



Multi-objective optimization of separation unit for coal-based methanol aromatization

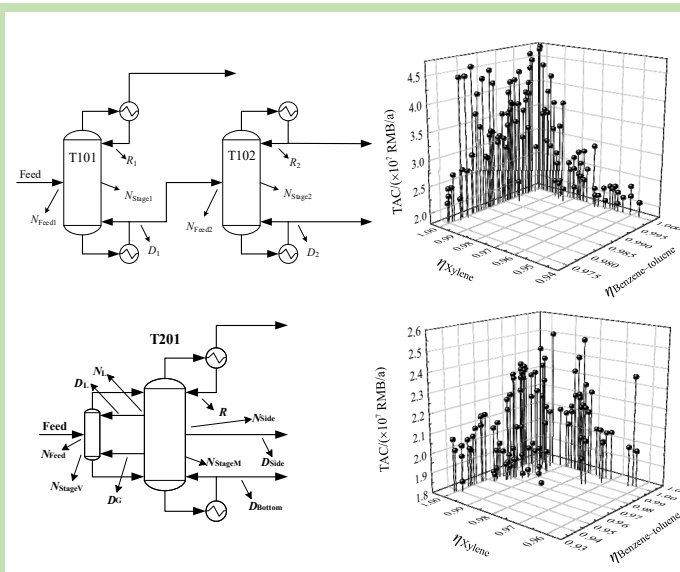
Yandong GUO¹, Hang SU^{1,2}, Songsong CHEN², Feng HUO², Junping ZHANG^{2*}

1. College of Mathematics and Physics, Bohai University, Jinzhou, Liaoning 121013, China

2. Beijing Key Laboratory of Ionic Liquids Clean Process, State Key Laboratory of Multiphase Complex Systems, Institute of Process Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

Abstract: The development of new technologies for synthesizing xylene from methanol has great significance in China, as the coal-based chemical products have been redundant and homogeneous seriously. Due to the challenge of high energy consumption in the chemical separation process, a multi-objective optimization research was carried out in the separation of non-aromatic hydrocarbons, benzene, toluene and xylene mixture using Aspen Plus and Matlab software in this work. The traditional two-column sequence separation process and the dividing wall column process had been simulated and optimized by NSGA-II algorithm respectively. Total annual cost (TAC), energy consumption per product flow rate (GEC), the productivity of benzene-toluene and the productivity of xylene were set as objective functions. The results showed that effect of the reflux ratio on TAC was critical. The two separation processes were compared based on the lowest TAC under the premise of satisfying the constraints. The results indicated that the lowest TAC, heat transfer cost and GEC of the dividing wall column process were reduced about 7.7%, 16.1% and 26.3% in comparison with the two-column sequence process, respectively. It implied that the dividing wall column process would be the best sustainable process in xylene production with lower TAC and GEC.

Key words: coal-based methanol; aromatization; multi-component distillation; dividing wall distillation; NSGA-II algorithm; multi-objective optimization



收稿: 2020-03-07, 修回: 2020-03-31, 网络发表: 2020-05-14, Received: 2020-03-07, Revised: 2020-03-31, Published online: 2020-05-14
基金项目: 国家重点研发计划(编号: 2018YFB0604903)
作者简介: 郭艳东(1981-), 女, 辽宁省北镇市人, 教授, E-mail: gyd1030@163.com; 张军平, 通讯联系人, E-mail: zhangjp@ipe.ac.cn.

引用格式: 郭艳东, 苏航, 陈嵩嵩, 等. 煤基甲醇芳构化分离过程多目标优化. 过程工程学报, 2021, 21(1): 71-82.

Guo Y D, Su H, Chen S S, et al. Multi-objective optimization of separation unit for coal-based methanol aromatization. Chin. J. Process Eng., 2021, 21(1): 71-82, DOI: 10.12034/j.issn.1009-606X.220078.

煤基甲醇芳构化分离过程多目标优化

郭艳东¹, 苏航^{1,2}, 陈嵩嵩², 霍锋², 张军平^{2*}

1. 渤海大学数理学院, 辽宁 锦州 121013

2. 中国科学院过程工程研究所多相复杂系统国家重点实验室, 离子液体清洁过程北京市重点实验室, 北京 100190

摘要: 国内煤化工产品普遍存在产能过剩和同质化严重的问题, 开发以煤基甲醇合成二甲苯的新技术具有重大意义。针对煤基甲醇合成二甲苯技术中面临分离过程能耗高的难题, 本工作基于甲醇芳构化技术, 利用 Aspen Plus 与 Matlab 的交互链接, 对非芳烃、苯、甲苯、二甲苯、三甲苯的分离过程开展了多目标优化研究。采用 NSGA-II 遗传算法, 以苯-甲苯收率、二甲苯收率、年度总成本和能耗指标作为四个目标函数, 分别针对传统双塔精馏序列工艺和分隔壁塔精馏工艺进行了多目标优化, 发现回流比对年度总成本的影响最明显。在满足约束条件的前提下, 基于最低的年度总成本对两个分离工艺进行了比较。结果表明, 分隔壁塔工艺较双塔精馏序列工艺的最低年度总成本低 7.7%, 换热器花费低 16.1%, 能耗指标低 26.3%。分隔壁塔工艺成本低、能耗低, 具有环保、绿色、可持续性的优势。

关键词: 煤基甲醇; 芳构化; 多组分精馏; 分隔壁塔; NSGA-II 遗传算法; 多目标优化

中图分类号: TQ460.6+4

文献标识码: A

文章编号: 1009-606X(2021)01-0071-12

1 前言

二甲苯是一种重要的基础有机化工原料, 被广泛应用于化纤、合成树脂、塑料等生产领域^[1-3]。近些年来, 随着我国聚酯行业的飞速发展, 使国内二甲苯的需求量迅速增长, 但二甲苯发展速度落后于下游产品发展速度, 造成了我国二甲苯对外依存度逐年上升。2018 年我国二甲苯进口量达到 1621 万吨。目前, 二甲苯主要来自石油路线, 产能极易受国际原油市场限制。而国内煤化工产能过剩, 产品同质化严重, 开发以煤基甲醇合成二甲苯的新工艺路线既可以拓展我国二甲苯的原料来源, 也可以解决煤化工产品同质化严重的问题, 具有重要的研究价值。

煤基甲醇合成二甲苯主要有甲醇甲苯烷基化和甲醇芳构化两种技术, 反应产物包括了非芳烃、苯、甲苯、二甲苯和三甲苯等, 组成复杂, 采用传统精馏序列分离产品能耗较高^[4,5], 极大地限制了其产业化发展。多组分精馏分离过程能耗高一直是化工行业面临的难题^[6-9]。分隔壁塔(Dividing Wall Column, DWC)^[10-12]作为一种新型的能量耦合精馏塔, 成为了系统集成和设备强化的前沿研究热点^[13-17]。分隔壁塔采用一块隔板将精馏塔分为上部公共精馏段、下部公共提馏段、精馏进料段和中间侧线采出段四个部分, 实现多组分的分离精制。研究表明, 分隔壁塔技术较传统精馏序列分离技术可降低 10%~60% 的能耗及 10%~50% 的设备投资^[18,19]。

