

УДК 544.723.23+519.633.2
DOI: 10.17277/vestnik.2023.04.pp.605-623

**ЗАДАЧИ И АЛГОРИТМЫ ПРОЕКТИРОВАНИЯ
ОПТИМАЛЬНЫХ ЦИКЛИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ И СИСТЕМ
АДСОРБЦИОННОГО РАЗДЕЛЕНИЯ ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ**

**С. И. Дворецкий¹, Д. С. Дворецкий¹, Е. И. Акулинин¹,
В. Б. Усачев², В. А. Беляев²**

*Кафедра «Технологии и оборудование пищевых и химических производств» (1),
bio-topt@yandex.ru; ФГБОУ ВО «ТГТУ», Тамбов, Россия;
АО «НИИ НПО «Луч», Протвинский филиал (2),
Московская обл., Протвино, Россия*

Ключевые слова: алгоритмы одноэтапного проектирования; концентрирование газов; критерий оптимальности; неопределенности; постановка задачи; проектирование; проектные и регламентные ограничения; разделение газовых смесей; установка короткоциклового адсорбции.

Аннотация: Показано, что традиционный подход в проектировании, основанный на применении коэффициентов запаса к оптимальным решениям, полученным в рабочей точке области неопределенности параметров проектируемой установки короткоциклового адсорбции, не гарантирует выполнение проектных и регламентных требований в изменяющихся условиях функционирования установки короткоциклового адсорбции и может привести либо к неработоспособным, либо к слишком дорогостоящим проектам. Сформулированы задачи одноэтапного проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей с «жесткими», «мягкими» (вероятностными) и смешанными ограничениями с учетом выполнения проектных и регламентных требований по чистоте продуктового газа, производительности установки короткоциклового адсорбции, ресурсосбережению гранулированного адсорбента в условиях частичной неопределенности исходных данных для проектирования. Разработаны алгоритмы решения задач одноэтапного проектирования, применимые для проектирования аппаратно-технологического оформления циклических адсорбционных процессов с позиций энерго- и ресурсосбережения, методологии создания и исследования ресурсосберегающих установок короткоциклового адсорбции для разделения и очистки газовых смесей, алгоритмического и информационного обеспечения их оптимального проектирования в условиях неопределенности исходных данных.

Обозначения

b – вектор параметров (коэффициентов) математической модели динамики сорбции;
 d – вектор конструктивных параметров установки;
 D_{int}^a – внутренний диаметр обечайки адсорбера, м;

i – номер цикла «адсорбция – десорбция»;
 $F(x_n, u, d, y, b)$ – нелинейная вектор-функция;
 $I(u, d)$ – целевая функция (критерий оптимальности);

L – высота слоя гранулированного адсорбента, м;	t_{CSS} – время наступления стационарного периодического режима функционирования установки КЦА, с;
M_{ξ} – символ математического ожидания;	\mathbf{u} – вектор режимных переменных функционирования установки, $u \in U$;
N – число опытов;	U – множество допустимых режимов функционирования установки КЦА;
P_c – величина доверительной вероятности;	τ_c – длительность цикла «адсорбция–десорбция», с;
S_1, S_2 – множества аппроксимационных и критических точек соответственно;	τ_{ads}, τ_{des} – продолжительности стадий адсорбции и десорбции соответственно, с;
x_n – нагрузка на установку КЦА по сырью;	ξ – вектор неопределенных параметров;
\mathbf{y} – вектор выходных переменных установки КЦА;	ω_j – весовые коэффициенты.
y_{li}^{out} – концентрация продуктового газа на выходе установки КЦА;	

Введение

При проектировании/расчете циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей и концентрирования продуктовых газов часто используют так называемую неопределенную («неточную») информацию о физико-химических параметрах, характеристиках исходных/«сырьевых» газовых смесей, конструктивных/геометрических показателях фрагментов аппаратурно-технологического оформления адсорбционных систем (короткоцикловых установок безнагревной адсорбции (КБА, КЦА)), внешних условиях эксплуатации промышленного адсорбента КЦА, финансовых/стоимостных данных и др. Это опосредованно оказывает заметное влияние на качество функционирования проектируемой установки КЦА, характеризуемое известными технико-экономическими показателями (степенью извлечения (концентрирования), себестоимостью концентрирования продуктового газа, приведенными затратами на создание и эксплуатацию установки, прибылью от ее эксплуатации и др.). При этом состав, температура и давление подлежащей разделению газовой смеси могут изменяться случайным образом в некоторых диапазонах в ходе эксплуатации установки КЦА. Математическая модель динамики сорбции включает приближенные (неточные) значения кинетических коэффициентов сорбции, характеристик адсорбента (свойств и размеров гранул адсорбента от партии к партии) и другие, что необходимо учитывать при постановке задачи проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей.

Нестационарность процессов в установке КЦА, а также наличие сложных взаимосвязей процессов аэродинамики, массо- и теплообмена затрудняет применение классического подхода учета неопределенностей в исходных данных, основанного на коэффициенте запаса, ввиду сложности его оценки и высокой вероятности получения неконкурентноспособных технических решений.

Задача проектирования заключается в поиске «технического образа» установки КЦА [1], то есть определения набора характеристик, обеспечивающих достижение требований технического задания: конструктивных параметров d ; режимных переменных u ; неопределенных параметров ξ ; выходных переменных y , определяющих показатели эффективности функционирования установки КЦА.

1. *Конструктивные параметры d* включают: схему установки, число адсорберов, внутренний диаметр обечайки адсорбера и высоту слоя гранулированного адсорбента, диаметр гранул адсорбента, пропускную способность запорно-регулирующей арматуры.

Схема установки КЦА содержит два и более адсорберов при различных соотношениях давлений на стадиях цикла КЦА [2] и связывающие их трубопроводы, обеспечивающие переключение газовых потоков между ними с помощью клапанов в соответствии с программой. Многоадсорберные схемы позволяют обеспечивать повышенное отношение давлений на стадиях адсорбции и десорбции по сравнению с двухадсорберными схемами и, соответственно, повышенную степень извлечения целевого компонента [3 – 5], при этом увеличиваются энергозатраты установки КЦА. В промышленности наиболее часто используются напорные схемы организации процесса газоразделения, реже – схемы с регенерацией при вакууме [6, 7].

Важной характеристикой при проектировании эффективных адсорберов является отношение высоты L к диаметру обечайки адсорбера D_{int}^a , которое чаще всего находится в диапазоне $3 \dots 10$ [5, 8 – 12]. При расчете величин L и D_{int}^a необходимо учитывать, что уменьшение диаметра гранул адсорбента приводит к росту аэродинамического сопротивления слоя, но позволяет при этом обеспечивать высокую скорость протекания процесса массопереноса преимущественно во внешнедиффузионной области [3]. Увеличение диаметра гранул приводит к лимитированию процесса газоразделения медленной внутренней диффузией [8, 13].

Пропускная способность запорно-регулирующей арматуры должна обеспечивать возможность плавного открытия/закрытия для исключения воздействия знакопеременных нагрузок (резких перепадов давления) на слой адсорбента в процессе адсорбции/десорбции и на промежуточных стадиях и предотвращения быстрого разрушения гранул и пыления [14 – 16].

2. *К режимным переменным* относятся: длительность цикла, соотношение давлений на стадиях адсорбции и десорбции; температура и давление входящей газовой смеси; количество продуктовой смеси, отбираемой на регенерацию адсорбента.

Длительность цикла установки КЦА определяется в первую очередь длительностью стадии адсорбции, продолжительность которой в цикле КЦА устанавливается временем защитного действия слоя адсорбента (не наблюдается «проскок» нецелевых компонентов на выходе из адсорбера) при данных температуре и давлении входящей газовой смеси [1]. Длительность стадии десорбции определяется величиной допустимой остаточной концентрации десорбируемых нецелевых компонентов в выходящем из адсорбера потоке. Увеличение соотношения давлений на стадиях адсорбции и десорбции приводит к повышению длительности промежуточных стадий для обеспечения согласованной работы адсорберов установки в цикле и исключения аэродинамических ударов при резкой смене стадий.

