



(12)

## DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

(21) Numéro de dépôt : **93400522.4**

(51) Int. Cl.<sup>5</sup> : **F25J 3/04**

(22) Date de dépôt : **02.03.93**

(30) Priorité : **24.03.92 FR 9203501**

(43) Date de publication de la demande :  
**29.09.93 Bulletin 93/39**

(84) Etats contractants désignés :  
**DE ES IT NL**

(71) Demandeur : **L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE**  
75, Quai d'Orsay  
**F-75321 Paris Cédex 07 (FR)**

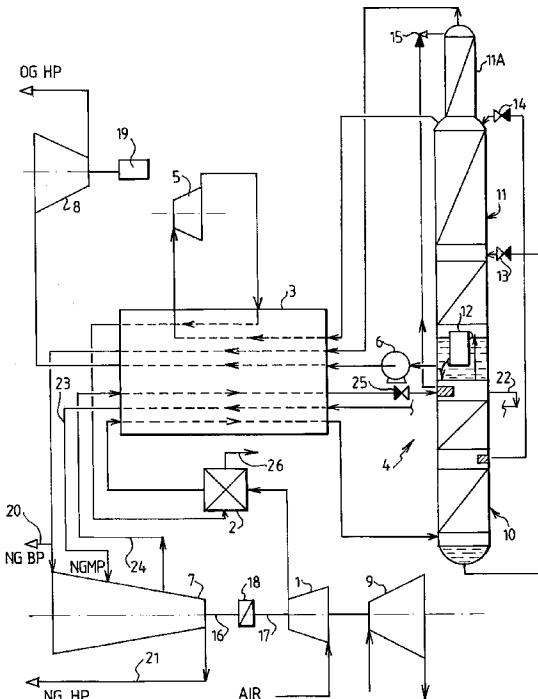
(72) Inventeur : **Koeberle, Yves**  
**43 bis, Boulevard Foch**  
**F-94170 Le Perreux sur Marne (FR)**  
Inventeur : **Tranier, Jean-Pierre**  
**9, rue de l'Espérance**  
**F-94800 Villejuif (FR)**

(74) Mandataire : **Le Moenner, Gabriel**  
**L'AIR LIQUIDE, Société Anonyme pour l'étude et l'exploitation des procédés Georges Claude**  
75, Quai d'Orsay  
**F-75321 Paris Cédex 07 (FR)**

(54) **Procédé et installation de production d'azote sous haute pression et d'oxygène.**

(57) Suivant ce procédé, après réchauffement de l'azote issu de la colonne basse pression (11), on le comprime à la haute pression au moyen d'un unique compresseur d'azote (7), et l'on fait fonctionner la colonne basse pression (11) sous une pression de l'ordre de  $P_N/\rho_N$ , où  $P_N$  désigne la haute pression d'azote et  $\rho_N$  le taux de compression dudit compresseur d'azote.

Application à la production simultanée d'une part d'azote à haute pureté sous une pression comprise entre 50 et 60 bars, et d'autre part d'oxygène sous 65 bars, pour alimenter une unité de production d'ammoniac.



La présente invention est relative à la production d'azote et d'oxygène par distillation d'air. Elle concerne en premier lieu un procédé de production simultanée d'une part d'azote pur sous une haute pression d'azote supérieure à 25 bars absolus environ, et d'autre part d'oxygène, par distillation d'air dans une double colonne de distillation comprenant une colonne moyenne pression et une colonne basse pression du type "à minaret" produisant l'azote pur en tête.

Une application particulière de l'invention est la production simultanée d'une part d'azote à haute pureté, contenant moins de 10 ppm d'oxygène, en grande quantité (c'est-à-dire représentant au moins 20% et typiquement plus de 30% du débit d'air traité), sous 50 à 60 bars, pour une unité de fabrication d'ammoniac, et d'autre part d'oxygène de pureté moyenne à haute, soit 95 à 99,5% en moles, à une pression de l'ordre de 65 bars et avec un rendement d'extraction élevé, pour la production d'hydrogène par réaction de l'oxygène sur des hydrocarbures lourds, l'hydrogène étant destiné à alimenter la même unité de fabrication d'ammoniac.

On entend par "colonne basse pression du type à minaret" une colonne basse pression, faisant partie d'une double colonne de distillation d'air, dont la partie d'extrémité supérieure est alimentée en tête par du "liquide pauvre supérieur" (azote pratiquement pur) soutiré en tête de la colonne moyenne pression et détendu, et produit en tête de l'azote pur sous la basse pression.