由于分隔壁塔模型中具有非线性、高耦合性、非凸等特性, 使用流程模拟器内部集成的优化算法可能会陷入局部最优解, 而得不到全局最优。当前工程应用中, 大多数实际问题通常是在多个设计目标下寻找满足这些目标的最佳设计方案的多目标优化问题。多目标优化一方面可以充分发挥决策参与者作用, 一方面更符合实际需要, 多目标优化工艺参数也是多组分精馏技术的研究趋势^[20-22], 但流程模拟器内部集成的优化算法不能进行多目标优化。研究者们通常使用数学软件与流程模拟器集成解决多个目标函数的优化问题。黄小侨等^[23]结合 Matlab 与 Aspen Plus, 基于经济效益最大和 CO₂ 排放量最小为优化目标, 以原油混炼比、加热炉热负荷、中段回流量和塔底汽提蒸汽量为决策变量, 利用 NAGA-II 遗传算法对典型石油常减压分离过程进行了多目标优化分析, 发现经济效益和 CO₂ 排放量呈正比。李军等^[24]将 Aspen Plus, Matlab 和 NSGA-II 集成于一体, 基于年总花费和再沸器负荷为目标函数, 选取了 8 个决策变量, 对隔壁塔进行了优化设计, 结果表明预分馏塔板数、主塔板数和进料位置存在一定的线性关系。Ma 等^[25]用 Matlab 链接 Aspen Plus, 以年度总成本为主要目标函数, 以塔板数、溶剂进料位置、原料进料位置、回流比、溶剂流量和闪蒸罐操作压力为决策变量, 分别对两种离子液体萃取分离异丙醇(IPA)-水共沸物工艺进行了多目标优化分析, 结果显示在溶剂回收阶段使用两个蒸发器的年度总成本比使用一个蒸发器的年度总成本低 4.26%。

You 等^[26]集成了 Matlab 与 Aspen Plus, 以年度总成本为主要目标函数, 选取了 17 个决策变量, 优化了乙二醇萃取精馏乙腈-水共沸物过程, 在满足约束的情况下, 萃取精馏的能耗和年度总成本均可降低 20% 以上。Yang 等^[27]通过内部遗传算法软件与 Aspen Plus 链接, 以年度总成本最小和 CO₂ 排放量最小为优化目标, 选取了 11 个决策变量, 采用遗传算法对双热耦合三元萃取精馏案例进行优化, 结果表明可节省 18.60% 的年度总成本, 减少 20.22% 的 CO₂ 排放量。

本工作以煤基甲醇芳构化技术获得的反应产物的分离过程为研究对象, 将 Aspen Plus 与 Matlab 相结合, 对反应产物中的非芳烃、苯、甲苯、二甲苯、三甲苯的分离过程开展多目标优化研究工作。采用 NSGA-II 遗传算法, 以苯-甲苯收率、二甲苯收率、年度总成本(TAC)和能耗指标(GEC)四个变量为目标函数, 针对选取的传

统双塔精馏序列工艺和分隔壁塔精馏工艺开展优化分析, 并基于最低的年度总成本对分离过程的两个工艺进行比较。

2 煤基甲醇芳构化分离过程模型建立

2.1 双塔精馏序列工艺

双塔精馏序列工艺如图 1 所示。本工作中进料物流组成来源于芳构化反应后的三相分离器油相产物组成, 各组分流量见表 1, 进料物流首先进入甲苯-二甲苯分离塔(T101), 精馏分离后, 非芳烃、苯和甲苯由 T101 塔顶采出, 其他组分由 T101 塔釜流出送至二甲苯-三甲苯分离塔(T102), 二甲苯和三甲苯分别从 T102 塔顶和塔底采出。T101 和 T102 采用 Radfrac 模型, 计算过程选用 SRK 物性方法^[28]。

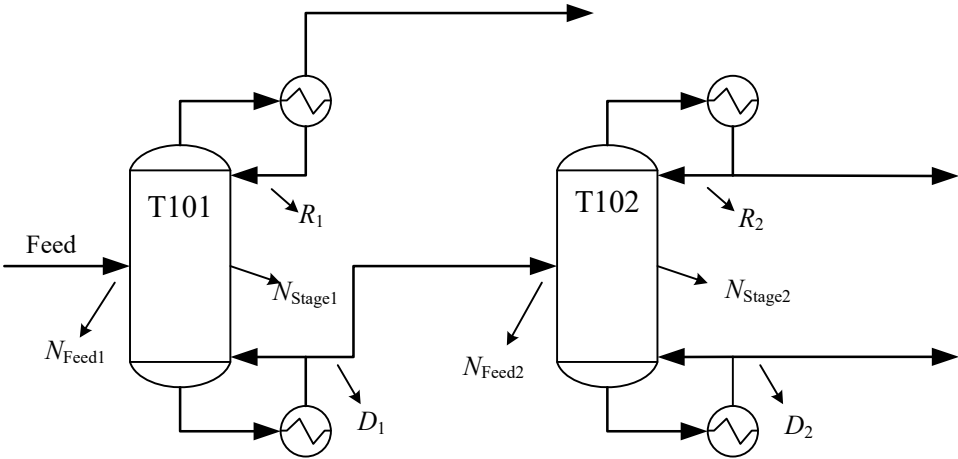


图 1 双塔精馏序列工艺流程示意图
Fig.1 Two-column sequence separation process flow sheet

表 1 进料物流的组分
Table 1 The components of the feed stream

Component	Flow rate/(kg/h)	Component	Flow rate/(kg/h)
Methane	1.05	Heptene	328.26
Ethylene	97.70	Heptane	226.25
Ethane	10.52	Benzene	2067.76
Propane	159.78	Toluene	13079.25
Butene	1455.09	Ethylbenzene	991.30
Butane	1271.86	O-xylene	463.13
Pentene	2454.09	M-xylene	2393.97
Pentane	134.94	P-xylene	16581.44
Hexene	940.06	Trimethylbenzene	4383.25
Hexane	700.31		

双塔精馏序列工艺中, 经过自由度分析^[24], 每个精馏塔有 4 个操作参数, 因此工艺中设定 8 个决策变量,

分别是 T101 进料板位置 N_{Feed1} 、T101 塔板数 N_{Stage1} 、T101 回流比 R_1 、T101 塔釜采出量 D_1 、T102 进料板位

置 N_{Feed2} 、T102 塔板数 N_{Stage2} 、T102 回流比 R_2 和 T102 塔釜采出量 D_2 ，8 个决策变量的变量类型和取值范围见表 2。

表 2 决策变量的变量类型和取值范围 Table 2 Type and range of decision variables			
No.	Decision variable	Variable type	Feasible region
1	N_{Feed1}	Integer	[6,35]
2	N_{Stage1}	Integer	[20,40]
3	R_1	Real	[0.01,4]
4	D_1	Real	[223,233]
5	N_{Feed2}	Integer	[6,35]
6	N_{Stage2}	Integer	[18,40]
7	R_2	Real	[0.01,4]
8	D_2	Real	[34,39]

2.2 分隔壁塔工艺

分隔壁塔工艺如图 2 所示。进料组成与传统双塔精馏序列相同，物料进入分隔壁塔(T201)后，苯、甲苯以及非芳烃由塔顶气相采出，二甲苯由侧线采出，三甲苯由塔釜采出。分隔壁塔(T201)模型是由四个 Radfrac 模型建立的四塔模型^[29]，计算过程选用 SRK 物性方法^[28]。

