程中, k_i 为第*i*个反应的表观速率常数, K_i 为吸附系数, K_{eq} 为可逆反应的平衡常数,表达式如式(9):

$$K_{eq} = 0.027 \exp[0.021(T - 773)] \quad (9)$$

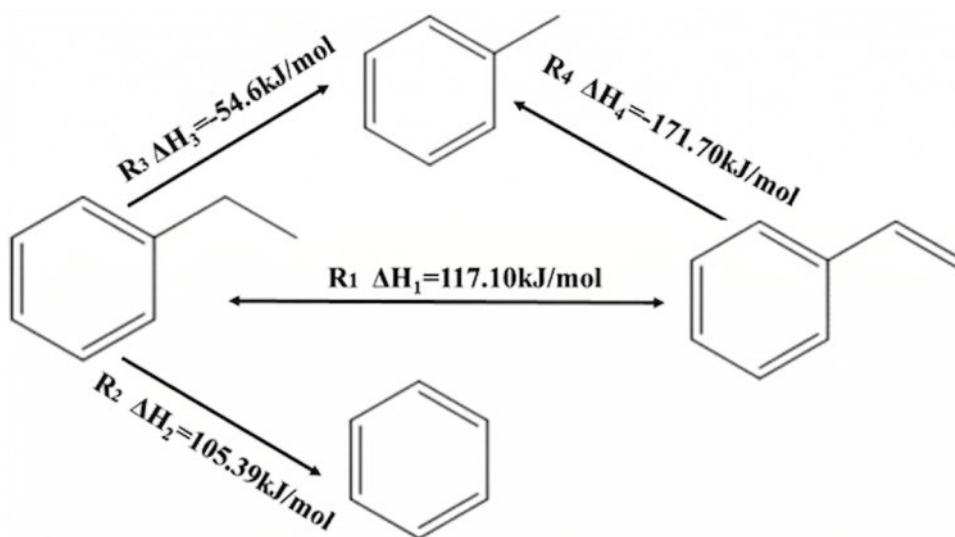


图1 乙苯脱氢制苯乙烯反应网络

Fig.1 The reaction network of ethylbenzene dehydrogenation to styrene

1.2 反应器模型与数值求解

鉴于实验室尺度的固定床反应器具有较大的长径比,本文仅考虑浓度和温度的轴向梯度,忽略其径向梯度,将其简化为一维轴向非均相模型,气相主体控制方程如式(10)–(11):

$$D_g \frac{d^2 c_{g,i}}{dz^2} - u_0 \frac{dc_{g,i}}{dz} = k_g a_v (c_{g,i} - c_{s,i}^{surf}) \quad (10)$$

$$-\lambda_g \frac{d^2 T_g}{dz^2} + u_0 \rho_g c_{p,g} \frac{dT_g}{dz} = h_g a_v (T_g - T_s^{surf}) - \frac{4U_w}{d} (T_g - T_w) \quad (11)$$

其中 D_g 为轴向扩散系, u_0 为表观线速度, k_g 为气-固传质系数, a_v 为比表面积。考虑到入口处存在轴向返混,采用第一类边界条件:

$$-D_g \frac{dc_{g,i}}{dz} = u_0 (c_{g,i}^{inlet} - c_{g,i}) \quad (12)$$

$$-\lambda_g \frac{dT_g}{dz} = u_0 \rho_g c_{p,g} (T_g^{inlet} - T_g) \quad (13)$$

在反应器出口处有式(14)所表达的边界条件:

$$-\lambda_g \frac{d^2 T_g}{dz^2} + u_0 \rho_g c_{p,g} \frac{dT_g}{dz} = h_g a_v (T_g - T_s^{surf}) - \frac{4U_w}{d} (T_g - T_w) \quad (14)$$

球形催化剂颗粒内部质量与能量守恒方程采用式(15)与式(16)表示:

$$D_s \left(\frac{d^2 c_{s,i}}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{dc_{s,i}}{dr} \right) = -\rho_s \mathcal{R}_i \quad (15)$$

$$\lambda_s \left(\frac{d^2 T_s}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{dT_s}{dr} \right) = -\rho_s \sum_i (-\Delta H_i) v_i R_i \quad (16)$$

球形颗粒内部浓度和温度分布具有对称性,在中心处表达式如式(17):

$$\frac{dc_{s,i}}{dr} = 0, \quad \frac{dT_s}{dr} = 0 \quad (17)$$

对控制方程取极限($r \rightarrow 0$),得到颗粒中心处的控制方程:

$$3D_s \frac{d^2 c_{s,i}}{dr^2} = -\rho_s \mathcal{R}_i \quad (18)$$

$$3\lambda_s \frac{d^2 T_s}{dr^2} = -\rho_s \sum_i (-\Delta H_i) v_i R_i \quad (19)$$

在催化剂颗粒表面,气相主体与固相表面通过对流传质与传热进行耦合,满足通量连续条件,表达式如下:

$$-D_s \frac{dc_{s,i}}{dr} = k_g (c_{s,i}^{surf} - c_{g,i}) \quad (20)$$

$$-\lambda_s \frac{dT_s}{dr} = h_g (T_s^{surf} - T_g) \quad (21)$$

本文采用Crank-Nicolson差分格式对上述反应器模型进行离散化处理,在反应器轴向和催化剂颗粒径向分别进行网格离散,将反应器床层的轴向网格节点数量(N_z)设置为200,将催化剂颗粒内部的径向网格节点数量(N_r)设置为4。对于边界条件,反应器入口和出口边界条件均采用向前差分格式。

离散后形成一个包含气相与固相所有组分浓度及温度的非线性代数方程组。本文利用MATLAB编程通过构建雅可比矩阵采用牛顿迭代法对非线性代数方程组进行求解。反应-扩散系统通常具有较强的刚性,易导致雅可比矩阵条件数恶化。在每次矩阵求逆前,通过提取雅可比矩阵各行最大绝对值构建对角缩放矩阵,对矩阵与残差进行同步等比例缩放,并计算得到全局残差和条件数,以此监测求解器的稳定性和数值算法的全局收敛性。

1.3 模型参数优化

上述反应动力学-反应器耦合模型中存在一些难以确定的未知动力学参数,本文拟利用实验测量得到的反应器出口处各组分的摩尔分数校准这些参数。这本质上是一个最优化问题,这里定义实际出口组分摩尔分数和模型输出结果的误差平方和为目标函数:

$$\min f(x) = \sum_{i=1}^M (y_{exp,i} - y_{sim,i})^2 \quad (22)$$

其中, $y_{exp,i}$ 是实际反应器出口第 i 种组分(乙苯、苯乙烯、甲苯、苯)的摩尔分数; $y_{sim,i}$ 是模型输出的组分摩尔分数。调节变量是反应动力学参数,且它们满足式(23)表述的阿伦尼乌斯方程。

$$k_i = A_{0,i} \exp\left(-\frac{E_{a,i}}{RT}\right) \quad (23)$$

在优化过程中,本文监测了各产物浓度随迭代次数的变化趋势。尽管副产物浓度远低于主产物浓度,但IMPA算法并未将其视作噪声归零,这也从侧面反映了IMPA算法的可靠性。

