

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(11) **035992**

(13) **B1**

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

**(45)** Дата публикации и выдачи патента  
**2020.09.10**

**(21)** Номер заявки  
**201890986**

**(22)** Дата подачи заявки  
**2016.10.21**

**(51)** Int. Cl. **B01D 53/60** (2006.01)  
**B01D 53/78** (2006.01)  
**F23J 15/04** (2006.01)  
**B01D 53/56** (2006.01)  
**B01D 53/64** (2006.01)

---

**(54) СИСТЕМА И СПОСОБ УДАЛЕНИЯ ПРОДУКТОВ ГОРЕНИЯ ИЗ ЦИКЛА ГЕНЕРАЦИИ МОЩНОСТИ**

---

**(31)** 62/244,411

**(32)** 2015.10.21

**(33)** US

**(43)** 2018.11.30

**(86)** PCT/US2016/058104

**(87)** WO 2017/070466 2017.04.27

**(71)(73)** Заявитель и патентовладелец:  
**8 РИВЕРЗ КЭПИТЛ, ЛЛК (US)**

**(56)** US-B2-8596075  
US-B2-8580206  
WO-A1-0187464

**(72)** Изобретатель:  
**Аллам Родни Джон (GB), Лу Сицзя,  
Мартин Скотт Томас (US)**

**(74)** Представитель:  
**Веселицкая И.А., Веселицкий М.Б.,  
Кузенкова Н.В., Каксис Р.А., Белоусов  
Ю.В., Куликов А.В., Кузнецова Е.В.,  
Соколов Р.А., Кузнецова Т.В. (RU)**

---

**(57)** В заявке описана система для удаления загрязняющих примесей из цикла генерации мощности, в котором используется циркулирующая текучая среда высокого давления. Система содержит первый башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью охлаждения циркулирующей текучей среды высокого давления и конденсации потока текучей среды, с которым из циркулирующей текучей среды удаляется SO<sub>2</sub>. Первый рециркуляционный насос сообщается по потоку с первым башенным холодильником прямого контакта. Первая башня включает выход, выполненный с возможностью сообщения циркуляции охлажденному потоку CO<sub>2</sub> продукта, и второй башенный холодильник прямого контакта выполнен с возможностью приема с этого выхода по меньшей мере части охлажденного потока CO<sub>2</sub> продукта. Второй башенный холодильник прямого контакта выполнен с возможностью охлаждения потока CO<sub>2</sub> продукта и конденсации потока текучей среды, с которым из потока CO<sub>2</sub> продукта удаляется NO<sub>x</sub>. Второй рециркуляционный насос сообщается по потоку со второй башней. Предложен также соответствующий способ.

---

**B1**

**035992**

**035992**

**B1**

### Область техники

Настоящее изобретение относится к системам и способам удаления продуктов горения из цикла генерации мощности (энергии). В частности, обеспечены системы и методы удаления загрязняющих примесей в виде кислотного газа из цикла генерации мощности, в котором используется рециркуляционное рабочее тело высокого давления.

### Уровень техники

Системы и способы генерации мощности, в которых используется сжигание органического топлива (топлив) в присутствии диоксида углерода в качестве рабочего тела, описаны в патенте US 8596075, в полном объеме включенном в данное описание в качестве ссылки. По оценкам в ближайшие 100 лет основная потребность мирового производства электроэнергии будет удовлетворяться за счет использования органического топлива (топлив), хотя одновременно будут развиваться и использоваться неуглеродные источники энергии. Известные способы генерации мощности путем сжигания углеводородных топлив, таких как органическое топливо (а) и/или подходящая биомасса, ограничены, однако, растущей себестоимостью энергии и стремлением к снижению выработки и эмиссии диоксида углерода (CO<sub>2</sub>). Все больше и больше представляется, что глобальное потепление потенциально влечет за собой катастрофические последствия из-за увеличения выбросов CO<sub>2</sub> развитыми и развивающимися странами. Солнечная и ветровая энергия, вероятно, не в состоянии заменить в ближайшем будущем генерацию мощности за счет сжигания органического топлива (топлив) и/или других углеводородных топлив. Кроме того, ядерная энергетика влечет за собой связанные с ней опасности, в которые входят быстрый рост количества ядерных материалов и захоронение ядерных отходов.

Как отмечено выше, энергия, выработанная за счет сжигания, в настоящее время все более обременяется желанием улавливать CO<sub>2</sub> высокого давления для доставки в установки консервации, операции добычи нефти вторичными методами и/или нагнетания в магистральный трубопровод для повторного использования. Это стремление к улавливанию CO<sub>2</sub> трудновыполнимо в современных способах и системах генерации мощности, таких как высокоэффективные установки с комбинированным циклом; вынужденная непроизводительная нагрузка, связанная с улавливанием CO<sub>2</sub>, может привести к очень низкому тепловому КПД. Кроме того, очень велики капитальные затраты на достижение желательного уровня улавливания CO<sub>2</sub>. Эти и другие осложнения приводят к существенному возрастанию себестоимости электроэнергии (например, вплоть до 50-70%) по сравнению с системами, выбрасывающими CO<sub>2</sub> в атмосферу. Возрастающее потепление планеты и/или налогообложение эмиссии углерода могут катастрофически повлиять на окружающую среду и экономку генерации мощности. Соответственно в предшествующем уровне техники существует потребность в системах и способах, обеспечивающих высокую эффективность генерации мощности при снижении выбросов CO<sub>2</sub> за счет его улавливания и обеспечивающих сниженную стоимость электроэнергии и упрощенные секвестирование (изоляция) и накопление уловленного CO<sub>2</sub>.

Один из подходов к преодолению термодинамических потерь от повторного улавливания CO<sub>2</sub> связан с высокоэффективным циклом генерации мощности, в котором используется рабочее тело на основе в основном чистого CO<sub>2</sub> с давлением, пригодным для нагнетания в трубопроводную магистраль. Этот подход получил все растущую популярность в конструкциях, в которых используются рециркуляционные транскритические и/или сверхкритические рабочие тела. Эти рабочие тела, преимущественно содержащие CO<sub>2</sub>, полученный при сжигании в атмосфере кислорода, поддерживаются в рабочем окне, которое в точках, лежащих внутри цикла генерации мощности, совпадает с давлениями и температурами, пригодными для нагнетания в трубопроводную магистраль. В этих совпадающих точках CO<sub>2</sub> может быть безопасно отведен из цикла генерации мощности в трубопроводную магистраль и/или в находящийся ниже по потоку процесс повторного использования, в котором требуется такой сжатый и очищенный CO<sub>2</sub>, при сохранении в то же время высокой эффективности цикла генерации мощности.

В одном из таких циклов генерации мощности используется сжигание в атмосфере кислорода углеводородного топлива для сообщения энергии полностью рекуперированному рабочему телу на основе транскритического диоксида углерода в брайтоновском цикле генерации мощности, как это описано в ранее упомянутом патенте US 8596075. В различных аспектах в таком цикле генерации мощности по его природе улавливается, по существу, 100% CO<sub>2</sub>, сформированного при горении углеводородного топлива и имеющего требуемую возможность консервации или давление, соответствующее давлению в магистральном трубопроводе. Кроме того, уловленный CO<sub>2</sub> имеет в основном высокую чистоту. В случаях, когда в качестве горючего топлива используется природный газ, в таком цикле генерации мощности может достигаться тепловой КПД, по существу эквивалентный получаемому в обычных системах с комбинированным циклом без снижения эффективности на улавливание CO<sub>2</sub> при давлениях вплоть до и превышающих 300 бар. В частности, если используемое горючее топливо содержит небольшие концентрации серы и азота, как природный газ, полученный в цикле CO<sub>2</sub> может быть отведен в магистраль CO<sub>2</sub> с требуемой молярной чистотой и лишь с небольшой дополнительной обработкой или вообще без нее.

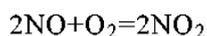
Твердые горючие топлива, такие как угли переменного класса, коксующиеся, битум или биомасса, могут содержать повышенные концентрации серы и азота, а также другие получающиеся из них загрязняющие примеси. При использовании таких топлив они сначала должны быть превращены в газ, в ос-

новном с чистым кислородом, в газификаторе высокого давления для получения топливного газа. Топливный газ затем очищается от остаточных твердых микропримесей, охлаждается, сжимается до давления, требуемого в процессе горения, и затем вводится в камеру сгорания цикла генерации мощности для сжигания в присутствии кислорода. Кроме того, может использоваться сернистый природный газ, включающий повышенные концентрации серосодержащих соединений. Получаемые из топлива загрязняющие примеси, такие как серосодержащие и азотосодержащие соединения, не удаляются из топливного газа перед окислением. По существу, в топливном газе сохраняются значительные концентрации загрязняющих примесей, в которые могут входить  $H_2S$ ,  $CO$ ,  $CS_2$ ,  $NH_3$ ,  $HCN$ ,  $Hg$  и другие микрокомпоненты, в зависимости от исходного источника топлива.

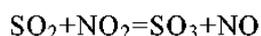
При сжигании топлива в присутствии кислорода образуется поток относительно чистого  $CO_2$ , некоторое количество воды ( $H_2O$ ) и различные, возникшее в процессе горения остаточные соединения, которые могут включать молекулярный кислород ( $O_2$ ). В случае использования в системе генерации мощности блока разделения воздуха могут присутствовать относительно низкие концентрации молекулярного азота ( $N_2$ ) и аргона ( $Ar$ ) наряду с азотом, происходящим от запланированного проникновения воздуха. Кроме того, с остаточным окислителем, избыток которого может преднамеренно поддерживаться, могут вступать в окислительные реакции сера и азотосодержащие соединения. Такое окисление может приводить к образованию нескольких видов загрязняющих примесей, получающихся или из исходного топлива, или из процесса частичного окисления в камере сгорания в присутствии кислорода и/или на других участках с высокой температурой цикла генерации мощности. Загрязняющие примеси могут включать оксиды серы ( $SO_x$ ), такие как диоксид серы ( $SO_2$ ) и триоксид серы ( $SO_3$ ), образующиеся при окислении полученной из топлива серы при высокой температуре. Другие загрязняющие примеси могут включать оксиды азота ( $NO_x$ ), такие как оксид азота ( $NO$ ) и диоксид азота ( $NO_2$ ), образующиеся преимущественно при высокотемпературном окислении соединений азота, содержащихся в топливе, и/или азота, поступающего с воздухом, проникающим через уплотнения системы. Кроме того, при окислении могут формироваться другие загрязняющие микропримеси, такие как  $Hg$ . Эти окислительные соединения серы и азота, известные как "кислотные газы", являются предметом природоохранительного законодательства, так как они служат основным катализатором возникновения кислотного дождя и могут приводить к коррозии оборудования при их присутствии в жидкой фазе, и, следовательно, существует необходимость в их удалении и/или поддержании окислительных компонентов ниже определенного порогового значения, по меньшей мере, в некоторых частях цикла генерации мощности. Эти окислительные компоненты должны быть удалены из цикла генерации мощности для предотвращения выброса этих токсичных загрязняющих примесей в атмосферу и для защиты внутреннего технологического оборудования. Соответственно получившиеся при горении газы, создающие повышенные концентрации серы и азота, требуют дополнительной обработки перед направлением на рециркуляцию и/или выпуском.

Хотя существует несколько процессов для удаления серы и/или азота из топлива перед его сжиганием (то есть процессы удаления перед горением) или для удаления следов кислотных газов из технологического газа, выпускаемого в конце цикла генерации мощности (то есть процессы удаления после горения), существует необходимость в процессе удаления, в котором предпочтительно используется рециркуляционная схема цикла генерации мощности, в которой задействовано транскритическое, сверхкритическое и/или ультра-сверхкритическое рабочее тело. Такая система удаления может предпочтительно обеспечить рециркуляцию  $CO_2$  в цикл генерации мощности при заданном отношении концентрации рециркуляционного  $CO_2$  к углероду в топливе. В таком цикле генерации мощности идеально обеспечиваются регулируемые низкие концентрации загрязняющих примесей в потоке рециркуляционного рабочего тела на основе  $CO_2$  и/или в потоке  $CO_2$  продукта. Загрязняющие примеси могут удаляться в форме, обеспечивающей эффективную и надежную работу и защиту задействованного оборудования. Такой процесс удаления должен в идеале удовлетворять нескольким технологическим нуждам в схеме с полузамкнутым контуром, например средства для охлаждения, конденсации и удаления загрязняющих примесей из рециркуляционного рабочего тела должны быть недорогими при изготовлении и эксплуатации, иметь низкие паразитные потери и подчиняться простой стратегии управления и работы.

