

(19)



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS  
ESPAÑA



(11) Número de publicación: **3 010 328**

(51) Int. Cl.:

**C10L 3/10** (2006.01)  
**C10K 1/04** (2006.01)  
**C10G 70/04** (2006.01)  
**F28F 9/22** (2006.01)  
**F28G 3/12** (2006.01)  
**F28D 1/06** (2006.01)  
**F28D 7/06** (2006.01)  
**F28D 7/16** (2006.01)  
**F28F 19/00** (2006.01)  
**F28F 1/36** (2006.01)

(12)

## TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

(86) Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **15.07.2016 PCT/GB2016/052163**

(87) Fecha y número de publicación internacional: **26.01.2017 WO17013412**

(96) Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **15.07.2016 E 16744463 (7)**

(97) Fecha y número de publicación de la concesión europea: **18.12.2024 EP 3325580**

(54) Título: **Procedimiento de acondicionamiento de gases y sistema para extraer un vapor condensable de un gas suministrado**

(30) Prioridad:

**17.07.2015 GB 201512590**

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

**02.04.2025**

(73) Titular/es:

**ITERO TECHNOLOGIES LIMITED (100.00%)  
4 The Gables, Vale of Health  
Hampstead, London NW3 1AY, GB**

(72) Inventor/es:

**GRAINGER, JOHN y  
SMITH, GEOFF**

(74) Agente/Representante:

**ELZABURU, S.L.P**

**ES 3 010 328 T3**

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

## DESCRIPCIÓN

Procedimiento de acondicionamiento de gases y sistema para extraer un vapor condensable de un gas suministrado

### Campo de la invención

La invención se refiere al campo del acondicionamiento de gases y es particularmente, aunque no exclusivamente, aplicable al acondicionamiento de gases producidos mediante gasificación ("gas de gasificación").

### Antecedentes

El "gas de gasificación" es un producto de la gasificación, por ejemplo, gasificación de carbón y pirólisis de alimentaciones carbonosas. En particular, el gas producido por pirólisis y metanación de una alimentación de biomasa, es decir, un gas combustible a base de metano, se considera que es una fuente de energía renovable y, por lo tanto, ofrece una solución prometedora para lograr la neutralidad de carbono para las industrias de procesamiento. Además, su alto contenido de metano lo hace ideal para alimentar generadores y motores de gas donde su característica de mezcla pobre es favorable para cumplir con los requisitos de emisiones.

Puesto que el procedimiento de gasificación tiene lugar, en algunos casos, en cámaras de reacción a una temperatura de funcionamiento superior a 750°C, el gas extraído de las cámaras a menudo lleva hidrocarburos de cadena larga vaporizados, tales como alquitranes, así como otras impurezas que deben separarse del gas combustible antes de que pueda usarse. Por ejemplo, la presencia de alquitranes en el gas combustible reduce su pureza y, en algunos casos, es decir, en aplicaciones de motores de gas, conduce a ineficiencias, emisiones incontroladas y ensuciamiento interno.

La eliminación de alquitranes del gas de gasificación/gas combustible es bien conocida en la técnica. Por ejemplo, los lavadores de gases por vía húmeda se utilizan comúnmente para eliminar alquitranes poniendo en contacto el gas con una solución lavadora, es decir, agua, de modo que, al entrar en contacto, los alquitranes vaporizados condensan y son retenidos en la solución lavadora (véanse los ejemplos proporcionados en el documento US20140131622-Winter et al.), dando como resultado un gas combustible de alta pureza. Los documentos US4324643 (Durai-Swamy) y US4101412 (Choi) proporcionan algunos ejemplos adicionales sobre la extracción de los alquitranes de la solución lavadora rica en alquitrán, incluidas técnicas de separación de líquidos y columnas de fraccionamiento. El uso de lavadores de gases por vía húmeda ofrece una solución sencilla para la limpieza de gases, pero la extracción de alquitrán aguas abajo que se muestra en estos ejemplos puede resultar costosa y puede causar daños potenciales si las soluciones lavadoras no se tratan adecuadamente.

Alternativamente, los alquitranes pueden condensar directamente del gas combustible sin el uso de una solución lavadora. El documento KR20110137977 (Instituto Coreano de Investigación Energética) enseña un condensador centrífugo donde el gas combustible que fluye a través de un anillo giratorio se enfriá continuamente mediante los fluidos de refrigeración circundantes. Al enfriarse, los alquitranes vaporizados condensan del gas combustible y fluyen a lo largo de una pared en ángulo antes de abandonar el anillo en una salida de líquido con la ayuda de la fuerza centrífuga, dejando una corriente de gas acondicionado y purificado para ser purgado en una salida de gas. Sin embargo, la temperatura de procesamiento afecta en gran medida a la viscosidad del alquitrán y, por lo tanto, un control inadecuado de la temperatura de enfriamiento, es decir, un sobre-enfriamiento, puede dar lugar a alquitranes espesados y, por lo tanto, a un bloqueo en la salida de líquido, es decir, la fuerza centrífuga impartida por el anillo giratorio puede no ser suficiente para expulsar los alquitranes espesados fuera del anillo giratorio.

Los alquitranes son hidrocarburos de cadena larga que son las fracciones condensables en los gases de procedimiento creados por procedimientos industriales. Normalmente, los alquitranes con pesos moleculares mayores tienen puntos de rocío más altos. Estos alquitranes normalmente consisten en muchos anillos aromáticos, por ejemplo, hidrocarburos poliaromáticos pesados. Los alquitranes con pesos moleculares más bajos, a menudo con menos anillos aromáticos, normalmente tienen puntos de rocío más bajos. En general, los alquitranes con puntos de rocío más altos tendrán viscosidades más altas a una temperatura específica que aquellos con puntos de rocío más bajos. Cuando se mezclan, estos alquitranes pueden formar una pasta viscosa que es indeseable y problemática en cualquier procedimiento de tratamiento de gases. El uso del sistema mostrado en el documento KR20110137977 para la eliminación de alquitrán daría como resultado inevitablemente una gran inconsistencia en la viscosidad, lo que afecta a la transferencia de calor y el rendimiento del drenaje. Por ejemplo, en el documento KR20110137977, donde el refrigerante se suministra a una única temperatura de refrigeración, la mezcla de alquitranes que contiene alquitranes con puntos de rocío altos espesa significativamente la mezcla general, impidiendo un drenaje eficaz.

Como resultado, es altamente deseable una unidad de acondicionamiento de gases que sea capaz de eliminar de manera eficiente y fiable los alquitranes de un gas de gasificación/gas combustible.

El documento WO 2008/058137 A2 describe métodos y sistemas para tratar de forma sustancialmente continua material triturado que contiene carbono e hidrógeno. El documento WO 2008/110834 A1 describe un reactor de gasificación que comprende un sistema limpiador.

**Sumario**

La invención es como se reivindica en las reivindicaciones adjuntas. Los autores de la presente invención han mitigado los problemas anteriores proporcionando un procedimiento para eliminar vapor condensable de un gas suministrado, que comprende las etapas de:

- 5      i) enfriar el gas suministrado en una primera superficie de condensación; en donde en dicha primera superficie de condensación la temperatura está controlada a una primera temperatura para condensar una parte del vapor condensable en el gas suministrado, de manera que el gas suministrado se divide en una fracción condensada preliminar y un gas de procedimiento; a la vez que se elimina la fracción condensada preliminar en la primera superficie de condensación con medios de raspado mecánico; y
- 10     ii) enfriar el gas de procedimiento en una segunda superficie de condensación; en donde en la segunda superficie de condensación la temperatura está controlada a una segunda temperatura para condensar una proporción adicional del vapor condensable restante en el gas de procedimiento, de tal manera que el gas de procedimiento se divide en una fracción condensada posterior y un gas de producto; a la vez que se elimina la fracción condensada posterior en la superficie de condensación con medios de raspado mecánicos;
- 15     en donde la fracción condensada preliminar tiene una temperatura de punto de rocío más alta que la fracción condensada posterior; y en donde la fracción condensada preliminar tiene una viscosidad más alta que la fracción condensada posterior a cualquier temperatura dada por debajo de la segunda temperatura, y en donde el procedimiento comprende además las etapas de:
- 20     a) recoger la fracción condensada posterior eliminada en una primera ubicación en donde en dicha primera ubicación la temperatura está controlada a la segunda temperatura; y
- 25     b) transportar a través de un medio de transporte controlado térmicamente la fracción condensada posterior desde la primera ubicación a una segunda ubicación; en donde en dicha segunda ubicación la temperatura está controlada a la primera temperatura para calentar y/o vaporizar dicha fracción condensada posterior para formar una fracción posterior calentada; y
- 30     c) recoger la fracción condensada preliminar eliminada en la segunda ubicación; y
- 35     d) transportar a través de los medios de transporte controlados térmicamente la fracción condensada preliminar y la fracción posterior calentada desde la segunda ubicación a una tercera ubicación; opcionalmente, en dicha tercera ubicación la temperatura está controlada a una temperatura más alta que la primera temperatura para calentar y/o vaporizar dicha fracción posterior calentada y fracción condensada preliminar para formar un vapor condensable concentrado; y
- 40     e) (opcionalmente) extraer el vapor condensable concentrado de la tercera ubicación.

