

水合物法联合膜法的连续气体分离系统及其扰动装置

相关申请的交叉引用

本申请要求 2020 年 10 月 20 日提交的中国专利申请 202011121986.X 的权益，该申请的内容通过引用被合并于本文。

技术领域

本发明涉及基于水合物法的气体分离技术领域，特别涉及一种水合物法联合膜法的连续气体分离系统及其扰动装置。

背景技术

天然气水合物在地球上储存丰富，是世界上重要的潜在能源，在能源危机的时代背景下，其调查与研究已经成为全球的热点。天然气水合物是在高压低温下由水和天然气组成的类冰状的结晶化合物。随着对水合物基本物性、微观结构、热力学和动力学等特性研究的不断深入，人们陆续在冻土带和海洋深处发现了储量丰富的天然气水合物，在全世界引起了高度的重视。天然气水合物除了可以作为潜在的清洁能源以外，人们发现水合物利用技术，还能够成为造福人类的一项新技术。

水合法气体分离的基本原理是不同气体生成水合物的条件不同，当气体混合物生成水合物时，容易生成水合物的组分会在水合物相富集，从而实现了气体的分离。水合物法气体分离技术主要应用在含有

CO₂的混合气（烟气 N₂/CO₂、天然气 CH₄/CO₂、煤层气 CH₄/CO₂、合成气 H₂/CO₂），烃类混合气（CH₄、C₂H₆和 C₂H₄等），含氢混合气体（炼厂含氢气、乙烯裂解气、催化裂化干气等）以及其他混合气的分离。但是基于水合物的气体分离方法也有其自身的问题。首先，目前大多数研究都是基于实验室规模的小型设备进行的，并且上述研究都是使用间歇式或半间歇式分离方法进行的。在间歇式操作中，连续生产纯化气体需要两套或更多套反应器，不能同时从形成水合物的反应器中取出气相，气体分离不能连续进行操作，并且形成水合物的水溶液没有循环再次使用。其次，水合物的形成随着分离目标气体浓度的减少，分离条件变得更为苛刻。另外，由于气体水合物的形成是气-液-固相平衡的过程，因此在水合物形成完成之后，气相中仍残留一定百分比的分离目标气体。简言之，单一的基于水合物的气体分离技术无法完全从混合气体中捕获目标气体。因此为了将基于水合物的气体分离技术应用于工业，有必要开发连续气体分离工艺，规模化的反应设备，以及水合物法与其他分离方法耦合的新的分离方法。

此外，对于水合物法分离气体的装置，气液混合的效果直接影响了水合物的生成效率及分离效果，因此亟需一种能够增强气液传质，促进水合物高效生成的设计。

公开于该背景技术部分的信息仅仅旨在增加对本发明的总体背景的理解，而不应当被视为承认或以任何形式暗示该信息构成已为本领域一般技术人员所公知的现有技术。

发明内容

本发明的目的之一在于，提供一种水合物法联合膜法的连续气体分离系统及其扰动装置，从而提高水合物的生成效率和气体分离效率。

本发明的另一目的在于，提供一种水合物法联合膜法的连续气体分离系统及其扰动装置，从而实现连续化、规模化的气体分离，以供工业应用。

为实现上述目的，根据本发明的第一方面，本发明提供了一种扰动装置，其包括：两个喷射混合器，其沿水平方向相对设置；混合腔，其连接在两个喷射混合器之间；以及混合管道，其连接在混合腔的下方，混合管道包括：多个螺旋管，其分为多层并缠绕所述混合管道的中心轴线设置，多个螺旋管的管径从内层向外层逐渐增大，每一个螺旋管内间隔设置多组阻流组件；以及外套管，外套管套设在最外层的螺旋管外。

可选择的，所述混合管道包括圆心管，其竖直设置在所述混合管道的中心轴线处，所述多个螺旋管缠绕所述圆心管设置。

可选择的，所述外套管为直管，所述圆心管为直管。

可选择的，混合管道处于混合腔的横向中心位置。

可选择的，相邻的两组阻流组件之间相隔 $1/4$ 螺旋。

可选择的，每一组阻流组件包括偶数个阻流柱，每一个阻流柱的轴向沿螺旋管的横截面的径向设置，偶数个阻流柱对称地分布在螺旋管的横截面上。

可选择的，阻流柱的截面形状为圆形、三角形、T 字型或梯形。

可选择的，阻流柱的长度为相应的螺旋管的管径的 $1/4 \sim 1/3$ 。

可选择的，阻流柱的宽度为相应的螺旋管的管径的 $0.1 \sim 0.3$ 倍。

可选择的，最外层的螺旋管的管径与圆心管的直径相同。

根据本发明的第二方面，本发明提供了一种水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其包括：水合物生成环道，其入口设有如上述技术方案中任意一项的扰动装置，水合物生成环道上设有分离器，分离器的第一入口与进气单元相连接，第二入口与水合物生成环道的出口相连接，第一出口和第二出口与喷射混合器相连接；三相分离器，其入口与分离器的第三出口相连接；水合物分解模块，其与三相分离器的水合物出口相连接。