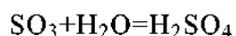
В патенте US 8580206 на имя Аллам и др., в полном объеме включенном в данное описание в качестве ссылки, раскрыты способы удаления  $SO_2$  и/или  $NO_x$  из газообразного  $CO_2$  при повышенном давлении и в присутствии молекулярного кислорода и воды. В частности, обеспечен процесс, в котором используется последовательность стадий реакций в газовой и/или жидкой фазе, приводящая к окислению оксида азота ( $NO$ ) с образованием диоксида азота ( $NO_2$ ) при повышенном парциальном давлении реагентов. Этот окислительный процесс может регулировать суммарную скорость протекания последовательности реакций.  $NO_2$  затем окисляет диоксид серы ( $SO_2$ ), образуя триоксид серы ( $SO_3$ ), а  $NO_2$  восстанавливается обратно до  $NO$ .  $SO_3$  затем растворяется в жидкой воде с образованием азотной кислоты ( $H_2SO_4$ ). Конечным результатом является превращение  $SO_2$  в  $H_2SO_4$  при использовании  $NO_x$  в качестве катализатора. Последовательность реакций описывается уравнениями, приведенными ниже.



Уравнение А



Уравнение Б



Уравнение В

Экспериментальные данные подтвердили теоретические расчеты реакций, что свидетельствует о том, что концентрация  $\text{SO}_2$  может быть снижена до очень низкого уровня, например ниже 50 ppm (молярных) менее чем за 10 с, при превышении концентрации  $\text{NO}_x$  100 ppm, давлении более приблизительно 10 бар и парциальном давлении кислорода приблизительно 0,1 бар или выше. См., например, Murciano, L., White, V., Petrocelli, F., Chadwick, D., "Sour compression process for removal of Sox and NOx from oxy-fuel-derived  $\text{CO}_2$ ," Energy Procedia 4 (2011) pp. 908-916; а также White, V., Wright, A., Tappe, S., and Yan, J., "The Air Products Vattenfall Oxyfuel  $\text{CO}_2$  Compression and Purification Pilot Plant at Schwarze Pumpe," Energy Procedia 37 (2013) 1490-1499, которые в полном объеме включены в данное описание в качестве ссылки.

Кроме того, в патенте US 8580206 раскрыто использование этой известной последовательности реакций для удаления одной или нескольких загрязняющих примесей, которые могут содержать  $\text{SO}_2$  и/или  $\text{NO}_x$ , в потоке, преимущественно включающем  $\text{CO}_2$ , полученный при окислении топлива в энергетическом бойлере при производстве пара. В частности, такая система может включать паровой бойлер с распыленным подожженным углем и систему сжигания топлива в присутствии кислорода, в которой рециркулируется, по существу, весь топочный газ за исключением потока, обогащенного чистым  $\text{CO}_2$  продуктом. Топочный газ смешивается с потоком окислителя на основе чистого  $\text{O}_2$  и направляется в угольные камеры сгорания, что приводит к тому, что концентрация  $\text{NO}_x$  возрастает до равновесного уровня, определяемого, по меньшей мере частично, температурой адиабатического пламени в камере сгорания. Температура адиабатического пламени в камере сгорания может быть достаточно высока для достижения близких к равновесным условий для концентрации  $\text{NO}_x$  в топливном газе. В предшествующем уровне сохраняется потребность в способах и системах для удаления загрязняющих примесей, в частности кислотных газов, из выходных потоков при генерации мощности.

#### Сущность изобретения

В различных аспектах настоящее изобретение относится к способам и системам для удаления загрязняющих примесей из цикла генерации мощности. В частности, в различных аспектах настоящего изобретения может обеспечиваться система для удаления загрязняющих примесей в виде кислотного газа из цикла генерации мощности, включающего высокоэффективную камеру сгорания и подключенную последовательно турбину, а также поток рециркуляционного рабочего тела высокого давления (например, рециркуляционного рабочего тела на основе  $\text{CO}_2$ ). Система содержит первый башенный холодильник прямого контакта (смешивающего типа), например колонну массопереноса реактора прямого контакта, выполненный с возможностью охлаждения рециркуляционного рабочего тела высокого давления. Первый башенный холодильник прямого контакта выполнен также с возможностью конденсации потока текучей среды, удаляющего  $\text{SO}_2$  из рециркуляционной текучей среды высокого давления. В другом аспекте первый башенный холодильник прямого контакта может быть выполнен с возможностью конденсации потока текучей среды, удаляющего  $\text{SO}_2$  и при необходимости часть  $\text{NO}_x$  из охлажденного рециркуляционного рабочего тела высокого давления. Система также содержит первый рециркуляционный насос, сообщающийся с первым башенным холодильником прямого контакта. Кроме того, выход первого башенного холодильника прямого контакта выполнен с возможностью раздачи охлажденного потока  $\text{CO}_2$  продукта. Система содержит также второй башенный холодильник прямого контакта (например, колонну массопереноса реактора прямого контакта), выполненный с возможностью приема по меньшей мере части охлажденного потока  $\text{CO}_2$  продукта с выхода первого башенного холодильника прямого контакта. Согласно некоторым аспектам второй башенный холодильник прямого контакта может быть выполнен с возможностью приема по меньшей мере части охлажденного потока  $\text{CO}_2$  продукта после прокачки этого потока через компрессор и/или насос системы генерации мощности. Во втором башенном холодильнике прямого контакта охлаждается поток  $\text{CO}_2$  продукта и конденсируется поток текучей среды, удаляющий  $\text{NO}_x$  и/или некоторый остаточный  $\text{SO}_x$  из охлажденного потока  $\text{CO}_2$  продукта. Второй рециркуляционный насос сообщается со вторым башенным холодильником прямого контакта.

В другом аспекте обеспечен способ удаления загрязняющих примесей из цикла генерации мощности и, в частности, удаления загрязняющих примесей в виде кислотного газа из цикла генерации мощности, в котором используется высокоэффективная камера сгорания и установленная последовательно турбина, а также рециркуляционное рабочее тело высокого давления (например, рециркуляционное рабочее тело на основе  $\text{CO}_2$ ). Способ включает регулирование концентрации  $\text{NO}_x$  в рециркуляционном рабочем теле высокого давления, вводимом в первый башенный холодильник прямого контакта. Кроме того, способ включает охлаждение рециркуляционного рабочего тела высокого давления в первом башенном холодильнике прямого контакта. Способ может включать конденсацию потока текучей среды, предназначенного для удаления  $\text{SO}_2$  из охлажденного рециркуляционного рабочего тела высокого давления в первом башенном холодильнике прямого контакта. Способ может также включать вывод охлажденного ре-

циркуляционного рабочего тела высокого давления из первого башенного холодильника прямого контакта в виде потока  $\text{CO}_2$  продукта и разделение этого потока  $\text{CO}_2$  продукта на поток повторно используемого рециркуляционного рабочего тела и поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта. Способ включает направление потока чистого  $\text{CO}_2$  продукта во второй башенный холодильник прямого контакта. Кроме того, способ может включать обеспечение потока чистой воды во второй башенный холодильник прямого контакта. В различных аспектах способ включает охлаждение потока чистого  $\text{CO}_2$  продукта во втором башенном холодильнике прямого контакта и конденсацию потока текучей среды, удаляющего  $\text{NO}_x$  и/или остаточный  $\text{SO}_x$  из охлажденного потока чистого  $\text{CO}_2$  продукта во втором башенном холодильнике прямого контакта. Способ также включает выведение потока очищенного  $\text{CO}_2$  продукта из второго башенного холодильника прямого контакта.

В одном из аспектов рециркуляционная текучая среда высокого давления может вводиться в камеру сгорания наряду с топливом и окислителем для горения, так что образуется поток высокотемпературной текучей среды высокого давления, содержащий рециркуляционное рабочее тело на основе  $\text{CO}_2$  и группу продуктов горения. Эта смесь продуктов горения и рециркуляционного рабочего тела на основе  $\text{CO}_2$  может содержать кислотные газы, такие как  $\text{NO}_x$  и  $\text{SO}_2$ , и другие загрязняющие примеси, такие как ртуть (Hg). Результирующий поток текучей среды может вводиться в устройство генерации мощности, такое как турбина, за чем следует рекуперация высокотемпературного тепла во входящий поток посредством рекуперативного теплообменника, нагревающего поступающее рециркуляционное рабочее тело высокого давления на основе  $\text{CO}_2$  одновременно с охлаждением выхлопного газа турбины.

В одном из аспектов перед направлением в цикл генерации мощности полученные при горении вода и/или загрязняющие примеси в виде кислотных газов, таких как  $\text{SO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , могут удаляться для удовлетворения соответствующих требований при секвестировании и/или направлении в трубопроводную магистраль для повторного использования и/или нагнетания в скважины при третичных способах добычи нефти. Удаление  $\text{SO}_2$  и/или  $\text{NO}_x$  из потока повторно используемого рециркуляционного рабочего тела на основе  $\text{CO}_2$  может защитить компоненты системы от коррозии, возникающей в результате образования агрессивных кислот, таких как серная кислота ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) и/или азотная кислота.

Согласно некоторым аспектам может быть желательным охлаждение рабочего тела на основе  $\text{CO}_2$ , выходящего из рекуперативного теплообменника, до достаточно низкой температуры с целью удаления сконденсировавшейся воды и обеспечения эффективного сжатия и нагнетания повторно используемого рабочего тела на основе  $\text{CO}_2$  до требуемого высокого давления рециркуляции.

Кроме того, может быть желательным удаление  $\text{CO}_2$ , образовавшегося в цикле горения, в виде потока  $\text{CO}_2$  продукта с требуемыми параметрами по чистоте, как здесь описано.

В некоторых аспектах система может включать два парожидкостных многоступенчатых контактных устройства (например, колонны массопереноса реактора прямого контакта). Первая колонна массопереноса реактора прямого контакта может функционировать как газовый холодильник  $\text{CO}_2$  прямого контакта и устройство удаления кислотного газа. Первая колонна может быть включена в основной рециркуляционный процесс, в котором большая часть остаточных водяных паров, содержащихся в потоке  $\text{CO}_2$  низкого давления, конденсируется при охлаждении газообразного  $\text{CO}_2$  до температуры, близкой к температуре окружающей среды. В этой первой колонне могут протекать описанные здесь каталитические реакции в газовой и жидкой фазах. В частности, эти каталитические реакции могут протекать при наличии избыточного окислителя с парциальным давлением по меньшей мере 0,1 бар и значительной концентрации  $\text{NO}_x$  (то есть по меньшей мере 100 ppm). Кроме того, в первой колонне каталитические реакции могут протекать при достаточном контакте между газом и жидкой водой и обеспечении соответствующего резидентного времени для протекания до полного завершения реакций превращения  $\text{SO}_2$  в  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

Согласно некоторым аспектам во второй колонне массопереноса реактора прямого контакта может обеспечиваться обработка потока чистого  $\text{CO}_2$  продукта, непрерывно выводимого из рециркуляционного процесса. Поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта может содержать концентрацию  $\text{SO}_2$  ниже 50 ppm. Кроме того, поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта может содержать повышенную концентрацию  $\text{NO}_x$ . В некоторых аспектах может быть желательным снижение концентрации  $\text{NO}_x$  ниже приблизительно 20 ppm и предпочтительно ниже приблизительно 10 ppm перед сбором чистого  $\text{CO}_2$  продукта в виде выходного газообразного продукта.

Важным фактором в различных аспектах настоящего изобретения является поддержание высокой концентрации  $\text{NO}_x$  в турбине и в выходном потоке рекуперативного теплообменника, что означает необходимость сохранения большей части  $\text{NO}_x$  в рециркуляционной текучей среде. Поддержание требуемой высокой концентрации  $\text{NO}_x$  в турбине и выходном потоке рекуперативного теплообменника может обеспечить завершение последовательности каталитических газовых реакций в первой колонне массопереноса реактора прямого контакта за минимальное резидентное время. В некоторых аспектах концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке поддерживается на заданном повышенном уровне, так как условия протекания реакции в первой колонне подбираются так, что выходной поток имеет надлежаще низкую концентрацию  $\text{SO}_2$  и ограниченный промежуток времени для того, чтобы некоторое количество  $\text{NO}_x$  прореагировало с кислотой и водой, что ограничивает удаление  $\text{NO}_x$  из потока. Фактически количество  $\text{NO}_x$ , превращенного в  $\text{HNO}_3$  в первой колонне, поддерживается на минимуме. В некоторых аспектах приблизительно менее

10% NO<sub>x</sub> в рециркуляционном потоке CO<sub>2</sub> продукта высокого давления, выходящем из первой колонны, превращается в HNO<sub>3</sub>. В других аспектах приблизительно менее 5% NO<sub>x</sub> в рециркуляционном потоке CO<sub>2</sub> продукта высокого давления, выходящем из первой колонны, превращается в HNO<sub>3</sub>. Ограниченное превращение NO<sub>x</sub> в HNO<sub>3</sub> в первой колонне может привести к тому, что первый выходной поток из первой колонны содержит в основном H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> и второй выходной поток из первой колонны содержит в основном рециркуляционный поток CO<sub>2</sub> продукта высокого давления, имеющий высокую концентрацию NO<sub>x</sub>.