Les pressions dont il est question ici sont des pressions absolues. De plus, on entend par "basse pression" et "moyenne pression" les pressions de fonctionnement de la colonne basse pression et de la colonne moyenne pression de la double colonne, respectivement.

L'invention a pour but de fournir un procédé permettant la production, outre d'oxygène, d'azote sous haute pression en grande quantité, c'est-à-dire représentant au moins 20% du débit d'air traité, avec un investissement réduit.

A cet effet, le procédé suivant l'invention est caractérisé en ce qu'après réchauffement de l'azote issu de la colonne basse pression, on le comprime à la haute pression au moyen d'un unique compresseur d'azote de type centrifuge ayant au plus six roues de compression, et l'on fait fonctionner la colonne basse pression sous une pression de l'ordre de  $P_N/p_N$  où  $P_N$  désigne la haute pression d'azote et  $p_N$  le taux de compression dudit compresseur d'azote.

Suivant d'autres caractéristiques :

- lorsque l'on produit l'oxygène sous une haute pression d'oxygène supérieure à 10 bars absolus environ, de façon avantageuse, on amène par pompe de l'oxygène liquide soutiré en cuve de la colonne basse pression à une pression intermédiaire d'oxygène et, après vaporisation et réchauffement de l'oxygène, on le comprime

5 à la haute pression d'oxygène au moyen d'un unique compresseur d'oxygène de type centrifuge ayant au plus six roues de compression, la pression intermédiaire d'oxygène étant de l'ordre de  $P_o/p_o$ , où  $P_o$  désigne la haute pression d'oxygène et  $p_o$  le taux de compression dudit compresseur d'oxygène;

- dans ce cas, de préférence :

- \* on utilise un compresseur d'azote à trois étages ayant chacun au plus deux roues, et on utilise en outre le deuxième étage pour comprimer à une pression intermédiaire entre la moyenne pression et la haute pression un débit d'azote de cycle soutiré de la colonne moyenne pression et réchauffé, l'azote de cycle comprimé étant refroidi, liquéfié, détendu à la moyenne pression et introduit en tête de la colonne moyenne pression;
- \* l'azote de cycle est comprimé à une pression subcritique pour laquelle la température de condensation de l'azote est légèrement supérieure à la température de vaporisation de l'oxygène sous ladite pression intermédiaire d'oxygène.

Suivant encore d'autres caractéristiques :

- on utilise un compresseur d'azote à trois étages ayant chacun au plus deux roues, et on utilise en outre les deux premiers étages pour comprimer de la basse pression à une pression intermédiaire entre la moyenne pression et la haute pression un débit d'azote, dit de soutien de rectification, soutiré en tête de la colonne basse pression et réchauffé, cet azote comprimé étant refroidi, liquéfié, détendu à la moyenne pression et introduit en tête de la colonne moyenne pression;
- on assure le maintien en froid de l'installation de distillation d'air en détendant dans une turbine de l'azote impur soutiré de la colonne basse pression, cet azote impur, après détente et réchauffement, étant de préférence utilisé pour régénérer des bouteilles d'adsorbant servant à l'épuration de l'air traité.

45 L'invention a également pour objet une installation destinée à la mise en oeuvre d'un tel procédé. Cette installation comprend un compresseur d'air adapté pour amener à l'air à traiter à une moyenne pression supérieure à 6 bars absolus, et un corps de compresseur d'azote unique de type centrifuge ayant au plus six roues de compression et dont l'aspiration de la première roue est reliée à la tête du minaret de la colonne basse pression, cette colonne fonctionnant sous une basse pression de l'ordre de  $P_N/p_N$ , où  $P_N$  désigne la haute pression d'azote et  $p_N$  le taux de compression dudit compresseur d'azote.

50 Le compresseur d'azote et le compresseur d'air peuvent en particulier être reliés à une source motrice

commune.

Un exemple de mise en oeuvre de l'invention va maintenant être décrit en regard du dessin annexé, dont la Figure unique représente schématiquement une installation de production simultanée d'azote et d'oxygène sous haute pression conforme à l'invention.

