



**República Federativa do Brasil**  
Ministério da Indústria, Comércio Exterior  
e Serviços  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

**(11) PI 0800378-5 B1**

**(22) Data do Depósito:** 10/03/2008

**(45) Data de Concessão:** 07/08/2018



---

**(54) Título:** PROCESSO PARA SEPARAÇÃO SELETIVA DE HIDROGÊNIO DE PELO MENOS UM COMPONENTE MAIS INTENSAMENTE PASSÍVEL DE ADSORÇÃO EM UMA PLURALIDADE DE LEITOS DE ADSORÇÃO

**(51) Int.Cl.:** B01D 53/047

**(30) Prioridade Unionista:** 14/03/2007 US 11/685,992

**(73) Titular(es):** AIR PRODUCTS AND CHEMICALS, INC.

**(72) Inventor(es):** TIMOTHY CHRISTOPHER GOLDEN; EDWARD LANDIS WEIST JR.; JEFFREY RAYMOND HUFTON; PAUL ANTHONY NOVOSAT

**(85) Data do Início da Fase Nacional:** 10/03/2008

PROCESSO PARA SEPARAÇÃO SELETIVA DE HIDROGÊNIO DE PELO MENOS UM COMPONENTE MAIS INTENSAMENTE PASSÍVEL DE ADSORÇÃO EM UMA PLURALIDADE DE LEITOS DE ADSORÇÃO

#### ANTECEDENTES DA INVENÇÃO

5           A presente invenção refere-se a processos de adsorção por oscilação de pressão e refere-se mais particularmente aos processos para recuperação de hidrogênio em altas taxas de recuperação e elevados níveis de pureza como produto não adsorvido a partir de uma  
10       mistura de gás de alimentação que possui uma concentração de hidrogênio relativamente baixa.

Os processos de adsorção por oscilação de pressão são bem conhecidos para separação de misturas gasosas que contêm componentes com diferentes características de  
15       adsorção. Por exemplo, a produção de hidrogênio por adsorção de oscilação de pressão é uma indústria multimilionária que fornece hidrogênio de alta pureza para indústrias de produção de produtos químicos, de refino de metais e outras indústrias associadas. O hidrogênio é  
20       tipicamente separado de misturas gasosas possuindo alta concentração de hidrogênio, por exemplo de reformadores com ou sem reatores de deslocamento.

Tipicamente, as misturas gasosas contendo baixas concentrações de hidrogênio são submetidas a combustão como  
25       combustíveis para recuperação do valor calórico do hidrogênio.

Existem aplicações nas quais seria útil a

recuperação de hidrogênio a partir de misturas de gás de alimentação possuindo baixa concentração de hidrogênio. Por exemplo, em uma célula de combustível de carbonato fundido, um gás de síntese (um gás compreendendo monóxido de carbono e hidrogênio) deve ser feito passar para um compartimento de anodo enquanto um gás oxidante, tipicamente ar, é feito passar para o compartimento de cátodo. O gás de exaustão do anodo contém combustível não reagido (monóxido de carbono e hidrogênio) bem como água e dióxido de carbono. Para aumentar a eficiência da célula de combustível, o monóxido de carbono e o hidrogênio podem ser separados do dióxido de carbono e da água e o monóxido de carbono e o hidrogênio podem ser reciclados para o anodo conforme se encontra divulgado na patente norte-americana n° US 4.532.192 e na publicação de patente norte-americana n° 2004/0229102. O dióxido de carbono que foi separado pode ser reciclado para o cátodo visto que o dióxido de carbono é necessário para as células de combustível de carbonato fundido.

Poderá ser desejável recuperar hidrogênio puro da corrente de exaustão do anodo. Neste caso, o hidrogênio puro poderá ser útil como combustível para uma célula de combustível do tipo de membrana de troca de prótons ("Proton Exchange Membrane" - PEM) ou pode ser armazenado para utilização em veículos movidos por células de combustível. Nesta aplicação, a composição do gás de exaustão do anodo, após a reação de deslocamento de gás e água, pode conter cerca de 70% de dióxido de carbono, 25%

de hidrogênio, e 5% de água, com menos de 1% de monóxido de carbono, nitrogênio e metano.

Um problema existente na indústria de células de combustível consiste na recuperação de uma elevada  
5 porcentagem de hidrogênio de misturas gasosas de alimentação contendo baixas concentrações de hidrogênio. Seria desejável a obtenção de hidrogênio de alta pureza de misturas gasosas de alimentação contendo baixas  
concentrações de hidrogênio, com uma elevada recuperação de  
10 hidrogênio.

Uma opção sendo considerada para distribuição de hidrogênio na futura economia baseada em hidrogênio focaliza a separação de hidrogênio diluído de gás natural. O hidrogênio é produzido em instalações centralizadas de  
15 baixo custo, sendo subsequente injetado em tubulações de gás natural para subsequente transporte para estações de reabastecimento distribuídas ao longo da rede de tubulações de gás. Um  $H_2$  de alta pureza é separado da mistura de  $H_2$ /gás natural em cada estação de reabastecimento.  
20 Determinadas questões práticas limitam o teor de  $H_2$  deste gás a menos de cerca de vinte por cento, com os componentes remanescentes consistindo em espécies típicas de gás natural (por exemplo, metano,  $N_2$ , hidrocarbonetos  $C_2+$ ).

A recuperação de hidrogênio de gás combustível para  
25 refinarias é uma outra área de interesse. Atualmente, muitas refinarias requerem hidrogênio para as operações de diversas unidades incluindo hidro-craqueamento, hidro-

dessulfurização e reformação. A recuperação de hidrogênio de diversas correntes de alimentação com baixa concentração de hidrogênio poderá constituir uma opção atraente para a construção de uma nova instalação de produção de hidrogênio caso exista a tecnologia apropriada. O gás combustível para refinarias é uma coleção de gases leves gerados em diversas unidades de processamento na refinaria. Uma composição típica do gás combustível para refinaria é de cerca de 25% de hidrogênio, cerca de 67% de hidrocarbonetos C1-C6, cerca de 2% de oxigênio, cerca de 5% de nitrogênio, cerca de 1% de dióxido de carbono e níveis na faixa de ppm de sulfeto de hidrogênio. Seria desejável obter um processo eficiente para recuperação de uma corrente de hidrogênio de alta pureza de um tal gás de alimentação com baixo teor de hidrogênio.

A técnica anterior ensina que a adsorção por oscilação de pressão não é adequada para recuperação de hidrogênio de misturas gasosas de alimentação contendo baixas concentrações de hidrogênio. Por exemplo, no trabalho de Lancelin e outros intitulado "Hydrogen Purification by Pressure Swing Adsorption" [*Purificação de Hidrogênio por Adsorção de Oscilação de Pressão*] apresentado no Hydrogen Symposium [*Simpósio sobre Hidrogênio*] da AFTP, em 26 de fevereiro de 1976, é ilustrado um gráfico de recuperação de hidrogênio como função da concentração de hidrogênio na mistura de gás de alimentação com utilização de adsorção de oscilação de

pressão. O gráfico ilustra uma recuperação de hidrogênio de cerca de 80% para 70% de hidrogênio na mistura gasosa de alimentação, com um decréscimo para cerca de 60% de recuperação de hidrogênio para 50% de hidrogênio na mistura gasosa de alimentação.

#### BREVE SUMÁRIO

Conforme é aqui descrito, os inventores descobriram um processo de alta recuperação para recuperação de hidrogênio de misturas de gás de alimentação contendo baixas concentrações de hidrogênio mediante utilização de adsorção por oscilação de pressão.

É divulgado um processo para separação seletiva de hidrogênio de pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção em uma pluralidade de leitos de adsorção, cada um dos mesmos contendo um adsorvente seletivo para o pelo menos um componente mais intensamente de adsorção para produção de um produto gasoso com elevado teor de hidrogênio. Cada um da pluralidade de leitos de adsorção é submetido a um ciclo repetitivo. O processo compreende:

- (a) uma etapa de adsorção para produção do produto com elevado teor de hidrogênio de uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 5% até 50% de hidrogênio, ou 5% até 40% de hidrogênio, ou 5% até 30% de hidrogênio;
- (b) pelo menos duas etapas de equalização de pressão mediante retirada de gás de espaço vazio;

(c) uma etapa de provisão de purga resultando em um primeiro decréscimo de pressão  $\Delta P_1$ ;

(d) uma etapa de despressurização resultando em um segundo decréscimo de pressão  $\Delta P_2$ ;

5 (e) uma etapa de purga;

(f) pelo menos duas etapas de equalização de pressão mediante introdução de gás em espaço vazio; e

(g) uma etapa de repressurização;

10 em que  $\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} \geq 2,0$  ou em que  $\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} \geq 3,0$ .

Na etapa de despressurização, a pressão de final de despressurização poderá ser de 108 kPa (1,101 kgf/cm<sup>2</sup>) até 170 kPa (1,733 kgf/cm<sup>2</sup>).

15 Pelo menos uma das pelo menos duas etapas de equalização de pressão mediante introdução de gás em espaço vazio poderá ser uma etapa de equalização de pressão mediante introdução de gás em espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio.

20 O processo pode compreender pelo menos três etapas de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio e pelo menos três etapas de equalização de pressão por introdução de gás em espaço vazio. Nesta instância,

$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1}$  poderá ser  $\geq 4,0$ .

25 Enunciado de forma alternativa, o processo compreende:

- (a) introdução de uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 5% até 50% de hidrogênio, ou 5% até 40% de hidrogênio, ou 5% até 30% de hidrogênio a uma pressão elevada em um primeiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, e adsorção do pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção no adsorvente no primeiro leito de adsorção com simultânea retirada do gás produzido com elevado teor de hidrogênio do primeiro leito de adsorção, deixando subsequente um primeiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção substancialmente na pressão elevada;
- (b) retirada concorrente de uma primeira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da primeira porção do primeiro gás de espaço vazio para um segundo leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção para propósitos de equalização de pressão;
- (c) retirada concorrente de uma segunda porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da segunda porção do primeiro gás de espaço vazio para um terceiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção para purga do terceiro leito de adsorção com a segunda porção do primeiro gás de espaço vazio com um resultante primeiro decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção de uma primeira pressão  $P_1$  para uma segunda

pressão  $P_2$ ;

(d) retirada concorrente de uma terceira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da terceira porção do primeiro gás de espaço vazio para um dos, terceiro leito de adsorção e um quarto leito de adsorção, da pluralidade de leitos de adsorção, para propósitos de equalização de pressão;

(e) retirada concorrente de uma quarta porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção com um resultante segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção da segunda pressão  $P_2$  ou de uma terceira pressão  $P_3$  para uma pressão de despressurização  $P_4$ ;

em que  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$  ou  $3,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da segunda pressão  $P_2$  para a pressão de despressurização  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$  ou  $3,0$  quando o segundo decréscimo de pressão

no primeiro leito de adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de despressurização  $P_4$ ;

(f) introdução em contracorrente de uma primeira porção de um segundo gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção para purga do primeiro leito de adsorção, o segundo gás de espaço vazio de um de um quinto leito de adsorção da pluralidade de leitos de

adsorção, o segundo leito de adsorção, o terceiro leito de adsorção, e o quarto leito de adsorção;

(g) introdução em contracorrente de uma segunda porção do segundo gás de espaço vazio ou uma porção de um terceiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção de um de entre um sexto leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção e do quinto leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão;

(h) introdução em contracorrente de uma porção de um quarto gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção, o quarto gás de espaço vazio de um de um sétimo leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção e do sexto leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão; e

(i) pelo menos uma de entre introdução em contracorrente da mistura de gás de alimentação e introdução em contracorrente do gás produzido com elevado teor de hidrogênio de pelo menos um de entre um vaso de armazenagem de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, de um oitavo leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção e do

sexto leito de adsorção para o primeiro leito de adsorção até o primeiro leito de adsorção se encontrar substancialmente na pressão elevada.

A etapa (c) pode ocorrer anteriormente à etapa (d) ou a etapa (d) pode ocorrer anteriormente à etapa (c).

A pressão de despressurização  $P_4$  pode ser de 108 kPa (1,101 kgf/cm<sup>2</sup>) até 170 kPa (1,733 kgf/cm<sup>2</sup>).

O segundo gás de espaço vazio pode ser proveniente de um dos, quarto leito de adsorção e quinto leito de adsorção. O terceiro gás de espaço vazio pode ser proveniente de um dos, segundo leito de adsorção, quarto leito de adsorção, e sexto leito de adsorção. O quarto gás de espaço vazio pode ser proveniente de um dos, segundo leito de adsorção, quarto leito de adsorção e sexto leito de adsorção. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio introduzido no primeiro leito de adsorção pode ser proveniente de pelo menos um dos, terceiro leito de adsorção e quarto leito de adsorção.

O processo pode compreender adicionalmente a introdução em contracorrente do gás produzido com elevado teor de hidrogênio a partir de pelo menos um dos, segundo leito de adsorção, terceiro leito de adsorção, quarto leito de adsorção, quinto leito de adsorção, sexto leito de adsorção, e oitavo leito de adsorção, para o primeiro leito de adsorção simultaneamente com uma introdução em contracorrente da segunda porção do segundo gás de espaço vazio ou da porção do terceiro gás de espaço vazio para o

primeiro leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão com auxílio de gás produzido com elevado teor de hidrogênio. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio para equalização de pressão com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio pode ser proveniente de pelo menos um dos, terceiro leito de adsorção e quarto leito de adsorção.