可选择的；水合物法联合膜法的连续气体分离系统还包括膜分离单元，其与三相分离器的混合气出口相连接，膜分离单元设有产品气出口。

可选择的，水合物法联合膜法的连续气体分离系统还包括：回收单元，其用于回收膜分离单元和水合物分解模块的非产品气体。

可选择的，水合物生成环道为管式反应环道。

可选择的，水合物生成环道外部设有保温装置。

可选择的，水合物生成环道设有观察视窗，观察视窗耐压大于或等于 20MPa。

可选择的，分离器的第一出口与喷射混合器之间设有气体循环泵；分离器的第二出口与喷射混合器之间设有磁力循环泵。

可选择的，水合物生成环道设有定量注剂模块，定量注剂模块向

水合物生成环道注入水和促进剂，定量注剂模块与水合物分解模块的液体出口相连接。

可选择的，定量注剂模块包括大流量平流泵和柱塞泵。

可选择的，促进剂为四氢呋喃和/或四丁基溴化铵。

可选择的，进气单元与分离器的第一入口之间设有应急排放单元和背压单元。

可选择的，进气单元为气瓶，当气瓶的压力不足时，气瓶通过气体增压泵与分离器的第一入口相连接。

与现有技术相比，本发明具有如下一个或多个有益效果：

1. 本发明的扰动装置通过喷射混合器、混合腔和混合管道的多级配合混合，经喷射混合器混合后的两股混合流高速相向流动撞击，在混合腔中撞击瞬间达到极高的相间相对速度，强化相间传递，混合管道中不同管径的螺旋管不仅增强了径向混合，而且产生了迪恩涡，管内湍动得以增强，螺旋管内设置阻流组件，将迪恩涡分离，并形成交替的反向分离涡，促进气液接触混合，能够增加气液传质，进而提高水合物的生成效率。

2. 螺旋管中的迪恩涡的强度与螺旋管的内径和螺旋直径相关，本发明中多个螺旋管的管径从内层向外层逐渐增大，螺旋直径从内层向外层也是逐渐增大的，因此不同管径的螺旋管产生的迪恩涡的旋涡强度相当，增加了流体的高效混合；介质流经不同管径的螺旋管的时间不同，在一定程度上增加了沿轴向的子混合。

3. 本发明的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，实现了贫

气水合分离和富气膜分离的耦合，能够弥补单纯水合物法对低浓度气体分离效率不高、需要额外加压等问题，本发明的系统包括生成、分离和化解整个过程，实现了连续气体分离，易于规模化、工业化应用。

4. 通过水合物生成环道，提高气液接触停留时间，气液界面更新速度快，有利于水合物的连续高效快速生成。

上述说明仅为本发明技术方案的概述，为了能够更清楚地了解本发明的技术手段并可依据说明书的内容予以实施，同时为了使本发明的上述和其他目的、技术特征以及优点更加易懂，以下列举一个或多个优选实施例，并配合附图详细说明如下。

附图说明

图 1 是根据本发明的实施方式的水合物法联合膜法的连续气体分离系统的示意图。

图 2 是根据本发明的实施方式的混合管道的俯视结构示意图。

图 3 是根据本发明的实施方式的螺旋管的结构示意图。

图 4 是根据本发明的实施方式的螺旋管的横截面的示意图，其中示出该截面上的一组阻流组件。

主要附图标记说明：

10-气瓶，11-气体增压泵，12-应急排放单元，13-背压单元，20-扰动装置，21-喷射混合器，22-混合腔，23-混合管道，231-圆心管，232-螺旋管，2321-阻流柱，233-外套管，30-水合物生成环道，31-分离器，311-气体循环泵，312-磁力循环泵，32-保温装置，331-水，332-