L'installation représentée aux dessins est destinée à produire d'une part, sous 55 bars, de l'azote gazeux à haute pureté (contenant typiquement moins de 10 ppm d'oxygène), en un débit au moins égal à 20% du débit d'air traité, et d'autre part, sous 65 bars, de l'oxygène ayant une pureté de 95 à 99,5%, avec un rendement d'extraction élevé. Ces deux gaz sous haute pression seront utilisés sur un même site : on produira de l'hydrogène par réaction de l'oxygène sur des hydrocarbures lourds, et l'on fera réagir cet hydrogène et l'azote pour produire de l'ammoniac.

L'installation comprend essentiellement un compresseur d'air 1, un appareil 2 d'épuration de l'air par adsorption, une ligne d'échange thermique 3 du type à contre-courant, une double colonne de distillation 4, une turbine de détente 5, une pompe d'oxygène liquide 6, un compresseur d'azote 7, un compresseur d'oxygène 8 et une source d'énergie 9 constituée par exemple par une turbine à vapeur.

La double colonne 4 comprend une colonne moyenne pression 10 surmontée d'une colonne basse pression 11 dont la partie d'extrémité supérieure forme un minaret 11A de production d'azote pur sous la basse pression. Un condenseur-vaporiseur 12 met en relation d'échange thermique la vapeur de tête (azote pratiquement pur) de la colonne 10 et le liquide de cuve (oxygène de pureté déterminée) de la colonne 11.

Comme il est classique, une conduite équipée d'une vanne de détente 13 permet de remonter du "liquide riche" (air enrichi en oxygène) de la cuve de la colonne 10 à un point intermédiaire de la colonne 11; une conduite équipée d'une vanne de détente 14 permet de remonter du "liquide pauvre inférieur" (azote impur) d'un point intermédiaire de la colonne 10 à la base du minaret 11A; et une conduite équipée d'une vanne de détente 15 permet de remonter du "liquide pauvre supérieur" (azote pratiquement pur) de la tête de la colonne 10 au sommet du minaret.

Le compresseur d'azote 7 est constitué d'un compresseur unique à trois étages. Les deux premiers étages comprennent chacun deux roues de compression et ont des taux de compression moyens par roue de 2 et 1,73 respectivement, tandis que le troisième étage comprend une roue de compression unique ayant un taux de compression de 1,83. Le taux de compression global du compresseur est donc 22. Chaque roue comporte à sa sortie un réfrigérant.

Le compresseur d'oxygène 8 est également constitué d'un compresseur unique. Ce compresseur possède six roues ayant un taux de compression

moyen par roue de 1,37. Le taux de compression global est donc 6,5.

L'arbre 16 du compresseur 7 est couplé à l'arbre 17 du compresseur 1 par un accouplement 18, et l'ensemble est entraîné par la source d'énergie commune 9. Eventuellement, l'arbre 16 peut entraîner les différents étages du compresseur 7 par l'intermédiaire de multiplicateurs de vitesse appropriés à chaque étage. Le compresseur 8 est entraîné par une source d'énergie séparée 19.

La basse pression est choisie de manière que, multipliée par le taux de compression du compresseur 7, elle fournit la haute pression de production désirée pour l'azote. Ainsi, en négligeant les pertes de charge, pour une haute pression d'azote de 55 bars, on choisit comme basse pression  $55/22 = 2,5$  bars. Pour un écart de température de 2°C dans le vaporiseur-condenseur 12, ceci correspond à une moyenne pression de l'ordre de 11 bars.

Ainsi, l'air entrant est comprimé à 11 bars dans le compresseur 1, épuré en 2, refroidi du bout chaud au bout froid de la ligne d'échange 3, et introduit au voisinage de son point de rosée en cuve de la colonne 10. L'azote basse pression pur sortant gazeux du sommet du minaret 11A est réchauffé à la température ambiante du bout froid au bout chaud de la ligne d'échange est introduit à l'aspiration du premier étage du compresseur 7, à l'exception éventuellement d'un débit d'azote produit en basse pression via une conduite 20. L'azote haute pression est produit au refoulement du troisième étage du compresseur et évacué via une conduite 21.

Le compresseur 7 est également utilisé comme compresseur de cycle à azote. En effet, de l'azote moyenne pression est soutiré en tête de la colonne 10, via une conduite 22, réchauffé à la température ambiante dans la ligne d'échange et introduit via une conduite 23 à l'aspiration du deuxième étage du compresseur 7. De l'azote à la haute pression de cycle est sorti au refoulement de ce deuxième étage via une conduite 24, refroidi, liquéfié et sous-refroidi dans la ligne d'échange, détendu à la moyenne pression dans une vanne de détente 25 et introduit en tête de la colonne 10.

