



(12) **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(43) Veröffentlichungstag:  
**12.12.2001 Patentblatt 2001/50**

(51) Int Cl.7: **F25J 3/04**

(21) Anmeldenummer: **01113953.2**

(22) Anmeldetag: **08.06.2001**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE TR**  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
**AL LT LV MK RO SI**

- **Krey, Joachim**  
**47829 Krefeld (DE)**
- **Möller, Thorsten**  
**41464 Neuss (DE)**
- **Juckel, Jens**  
**47799 Krefeld (DE)**

(30) Priorität: **10.06.2000 DE 10028867**

(71) Anmelder: **Messer AGS GmbH**  
**63457 Hanau (DE)**

(74) Vertreter: **Berdux, Klaus, Dipl.-Ing.**  
**MESSER GRIESHEIM GmbH**  
**60270 Frankfurt (DE)**

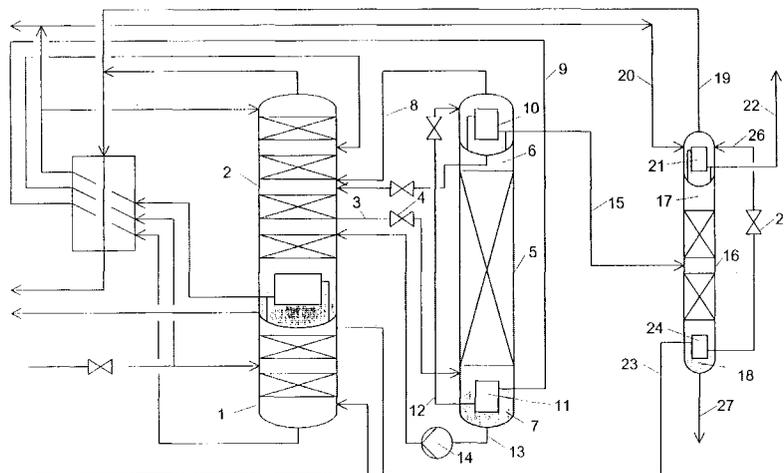
(72) Erfinder:  
• **Sentis, Theo**  
**47804 Krefeld (DE)**

(54) **Verfahren und Vorrichtung zur Gewinnung von Argon**

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Gewinnung von Argon, bei dem verdichtete, vorgereinigte und abgekühlte Luft in einem Rektifiziersystem mit mindestens einer Rektifiziersäule und einer Rohargonsäule zerlegt wird, wobei ein aus der Niederdrucksäule der Rektifiziersäule abgezogener argonhaltiger Sauerstoffstrom in einer Rohargonsäule in Rohargon und in eine erste schwerersiedende flüssige Restfraktion und der aus dem Kopf der Rohargonsäule eingeleitete Rohargon in Reinar-

gonprodukt und in eine zweite leichtersiedende Fraktion zerlegt wird.

Erfindungsgemäß wird dadurch, dass die in der Rohargonsäule (5) vorliegende Sumpfflüssigkeit (7) zumindest teilweise verdampft wird, die Anzahl der Rektifikationselemente in Form von konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern in der Rohargonsäule (5) derart verringert, dass durch die erzielte bauliche Einsparung eine kostengünstige Gewinnung von Argon mit 0,1 bis 10 ppm Restsauerstoffgehalt gewährleistet ist.



FIGUR

## Beschreibung

**[0001]** Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Gewinnung von Argon, bei dem verdichtete, vorgereinigte und abgekühlte Luft in einem Rektifikationssystem mit mindestens einer Rektifiziersäule und einer Rohargonsäule zerlegt wird, nach den Merkmalen des Oberbegriffs von Anspruch 1 und 9.