大流量平流泵，333-促进剂，334-柱塞泵，40-三相分离器，50-水合物分解模块，60-膜分离单元，61-产品气出口，70-回收单元。

具体实施方式

下面结合附图，对本发明的具体实施方式进行详细描述，但应当理解本发明的保护范围并不受具体实施方式的限制。

除非另有其他明确表示，否则在整个说明书和权利要求书中，术语“包括”或其变换如“包含”或“包括有”等等将被理解为包括所陈述的元件或组成部分，而并未排除其他元件或其他组成部分。

在本文中，为了描述的方便，可以使用空间相对术语，诸如“下面”、“下方”、“下”、“上面”、“上方”、“上”等，来描述一个元件或特征与另一元件或特征在附图中的关系。应理解的是，空间相对术语旨在包含除了在图中所绘的方向之外物件在使用或操作中的不同方向。例如，如果在图中的物件被翻转，则被描述为在其他元件或特征“下方”或“下”的元件将取向在元件或特征的“上方”。因此，示范性术语“下方”可以包含下方和上方两个方向。物件也可以有其他取向（旋转 90 度或其他取向）且应对本文使用的空间相对术语作出相应的解释。

在本文中，术语“第一”、“第二”等是用以区别两个不同的元件或部位，并不是用以限定特定的位置或相对关系。换言之，在一些实施例中，术语“第一”、“第二”等也可以彼此互换。

如图 1 所示，根据本发明具体实施方式的水合物法联合膜法的连

续气体分离系统，其包括水合物生成环道 30，其入口设有扰动装置 20，水合物生成环道 30 上设有分离器 31。分离器 31 的第一入口与进气单元相连接，示例性地，进气单元包括气瓶 10。分离器 31 的第二入口与水合物生成环道 30 的出口相连接，第一出口和第二出口与扰动装置 20 相连接。分离器 31 的第三出口与三相分离器 40 的入口相连接，三相分离器 40 的水合物出口与水合物分解模块 50 相连接，混合气出口与膜分离单元 60 相连接，膜分离单元 60 设有产品气出口 61。水合物分解模块 50 用于将产生的水合物浆液进行化解，膜分离单元 60 用于将产生的贫气进行进一步分离。水合物法联合膜法能够实现富气水合分离和贫气膜分离的耦合，弥补采用单一方法时分离效率不高的问题。

结合图 2~4 所示，根据本发明具体实施方式的扰动装置 20 包括两个喷射混合器 21、混合腔 22 和混合管道 23，混合腔 22 连接在两个喷射混合器 21 之间，混合管道 23 连接在混合腔 22 的下方。喷射混合器 21 为将两种或两种以上的液体或气体加以混合的装置，经混合后的两股流体由两个喷射混合器 21 沿水平方向相对高速喷出，两股流体在混合腔 22 相向撞击，在撞击瞬间达到极高的相间相对速度，强化相间传递。混合腔 22 内的流体进入混合管道 23。示例性地，混合管道 23 处于混合腔 22 的横向中心位置。在本发明的一个或多个实施方式中，混合管道 23 由内至外依次包括圆心管 231、多个螺旋管 232 和外套管 233。圆心管 231 为竖直设置的直管，多个螺旋管 232 分为多层缠绕设置在圆心管 231 外，多层螺旋管 232 的管径从内层向

外层逐渐增大，外套管 233 为套设在最外层的螺旋管 232 外的直管。每一个螺旋管 232 内间隔设置多组阻流组件。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，相邻的两组阻流组件之间相隔 $1/4$ 螺旋，即螺旋管 232 每旋转 90° 的位置上设置一组阻流组件。进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，每一组阻流组件可以为偶数个阻流柱 2321，每一个阻流柱 2321 的轴向沿螺旋管 232 的横截面的径向设置，每一组阻流组件的偶数个阻流柱 2321 对称地分布在螺旋管 232 的横截面上。在图 4 所示的实施方式中，每一组阻流组件包括四个均匀分布在螺旋管 232 的横截面上的阻流柱 2321，相邻的两个阻流柱 2321 相隔 90° ，应了解的是，本发明并不以此为限。阻流柱 2321 的设置方向均垂直于螺旋管 232 中主流体的流动方向。当流体流经螺旋管时，由于流体垂直于流动方向的压力梯度不平衡及离心力的作用产生两个旋转方向相反的旋涡，产生二次流，形成迪恩涡，螺旋管内速度场、压力场发生变化，其为发生在垂直于主流方向中的一种伴流流动。迪恩涡的产生提高了流体的传质和传热性能，增强气液接触和混合。迪恩数是描述流体流动过程中离心力和黏性力的关系的，可以用来表征迪恩涡的强度。迪恩数与螺旋管的管径和螺旋直径相关，螺旋管采用管径由内至外逐渐变大的设计，螺旋直径同样由内到外逐渐变大，从而使得多层螺旋管产生的旋涡强度相当，促进了流体的高效混合。螺旋管中设有对称分布的阻流柱，将螺旋管道中产生的两个迪恩涡进行分离，打乱迪恩涡对流体的扰动。阻流柱后侧形成交替的反向旋涡，即分离涡，阻流柱的分

