

76320

*Ammonia*



P A T E N T E

a favor de la

Sociedad A M M O N I A

por:

" Procedimiento para la extracción del hidrógeno contenido en los gases industriales, y especialmente en el gas de los hornos de cok ".

M e m o r i a   D e s c r i p t i v a

La presente patente se refiere a un procedimiento para la extracción del hidrógeno contenido en los gases industriales y especialmente en el gas de hornos de cok, pudiendo utilizarse este hidrógeno para la síntesis del amoniaco por catalisis directa o para cualquier otro uso compatible con la presencia de cierta cantidad de azoe en el hidrógeno.

Según este procedimiento el gas que se ha de tratar se limpia sucesivamente de los gases diferentes del hidrógeno por la acción metódica de temperaturas cada vez mas bajas en un aparato separador conveniente, recogiendo todos estos gases o sus productos de



condensación para destilarse, rectificarse o emplearse de cualquier modo conveniente.

Una particularidad importante de la invención consiste en que el frío necesario para condensar los gases que acompañan el hidrógeno, se produce en el aparato separador, no solo por los medios usuales, como son la evaporación de líquidos de punto de ebullición muy bajo procedentes del mismo gas que se trata y la expansión en motores convenientes del gas que sale del aparato, sino también por la evaporación de una cantidad mayor o menor de azeo líquido procedente de una fuente exterior.

Con este medio es posible hacer obrar en el aparato separador una cantidad ilimitada de frigorías y esto a una temperatura muy baja, puesto que el punto de ebullición del azeo es de  $196^{\circ}$ ; por lo tanto es fácil asegurar la condensación tan completa como se pueda desear, de los gases que acompañan el hidrógeno, como son especialmente el óxido de carbono y el azeo. Se puede de este modo obtener a la salida del aparato ya sea hidrógeno, o ya una mezcla de hidrógeno y azeo, mucho más puros de lo que permitirían los aparatos ya conocidos.

Esta pureza es ventajosa no solo para la utilización posterior de los gases obtenidos, sino también en el sentido de que no se ha de temer el riesgo de obstrucción por congelación del óxido de carbono, de los orificios de escape del motor de expansión alimentado por el gas que sale del aparato.

Otra particularidad de la invención consiste en el hecho de que, a su salida del aparato separador, el hidrógeno se somete a un lavado por medio de azeo líquido, lo que tiene por efecto cargarle de la cantidad conveniente de azeo gaseoso, tal como es necesario por ejemplo para la síntesis directa del amoníaco.

La graduación de esta cantidad depende de la tensión de vapor del azeo líquido y es muy fácil de obtener graduando la expansión del hidrógeno en el motor, en razón de que dicha tensión de



vapor varia mucho con la temperatura a proximidad de  $200^{\circ}$  y obedece por lo tanto de un modo muy sensible a las variaciones de temperatura del hidrógeno dilatado que atraviesa el azoe liquido.

Otra particularidad consiste en que el gas que se ha de tratar previamente privado del vapor de agua, anhídrido carbónico e hidrocarburos pesados y comprimido de 20 a 30 atmosferas, pasa, despues de enfriarse en un aparato de cambio de temperatura por dos separadores sucesivos, el primero de los cuales comprende por una parte un haz tubular atravesado por el gas y enfriado por un baño de metano hirviente a la presión atmosferica, es decir a la temperatura de  $164^{\circ}$  y por otra parte una columna que sirve para alimentar este baño de metano puro rectificando la mezcla de metano y óxido de carbono producidos por condensación en el aparato. El segundo separador alimentado de gas privado de este modo de gran parte del metano y del óxido de carbono, comprende un haz tubular enfriado en su parte mas alta por el hidrógeno dilatado procedente del escape del motor, en su parte media por una lluvia de azoe liquido hirviente procedente de una fuente exterior, y en su parte inferior por el azoe gaseoso resultante de la evaporación de este azoe liquido.

Es al recorrer de abajo hacia arriba este haz tubular que el gas se somete a una aportación de frigorias tan grande como puede ser necesario, puesto que la cantidad de azoe liquido puesta en acción es ilimitada de modo que la temperatura del haz puede con seguridad mantenerse tan baja como conviene en todas sus partes, cualquiera que sea el volumen de gas que pasa por el aparato. Resulta de ello que la depuración progresiva del hidrogeno por condensación y retrogradación de los elementos cada vez menos facilmente condensables, se obtiene en el haz asi enfriado de un modo mucho mas completo que si el frio puesto en acción procedia exclusivamente del solo gas que se está tratando, previamente comprimido.