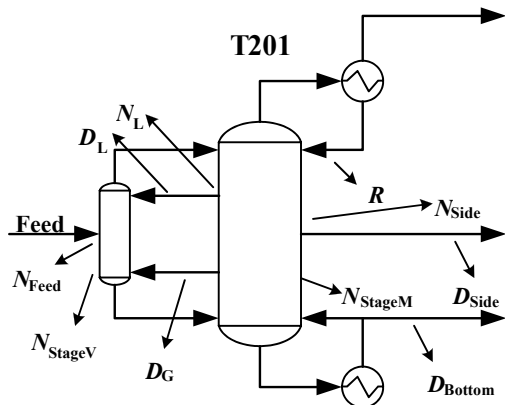


图 2 分隔壁塔工艺流程示意图
Fig.2 Dividing wall column process flow sheet

分隔壁塔工艺中，经过自由度分析^[24]共有 10 个操作参数，分别为主塔塔板数 N_{StageM} 、副塔塔板数 N_{StageV} 、进料板位置 N_{Feed} 、液相分配位置 N_L 、侧线采出位置 N_{Side} 、侧线采出量 D_{Side} 、塔底采出量 D_{Bottom} 、液相分配量 D_L 、气相分配量 D_G 和回流比 R 。选取这 10 个操作参数作为决策变量，其变量类型和取值范围见表 3。

3 多目标优化过程

3.1 多目标优化集成平台搭建

多目标优化集成平台如图 3 所示，Aspen Plus 通过输入的决策变量计算得到目标函数和约束条件所需数

表 3 决策变量的变量类型和取值范围 Table 3 Type and range of decision variables			
No.	Decision variable	Variable type	Feasible region
1	N_{StageM}	Integer	[50,80]
2	N_{StageV}	Integer	[35,60]
3	N_{Side}	Integer	[10,50]
4	N_{Feed}	Integer	[10,50]
5	N_L	Integer	[4,15]
6	R	Real	[0.01,4]
7	D_L	Real	[90,110]
8	D_G	Real	[580,610]
9	D_{Side}	Real	[170,210]
10	D_{Bottom}	Real	[37,43]

据；ActiveX 为 Matlab 与 Aspen Plus 之间连接的组件集成协议；Matlab 中通过开发 NSGA-II 算法，将 Aspen Plus 中得到的目标函数和约束条件所需数据计算得出新的决策变量，输入到 Aspen Plus 中。

在本工作中，NSGA-II 算法的种群大小为 100，遗传代数为 400，选择类型为二元锦标赛，交叉概率为 0.8，变异方法为高斯变异，变异概率为 0.1。主机配置如下：CPU 为 Threadripper 2990WX，64G 内存，Windows 10 操作系统。

3.2 目标函数及约束条件

3.2.1 年度总成本

年度总成本(Total Annual Cost, TAC)是化工过程中评价技术经济性的关键指标^[30]，由操作成本和投资成本组成(10⁷ RMB/a)。目标函数模型如下：

$$TAC = \frac{\text{Capital cost}}{\text{Payback period}} + \text{Operating cost}$$

(1)

式中，操作成本(Operating Cost)为公用工程的消耗费用，即冷凝器的循环水和再沸器的蒸汽等的能源成本，循环水和蒸汽单价见表 4^[26]；投资成本(Capital Cost)是塔壳、塔板和换热器等的总费用，如式(2)~(5)^[31]所示：

$$H = 0.6096 \frac{N}{0.85}$$

(2)

$$\text{Shell cost} = 22688.6 D^{1.066} H^{0.802}$$

(3)

$$\text{Tray cost} = 1426.0 D^{1.55} H$$

(4)

$$\text{Heat transfer cost} = 9367.8 \left(\frac{Q}{u \Delta T} \right)^{0.65}$$

(5)

式中， H 为塔高(m)， N 为塔板数， D 为塔径(m)，由 Aspen Plus 计算得出， Q 为冷凝器或再沸器热负荷(kW)， u 为传热系数[kW/(K·m²)]，冷凝器的传热系数为 0.852，再沸器的传热系数为 0.568^[31]， ΔT 为换热温差(K)。

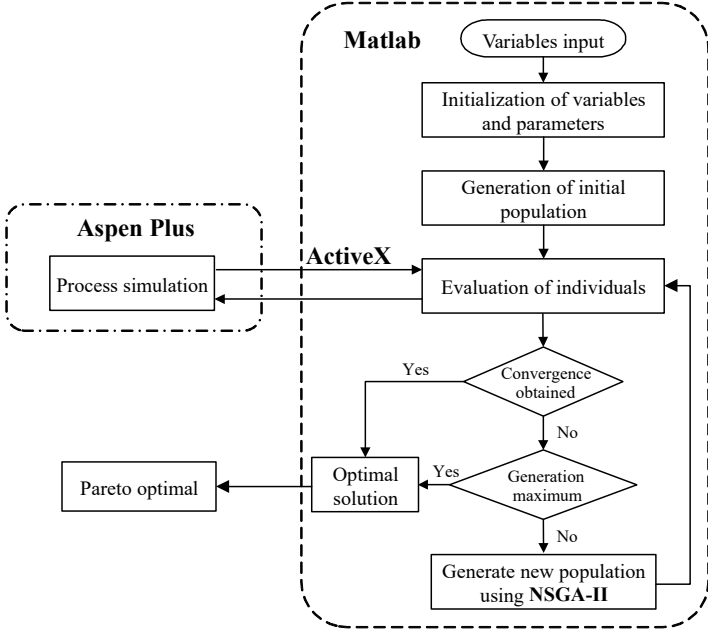


图 3 多目标优化流程图

Fig.3 Flowchart of the multi-objective optimization

表 4 公用工程经济参数

Table 4 Economic data for utilities

Item	Temperature/K	Price/(RMB/GJ)
Low pressure steam (0.5 MPa)	433	54.8
Middle pressure steam (1.0 MPa)	457	58.4
High pressure steam (1.5 MPa)	527	70.1
Cooling water (0.1 MPa)	303	2.0

表 5 流程公用工程权重

Table 5 The weights of process utilities

Item	Value
M_1	1.000
M_2	1.065
M_3	1.280
m_c	0.036

本工作以三年时间为投资回收期 (Payback Period)^[25], 每年 7200 h 的运行时间开展技术经济性评估。

3.2.2 能耗指标

能耗指标 (Energy Consumption per Product Flow Rate, GEC) 为每单位产品所消耗的能量 (kJ/kg), 用于评估能量消耗量^[27]。为更准确地表达工艺的能耗大小, 该指标中针对再沸器、冷凝器的热负荷的数值增加了相应权重^[26], 其函数形式如下:

$$GEC = \frac{M_1 W_1 + M_2 W_2 + M_3 W_3 + m_c W_c}{F} \quad (6)$$

式中, 权重 M 为不同压力下的蒸汽价格与低压蒸汽价格的比值 (见表 5), 其下标 1, 2, 3 分别表示低压、中压和高压; 权重 m_c 为冷源和热源价格的比例 (见表 5)^[27], W 为再沸器或冷凝器的热负荷 (kW), F 为产品质量流量 (kg/s), 在本工作中仅考虑了关键产品二甲苯的流量。

3.2.3 收率

收率 $\eta(\%)$ 指生产过程中最后作为产品被收集的量, 其函数形式如下:

$$\eta = \frac{F_{\text{product}} C_{\text{product}}}{F_{\text{feed}} C_{\text{feed}}} \quad (7)$$

式中, F 为流股流量, C 为产品浓度。通过对甲醇芳构化后三相分离器油相产物进行分析, 发现进料物流中主要含非芳烃、苯、甲苯、二甲苯、三甲苯, 因苯、甲苯可以循环回反应器继续参与反应, 其分离收率影响过程的经济性, 因此苯、甲苯作为关键组分, 选择苯-甲苯的总收率作为一个目标函数, 二甲苯为该工艺路线的产品, 因此二甲苯作为关键组分, 选择混合二甲苯的总收率作为一个目标函数。

