

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **3 027 984**

51 Int. Cl.:

**C10K 1/00** (2006.01)

**C10K 3/04** (2006.01)

**C01B 3/48** (2006.01)

**C01B 3/50** (2006.01)

**C01B 3/56** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **24.09.2018 PCT/US2018/052394**

87 Fecha y número de publicación internacional: **04.04.2019 WO19067349**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **24.09.2018 E 18860914 (3)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **05.03.2025 EP 3688123**

54 Título: **Método y aparato para la producción de hidrógeno**

30 Prioridad:

**29.09.2017 US 201762565873 P**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**17.06.2025**

73 Titular/es:

**RESEARCH TRIANGLE INSTITUTE (100.00%)  
3040 Cornwallis Road  
Research Triangle Park, NC 27709, US**

72 Inventor/es:

**ZHOU, SHAOJUN, JAMES;  
GUPTA, RAGHUBIR, P.;  
CARPENTER, JOHN, REEVES y  
TURK, BRIAN, S.**

74 Agente/Representante:

**DÍAZ DE BUSTAMANTE TERMINEL, Isidro**

**ES 3 027 984 T3**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Método y aparato para la producción de hidrógeno

5

**SOLICITUDES RELACIONADAS**

La presente solicitud reivindica el beneficio con respecto a la solicitud de patente provisional estadounidense con n.º de serie 62/565.873, presentada el 29 de septiembre de 2017, titulada "METHODS AND APPARATUS FOR PRODUCTION OF HYDROGEN".

10

**CAMPO TÉCNICO**

La presente invención se refiere de forma general al tratamiento o purificación de una corriente de gases, especialmente para retirar nitrógeno y dióxido de carbono de una corriente de gases para producir hidrógeno.

15

**ANTECEDENTES**

El hidrógeno (H<sub>2</sub>) es uno de los gases industriales más importantes, usado ampliamente en las refinerías de petróleo y plantas petroquímicas. El hidrógeno también se utiliza en la industria de los semiconductores, producción de acero, industria alimentaria, generación de energía eléctrica y similares. Últimamente, el hidrógeno se ha convertido en el combustible preferido para los sistemas que funcionan con pilas de combustible tales como los automóviles, carretillas montacargas, etc. El hidrógeno se produce de forma típica a gran escala utilizando el reformado a alta temperatura o la oxidación parcial de metano y/o hidrocarburos o a través de la gasificación de materias primas carbonosas. La producción de volúmenes de hidrógeno más pequeños supone un coste significativo y problemas de fiabilidad, y no se lleva a la práctica ampliamente en la industria, salvo mediante la electrolisis del agua.

20

25

Con la reciente llegada al mercado de los vehículos basados en pilas de combustible (entre los que se incluyen vehículos de pasajeros, autobuses, camiones) y equipamiento (por ejemplo, carretillas montacargas usadas en almacenes), la producción de hidrógeno en cantidades de 200-300 kg/día *in situ* es una tecnología de proceso facilitadora para el crecimiento continuo y acelerado del mercado global de las pilas de combustible y el mercado de los vehículos basados en pila de combustible en particular. No existen opciones técnicamente viables o rentables para la producción de hidrógeno *in situ* a esta escala. La electrolisis del agua usando electricidad en una celda electroquímica es cara y tiene problemas de fiabilidad. Los reformadores de metano por vapor o los gasificadores de carbón no se pueden reducir de tamaño de una forma rentable para producir estas pequeñas cantidades de hidrógeno.

30

35

El reformado de metano e hidrocarburos a temperaturas elevadas produce una corriente de gas intermedio que se denomina gas de síntesis o "syngas". El syngas también se puede producir a partir de la oxidación y gasificación parcial de materias primas orgánicas (carbón, coque de petróleo, biomasa, petróleo, hidrocarburos).

40

Cuando se utiliza el oxígeno como agente oxidante en estos procesos, el syngas consiste principalmente de monóxido de carbono (CO), H<sub>2</sub>, dióxido de carbono (CO<sub>2</sub>) y vapor de agua. Cuando se utiliza aire como agente oxidante, la importante fracción de nitrógeno (N<sub>2</sub>) del aire se convierte en el componente principal del syngas, siendo CO, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y el vapor de agua componentes minoritarios. En muchos procesos, es deseable separar un H<sub>2</sub> gaseoso de alta pureza del syngas. Para la producción de syngas basada en el uso de aire en lugar de oxígeno como agente oxidante, esto aumenta la complejidad del proceso de separación del H<sub>2</sub>, ya que el nitrógeno, que es el componente mayoritario, también debe retirarse. Por ejemplo, la pila de combustible con membrana de polímero y electrolito para aplicaciones de automoción requieren una pureza del H<sub>2</sub> gaseoso del 99,97 por ciento o superior, ya que los contaminantes del H<sub>2</sub> gaseoso pueden interferir o envenenar los electrocatalizadores de la pila de combustible. El H<sub>2</sub> de alta pureza también puede ser de utilidad en propulsores, fabricación de semiconductores, instrumentación analítica y como material de partida en la producción de diversos productos químicos.

45

50

El documento US4409196 A divulga un método y sistema para producir una corriente de hidrógeno purificada. El documento US2004/182002 A1 divulga un método y sistema para producir H<sub>2</sub> de alta pureza. El documento WO2008/046880 divulga un método para extraer hidrógeno de una mezcla de gases que comprende hidrógeno y monóxido de carbono y opcionalmente nitrógeno, dióxido de carbono, hidrocarburos inferiores y/o agua.

55

Los procesos convencionales para purificar el syngas generado que utilizan oxígeno como agente oxidante para producir hidrógeno de alta pureza exigen una serie de etapas de procesamiento y limpieza de los gases, incluida la eliminación por separado del CO<sub>2</sub> usando arrastre con disolventes, seguido de una adsorción con cambio de presión para lograr los mayores niveles de pureza del H<sub>2</sub>. El gas de colas producidos en la adsorción con cambio de presión se utiliza típicamente como gas combustible de valor calorífico, dando como resultado una pérdida significativa de H<sub>2</sub>, haciendo que estos procesos sean ineficaces y costosos. Para el syngas generado usando aire como agente oxidante, la elevada concentración de nitrógeno en el syngas solamente se puede separar mediante adsorción con cambio de presión, pero el gas de colas resultante contiene gran cantidad de nitrógeno, lo que reduce su valor como combustible y aumenta las pérdidas de H<sub>2</sub>. Debido a estos problemas, el syngas generado con aire como oxidante no se utiliza en la producción de hidrógeno comercial ya que no tiene un coste competitivo.

60

65

**SUMARIO**

5 Para abordar los problemas anteriores, en todo o en parte, y/u otros problemas que puedan haber observado los expertos en la técnica, la presente divulgación proporciona métodos, procesos, sistemas, aparatos, instrumentos y/o dispositivos, que se describen por medio de ejemplos en las implementaciones que se exponen a continuación.

La invención se define en las reivindicaciones adjuntas.

10 Aunque parte de la divulgación se centra en los procesos de eliminación de N<sub>2</sub> y CO<sub>2</sub>. Otra forma de pensar en el proceso divulgado es que separa la mayoría del H<sub>2</sub> de los contaminantes y, a continuación, elimina selectivamente cualesquiera impurezas restantes del H<sub>2</sub>. La ventaja de la combinación única de estas etapas de separación individuales es que las pérdidas de H<sub>2</sub> se pueden minimizar a casi cero recirculando la corriente de gas de colas.

15 Otros dispositivos, aparatos, sistemas, métodos, rasgos y ventajas de la invención serán o resultarán evidentes para un experto en la técnica tras examinar las siguientes figuras y la descripción detallada. Se pretende que todos estos sistemas, métodos, rasgos y ventajas adicionales queden incluidos dentro de la presente descripción, dentro del ámbito de la invención y protegidos por las reivindicaciones adjuntas.

**BREVE DESCRIPCIÓN DE LOS DIBUJOS**

20 La invención puede entenderse mejor haciendo referencia a las siguientes figuras. Los componentes de las figuras no están necesariamente a escala, ya que en su lugar el énfasis se pone en ilustrar los principios de la invención. En las figuras, números de referencia similares designan piezas correspondientes en las diferentes vistas.

25 La Figura 1 es una vista esquemática de un ejemplo de un sistema de procesamiento de gases en el que se pueden implementar los métodos de purificación de hidrógeno del presente documento de acuerdo con algunas realizaciones.

La Figura 2 es una vista esquemática de un ejemplo de una unidad de purificación de acuerdo con algunas realizaciones.

30 La Figura 3 es un ejemplo de diagrama de flujo de un método para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado de acuerdo con algunas realizaciones.

La Figura 4 es un ejemplo de diagrama de flujo de un método para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado de acuerdo con algunas realizaciones.

35 La Figura 5 es un ejemplo de diagrama de flujo de un método para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado de acuerdo con algunas realizaciones.