**[0002]** Ein derartiges Verfahren mit Vorrichtung zur Gewinnung von Argon mit bis zu 10 ppm Verunreinigungsanteil ist durch EP 0 377 117 B2 bekannt, bei welchen eine aus dem sogenannten Argonbauch-Bereich einer Niederdrucksäule einer zweistufigen Rektifikation abgezogene argonreiche Sauerstofffraktion einer mit einem Kopfkondensator ausgerüsteten Rohargonsäule zugeführt und in dieser bei gleichen Druckverhältnissen wie in der Niederdrucksäule mittels von mindestens 150 theoretischen Böden (Stufen) sowie strukturierten Packungen oder Füllkörpern in gasförmiges Rohargon und in eine schwerersiedende erste flüssige Restfraktion zerlegt, wobei das Rohargon einer weiteren Feinreinigung in einer auf konventionelle Weise mit Böden und mit einem Kopfkondensator sowie mit einem Sumpfdampfer ausgerüsteten Reinargonsäule zur Gewinnung von Reinargon unterzogen wird.

**[0003]** Des Weiteren ist durch die EP 0 628 777 B1 ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Gewinnung von Argon mit bis zu 10 ppm Sauerstoffrestanteil bekannt, bei welchen die aus der Zerlegung von Luft in einem Rektifiziersystem mit mindestens einer Rektifiziersäule gewonnene argonhaltige Sauerstofffraktion in einer Rohargonsäule und einer mit einem Kopfkondensator ausgerüsteten Halbreinsäule zu einem Argonprodukt zerlegt wird, wobei die Restfraktion der Halbreinsäule als Rücklaufflüssigkeit für die Rohargonsäule Verwendung findet, wobei die Anzahl der in der Rohargonsäule bzw. Halbreinsäule eingesetzten theoretisch Böden (Stufen) in Form von konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern mindestens 30 bzw. 60 beträgt, sodass kein Kopfkondensator in der Rohargonsäule erforderlich ist, wodurch der apparative Aufwand verringert und die Betriebskosten gesenkt werden.

**[0004]** Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und eine Vorrichtung der eingangs genannten Art mit einem geringen apparativen Aufwand und niedrigen Betriebskosten zur besonders wirtschaftlichen Gewinnung von Rohargon zu schaffen.

**[0005]** Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren und eine Vorrichtung nach Anspruch 1 und 9 gelöst.

**[0006]** Zum erfindungsgemäßen, zumindest teilweisen Verdampfen der Sumpfflüssigkeit in der Rohargonsäule findet ein, vorzugsweise aus der Drucksäule abgezogener, und vorzugsweise unterkühlter, sauerstoffreicher, flüssiger Prozeßstrom Verwendung.

**[0007]** Die Verwendung von Sumpfprodukt aus der Drucksäule zum Verdampfen von Sumpfflüssigkeit der Rohargonsäule weist den wesentlichen Vorteil auf, dass

die Rektifikationsverhältnisse in der Niederdrucksäule nicht beeinträchtigt werden, d.h. der im aus der Niederdrucksäule abgezogenen Seitengas enthaltene Stickstoffanteil wird nicht zusätzlich erhöht, wodurch die bisher am Kopf der Rohargonsäule zu verzeichnende, sich um den Faktor 28 - 36 erhöhende Stickstoffanreicherung und damit eine Beeinträchtigung des störungsfreien Betriebs des Rohargonkondensators hervorrufoende und zudem eine, die Weiterbearbeitung erschwerende Stickstoffanreicherung im Rohargonprodukt vermieden wird.

**[0008]** Besonders vorteilhaft ist der Einsatz eines in der Luftzerlegungsanlage vorhandenen, unter einem Druck von 10 bis 100 bar stehenden Luftstromes, der zum Beheizen des Verdampfers in der Rohargonkolonne verwendet und anschließend auf das Druckniveau von Druck- bzw. Niederdrucksäule entspannt wird.

**[0009]** Das am Kopf der Rohargonsäule vorliegende Rohargon wird durch indirekten Wärmeaustausch mit einer aus dem Prozess entnommenen Flüssigkeit kondensiert und zumindest teilweise als Rücklaufflüssigkeit wieder in die Rohargonsäule eingespeist. In der Regel findet Sumpfflüssigkeit der Hochdrucksäule als Kühlmedium Verwendung.

**[0010]** Ein Teil der kondensierten Rohargonfraktion wird als Produkt abgezogen und zur weiteren Behandlung der Reinargonsäule zugeführt.

