

综述与专论

DOI: 10.11949/0438-1157.

基于代理模型的尿素合成原料气组合分离优化

曹玉杰, 张桥, 冯霄, 杨阳

(西安交通大学化学工程与技术学院, 陕西 西安 710049)

摘要: 针对工业气体利用过程中资源利用效率低等问题, 本文提出一种基于代理模型的多组分工业气体组合分离与优化方法。建立了变压吸附 (Pressure Swing Adsorption, PSA) 提氢、单乙醇胺 (Monoethanolamine, MEA) 捕集 CO₂ 及膜分离 (Membrane Separation, MEM) 过程的代理模型, 用于快速预测分离性能并确定最优操作条件。结果显示, 各代理模型预测精度均达到 $R^2 > 0.96$, 具有较高可靠性。基于模型优化得到的气体组合分离方案可满足年产 20.57 万吨尿素生产需求。与传统工艺相比, 该方法在设备投资更低的前提下显著提升资源回收效率: 氢气回收率由 70%–90% 提升至约 99.90%, CO₂ 回收率可达 92.70%, CH₄ 回收率提升至 92.43%; 年碳减排潜力约 28047 吨。同时, 代理模型可在满足工艺约束条件下实现快速寻优, 为工业气体分离过程优化提供高效工具。该研究为多组分工业气体的高效低碳利用提供了一种新思路。

关键词: 气体分离; 代理模型; PSA; 化学吸收法; 膜; 尿素

中图分类号: TQ028.8

文献标志码: A

文章编号: 0438-1157 (XXXX) XX-0001-10

Surrogate model-based optimization of combined separation for urea synthesis feed gas

CAO Yujie, ZHANG Qiao, FENG Xiao, YANG Yang

(School of Chemical Engineering & Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, Shaanxi, China)

Abstract: To address the problems such as low resource utilization efficiency in industrial gas applications, this paper proposes a surrogate model-based integrated separation and optimization method for multicomponent industrial gases. Surrogate models are developed for pressure swing adsorption (PSA) hydrogen purification, monoethanolamine (MEA)-based CO₂ capture, and membrane separation processes to rapidly predict separation performance and determine optimal operating conditions. The results show that all surrogate models achieve a prediction accuracy of $R^2 > 0.96$, demonstrating high reliability. The gas integrated separation scheme obtained via model optimization can meet the production demand of 2.057×10^6 t of urea per year. Compared with the conventional process, the proposed method significantly improves resource recovery efficiency with lower equipment investment: the hydrogen recovery rate is increased from 70%–90% to approximately 99.90%, the CO₂ recovery rate reaches 92.70%, and the CH₄ recovery rate is raised to 92.43%, with an annual carbon emission reduction potential of approximately 28,047 t CO₂. Meanwhile, the surrogate model enables rapid optimization under process constraints, providing an efficient tool for the optimization of industrial gas separation processes. This study offers a

收稿日期: 2026-03-31 修回日期: 2026-05-27

通信作者: 杨阳 (1996—), 男, 博士, 助理教授, yangyang9668@xjtu.edu.cn

第一作者: 曹玉杰 (2001—), 女, 硕士研究生, Cyujie819@stu.xjtu.edu.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21736008)

引用本文: 曹玉杰, 张桥, 冯霄, 杨阳. 基于代理模型的尿素合成原料气组合分离优化[J]. 化工学报, XXXX, XX(XX): 1–10

Citation: CAO Yujie, ZHANG Qiao, FENG Xiao, YANG Yang. Surrogate model-based optimization of combined separation for urea synthesis feed gas [J]. CIESC Journal, XXXX, XX(XX): 1–10

novel approach for the efficient and low-carbon utilization of multicomponent industrial gases.

Keywords: gas separation; Surrogate model; PSA; chemical absorption; membrane; urea

引 言

传统能源供需矛盾长期存在,能源资源高效利用已成为实现能源安全与可持续发展的关键问题。在能源结构转型与低碳发展背景下,煤炭在中国能源体系中仍占据重要地位^[1]。煤气化、蒸汽重整及变换等过程中会产生以 H_2 、 CO_2 、 CO 及 CH_4 为主的多组分工业气体体系,是多种化工过程的重要中间物流^[2],该类气体组成复杂且组分间差异显著,对后续分离与高效利用提出了更高要求^[3]。当前,这类气体主要用于甲醇合成、燃料利用等传统路径^[4],但在实际工业流程中,往往存在资源利用不充分与组分损失等问题^[5]。

气体分离技术是实现多组分工业气体高效利用与资源化的重要手段。针对 H_2 、 CO_2 、 CO 及 CH_4 等不同气体体系的分离需求,已发展出多种成熟的分离方法,包括变压吸附(Pressure Swing Adsorption, PSA)、化学吸收法、深冷分离以及膜分离等^[6-9]。其中,PSA技术因其操作灵活、能耗较低,被广泛应用于氢气提纯过程^[10-11];胺法吸收在 CO_2 捕集领域具有良好的选择性与工业应用基础^[12];深冷分离适用于高纯度气体的大规模分离^[13];而膜分离技术则因其结构紧凑、易于模块化集成,在多组分气体分离中展现出良好的应用前景^[14]。近年来,为进一步提升资源利用效率与系统整体性能,研究者开始探索多种分离技术的协同集成与流程强化^[15]。Li等^[16]提出了PSA-膜耦合分离工艺,通过协同调控吸附与膜过程操作参数,实现了对氢气的高效提纯与回收。Gao等^[17]提出膜分离/吸收-吸附耦合分离工艺,实现了 H_2/CH_4 体系的高效分级分离,并有效降低了分离过程中的资源损失。综上,合理构建多技术耦合的气体分离流程,是提升工业多组分气体体系资源利用效率的重要途径,但这一复杂流程设计对求解算法提出了更高要求。

