

冶炼烟气制酸技术及控制研究进展

李晓理^{1,2,3}, 刘明华¹, 王康^{1,2}, 刘志强⁴, 李桂海⁵

(1. 北京工业大学信息学部, 北京 100124; 2. 计算智能与智能系统北京市重点实验室, 北京 100124;
3. 数字社区教育部工程研究中心, 北京 100124; 4. 江西铜业贵溪冶炼厂, 江西 贵溪 335499;
5. 北京瑞太智联技术有限公司, 北京 100012)

摘要: 有色金属冶炼产生的烟气对生态环境污染严重, 冶炼烟气中二氧化硫浓度高、变化范围广, 对其进行回收制酸是目前使用最为广泛的脱硫方法. 因此, 以冶炼烟气制酸为主要研究对象, 对其工艺技术和控制过程进行分析. 首先, 简要回顾了国内外冶炼烟气制酸的发展历程; 其次, 对现有的烟气脱硫方法进行综述, 重点分析了烟气制酸的工艺流程及其发展现状; 最后, 结合近年来烟气制酸系统建模、优化和控制研究现状, 分析讨论了优化控制算法应用过程中的发展前景与难点.

关键词: 烟气制酸; 脱硫技术; 有色金属冶炼; 优化控制; 控制算法; 多模型自适应控制

中图分类号: TP 13; TQ 111

文献标志码: A

文章编号: 0254-0037(2023)04-0475-10

doi: 10.11936/bjtxb2022080005

Research Progress on Technology and Control of Acid Production With Smelting Flue Gas

LI Xiaoli^{1,2,3}, LIU Minghua¹, WANG Kang^{1,2}, LIU Zhiqiang⁴, LI Guihai⁵

(1. Faculty of Information Technology, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China;
2. Beijing Key Laboratory of Computational Intelligence and Intelligent System, Beijing 100124, China;
3. Engineering Research Center of Digital Community, Ministry of Education, Beijing 100124, China;
4. Guixi Smelter, Jiangxi Copper Co., Ltd., Guixi 335499, Jiangxi, China;
5. Beijing RTlink Technology Co., Ltd., Beijing 100012, China)

Abstract: The flue gas produced by non-ferrous metal smelting seriously pollutes the ecological environment. Sulfur dioxide in the smelting flue gas has a high concentration and a wide range of variation. The recovery of sulfur dioxide to produce acid is currently the most widely used desulfurization method. Acid production with smelting flue gas was taken as the main research object, and its technology and control process were analyzed. First, the development history of acid production with smelting flue gas at home and abroad was briefly reviewed. Second, the existing flue gas desulfurization methods were reviewed, and the process of acid production with flue gas and its development status were mainly analyzed. Finally, combined with the research status of modeling, optimization, and control of the system of acid production with flue gas in recent years, the development prospects and difficulties in the process

收稿日期: 2022-08-09; 修回日期: 2022-09-01

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61873006); 北京市自然科学基金资助项目(4212040, 4204087)

作者简介: 李晓理(1971—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事人工智能理论及应用, 复杂系统建模、控制与优化和多模型自适应控制方面的研究, E-mail: lixiaolibjut@bjut.edu.cn

通信作者: 刘明华(1995—), 男, 博士研究生, 主要从事复杂系统建模、控制与优化和多模型自适应控制方面的研究, E-mail: liumh829@163.com

of optimal control algorithm application were analyzed and discussed.

Key words: acid production with flue gas; desulfurization technology; non-ferrous metal smelting; optimal control; control algorithm; multi-model adaptive control

铜、锌、铅、钴等有色金属是我国国民经济和国防工业发展的重要战略物资,同时也是制造飞机、火箭、导弹、计算机等众多装备的原材料^[1]. 因此,在我国的工业生产中,有色金属的生产已经占有举足轻重的地位. 有色金属冶炼是反映一个国家综合实力和工业发展程度的重要指标^[2]. 《德国工业 4.0》^[3]的提出及《中国制造 2025》^[4]和碳达峰碳中和实施方案^[5]的出台,对有色金属冶炼企业的绿色、可持续发展提出了更高的要求.

随着我国工业进程的不断加快,经济快速发展,各种行业对有色金属的需求量与日俱增. 然而,在自然界中,有色金属矿物多以硫化物的形式存在,因此,在其冶炼过程中会产生大量含有二氧化硫(SO₂)的烟气^[6]. 含有 SO₂的烟气直接排放到大气中,会造成空气污染、土壤酸化等一系列的环境问题. 因此,如何有效地控制烟气中的 SO₂,是一个迫切需要解决的问题. 由于冶炼烟气中 SO₂浓度高、变化范围广,目前已有一套比较成熟的烟气脱硫工艺——烟气制酸. 冶炼烟气制酸工艺是通过将烟气中 SO₂的回收,生产高浓度的硫酸.

本文首先对国内外冶炼烟气制酸工艺的发展历程进行了综述,并结合不同应用场景,对目前的烟气治理技术进行了分析. 在此基础上,对冶炼烟气制酸的工艺流程及控制过程进行了总结,最后讨论了冶炼烟气制酸系统控制过程的发展前景与困难.

1 冶炼烟气制酸工业发展过程

冶炼烟气制酸是有色金属冶炼工业衍生出的行业,旨在对有色金属冶炼过程中排放烟气中的 SO₂和热量进行回收,生产硫酸^[7]. 人类制取硫酸的历史悠久,世界上制取硫酸最早可追溯到 15 世纪下半叶. 随着科学技术的不断发展,硫酸的生产方法、工艺和设备不断改进. 目前,硫酸的质量和产量都有了很大的提高,能够满足工业发展的需求.

1.1 冶炼烟气制酸产量分析

冶炼烟气制酸系统是有色金属冶炼的附属系统. 随着有色金属冶炼行业的发展,冶炼烟气制酸行业也在不断成长,行业规模也越来越大. 根据中国硫酸工业协会提供的 2017—2020 年硫酸行业运

行情况^[8-11]和《2021 年度硫酸行业运行报告》^[12],对我国过去 5 年的硫酸产量进行了统计,并对冶炼烟气制酸占比进行了分析,如表 1 所示. 由表可知,在过去的 5 年中我国的硫酸总产量一直呈持续增长趋势,同时冶炼烟气制酸占比也在持续增加. 近年来,长三角地区各省份都在大力发展冶炼工业,冶炼产能不断提升,同时也带动了副产品硫酸产量的提高. 随着我国硫酸生产总量的持续增加,我国工业发展迅速,冶炼系统的废气处理能力也在逐步提升,资源循环型经济得到长足发展.