3.2.4 优化问题设置

本工作对甲醇芳构化分离过程中的决策变量进行多目标优化。其中约束条件为苯-甲苯的产品浓度不低于 65.0wt%, 二甲苯的产品浓度不低于 97.0wt%, 目标

函数为最小的 TAC 和 GEC, 最大的苯-二甲苯产品收率 $\eta_{\text{Benzene-toluene}}(\%)$ 和二甲苯收率 $\eta_{\text{Xylene}}(\%)$ 。

目标函数和约束条件如下所示:

$$\begin{cases} \min \text{TAC} \\ \min \text{GEC} \\ \max \eta_{\text{Benzene-toluene}} \\ \max \eta_{\text{Xylene}} \end{cases} \quad \text{s.t.} \quad \begin{cases} x_{\text{Benzene-toluene}} \geq 0.65 \\ x_{\text{Xylene}} \geq 0.97 \end{cases} \quad (8)$$

4 结果与讨论

4.1 双塔精馏序列工艺优化结果

4.1.1 双塔精馏序列工艺决策变量的 Pareto 前沿

图 4 为双塔精馏序列工艺 TAC、 $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ 和 η_{Xylene} 的 Pareto 解分布图, 从图中可以看出, 随收率降低, TAC 降低; 当两个收率接近 1 时, TAC 达到最大值; 由于收率与塔板数、进料位置、回流比和采出量会通过投资成本或操作成本影响 TAC, 在多目标优化过程中, 会通过降低 T101 塔或 T102 塔的费用以降低 TAC, 但此操作会影响对应产品的收率, 使产品收率降低, 因此苯-甲苯收率和二甲苯收率之间存在明显的竞争关系。二甲苯收率接近 1 时的 TAC 明显高于苯-甲苯收率接近 1 的 TAC, 分析原因是在满足约束的情况下, 提高苯-甲苯收率可以不考虑 T102 塔的影响, 而提高二甲苯收率则需要同时考虑两个塔的操作, 尤其是较低的苯-甲苯收率会影响 T102 塔顶采出的二甲苯浓度, 进而导致 T102 塔费用增加。

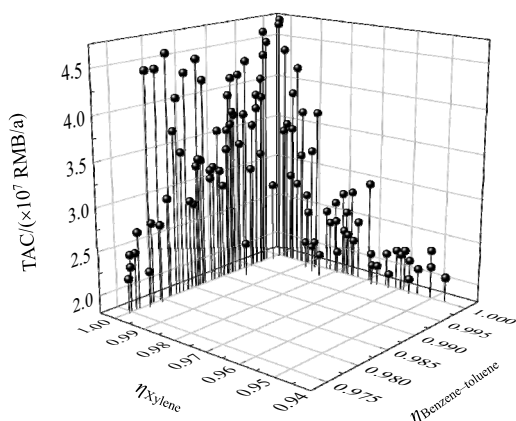


图 4 双塔精馏序列工艺 TAC、 $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ 和 η_{Xylene} 的 Pareto 解分布

Fig.4 Pareto front of two-column sequence separation process, TAC versus $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ and η_{Xylene}

图 5 为双塔精馏序列工艺 TAC 和 GEC 的 Pareto 解分布, 从图中可以看出, TAC 随 GEC 的增加而增加, 表明 GEC 和 TAC 趋势是一致的, 原因是 GEC 增大主要受回流比增大的影响, 进而引起塔尺寸及再沸器负荷的增加, 导致 TAC 值的增大。

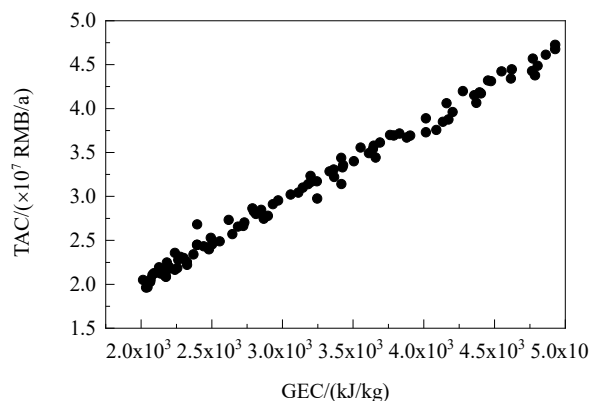


图 5 双塔精馏序列工艺 TAC 和 GEC 的 Pareto 解分布
Fig.5 Pareto front of two-column sequence separation process, TAC and GEC

图 6 为 D_1 随 N_{Feed1} 的变化分布, 由图中 T101 进料板位置 N_{Feed1} 和塔釜采出量 D_1 之间的关系可以看出, 在满足约束条件的情况下, 随进料板位置 N_{Feed1} 的下移, 塔釜采出量 D_1 增加, 原因是进料板位置 N_{Feed1} 靠近塔釜不利于提高苯-甲苯浓度, 导致塔釜采出量 D_1 增加。

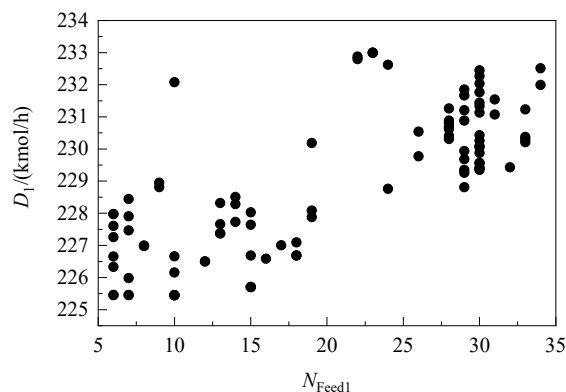
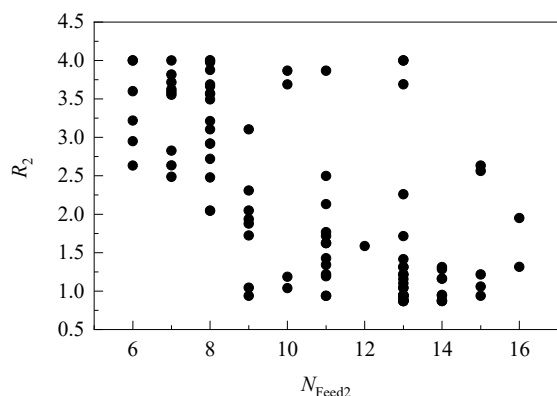


图 6 D_1 随 N_{Feed1} 的变化分布

Fig.6 The relationship between D_1 and N_{Feed1}

图 7 为 R_2 随 N_{Feed2} 的变化分布, 由图中 T102 进料板位置 N_{Feed2} 和回流比 R_2 之间的关系可以看出随进料板 N_{Feed2} 逐渐靠近塔釜, 回流比 R_2 减小, 表明精馏段的增加提高了二甲苯浓度, 在满足约束条件的前提下, 要保证 TAC 最小, 回流比 R_2 减小。

图 8 为各关键决策变量对 TAC 的影响, 由图 8(a)

图 7 R_2 随 N_{Feed2} 的变化分布Fig.7 The relationship between R_2 and N_{Feed2}

可以看出, TAC 随 T101 进料板位置 N_{Feed1} 下移而先减小后增大, 原因是进料板位置在第 16 块板时, 即可满足两个约束条件, 之后 T101 的进料板位置 N_{Feed1} 的变化不利于苯-甲苯或二甲苯浓度的升高, 使 T101 或 T102 的回流比 R_1 和 R_2 增大, 进而导致塔尺寸增大和再沸器负荷升高, 造成 TAC 值变大。由图 8(b)和 8(d)也可以看出 T101 回流比 R_1 的增加和 T102 回流比 R_2 的增大会引起塔尺寸增大和再沸器负荷升高, 导致 TAC 增大。由图 8(c)可以看出随 T102 进料板位置 N_{Feed2} 下移, TAC 值降低, 原因是根据图 7 可知, T102 进料板位置 N_{Feed2} 的下移, 使 T102 回流比 R_2 减小, 引起 TAC 的降低。