Увеличение отношения количества газа, отбираемого на регенерацию адсорбента, к входящему потоку приводит к снижению степени извлечения [1]. Для повышения степени извлечения целевого продукта применяются многоадсорберные установки КЦА, обеспечивающие возможность использования части продуктового газа, находящегося в адсорберах по достижению времени защитного действия для повышения давления и промывки в адсорберах, реализующих другие этапы цикла КЦА [17].

3. *К неопределенным параметрам* ξ относятся: состав газовой смеси, значения кинетических коэффициентов, характеристики адсорбентов.

Состав газовой смеси, поступающей в установку КЦА, может колебаться в некотором диапазоне, определяемом нестабильностью параметров процесса на предыдущих стадиях (например, при реализации многостадийной технологии парового риформинга метана [11, 18, 19]) или внешних условий (например, при разделении атмосферного воздуха в зависимости от места размещения установ-

ки [20, 21]). Обеспечить поддержание стабильного состава на входе в установку КЦА в этих случаях удастся только в определенных диапазонах.

Эффективность процесса массопереноса в адсорбере установки КЦА определяется адсорбционной емкостью (зависит от давления, температуры, концентрации нецелевых компонентов) и кинетикой сорбции, которая может протекать во внешне-, внутри- и смешанно-диффузионных областях (зависит от размеров гранул адсорбента, скорости газового потока). В условиях нестационарного процесса сорбции в установках КЦА, когда давление, температура и расход газового потока изменяются по высоте слоя адсорбента и во времени, значения кинетических коэффициентов могут существенно отличаться в разных точках слоя адсорбента и в разные моменты времени [22, 23].

Характеристики конкретного адсорбента могут быть известны только с некоторой точностью (в некотором диапазоне), что определяется наличием статистических данных. Характеристики реальных промышленных адсорбентов могут значительно отличаться в худшую сторону [24, 25]. Изменение (уменьшение) величины адсорбционной емкости адсорбента может приводить к тому, что технологические и экономические показатели качества функционирования установки КЦА (по концентрации продукта, производительности установкам и др.) могут не соответствовать заданным на этапе проектирования требованиям.

4. *Выходные переменные* y , определяющие показатели эффективности функционирования установки КЦА, – степень извлечения целевого продукта, концентрации компонентов продуктового потока на выходе установки и производительность установки.

Цель работы – учет неопределенностей в постановке задачи проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей при выполнении проектных и регламентных требований по чистоте продуктового газа, производительности установки, ресурсосбережению гранулированного адсорбента, а также разработка подходов к решению и алгоритма решения задачи оптимального проектирования в условиях неопределенности исходной информации.

Постановка задачи проектирования оптимальных циклических адсорбционных процессов разделения газовых смесей в условиях неопределенности

Типовая задача оптимального проектирования содержит целевую функцию (критерий оптимальности) $I(u, d) = \varphi(x_n, u, d, y)$, где в качестве x_n выступает объемный расход газовой смеси, подлежащей разделению; связи – систему дифференциальных уравнений с частными и обыкновенными производными математической модели (ММ) динамики сорбции (с соответствующими начальными и граничными условиями) [14, 26], которую формально обозначим $F(x_n, u, d, y, b) = 0$; проектные и регламентные ограничения $g_\lambda(x_n, u, d, y) \leq 0$, $\lambda = 1, 2, 3, \dots$, а также, собственно, математическую постановку задачи оптимального проектирования.

Критерий оптимальности $I(u, d) = \varphi(x_n, u, d, y(t_{CSS}))$ и функции $g_\lambda(x_n, u, d, y(t_{CSS}))$, $\lambda = 1, 2, 3, \dots$, ограничений задачи рассчитываются в момент времени t_{CSS} , контролируемого по условию $\left| y_{1,i}^{out}(\tau_{ads}) - y_{1,i-1}^{out}(\tau_{ads}) \right| \leq e$, e – малое положительное число, $e = 10^{-3}$; время t_{CSS} рассчитывали по формуле $t_{CSS} = i \tau_c$, где i^* – номер цикла, при котором выполняется условие $\left| y_{1,i}^{out}(\tau_{ads}) - y_{1,i-1}^{out}(\tau_{ads}) \right| \leq e$;

$\tau_c = \tau_{ads} + \tau_{des}$. Вычислительное время выхода установки КЦА на стационарный периодический режим, в среднем, составляет $\approx 180 \dots 210$ с.

Введем неопределенные параметры (состав, температуру и давление подлежащей разделению газовой смеси, приближенные (неточные) значения кинетических коэффициентов сорбции, случайные изменения характеристик адсорбента (свойства и размеры гранул адсорбента от партии к партии) в ходе эксплуатации установки КЦА и др.) и обозначим их через вектор ξ из ограниченного числового множества $\Xi = \{\xi_\rho : \xi_\rho^- \leq \xi_\rho \leq \xi_\rho^+, \rho = 1, n_\xi\}$.

Тогда критерий оптимальности $\varphi(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi))$, например, технологический или экономический показатель эффективности функционирования установки КЦА, будет включать данный вектор случайных неопределенных параметров ξ . В этом случае в качестве целевой функции в задаче оптимального проектирования будем использовать среднее значение показателя $\varphi(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi))$, то есть его математическое ожидание $M_\xi \{\varphi(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi))\}$. При фиксированных значениях векторов x_n , d и ξ можем рассматривать уравнения модели динамики сорбции [14, 26] как систему нелинейных дифференциальных уравнений в частных и обыкновенных производных для определения вектора y ; следовательно, y – неявная вектор-функция переменных x_n , u , d и ξ , то есть $y = y(x_n, d, u, \xi)$. Явный вид данной функции, как правило, неизвестен, поэтому для каждой совокупности значений векторов u , d , ξ и x_n выходные координаты $y(t_{CSS}, \xi)$ технологического процесса и установки КЦА будем находить численным решением системы уравнений $F(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi), b) = 0$ ММ динамики сорбции в течение времени переходного процесса $t = t_{CSS}$ до установления режима стационарного периодического процесса [13].

Будем предполагать, что во время эксплуатации установки КЦА неопределенные параметры ξ либо постоянны, либо меняются достаточно медленно. Поэтому задача проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей будет ставиться как аргументная задача оптимизации конструктивных параметров $d \in D$ и режимных переменных $u \in D$ установки КЦА, а оптимальный режим u^* , найденный решением такой оптимизационной задачи, может быть реализован с помощью системы автоматической стабилизации.

Эффективность функционирования установки КЦА может оцениваться различными критериями оптимальности (техничко-экономическими показателями) функционирования установки, например, степенью извлечения целевого продукта; себестоимостью концентрирования продуктового газа до заданной чистоты; приведенными затратами на производство продуктового газа; прибылью от эксплуатации установки КЦА за определенный период времени и др.

К конструктивным параметрам $d \in D$ установки КЦА будем относить число и тип адсорберов, внутренний диаметр обечайки адсорбера D_{int}^a и высоту слоя L гранулированного адсорбента, пропускную способность запорно-регулирующей арматуры (впускных и выпускных клапанов) установки КЦА, диаметр гранул адсорбента; к режимным переменным $u \in D$ функционирования установки – продолжительности стадий адсорбции τ_{ads} и десорбции τ_{des} , давления на этих стадиях, коэффициент соотношения потоков газовой смеси, обогащенной целевым газом и отбираемой на регенерацию адсорбента, и газовой смеси на входе в установку КЦА.

При проектировании оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей должны быть удовлетворены проектные и регламентные ограничения, связанные с обеспечением требуемого качества выпускаемой продукции (чистоты продуктового газа), заданной производительности или расхода продуктового газа с заданной чистотой на выходе установки КЦА, ресурсосбережения адсорбента (с учетом ограничения по скорости газового потока в «лобовом» слое адсорбента), безопасности функционирования и экологической безопасности производства и др. Они могут быть разделены на две группы.

Первая группа содержит «жесткие» ограничения, которые должны, безусловно, выполняться несмотря на наличие неопределенности ξ :

$$\max_{\xi \in \Xi} g_{\lambda}(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi)) \leq 0, \quad \lambda = \overline{1, p_1}.$$

К этой группе ограничений целесообразно отнести требования обеспечения чистоты извлекаемого (концентрируемого) газа, ресурсосбережения адсорбента, безопасности функционирования и экологической безопасности производства.