2 基本海洋捕食者算法

MPA算法在寻优过程中构建一个规模为 $N \times D$ 的种群矩阵记为 $\mathbf{X}$, 该矩阵的第 i 行向量 $\mathbf{X}_i = [x_{i,1}, x_{i,2}, \dots, x_{i,D}]$, 对应于优化问题中的一个可行解向量。MPA算法最显著的特点是根据捕食者与猎物的相对速度(分为高、中、低三种情况), 采用不同的运动模式(莱维飞行或布朗运动)来模拟探索与开发, 整个算法主要由三个模块组成。

2.1 初始化与精英矩阵构建

在算法开始时,随机初始化猎物种群 $\mathbf{X}$, 然后计算种群 $\mathbf{X}$ 中每个个体的适应度, 适应度最好的个体 ($\mathbf{X}_{best} = [x_{best,1}, x_{best,2}, \dots, x_{best,D}]$) 被指定为顶级捕食者, 将其复制 N 份构建精英矩阵 ($\mathbf{E}$), 用于指导种群进化, 且该矩阵在每次迭代后更新。

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \\ \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \end{bmatrix}_{N \times D} \quad (24)$$

2.2 优化阶段

MPA 根据当前迭代次数 t 与最大迭代次数 t_{max} 的关系,将优化过程划分为三个阶段。第一阶段为高速度比阶段,此时捕食者保持静止,猎物移动更快,通过布朗运动探索环境,种群的更新规则为:

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \\ \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \mathbf{x}_{best,1} & \mathbf{x}_{best,2} & \cdots & \mathbf{x}_{best,D} \end{bmatrix}_{N \times D} \quad (25)$$

其中 $\mathbf{S}_i$ 表示第 i 个个体的移动步长向量, $\mathbf{X}_i$ 和 $\mathbf{E}_i$ 分别表示矩阵 $\mathbf{X}$ 和 $\mathbf{E}$ 的第 i 行向量; $\mathbf{R}_b$ 是基于正态分布的布朗运动随机向量, $\mathbf{R}$ 是 $[0,1]$ 区间的随机向量, $P=0.5$ 为常数, $\otimes$ 表示逐元素乘法。

第二阶段为等速度比阶段,在迭代中期,此时种群被均分为两部分,一部分用于负责探索新的未知解,另一部分跟随精英个体负责开发以防止陷入局部最优。对于种群的前半部分个体 ($i=1, 2, \dots, N/2$), 采用莱维飞行策略,其更新公式如下:

$$\begin{cases} \mathbf{S}_i = \mathbf{R}_L \otimes (\mathbf{E}_i - \mathbf{R}_L \otimes \mathbf{X}_i) \\ \mathbf{X}_i = \mathbf{X}_i + P \cdot \mathbf{R} \otimes \mathbf{S}_i \end{cases} \quad (26)$$

对于种群的后半部分个体 ($i = N/2+1, \dots, N$), 采用布朗运动策略,其更新公式如下:

$$\begin{cases} \mathbf{S}_i = \mathbf{R}_B \otimes (\mathbf{R}_B \otimes \mathbf{E}_i - \mathbf{X}_i) \\ \mathbf{X}_i = \mathbf{E}_i + P \cdot CF \otimes \mathbf{S}_i \end{cases} \quad (27)$$

其中 $\mathbf{R}_L$ 为莱维分布随机向量, CF 为收敛因子,表达式为式(28):

$$CF = (1 - t/t_{max})^{(2/t_{max})} \quad (28)$$

第三阶段为低速度比阶段,此时捕食者速度快于猎物,主要进行深度开发。捕食者采用莱维飞行策略,以防止过早陷于局部最优,更新公式为式(29)所示:

$$\begin{cases} \mathbf{S}_i = \mathbf{R}_L \otimes (\mathbf{R}_L \otimes \mathbf{E}_i - \mathbf{X}_i) \\ \mathbf{X}_i = \mathbf{E}_i + P \cdot CF \otimes \mathbf{S}_i \end{cases} \quad (29)$$

2.3 鱼群聚集装置效应(FADs)与涡流形成

MPA 引入 FADs 效应以避免算法陷入局部最优,即使在算法后期,种群仍有概率 FADs (通常设为 0.2) 发生位置跳跃,表达式如式(30):

$$\mathbf{X}_i = \begin{cases} \mathbf{X}_i + CF[\mathbf{k}_{ib} + \mathbf{R} \otimes (\mathbf{k}_{ub} - \mathbf{k}_{ib})] \otimes \mathbf{U}, & \text{if } s \leq FADs \\ \mathbf{X}_i + [FADs(1-s) + s](\mathbf{X}_{s1} - \mathbf{X}_{s2}), & \text{if } s > FADs \end{cases} \quad (30)$$

其中, $\mathbf{U}$ 是二进制向量, s 是 $[0,1]$ 之间的随机数, s_1 和 s_2 是随机选择的两个个体的索引; $\mathbf{k}_{ib}$ 和 $\mathbf{k}_{ub}$ 分别

为搜索空间的下界和上界。

3 海洋捕食者算法改进策略

3.1 线性种群缩减策略

为了平衡算法前期的全局勘探与后期的局部开发效率,本文引入线性种群缩减机制。随着迭代次数 t 的增加,种群规模 N 从初始值 N_{init} 线性递减至最小值 N_{min} 。在第 t 次迭代时,动态种群规模 N_t 计算如式(31):

$$N_t = \text{round}\left(\frac{N_{min} - N_{init}}{t_{max}} \times t + N_{init}\right) \quad (31)$$

若当前种群规模大于 N_t ,则移除适应度最差的多余个体。该策略在前期利用大种群覆盖搜索空间,后期减少种群数以加速收敛。

3.2 特征坐标系旋转

为了解决变量间的强耦合问题,算法引入基于协方差矩阵的坐标旋转策略。在满足当前种群规模 N 大于问题维度 D 的前提下,坐标旋转策略触发概率设置为 0.5。选取当前种群 $\mathbf{X}$ 中适应度较优的前一半个体构建协方差矩阵 $\mathbf{C}$,并对其进行特征分解,分解公式如式(32):

$$\mathbf{CB} = \mathbf{BA} \quad (32)$$

其中, $\mathbf{B}$ 为由特征向量组成的旋转矩阵, $\mathbf{A}$ 为特征值对角矩阵。利用旋转矩阵 $\mathbf{B}$ 将种群矩阵 $\mathbf{X}$ 和精英矩阵 $\mathbf{E}$ 投影至特征空间:

$$\mathbf{CB} = \mathbf{BA} \quad (33)$$

基于投影后的 $\mathbf{X}'$ 和 $\mathbf{E}'$, 计算得到更新后的种群 $\mathbf{X}'_{new}$ 。最后为了还原坐标,将其采用式(34)逆向投影回笛卡尔坐标系:

$$\mathbf{X}_{new} = \mathbf{X}'_{new} \mathbf{B}^T \quad (34)$$

3.3 停滞重启机制

本文设计了一种基于停滞检测的重启机制,通过监测精英捕食者的适应度变化,倘若连续多次迭代中未显著改变,则判定算法陷入停滞,触发重启操作。算法保留当前顶级捕食者,并利用高斯分布以其为中心重新生成剩余的 $N-1$ 个捕食者,重启公式如式(35):

$$\mathbf{X}_i = \mathbf{E}_i + \mathbf{R}_B \otimes (\mathbf{k}_{ub} - \mathbf{k}_{ib}) \times 0.1 \quad (35)$$

其中, $\mathbf{X}_i$ 表示被重置的第 i 个个体。该机制充分利用了已有的精英信息和随机向量,通过小范围的高斯扰动协助跳出局部最优。上述三种改进策略协同作用,IMPA 算法的具体执行流程如图 2 所示。

