(19) Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

(11) EP 1 001 236 B1

(12) # EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung:
29.09.2004 Patentblatt 2004/40

(51) Int Cl.[7]: **F25J 3/04**, F25J 3/08

(21) Anmeldenummer: **99122146.6**

(22) Anmeldetag: **05.11.1999**

(54) **Verfahren zur Gewinnung von ultrareinem Stickstoff**

Process for producing ultra pure nitrogen

Procédé de production d'azote à ultra haute pureté

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE

(30) Priorität: **11.11.1998 DE 19852019**
27.05.1999 DE 19924375

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
17.05.2000 Patentblatt 2000/20

(73) Patentinhaber: **Linde Aktiengesellschaft**
65189 Wiesbaden (DE)

(72) Erfinder:
- **Rottmann, Dietrich, Dipl.-Ing.**
  81737 München (DE)
- **Kunz, Christian, Dipl.-Ing.**
  81479 München (DE)

(56) Entgegenhaltungen:
EP-A- 0 569 310
EP-A- 0 834 711
DE-A- 19 806 576
US-A- 4 464 188
US-A- 5 167 125

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

EP 1 001 236 B1

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Gewinnung von ultrareinem Stickstoff durch Tieftemperaturzerlegung einer sauerstofffreien Druckstickstofffraktion.

[0002] Aus DE 19806576 A1 ist ein derartiges Verfahren bekannt. Einer Drucksäule wird eine sauerstofffreie Druckstickstofffraktion entnommen, wobei die Drucksäule mindestens 160 theoretische Böden aufweist, um den Druckstickstoff aus dieser Drucksäule darüber hinaus kohlenmonoxidfrei zu entnehmen. Der Energieaufwand hierfür ist allerdings trotz der 160 theoretischen Böden immer noch sehr hoch. Nachteilig ist außerdem, daß ein Großteil des ultrareinen Stickstoffs gasförmig gewonnen wird.

[0003] Aufgabe der Erfindung ist es deshalb, diesen Nachteil zu vermeiden und den Energiebedarf zu senken.

[0004] Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, ein Verfahren aufzuzeigen, das wahlweise mit einer flüssigen Druckstickstofffraktion direkt aus der Drucksäule oder aus einem Tank mit flüssigem Drucksäulenstickstoff betrieben wird.

[0005] Diese Aufgaben werden erfindungsgemäß gelöst durch zwei Verfahrensvarianten mit den in Anspruch 1 beschriebenen Merkmalen und durch zwei Vorrichtungsvarianten gemäß Patentanspruch 8. Ausführungen der Erfindung sind Gegenstand der abhängigen Ansprüche.

[0006] Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren wird der ultrareine Stickstoff flüssig gewonnen und kann in dieser Form leichter transportiert und deshalb einfacher an Kunden verteilt werden. Das Verfahren ist darüber hinaus universell einsetzbar. Es kann nämlich mit Anschluß an eine Luftzerlegungsanlage (mit oder ohne Flüssigstickstofftank) oder nur an einem Flüssigstickstofftank (mit räumlicher Trennung von der Luftzerlegungsanlage) verwendet werden. An einer Luftzerlegungsanlage mit Flüssigstickstofftank kann außerdem der ultrareine Flüssigstickstoff gewonnen werden, ohne daß die Luftzerlegungsanlage in Betrieb ist.

[0007] Bei der Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens können das kohlenmonoxidfreie Kopfgas stromaufwärts seiner Verdichtung (9) und ein Kopfgas der He-Ne-H_2-Säule zu einem kalten Gasstrom der kohlenmonoxidfrei ist, zusammengefaßt werden.

[0008] Alternativ kann der bei der Verdampfung des flüssigen Kälteträgers entstehende Gasstrom und ein Kopfgas der He-Ne-H_2-Säule können zu einem kalten Gasstrom zusammengefaßt werden.

[0009] Mit Vorteil wird in beiden Fällen der kalte Gasstrom in einem Wärmeaustauscher angewärmt, verdichtet und im Gegenstrom im gleichen Wärmetauscher wieder abgekühlt und anschließend zu einem Teil in der Niederdrucksäule und zu einem anderen Teil in der He-Ne-H_2-Säule zur Beheizung des Sumpfes verwendet und dabei bis auf gasförmig verbleibende Restströme verflüssigt.

[0010] Die bei der Beheizung der He-Ne-H_2-Säule und der Niederdrucksäule verflüssigten Ströme können der He-Ne-H_2-Säule als Rücklauf zugeführt werden.

[0011] Bei der Verwendung eines KondensatorNerdampfers gemäß der zweiten Variante der Erfindung kann mit Hilfe der bei der Beheizung der He-Ne-H_2-Säule und der Niederdrucksäule verflüssigten Ströme in dem Verdampfer/Kondensator der Niederdrucksäule das kohlenmonoxidfreie Kopfgas der Niederdrucksäule bis auf einen Reststrom verflüssigt und mindestens teilweise als Rücklauf der He-Ne-H_2-Säule zugeführt werden. Dem Nachteil einer zusätzlichen Investition für den Kondensator/Verdampfer steht dann der nicht zu unterschätzende Vorteil gegenüber, daß bei Luftleckagen bei der Verdichtung des kohlenmonoxidfreien Gasstromes keine Verunreinigung des ultrareinen Flüssigstickstoffs erfolgen kann.

[0012] Aus der He-Ne-H_2-Säule kann ultrareiner Stickstoff flüssig abgezogen und teils als der Rücklauf der Niederdrucksäule und teils als flüssiges ultrareines Stickstoffprodukt gewonnen werden.

[0013] Das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt kann einem Produkttank zugeführt werden.

[0014] Das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt kann mit einer Pumpe auf Druck gebracht, unter Nutzung des Kälteinhaltes bei der Gewinnung der sauerstofffreien Druckstickstofffraktion verdampft, angewärmt und als gasförmiges Druckprodukt einer Verwendung zugeführt werden.

[0015] In diesem Fall kann mit dem Verfahren zur Herstellung von ultrareinem Flüssigstickstoffprodukt auch gasförmiges ultrareines Stickstoffprodukt hergestellt und dabei die Kälte des ursprünglich vorliegenden Flüssigproduktes sinnvoll genutzt werden.

[0016] Die Erfindung wird anhand von fünf Ausgestaltungen mit fünf Figuren näher erläutert.

[0017] Figur 1 zeigt ein Verfahren gemäß der ersten Variante der Erfindung mit Bereitstellung von sauerstofffreiem Stickstoff für das Verfahren aus einem Flüssigstickstofftank.