Вторая группа включает более «мягкие» ограничения, которые должны выполняться либо в среднем, либо с заданной доверительной вероятностью P_c :

$$\Pr\{g_{\lambda}(x_n, u, d, y(t_{CSS}, \xi)) \leq 0\} \geq P_c, \quad \lambda = \overline{p_1 + 1, p_2},$$

где обычно $P_c \in (0,85 \dots 0,95)$. К этой группе ограничений следует отнести требования обеспечения заданной производительности установки, себестоимости производимой продукции, приведенных затрат на извлечение (концентрирование) продуктового газа и т.д.

Постановка задачи оптимального проектирования в условиях частичной неопределенности исходных данных заключается в определении конструктивных параметров $d^* \in D$ и режимных переменных $u^* \in U$ функционирования установки КЦА таких, при которых обеспечивается сохранение работоспособности (выполнение проектных и регламентных ограничений) установки КЦА несмотря на случайные изменения вектора неопределенных параметров ξ в пределах априори задаваемой области неопределенности $\Xi = \{\xi_{\rho} : \xi_{\rho}^- \leq \xi_{\rho} \leq \xi_{\rho}^+\}$, $\rho = \overline{1, n_{\xi}}$.

Многие факторы влияют на постановку задачи проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей, и, прежде всего, уровень точности ММ на этапах проектирования и функционирования. Таким образом, понятно, что постановки задач оптимального проектирования зависят от полноты и точности экспериментальных данных, доступных на этапе функционирования установки КЦА.

Рассмотрим некоторые из них и основные подходы к их решению.

Одноэтапная задача оптимального проектирования

Если на этапе функционирования установки КЦА невозможно получить экспериментальную информацию, позволяющую уточнить неопределенные параметры $\xi = \{\xi_{\rho}, \rho = \overline{1, n_{\xi}}\}$, то конструктивные параметры $d \in D$ и управляющие переменные $u \in D$ равноправны в том смысле, что они не изменяются на данном этапе. В результате решения задачи одноэтапного проектирования могут быть найдены режимы $u^* \in D$ функционирования установки КЦА, которые поддерживаются с помощью системы автоматической стабилизации.

Условие работоспособности установки КЦА можно записать в аналитической форме [27]

$$\max_{\xi \in \Xi} g_j(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi)) \leq 0, \quad j = \overline{1, m},$$

которое будем использовать в постановке задачи проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей.

В качестве целевой функции выберем среднее значение $M_{\xi} \{\varphi(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\}$ показателя эффективности $\varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))$, например, себестоимости концентрирования продуктового газа до заданной чистоты.

Задача одноэтапного оптимального проектирования установки КЦА с жесткими ограничениями формулируется следующим образом: при заданной нагрузке x_n по исходной газовой смеси, подлежащей разделению, требуется найти векторы конструктивных параметров $d^* \in D$ режимных переменных $u^* \in U$ такие, что

$$I(u^*, d^*) = \min_{u, d} M_{\xi} \{\varphi(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\} \quad (1)$$

при связях [14, 26]

$$F(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0 \quad (2)$$

и ограничениях

$$\max_{\xi \in \Xi} g_{\lambda}(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi)) \leq 0, \quad \lambda = \overline{1, m}. \quad (3)$$

В задаче (1) – (3) находятся такие значения векторов $d^* \in D$ конструктивных параметров и режимных переменных $u^* \in U$ функционирования установки КЦА, при которых достигается минимум целевой функции (1) независимо от того, какие значения принимает вектор неопределенных параметров ξ из априори заданной области $\Xi = \{\xi_{\rho} : \xi_{\rho}^- \leq \xi_{\rho} \leq \xi_{\rho}^+\}$, $\rho = \overline{1, n_{\xi}}$. Если решение задачи не может быть найдено для заданной области Ξ , то необходимо поэтапно уменьшать область неопределенности Ξ , то есть уточнять исходные данные для проектирования до тех пор, пока не будет получено решение задачи одноэтапного проектирования. Таким образом формируется техническое задание на точность определения исходной информации для проектирования установки КЦА.

Для вычисления многомерного интеграла (математического ожидания) $M_{\xi} \{\varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\}$ можно рекомендовать экономичные квадратурные формулы и методы Монте-Карло [28]. В первом случае вычисление $M_{\xi} \{\varphi(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\}$ осуществляется по приближенной формуле

$$I(d, u) = M_{\xi} \{\varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\} \approx \sum_{j \in J_1} \omega_j \varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)),$$

где $\omega_j \geq 0$, $\sum_{j \in J_1} \omega_j = 1$; $\xi^j (j \in J_1)$ – аппроксимационные точки, покрывающие

область неопределенности $\Xi = \{\xi_{\rho} : \xi_{\rho}^- \leq \xi_{\rho} \leq \xi_{\rho}^+\}$, $\rho = \overline{1, n_{\xi}}$.

В соответствии с методом Монте-Карло для оценки интеграла используется следующая формула:

$$M_{\xi} \{\varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi))\} \approx \frac{1}{N} \sum_{j \in J_1} \omega_j \varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)),$$

где $\xi^j (j \in J_1)$ – последовательность N векторов ξ^j , имеющих равномерную плотность распределения вероятностей.

Итерационная процедура решения задачи (1) – (3)

Опишем один из возможных подходов к решению задачи одноэтапного проектирования с «жесткими» ограничениями. Априори введем множества аппроксимационных $S_1 = \{\xi^j : \xi^j \in \Xi, j \in J_1\}$ и критических $S_2 = \{\xi^j : \xi^j \in \Xi, j \in J_2\}$ точек, в которых могут нарушаться ограничения (3) задачи (1) – (3). Сформулируем вспомогательную задачу (А): при заданной нагрузке x_H по сырью (объемному расходу газовой смеси, подлежащей разделению) требуется определить векторы конструктивных параметров $d^* \in D$ и режимных переменных $u^* \in U$ такие, что

$$I(d^*, u^*) = \min_{d, u} \sum_{j \in J_1} \omega_j \varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)), \quad (\text{А})$$

при связях [14, 26]

$$F(x_H, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0$$

и ограничениях:

$$\begin{aligned} g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) &\leq 0, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad \xi^j \in S_1, \quad j \in J; \\ g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^l)) &\leq 0, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad \xi^l \in S_2, \quad l \in J. \end{aligned}$$

Алгоритм 1 решения задачи одноэтапного проектирования (1) – (3)

Шаг 1. Задать начальный номер итерации $v=1$, совокупность аппроксимационных точек $\xi^j, j \in J_1, \xi^j \in S_1$, начальную совокупность критических точек $S_2^{(0)} = \{\xi^l : \xi^l \in \Xi, l \in J_2^{(v-1)}\}$, начальные приближения конструктивных параметров $d^{(0)} \in D$ режимных переменных $u^{(0)} \in U$.

Шаг 2. Методом последовательного квадратичного программирования найти решение вспомогательной задачи (А) – векторы конструктивных параметров $\hat{d}^{(v)} \in D$, режимных переменных $\hat{u}^{(v)} \in U$ и значение целевой функции $I(\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)})$.

Шаг 3. В полученной точке $\{\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)}\}$ проверить выполнение «жестких» ограничений задачи; для этого необходимо решить m экстремальных задач типа

$$\max_{\xi \in \Xi} g_\lambda(\hat{u}^{(v)}, \hat{d}^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \xi), \lambda = \overline{1, m},$$

и определить m точек $\hat{\xi}^{(v), \lambda}$, доставляющих максимум функций $g_\lambda(\cdot), j = \overline{1, m}$.

Шаг 4. Образовать множество $R^{(v)}$ точек $\{\xi^{(v)}\}$, в которых нарушаются ограничения задачи одноэтапного проектирования:

$$R^{(v)} = \{\xi^{(v)} : g_\lambda(u^{(v)}, d^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \xi^{(v), \lambda}) > 0, \lambda = \overline{1, m}\}.$$

Если это множество пустое, то решение задачи получено и $d^* = \hat{d}^{(v)}$, $u^* = \hat{u}^{(v)}$, $I(u^*) = I(\hat{u}^{(v)})$, алгоритм заканчивает свою работу; в противном случае перейти к шагу 5.