El gas suministrado es típicamente (pero no necesariamente) un producto de gasificación de carbón o pirólisis de una alimentación carbonosa. Opcionalmente comprende metano, así como vapor de hidrocarburo condensable, p. ej. alquitrán, que tiene una fase no gaseosa a una temperatura y presión ambiente estándar, es decir, a 25°C y 1 atm. El gas suministrado, a una temperatura de alimentación que excede el punto de rocío del vapor condensable, es típicamente un gas bien mezclado. Al incluir un medio de raspado mecánico, por ejemplo un raspador, el alquitrán condensado se puede eliminar de manera oportuna para mejorar la transferencia de calor en la superficie de condensación, es decir, crea una superficie de condensación relativamente exenta de alquitrán para condensar más alquitrán vaporizado. El medio de raspado mecánico también permite la descarga eficiente de alquitrán con mayor viscosidad, es decir, alquitrán con consistencias similares a pasta; esto mejora la fiabilidad del procedimiento.

Debido a una temperatura reducida, la viscosidad de la fracción condensada puede haber aumentado significativamente en el punto de eliminación y, por lo tanto, aumentan las dificultades de procesamiento. Como resultado, se puede proporcionar un medio de transporte controlado térmicamente para calentar y/o vaporizar la fracción condensada para mejorar su fluidez. La fracción condensada se puede vaporizar para formar un vapor condensable concentrado, es decir, una mezcla gaseosa que tiene una concentración de alquitrán sustancialmente más alta que el gas suministrado.

La etapa ii) puede repetirse en superficies de condensación adicionales utilizando el gas de producto de la etapa previa como gas de entrada. El procedimiento puede describirse como condensación y eliminación del vapor condensable, o alquitranes, en etapas secuenciales. La mezcla de alquitranes eliminada en cada una de las etapas tiene un punto de rocío y viscosidad similares, y como resultado reduce las dificultades del procedimiento. Por ejemplo, la fracción preliminar tiene una temperatura de punto de rocío más alta que la fracción posterior, de modo que la fracción preliminar tiene una viscosidad más alta que la fracción posterior a cualquier temperatura dada por debajo de la segunda temperatura.

Las etapas c)-d) pueden repetirse en ubicaciones adicionales utilizando una fracción condensada de una superficie de condensación adicional y/o la fracción condensada calentada de la etapa previa como materia de entrada, con el

fin de formar más vapor condensable concentrado. Por ejemplo, el procedimiento puede comprender una ubicación adicional para calentar y vaporizar cualquier fracción condensada que permanezca en la fase líquida. Por lo tanto, el procedimiento puede describirse como calentamiento y vaporización de las fracciones condensadas, en etapas secuenciales, para formar un vapor condensable concentrado.

5 Opcionalmente, el gas suministrado se acondiciona antes del procedimiento de eliminación de vapor condensable. Por ejemplo, el procedimiento puede comprender además una etapa de control de la temperatura del gas suministrado con un intercambiador de calor de gas suministrado, así como una etapa de filtrado con el uso de un filtro, de modo que el gas suministrado esté exento de cualquier fracción condensada y partículas.

10 Opcionalmente, el gas de producto se lava con el uso de un lavador de gases para eliminar cualquier contaminante restante. Y opcionalmente, el gas de producto lavado se seca utilizando un secador de gases para aumentar el valor calorífico del gas.

15 También se presenta un sistema para llevar a cabo el procedimiento que comprende al menos una unidad de condensación y (opcionalmente) un medio de transporte controlado térmicamente proporcionado para calentar y/o vaporizar la al menos una fracción condensada eliminada de la al menos una unidad de condensación para formar el vapor condensable concentrado, de modo que su viscosidad se pueda mantener o reducir para mejorar la fluidez; y en donde el medio de transporte controlado térmicamente es una extrusora de calentamiento o un intercambiador de calor de superficie raspada de calentamiento, o en algunos casos calentadores por lotes.

20 La al menos una unidad de condensación comprende la primera superficie de condensación y la segunda superficie de condensación, con medios de raspado mecánico para eliminar fracciones condensadas de cada superficie de condensación; en cada una de la primera superficie de condensación y la segunda superficie de condensación se controla individualmente la temperatura. Opcionalmente, la unidad de condensación es una extrusora, pero puede ser cualquier intercambiador de calor que comprenda un medio de raspado mecánico conocido por el experto en la técnica, por ejemplo, intercambiadores de calor de superficie raspada. Por ejemplo, el sistema puede ser una extrusora con una sola camisa en donde la camisa puede estar dividida en secciones para proporcionar una primera y una segunda temperatura a lo largo de su longitud.

25 Opcional y alternativamente, el sistema puede comprender en cambio al menos dos unidades de condensación que están conectadas; en donde en cada una de las al menos dos unidades condensación la temperatura está controlada individualmente; en este caso una primera unidad de condensación sirve como la primera superficie de condensación y una segunda unidad de condensación sirve como la segunda superficie de condensación. Opcionalmente, cada una de las camisas de las al menos dos unidades de condensación puede comprender además particiones para proporcionar varias temperaturas de enfriamiento para aumentar la flexibilidad.

30 Los medios de transporte controlados térmicamente comprenden la primera ubicación, la segunda ubicación y la tercera ubicación para calentar y vaporizar la fracción condensada eliminada de cada una de las unidades de condensación. La primera ubicación, la segunda ubicación y la tercera ubicación están conectadas secuencialmente; 35 la temperatura aumenta progresivamente desde la primera ubicación hasta la tercera ubicación. Por ejemplo, la primera ubicación, la segunda ubicación y la tercera ubicación pueden ser secciones diferentes a lo largo de una extrusora dividida térmicamente o un intercambiador de calor de superficie raspada, o alternativamente pueden ser unidades discretas en conexión en serie.

35 Opcionalmente, la extrusora puede comprender uno o más tornillos helicoidales para raspar cualquier fracción condensada de las paredes de los cuerpos cilíndricos enfriados, así como para transportar dichas fracciones para su eliminación. Opcionalmente, la extrusora puede comprender dos tornillos para un área de transferencia de calor aumentada y una trayectoria de flujo de gas ampliada, pero puede comprender cualquier número de tornillos según sea necesario. Y opcionalmente, los tornillos helicoidales pueden comprender un revestimiento antiadherente para una descarga eficiente de la fracción condensada de su superficie. Y opcionalmente, en los tornillos se puede controlar la temperatura para un área de enfriamiento aumentada; por ejemplo, los tornillos pueden enfriarse mediante circulación interna de refrigerante, o con un enfriador Peltier o cualquier otro medio de enfriamiento.