[0018] Figur 2 zeigt ein Verfahren gemäß der ersten Variante der Erfindung mit Bereitstellung von sauerstofffreiem Stickstoff für das Verfahren aus der Drucksäule eines Rektifiziersystems.

[0019] Figur 3 zeigt ein Verfahren wie in Figur 1, aber mit einem zusätzlichem Verdampfer/Kondensator, also gemäß der zweiten Variante der Erfindung.

[0020] Figur 4 zeigt ein Verfahren wie in Figur 2 mit zusätzlichem Verdampfer/Kondensator, also ebenfalls gemäß der zweiten Variante der Erfindung.

[0021] Figur 5 zeigt ein Verfahren wie in Figur 2 für den Fall der Nachrüstung eines Rektifiziersystems mit dem Verfahren gemäß der ersten Variante der Erfindung.

[0022] Äquivalente Verfahrensströme und -schritte sind in den Figuren 1 bis 5 mit identischen Bezugsziffern versehen.

[0023] Figur 1 zeigt schematisch eine Ausführung des erfindungsgemäßen Verfahrens zur Gewinnung von ultrareinem Stickstoff. Eine bis auf einen Restgehalt im Bereich weniger mol-ppm sauerstofffreie flüssige Druckstickstofffraktion 1 wird in eine beheizte Niederdrucksäule 2 entspannt, die bei einem Druck zwischen 4,5 und 5,5 bar betrieben wird. In der Niederdrucksäule 2 aufsteigender Dampf wird durch als Rücklauf am Kopf aufgegebenen ultrareinen Stickstoff 3 aus einer He-Ne-H_2-Säule 4 von Kohlenmonoxid und damit auch von schwerer als Kohlenmonoxid siedenden Verunreinigungen wie Argon und dem Restgehalt an Sauerstoff je nach Reinheitsanforderung bis auf wenige mol-ppb befreit. Das kohlenmonoxidfreie Kopfgas 5 und ein Kopfgas 6 der He-Ne-H_2-Säule werden zu einem kohlenmonoxidfreien kalten Gasstrom 7 zusammengefaßt, in einem Wärmeaustauscher 8 angewärmt und nach einer Verdichtung 9 im gleichen Wärmetauscher 8 wieder abgekühlt. Der abgekühlte Gasstrom 10 wird zu einem Teil 11 in der Niederdrucksäule 2 und zu einem anderen Teil 12 in der He-Ne-H_2-Säule 4 zur Beheizung 13, 14 des Sumpfes verwendet und dabei bis auf gasförmig verbleibende Reste ströme 15, 16 verflüssigt. Die verflüssigten Ströme 17, 18 werden der He-Ne-H_2-Säule 4 als Rücklauf zugeführt. Aus der He-Ne-H_2-Säule 4 wird kohlenmonoxidfreier ultrareiner Stickstoff 19 flüssig abgezogen, der nun auch das leichter siedende Neon und erst recht die noch leichter siedenden Bestandteile Wasserstoff und Helium je nach Anforderung in der Größenordnung von wenigen mol-ppb enthält. Der flüssige ultrareine Stickstoff 19 wird zu einem Teil 3 als der Rücklauf der Niederdrucksäule 2 verwendet und zu einem anderen Teil als flüssiges ultrareines Flüssigstickstoffprodukt 20 gewonnen und einem Produkttank 21 zugeführt.

[0024] In der Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens wie in Figur 1 wird die als Einsatz verwendete flüssige Druckstickstofffraktion 1 einem Flüssigkeitstank 22 über eine Druckerhöhungspumpe 23 entnommen und über einen Wärmeaustauscher 24 in die Niederdrucksäule 2 geführt. Im Wärmeaustauscher 24 wird das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt 20 unterkühlt und anschließend ohne gasförmige Entspannungsverluste in den Produkttank 21 entspannt. Wegen der Unterkühlung des Flüssigstickstoffproduktes 20 kann der Produkttank 21 als drucklos betriebener Flüssigkeitstank ausgeführt werden.

[0025] Figur 2 zeigt schematisch die Gewinnung des ultrareinen Flüssigstickstoffproduktes 20 wie in Figur 1. Die als Einsatz verwendete flüssige Stickstofffraktion 1 wird anders als in der Ausgestaltung nach Figur 1 einer Drucksäule 25 eines Rektifiziersystems entnommen und über einen Wärmeaustauscher 24 in die Niederdrucksäule 2 geführt. Das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt 20 wird mit einer Pumpe 26 auf Druck gebracht im Gegenstrom zur flüssigen Stickstofffraktion 1 über den Wärmeaustauscher 24 geleitet und unter Nutzung des Kälteinhalts in einem Kondensator 27 und in einem Wärmeaustauscher 28 bei der Gewinnung der sauerstofffreien Druckstickstofffraktion verwendet, dabei verdampft, angewärmt und als gasförmiges ultrareines Druckprodukt 29 einer weiteren Verwendung zugeführt.

[0026] Figur 3 zeigt schematisch eine Ausführung des erfindungsgemäßen Verfahrens unter Verwendung eines Kondensator/Verdampfers 30. Anders als in der Ausgestaltung nach Figur 1 wird in der Ausgestaltung nach Figur 3 das kohlenmonoxidfreie Kopfgas 5 der Niederdrucksäule 2 (gegen einen durch Zusammenführung der verflüssigten Ströme 17, 18 gebildeten flüssigen Kälteträger 31, der hierbei verdampft,) in dem Kondensator/Verdampfer 30 bis auf einen gasförmig verbleibenden Reststrom 32 verflüssigt und in der He-Ne-H_2-Säule 4 als Rücklauf 33 verwendet. Ein bei der Verdampfung des flüssigen Kälteträgers entstehender Gasstrom 5' und das Kopfgas 6 der He-Ne-H_2-Säule 4 werden zu dem kalten kohlenmonoxidfreien Gasstrom 7 zusammengefaßt.

[0027] Mit dem Kondensator/Verdampfer 30 ist zwar eine zusätzliche Investition verbunden, aber die Säulen 2, 4 werden so entkoppelt, daß selbst im Falle einer bei der Verdichtung auftretenden Leckage von Luft in das kohlenmonoxidfreie Gas 7, 10 hinein die He-Ne-H_2-Säule 4 und damit das ultrareine Stickstoffprodukt 20 nicht kontaminiert werden.

[0028] Figur 4 zeigt schematisch eine Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens wie in Figur 2, aber ausgeführt mit dem Kondensator/Verdampfer 30 wie in Figur 3.