表 1 近 5 年硫酸产量
Table 1 Sulfuric acid production in recent five years

项目	年份				
	2017	2018	2019	2020	2021
硫酸产量/万 t	9 613	9 686	9 736	9 858	10 900
冶炼烟气制酸占比/%	35.0	36.1	38.4	39.1	40.8

1.2 冶炼烟气制酸的发展历史

硫酸作为最重要的工业原料之一,用途相当广泛,但是直到 15 世纪下半叶才首次制取得到. 当时以黑色金属铁的化合物——绿矾石(FeSO₄·7H₂O)为原料,通过对其进行加热、分解、吸收来制取硫酸^[13]. 1746 年,英国建立了第 1 个运用亚硝基法制取硫酸的工厂,标志着产品酸的制取取得了突破性的进展. 到了 1940 年,石油、化工、冶炼等行业的兴盛,对硫酸的产量和浓度提出了更高的要求,即需要发烟硫酸. 由于传统的硫酸生产工艺已经无法满足工业发展的需求,接触法制取硫酸就此诞生,并在 20 世纪初迅速发展. 接触法生产硫酸主要是通过冶炼含硫的金属化合物得到 SO₂,再经催化氧化得到三氧化硫(SO₃),SO₃与水发生反应生成硫酸^[14]. 上述即为冶炼烟气制酸的基本原理. 接触法制取硫酸过程中采用低成本、活性好的五氧化二钒作为催化剂,大大提高了生产效率. 因此,接触法制取硫酸促进了硫酸工业的迅速发展,奠定了现代硫酸生产的主流趋势.

国内最早的硫酸生产可追溯到 1874 年,天津机械局淋硝厂建立了最早的铅室法制取硫酸装置,

1876年开始投产,用于制造无烟火药,为以后的接触法制取硫酸奠定了良好的工业基础。1934年,河南巩县兵工厂分厂首次采用接触法生产硫酸。然而,由于当时的生产力水平不高,硫酸工业的基础较为薄弱,硫酸的产量较低。1949年以后,硫酸行业得到了快速发展,硫酸的技术水平和产量都得到了极大的提升。国内最早的冶炼烟气制酸业是葫芦岛锌厂引进的脱硫系统,于1944年建成,但直到1953年才投产^[15]。1949年以后,有色金属工业的迅猛发展,为冶炼烟气制酸奠定了坚实的物料基础,硫酸产量迅速提高。

1978年,我国的改革开放给冶炼烟气制酸产业注入了新的技术理念,推动了国内技术的进步,摆脱了被动的局面,使我国的冶炼烟气制酸产业达到一个新的高度^[16-17]。江西铜业贵溪冶炼厂从日本、芬兰等引进了炼铜和烟气制酸的技术和装置,其建成投产成功地缩短了国内铜冶炼技术与国际铜业之间的差距。同时,江西铜业公司建成了年产300 kt的冶炼烟气制酸设备,使国内的硫酸工业整体技术水平得到了较大的提高,并一举跻身于国际先进行列。另外,20世纪90年代初期,适用于低SO₂浓度冶炼烟气的非稳定态转化技术也被应用到了硫酸的生产中。之后,金隆铜业公司于1995年首次引进美国孟山都环境化学公司的动力波烟气净化洗涤技术和主要设备,取得了良好的经济效益。江西铜业公司、株洲冶炼集团也相继引进了这一技术,促进了我国有色金属冶炼企业的技术进步,进一步推动了我国烟气制酸工业的发展^[18]。近十几年来,国内烟气制酸技术迅速发展,烟气制酸设备规模不断扩大,技术水平不断提高。

2 冶炼烟气制酸工业技术分析

随着工业的快速发展,工业废气尤其是SO₂的排放量逐年增多。因此,针对SO₂的处理即烟气脱硫技术也在不断发展,形成了庞杂的方法、技术体系。下面首先横向比较了烟气脱硫方法,而后纵向比较了烟气制酸技术,并进行了综合分析。

2.1 烟气脱硫方法

烟气脱硫是指通过回收工业废气中的SO₂来减少其对生态环境的污染。目前,国内典型的烟气脱硫方法根据工艺过程、应用场景可分为干法脱硫、半干法脱硫、湿法脱硫以及制酸脱硫等四大类。

2.1.1 干法脱硫

干法脱硫是指脱硫吸收、产物处理过程中没有

水分参与,均在干的状态下进行的烟气脱硫技术,根据工艺可大致分为3种。

一种是将碳酸钙(CaCO₃)喷入炉膛,经高温煅烧,分解为氧化钙(CaO),再与烟气中的SO₂发生反应生成亚硫酸钙(CaSO₃),而后被氧化为硫酸钙(CaSO₄)。该反应过程的化学方程式为



另外一种是利用活性炭来实现对烟气中SO₂的物理吸附和化学吸附。在此过程中,部分SO₂被物理吸附至活性炭内部,同时,活性炭表面对SO₂有催化氧化的作用,反应生成SO₃,SO₃易溶于水而生成硫酸,形成化学吸附。

最后一种是利用电子束照射烟气,使烟气中的SO₂和氮氧化物氧化为SO₃和二氧化氮(NO₂),进一步生成硫酸和硝酸,再由氨吸收剂吸收生成硫酸铵和硝酸铵^[19]。因此,干法脱硫得到的副产品有CaSO₄、硫酸铵和硝酸铵等,这些产品没有剩余价值,只能堆积或者抛弃。

干法脱硫技术具有工艺流程简单,无废水、无污酸排放,设备腐蚀程度小等特点。净化后的烟气温度较高,有利于废气的排放和扩散。然而,这种方法的脱硫效率较低,脱硫反应速度慢,设备规模庞大,投资大,操作技术要求高。