离作用通过再分配使流体实现充分接触，进一步强化混合。随后流体再次由于螺旋管二次流的影响形成迪恩涡，然后经阻流柱形成分离涡，如此反复通过螺旋管。不同湍流强度的气液混合介质流经混合管道的时间不同，从而增加了沿轴向的子混合。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，阻流柱 2321 的截面形状为圆形、三角形、T 字型或梯形。应了解的是，本发明并不以此为限，阻流柱 2321 的形状可以根据实际需要进行选择。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，阻流柱 2321 的长度为相应的螺旋管 232 的管径的 $1/4 \sim 1/3$ 。进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，阻流柱 2321 的宽度为相应的螺旋管 232 的直径的 $0.1 \sim 0.3$ 倍。阻流柱 2321 的宽度是指迎流面的宽度，例如，当阻流柱为圆柱时，其宽度为圆柱的直径，当阻流柱为三角柱时，其宽度为迎流面的底边长度。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，最外层的螺旋管 232 的管径与圆心管 231 的直径相同。

如图 1 所示，在本发明的一个或多个实施方式中，水合物法联合膜法的连续气体分离系统还包括回收单元 70，其用于回收膜分离单元 60 和水合物分解模块 50 的非产品气体，以免污染环境。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，水合物生成环道 30 可以为管式反应环道。优选而非限制性地，管式反应环道设置为可拆换设计，可以在不同管径之间方便更换，管道承压为 15MPa，工作温度为 $-20 \sim 90^{\circ}\text{C}$ ，管式反应环道可以由 316 不锈钢制成，本发明

并不以此为限。进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，水合物生成环道 30 外部设有保温装置 32，以保持温度恒定。示例性地，保温装置 32 可以为高低温一体化浴槽，工作温度为 -20°C ~ 90°C ，并且具有过热保护、过载保护等功能。进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，水合物生成环道 30 设有观察视窗（图中未示出），观察视窗耐压大于或等于 20MPa。观察视窗主要用于观察水合物生成环道 30 中的流动情况和水合物的形成情况。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，分离器 31 的第一出口与喷射混合器 21 之间设有气体循环泵 311；分离器 31 的第二出口与喷射混合器 21 之间设有磁力循环泵 312。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，水合物生成环道 30 设有定量注剂模块，定量注剂模块通过柱塞泵 334 向水合物生成环道 30 注入促进剂 333，通过大流量平流泵 332 向水合物生成环道 30 注入水 331，定量注剂模块可以与水合物分解模块 50 的液体出口相连接，实现系统中水的循环利用。应了解的是，本发明并不以此为限，具体采用的泵的类型可以根据实际需要选择。进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，促进剂 333 可以为四氢呋喃和/或四丁基溴化铵，本发明并不以此为限。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，进气单元的气瓶 10 与分离器 31 的第一入口之间设有应急排放单元 12 和背压单元 13。

进一步地，在本发明的一个或多个示例性实施方式中，当气瓶

10 的压力不足时，气瓶 10 通过气体增压泵 11 与分离器 31 的第一入口相连接。

实施例 1

本实施例的水合物法联合膜法的连续气体分离系统如图 1~4 所示，其工作流程如下：

气瓶 10 中的 A/B 混合气体通过分离器 31 的第一入口进入，分离器 31 中的 A/B 混合气体通过其第一出口经气体循环泵 311 泵入两个喷射混合器 21，分离器 31 中的循环液体通过其第二出口经磁力循环泵 312 泵入两个喷射混合器 21。经喷射混合器 21 混合后的流体喷出，在混合腔 22 中相向撞击混合。撞击混合后的流体进入混合管道 23 进行混合。经扰动装置 20 混合后的流体进入水合物生成环道 30 进行水合物的生成，定量注剂模块向水合物生成环道定量补充水 331 和促进剂 333，以确保系统的连续循环。水合物生成环道 30 中生成的 A 水合物与一部分未反应的 A/B 混合气体一起经分离器 31 的第三出口进入三相分离器 40。A 水合物和 A/B 混合气体在三相分离器 31 中进行分离后，A/B 混合气体经三相分离器 31 的混合气出口进入膜分离单元 60，A 水合物及其浆液经三相分离器 31 的水合物出口进入水合物分解模块 50。含有低浓度 A 气体的 A/B 混合气体进入膜分离单元 60 进行分离后，A 气体进入回收单元 70 进行回收，B 气体经膜分离单元 60 的产品气出口 61 排出收集。A 水合物及其浆液在水合物分解模块 50 中分解为 A 气体和水或者促进剂溶液，A 气体进入回收单元 70 进行回收，水或者促进剂溶液进入定量注剂模块进行循环利用。