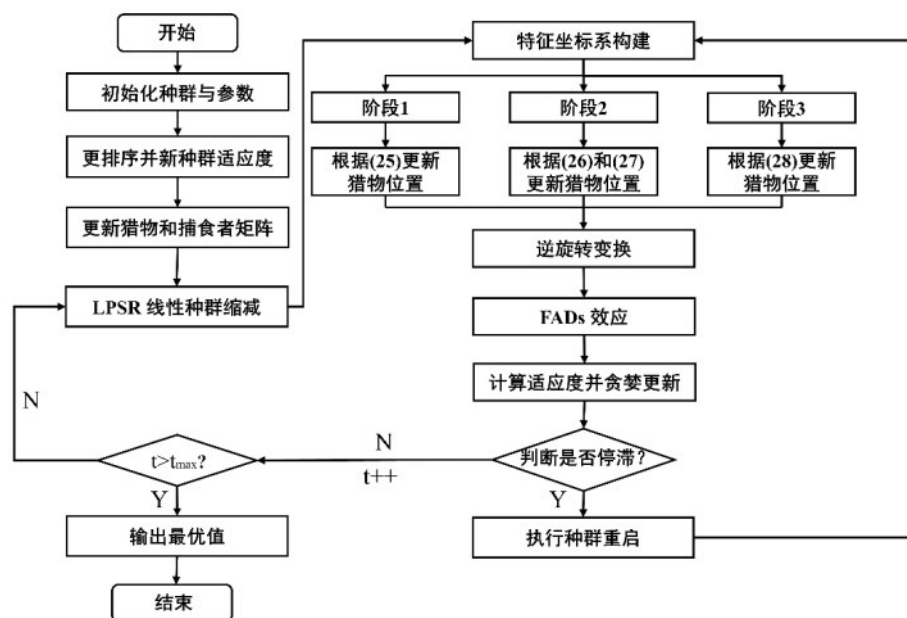


图2 改进MPA算法流程图

Fig.2 Flowchart of the improved MPA

4 算法性能测试和分析

本文选取 CEC2022 中的两个测试函数(F1, F2)测试 IMPA 算法的性能^[34], 并将其与标准 MPA, GA, GWO 算法进行比较。这里四个算法的种群规模均为 50, 问题维度均为 30, 最大迭代次数统一设置为 100 代, 其他参数设置见表 1。为了保证算法性能对比的公平性与客观性, 本文在设定四种算法的超参数时, 采用与标准 MPA 原文一致的基准参数, 最大程度地排除超参数整定对算法寻优结果的干扰, 客观地反映出本文所提改进策略带来的性能提升。每个算法独立运行 30 次, 计算得到测试函数残差的最小值、最大值、平均值以及标准差见表 2。四个算法在不超过 100 次迭代的情况下, 残差曲线均收敛到一个稳定值, 但是每个算法的收敛精度各不相同。在测试函数 F1 和 F2 上, IMPA 算法计算得到的残差平均值分别为 1.23 和 5.38, 它们远小于另外三种算法的残差平均值。对于强耦合问题, IMPA 展现出显著优于 MPA 的局部极值逃逸能力。这归功于特征坐标系变换对变量间相关性的有效解耦, 以及停滞重启机制对种群精英性的维持。IMPA 算法的稳定性也非常好, 计算得到的标准差分别为 0.00042 和 0.0019。IMPA 还表现出较优的计算效率。以 F2 函数为例, 运行 1 次(100 代), IMPA 的平均 CPU 耗时仅为 0.6802 s, 相较于标准 MPA 缩短了约 61%, 这可能归因于 IMPA 的特征坐标旋转机制。

虽然该机制涉及特征值分解, 但在高维或强相关问题中, 它能引导种群沿着适应度下降最快的特征向量方向搜索, 从而大幅提高计算效率。相比之下, 传统 MPA 和 GWO 算法在搜索过程中具有盲目性, 导致其 CPU 时间在无效的局部空间探索中被消耗。以上结果表明上述改进策略在保证收敛速度的同时, 有效提升了算法的求解精度与鲁棒性。

表1 四种算法的参数取值

Table 1 Parameter settings of four algorithms

算法种类	参数名称	符号	设定值
IMPA	线性种群缩减下限	N_{min}	4.00
	特征变换概率	P_{Eig}	0.50
	停滞判定阈值	C_{stag}	500
MPA	FADs 概率	$FADs$	0.20
	步长控制系数	P	0.50
GWO	收敛因子	a	2.00
GA	交叉概率	p_c	0.80
	变异概率	p_m	0.10

5 结果与讨论

5.1 乙苯脱氢反应动力学参数识别

在图 1 所示的乙苯脱氢制苯乙烯反应网络中, 有四个反应速率常数($k_1 \sim k_4$)是未知的, 且它们之间是强耦合的。为了研究催化剂的性能, 本课题组前期在不同的反应温度、流速和乙苯进口分压条件下测量得到了反应器出口处各组分的摩尔分率^[35]。

表2 四种算法求解测试函数的残差结果对比及CPU耗时
Table 2 Comparison of residual results and CPU time of four algorithms for solving benchmark functions

测试函数	算法	平均值	标准差	最优值	最差值	CPU耗时 (s)
F1	GWO	113.45	1.29	111.13	116.53	0.19
	GA	97.35	1.13	95.68	99.68	0.17
	MPA	138.20	0.66	137.21	140.61	0.38
	IMPA	1.23	0.00042	0.22	1.22	0.15
F2	GWO	59.70	0.69	58.67	61.13	0.87
	GA	111.82	1.26	109.53	114.86	0.71
	MPA	13.64	3.23	5.54	13.87	1.74
	IMPA	5.38	0.0019	5.38	5.40	0.68

由于反应速率常数仅是温度的函数,本小节拟利用提出的 IMPA 算法,选取流速为 10 mL/min,乙苯进口分压 2860 Pa,不同反应温度(773.15 ~ 873.15 K)条件下的实验数据回归未知的反应速率常数。当目标函数的取值不再随迭代次数发生变化时,即认为找到了一组合适的动力学参数,相关结果如表 3 所示。可以看出,主反应速率常数 k_1 远大于另外三个副反应速率常数,这与实际观察到的高苯乙烯选择性是吻合的。然而利用 IMPA 算法进行寻优仅能保证各反应速率常数在数学意义上是合理的。除此之外,还要求它们具有相关的物理意义,即必须满足阿伦尼乌斯方程。为此,我们对 $\ln k$ 和 $1/T$ 进行线性回归。如图 3 所示,四个反应速率常数的 $\ln k$ 和 $1/T$ 之间均具有较好的线性关系, R^2 都大于 0.90,进而可以计算得到各反应的指前因子(A)和活化能(E_a),本文发现乙苯脱氢制苯乙烯主反应的活化能为 159.15 kJ/mol,文献通过 DFT 计算得到的活化能为 125.04 kJ/mol^[1],二者的数量级相当。

