

346120

P-36.451

NG/AC/F. 7171

346120

F 257 3/06, 3/08

Memoria descriptiva



para solicitar 1er. CERTIFICADO DE ADICION

~~por~~

~~oficio~~

a nombre de PETROCARBON DEVELOPMENTS LIMITED

entidad / ~~de nacionalidad~~ británica

con domicilio en Berkeley Square House, Berkeley Square,
Londres, Inglaterra.

por: "MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE
PRINCIPAL N.º.320.756, expedida el 21 de Marzo de
1966 por: Un procedimiento para la separación de
un concentrado de hidrógeno de una mezcla seca de
gases a elevada presión " (Clase Internacional
C01b C10k)

346120



5 Este invento se refiere a la recuperación de un concentrado de hidrógeno a partir de una mezcla gaseosa que contiene hidrógeno como su componente principal en volumen, y contiene nitrógeno y argón y posiblemente también un gas hidrocarbonado, tal como metano. Más especialmente, el invento concierne a la recuperación de un concentrado de hidrógeno a partir de un gas de purga de síntesis de amoníaco.

10 Es conocido, que en la síntesis de amoníaco a partir de nitrógeno e hidrógeno, las impurezas inertes tales como argón y metano presentes en el gas de alimentación tienden a acumularse en el reactor de síntesis, teniendo de esta manera un efecto perjudicial sobre la reacción. Para evitar esta acumulación, es necesario retirar o eliminar continuamente estas impurezas en una corriente de
15 gas de purga que contiene, además del argón y del metano altas concentraciones de hidrógeno y nitrógeno. Este invento proporciona un procedimiento de recuperar el hidrógeno con bajo coste en una forma concentrada apropiada para volver a la instalación de síntesis del amoníaco o
20 para ser utilizada de cualquier otra manera.

25 En la Patente española nº 320.756 anterior, se indica un procedimiento para la recuperación de un concentrado de hidrógeno a partir de un gas de purga de síntesis de amoníaco, el cual procedimiento comprende:

30 (a) enfriar la mezcla gaseosa a la presión elevada haciéndola pasar a través de al menos dos cambiadores de calor, teniendo lugar la condensación de los componentes distintos del hidrógeno en al menos los dos cambiadores de calor finales, siendo hecho pasar el hidrógeno parcial-

22-10-67

346120

346120



mente concentrado procedente del penúltimo cambiador de calor hacia arriba a través del cambiador de calor final, circulando el condensado formado en el mismo hacia abajo en contacto con la corriente ascendente;

5 (b) separar la fracción líquida condensada después de cada cambiador de calor, en el que tiene lugar la condensación;

(c) hacer pasar el concentrado de hidrógeno que abandona la parte superior del cambiador, de calor final hacia abajo a través del cambiador de calor final en
10 intercambio de calor indirecto con el hidrógeno parcialmente concentrado que pasa hacia arriba a través del mismo;

(d) expandir al menos una parte del concentrado de hidrógeno que abandona el extremo inferior del cambia-
15 dor de calor final con la producción de trabajo externo, para producir refrigeración para ser utilizada en el procedimiento;

(e) hacer volver el concentrado de hidrógeno expandido a través de todos los cambiadores de calor, en
20 contracorriente y en intercambio indirecto de calor con la mezcla gaseosa entrante;

(f) hacer volver el concentrado de hidrógeno residual si lo hay, a través de todos los cambiadores de calor distintos del cambiador de calor final, en contracor-
25 rriente y en intercambio indirecto de calor con la mezcla gaseosa entrante;

(g) expandir el condensado licuado procedente de cada cambiador de calor y hacer volver a cada condensa-
do líquido expandido a través del cambiador de calor en el
30 que se formó y a través de los precedentes cambiadores de calor en contracorriente y en intercambio indirecto de

22-10-67

346120



calor con la mezcla gaseosa entrante, siendo los condensados evaporados y calentados en su paso a través de los cambiadores de calor.