Шаг 5. Сформировать новое множество критических точек $S_2^{(v)} = S_2^{(v-1)} \cup R^{(v)}$, положить $v := v+1$, задать $d^{(v)} = \hat{d}^{(v-1)}$, $u^{(v)} = \hat{u}^{(v-1)}$ и перейти к шагу 2.

Остановимся подробнее на шаге 3. Как правило, характер функций $g_\lambda(\cdot)$ известен. Используем следующий подход: предполагаем на первом этапе, что функции $g_\lambda(\cdot)$ выпуклы, тогда решение задач $\max_{\xi \in \Xi} g_\lambda(\hat{u}^{(v)}, \hat{d}^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \xi))$, $\lambda = \overline{1, m}$, находится в одной из вершин параллелепипеда $\Xi = \{\xi_\rho : \xi_\rho^- \leq \xi_\rho \leq \xi_\rho^+\}$, $\rho = \overline{1, n_\xi}$. Таким образом, в начальное множество критических точек $S_2^{(0)}$ включаются угловые точки ξ_ρ^+ , ξ_ρ^- , $\rho = \overline{1, n_\xi}$, области неопределенности $\Xi \in E^n$.

В этом случае на шаге 3 определяются векторы $\hat{\xi}^{(v), \lambda}$, в которых функции g_λ принимают наибольшие значения, из которых в число критических точек включаются те, в которых нарушаются ограничения задачи, то есть $g_\lambda(u^{(v)}, d^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \hat{\xi}^{(v), \lambda})) > 0$, $\lambda = \overline{1, m}$.

Определенным недостатком алгоритма является увеличение числа критических точек на каждой итерации и, соответственно, числа учитываемых ограничений. Однако при этом следует отметить, что количество итераций, необходимых для получения решения задачи (1) – (3) одноэтапного проектирования с использованием вышепредставленного алгоритма и приемлемой для практики точностью, как правило, не превышает 3 – 5.

Рассмотрим задачу одноэтапного проектирования с «мягкими» вероятностными ограничениями

$$I(u^*, d^*) = \min_{u, d} \sum_{j \in J_1} \omega_j \varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) \quad (4)$$

при связях [14, 26]

$$F(x_H, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0 \quad (5)$$

и ограничениях

$$\Pr\{g_\lambda(x_H, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi)) \leq 0\} \geq P_c, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad (6)$$

где $\Pr_{\xi}\{\cdot\}$ – символ вероятности; P_c – доверительная вероятность, $P_c \in (0, 85...0, 95)$.

Сформулируем вспомогательную задачу (Б): при заданной нагрузке x_H^P по сырью (объемному расходу газовой смеси, подлежащей разделению) требуется определить векторы конструктивных параметров $d^* \in D$ и режимных переменных $u^* \in D$ такие, что

$$I(u^*, d^*) = \min_{u, d} \sum_{j \in J_1} \omega_j \varphi(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) \quad (Б)$$

при связях [14, 26]

$$F(x_H, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0$$

и ограничениях:

$$g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) \leq \alpha_\lambda, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad \xi^j \in S_1, \quad j \in J_1;$$

$$g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) \leq \alpha_\lambda, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad \xi^l \in S_2, \quad j \in J_2.$$

В задаче (Б) вероятностные ограничения (6) заменяются на жесткие ограничения вида $g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi)) \leq \alpha_\lambda, \lambda = \overline{1, m}$, где $\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_m$ – скалярные отрицательные переменные ($\alpha_1 < 0, \alpha_2 < 0, \dots, \alpha_m < 0$), а далее подбираются минимальные значения $|\alpha_1^*|, |\alpha_2^*|, \dots, |\alpha_m^*|$ и соответствующие им конструктивные параметры d_{α^*} и режимные переменные u_{α^*} функционирования установки КЦА, при которых выполняются «мягкие» ограничения (6).

Алгоритм 2 решения задачи одноэтапного проектирования (4) – (6)

Шаг 1. Задать начальный номер итерации $v=1$, совокупность аппроксимационных точек $\xi^j, j \in J_1, \xi^j \in S_1$, значение доверительной вероятности $P_c \in (0,85 \dots 0,95)$ начальную совокупность критических точек $S_2^{(0)} = \{\xi^l : \xi^l \in \Xi, l \in J_2^{(v-1)}\}$, точность ε решения задачи (4) – (6), начальные приближения конструктивных параметров $d^{(0)} \in D$ и режимных переменных $u^{(0)} \in D$ функционирования установки КЦА, а также вектор вектор скалярных отрицательных переменных $\alpha^{(0)} \in \{\alpha_1^{(0)}, \alpha_2^{(0)}, \dots, \alpha_m^{(0)}\}$.

Шаг 2. Методом последовательного квадратичного программирования найти решение вспомогательной задачи (Б) – векторы конструктивных параметров $\hat{d}^{(v)} \in D$, режимных переменных $\hat{u}^{(v)} \in U$ и значение целевой функции $I(\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)})$.

Шаг 3. В точке $I(\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)})$ методом Монте-Карло вычислить вероятности выполнения ограничений (6) с использованием генератора псевдослучайных чисел $\xi_\rho, \rho = \overline{1, n_\xi}$ с равномерным законом распределения и ММ $F(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0$ [14, 26]; N принять равным $N = 100$ и вычислить λ экспериментальных значений вероятности $\text{Pr}_{\xi, \lambda}^{\text{ex}+}$ выполнения ограничений $g_\lambda(x_n, u, d, y) \leq 0, \lambda = \overline{1, m}$.

Шаг 4. Проверить выполнение ограничений (6)

$$\text{Pr}_{\xi, \lambda}^{\text{ex}+} \geq P_c, \lambda = \overline{1, m}.$$

Если ограничения выполняются с заданной доверительной вероятностью P_c , то необходимо с заданной точностью ε подобрать минимальные числа $|\alpha_\lambda^{v,*}|$, $\lambda = \overline{1, m}$, принадлежащие допустимой области Λ , а соответствующие им конструктивные параметры $d^* = d_{\alpha^{v,*}}$, режимные переменные $u^* = u_{\alpha^{v,*}}$ функционирования установки КЦА и значение целевой функции $I(d_{\alpha^{v,*}}, u_{\alpha^{v,*}})$ принять за решение задачи (4) – (6); алгоритм завершает свою работу.

В противном случае перейти к шагу 5.

Шаг 5. Если вероятностные ограничения (6) не выполняются, то есть $\alpha_\lambda^{(v-1)} \notin \Lambda, \lambda = \overline{1, m}$, то «ужесточить» ограничения во вспомогательной задаче (Б) посредством увеличения скалярных переменных $\alpha_\lambda^{(v-1)} \notin \Lambda, \lambda = \overline{1, m}$, для нару-

шенных ограничений, то есть определить новые значения скалярных отрицательных переменных $\alpha^{(v)} \in \{\alpha_1^{(v)}, \alpha_2^{(v)}, \dots, \alpha_m^{(v)}\}$ и перейти к шагу 2.

Возможна и другая постановка задачи одноэтапного проектирования оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей, в которой в качестве целевой функции используем верхнюю границу β критерия оптимальности (себестоимости) $\varphi(u, d, y(t_{CSS}, \xi))$ концентрирования продуктового газа, которую нельзя нарушать с заданной вероятностью P_c . Перепишем задачу (4) – (6) в следующей форме:

$$I(d^*, u^*) = \min_{d, u, \beta} \beta \quad (7)$$

при связях [14, 26]

$$F(x_H, u, d, y(t_{CSS}, \xi), b) = 0$$

и ограничениях:

$$\Pr_{\xi} \{g_0 = \varphi(u, d, y(t_{CSS}, \xi)) - \beta \leq 0\} \geq P_c; \quad (8)$$

$$\Pr_{\xi} \{g_{\lambda}(x_H, u, d, y(t_{CSS}, \xi)) \leq 0\} \geq P_c, \quad \lambda = \overline{1, m}, \quad (9)$$

где β – скалярная переменная. В сформулированной задаче найдем наименьшее значение β^* переменной β , для которого ограничения (8), (9) удовлетворяются с заданной вероятностью P_c .

Таким образом, решение задачи (7) – (9) позволяет определить конструктивные параметры d^* и режимные переменные u^* , при которых гарантируется, что при функционировании установки КЦА себестоимость $\varphi(u^*, d^*, y(t_{CSS}, \xi))$ концентрирования продуктового газа будет не больше чем β^* с вероятностью P_c .