近年来,基于机理和数据混合驱动的代理模型方法受到广泛关注^[18]。机器学习方法在化学工程领域得到广泛应用,能够从大量数据中发现规律并快速预测过程性能。在气体分离领域,通过机器学习所建立的代理模型可以用于预测分离单元性能并优化操作参数,从而显著减少计算成本^[19-21]。常用

的代理模型方法包括人工神经网络(ANN)^[22]、高斯过程回归(GPR)^[23]和克里金模型^[24]等。Yang等^[25]结合过程模拟与机器学习,通过Aspen吸附模拟数据构建了基于CART和多项式回归的代理模型,实现了PSA分离性能的快速预测。蔡铨智等^[26]针对天然气中甲烷、乙烷、丙烷分离难题,通过高通量计算与机器学习方法对MOFs材料进行筛选,采用多种机器学习算法建模,发现随机森林预测效果最优。这些研究表明,基于机器学习的代理模型在复杂化工过程性能预测与优化中有良好的应用前景。

本文针对多组分工业气体高效分离与资源化利用问题,构建了一种集成PSA、单乙醇胺(Monoethanolamine, MEA)捕集 CO_2 及膜分离(Membrane Separation, MEM)的气体组合分离网络模型,用于实现 H_2 、 CO_2 及其他杂质组分的分离与高效回收。在此基础上,结合过程模拟数据建立机器学习代理模型,对各分离单元性能进行快速预测,并用于优化系统操作参数,提升系统整体资源利用效率。最后,通过案例分析对所提出模型的有效性 & 优化效果进行验证。

1 气体组合分离代理模型构建与优化

针对多组分混合气体的分离需求,本文提出了一种基于代理模型的优化方法。首先,利用Aspen系列软件对各类气体分离工艺进行全流程模拟,获取覆盖宽操作范围的样本数据。在此基础上,分别建立各分离单元的代理模型,实现操作条件与分离性能之间的快速映射关系;进一步地,以代理模型替代机理模型,结合优化算法对关键操作参数进行寻优。该方法能够针对由 H_2 、 CO_2 、 CH_4 及 CO 等主要组分构成的煤气化出口气体,在满足分离目标与工艺约束条件下,快速获得最优操作方案,显著提高气体分离系统的优化效率。整体流程如图1所示。

1.1 气体分离流程模拟

针对由 H_2 、 CO_2 、 CH_4 及 CO 组成的多组分工业气体体系,分别采用PSA、MEA捕集 CO_2 及MEM实现气体组分分离,过程模拟流程如图2所示。

在PSA模拟中,采用Aspen Adsorption软件建立

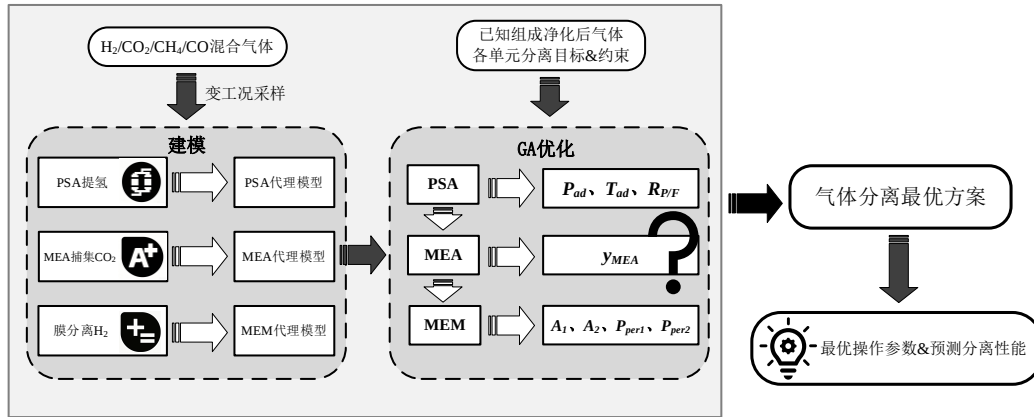


图1 气体分离代理模型优化流程图

Fig.1 Optimization Flowchart of Gas Separation Surrogate Model

注: P_{ad} —PSA吸附压力; T_{ad} —PSA吸附时间; y_{MEA} —MEA浓度; A_1, A_2 —一、二级膜组件膜面积; P_{per1}, P_{per2} —一、二级膜组件渗透侧压力
 P_{ad} —PSA adsorption pressure, T_{ad} —PSA adsorption time, y_{MEA} —MEA concentration, A_1, A_2 —Membrane areas, P_{per1}, P_{per2} —Permeate pressures

模型。模拟过程采用PENG-ROB模型方法,通过上风差分法(UDS1)将床层离散成20个节点,循环包括吸附、减压均压、吹扫、排气、加压均压及加压六个步骤的双塔操作,每个吸附塔均采用双层吸附床结构,塔内径为3.2 m。床层下部填充活性炭,上部填充分子筛,以实现不同杂质组分的分级吸附。其中,活性炭层高度为9.53 m,分子筛层高度为4.77 m。双塔采用相同装填方式与操作条件,通过两塔交替运行实现连续提氢。在塔顶得到纯度约99.9%的高纯氢,塔底为主要成分 CH_4 、 CO_2 、 H_2 的尾气,实现 H_2 与 CO 、 CO_2 及 CH_4 的有效分离。

对于 CO_2 的捕集,使用Aspen Plus建立醇胺法脱碳流程模拟,模拟过程采用ELECNRTL模型方法,进入该单元的混合气首先进入吸收塔,在塔内与MEA溶液逆流接触, CO_2 被选择性吸收形成富液;随后富液进入再生塔解吸释放出高纯度 CO_2 ,得到贫液返回吸收塔循环利用,从而实现 CO_2 的分离与回收。