**[0011]** In einer vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung wird der aus dem sogenannten Argonbauch der Niederdrucksäule unter einem Druck von etwa 1,2 bis 1,6 bar abgezogene argonreiche Sauerstoffstrom vor der Einspeisung in die Rohargonsäule auf einen Druck von 0,9 bis 1,1 bar gedrosselt und in der Rohargonsäule unter diesem verringerten Druck in vorbeschriebener Weise zu Rohargon und flüssiger Restfraktion rektifiziert.

**[0012]** Durch die druckreduzierte Rohargon-Rektifikation mit zusätzlicher Sumpfdampfung kann die Anzahl der geordneten Packungen und/oder Füllkörpern in der Rohargonkolonne und damit der apparative und verfahrenstechnische Aufwand bei der Argon-Gewinnung in allen bekannten Lufterzerlegungsanlagen wesentlich verringert und somit eine kostengünstige Argon-Gewinnung gewährleistet werden.

**[0013]** Zur Gewinnung von Argon mit 0,1 bis 10 ppm Restsauerstoffgehalt wird die in vorbeschriebener Weise verflüssigte Argon-Kopffraktion der Rohargonsäule einer Feinreinigung in einer mit einer variablen Anzahl von unterschiedlich angeordneten konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern, einem Kondensator und einem Sumpfdampfer ausgerüsteten Reinargonsäule unterzogen, bei der das Rohargon in flüssiges Reinargonprodukt und in ein gasförmiges Argon-Stickstoff-Gemisch zerlegt wird.

**[0014]** Das am Kopf der Reinargonsäule vorliegende gasförmige Argon-Stickstoff-Gemisch wird durch indirekten Wärmeaustausch im Reinargonkondensator teilweise verflüssigt, wobei die verflüssigte Fraktion als

Rücklauf wieder in die Reinargon-kolonnen eingespeist und der nicht verflüssigte Anteil als gasförmiger Spülstrom in die Anlagenumgebung abgeblasen wird.

**[0015]** Zum Kühlen des Reinargonkondensators findet ein aus der Hochdruckkolonne entnommener gasförmiger Strom Verwendung, welcher zunächst im Verdampfer der Reinargonsäule kondensiert und anschließend in den Kopfkondensator der Reinargonsäule hinein entspannt wird.

**[0016]** Zur Erzeugung des zum Betrieb der Reinargonsäule benötigten Auftriebgases wird das im Sumpf der Reinargonsäule anfallende Flüssigprodukt durch indirekten Wärmetausch im Verdampfer der Reinargonsäule teilweise verdampft. Der nicht verdampfte Anteil an Sumpfflüssigkeit kann als flüssiges Reinargonprodukt aus der Reinargonsäule abgezogen werden.

**[0017]** Zur Erzeugung des für die Feinreinigung des Rohargons in der Reinargonsäule benötigten Druckes wird das aufgrund der zwischen der Roh- und Reinargonsäule bestehenden Höhendifferenz aufgebaute hydrostatische Potential genutzt.

**[0018]** Die Erfindung betrifft außerdem eine Vorrichtung zur Gewinnung von Argon nach den Merkmalen der Patentansprüche 9 und 10.

**[0019]** Die Erfindung wird im folgenden anhand eines in der Zeichnung dargestellten Ausführungsbeispiels näher erläutert.

**[0020]** Die Figur der Zeichnung zeigt ein Verfahrensschema einer erfindungsgemäßen Argon-Gewinnung mit druckreduzierter Rohargon-Rektifikation und zusätzlicher Rohargonsäulen-Sumpfverdampfung.

**[0021]** Ein aus einer, in eine Rektifiziersäule mit einer Drucksäule 1 mittels Kondensator thermisch gekoppelten Niederdrucksäule 2 im Bereich des sogenannten Argonbauches unter einem Druck von etwa 1,2 bis 1,6 bar und mit einem Argongehalt von 8 - 14 % über eine Leitung 3 abgezogener Sauerstoffstrom wird durch eine in der Leitung 3 angeordnete, beispielsweise als Ventil oder Klappe ausgebildete Drossel 4 auf einen Druck von etwa 0,9 bis 1,1 bar reduziert und unter diesem Druck in einer Rohargonsäule 5 unter Verwendung von einer variablen Anzahl von unterschiedlich angeordneten konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern in gasförmiges Rohargon 6 (Kopfprodukt) und in eine als Sumpfflüssigkeit 7 bezeichnete flüssige Restfraktion zerlegt.