前述对本发明的具体示例性实施方案的描述是为了说明和例证的目的。这些描述并非想将本发明限定为所公开的精确形式，并且很显然，根据上述教导，可以进行很多改变和变化。对示例性实施例进行选择 and 描述的目的在于解释本发明的特定原理及其实际应用，从而使得本领域的技术人员能够实现并利用本发明的各种不同的示例性实施方案以及各种不同的选择和改变。针对上述示例性实施方案所做的任何简单修改、等同变化与修饰，都应落入本发明的保护范围。

权利要求书

1. 一种扰动装置，其特征在于，包括：

两个喷射混合器，其沿水平方向相对设置；

混合腔，其连接在所述两个喷射混合器之间；以及

混合管道，其连接在所述混合腔的下方，所述混合管道包括：

多个螺旋管，其分为多层并缠绕所述混合管道的中心轴线设置，所述多个螺旋管的管径从内层向外层逐渐增大，每一个所述螺旋管内间隔设置多组阻流组件；以及

外套管，所述外套管套设在最外层的所述螺旋管外。

2. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述混合管道包括圆心管，其竖直设置在所述混合管道的中心轴线处，所述多个螺旋管缠绕所述圆心管设置。

3. 根据权利要求 2 所述的扰动装置，其特征在于，所述外套管为直管，所述圆心管为直管。

4. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述混合管道处于所述混合腔的横向中心位置。

5. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，相邻的两组所述阻流组件之间相隔 $1/4$ 螺旋。

6. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，每一组所述阻流组件包括偶数个阻流柱，每一个所述阻流柱的轴向沿所述螺旋管的横截面的径向设置，所述偶数个阻流柱对称地分布在所述螺旋管的横截面上。

7. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述阻流柱的截面形状为圆形、三角形、T 字型或梯形。

8. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述阻流柱的长度为相应的所述螺旋管的管径的 $1/4 \sim 1/3$ 。

9. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述阻流柱的宽度为相应的所述螺旋管的管径的 $0.1 \sim 0.3$ 倍。

10. 根据权利要求 1 所述的扰动装置，其特征在于，所述最外层的所述螺旋管的管径与所述圆心管的直径相同。

11. 一种水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，包括：

水合物生成环道，其入口设有如权利要求 1~10 中任意一项所述的扰动装置，所述水合物生成环道上设有分离器，所述分离器的第一入口与进气单元相连接，第二入口与所述水合物生成环道的出口相连接，第一出口和第二出口与所述喷射混合器相连接；

三相分离器，其入口与所述分离器的第三出口相连接；

水合物分解模块，其与所述三相分离器的水合物出口相连接。

12. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，还包括膜分离单元，其与所述三相分离器的混合气出口相连接，所述膜分离单元设有产品气出口。

13. 根据权利要求 12 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，还包括：

回收单元，其用于回收所述膜分离单元和所述水合物分解模块的

非产品气体。

14. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述水合物生成环道为管式反应环道。

15. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述水合物生成环道外部设有保温装置。

16. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述水合物生成环道设有观察视窗，所述观察视窗耐压大于或等于 20MPa。

17. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述分离器的第一出口与所述喷射混合器之间设有气体循环泵；所述分离器的第二出口与所述喷射混合器之间设有磁力循环泵。

18. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述水合物生成环道设有定量注剂模块，所述定量注剂模块向所述水合物生成环道注入水和促进剂，所述定量注剂模块与所述水合物分解模块的液体出口相连接。

19. 根据权利要求 17 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述定量注剂模块包括大流量平流泵和柱塞泵。

20. 根据权利要求 17 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述促进剂为四氢呋喃和/或四丁基溴化铵。

21. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统，其特征在于，所述进气单元与所述分离器的第一入口之间设有

应急排放单元和背压单元。

22. 根据权利要求 11 所述的水合物法联合膜法的连续气体分离系统, 其特征在于, 所述进气单元为气瓶, 当所述气瓶的压力不足时, 所述气瓶通过气体增压泵与所述分离器的第一入口相连接。