膜分离采用聚酰亚胺(PI)外压式中空纤维膜,基于溶解-扩散机理构建膜分离模型,气体组分以跨膜压差为驱动力完成传质过程。在Aspen Custom Modeler中搭建两级串联膜分离流程,原料混合气在2600kPa进料压力下进入一级膜组件,在跨膜压差驱动下优先实现 H_2 渗透富集, CH_4 等则主要被截留;一级渗透侧富氢气体进入二级膜组件进一步提纯,最终在二级渗透侧获得高纯度 H_2 产品,截留侧得到含高浓度 CH_4 的回收气,实现目标组分的高效分离与提纯。

各分离单元的进料条件及操作参数均参考工

业实际工况进行设定,模拟所得 H_2 纯度、 CO_2 捕集率及膜分离性能等关键指标与工业装置运行数据及文献结果^[27]基本一致,表明所建立模型具有较好的工程合理性,可用于后续代理模型训练研究。

1.2 气体分离代理模型建立

1.2.1 数据生成与样本获取 在代理模型构建过程中,为降低机理模型计算成本并实现分离性能的快速预测,基于过程模拟数据建立机器学习代理模型。针对不同分离单元,选取对分离性能具有显著影响的关键操作参数作为模型输入变量,气体回收率与纯度等作为输出变量。

在样本生成与数据获取过程中,采用拉丁超立方采样(Latin Hypercube Sampling, LHS)方法在给定参数空间内生成输入变量组合,并结合流程模拟获得对应的分离性能数据。针对不同分离过程,操作参数及数据获取方式如下:

对于PSA过程,氢气回收率和纯度受多种操作参数的影响,呈现显著非线性特征。根据文献^[25],选取吸附压力 P_{ad} 、吹扫时间 T_{ad} 及吹扫比 $R_{P/F}$ 为主要操作变量。其变化范围分别为(1500kPag, 2500kPag)、(300s, 650s)、(0.06, 0.20)。在该范围内通过LHS采样生成600组操作参数样本,并基于流程模拟软件逐组计算获得输出数据。

在MEA捕集 CO_2 过程中,考虑溶剂浓度对吸收性能具有主导影响,选取MEA浓度为关键变量,均以摩尔分数表示,变化范围为(0, 0.45);通过LHS采样获得600组样本,并通过编程接口实现Aspen Plus自动调用,获得对应输出数据。

对于MEM过程,基于膜分离机理模型及工程实

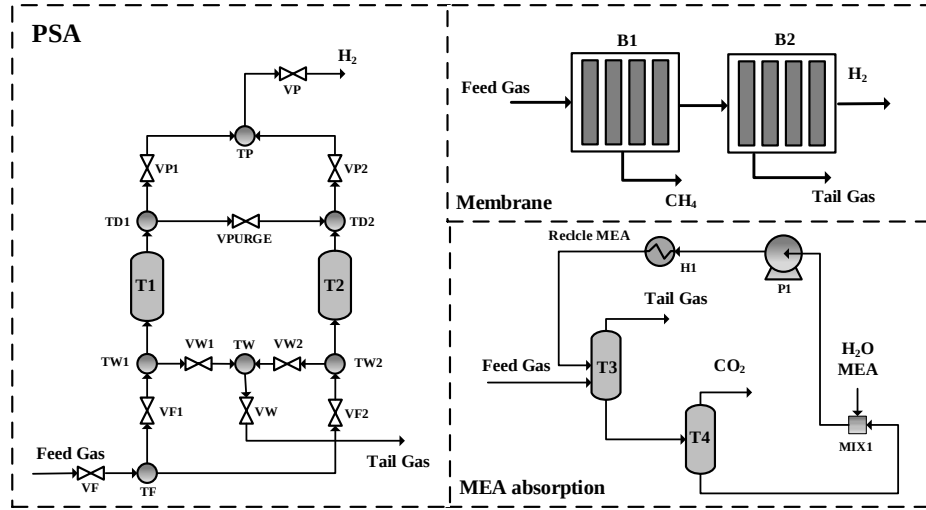


图2 各气体分离流程模拟示意图

Fig.2 Simulation Schematic Diagrams of Various Gas Separation Processes

注:T1,T2—吸附塔;T3—吸收塔;T4—解吸塔;TF,TD1,TD2,TW1,TW2,TW,TP—储气罐;VF,VF1,VF2,VW,VW1,VW2,VP,VP1,VP2,VPURGE—阀门;
H1—加热器;P1—泵;MIX1—混合器,B1,B2—膜

T1, T2 —adsorption tower; T3 —absorption tower; T4 —desorption tower; TF, TD1, TD2, TW1, TW2, TW, TP —gas tank; VF, VF1, VF2, VW, VW1, VW2, VP, VP1, VP2, VPURGE — gas valve; H1 —heater; P1 —pump; MIX1 —mixer; B1, B2 —membrane

际操作,选取一级膜面积 A_1 、二级膜面积 A_2 、初级膜渗透压力 P_{per1} 及二级膜渗透压力 P_{per2} 作为操作变量,变化范围分别为 $(50\text{m}^2, 150\text{m}^2)$ 、 $(20\text{m}^2, 100\text{m}^2)$ 、 $(100\text{kPa}, 600\text{kPa})$ 、 $(100\text{kPa}, 200\text{kPa})$ 。其中,一级膜原料侧压力直接作为二级膜的原料侧压力,通过合理设置两级渗透侧压力范围,实现级间压力匹配,保证每一级均有稳定的跨膜压差驱动力。后续将通过调整膜面积、渗透侧压力等参数协同调控 H_2 回收率与纯度。通过LHS采样生成600组操作参数样本,通过MATLAB调用膜分离机理模型进行批量计算,获得输出数据。

对于模拟过程中出现的不收敛或计算异常样本予以剔除,最终获得PSA、MEA及MEM过程的有效样本数量分别为505、554及600组。

1.2.2 代理模型构建 考虑到气体分离过程存在明显的多输入、多输出及非线性耦合特征,本文选用人工神经网络(Artificial Neural Network, ANN)构建代理模型。已有研究表明,ANN在复杂非线性系统的拟合能力与优化计算中更具优势^[28]。ANN具有较强的非线性映射与自学习能力,可精准表征复杂分离过程的输入输出关系。且在复杂流程代理建模领域已得到广泛应用^[29],能够满足本文气体组合分离对预测精度与计算效率的需求。其通用数学表达形式为:

$$Y^{(k)} = f^{(k)}(X^{(k)}; \theta^{(k)}), k \in \text{PSA, MEA, MEM} \quad (1)$$