2.1.2 半干法脱硫

半干法脱硫工艺^[20]是把CaO和水混合制成氢氧化钙(Ca(OH)₂)悬浮液,而后将该悬浮液喷洒到反应塔内,使其与SO₂发生反应,同时水分被热的烟气蒸发,最后生成固体反应物CaSO₃和CaSO₄^[21]。反应塔内的反应过程的化学方程式为

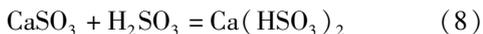
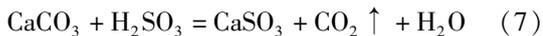


半干法脱硫过程中,副产物是CaSO₄,没有经济价值,只能抛弃。半干法烟气脱硫技术较为成熟,工艺流程简单。反应过程中高温烟气将水分蒸发,不产生废水。然而,该方法以熟石灰乳液作为吸收剂,化学反应过程中系统易发生结垢、堵塞,并且需要专用设备来制取吸收剂,投资费用较大。

2.1.3 湿法脱硫

湿法脱硫,通常是利用碱性溶液来吸收烟气中的SO₂。在工业生产中,一般都会选用石灰石浆液作为吸收溶液。石灰石破碎后经球磨机加工成

石灰石浆液,在吸收塔中与 SO_2 烟气发生反应,得到含有 CaSO_3 和亚硫酸氢钙 ($\text{Ca}(\text{HSO}_3)_2$) 的混合液,然后被空气氧化结晶,生成石膏^[22],反应过程的化学方程式为

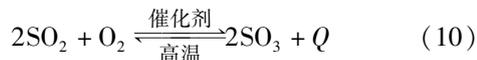


湿法脱硫的副产物是石膏,可综合利用,产生一定的经济效益.湿法脱硫技术已较为成熟,脱硫反应速度快,脱硫效率高,吸收剂利用率高.然而,这种工艺在处理过程中容易产生二次污染,存在后续废水处理问题,投资费用较高,能耗较高,系统管理操作复杂.

2.1.4 制酸脱硫

上述3种脱硫方法中,只有采用湿法脱硫得到副产品石膏,才能产生一定的经济效益,而半干法和干法脱硫所得到的产物硫酸盐和亚硫酸盐只能进行抛弃处理.上述3种工艺都是采用吸收剂对烟气中

的硫进行固定,最终得到副产品.制酸脱硫与上述3种方法的区别在于,它不需要碱性吸收剂便可以对 SO_2 进行回收,最终得到副产品硫酸.制酸脱硫的具体工艺是将熔炼炉排放的烟气进行干燥、洗涤后,其中的 SO_2 在转化器中催化氧化成 SO_3 ,然后在吸收塔与浓硫酸中的水发生反应,生成硫酸,反应过程的化学方程式为



式中 Q 为化学反应放出的热量.制酸脱硫技术较为成熟,脱硫效率较高,能够处理 SO_2 浓度较高的烟气.然而,在烟气洗涤过程中会产生大量的废水和残渣,必须对其进行二次处理.制酸脱硫的副产物为硫酸,可用于冶金、石油、原子能等诸多工业,具有很大的经济价值.

通过对上述烟气脱硫方法的介绍,为了更加直观地将烟气脱硫方法进行对比,对各个方法的特点、副产品、应用场景等分别进行总结,如表2所示.

表2 烟气脱硫方法对比

Table 2 Comparison of flue gas desulfurization methods

方法	特点	$\varphi(\text{SO}_2)$	副产品及处理方法	脱硫效率	应用场景
干法脱硫	工艺简单,无废水和污酸排出;脱硫反应速度慢,设备庞大	0.05% ~ 1.00%	CaSO_4 、硫酸铵等,抛弃	70% ~ 90%	城市煤气厂、石油化工厂等
半干法脱硫	技术成熟,工艺流程简单;系统容易堵塞,投资较大	0.05% ~ 1.00%	CaSO_4 ,抛弃	80% ~ 90%	中低硫煤(硫含量低于1.5%)的中小机组火力发电厂
湿法脱硫	脱硫反应速度快,吸收剂利用率高;有污水产生,投资较大	0.05% ~ 2.50%	石膏,售卖	95%以上	中高硫煤机组的火力发电厂
制酸脱硫	技术成熟,脱硫效率高;有污水和废渣产生	3.50% ~ 25.00%	硫酸,售卖	95%以上	金属冶炼厂

2.2 冶炼烟气制酸工艺流程发展现状

冶炼烟气制酸工艺的关键环节是转化过程.烟气中的 SO_2 转化为 SO_3 的转化率越高,则后续生产的硫酸的品质越高,硫的回收率就越高,对环境的污染就越小.同时,由于硫的回收率较低,脱硫效果差,对环境造成很大污染,需要尾气处理装置进一步对废气进行处理^[23].不同的转化过程会显著地影响转化率.因此,按照转化工艺的不同,冶炼烟气制酸

可分为“一转一吸”和“两转两吸”两大类.

2.2.1 “一转一吸”流程

“一转一吸”流程即1次转化1次吸收的工艺^[24].含有 SO_2 的烟气一次通过转化器中全部的催化剂床层,催化氧化生成的 SO_3 进入吸收塔内被吸收生成硫酸.在吸收塔中,反应结束后未经转化的 SO_2 气体将不再进入转化器.由方程式(10)可知, SO_2 向 SO_3 的转化是可逆的,受催化剂的用量和平衡

转化率的影响,“一转一吸”的转化率在理论上可达97.5%~98.0%。然而,在这样的转化率下,硫的回收率较低,同时尾气中SO₂的含量远远超过排放标准^[15,24],必须加装尾气处理装置。与前面提到的干法脱硫工艺相似,尾气处理装置利用碱性吸收剂吸收SO₂,生成亚硫酸盐或硫酸盐。目前,该工艺只应用于一些烟气中SO₂浓度较低的小型企业,并与尾气处理装置配套使用。“一转一吸”工艺的硫回收率较低,同时尾气处理得到的硫酸盐只能进行抛弃,因此,该工艺存在一定的局限性。

2.2.2 “两转两吸”流程

“一转一吸”的转化率较低,往往不适用于大中型企业,因此,“两转两吸”工艺便应运而生。“两转两吸”流程即2次转化2次吸收的工艺。本文以江西铜业公司为例对“两转两吸”工艺进行介绍。