**DESCRIPCIÓN DETALLADA**

40 Como se usa en el presente documento, el término "syngas" se refiere a gas de síntesis. En el contexto de la presente divulgación, el syngas es una mezcla de, al menos, monóxido de carbono (CO) e hidrógeno diatómico gaseoso (H<sub>2</sub>). Dependiendo de la realización, el syngas puede incluir adicionalmente otros componentes tales como, por ejemplo, agua, aire, nitrógeno diatómico gaseoso (N<sub>2</sub>), oxígeno diatómico gaseoso (O<sub>2</sub>), dióxido de carbono (CO<sub>2</sub>), compuestos de azufre (por ejemplo, sulfuro de hidrógeno (H<sub>2</sub>S), sulfuro de carbonilo (COS), óxidos de azufre (SO<sub>x</sub>), etc. ), compuestos de nitrógeno (por ejemplo, óxidos de nitrógeno (NO<sub>x</sub>), etc. ), carbonilos metálicos, hidrocarburos (por ejemplo, metano (CH<sub>4</sub>)), amoníaco (NH<sub>3</sub>), cloruros (por ejemplo, cloruro de hidrógeno (HCl)), cianuro de hidrógeno (HCN), metales traza y metaloides (por ejemplo, mercurio (Hg), arsénico (As), selenio (Se), cadmio (Cd), etc. ) y compuestos de los mismos, materia en forma de partículas (PM), etc.

50 Tal como se usa en el presente documento, el término "gas natural" se refiere a una mezcla de hidrocarburos (HC) gaseosos que consiste principalmente en metano y cantidades menores de alcanos superiores. Dependiendo de la realización, el gas natural puede incluir adicionalmente especies no hidrocarbonadas tales como uno o más de las anteriormente citadas, así como disulfuro de carbono (CS<sub>2</sub>) y/u otros disulfuros, así como mercaptanos (tioles) tales como metanotiol (CH<sub>3</sub>SH) y etanotiol (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SH), tiofeno y otros compuestos organosulfurosos.

55 Como se usa en el presente documento, el término "fluido" generalmente abarca el término "líquido" y también el término "gas" salvo que se indique otra cosa o que el contexto dicte otra cosa. El término "fluido" abarca un fluido que tiene partículas suspendidas o transportadas. El término "gas" abarca un gas que incluye o arrastra un vapor o gotículas de líquido. El término "fluido", "líquido" o "gas" abarca un "fluido", "líquido" o "gas" que incluye un único componente (especie) o una mezcla de dos o más componentes diferentes. Los ejemplos de mezclas multicomponentes incluyen, aunque no de forma limitativa, el syngas y el gas natural que se han descrito anteriormente.

60 Como se usa en el presente documento, el término "gas de proceso" se refiere en general a cualquier gas que contenga inicialmente H<sub>2</sub> y uno o más contaminantes. Un gas de proceso en una etapa inicial de un método de procesamiento de gases como se divulga en el presente documento, es decir, cuando se introduce en un sistema de procesamiento de gases como se divulga en el presente documento, también se puede denominar como "gas en bruto" o "gas de alimentación". Un gas de proceso después de haberse sometido a la eliminación de contaminantes de acuerdo con un método de procesamiento de gas como se divulga en el presente documento también se puede denominar como "gas mejorado", "gas purificado", o como "corriente de permeato". El término "gas de proceso" generalmente no es limitativo ya que la composición del gas en cualquier etapa particular del método de procesamiento de gases varía. Por ejemplo, el término "gas de proceso" no proporciona por sí mismo ninguna indicación de las concentraciones de H<sub>2</sub> o de ningún

contaminante en el gas en un momento dado. Los ejemplos de gases de proceso incluyen, aunque no de forma limitativa, el syngas y el gas natural que se han descrito anteriormente. Otros ejemplos de gases de proceso son gases que incluyen uno o más de: CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> e hidrocarburos (HC).

5 Tal como se usan en el presente documento, "selectividad" de una membrana de separación de gases en la separación de una mezcla gaseosa bicomponente se define como la proporción entre las permeabilidades de los dos gases componentes de una mezcla de gases. La selectividad se puede obtener directamente poniendo en contacto una la membrana de separación de gases con una mezcla de gases conocida y analizando el permeato. Como alternativa, se obtiene una primera aproximación de la selectividad midiendo la permeabilidad de los gases por separado en la misma membrana de separación de gases.

10 La presente divulgación proporciona métodos para purificar un syngas en el que N<sub>2</sub> es el componente mayoritario (es decir, tiene la fracción molar más alta de cualquier componente en el syngas) para producir una corriente de H<sub>2</sub> gaseoso purificado. En diversas realizaciones, como se ilustra en la Fig. 1, un ejemplo de sistema de procesamiento 100 de gases puede comprender una unidad de reacción de syngas 105. En una realización no limitativa, la unidad de reacción de syngas 105 puede tener una alimentación de gas en bruto (indicada como corriente 1 en la Fig. 1) que sirve como combustible, y una alimentación de oxidante (corriente 2) tal como aire, aire enriquecido y oxígeno, en ciertas realizaciones, el oxidante también puede contener vapor y/o CO<sub>2</sub>. La alimentación de gas en bruto (corriente 1) puede ser, por ejemplo, una corriente de hidrocarburos de baja calidad procedente de un proceso industrial o de un proceso de producción de gas natural o crudo de petróleo. El combustible también puede comprender gas natural que contenga principalmente metano (CH<sub>4</sub>). En ciertas realizaciones, el combustible alimentado a la unidad de reacción de syngas 105 puede ser carbón, coque de petróleo, biomasa o cualquier otra materia prima carbonosa.

15 En ciertas realizaciones, la unidad de reacción de syngas 105 puede comprender un motor de combustión interna que funciona en condiciones de alta concentración de combustible para oxidar parcialmente el combustible (en oposición a hacer funcionar el motor para combustionar completamente el combustible) para producir syngas (corriente 3) que comprende N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, CO y diferentes contaminantes. El syngas (corriente 3) puede fluir a una unidad 110 de desplazamiento del gas de agua (Water-Gas Shift, WGS) junto con una alimentación de agua (corriente 4) para producir un gas mejorado (corriente 5) que tiene mayor proporción H<sub>2</sub>/CO que el syngas (corriente 3). El gas mejorado (corriente 5) fluye a una unidad de purificación 115 que comprende uno o más procesos de separación que se analizan más adelante para retirar una parte de los contaminantes del gas mejorado (corriente 5). La unidad de purificación 115 produce un H<sub>2</sub> gaseoso de alta pureza (corriente 7) y un gas de colas (corriente 6) que comprende N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y otros contaminantes, así como H<sub>2</sub> residual.

20 En ciertas realizaciones, la unidad de reacción de syngas 105 puede comprender una unidad de gasificación que funciona para oxidar parcialmente materias primas carbonosas para producir syngas (corriente 3). Si se utilizan combustibles carbonosos con alto contenido en azufre en la unidad de reacción de syngas 105, se utiliza un sistema de desulfuración que funciona a temperaturas comprendidas entre 482 y 1292°F (250 a 700°C) como se divulga en la patente de Estados Unidos 6 951 635 antes de enviar el syngas a la unidad WGS para reducir la concentración total de azufre a menos de 100 ppmv, preferiblemente menos de 50 ppmv y más preferiblemente menos de 20 ppmv. El syngas procedente de la unidad de desulfuración puede fluir a la unidad 110 de desplazamiento del gas de agua (Water-Gas Shift, WGS) junto con una alimentación de agua (corriente 4) para producir un gas mejorado (corriente 5) que tiene mayor proporción H<sub>2</sub>/CO que el syngas (corriente 3). El gas mejorado (corriente 5) fluye a una unidad de purificación 115 que comprende uno o más procesos de separación que se analizan más adelante para retirar una parte de los contaminantes del gas mejorado (corriente 5). La unidad de purificación 115 produce un H<sub>2</sub> gaseoso de alta pureza (corriente 7) y un gas de colas (corriente 6) que comprende N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y otros contaminantes, así como H<sub>2</sub> residual.

25 En ciertas realizaciones, la unidad de reacción de syngas 105 puede comprender un sistema de oxidación parcial donde el aire es un oxidante que funciona para oxidar parcialmente materias primas de hidrocarburos para producir syngas (corriente 3). El syngas procedente de la unidad de reacción de syngas puede fluir a la unidad 110 de desplazamiento del gas de agua (Water-Gas Shift, WGS) junto con una alimentación de agua (corriente 4) para producir un gas mejorado (corriente 5) que tiene mayor proporción H<sub>2</sub>/CO que el syngas (corriente 3). El gas mejorado (corriente 5) fluye a una unidad de purificación 115 que comprende uno o más procesos de separación que se analizan más adelante para retirar una parte de los contaminantes del gas mejorado (corriente 5). La unidad de purificación 115 produce un H<sub>2</sub> gaseoso de alta pureza (corriente 7) y un gas de colas (corriente 6) que comprende N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y otros contaminantes, así como H<sub>2</sub> residual.

30 En diversas realizaciones, el syngas (corriente 3) puede tener una proporción H<sub>2</sub>/CO inicial de aproximadamente 0,6 a aproximadamente 3. En ciertas realizaciones, la proporción H<sub>2</sub>/CO inicial puede variar de aproximadamente 1,5 a aproximadamente 2,5. En ciertas realizaciones, la segunda proporción H<sub>2</sub>/CO (es decir la proporción en el gas mejorado (corriente 5)) puede variar de aproximadamente 8 a aproximadamente 150. En determinadas realizaciones, la segunda proporción H<sub>2</sub>/CO puede variar de aproximadamente 8 a aproximadamente 120. En determinadas realizaciones, la segunda proporción H<sub>2</sub>/CO puede variar de aproximadamente 8 a aproximadamente 50.