为了进一步验证反应动力学参数的合理性,本文对比了反应温度为 873.15 K、流速为 10 mL/min 条件下,不同乙苯进口分压(即 2860、5766.4、8588 和 14332.4 Pa)时,反应器出口处各组分摩尔分率的实验值与模拟值。如图 4 所示,随着乙苯进口分压增加,苯乙烯摩尔分率的模拟值从 0.77 降至 0.36,其实际值从 0.77 降低至 0.29;甲苯摩尔分率呈现出先升高后降低的趋势,所建立的模型能够准确捕捉这一变化趋势,从而验证了动力学参数。计算结果表明,乙苯与苯乙烯的模拟值与实验值吻合度较高,平均相对误差为 7.2%;虽然副产物苯和甲苯的绝对摩尔分率极低(数量级在 10^{-3}),但其预测精度依然表现优异,平均相对误差仅为 4.5%。

表3 IMPA 算法识别的反应动力学参数
Table 3 Calibrated reaction kinetic parameters by IMPA algorithm

反应温度(K)	表观反应动力学常数(kmol/(kg _{cat} ·h))			
	k_1	k_2	k_3	k_4
873.15	1.12×10^{-4}	8.80×10^{-7}	3.28×10^{-5}	2.97×10^{-5}
848.15	5.62×10^{-5}	2.82×10^{-7}	4.04×10^{-6}	1.04×10^{-5}
823.15	3.82×10^{-5}	2.16×10^{-7}	2.18×10^{-6}	1.51×10^{-6}
798.15	1.40×10^{-5}	1.41×10^{-7}	1.93×10^{-7}	6.94×10^{-7}
773.15	6.53×10^{-6}	3.15×10^{-8}	4.01×10^{-8}	6.15×10^{-7}
E_a (kJ/mol)	159.15	165.58	369.74	232.67
A (kmol/(kg _{cat} ·h))	3.86×10^5	6.34×10^3	3.77×10^{17}	1.79×10^9

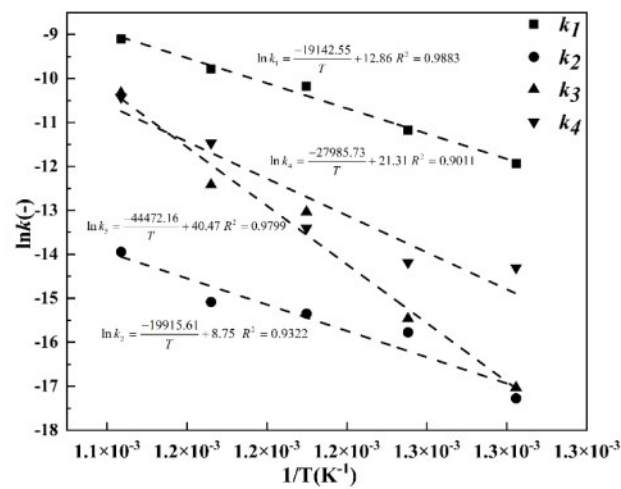


图3 表观反应速率常数与反应温度的线性回归结果
Fig.3 Results of the linear regression for the apparent reaction rate constant and reaction temperature

5.2 固定床中乙苯脱氢传质特性研究

固定床反应器中,影响乙苯脱氢传质特性的参数主要有轴向扩散系数、气-固相传质系数、催化剂颗粒内扩散系数等。本小节利用上述验证过的反应器模型对这些关键参数进行灵敏度分析,探究各尺度传质过程对乙苯转化率和单位反应器长度苯乙烯产量的影响规律。

在固定床反应器中,轴向扩散系数增大通常意味着轴向返混增强,返混对反应物浓度的稀释作用以及停留时间分布的负面影响,导致反应器出口处产品的收率降低。固定床中的轴向扩散系数会随流速、粒径及床层结构变化,其典型数量级通常位于 $10^{-5} \sim 10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ 范围内^[36]。图 5 展示了轴向扩散系数对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响。较小的轴向扩散系数($10^{-6} \sim 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$)有利于保证较高乙苯的出口转化率和苯乙烯的单位产量。一旦轴向扩散系数超过 $2.6 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ 这一临界值,乙苯

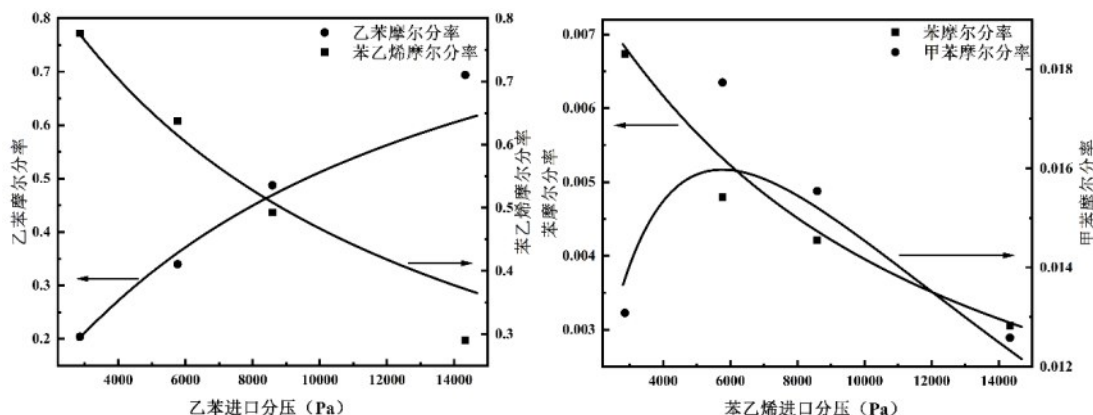


图4 不同乙苯进口分压下各产物摩尔分率的实验值与模拟值对比

Fig.4 Comparison of experimental and simulated molar fractions of products under different ethylbenzene inlet partial pressures

转化率和苯乙烯产量均呈现出下降的趋势,轴向扩散系数增大至 $1.0 \times 10^{-2} \text{ m}^2/\text{s}$ 时,乙苯转化率从 86.1%

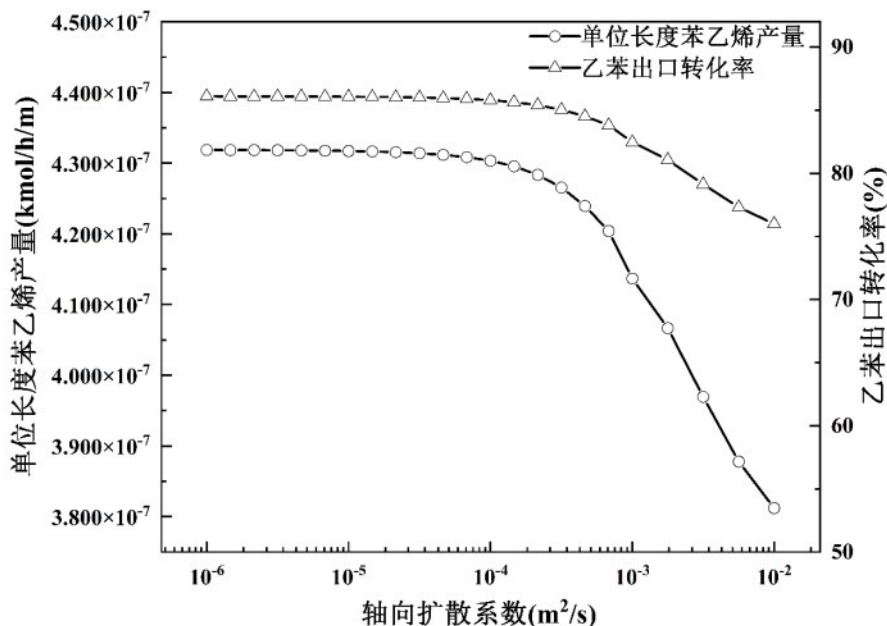


图5 轴向扩散系数对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响

Fig.5 Effect of axial diffusion coefficient on ethylbenzene conversion and unit styrene production