O processo pode compreender adicionalmente:

(j) retirada concorrente de uma quinta porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da quinta porção do primeiro gás de espaço vazio para um dos, terceiro leito de adsorção e sexto leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão; e

(k) introdução concorrente de uma porção de um quinto gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção, o quinto gás de espaço vazio sendo proveniente de um de entre um nono leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção, do sexto leito de adsorção, do sétimo leito de adsorção e do oitavo leito de adsorção, para propósitos de equalização de pressão.

O quinto gás de espaço vazio pode ser proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção e o terceiro leito de adsorção.

Caso o processo compreenda a retirada de uma quinta porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão,  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)}$  poderá ser  $\geq 4,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorrer da segunda pressão  $P_2$  para a pressão de despressurização  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 4,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorrer da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de despressurização  $P_4$ ;

#### 10 BREVE DESCRIÇÃO DE DIVERSAS VISTAS DOS DESENHOS

A FIG. 1 é uma ilustração esquemática de um sistema de adsorção possuindo quatro leitos de adsorção.

A FIG. 2 é um diagrama de gráfico de percentual de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para um sistema possuindo quatro leitos de adsorção e duas etapas de equalização.

A FIG. 3 é um diagrama de gráfico de percentual de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para um sistema possuindo cinco leitos de adsorção e duas etapas de equalização.

25 A FIG. 4 é um diagrama de gráfico de percentual de

recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para um sistema possuindo cinco leitos de adsorção e 5 três etapas de equalização.

A FIG. 5 é um diagrama de gráfico de percentual de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de 10 purga para um sistema possuindo seis leitos de adsorção e duas etapas de equalização. 4

A FIG. 6 é um diagrama de gráfico de percentual de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e 15 do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para um sistema possuindo seis leitos de adsorção e três etapas de equalização.

#### DESCRIÇÃO DETALHADA

Os artigos indefinidos "um" e "uma" conforme aqui 20 utilizados significam um ou mais quando aplicados a qualquer característica em configurações da presente invenção descritas no relatório descritivo e nas reivindicações. O uso dos artigos "um" e "uma" não limitam o significado a uma única característica a menos que um tal 25 limite seja especificamente enunciado. O artigo definido "o" ou "a" precedendo substantivos singulares ou plurais ou frases substantivas indica uma característica específica ou

características específicas e pode ter uma conotação singular ou plural dependendo do contexto em que é utilizado. O adjetivo "qualquer" significa um, alguns, ou todos indiscriminadamente, de qualquer quantidade.

5 "Recuperação de hidrogênio" é definido como a taxa de fluxo de massa de hidrogênio que abandona o sistema de adsorção dividida pela taxa de fluxo de massa de hidrogênio que ingressa no sistema de adsorção. Por exemplo, se uma corrente de alimentação possuindo uma taxa de fluxo de massa de 100 kg/s com uma fração de massa de 0,5 de hidrogênio ingressa no sistema de adsorção e uma corrente de produto possuindo uma taxa de fluxo de massa de 50 kg/s com uma fração de massa de 0,95 de hidrogênio abandona o sistema de adsorção, a recuperação de hidrogênio terá sido de 95%.

12

Conforme é aqui utilizado, o termo "pluralidade" significa pelo menos quatro.

Conforme são aqui utilizadas, as porcentagens de concentração são porcentagens molares.

20 O processo aqui descrito refere-se a um processo para separação seletiva de hidrogênio de pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção em uma pluralidade de leitos de adsorção, cada um dos mesmos contendo um adsorvente seletivo para o pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção para produção de um gás produzido com elevado teor de hidrogênio. Cada um dos leitos da pluralidade de leitos de

---

adsorção é submetido a um ciclo repetitivo de etapas.

Os adsorventes adequados para separação de hidrogênio de outros gases são bem conhecidos na técnica. O leito adsorvente pode conter uma multiplicidade de camadas de diversos adsorventes. Por exemplo, muitos sistemas de adsorção PSA de hidrogênio incluem uma camada de carvão ativado na extremidade de alimentação do leito para remoção de metano e dióxido de carbono de massa seguida de uma camada de zeólito para remoção de nitrogênio e monóxido de carbono. Em alguns sistemas, uma camada de alumina ativada é disposta a montante da camada de carvão ativado para remoção de água, obtendo-se como resultado um leito de três camadas. Mais recentemente, foi sugerido um leito de quatro camadas para purificação de hidrogênio (publicação de patente norte-americana n° US 2006/0254425). a alumina ativada e sílica gel são igualmente adsorventes típicos utilizados para remoção de hidrocarbonetos C3+ de correntes contendo hidrogênio. Finalmente, a patente norte-americana n° US 3.176.444 fornece uma lista de adsorventes viáveis que podem ser utilizados para purificação de correntes contendo hidrogênio.

Os componentes mais intensamente passíveis de adsorção podem incluir água, dióxido de carbono, monóxido de carbono, metano, nitrogênio, oxigênio, árgon, hidrocarbonetos C2-C10, gases contendo enxofre (H<sub>2</sub>S, COS, CS<sub>2</sub>, etc.) e gases contendo nitrogênio (NO, NH<sub>3</sub>, etc.). As correntes gasosas podem ser produzidas mediante reformação

com vapor de hidrocarbonetos, oxidação parcial de hidrocarbonetos, reformação auto-térmica de hidrocarbonetos e/ou gaseificação de sólidos (carvão, coque, biomassa, etc.). A fonte da corrente contendo hidrogênio pode igualmente consistir em gases efluentes de diversos processos de refino (por exemplo, de reformação, craqueamento catalítico, etc.) ou processos químicos (por exemplo, produção de amônia).

Na medida em que os processos de adsorção por oscilação de pressão são bem conhecidos, uma pessoa normalmente versada na técnica pode conceber um sistema de adsorção adequado para realização do processo aqui descrito. Os equipamentos adequados para realização do processo são bem conhecidos na técnica. As condições de operação que não são aqui especificamente divulgadas e que são adequadas para utilização no processo aqui descrito podem ser determinadas por uma pessoa versada na técnica sem necessidade de experimentação indevida.

O processo pode ser realizado em leitos de adsorção de tipo axial ou leitos de adsorção de tipo radial.

O processo pode ser realizado em um sistema compreendendo pelo menos um vaso de equalização. Conforme é conhecido na técnica, um vaso de equalização pode ser utilizado para armazenagem de gás de espaço vazio para equalização com outro vaso. Isto permite que um leito de adsorção forneça gás de espaço vazio para outro leito de adsorção que se encontra fora de sequência para equalização

direta. Isto é por vezes designado como uma equalização de leito para tanque. Um processo incluindo equalização de leito para tanque encontra-se divulgado na patente norte-americana nº US 6.503.299 concedida a Baksh e outros.

5 O processo pode utilizar adsorção por oscilação de pressão em contraste com adsorção por oscilação de vácuo para recuperação de hidrogênio de alta pureza na faixa de pelo menos 95% de hidrogênio, e em elevada recuperação de hidrogênio na faixa de pelo menos 80%. A adsorção por  
10 oscilação de pressão pode proporcionar vantagens relativamente à adsorção por oscilação de vácuo. Por exemplo, não é requerida nenhuma bomba de vácuo e os gases efluentes do processo podem encontrar-se a uma pressão suficiente para utilização como combustível ou para  
15 qualquer outro propósito.

O ciclo de processo será descrito para um primeiro leito de adsorção relativamente aos outros leitos de adsorção. Conforme é conhecido na técnica, cada um dos leitos de adsorção realiza por sua vez as etapas descritas.  
20 O processo requer pelo menos quatro leitos de adsorção. As referências a um quinto, um sexto, um sétimo, e mais leitos de adsorção são aplicáveis somente para sistemas que possuem pelo menos um tal número de leitos de adsorção.

Cada um dos leitos de adsorção possui uma  
25 "extremidade de admissão" e uma "extremidade de descarga", assim designadas devido a suas funções durante a etapa de adsorção do ciclo de adsorção. Uma mistura gasosa de

alimentação é introduzida na "extremidade de admissão" do leito de adsorção e o produto com elevado teor de hidrogênio é retirado da "extremidade de descarga" durante a etapa de adsorção do ciclo. Durante outras etapas do ciclo de adsorção, é possível introduzir ou retirar gás da "extremidade de admissão". Similarmente, durante outras etapas do ciclo de adsorção, é possível introduzir ou retirar gás da "extremidade de descarga".

O processo compreende a introdução de uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 5% até 50% de hidrogênio, ou 5% até 40% de hidrogênio, ou 5% até 30% de hidrogênio, a uma pressão elevada para um primeiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção e adsorção do pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção no adsorvente no primeiro leito de adsorção com simultânea retirada do produto com elevado teor de hidrogênio do primeiro leito de adsorção. A mistura gasosa de alimentação é introduzida em uma extremidade de admissão e o produto com elevado teor de hidrogênio é removido de uma extremidade de descarga. A introdução de uma mistura gasosa de alimentação em um leito de adsorção, adsorvendo componentes mais intensamente passíveis de adsorção no adsorvente com simultânea retirada de produto com elevado teor de hidrogênio do leito de adsorção é referida como constituindo a etapa de adsorção e é representada pela referência "A" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. A etapa de adsorção prossegue por um período de tempo de adsorção

26

deixando subsequente um primeiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção substancialmente à pressão elevada. O tempo de adsorção pode ser de 3 segundos até 300 segundos.

- 5           A pressão elevada pode situar-se na faixa de 440 kPa (50 psig) (4,486 kgf/cm<sup>2</sup>) até 3,2 MPa (450 psig) (32,631 kgf/cm<sup>2</sup>). Substancialmente à pressão elevada significa dentro de uma faixa de 10% da pressão elevada.

- 10           Ao final da etapa de adsorção, o leito de adsorção contém aquilo que é designado como um gás de espaço vazio que consiste em uma combinação da fase de gás com moléculas da fase adsorvida. O gás de espaço vazio tem uma concentração média mais elevada dos componentes mais intensamente passíveis de adsorção que a mistura gasosa de
- 15           alimentação na medida em que o hidrogênio foi retirado como uma corrente de produto. A concentração dos diversos componentes da mistura de gás de espaço vazio irá geralmente variar em função da distância da extremidade de admissão à extremidade de descarga do leito de adsorção. O
- 20           gás de espaço vazio na proximidade da extremidade de descarga terá geralmente uma alta concentração de hidrogênio. O gás de espaço vazio próximo da extremidade de admissão terá geralmente uma elevada concentração do pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção.
- 25           As porções do gás de espaço vazio possuindo concentrações de hidrogênio relativamente elevadas são úteis para purga de outros leitos de adsorção durante

4

etapas de purga e para aumento da pressão de outros leitos de adsorção durante etapas de equalização de pressão.

O gás de espaço vazio possuindo uma elevada concentração do pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção deverá ser removido do leito de adsorção anteriormente a etapas de adsorção subseqüentes no leito.

A direção do fluxo durante outras etapas é tipicamente descrita com referência à direção do fluxo durante a etapa de adsorção. Desta forma, o fluxo de gás na mesma direção do fluxo de gás durante a etapa de adsorção é "concorrente" e o fluxo de gás que ocorre em direção oposta ao fluxo de gás durante a etapa de adsorção é um fluxo de "contracorrente". A introdução concorrente de um gás em um leito de adsorção significa a introdução do gás na mesma direção do fluxo do gás durante a etapa de adsorção. A introdução em contracorrente de um gás em um leito de adsorção significa a introdução do gás em uma direção em contracorrente relativamente à direção do fluxo de gás durante a etapa de adsorção. A retirada concorrente de um gás de um leito de adsorção significa a retirada do gás na mesma direção do fluxo de gás durante a etapa de adsorção. A retirada em contracorrente de um gás de um leito de adsorção significa a retirada do gás em uma direção em contracorrente relativamente à direção do fluxo de gás durante a etapa de adsorção.

O gás pode ser simultaneamente introduzido

concorrentemente na extremidade de admissão e introduzido em contracorrente na extremidade de descarga. O gás pode ser simultaneamente retirado concorrentemente da etapa de descarga e retirado em contracorrente da extremidade de admissão.

Quando o gás é retirado de uma posição intermédia entre a extremidade de admissão e a extremidade de descarga, uma porção do gás é retirada concorrentemente e uma porção é retirada em contracorrente. Quando é introduzido gás em uma posição intermédia entre a extremidade de admissão e a extremidade de descarga, uma porção do gás é introduzida concorrentemente e uma porção é introduzida em contracorrente.