35 En aquellas realizaciones que utilizan un motor de combustión interna como unidad de reacción syngas 105, la energía mecánica producida por el motor se puede utilizar para dirigir la energía o hacer funcionar un generador para producir electricidad para los diversos equipos de la unidad de purificación 115 tales como bombas, compresores, controladores, etc. Como alternativa, la energía o electricidad se pueden utilizar en cualquier otro fin deseado. Adicionalmente, en determinadas realizaciones, la unidad WGS 110 puede generar energía térmica que se puede utilizar en otras etapas del

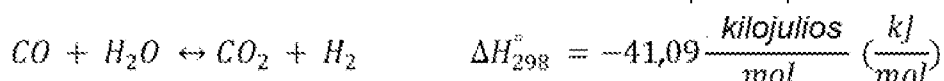
proceso 100. Aunque la Fig. 1 utiliza un motor de combustión interna con una alimentación de combustible y oxidante, dicha disposición es opcional y diferentes realizaciones pueden utilizar cualesquiera fuentes de syngas que contengan H<sub>2</sub> y CO. Análogamente, cualesquiera generaciones de energía o electricidad dentro del proceso 100 y su uso posterior es opcional.

5

La reacción WGS se utiliza para desplazar un gas que comprende los reactantes agua y CO a los productos CO<sub>2</sub> y H<sub>2</sub> haciendo reaccionar el CO con una corriente sobre un lecho catalizador. El WGS es un proceso industrialmente importante que se utiliza para aumentar la proporción H<sub>2</sub>/CO para satisfacer los requisitos de los procesos corriente abajo para una aplicación en particular. Por ejemplo, el WGS se aplica en la captura de CO<sub>2</sub> previa a la combustión cuando el combustible está parcialmente oxidado, como se ha analizado anteriormente para la Fig. 1, para producir un syngas que consiste predominantemente en CO y H<sub>2</sub>. Este syngas se ha desplazado para maximizar las concentraciones de H<sub>2</sub> y CO<sub>2</sub>, y el CO<sub>2</sub> se puede eliminar posteriormente para producir H<sub>2</sub> de alta pureza. El WGS también se utiliza ampliamente en la producción de sustancias químicas donde la proporción H<sub>2</sub>/CO debe ajustarse según los requisitos del proceso, tales como para el metanol y en aplicaciones Fischer-Tropsch.

10

El WGS es una reacción reversible moderadamente exotérmica que se expresa como:



donde  $\Delta H_{298}^{\circ}$  es la entalpía de reacción a 298 Kelvin (K).

La constante de equilibrio de la reacción disminuye al aumentar la temperatura. La reacción se ve termodinámicamente favorecida a bajas temperaturas y cinéticamente favorecida a altas temperaturas. Puesto que no hay variación de volumen entre reactivos y productos, la reacción no se ve afectada por la presión.

20

El equilibrio de esta reacción muestra una dependencia significativa con la temperatura, y la constante de equilibrio disminuye al aumentar la temperatura, esto es, se observa una conversión de monóxido de carbono más elevada a temperaturas más bajas. Para aprovechar tanto la termodinámica como la cinética de la reacción, el WGS realizado a escala industrial se aplica en múltiples etapas adiabáticas con enfriamiento entre etapas entre reactores.

25

El proceso de desplazamiento del gas de agua utiliza vapor para desplazar CO a CO<sub>2</sub> y producir H<sub>2</sub> en el proceso. Además de ser un reactante, el vapor también sirve para desplazar el equilibrio del desplazamiento del gas de agua hacia más cantidad de H<sub>2</sub>, controlando el aumento de temperatura de la reacción exotérmica de desplazamiento del gas de agua, que si se deja sin controlar podría desactivar el catalizador. El vapor también es necesario para evitar la coquización en la superficie del catalizador, que también desactiva el catalizador.

30

Tradicionalmente, el WGS se lleva a cabo usando dos reactores en serie para realizar el desplazamiento a alta temperatura (High Temperature Shift, HTS) seguido por un desplazamiento a baja temperatura (Low Temperature Shift, LTS). Se añade agua al syngas alimentado al primer reactor (WGS 1). El agua puede estar en forma de vapor. Como alternativa, esta agua puede estar en forma de agua líquida, por lo que la energía térmica necesaria para generar el vapor se extrae del calor sensible del gas de alimentación por mezcla directa del gas de alimentación y agua líquida con una boquilla pulverizadora o un atomizador. El uso de agua líquida permite el enfriamiento adicional del gas de alimentación a la temperatura deseada para la reacción de desplazamiento en el primer reactor y el consumo de agua generado durante el enfriamiento del gas mejorado corriente debajo de los reactores de desplazamiento del gas de agua. El syngas procedente de la salida del primer reactor (WGS 1) se enfría hasta la temperatura de entrada deseada de desplazamiento usando el exceso de calor para generar y/o elevar la temperatura del vapor y el syngas enfriado se alimenta al segundo reactor (WGS 2).

35

No se aplican limitaciones específicas a la configuración de los reactores de desplazamiento. Por lo general, cada reactor de desplazamiento puede tener cualquier configuración adecuada para llevar a cabo la reacción WGS. Para este fin, cada reactor de desplazamiento puede generalmente incluir un vaso que tiene una entrada y una salida, y un desplazamiento de catalizador en el vaso. Dependiendo del tipo de catalizador de desplazamiento utilizado, cada reactor de desplazamiento puede incluir un soporte estructural para el catalizador de desplazamiento.

50

En algunas realizaciones, el primer reactor de desplazamiento (WGS 1) está configurado o funciona para llevar a cabo una reacción de desplazamiento a alta temperatura (HTS), mientras que el segundo reactor de desplazamiento (WGS 2) está configurado o funciona para llevar a cabo una reacción de desplazamiento a baja temperatura (LTS). En algunas realizaciones, en una reacción HTS, la temperatura de entrada del gas alimentado a un reactor de desplazamiento varía, por ejemplo, de 570 a 700 °F (298 a 371°C). En algunas realizaciones, en una reacción LTS, la temperatura de entrada del gas alimentado a un reactor de desplazamiento varía, por ejemplo, de 400 a 550 °F (204°C a 288°C). Dependiendo del tipo de reacción de desplazamiento realizada en los correspondientes reactores de desplazamiento, los reactores HTS y LTS pueden contener diferentes tipos de catalizadores.

60

Por lo general, el catalizador de desplazamiento se puede proporcionar y soportar de cualquier forma adecuada para llevar a cabo la reacción WGS. Por ejemplo, el catalizador de desplazamiento se puede proporcionar como un lecho fijo que se coloca en el reactor de desplazamiento de modo que los gases puedan fluir a través del lecho catalizador. La

composición del catalizador de desplazamiento puede depender de la temperatura de funcionamiento del reactor de desplazamiento y de la composición de gas a procesar en el reactor de desplazamiento.

5 En aquellas realizaciones que utilizan un motor de combustión interna como unidad de reacción syngas 105, el syngas contendrá niveles traza de oxígeno sin reaccionar. Normalmente, la presencia de agentes oxidantes fuertes tales como el oxígeno en la corriente alimentada a una unidad WGS producirá la desactivación del estado de oxidación del metal activo en el catalizador WGS. En el primer reactor WGS (WGS 1) que contiene un catalizador HTS, las condiciones de funcionamiento y la concentración de oxígeno son adecuadas para la conversión catalítica de cualesquiera concentraciones traza de oxígeno presente en la alimentación de syngas procedente del motor que funciona para producir 10 syngas en el agua con un efecto adverso mínimo sobre la actividad del catalizador. Por lo tanto, en esta realización, no se requiere un sistema de eliminación de oxígeno independiente.

15 Análogamente, el catalizador HTS de hierro convencional puede tolerar hasta 50 ppmv de compuestos de azufre sin ninguna desactivación significativa debida al envenenamiento por azufre. Debido a esto, las cantidades traza de azufre presentes en el gas natural alimentado, por motivos de seguridad (detección de fugas) no afectarán negativamente las prestaciones del proceso WGS. Análogamente, para la realización de la gasificación que utiliza una alimentación carbonosa con alto contenido en azufre, una unidad de desulfuración para reducir la concentración de azufre a menos de 50 ppmv permitirá usar un catalizador HTS convencional sin problemas. Estos compuestos de azufre permanecerán en el gas mejorado para su retirada definitiva en un proceso de separación posterior y no se prevé en esta realización una 20 eliminación de azufre adicional para afinado.

No se aplican limitaciones específicas al tipo o configuración de los intercambiadores de calor utilizados en este proceso WGS o en los procesos de purificación. Esto significa que cualquier sistema de reducción de calor que permita controlar la temperatura del syngas efluente para que cumpla las especificaciones de temperatura de los procesos corriente abajo es válido. Los ejemplos de intercambiadores de calor potencialmente útiles están refrigerados por agua, refrigerados por 25 aire, y/o usan otros refrigerantes líquidos en sus ciclos de refrigeración. Como alternativa, el uso del calor sensible del gas de alimentación para vaporizar el agua y su efecto refrigerante son especialmente bien adecuados para el proceso WGS ya que permite recircular el agua condensada recogida durante el enfriamiento corriente abajo del proceso WGS a la vez que también proporciona vapor para la reacción WGS.