气相主体中的乙苯首先要经过气-固相间传质到达催化剂的表面,然后经内扩散传质到达催化剂的活性位点才能转化成苯乙烯。气-固相间传质系数(k_g)受流体力学条件、床层几何结构、流体物理性质等因素的共同影响。根据 Wakao 和 Funazkri 提出的传质系数经验关联式^[37]:

$$Sh = 2.0 + 1.1Sc^{1/3}Re_p^{0.6} \quad (36)$$

结合本文的实际工况,可估算得到 k_g 处于 10^{-3} m/s 数量级。在敏感性分析中,本文所采用的气-固传质系数范围为 $10^{-4} \sim 10^{-1} \text{ m/s}$ 。可以看出,随着 k_g 的增大,乙苯出口转化率和苯乙烯单位产量先显著

增大然后趋于稳定。由图6可知,当 k_g 大于 10^{-3} m/s 时,它对转化率和产量的影响基本可以忽略不计。一般来说,增加流速是提高 k_g 最简单可行的操作之一,这是因为增加流速能减薄颗粒表面的层流边界层,从而降低传质阻力。当 k_g 增大到一定程度,外扩散传质速率大于内扩散传质速率,组分浓度在催化剂表面富集,浓度梯度下降,外扩散通量随之降低。这时乙苯转化率和苯乙烯产量曲线均进入平台区。

对于多孔催化剂,其内扩散系数受孔隙率、曲折度以及分子扩散与 Knudsen 扩散共同作用的影

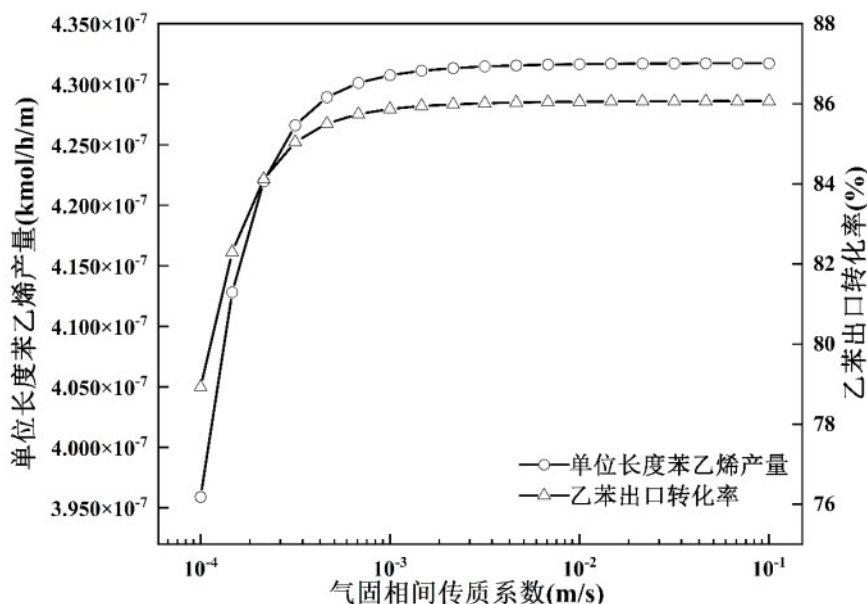


图6 气-固相间传质系数对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响

Fig.6 Effect of gas-solid phase mass transfer coefficient on ethylbenzene conversion and unit styrene production

响,通常低于自由气体分子扩散系数1~2个数量级^[38]。图7展示了内扩散系数对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响。当内扩散系数较小时($10^{-7} \sim 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$),内扩散传质是限速步骤,此时单位苯乙烯产量与乙苯出口转化率均随内扩散系数的增大而增加。当内扩散系数超过 10^{-5} 数量级后,乙苯出口转化率稳定在86.1%左右,反应由内扩散传质控制转为反应动力学控制。对于常规工业催化剂颗粒来说,气体内扩散系数一般在 $10^{-7} \sim 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ 之间,只有大孔径催化剂(如 $> 100 \text{ nm}$),其内扩散系数可能接近 $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 。这表明优化催化剂的孔道结构使其具有较大的内扩散系数是提高乙苯转化效率的一项重要举措。内扩散传质过程通常还与催化剂颗粒的粒径有关,如图8所示,当催化剂颗粒粒径小于2 mm时,乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量基本不受颗粒粒径的影响,但当催化剂颗粒粒径大于2 mm后,内扩散传质过程成为限速步骤,二者均显著下降。我们在实验中用到的催化剂颗粒平均粒径约为0.85 mm,这基本上消除了内扩散的影响。

5.3 固定床中乙苯脱氢传热特性研究

由上述反应器模型可知,流速、壁面总传热系数(U_w)、气-固相间传热系数(h_g)影响对流传热速率,气相有效导热系数(λ_g)和固相有效导热系数(λ_s)影响扩散传热速率。本小节重点讨论对流传热对气相和固相温度分布的影响。 h_g 对反应器轴向气

相温度与固相温度分布的影响如图9所示。乙苯脱氢作为吸热反应,在反应器入口区域反应速率快并吸收热量,导致气、固两相温度均呈现出先降低后在管壁加热作用下缓慢回升的趋势。对比图9a与9b可知, h_g 的改变对气相主体温度的影响微乎其微,这得益于管壁持续加热的作用。但是, h_g 对固相温度的影响十分显著。当传热系数较低时($h_g = 5 \text{ W/m}^2/\text{K}$),气-固相间热阻较大,固相温度低至871.4 K。随着 h_g 的增大,固相温度逐渐趋向于气相温度。当 h_g 增加至 $100 \text{ W/m}^2/\text{K}$,气、固两相基本达到局部热平衡。在本文中, h_g 参考文献中的取值为 $450 \text{ W/m}^2/\text{K}$,模拟发现气-固两相的温度基本一致。

U_w 对反应器轴向气相温度分布的影响如图10所示。 U_w 直接决定了反应器的热补偿效率,当壁面传热性能较差时($U_w = 1 \text{ W/m}^2/\text{K}$),通过管壁传递的热量低于反应所需的热量,在反应器 $z = 0.10 \text{ m}$ 附近出现约870.73 K的“冷点”。随着 U_w 逐渐增加,热补偿效应显著增强,当 U_w 大于 $50 \text{ W/m}^2/\text{K}$ 时,壁面供热速率与反应吸热速率高度匹配,轴向温度曲线几乎趋于平直,整个床层接近于等温操作状态。

流速对反应器轴向气相温度分布的影响如图11所示。为了使结果对实际生产更具指导意义,本文考察了无量纲温度偏差($\Theta = (T - T_w)/(-\Delta H/C_p)$)随无量纲反应器长度($Z = z/L$)的变化趋势。可以看出, Θ 呈现出先升高后降低的趋势。流速越低,在反应器入口段 Θ 上升速率越快,但随后其下降速率也