Далее рассмотрим задачу одноэтапного оптимального проектирования установки КЦА со смешанными ограничениями: при заданной нагрузке x_H^P по исходной газовой смеси, подлежащей разделению, требуется найти векторы конструктивных параметров $d^* \in D$ и режимных переменных $u^* \in U$ такие, что

$$I(d^*, u^*) = \min_{d, u, \beta} \beta \quad (10)$$

при связях [14, 26]

$$F(x_H, u, d, y(t_{CSS}, \xi), b) = 0 \quad (11)$$

и ограничениях:

$$\Pr_{\xi} \{g_0 = \varphi(u, d, y(t_{CSS}, \xi)) - \beta \leq 0\} \geq P_c; \quad (12)$$

$$\Pr_{\xi} \{g_{\lambda}(x_H, u, d, y(t_{CSS}, \xi)) \leq 0\} \geq P_c, \quad \lambda = \overline{1, m}; \quad (13)$$

$$\max_{\xi \in \Xi} g_{\lambda}(\hat{u}^{(v)}, \hat{d}^{(v)}, y(t_{CSS}, \xi)) \leq 0, \quad \lambda = \overline{1, m}. \quad (14)$$

Введем обозначения

$$\overline{g_{\lambda}}(u, d, y(t_{CSS}, \xi)) = \begin{cases} g_0 = \varphi(u, d, y(t_{CSS}, \xi)) - \beta, & \lambda = 0; \\ g_{\lambda}(x_H, u, d, y(t_{CSS}, \xi)), & \lambda = \overline{1, m_1}; \end{cases}$$

вектор скалярных отрицательных переменных $(\alpha_0 < 0, \alpha_1 < 0, \dots, \alpha_{m_1} < 0)$, множество $S = \{\xi^j : j \in J\}$ накопления точек ξ с индексами $j \in J$, в которых нарушаются «жесткие» ограничения (14). Кроме того, введем вспомогательную задачу нелинейного программирования (C):

$$I(d^*, u^*) = \min_{d, u, \beta} \beta;$$

$$\overline{g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j))} \leq \alpha, \quad \lambda = \overline{1, m};$$

$$g_\lambda(u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi^j)) \leq 0, \quad j \in J, \lambda = \overline{m_1, m}.$$

Решение задачи (C) заключается в нахождении значений векторов конструктивных параметров $d^* \in D$ и режимных переменных $u^* \in U$, при которых достигается минимальное значение скалярной переменной β при условии выполнения всех ограничений задачи в заданном наборе точек $\{\xi^j\}, j \in J$.

Алгоритм 3 решения задачи одноэтапного проектирования (10) – (14)

Шаг 1. Задать начальный номер итерации $v = 0$, совокупность аппроксимационных точек $\xi^j \in S$, значение доверительной вероятности $P_c \in [0, 85 \dots 0, 95]$ начальную совокупность критических точек $S^{(0)}$, начальные приближения конструктивных параметров $d^{(0)} \in D$ и режимных переменных $u^{(0)} \in U$ функционирования установки КЦА, а также вектор отрицательных скалярных переменных $\alpha^{(0)} = \{\alpha_0^{(0)}, \alpha_1^{(0)}, \dots, \alpha_{m_1}^{(0)}\}$.

Шаг 2. Решить вспомогательную задачу (C) и получить ее решение $(\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)}, \hat{\beta}^{(v)})$ методом последовательного квадратичного программирования.

Шаг 3. В точке $\hat{d}^{(v)}, \hat{u}^{(v)}$ методом Монте-Карло вычисляем вероятности выполнения ограничений (12), (13) с использованием генератора псевдослучайных чисел $\xi_p, p = \overline{1, n_\xi}$ с равномерным законом распределения и ММ $F(x_n, u, d, y(t_{\text{CSS}}, \xi), b) = 0$ [14, 26]; число опытов N принять равным $N = 100$ и вычислить λ -экспериментальных значений вероятности $\text{Pr}_{\xi, \lambda}^{\text{ex}+}$ выполнения ограничений $g_\lambda(x_n, u, d, y) \leq 0, \lambda = \overline{1, m}$.

Шаг 4. Проверить выполнение ограничений (12), (13)

$$\text{Pr}_{\xi, \lambda}^{\text{ex}+} \geq P_c, \quad \lambda = \overline{1, m_1}.$$

Если ограничения выполняются с заданной доверительной вероятностью P_c , то перейти к шагу 6; в противном случае – к шагу 5.

Шаг 5. Если вероятностные ограничения (12), (13) не выполняются, то есть $\alpha_\lambda^{(m-1)} \notin \Lambda, \lambda = \overline{1, m_1}$, то «ужесточить» ограничения во вспомогательной задаче (C) посредством увеличения скалярных переменных $|\alpha_\lambda^{(v-1)}|, \lambda = \overline{0, m_1}$ для нарушенных ограничений, например в два раза, положить $v := v + 1$, определить новые значения скалярных переменных $\alpha^{(v)} \in \{\alpha_0^{(v)}, \alpha_1^{(v)}, \dots, \alpha_{m_1}^{(v)}\}$ и перейти к шагу 2.

Шаг 6. Проверить выполнение «жестких» ограничений задачи. Для этого необходимо решить $(m - m_1)$ экстремальных задач типа

$$\max_{\xi \in \Xi} g_{\lambda}(\hat{u}^{(v)}, \hat{d}^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \xi), \lambda = \overline{m, m_1}),$$

и определить $(m - m_1)$ точек $\hat{\xi}^{(v), \lambda}$, доставляющих максимум $g_{\lambda}(\cdot), j = \overline{1, m}$.

Шаг 7. Образовать множество $R^{(v)}$ точек $\{\xi^{(v)}\}$, в которых нарушаются ограничения задачи оптимизации

$$R^{(v)} = \left\{ \left\{ \xi^{(v)} \right\}; g_{\lambda}(u^{(v)}, d^{(v)}, y(t_{\text{CSS}}, \hat{\xi}^{(v), \lambda})) > 0, \lambda = \overline{m, m_1} \right\}.$$

Если это множество пустое, то решение задачи получено и $d^* = \hat{d}^{(v)}$, $u^* = \hat{u}^{(v)}$, $I(d^*, u^*) = \hat{\beta}^{(v)}$, алгоритм заканчивает свою работу; в противном случае перейти к шагу 8.

Шаг 8. Сформировать новое множество критических точек $S_2^{(v)} = S_2^{(v-1)} \cup R^{(v)}$, положить $v := v + 1$, $\alpha^{(v)} \in \{\alpha_0^{(v-1)}, \alpha_1^{(v-1)}, \dots, \alpha_{m_1}^{(v-1)}\}$ и перейти к шагу 2.

Дадим некоторые пояснения к алгоритму.

При использовании дополнительной переменной β проводим масштабирование поисковых переменных, чтобы диапазоны их изменения были примерно одинаковы.

Шаги 3, 4 алгоритма 3 выполняем аналогично шагам 3, 5 алгоритма 2, а шаги 6 – 8 алгоритма 3 – аналогично шагам 3 – 5 алгоритма 1.

В результате применения разработанных алгоритмов решения задачи одноэтапного оптимального проектирования в условиях интервальной неопределенности исходных данных выполнено проектирование ресурсосберегающих промышленных установок КЦА разделения газовых смесей и концентрирования важнейших газов – кислорода, азота и водорода, широко применяемых в различных отраслях промышленности и социальной сферы. Согласно статистическим данным, общее потребление кислорода, азота и водорода удваивается каждые 15 лет.

Использование новейших достижений в конструкции КЦА позволяет реализовать «скоростной» короткоциклового процесс безнагревной адсорбции при разделении газовой смеси и достижении высокой степени чистоты продуктового газа (для водорода – 99,99 об.%, кислорода – 95 об.% и выше, азота – 99,99 об.%), обеспечить регулируемую скорость цикла, минимальное время вывода установки КЦА на рабочий (стационарный периодический) режим, низкие расходные нормы газовой смеси на единицу продуктового газа, что позволяет снизить затраты на электроэнергию компрессорного оборудования. Установки КЦА автономны, мобильны, надежны в эксплуатации и являются наиболее прибыльными для потребителей, которые используют продукты разделения газовых смесей неравномерно во времени [13].