En el procedimiento indicado en dicha memoria de patente, la etapa de purificación final tiene lugar en el cambiador de calor a través del cual pasa hacia arriba el gas que ha de ser purificado y las impurezas condensadas fluyen hacia abajo en forma de reflujo en contacto con el gas que fluye hacia arriba, y se hacen pasar tres corrientes hacia abajo en el intercambio de calor indirecto con la corriente de gas que fluye hacia arriba, siendo dichas tres corrientes (a) el concentrado de hidrógeno obtenido del gas que fluye hacia arriba y que abandona la parte superior del cambiador de calor; (b) al menos parte del concentrado de hidrógeno citado en (a) después que ha pasado hacia abajo a través del cambiador una primera vez, y ha sido expandido con la producción de trabajo externo para producir frío de forma conocida; y (c) un condensado que ha sido condensado a partir del gas que fluye hacia arriba y ha sido recogido en el extremo inferior del cambiador de calor, siendo dicho condensado expandido en primer lugar hacia una presión más baja y siendo evaporado después en su paso hacia abajo a través del cambiador de calor. Las tres corrientes que fluyen hacia abajo sirven para enfriar el gas de alimentación hasta la temperatura requerida para condensar las impurezas compatibles con esta temperatura y para crear el perfil de temperatura correcto a lo largo del cambiador. Es particularmente importante que la co-



corriente de líquido que se evapora pase a través del cambiador de calor desde la parte superior hasta el fondo, ya que la temperatura de esta corriente aumenta según avanza la evaporación.

5 Trabajando de esta manera, se asegura que el contenido de argón y metano del gas sea reducido hasta un mínimo sin congelar ninguno de estos componentes en el sistema. Sin embargo, para obtener un concentrado de hidrógeno con alta pureza, superior al 90% por ejemplo de 98% es necesario llevar a cabo la etapa de enfriamiento final a una temperatura tan baja que se condense suficiente cantidad de nitrógeno para este fin, y esto hace necesario reducir la temperatura de evaporación de la corriente de condensado que fluye hacia abajo a través del cambiador de calor final, introduciendo en la misma una porción del producto concentrado de hidrógeno (después de expansión hasta la misma presión). Este método de trabajo está descrito en la memoria de la Patente española antes mencionada. Tal como resultará evidente, esto reduce el rendimiento de producto de hidrógeno para concentrados de alta pureza.

20 Un objeto del presente invento es el de hacer mínima esta pérdida de rendimiento, al mismo tiempo que se obtiene todavía un producto de alta pureza.

25 Se ha encontrado ahora que es posible hacer funcionar el cambiador de calor final del procedimiento antes indicado a una temperatura más alta que la que se requiere para obtener el grado deseado de pureza, al mismo tiempo que se eliminan todavía de forma sustancialmente completa el argón y el metano, y para obtener el grado deseado de pureza eliminando nitrógeno adicional en un cambiador de calor adicional situado a continuación



que trabaja a una temperatura más baja sin acción de reflujo y sin corriente refrigerante de condensado que se evapora.

5 En dicho cambiador de calor adicional, la corriente de hidrógeno concentrado, procedente del cambiador de calor de reflujo precedente, es hecha pasar hacia abajo y después de abandonar el cambiador de calor, el hidrógeno concentrado finalmente es separado del nitrógeno condensado y es hecho pasar hacia arriba a través de
10 dicho cambiador de calor adicional, como una corriente refrigerante en intercambio indirecto de calor con la corriente que fluye hacia abajo. Dicha corriente refrigerante después de abandonar dicho cambiador de calor adicional, es hecha pasar hacia abajo a través del cambiador de calor de reflujo precedente como una de las
15 tres corrientes que pasan hacia abajo a su través, y después de esto es expandida con la producción de trabajo para producir refrigeración para ser utilizada en el procedimiento, y después es hecha pasar hacia arriba a través de dicho cambiador de calor adicional en intercambio de calor indirecto con la corriente que pasa hacia
20 abajo, y después es hecha pasar de vuelta a través de los cambiadores de calor precedentes, en contracorriente y en intercambio indirecto de calor con la mezcla gaseosa entrante.
25

Dependiendo de las necesidades de refrigeración solo una parte del hidrógeno concentrado finalmente puede hacerse pasar hacia abajo a través del cambiador de calor de reflujo, y ser expandida con la producción de
30

346120



trabajo externo, y el concentrado de hidrógeno desviado residual puede ser combinado de nuevo, después de una expansión sin producción de trabajo externo, con el concentrado, expandido para volver con el mismo a través de los cambiadores de calor. Alternativamente cualquier concentrado de hidrógeno desviado residual puede ser devuelto simplemente, como una corriente separada a través de los cambiadores de calor que preceden al cambiador de calor de reflujo, y pueden ser recogidos como una corriente separada a una presión más alta que la de la corriente expandida.