江西铜业贵溪冶炼厂目前使用的转化过程是“3+1”四段转化^[25],图1为转化过程简图,图2为转化过程详细流程图。从图2可以看到,经过净化、干吸的烟气经SO₂鼓风机一路经第3热交换器、1#阀门、第1热交换器进入转化器一层进行催化转化,一路经2#阀门、第1热交换器进入转化器一层进行催化转化。转化器一层出来的气体经第1热交换器后进入转化器二层进行催化转化,而后经第2热交换器进入转化器三层进行催化转化,最后经第3热交换器后进入第1吸收塔制取硫酸。第1吸收塔出来的气体经第4、2热交换器进入转化器四层进行催化氧化,而后经第4热交换器进入第2吸收塔制取硫酸。至此,“3+1”模式的“两转两吸”流程已经完成,2次转化过程的总转化率可达到国家标准,尾气可直接排放。除“3+1”模式的“两转两吸”流程外,

还有“3+2”“4+1”模式的“两转两吸”流程,只是每次转化所需的转化次数不同。

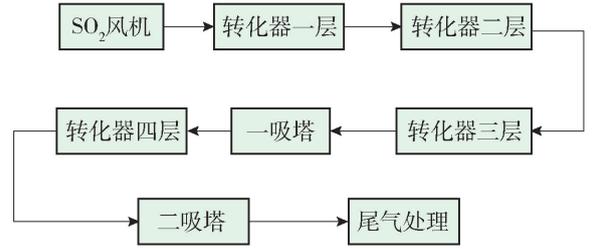


图1 “两转两吸”简图

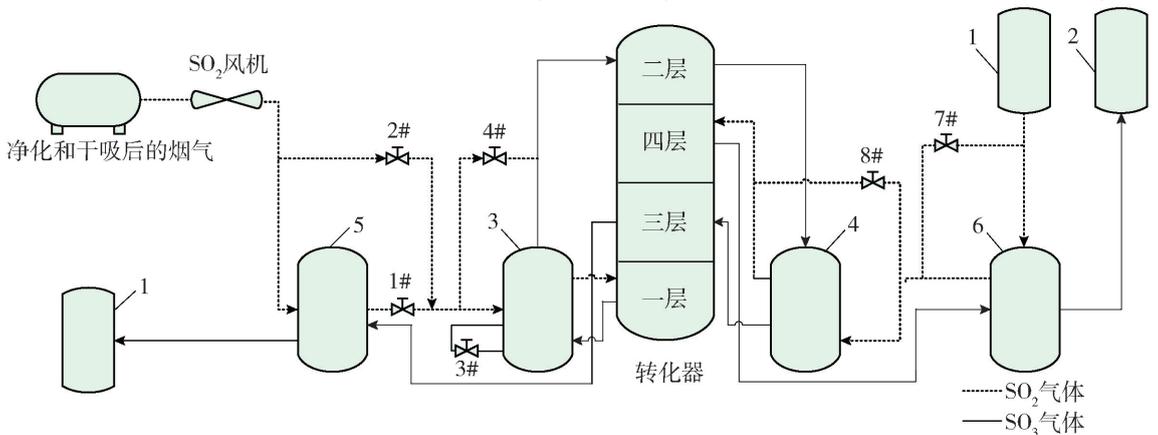
Fig. 1 Diagram of “two convert and two absorption”

3 冶炼烟气制酸系统控制过程研究现状

通过采用冶炼烟气制酸的方法对工业烟气进行处理,可以有效地降低排放烟气的含硫量,生成高浓度硫酸,在改善空气污染和土壤酸化的同时降低硫酸生产成本和能源消耗,促进尾气回收和废物循环利用。烟气制酸是一个复杂多变量、强耦合的非线性过程,多年来其中的建模、优化、控制问题均是众多学者研究的热点问题。烟气制酸系统建模、优化和控制过程如图3所示。其中,工业现场的数据是进行研究的基础,均由现场采集得到,如风机出口压力、风机出口烟气流量、阀门开度、转化器入口温度等诸多变量。

3.1 烟气制酸系统建模

烟气制酸系统的建模是后续对其进行优化和控制的基础。于丰^[23]对SO₂转化反应进行了热力学分析和动力学分析,说明了SO₂转化达到的平衡转化率和绝热升温过程,建立了SO₂转化的动力学模型,最后,给出了转化器内转化率的计算方法,从而建立



1—第1吸收塔; 2—第2吸收塔; 3—第1热交换器; 4—第2热交换器; 5—第3热交换器; 6—第4热交换器。

图2 “两转两吸”详细流程

Fig. 2 Detailed flow of “two convert and two absorption”

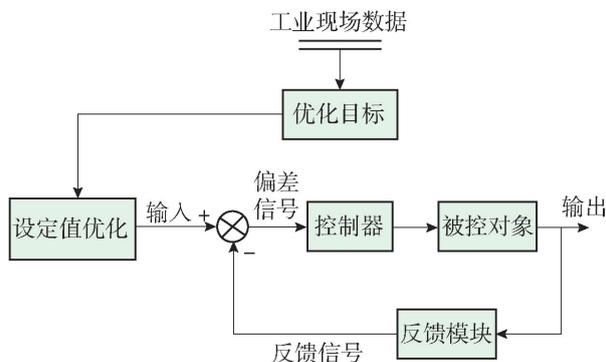


图3 烟气制酸系统建模、优化和控制流程

Fig. 3 Process for modeling, optimization, and control of the system of acid production with flue gas

了转化器最佳入口温度优化模型。陈春华等^[26]、张俊^[27]针对烟气制酸过程中一级动力波入口压力进行建模,分别建立了各组成设备的机理数学模型,采用单元集成混合建模、分段线性化等方法得到主通道控制对象模型和干扰通道对象模型。寇文奇^[28]、Chen等^[29]、Jia等^[30]根据SO₂转化反应的热力学和动力学分析建立了SO₂转化过程的机理模型,得出总转化率的计算方法,并通过分析优化目标、优化变量和相关约束建立了转化器入口温度的优化模型。

对于冶炼烟气制酸系统,大部分是根据化学反应动力学分析以及系统内部机理进行建模,建模过程中各个反应过程都采用平均情况,是一种平均场理论的思想,与实际工业现场往往存在较大差距,并且化学反应过程多变,不同的化学试剂的用法用量均会导致不一样的反应效果,这就造成基于机理模型的研究具有一定的局限性。