Заключение

Предложен новый подход к учету неопределенности в исходной информации при проектировании оптимальных циклических процессов и систем адсорбционного разделения газовых смесей, приводящий к задачам одноэтапного проектирования оптимальных установок КЦА в виде постановок задач стохастической оптимизации, учитывающих неопределенность как в целевой функции проектирования (критерии оптимальности), так и в ограничениях («жестких», «мягких» и смешанных) задачи проектирования.

Разработаны инженерные алгоритмы решения задач одноэтапного проектирования с «жесткими», «мягкими» и смешанными ограничениями, позволяющие определить оптимальные значения векторов конструктивных параметров и режимных переменных функционирования установки КЦА, целевой функции проектирования (себестоимости концентрирования продуктового газа, приведенных затрат на производство продуктового газа, прибыли от эксплуатации установки КЦА и др.) независимо от случайных изменений неопределенных параметров (состава, температуры и давления подлежащей разделению газовой смеси, значений кинетических коэффициентов сорбции, характеристик адсорбента и др.) в априори заданной области. Они вполне применимы для разработки более совершенного аппаратно-технологического оформления циклических адсорбционных процессов с позиций энерго- и ресурсосбережения, методологии создания и исследования ресурсосберегающих установок КЦА для разделения и очистки газовых смесей, алгоритмического и информационного обеспечения их оптимального проектирования в условиях неопределенности исходных данных.

Список литературы

1. Nikolic, D. An Optimization Framework of Multibed Pressure Swing Adsorption Systems / D. Nikolic, M. C. Georgiadis, E. S. Kikkinides // Computer Aided Chemical Process Engineering. – 2008. – Vol. 25. – P. 265. doi:10.1016/S1570-7946(08)80049-1
2. Suzuki, M. Adsorption Engineering / M. Suzuki. – Tokyo : Kodansha, 1990. – 274 p.
3. Ruthven, D. M. Pressure Swing Adsorption / D. M. Ruthven, S. Farooq, K. S. Knaebel. – New York, 1993. – 189 p.
4. Do, D. D. Adsorption Analysis: Equilibria and Kinetics / D. D. Do. – London : Imperial College Press, 1998. – 892 p.
5. Two-Stage PSA/VSA to Produce H₂ with CO₂ Capture Via Steam Methane Reforming (SMR) / W. Shi, H. Yang, Y. Shen [et al.] // International Journal of Hydrogen Energy. – 2018. – Vol. 43, No. 41. – P. 19057 – 19074. doi: 10.1016/j.ijhydene.2018.08.077
6. Effects of the Residence Time in Four-Bed Pressure Swing Adsorption Process / S.-I. Yang, J.-Y. Park, D.-K. Choi., S.-H. Kim // Separation Science and Technology. – 2009. – Vol. 44, No. 5. – P. 1023 – 1044. doi: 10.1080/01496390902729122
7. Hydrogen Separation by Multi-Bed Pressure Swing Adsorption of Synthesis Gas / S.-I. Yang, D.-Y. Choi, S.-C. Jang [et al.] // Adsorption. – 2008. – Vol. 14, No. 4. – P. 583 – 590. doi: 10.1007/s10450-008-9133-x
8. Numerical Analysis of VPSA Technology Retrofitted to Steam Reforming Hydrogen Plants to Capture CO₂ and Produce Blue H₂ / M. Luberti, A. Brown, M. Balsamo, M. Capocelli // Energies. – 2022. – Vol. 15, No. 3. – P. 1091. doi: 10.3390/en15031091
9. Carbon Dioxide Capture and Hydrogen Purification from Synthesis Gas by Pressure Swing Adsorption / C.-T. Chou, F.-H. Chen, Y.-J. Huang, H.-S. Yang // 11th International Conference on Chemical and Process Engineering. – 2013. – Vol. 32. – P. 1855 – 1860. doi:10.3303/CET1332310
10. Two-Stage VSA/PSA for Capturing Carbon Dioxide (CO₂) and Producing Hydrogen (H₂) from Steam-Methane Reforming Gas / B. Liu, X. Yu, W. Shi [et al.] // International Journal of Hydrogen Energy. – 2020. – Vol. 45, No. 46. – P. 24870 – 24882. doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.06.264
11. Parallel and Series Multi-Bed Pressure Swing Adsorption Processes for H₂ Recovery from a Lean Hydrogen Mixture / Y. Park, J. Kang, D. Moon [et al.] //

Chemical Engineering Journal. – 2021. – Vol. 408. – P. 127299. doi: 10.1016/j.cej.2020.127299

12. Recovery of Hydrogen and Carbon Dioxide from Hydrogen PSA Tail Gas by Vacuum Swing Adsorption / S. Divekar, A. Arya, A. Hanif [et al.] // Separation and Purification Technology. – 2021. – Vol. 254. – P. 117113. doi: 10.1016/j.seppur.2020.117113

13. Akulinin, E. The Optimal Design of Pressure Swing Adsorption Process of Air Oxygen Enrichment under Uncertainty / E. Akulinin, O. Golubyatnikov, D. Dvoretzky, S. Dvoretzky // Bulletin of the South Ural State University. Ser. Mathematical Modelling, Programming & Computer Software (Bulletin SUSU MMCS). – 2020. – Vol. 13, No. 2. – P. 5 – 16. doi: 10.14529/mmp200201

14. Моделирование и оптимизация циклических адсорбционных процессов обогащения газовых смесей водородом / А. А. Ишин, С. А. Скворцов, В. Г. Матвейкин, Д. С. Дворецкий, С. И. Дворецкий // Теоретические основы химической технологии. – 2019. – Т. 53, № 5. – С. 559 – 571. doi: 10.1134/S0040357119040043

15. Yang, J. Adsorption Dynamics of a Layered Bed PSA for H₂ Recovery from Coke Oven Gas / J. Yang, C.-H. Lee // AIChE Journal. – 1998. – Vol. 44, No. 6. – P. 1325 – 1334. doi: 10.1002/aic.690440610

16. Multi-Bed Vacuum Pressure Swing Adsorption for Carbon Dioxide Capture from Flue Gas / Z. Liu, C. A. Grande, P. Li [et al.] // Separation and Purification Technology. – 2011. – Vol. 81, No. 3. – P. 307 – 317. doi: 10.1016/j.seppur.2011.07.037

17. Современные тенденции по уменьшению энергозатрат кислороддобывающих установок короткоциклового безнагревной адсорбции / Е. И. Акулинин, Д. С. Дворецкий, С. И. Симаненков, А. А. Ермаков // Вестник Тамбовского государственного технического университета. – 2008. – Т. 14, № 3. – С. 597 – 601.

18. Sircar, S. Purification of Hydrogen by Pressure Swing Adsorption / S. Sircar, T. C. Golden // Separation Science and Technology. – 2000. – Vol. 35(5), No. 5. – P. 667 – 687. doi: 10.1081/SS-100100183

19. Optimization of Pressure Swing Adsorption for Hydrogen Purification Based on Box-Behnken Design Method / N. Zhang, P. Bénard, R. Chahine [et al.] // International Journal of Hydrogen Energy. – 2021. – Vol. 46, No. 7. – P. 5403 – 5417. doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.11.045

20. Оптимизация режимов циклических адсорбционных процессов и установок разделения газовых смесей / Е. И. Акулинин, Д. С. Дворецкий, С. И. Дворецкий // Вестник Тамбовского государственного технического университета. – 2021. – Т. 27, № 4. – С. 599 – 614. doi: 10.17277/vestnik.2021.04.pp.599-614

21. Акулинин, Е. И. Исследование процессов тепло- и массообмена при обогащении воздуха кислородом методом короткоциклового адсорбции / Е. И. Акулинин, Д. С. Дворецкий, С. И. Дворецкий // Вестник Тамбовского государственного технического университета. – 2016. – Т. 22, № 3. – С. 411 – 419. doi: 10.17277/vestnik.2016.03.pp.411-419

22. Акулинин, Е. И. Экспериментальное исследование кинетики циклического адсорбционного процесса обогащения воздуха кислородом / Е. И. Акулинин, Д. С. Дворецкий, С. И. Дворецкий // Вестник Тамбовского государственного технического университета. – 2021. – Т. 27, № 3. – С. 387 – 400. doi: 10.17277/vestnik.2021.03.pp.387-400

23. Рудобашта, С. П. Определение коэффициентов массоотдачи и массопроводности из кривых кинетики / С. П. Рудобашта, М. К. Кошелева // Известия вузов. Технология текстильной промышленности. – 2015. – № 6 (360). – С. 175 – 180.