**[0022]** Das am Kopf der Rohargonsäule 5 vorliegende Rohargon 6 mit 0,1 bis 10 ppm Restsauerstoffgehalt wird durch indirekten Wärmeaustausch zumindest teilweise mit einer aus dem Prozess entnommenen Flüssigkeit mittels eines Kondensators 10 kondensiert und zumindest teilweise als Rücklaufflüssigkeit wieder in die Rohargonsäule 5 eingespeist.

**[0023]** In der Regel wird als Rohargon-Kondensationsmedium aus dem Sumpf der Drucksäule 1 entnommene Flüssigkeit verwendet, die dazu über ein Ventil in den Raum des Kondensators 10 hinein entspannt wird.

**[0024]** Ein Teil der kondensierten Rohargonfraktion

wird als flüssiges Rohargonprodukt abgezogen und über eine Leitung 15 einer Reinargonsäule 16 zur weiteren Behandlung zugeführt.

**[0025]** Zur Optimierung der Rücklaufverhältnisse in der Rohargonsäule 5 wird die im unteren Bereich der Rohargonsäule 5 als Restfraktion vorliegende Sumpfflüssigkeit 7 zumindest teilweise durch einen Prozeßstrom, beispielsweise Hochdruckluft von 10 bis 100 bar, zur Erzeugung von zusätzlichem Säulen-Rücklauf verdampft.

**[0026]** Vorteilhaft findet zum zumindest teilweisen Verdampfen von Sumpfflüssigkeit 7 der Rohargonsäule 5 aus dem Sumpf der Drucksäule 1 über eine Leitung 9 einem in der Sumpfflüssigkeit 7 angeordneten Verdampfer 11 zugeführte, vorzugsweise unterkühlte sauerstoffreiche Flüssigkeit, Verwendung.

**[0027]** Der nicht verdampfte Anteil an Sumpfflüssigkeit 7 der Rohargonsäule 5 wird als Rücklauf über eine mit einer Fördereinrichtung 14 ausgerüsteten Leitung 13 wieder in die Niederdrucksäule 2 eingespeist.

**[0028]** Zur Gewinnung von Argon mit 0,1 bis 10 ppm Restsauerstoffgehalt wird das als flüssige Kopfreaktion in der Rohargonsäule 5 vorliegende Rohargon 6 über die Leitung 15 in die mit einer variablen Anzahl von unterschiedlich angeordneten konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern ausgerüsteten Reinargonsäule 16 eingespeist und in dieser zu Reinargonprodukt 27 und ein über Leitung 22 abziehbares Spülgas rektifiziert.

**[0029]** Am Kopf der Reinargonsäule 16 vorliegendes gasförmiges Stickstoff-Argon-Gemisch 17 wird durch indirekten Wärmeaustausch in einem, durch eine Leitung 20 mit sauerstoffarme Flüssigkeit aus der Drucksäule 1 betriebenen Reinargonkondensator 21 teilweise verflüssigt, wobei die verflüssigte Fraktion als Rücklauf wieder in die Reinargonsäule 16 eingespeist und der nicht verflüssigte Anteil des Stickstoff-Argon-Gemisches als gasförmiger Spülstrom über die Leitung 22 abgeblasen wird.

**[0030]** Zum Kühlen des Reinargonkondensators 21 findet ein aus der Drucksäule 1 über eine Leitung 23 zugeführter gasförmiger Strom Verwendung, wobei dieser zunächst in einem in Sumpfflüssigkeit 18 angeordneten Verdampfer 24 der Reinargonsäule 16 kondensiert und anschließend über eine mit einer als Drossel 25 ausgerüsteten Leitung 26 in den Reinargonkondensator 21 hinein entspannt wird.

**[0031]** Die in der Reinargonsäule 16 als schwerersiedende Restfraktion anfallende Sumpfflüssigkeit 18 wird teilweise im Verdampfer 24 verdampft und die nicht verdampfte Sumpfflüssigkeit 18 als flüssiges Reinargonprodukt 27 abgezogen.