[0029] Figur 5 zeigt schematisch, daß das erfindungsgemäße Verfahren an einem existierenden Rektifiziersystem verwendet werden kann. Ausgehend von der Ausgestaltung des Verfahrens wie in Figur 2 wird am Rektifiziersystem der Kondensator 27 ergänzt und der Wärmeaustauscher 8 erhält zwei zusätzliche Passagen für die Nutzung der Kälte des anzuwärmenden ultrareinen Stickstoffs 20' bei der Abkühlung und Verflüssigung eines Teilstromes 34 der Luft 35 für das Rektifiziersystem. Der hierbei im Wärmeaustauscher 8 angewärmte ultrareine Stickstoff wird als gasförmiges ultrareines Druckprodukt 29 einer weiteren Verwendung zugeführt.

[0030] Ein gemeinsames Merkmal der Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens gemäß Figur 1 bis 5 besteht darin, daß alle anfallenden Restgasströme (15, 16, 36 in Figur 1, 2, 5 und 15, 16, 32, 36 in Figur 3, 4) zu einem kalten Restgasstrom 37 zusammengefaßt im Wärmeaustauscher 8 angewärmt und als unreines Gas 38 an die Atmosphäre geleitet werden.

Beispiel:

[0031] m^3 bedeutet in diesem Beispiel: m^3 im Normzustand bei 0°C und 1,0133 bar; d.h. 1m^3 entspricht 1,25 kg.

[0032] Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren in der Ausgestaltung von Figur 1 werden aus 1750 m^3/h flüssigem Stickstoff mit 1 mol-ppm Kohlenmonoxid 1500

m^3/h ultrareiner flüssiger Stickstoff mit 20 mol-ppb Kohlenmonoxid erzeugt. Hierbei entstehen 100 m^3/h Verluste bei der Verdichtung und 150 m^3/h Restgas. 12.500 m^3/h Stickstoff werden von 6,5 auf 7 bar verdichtet; die Druckerhöhungspumpe arbeitet zwischen 1 bar am Eintritt und 7 bar am Austritt.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Gewinnung von ultrareinem Stickstoff durch Tieftemperaturzerlegung einer sauerstofffreien Druckstickstofffraktion bei dem die sauerstofffreie Druckstickstofffraktion (1) entweder flüssig aus einem oberen Bereich einer Drucksäule zur Tieftemperatur-luftzerlegung oder aus einem Flüssigkeitstank (22) mit gespeichertem sauerstofffreiem Stickstoff entnommen wird und in eine in ihrem Sumpf beheizte (13) Niederdrucksäule (2) entspannt wird, wobei in der Niederdrucksäule aufsteigender Dampf gebildet und mit Hilfe eines am Kopf der Niederdrucksäule aufgegebenen Rücklaufes (3) mit ultrareinem Stickstoff von Kohlenmonoxid befreit und am Kopf der Niederdrucksäule als kohlenmonoxidfreies Kopfgas (5, 7) abgezogen wird und wobei

   - entweder kohlenmonoxidfreies Kopfgas (5, 7) der Niederdrucksäule nach einer Druckerhöhung (9) teilweise verflüssigt (13, 14) wird und der verflüssigte Teil (17, 18) in eine in ihrem Sumpf beheizte (14) He-Ne-H_2-Säule (4) entspannt wird, aus der der ultrareine Stickstoff (19, 20) flüssig entnommen wird,
   - oder kohlenmonoxidfreies Kopfgas (5) der Niederdrucksäule gegen einen flüssigen Kälteträger (31), der hierbei verdampft wird, in einem KondensatorNerdampfer (30) teilweise verflüssigt wird und ein bei der Verdampfung (30) des flüssigen Kälteträgers entstehender Gasstrom (5', 7) nach einer Druckerhöhung (9) teilweise verflüssigt (13, 14) wird und der verflüssigte Teil (17, 18, 31) als Kälteträger (31) dem Kondensator-Verdampfer (30) zugeführt wird, wobei in dem Kondensator/Verdampfer (30) der Niederdrucksäule das kohlenmonoxidfreie Kopfgas (5) der Niederdrucksäule bis auf einen gasförmig verbleibenden Reststrom (32) verflüssigt und mindestens teilweise als Rücklauf (33) einer He-Ne-H_2-Säule (4) zugeführt wird, aus der der ultrareine Stickstoff (19, 20) flüssig entnommen wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, daß** das kohlenmonoxidfreie Kopfgas (5) stromaufwärts seiner Verdichtung (9) und ein Kopfgas (6) der He-Ne-H_2-Säule (4) zu einem kalten Gasstrom (7), der kohlenmonoxidfrei ist, zusammengefaßt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, daß** der bei der Verdampfung (30) des flüssigen Kälteträgers entstehende Gasstrom (5') und ein Kopfgas (6) der He-Ne-H_2-Säule (4) zu einem kalten Gasstrom (7) zusammengefaßt werden.

4. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, **dadurch gekennzeichnet, daß** der kalte Gasstrom (7, 10) in einem Wärmeaustauscher (8) angewärmt, verdichtet (9) und im Gegenstrom im gleichen Wärmetauscher (8) wieder abgekühlt wird und anschließend zu einem Teil (12) in der Niederdrucksäule (2) und zu einem anderen Teil (11) in der He-Ne-H_2-Säule (4) zur Beheizung des Sumpfes (13, 14) verwendet und dabei bis auf gasförmig verbleibende Restströme (15, 16) verflüssigt wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, daß** ein Teil des aus der He-Ne-H_2-Säule flüssig abgezogenen ultrareinen Stickstoffs (19) als der Rücklauf (3) der Niederdrucksäule (2) verwendet wird.

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, daß** das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt (19, 20) einem Produkttank (21) zugeführt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet, daß** das ultrareine Flüssigstickstoffprodukt mit einer Pumpe auf Druck gebracht, unter Nutzung des Kälteinhaltes bei der Gewinnung der sauerstofffreien Druckstickstofffraktion verdampft, angewärmt und als gasförmiges Druckprodukt einer Verwendung zugeführt wird.