En esta forma modificada del procedimiento, se puede utilizar menor cantidad de concentrado de hidrógeno para ser inyectado en la corriente de condensado antes de la evaporación de la última en el cambiador de calor de reflujo, y correspondientemente se puede aumentar el rendimiento en varias unidades de porcentaje para obtener un concentrado de hidrógeno con el mismo grado de pureza que en el procedimiento sin modificar.

Una realización del invento, aplicada a la recuperación de un concentrado de hidrógeno a partir de un gas de purga de síntesis de amoníaco, está descrita seguidamente con referencia a los dibujos anejos.

El gas de purga tenía la siguiente composición:

	<u>% en moles</u>
Hidrógeno	69,0
Nitrógeno	23,0
Argón	2,7
Metano	5,3

2 NOV



5 El gas de purga que se encontraba disponible a una presión de 135 Kg/cm² absolutos y a una temperatura de 10°C, es expandido hasta una presión de 70 Kg/cm² absolutos y después es liberado de agua y de vestigios finales de amoníaco por paso a través de un absorbedor de tamiz molecular. Se pueden utilizar dos absorbedores en forma alternativa, siendo regenerado uno de ellos mientras que el otro se encuentra en servicio.

10 El gas de purga, desde el cual se han eliminado los vestigios finales de amoníaco y agua, es expandido a través de una válvula de expansión hasta una presión de 40 Kgs/cm² absolutos y después es alimentado por la conducción 11 al cambiador de calor 12. Al pasar a través del cambiador de calor 12, el gas de purga es enfriado hasta 85°K de forma que se condensa la mayor parte del argón y del metano y algo del nitrógeno. La mezcla de gas y líquido condensado es hecha pasar por la conducción 13 al separador 14, en el que se separa la fracción líquida. La mezcla de gas residual es hecha pasar entonces por la
15 conducción 15 al cambiador de calor 16, a través del cual pasa hacia arriba y en el cual es enfriada adicionalmente hasta 70°K con el resultado de que se condensan los vestigios remanentes de argón y metano y la mayor parte del nitrógeno y desciende como reflujo en contacto con el
20 gas ascendente. El condensado es recogido en el separador 17 debajo del cambiador de calor 16, y el concentrado de hidrógeno es hecho pasar por la conducción 18 a un cambiador de calor adicional 19, en el que pasando a su través es enfriado hasta 66°K para condensar nitrógeno adicional. La mezcla de gas líquido que abandona el cambiador
25
30

22-10-67

346120



de calor 19, es hecha pasar por la conducción 20 al separador 21. El gas hidrógeno purificado abandona el separador 21 por la conducción 22 y es hecho pasar a través del cambiador de calor 19 y desde allí por la conducción 23, a través del cambiador de calor 16. El hidrógeno purificado abandona el cambiador de calor 16 a 81°K y es hecho pasar entonces por la conducción 24 a la turbina de expansión 25, en la que es expandido con la producción de trabajo externo, hasta 14,5 Kg/cm² y es enfriado de esta manera hasta 64°K. El hidrógeno frío y purificado que abandona la turbina 25 por la conducción 26, es hecho pasar entonces sucesivamente a través del cambiador de calor 19, la conducción 27, el cambiador de calor 16, la conducción 28 y el cambiador de calor 12, respectivamente resultando calentado hasta la temperatura ambiente en el procedimiento. El producto de hidrógeno purificado abandona el cambiador de calor 12 por la conducción 29 y es hecho pasar entonces hasta el lugar de utilización o almacenamiento. Dependiendo de las necesidades de refrigeración, una parte secundaria de la corriente de hidrógeno purificado puede ser desviada de la turbina, siendo recogida por la conducción 23 para pasar por la conducción 30 y la válvula de expansión 31, para volver a unirse con la corriente principal en la conducción 26.

El condensado procedente del separador 14 es expandido a través de la válvula 32 hasta aproximadamente 2 Kg/cm² y es hecho pasar entonces por la conducción 33 a través del cambiador de calor 12 y es evaporado por intercambio indirecto de calor con el gas de purga entrante,

30

346120



y forma un gas de colas a alta presión.