Grâce à des moyens de réglage de débit non représentés, le débit d'azote circulant dans la conduite 24 est supérieur d'une quantité prédéterminée au débit d'azote circulant dans la conduite 23. La différence constitue un débit d'azote liquide additionnel, dit de soutien de rectification, introduit en reflux en tête de la colonne 10. Ce débit est prélevé sur le courant d'azote basse pression aspiré par le premier étage du compresseur 7.

De l'azote impur, constituant le gaz résiduaire de l'installation, est soutiré à la base du minaret 11A via une conduite 25, réchauffé à une température intermédiaire dans la ligne d'échange, sorti de cette dernière, détendu à la pression atmosphérique dans une

turbine 5 qui assure le maintien en froid de l'installation, puis réintroduit dans la ligne d'échange, réchauffé jusqu'à la température ambiante, et enfin utilisé pour régénérer les bouteilles d'adsorption de l'appareil 2 et évacué de l'installation via une conduite 26.

L'oxygène sous 65 bars est produit de la manière suivante.

Le débit d'oxygène liquide désiré est soutiré en cuve de la colonne 11, amené par la pompe 6 à une pression intermédiaire d'oxygène, vaporisé et réchauffé à la température ambiante dans la ligne d'échange 3, puis comprimé à la pression de production par le compresseur 8.

Pour limiter au maximum les irréversibilités thermodynamiques dans la ligne d'échange, on fait en sorte que la vaporisation de l'oxygène liquide sous la pression intermédiaire d'oxygène s'effectue par condensation de l'azote sous la haute pression de cycle, avec une valeur subcritique pour cette haute pression, soit par exemple 30 bars. Cette valeur correspond à une vaporisation d'oxygène liquide sous environ 11 bars, qui est donc la pression fournie par la pompe 6.

Les considérations ci-dessus donnent les pressions pour les différents étages du compresseur 7 : 2,5 bars à l'entrée du premier étage, 11 bars à l'entrée du deuxième étage, 30 bars à l'entrée du troisième étage et 55 bars à la sortie de ce troisième étage.

On peut montrer que le procédé décrit ci-dessus apporte un gain en investissement, par rapport au procédé classique où la basse pression est choisie légèrement supérieure à 1 bar, dès que le débit d'azote produit est au moins égal à 20% du débit d'air traité. Lorsque la production d'azote est supérieure à environ 30% du débit d'air, il apporte en outre un gain en énergie. Par ailleurs, le fait d'épurer l'air entrant sous 11 bars est très avantageux du point de vue économique.

## Revendications

**1 - Procédé de production simultanée d'une part d'azote pur sous une haute pression d'azote supérieure à 25 bars absous environ, et d'autre part d'oxygène, par distillation d'air dans une double colonne de distillation (4) comprenant une colonne moyenne pression (10) et une colonne basse pression (11) du type "à minaret" produisant l'azote pur en tête, caractérisé en ce que, après réchauffement de l'azote issu de la colonne basse pression (11), on le comprime à la haute pression au moyen d'un unique compresseur d'azote (7) de type centrifuge ayant au plus six roues de compression, et l'on fait fonctionner la colonne basse pression (11) sous une pression de l'ordre de  $P_N/p_N$  ou  $P_N$  désigne la haute pression d'azote et  $p_N$  le taux de compression dudit compresseur d'azote.**

**2 - Procédé suivant la revendication 1, dans le-**

quel on produit l'oxygène sous une haute pression d'oxygène supérieure à 10 bars absous environ, caractérisé en qu'on amène par pompe (6) de l'oxygène liquide soutiré en cuve de la colonne basse pression (11) à une pression intermédiaire d'oxygène et, après vaporisation et réchauffement de l'oxygène, on le comprime à la haute pression d'oxygène au moyen d'un unique compresseur d'oxygène (8) de type centrifuge ayant au plus six roues de compression, la pression intermédiaire d'oxygène étant de l'ordre de  $P_o/p_o$ , ou  $P_o$  désigne la haute pression d'oxygène et  $p_o$  le taux de compression dudit compresseur d'oxygène.