8. Vorrichtung zur Gewinnung von ultrareinem Stickstoff durch Tieftemperaturzerlegung einer sauerstofffreien Druckstickstofffraktion mit Mitteln zum Zuführen einer sauerstofffreien Druckstickstofffraktion aus einem oberen Bereich einer Drucksäule zur Tieftemperatur-Luftzerlegung oder aus einem Flüssigkeitstank mit gespeichertem sauerstofffreiem Stickstoff in eine in ihrem Sumpf beheizte Niederdrucksäule, mit Mitteln zum Aufgeben von ultrareinem Stickstoff als Rücklauf am Kopf der Niederdrucksäule, mit Mitteln zum Abziehen von kohlenmonoxidfreiem Kopfgas vom Kopf der Niederdrucksäule, wobei

   - entweder die Mittel zum Abziehen von kohlenmonoxidfreiem Kopfgas mit Mitteln zur Druckerhöhung (9) und zur anschließenden teilweisen Verflüssigung (13, 14)des kohlenmonoxidfreien Kopfgases verbunden sind, und die Vorrichtung Mittel zur Einleitung des verflüssigten

Teils des kohlenmonoxidfreien Kopfgases in eine in ihrem Sumpf beheizte He-Ne-H_2-Säule und Mittel zur Entnahme des ultrareinen Stickstoffs in flüssigem Zustand aus der He-Ne-H_2-Säule aufweist,

- oder die Mittel zum Abziehen von kohlenmonoxidfreiem Kopfgas mit einem Kondensator/Verdampfer (30) zur teilweisen Verflüssigung des kohlenmonoxidfreien Kopfgases zur Erzeugung einer Flüssigkeit gegen einen zu einem Gasstrom (5', 7) verdampfenden flüssigen Kälteträger (31) verbunden sind, und die Vorrichtung Mittel zur Druckerhöhung (9) und zur anschließenden teilweisen Verflüssigung (13, 14) des Gasstroms (5', 7), Mittel zur Einleitung des verflüssigten Teils (17, 18, 31) des Gasstroms als Kälteträger (31) in den Kondensator/Verdampfer (30), Mittel zur Einführung von in dem Kondensator/Verdampfer (30) der Niederdrucksäule erzeugter Flüssigkeit als Rücklauf (33) in eine He-Ne-H_2-Säule (4) und Mittel zur Entnahmen des ultrareinen Stickstoffs (19, 20) in flüssigem Zustand aus der He-Ne-H_2-Säule aufweist.

Claims

1. Process for producing ultrapure nitrogen by low-temperature fractionation of an oxygen-free pressurized nitrogen fraction, in which the oxygen-free pressurized nitrogen fraction (1) is removed either in liquid form from an upper region of a pressure column for low-temperature fractionation of air or from a liquid tank (22) containing stored oxygen-free nitrogen and is expanded into a bottom-heated (13) low-pressure column (2), with the formation of vapour which rises in the low-pressure column and from which carbon monoxide is removed with the aid of a reflux (3) comprising ultrapure nitrogen added to the top of the low-pressure column, and this vapour then being extracted at the top of the low-pressure column as carbon monoxide-free top gas (5, 7), in which process

   - either carbon monoxide-free top gas (5, 7) from the low-pressure column is partially liquefied (13, 14) after an increase in pressure (9), and the liquefied part (17, 18) is expanded into a bottom-heated (14) He-Ne-H_2 column (4), from which the ultrapure nitrogen (19, 20) is removed in liquid form,
   - or carbon monoxide-free top gas (5) from the low-pressure column is partially liquefied in a condenser/evaporator (30) against a liquid refrigeration-transfer medium (31), which is evaporated in the process, and a gas stream (5', 7) formed during the evaporation (30) of the liquid refrigeration-transfer medium, after a pressure increase (9), is partially liquefied (13, 14), and the liquefied part (17, 18, 31) is fed to the condenser/evaporator (30) as refrigeration-transfer medium (31), with the carbon monoxide-free top gas (5) from the low-pressure column being liquefied in the condenser/evaporator (30) of the low-pressure column apart from a residual stream (32) which remains in gas form and being fed at least in part as reflux (33) to an He-Ne-H_2 column (4), from which the ultrapure nitrogen (19, 20) is removed in liquid form.

2. Process according to Claim 1, **characterized in that** the carbon monoxide-free top gas (5) upstream of its compression (9) and a top gas (6) from the He-Ne-H_2 column (4) are combined to form a cold gas stream (7) which is free of carbon monoxide.

3. Process according to Claim 1, **characterized in that** the gas stream (5') which is formed during the evaporation (30) of the liquid refrigeration-transfer medium and a top gas (6) from the He-Ne-H_2 column (4) are combined to form a cold gas stream (7).

4. Process according to Claim 2 or 3, **characterized in that** the cold gas stream (7, 10) is heated in a heat exchanger (8), compressed (9) and cooled again in countercurrent in the same heat exchanger (8), and then part (12) of this gas stream is used in the low-pressure column (2), and another part (11) in the He-Ne-H_2 column (4), to heat the bottom (13, 14), these parts in the process being liquefied apart from residual streams (15, 16) which remain in gas form.

5. Process according to any of Claims 1 to 4, **characterized in that** a part of the ultrapure nitrogen (19) extracted from the He-Ne-H_2 column in liquid form is used as reflux (3) for the low-pressure column (2).

6. Process according to any of Claims 1 to 5, **characterized in that** the ultrapure liquid nitrogen product (19, 20) is fed to a product tank (21).

7. Process according to Claim 6, **characterized in that** the ultrapure liquid nitrogen product is pressurized using a pump, evaporated, utilizing the refrigeration content, when the oxygen-free pressurized nitrogen fraction is being produced, heated and fed for use as gaseous pressurized product.

8. Apparatus for producing ultrapure nitrogen by low-temperature fractionation of an oxygen-free pressurized nitrogen fraction, having means for feeding an oxygen-free pressurized nitrogen fraction from an upper region of a pressure column for the low-temperature fractionation of air or from a liquid tank con-

taining stored oxygen-free nitrogen into a bottom-heated low-pressure column, having means for adding ultrapure nitrogen as reflux at the top of the low-pressure column, having means for extracting carbon monoxide-free top gas from the top of the low-pressure column, in which apparatus

- either the means for extracting carbon monoxide-free top gas are connected to means for increasing the pressure (9) of and then partially liquefying (13, 14) the carbon monoxide-free top gas, and the apparatus has means for introducing the liquefied part of the carbon monoxide-free top gas into a bottom-heated He-Ne-H_2 column and means for removing the ultrapure nitrogen from the He-Ne-H_2 column in the liquid state,
- or the means for extracting carbon monoxide-free top gas are connected to a condenser/evaporator (30) for partially liquefying the carbon monoxide-free top gas in order to generate a liquid against a liquid refrigeration-transfer medium (31) which evaporates to form a gas stream (5', 7), and the apparatus has means for increasing the pressure (9) of and then partially liquefying (13, 14) the gas stream (5', 7), means for introducing the liquefied part (17, 18, 31) of the gas stream as refrigeration-transfer medium (31) into the condenser/evaporator (30), means for introducing liquid generated in the condenser/evaporator (30) of the low-pressure column into an He-Ne-H_2 column (4) as reflux (33), and means for removing the ultrapure nitrogen (19, 20) from the He-Ne-H_2 column in the liquid state.