O processo compreende a retirada concorrente de uma primeira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da primeira porção do primeiro gás de espaço vazio para um segundo leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção até ocorrer uma equalização de pressão entre o primeiro leito de adsorção e o segundo leito de adsorção. A primeira porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser retirada da extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. Esta primeira porção do gás de espaço vazio terá geralmente uma concentração de hidrogênio superior a 95% ou superior a 99% sendo portanto útil para aumentar a pressão do segundo leito de adsorção. A etapa de retirada concorrente de uma primeira porção do gás de espaço vazio de um leito de

adsorção e passagem da primeira porção para um outro leito de adsorção até os leitos terem suas pressões equalizadas é representada pela referência "1" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9.

5                    Uma etapa de retirada concorrente de uma porção de gás de espaço vazio de um leito de adsorção e passagem para outro leito de adsorção até as pressões dos leitos serem equalizadas é aqui referida como uma etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio. A etapa "1" 20  
10   poderá nesse caso ser referida como uma primeira etapa de equalização de pressão mediante retirada de gás de espaço vazio. A etapa de equalização de pressão mediante retirada de gás de espaço vazio pode ocorrer ao longo de um período de tempo de 1 segundo até 120 segundos.

15                    Conforme aqui definido, com pressão equalizada significa que a diferença entre os leitos de adsorção é inferior a 35 kPa (5 psig) ( $0,357 \text{ kgf/cm}^2$ ). A equalização de pressão é uma etapa na qual é transferido gás de um leito de adsorção para outro até os leitos de adsorção se  
20   encontrarem com pressão equalizada, com uma diferença inferior a 35 kPa (5 psig) ( $0,357 \text{ kgf/cm}^2$ ) ao final da etapa.

                    O processo compreende a retirada concorrente de uma segunda porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro  
25   leito de adsorção e passagem da segunda porção do primeiro gás de espaço vazio para um terceiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção para purga do terceiro

leito de adsorção com a segunda porção do primeiro gás de espaço vazio. A segunda porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser retirada da extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. Esta segunda porção do gás de espaço vazio terá geralmente uma concentração de hidrogênio superior a 95% ou superior a 99%, sendo dessa forma útil para purga do terceiro leito de adsorção. A segunda porção do primeiro gás de espaço vazio é retirada do primeiro leito de adsorção produzindo como resultado um primeiro decréscimo de pressão  $\Delta P_1$  no primeiro leito de adsorção de uma primeira pressão  $P_1$  para uma segunda pressão  $P_2$ . A etapa de retirada concorrente da segunda porção do primeiro gás de espaço vazio de um leito de adsorção e passagem da segunda porção do primeiro gás de espaço vazio para outro leito de adsorção para purga do outro leito de adsorção é normalmente designada como uma etapa de provisão de purga e é representada como "PP" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. A etapa de provisão de purga ocorre durante um período de tempo de provisão de purga que pode ser de 1 segundo até 300 segundos.

O processo compreende a retirada concorrente de uma terceira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da terceira porção do primeiro gás de espaço vazio para um de entre o terceiro leito de adsorção e um quarto leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção até o primeiro leito de adsorção ter sua pressão equalizada com o leito de adsorção para o qual a

terceira porção foi passada. A terceira porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser retirada da extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. A terceira porção do primeiro gás de espaço vazio terá geralmente uma  
5 concentração de hidrogênio superior a 95% ou superior a 99%, sendo portanto útil para aumentar a pressão do terceiro leito de adsorção ou do quarto leito de adsorção. A etapa de retirada concorrente da terceira porção de um gás de espaço vazio de um leito de adsorção e passagem da  
10 terceira porção para um outro leito de adsorção até os leitos se encontrarem com pressão equalizada é representada por um "2" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. A etapa "2" pode ser referida como uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio. A segunda etapa de  
15 equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio pode ocorrer ao longo de um período de tempo de 1 segundo até 120 segundos.

De acordo com o processo aqui descrito e ilustrado nos Exemplos que se encontra a seguir, a segunda porção  
20 pode ser retirada anteriormente à retirada da terceira porção, ou a terceira porção poderá ser retirada anteriormente à retirada da segunda porção. A segunda etapa "2" de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio pode ocorrer anteriormente ou após a etapa "PP" de  
25 provisão de purga, conforme for desejado, e poderá depender do número total de leitos de adsorção utilizados.

O processo compreende a retirada de uma quarta

porção do gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção. Com um resultante segundo decréscimo de pressão  $\Delta P_2$  no primeiro leito de adsorção da segunda pressão  $P_2$  ou de uma terceira pressão  $P_3$  para uma pressão de descompressão  $P_4$ . A quarta porção do gás de espaço vazio é geralmente retirada em contracorrente e pode ter inicialmente uma concentração de hidrogênio aproximadamente idêntica à da composição de alimentação (20 até 25% de hidrogênio) e posteriormente a concentração de hidrogênio poderá decrescer ao longo do tempo, apresentando uma concentração média de hidrogênio inferior a 10%. A quarta porção do gás de espaço vazio pode ser retirada da extremidade de admissão do primeiro leito de adsorção. A pressão de descompressão pode ser e geralmente é a menor pressão do ciclo e pode ser de 108 kPa (1 psig) (1,101 kgf/cm<sup>2</sup>) até 170 kPa (120 psig) (1,733 kgf/cm<sup>2</sup>). A etapa de retirada da quarta porção do gás de espaço vazio de um leito de adsorção para uma pressão de descompressão é normalmente designada como uma etapa de descompressão que é representada por um "B" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. A etapa de descompressão ocorre durante um período de tempo de descompressão que pode ser de 1 segundo até 300 segundos.

Caso a etapa de descompressão ocorra imediatamente após a etapa de provisão de purga, o decréscimo de pressão durante a etapa de descompressão é de  $P_2$  para  $P_4$ . Caso exista uma etapa entre a etapa de provisão de purga e a etapa de descompressão, o decréscimo de pressão poderá

ocorrer de  $P_3$  para  $P_4$ , em que  $P_3$  é diferente de  $P_2$ .

No processo,  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$  ou  $\geq 3,0$  quando o

segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da segunda pressão  $P_2$  para a pressão de descompressão  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$  ou  $\geq 3,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de descompressão  $P_4$ . Isto significa que o decréscimo de pressão na etapa de descompressão é pelo menos duas vezes maior ou pelo menos três vezes maior que o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

O processo compreende a introdução em contracorrente de uma segunda porção de um segundo gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção para purga do primeiro leito de adsorção. A porção do segundo gás de espaço vazio pode ser introduzida na extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. O segundo gás de espaço vazio pode ser provido por qualquer um dos outros leitos de adsorção em uma relação de ciclo adequada com o primeiro leito de adsorção. O segundo gás de espaço vazio pode ser proveniente do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção ou de um quinto leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção. A etapa de introdução de gás de espaço vazio para purga de um leito de adsorção é normalmente designada como

uma etapa de purga e é representada como "P" nas tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. O leito de adsorção que fornece o segundo gás de espaço vazio encontra-se em uma etapa de provisão de purga, conforme descrito acima. Um leito de adsorção é submetido à etapa de purga durante o mesmo período de tempo em que o leito de adsorção que fornece o gás de purga é submetido à etapa de provisão de purga.

O processo compreende a introdução em contracorrente de uma outra porção do segundo gás de espaço vazio ou uma porção de um terceiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção. O segundo ou terceiro gás de espaço vazio pode ser introduzido na extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. O segundo gás de espaço vazio é provido pelo mesmo leito de adsorção que forneceu gás de espaço vazio na etapa de purga. O terceiro gás de espaço vazio pode ser provido por qualquer um dos outros leitos de adsorção em relação de ciclo adequada com o primeiro leito de adsorção. O terceiro gás de espaço vazio pode ser proveniente do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção ou de um sexto leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção. O gás de espaço vazio é introduzido até o primeiro leito de adsorção ter sua pressão equalizada com a pressão do leito de adsorção que forneceu o segundo gás de espaço vazio ou o terceiro gás de espaço vazio.

A etapa de introdução em contracorrente de uma

porção de gás de espaço vazio em um leito de adsorção a partir de um outro leito de adsorção até os leitos se encontrarem com pressão equalizada é aqui referida como uma etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio. Esta etapa ocorre em combinação com uma outra etapa "2" em que um outro leito é submetido a uma segunda equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio. Esta etapa é portanto referida como uma segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio e é representada por um "2" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. Um leito de adsorção é submetido à segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio durante o mesmo período de tempo em que o leito de adsorção que fornece o gás de espaço vazio é submetido à segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

O processo compreende a introdução em contracorrente de uma porção de um quarto gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção. O quarto gás de espaço vazio pode ser introduzido na extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. O quarto gás de espaço vazio pode ser provido por qualquer um dos outros leitos de adsorção e pode ter uma concentração de hidrogênio superior a 99%. O quarto gás de espaço vazio pode ser proveniente do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção ou de um sétimo leito de adsorção da pluralidade de leitos de

adsorção.

O gás de espaço vazio é introduzido até o primeiro leito de adsorção ter sua pressão equalizada com a pressão do leito de adsorção que forneceu o quarto gás de espaço vazio. Esta é igualmente uma etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio. Esta etapa ocorre em combinação com uma etapa em que um outro leito é submetido a uma primeira etapa "1" de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio. Esta etapa é portanto referida como uma primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio e é representada por um "1" nas tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. Um leito de adsorção é submetido à primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio durante o mesmo período de tempo em que o leito de adsorção que fornece o gás de espaço vazio é submetido à primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

Um gás produzido com elevado teor de hidrogênio pode ser introduzido juntamente com o quarto gás de espaço vazio. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio pode ser provido por qualquer um dos outros leitos de adsorção que são submetidos à etapa de adsorção. Esta etapa constitui uma versão específica da etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, e é designada como uma etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio com assistência de gás

produzido com elevado teor de hidrogênio.

O primeiro leito de adsorção é então repressurizado para uma pressão substancialmente correspondente à pressão elevada. A mistura de gás de alimentação e/ou o gás produzido com elevado teor de hidrogênio podem ser utilizados para repressurizar o leito de adsorção. O processo compreende pelo menos uma de entre uma introdução em contracorrente da mistura gasosa de alimentação e introdução em contracorrente do gás produzido com elevado teor de hidrogênio até o primeiro leito de adsorção se encontrar substancialmente na pressão elevada. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio pode ser proveniente de pelo menos um de um vaso de armazenagem de gás produzido com elevado teor de hidrogênio e qualquer um dos outros leitos de adsorção, por exemplo, o segundo leito de adsorção, o terceiro leito de adsorção, o quarto leito de adsorção, o quinto leito de adsorção e o sexto leito de adsorção. Uma etapa de introdução da mistura gasosa de alimentação e/ou do gás produzido com elevado teor de hidrogênio é normalmente designada como uma etapa de repressurização e é representada por um "R" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. O período de tempo para a etapa de repressurização pode ser de 1 segundo até 300 segundos.

Dependendo da sequência dos leitos de adsorção, o processo pode igualmente incluir uma ou mais etapas ociosas. Em uma etapa ociosa, não é introduzido nem retirado gás do leito de adsorção. Uma etapa ociosa é

representada por um "I" nas Tabelas 1, 3, 5, 7 e 9. Uma etapa ociosa pode ter um período de tempo de duração de 1 segundo até 120 segundos.

Opcionalmente, o processo pode incluir uma terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio e uma terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio. A terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio é representada por "3" nas Tabelas 5 e 9. A terceira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio é representada por "3" nas Tabelas 5 e 9.

A terceira etapa opcional de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio compreende a retirada concorrente de uma quinta porção do gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da quinta porção do primeiro gás de espaço vazio para um outro leito de adsorção para equalização de pressão entre os mesmos. A quinta porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser retirada da extremidade de descarga do primeiro leito de adsorção. A quinta porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser feita passar para um dos quarto leito de adsorção, quinto leito de adsorção, sexto leito de adsorção, sétimo leito de adsorção ou um oitavo leito de adsorção. A terceira etapa opcional de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio pode ocorrer ao longo de um período de tempo de 1 segundo até 120 segundos.

A terceira etapa opcional de equalização de pressão

por introdução de gás de espaço vazio compreende a introdução em contracorrente de uma porção de um quinto gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção. O quinto gás de espaço vazio pode ser introduzido na extremidade de

5 descarga do primeiro leito de adsorção. O quinto gás de espaço vazio pode ser provido por qualquer um dos outros leitos de adsorção e pode ter uma concentração de hidrogênio superior a 99%. O quinto gás de espaço vazio pode ser proveniente do segundo leito de adsorção, do

10 terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção, do sexto leito de adsorção, do sétimo leito de adsorção ou do oitavo leito de adsorção. O gás de espaço vazio é introduzido até o primeiro leito de adsorção ter sua pressão equalizada com a pressão do leito

15 de adsorção que forneceu o quinto gás de espaço vazio. Um leito de adsorção é submetido à terceira etapa opcional de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio durante o mesmo período de tempo em que o leito de adsorção que fornece o gás de espaço vazio é submetido à

20 terceira etapa opcional de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

No caso da terceira etapa opcional de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio e a terceira etapa opcional de equalização de pressão por introdução de

25 gás de espaço vazio,  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)}$  pode ser  $\geq 4,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção

ocorre da segunda pressão  $P_2$  para a pressão de descompressão  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)}$  pode ser  $\geq 4,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de descompressão  $P_4$ .