其中, $X^{(k)}$ 表示第 k 个分离过程的输入操作参数向量, $Y^{(k)}$ 为对应的输出性能指标向量, $\theta^{(k)}$ 表示神经网络待训练参数集合。各分离过程代理模型定义如下:

$$Y_{\text{PSA}} = f_{\text{PSA}}(X^{(\text{PSA})}) = [\text{PUR}_{\text{H}_2}, \text{REC}_{\text{H}_2}] \quad (2)$$

$$Y_{\text{MEA}} = f_{\text{MEA}}(X^{(\text{MEA})}) = [\eta_{\text{CO}_2}] \quad (3)$$

$$Y_{\text{MEM}} = f_{\text{MEM}}(X^{(\text{MEM})}) = [\text{PUR}_{\text{H}_2}, \text{REC}_{\text{H}_2}] \quad (4)$$

其中,PUR表示产品纯度,REC表示回收率, η_{CO_2} 表示 CO_2 捕集率。

本文采用前馈神经网络实现上述非线性映射,网络为单隐藏层结构,过程可表示为:

$$h^{(1)} = \sigma(W^{(1)} \cdot x + b^{(1)}) \quad (5)$$

$$Y^{(k)} = W^{(2)} h^{(1)} + b^{(2)} \quad (6)$$

其中, $W^{(1)}$ 、 $b^{(1)}$ 分别为输入层-隐藏层的权重矩阵与偏置向量, $W^{(2)}$ 、 $b^{(2)}$ 分别为隐藏层-输出层的权重矩阵与偏置向量; $h^{(1)}$ 为隐藏层输出向量; $\sigma(\cdot)$ 为非线性激活函数,本文选用ReLU激活函数,可有效缓解梯度消失问题,提升训练效率。

神经网络待训练参数集合统一表示为:

$$\theta^{(k)} = \{W^{(1)}, b^{(1)}, W^{(2)}, b^{(2)}\} \quad (7)$$

针对PSA提氢、MEA吸收 CO_2 及MEM三类过程,模型采用统一网络配置,隐藏层神经元数统一设为10。对所有输入数据进行Min-Max归一化处理以消除量纲差异,数据集按照70%/15%/15%随机划分为训练集、验证集和测试集,保证模型训练与

泛化能力评估的合理性。模型训练采用 Levenberg-Marquardt 算法优化网络权重,并引入早停法防止过拟合。

1.2.3 代理模型训练结果与性能评估 在上述代理模型构建及训练方法基础上,为评估模型对各分离过程的预测能力,选用决定系数(R^2)与均方误差(MSE)作为评价指标,结果如表1所示。

表1 各分离单元代理模型预测性能指标
Table 1 Prediction Performance Metrics of Surrogate Models for Each Separation Unit

气体分离类型	性能指标	
	R^2	MSE
PSA	0.962	0.0036
MEA	0.992	0.0010
MEM	0.982	0.0020

由表1可知,所训练的代理模型 R^2 均大于0.96, MSE 均小于0.004,能够高效、精准地映射各气体分离过程的输入-输出关系。传统机理模型中,PSA 单次模拟耗时20~30min,而 MEA 与 MEM 计算时间相对较低,但多次迭代优化仍然会产生计算负担。相比之下代理模型仅需毫秒至秒级即可完成单次预测,整体计算效率提升约2~3个数量级,在大规模参数搜索与迭代优化过程中优势显著。

1.3 基于代理模型的操作参数优化

针对 PSA、MEA 吸收 CO_2 、MEM 三个分离单元,基于各自构建的代理模型分别进行操作参数优化,在给定进料气体组成及分离性能要求的条件下,各单元优化问题独立求解,以获得对应的最优操作参数。各分离单元优化问题定义如下:

1.3.1 PSA 单元优化问题 PSA 单元以满足氢气纯度约束为前提,最大化氢气回收率为目标。优化问题表示为:

$$\begin{aligned} \max: & \text{REC}_{\text{H}_2}^{\text{PSA}} \#(8) \\ \text{PUR}_{\text{H}_2}^{\text{PSA}} & \geq 0.999 \#(9) \end{aligned}$$

1.3.2 MEA 单元优化问题 MEA 吸收 CO_2 过程以达到预设 CO_2 捕集率为优化目标,在固定 MEA 溶液流量条件下,为降低多参数耦合对代理模型训练与优化求解复杂度的影响,本文选取 MEA 浓度作为主要优化变量开展分析。通过调节 MEA 浓度使 CO_2 捕集率满足设定值,由于本文所建立的 MEA 吸收 CO_2 流程在当前操作范围内能够稳定获得满足分离要求的 CO_2 产品纯度,因此未额外将 CO_2 纯度设置为优化约束条件,属于约束满足型优化问题,可表

示为:

$$\eta_{\text{CO}_2} = \eta_{\text{CO}_2}^{\text{set}} \#(10)$$

1.3.3 MEM 单元优化问题 膜分离单元以最大化氢气纯度与回收率为目标,采用帕累托多目标优化方法对两个目标进行协同优化,以获得纯度与回收率之间的非支配最优解集,优化问题可表示为:

$$\max: [\text{PUR}_{\text{H}_2}^{\text{MEM}}, \text{REC}_{\text{H}_2}^{\text{MEM}}] \#(11)$$

1.3.4 通用操作参数约束 对于各分离单元,操作参数均满足如下约束:

$$x_{\min}^{(k)} \leq x^{(k)} \leq x_{\max}^{(k)}, k \in \{\text{PSA}, \text{MEA}, \text{MEM}\} \#(12)$$