Revendications

1. Procédé en vue de l'obtention d'azote ultrapur par fractionnement à basse température d'une fraction d'azote sous pression exempte d'oxygène, lors duquel la fraction d'azote sous pression exempte d'oxygène (1) est prélevée soit à l'état fluide hors d'un domaine supérieur d'une colonne sous pression en vue du fractionnement d'air à basse température, soit hors d'un réservoir de fluide (22) avec de l'azote emmagasiné exempt d'oxygène et est détendue dans une colonne basse pression (2) chauffée (13) dans son puits, une vapeur montante se formant dans la colonne basse pression et étant débarrassée du monoxyde de carbone à l'aide d'un reflux (3) chargé au niveau de la tête de la colonne basse pression avec de l'azote ultrapur et étant évacuée au niveau de la tête de la colonne basse pression en tant que gaz de tête exempt de monoxyde de carbone (5, 7) et
   - soit du gaz de tête exempt de monoxyde de carbone (5, 7) de la colonne basse pression étant partiellement liquéfié (13, 14) après une augmentation de pression (9) et la partie liquéfiée (17, 18) étant détendue dans une colonne He-Ne-H_2 (4), chauffée (14) dans son puits, de laquelle l'azote ultrapur (19, 20) est prélevé à l'état fluide,
   - soit du gaz de tête exempt de monoxyde de carbone (5) de la colonne basse pression étant partiellement liquéfié dans un condenseur-évaporateur (30) contre un réfrigérant fluide (31) qui est en l'occurrence vaporisé, et un courant gazeux (5', 7) se formant lors de l'évaporation (30) du réfrigérant fluide, étant partiellement liquéfié (13, 14) après une augmentation de pression (9) et la partie liquéfiée (17, 18, 31) étant acheminée en tant que réfrigérant (31) au condenseur-évaporateur (30), le gaz de tête exempt de monoxyde de carbone (5) de la colonne basse pression étant liquéfié jusqu'à un courant résiduel restant sous forme gazeuse (32) dans le condenseur/évaporateur (30) de la colonne basse pression et étant acheminé au moins partiellement en tant que reflux (33) à une colonne He-Ne-H_2 (4), hors de laquelle l'azote ultrapur (19, 20) est prélevé à l'état fluide.

2. Procédé selon la revendication 1, **caractérisé en ce que** le gaz de tête exempt de monoxyde de carbone (5), en amont de sa compression (9), et un gaz de tête (6) de la colonne He-Ne-H_2 (4) sont combinés pour former un courant gazeux froid (7) qui est exempt de monoxyde de carbone.

3. Procédé selon la revendication 1, **caractérisé en ce que** le courant gazeux (5') se formant lors de l'évaporation (30) du réfrigérant fluide et un gaz de tête (6) de la colonne He-Ne-H_2 (4) sont combinés pour former un courant gazeux froid (7).

4. Procédé selon la revendication 2 ou 3, **caractérisé en ce que** le courant gazeux froid (7, 10) est échauffé dans un échangeur thermique (8), est comprimé (9) et est à nouveau refroidi en contre-courant dans le même échangeur thermique (8) et est ensuite utilisé, pour une partie (12), dans la colonne basse pression (2) et, pour une autre partie (11), dans la colonne He-Ne-H_2 (4), en vue de l'échauffement du puits (13, 14) et est liquéfié, en l'occurrence, à l'exception de courants résiduels subsistant à l'état gazeux (15, 16).

5. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, **caractérisé en ce qu'**une partie de l'azote ultrapur (19) prélevé à l'état fluide hors de la colonne He-Ne-H_2 est utilisée en tant que reflux (3) de la

colonne basse pression (2).

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, **caractérisé en ce que** le produit d'azote liquéfié ultrapur (19, 20) est acheminé à une citerne de produit (21).

7. Procédé selon la revendication 6, **caractérisé en ce que** le produit d'azote liquéfié ultrapur est mis sous pression à l'aide d'une pompe, est vaporisé par utilisation du contenant réfrigérant obtenu lors de l'obtention de la fraction d'azote sous pression exempte d'oxygène, est échauffé et est acheminé en tant que produit gazeux sous pression à une application.

8. Dispositif en vue de l'obtention d'azote ultrapur par fractionnement à basse température d'une fraction d'azote sous pression exempte d'oxygène, ayant des moyens en vue de l'acheminement d'une fraction d'azote sous pression exempte d'oxygène, provenant d'un domaine supérieur d'une colonne sous pression en vue du fractionnement d'air à basse température ou provenant d'un réservoir de fluide avec de l'azote emmagasiné exempt d'oxygène dans une colonne basse pression, chauffée dans son puits, ayant des moyens en vue de la charge d'azote ultrapur en tant que reflux au niveau de la tête de la colonne basse pression, ayant des moyens en vue de l'évacuation de gaz de tête exempt de monoxyde de carbone hors de la tête de la colonne basse pression,

   - soit les moyens en vue de l'évacuation dé gaz de tête exempt de monoxyde de carbone étant reliés aux moyens en vue de l'augmentation de pression (9) et en vue de la liquéfaction partielle subséquente (13, 14) du gaz de tête exempt de monoxyde de carbone, et le dispositif présentant des moyens en vue de l'introduction de la partie liquéfiée du gaz de tête exempt de monoxyde de carbone dans une colonne He-Ne-H_2, chauffée dans son puits, et des moyens en vue du prélèvement de l'azote ultrapur à l'état fluide hors de la colonne He-Ne-H_2,
   - soit les moyens en vue de l'évacuation de gaz de tête exempt de monoxyde de carbone étant reliés à un condenseur/évaporateur (30) en vue de la liquéfaction partielle du gaz de tête exempt de monoxyde de carbone dans l'optique de la production d'un fluide contre un réfrigérant fluide (31) s'évaporant pour former un courant gazeux (5', 7), et le dispositif présentant des moyens en vue de l'augmentation de pression (9) et en vue de la liquéfaction partielle subséquente (13, 14) du courant gazeux (5', 7), des moyens en vue de l'introduction de la partie liquéfiée (17, 18, 31) du courant gazeux en tant que réfrigérant (31) dans le condenseur/évaporateur (30), des moyens en vue de l'introduction de fluide produit dans le condenseur/évaporateur (30) de la colonne basse pression en tant que reflux (33) dans une colonne He-Ne-H_2 (4) et des moyens en vue du prélèvement de l'azote ultrapur (19, 20) à l'état fluide hors de la colonne He-Ne-H_2.