**3 - Procédé suivant la revendication 2, caractérisé en ce qu'on utilise un compresseur d'azote (7) à trois étages ayant chacun au plus deux roues, et on utilise en outre le deuxième étage pour comprimer à une pression intermédiaire entre la moyenne pression et la haute pression un débit d'azote de cycle soutiré de la colonne moyenne pression (10) et réchauffé, l'azote de cycle comprimé étant refroidi, liquéfié, détendu à la moyenne pression et introduit en tête de la colonne moyenne pression (10).**

**4 - Procédé suivant la revendication 3, caractérisé en ce que l'azote de cycle est comprimé à une pression subcritique pour laquelle la température de condensation de l'azote est légèrement supérieure à la température de vaporisation de l'oxygène sous la dite pression intermédiaire d'oxygène.**

**5 - Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce qu'on utilise un compresseur d'azote (7) à trois étages ayant chacun au plus deux roues, et on utilise en outre les deux premiers étages pour comprimer de la basse pression à une pression intermédiaire entre la moyenne pression et la haute pression un débit d'azote, dit de soutien de rectification, soutiré en tête de la colonne basse pression (11) et réchauffé, cet azote comprimé étant refroidi, liquéfié, détendu à la moyenne pression et introduit en tête de la colonne moyenne pression (10).**

**6 - Procédé suivant l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé en ce qu'on assure le maintien en froid de l'installation de distillation d'air en détendant dans une turbine (5) de l'azote impur soutiré de la colonne basse pression (11), cet azote impur, après détente et réchauffement, étant de préférence utilisé pour régénérer des bouteilles d'adsorbant (2) servant à l'épuration de l'air traité.**

**7 - Installation de production simultanée d'une part d'azote pur sous une haute pression d'azote supérieure à 25 bars absous environ, et d'autre part d'oxygène, par distillation d'air dans une double colonne de distillation (4) comprenant une colonne moyenne pression (10) et une colonne basse pression (11) du type "à minaret" produisant l'azote pur en tête, caractérisée en ce qu'elle comprend un compresseur d'air (1) adapté pour amener à l'air à**

traiter à une moyenne pression supérieure à 6 bars absolus, et un compresseur d'azote unique (7) de type centrifuge ayant au plus six roues de compression et dont l'aspiration de la première roue est reliée à la tête du minaret (11A) de la colonne basse pression (11), cette colonne fonctionnant sous une basse pression de l'ordre de  $P_N/p_N$ , où  $P_N$  désigne la haute pression d'azote et  $p_N$  le taux de compression dudit compresseur d'azote.

5

**8 - Installation suivant la revendication 7, pour la production de l'oxygène sous une haute pression d'oxygène supérieure à 10 bars absolus environ, caractérisée en ce qu'elle comprend une pompe d'oxygène liquide (6) dont l'aspiration est reliée à la cuve de la colonne basse pression (11) et dont le refoulement est relié à l'aspiration d'un unique compresseur d'oxygène (8) de type centrifuge ayant au plus six roues de compression.**

10

**9 - Installation suivant la revendication 8, caractérisée en ce que le compresseur d'azote (7) comporte trois étages ayant chacun au plus deux roues, l'aspiration et le refoulement du second étage étant reliés en outre à la tête de la colonne moyenne pression (10) pour définir un cycle d'azote.**

15

**10 - Installation suivant la revendication 9, caractérisée en ce que compresseur d'azote (7) et le compresseur d'air (1) sont reliés à une source motrice commune (9).**

20

**11 - Installation suivant l'une quelconque des revendications 7 à 10, caractérisée en ce qu'elle comprend une turbine (5) de détente d'azote impur dont l'admission est reliée à la base du minaret (11A), l'échappement de cette turbine étant de préférence relié à des bouteilles d'adsorbant (2) servant à l'épu- ration de l'air traité.**