40 Opcionalmente, la unidad de condensación es un intercambiador de calor de superficie raspada que comprende medios de raspado mecánicos para raspar y transportar la al menos una fracción condensada. Opcionalmente, los medios de raspado mecánicos comprenden uno o más pistones o raspadores; en donde el intercambiador de calor de superficie raspada comprende un cuerpo cilíndrico encerrado en una camisa de calentamiento/enfriamiento para proporcionar control de temperatura. Por ejemplo, el pistón o raspador oscila recíprocamente en la dirección axial donde cualquier alquitran condensado se raspa y se elimina en una superficie de contacto. Opcionalmente, las superficies de contacto entre uno o más pistones o raspadores y el cuerpo cilíndrico comprenden un revestimiento resistente al desgaste y térmicamente conductor para proteger dicha superficie de contacto; el revestimiento resistente al desgaste puede ser nitruro de boro o cualquier otro revestimiento adecuado conocido por el experto en la técnica.

45 Opcionalmente, la extrusora comprende medios de separación de gas/líquido para separar cualquier fracción preliminar/fracción posterior arrastrada del gas de procedimiento/gas de producto; dichos medios de separación pueden ser un separador por gravedad, centrífugas, ciclones, filtros o cualquier otro medio conocido por el experto en

la técnica.

#### Breve descripción de los dibujos

Otras características y aspectos de la presente descripción serán evidentes a partir de la siguiente descripción detallada de realizaciones ilustrativas y no limitantes, con referencia a los dibujos, en los que:

- 5 La figura 1 representa un sistema de acondicionamiento de gases según una realización de la presente descripción.
- Las figuras 2a-2d representan una extrusora como una unidad de condensación de acuerdo con una realización de la presente descripción.
- Las figuras 3a-3e representan un intercambiador de calor de superficie raspada como una unidad de condensación según una realización de la presente descripción.
- 10 Las figuras 4a y 4b representan dos configuraciones diferentes del módulo de condensación según otra realización de la presente descripción.
- La figura 5 muestra un sistema de acondicionamiento de gases con capacidad de recalentamiento de alquitrán según una realización adicional de la presente descripción.

#### Descripción detallada

- 15 En la figura 1 se muestra una realización del sistema de acondicionamiento de gases 10 según la presente descripción. El sistema de acondicionamiento de gases 10 está configurado principalmente para purificar gas de gasificación o gas combustible generado por un procedimiento de pirólisis externo con el fin de producir un gas combustible de alta pureza listo para usar en motores de gas o turbinas, o como una fuente de combustible directa o cualquier otro uso adecuado. El sistema de acondicionamiento de gases 10 también es adecuado para purificar gas de gasificación o gas combustible producido por otros procedimientos tales como gasificación de carbón, gasificación de biomasa o incluso gas natural recuperado en las industrias del petróleo y el gas antes de su licuefacción.
- 20 Como se muestra en la figura 1, el sistema de acondicionamiento de gases 10 comprende un intercambiador de calor 20 para precalentar o enfriar un gas combustible que entra, un filtro de partículas de alta temperatura (HTPF) 30 para filtrar partículas suspendidas antes de entrar en un módulo condensador 40, donde los alquitranes vaporizados y otros hidrocarburos pesados condensan y se separan del gas combustible. Finalmente, el gas purificado pasa a través de un sistema de lavado de gases 90 para eliminar cualquier impureza restante que no sea capturada por el HTPF 30 y el módulo condensador 40. El gas de producto, recogido en la salida del sistema de lavado de gases 90, puede alimentar motores y generadores de gas directamente o puede presurizarse o licuarse para su almacenamiento y transporte.
- 25
- 30 El módulo condensador 40 es escalable y comprende al menos una unidad de condensación 41. Se puede incluir una serie de unidades adicionales 42, 43, 44, como se muestra en la realización particular de la figura 1. El número requerido de unidades adicionales, así como sus tamaños y condiciones de funcionamiento, dependen de los parámetros del procedimiento y de las condiciones del gas que entra, es decir, su caudal y temperatura, así como de la composición y concentración de los alquitranes.
- 35 El ejemplo ilustrado en la figura 1 presenta un módulo condensador 40 configurado para extraer alquitrances de un gas combustible producido por un reactor de pirólisis/metanación que comprende metano, alquitrances, otros hidrocarburos no condensables, CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> y otros componentes gaseosos residuales. La corriente de gas sale del reactor de pirólisis/metanación a una temperatura de aproximadamente 800°C antes de pasar a través de un intercambiador de calor 20 para enfriar el gas a aproximadamente 550°C; la temperatura de salida es significativamente más alta que el punto de rocío de los alquitrances vaporizados para asegurar que la mayoría de los alquitrances se mantienen en una fase gaseosa. La temperatura de salida del intercambiador de calor 20, sin embargo, se puede ajustar de acuerdo con el punto de rocío de los alquitrances vaporizados, que varía debido a una serie de factores tales como la concentración de alquitrances y la presión del procedimiento.
- 40
- 45 El intercambiador de calor 20 comprende además un refrigerador 22 para disipar cualquier calor extraído del gas caliente que pasa. El refrigerador 22 suministra un flujo de refrigerante al intercambiador de calor 20, es decir, agua fría, mezcla de glicolagua o aire, o puede ser cualquier otro refrigerante o gases adecuados. El intercambiador de calor 20 puede ser un intercambiador de calor de placas de aletas, pero puede ser cualquier intercambiador de calor de contacto no directo conocido por el experto en la técnica, por ejemplo, intercambiadores de calor de placas e intercambiadores de calor de flujo cruzado. Para el ejemplo dado, las paredes internas del intercambiador de calor, es decir, el paso de flujo de gas, pueden estar construidas opcionalmente con una aleación con alto contenido de níquel para permitir el craqueo catalítico de alquitrances a la temperatura prescrita, es decir, en el intervalo de 550°C a 800°C. La aleación con alto contenido de níquel puede ser Inconel 617, aleación de níquel 230 o cualquier aleación que contenga níquel con propiedades térmicas, catalíticas y anticorrosivas adecuadas.
- 50
- 55 El gas enfriado que sale del intercambiador de calor, en este caso a una temperatura aproximada de 550°C, pasa a través de la unidad de filtración de partículas de alta temperatura 30 para eliminar la materia particulada suspendida

en su interior. El HTPF es un filtro cerámico, pero puede ser cualquier filtro adecuado conocido por el experto en la técnica. El tamaño de malla del filtro depende del tamaño de las partículas y no debe inducir una caída de presión significativa. La unidad de filtración 30, junto con todas las tuberías/conductos en otras partes de la unidad de acondicionamiento de gases 10, están aislados adecuadamente para minimizar la pérdida de calor y, por lo tanto, la condensación incontrolada de alquitranes. Dado que el gas se mantiene a una temperatura muy por encima del punto de rocío de los alquitranes, se evita que la unidad de filtración 30 extraiga cualquier alquitrán en esta etapa. La unidad de filtración 30 puede comprender un sistema de retrolavado automatizado donde se inyecta gas de producto calentado para impulsar y desplazar cualquier partícula capturada de la unidad de filtración 30 a un punto de descarga; dicho sistema de retrolavado es un procedimiento continuo que se utiliza habitualmente en la filtración a alta temperatura. El sistema de retrolavado automatizado también puede comprender un limpiador mecánico o cualquier otro mecanismo conocido por el experto en la materia. Las partículas filtradas se eliminan fácilmente en el punto de recogida 32 para su eliminación.

Al salir del HTPF 30, el gas filtrado 34 entra en el módulo condensador 40, que en el ejemplo ilustrado en la figura 1 consiste en cuatro unidades de condensación individuales conectadas en serie 41, 42, 43, 44. Dichas unidades de condensación 41, 42, 43, 44 pueden ser réplicas exactas entre sí, o pueden tener un tamaño diferente según las condiciones del procedimiento. Como se ha comentado, los alquitranes producidos por el procedimiento de pirólisis consisten en diferentes tipos de alquitranes, todos con diferentes puntos de rocío y viscosidad, y por lo tanto, procesar todos los alquitranes a una temperatura uniforme daría lugar a dificultades de procesamiento. Estas unidades de condensación conectadas en serie tienen temperaturas de salida de gas que disminuyen gradualmente, por lo que juntas enfrian secuencialmente un gas que pasa y permiten que mezclas de alquitranes con puntos de rocío y viscosidades de flujo similares condensen y se extraigan de una unidad dada. El número de unidades de condensación necesarias en un módulo condensador 40 y las temperaturas de salida en cada una de las unidades de condensación dependen de una serie de factores, por ejemplo, el caudal de gas, presión, eficiencias de transferencia de calor en las unidades de condensación, así como la composición y concentración de alquitranes, que a su vez se relacionan con el caudal y el tipo de materia prima proporcionada para el procedimiento de pirólisis anterior. En este ejemplo particular, el gas se enfria de 550°C a 400°C en la primera unidad condensadora 41, de 400°C a 250°C en la segunda unidad condensadora 42, de 250°C a 100°C para la tercera unidad condensadora 43 y de 100°C a 60°C para la última unidad condensadora 44.