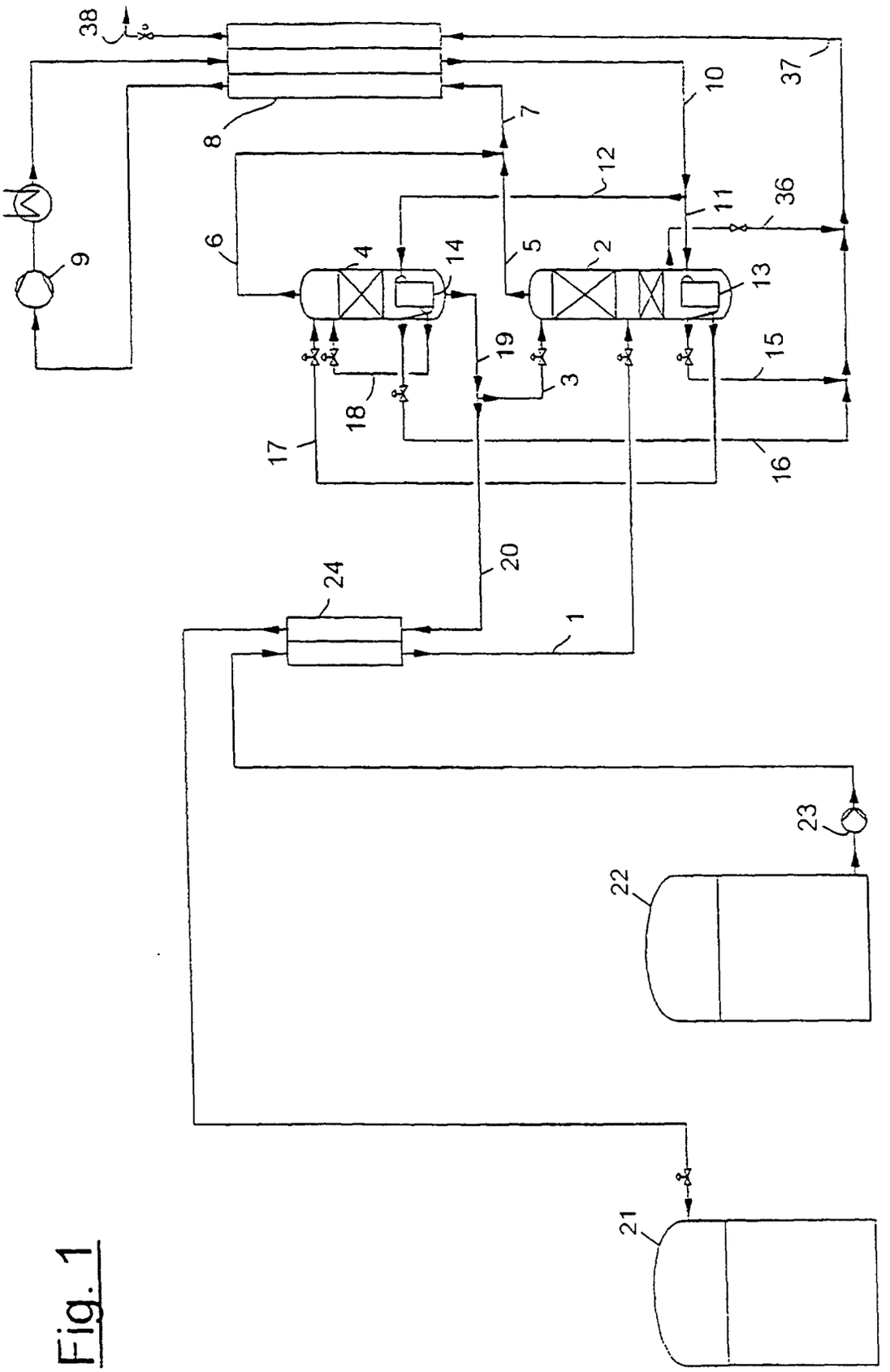


Fig. 1

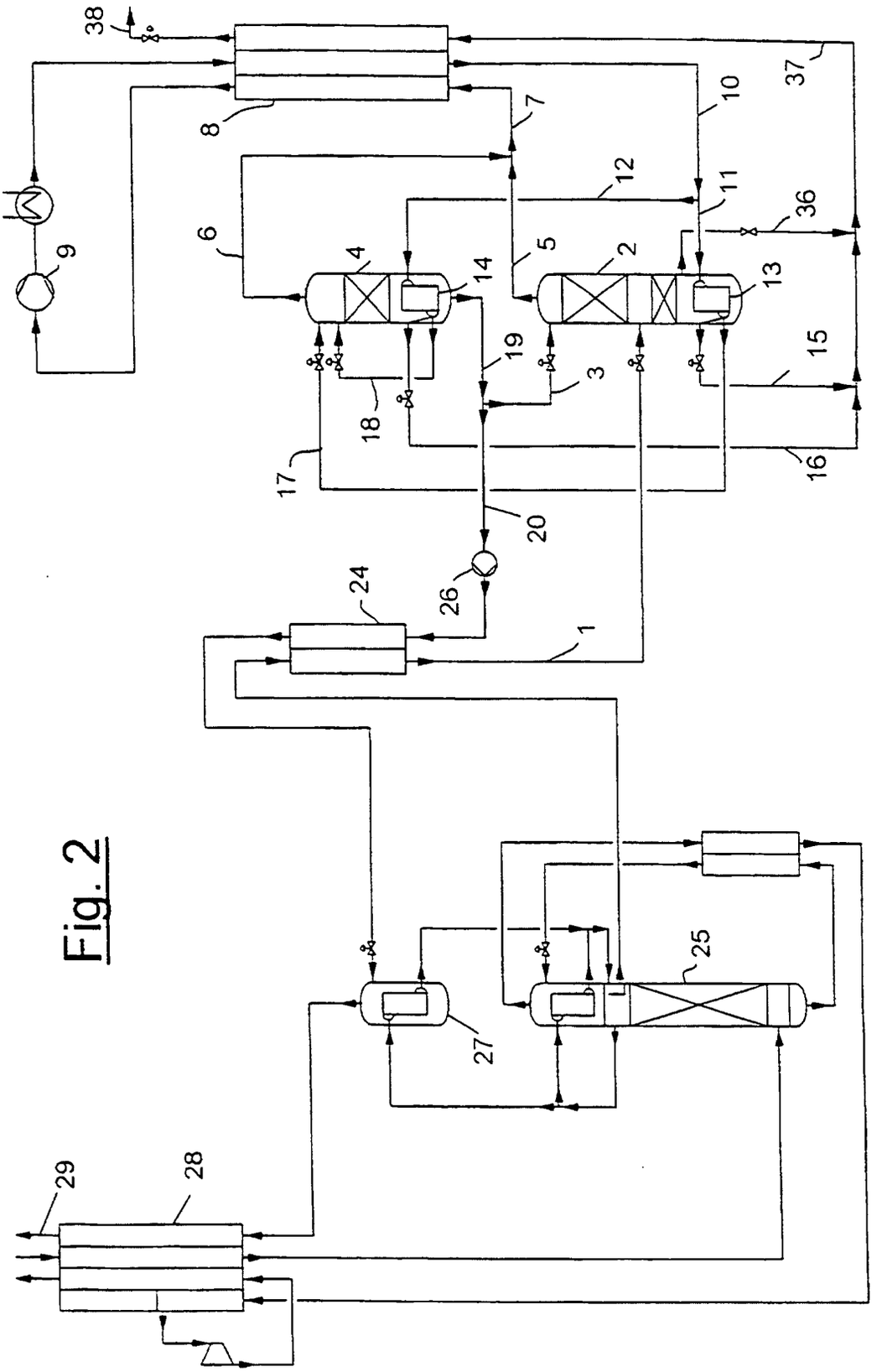


Fig. 2