En el plano adjunto, se representa como ejemplo en esquema y en sección vertical, un sistema de aparatos apropiados para ejecutar este procedimiento.



Por un conducto -1- el gas que se ha de tratar, previamente privado del vapor de agua, anhídrido carbónico e hidrocarburos pesados, y conteniendo solo metano, óxigeno, óxido de carbono, azoe e hidrógeno, llega bajo una presión de 20 a 30 atmosferas y ya enfriado hacia  $100^{\circ}$ , a la parte inferior -2- del primer separador -3-. Este comprende un haz tubular -4-; encerrado en una columna de rectificación -5- y cuya parte superior comunica por un conducto -6- con la caja de un aparato de cambio de temperatura -7-. Por un conducto -8- esta caja está unida a la parte inferior -9- del segundo separador -10-. Por este se eleva un haz tubular -11- cuyos tubos son largos y estrechos. Un conducto -12- une la parte superior de este haz a la parte baja del aparato de cambio de temperatura -7- cuya parte alta está unida por un conducto -13- a un motor de expansión -14-. Una pared -15- separa en la parte alta de la caja del separador -10- una cámara -16- cuya parte alta está unida por un conducto -17- al escape del motor -14- y la parte baja, por un conducto -18-, a un compartimiento -19- formado en la parte alta del separador -3- por una pared -20-.

La columna -5- contiene, encima del haz -4-, una serie de platos -21- sobre los cuales se vierte el líquido que se lleva por los conductos -22-23- de la parte baja de los separadores -3- y -10- hasta un surtidor de regadera -24-.

Por otra parte la caja del separador -10- contiene debajo de la pared -15- una serie de cubetas -25- provistas de rebozaderos y una serie de tabiques alternados -26-; encima de la pared -15- se disponen en el compartimiento -16- otros tabiques alternados -16-.

Asimismo se disponen platos -28- en el compartimiento -19-.

Un conducto -29- lleva a la parte alta de este último azoe líquido procedente de una fuente exterior de modo que se derrame y vierta en cascada sobre los platos -28-. De la parte baja del



compartimiento -19- un conducto -30- lleva el liquido al separador -10- inmediatamente debajo de la pared -15-; en este conducto está dispuesto un ramal que permite introducir si es necesario una cantidad suplementaria de azoe liquido. Por ultimo los conductos -32- y -33- que parten de la columna -5-, por una parte, y un conducto -34- que parte del separador -10- por otra parte, sirven para la evacuación de los gases diferentes del hidrógeno; estos conductos están unidos a un conducto de salida comun -35-, pero unos grifos convenientes permiten evacuar los gases separadamente. -36- representa el conducto de salida del hidrógeno adicionado de azoe.

El funcionamiento, durante la marcha normal, es el siguiente:

El gas que se ha de tratar, purificado y comprimido, llega por -1-; al mismo tiempo el azoe liquido, comprimido si es necesario, llega por -29- y eventualmente tambien por -31-.

Las flechas indican la circulación de los fluidos de la parte baja del separador -3-, el gas pasa por el haz -4-, la caja del aparato de cambio térmico -7- y llega a la parte baja del separador -10-; se eleva por los tubos de este y por el conducto -12-, los tubos del aparato de cambio -7- y el conducto -13- llega al motor -14- donde se distiende produciendo trabajo; distendido asi y enfriado y eventualmente sometido a cierta contrapresión, el gas circula por el compartimiento -16-, pasa despues por el conducto -18- al compartimiento -19- donde se satura de azoe antes de salir por -36-.

Al mismo tiempo el azoe liquido que llega por -29- cae en cascada por el compartimiento -19-, pasa por -30- al separador -10- y se derrama en las cubetas -25- donde entra en ebullición enfriando energicamente los tubos -11-; el azoe gaseoso que se desprende circula entre los tabiques -26- y sale por -34-35-.

Por otra parte los productos liquidos de condensación que fluyen en las partes internas de los tubos -4- y -11- y se juntan en la parte baja de los separadores son llevados por -22-23-24- a la



parte alta de la columna -5- donde la presión es poco elevada y se derraman en cascada en los platos -21-; la parte no volatilizada de este liquido se junta alrededor del haz tubular -4- y en razón de su evaporación enfria este. Los gases que se desprenden salen por -32- y -33-.