如今的时代是大数据的时代,而工业生产数据更是实现过程监控、优化控制和故障诊断的重要基础。与此同时,人工智能和深度学习技术的发展,驱动了新一轮的产业变革^[31-32]。因此,针对烟气制酸系统,可以将数据驱动与人工智能相结合的方法对其进行建模,根据现场测量得到的大量数据,采用径向基函数(radial basis function, RBF)神经网络^[33-34]、广义回归神经网络(generalized regression neural network, GRNN)^[35]等逼近实际系统的动态特性。

3.2 烟气制酸系统预测与优化

为确保冶炼烟气制酸系统的稳定运行,需要对多个变量的设定值进行优化,并根据预测值与设定值的偏差实现烟气制酸系统的实时优化,而近年来许多研究人员都在对该研究领域不断进行探索。

Bahman等^[36]设计了一种多层前馈神经网络对烟气制酸过程中的硫酸暴露位置进行预测,研究表明所提模型在烟气回收系统中预测准确性非常高。Wang等^[37-38]针对“两转两吸”流程中SO₂转化率难以直接在线测量的问题,根据化学反应过程进行建模,采用软测量技术进行预测,选取辅助变量并采用反向传播(back propagation, BP)神经网络进行研究,表明BP神经网络拟合和预测效果优于多元线性回归模型且模型具有较高的预测精度,可用于SO₂转化率的在线预测。寇文奇^[28]以转化器各段入口温度为优化变量,以SO₂转化率最大为优化目标,利用遗传算法和下山单纯形法求解转化器入口温度的优化设定问题;同时,采用修正的自适应实时优化方法解决催化剂活性导致模型参数失配的问题,并验证了该方法的有效性。Jia等^[30]对烟气制酸转化器入口温度实时优化进行研究,设计了调节器自适应策略,采用调节因子进行实时优化,研究表明所提优化策略的收敛速度和SO₂转化率均有所提高。

设定值的优化过程分为优化目标的模型建立与求解2个阶段。在建立目标函数模型时,考虑到烟气制酸过程具有非线性、大滞后等特性,而机理法建模又存在一定的局限性,只有采用数据驱动的方法才可以构建更准确的SO₂转化率、硫酸产量和能源消耗预测模型。同时,在冶炼烟气制酸系统设定值优化过程中,SO₂转化率、硫酸产量、能源消耗等目标函数不仅与转化器入口温度等决策变量有关,而且还会随着时间、环境等因素动态变化。显然,传统的静态多目标优化算法已经不再适用这种情况,因此,可采用动态多目标进化算法^[39-41]。动态多目标进化算法能够有效地求解随时间变化的非线性、不可导的多目标优化问题,根据种群进化的规则优化相互冲突的目标,得到一组最优解集供决策者做出决策。

动态多目标优化算法框架如图4所示,该算法对环境的变化较为敏感,并且快速对其做出响应,而

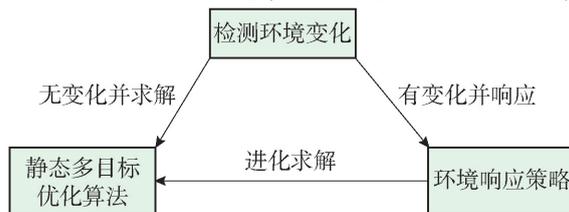


图4 动态多目标优化算法框架

Fig. 4 Dynamic multi-objective optimization algorithm framework

后利用静态多目标优化算法进行求解. 因此,图4也表明了动态多目标优化与静态多目标优化之间的联系.

3.3 烟气制酸系统控制策略

在冶炼烟气制酸系统的智能优化控制中,控制器的设计是关键. 烟气制酸系统中,许多变量如一级动力波入口压力、风机出口压力、转化器入口温度等都需要进行调节控制,同时,控制器的设计既要满足系统的性能指标,又要保证系统的稳定性. 邵雄奇^[42]针对冶炼烟气制酸系统进行了软硬件设计,采用专家控制策略实现了风量阀门的准确调节,通过模糊控制策略实现了风机转速的调节,最终实现了从集散控制系统读取过程数据并实时下发控制量的功能. 崔宾^[43]采用数据驱动的方法建立一级动力波入口压力的 wiener 模型,对其设计广义预测控制器,研究发现该广义预测控制器对一级动力波入口压力具有较好的控制效果.

烟气制酸系统中,除了一级动力波入口压力、风机出口压力等辅助变量的控制外,还有核心控制变量——转化器入口温度. 许多学者都在研究温度控制的方法,提出了许多不同的控制方案. 乔永凤等^[44]设计史密斯预估器补偿模糊比例积分微分 (proportion integration differentiation, PID) 温度串级控制系统,并加入扰动进行测试,研究表明,该方法的抗干扰能力强,鲁棒性好,控制效果更佳. Zhao 等^[45]针对试验罐设计了一种基于 BP 神经网络的温度预测模型,并与改进的广义预测控制相结合,降低了网络的预测误差,有效控制了试验罐的温度. Chen 等^[46]针对温度控制系统设计了一种基于隐式的比例积分 (proportion integration, PI) 广义预测控制器,以 PI 结构优化目标函数,利用递归最小二乘法直接识别控制器参数,研究发现该方法参数辨识过程收敛更快,能够有效控制具有时变时延的工业系统的温度.

冶炼烟气制酸系统中闪速炉和转炉间歇性吹炼导致制酸装置入口处的烟气流量突变和 SO_2 浓度及流量的大幅波动,对 SO_2 的转化吸收效率、触媒的消耗、环境保护及企业成本都有很大影响. 因此,单个数据驱动模型难以覆盖复杂多变的工况,需要对制酸过程进行多工况划分和多模型构建,设计有效的切换机制,最后实现多模型自适应控制^[47-49].