24. Адсорбция азота, кислорода и аргона на полиорганосилоксанах с различными функциональными группами / Ю. А. Решетникова, А. О. Дудолодав,

М. Б. Алехина, А. Г. Иванов // Сорбционные и хроматографические процессы. – 2021. – Т. 21, № 1. – С. 33 – 41. doi: 10.17308/sorpchrom.2021.21/3217

25. Адсорбция макрокомпонентов воздуха на нанокompозитах на основе альгината кальция, модифицированных углеродными нанотрубками / Л. Х. Хаджи-Мурадова, А. О. Дудолодов, М. Б. Алехина, П. Ю. Цыганков // Успехи в химии и химической технологии. – 2020. – Т. 34, № 4. – С. 103 – 105.

26. Modelling and Analysis of Dynamics of Pressure Swing Adsorption Process for Synthesis Gas Separation and Hydrogen Production / E. I. Akulinin, O. O. Golubyatnikov, A. N. Labutin, D. S. Dvoretzky, S. I. Dvoretzky // Вестник Тамбовского государственного технического университета. – 2020. – Т. 26, № 3. – С. 342 – 356. doi: 10.17277/vestnik.2020.03.pp.342-356

27. Островский, Г.М. Технические системы в условиях неопределенности: анализ гибкости и оптимизации / Г. М. Островский, Ю. М. Волин. – М. : БИНОМ ; Лаборатория знаний, 2008. – 319с.

28. Математическое моделирование технологических процессов : учеб. пособие / В. С. Балакирев, С. И. Дворецкий, Н. Н. Аниськина, В. Н. Акишин. – 2-е изд., перераб. – Ярославль : Издательский дом Н. П. Пастухова, 2020. – 351с.

Tasks and Algorithms for Designing Optimal Cyclic Processes and Systems for Adsorption Separation of Gas Mixtures

S. I. Dvoretzky¹, D. S. Dvoretzky¹, E. I. Akulinin¹, V. B. Usachev², V. A. Belyaev²

*Department of Technologies and Equipment for Food and Chemical Industries (1),
bio-topt@yandex.ru; TSTU, Tambov, Russia;
JSC Research Institute NPO "Luch", Protvinsky branch (2),
Moscow region, Protvino, Russia*

Keywords: one-stage design algorithms; concentration of gases; optimality criterion; uncertainty; formulation of the problem; design; design and regulatory restrictions; separation of gas mixtures; pressure cycle adsorption unit.

Abstract: The traditional approach to design based on the application of safety factors to optimal solutions obtained at the operating point of the uncertainty region of the parameters of the designed pressure-cycle adsorption installation does not guarantee the fulfillment of design and regulatory requirements in the changing operating conditions of the pressure-cycle adsorption installation and can lead to either unfeasible or costly projects. The problems of one-stage design of optimal cyclic processes and adsorption separation systems of gas mixtures with "hard", "soft" (probabilistic) and mixed restrictions are formulated, taking into account the fulfillment of design and regulatory requirements for the purity of the product gas, the productivity of the pressure swing adsorption unit, the resource saving of granular adsorbent under conditions of partial uncertainty of initial data for design. Algorithms have been developed for solving one-stage design problems, applicable for the design of hardware and process design of cyclic adsorption processes from the standpoint of energy and resource saving, methodology for the creation and research of resource-saving short-cycle adsorption installations for the separation and purification of gas mixtures, algorithmic and information support for their optimal design under conditions of initial uncertainty data.

References

1. Nikolic D., Georgiadis M.C., Kikkinides E.S. An optimization framework of multibed pressure swing adsorption systems, *Computer Aided Chemical Process Engineering*, 2008, vol. 25, pp. 265, doi:10.1016/S1570-7946(08)80049-1
2. Suzuki M. *Adsorption Engineering*, Tokyo: Kodansha, 1990, 274 p.
3. Ruthven D.M., Farooq S., Knaebel K.S. *Pressure Swing Adsorption*, New York, 1993, 189 p.
4. Do D.D. *Adsorption Analysis: Equilibria and Kinetics*, London: Imperial College Press, 1998, 892 p.
5. Shi W., Yang H., Shen Y. [et al.]. Two-stage PSA/VSA to produce H₂ with CO₂ capture via steam methane reforming (SMR), *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, vol. 43, no. 41, pp. 19057-19074, doi: 10.1016/j.ijhydene.2018.08.077
6. Yang S.-I., Park J.-Y., Choi D.-K., Kim S.-H. Effects of the residence time in four-bed pressure swing adsorption process, *Separation Science and Technology*, 2009, vol. 44, no. 5, pp. 1023-1044, doi: 10.1080/01496390902729122
7. Yang S.-I., Choi D.-Y., Jang S.-C. [et al.]. Hydrogen separation by multi-bed pressure swing adsorption of synthesis gas, *Adsorption*, 2008, vol. 14, no. 4, pp. 583-590, doi: 10.1007/s10450-008-9133-x
8. Luberti M., Brown A., Balsamo M., Capocelli M. Numerical analysis of VPSA technology retrofitted to steam reforming hydrogen plants to Capture CO₂ and produce blue H₂, *Energies*, 2022, vol. 15, no. 3, pp. 1091, doi: 10.3390/en15031091
9. Chou C.-T., Chen F.-H., Huang Y.-J., Yang H.-S. Carbon dioxide capture and hydrogen purification from synthesis gas by pressure swing adsorption, *11th International Conference on Chemical and Process Engineering*, 2013, vol. 32, pp. 1855-1860, doi: 10.3303/CET1332310
10. Liu B., Yu X., Shi W. [et al.]. Two-stage VSA/PSA for capturing carbon dioxide (CO₂) and producing hydrogen (H₂) from steam-methane reforming gas, *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, vol. 45, no. 46, pp. 24870-24882, doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.06.264
11. Park Y., Kang J., Moon D. [et al.]. Parallel and series multi-bed pressure swing adsorption processes for H₂ recovery from a lean hydrogen mixture, *Chemical Engineering Journal*, 2021, vol. 408, pp. 127299, doi: 10.1016/j.cej.2020.127299
12. Divekar S., Arya A., Hanif A. [et al.]. Recovery of hydrogen and carbon dioxide from hydrogen PSA tail gas by vacuum swing adsorption, *Separation and Purification Technology*, 2021, vol. 254, pp. 117113, doi: 10.1016/j.seppur.2020.117113
13. Akulinin E., Golubyatnikov O., Dvoretzky D., Dvoretzky S. The optimal design of pressure swing adsorption process of air oxygen enrichment under uncertainty, *Bulletin of the South Ural State University. Ser. Mathematical Modelling, Programming & Computer Software (Bulletin SUSU MMCS)*, 2020, vol. 13, no. 2, pp. 5-16, doi: 10.14529/mmp200201
14. Ishin A.A., Skvortsov S.A., Matveykin V.G., Dvoretzkiy D.S., Dvoretzkiy S.I. [Modeling and optimization of cyclic adsorption processes of enrichment of gas mixtures with hydrogen], *Teoreticheskiye osnovy khimicheskoy tekhnologii* [Theoretical foundations of chemical technology], 2019, vol. 53, no. 5, pp. 559-571, doi: 10.1134/S0040357119040043 (In Russ., abstract in Eng.)
15. Yang J., Lee C.-H. Adsorption dynamics of a layered bed PSA for H₂ recovery from coke oven gas, *AIChE Journal*, 1998, vol. 44, no. 6, pp. 1325-1334. doi: 10.1002/aic.690440610
16. Liu Z., Grande C.A., Li P. [et al.]. Multi-bed vacuum pressure swing adsorption for carbon dioxide capture from flue gas, *Separation and Purification Technology*, 2011, vol. 81, no. 3, pp. 307-317, doi: 10.1016/j.seppur.2011.07.037
17. Akulinin Ye.I., Dvoretzkiy D.S., Simanenkov S.I., Yermakov A.A. [Modern trends in reducing energy consumption of oxygen production plants of short-cycle heatless adsorption], *Transactions of the Tambov State Technical University*, 2008, vol. 14, no. 3, pp. 597-601. (In Russ., abstract in Eng.)