Utilizando la unidad de condensación 50 de la figura 2(a)-(d) como ejemplo, las unidades de condensación 41, 42, 43, 44 pueden ser extrusoras de doble tornillo montadas verticalmente encerradas por una camisa de enfriamiento 52. Sin embargo, la unidad de condensación 50 puede ser cualquier intercambiador de calor dinámico con medios de raspado mecánicos para los alquitranes condensados, por ejemplo, extrusoras de uno o múltiples tornillos e intercambiadores de calor de superficie raspada. En funcionamiento, el gas entra en la extrusora a través de la entrada de gas 50a, donde una temperatura reducida hace que los alquitranes vaporizados condensen y se depositen sobre las superficies internas del cuerpo cilíndrico 54. Los alquitranes condensados son luego transportados mecánicamente hacia el puerto de extracción 58 en el extremo del cuerpo cilíndrico 54 por los filetes de tornillo 56. El gas, con al menos una parte de los alquitranes vaporizados eliminados, sale de la extrusora a través de la salida de gas 50b. Además, la configuración vertical también ayuda a drenar algunos alquitranes condensados por gravedad. Los alquitranes condensados se mantienen en un estado fluido y drenable mediante el control de la temperatura del refrigerante.

La unidad de condensación 50, como se muestra en la figura 2(c) y la figura 2(d), contiene dos tornillos sinfín autolimpiantes con eje 56, donde el ángulo, el paso y la velocidad de rotación se determinan de acuerdo con las condiciones del procedimiento, para permitir un área de contacto suficiente del gas/pared, así como turbulencia en el flujo de gas para promover la transferencia de calor en las paredes del cuerpo cilíndrico de refrigeración, incluso minimizar la resistencia al flujo que de otro modo conduciría a una caída de presión. En algunas realizaciones, se emplean un eje de tornillo hueco y filetes para hacer circular un refrigerante en su interior; esto aumenta mucho el área de transferencia de calor y, como resultado, la unidad de condensación 50 se puede construir con un tamaño más compacto.

En funcionamiento, los filetes de tornillo raspan a lo largo de las paredes del cuerpo cilíndrico, limpiando cualquier alquitrán condensado de la superficie de las paredes del cuerpo cilíndrico, mejorando así la eficiencia de transferencia de calor. Bajo gravedad, los alquitranes son transportados mecánicamente hacia el puerto de extracción 58 ubicado en el punto más bajo de la unidad de condensación 50. En algunas realizaciones, la superficie de los filetes de tornillo está revestida con una capa antiadherente formulada estable a la temperatura de procedimiento relevante de modo que cualquier alquitrán condensado pueda ser drenado de manera efectiva de los filetes de tornillo. Algunos ejemplos del revestimiento antiadherente formulado son teflón, revestimientos de esmalte, cromo duro o cualquier otro cromo técnico, material cerámico, compuesto de polímero, compuesto de níquel no electrolítico/polímero, compuesto de pulverización térmica/polímero o cualquier otro revestimiento conocido por el experto en la técnica.

Alternativamente, el módulo de condensación 40 puede comprender adicionalmente intercambiadores de calor de superficie raspada (SSHE) montados verticalmente 60, por ejemplo, SSHE de la serie HRS Unicus, como se muestra en la figura 3(a) - figura 3(d). Los ejemplos ilustrados son esencialmente intercambiadores de calor de carcasa y tubo con mecanismos de raspado internos; son intercambiables con el extrusor mostrado en la figura 2(a)-(d), es decir, las unidades de condensación conectadas en serie 41, 42, 43, 44 pueden ser una combinación de SSHE 60 y extrusores 50. Comprende una camisa de refrigeración 62 para proporcionar control de temperatura para al menos un tubo de intercambiador de calor 61; el ejemplo mostrado en la figura 3(a) y 3(b) comprende múltiples tubos 61 agrupados

juntos donde se impone una temperatura de enfriamiento uniforme sobre los muchos tubos 61. En uso, el gas caliente se enfría cuando pasa a través del tubo 61, ya que dichos alquitrances vaporizados pueden condensar sobre las superficies internas de la pared del tubo antes de ser drenados hacia el puerto de extracción 68. Se proporciona al menos un raspador para ayudar a la eliminación de los alquitrances. Por ejemplo, como se muestra en la figura 3(d), el raspador puede ser un émbolo en forma de anillo que oscila recíprocamente en la dirección axial, o puede ser cualquier medio de transporte mecánico conocido por el experto en la técnica, tales como pistones y cepillos. En funcionamiento, los alquitrances depositados en las paredes del tubo son raspados por el raspador y, junto con el flujo de gas, son drenados hacia abajo a través de la abertura del émbolo 67 como se muestra en la figura 3(d); como resultado, las paredes del tubo exentas de alquitrances pueden proporcionar una superficie de condensación con una eficiencia de transferencia de calor mejorada, permitiendo por consiguiente que condensen más alquitrances en una unidad dada. Además, el movimiento oscilante de los raspadores también induce turbulencia en el flujo de gas para promover la transferencia de masa y calor. En el ejemplo dado, como se muestra en la animación de la figura 3(c), hay tres émbolos coaxiales 66 en un solo tubo 61 accionados por un eje común; sin embargo, el número de émbolos 66 que se instalarán en un solo tubo 61 depende de las condiciones del procedimiento y de las viscosidades de los alquitrances. Además, el recorrido de cada uno de los émbolos 66 en un ciclo recíproco, es decir, el alcance de un émbolo 66 en particular, es igual o mayor que la separación entre dos émbolos 66 adyacentes para garantizar que se raspe completamente toda la longitud del tubo 61, como se demuestra en la animación de la figura 3(c).

En el caso de un SSHE equipado con múltiples tubos 61, como el que se muestra en la Figura 3(a), el gas que entra primero se divide en porciones antes de ser alimentado a cada uno de los tubos individuales utilizando un distribuidor de gas. Además, se puede proporcionar un mecanismo de conexión para conectar mecánicamente todos los ejes en cada uno de los múltiples tubos 61 de modo que todos los émbolos en el SSHE oscilen sincronizados entre sí.

Para asegurar el raspado eficaz de los alquitrances, los émbolos en forma de anillo 66 están sustancialmente en contacto con las paredes del tubo 61. Aunque los alquitrances condensados pueden actuar como lubricante, se espera un alto nivel de desgaste en las superficies de contacto entre las paredes del tubo y los pistones 66. Por lo tanto, dichas superficies de contacto están opcionalmente revestidas con revestimientos resistentes al desgaste térmicamente conductores, por ejemplo, nitruro de boro, para mejorar la durabilidad y prolongar la vida útil de las partes móviles.

Opcionalmente, la camisa de refrigeración 52, 62 mostrada en la figura 2 (a)-(b) y la figura 3 (a) puede dividirse además en diferentes zonas de temperatura controlada 52a,b,c, 62a,b,c, dividiendo diferentes secciones de la camisa de refrigeración para hacer circular refrigerante a diferentes temperaturas. Esto produce un control de temperatura más reactivo y preciso a lo largo de la longitud del cuerpo cilíndrico, debido a intervalos de temperatura más estrechos en cada una de las zonas de temperatura controlada; también proporciona flexibilidad para tener en cuenta las fluctuaciones en el flujo de gas y las condiciones del alquitrán.