30 La salida del sistema WGS 110 (corriente 5) puede ser la entrada de la unidad de purificación 115. La Fig. 2 ilustra un ejemplo de unidad de purificación 115 de acuerdo con las diversas realizaciones. El gas mejorado fluye a la primera unidad de separación 305. De acuerdo con la invención reivindicada en este documento, la primera unidad de separación 305 comprende una unidad de membrana. La unidad de membrana puede comprender una membrana densa con una composición selectiva para el H<sub>2</sub>, que permite que el H<sub>2</sub> fluya con preferencia hacia la unidad de membrana en la corriente de permeato 310, aunque algunos contaminantes, en concreto N<sub>2</sub> y CO<sub>2</sub>, se eliminan en la corriente de retentato 315. La membrana puede comprender un polímero semipermeable (diversos materiales de membrana conocidos en la técnica, por ejemplo, aunque no de forma limitativa, tales como poliimida, poliamida, acetato de polivinilo, polisulfona, 40 politetrafluoroetileno (PTFE), acetato de celulosa, otros derivados de celulosa, poliéter etercetona, polibencimidazol, poliolefinas, etc. ), un material cerámico, un compuesto de carbono, carbón activado o un compuesto metálico. La selectividad del H<sub>2</sub>, que generalmente se define como la permeabilidad del H<sub>2</sub> frente a la del resto de gases en la mezcla, de la membrana puede variar de 10 a 200, y el área de contacto de la membrana se puede determinar a partir de las características de la corriente de salida 5 del sistema WGS 110 y las características de funcionamiento (por ejemplo, la temperatura y presión) de la unidad de membrana. En diversas realizaciones, la unidad de membrana puede funcionar a una temperatura que varía de -4°F a 480°F (-20°C a 250°C) y una presión que varía de 1 atm a 100 atm (101 kPa a 10.133 kPa). La membrana utilizada con este fin está preferiblemente en forma de fibras huecas o láminas planas, y se modularizan en un diseño enrollado en espiral, un diseño de placa y bastidor o un diseño de fibras huecas. Por ejemplo, una de estas membranas enrolladas en espiral es una membrana de celulosa comercial suministrada por UOP (Des Plaines, IL) para la separación de CO<sub>2</sub> del metano y uno de estos módulos de membrana de fibras huecas está 50 comercializado por Air Liquide (Houston, TX) para los sistemas de generación de nitrógeno a bordo para la separación N<sub>2</sub> del aire.

La permeación de hidrógeno en membranas densas se puede producir mediante un mecanismo de difusión en solución, en donde las moléculas de gas se adsorben o disuelven inicialmente sobre la superficie del material de la membrana. Una vez adsorbidas sobre la superficie de la membrana, las moléculas de gas se pueden difundir a través del material de la membrana. En diversas realizaciones, puesto que la selectividad de la membrana para el hidrógeno es mucho mayor que la selectividad para cada contaminante individual, muy pocos contaminantes (por ejemplo, N<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, compuestos de azufre) del gas permean a través de la superficie de la membrana y dichos contaminantes abandonan la unidad de membrana 305 en la corriente de retentato 315. 55

60 La corriente de permeato 310 puede fluir a un primer intercambiador de calor 320 para eliminar el agua antes de aumentar la presión de la corriente de permeato 310 mediante el compresor 325. El exceso de calor generado en el paso de compresión se puede eliminar en un segundo intercambiador de calor 330. La corriente presurizada 335 resultante puede fluir a una segunda unidad de separación 340. La corriente presurizada 335 puede tener una presión que varía de 2 bar a 100 bar (200 kPa a 10.000 kPa) y una temperatura que varía de 32°F a 122°F (0°C a 50°C). De acuerdo con la invención reivindicada en este documento, la segunda unidad de separación 340 comprende una unidad de adsorción por cambio de presión (Pressure Swing Adsorption, PSA). La PSA se basa en uno o más lechos adsorbentes 370 que capturan los contaminantes de la corriente presurizada 335, lo que permite de este modo que el H<sub>2</sub>pase por la unidad PSA y, 65

posteriormente, liberar los contaminantes adsorbidos a una presión inferior (generalmente, inferior a la presión de la corriente presurizada 335) cuando el lecho adsorbente 370 se regenera. Esta corriente regenerada es la corriente 350 de gas de colas en la Fig. 2. Se pueden utilizar múltiples lechos adsorbentes 370 simultáneamente para generar una corriente continua de H<sub>2</sub> con una pureza superior al 99,9. En un proceso PSA de dos lechos, la mezcla de alimentación entra en contacto con el primer lecho adsorbente que contiene adsorbentes que adsorben preferentemente algunos componentes de la mezcla. El componente menos adsorbido atravesará el lecho más rápidamente y producirá una corriente con alto contenido de este componente. El flujo de alimentación cambia a un segundo lecho adsorbente antes de que el resto de componentes pasen y el primer lecho se regenera desorbiendo los compuestos adsorbidos mediante la reducción de la presión total del sistema. El mismo proceso se repite en el segundo lecho adsorbente y para la totalidad del proceso PSA. Otras variaciones del proceso PSA con lechos múltiples funcionan con el mismo principio.

El adsorbente de los sistemas PSA se puede seleccionar por su capacidad para discriminar entre los diferentes gases de la mezcla. En ciertas realizaciones, el adsorbente se puede seleccionar para eliminar preferentemente el CO<sub>2</sub> de la corriente presurizada 335. Cuando se utilizan múltiples lechos adsorbentes 370, el adsorbente de cada lecho adsorbente se puede seleccionar para eliminar preferentemente uno o más contaminantes diana. Por ejemplo, uno (o más) lechos adsorbentes 370 se pueden destinar al CO<sub>2</sub>, mientras que otro lecho adsorbente 370 se destina al H<sub>2</sub>S y otro lecho adsorbente 370 adicional puede destinarse al CO. El adsorbente funciona según el principio de que los gases sometidos a presiones elevadas se ven atraídos hacia la superficie de un sólido en función de su afinidad y pueden quedar capturados o adsorbidos en dicha superficie. Por lo general, cuanto mayor sea la presión, más cantidad de gas se adsorberá. Una vez que la presión se reduce, el gas tiende a desorberse. Por tanto, un lecho adsorbente 370 que funciona bajo presión elimina uno o más contaminantes de la corriente presurizada 335, y la corriente 345 de H<sub>2</sub> purificado sale de la unidad PSA 340. Una vez que el adsorbente alcanza su capacidad de adsorción, el flujo de corriente presurizada 335 al lecho adsorbente 370 se detiene y se deja que disminuya la presión. Cuando la presión cae, los contaminantes se desorben de la superficie del adsorbente y salen de la unidad PSA 340 con la corriente 350 del gas de colas. El adsorbente puede ser cualquier tipo conocido en la técnica, tales como zeolitas, carbón activo (incluyendo tamices moleculares), alúmina, gel de sílice y resinas.

En diversas realizaciones, todo o parte de la corriente 350 de gas de colas se recircula a un punto corriente arriba de la primera unidad de separación 305 combinando la corriente 350 de gas de colas con la corriente 5 de gas mejorado antes de fluir a la primera unidad de separación 305. Aunque el adsorbente se selecciona para eliminar contaminantes de la corriente de H<sub>2</sub>, parte del H<sub>2</sub> puede quedar adsorbido y posteriormente descargarse por la corriente 350 de gas de colas. Si esta corriente no se recircula, el H<sub>2</sub> contenido en el gas de colas 350 se perdería y la recuperación global del H<sub>2</sub> del proceso 100 no sería tan buena como recirculando el gas de colas 350. Al recircular todo el gas de colas 350, el proceso 100 puede lograr una tasa de recuperación de H<sub>2</sub> superior al 99 por ciento del H<sub>2</sub> contenido en el gas de alimentación. Recircular menos del 100 del gas de colas reducirá la tasa de recuperación del H<sub>2</sub> en consecuencia. Por ejemplo, Una recuperación de H<sub>2</sub> del 75 por ciento o superior, 90 por ciento o superior, o 95 por ciento o superior se puede lograr variando la cantidad del gas de colas reciclado. En algunas realizaciones, la cantidad del gas de colas reciclado puede variar de aproximadamente 50 por ciento a aproximadamente 100 por ciento del gas de colas. Si no se recircula nada del gas de colas 350, entonces, la tasa de recuperación del H<sub>2</sub> puede bajar hasta el 75 por ciento. Para acondicionador adecuadamente el gas de colas 350 para su recirculación, el gas de colas 350 debe fluir a un compresor 355 para aumentar la presión, generalmente hasta la de la corriente 5 de gas mejorado y, a continuación, puede fluir a un intercambiador de calor 360 para eliminar el exceso de calor causado por la compresión. El gas de colas acondicionado 365 se puede mezclar a continuación con la corriente 5 de gas mejorado. En ciertas realizaciones, la presión del gas de colas 350 recirculado puede variar de aproximadamente 1 atm a aproximadamente 10 atm (de aproximadamente 101 kPa a aproximadamente 1013 kPa) y coincide con el de la corriente 5.