В некоторых аспектах цикл генерации мощности может обуславливать выработку избыточного NO<sub>x</sub> в секции сжигания топлива, в которой чистый подаваемый кислород разбавляется CO<sub>2</sub> для обеспечения содержания O<sub>2</sub>, составляющего обычно приблизительно 15-35 мол.%, и температуры адиабатического горения, лежащей в диапазоне приблизительно от 1800 до приблизительно 2500°C. Рециркуляционный поток рабочего тела на основе CO<sub>2</sub> может затем в камере сгорания смешиваться с продуктами горения, обеспечивая типичную температуру смеси, составляющую приблизительно 1150°C, что может не привести к значительному образованию или разложению NO<sub>x</sub> в смешанном входном потоке турбины. Это отсутствие значительного образования и/или разложения NO<sub>x</sub> в смешанном входном потоке турбины является одним из отличительных свойств различных аспектов настоящего изобретения, конкретно относящихся к циклам генерации мощности, в которых CO<sub>2</sub> используется в качестве рабочего тела. В таких циклах генерации мощности рециркулируется большое количество предварительно нагретого CO<sub>2</sub> высокого давления, смешиваемого с продуктами горения после цикла горения и перед поступлением объединенного потока в энергетическую турбину.

В различных описанных здесь аспектах обеспечивается независимое регулирование концентрации NO<sub>x</sub> в рециркуляционном потоке CO<sub>2</sub>. Это независимое регулирование концентрации NO<sub>x</sub> дает возможность минимизации резидентного времени контакта и размера первой колонны массопереноса реактора прямого контакта, что может обеспечить то, что концентрация NO<sub>x</sub> в потоке CO<sub>2</sub> низкого давления остается в основном постоянной, и лишь небольшая часть, приблизительно от 3 до 20% для цикла генерации мощности на сжигании угля, теряется в виде азотной кислоты, которая удаляется из потока чистого CO<sub>2</sub> продукта в первой колонне массопереноса реактора прямого контакта. Потеря небольшого количества NO<sub>x</sub> может быть скомпенсирована небольшим количеством NO<sub>x</sub>, образованного в камере сгорания энергетического цикла и/или, в некоторых аспектах, от генератора NO<sub>x</sub>, в котором может использоваться окисление аммиака в присутствии катализатора. Прохождение через турбину может также привести к падению температуры приблизительно до 750°C без изменения концентрации NO<sub>x</sub>. Известная последовательность реакций образования азотной кислоты в контактном устройстве включает следующее:



Таким образом, газ конечной переработки, выходящий из второй колонны массопереноса реактора прямого контакта, в основном свободен от SO<sub>2</sub> и NO<sub>x</sub>. В некоторых аспектах H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> может быть легко превращена в гипс, мягкий сульфатный минерал, состоящий из дигидрата сернокислого кальция (CaSO<sub>4</sub>·2H<sub>2</sub>O), в реакции H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> с известняком в корпусном реакторе непрерывного перемешивания, что приведет к образованию невыщелачиваемого твердого гипсового продукта для коммерческого использования или захоронения после обезвоживания. Во второй колонне, в которой может быть относительно высокая концентрация азотной кислоты, может удаляться ртуть путем непосредственного превращения ртути в реакции с азотной кислотой в нитрат ртути.

В различных аспектах настоящего изобретения обеспечивается использование последовательности известных реакций для отделения некоторого количества SO<sub>2</sub> от общего потока продуктов горения, выходящих из энергетической турбины цикла генерации мощности, в котором используется в качестве рабочего тела рециркуляционный CO<sub>2</sub>. В одном из аспектов изобретения обеспечивается рециркуляционный поток CO<sub>2</sub> высокого давления, который поступает в рекуперативный теплообменник цикла генерации мощности и который в основном свободен от загрязнения SO<sub>2</sub>. В другом аспекте может обеспечиваться поток CO<sub>2</sub> продукта из цикла генерации мощности, который в основном свободен от загрязнения как SO<sub>2</sub>, так и NO<sub>x</sub>. Кроме того, поток CO<sub>2</sub> продукта из цикла генерации мощности может быть в основном свободен от ртути, получающейся от исходного топлива.

В различных аспектах настоящего изобретения обеспечивается система для удаления загрязняющих примесей, в которой могут применяться циклы генерации мощности, основанные на рециркуляции, рекуперации, сжигании топлива в присутствии кислорода и транскритическом CO<sub>2</sub>, с целью использования топлив с повышенным содержанием серы, азота и/или других топлив, производящих загрязняющие примеси, и которая действует при полном (в основном) удалении этих примесей. В основном полное удаление этих загрязняющих примесей защищает внутреннее технологическое оборудование и в конечном счете обеспечивает поток CO<sub>2</sub> продукта, по существу, свободный от SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, Hg и/или других загрязняющих примесей, при одновременном обеспечении эффективного выполнения других технологических задач.

Согласно еще одному аспекту обеспечен способ удаления SO<sub>2</sub> и оксидов азота NO и NO<sub>2</sub> из систе-

мы генерации мощности. В системе генерации мощности может использоваться  $\text{CO}_2$  в качестве рабочего тела в рекуперативном цикле Брайтона, включающем камеру сгорания, в которой сжигается газообразное топливо, содержащее по меньшей мере  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{HCNH}_2$  и/или  $\text{COCH}_4$ , с чистым  $\text{O}_2$ , за чем следует смешивание газообразных продуктов горения, которые теперь содержат окисленные компоненты  $\text{SO}_2$  и/или  $\text{NO}$ , с низкотемпературным рециркуляционным потоком  $\text{CO}_2$ , нагретым в рекуперативном теплообменнике энергетического цикла Брайтона. Объединенный поток затем проходит через энергетическую турбину, выхлопы которой пропускаются через рекуперативный теплообменник, нагревая тем самым рециркуляционный поток  $\text{CO}_2$ . Удаление  $\text{SO}_2$  может совершаться за счет реакций между  $\text{NO}$  и  $\text{O}_2$ , в которых может образовываться  $\text{NO}_2$  и за которыми следует реакция  $\text{NO}_2$  с  $\text{SO}_2$ , в которой может образовываться  $\text{SO}_3$  и восстанавливаться  $\text{NO}$ , за чем может последовать реакция  $\text{SO}_3$  с  $\text{H}_2\text{O}$ , приводящая к образованию  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Удаление  $\text{NO}$  и  $\text{NO}_2$  после удаления  $\text{SO}_2$  может быть выполнено за счет реакций между  $\text{NO}$ , окисленным кислородом до образования  $\text{NO}_2$ , и водой с формированием  $\text{HNO}_2$  и/или  $\text{HNO}_3$ , за чем может следовать превращение  $\text{HNO}_2$  в  $\text{HNO}_3$  и  $\text{NO}$  плюс воду. Способ может отличаться проведением реакций удаления  $\text{SO}_2$  в первом парожидкостном многоступенчатом контактном блоке, в котором уровень  $\text{SO}_2$  снижается ниже приблизительно 50 ppm, и менее 10% от  $\text{NO}$  в подаваемом потоке превращается в азотную кислоту. В другом аспекте способ может отличаться проведением реакций удаления  $\text{SO}_2$  в первом парожидкостном многоступенчатом контактном блоке, в котором уровень  $\text{SO}_2$  снижается ниже приблизительно 50 ppm, и менее 5% от  $\text{NO}$  в подаваемом потоке превращается в азотную кислоту. Кроме того, способ может также включать поддержание концентрации азотной кислоты в  $\text{CO}_2$ , подаваемом в первый парожидкостный многоступенчатый контактный блок, на уровне, позволяющем удаление  $\text{SO}_2$  и потери азотной кислоты в первом парожидкостном многоступенчатом контактном блоке сохранять на заданном уровне. Способ может также включать регулирование концентрации оксидов азота на входе первого парожидкостного многоступенчатого контактного блока путем добавления свежего  $\text{NO}$  из камеры сгорания, формирующей  $\text{NO}_x$ , и добавления дополнительных оксидов азота от внешнего источника, а также обеспечения роста концентрации оксидов азота до заданного значения за счет накопительного эффекта. Способ может также включать поддержание и регулирование концентрации оксидов азота в выхлопах турбины, которые после охлаждения образуют входной поток первого парожидкостного многоступенчатого контактного блока, путем смешивания рециркуляционного потока  $\text{CO}_2$  высокого давления, имеющего температуру между приблизительно 500 и приблизительно 800°C, с продуктами горения, получая в результате промежуточную температуру на входе турбины, лежащую между приблизительно 900 и приблизительно 1200°C, так что образуется менее 5% разницы между количеством  $\text{NO}_x$ , поступающим в камеру сгорания и выходящим из нее. Способ может также включать отбор потока чистого  $\text{CO}_2$  продукта от газового потока, выходящего из первого парожидкостного многоступенчатого контактного блока, и пропускание его через второй противоточный газожидкостный контактный аппарат, имеющий резидентное время достаточно высокое, чтобы обеспечить удаление оксидов азота из газообразного чистого  $\text{CO}_2$  продукта до значений ниже приблизительно 25 ppm. Способ может также включать обеспечение каждого контактного блока/контактного аппарата гидравлическим насосом, содержащим насос и холодильник, что создает в каждом контактном блоке/контактном аппарате обратный жидкостный поток. Способ может также включать использование комбинаций переменных скоростей обратного жидкостного потока и переменных входных концентраций оксидов азота в первом парожидкостном многоступенчатом контактном блоке для регулирования в нем реакции так, чтобы достичь желательного удаления  $\text{SO}_2$  при заданном низком уровне образования  $\text{HNO}_3$ . Способ может также включать регулирование скорости обратного потока во втором противоточном газожидкостном контактном аппарате так, чтобы достичь требуемой низкой концентрации оксидов азота в потоке чистого  $\text{CO}_2$  продукта.

В одном или нескольких вариантах выполнения способ по настоящему изобретению может быть, в частности, ориентирован на удаление кислотного газа из потока продукта энергетического цикла. Поток продукта цикла генерации мощности может представлять собой поток из цикла генерации мощности, в котором используется рециркуляционный  $\text{CO}_2$  в качестве рабочего тела, и этот поток конкретно может быть потоком продуктов горения, который опционально может расширяться для генерации мощности и/или опционально пропускаться через рекуперативный теплообменник для снижения его температуры. Соответствующие циклы генерации мощности (включая как системы, так и способы их использования) раскрыты в патентах US 9068743 на имя Палмер и др., 9062608 на имя Аллам и др., 8986002 на имя Палмер и др., 8959887 на имя Аллам и др., 8869889 на имя Палмер и др., 8776532 на имя Аллам и др., 8596075 на имя Аллам и др., полное содержание которых включено в данное описание в качестве ссылок.

В некоторых вариантах выполнения способ согласно настоящему изобретению может включать следующие стадии:

- выполнение цикла генерации мощности;
- направление потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$ , и  $\text{NO}_x$ , из цикла генерации мощности в первый башенный холодильник прямого контакта;
- приведение в контакт в первом башенном холодильнике прямого контакта потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$ , и  $\text{NO}_x$ , с первым противонаправленным циркуляционным жидкостным водным потоком;
- удаление по меньшей мере части  $\text{SO}_2$ , присутствующего в потоке продукта, в первом башенном хо-

лодильнике прямого контакта за счет реакции между  $\text{SO}_2$  и  $\text{NO}_2$  в потоке продукта в присутствии жидкостного водного потока;

выведение из первого башенного холодильника прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ ;

направление по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , обратно в цикл генерации мощности.

В одном или нескольких вариантах выполнения способ, как отмечено выше, может заключать в себе одно или несколько следующих положений.

Первый противонаправленный циркуляционный водный жидкостный поток может содержать  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Например, первый противонаправленный циркуляционный водный жидкостный поток может быть потоком воды с некоторым количеством заключенной в ней  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

Поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может содержать по меньшей мере 10 ppm  $\text{NO}_x$  исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ . Как также здесь описано, поток продукта предпочтительно включает указанное количество  $\text{NO}_x$ , что способствует удалению  $\text{SO}_2$  в первом башенном холодильнике прямого контакта.

Поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может содержать по меньшей мере 15 ppm, по меньшей мере 20 ppm или по меньшей мере 25 ppm  $\text{NO}_x$  исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ . Понятно, что такие диапазоны включают верхнюю границу, которая может быть подсчитана по дополнительным параметрам реакции. Например, верхняя граница может составлять 200, 500, 1000 или 5000 ppm исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ .

Поток продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может включать приблизительно от 10 до приблизительно 1000 ppm, приблизительно от 12 до 750 ppm или приблизительно от 15 до 500 ppm  $\text{NO}_x$  исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ . При желании могут использоваться более узкие рамки, например, приблизительно от 10 до приблизительно 150 ppm, приблизительно от 10 до приблизительно 100 ppm исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ .

Концентрацию  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , можно регулировать в некотором диапазоне так, чтобы менее 50 мас.%  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , превращалось в  $\text{HNO}_3$  в первом башенном холодильнике прямого контакта. Приведенные диапазоны концентраций  $\text{NO}_x$ , в частности, могут быть пригодны для предотвращения избыточного превращения  $\text{NO}_x$  в  $\text{HNO}_3$  в первом башенном холодильнике прямого контакта. Предпочтительно менее 25, менее 20, менее 15, менее 10, менее 5 или менее 1% по массе  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , превращается в  $\text{HNO}_3$  в первом башенном холодильнике прямого контакта. В некоторых вариантах выполнения в первом башенном холодильнике прямого контакта в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , по существу, не происходит превращения  $\text{NO}_x$  в  $\text{HNO}_3$ . Понятно, что в таких вариантах выполнения понятие "по существу, не" включает от 0 до 0,5 мас.%  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ .

Рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, может включать по меньшей мере 90 мас.%  $\text{NO}_x$ , присутствующего в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , и введенном в первый башенный холодильник прямого контакта. В некоторых вариантах выполнения рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, может включать по меньшей мере 50, по меньшей мере 75, по меньшей мере 90, по меньшей мере 95, по меньшей мере 98 или по меньшей мере 99 мас.%  $\text{NO}_x$ , присутствующего в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$  и введенном в первый башенный холодильник прямого контакта.

Рециркуляционный поток, включающий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, может, по существу, не содержать  $\text{SO}_2$ , при этом нужно понимать, что "по существу, не содержать  $\text{SO}_2$ " может включать следовые количества, такие как 5 ppm исходя из общей массы рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ . В некоторых вариантах выполнения рециркуляционный поток, включающий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, может содержать  $\text{SO}_2$  в количестве менее 100, менее 50, менее 25 или менее 15 ppm исходя из общей массы рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ .

Концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может корректироваться добавлением  $\text{NO}_x$  выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта. Например,  $\text{NO}_x$  может добавляться выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта путем соединения источника азота с топливом и окислителем в камере сгорания выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта. Как еще один пример,  $\text{NO}_x$  может добавляться непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта. В частности,  $\text{NO}_x$ , добавляемый непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта, может вырабатываться из аммиака, например в каталитическом реакторе. Однако понятно, что соответствующее количество  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может быть обеспечено путем использования топлива, содержащего достаточное количество азота.

Концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , может корректироваться уве-

личением или уменьшением выходного потока из первого рециркуляционного насоса, выполненного с возможностью приема жидкостного потока продукта из первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции жидкостного потока продукта в первый башенный холодильник прямого контакта.

Способ может быть сформирован так, что по меньшей мере часть  $\text{NO}_x$  в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , направляется обратно в систему генерации мощности.

Рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , может разделяться на поток рециркуляционного рабочего тела, направляемый обратно в цикл генерации мощности, и поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта.

Способ может также включать следующие стадии:

направление по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта.

приведение в контакт во втором башенном холодильнике прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , со вторым противонаправленным водным жидкостным потоком;

удаление по меньшей мере части  $\text{NO}_2$  из рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во втором башенном холодильнике прямого контакта за счет реакции между  $\text{NO}_2$  и водой;

выведение из второго башенного холодильника прямого контакта потока, содержащего  $\text{CO}_2$ .

Второй противонаправленный циркуляционный водный жидкостный поток может содержать  $\text{HNO}_3$ .

Способ может также включать добавление  $\text{O}_2$  к рециркуляционному потоку, содержащему  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , перед направлением рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта.

Способ может также включать сжатие рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , перед направлением рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта.

Перед направлением по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , может сжиматься с использованием компрессора в цикле генерации мощности.

Рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , может разделяться на рециркуляционную часть, направляемую обратно в цикл генерации мощности, и часть чистого продукта, направляемую во второй башенный холодильник прямого контакта.

Как очевидно из вышесказанного, настоящее изобретение относится также к системе, выполненной с возможностью удаления кислотного газа из потока продукта энергетического цикла. Такая система может содержать любой элемент, описанный как пригодный для использования согласно раскрытому здесь способу. В одном или нескольких вариантах выполнения система согласно настоящему изобретению может включать следующее:

элемент переноса, выполненный с возможностью доставки потока продукта энергетического цикла, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , от одного из компонентов энергетического цикла;

первый башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема потока продукта энергетического цикла, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , от этого компонента энергетического цикла в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{SO}_2$  из него удаляется, и циркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , выводится из первого башенного холодильника прямого контакта;

первый рециркуляционный насос, сообщающийся с первым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока из первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока в первый башенный холодильник прямого контакта;

элемент переноса, выполненный с возможностью доставки по меньшей мере части циркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , к одному из компонентов энергетического цикла.

В одном или нескольких вариантах выполнения система, как отмечено выше, может заключать в себе одно или несколько следующих положений, которые могут сочетаться в любом количестве и порядке.

Система может также содержать второй башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема по меньшей мере части циркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из первого башенного холодильника прямого контакта в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{NO}_2$  в циркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из него удаляется, и поток, содержащий  $\text{CO}_2$ , выводится из второго башенного холодильника прямого контакта.

Система может также содержать второй рециркуляционный насос, сообщающийся со вторым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока из второго башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока во второй башенный холодильник прямого контакта.

Система может также содержать ввод  $\text{O}_2$ , расположенный выше по потоку второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Система может также содержать компрессор, расположенный выше по потоку второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Изобретение включает следующие варианты осуществления, не ограничиваясь ими.

Вариант 1. Способ удаления кислотного газа из потока продукта энергетического цикла, включаю-

щий выполнение цикла генерации мощности; направление потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , из цикла генерации мощности в первый башенный холодильник прямого контакта; приведение в контакт в первом башенном холодильнике прямого контакта потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , с первым противонаправленным циркуляционным жидкостным водным потоком; удаление по меньшей мере части  $\text{SO}_2$ , присутствующего в потоке продукта, в первом башенном холодильнике прямого контакта за счет реакции между  $\text{SO}_2$  и  $\text{NO}_2$  в потоке продукта в присутствии жидкостного водного потока; выведение из первого башенного холодильника прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ ; и направление по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , обратно в цикл генерации мощности.

Вариант 2. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором первый противонаправленный циркуляционный водный жидкостный поток содержит  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

Вариант 3. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , содержит по меньшей мере 10 ppm  $\text{NO}_x$ , исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ .

Вариант 4. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , регулируется в некотором диапазоне так, чтобы менее 50 мас.%  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , превращалось в  $\text{HNO}_3$  в первом башенном холодильнике прямого контакта.

Вариант 5. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, включает по меньшей мере 90 мас.%  $\text{NO}_x$ , присутствующего в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$  и введенном в первый башенный холодильник прямого контакта.

Вариант 6. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, по существу, не включает  $\text{SO}_2$  или содержит  $\text{SO}_2$  в количестве, меньшем 50 ppm, исходя из общей массы рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ .

Вариант 7. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, при этом концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , корректируется введением  $\text{NO}_x$  выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Вариант 8. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором  $\text{NO}_x$  добавляется выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта путем соединения источника азота с топливом и окислителем в камере сгорания выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Вариант 9. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором  $\text{NO}_x$  добавляется непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Вариант 10. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором  $\text{NO}_x$ , добавленный непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку первого башенного холодильника прямого контакта, вырабатывается из аммиака.

Вариант 11. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором концентрация  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , корректируется увеличением или уменьшением выходного потока из первого рециркуляционного насоса, выполненного с возможностью приема жидкостного потока продукта из первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции жидкостного потока продукта в первый башенный холодильник прямого контакта.

Вариант 12. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором по меньшей мере часть  $\text{NO}_x$  рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , направляется обратно в цикл генерации мощности.

Вариант 13. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , разделяется на поток рециркуляционного рабочего тела, направляемый обратно в цикл генерации мощности, и поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта.

Вариант 14. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, включающий также направление по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта; приведение в контакт во втором башенном холодильнике прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , со вторым противонаправленным водным жидкостным потоком; удаление по меньшей мере части  $\text{NO}_2$  из рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во втором башенном холодильнике прямого контакта за счет реакции между  $\text{NO}_2$  и водой; и выведение из второго башенного холодильника прямого контакта потока, содержащего  $\text{CO}_2$ .

Вариант 15. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором второй противонаправленный циркуляционный водный жидкостный поток может содержать  $\text{HNO}_3$ .

Вариант 16. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, включающий также добавление  $\text{O}_2$  к рециркуляционному потоку, содержащему  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , перед направлением рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта.

Вариант 17. Способ по любому из предшествующих или последующих вариантов, в котором перед направлением по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , сжимается с использованием компрессора в цикле генерации мощности.

Вариант 18. Способ по любому из предшествующих вариантов, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , разделяется на рециркуляционную часть, направляемую обратно в цикл генерации мощности, и часть чистого продукта, направляемую во второй башенный холодильник прямого контакта.

Вариант 19. Система для удаления кислотного газа из потока продукта энергетического цикла, включающая элемент переноса, выполненный с возможностью доставки потока продукта энергетического цикла, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$ , и  $\text{NO}_x$ , от одного из компонентов энергетического цикла; первый башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема потока продукта энергетического цикла, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$ , и  $\text{NO}_x$ , от этого компонента энергетического цикла в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{SO}_2$  из него удаляется, и циркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , выводится из первого башенного холодильника прямого контакта; первый рециркуляционный насос, сообщающийся с первым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока от первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока в первый башенный холодильник прямого контакта; и элемент переноса, выполненный с возможностью доставки по меньшей мере части циркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , к одному из компонентов энергетического цикла.

Вариант 20. Система по любому из предшествующих или последующих вариантов, содержащая также второй башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема по меньшей мере части циркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из первого башенного холодильника прямого контакта в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{NO}_2$  в циркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из него удаляется, и поток, содержащий  $\text{CO}_2$ , выводится из второго башенного холодильника прямого контакта; и второй рециркуляционный насос, сообщающийся со вторым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока от второго башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока во второй башенный холодильник прямого контакта.

Вариант 21. Система по любому из предшествующих или последующих вариантов: содержащая также ввод  $\text{O}_2$ , расположенный выше по потоку второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Вариант 22. Система по любому из предшествующих или последующих вариантов, содержащая также компрессор, расположенный выше по потоку второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку первого башенного холодильника прямого контакта.

Эти и другие свойства, аспекты и преимущества изобретения станут понятны из прочтения ниже-следующего подробного описания и сопровождающих чертежей, кратко описанных далее. Изобретение включает любую комбинацию из двух, трех, четырех или более вышеупомянутых вариантов выполнения, а также комбинации из любых двух, трех, четырех или более свойств или элементов, приведенных в данном описании, вне зависимости от того, прямо ли такие свойства или элементы скомбинированы в описанном конкретном варианте выполнения изобретения. Данное описание предназначено для прочтения в целом, так что любые разделяемые свойства или элементы раскрытого изобретения в любых различных вариантах их выполнения и толкованиях должны рассматриваться как обладающие возможностью комбинирования до тех пор, пока в контексте ясно не оговорено другое.

#### **Краткое описание чертежей**

Далее изобретение рассмотрено более подробно со ссылкой на прилагаемые чертежи, на которых не обязательно с соблюдением масштаба схематически показано:

на фиг. 1А - блок-схема системы генерации мощности, в которую входят высокоэффективная камера сгорания и установленная последовательно с ней турбина, в сочетании с рециркуляционной текучей средой высокого давления,

причем система выполнена с возможностью удаления из нее загрязняющих примесей в виде кислотного газа согласно одному из аспектов настоящего изобретения;

на фиг. 1Б - блок-схема системы генерации мощности, в которую входят высокоэффективная камера сгорания и установленная последовательно с ней турбина, в сочетании с рециркуляционной текучей средой высокого давления, причем система выполнена с возможностью удаления из нее загрязняющих примесей в виде кислотного газа согласно одному из аспектов настоящего изобретения;

на фиг. 2 - графическое представление времени удаления  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$  в первой и второй колоннах массопереноса реактора прямого контакта соответственно в зависимости от возрастания уровней концентрации  $\text{NO}$  на входе первой колонны массопереноса реактора прямого контакта согласно одному из аспектов настоящего изобретения;

на фиг. 3 - графическое представление резидентного времени удаления  $\text{NO}_x$  после полного удаления  $\text{SO}_x$  в зависимости от заданной выходной концентрации  $\text{NO}_x$  во второй колонне массопереноса реактора

прямого контакта согласно одному из аспектов настоящего изобретения.

### Подробное описание осуществления изобретения

Далее представленное изобретение будет изложено более полно со ссылкой на приводимые в качестве примера аспекты его выполнения. Эти иллюстративные аспекты представлены так, чтобы данное описание было законченным и исчерпывающим, полностью раскрывая объем изобретения специалисту в данной области техники. Действительно, изобретение может быть реализовано во многих различных вариантах и не должно рассматриваться как ограниченное приведенными ниже вариантами выполнения, тем более что эти варианты представлены так, чтобы данное описание удовлетворяло всем действующим нормативным требованиям. В приведенном описании и в приложенной формуле изобретения использование форм единственного числа включает множественность объектов до тех пор, пока не оговорено иное.