Se pueden proporcionar puntos de extracción de líquido al final de cada una de las zonas de temperatura controlada en una sola unidad de condensación; la eliminación oportuna del alquitrán mediante el control de temperatura garantiza que los alquitrances condensados no ganen viscosidad a lo largo del cuerpo cilíndrico al eliminar rápidamente los alquitrances del procedimiento de refrigeración. Además, utilizando el SSHE 60 en la figura 3(e) como ejemplo, pero igualmente aplicable a la extrusora de doble tornillo 50, la inclusión de múltiples puertos de extracción 68a, 68b, 68c en una sola unidad de condensación, cada uno con zonas de temperatura controlada correspondientes 62a, 62b, 62c con controles de enfriamiento individuales, elimina la necesidad de múltiples unidades de condensación. Por ejemplo, en el caso donde se reduce el caudal de gas, el acondicionamiento de gas se puede llevar a cabo en su lugar utilizando solo la primera unidad de condensación 41 equipada con las múltiples zonas de temperatura controlada y puntos de extracción de líquido antes mencionados; el gas purificado a la salida de la primera unidad de condensación 41 puede eludir las unidades de condensación posteriores 42, 43, 44 y ser alimentado directamente al lavador de gases 90 aguas abajo.

Cada una de las unidades de condensación 41, 42, 43, 44 comprende un separador de gas/líquido para separar cualquier gota de alquitrán arrastrada de la corriente de gas enfriado. El separador de gas/líquido, situado en la salida de gas 50b, 60b es un separador de gravedad pero puede ser cualquier separador de gas/líquido conocido por el experto en la técnica, por ejemplo, un separador ciclónico y filtros. Cualquier alquitrán arrastrado, recogido por el separador de gas/líquido, se une a los alquitrances que fluyen hacia abajo retirados por los medios de raspado mecánico, es decir, el tornillo 56 o el raspador 66; juntos los alquitrances son drenados en el puerto de extracción 58, 68, que comprende un dispositivo de control de flujo de líquido para controlar la extracción de alquitrances de la unidad de condensación 50, 60. Por ejemplo, si se permite que un depósito de alquitrán se acumule en el fondo de la unidad de condensación 50, 60, forma una barrera de gas natural para evitar fugas de gas a través del puerto de extracción 58, 68. El dispositivo de control de flujo de líquido puede ser válvulas unidireccionales, válvulas rotativas, bombas de desplazamiento positivo, extrusoras de tornillo o cualquier otro dispositivo de control de flujo adecuado para proporcionar un paso unidireccional para los alquitrances salientes y un sello de gas, que pueden recogerse para su posterior procesamiento o eliminación.

Se pueden conectar en paralelo múltiples unidades de condensación que funcionan a la misma temperatura del refrigerante con el fin de procesar un caudal de gas general elevado. De esta manera, se mantiene el área de contacto gas/pared para una cantidad dada de flujo de gas. Por ejemplo, como se muestra en la figura 4(a) y la figura 4(b), el flujo de gas filtrado 34 se puede dividir en varias corrientes de gas menores utilizando un sistema distribuidor de gas 46 antes de alimentar dichas corrientes de gas menores a múltiples primeras unidades de condensación 41 que están

conectadas en paralelo; el gas enfriado que sale de las múltiples primeras unidades de condensación 41 se puede alimentar primero directamente a múltiples segundas unidades de condensación 42 de conexión como se muestra en la figura 4(a); o se pueden recombinar en un tanque de compensación 47 para equilibrar la presión antes de alimentarlas a múltiples segundas unidades de condensación 42 a través de otro sistema distribuidor de gas, como se muestra en la figura 4(b). Se pueden implementar disposiciones similares para las terceras unidades de condensación 43 y las unidades de condensación finales 44.

Dado que la temperatura de enfriamiento en la unidad de condensación final 44 puede ser tan baja como la temperatura ambiente, o en algunos casos más baja que la temperatura ambiente, se espera que la mayor parte del vapor de agua condensará junto con cualquier alquitrán vaporizado relevante. Por lo tanto, opcionalmente, se puede incluir un sensor en la salida de extracción de la unidad de condensación final 44 para vigilar los niveles de humedad en los alquitranes condensados. Dependiendo de su contenido de humedad, los líquidos extraídos de la unidad de condensación final 44 se pueden desechar o procesar por separado de los alquitranes extraídos en las unidades de condensación anteriores 41, 42, 43.

El gas enfriado a la salida de la unidad de condensación final 44 se hace pasar al sistema de lavado de gases 90 para eliminar cualquier hidrocarburo aromático no condensado, HCl, amoniaco, H<sub>2</sub>S o cualquier otra impureza gaseosa. El sistema de lavado de gases 90 puede comprender cualquiera o una combinación de los sistemas de lavador de gases de agua, lavador de gases de aceite, lavador de gases cáustico o cualquier otro sistema de lavado de gases conocido por el experto en la técnica. Posteriormente, el gas de producto se deshidrata utilizando un desecante o cualquier otro medio adecuado antes de comprimirlo y almacenarlo, o puede utilizarse directamente para alimentar a usuarios posteriores, como generadores o motores.

Los alquitrances extraídos contienen un alto valor calorífico que se puede craquear y reformar en otras formas de combustible mediante pirólisis, gasificación o combustión adicionales o para usar como un producto de procedimiento. En una segunda realización según la presente invención, como se muestra en la figura 5, los alquitrances condensados en cada una de las unidades de condensación en el módulo de condensación 40 son drenados hacia un medio de transporte dividido térmicamente en zonas 92 similar a las unidades de condensación 41, por ejemplo, una extrusora de doble tornillo 50 o un SSHE 60, con el fin de calentar y vaporizar los alquitrances condensados para su posterior procesamiento. La extrusora de doble tornillo dividida térmicamente en zonas 92 como se ilustra en la figura 5 comprende zonas de temperatura, cada una de las cuales corresponde a una unidad de condensación 41, 42, 43, 44; por ejemplo, la temperatura aumenta progresivamente de 92a a 92d. En el ejemplo ilustrado, las temperaturas en las zonas 92a, 92b, 92c, 92d son 60°C, 100°C, 250°C, 400°C respectivamente, correspondientes a la temperatura de salida de los alquitrances en cada una de las unidades de condensación de conexión. El flujo de alquitrances transportados sigue el gradiente de temperatura creciente de 92a a 92d hacia la zona final controlada térmicamente 93 y el punto de extracción 94. Esto garantiza que los alquitrances recogidos en cada una de las zonas controladas térmicamente están en un estado fluido para el transporte a las zonas posteriores; debido a la temperatura más alta en dichas zonas posteriores, pueden vaporizar. Esto permitirá un transporte eficiente de los alquitrances, ya sea en fase líquida o gaseosa, a una zona final controlada térmicamente 93 para garantizar que todos los alquitrances vaporicen antes del punto de extracción 94 para el posterior procesamiento. En esta realización, en la zona adicional controlada térmicamente 93 la temperatura está controlada a 550°C, similar a la temperatura del gas filtrado 34. El recalentamiento de los alquitrances condensados tiene muchas ventajas. Por ejemplo, como gas, el flujo de alquitrances puede ser conducido únicamente por la diferencia de presión y minimiza las dificultades del procedimiento que de otro modo podrían encontrarse en los alquitrances líquidos. Además, la introducción de alquitrán calentado y vaporizado en las cámaras de reacción de pirólisis y metanación ayuda a la estabilidad del procedimiento, ya que evita una caída de la temperatura indebida en dichas cámaras. En algunas realizaciones, una parte del gas combustible que sale de un procedimiento de pirólisis anterior, es decir, a una temperatura de >800°C, puede utilizarse como fuente de calor en la extrusora 92 para vaporizar los alquitrances condensados; reduciendo así la tarea de enfriamiento del intercambiador de calor 20.

Además, dado que la temperatura de condensación en la unidad de condensación final 44, en algunas realizaciones, puede ser igual o inferior a la temperatura ambiente, una gran cantidad de vapor de agua en el gas puede condensar y ser drenado junto con los alquitrances de la unidad de condensación final; en los casos en que la entrada de agua es perjudicial, es decir, el procedimiento de combustión, o el contenido de humedad medido es excesivo, la corriente de alquitrances condensados en la unidad de condensación final 44 puede descartarse en lugar de alimentarse a la extrusora de doble tornillo dividida térmicamente en zonas 92.

