



Wirtschaftspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

ISSN 0433-6461

(11)

208 412

Int.Cl.³

3(51) F 25 J 3/02

AMT FUER ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) WP F 25 J/ 2430 818

(22) 08.09.82

(44) 02.05.84

(71) VEB LEUNA-WERKE „WALTER ULBRICHT“, LEUNA, DD
(72) FREYDANK, HARRI, DR. DIPL.-CHEM.; SEIDEL, KARL-HEINZ, DIPL.-ING.; MUELLER, HARTMUT, DIPL.-ING.;
PICHT, HANS-PETER, DR. DIPL.-ING.; DD;
SCHUETZ, HORST, DIPL.-PHYS.; DD;

(54) VERFAHREN ZUR ZERLEGUNG EINES ARGON-STICKSTOFF-METHAN-GEMISCHES

(57) Verfahren zur Zerlegung eines Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches, das aus Entspannungsgasen von Syntheseverfahren, vorzugsweise der Ammoniaksynthese gewonnen und dem ggf. eine argonhaltige, vorbehandelte Fraktion einer Luftzerlegungsanlage zugemischt wurde, in eine argonreiche Fraktion bei gleichzeitiger Gewinnung hochangereicherten Stickstoffs und Methans durch Tieftemperaturrektifikation in einer einzigen Trennsäule. Das wird erreicht durch Entnahme der argonreichen Fraktion als Seitenstrom, des hochangereicherten Stickstoffs als Kopfprodukt und des hochangereicherten Methans als Sumpfprodukt aus der Trennsäule.

VEB Leuna-Werke
"Walter Ulbricht"

Leuna, 20. 8. 1982

LP 8250

Titel der Erfindung

Verfahren zur Zerlegung eines Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft ein rektifikatives Verfahren zur Gewinnung einer argonreichen Fraktion sowie hochangereicherten Stickstoffs und Methans durch Zerlegung eines Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches, das aus Entspannungsgasen von Syntheseverfahren, vorzugsweise einer Ammoniaksynthese, gewonnen und dem ggf. eine argonhaltige, vorbehandelte Fraktion einer Luftzerlegungsanlage zugemischt wurde.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Verfahren zur Zerlegung von Entspannungsgasen mit den Hauptbestandteilen Wasserstoff, Stickstoff, Argon und Methan sind bekannt. Allen diesen Verfahren ist gemeinsam, daß in jeweils einem Trennapparat je eine Komponente in der Reihenfolge ihrer Flüchtigkeit isoliert wird.

Nach entsprechender Vorbehandlung des Entspannungsgases (DD-PS 122 368, 135 115 und 146 579) wird in einer ersten Trennsäule oder einem Abscheider der Wasserstoff abgeführt.

Das verbleibende Sumpfprodukt wird in eine zweite Trennsäule eingespeist, das Methan am Sumpf abgezogen und das am Kopf entnommene Stickstoff-Argon-Gemisch einer dritten Trennsäule zugeführt, an deren Sumpf Argon anfällt (Technik 14 (1959) 6, 438; Chem. Technik 19 (1967) 8, 449; Luft- u. Kältetechnik 2 (1980) 83).

Ein weiteres Verfahren (GB-PS 901 580) sieht am Kopf der zweiten Trennsäule die Entnahme von Stickstoff vor, während das aus Argon und Methan bestehende Sumpfprodukt in einer dritten Trennsäule zerlegt und Argon an deren Kopf abgezogen wird.

Eine weitere Möglichkeit ist mit der Gewinnung von drei Fraktionen in einer ersten Trennsäule gegeben (US-PS 3 037 359), wo am Sumpf die Hauptmenge des Methans, am Kopf der Wasserstoff und Argon, Stickstoff einschließlich Anteilen von Methan, Sauerstoff und Kohlenoxid als Seitenstrom abgezogen werden. Dieser Seitenstrom wird einer zweiten Trennsäule zugeführt, wo am Sumpf ein mit Stickstoff, Methan, Sauerstoff und Kohlenoxid verunreinigtes Argon gewonnen wird. Nach einer chemischen Reinigung dieses Sumpfprodukts wird das verbleibende Stickstoff-Argon-Gemisch einer dritten Trennsäule zugeführt, an deren Sumpf-hochangereichertes Argon gewonnen wird.

Die genannten Verfahren sind apparativ und/oder energetisch sehr aufwendig und haben durch die schrittweise Isolierung der einzelnen Komponenten und den daraus resultierenden großen Produktströmen erhebliche Argon-Verluste mit den einzelnen Komponenten oder Fraktionen zur Folge.

Ziel der Erfindung

Das Ziel der Erfindung besteht darin, bei der Gewinnung von Argon aus Entspannungsgasen durch mehrstufige Tieftemperaturrektifikation die Produktströme zu vermindern und die Argonverluste zu senken.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Es bestand somit die Aufgabe, durch Veränderung der Produktzuführung und - entnahme an der Trennsäule zur Zerlegung des Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches, die Gewinnung von Argon durch Tieftemperaturrektifikation günstiger zu gestalten.

Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren zur Zerlegung eines Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches, das aus Entspannungsgasen von Syntheseverfahren, vorzugsweise einer Ammoniaksynthese, gewonnen und dem ggf. eine argonhaltige, vorbehandelte Fraktion einer Luftzerlegungsanlage zugemischt wurde, in eine argonreiche Fraktion bei gleichzeitiger Gewinnung hochangereicherten Stickstoffs und Methans erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß die Zerlegung des hinsichtlich seiner Menge und der Konzentrationen seiner Komponenten schwankenden Gemisches in einer einzigen Trennsäule erfolgt, wobei das Gemisch in flüssiger oder auch gasförmiger Form in die Trennsäule eingeleitet, die argonreiche Fraktion in flüssiger oder auch gasförmiger Form als Seitenstrom, der hochangereicherte Stickstoff als flüssiges oder gasförmiges Kopfprodukt und das hochangereicherte Methan als Sumpfprodukt aus der Trennsäule entnommen werden. Das Argon-Stickstoff-Methan-Gemisch, das noch bis zu 2 Mol-% Wasserstoff enthält und in dem die Konzentrationen des Argons im Bereich von 15 bis 30 Mol-%, des Stickstoffs im Bereich von 10 bis 55 Mol-% und des Methans im Bereich von 30 bis 60 Mol-% schwanken, wird vorzugsweise mit einem Druck von ca. 350 bis 400 kPa und einer Temperatur von ca. 100 K wenige Böden oberhalb des Sumpfes in die Trennsäule eingespeist. Zwischen der Mitte der Trennsäule und dem Beginn des oberen Drittels erfolgt die Entnahme des Seitenstromes an einer Stelle, wo dieser mehr als 75 Mol-% Argon enthält, bei ca. 97 K vorzugsweise in flüssiger Form. Mit zunehmendem Rücklaufverhältnis kann der Argongehalt auf über 99 Mol-% angehoben werden. Der Seitenstrom der Trennsäule enthält weniger als $1 \cdot 10^{-6}$ Mol-% Methan, das Kopfprodukt

weniger als 0,05 Mol-% Argon und das Sumpfprodukt weniger als 0,2 Mol-% Argon. Das Rücklaufverhältnis der Trennsäule wird gemäß dem Argongehalt im Seitenstrom sowie die Menge und Geschwindigkeit der Seitenstromentnahme werden in Abhängigkeit vom Argongehalt des Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches geregelt. Die argonreiche Fraktion kann zwecks zusätzlicher Aufkonzentration einer weiteren Trennsäule zugeführt werden.

Ausführungsbeispiel

58 kmol/h eines hinsichtlich seiner Zusammensetzung um einen Mittelwert von 32 Mol-% Stickstoff, 22 Mol-% Argon und 46 Mol-% Methan schwankenden Entspannungsgases wurden in eine aus 30 Böden bestehende Trennsäule bei 100 K und 375 kPa am 27. Boden (vom Kopf der Trennsäule aus gerechnet) eingespeist. Das methanreiche Sumpfprodukt mit weniger als 0,3 Mol-% Argon und Stickstoff wurde flüssig abgezogen (ca. 27 kmol/h). Bei einem Mindestrücklaufverhältnis von 3, das hier in modifizierter Form als Verhältnis zwischen der Summe aller flüssigen Molmengen zur Summe aller gasförmigen Molmengen am Kondensator angewendet wurde, wurde am 16. Boden bei 97 K ein flüssiger Seitenstrom (ca. 17 kmol/h) mit im Mittel 81 Mol-% Argon abgeführt. Der Argonanteil kann bei Steigerung des Rücklaufverhältnisses auf über 99 Mol-% angehoben werden. Die verbleibenden 14 kmol/h Stickstoff mit einem Restargongehalt von 0,035 Mol-% wurden bei 90 K am Kopf der Kolonne wahlweise flüssig oder gasförmig entnommen.

Erfindungsanspruch

203412

1. Verfahren zur Zerlegung eines Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches, das aus Entspannungsgasen von Syntheseverfahren gewonnen und dem ggf. eine argonhaltige, vorbehandelte Fraktion einer Luftzerlegungsanlage zugemischt wurde, in eine argonreiche Fraktion bei gleichzeitiger Gewinnung hochangereicherten Stickstoffs und Methans durch Tieftemperaturrektifikation, dadurch gekennzeichnet, daß die Zerlegung des hinsichtlich seiner Menge und der Konzentrationen seiner Komponenten schwankenden Gemisches in einer einzigen Trennsäule erfolgt, wobei das Gemisch in flüssiger oder auch gasförmiger Form in die Trennsäule eingeleitet, die argonreiche Fraktion in flüssiger oder auch gasförmiger Form als Seitenstrom, der hochangereicherte Stickstoff als flüssiges oder gasförmiges Kopfprodukt und das hochangereicherte Methan als Sumpfprodukt aus der Trennsäule entnommen werden.
2. Verfahren nach Pkt. 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gemisch bis zu 2 Mol-% Wasserstoff enthält und die Konzentrationen des Argons im Bereich von 15 bis 30 Mol-% und des Methans im Bereich von 30 bis 60 Mol-% schwanken.
3. Verfahren nach Pkt. 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Einleitung des Gemisches in die Trennsäule wenige Böden oberhalb des Sumpfes und die Entnahme des Seitenstromes zwischen der Mitte und dem Beginn des oberen Drittels der Trennsäule, an einer Stelle, bei der der Seitenstrom mehr als 75 Mol-% Argon enthält, erfolgen.
4. Verfahren nach Pkt. 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Seitenstrom der Trennsäule weniger als $1 \cdot 10^{-6}$ Mol-% Methan, im Kopfprodukt weniger als 0,05 Mol-% Argon und im Sumpfprodukt weniger als 0,2 Mol-% Argon enthalten sind.

5. Verfahren nach Pkt. 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Rücklaufverhältnis der Trennsäule gemäß dem Argongehalt im Seitenstrom sowie die Menge und Geschwindigkeit der Seitenstromentnahme in Abhängigkeit vom Argongehalt des Argon-Stickstoff-Methan-Gemisches geregelt werden.