其中, $x(k)$ 表示第 k 个分离过程的操作变量集合, $x_{\min}^{(k)}$ 、 $x_{\max}^{(k)}$ 分别表示对应操作变量的下限和上限。

2 案例分析

2.1 案例设置

针对煤制尿素典型工艺,本文选取某化工厂煤基变换气作为案例,该变换气主要组分为 H_2 、 CO_2 、 CH_4 ,并含有少量 CO ,具体组成见表2。以该变换气为对象,考察其经分级分离处理后的效果。组合分离路径设置如下:变换气首先进入 PSA 单元,进行氢气的初步分离与提纯;尾气进入 MEA 吸收单元,捕集 CO_2 同时获得富 CO_2 气流;脱碳后的气体进入 MEM 单元,进一步实现 H_2 与 CH_4 的分离。经上述分离后,PSA 与 MEM 单元产出的氢气经汇合后进入合成氨工段制备氨气,所得氨气再与 MEA 捕集获得的 CO_2 最终用于尿素合成,完整工艺流程如图3所示。

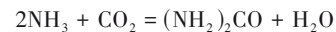
表2 变换气进料数据
Table 2 Composition of Shift Gas

	F(kmol/h)	y_{H_2}	y_{CO}	y_{CO_2}	y_{CH_4}
进料流股	1959.74	69.15%	0.18%	23.04%	7.63%

在尿素合成过程中,氢气首先用于合成氨,其反应为:



随后,氨与二氧化碳反应生成尿素,其反应过程可表示为:



由上述反应关系可知,生成1mol尿素理论上需消耗3mol H_2 和1mol CO_2 ,因此原料气中 H_2 与 CO_2 的理论摩尔比为3。然而,在实际工业过程中,为保证氨合成反应的转化率并补偿分离过程中的氢气损失,原料气配比通常在理论计量比基础上适度调整,以满足系统稳定运行及工艺调节需求。

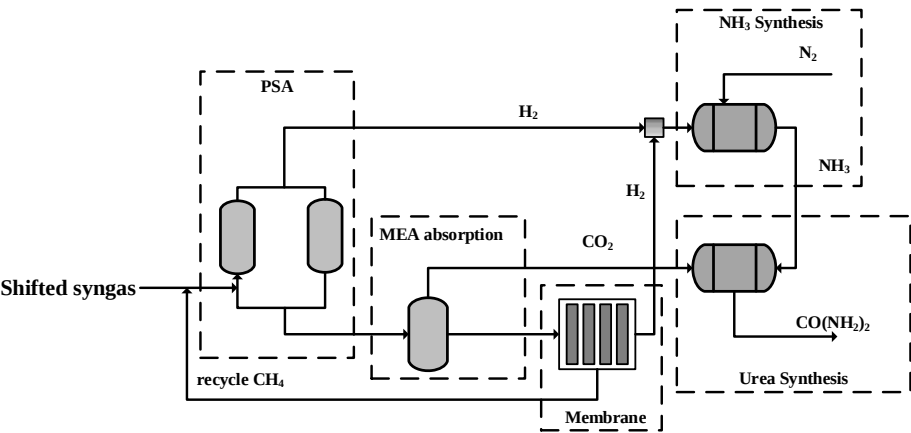


图3 变换气制尿素工艺流程图

Fig.3 Process Flow Diagram of Urea Production from Shift Gas

2.2 基于代理模型的优化结果与性能预测

为获得满足约束条件的组合分离过程最优操作参数,基于 MATLAB R2022b 软件,采用遗传算法 (GA)进行全局优化求解。在多变量操作参数优化中,若采用传统流程模拟方法,为获得满足分离要求的操作参数,需进行大量反复模拟或灵敏度分析,整体耗时可达数小时。本文采用已训练完成的代理模型作为分离性能快速预测工具,结合遗传算法开展全局优化,最终得到各分离单元的最优操作参数,可将单次完整优化与分离性能预测的耗时由数小时缩短至 5~6 分钟,显著提升了多变量优化问题的求解效率,所得最优操作参数如表 3 所示。

表3 最优操作参数表

Table 3 Table of Optimal Operating Parameters					
分离单元	PSA		MEA		MEM
	$P_{ad}/\text{kPa(G)}$	2203.68			A_1/m^2 60.63
					A_2/m^2 28.13
最优操作参数	T_{ad}/s	461.15	y_{MEA} 0.3643		P_{per1}/kPa 593.90
	$R_{p/F}$	0.072			P_{per2}/kPa 142.40

基于该最优操作参数,利用代理模型预测多级分离系统的分离效果,各关键气体产品的纯度与流量计算结果如表 4 所示。

表4 代理模型预测结果表

Table 4 Table of Surrogate Model Prediction Results									
		原料气		H ₂		CH ₄		CO ₂	
摩尔流量/kmol·h ⁻¹		1959.74		1354.91		149.25		428.10	
摩尔分率/mol%	CH ₄	7.63	CH ₄	0.05	CH ₄	92.60	CH ₄	0.00	
	CO	0.18	CO	0.01	CO	2.44	H ₂ O	2.10	
	CO ₂	23.04	CO ₂	0.03	CO ₂	2.49	CO ₂	97.80	
	H ₂	69.15	H ₂	99.90	H ₂	3.07	H ₂	0.01	
回收率/%				99.90		92.43		92.70	

以 CO₂ 产品流量为基准,按年运行时间 8000h 进行核算,可实现年产尿素 20.57 万吨。由表中数据可以看出,本工艺分离效果理想,所得 H₂ 及 CO₂ 均具备较高的纯度与回收率,同时可实现 CH₄ 的回收利用,有效提升了原料利用率。根据上述分离结果计算,所得氢气与二氧化碳产品的摩尔流量比约为 3.17。能够在保证后续氨合成原料需求的同时,为分离过程中的氢气损失提供一定冗余,从而更好地适配尿素合成系统的稳定运行要求。