5 De acordo com o processo aqui descrito e ilustrado nos Exemplos que se encontram a seguir, a segunda porção do primeiro gás de espaço vazio pode ser retirada anteriormente à retirada da quinta porção do primeiro gás de espaço vazio, ou a quinta porção pode ser retirada  
10 anteriormente à retirada da segunda porção. A terceira etapa "3" de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio pode ocorrer anteriormente ou após a etapa de provisão de purga "PP", conforme for desejado, e poderá depender do número total de leitos de adsorção utilizados.

15 São providos resultados de simulações em computador nos exemplos a seguir para ilustração do processo, e estes resultados não pretendem limitar o escopo das reivindicações que se encontram a seguir. Em todos os exemplos, o adsorvente nos leitos de adsorção consistiu em  
20 carvão ativado e a altura do leito foi de 1,524 m (5 pés). A mistura gasosa de alimentação foi provida a uma pressão de cerca de 1,5 MPa (200 psig) (15,295 kgf/cm<sup>2</sup>) e a uma temperatura de 37,8° C (100° F). A pureza do produto de hidrogênio foi controlada para provisão de cerca de 50 ppm  
25 de nitrogênio, que geralmente produziu menos de 1 ppm de metano. Para algumas das simulações de taxa de purga mais

elevada com 20% de hidrogênio na alimentação, as concentrações de metano foram limitadas a menos de 20 ppm de metano. O período de tempo para a etapa de adsorção foi de 60 segundos. Na etapa de repressurização, o gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi utilizado para repressurizar os leitos de adsorção sem nenhuma repressurização com gás de alimentação.

#### EXEMPLO 1

A Tabela 1 ilustra um diagrama de ciclo para um sistema de quatro leitos de adsorção que pode ser utilizado de acordo com o processo aqui descrito. Neste exemplo de quatro leitos, os leitos de adsorção são submetidos a uma etapa de adsorção, uma primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma etapa de provisão de purga, uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma etapa de despressurização, uma etapa de purga, uma segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, e uma etapa de repressurização. De acordo com o ciclo exemplar ilustrado na Tabela 1, a etapa de provisão de purga ocorre anteriormente à segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

TABELA 1

|    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| A  | A  | A  | 1  | PP | 2  | B  | P  | 2' | 1' | R  | R  |
| B  | B  | 2' | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | PP | 2  |
| 1  | PP | 2  | B  | P  | 2' | 1' | R  | R  | A  | A  | A  |
| 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | PP | 2  | B  | P  | 2' |

A FIG. 1 é uma vista esquemática de um sistema exemplar de quatro leitos de adsorção que pode ser utilizado de acordo com o processo aqui descrito e constitui uma base para simulações no presente exemplo. De acordo com o gráfico de ciclo na tabela 1, quando o leito de adsorção 1 realizava a etapa A, o leito de adsorção 2 realizava a etapa B, o leito de adsorção 3 realizava a etapa 1, e o leito de adsorção 4 realizava a etapa 1'. A mistura gasosa de alimentação 101 foi introduzida através da válvula aberta 13 para a extremidade de admissão 11 do leito de adsorção 1. Os componentes mais intensamente passíveis de adsorção foram retidos no leito de adsorção e o gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi descarregado da extremidade de descarga 12 do leito de adsorção 1 e através da válvula aberta 15 para formar gás produzido 102. As válvulas 14 e 16 encontravam-se fechadas durante a etapa de adsorção do leito de adsorção 1.

Quando o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa B, as válvulas 23, 25 e 26 encontravam-se fechadas e o gás de espaço vazio foi retirado da extremidade de

42

admissão 21 do leito de adsorção 2 através da válvula aberta 24 e abandona o sistema na forma de gás efluente 103. Quando o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa 1 e o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa 1', o gás de espaço vazio foi retirado do leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio da válvula 36 e introduzido no leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46. Nas simulações, foi utilizada assistência de produto, em que foi simultaneamente introduzido gás produzido com elevado teor de hidrogênio no leito de adsorção 4 através da válvula 45. As válvulas 33, 34, 35, 43 e 44 encontravam-se fechadas.

De acordo com a Tabela 1, o leito de adsorção 1 prossegue na etapa A enquanto o leito de adsorção 2 passa para a etapa P, o leito de adsorção 3 passa para a etapa PP, e o leito de adsorção 4 passa para a etapa R. Quando o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa P e o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa PP, foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio da válvula 36 e introduzido no leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26. A válvula 36 foi ajustada nas simulações para variação da quantidade de gás de espaço vazio transferida durante a etapa PP. O gás de espaço vazio foi removido do leito de adsorção 2 através da extremidade de admissão 21 e da válvula 24 para formar gás

44

efluente 103. As válvulas 23, 25, 33, 34 e 35 encontravam-se fechadas. Quando o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa R, um gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi utilizado para repressurizar o leito de adsorção 4. A válvula 45 encontrava-se aberta, enquanto as válvulas 43, 44, e 46 se encontravam fechadas.

O leito de adsorção 1 prossegue na etapa A, enquanto o leito de adsorção 2 passa para a etapa 2', o leito de adsorção 3 passa para a etapa 2 e o leito de adsorção 4 prossegue na etapa R. Quando o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa 2 e o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa 2', foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio da válvula 36 e introduzido no leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26. As válvulas 23, 24, 25, 33, 34, e 35 encontravam-se fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, enquanto o leito de adsorção 1 é submetido à etapa 1, o leito de adsorção 2 é submetido à etapa 1', o leito de adsorção 2 é submetido à etapa B, e o leito de adsorção 4 é submetido à etapa A. A mistura de gás de alimentação 101 foi introduzida através da válvula aberta 43 para a extremidade de admissão 41 do leito de adsorção 4. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi descarregado da extremidade de descarga 42 do leito de adsorção 4 e através da válvula aberta 45 para formação de gás produzido

102. As válvulas 44 e 46 permaneceram fechadas durante a etapa de adsorção do leito de adsorção 4.

Quando o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa B, as válvulas 33, 35 e 36 encontravam-se fechadas e o gás de espaço vazio foi retirado da extremidade de admissão 31 do leito de adsorção 3 através da válvula aberta 34 e abandonou o sistema na forma de gás efluente 103. Quando o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa 1 e o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa 1', o gás de espaço vazio foi retirado do leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por meio da válvula 16 e foi introduzido no leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26. Nas simulações foi utilizada assistência de produto, em que foi introduzido gás produzido com elevado teor de hidrogênio no leito de adsorção 12 através da válvula 25. As válvulas 13, 14, 15, 23 e 24 encontravam-se fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, o leito de adsorção 4 prossegue na etapa A enquanto o leito de adsorção 3 passa para a etapa P, o leito de adsorção 1 passa para a etapa PP, e o leito de adsorção 2 passa para a etapa R. Quando o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa P e o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa PP, foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por meio da válvula 16, e foi introduzido no leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio

da válvula 36. A válvula 16 foi ajustada nas simulações para variação da quantidade de gás de espaço vazio que foi transferida durante a etapa PP. O gás de espaço vazio foi removido do leito de adsorção 3 através da extremidade de admissão 31 e da válvula 34 para formação de gás efluente 103. As válvulas 33, 35, 13, 14, e 15 encontravam-se fechadas. Quando o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa R, foi utilizado gás produzido com elevado teor de hidrogênio para repressurização do leito de adsorção 2. A válvula 25 encontrava-se aberta, enquanto as válvulas 23, 24 e 26 se encontravam fechadas.

O leito de adsorção 4 prossegue na etapa A, enquanto o leito de adsorção 3 passa para a etapa 2', o leito de adsorção 1 passa para a etapa 2 e o leito de adsorção 2 prossegue na etapa R. Quando o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa 2 e o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa 2', foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por meio da válvula 16 e foi introduzido no leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio da válvula 36. As válvulas 13, 14, 15, 33, 34, e 35 encontravam-se fechadas.

Enquanto o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa 1, o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa 1', o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa B, e o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa A. A mistura de gás de alimentação 101

foi introduzida através da válvula aberta 23 para a extremidade de admissão 21 do leito de adsorção 2. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi descarregado da extremidade de descarga 22 do leito de adsorção 2 e  
5 através da válvula aberta 25 para formação de gás produzido 102. As válvulas 24 e 26 encontravam-se fechadas durante a etapa de adsorção do leito de adsorção 2.

Enquanto o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa B, as válvulas 13, 15 e 16 encontravam-se  
10 fechadas e foi retirado gás de espaço vazio da extremidade de admissão 11 do leito de adsorção 1 através da válvula aberta 14, e o gás abandonou o sistema na forma de gás efluente 103. Quando o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa 1 e o leito de adsorção 3 estava sendo  
15 submetido à etapa 1', foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46 e este gás foi introduzido no leito de adsorção 3 através da extremidade de descarga 32 por meio da válvula 36. Nas simulações foi utilizado  
20 assistência de produto, mediante a qual foi introduzido gás produzido com elevado teor de hidrogênio no leito de adsorção 3 através da válvula 35. As válvulas 43, 44, 45, 33, e 34 encontravam-se fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, o  
25 leito de adsorção 2 prossegue na etapa A enquanto o leito de adsorção 1 passa para a etapa P, o leito de adsorção 4 passa para a etapa PP, e o leito de adsorção 3 passa para a

etapa R. Quando o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa P e o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa PP, foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46 e este gás foi introduzido no leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por meio da válvula 16. A válvula 46 foi ajustada nas simulações para variar a quantidade de gás de espaço vazio transferido durante a etapa PP. O gás de espaço vazio foi removido do leito de adsorção 1 através da extremidade de admissão 11 e da válvula 14 para formação de um gás efluente 103. As válvulas 13, 15, 43, 44 e 45 encontravam-se fechadas. Enquanto o leito de adsorção 3 estava sendo submetido à etapa R, foi utilizado um gás produzido com elevado teor de hidrogênio para repressurização do leito de adsorção 3. A válvula 35 encontrava-se aberta, enquanto as válvulas 33, 34 e 36 se encontravam fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, o leito de adsorção 2 prossegue na etapa A, enquanto o leito de adsorção 1 passa para a etapa 2', o leito de adsorção 4 passa para a etapa 2 e o leito de adsorção 3 prossegue na etapa R. Enquanto o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa 2 e o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa 2', foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46 e este gás foi introduzido no leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por

meio da válvula 16. As válvulas 13, 14, 15, 43, 44, e 45 encontravam-se fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, enquanto o leito de adsorção 2 é submetido à etapa 1, o leito de adsorção 1 é submetido à etapa 1', o leito de adsorção 4 é submetido à etapa B, e o leito de adsorção 3 é submetido à etapa A. A mistura de gás de alimentação 101 foi introduzida através da válvula aberta 33 para a extremidade de admissão 31 do leito de adsorção 3. O gás produzido com elevado teor de hidrogênio foi descarregado da extremidade de descarga 32 do leito de adsorção 3 e através da válvula aberta 35 para formação de gás produzido 102. As válvulas 34 e 36 permaneceram fechadas durante a etapa de adsorção do leito de adsorção 3.

Quando o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa B, as válvulas 43, 45 e 46 encontravam-se fechadas e o gás de espaço vazio foi retirado da extremidade de admissão 41 do leito de adsorção 4 através da válvula aberta 44 e abandonou o sistema na forma de gás efluente 103. Quando o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa 1 e o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa 1', o gás de espaço vazio foi retirado do leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26 e foi introduzido no leito de adsorção 1 através da extremidade de descarga 12 por meio da válvula 16. Nas simulações foi utilizada assistência de produto, em que foi introduzido gás produzido com elevado teor de

hidrogênio no leito de adsorção 1 através da válvula 15. As válvulas 23, 24, 25, 13 e 14 encontravam-se fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, o leito de adsorção 3 prossegue na etapa A enquanto o leito de adsorção 4 passa para a etapa P, o leito de adsorção 2 passa para a etapa PP, e o leito de adsorção 1 passa para a etapa R. Quando o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa P e o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa PP, foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26, e foi introduzido no leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46. A válvula 26 foi ajustada nas simulações para variação da quantidade de gás de espaço vazio que foi transferida durante a etapa PP. O gás de espaço vazio foi removido do leito de adsorção 4 através da extremidade de admissão 41 e da válvula 44 para formação de gás efluente 103. As válvulas 43, 45, 23, 24, e 25 encontravam-se fechadas. Quando o leito de adsorção 1 estava sendo submetido à etapa R, foi utilizado gás produzido com elevado teor de hidrogênio para repressurização do leito de adsorção 1. A válvula 15 encontrava-se aberta, enquanto as válvulas 13, 14 e 16 se encontravam fechadas.

De acordo com o gráfico de ciclo na Tabela 1, o leito de adsorção 3 prossegue na etapa A, enquanto o leito de adsorção 4 passa para a etapa 2', o leito de adsorção 2 passa para a etapa 2 e o leito de adsorção 1 prossegue na

etapa R. Quando o leito de adsorção 2 estava sendo submetido à etapa 2 e o leito de adsorção 4 estava sendo submetido à etapa 2', foi retirado gás de espaço vazio do leito de adsorção 2 através da extremidade de descarga 22 por meio da válvula 26 e foi introduzido no leito de adsorção 4 através da extremidade de descarga 42 por meio da válvula 46. As válvulas 23, 24, 25, 43, 44, e 45 encontravam-se fechadas.