18. Sircar S., Golden T.C. Purification of hydrogen by pressure swing adsorption, *Separation Science and Technology*, 2000, vol. 35(5), no. 5, pp. 667-687, doi: 10.1081/SS-100100183
19. Zhang N., Bénard P., Chahine R. [et al.]. Optimization of pressure swing adsorption for hydrogen purification based on box-behnken design method, *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, vol. 46, no. 7, pp. 5403-5417, doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.11.045
20. Akulinin Ye.I., Dvoretzkiy D.S., Dvoretzkiy S.I. [Optimization of modes of cyclic adsorption processes and installations for separating gas mixtures], *Transactions of the Tambov State Technical University*, 2021, vol. 27, no. 4, pp. 599-614, doi: 10.17277/vestnik.2021.04. pp. 599-614 (In Russ., abstract in Eng.)
21. Akulinin Ye.I., Dvoretzkiy D.S., Dvoretzkiy S.I. [Study of heat and mass transfer processes during air enrichment with oxygen using the short-cycle adsorption method], *Transactions of the Tambov State Technical University*, 2016, vol. 22, no. 3, pp. 411-419, doi: 10.17277/vestnik.2016.03.pp.411-419 (In Russ., abstract in Eng.)
22. Akulinin Ye.I., Dvoretzkiy D.S., Dvoretzkiy S.I. [Experimental study of the kinetics of the cyclic adsorption process of oxygen enrichment of air], *Transactions of the Tambov State Technical University*, 2021, vol. 27, no. 3, pp. 387-400, doi: 10.17277/vestnik.2021.03.pp.387-400 (In Russ., abstract in Eng.)
23. Rudobashta S.P., Kosheleva M.K. [Determination of mass transfer and mass conductivity coefficients from kinetic curves], *Izvestiya vuzov. Tekhnologiya tekstil'noy promyshlennosti* [News of universities. Textile industry technology], 2015, no. 6 (360), pp. 175-180. (In Russ., abstract in Eng.)
24. Reshetnikova Yu.A., Dudoladov A.O., Alekhina M.B., Ivanov A.G. [Adsorption of nitrogen, oxygen and argon on polyorganosiloxanes with various functional groups], *Sorbtsionnyye i khromatograficheskiye protsessy* [Sorption and chromatographic processes], 2021, vol. 21, no. 1, pp. 33-41, doi: 10.17308/sorpchrom.2021.21/3217(In Russ., abstract in Eng.)
25. Khadzhi-Muradova L.Kh., Dudoladov A.O., Alekhina M.B., Tsygankov P.Yu. [Adsorption of air macrocomponents on nanocomposites based on calcium alginate modified with carbon nanotubes], *Uspekhi v khimii i khimicheskoy tekhnologii* [Advances in chemistry and chemical technology], 2020, vol. 34, no. 4, pp. 103-105. (In Russ., abstract in Eng.)
26. Akulinin E.I., Golubyatnikov O.O., Labutin A.N., Dvoretzkiy D.S., Dvoretzkiy S.I. Modelling and analysis of dynamics of pressure swing adsorption process for synthesis gas separation and hydrogen production, *Transactions of the Tambov State Technical University*, 2020, vol. 26, no. 3, pp. 342-356, doi: 10.17277/vestnik.2020.03.pp.342-356
27. Ostrovskiy G.M., Volin Yu.M. *Tekhnicheskiye sistemy v usloviyakh neopredelennosti: analiz gibkosti i optimizatsii* [Technical systems under conditions of uncertainty: analysis of flexibility and optimization], Moscow: BINOM; Laboratoriya znaniy, 2008, 319 p. (In Russ.)
28. Balakirev V.S., Dvoretzkiy S.I., Anis'kina N.N., Akishin V.N. *Matematicheskoye modelirovaniye tekhnologicheskikh protsessov: ucheb. posobiye* [Mathematical modeling of technological processes: textbook. allowance], 2nd ed., revised., Yaroslavl': Izdatel'skiy dom N. P. Pastukhova, 2020, 351 p. (In Russ.)

Entwurfsprobleme und Algorithmen von optimalen zyklischen Prozessen und Systeme der Adsorptionstrennung von Gasgemischen

Zusammenfassung: Es ist gezeigt, dass der traditionelle Entwurfsansatz, der auf der Anwendung von Sicherheitsfaktoren auf optimale Lösungen basiert, die am Betriebspunkt des Unsicherheitsbereichs der Parameter der entworfenen Kurzzyklus-

Adsorptionsanlage erhalten werden, die Umsetzung des Entwurfs nicht garantiert und regulatorische Anforderungen in den sich ändernden Betriebsbedingungen der Druckwechseladsorptionsanlage dazu führen können, dass Projekte entweder nicht betriebsfähig oder übermäßig teuer sind. Die Probleme der einstufigen Gestaltung optimaler zyklischer Prozesse und Adsorptionstrennsysteme von Gasgemischen mit „harten“, „weichen“ (probabilistischen) und gemischten Restriktionen sind unter Berücksichtigung der Erfüllung gestalterischer und regulatorischer Anforderungen an die Reinheit der Gasgemische von Produktgas, die Produktivität der Kurzzyklus-Adsorptionseinheit, die Ressourceneinsparung des körnigen Adsorptionsmittels unter Bedingungen teilweiser Unsicherheit der Ausgangsdaten für das Design formuliert. Es sind Algorithmen zur Lösung einstufiger Entwurfsprobleme entwickelt, die für den Entwurf von Hardware und den technologischen Entwurf von zyklischen Adsorptionsprozessen unter dem Gesichtspunkt der Energie- und Ressourceneinsparung anwendbar sind, sowie eine Methodik für die Erstellung und Erforschung ressourcenschonender Kurzzyklus-Adsorptionsanlagen für die Trennung und Reinigung von Gasgemischen, algorithmische und informationelle Unterstützung für deren optimale Gestaltung unter den Bedingungen der Unsicherheit der Ausgangsdaten.

Tâches et algorithmes de la conception des processus et systèmes cycliques optimaux pour la séparation par adsorption des mélanges gazeux

Résumé: Est montré que l'approche de la conception traditionnelle basée sur l'application des coefficients de stock aux solutions optimales obtenues au point de travail de la zone d'incertitude des paramètres de l'installation d'adsorption à cycle court projetée ne garantit pas la réalisation des objectifs de la conception et les exigences réglementaires dans les conditions changeantes du fonctionnement de l'installation d'adsorption à cycle court et peut conduire soit à des projets inopérants, soit à des projets trop coûteux. Sont formulées les tâches de la conception en une seule étape des processus cycliques optimaux et des systèmes de la séparation d'adsorption des mélanges gazeux avec des contraintes «dures», «douces» (probabilistes) et mixtes en tenant compte des exigences de conception et de réglementation pour la pureté du gaz produit, la performance de l'installation d'adsorption à cycle court, la conservation des ressources de l'adsorbant granulaire dans des conditions d'incertitude partielle des données initiales pour la conception. Sont élaborés des algorithmes pour résoudre les problèmes de la conception en une seule étape, applicables à la conception de l'équipement et de la conception technologique des processus d'adsorption cycliques en termes d'économie d'énergie et de ressources, de méthodologie pour la création et la recherche d'installations d'adsorption à cycle court pour la séparation et la purification des mélanges de gaz, algorithmique et informationnelle de leur conception optimale dans des conditions d'incertitude des données initiales.

Авторы: *Дворецкий Станислав Иванович* – доктор технических наук, профессор кафедры «Технологии и оборудование пищевых и химических производств»; *Дворецкий Дмитрий Станиславович* – доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой «Технологии и оборудование пищевых и химических производств»; *Акулинин Евгений Игоревич* – доктор технических наук, доцент кафедры «Технологии и оборудование пищевых и химических производств», ФГБОУ ВО «ПГТУ», Тамбов, Россия; *Усачев Владимир Борисович* – директор; *Беляев Владимир Андреевич* – начальник отдела химических разработок; Протвинский филиал АО «НИИ НПО «Луч», Московская обл., Протвино, Россия.