2.3 代理模型验证与误差分析

为验证代理模型的预测精度,将代理模型优化得到的最优操作参数作为 Aspen 模拟的输入条件,对关键性能指标进行对比分析,Aspen 模拟结果及相对误差(ε)如表 5 所示。

表5 Aspen 模拟验证结果及相对误差

Table 5 Aspen Simulation Validation Results and Relative Errors

	Aspen 模拟流量	ε/%	Aspen 模拟纯度	ε/%	Aspen 模拟回收率	ε/%
进料气体	1952.60	0.37				
H ₂	1348.87	0.45	99.94%	0.04	99.80%	0.10
CH ₄	153.75	2.93	92.70%	0.11	95.70%	3.42
CO ₂	449.14	4.68	97.84%	0.04	97.60%	5.02

对比结果表明,代理模型预测结果与 Aspen 模拟值具有较高一致性,验证了所构建代理模型的可靠性。在此基础上,代理模型不仅能够准确预测分离性能,还可用于快速搜索最优操作参数,可为实际生产提供参考。

2.4 工艺经济性与性能对比分析

2.4.1 设备投资对比 为评估本文所提出的气体组合分离系统在工业应用中的经济性,将其与传统变换气净化制尿素原料气路线进行对比。为保证对比基准统一,假设分离前序工段及后续合成产品单元两种方案设备投资完全一致,仅针对变换气出口至尿素原料气制备段的气体分离单元开展设备投资对比分析。本文提出的气体分离系统由 PSA、MEA 及 MEM 三个单元构成;传统尿素生产中,变换气净化主要包含低温甲醇洗、甲烷化及 PSA 单元。

在设备投资方面,本文方法各单元设备费用参考文献^[27]确定。对于传统工艺,低温甲醇洗单元的设备投资约为同等 MEA 化学吸收单元投资的 1.27 倍^[30];甲烷化单元的设备投资数据参考文献^[31]确定,各单元设备费用如表 6 所示。

两种工艺总设备投资对比如图 4 所示。

表 6 设备投资对比

Table 6 Comparison of Equipment Investment

工艺路线	单元操作	设备费用(M \$)
PSA-MEA-MEM	PSA	1.90
	MEA	2.02
	MEM	0.04
传统工艺	低温甲醇洗	2.57
	甲烷化	0.43
	PSA	1.90

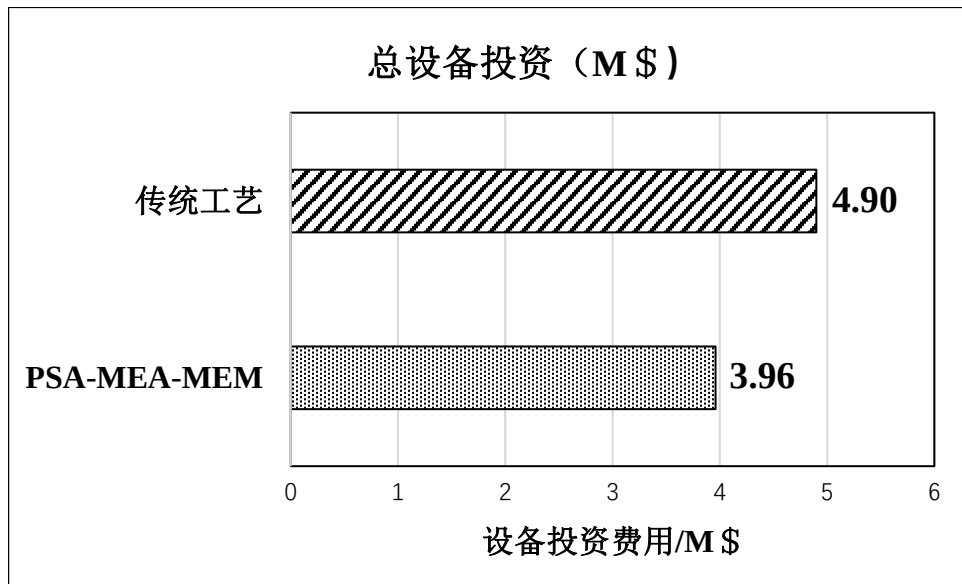


图 4 两种工艺总设备投资对比

Fig.4 Comparison of total equipment investment between the two processes

由图 4 可以看出,本文所提出的 PSA-MEA-MEM 系统总设备投资较传统低温甲醇洗-甲烷化-PSA 流程降低 0.94M \$。此外,本方法回收的 CH₄ 同样具备潜在的附加经济效益。

2.4.2 氢气回收性能对比 本文方法通过多技术耦合强化分离过程,为提高氢气综合回收率提供了新的技术路径。本文提出的气体分离方法由 PSA、MEA 及 MEM 三个单元构成,可实现对 H₂、CO₂ 及 CH₄ 等组分的协同分离与回收利用。相比传统尿素生产流程中采用低温甲醇洗结合甲烷化及 PSA 的分离路线,本文方法实现了关键组分的分级回收,先

经 PSA 单元完成氢气提纯,其尾气引入 MEA 单元实现 CO₂ 高选择性捕集,最后将 MEA 处理后的气体送至 MEM 单元进一步实现 H₂ 与 CH₄ 的分离回收,实现氢气近乎完全回收。通过多单元协同作用,有效减少了氢气在过程中的不可逆消耗,提高了资源利用率。而传统工艺仅依赖单一 PSA 单元回收氢气,分离能力与流程耦合程度相对有限,整体氢气回收率水平较低^[32]。两种工艺的氢气回收率对比如图 5 所示。本方法通过多技术耦合强化分离过程,为提高氢气综合回收率提供了新的技术路径。