**REIVINDICACIONES**

1. Un procedimiento para extraer un vapor condensable de un gas suministrado, que comprende las etapas de:

5 i) enfriar el gas suministrado en una primera superficie de condensación (41); en donde en dicha primera superficie de condensación la temperatura está controlada a una primera temperatura para condensar una parte del vapor condensable en el gas suministrado, de manera que el gas suministrado se divide en una fracción condensada preliminar y un gas de procedimiento; a la vez que se elimina la fracción condensada preliminar en la primera superficie de condensación con medios de raspado mecánico (56, 66); y

10 ii) enfriar el gas de procedimiento en una segunda superficie de condensación (42); en donde en la segunda superficie de condensación la temperatura está controlada a una segunda temperatura para condensar una proporción adicional del vapor condensable restante en el gas de procedimiento, de manera que el gas de procedimiento se divide en una fracción condensada posterior y un gas de producto; a la vez que se elimina la fracción condensada posterior en la superficie de condensación con medios de raspado mecánicos (56, 66);

15 en donde la fracción condensada preliminar tiene una temperatura de punto de rocío más alta que la fracción condensada posterior; y en donde la fracción condensada preliminar tiene una viscosidad más alta que la fracción condensada posterior a cualquier temperatura dada por debajo de la segunda temperatura, y en donde el procedimiento comprende además las etapas de:

20 a) recoger la fracción condensada posterior eliminada en una primera ubicación (92c), en donde en dicha primera ubicación la temperatura está controlada a la segunda temperatura; y

25 b) transportar a través de un medio de transporte controlado térmicamente la fracción condensada posterior desde la primera ubicación a una segunda ubicación (92d), en donde en dicha segunda ubicación la temperatura está controlada a la primera temperatura para calentar y/o vaporizar dicha fracción condensada posterior para formar una fracción posterior calentada; y

c) recoger la fracción condensada preliminar eliminada en la segunda ubicación;

25 d) transportar a través de los medios de transporte controlados térmicamente la fracción condensada preliminar y la fracción posterior calentada de la segunda ubicación a una tercera ubicación (93).

2. El procedimiento según la reivindicación 1, en donde en la tercera ubicación (93) la temperatura está controlada a una temperatura mayor que la primera temperatura para calentar y/o vaporizar dicha fracción posterior calentada y la fracción condensada preliminar para formar un vapor condensable concentrado, y el procedimiento comprende además la etapa de:

30 e) extraer el vapor condensable concentrado de la tercera ubicación.

3. El procedimiento según cualquier reivindicación precedente, en donde el gas suministrado es un producto de la gasificación de carbón o de la pirólisis de una alimentación carbonosa; y en donde el vapor condensable comprende un hidrocarburo que tiene una fase no gaseosa a una temperatura ambiente estándar de 25°C y presión de 1 atm.

35 4. El procedimiento según la reivindicación 3, en donde el gas suministrado comprende metano; y en donde el vapor condensable comprende alquitranes.

5. El procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, que comprende además una etapa de control de la temperatura del gas suministrado con un intercambiador de calor de gas suministrado (20) antes de la etapa de enfriamiento del gas suministrado; en donde el gas suministrado antes de la etapa de enfriamiento está sustancialmente exento de la al menos una fracción condensada.

40 6. El procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, que comprende además una etapa de filtrar el gas suministrado con un filtro (30) antes de la etapa de enfriamiento de dicho gas suministrado.

7. El procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, que comprende además una etapa de lavado del gas de producto con un lavador de gases; en donde el gas de producto lavado se seca posteriormente utilizando un secador de gases.

45 8. El procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde la etapa ii) se repite en superficies de condensación adicionales (43, 44) utilizando el gas de producto de la etapa anterior como gas de entrada, y las etapas c)-d) se repiten en ubicaciones adicionales (92a, 92b) utilizando una fracción condensada en superficies de condensación adicionales y/o la fracción condensada calentada de la etapa previa como material de entrada.

50 9. Un sistema de acondicionamiento de gases (10) para llevar a cabo el procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, que comprende al menos un módulo de condensación (40), una primera ubicación (92c), una segunda ubicación (92d) y una tercera ubicación (93); en donde se proporciona un medio de transporte controlado térmicamente (92) para calentar y/o vaporizar la fracción condensada preliminar y la fracción condensada posterior

- eliminada del al menos un módulo de condensación; en donde el módulo de condensación comprende la primera superficie de condensación (41), medios de raspado mecánico para eliminar las fracciones condensadas de la primera superficie de condensación (56, 66), la segunda superficie de condensación (42) y medios de raspado mecánico para eliminar las fracciones condensadas de la segunda superficie de condensación; en donde en cada una de la primera 5 superficie de condensación y la segunda superficie de condensación la temperatura está controlada individualmente; en donde el medio de transporte controlado térmicamente comprende la primera ubicación, la segunda ubicación y la tercera ubicación; en donde la primera superficie de condensación y la segunda ubicación están adaptadas para ser 10 controladas a una primera temperatura y la segunda superficie de condensación y la primera ubicación están adaptadas para ser controladas a una segunda temperatura; y la primera ubicación, la segunda ubicación y la tercera ubicación están conectadas secuencialmente entre sí.
10. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 9, en donde el medio de transporte controlado térmicamente (92) se proporciona para calentar y/o vaporizar la fracción condensada preliminar y la fracción condensada posterior eliminada del al menos un módulo de condensación para formar el vapor condensable concentrado; en donde el medio de transporte controlado térmicamente es una extrusora de calentamiento o un 15 intercambiador de calor de superficie raspada de calentamiento; y en donde la temperatura se puede adaptar para aumentar progresivamente de la primera ubicación a la tercera ubicación.
11. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 9 o 10, en donde el al menos un módulo de condensación (40) comprende al menos dos unidades de condensación (41, 42); en donde las al menos dos unidades de condensación comprenden una primera unidad de condensación como la primera superficie de condensación (41) y una segunda unidad de condensación como la segunda superficie de condensación (42). 20
12. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 11, en donde las al menos dos unidades de condensación (41, 42) están conectadas en serie; y en donde en cada una de las al menos dos unidades de condensación la temperatura está controlada individualmente.
- 25 13. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según cualquiera de las reivindicaciones 11 a 12, en donde al menos una de las al menos dos unidades de condensación (41, 42) es una extrusora que comprende medios de raspado mecánico (56, 66) para transportar y eliminar la fracción condensada preliminar y la fracción condensada posterior de la superficie de condensación (41, 42).
14. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 13, en donde los medios de raspado mecánico son tornillos helicoidales (56); en donde dicha extrusora comprende camisas de calentamiento/refrigeración (52) para proporcionar control de temperatura. 30
15. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 13, en donde los tornillos helicoidales (56) comprenden un revestimiento antiadherente para la descarga eficiente de la fracción condensada preliminar y la fracción condensada posterior de los tornillos helicoidales.
- 35 16. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según cualquiera de las reivindicaciones 11 a 12, en donde al menos una de las al menos dos unidades de condensación (41, 42) es un intercambiador de calor de superficie raspada (60) que comprende medios de raspado mecánicos para transportar y eliminar la fracción condensada preliminar y la fracción condensada posterior de la superficie de condensación (41).
17. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 16, en donde los medios de raspado mecánico (56, 66) comprenden uno o más pistones (66) o raspadores (56); en donde el intercambiador de calor de superficie raspada (60) comprende un cuerpo cilíndrico encerrado en una camisa de calentamiento/refrigeración (62) para proporcionar control de temperatura. 40
18. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 17, en donde las superficies de contacto entre el uno o más pistones (66) o raspadores (56) y el cuerpo cilíndrico comprenden un revestimiento resistente al desgaste para proteger dicha superficie de contacto.
- 45 19. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según la reivindicación 18, en donde el revestimiento resistente al desgaste es nitruro de boro.
20. El sistema de acondicionamiento de gases (10) según cualquiera de las reivindicaciones 9 a 19, en donde el módulo de condensación (40) comprende medios de separación gas/líquido para separar cualquier fracción condensada del gas.