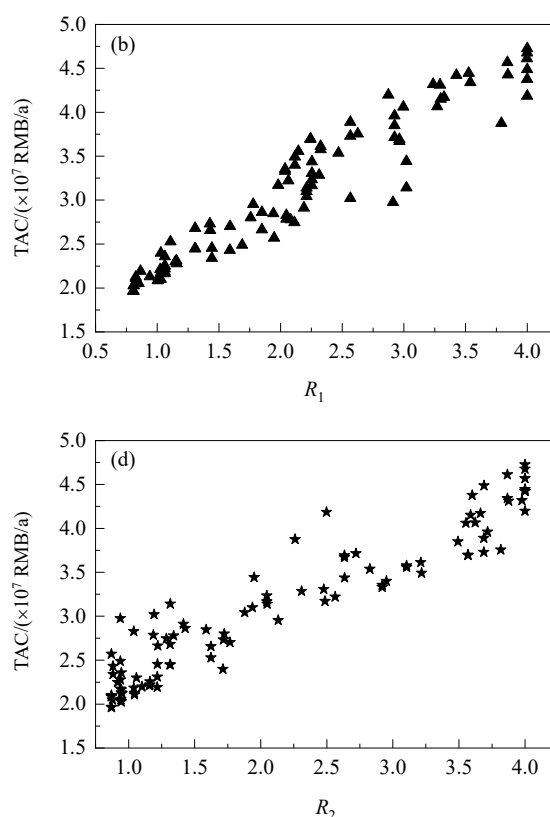
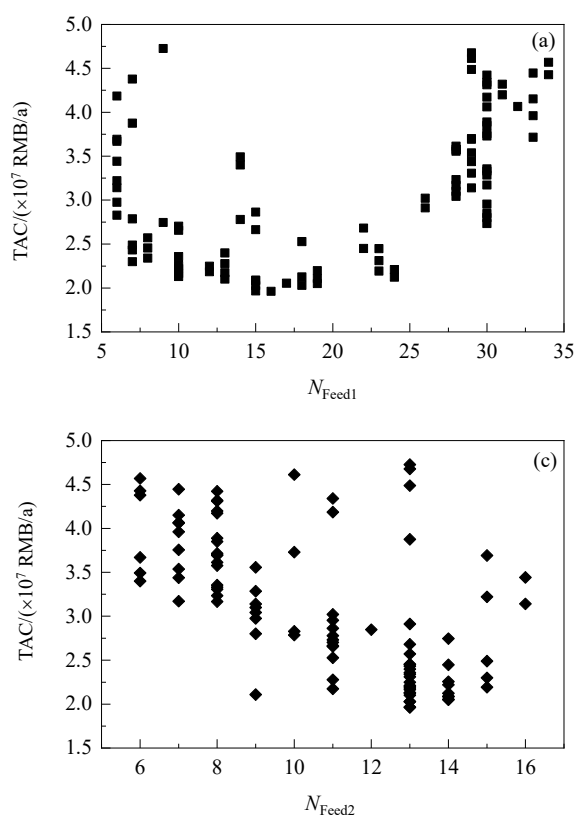


图 8 各关键决策变量对 TAC 的影响

Fig.8 Effects of key manipulated parameters on TAC

4.1.2 双塔精馏序列工艺优化结果讨论

以最低的 TAC 和 GEC、最高的 $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ 和 η_{Xylene} 选择了四组 Pareto 前沿, 分别命名为案例 1(Case 1)、案例 2(Case 2)、案例 3(Case 3)和案例 4(Case 4)。决策变量见表 6。其中, 案例 1 与案例 2 对比可知, 案例 1 中 TAC 最低, 其数值为 1.963×10^7 RMB/a, 案例 2 中 GEC 最低, 其数值为 2014.69 kJ/kg, 两个案例的 TAC 和 GEC 差别很小, 表明了 TAC 和 GEC 的趋势一致, 同时对比

回流比 R_1 和 R_2 的值表明选择最小的回流比并不会得到最小 GEC 值。案例 3 和案例 4 的对比结果显示, T102 的决策变量对苯-甲苯收率的影响较小, 但两案例中 T102 回流比 R_2 分别为 0.938 和 4, 使两个案例的 TAC 值呈显著差距。案例 1 和案例 2 的 T101 回流比 R_1 小于案例 3 和案例 4, 案例 1、案例 2 和案例 3 的 T201 回流比 R_2 小于案例 4, 更大的回流比意味着更高的操作费用和投资成本, 故案例 3 和案例 4 的 TAC 和 GEC 远大于

前两个案例。

表 6 双塔精馏序列工艺优化结果

Table 6 Optimization results of two-column sequence separation process				
Item	Case 1	Case 2	Case 3	Case 4
N_{Feed1}	16	19	6	34
N_{Stage1}	40	40	40	40
R_1	0.810	0.825	2.912	3.843
$D_1/(kmol/h)$	226.586	228.084	225.453	232.511
N_{Feed2}	13	14	9	6
N_{Stage2}	30	37	29	40
R_2	0.871	0.878	0.938	4
$D_2/(kmol/h)$	36.361	34	34	34
TAC/($\times 10^7$ RMB/a)	1.963	2.050	2.976	4.426
GEC/(kJ/kg)	2035.97	2014.69	3245.74	4765.58
$\eta_{Benzene-toluene}$	0.999	0.998	1	0.978
η_{Xylene}	0.962	0.981	0.969	1

Note: TAC is total annual cost. GEC is the energy consumption per product flow rate.

4.2 分隔壁塔工艺优化结果

4.2.1 分隔壁塔工艺决策变量的 Pareto 前沿

图 9 为分隔壁塔工艺 TAC, $\eta_{Benzene-toluene}$ 和 η_{Xylene} 的 Pareto 解分布。可以看出, 随收率降低, TAC 降低; 当两个收率均接近 1 时, TAC 达最大值; 且苯-甲苯收率和二甲苯收率存在竞争关系。

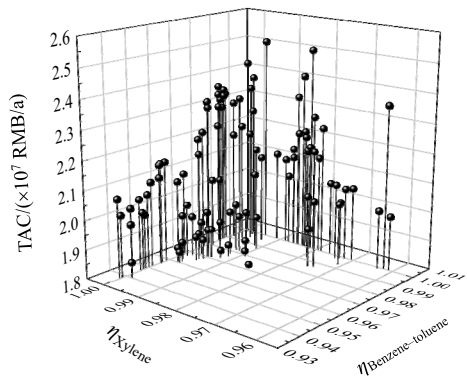


图 9 分隔壁塔工艺 TAC, $\eta_{Benzene-toluene}$ 和 η_{Xylene} 的 Pareto 解分布

Fig.9 Pareto front of dividing wall column process, TAC versus $\eta_{Benzene-toluene}$ and η_{Xylene}

图 11 为 D_G 和 D_{Side} 随各决策变量的变化分布。由图 11(a) 和 11(b) 中气相分配量 D_G 和侧线采出量 D_{Side} 与主塔塔板数 N_{StageM} 之间的关系, 可以看出随主塔板数 N_{StageM} 增加, 气相分配量 D_G 减少, 侧线采出量 D_{Side} 增加, 原因是主塔板数增加有利于提高苯-甲苯和二甲苯浓度, 因此在满足约束条件的情况下, 可适当减少气相分配量采出量 D_G 和增加侧线采出量 D_{Side} 以降低主塔塔径, 使工艺 TAC 值最小。图 11(c) 为气相分配量 D_G 与