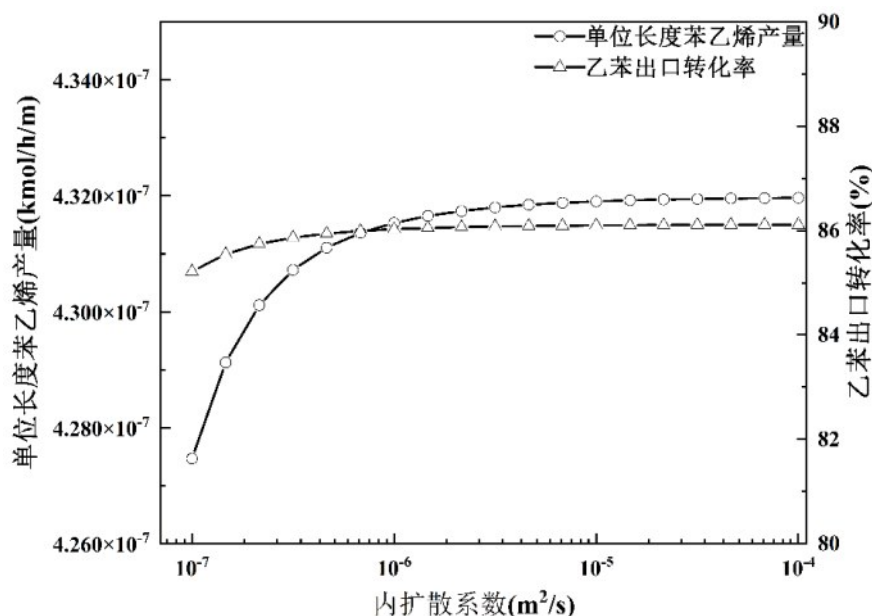


图7 催化剂颗粒内扩散系数对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响

Fig.7 Effect of catalyst particle internal diffusion coefficient on ethylbenzene conversion and unit styrene production

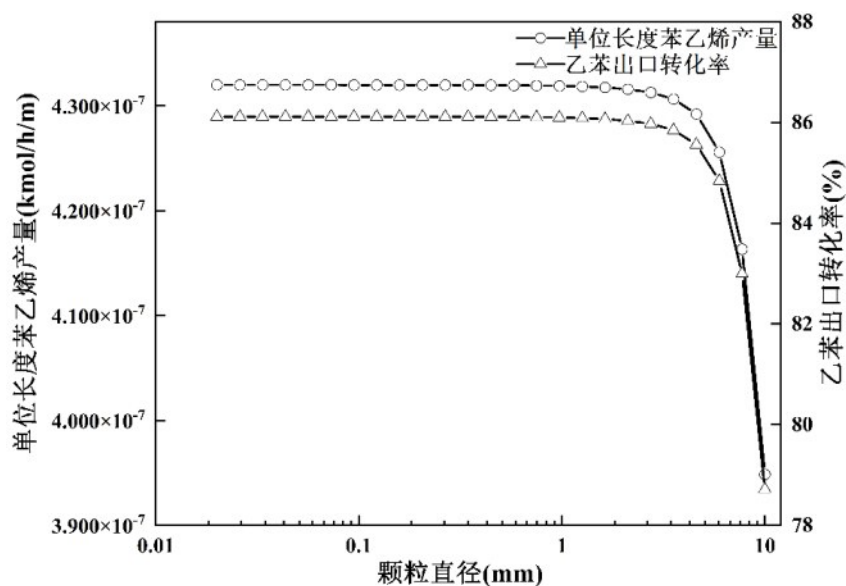


图8 催化剂颗粒粒径对乙苯出口转化率和单位苯乙烯产量的影响

Fig.8 Effect of catalyst particle size on ethylbenzene conversion and unit styrene production

越快。如图11所示,随着流速的增加, Θ 峰值位置逐渐向反应器深处偏移。 Θ 曲线的变化趋势可为乙苯脱氢反应器的轴向热量补偿提供设计依据。

在探讨苯乙烯产量与乙苯转化率随流速的变化规律时,本文将流速无量纲化为达姆科勒数的倒数($1/Da$)。如图12所示,在低流速下,气体停留时间长,反应受限于热力学平衡限制,随着流速增大,苯乙烯单位产量增大;而在高流速下,随着气体停留时间缩短,整个过程转而受动力学速率限制,流速越大,苯乙烯单位产量越低。从图12可以看出存

在一个最优值($1/Da = 9.71$)使得苯乙烯产量取到最大值(9.12×10^{-7} kmol/h/m),但此时乙苯的单程转化率仅为51.59%,这表明单目标博弈难以满足优化乙苯脱氢工艺的实际需求。

6 结 论

本文构建了固定床中乙苯脱氢制苯乙烯反应动力学-反应器耦合模型,通过引入了线性种群缩减、特征坐标系旋转和停滞重启机制三种改进策

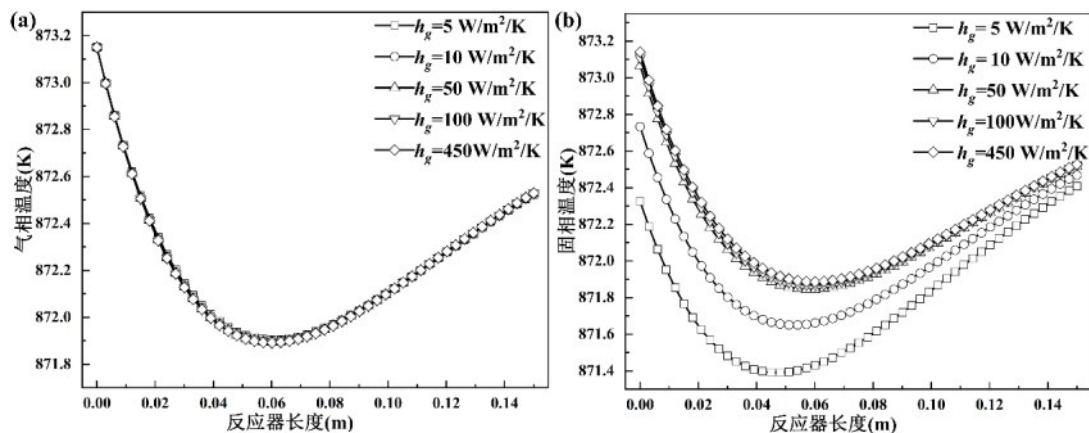


图9 气-固相间传热系数对反应器轴向气相温度与固相温度分布的影响

Fig.9 Effect of gas-solid interphase heat transfer coefficient on the axial temperature distribution of gas and solid phases

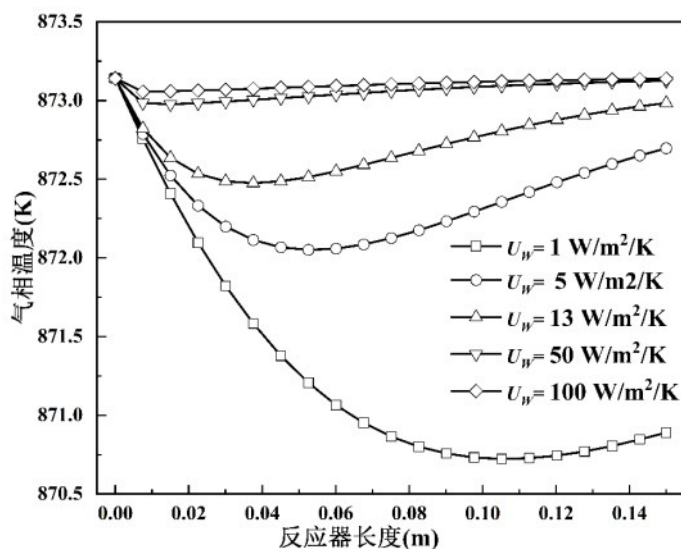


图10 壁面总传热系数对反应器轴向气相温度分布的影响

Fig.10 Effect of total wall heat transfer coefficient on the axial temperature distribution of gas phase