En diversas realizaciones, la corriente recirculada 350 de gas de colas puede variar de aproximadamente 5 por ciento a aproximadamente 10 por ciento en volumen de la corriente 345 de H<sub>2</sub> purificado y puede variar de aproximadamente 15 por ciento a aproximadamente 25 por ciento en volumen de la corriente 5 de gas mejorado. Por tanto, se pueden lograr tasas de recuperación de H<sub>2</sub> extremadamente altas (es decir, mayores del 99 por ciento) con una corriente de recirculación relativamente pequeña. La Tabla 1 presenta los resultados de un balance de materia para el proceso ilustrado en las Figs. 1 a 2, que demuestra la producción de una corriente de H<sub>2</sub> de alta pureza que contiene un 99,97 por ciento de H<sub>2</sub>.

Tabla 1. Balance de material para el proceso global (la numeración de la corriente corresponde a la Fig. 1)

Corriente	1 Gas natural	2 Oxidante (aire)	3 Syngas	4 Agua	5 Gas mejorado	6 Gas de colas	7 H <sub>2</sub> de alta pureza
<i>Fracción molar</i>							
H <sub>2</sub>			0,194		0,3035	0,003	0,9997
CO			0,126		0,021	0,031	
CO <sub>2</sub>	0,02		0,025		0,132	0,19	
CH <sub>4</sub>	0,98		0,011		0,011	0,016	
H <sub>2</sub> O		0,023	0,130	1,0	0,014		

## ES 3 027 984 T3

Corriente	1 Gas natural	2 Oxidante (aire)	3 Syngas	4 Agua	5 Gas mejorado	6 Gas de colas	7 H <sub>2</sub> de alta pureza
N <sub>2</sub>		0,771	0,511		0,518	0,76	0,0003
O <sub>2</sub>		0,205	0,002				
Caudal molar (kgmol/h)	3,4	13,9	20,8	1,0	20,4	13,9	6,15
Caudal másico (kg/día)	1351,3	9528,3	10963,2	432	10722,6	10306,0	295,1

La Fig. 3 ilustra un diagrama de flujo general de diversas realizaciones de una realización de un método 400 para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado. En el paso 405, un gas de alimentación que contiene N<sub>2</sub> como componente mayoritario, H<sub>2</sub> y CO fluye a una unidad de procesamiento 110 para producir un gas mejorado 5. El gas de alimentación tiene una proporción H<sub>2</sub>/CO inicial, y el gas mejorado 5 contiene CO<sub>2</sub> y tiene una segunda proporción H<sub>2</sub>/CO mayor que la proporción H<sub>2</sub>/CO inicial. El gas mejorado 5 fluye a una unidad de purificación 115 en el paso 410. La unidad de purificación 115 está diseñada para producir H<sub>2</sub> de alta pureza y comprende una unidad 305 para producir una corriente 310 de la que han desaparecido en gran medida el N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> y otros gases distintos del H<sub>2</sub>, y una unidad 340 para producir una corriente de H<sub>2</sub> purificado. La unidad de purificación 115 produce una corriente 345 de H<sub>2</sub> gaseoso purificado y un gas de colas 350. En el paso 415, al menos una parte del gas de colas 350 se recircula a un punto corriente arriba de la unidad 305 de eliminación de N<sub>2</sub>. De acuerdo con la invención reivindicada en este documento, la unidad de purificación comprende una unidad de eliminación de N<sub>2</sub> para eliminar el N<sub>2</sub> y una unidad de eliminación de CO<sub>2</sub> para eliminar el CO<sub>2</sub>, en donde la unidad de eliminación de N<sub>2</sub> comprende una unidad de separación por membrana configurada para recibir el gas mejorado, y en donde la unidad de eliminación de CO<sub>2</sub> comprende una unidad de adsorción por cambio de presión (Pressure Swing Adsorption, PSA).

La Fig. 4 es otro diagrama de flujo general de un método 500 para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado de acuerdo con diversas realizaciones. En el paso 505, un gas de alimentación que contiene N<sub>2</sub> como componente mayoritario, H<sub>2</sub> y CO fluye a una unidad de procesamiento 110 para producir un gas mejorado 5. El gas de alimentación tiene una proporción H<sub>2</sub>/CO inicial y tiene una segunda proporción H<sub>2</sub>/CO mayor que la proporción H<sub>2</sub>/CO inicial. El gas mejorado 5 fluye en contacto con una membrana dentro de una unidad de membrana 305 para producir una corriente de permeato 310 y una corriente de retentato 315 en el paso 510. La membrana puede tener una composición selectiva para el H<sub>2</sub>. La concentración de H<sub>2</sub> en la corriente de permeato 310 es mayor que la concentración de H<sub>2</sub> en el gas mejorado 5, y la corriente de retentato 315 puede comprender N<sub>2</sub> y otros contaminantes que se han eliminado del gas mejorado 5. En el paso 515, la corriente de permeato 310 fluye en contacto con un material adsorbente en una o más columnas de adsorción 370 para producir una corriente 345 de H<sub>2</sub> purificado. El material adsorbente puede comprender un compuesto sorbente eficaz para eliminar N<sub>2</sub> o H<sub>2</sub>O o CO o CO<sub>2</sub> de la corriente de permeato 310. En el paso 520, el material adsorbente de una o más de las columnas de adsorción 370 se puede regenerar para producir un gas de colas 350. Al menos una parte del gas de colas 350 se recircula a la corriente 5 de gas mejorado en un punto corriente arriba de la unidad de membrana 305.

La Fig. 5 es otro diagrama de flujo general de un método 600 para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado de acuerdo con diversas realizaciones. En el paso 605, un gas de alimentación que contiene N<sub>2</sub> como componente mayoritario, H<sub>2</sub> y CO y especies de azufre reducido que incluyen H<sub>2</sub>S y COS puede fluir a una unidad de procesamiento para eliminar este azufre y producir un gas de producto con bajo contenido de azufre (<50 ppmv). En el paso 610, este gas de producto puede fluir a una unidad de procesamiento 110 para producir un gas mejorado 5. El gas de producto que fluye a la unidad de procesamiento 110 tiene una proporción H<sub>2</sub>/CO inicial y tiene una segunda proporción H<sub>2</sub>/CO mayor que la proporción H<sub>2</sub>/CO inicial. El gas mejorado 5 fluye en contacto con una membrana dentro de una unidad de membrana 305 para producir una corriente de permeato 310 y una corriente de retentato 315 en el paso 615. La membrana puede tener una composición selectiva para el H<sub>2</sub>. La concentración de H<sub>2</sub> en la corriente de permeato 310 es mayor que la concentración de H<sub>2</sub> en el gas mejorado 5, y la corriente de retentato 315 puede comprender N<sub>2</sub> y otros contaminantes que se han eliminado del gas mejorado 5. En el paso 620, la corriente de permeato 310 fluye en contacto con un material adsorbente en una o más columnas de adsorción 370 para producir una corriente 345 de H<sub>2</sub> purificado. El material adsorbente puede comprender un compuesto sorbente eficaz para eliminar N<sub>2</sub> o H<sub>2</sub>O o CO o CO<sub>2</sub> de la corriente de permeato 310. En el paso 625, el material adsorbente de una o más de las columnas de adsorción 370 se puede regenerar para producir un gas de colas 350. Al menos una parte del gas de colas 350 se recircula a la corriente 5 de gas mejorado en un punto corriente arriba de la unidad de membrana 305.

### EJEMPLO

Se desarrollaron modelos del proceso usando Aspen HYSYS® (Aspen Technology, Inc. Bedford, MA) para el proceso de purificación de H<sub>2</sub> ilustrado en la Fig. 2. Se tomó la hipótesis de que el syngas se había producido mediante la oxidación parcial de metano con aire. La Tabla 2 presenta los resultados de un balance de materia para el proceso de purificación calculado con el modelo HYSYS.

Tabla 2. Balance de materia modelado para el proceso de purificación.

ES 3 027 984 T3

	Unidad	Alimen- tación	Retentato	Permeato	PSA entrada	Agua	Recircu- lación	Producto
Temperatura	°C	30	29	30	35	35	33	34
Presión	kPa	300	270	100	970	970	100	900
Caudal molar	kg/mol/h	20,4	14,0	11,8	11,6	0,3	5,5	6,1
Caudal másico	kg/h	447,1	430,0	155,8	150,8	5,0	138,5	12,3
<b>Fracción molar</b>								
CO <sub>2</sub>		0,1322	0,1931	0,2189	0,2241	0,0008	0,4741	0,0000
H <sub>2</sub> O		0,0141	0,0000	0,0294	0,0062	0,9992	0,0131	0,0000
CH <sub>4</sub>		0,0111	0,0162	0,0003	0,0003	0,0000	0,0006	0,0000
N <sub>2</sub> + Ar		0,5181	0,7537	0,0528	0,0540	0,0000	0,1139	0,0003
O <sub>2</sub>		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000
H <sub>2</sub>		0,3035	0,0067	0,6948	0,7114	0,0000	0,3898	0,9997
CO		0,0209	0,0304	0,0039	0,0040	0,0000	0,0085	0,0000
Corte membrana etapa		58,2 %						
Caudal H <sub>2</sub>	kg/día	296,6	4,5	395,0	395,0	0,0	102,3	292,7
PM		21,9	30,7	13,1	13,0	18,0	25,3	2,0
Caudal volumétrico	scfm	268,7	184,7	156,4	152,7	3,7	72,2	80,5

El ejemplo anterior tiene exclusivamente fines ilustrativos y no restringe la invención a los procesos utilizados en el ejemplo.