图 10 为分隔壁塔工艺 TAC 和 GEC 的 Pareto 解分布。可以看出, TAC 随 GEC 增加而增加, GEC 和 TAC 的变化趋势一致, 与双塔精馏序列工艺相似。二甲苯收率接近 1 时的 TAC 与苯-甲苯收率接近 1 的 TAC 基本相同, 这是由于分隔壁塔工艺为单塔操作, 两种产品收率和 TAC 值均直接受塔 T201 的决策变量影响。

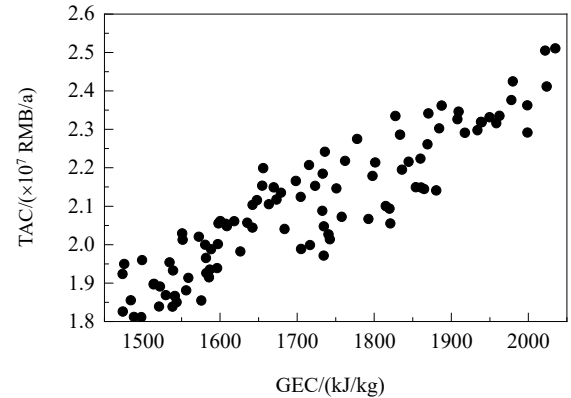


图 10 分隔壁塔工艺 TAC 和 GEC 的 Pareto 解分布
Fig.10 Pareto front of dividing wall column process, TAC and GEC

副塔塔板数 N_{StageV} 之间的关系。可以看出, 随副塔塔板数 N_{StageV} 增加, 气相分配量 D_G 减少, 原因同样是副塔塔板数 N_{StageV} 增加对苯-甲苯浓度的提高有促进作用。图 11(d) 为侧线采出量 D_{Side} 与进料板位置 N_{Feed} 之间的关系, 可以看出随进料板位置 N_{Feed} 靠近塔釜, 侧线采出量 D_{Side} 减少, 表明在相同约束条件下, 进料板位置 N_{Feed} 的下移不利于提高苯-甲苯和二甲苯浓度的提高, 使侧线采出量降低以确保满足约束条件。

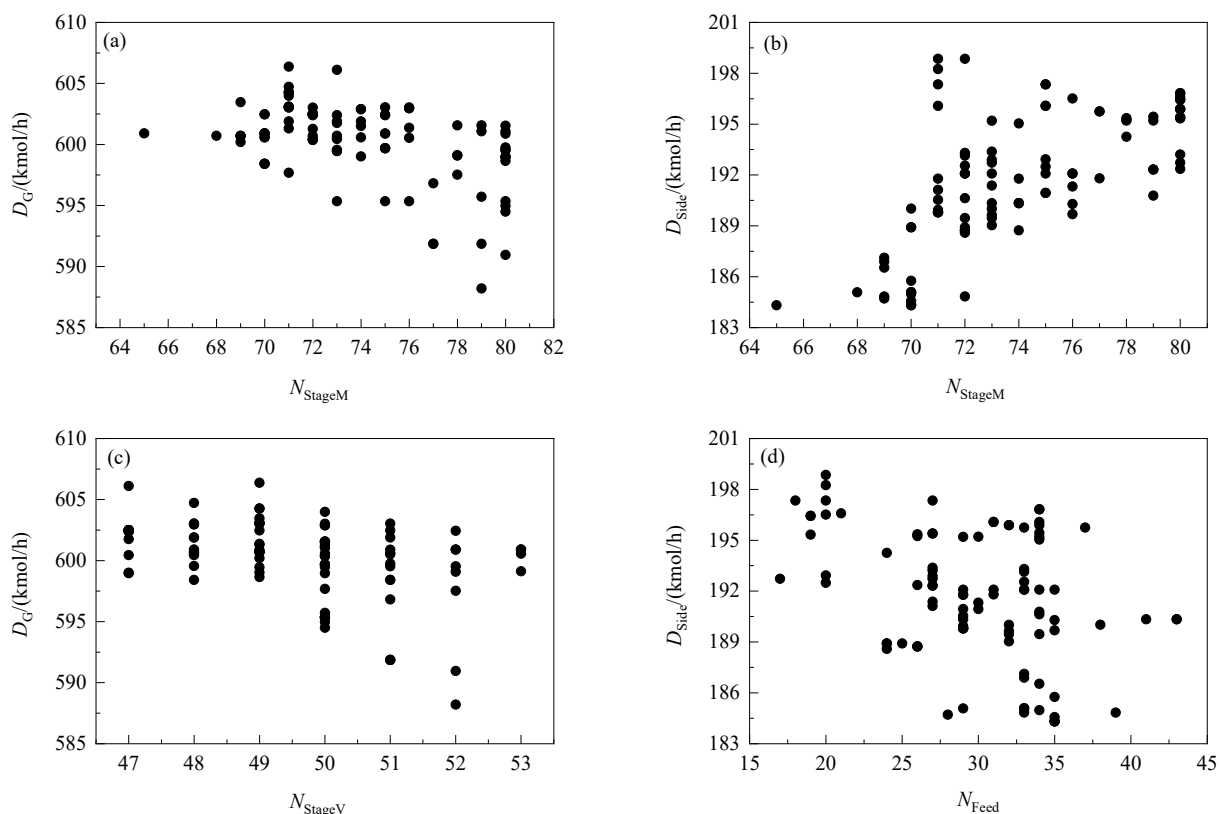
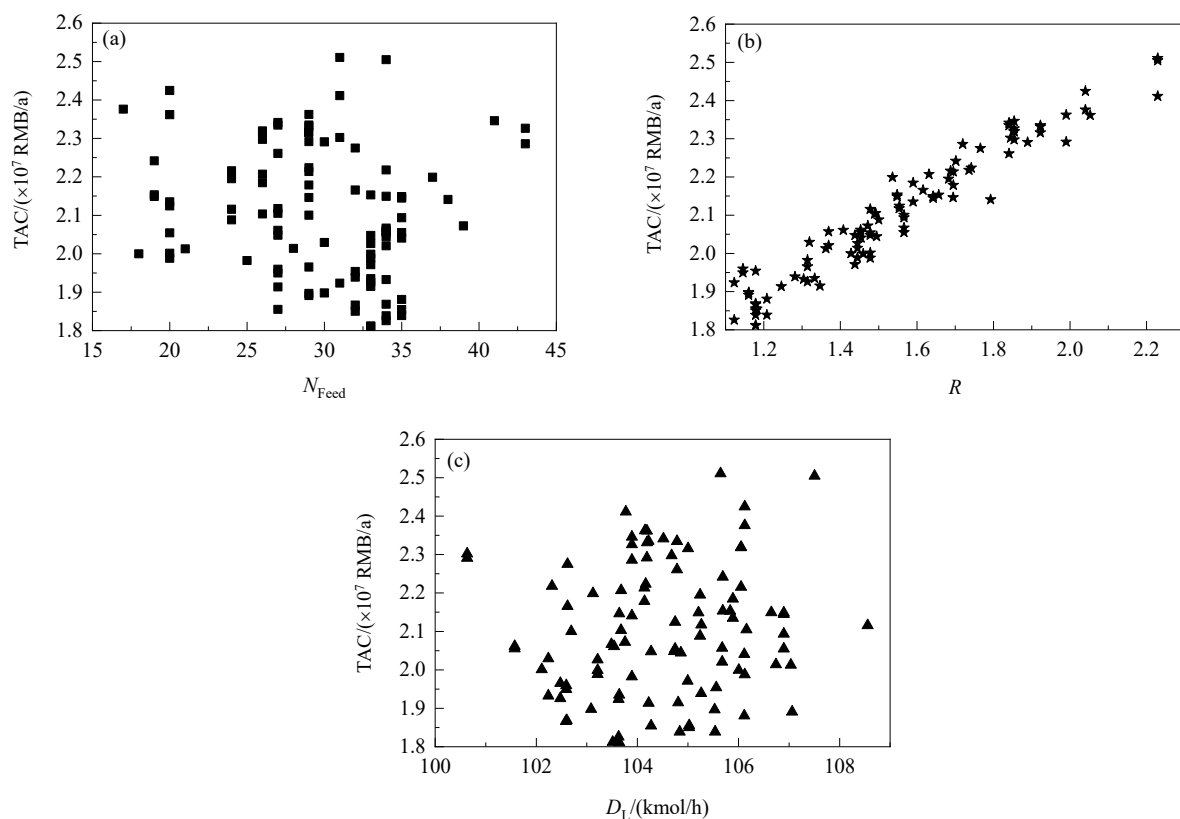
图 11 D_G 和 D_{Side} 随各决策变量的变化分布Fig.11 The relationship between D_G and D_{Side} versus N_{StageM} , N_{StageV} , N_{Feed} 