Настоящее изобретение направлено на систему генерации мощности, выполненную с возможностью удаления из нее загрязняющих примесей. Как показано на фиг. 1А и Б, система 50 для удаления кислотных газов из системы 18, 19 генерации мощности может быть выполнена с возможностью удаления из системы 18, 19 отдельных загрязняющих кислотных газов (например,  $\text{SO}_x$ ,  $\text{NO}_x$  и/или им подобных). На фиг. 1А и Б блок 19 представляет базовый компонент системы генерации мощности, который может содержать в одном из аспектов камеру сгорания, турбину и теплообменник. Аналогично блок 18 представляет дополнительные базовые компоненты системы генерации мощности, такие как, например, компрессор и/или насос. В системе 18, 19 генерации мощности может использоваться топливный газ, такой как, например, углеводородный топливный газ. В некоторых аспектах используемое топливо может рассматриваться как необработанный или обработанный в минимальной степени сернистый газ или как необессеренный газ, содержащий метан и углеводородные молекулы с более длинной цепочкой в добавление к сере, азот и/или другие производные от топлива загрязняющие добавки, в которые могут входить сероводород ( $\text{H}_2\text{S}$ ), сернистый карбонил ( $\text{COS}$ ), сероуглерод ( $\text{CS}_2$ ), аммиак ( $\text{NH}_3$ ), цианистый водород ( $\text{HCN}$ ) и/или ртуть ( $\text{Hg}$ ), все они в восстановленной форме. В некоторых аспектах в системе 18, 19 генерации мощности может использоваться топливный газ, преимущественно содержащий монооксид углерода и водород наряду с загрязняющими примесями, в которые могут входить сероводород ( $\text{H}_2\text{S}$ ), сернистый карбонил ( $\text{COS}$ ), сероуглерод ( $\text{CS}_2$ ), аммиак ( $\text{NH}_3$ ), цианистый водород ( $\text{HCN}$ ) и/или ртуть, все они в восстановленной форме.

Топливный газ может получаться любым известным способом. Исключительно в качестве иллюстрации топливный газ может получаться в кислородном газификаторе угля, в таком как газификатор с водяным охлаждением типа GE-Техасо, с полным удалением шлака, за которым следует охлаждение топливного газа с передачей тепла в энергетический цикл, удаление конденсированной воды, сжатие топливного газа до давления, составляющего, например, приблизительно 320 бар.

Топливный газ (вне зависимости от того, сформирован ли он так, как приведено выше, или представляет собой необработанный или обработанный в минимальной степени сернистый газ или необессеренный газ, как упомянуто выше) сжигается в камере сгорания системы генерации мощности в потоке, содержащем окислитель, преимущественно представляющий собой комбинацию из  $\text{O}_2$  и  $\text{CO}_2$  (в некоторых вариантах выполнения смесь приблизительно из 25 мол.%  $\text{O}_2$  и 75 мол.%  $\text{CO}_2$ ). Это приводит к образованию продуктов горения, содержащих  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{O}_2$ . Предпочтительно поток продуктов горения содержит 2 мол.% избыточного  $\text{O}_2$ . Относительно большое количество рециркуляционного  $\text{CO}_2$  (например, под давлением приблизительно 300 бар и при температуре приблизительно  $720^\circ\text{C}$ ) смешивается с продуктами горения (например, в камере сгорания) для получения смешанного потока продуктов горения (например, при температуре приблизительно  $1150^\circ\text{C}$  и давлении приблизительно 300 бар). Давление этого потока продуктов горения снижается (например, приблизительно до 30 бар при выходной температуре приблизительно  $750^\circ\text{C}$ ) при его прохождении через турбину системы генерации мощности. Затем поток охлаждается в рекуперативном теплообменнике, нагревая рециркуляционный поток  $\text{CO}_2$ . Понятно, что выше приведен иллюстративный набор параметров, и значения температуры, давления и т.д. могут корректироваться при необходимости.

В блоке 19 поток 4 выходит с холодного края рекуперативного теплообменника при существенно сниженной температуре (например, приблизительно  $65^\circ\text{C}$ ) и давлении (например, приблизительно 29 бар). В этой точке поток состоит преимущественно из  $\text{CO}_2$  с некоторым количеством воды ( $\text{H}_2\text{O}$ ), находящейся в основном в жидкой фазе (например, составляющей приблизительно 85 мас.%) и содержащей некоторое количество, оставшееся в паровой фазе. Кроме того, поток 4 содержит оксидные соединения серы и азота ( $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ ) наряду с другими микрокомпонентами, такими как ртуть ( $\text{Hg}$ ), получившаяся при окислении вредных примесей, содержащихся в топливном газе.

Поток продуктов горения, выходящий из блока 19, может содержать некоторое количество  $\text{NO}_x$ , или он может быть в основном свободен от  $\text{NO}_x$ . Желательно регулировать содержание  $\text{NO}_x$  в потоке, так чтобы оно было достаточно высоким для вступления в реакцию с  $\text{SO}_x$ , как описано далее. В различных вариантах выполнения поток продуктов горения (например, поток 4), поступающий в первую колонну 30 массопереноса реактора прямого контакта (как описано далее), может, в частности, содержать  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ . Понятно, что термин  $\text{SO}_x$  обозначает наличие любого оксида серы и не ограничен конкретным оксидом серы до тех пор, пока специально не обозначено иное (так, как ссылка на включающий  $\text{SO}_x$  поток,

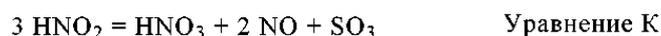
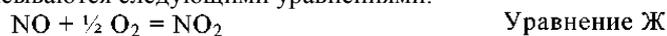
конкретно содержащий SO<sub>2</sub>). Содержащий SO<sub>x</sub> поток может включать один вид оксида серы или смесь разных видов оксидов серы. Понятно, что термин NO<sub>x</sub> обозначает наличие любого оксида азота и не ограничен конкретным оксидом азота до тех пор, пока специально не обозначено иное (так, как ссылка на включающий NO<sub>x</sub> поток, конкретно содержащий NO). Содержащий NO<sub>x</sub> поток может включать один вид оксида азота или смесь разных видов оксидов азота. Ссылка на удаление кислотного газа может, в частности, обозначать удаление или SO<sub>x</sub>, или NO<sub>x</sub>, или их обоих.

Как показано на фиг. 1А и Б, система 18, 19 генерации мощности с системой 50 удаления загрязняющих примесей кислотного газа может включать две колонны массопереноса реактора прямого контакта. Первая колонна 30 массопереноса может быть выполнена с возможностью удаления SO<sub>2</sub> в виде H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> из потока чистого CO<sub>2</sub> продукта, в то время как вторая колонна 40 массопереноса может быть выполнена с возможностью удаления NO и/или NO<sub>2</sub> в виде HNO<sub>3</sub> из потока чистого CO<sub>2</sub> продукта, отведенного из основного рециркуляционного потока. В некоторых аспектах вторая колонна 40 массопереноса может быть выполнена с возможностью удаления NO и/или NO<sub>2</sub> в виде HNO<sub>3</sub> из потока чистого CO<sub>2</sub> продукта перед введением рециркуляционной текучей среды высокого давления в компрессорный элемент 18 системы генерации мощности, как показано на фиг. 1А. В другом аспекте, как показано на фиг. 1Б, вторая колонна 40 массопереноса может быть выполнена с возможностью удаления NO и/или NO<sub>2</sub> в виде HNO<sub>3</sub> из потока чистого CO<sub>2</sub> продукта после введения рециркуляционной текучей среды высокого давления в компрессорный элемент 18 системы генерации мощности. Необходимые компоненты для этого массопереноса, включая катализатор газовой фазы NO<sub>x</sub>, присутствуют в технологическом потоке 4 текучей среды, поступающей в первую колонну 30 массопереноса, в которой удаляется SO<sub>2</sub> в виде H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.

Согласно некоторым аспектам эти компоненты включают SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> и H<sub>2</sub>O.

Согласно одному из аспектов поток 4 поступает в основание первой колонны 30 массопереноса, которая может представлять собой многоступенчатую колонну прямого контакта жидкости/пара в противотоке и может содержать внутренние средства обеспечения контакта, такие как тарелки, структурированная набивка, случайным образом распределенная набивка и/или т.п. Первая колонна 30 массопереноса снабжена нижней выходной трубой 6, которая или подает поток 7 жидкого чистого продукта, или соединяется с первым циркуляционным насосом 31 через входную линию 8. Выходная линия 9 первого циркуляционного насоса идет к первому теплообменнику 22 с водяным охлаждением, выдающему охлажденный жидкостный поток 10 в верхнюю часть первой колонны 30 массопереноса.

В некоторых аспектах в первой колонне 30 массопереноса входной, обогащенный CO<sub>2</sub> поток 4 охлаждается от приводимой в качестве примера температуры приблизительно 65°C за счет охлажденного рециркуляционного потока 10 текучей среды, опускающегося противотоком через внутреннюю контактную среду, до температуры, почти близкой к температуре окружающей среды. В частности, CO<sub>2</sub> охлаждается до минимальной температуры, приближающейся к температуре охлаждающей воды. Согласно одному из иллюстративных аспектов CO<sub>2</sub> охлаждается приблизительно до 16°C, в то время как температура охлаждающей воды достигает приблизительно 13°C. По мере прохождения CO<sub>2</sub> потока вверх через контактную среду он охлаждается почти до температуры окружающей среды, вода затем конденсируется, и протекают реакции удаления загрязняющих примесей. Эти реакции удаления загрязняющих примесей проходят, во-первых, в газовой фазе через окисление NO до NO<sub>2</sub> с использованием остаточного избытка O<sub>2</sub> во входном, обогащенном CO<sub>2</sub> потоке 4. Затем SO<sub>2</sub> окисляется за счет NO<sub>2</sub> с образованием SO<sub>3</sub> и NO. В-третьих, SO<sub>3</sub> реагирует с водой (H<sub>2</sub>O), образуя H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> в жидкой фазе, что удаляет SO<sub>2</sub>. В этом процессе NO действует как катализатор в жидкой фазе. Приведенные реакции удаления загрязняющих примесей детально описываются следующими уравнениями:



Эти реакции хорошо изучены как схема действия процесса в свинцовой камере для получения серной кислоты. Кроме того, эти реакции могут быть описаны следующим образом: уравнение Ж представляет кинетически регулируемую газовую фазу; уравнение З - газовую фазу с регулируемым равновесием и устойчивой кинетикой; уравнение И представляет кинетически регулируемую жидкую фазу; уравнение

К - жидкую фазу с регулируемым равновесием и с быстрой кинетикой; уравнение Л - газовую фазу с регулируемым равновесием и быстрой кинетикой; уравнение М представляет растворение в водной фазе, которое может быть запроектировано в контактном аппарате для осуществления достаточно быстрого процесса.

При повышенном давлении, составляющем приблизительно 29 бар, в присутствии избыточной жидкой воды, при парциальном давлении  $O_2$ , составляющем приблизительно 0,58 бар, и при содержании  $SO_2$  в количестве приблизительно от 100 до приблизительно 2000 ppm и содержании  $NO_x$  в количестве приблизительно от 20 до приблизительно 2000 ppm в потоке 4 эти реакции протекают самопроизвольно и быстро. Кроме того, представленная система регулируется так, чтобы обеспечивать концентрацию  $SO_2$  в потоке 11, выходящем сверху первой колонны 30 массопереноса, ниже приблизительно 50 ppm, в то время как концентрация  $HNO_2$  и  $HNO_3$  в потоке 7 жидкого, чистого продукта ниже приблизительно 1%.

В одном из аспектов изобретения эти концентрации получаются путем регулирования входной концентрации  $NO_x$  в потоке 4 и/или регулирования выходного потока 9 из первого циркуляционного насоса 31, что обеспечивает возможность корректировки отношения жидкости к пару и, следовательно, эффективности разделения в первой колонне 30 массопереноса. В другом аспекте концентрация  $NO_x$  в обогащенном  $CO_2$  входном потоке 4 может корректироваться, в то время как выходной поток 9 из первого циркуляционного насоса 31 остается постоянным, так чтобы обеспечивать соответствующие значения концентрации  $SO_2$  в потоке 11, выходящем сверху первой колонны 30 массопереноса, и/или концентрации  $HNO_2$  и  $HNO_3$  в жидкостном потоке 7 чистого продукта.