Para propósitos de comparação, são apresentadas 51  
10 simulações para duas diferentes misturas de gás de alimentação. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, 19,7% de metano e 0,3% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências previstas para  
15 processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo elevadas concentrações de hidrogênio. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, 78,6% de metano e 1,4% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências  
20 descobertas pelos inventores para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo baixas concentrações de hidrogênio.

Nas simulações, o ajuste de válvula para o leito de provisão de gás de purga foi regulado para variação da taxa  
25 de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização e do decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga. Para cada simulação, a pressão final

de despressurização foi ajustada para cerca de 140 kPa (1,427 kgf/cm<sup>2</sup>). A pressão de aproximação nas etapas de equalização foi ajustada em 10 kPa (0,102 kgf/cm<sup>2</sup>). Como parte da solução da simulação, foi determinada a pressão ao final de cada etapa de equalização.

Na Tabela 2 são dadas as pressões ao final de cada etapa para quatro casos com misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio. As unidades de pressão encontram-se expressas em MPa. A razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização relativamente ao decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga,  $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ , é igualmente listada.

TABELA 2

| Caso | Etapas | A    | 1    | PP   | 2    | B    | P    | 2'   | 1'   | R    | $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ |
|------|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|-------------------------------------------------|
| 1    |        | 1,48 | 0,97 | 0,66 | 0,38 | 0,14 | 0,13 | 0,37 | 0,96 | 1,44 | 0,79                                            |
| 2    |        | 1,48 | 1,01 | 0,85 | 0,46 | 0,14 | 0,13 | 0,45 | 1,00 | 1,44 | 2,05                                            |
| 3    |        | 1,48 | 1,02 | 0,91 | 0,49 | 0,14 | 0,14 | 0,48 | 1,01 | 1,44 | 3,19                                            |
| 4    |        | 1,48 | 1,04 | 0,98 | 0,52 | 0,14 | 0,14 | 0,51 | 1,03 | 1,44 | 6,65                                            |

A FIG. 2 apresenta resultados de simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de

pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de quatro leitos de adsorção utilizando o gráfico de ciclo na Tabela 1. Os resultados demonstram a tendência prevista de decréscimo de recuperação de hidrogênio quando a razão

5 do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga aumenta. A FIG. 2 ilustra que para ser obtida uma recuperação de hidrogênio maior que cerca de 80% para uma mistura gasosa de alimentação

10 compreendendo 80% de hidrogênio, a razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga deverá ser inferior a cerca de 3.

54

Isto é consistente com a técnica anterior para

15 quatro leitos de adsorção. Por exemplo, a patente norte-americana n° US 3.430.418 concedida a Wagner divulga uma razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga de 0,83. A patente norte-

20 americana n° US 3.564.816 concedida a Batta divulga uma razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a provisão de purga de 0,82. A patente norte-americana n° US 4.340.398 concedida a Doshi e outros divulga uma razão de

25 decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a provisão de purga de 0,8. A patente norte-americana n° US 6.007.606 concedida a

Baksh e outros divulga uma razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a provisão de purga de 1,59. A patente norte-americana n° US 6.340.382 concedida a Baksh e outros  
5 divulga uma razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a provisão de purga de 1,15.

A FIG. 2 também apresenta resultados das simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de  
10 hidrogênio, ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de 4 leitos de adsorção utilizando o ciclo na Tabela 1. Os  
15 resultados demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta acima de 80% para uma razão superior a cerca de 2. Em contraste com os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 20%  
20 de hidrogênio demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta quando ocorre um aumento da razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

#### EXEMPLO 2

25 A Tabela 3 ilustra um gráfico de ciclo para um sistema de cinco leitos de adsorção que pode ser utilizado nas simulações apresentadas no exemplo 2. Neste exemplo de

cinco leitos, os leitos de adsorção são submetidos a uma etapa de adsorção, uma primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma etapa de provisão de purga, uma etapa de despressurização, uma etapa de purga, uma etapa ociosa, uma segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma segunda etapa ociosa, uma primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, e uma etapa de repressurização. De acordo com o ciclo exemplar da Tabela 3, a etapa de provisão de purga ocorre após a segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

Tal como no Exemplo 1, foram realizadas simulações em computador, porém nesta ocasião com referência a um sistema de cinco leitos de adsorção. A operação de válvulas para as diversas etapas é similar àquela descrita no Exemplo 1.

20

TABELA 3

| A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  |
|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| 1  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  |
| 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  |
| B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP |
| 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  |

Para propósitos de comparação, são apresentadas simulações para duas diferentes misturas gasosas de alimentação. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, 19,7% de metano e 0,3% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências previstas para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo elevadas concentrações de hidrogênio. Os resultados das simulações utilizando uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, 78,6% de metano e 1,4% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências descobertas pelos inventores para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo baixas concentrações de hidrogênio.

Nas simulações, o ajuste de válvulas para o leito que forneceu o gás de purga foi regulado para variação da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga. Para cada simulação, a pressão de despressurização final foi estabelecida em cerca de 135 kPa (1,376 kgf/cm<sup>2</sup>). A pressão de aproximação nas etapas de equalização foi definida em cerca de 10 kPa (0,102 kgf/cm<sup>2</sup>). Como parte da solução da simulação, foi determinada a pressão ao final de cada etapa de equalização.

Na Tabela 4 são dadas as pressões ao final de cada etapa para quatro casos com misturas gasosas de alimentação

57

compreendendo 20% de hidrogênio. As unidades de pressão encontram-se expressas em MPa. A razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização relativamente ao decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de

5 purga,  $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ , é igualmente listada.

TABELA 4

| Caso | Etapa | A    | 1    | 2    | PP   | B     | P    | 2'   | 1'  | R    | $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ |
|------|-------|------|------|------|------|-------|------|------|-----|------|-------------------------------------------------|
| 1    |       | 1,48 | 1,11 | 0,58 | 0,44 | 0,133 | 0,14 | 0,57 | 1,1 | 1,44 | 2,2                                             |
| 2    |       | 1,48 | 1,12 | 0,58 | 0,5  | 0,134 | 0,14 | 0,57 | 1,1 | 1,44 | 4,2                                             |
| 3    |       | 1,48 | 1,12 | 0,58 | 0,53 | 0,135 | 0,14 | 0,57 | 1,1 | 1,44 | 6,7                                             |
| 4    |       | 1,48 | 1,12 | 0,58 | 0,56 | 0,135 | 0,14 | 0,57 | 1,1 | 1,44 | 14,2                                            |

A FIG. 3 apresenta resultados de simulações realizadas em computador para misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio ilustrando a

10 porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de cinco leitos de adsorção utilizando o gráfico de ciclo na Tabela 4. Os

15 resultados demonstram a tendência prevista de decréscimo de recuperação de hidrogênio quando a razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga

aumenta. A recuperação de hidrogênio decresce desde cerca de 85% a uma razão de cerca de 0,2 até uma recuperação de hidrogênio inferior a 80% a uma razão de cerca de 5.

A FIG. 3 também apresenta resultados de simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o acréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de cinco leitos de adsorção utilizando o ciclo da Tabela 4. Os resultados demonstram que a recuperação de hidrogênio é superior a 80% para uma razão superior a 2. A recuperação de hidrogênio aumenta acima de 88% para uma razão superior a cerca de 5.

Em contraste com os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta com o aumento da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

As simulações realizadas em computador ilustram o aspecto desejável de se aumentar a razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para misturas gasosas de alimentação compreendendo baixas

concentrações de hidrogênio. As simulações demonstram que para um sistema de adsorção possuindo 5 leitos de adsorção e um ciclo com 2 etapas de equalização, é desejável uma razão superior a 2 para obtenção de uma recuperação de hidrogênio superior a 80%, é desejável uma razão superior a 4 para uma recuperação de hidrogênio superior a 87%, e é desejável uma razão superior a 7 para uma recuperação de hidrogênio superior a 89%.

### EXEMPLO 3

10           A Tabela 5 ilustra um gráfico de ciclo para um sistema de cinco leitos de adsorção que pode ser utilizado de acordo com o processo aqui descrito e utilizado nas simulações apresentadas no Exemplo 3. Neste exemplo de cinco leitos, os leitos de adsorção são submetidos a uma  
15 etapa de adsorção, uma primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma etapa de provisão de purga, uma terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de  
20 espaço vazio, uma etapa de despressurização, uma etapa de purga, uma terceira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma etapa ociosa, uma primeira etapa de equalização  
25 de pressão por introdução de gás de espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, e uma etapa de repressurização. De acordo com o

ciclo exemplar da Tabela 5, a etapa de provisão de purga ocorre após a segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio e precede a terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

Tal como no Exemplo 1, foram realizadas simulações em computador. A operação de válvulas para as diversas etapas é similar àquela descrita no Exemplo 1.

TABELA 5

|    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | 3  | B  | P  | 3' | 2' | I  | 1' | R  | R  |
| 3' | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | 3  | B  | P  |
| 1  | 2  | PP | 3  | B  | P  | 3' | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  |
| 3  | B  | P  | 3' | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP |
| 1' | R  | R  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | 3  | B  | P  | 3' | 2' | I  |

Para propósitos de comparação, são apresentadas simulações para duas diferentes misturas gasosas de alimentação. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, 19,7% de metano e 0,3% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências previstas para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo elevadas concentrações de hidrogênio. Os resultados das simulações utilizando uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, 78,6% de metano e 1,4% de nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências

descobertas pelos inventores para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo baixas concentrações de hidrogênio.

Nas simulações, o ajuste de válvulas para o leito que forneceu o gás de purga foi regulado para variação da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga. Para cada simulação, a pressão de despressurização final foi estabelecida em cerca de 135 kPa (1,376 kgf/cm<sup>2</sup>). A pressão de aproximação nas etapas de equalização foi definida em cerca de 10 kPa (0,102 kgf/cm<sup>2</sup>). Como parte da solução da simulação, foi determinada a pressão ao final de cada etapa de equalização.

Na Tabela 6 são dadas as pressões ao final de cada etapa para quatro casos com misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio. As unidades de pressão encontram-se expressas em MPa. A razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização relativamente ao decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga,  $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ , é igualmente listada.

TABELA 6

| Caso | Etapa | A    | 1    | 2    | PP   | 3    | B    | P    | 3'   | 2'   | 1'  | R    | $\left(\frac{\Delta P_r}{\Delta P_{rr}}\right)$ |
|------|-------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|-----|------|-------------------------------------------------|
| 1    |       | 1,48 | 1,11 | 0,68 | 0,47 | 0,29 | 0,13 | 0,14 | 0,28 | 0,66 | 1,1 | 1,44 | 2,2                                             |
| 2    |       | 1,48 | 1,13 | 0,71 | 0,60 | 0,34 | 0,14 | 0,14 | 0,33 | 0,70 | 1,1 | 1,44 | 4,2                                             |
| 3    |       | 1,48 | 1,13 | 0,72 | 0,64 | 0,37 | 0,14 | 0,14 | 0,36 | 0,71 | 1,1 | 1,44 | 6,7                                             |
| 4    |       | 1,48 | 1,14 | 0,74 | 0,70 | 0,39 | 0,14 | 0,14 | 0,38 | 0,73 | 1,1 | 1,44 | 14,2                                            |

A FIG. 4 apresenta resultados de simulações realizadas em computador para misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de cinco leitos de adsorção utilizando o gráfico de ciclo na Tabela 5. Os resultados demonstram a tendência prevista de decréscimo de recuperação de hidrogênio quando a razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga aumenta. A recuperação de hidrogênio decresce desde cerca de 85% a uma razão de cerca de 0,6 até uma recuperação de hidrogênio inferior a 80% a uma razão de cerca de 5.

A FIG. 4 também apresenta resultados de simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão

durante a etapa de despressurização para o acréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de cinco leitos de adsorção utilizando o ciclo da Tabela 5. Os resultados demonstram que a recuperação de hidrogênio é superior a 80% para uma razão superior a 2. A recuperação de hidrogênio aumenta acima de 88% para uma razão superior a cerca de 5.

Em contraste com os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta com o aumento da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

As simulações realizadas em computador ilustram o aspecto desejável de se aumentar a razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para misturas gasosas de alimentação compreendendo baixas concentrações de hidrogênio. As simulações demonstram que para um sistema de adsorção possuindo 5 leitos de adsorção e um ciclo com 3 etapas de equalização, é desejável uma razão superior a 1,6 para obtenção de uma recuperação de hidrogênio superior a 80%, é desejável uma razão superior a 3 para uma recuperação de hidrogênio superior a 87%, e é desejável uma razão superior a 5 para uma recuperação de

64

hidrogênio superior a 89%.

Comparando-se estes resultados com o Exemplo 2, a razão requerida é inferior para 3 etapas de equalização do que para 2 etapas de equalização para provisão da mesma  
5 recuperação de hidrogênio.