图 12 各关键决策变量对 TAC 的影响

Fig.12 Effects of key manipulated parameters on TAC

图 12 为各关键决策变量对 TAC 的影响。由图 12(a)可以看出, TAC 随进料板位置 N_{Feed} 逐渐靠近塔釜呈先减小后增大的趋势, 进料板位置在第 33 块板时, 即可满足两个约束条件, 之后进料板位置 N_{Feed} 的变化不利于苯-甲苯、二甲苯浓度的提升, 在确保产品质量约束条件下, 回流比或塔板数进一步增加, 会导致 TAC 值增大。由图 12(b)可以看出, 回流比 R 的增大会引起塔尺寸增大和再沸器负荷增大, 进而可导致 TAC 增大。由图 12(c)中 TAC 随液相分配量 D_L 增大呈先减小后增大的趋势, 分析原因可能是当液相分配量 D_L 小于 103.6 时, D_L 的增大可提高苯-甲苯浓度, 在较低回流比的条件下即可满足约束条件, 使 TAC 值降低; 但当液相分配量 D_L 大于 103.6 时, 随 D_L 增大, 副塔直径增大, 导致 TAC 有所回升。

4.2.2 分隔壁塔工艺优化结果讨论

与双塔精馏序列工艺相同, 基于最低的 TAC、最低的 GEC、最高的 $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ 和最高的 η_{Xylene} 选择了四组 Pareto 前沿分别命名为案例 1(Case 1)、案例 2(Case 2)、案例 3(Case 3)和案例 4(Case 4)。其决策变量见表 7, 案例 1 中 TAC 最低, 其数值为 1.811×10^7 RMB/a, 案例 2 为 GEC 最低, 其数值为 1473.5 kJ/kg, 案例 2 因具有较高的主塔塔板数 N_{StageM} , 使案例 2 的 TAC 值也相对较高; 案例 3 和案例 4 的对比结果中可以看出, 塔底采出量 D_{Bottom} 对收率的影响较小, 而侧线采出量 D_{Side} 对收率有较大的影响。案例 1 和 2 的回流比小于案例 3 和 4, 回流比对操作成本和投资成本的影响较大, 故案例 3 和 4 的 TAC 和 GEC 大于案例 1 和 2, TAC 和 GEC 趋势是一致的, 但在案例 1 和 2 与案例 3 和 4 的对比中可以发现, 更高的 GEC 值并不代表更大的 TAC 值, 因此 TAC 和 GEC 的趋势又不完全一致。

表 7 分隔壁塔工艺优化结果
Table 7 Optimization results of dividing wall column process

Item	Case 1	Case 2	Case 3	Case 4
N_{StageM}	72	76	72	71
N_{StageV}	47	49	50	50
N_{Side}	32	33	34	22
N_{Feed}	33	31	26	20
N_L	11	11	12	9
R	1.179	1.123	1.854	2.053
$D_L/(\text{kmol/h})$	103.640	103.629	106.050	104.191
$D_G/(\text{kmol/h})$	602.498	601.365	600.365	603.987
$D_{\text{Side}}/(\text{kmol/h})$	192.085	192.085	188.731	198.858
$D_{\text{Bottom}}/(\text{kmol/h})$	39.337	37.830	37.163	37.083
TAC/ $(\times 10^7 \text{ RMB/a})$	1.811	1.924	2.318	2.361
GEC/(kJ/kg)	1497.82	1473.5	1939.57	1887.52
$\eta_{\text{Benzene-toluene}}$	0.984	0.993	1	0.962
η_{Xylene}	0.972	0.973	0.979	1

表 8 双塔精馏序列工艺和分隔壁塔工艺对比
Table 8 Comparison of two-column sequence separation process and dividing wall column process

Item	Two-column sequence process	DWC process	Deviation/%
Column cost/ $(\times 10^7 \text{ RMB/a})$	1.079	1.845	-71.0
Heat transfer cost/ $(\times 10^5 \text{ RMB/a})$	1.730	1.452	16.1
Energy cost/ $(\times 10^7 \text{ RMB/a})$	1.597	1.191	25.4
TAC/ $(\times 10^7 \text{ RMB/a})$	1.962	1.811	7.7
GEC/(kJ/kg)	2035.965	1500.817	26.3
$\eta_{\text{Benzene-toluene}}$	1	0.984	-1.6
η_{Xylene}	0.962	0.972	1.0

4.3 双塔精馏序列工艺和分隔壁塔工艺对比

基于最低的 TAC 对两个甲醇芳构化分离过程的工艺过程参数进行对比, 如表 8 所示。结果显示, 分隔壁

塔工艺较双塔精馏序列工艺的 TAC 低 7.7%, 因此分隔壁塔工艺具有更好的经济性。分隔壁塔工艺中因具有较多的塔板数($N_{\text{StageM}}=72$)、较大的回流比($R=1.179$), 使分

隔壁塔工艺较双塔精馏序列工艺的塔设备费用高出71%。由于分隔壁塔工艺中只有一个再沸器和一个冷凝器,使分隔壁塔工艺较双塔精馏序列工艺的换热器费用低16.1%,分离过程的热耦合使分隔壁塔工艺的GEC值比双塔精馏序列工艺低26.3%,表明分隔壁塔工艺具有更少的温室气体排放量,更具环境友好性。

5 结论

本工作通过Matlab与Aspen的联用,以TAC, GEC, $\eta_{\text{Benzene-toluene}}$ 和 η_{Xylene} 作为目标函数,以苯-甲苯的浓度和二甲苯的浓度作为约束条件,优化了煤基甲醇芳构化的两种分离工艺,得到以下结论:

(1) 在Matlab平台上开发了遗传算法程序,对于两个工艺采用了不同的决策变量进行了多目标优化,为不同目标的工业生产提供最佳的工艺参数。

(2) 根据Pareto解分布可知,回流比对TAC的影响较明显。

(3) 分隔壁塔工艺较双塔精馏序列工艺的最低TAC低7.7%, GEC值低26.3%,表明分隔壁塔工艺具有更好的经济性、更低的能耗及更好的可持续发展性。

参考文献

- [1] Huang J, Han X, Yang S, et al. Microporous 3D covalent organic frameworks for liquid chromatographic separation of xylene isomers and ethylbenzene [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(22): 8996–9003.
- [2] Maneffa A, Priece P, Lopez Sanchez J A. Biomass-derived renewable aromatics: selective routes and outlook for p-xylene commercialisation [J]. *ChemSusChem*, 2016, 9(19): 2736–2748.
- [3] Zhu G, Li P, Zhao F, et al. Selective aromatization of biomass derived diisobutylene to p-xylene over supported non-noble metal catalysts [J]. *Catalysis Today*, 2016, 276: 105–111.
- [4] 郝西维, 刘秋芳, 刘弓, 等. 对二甲苯生产技术开发进展及展望 [J]. *洁净煤技术*, 2016, 22(5): 25–30.
Hao X W, Liu Q F, Liu G, et al. Progress and prospect of p-xylene production technologies [J]. *Clean Coal Technology*, 2016, 22(5): 25–30.
- [5] 张丹, 杨敏博, 冯霄. 循环流化床甲醇制芳烃分离工艺的模拟与改进 [J]. *华东理工大学学报(自然科学版)*, 2019, 45(5): 704–710.
Zhang D, Yang M B, Feng X. Simulation and improvement of separation process for aromatic hydrocarbons produced from methanol using circulating fluidized bed reactor [J]. *Journal of East China University of Science and Technology (Nature Science Edition)*, 2019, 45(5): 704–710.
- [6] Ren S, Kokjohn S L, Wang Z, et al. A multi-component wide distillation fuel (covering gasoline, jet fuel and diesel fuel) mechanism for combustion and PAH prediction [J]. *Fuel*, 2017, 208: 447–468.
- [7] Mertens N, Kunde C, Kienle A, et al. Monotonic reformulation and bound tightening for global optimization of ideal multi-component distillation columns [J]. *Optimization and Engineering*, 2018, 19(2): 479–514.
- [8] Singh D, Gupta R K, Kumar V J C, et al. Simulation of a plant scale reactive distillation column for esterification of acetic acid [J]. *Computers & Chemical Engineering*, 2015, 73: 70–81.
- [9] Novita F J, Lee H Y, Lee M. Energy-efficient design of an ethyl levulinate reactive distillation process via a thermally coupled distillation with external heat integration arrangement [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2017, 56(24): 7037–7048.
- [10] Donahue M M, Roach B J, Downs J J, et al. Dividing wall column control: common practices and key findings [J]. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 2016, 107: 106–115.
- [11] Sun L, Wang Q, Li L, et al. Design and control of extractive dividing wall column for separating benzene/cyclohexane mixtures [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2014, 53(19): 8120–8131.
- [12] Wu N, Ji X, An R, et al. Generalized Gibbs free energy of confined nanoparticles [J]. *AIChE Journal*, 2017, 63(10): 4595–4603.
- [13] Dejanović I, Matijašević L, Olujić Ž. Dividing wall column—a breakthrough towards sustainable distilling [J]. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2010, 49(6): 559–580.
- [14] Kiss A A, Rewagad R R. Energy efficient control of a BTX dividing-wall column [J]. *Computers-Chemical Engineering*, 2011, 35(12): 2896–2904.
- [15] Ramapriya G M, Tawarmalani M, Agrawal R. Thermal coupling links to liquid—only transfer streams: a path for new dividing wall columns [J]. *AIChE Journal*, 2014, 60(8): 2949–2961.
- [16] Luster E W. Apparatus for fractionating cracked products: US1915681 [P]. 1933–6–27.
- [17] Wright R O. Fractionation apparatus: US 2471134 [P]. 1949–5–24.
- [18] Fang J, Zhao H, Qi J, et al. Energy conserving effects of dividing wall column [J]. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 2015, 23(6): 934–940.
- [19] Jiang Z, Agrawal R. Process intensification in multicomponent distillation: a review of recent advancements [J]. *Chemical Engineering Research Design*, 2019, 147: 122–145.
- [20] 张良佳, 祝巨. 多组分复杂体系精馏塔操作状态模拟研究 [J]. *计算机与应用化学*, 2007, (7): 919–924.
Zhang L Q, Zhu J. Study on simulation of operating state of distillation column with multi-compositions [J]. *Computers and Applied Chemistry*, 2007, (7): 919–924.
- [21] 闫娜娜, 辛加余, 武斌, 等. 生物甲烷系统的能耗-绿色度两目标优化 [J]. *计算机与应用化学*, 2016, 33(4): 450–456.
Yan N N, Xin J Y, Wu B, et al. Bi-criteria optimization of biomethane production system considering energy consumption and environmental impact [J]. *Computers and Applied Chemistry*, 2016, 33(4): 450–456.
- [22] 田肖, 张香平, 成卫国, 等. 乙二醇/碳酸二甲酯联产工艺的多目标优化研究 [J]. *计算机与应用化学*, 2010, 27(8): 1059–1062.
Tian X, Zhang X P, Cheng W G, et al. Design and multi-objective optimization of EG/DMC co-production process [J]. *Computers and Applied Chemistry*, 2010, 27(8): 1059–1062.
- [23] 黄小侨, 李娜, 李军, 等. 基于遗传算法的常减压装置多目标优化 [J]. *中国石油大学学报(自然科学版)*, 2016, 40(2): 163–168.

- Hang X Q, Li N, Li J, et al. Multi-objective optimization of crude and vacuum distillation system based on genetic algorithm [J]. *Journal of China University of Petroleum (Edition of Natural Sciences)*, 2016, 40(2): 163–168.
- [24] 李军, 王纯正, 马占华, 等. 基于 Aspen Plus 和 NSGA-II 的隔壁塔多目标优化研究 [J]. *高校化学工程学报*, 2015, 29(2): 400–406.
- Li J, Wang C Z, Ma Z H, et al. Multi-objective optimization of dividing wall columns with Aspen Plus and NSGA-II [J]. *Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities*, 2015, 29(2): 400–406.
- [25] Ma S, Shang X, Zhu M, et al. Design, optimization and control of extractive distillation for the separation of isopropanol-water using ionic liquids [J]. *Separation and Purification Technology*, 2019, 209: 833–850.
- [26] You X, Gu J, Gerbaud V, et al. Optimization of pre-concentration, entrainer recycle and pressure selection for the extractive distillation of acetonitrile-water with ethylene glycol [J]. *Chemical Engineering Science*, 2018, 177: 354–368.
- [27] Yang A, Su Y, Chien I L, et al. Investigation of an energy-saving double-thermally coupled extractive distillation for separating ternary system benzene/toluene/cyclohexane [J]. *Energy*, 2019, 186: 115756.
- [28] Liu K, Zhang B J, Zhang Z L, et al. A new double flash process and heat integration for better energy utilization of toluene disproportionation [J]. *Energy*, 2015, 89: 168–177.
- [29] 方静, 祁建超, 李春利, 等. 隔壁塔四塔模型的设计计算 [J]. *石油化工*, 2014, 43(5): 530–535.
- Fang J, Qi J C, Li C L, et al. Design and calculation for four-column model of dividing wall column [J]. *Petrochemical Technology*, 2014, 43(5): 530–535.
- [30] Douglas J M. *Conceptual design of chemical processes* [M]. New York: McGraw-Hill, 1988.
- [31] 刘静. 强化甲苯甲醇烷基化生产对二甲苯工艺 [D]. 重庆: 重庆大学, 2018: 58.
- Liu J. Intensified p-xylene production process through toluene alkylation [D]. Chongqing: Chongqing University, 2018: 58.