5 Los condensados ricos en nitrógeno procedentes de los separadores 21 y 17 son expandidos a través de las válvulas 34 y 35, respectivamente, hasta aproximada-
mente 1,3 Kg/cm² absolutos, y son hechos pasar por las conducciones 37 y 37 respectivamente a la conducción 38 en la que son combinados. Algo de hidrógeno recogido de la conducción 28 y expandido por la válvula 39 es hecho
10 pasar por la conducción 40 para unirse con la corriente de condensado en la conducción 38 y entonces esta corriente es evaporada haciéndola pasar hacia abajo a través del cambiador de calor 16. La adición de una pequeña cantidad de hidrógeno reduce el margen de temperatura por encima del cual se evapora el condensado cuando pasa a
15 través del cambiador de calor 16. El condensado evaporado es hecho pasar entonces por la conducción 41 al cambiador de calor 12, en el que pasando a su través resulta calentado hasta la temperatura ambiente. Parte del condensado procedente de 17 puede ser hecho pasar direc-
20 tamente a la conducción 41. Este gas de colas, después de ajuste de la presión, puede ser combinado con el gas de colas de alta presión citado anteriormente.

El producto concentrado de hidrógeno puede ser obtenido con un contenido de hidrógeno de 98% en volumen.

25 La presente solicitud que corresponde a la presentada en Gran Bretaña el 17 de Octubre de 1.966 bajo el núm. 46397/66 se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.



N O T A

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de ter Certificado de Adición en España, son los siguientes:

- 5 1.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal Nº. 320.756, expedida el 21 de Marzo de 1.966, por "Un procedimiento para la separación de un concentrado de hidrógeno de una mezcla seca de gases de elevada presión" para un procedimiento para la recupera-
- 10 ción de un concentrado de hidrógeno a partir de un gas de purga de síntesis de amoníaco a una presión superior a la atmosférica, que contiene hidrógeno como su componen-
- 15 te principal, y que contiene nitrógeno, argón y metano, el cual gas ha sido liberado de humedad y de vestigios de amoníaco, comprendiendo el procedimiento a enfriar el gas de purga en una pluralidad de cambiadores de calor para separar por condensación los componentes distintos del hidrógeno siendo separados los condensados después de pasar a través de al menos los dos cambiadores de
- 20 calor finales y producir refrigeración para ser utilizada en el procedimiento por expansión con la producción de trabajo del concentrado de hidrógeno, siendo enfriado el gas de purga entrante por intercambio indirecto de calor con las corrientes de gas de retorno o recicladas
- 25 y los condensados que se evaporan, caracterizadas porque, en el cambiador de calor penúltimo, hidrógeno parcialmente concentrado procedente del cambiador de calor precedente

346120



es hecho pasar hacia arriba, circulando o fluyendo el condensado formado en el mismo hacia abajo en contacto con la corriente ascendente, y es enfriado hasta una temperatura tal que sustancialmente todo el argón y el metano, y parte del nitrógeno contenido en la misma son eliminados en forma de condensado, y el hidrógeno concentrado adicionalmente de esta manera es hecho pasar hacia abajo a través del cambiador de calor final para condensar y eliminar de esta manera una cantidad adicional de nitrógeno, las corrientes refrigerantes en el cambiador de calor final, que son hechas pasar hacia arriba a través del mismo, que comprenden el hidrógeno finalmente concentrado después de la separación del condensado desde el mismo, y al menos parte del hidrógeno finalmente concentrado después que éste ha pasado en primer lugar a través del cambiador de calor final y después a través del cambiador de calor penúltimo y después ha sido expandido con la producción de trabajo externo para enfriarlo hasta una temperatura más baja, y las corrientes refrigerantes en el cambiador de calor penúltimo que pasan hacia abajo a través del mismo, comprendiendo las mismas al menos parte del hidrógeno finalmente concentrado antes de ser expandido el hidrógeno concentrado finalmente expandido, después que ha pasado a través del cambiador de calor final, y al menos parte de los condensados recogidos en los extremos inferiores del cambiador de calor penúltimo y del cambiador de calor último después de la expansión del mismo hasta una presión más baja y la introducción en el mismo de suficiente cantidad

5
10
15
20
25
30

346120



del producto de hidrógeno finalmente concentrado expandido hasta la misma presión inferior, para reducir la temperatura de evaporación de los condensados hasta el grado requerido.