#### EXEMPLO 4

A Tabela 7 ilustra um gráfico de ciclo para um sistema de seis leitos de adsorção que pode ser utilizado de acordo com o processo aqui descrito e utilizado nas  
10 simulações apresentadas no Exemplo 4. Neste exemplo de seis leitos, os leitos de adsorção são submetidos a uma etapa de adsorção, uma primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio,  
15 uma etapa de provisão de purga, uma etapa de despressurização, uma etapa de purga, uma etapa ociosa, uma segunda etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma segunda etapa ociosa, uma primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de  
20 espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, e uma etapa de repressurização. De acordo com o ciclo exemplar da Tabela 7, a etapa de provisão de purga ocorre após a segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

TABELA 7

|    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| A  | A  | A  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  |
| 1' | R  | R  | A  | A  | A  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | 1  | 2' | I  |
| I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  |
| B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | A  | A  | A  | 1  | 2  | PP |
| 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  | A  | A  | A  |
| A  | A  | A  | 1  | 2  | PP | B  | B  | P  | I  | 2' | I  | 1' | R  | R  | A  | A  | A  |

Tal como no Exemplo 1, foram realizadas simulações em computador. A operação de válvulas para as diversas etapas é similar àquela descrita no Exemplo 1.

- 5 Para propósitos de comparação, são apresentadas simulações para duas diferentes misturas gasosas de alimentação. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, 19,7% de metano e 0,3% de nitrogênio são
- 10 apresentados para ilustração de tendências previstas para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo elevadas concentrações de hidrogênio. Os resultados das simulações utilizando uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, 78,6% de metano e 1,4% de
- 15 nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências descobertas pelos inventores para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo baixas concentrações de hidrogênio.

Nas simulações, o ajuste de válvulas para o leito que forneceu o gás de purga foi regulado para variação da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga. Para cada simulação, a pressão de despressurização final foi estabelecida em cerca de 135 kPa (1,376 kgf/cm<sup>2</sup>). A pressão de aproximação nas etapas de equalização foi definida em cerca de 10 kPa (0,102 kgf/cm<sup>2</sup>). Como parte da solução da simulação, foi determinada a pressão ao final de cada etapa de equalização.

Na Tabela 8 são dadas as pressões ao final de cada etapa para quatro casos com misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio. As unidades de pressão encontram-se expressas em MPa. A razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização relativamente ao decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga,  $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ , é igualmente listada.

A FIG. 5 apresenta resultados de simulações realizadas em computador para misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de seis leitos de adsorção utilizando o gráfico de ciclo na Tabela 7. Os

resultados demonstram a tendência prevista de decréscimo de recuperação de hidrogênio quando a razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga aumenta. A recuperação de hidrogênio decresce desde cerca de 85% a uma razão de cerca de 0,6 até uma recuperação de hidrogênio inferior a 80% a uma razão de cerca de 5.

TABELA 8

| Caso | Etapa | A    | 1    | 2    | PP   | B    | P    | 2'   | 1'  | R    | $\left(\frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}}\right)$ |
|------|-------|------|------|------|------|------|------|------|-----|------|-------------------------------------------------|
| 1    |       | 1,48 | 1,09 | 0,57 | 0,41 | 0,13 | 0,13 | 0,56 | 1,1 | 1,44 | 1,8                                             |
| 2    |       | 1,48 | 1,09 | 0,57 | 0,48 | 0,13 | 0,14 | 0,56 | 1,1 | 1,44 | 4,0                                             |
| 3    |       | 1,48 | 1,09 | 0,57 | 0,51 | 0,13 | 0,14 | 0,56 | 1,1 | 1,44 | 6,5                                             |
| 4    |       | 1,48 | 1,09 | 0,57 | 0,54 | 0,14 | 0,14 | 0,56 | 1,1 | 1,44 | 13,5                                            |

Esta descoberta é consistente com a técnica anterior utilizando seis leitos de adsorção. Por exemplo, a patente norte-americana n° US 4.482.361 concedida a Whysall divulga uma razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga de 0,37.

A FIG. 5 também apresenta resultados de simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o acréscimo de

pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de seis leitos de adsorção utilizando o ciclo da Tabela 7. Os resultados demonstram que a recuperação de hidrogênio é superior a 80% para uma razão superior a 2. A recuperação de hidrogênio aumenta acima de 88% para uma razão superior a cerca de 5.

Em contraste com os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta com o aumento da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

As simulações realizadas em computador ilustram o aspecto desejável de se aumentar a razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para misturas gasosas de alimentação compreendendo baixas concentrações de hidrogênio. As simulações demonstram que para um sistema de adsorção possuindo 6 leitos de adsorção e um ciclo com 2 etapas de equalização, é desejável uma razão superior a 2 para obtenção de uma recuperação de hidrogênio superior a 80%, é desejável uma razão superior a 3 para uma recuperação de hidrogênio superior a 87%, e é desejável uma razão superior a 5 para uma recuperação de hidrogênio superior a 89%.

Comparando-se estes resultados com o Exemplo 2, a razão requerida é inferior para 6 leitos de adsorção do que para 5 leitos de adsorção para provisão da mesma recuperação de hidrogênio.

## 5 EXEMPLO 5

A Tabela 9 ilustra um gráfico de ciclo para um sistema de seis leitos de adsorção que pode ser utilizado de acordo com o processo aqui descrito e utilizado nas simulações apresentadas no Exemplo 5. Neste exemplo de seis  
10 leitos, os leitos de adsorção são submetidos a uma etapa de adsorção, uma primeira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma segunda etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio, uma terceira etapa de equalização de pressão por retirada  
15 de gás de espaço vazio, uma etapa ociosa, uma etapa de provisão de purga, uma etapa de despressurização, uma etapa de purga, uma terceira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio, uma segunda etapa ociosa, uma segunda etapa de equalização de pressão por  
20 introdução de gás de espaço vazio, uma terceira etapa ociosa, uma primeira etapa de equalização de pressão por introdução de gás de espaço vazio com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio, e uma etapa de repressurização. De acordo com o ciclo exemplar da Tabela  
25 9, a etapa de provisão de purga ocorre após a terceira etapa de equalização de pressão por retirada de gás de espaço vazio.

78

TABELA 9

|    |    |    |   |    |    |    |   |    |    |    |   |    |    |    |   |    |    |    |   |    |    |    |   |
|----|----|----|---|----|----|----|---|----|----|----|---|----|----|----|---|----|----|----|---|----|----|----|---|
| A  | A  | A  | A | 1  | 2  | 3  | I | PP | PP | B  | B | P  | P  | 3' | I | I  | 2' | I  | I | 1' | R  | R  | R |
| I  | 2' | I  | I | 1' | R  | R  | R | A  | A  | A  | A | 1  | 2  | 3  | I | PP | PP | B  | B | P  | P  | 3' | I |
| 1  | 2  | 3  | I | PP | PP | B  | B | P  | P  | 3' | I | I  | 2' | I  | I | 1' | R  | R  | R | A  | A  | A  | A |
| P  | P  | 3' | I | I  | 2' | I  | I | 1' | R  | R  | R | A  | A  | A  | A | 1  | 2  | 3  | I | PP | PP | B  | B |
| 1' | R  | R  | R | A  | A  | A  | A | 1  | 2  | 3  | I | PP | PP | B  | B | P  | P  | 3' | I | I  | 2' | I  | I |
| PP | PP | B  | B | P  | P  | 3' | I | I  | 2' | I  | I | 1' | R  | R  | R | A  | A  | A  | A | 1  | 2  | 3  | I |

Tal como no Exemplo 1, foram realizadas simulações em computador. A operação de válvulas para as diversas etapas é similar àquela descrita no Exemplo 1.

- 5 Para propósitos de comparação, são apresentadas simulações para duas diferentes misturas gasosas de alimentação. Os resultados das simulações que utilizaram uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, 19,7% de metano e 0,3% de nitrogênio são
- 10 apresentados para ilustração de tendências previstas para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo elevadas concentrações de hidrogênio. Os resultados das simulações utilizando uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, 78,6% de metano e 1,4% de
- 15 nitrogênio são apresentados para ilustração de tendências descobertas pelos inventores para processamento de misturas gasosas de alimentação possuindo baixas concentrações de hidrogênio.

Nas simulações, o ajuste de válvulas para o leito que forneceu o gás de purga foi regulado para variação da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga. Para cada simulação, a pressão de despressurização final foi estabelecida em cerca de 135 kPa (1,376 kgf/cm<sup>2</sup>). A pressão de aproximação nas etapas de equalização foi definida em cerca de 10 kPa (0,102 kgf/cm<sup>2</sup>). Como parte da solução da simulação, foi determinada a pressão ao final de cada etapa de equalização.

Na Tabela 10 são dadas as pressões ao final de cada etapa para quatro casos com misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio. As unidades de pressão encontram-se expressas em MPa. A razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização relativamente ao decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga,  $\left( \frac{\Delta P_B}{\Delta P_{PP}} \right)$ , é igualmente listada.

A FIG. 6 apresenta resultados de simulações realizadas em computador para misturas gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de seis leitos de adsorção utilizando o gráfico de ciclo na Tabela 9. Os

resultados demonstram a tendência prevista de decréscimo de recuperação de hidrogênio quando a razão do decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga aumenta. A recuperação de hidrogênio decresce desde cerca de 86% a uma razão de cerca de 0,5 até uma recuperação de hidrogênio inferior a 82% a uma razão de cerca de 3.

A FIG. 6 também apresenta resultados de simulações para misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio, ilustrando a porcentagem de recuperação de hidrogênio como função da razão de decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para o acréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para o sistema de seis leitos de adsorção utilizando o ciclo da Tabela 9. Os resultados demonstram que a recuperação de hidrogênio é superior a 86% para uma razão superior a 2. A recuperação de hidrogênio aumenta acima de 90% para uma razão superior a cerca de 3.

TABELA 10

| Caso | Etapa | A    | 1    | 2    | 3    | PP   | B    | P    | 3'   | 2'   | 1'  | R    | $\left(\frac{\Delta P_p}{\Delta P_{pp}}\right)$ |
|------|-------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|-----|------|-------------------------------------------------|
| 1    |       | 1,48 | 1,15 | 0,76 | 0,43 | 0,32 | 0,13 | 0,13 | 0,42 | 0,75 | 1,1 | 1,44 | 1,9                                             |
| 2    |       | 1,48 | 1,15 | 0,76 | 0,43 | 0,35 | 0,13 | 0,14 | 0,42 | 0,75 | 1,1 | 1,44 | 3,1                                             |
| 3    |       | 1,48 | 1,15 | 0,76 | 0,43 | 0,38 | 0,13 | 0,14 | 0,42 | 0,75 | 1,1 | 1,44 | 5,,3                                            |
| 4    |       | 1,48 | 1,15 | 0,76 | 0,43 | 0,40 | 0,13 | 0,14 | 0,41 | 0,75 | 1,1 | 1,44 | 10,4                                            |

20

Em contraste com os resultados para as misturas

gasosas de alimentação compreendendo 80% de hidrogênio, os resultados para as misturas gasosas de alimentação compreendendo 20% de hidrogênio demonstram que a recuperação de hidrogênio aumenta com o aumento da razão de  
5 decréscimo de pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga.

As simulações realizadas em computador ilustram o aspecto desejável de se aumentar a razão de decréscimo de  
10 pressão durante a etapa de despressurização para decréscimo de pressão durante a etapa de provisão de purga para misturas gasosas de alimentação compreendendo baixas concentrações de hidrogênio. As simulações demonstram que para um sistema de adsorção possuindo 6 leitos de adsorção  
15 e um ciclo com 3 etapas de equalização, é desejável uma razão superior a 2 para obtenção de uma recuperação de hidrogênio superior a 86%, é desejável uma razão superior a 3 para uma recuperação de hidrogênio superior a 90%, e é desejável uma razão superior a 5 para uma recuperação de  
20 hidrogênio superior a 92%.

Muito embora a invenção tenha sido descrita detalhadamente e com referência a exemplos específicos da mesma, deverá ser aparente para uma pessoa versada na técnica que podem ser feitas diversas mudanças e  
25 modificações na mesma sem afastamento do escopo das reivindicações que se encontram em anexo.