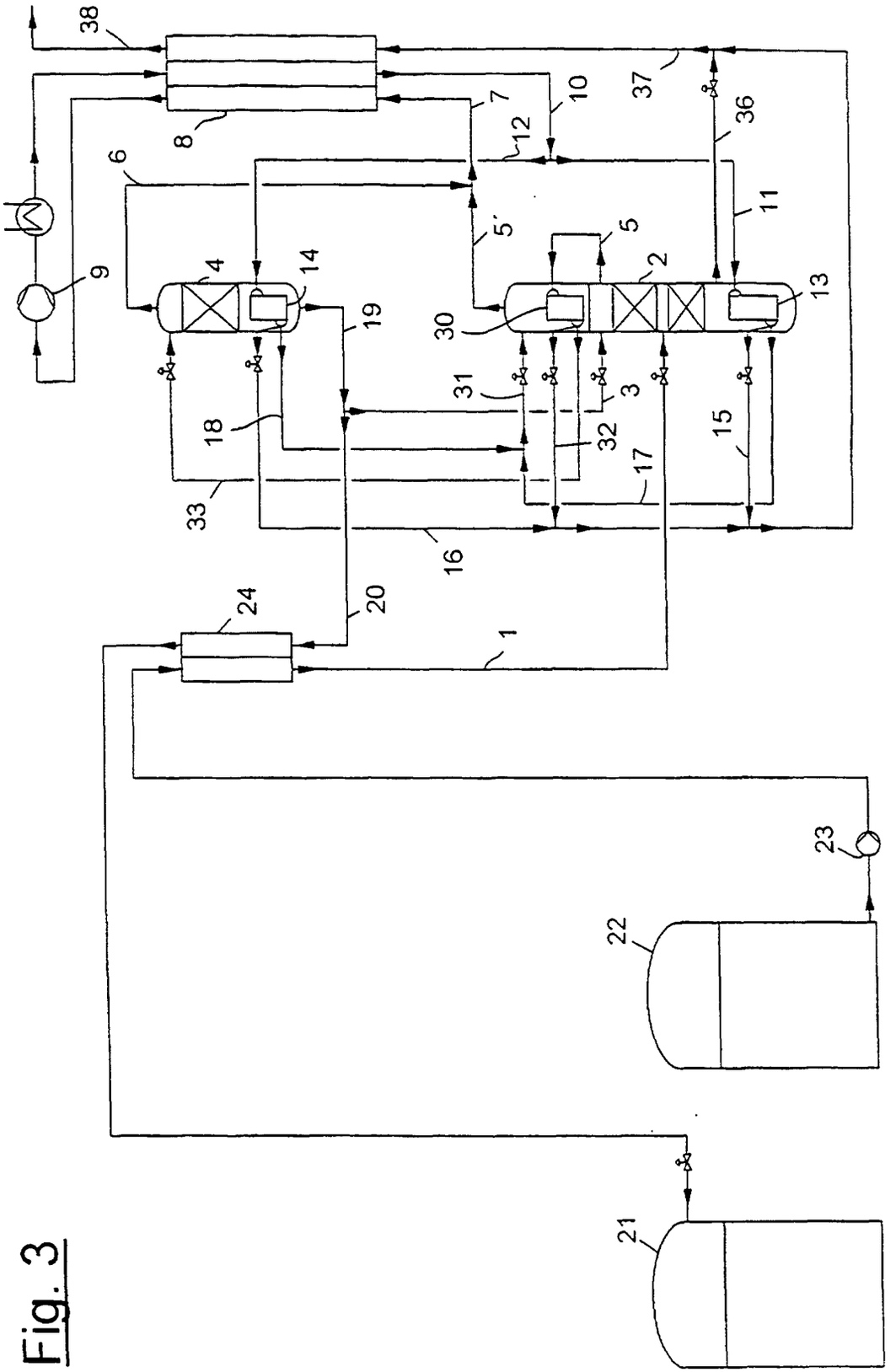

38
37
10
7
36
8
12
6
11
5'
5
9
4
14
2
13
19
30
31
3
18
32
15
17
33
16
24
20
1
23
22
21