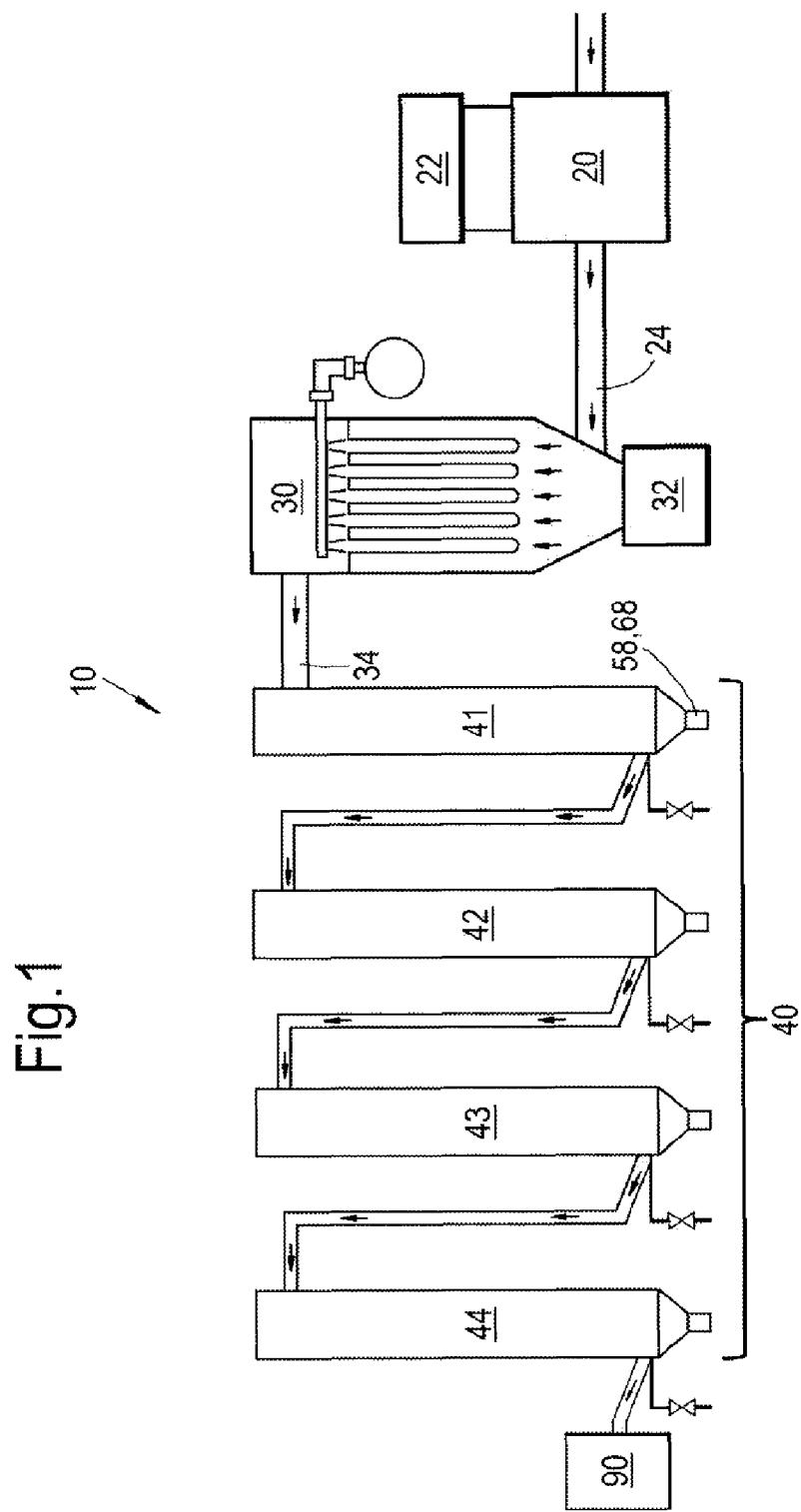


Fig.2(d)

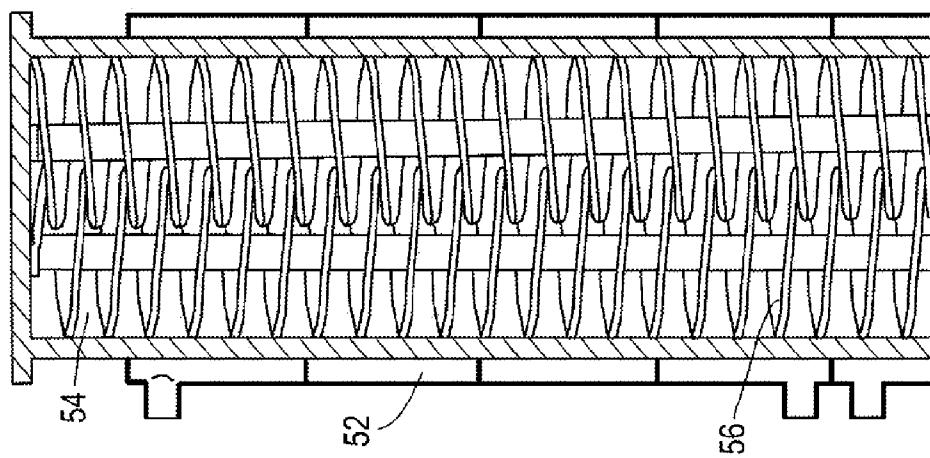


Fig.2(c)

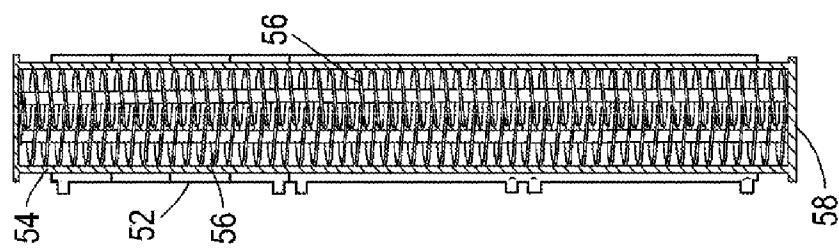


Fig.2(b)

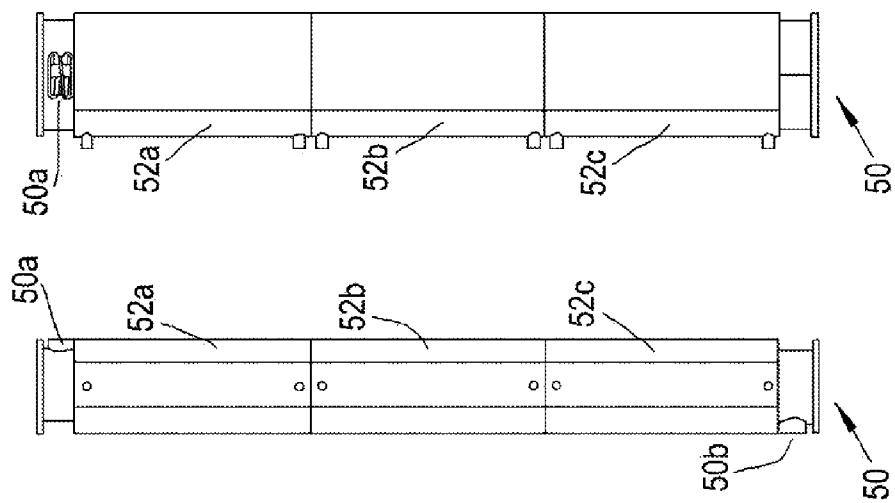


Fig.2(a)

Fig. 3(a)