74

- REIVINDICAÇÕES -

1. PROCESSO PARA SEPARAÇÃO SELETIVA DE HIDROGÊNIO DE PELO MENOS UM COMPONENTE MAIS INTENSAMENTE PASSÍVEL DE ADSORÇÃO EM UMA PLURALIDADE DE LEITOS DE ADSORÇÃO, cada um dos mesmos contendo um adsorvente seletivo para o pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção para produção de um gás produzido com elevado teor de hidrogênio, cada leito da pluralidade de leitos de adsorção sendo submetido a um ciclo repetitivo de operação, o processo sendo caracterizado por compreender:

(a) introdução de uma mistura gasosa de alimentação compreendendo 5% até 50% de hidrogênio a uma pressão elevada em um primeiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, e adsorção do pelo menos um componente mais intensamente passível de adsorção no adsorvente no primeiro leito de adsorção com simultânea retirada do gás produzido com elevado teor de hidrogênio do primeiro leito de adsorção, deixando subsequente um primeiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção substancialmente na pressão elevada;

(b) retirada concorrente de uma primeira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da primeira porção do primeiro gás de espaço vazio para um segundo

leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção para propósitos de equalização de pressão;

5 (c) retirada concorrente de uma segunda porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da segunda porção do primeiro gás de espaço vazio para um terceiro leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção para purga do terceiro leito de adsorção com a segunda porção do primeiro gás de espaço vazio com um resultante primeiro decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção de uma primeira pressão  $P_1$  para uma segunda pressão  $P_2$ ;

10 (d) retirada concorrente de uma terceira porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da terceira porção do primeiro gás de espaço vazio para um dos, terceiro leito de adsorção e um quarto leito de adsorção, da pluralidade de leitos de adsorção, para propósitos de equalização de pressão;

15 (e) retirada concorrente de uma quarta porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção com um resultante segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção da segunda pressão  $P_2$  ou de uma terceira pressão  $P_3$  para uma pressão de despressurização  $P_4$ ;

em que  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$  quando o segundo decréscimo de pressão

no primeiro leito de adsorção ocorre da segunda pressão  $P_2$

para a pressão de despressurização  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 2,0$

quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de

5 adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de despressurização  $P_4$ ;

(f) introdução em contracorrente de uma primeira porção de um segundo gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção para purga do primeiro  
10 leito de adsorção, o segundo gás de espaço vazio sendo proveniente de um de um quinto leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, e do quarto leito de adsorção;

15 (g) introdução em contracorrente de uma segunda porção do segundo gás de espaço vazio ou uma porção de um terceiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção de um de entre um sexto leito de adsorção da pluralidade de leitos  
20 de adsorção, no segundo leito de adsorção, no terceiro leito de adsorção, no quarto leito de adsorção e no quinto leito de adsorção para propósitos de equalização de pressão;

(h) introdução em contracorrente de uma porção

de um quarto gás de espaço vazio no primeiro  
leito de adsorção, o quarto gás de espaço vazio  
sendo proveniente de um de um sétimo leito de  
adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do  
5 segundo leito de adsorção, do terceiro leito de  
adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto  
leito de adsorção e do sexto leito de adsorção,  
para propósitos de equalização de pressão; e  
(i) pelo menos uma de entre introdução em  
10 contracorrente da mistura de gás de alimentação e  
introdução em contracorrente do gás produzido com  
elevado teor de hidrogênio de pelo menos um de  
entre um vaso de armazenagem de gás produzido com  
elevado teor de hidrogênio, de um oitavo leito de  
15 adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do  
segundo leito de adsorção, do terceiro leito de  
adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto  
leito de adsorção e do sexto leito de adsorção  
para o primeiro leito de adsorção até o primeiro  
20 leito de adsorção se encontrar substancialmente  
na pressão elevada.

2. Processo, de acordo com a reivindicação 1,  
caracterizado por a mistura gasosa de alimentação  
compreender 5% até 40% de hidrogênio.

25 3. Processo, de acordo com a reivindicação 1,  
caracterizado por a mistura gasosa de alimentação

compreender 5% até 30% de hidrogênio.

4. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por a retirada da segunda porção do gás de espaço vazio ocorrer anteriormente à retirada da terceira porção do gás de espaço vazio.

5. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por a retirada da terceira porção do gás de espaço vazio ocorrer anteriormente à retirada da segunda porção do gás de espaço vazio.

10 6. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por a pressão  $P_4$  ser de 108 kPa (1,101 kgf/cm<sup>2</sup>) até 170 kPa (1,733 kgf/cm<sup>2</sup>).

7. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 3,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da segunda pressão  $P_2$  para a pressão de despressurização  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 3,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de despressurização  $P_4$ .

20 7. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por compreender adicionalmente a introdução em contracorrente do gás produzido com elevado teor de hidrogênio de pelo menos um de entre o segundo leito de adsorção, o terceiro leito de adsorção, o quarto leito de

adsorção, o quinto leito de adsorção, o sexto leito de adsorção e o oitavo leito de adsorção para o primeiro leito de adsorção simultaneamente com a introdução em contracorrente da segunda porção do segundo gás de espaço vazio ou da porção do terceiro gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção para equalização de pressão com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio.

8. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o gás com elevado teor de hidrogênio para equalização de pressão com assistência de gás produzido com elevado teor de hidrogênio ser proveniente de pelo menos um de entre o terceiro leito de adsorção e o quarto leito de adsorção.

9. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o segundo gás de espaço vazio ser proveniente de um de entre o quarto leito de adsorção e o quinto leito de adsorção.

10. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o terceiro gás de espaço vazio ser proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção, o quarto leito de adsorção, e o sexto leito de adsorção.

11. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o quarto gás de espaço vazio ser proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção, o quarto leito de adsorção e o sexto leito de adsorção.

12. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o gás produzido com elevado teor de hidrogênio introduzido no primeiro leito de adsorção ser proveniente de pelo menos um de entre o terceiro leito de adsorção e o quarto leito de adsorção.

13. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por o segundo gás de espaço vazio ser proveniente de um de entre o quarto leito de adsorção e o quinto leito de adsorção,

em que o terceiro gás de espaço vazio é proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção, o quarto leito de adsorção, e o sexto leito de adsorção,

em que o quarto gás de espaço vazio é proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção, o quarto leito de adsorção e o sexto leito de adsorção, e

em que o gás produzido com elevado teor de hidrogênio introduzido no primeiro leito de adsorção é proveniente de pelo menos um de entre o terceiro leito de adsorção e o quarto leito de adsorção.

14. Processo, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado por compreender adicionalmente:

(j) retirada concorrente de uma quinta porção do primeiro gás de espaço vazio do primeiro leito de adsorção e passagem da quinta porção do primeiro gás de espaço vazio para um dos, terceiro leito de adsorção e sexto leito de adsorção para

propósitos de equalização de pressão; e

(k) introdução concorrente de uma porção de um quinto gás de espaço vazio no primeiro leito de adsorção, o quinto gás de espaço vazio sendo  
 5 proveniente de um de entre um nono leito de adsorção da pluralidade de leitos de adsorção, do segundo leito de adsorção, do terceiro leito de adsorção, do quarto leito de adsorção, do quinto leito de adsorção, do sexto leito de adsorção, do sétimo leito de adsorção e do oitavo leito de  
 10 adsorção, para propósitos de equalização de pressão.

15. Processo, de acordo com a reivindicação 14, caracterizado por o quinto gás de espaço vazio ser  
 15 proveniente de um de entre o segundo leito de adsorção e o terceiro leito de adsorção.

16. Processo, de acordo com a reivindicação 14, caracterizado por  $\frac{(P_2 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 4,0$  quando o segundo decréscimo  
 de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da segunda  
 20 pressão  $P_2$  para a pressão de despressurização  $P_4$ , e  $\frac{(P_3 - P_4)}{(P_1 - P_2)} \geq 4,0$  quando o segundo decréscimo de pressão no primeiro leito de adsorção ocorre da terceira pressão  $P_3$  para a pressão de despressurização  $P_4$ .