Es facil graduar las dimensiones de las varias partes del aparato y las condiciones del funcionamiento, especialmente la alimentación de azoe liquido y el grado de expansión del motor de modo que se obtenga en el haz -4- la condensación de la casi totalidad del metano y de la mayor parte del óxido de carbono, y en el haz -11- la condensación del resto del metano y del óxido de carbono asi como la del oxigeno y de gran parte del azoe.

De este modo solo llega a la parte alta del separador -10- hidrógeno puro, mezclado con una pequeña cantidad de azoe y conteniendo ademas la totalidad de los gases raros.

Este hidrógeno, que sale de la zona mas fria del separador -10-, sirve pasando por ejemplo por el aparato de cambio -7- donde se calienta, para enfriar el gas que sale del primer separador; despues, llevado al grado de temperatura conveniente va a distanderse en el motor -14-. En razón de su pureza, se evitan los riesgos de obstrucción de los conductos de escape y es posible llevar la expansión tan lejos como sea necesario para enfriar el compartimiento -16- a -205<sup>o</sup> - y hasta menos si es menester.

En estas condiciones, el gas que se ha de tratar, ya separado en el primer separador de la mayor parte del metano y del óxido de carbono, se somete en el haz tubular -11- a una temperatura gradualmente decreciente que varia de unos -180<sup>o</sup> en la parte baja del haz a unos 196<sup>o</sup> en la zona de las cubetas -25- cargadas de azoe liquido hirviente, y a unos 205<sup>o</sup> en el compartimiento -16-.

Las impurezas que hubiese podido arrastrar el hidrógeno a consecuencia de su proyección en forma vesicular, sólidas o de otra clase mas allá de los tubos -11- se hallan detenidas por el azoe



líquido que el hidrógeno atraviesa al pasar entre los platos -28-.

Cuando se trata de la fabricación de amoniaco, la llegada del azoe líquido por -29-, la temperatura y la presión del hidrógeno que llega al compartimiento -19-, se gradúan de modo que el hidrógeno se cargue de la cantidad de azoe gaseoso exactamente conveniente, o sea un 33 %. Es posible obtener esta graduación fácilmente sin perjudicar de un modo molesto el enfriamiento del compartimiento -16- porque, como ya se ha dicho anteriormente, basta una variación de algunos grados en la proximidad de 200° para modificar mucho la tensión de vapor del azoe líquido.

Si la llegada de azoe por -29- debía reducirse hasta el punto de comprometer el mantenimiento de una temperatura bastante baja en el separador -10-, sería fácil remediarlo admitiendo azoe líquido suplementario por -31-.

Hay que notar que el líquido vertido por el surtidor de regadera -24-, compuesto de metano y óxido de carbono, se rectifica al bajar por la columna -5-, de modo que la parte inferior de esta recibe metano puro. El metano gaseoso que se desprende por el conducto -32- puede si es necesario recogerse separadamente.

Queda entendido que la presente invención no se limita a la forma de ejecución representada en esquema y como ejemplo, y que se puede hacer variar las formas y disposiciones particulares de los varios elementos de la instalación, así como la presión y la temperatura en las varias partes de los aparatos.

Por ejemplo los compartimientos -16- y -19- podrían ser distintos de los separadores -3- y -10- en vez de estar superpuestos directamente a estos, los tabiques alternados podrían recibir cualquier otra disposición conveniente, etc.

#### N O T A

Se reivindica como objeto de esta patente:

- 1) Procedimiento de separación del hidrógeno contenido en los gases industriales, y especialmente en los gases de hornos de cok



por condensación progresiva a baja temperatura de todos los constituyentes diferentes del hidrógeno, caracterizado porque solo se utiliza, una vez el aparato en regimen, el frio producido por la expansión, con recuperación de trabajo exterior, del hidrógeno practicamente puro, ya separado y comprimido y como manantial complementario de frio, azoe liquido procedente de una fuente exterior.

2) Procedimiento según la reivindicación 1, para la preparación de mezclas de hidrógeno y azoe en proporciones convenientes para la síntesis del amoniaco, caracterizado por el hecho de que se hace pasar hidrógeno practicamente puro por azoe liquido despues que se ha distendido en el motor de expansión.

3) Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque el gas que se ha de tratar se enfria sucesivamente en dos separadores distintos, en uno de los cuales el enfriamiento se verifica con metano liquido en ebullición y en el otro en gran parte con azoe liquido y por ultimo con hidrógeno distendido.

4) Procedimiento según las reivindicaciones 1 a 4, caracterizado porque la cantidad de azoe absorbida por el hidrógeno se gradua regulando el grado de expansión del hidrógeno que enfria la ultima parte del separador.