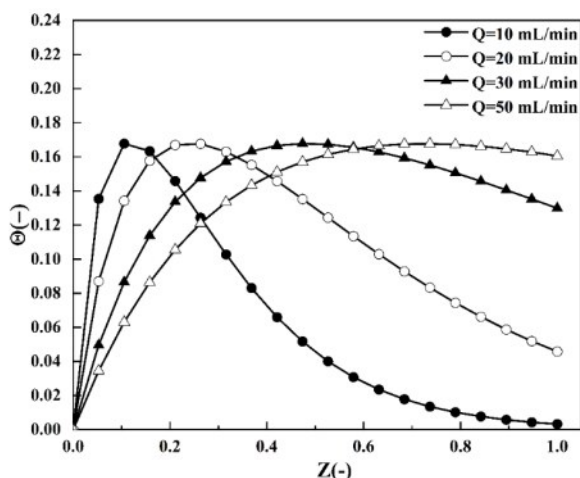


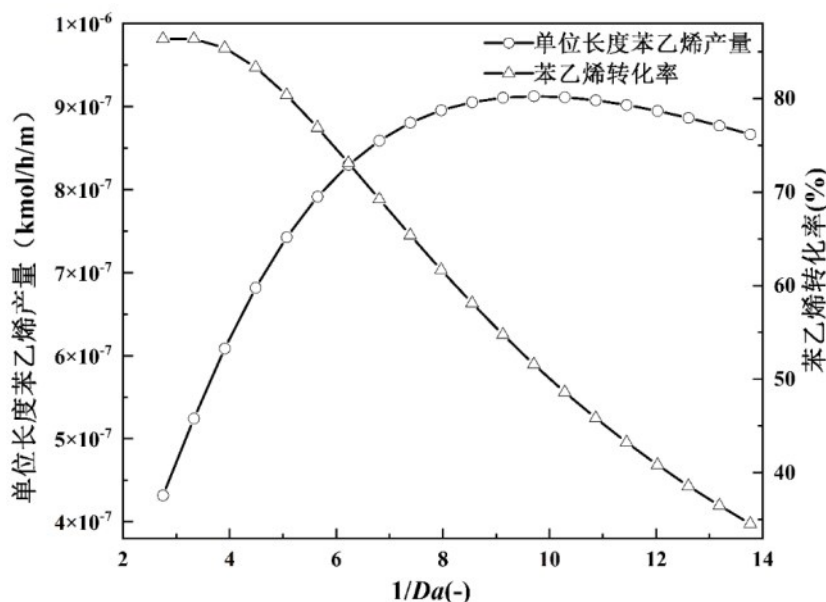
图11 流速对反应器轴向无量纲气相温度分布的影响

Fig.11 Effect of flow rate on the axial dimensionless temperature distribution of gas phase

略,提出了IMPA算法并用于识别模型的未知动力学参数,利用验证的模型研究了乙苯脱氢过程的传质和传热特性,结论如下:

(1)线性种群缩减、特征坐标系旋转和停滞重启机制策略可以有效平衡算法前期的全局勘探能力与后期的局部开发效率,利用标准测试函数对算法性能进行评价,结果表明IMPA算法计算得到的残差平均值分别为1.23和5.38,远小于标准MPA、GA和GWO的残差平均值,且IMPA迭代100代的平均CPU耗时小于0.68 s。

(2)将改进的IMPA算法用于识别乙苯脱氢制苯乙烯反应动力学-反应器耦合模型中的反应速率常数,四个反应速率常数和温度之间均满足阿伦尼乌斯方程,计算得到主反应的活化能为159.15 kJ/mol。

图 12 $1/Da$ 对乙苯转化率与苯乙烯产量的影响Fig.12 Effect of $1/Da$ on ethylbenzene conversion and unit styrene production

(3)最后利用模型研究了固定床中乙苯脱氢过程的传质和传热特性,通过优化关键参数,实现各尺度传质、传热过程高度匹配。本文提出的 IMPA 算法也可其他反应器模型参数识别和操作条件优化提供一种有效的求解方法。

符号说明

A ——指前因子, $\text{kmol}/(\text{kg}_{\text{cat}} \cdot \text{h})$
 a_v ——比表面积, m^{-1}
 B ——由特征向量组成的旋转矩阵
 C ——协方差矩阵
 CF ——收敛因子
 C_p ——恒压热容, $\text{kJ}/(\text{kmol} \cdot \text{K})$
 C_{stag} ——IMPA 停滞判定阈值
 D ——问题维度
 Da ——达姆科勒数
 D_g ——轴向扩散系数, m^2/s
 E ——精英矩阵
 Ea ——活化能, kJ/mol
 $FADs$ ——鱼群聚集装置效应概率
 ΔH_i ——反应 i 的反应热, kJ/mol
 h_g ——气-固相间传热系数, $\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$
 K_{eq} ——可逆反应的平衡常数
 K_i ——组分 i 的吸附系数, Pa^{-1}
 k_g ——气-固相间传质系数, m/s
 k_i ——反应 i 的表观速率常数, $\text{kmol}/(\text{kg}_{\text{cat}} \cdot \text{h})$
 k_{lb} ——搜索空间的下界
 k_{ub} ——搜索空间的上界

L ——反应器有效装填长度, m
 N ——种群规模
 $N_{\min}$ ——线性种群缩减下限
 N_r ——催化剂颗粒内部径向网格节点数量
 N_t ——第 t 次迭代时的动态种群规模
 N_z ——反应器床层轴向网格节点数量
 P_i ——组分 i 的分压, Pa
 p_c ——交叉概率
 p_m ——变异概率
 Q ——体积流量, mL/min
 R —— $[0,1]$ 区间的随机向量
 R_B ——基于正态分布的布朗运动随机向量
 R_L ——莱维分布随机向量
 s —— $[0,1]$ 之间的随机数
 T_g ——气相主体温度, K
 T_s ——固相表面温度, K
 t ——迭代次数
 U_w ——壁面总传热系数, $\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$
 u_0 ——反应器内表观流速, m/s
 X ——种群矩阵
 Z ——无量纲反应器长度
 Θ ——无量纲温度偏差
 λ_g ——气相有效导热系数, $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$
 λ_s ——固相有效导热系数, $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$

参考文献

- [1] 林百宁. 磷掺杂氮化硼催化剂的合成及乙苯脱氢应用研究[D]. 长沙: 中南大学, 2022.
Lin B N. Synthesis and application of phosphorus doped boron