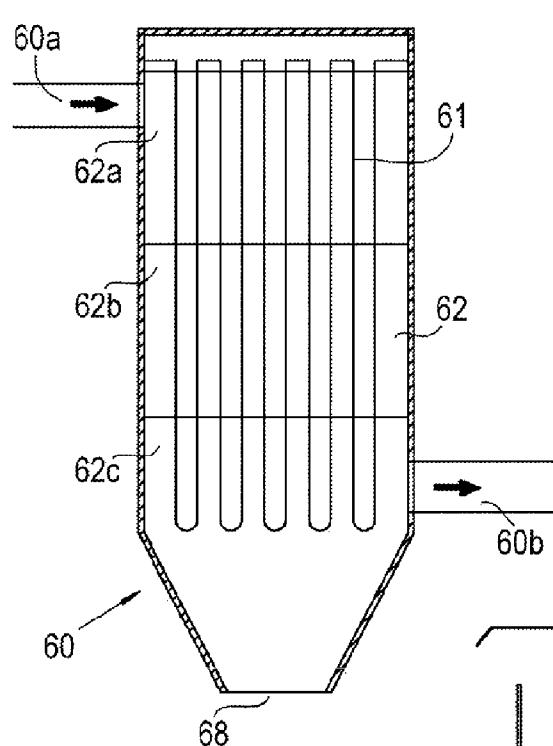


Fig. 3(b)

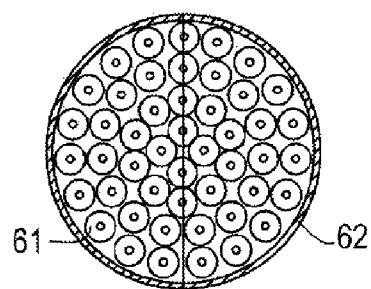


Fig. 3(c)

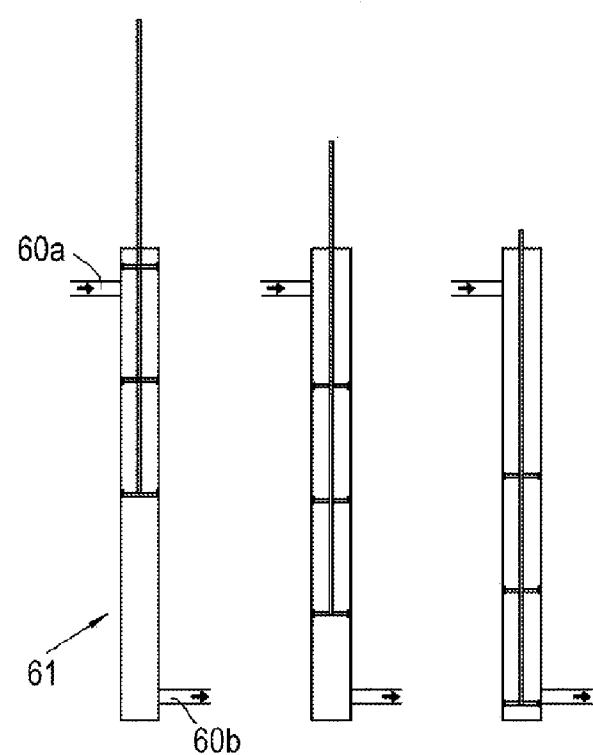


Fig. 3(d)

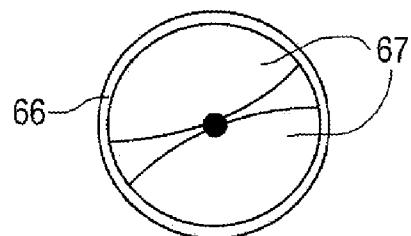
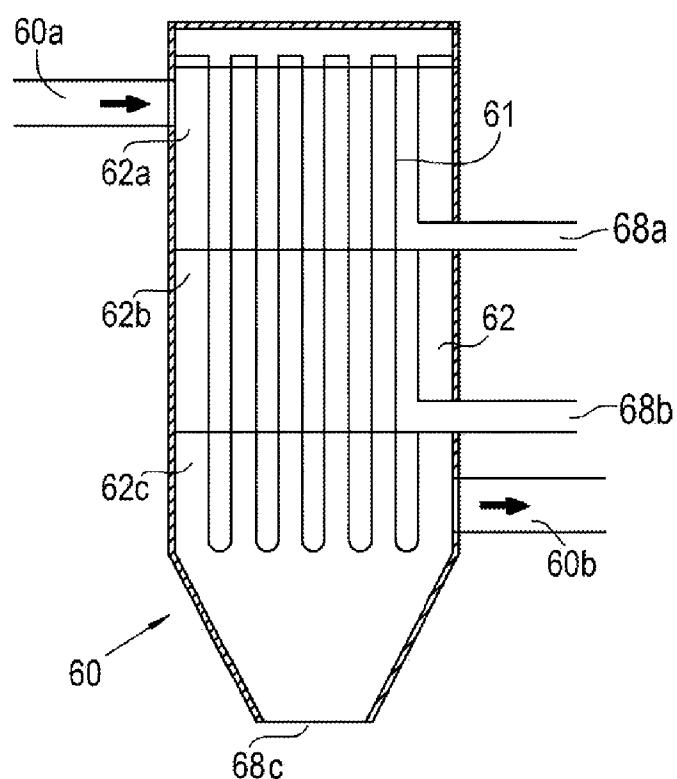


Fig. 3(e)



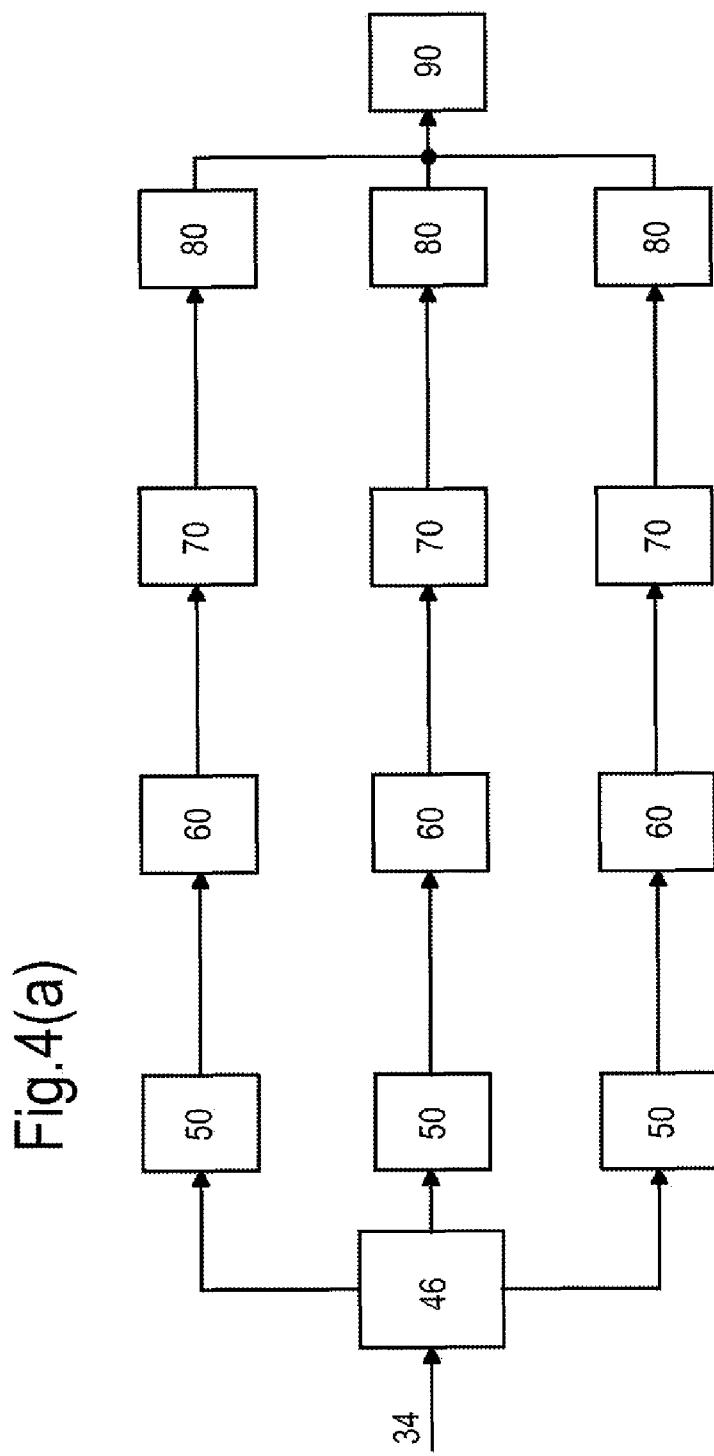


Fig.4(b)