5) Procedimiento según las reivindicaciones anteriores, caracterizado por el empleo de dos separadores, de los cuales el primero está provisto de una columna de rectificación que recibe los liquidos de condensación de los dos separadores, y en la parte inferior de la cual se acumula el metano puro que sirve para el enfriamiento de los gases que se han de tratar.

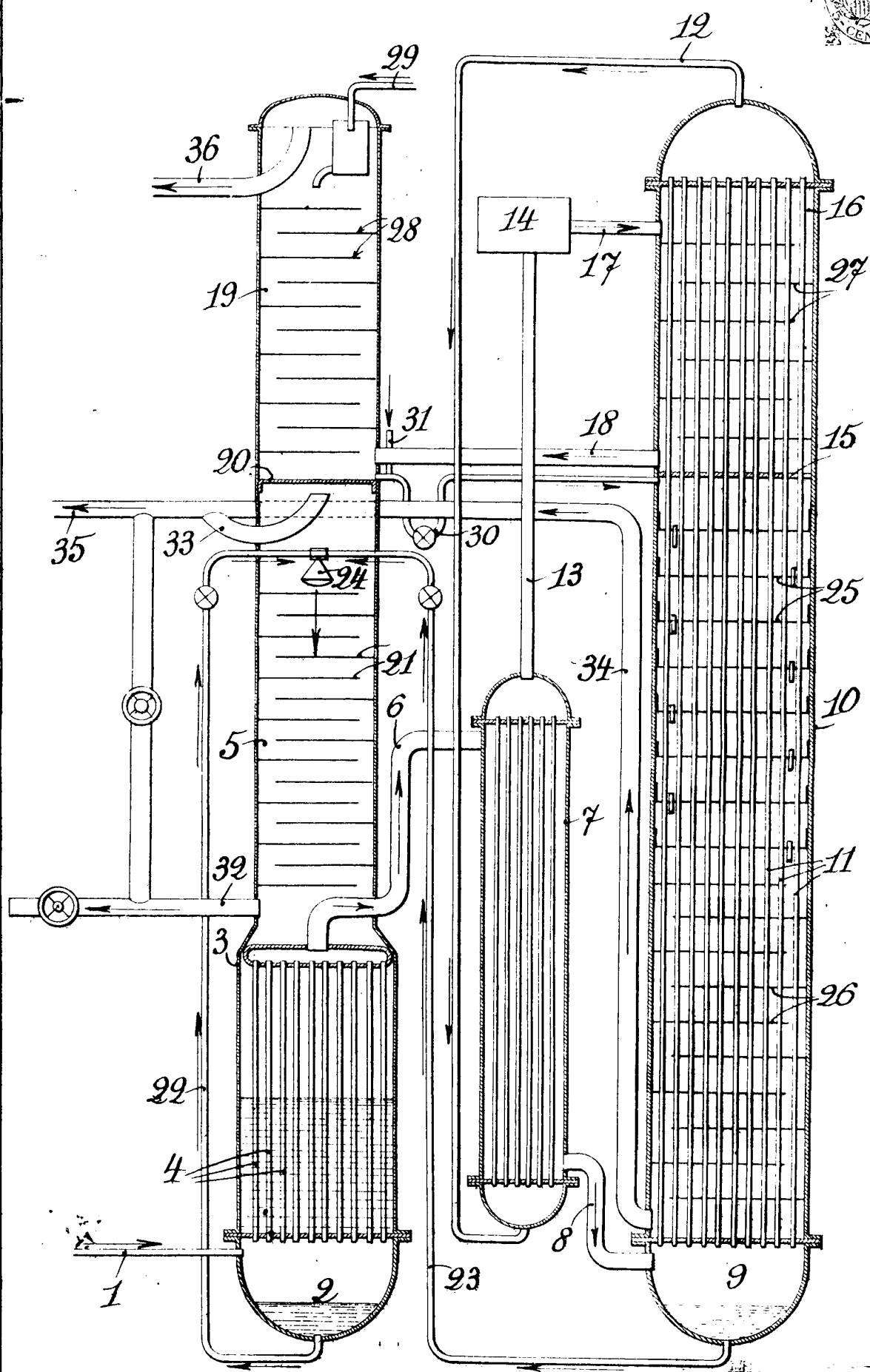
6) Procedimiento para la extracción del hidrógeno contenido en los gases industriales, y especialmente en el gas de los hornos de cok.

Barcelona 14 de diciembre de 1925.

P. A.  
*Antonio López Ledo*



1461



*Charles H. Hays, Jr.*