**[0032]** Vorteilhaft wird zur vorbeschriebenen Feinreinigung des Rohargons 6 in der Reinargonsäule 16 das aus der zwischen der Roh- und Reinargonsäule 5, 16 vorhandenen Höhendifferenz resultierende hydrostatische Potential genutzt.

**[0033]** Die erfindungsgemäße Argon-Gewinnung ist

in allen bekannten Luftrektifizier-systemen mit mindestens einer Rektifiziersäule und einer Rohargonsäule mit den aufgezeigten Vorteilen einsetzbar.

### Patentansprüche

1. Verfahren zur Gewinnung von Argon, bei dem verdichtete, vorgereinigte und abgekühlte Luft in einem Rektifiziersystem mit mindestens einer Rektifiziersäule und einer Rohargonsäule zerlegt wird, wobei

a) ein aus einer Niederdrucksäule der Rektifiziersäule abgezogener argonreicher Sauerstoffstrom über eine Leitung in der mit konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern ausgestatteten Rohargonsäule in Rohargon und in eine erste schwerersiedende flüssige Restfraktion zerlegt und

b) eine Kopfkühlung der Rohargonsäule durch indirekten Wärmetausch mit verdampfender, auf etwa den Druck der Niederdrucksäule entspannter Sumpfflüssigkeit einer mit der Niederdrucksäule thermisch gekoppelten Drucksäule erfolgt und

c) das aus dem Kopf der Rohargonsäule in eine Reinargonsäule eingeleitete Rohargon in Reinargon und in eine zweite leichtersiedende Fraktion zerlegt wird,

#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

die in der Rohargonsäule (5) vorliegende Sumpfflüssigkeit (7) zumindest teilweise verdampft wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die in der Rohargonsäule (5) vorliegende Sumpfflüssigkeit (7) durch einen aus der Drucksäule (1) zugeführten Prozeßstrom zumindest teilweise verdampft wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** als Prozeßstrom zum Verdampfen der Sumpfflüssigkeit (7) in der Rohargonsäule (5) sauerstoffreiche, vorzugsweise unterkühlte Flüssigkeit der Drucksäule (1), Verwendung findet.

4. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** als Prozeßstrom zum Verdampfen der Sumpfflüssigkeit (7) in der Rohargonsäule (5) Hochdruckluft von 10 bis 100 bar Verwendung findet.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass**

der Druck der Rohargonsäule (5) geringer ist als der Druck in der Niederdrucksäule (2).

6. Verfahren nach Anspruch 5

#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

der argonreiche Sauerstoffstrom in der Rohargonsäule (5) unter einem Druck von etwa 0,9 bis 1,1 bar rektifiziert wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6,

#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

die Druckreduzierung des aus der Niederdrucksäule (2) abgezogenen argonreichen Sauerstoffstroms vor dessen Einspeisung in die Rohargonsäule (5) erfolgt.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7,

#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

das am Kopf der Rohargonsäule (5) vorliegende gasförmige Rohargon (6) zumindestens teilweise mittels aus der Drucksäule (1) zugeführter Sumpfflüssigkeit zu Rücklauf und flüssigem Rohargon kondensiert wird.

9. Vorrichtung zur Gewinnung von Argon nach einem der Ansprüche 1 bis 8 mit einem Rektifiziersystem mit mindestens einer Rektifiziersäule und einer Rohargonsäule, wobei eine Niederdrucksäule des Rektifiziersystems mit einer Leitung zur Einspeisung von argonreichem Sauerstoffstrom in die mit einer variablen Anzahl von unterschiedlich angeordneten konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern und einem Kondensator ausgestatteten Rohargonsäule, welche durch eine Leitung zur Einspeisung von Rohargon in eine mit einer variablen Anzahl von unterschiedlich angeordneten konventionellen Böden und/oder geordneten Packungen und/oder Füllkörpern, einem Kondensator und einem Verdampfer ausgerüsteten Reinargonsäule sowie die Roh- und Reinargonsäule mittels eines Leitungsverbandsystems über mindestens einen Wärmetauscher mit der Rektifiziersäule verbunden sind,