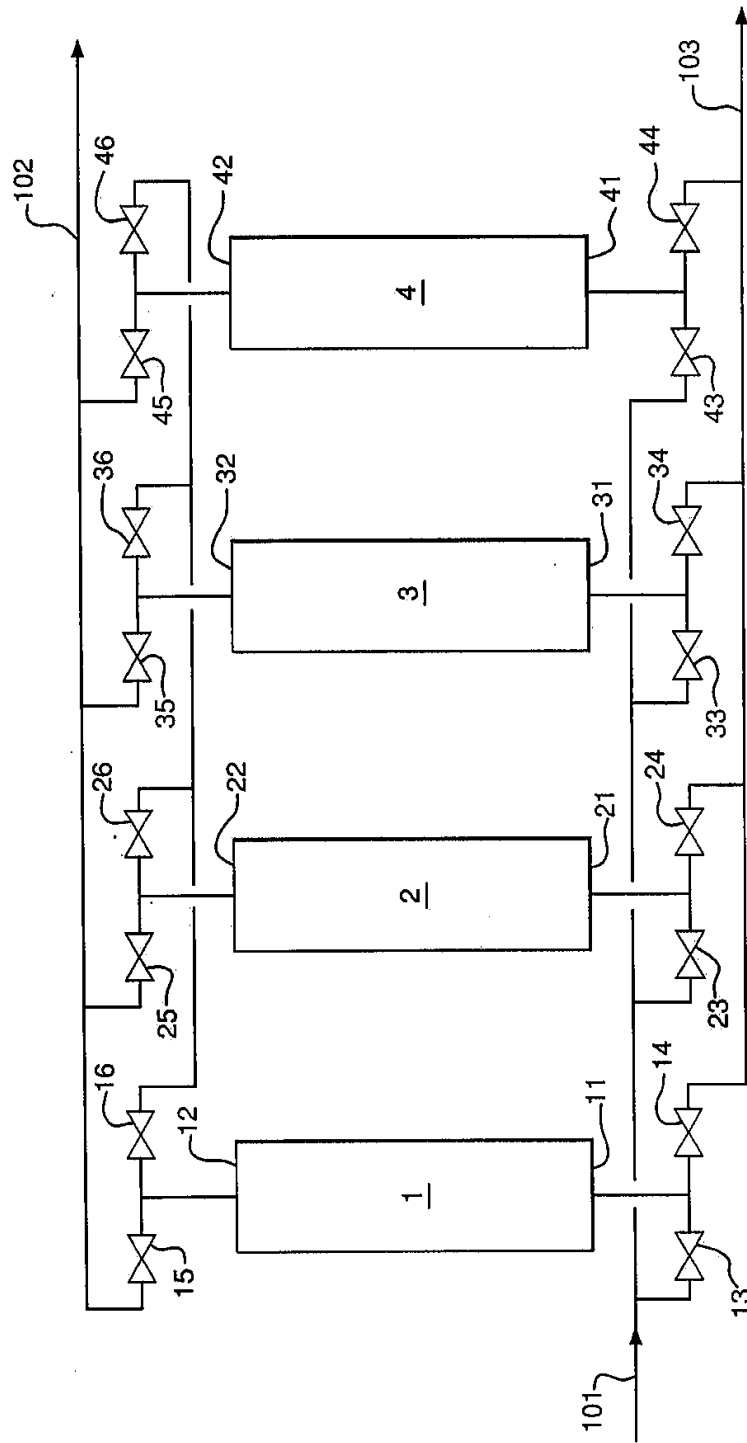


FIG.1

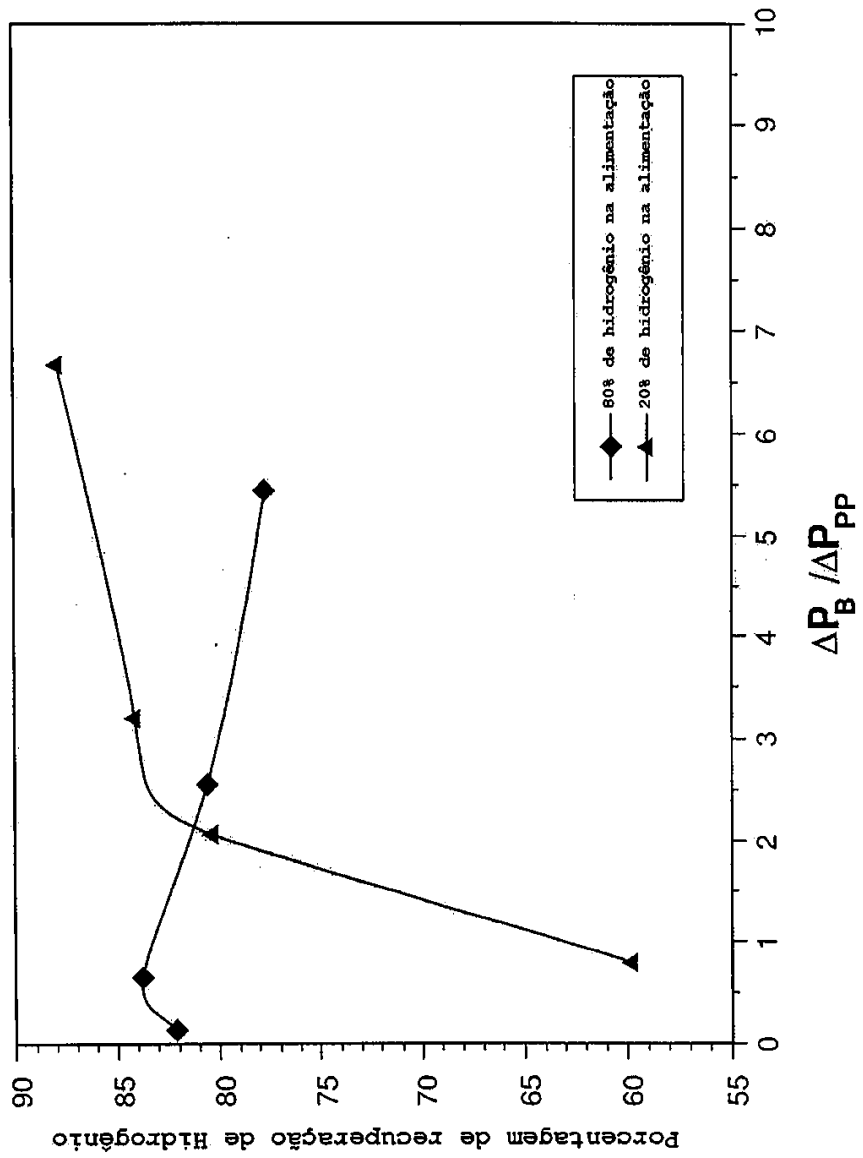


FIG. 2

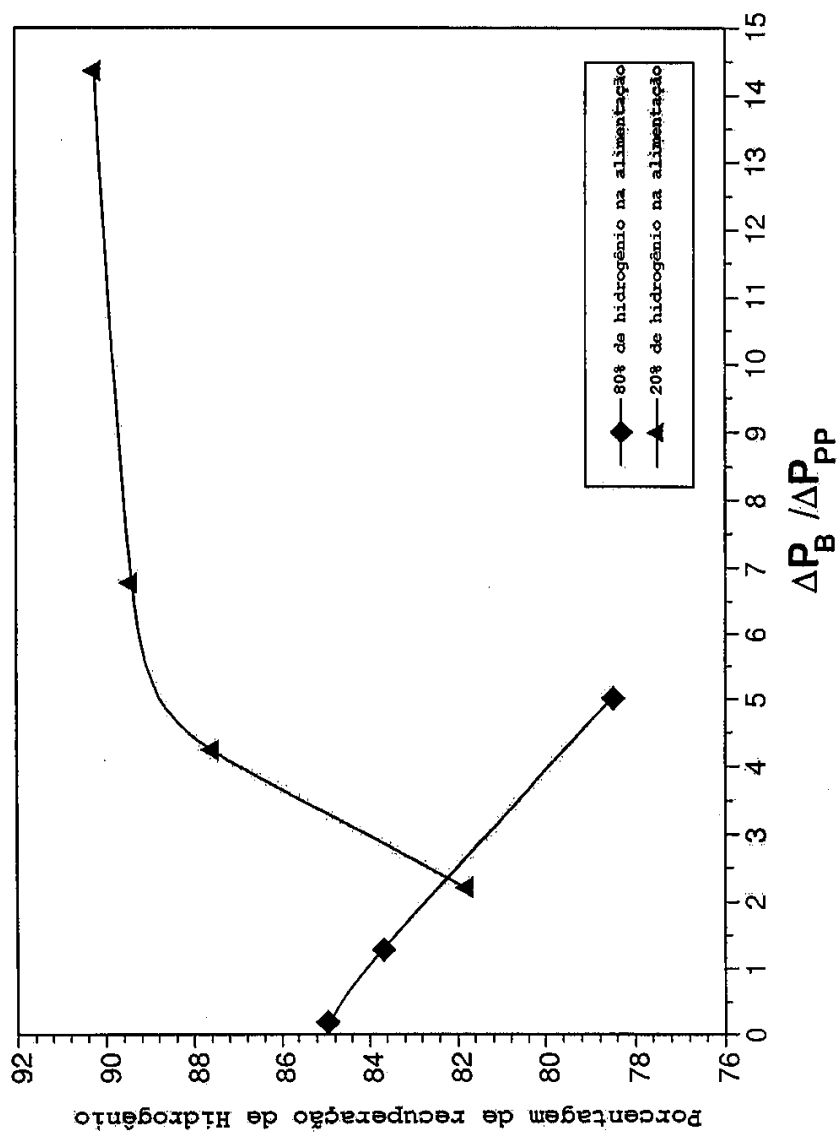
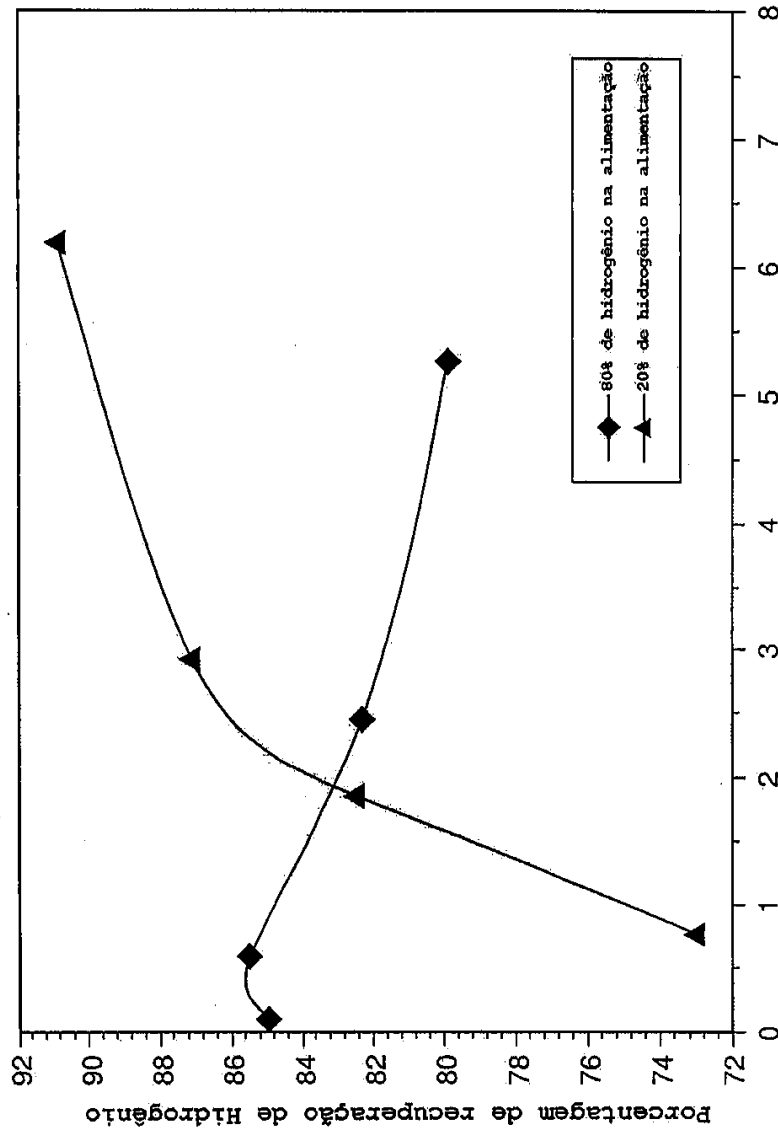


FIG. 3



$\Delta P_B / \Delta P_{PP}$   
FIG. 4

88

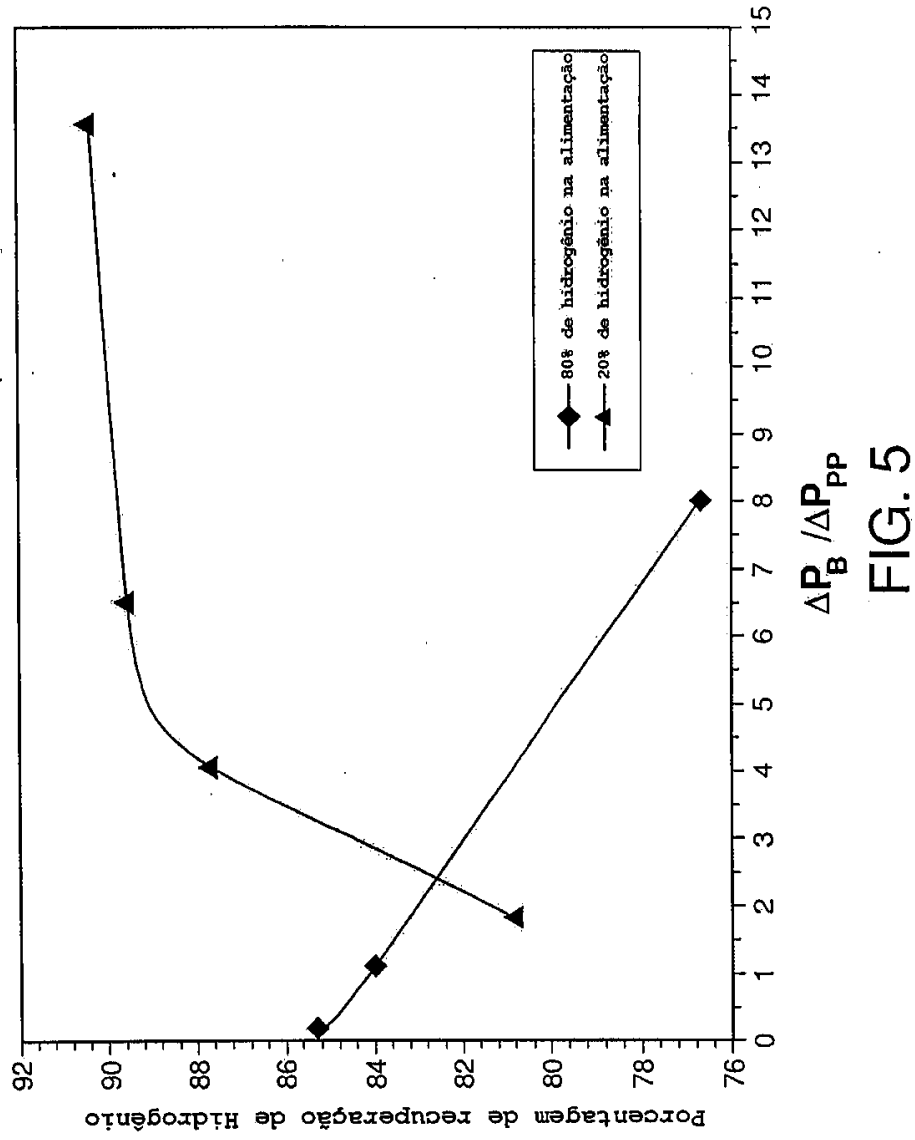


FIG. 5

68

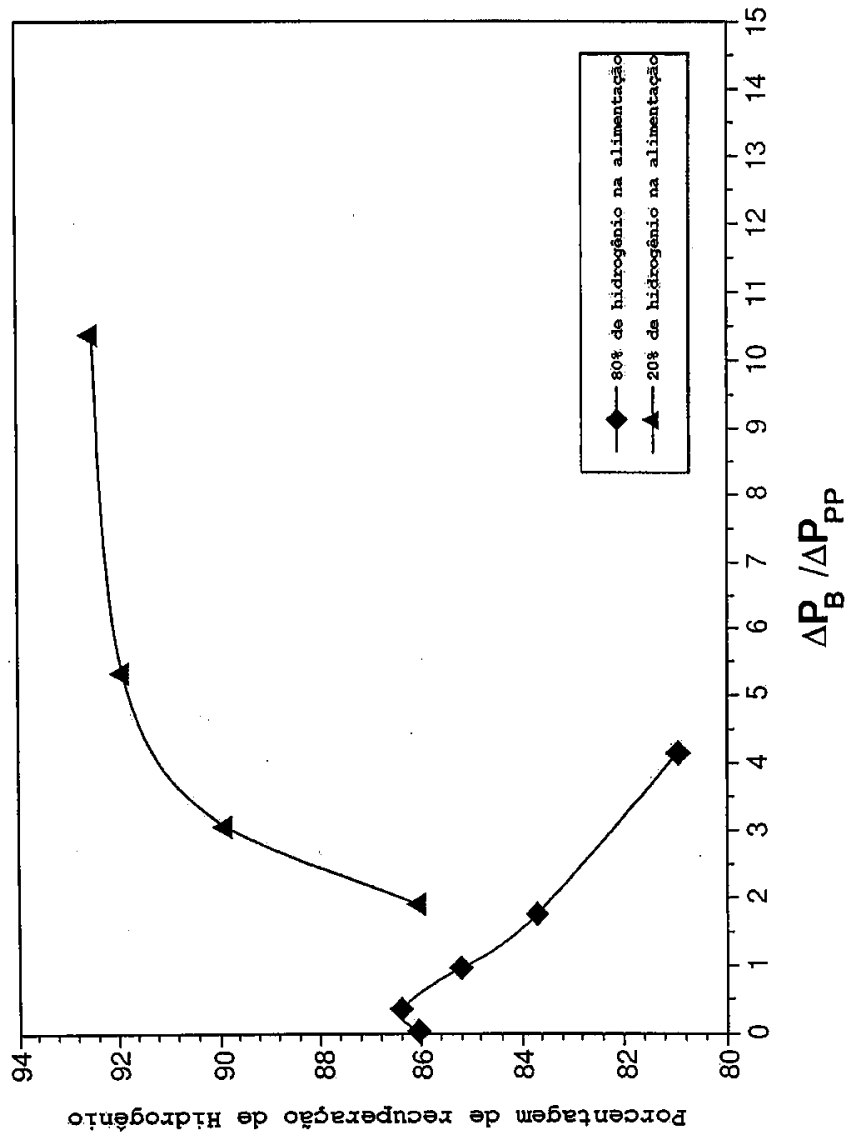
 $\Delta P_B / \Delta P_{PP}$ 

FIG. 6