25

30

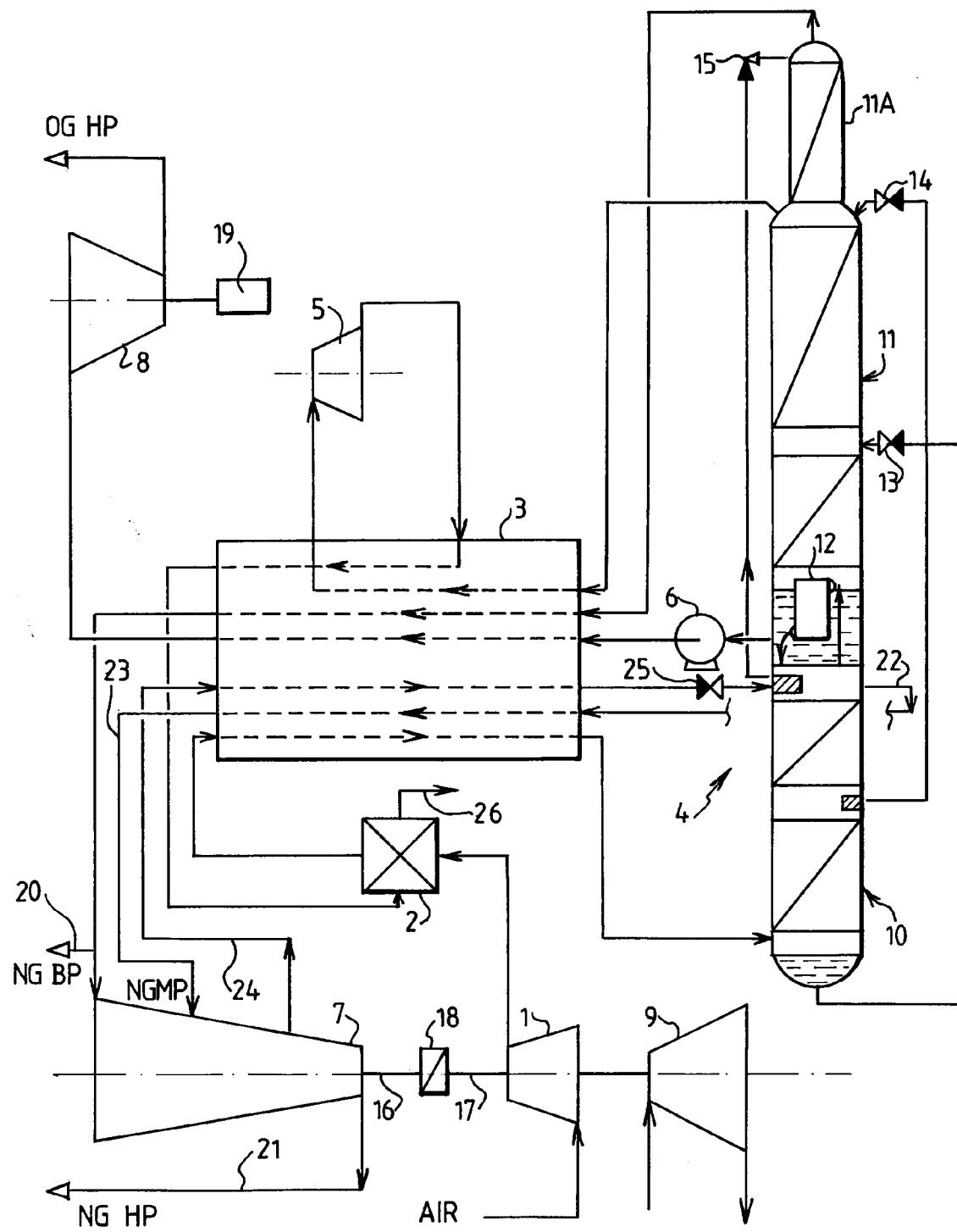
35

40

45

50

55





## Office européen des brevets

## RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

**Numero de la demande**

FP 93 40 0522

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS					
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)		
A	US-A-2 982 108 (L'AIR LIQUIDE) * colonne 1, ligne 15 - ligne 16 * * colonne 2, ligne 18 - colonne 3, ligne 66 * * figure * ----	1,7	F25J3/04		
A	EP-A-0 042 676 (AIR PRODUCTS AND CHEMICALS) * résumé * * page 6, ligne 9 - page 9, ligne 12 * * figures 1,2 *	1,2,7,8 -----			
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5 )		
			F25J		
Le présent rapport a été établi pour toutes les revendications					
Lieu de la recherche <b>LA HAYE</b>	Date d'achèvement de la recherche <b>22 JUIN 1993</b>	Examinateur <b>SIEM T.D.</b>			
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES					
X : particulièrement pertinent à lui seul	T : théorie ou principe à la base de l'invention				
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie	E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date				
A : arrière-plan technologique	D : cité dans la demande				
O : divulgation non-écrite	L : cité pour d'autres raisons				
P : document intercalaire	& : membre de la même famille, document correspondant				