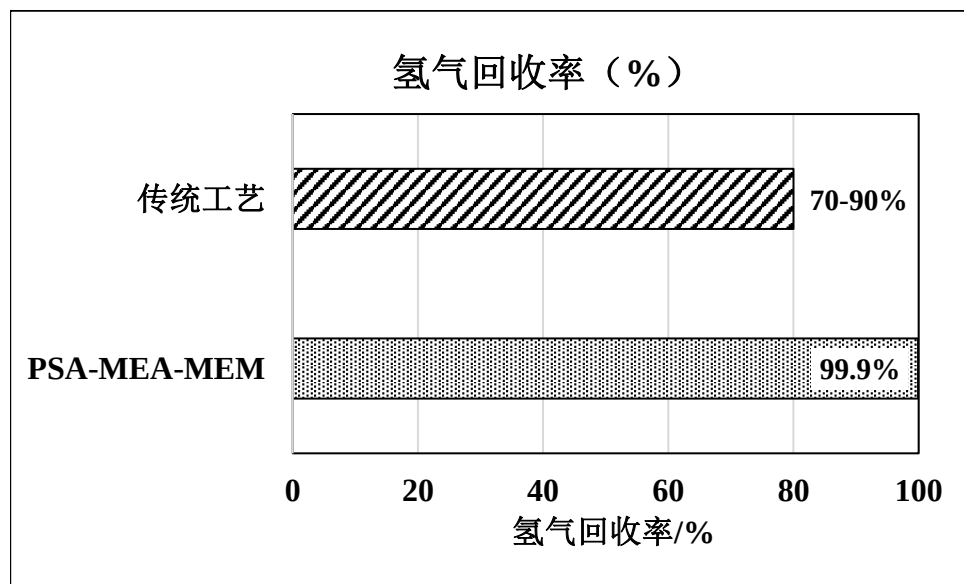


图5 两种工艺氢气回收率对比

Fig.5 Comparison of hydrogen recovery rate between the two processes

2.4.3 碳减排潜力分析 为评估不同变换气净化路线在相同产品产出条件下的碳资源利用差异,基于物料衡算对本文方法相较于传统工艺的碳减排潜力进行分析。碳减排潜力定义为满足相同尿素产量条件下,两种工艺路线所需变换气中 CO_2 输入量的差值。本研究以年产尿素20.57万吨为基准,传统方法氢气回收率按85%进行计算,结果表明,在相同产量条件下,传统工艺所需变换气流量为2305.58kmol/h,本文方法为1959.74kmol/h,两者相差345.84kmol/h。将该差值折算为 CO_2 输入,可得到碳减排潜力为79.68kmol/h,折合年碳减排量约28047吨。此外,传统工艺中甲烷化单元生成的 CH_4 直接排放,最终以 CO_2 形式进入环境,增加碳排放负担。而本文方法实现了 CH_4 的回收利用,从而降低碳排放强度并提高整体资源利用率。

3 结果与讨论

本研究针对多组分工业气体组合分离过程,分别构建了PSA提氢、MEA捕集 CO_2 及MEM单元的代理模型,并结合尿素生产过程进行了系统分析,主要结论如下:

(1)所建立的各分离单元代理模型均具有较高预测精度,其决定系数(R^2)均大于0.96,表明代理模型能够较准确表征分离过程。在此基础上,代理模型可用于分离性能的快速预测,并实现操作参数的高效优化。

(2)基于代理模型得到的最优操作参数构建PSA-MEA-MEM组合分离流程用于处理变换气,可实现 H_2 、 CO_2 与 CH_4 的高效回收,并满足尿素生产原料需求,在该条件下年产20.57万吨尿素。与传统尿素生产过程中变换气净化工艺相比,本方法在设备投资略低的前提下,实现氢气回收率接近100%, CO_2 回收率可达92.70%, CH_4 回收率提升至92.43%,有效降低了原料气消耗;并可实现年碳减排约28047吨,减排效果显著。