Согласно некоторым аспектам изобретения, как показано на фиг. 1А, выходной поток 11  $CO_2$  продукта, поступающий с верха первой колонны 30 массопереноса, может разделяться. Например, как показано на фиг. 1А, основная часть потока 11  $CO_2$  продукта отводится как используемый повторно рециркуляционный поток 1А текучей среды, поступающий на элементы 18 сжатия и перекачки системы 19 генерации мощности, в то время как поток 2А чистого продукта поступает во вторую колонну 40 массопереноса. Согласно другому аспекту, как показано на фиг. 1Б, весь выходной поток 11  $CO_2$  продукта, поступающий с верха первой колонны 30 массопереноса, может быть подан на элемент 18 сжатия и перекачки системы генерации мощности как используемый повторно, рециркуляционный поток 1В текучей среды. После прохождения используемым повторно, рециркуляционным потоком текучей среды по меньшей мере через один элемент 18 сжатия и/или перекачки рециркуляционное рабочее тело 3 может быть разделено так, что поток 2В чистого продукта поступает во вторую колонну 40 массопереноса после прохождения через по меньшей мере один элемент 18 сжатия системы генерации мощности. Конструкция второй колонны 40 массопереноса обеспечивает достаточное время контакта и эффективность разделения для протекания реакций, приводящих к образованию оксида азота. Вторая колонна 40 массопереноса может включать нижний выходной жидкостный поток 12, который может быть разделен на поток 13 товарного оксида азота и рециркуляционный поток 14 оксида азота. Понятно, что эти потоки оксида азота представляют собой водосодержащие потоки с переменной долей оксида азота.

В одном из аспектов рециркуляционный поток 14 оксида азота проходит через второй циркуляционный насос 41. Выходной поток 15 второго циркуляционного насоса 41 подается в теплообменник 23 с охлаждением водой и/или окружающим воздухом, создающий охлажденный, разбавленный входной поток 16 второй колонны 40 массопереноса.

В некоторых аспектах вторая колонна 40 массопереноса содержит вторую контактную секцию, расположенную выше точки входа охлажденного, разбавленного потока 16 оксида азота. Вторая контактная секция, расположенная над точкой входа охлажденного, разбавленного потока 16 оксида азота, может орошаться входным потоком 24 чистой воды. В одном из аспектов расход во входном потоке 24 чистой воды может корректироваться для получения требуемой концентрации  $HNO_3$  в потоке 13 чистого оксида азота. Этот расход может также влиять на эффективное исключение выноса оксидов в поток 17 конечного чистого  $CO_2$  продукта. Поток 17 конечного чистого  $CO_2$  продукта будет, по существу, свободен от микровключений оксидов и будет иметь низкую, соответствующую техническим требованиям концентрацию  $SO_2$  и  $NO_x$ .

В одном из аспектов последовательность реакций массопереноса может выполняться в первой колонне 30 массопереноса реактора прямого контакта с получением достаточного количества газа для жидкостного контакта, при котором  $SO_3$ , образованный в газовой фазе, быстро и эффективно преобразуется в  $H_2SO_4$  в жидкой фазе.

Первая колонна 30 массопереноса может содержать структурированную и/или случайным образом распределенную набивку и/или перегонные тарелки, выполненные с возможностью прохождения в противотоке газа и жидкости. Кроме того, первая колонна 30 массопереноса может содержать нижний подвод для приема обогащенного  $CO_2$  входного потока 4 и верхний подвод для приема охлажденного рециркуляционного потока 10 разбавленной кислоты. При таком устройстве первой колонны 30 массопереноса может быть сформирован замкнутый контур охлаждающей текучей среды, рециркулирующей через теплообменник 22 напрямую нагрева. В некоторых аспектах тепло, отбираемое в первой колонне 30 массопереноса, может передаваться в средство охлаждения до температуры окружающей среды, такое как циркуляционная система с охлаждающей водой, которая может содержать башенный холодильник и/или

воздушный вентиляторный холодильник с принудительной конвекцией.

Кроме того, первая колонна 30 массопереноса может содержать эффективный каплеуловитель, размещенный выше контактной секции. Каплеуловитель может быть выполнен с возможностью выведения разбавленной  $H_2SO_4$  из выходного потока 11  $CO_2$  продукта с целью защиты расположенного ниже по потоку компрессорного оборудования от коррозии; растворы, содержащие  $H_2SO_4$ , имеют тенденцию к образованию неприятного тумана. Альтернативно может быть установлена дополнительная секция контактной среды, орошаемая потоком чистой воды для разбавления кислотных микровключений и/или удаления выносов кислотных микровключений. Дополнительная секция контактной среды может вводиться для оптимизации газожидкостного контакта, что может ускорить реакции массопереноса, в которых получается серная кислота, может ограничить потребность в дополнительной охлаждающей среде и может конденсировать образовавшуюся при горении остаточную воду из рециркуляционного потока после эффективной рекуперации тепла от выхлопного потока в рекуперативном теплообменнике системы генерации мощности. Желательно, чтобы оптимизация газожидкостного контакта, ограничение потребности в дополнительной охлаждающей среде и/или конденсация остаточной, образовавшейся при горении  $H_2O$ , происходили при разумных размерах колонны и времени обработки.

Согласно некоторым аспектам условия в камере сгорания системы 19 генерации мощности обеспечивают незначительный выход  $NO$  за счет соединения азота, азотсодержащих компонентов топлива и/или азота, поступающего при проникновении воздуха через уплотнения системы, с избыточным кислородом при типичных температурах горения, составляющих приблизительно от 1500 до приблизительно 2500°C, типичных давлениях горения, составляющих приблизительно от 100 до приблизительно 500 бар, и избытке  $O_2$ , который может содержать приблизительно от 0 до приблизительно 5 мол.%  $O_2$  после горения и смешивания с рециркуляционным  $CO_2$  высокого давления. В одном из аспектов могут быть желательными более высокие температуры пламени, так как преобладающее значение может иметь механизм термического образования  $NO$ . Желательно сохранять это количество  $NO$ , поскольку увеличенная концентрация  $NO$  способствует протеканию и ускорению реакций удаления  $SO_2$  в  $H_2SO_4$  в первой колонне 30 массопереноса, обеспечивая их достаточную скорость. Сохранение  $NO$ , выработанного в камере сгорания, можно производить конструктивными средствами, такими как, например, накопление  $NO$  в системе с полузамкнутым контуром и/или минимизация конверсии газообразного  $NO_2$  (образованного в реакции  $NO$  с  $O_2$ ) в жидкую  $HNO_3$ . Накопление  $NO$  в системе с полузамкнутым контуром может обеспечиваться специфической конструкцией системы 18, 19 генерации мощности, и минимизация преобразования газообразного  $NO_2$  в жидкую  $HNO_3$  может достигаться подбором резидентного времени первой колонны 30 массопереноса так, чтобы селективно удалять  $SO_2$  согласно описанному.

В одном из аспектов концентрация  $NO$  может поддерживаться высокой за счет тщательного подбора средств прямого контакта в первой колонне 30 массопереноса так, чтобы иметь резидентное время, при котором минимизируется преобразование  $NO_2$  в  $HNO_2$  и/или в  $HNO_3$ . В частности, было установлено, что, пока  $SO_2$  присутствует в охлажденных турбинных выхлопах,  $NO_2$ , получившийся при окислении  $NO$  кислородом, немедленно переходит обратно в  $NO$  в реакции с  $SO_2$ . Тем самым немедленный переход  $NO_2$  обратно в  $NO$  сохраняет высокую концентрацию катализатора в газовой фазе. При этом раз достаточно большое количество  $SO_2$  непрерывно удаляется из газовой фазы в жидкую фазу за счет преобразования  $SO_2$  в  $H_2SO_4$ , происходят последующие реакции, в которых  $NO_2$  растворяется в воде с формированием  $HNO_2$  и  $HNO_3$ . Кроме того, в одном из предпочтительных аспектов в первой колонне 30 массопереноса обеспечиваются условия для превращения меньшего количества  $NO$  в  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$  за счет второй последовательности реакций в первой колонне 30 массопереноса. Например, условия в первой колонне 30 массопереноса могут обеспечивать обогащенный  $CO_2$  выходной поток 11, покидающий первую колонну массопереноса, в которой менее 30 мас.%  $NO_x$  превращается в  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$ . В некоторых аспектах приблизительно менее 5%  $NO_x$  превращается в  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$  перед выходом рециркуляционного рабочего тела высокого давления из первой колонны массопереноса. Преобразование большего количества  $NO$  в  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$  снизило бы концентрацию  $NO$  во входном, богатом  $CO_2$  потоке 4, выходящем из турбины системы 19 генерации мощности и поступающем в первую колонну 30 массопереноса, снижая тем самым скорость превращения  $SO_2$  в  $H_2SO_4$ . Кроме того, некоторое количество превращенных  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$  выходит из первой колонны 30 массопереноса в жидкостном потоке 7 серной кислоты и может быть затем нейтрализовано. Реальное количество превращенного  $NO_x$  подбирается с учетом конкретной технологической потребности.

При выборочном удалении  $SO_2$  в первой колонне 30 массопереноса в ее рециркуляционной текучей среде может также накапливаться серная кислота (и/или следы  $HNO_3$ ). В одном из аспектов в жидкостном потоке серной кислоты может присутствовать небольшая концентрация  $HNO_3$ , но ее значение может быть сведено к минимуму. Реакция  $HNO_3$  со ртутью, полученной из угля, протекает первоначально во второй колонне 40 массопереноса с образованием азотнокислой ртути. Смешивание  $H_2SO_4 + HNO_2 + HNO_3$  может также перевести другие загрязняющие примеси с низкой концентрацией в растворимые соли, которые могут быть удалены в жидкой кислотной фазе. Дополнительно или альтернативно остаточная серная кислота, образованная в первой колонне 30 массопереноса, может быть подвергнута реакции с водной пульпой измельченного известняка и/или другого подходящего щелочного соединения для превра-

щения  $H_2SO_4$  в сернокислый кальций. Полученный сернокислый кальций может отводиться в твердом виде и направляться на коммерческое использование или удаляться. Кроме того, на этой стадии может выводиться  $CO_2$  в виде чистого продукта, который может объединяться с потоком 1 чистого  $CO_2$  из цикла генерации мощности и/или отводиться в общем или отдельном потоке 17 вентиляции системы в трубопроводную линию 21 для транспортировки.

В некоторых аспектах NO, полученного естественным образом в данном процессе, может оказаться недостаточно для катализа достаточного удаления  $SO_2$  из технологического газа. Согласно одному из аспектов в систему 50 генерации мощности может быть введен дополнительный поток 5, содержащий в основном NO. В некоторых аспектах NO может быть получен, например, окислением аммиака ( $NH_3$ ) смесью, содержащей кислород и/или диоксид углерода, в блоке 20 выработки NO в присутствии катализатора. Введение чистого  $N_2$  в систему 18, 19 генерации мощности может быть нежелательным, так как оно может оказать существенное влияние на динамику системы. Например, введение чистого  $N_2$  может изменить важные параметры рабочего тела, такие как сжимаемость текучей среды. Путем регулирования входной концентрации NO, поступающего в первую колонну 30 массопереноса, введением NO в дополнительный поток 5 может регулироваться требуемое время удаления  $SO_2$  из технологического газа, оставаясь в заданном диапазоне резидентного времени колонны. Главным в этом механизме регулирования является то, что NO можно не потреблять до тех пор, пока, по существу, весь  $SO_2$  не будет удален. По существу, первая колонна 30 массопереноса может быть налажена и/или спроектирована за счет точного регулирования входной концентрации NO так, чтобы удалялся почти весь  $SO_2$  (например, 99,99%) без существенного выведения NO. Конкретная концентрация NO может быть определена по входной концентрации  $SO_2$ , а также по заданному резидентному времени удаления  $SO_2$ . Например, согласно одному из аспектов концентрация NO на входе первой колонны 30 массопереноса может составлять приблизительно 152 ppm, и концентрация  $SO_2$  там же - приблизительно 1318 ppm. В некоторых аспектах коэффициент дефлегмации как в первой колонне 30 массопереноса, так и во второй колонне 40 массопереноса можно регулировать путем регулирования расходов через первый и/или второй циркуляционные насосы 31, 41. В некоторых аспектах один из вариантов системы генерации мощности может предусматривать резидентное время, которое может быть оптимизировано так, что при завершении удаления  $SO_2$  и отделении газовой фазы от жидкой фазы превращение NO в  $HNO_2$  и/или  $HNO_3$  может не происходить.

В одной из иллюстративных систем 18, 19 генерации мощности, содержащих рециркуляционную текучую технологическую среду, количество NO в технологическом потоке может сохраняться за счет подбора и/или настройки резидентного времени колонны и концентраций различных компонентов на входе первой колонны 30 массопереноса так, чтобы в ней достигалась заданная эффективность удаления  $SO_2$  и в то же время допускалось наличие остаточного NO в выходном потоке 11  $CO_2$  продукта на выходе из этой колонны 30. Согласно одному из иллюстративных аспектов резидентное время первой колонны составляет приблизительно 30 с и концентрация NO на выходе первой колонны составляет приблизительно 155 ppm. При этом имеет место накопительный эффект, при котором создается повышенная концентрация NO в потоке 1 рециркуляционной текучей среды, что тем самым может снизить количество добавляемого NO, требуемого из блока 20 выработки NO для поддержания постоянной скорости удаления  $SO_2$  в первой колонне 30 массопереноса реактора прямого контакта. Этот накопительный эффект особенно значим в системах, в которых горение приводит к повышенным концентрациям  $SO_2$ , позволяя существенно снизить время удаления за счет повышения концентрации NO в системе.