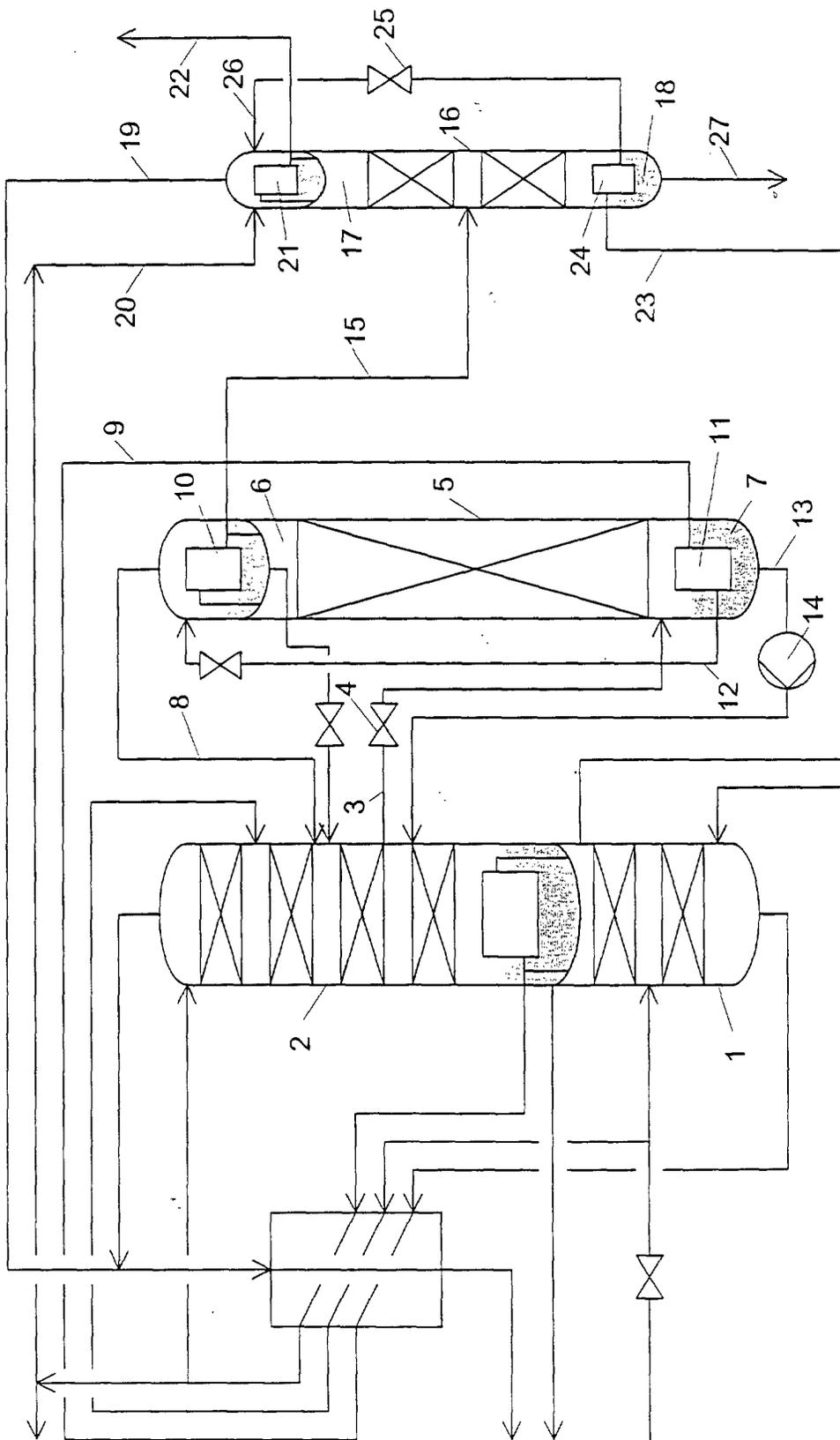
#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

die Rohargonsäule (5) einen Verdampfer (11) aufweist.

10. Vorrichtung nach Anspruch 9,

#### **dadurch gekennzeichnet, dass**

der im Sumpfbereich der Rohargonsäule (5) angeordnete Verdampfer (11) mit der Drucksäule (1) verbunden ist.



FIGUR