- 5 En general, términos tales como "comunicar" y "en ... comunicación con" (por ejemplo, un primer componente "se comunica con" o "está en comunicación con" un segundo componente) se utilizan en el presente documento para indicar una relación estructural, funcional, mecánica, eléctrica, de señal, óptica, magnética, electromagnética, iónica o de flujo entre dos o más componentes o elementos. De esta forma, el hecho de que se diga que un componente se comunica con un segundo componente no pretende excluir la posibilidad de que un componente adicional pueda estar presente entre, y/u operativamente asociado, o acoplado con, el primer y segundo componentes.
- 10

Se entenderá que diversos aspectos o detalles de la invención se pueden cambiar sin abandonar el ámbito de la invención. Además, la descripción anterior tiene fines exclusivamente ilustrativos, y no el de limitar la invención que está definida por las reivindicaciones.

15

## REIVINDICACIONES

1. Un método para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado, comprendiendo el método:  
 5 hacer fluir un gas que contiene nitrógeno gaseoso ( $N_2$ ) como componente mayoritario, hidrógeno gaseoso ( $H_2$ ) y monóxido de carbono ( $CO$ ) y que tiene una proporción  $H_2/CO$  inicial a una unidad de procesamiento para producir un gas mejorado que contiene dióxido de carbono ( $CO_2$ ) y que tiene una segunda proporción  $H_2/CO$  mayor que la proporción  $H_2/CO$  inicial;  
 10 hacer fluir el gas mejorado a una unidad de purificación que comprende una unidad de eliminación de  $N_2$  para eliminar el  $N_2$  y una unidad de eliminación de  $CO_2$  para eliminar el  $CO_2$ , en donde la unidad de purificación produce una corriente de hidrógeno gaseoso purificado y un gas de colas; y recircular al menos una parte del gas de colas a un punto corriente arriba de la unidad de eliminación de  $N_2$ ,  
 15 en donde hacer fluir el gas mejorado a la unidad de purificación comprende hacer fluir el gas mejorado a la unidad de eliminación de  $N_2$  para producir una corriente de permeato y una corriente de retentato, y hacer fluir la corriente de permeato a la unidad de eliminación de  $CO_2$  para producir la corriente de hidrógeno gaseoso purificado y el gas de colas,  
 20 en donde la unidad de eliminación de  $N_2$  comprende una unidad de separación por membrana configurada para recibir el gas mejorado, y en donde la unidad de eliminación de  $CO_2$  comprende una unidad de adsorción por cambio de presión (*Pressure Swing Adsorption*, PSA).
2. El método de la reivindicación 1, que comprende además hacer fluir un combustible y un oxidante a una unidad de reacción de syngas para producir el gas de alimentación.
3. El método de la reivindicación 2, en donde bien (i) el combustible comprender uno o más hidrocarburos y el oxidante comprende aire, y preferiblemente en donde el uno o más hidrocarburos comprenden metano; (ii) la unidad de  
 25 reacción de syngas oxida parcialmente el combustible para producir el gas de alimentación; o (iii) la unidad de reacción de syngas es un motor de combustión interna, preferiblemente comprendiendo además hacer funcionar el motor de combustión interna en condiciones de alta concentración de combustible.
4. El método de la reivindicación 1, en donde bien (i) la proporción  $H_2/CO$  inicial se selecciona del grupo que consiste  
 30 en: 1 a 3; y 1,5 a 2,5; o (ii) la segunda proporción  $H_2/CO$  se selecciona del grupo que consiste de: 10 a 150; 10 a 120; y 10 a 50.
5. El método de la reivindicación 1, en donde la unidad de procesamiento comprende una unidad de desplazamiento del gas del agua y configurada para desplazar el gas de alimentación para producir  $H_2$  y  $CO_2$ , y preferiblemente en donde  
 35 bien (i) la unidad de desplazamiento del gas del agua está configurada para realizar un desplazamiento a alta temperatura; (ii) la unidad de desplazamiento del gas del agua está configurada para realizar un desplazamiento a baja temperatura; (iii) la unidad de desplazamiento del gas del agua está configurada para realizar un desplazamiento a alta temperatura y un desplazamiento a baja temperatura; o (iv) la unidad de desplazamiento del gas del agua comprende al menos un catalizador.
6. El método de la reivindicación 1, en donde la unidad de separación por membrana comprende una membrana selectiva para el  $H_2$ , preferiblemente en donde la membrana selectiva para el  $H_2$  comprende uno o más de un polímero,  
 40 un material cerámico, un compuesto de carbono, carbón activado y un compuesto metálico.
7. El método de la reivindicación 1, en donde bien (i) hacer fluir la corriente de permeato a la unidad de eliminación de  $CO_2$  comprende enfriar la corriente de permeato para eliminar el agua; o (ii) hacer fluir la corriente de permeato a la  
 45 unidad de eliminación de  $CO_2$  comprende aumentar una presión de la corriente de permeato.
8. El método de la reivindicación 1, en donde bien (i) el flujo del gas de alimentación hacia la unidad de procesamiento se realiza a una temperatura que varía de 80°F a 900°F (27°C a 482°C); o (ii) el flujo del gas de  
 50 alimentación hacia la unidad de procesamiento se realiza a una presión que varía de 1 atm a 10 atm (101 kPa a 1013 kPa).
9. El método de la reivindicación 1, en donde la unidad PSA comprende una o más columnas de adsorción, y el gas de colas comprende gas desorbido a partir de la regeneración de la una o más columnas de adsorción, y preferentemente  
 55 en donde bien (i) la porción del gas de colas recirculado a un punto corriente arriba de la unidad de eliminación de  $N_2$  varía del 50 por ciento al 100 por ciento del gas de colas; o recircular al menos una parte del gas de colas a un punto corriente arriba de la unidad de eliminación de  $N_2$  comprende aumentar la presión del gas de colas, más preferiblemente, en donde aumentar la presión del gas de colas comprende aumentar la presión del gas de colas a un intervalo de 1 atm  
 60 a 10 atm (101 kPa a 1013 kPa).
10. El método de la reivindicación 1, en donde bien (i) recircular al menos una parte del gas de colas a un punto corriente arriba de la unidad de eliminación de  $N_2$  comprende recircular una cantidad del gas de colas equivalente a del 5  
 65 por ciento al 10 por ciento en volumen de la corriente de  $H_2$  gaseoso purificado; (ii) recircular al menos una parte del gas de colas a un punto corriente arriba de la unidad de eliminación de  $N_2$  comprende recircular una cantidad del gas de colas equivalente a del 15 por ciento al 25 por ciento en volumen del gas de alimentación; (iii) la concentración de  $H_2$  en la corriente de  $H_2$  gaseoso purificado se selecciona del grupo que consiste de: mayor del 75 por ciento; mayor del 90 por ciento; mayor del 95 por ciento; y mayor del 99 por ciento; o (iv) una cantidad de  $H_2$  presente en el gas mejorado y

## ES 3 027 984 T3

recuperado en la corriente de H<sub>2</sub> gaseoso purificado se selecciona del grupo que consiste de: mayor del 80 por ciento; mayor del 90 por ciento; mayor del 95 por ciento; y mayor del 99 por ciento.

- 5 11. Un sistema de procesamiento de gases para producir una corriente de hidrógeno gaseoso purificado, comprendiendo el sistema de procesamiento de gases:
- una unidad de procesamiento configurada para aumentar una proporción de hidrógeno (H<sub>2</sub>) a monóxido de carbono (CO) en un gas de alimentación para producir un gas mejorado;
  - una primera unidad de separación configurada para eliminar una parte sustancial de nitrógeno gaseoso (N<sub>2</sub>) del gas mejorado para producir un gas desnitrogenado;
  - 10 una segunda unidad de separación configurada para eliminar una parte sustancial de dióxido de carbono (CO<sub>2</sub>) del gas desnitrogenado para producir una corriente de H<sub>2</sub> gaseoso purificado, produciendo también la segunda unidad de separación un gas de colas que contiene el CO<sub>2</sub> eliminado; y
  - un sistema de recirculación para dirigir al menos una parte del gas de colas al gas mejorado en un punto corriente arriba de la primera unidad de separación,
  - 15 en donde la primera unidad de separación comprende una unidad de separación por membrana configurada para recibir el gas mejorado,
  - y en donde la segunda unidad de separación comprende una unidad de adsorción por cambio de presión (*Pressure Swing Adsorption*, PSA).
- 20 12. El sistema de procesamiento de gas de la reivindicación 11, en donde bien (i) la unidad de procesamiento comprende una unidad de desplazamiento del gas del agua y configurada para desplazar el gas de alimentación para producir H<sub>2</sub> y CO<sub>2</sub>; ii) la primera unidad de separación por membrana comprende una membrana selectiva para el H<sub>2</sub>; (iii) la segunda unidad de separación comprende una unidad de adsorción con cambio de presión (*Pressure Swing Adsorption*, PSA) en donde la unidad PSA comprende un compuesto sorbente eficaz para eliminar CO<sub>2</sub> del gas desnitrogenado; (iv) el sistema de recirculación está configurado para recircular e incluir un máximo del 100 por ciento del gas de colas; (v) el sistema de procesamiento de gases está configurado para producir la corriente de H<sub>2</sub> gaseoso purificado con una fracción molar de H<sub>2</sub> mayor del 99 por ciento; o (vi) el sistema de procesamiento de gases está configurado para recuperar una cantidad del H<sub>2</sub> presente en el gas mejorado y recuperada en la corriente de H<sub>2</sub> gaseoso purificado seleccionada del grupo que consiste de: mayor del 80 por ciento; mayor del 90 por ciento; mayor del 95 por ciento; y mayor del 99 por ciento.
- 25
- 30