下角标

ad——吸附

per——渗透

符号说明

A ——膜面积, m^2 REC——回收率

b ——偏置向量 T ——时间, s

F ——气体流量 W ——权重矩阵

f ——代理模型映射函数 X ——输入操作参数向量

h ——神经网络隐藏层输出向量 x ——操作变量

k ——分离过程标识, $k \in \text{PSA}, \text{MEA}, \text{MEM}$ Y ——输出性能指标向量

MSE——均方误差 y ——浓度

P ——压力, kPa η ——捕集率

PUR——纯度 θ ——神经网络待训练参数集合

R^2 ——相关系数 h ——神经网络隐藏层输出向量

R_{PF} ——吹扫比 σ ——非线性激活函数

参考文献

- [1] IEA. World energy outlook 2022 [R/OL]. Paris: IEA, 2022[2023-08-26]. <https://www.iea.org/reports/world-energy-outlook-2022>.
- [2] 孙书桩, 郭亚飞, 赵传文, 等. 二氧化碳捕集与利用一体化技术研究进展[J]. 洁净煤技术, 2025, **31**(6): 53-107.
Sun S Z, Guo Y F, Zhao C W, et al. Recent progress on integrated carbon dioxide capture and utilization technology[J]. Clean Coal Technology, 2025, **31**(6): 53-107.
- [3] Wang M, Lawal A, Stephenson P, et al. Post-combustion CO₂ capture with chemical absorption: a state-of-the-art review[J]. Chemical Engineering Research and Design, 2011, **89**(9): 1609-1624.
- [4] 孙岳鹏, 张乾, 闫飞飞, 等. 煤气化渣中残炭对其制备橡胶补强填料性能的影响[J]. 化工进展, 2026, **45**(4): 2453-2461.
Sun Y P, Zhang Q, Yan F F, et al. Effect of carbon residue in coal gasification slag on the properties of rubber reinforcing filler prepared by coal gasification slag[J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2026, **45**(4): 2453-2461.
- [5] Motta I L, Marchesan A N, Maciel Filho R, et al. Syngas cleaning and conditioning in biomass gasification plants: a review of technologies, bibliometric trends, and future directions[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2025, **154**: 150234.
- [6] Du Z M, Liu C M, Zhai J X, et al. A review of hydrogen purification technologies for fuel cell vehicles[J]. Catalysts, 2021, **11**(3): 393.
- [7] Vega F, Baena-Moreno F M, Gallego Fernández L M, et al. Current status of CO₂ chemical absorption research applied to CCS: Towards full deployment at industrial scale[J]. Applied Energy, 2020, **260**: 114313.
- [8] Bernardo P, Drioli E, Golemme G. Membrane gas separation: a review/state of the art[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2009, **48**(10): 4638-4663.
- [9] Naquash A, Qyyum M A, Chaniago Y D, et al. Separation and purification of syngas-derived hydrogen: a comparative evaluation of membrane- and cryogenic-assisted approaches[J]. Chemosphere, 2023, **313**: 137420.
- [10] Shabbani H J K, Othman M R, Al-Janabi S K, et al. H₂ purification employing pressure swing adsorption process: Parametric and bibliometric review[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, **50**: 674-699.
- [11] 钮朝阳, 江南, 沈圆辉, 等. 快速变压吸附制氢工艺的模拟与分析[J]. 化工学报, 2021, **72**(2): 1036-1046.
Niu Z Y, Jiang N, Shen Y H, et al. Simulation and analysis of rapid pressure swing adsorption for hydrogen production[J]. CIESC Journal, 2021, **72**(2): 1036-1046.
- [12] Boot-Handford M E, Abanades J C, Anthony E J, et al. Carbon capture and storage update[J]. Energy & Environmental Science, 2014, **7**(1): 130-189.
- [13] Wang S P, Meng Y, Chen L, et al. Experimental study on the cryogenic distillation system for high-purity liquid nitrogen under offshore conditions[J]. Cryogenics, 2024, **141**: 103885.
- [14] Sidhikku Kandath Valappil R, Ghasem N, Al-Marzouqi M. Current and future trends in polymer membrane-based gas separation technology: a comprehensive review[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2021, **98**: 103-129.
- [15] Chiwaye N, Majozi T, et al. Superstructure-based optimization of membrane gas separation processes: a review[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2025, **64**(28): 13905-13919.
- [16] Li B J, He G H, Jiang X B, et al. Pressure swing adsorption/membrane hybrid processes for hydrogen purification with a high recovery[J]. Frontiers of Chemical Science and Engineering, 2016, **10**(2): 255-264.
- [17] Gao N H, Mao X, Nan N, et al. Hybrid membrane/adsorption-adsorption separation of hydrogen-blended natural gas at receiving terminal: Process modelling and multi-objective optimization[J]. Separation and Purification Technology, 2025, **360**: 131088.
- [18] Bradley W, Kim J, Kilwein Z, et al. Perspectives on the integration between first-principles and data-driven modeling[J]. Computers & Chemical Engineering, 2022, **166**: 107898.
- [19] Rall D, Schweidtmann A M, Kruse M, et al. Multi-scale membrane process optimization with high-fidelity ion transport models through machine learning[J]. Journal of Membrane Science, 2020, **608**: 118208.
- [20] Abdollahi F, Khosravi A, Karagöz S, et al. A systematic review of recent advances in the application of machine learning in membrane-based gas separation technologies[J]. Applied Energy, 2025, **381**: 125203.
- [21] Osman A I, Nasr M, Farghali M, et al. Machine learning for membrane design in energy production, gas separation, and water treatment: a review[J]. Environmental Chemistry Letters, 2024, **22**(2): 505-560.
- [22] Basheer I A, Hajmeer M. Artificial neural networks: fundamentals, computing, design, and application[J]. Journal of Microbiological Methods, 2000, **43**(1): 3-31.
- [23] Deringer V L, Bartók A P, Bernstein N, et al. Gaussian process regression for materials and molecules[J]. Chemical Reviews, 2021, **121**(16): 10073-10141.
- [24] Sacks J, Welch W J, Mitchell T J, et al. Design and analysis of computer experiments[J]. Statistical Science, 1989, **4**(4): 409-423.
- [25] Yang Y, Zhang Q, Feng X. An innovative gas management methodology based on PSA for efficient gas allocation and utilization in hybrid hydrogen network: Integrating process simulation, modeling, and machine learning[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, **57**: 224-239.
- [26] 蔡铨智, 李丽凤, 邓小梅, 等. 基于机器学习和高通量计算筛选金属有机框架的甲烷/乙烷/丙烷分离性能[J]. 化学学报, 2020, **78**(5): 427-436.
Cai C Z, Li L F, Deng X M, et al. Machine learning and high-throughput computational screening of metal-organic framework for separation of methane/ethane/propane[J]. Acta Chimica Sinica, 2020, **78**(5): 427-436.
- [27] Ma R, Duan W T, Zhang Q. Integrated liquid hydrogen production technology with cascade separation and waste heat& cooling energy utilization[J]. Energy, 2025, **335**: 138224.
- [28] Pedrozo H A, Zamarripa M A, Uribe-Rodríguez A, et al. Surrogate model optimization: a comparison case study with pooling problems of CO₂ point sources[J]. Computers & Chemical Engineering, 2025, **200**: 109199.
- [29] Leperi K T, Yancy-Caballero D, Snurr R Q, et al. 110th anniversary: surrogate models based on artificial neural networks to simulate and optimize pressure swing adsorption cycles for CO₂

- capture[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2019, **58**(39): 18241–18252.
- [30] Ma Y Q, Liao Y T, Su Y, et al. Comparative investigation of different CO₂ capture technologies for coal to ethylene glycol process[J]. Processes, 2021, **9**(2): 207..
- [31] Wasnik C G, Nakamura M, Machida H, et al. Design of an efficient CO₂ methanation process and techno-economic analysis with CO₂ capture from the flue gas of automotive shredder residue [J]. Chemical Engineering Journal, 2025, **507**: 160737.
- [32] Luberti M, Ahn H. Review of Polybed pressure swing adsorption for hydrogen purification[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2022, **47**(20): 10911–10933.