- nitride catalyst for dehydrogenation of ethylbenzene to styrene[D]. Changsha: Central South University, 2022.
- [2] Jea Lee W, Forment G F. Ethylbenzene dehydrogenation into styrene: kinetic modeling and reactor simulation[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2008, **47**(23): 9183–9194.
- [3] 章菊萍, 张王一心, 祝星. 碱金属改性对 SrMnO_3 催化乙苯化学链氧化脱氢性能的影响规律研究[J/OL]. *化工学报*: 1–19. <https://link.cnki.net/urlid/11.1946.TQ.20260203.0904.002>.
- [4] 卢研兵. 硼碳氮催化乙苯氧化脱氢反应的性能研究[D]. 福州: 福州大学, 2023.
- [5] Bahadori F, Azizi A, Ghasemzadeh K. Reduction of catalyst deactivation effects on styrene monomer production in multistage radial fixed bed reactor[J]. *Journal of Flow Chemistry*, 2016, **6**(4): 315–322.
- [6] 卫瑞麒. $\text{In}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 复合氧化物催化 CO_2 氧化乙苯脱氢性能的研究[D]. 太原: 太原理工大学, 2024.
- [7] Agrawal N, Rangaiah G, Ray A K, et al. Multi-objective optimization of the operation of an industrial low-density polyethylene tubular reactor using genetic algorithm and its jumping gene adaptations[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2006, **45**(9): 3182–3199.
- [8] 俞辉, 王超, 李丽娟, 等. 基于非支配排序遗传算法的乙苯脱氢工艺条件优化[J]. *化工学报*, 2012, **63**(9): 2771–2776.
- [9] Chaudhari P, Gupta S K. Multiobjective optimization of a fixed bed maleic anhydride reactor using an improved biomimetic adaptation of NSGA-II[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2012, **51**(8): 3279–3294.
- [10] 王超, 李丽娟. 基于改进粒子群算法的乙苯脱氢过程多目标优化[J]. *化工自动化及仪表*, 2012, **39**(3): 356–359, 432.
- [11] Babu B, Chakole P G, Mubeen J S. Multiobjective differential evolution (MODE) for optimization of adiabatic styrene reactor[J]. *Chemical Engineering Science*, 2005, **60**(17): 4822–4837.
- [12] 王晓强, 罗娜, 叶贞成, 等. 基于Kriging的差分进化算法及其在苯乙烯流程优化中的应用[J]. *化工学报*, 2013, **64**(12): 4563–4570.
- [13] Hajabdollahi H. New global multi-objective optimization of compact heat exchanger[J]. *Chemical Engineering Science*, 2024, **300**: 120462.
- [14] Khoshbakht A, Hajabdollahi H, Dehaj M S. Investigating the effect of stream reflux on optimum design of heat exchanger using Particle Swarm Algorithm[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2023, **144**: 104745.
- [15] Li G, Guan S, Gao Y, et al. Evaluation of multi-objective optimization methods applied to ternary dividing-wall columns[J]. *Chemical Engineering Research and Design*, 2024, **203**: 573–582.
- [16] Zhang H, Lu P, Hua C, et al. Machine Learning-Aided Optimal Design and Distributed Model Predictive Control of Reactive Dividing Wall Column[J]. *Computers & Chemical Engineering*, 2025: 109355.
- [17] Kasat R B, Gupta S K. Multi-objective optimization of an industrial fluidized-bed catalytic cracking unit (FCCU) using genetic algorithm (GA) with the jumping genes operator[J]. *Computers & Chemical Engineering*, 2003, **27**(12): 1785–1800.
- [18] Quddus M R, Zhang Y, Ray A K. Multiobjective optimization of a porous ceramic membrane reactor for oxidative coupling of methane[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2010, **49**(14): 6469–6481.
- [19] Jiang Z, Chen J, Xie S, et al. Establishment of CFD-ANN-NSGA-II model for stirred reactor design[J]. *Chemical Engineering Science*, 2025, **311**: 121614.
- [20] Diao J, Hu M, Lian Z, et al. $\text{Ti}_3\text{C}_2\text{Tx}$ MXene catalyzed ethylbenzene dehydrogenation: active sites and mechanism exploration from both experimental and theoretical aspects[J]. *ACS Catalysis*, 2018, **8**(11): 10051–10057.
- [21] Hossain M M, Atanda L, Al-Yassir N, et al. Kinetics modeling of ethylbenzene dehydrogenation to styrene over a mesoporous alumina supported iron catalyst[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, **207**: 308–321.
- [22] Tarafder A, Rangaiah G, Ray A K. Multiobjective optimization of an industrial styrene monomer manufacturing process[J]. *Chemical Engineering Science*, 2005, **60**(2): 347–363.
- [23] Yee A K, Ray A K, Rangaiah G P. Multiobjective optimization of an industrial styrene reactor[J]. *Computers & Chemical Engineering*, 2003, **27**(1): 111–130.
- [24] Majumdar S, Mitra K. Modeling of a reaction network and its optimization by genetic algorithm[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2004, **100**(1–3): 109–118.
- [25] Elnashaie S, Abdallah B, Elshishini S, et al. On the link between intrinsic catalytic reactions kinetics and the development of catalytic processes: Catalytic dehydrogenation of ethylbenzene to styrene[J]. *Catalysis today*, 2001, **64**(3–4): 151–162.
- [26] Sanz S G, Mcmillan L, Mcgregor J, et al. A new perspective on catalytic dehydrogenation of ethylbenzene: the influence of side-reactions on catalytic performance[J]. *Catalysis Science & Technology*, 2015, **5**(7): 3782–3797.
- [27] Leite B, Da Costa A O S, Da Costa Junior E F. Simulation and optimization of axial-flow and radial-flow reactors for dehydrogenation of ethylbenzene into styrene based on a heterogeneous kinetic model[J]. *Chemical Engineering Science*, 2021, **244**: 116805.
- [28] Leite B, Da Costa A O S, Da Costa Junior E F. Multi-objective optimization of adiabatic styrene reactors using Generalized Differential Evolution 3 (GDE3) [J]. *Chemical Engineering*

- Science, 2023, **265**: 118196.
- [29] Faramarzi A, Heidarinejad M, Mirjalili S, et al. Marine Predators Algorithm: A nature-inspired metaheuristic[J]. Expert systems with applications, 2020, **152**: 113377.
- [30] Liu Z Z, Wang Y, Yang S, et al. An adaptive framework to tune the coordinate systems in nature-inspired optimization algorithms [J]. IEEE transactions on cybernetics, 2018, **49**(4): 1403–1416.
- [31] Li Y, Wang S, Yang B, et al. Population reduction with individual similarity for differential evolution[J]. Artificial Intelligence Review, 2023, **56**(5): 3887–3949.
- [32] Auger A, Hansen N. A restart CMA evolution strategy with increasing population size[C]. IEEE congress on evolutionary computation, 2005, **2**: 1769–1776.
- [33] Liu Y, Xu F, Yuan N, et al. Revealing the Effect of Mass Transfer on Direct Dehydrogenation of Ethylbenzene Catalyzed by Phosphorous-doped Boron Nitride: Comparative Study[J]. ChemCatChem, 2022, **14**(2): e202101676.
- [34] Abhishek K, Price K V, Suganthan P N, et al. Problem definitions and evaluation criteria for the cec 2022 special session and competition on single objective bound constrained numerical optimization[J]. Nanyang Technological University, 2021.
- [35] Tang R, Zhou Y, Xie L. Experimental, Kinetics, and Reactor Modeling Studies of the Direct Dehydrogenation of Ethylbenzene to Styrene in the Fixed-Bed Reactor[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2024, **63**(27): 11848–11860.
- [36] Levenspiel O. Chemical reaction engineering[M]. New York: John Wiley & Sons, 1998.
- [37] Wakao N, Funazkri T. Effect of fluid dispersion coefficients on particle-to-fluid mass transfer coefficients in packed beds: correlation of Sherwood numbers[J]. Chemical Engineering Science, 1978, **33**(10): 1375–1384.
- [38] Fogler H S. Elements of Chemical Reaction Engineering[M]. 3rd ed. Upper Saddle River: Pearson Education, 1999.