冶炼烟气制酸是一个整体过程,通过对该过程设计全流程优化控制方案,在保证 SO_2 转化率的前提下,达到降低成本、提高硫酸质量和产量、实现系

统高效运行的目的. 网络通信技术的快速发展和大量基础自动化设备的应用,为烟气制酸过程的全流程优化控制奠定了重要的基础. 基于高速发展的通信网络,信息物理系统 (cyber-physical systems, CPS) 为实现烟气制酸的全流程优化提供了框架^[50],如图5所示. CPS 主要由感知层、网络层和决策层3个部分组成. 在 CPS 框架下,感知层利用数据采集系统,实时获取烟气制酸过程中烟气流量、风机出口压力、转化器入口温度及阀门开度等参数和设备状态信息. 网络层利用数据驱动的方法对数据进行建模分析以达到可视化的目的. 决策层依据监测状态和生产需求进行优化控制计算,最后,将控制信号通过网络发送至执行机构,从而达到对 CPS 框架下的冶炼烟气制酸系统的智能优化控制.

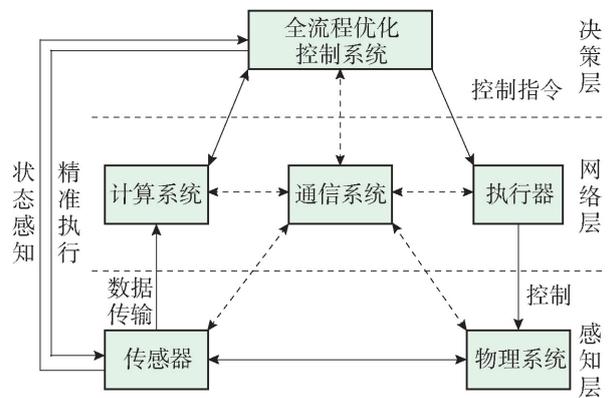


图5 CPS框架

Fig. 5 CPS framework

4 难点与展望

目前,关于冶炼烟气制酸的工艺流程、建模、优化和控制等方面已经取得大量研究成果,可以发现我国的冶炼烟气制酸的总体水平已经得到长足发展,技术水平和发展规模均进入世界前列. 但是,目前所采用的技术和控制算法对于处理超高浓度的 SO_2 烟气和复杂工况下的烟气制酸问题,仍存在着一定的局限性. 针对上述技术瓶颈,分别从烟气制酸工艺流程、建模、优化和控制等几个方面对技术难点进行了分析探讨,展望了今后的发展趋势.

1) 工艺流程. 采用制酸脱硫法对冶炼烟气中的 SO_2 进行回收,制取硫酸,并且为了提高 SO_2 的转化率和烟气脱硫效率,往往采用“两转两吸”技术. 随着冶炼技术的发展,金属冶炼过程中完全有可能出现超高浓度 SO_2 的情况,可考虑“三转三吸”工艺进行进一步的研究.

2) 系统建模. 在烟气制酸系统建模过程中, 机理建模是一种平均场理论的方法, 与工业现场差距往往较大, 因此, 基于机理模型的研究具有一定的局限性. 大数据和人工智能的时代已经到来, 数据驱动与人工智能技术相结合进行建模的方法值得广大科研人员进行深入探索.

3) 设定值优化. 针对烟气制酸系统设定值优化问题, 多个目标函数不仅与决策变量有关, 还会随时间、环境等因素变化. 因此, 传统的静态多目标进化算法已不再适用, 应深入研究动态多目标进化算法, 求解随时间变化的非线性、不可导的多目标优化问题.

4) 控制策略. 烟气流量和 SO_2 浓度的突变会导致后续化学反应过程的不稳定, SO_2 转化率较低. 因此, 单一的数据驱动模型往往难以覆盖烟气制酸复杂多变的工况, 而如何对工况进行分解表征, 实现有效切换, 最终实现多模型自适应控制仍值得进一步研究优化.

5) 全流程优化控制. 在冶炼烟气制酸的全流程优化控制中, 可利用 CPS 框架, 将传统的烟气制酸系统工业网络与通信网络融合, 通过计算、网络及控制技术的相互协作, 解决烟气制酸全过程中的复杂性和不确定性问题, 实现全流程一体化指标的综合优化.

参考文献:

- [1] 扈玲, 王练. 数字化时代下有色金属生产过程智能优化控制探究[J]. 有色金属工程, 2022, 12(5): 158.
HU L, WANG L. Research on intelligent optimization control of non-ferrous metal production process in digital era[J]. Nonferrous Metals Engineering, 2022, 12(5): 158. (in Chinese)
- [2] 刘磊. 有色冶金技术的现状与发展探讨[J]. 中国金属通报, 2021(8): 21-22.
LIU L. Present situation and development of non-ferrous metallurgy technology [J]. China Metal Bulletin, 2021(8): 21-22. (in Chinese)
- [3] SHIVANI B, SUGANDHA A, SUNIL S. Industry 4.0 technologies for business excellence: frameworks, practices, and applications[M]. Boca Raton: CRC Press, 2021: 2-3.
- [4] 张莹婷. 《中国制造 2025》解读之: 绿色发展是大势所趋、潮流所向[J]. 工业炉, 2021, 43(4): 62.
ZHANG Y T. "Made in China 2025" interpretation: green development is the trend of the Times [J]. Industrial Furnace, 2021, 43(4): 62. (in Chinese)
- [5] 马静玉, 程东波. 碳中和愿景下金属矿产行业的挑战与机遇[J]. 科技导报, 2021, 39(19): 48-55.
MA J Y, CHENG D B. Challenges and opportunities of metallic mineral industry under the vision of carbon neutrality [J]. Science & Technology Review, 2021, 39(19): 48-55. (in Chinese)
- [6] MENG S B, WEN S M, HAN G, et al. Wastewater treatment in mineral processing of non-ferrous metal resources: a review[J]. Water, 2022, 14(5): 726.
- [7] 郭智生, 黄卫华. 有色冶炼烟气制酸技术的现状及发展趋势[J]. 硫酸工业, 2007(2): 13-21.
GUO Z S, HUANG W H. Present situation and development prospect of metallurgical acid production technologies[J]. Sulphuric Acid Industry, 2007(2): 13-21. (in Chinese)
- [8] 李崇, 廖康程. 2017 年中国硫酸行业生产运行状况及 2018 年展望[J]. 硫酸工业, 2018(4): 1-5.
LI C, LIAO K C. Production and operation of China's sulphuric acid industry in 2017 and outlook for 2018[J]. Sulphuric Acid Industry, 2018(4): 1-5. (in Chinese)
- [9] 廖康程. 2018 年我国硫酸行业生产运行情况[J]. 磷肥与复肥, 2019, 34(4): 4-7.
LIAO K C. Production and operation of sulfuric acid industry in China in 2018 [J]. Phosphate & Compound Fertilizer, 2019, 34(4): 4-7. (in Chinese)
- [10] 李崇. 2019 年我国硫酸行业运行情况及 2020 年发展趋势[J]. 硫酸工业, 2020(12): 1-6, 10.
LI C. Operation of China's sulphuric acid industry in 2019 and development trend in 2020[J]. Sulphuric Acid Industry, 2020(12): 1-6, 10. (in Chinese)
- [11] 廖康程, 杨曼. 2020 年我国硫酸行业运行情况及 2021 年发展趋势[J]. 磷肥与复肥, 2021, 36(6): 1-5.
LIAO K C, YANG M. Operation situation of China's sulfuric acid industry in 2020 and development trend in 2021 [J]. Phosphate & Compound Fertilizer, 2021, 36(6): 1-5. (in Chinese)
- [12] 钟化. 2021 年我国硫酸产量创新高[N]. 中国石化报, 2022-07-05(5).
ZHONG H. China's sulfuric acid production hit a new high in 2021[N]. China Petrochemical News, 2022-07-05(5). (in Chinese)
- [13] 库吉米内赫. 硫酸工艺学[M]. 北京: 高等教育出版社, 1957: 45-46.
- [14] 刘少武, 刘冬, 刘翼鹏. 硫酸工作手册[M]. 南京: 东南大学出版社, 2001: 55-56.
- [15] 蒋继穆, 孟昭华. 有色冶炼烟气制酸工业现状及发展[J]. 世界有色金属, 2000(2): 22-25.
JIANG J M, MENG Z H. Present situation and