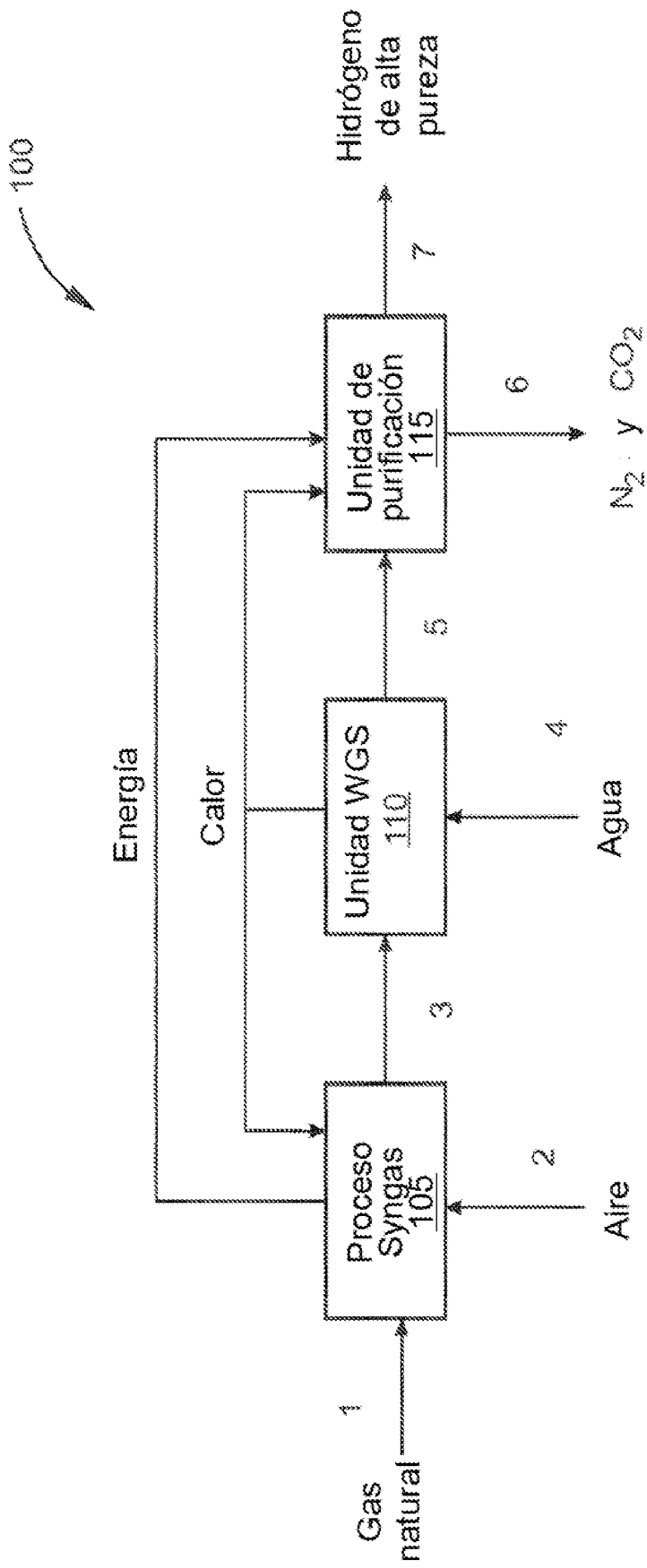


FIG. 1

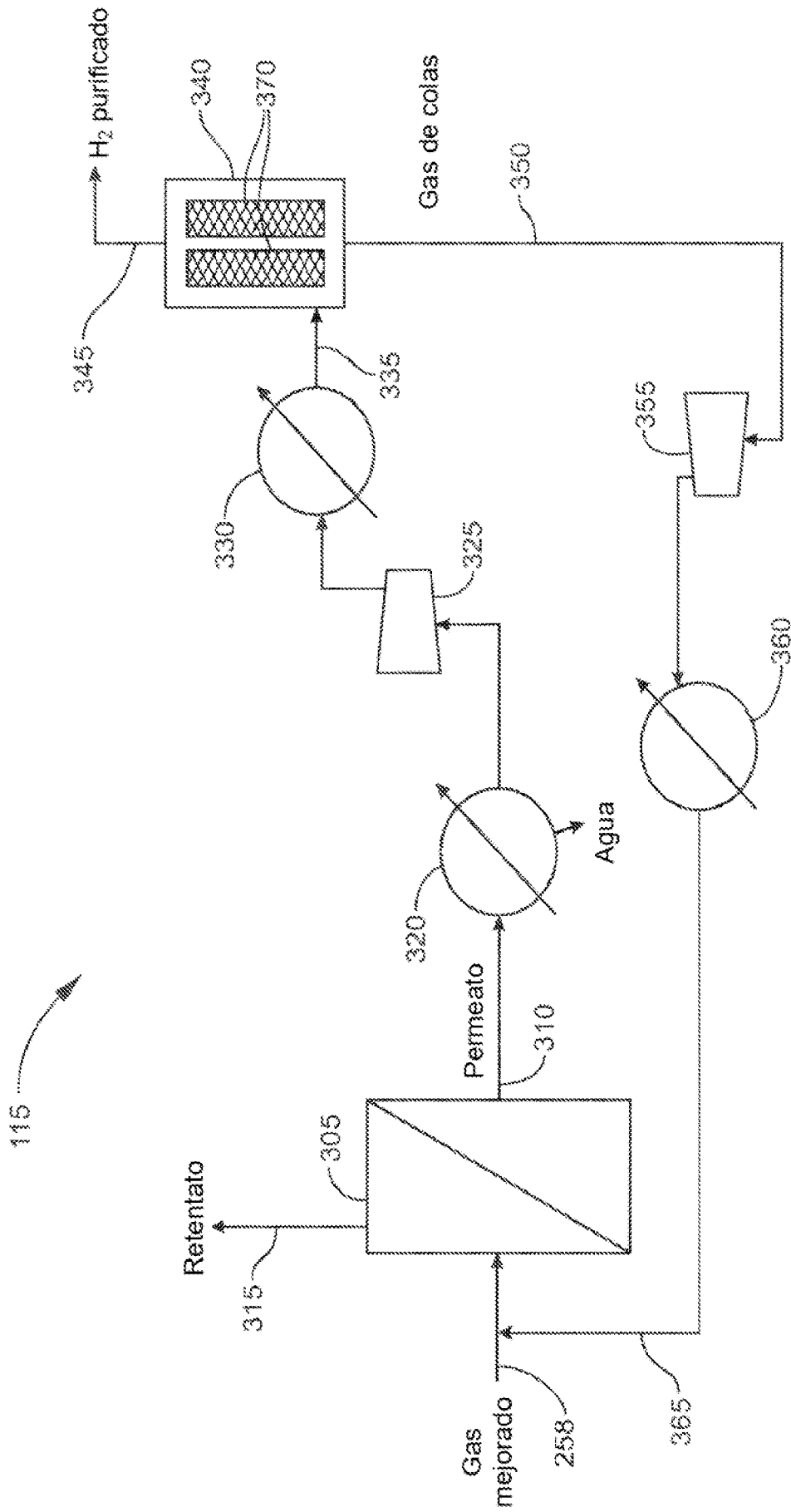


FIG. 2

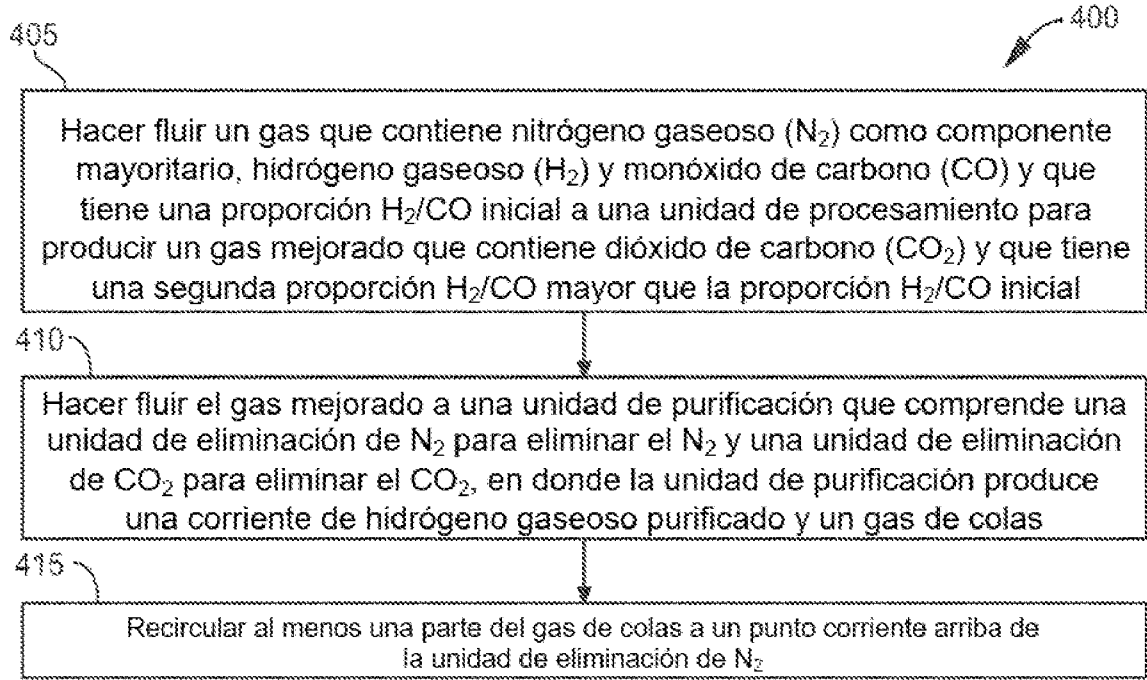