5 2.- Las mejoras según la reivindicación 1, en que después de que el hidrógeno finalmente concentrado ha pasado hacia arriba a través del cambiador de calor final como corriente refrigerante, una parte del mismo es separada, y después de ser expandida a través de una
10 válvula de expansión hasta la misma presión que aquella a la que parte del hidrógeno finalmente concentrado es expandido con producción de trabajo externo, es combinada de nuevo con la parte expandida últimamente mencionada de hidrógeno finalmente concentrado antes de su paso a
15 través del cambiador de calor final.

 3.- Las mejoras de acuerdo con las reivindicaciones 1 o 2, en que la totalidad del condensado recogido en el extremo inferior del cambiador de calor final es combinada con al menos parte del condensado recogido en
20 el extremo inferior del cambiador de calor penúltimo y se introduce concentrado de hidrógeno en el mismo para formar la corriente refrigerante que se evapora, que pasa hacia abajo a través del cambiador de calor penúltimo.

 4.- Mejoras introducidas en el objeto de la
25 patente principal N^o.320.756 expedida el 21 de Marzo de 1.966 por: Un procedimiento para la separación de un concentrado de hidrógeno de una mezcla seca de gases a elevada presión.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que

346120

2 NOV



antecede, representado en los dibujos que se acompañan,
y para los fines que se han especificado.