Fig. 3

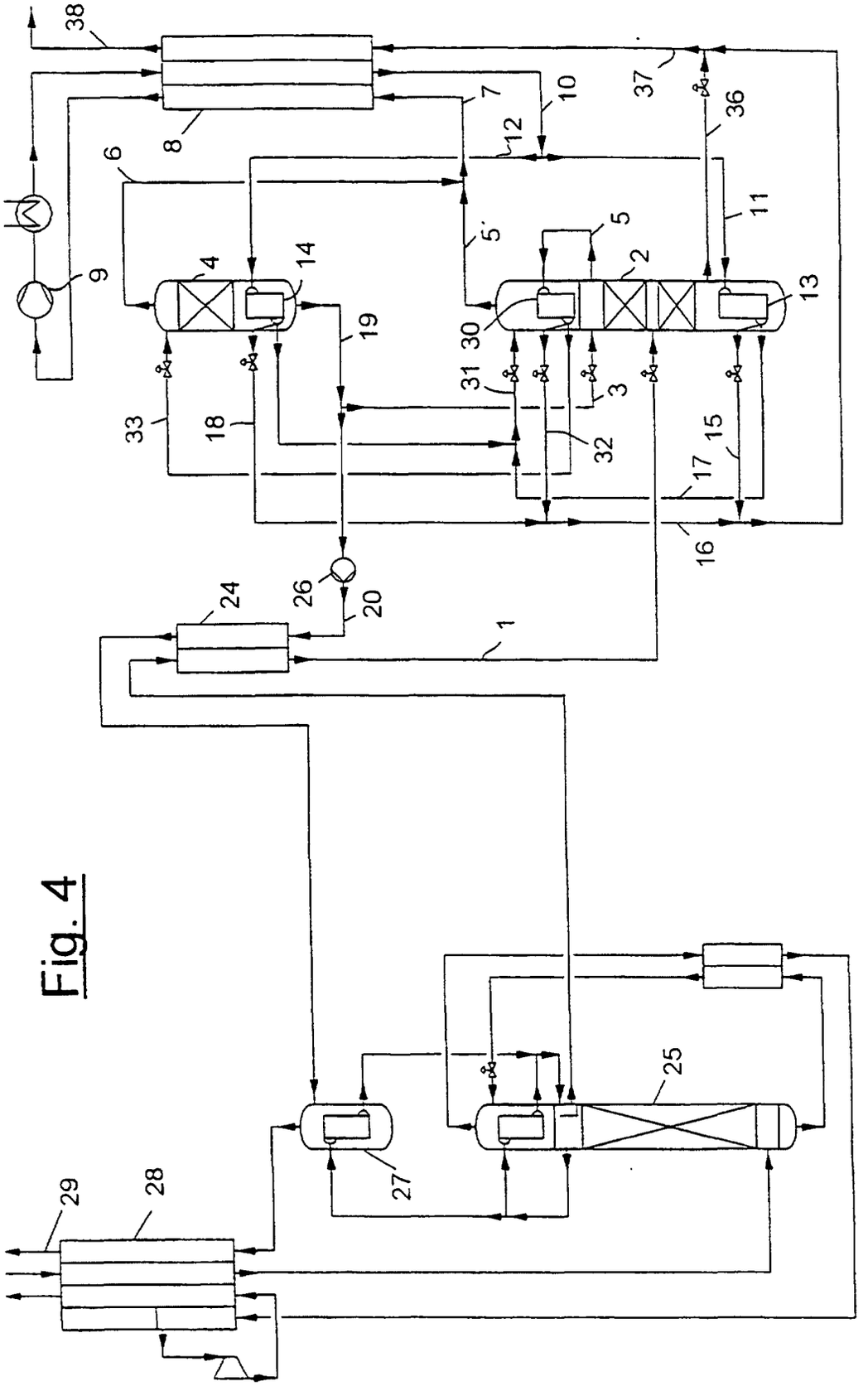

38
37
36
10
7
12
8
6
11
5'
5
2
4
14
9
13
19
30
31
3
33
18
32
15
17
16
24
26
20
1
25
27
29
28

Fig. 4

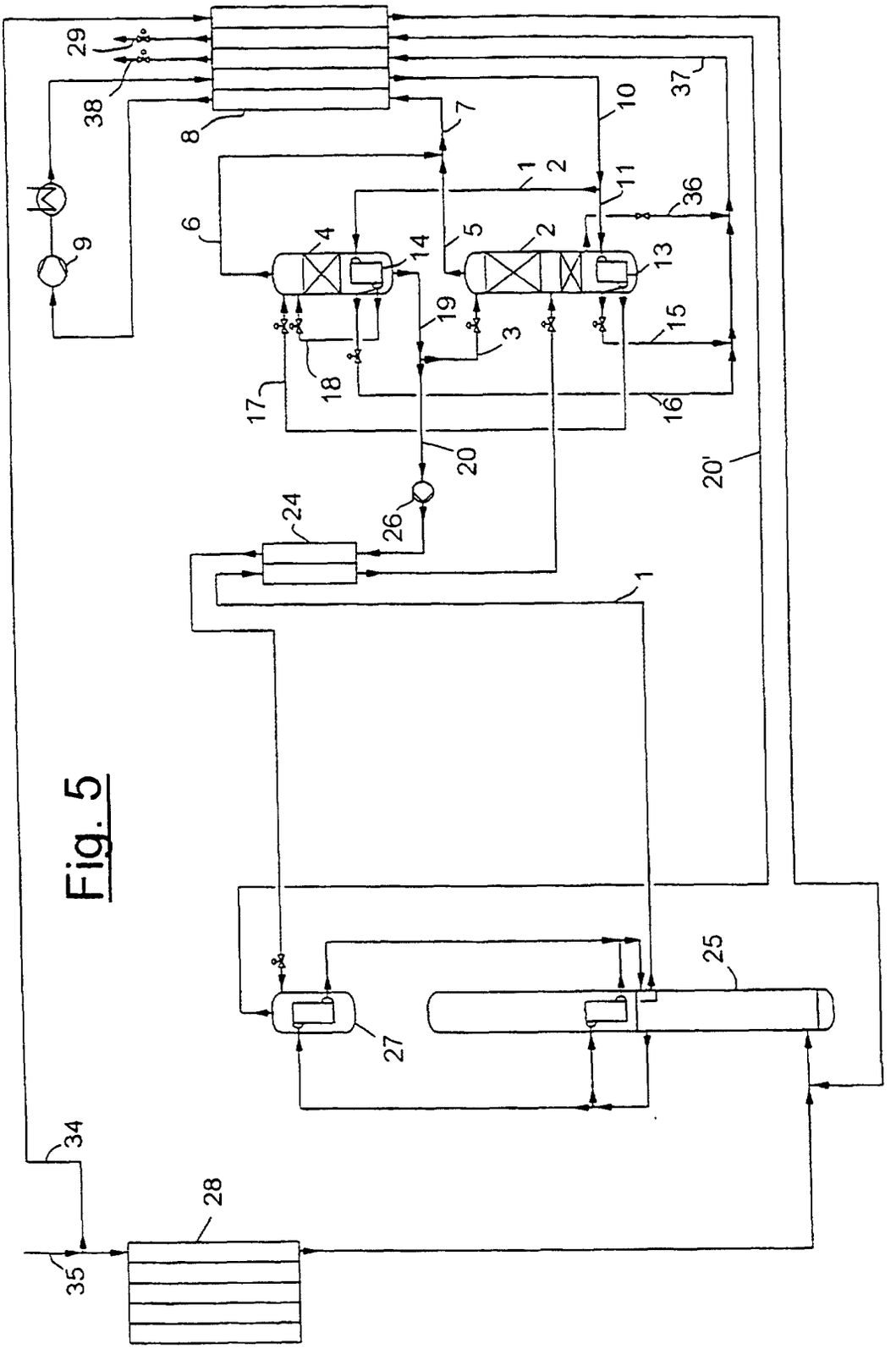

29
38
8
7
10
37
1
2
11
36
6
4
14
5
2
13
9
19
3
15
18
17
16
20
20'
24
26
1
25
27
34
28
35

Fig. 5