В некоторых аспектах после охлаждения и удаления  $SO_2$  в первой колонне 30 массопереноса реактора прямого контакта системы 50 генерации мощности выходной поток 11  $CO_2$  продукта может быть разделен на два потока и сжат до давления, лежащего в диапазоне приблизительно от 100 до приблизительно 500 бар. Меньший из потоков разбавляет поток кислорода, формирующий смесь окислителя, используемую в камере сгорания, в то время как больший из потоков нагревается в рекуперативном теплообменнике системы 19 генерации мощности до температуры в диапазоне приблизительно от 500 до приблизительно 800°C и смешивается с выходным газом камеры сгорания, формируя входной поток турбины. В этих условиях фактически не происходит разрушения NO из-за превращения NO в  $N_2$  и  $O_2$  и/или образования NO в реакции между  $N_2$  и  $O_2$ . Величина концентрации NO в рекуперированном, охлажденном и обогащенном  $CO_2$  потоке 4, поступающем в первую колонну 30 массопереноса, может быть выше концентрации и общего содержания, покидающих первую колонну 30 массопереноса и поступающих в поток 1 рециркуляционной текучей среды, так как в колонне 30 формируется небольшое количество  $HNO_3$  и  $NO_x$ , присутствующий в потоке 2 чистого  $CO_2$  продукта, поступает во вторую колонну 40 массопереноса.

Кроме того, конструкция первой и второй колонн 30, 40 массопереноса в идеале должна быть такой, чтобы при нахождении в них газа в течение резидентного времени создавались приемлемые условия протекания реакции для систем 18, 19 генерации мощности, действующих во всем рабочем диапазоне от максимума выходной мощности до минимальных значений. Например, при максимальном диапазоне изменения (например, 50% потока турбины) резидентное время колонны удваивается, что может привести к значительно большим потерям NO. Однако увеличенное время реакций может обеспечить пониженную концентрацию NO во входящем газе, что все же может сохранить заданное удаление  $SO_2$ . Эта кон-

центрация NO может быть поднята за счет добавления и накопления рассмотренным выше образом.

Согласно одному из иллюстративных аспектов вторая колонна 40 массопереноса может быть меньше первой колонны 30 массопереноса и может быть введена в поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта системы 18, 19 генерации мощности. Кроме того, в меньшей, второй колонне 40 массопереноса могут использоваться те же реакции и/или конструктивные подходы, что и в первой колонне 30 массопереноса так, чтобы меньшая вторая колонна 40 массопереноса также была выполнена с возможностью удаления  $\text{SO}_2$ . Меньшая, вторая колонна 40 массопереноса реактора прямого контакта может затем изменять концентрацию NO до концентрации, заданной для местоположения ниже по потоку, и может дополнительно или альтернативно вырабатывать  $\text{HNO}_2$  и  $\text{HNO}_3$  в технологическом процессе. Эта колонна может действовать при давлении, одинаковом с первым реактором прямого контакта, или при значительно увеличенном давлении после стадии сжатия или после нескольких последовательных стадий сжатия. Согласно другому аспекту вторая колонна 40 массопереноса может действовать при температуре, одинаковой с температурой в первой колонне 30 массопереноса, или при значительно увеличенной температуре по сравнению с первой колонной массопереноса, и ее параметры могут зависеть от требований к конечному потоку 17 чистого  $\text{CO}_2$  продукта.

На конструкцию первой и второй колонн 30, 40 массопереноса могут влиять параметры скорости удаления  $\text{SO}_2$  и NO. Например, удаление  $\text{SO}_2$  ускоряется приблизительно до стопроцентной скорости удаления при возрастании резидентного времени, давления и концентрации NO в первой колонне 30 массопереноса. Поэтому высокая входная концентрация NO может быть желательной для увеличения скорости удаления  $\text{SO}_2$ . Например, на фиг. 2 представлен график, показывающий, что приведенные фиксированное резидентное время, время удаления  $\text{SO}_2$  в первой колонне 30 массопереноса снижается при увеличении концентрации NO. На фиг. 3 показано, что время удаления NO по отношению к заданному порогу выходной концентрации асимптотически приближается к фиксированному требуемому времени удаления, как только в основном удален  $\text{SO}_2$ . Это показывает, что даже при высоких уровнях накопления NO дополнительное время, необходимое для удаления NO до заданного порога во второй колонне 40 массопереноса, в конечном счете достигает асимптотического времени, в то время как время удаления  $\text{SO}_2$  в первой колонне 30 массопереноса устойчиво снижается при введении избыточного NO. Это подразумевает, что добавление NO для увеличения скорости удаления  $\text{SO}_2$  в первой колонне 30 массопереноса может быть поддержано во второй колонне 40 массопереноса, которая может быть приспособлена и/или спроектирована с ориентацией на асимптотическое время удаления плюс соответствующий коэффициент безопасности. В некоторых аспектах удаление  $\text{NO}_x$  во втором аппарате может быть дополнительно ускорено введением в колонну дополнительного кислорода.

По другим аспектам удаление  $\text{NO}_x$  во второй колонне 40 может быть ускорено за счет сжатия потока 2A и/или 2B до давления, превышающего давление в первой колонне 30, перед поступлением во вторую колонну. Это ускорит превращение NO в  $\text{NO}_2$ , как показано в уравнении Ж, так как реакции удаления будут заканчиваться быстрее. Точное значение выходного давления этого компрессора может быть подобрано так, чтобы во второй колонне 40 обеспечивалось требуемое удаление. Такие варианты выполнения проиллюстрированы на фиг. 1A, на которой в линии 2A между блоком 18 и второй колонной 40 присутствует компрессор 62. Компрессор может быть необязательным. Альтернативно, обращаясь к фиг. 1B, весь рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , может вводиться в блок 18 системы генерации мощности, где он может подвергнуться сжатию. Соответственно поток 2B может быть отобран непосредственно из блока 18 под любым давлением для доставки во вторую колонну 40.

В некоторых вариантах выполнения в этот поток желательно вводить дополнительный кислород до поступления во вторую колонну 40. Как показано на фиг. 1B, введен источник 60 кислорода для подачи кислорода по линии 61a в поток 2B до поступления во вторую колонну 40. Понятно, что такие элементы для введения кислорода аналогично могут использоваться для введения кислорода в линию 2A на фиг. 1A. Источник кислорода может быть необязательным. По другим аспектам введение кислорода и использование повторного сжатия могут производиться для дополнительного ускорения удаления  $\text{NO}_x$ .

Настоящее изобретение поясняется также нижеследующим примером(ми), приведенным для иллюстрации некоторых аспектов настоящего изобретения и не подразумевающим ограничения его объема.

Пример.

Была выполнена оценка относительно системы генерации мощности, в которой используется сжигание в атмосфере кислорода углеродосодержащего топлива для приведения в действие энергетического цикла Брайтона, работающего на полностью рекуперированном сверхкритическом диоксиде углерода. В различных аспектах в такой компоновке по их существу  $\text{CO}_2$  улавливается при давлении, подходящем для хранения и/или подачи в магистраль. В аспектах, в которых концентрации серы и азота в сжигаемом топливе низки,  $\text{CO}_2$  может улавливаться с использованием минимальных завершающих операций. Следовательно,  $\text{CO}_2$ , высвобождаемый из цикла, может отводиться в магистраль  $\text{CO}_2$  с заданной молярной чистотой при минимальной дополнительной завершающей обработке или вообще без нее. Однако, если топливо содержит повышенные концентрации серы и азота и/или если в систему поступает относительно много воздуха, температуры горения и температуры на горячем краю установки приводят к окислению топлива, а также других способных окисляться соединений, и могут привести к образованию кислотных

газов, таких как  $\text{NO}_x$  и/или  $\text{SO}_x$ , которые должны быть удалены как для защиты технологического оборудования, так и для поддержания удовлетворительных уровней чистоты  $\text{CO}_2$  в магистрали.

В одном из примеров система 50 сконфигурирована описанным образом с первой и второй колоннами массопереноса. Первая колонна массопереноса включена в рециркуляционный поток текучей среды, и в ней  $\text{SO}_2$  обрабатывается и селективно удаляется из рециркуляционного потока. На входе первой колонны массопереноса в рециркуляционный поток текучей среды добавляется  $\text{NO}$  любой подходящей технологией при стабильном расходе, который подбирается так, чтобы регулировать полное удаление  $\text{SO}_2$  в первой колонне массопереноса при заданном резидентном времени. В одном из иллюстративных вариантов выполнения скорость инъекции  $\text{NO}$  составляет приблизительно 46,67 фунт/ч (21,2 кг/ч) и используется окисление аммиака в присутствии катализатора. В первой колонне массопереноса при давлении приблизительно 30 бар и температуре приблизительно от 60°F (15,6°C) до приблизительно 200°F (93,3°C)  $\text{SO}_2$  удаляется, а большая часть  $\text{NO}$  пропускается на выход вместе с рабочим телом и, таким образом, рециркулирует в процессе, приводя к повышенной концентрации  $\text{NO}$  во всей системе. Эта повышенная концентрация  $\text{NO}$  способствует ускорению удаления  $\text{SO}_2$  в первой колонне массопереноса.

Вторая колонна массопереноса действует на выходе системы генерации мощности при давлении приблизительно 30 бар и приблизительно при температуре окружающей среды. В частности, во второй колонне массопереноса удаляется оставшийся в рабочем теле  $\text{NO}$  до заданной концентрации, составляющей приблизительно 20 ppm. Компьютерное моделирование иллюстративной системы было завершено, и его результаты и соответствующие входные данные, такие как резидентное время и входные и выходные концентрации  $\text{NO}$  и  $\text{SO}_2$ , приведены ниже в таблице. Результаты и соответствующие входные данные, приведенные в таблице, предназначены для иллюстрации и не предназначены для ограничения объема настоящего изобретения. Приведенные здесь результаты не предназначены для интерпретации как конкретные, но просто отражают приближенный результат (например, количество  $\text{SO}_x$  (молярное), выходящее из второй колонны массопереноса и равное  $1.39\text{E}-20$ , обозначает, что из второй колонны массопереноса выходит, по существу, нулевое количество  $\text{SO}_x$ ).

Параметры первой и второй колонн массопереноса  
реактора прямого контакта в системе генерации мощности

Первая колонна массопереноса реактора прямого контакта	с	Заданное резидентное время	30
Вторая колонна массопереноса реактора прямого контакта	с	Заданное резидентное время	22,2
Добавление NO <sub>x</sub>	фунт-моль_NO/ч	Введенный NO	1,5553
	фунт_NO/ч	Введенный NO	46,6685495
Первая колонна массопереноса реактора прямого контакта	фунт/ч	Общий NO на входе	780,744945
		Общий SO <sub>2</sub> на входе	14458,5508
		NO на выходе	780,474244
		SO <sub>2</sub> на выходе	0,000263097
	Молярная доля	Вход NO	0,000151911
		Вход SO <sub>2</sub>	0,00131764
		Выход NO <sub>x</sub>	0,000155385
		Выход SO <sub>x</sub>	2,45E-11
фунт/ч	Общий массовый выходной поток	7335076,8	
Вторая колонна массопереноса реактора прямого контакта	фунт/ч	NO <sub>x</sub> на входе	44,1640181
		SO <sub>x</sub> на входе	1,49E-05
		NO <sub>x</sub> на выходе	8,44E-15
		SO <sub>x</sub> на выходе	5,6701554
	Молярная доля	NO <sub>x</sub> на входе	0,000155632
		SO <sub>x</sub> на входе	2,46E-11
		Выход NO <sub>x</sub>	2,00E-05
		Выход SO <sub>x</sub>	1,39E-20
фунт/ч	Общий массовый выходной поток	413664,494	

Хотя для полного удаления SO<sub>2</sub> увеличение скорости введения NO в рециркуляционный газовый технологический поток должно уменьшать заданное резидентное время в первой колонне массопереноса, существует баланс между переменной стоимостью мощности прокачки, введением NO, нейтрализацией и капитальными затратами, который однозначно определяет заданное резидентное время для оптимальной скорости удаления SO<sub>2</sub> и затраты.

Различные модификации и другие варианты выполнения изобретения могут быть осуществлены специалистом в данной области, которому данное описание предоставляет преимущества, заключающиеся в изложенных в нем идеях и сопровождающих чертежах. Поэтому должно быть понятно, что изобретение не ограничено конкретными приведенными частными вариантами и модификациями, и в объем изобретения, определяемый приложенной формулой изобретения, включены и другие варианты выполнения. Хотя в данном описании могут быть использованы специфические термины, они используются исключительно в общепринятом и описательном смысле, а не в целях внесения ограничений.

#### ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ удаления кислотного газа из потока продукта энергетического цикла, включающий выполнение цикла генерации мощности; направление потока продукта, содержащего CO<sub>2</sub>, SO<sub>x</sub> и NO<sub>x</sub>, из цикла генерации мощности в первый башенный холодильник прямого контакта; приведение в контакт в первом башенном холодильнике прямого контакта потока продукта, содержащего CO<sub>2</sub>, SO<sub>x</sub> и NO<sub>x</sub>, с первым противонаправленным циркуляционным жидкостным водным потоком; удаление по меньшей мере части SO<sub>2</sub>, присутствующего в потоке продукта, в первом башенном холодильнике прямого контакта посредством реакции между SO<sub>2</sub> и NO<sub>2</sub> в потоке продукта в присутствии

жидкостного водного потока;

выведение из первого башенного холодильника прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ ;

доставку по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , обратно в цикл генерации мощности;

при этом концентрацию  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , корректируют введением  $\text{NO}_x$  выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта.

2. Способ по п.1, в котором первый противонаправленный циркуляционный жидкостный водный поток содержит  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

3. Способ по п.1, в котором поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , включает по меньшей мере 10 ppm  $\text{NO}_x$ , исходя из общей массы потока продукта, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ .

4. Способ по п.1, в котором концентрацию  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , регулируют в определенном диапазоне, так что менее 50 мас.%  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , превращается в  $\text{HNO}_3$  в первом башенном холодильнике прямого контакта.

5. Способ по п.1, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, включает по меньшей мере 90 мас.%  $\text{NO}_x$ , присутствующего в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$  и введенном в первый башенный холодильник прямого контакта.

6. Способ по п.1, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$  и выведенный из первого башенного холодильника прямого контакта, по существу, не содержит  $\text{SO}_2$  или содержит  $\text{SO}_2$  в количестве, меньшем 50 ppm, исходя из общей массы рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ .

7. Способ по п.1, в котором  $\text{NO}_x$  добавляют выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта путем объединения источника азота с топливом и окислителем в камере сгорания выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта.

8. Способ по п.1, в котором  $\text{NO}_x$  добавляют непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта.

9. Способ по п.8, в котором  $\text{NO}_x$ , добавляемый непосредственно в поток продукта, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта, вырабатывают из аммиака.

10. Способ по п.1, в котором концентрацию  $\text{NO}_x$  в потоке продукта, содержащем  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , корректируют увеличением или уменьшением выходного потока из первого рециркуляционного насоса, выполненного с возможностью приема жидкостного потока продукта из первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции жидкостного потока продукта в первый башенный холодильник прямого контакта.

11. Способ по п.1, в котором по меньшей мере часть  $\text{NO}_x$  в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , направляют обратно в цикл генерации мощности.

12. Способ по п.1, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , разделяют на поток рециркуляционного рабочего тела, направляемый обратно в цикл генерации мощности, и поток чистого  $\text{CO}_2$  продукта.

13. Способ по п.1, дополнительно включающий введение по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта;

приведение в контакт во втором башенном холодильнике прямого контакта рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , со вторым противонаправленным циркуляционным жидкостным водным потоком;

удаление по меньшей мере части  $\text{NO}_2$  из рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во втором башенном холодильнике прямого контакта за счет реакции между  $\text{NO}_2$  и водой;

выведение из второго башенного холодильника прямого контакта потока, содержащего  $\text{CO}_2$ .

14. Способ по п.13, в котором второй противонаправленный циркуляционный жидкостный водный поток содержит  $\text{HNO}_3$ .

15. Способ по п.13, включающий введение  $\text{O}_2$  в рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , перед направлением рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта.

16. Способ по п.13, в котором перед введением по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , во второй башенный холодильник прямого контакта рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , сжимают в цикле генерации мощности с использованием компрессора.

17. Способ по п.13, в котором рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , разделяют на рециркуляционную часть, направляемую обратно в цикл генерации мощности, и часть чистого продукта, направляемую во второй башенный холодильник прямого контакта.

18. Система для удаления кислотного газа из потока продукта энергетического цикла для осуществления способа по пп.1-17, содержащая

элемент переноса, выполненный с возможностью доставки потока продукта энергетического цикла,

содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , от одного из компонентов энергетического цикла;

первый башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема потока продукта энергетического цикла, содержащего  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , от упомянутого компонента энергетического цикла в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{SO}_2$  из него удаляется, и рециркуляционный поток, содержащий  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , выводится из первого башенного холодильника прямого контакта;

источник  $\text{NO}_x$ , выполненный с возможностью добавления  $\text{NO}_x$  в поток продукта энергетического цикла, содержащий  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_x$  и  $\text{NO}_x$ , выше по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта;

первый рециркуляционный насос, сообщающийся с первым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока из первого башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока в первый башенный холодильник прямого контакта;

элемент переноса, выполненный с возможностью доставки по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , к одному из компонентов энергетического цикла.

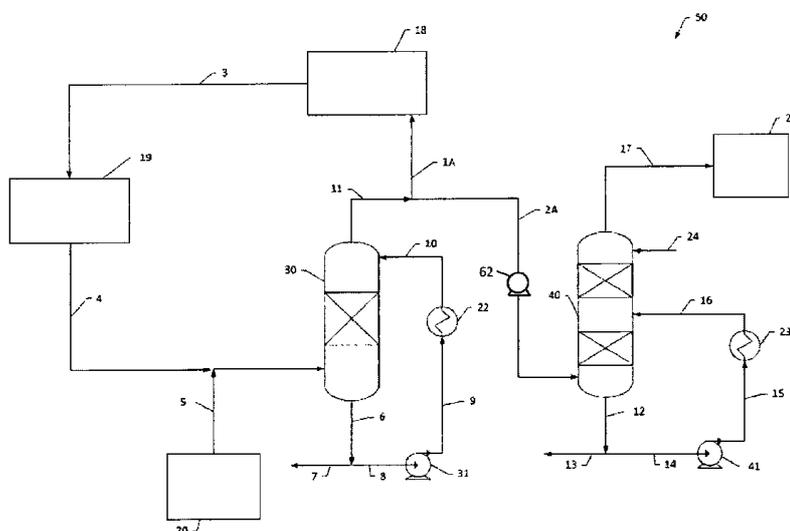
19. Система по п.18, дополнительно содержащая

второй башенный холодильник прямого контакта, выполненный с возможностью приема по меньшей мере части рециркуляционного потока, содержащего  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из первого башенного холодильника прямого контакта в таких условиях реакции, что по меньшей мере часть  $\text{NO}_2$  в рециркуляционном потоке, содержащем  $\text{CO}_2$  и  $\text{NO}_x$ , из него удаляется, и поток, содержащий  $\text{CO}_2$ , выводится из второго башенного холодильника прямого контакта;

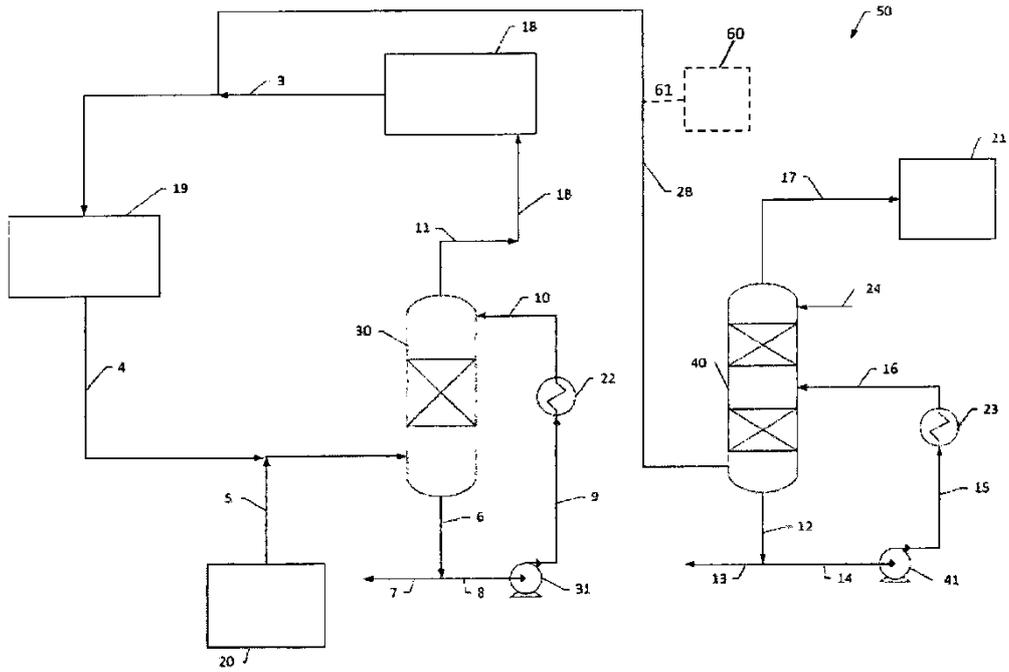
второй рециркуляционный насос, сообщающийся со вторым башенным холодильником прямого контакта и выполненный с возможностью приема жидкостного потока из второго башенного холодильника прямого контакта и рециркуляции по меньшей мере части этого жидкостного потока во второй башенный холодильник прямого контакта.

20. Система по п.19, содержащая ввод  $\text{O}_2$ , расположенный выше по потоку от второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта.

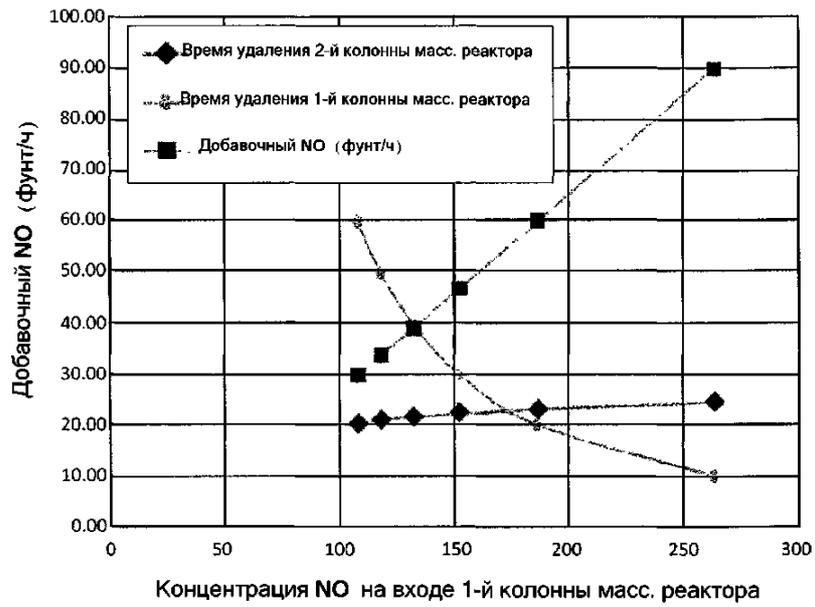
21. Система по п.19, содержащая компрессор, расположенный выше по потоку от второго башенного холодильника прямого контакта и ниже по потоку от первого башенного холодильника прямого контакта.



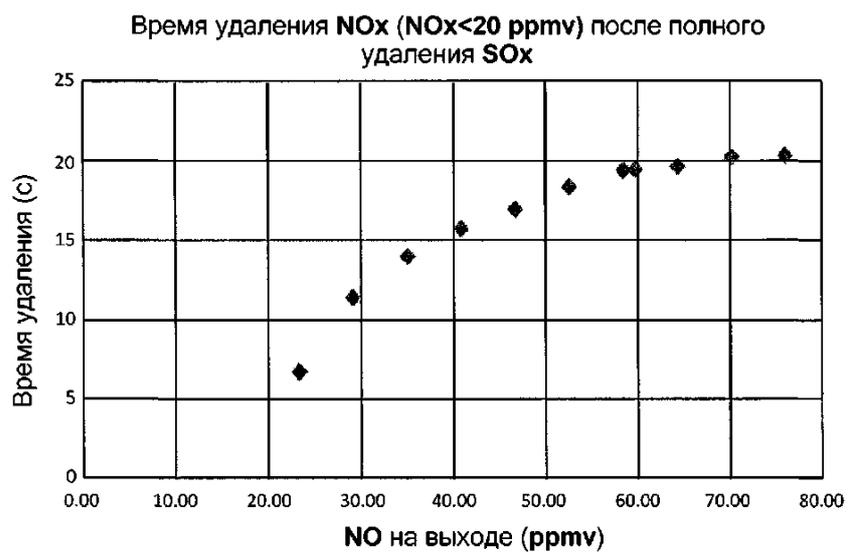
Фиг. 1А



Фиг. 1Б



Фиг. 2



Фиг. 3