FIG. 3

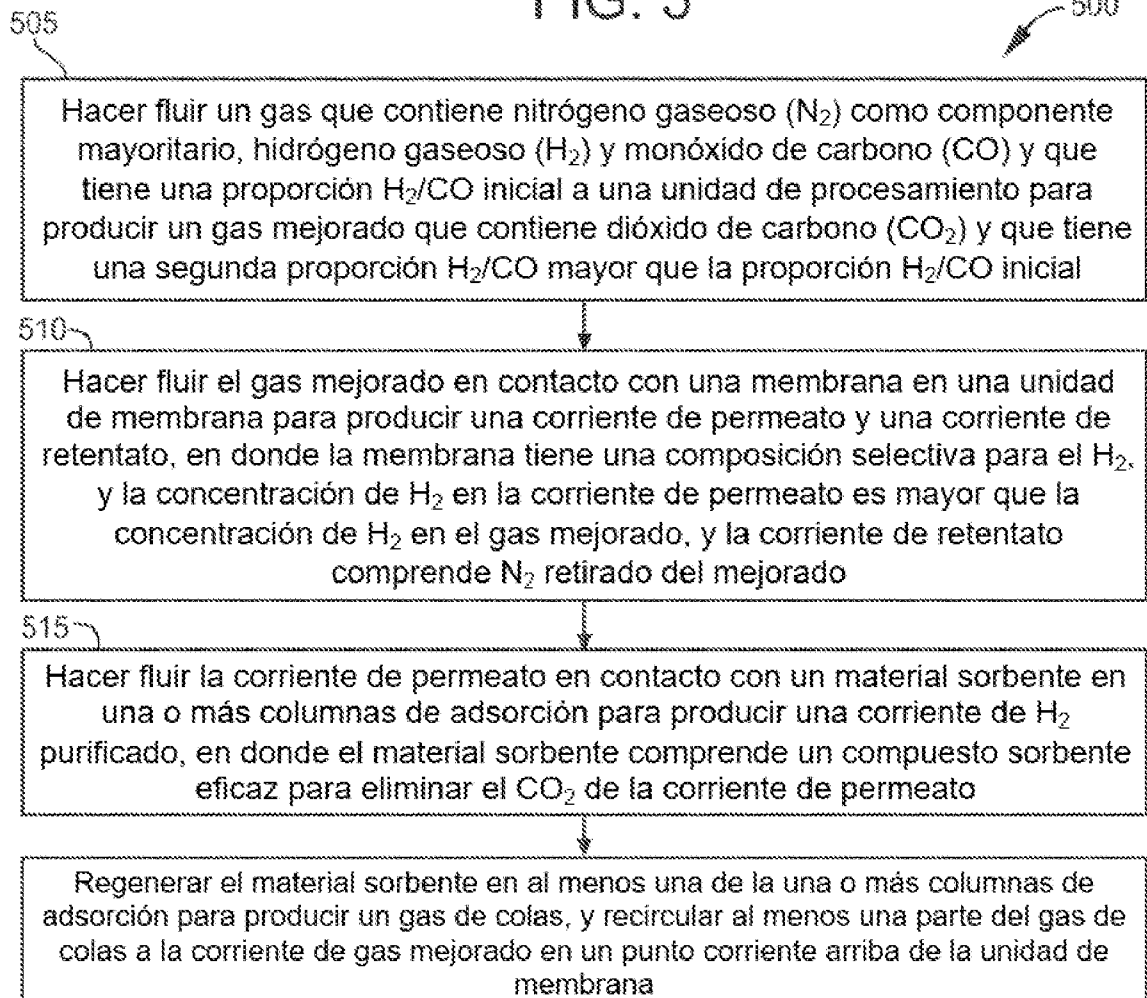


FIG. 4

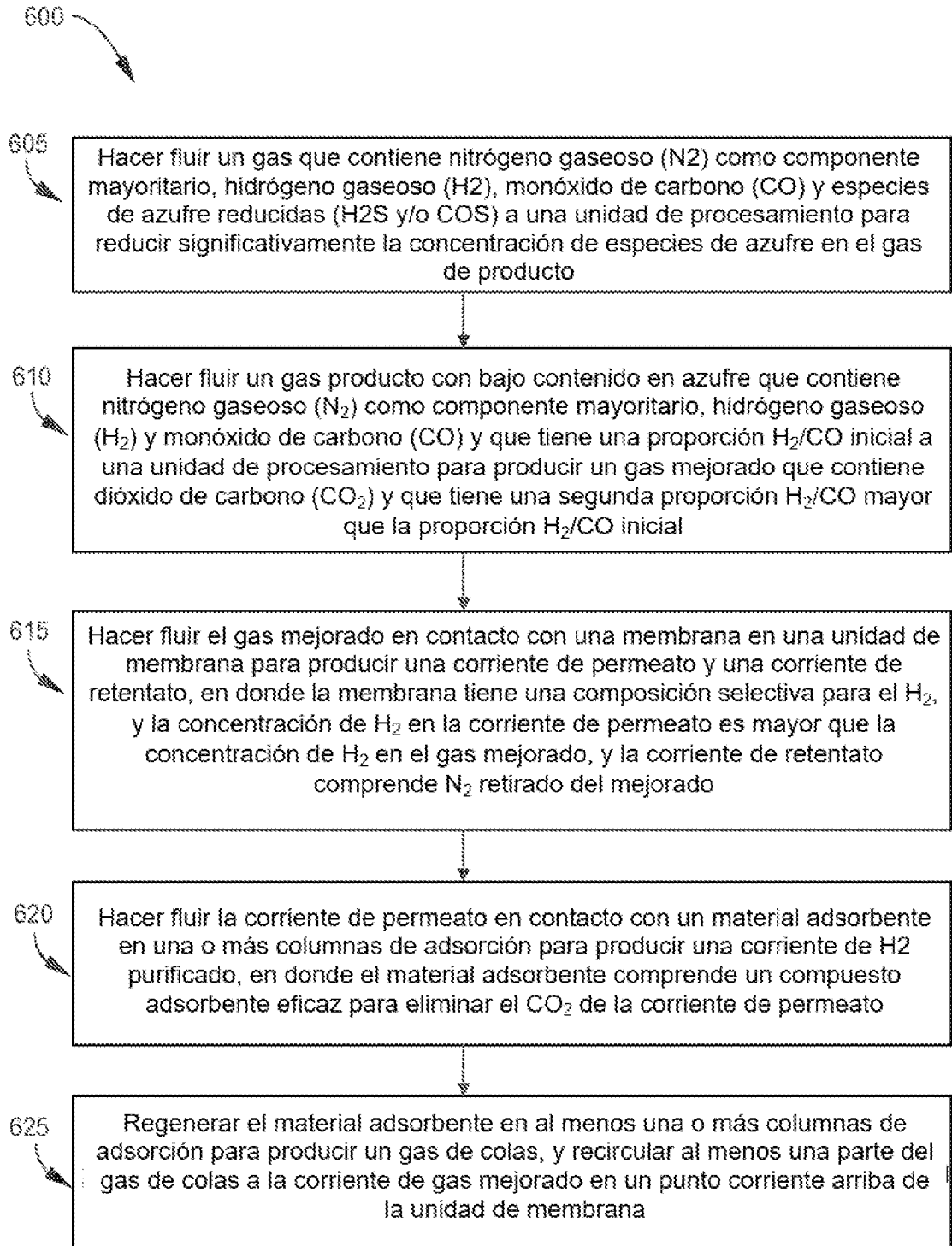


FIG. 5