- development of the industry of acid production with non-ferrous smelting flue gas[J]. *World Nonferrous Metals*, 2000(2): 22-25. (in Chinese)
- [16] 郑鹏, 徐怀, 胡欣雷. 有色冶炼烟气制酸工业现状及发展研究[J]. *世界有色金属*, 2016(22): 179-180.
ZHENG P, XU H, HU X L. Research on the present situation and development of the production of acid industry from the flue gas of nonferrous smelting[J]. *World Nonferrous Metals*, 2016(22): 179-180. (in Chinese)
- [17] 廖康程. 我国硫酸工业改革开放40年发展纪实[J]. *磷肥与复肥*, 2018, 33(12): 6-8, 112-113.
LIAO K C. Development history of sulfuric acid industry in China during 40 years of reform and opening up[J]. *Phosphate & Compound Fertilizer*, 2018, 33(12): 6-8, 112-113. (in Chinese)
- [18] 施群. 我国硫酸工业现状和冶炼烟气制酸特点[J]. *有色冶金设计与研究*, 2006(1): 1-3, 12.
SHI Q. Status quo of sulfuric acid industry and features of acid generation from smelting offgas in China [J]. *Nonferrous Metals Engineering & Research*, 2006(1): 1-3, 12. (in Chinese)
- [19] 李坚, 王川, 吕瑞彤. 干法管道喷射碳酸氢钠脱硫除尘一体化装置的优化[J]. *北京工业大学学报*, 2022, 48(1): 69-78.
LI J, WANG C, LÜ R T. Optimization of the integrated device for desulfurization and dust removal of dry-process pipeline spraying sodium bicarbonate [J]. *Journal of Beijing University of Technology*, 2022, 48(1): 69-78. (in Chinese)
- [20] RAGIPANI R, ESCOBAR E, PRENTICE D, et al. Selective sulfur removal from semi-dry flue gas desulfurization coal fly ash for concrete and carbon dioxide capture applications [J]. *Waste Management*, 2021, 121: 117-126.
- [21] 王雷, 章明川, 周月桂, 等. 半干法烟气脱硫工艺探讨及其进展[J]. *锅炉技术*, 2005(1): 70-74.
WANG L, ZHANG M C, ZHOU Y G, et al. The discussion and progress of semidry flue gas desulfurization[J]. *Boiler Technology*, 2005(1): 70-74. (in Chinese)
- [22] LIU J, LI X L, LI J H, et al. Model-free adaptive control of pH value of wet desulfurization slurry under switching of multiple working conditions [J]. *Complexity*, 2020, 2020: 4727412.
- [23] 于丰. 烟气制酸转化器入口温度建模与优化设定[D]. 沈阳: 东北大学, 2009.
YU F. Modeling and optimization for the temperature of converter inlet on metallurgical acid plant [D]. Shenyang: Northeastern University, 2009. (in Chinese)
- [24] 刘勤学, 侯希涛. 一转一吸+离子液脱硫工艺300 kt/a硫磺制酸装置的设计与运行[J]. *硫酸工业*, 2021(11): 1-5, 9.
LIU Q X, HOU X T. Design and operation of 300 kt/a sulphur based sulphuric acid plant with one conversion and one absorption + ionic liquid desulfurization process [J]. *Sulphuric Acid Industry*, 2021(11): 1-5, 9. (in Chinese)
- [25] 徐晓燕, 申屠华德, 张志孝. 两转两吸转化工艺流程的选择及工艺参数的确定[J]. *硫酸工业*, 2007(3): 4-8.
XU X Y, SHENTU H D, ZHANG Z X. Selection and determination of process configuration and parameters for double-absorption plants [J]. *Sulphuric Acid Industry*, 2007(3): 4-8. (in Chinese)
- [26] 陈春华, 张俊, 于丰, 等. 烟气制酸一级动力波入口压力控制系统建模[J]. *有色金属(冶炼部分)*, 2011(11): 1-5, 20.
CHEN C H, ZHANG J, YU F, et al. Modeling for inlet pressure of primary dynamic wave in sulfuric acid production from waste gas [J]. *Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy)*, 2011(11): 1-5, 20. (in Chinese)
- [27] 张俊. 烟气制酸一级动力波入口压力建模与预测控制[D]. 沈阳: 东北大学, 2010.
ZHANG J. Modeling and predictive control for inlet pressure of primary dynamic wave in sulfuric acid production from smelter gas [D]. Shenyang: Northeastern University, 2010. (in Chinese)
- [28] 寇文奇. 冶炼烟气制酸SO₂转化率建模及实时优化研究[D]. 沈阳: 东北大学, 2017.
KOU W Q. Modeling and real-time optimization for the conversion rate of SO₂ in flue gas acid-making [D]. Shenyang: Northeastern University, 2017. (in Chinese)
- [29] CHEN C H, JIA M X, YOU F Q, et al. A new modifier adaptation methodology for real-time optimization [J]. *Transactions of the Institute of Measurement and Control*, 2018, 40(4): 1320-1327.
- [30] JIA M X, CHEN C H, KOU W Q, et al. Real-time optimization of converter inlet temperature in acid production with flue gas [J]. *Chemical Engineering Research and Design*, 2017, 122: 226-232.
- [31] 李晓理, 张博, 王康, 等. 人工智能的发展及应用[J]. *北京工业大学学报*, 2020, 46(6): 583-590.
LI X L, ZHANG B, WANG K, et al. Development and application of artificial intelligence [J]. *Journal of Beijing University of Technology*, 2020, 46(6): 583-590. (in Chinese)