Esta Memoria, consta de catorce hojas escritas
a máquina por una sola cara,

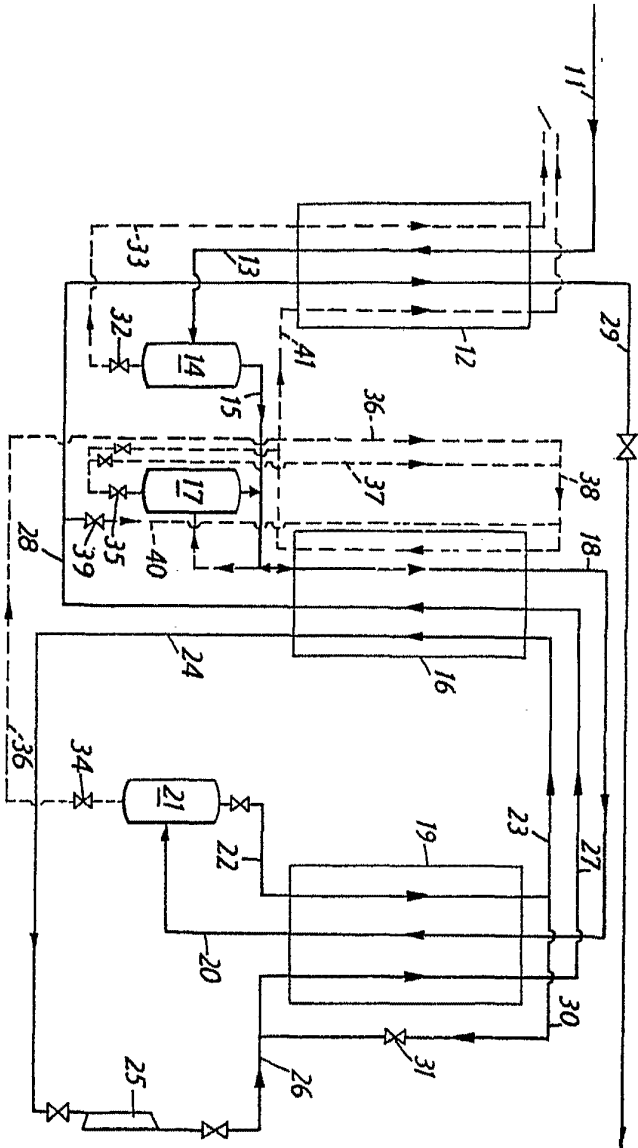
Madrid, 2 NOV. 1967

Alberto de Elzaburu

AST/
23-10-67

- 14 -

346120

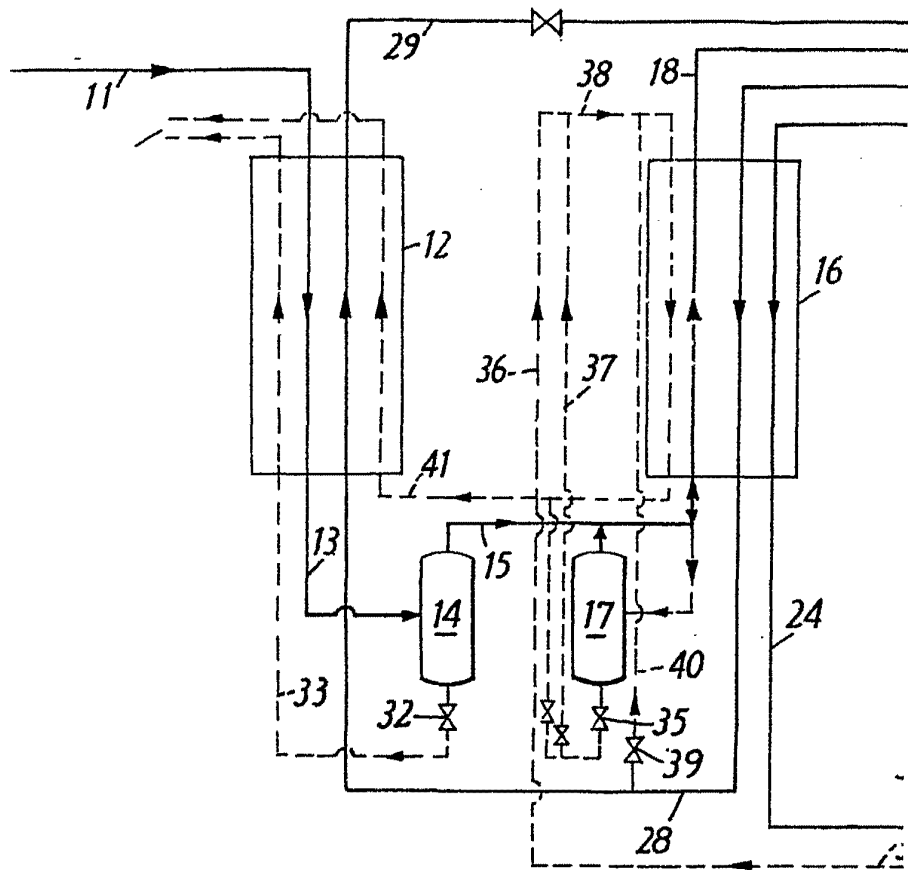


346120

346120

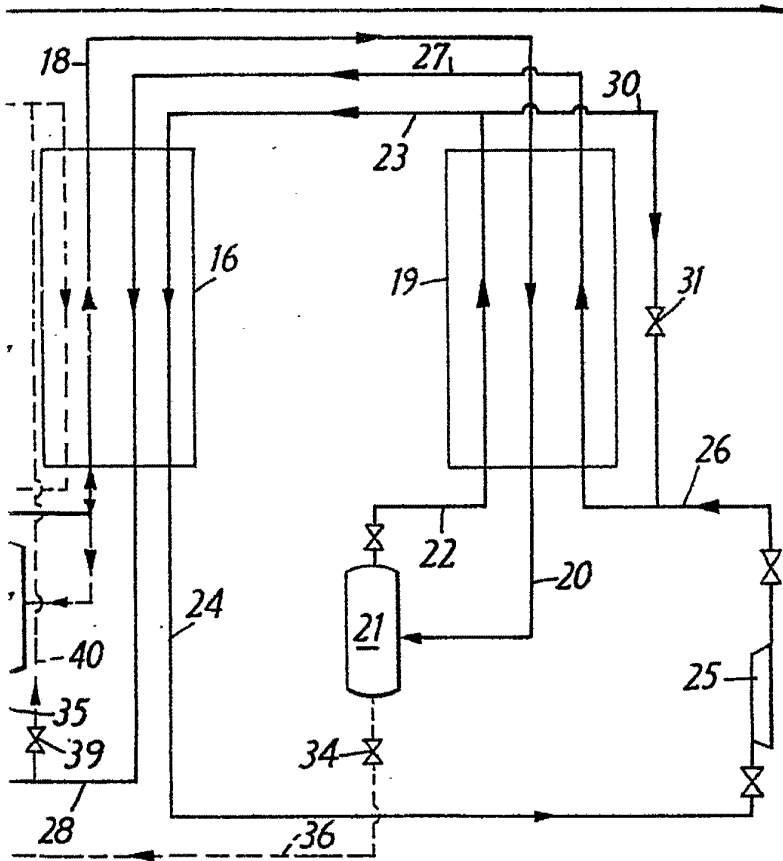
W. L. V. K.





346120

PJ0451



346120

[Handwritten signature]