Chinese)

- [32] MU R H, ZENG X Q. A review of deep learning research [J]. *KSII Transactions on Internet and Information Systems*, 2019, 13(4): 1738-1764.
- [33] JIANG Q H, ZHU L L, SHU C, et al. An efficient multilayer RBF neural network and its application to regression problems [J]. *Neural Computing & Applications*, 2022, 34(6): 4133-4150.
- [34] XI Z F, XU A, KOU Y X, et al. Target maneuver trajectory prediction based on RBF neural network optimized by hybrid algorithm [J]. *Journal of Systems Engineering and Electronics*, 2021, 32(2): 498-516.
- [35] SRIDHARAN M, SHENBAGARAJ S. Application of generalized regression neural network in predicting the thermal performance of solar flat plate collector systems [J]. *Journal of Thermal Science and Engineering Applications*, 2021, 13(2): 021023.
- [36] BAHMAN Z N, ALI A. A multi-layer feed forward neural network model for accurate prediction of flue gas sulfuric acid dew points in process industries [J]. *Applied Thermal Engineering*, 2010, 30(6): 692-696.
- [37] WANG N N, HUANG Q R, FENG L H, et al. Study on soft measurement of SO₂ conversion ratio of producing sulfuric acid from metallurgical off-gas based on MLR[C]// Chinese Control and Decision Conference. Piscataway: IEEE, 2013: 3091-3094.
- [38] 王宁宇. 冶炼烟气制酸 SO₂ 转化率软测量研究[D]. 昆明: 昆明理工大学, 2013.
WANG N N. Study on soft measurement of SO₂ conversion ratio of producing sulfuric acid from metallurgical off-gas[D]. Kunming: Kunming University of Science and Technology, 2013. (in Chinese)
- [39] 郭一楠, 汤万宝, 陈国玉, 等. 动态多目标进化优化研究进展[J]. *信息与控制*, 2021, 50(2): 162-173.
GUO Y N, TANG W B, CHEN G Y, et al. Research progress on dynamic multi-objective evolutionary optimization[J]. *Information and Control*, 2021, 50(2): 162-173. (in Chinese)
- [40] CHEN M, MA Y J. Dynamic multi-objective evolutionary algorithm with center point prediction strategy using ensemble Kalman filter [J]. *Soft Computing*, 2021, 25(7): 5003-5019.
- [41] LIU R C, YANG P, LIU J D. A dynamic multi-objective optimization evolutionary algorithm for complex environmental changes [J]. *Knowledge-Based Systems*, 2021, 216: 106612.
- [42] 邵雄奇. 烟气制酸过程智能控制系统的设计与开发[D]. 长沙: 中南大学, 2005.
- SHAO X Q. Design and development of intelligent control system for the process of acid production with flue gas [D]. Changsha: Central South University, 2005. (in Chinese)
- [43] 崔宾. 基于 wiener 模型的烟气制酸一级动力波入口压力预测控制[D]. 沈阳: 东北大学, 2011.
CUI B. Predictive control based on wiener model for inlet pressure of primary dynamic wave in sulfuric acid production from smelter gas[D]. Shenyang: Northeastern University, 2011. (in Chinese)
- [44] 乔永凤, 王凯. Smith 预估模糊 PID 热交换器温度控制仿真设计[J]. *工业控制计算机*, 2021, 34(11): 69-70, 73.
QIAO Y F, WANG K. Simulation design of Smith predictive fuzzy PID temperature control of heat exchanger [J]. *Industrial Control Computer*, 2021, 34(11): 69-70, 73. (in Chinese)
- [45] ZHAO Q L, LIU Q, CAO N L, et al. Stepped generalized predictive control of test tank temperature based on backpropagation neural network [J]. *Alexandria Engineering Journal*, 2021, 60(1): 357-364.
- [46] CHEN Z, CUI J L, LEI Z Z, et al. Design of an improved implicit generalized predictive controller for temperature control systems [J]. *IEEE Access*, 2020, 8: 13924-13936.
- [47] 张玉振, 李擎, 张维存, 等. 多模型自适应控制理论及应用[J]. *工程科学学报*, 2020, 42(2): 135-143.
ZHANG Y Z, LI Q, ZHANG W C, et al. Survey of multi-model adaptive control theory and its applications [J]. *Chinese Journal of Engineering*, 2020, 42(2): 135-143. (in Chinese)
- [48] LI H W, REN K D, LI S B, et al. Adaptive multi-model switching predictive active power control scheme for wind generator system [J]. *Energies*, 2020, 13(6): 1329.
- [49] LIANG Y X, LI Y N, KHAJEPOUR A, et al. Multi-model adaptive predictive control for path following of autonomous vehicles [J]. *IET Intelligent Transport Systems*, 2020, 14(14): 2092-2101.
- [50] 杨挺, 刘亚闯, 刘宇哲, 等. 信息物理系统技术现状分析与趋势综述 [J]. *电子与信息学报*, 2021, 43(12): 3393-3406.
YANG T, LIU Y C, LIU Y Z, et al. Review of cyber-physical system: technology analysis and trends [J]. *Journal of Electronics & Information Technology*, 2021, 43(12): 3393-3406. (in Chinese)

(责任编辑 梁洁)