



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT  
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Int. Cl.<sup>3</sup>: C 01 C 1/04  
C 01 B 5/02

**Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein**  
Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978



**PATENTSCHRIFT** A5

11

**620 408**

21 Gesuchsnummer: 6019/76

73 Inhaber:  
Gebrüder Sulzer Aktiengesellschaft, Winterthur

22 Anmeldungsdatum: 13.05.1976

24 Patent erteilt: 28.11.1980

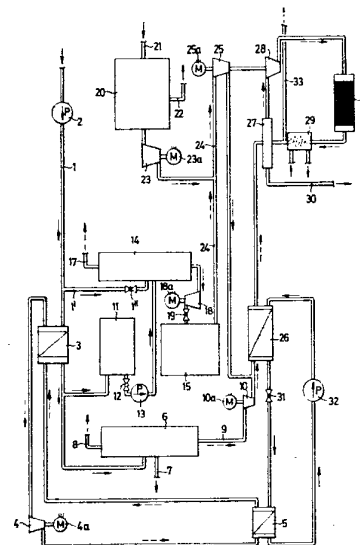
45 Patentschrift  
veröffentlicht: 28.11.1980

72 Erfinder:  
Dr. Dipl.-Ing. Charles Mandrin, Winterthur

**54 Verfahren und Anlage zur Gewinnung von Ammoniak und schwerem Wasser.**

57 Verfahren und Anlage zur kontinuierlichen Gewinnung von Ammoniak und schwerem Wasser, wobei die Gesamtanlage eine Ammoniaksyntheseeinrichtung (16), eine Schwerwassergewinnungsanlage (6), eine Elektrolyseeinrichtung (14) zur Erzeugung von Wasserstoff und eine Luftzerlegungsanlage (20) zur Erzeugung von Stickstoff für Synthesegas umfasst. Weiterhin weist die Anlage eine monotherme Isotopenaustauscheinrichtung (3, 5, 26) zur Erzeugung von mit Deuterium angereichertem Wasser aus Frischwasser mit natürlicher Deuteriumkonzentration und einen Speicherbehälter (11) für angereichertes Wasser und einen Speicher (15) für elektrolytisch gespaltenen Wasserstoff auf, in welchem während der Sommermonate eine Ueberschussmenge an Wasserstoff gespeichert wird. Während der Wintermonate wird die Elektrolyseeinrichtung (14) ausser Betrieb gesetzt und im Speicherbehälter (11) Wasser gespeichert, welches in der monothermen Isotopenaustauscheinrichtung (3, 5, 26) mit Deuterium angereichert und während der Sommermonate elektrolytisch gespalten wird.

Die Wirtschaftlichkeit der Gesamtanlage wird dadurch verbessert, dass ausser der kontinuierlichen Ammoniakgewinnung auch schweres Wasser während des ganzen Jahres erzeugt wird, obwohl die Elektrolyseeinrichtung (15) nur während der Sommermonate betrieben wird.



## PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zur Gewinnung von Ammoniak und schwerem Wasser, wobei Ammoniak aus Wasserstoff, der durch elektrolytische Spaltung einer Teilmenge, von in einer monothermen Isotopenaustauschanlage mit Deuterium angereichertem Wasser erzeugt wird und Stickstoff in einer Syntheseanlage gewonnen wird und die andere Teilmenge des angereicherten Wassers zu schwerem Wasser aufkonzentriert wird, wobei weiterhin während der Sommermonate eine Überschussmenge an Wasserstoff elektrolytisch gewonnen und gespeichert wird, dadurch gekennzeichnet, dass während der Wintermonate die Elektrolyseeinrichtung (14) ausser Betrieb gesetzt wird, und dass während dieser Zeit in der monothermen Isotopenaustauschanlage (3, 5, 26) mit Deuterium angereichertes Überschusswasser gespeichert wird, welches während der Sommermonate elektrolytisch gespalten und der hierbei entstehende, mit Deuterium angereicherte Wasserstoff gespeichert wird.

2. Anlage zur Gewinnung von Ammoniak und von schwerem Wasser nach Anspruch 1, wobei die Anlage eine Elektrolyseeinrichtung zur Erzeugung von Wasserstoff und eine Einrichtung zur Erzeugung von Stickstoff und eine Ammoniaksyntheseeinrichtung aufweist, sowie einen Speicher für elektrolytisch erzeugten Wasserstoff und eine monotherme Isotopenaustauschanlage mit mindestens einem Austauschurm, in welchem Wasser natürlicher Deuteriumkonzentration an Deuterium angereichert wird und eine mit dem Austauschurm verbundene Anlage zur Gewinnung von schwerem Wasser aus einer Teilmenge des angereicherten Wassers, dadurch gekennzeichnet, dass für die Aufnahme der anderen Teilmenge des angereicherten Wassers zwischen dem Austauschurm (3) und der Elektrolyseeinrichtung (14) ein Speicherbehälter (11) angeordnet ist.

3. Anlage nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass in dem Austauschurm (3) der monothermen Isotopenaustauschanlage (3, 5, 26) das der Elektrolyseeinrichtung (14) bzw. der Schwerwassergewinnungsanlage (6) zugeführte Wasser mit einem in einem Kreislauf strömenden dampfförmigen ersten Zwischenträgermedium in Isotopenaustausch gebracht wird, und dass dieses erste Zwischenträgermedium in mindestens einem Isotopenaustauschturm (5) mit einem flüssigen, in einem Kreislauf strömenden zweiten Zwischenträgermedium in Isotopenaustausch gebracht wird, wobei dieses zweite Zwischenträgermedium in mindestens einem Isotopenaustauschturm (26) mit dem der Ammoniaksyntheseanlage (16) zugeführten Synthesegasgemisch in Isotopenaustausch gebracht wird.

4. Anlage nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das erste Zwischenträgermedium aus Ammoniakdampf und das zweite Zwischenträgermedium aus flüssigem Ammoniak besteht.

5. Anlage nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass das erste Zwischenträgermedium aus Methylamindampf und das zweite Zwischenträgermedium aus flüssigem Methylamin besteht.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Gewinnung von Ammoniak und schwerem Wasser, wobei Ammoniak aus Wasserstoff, der durch elektrolytische Spaltung einer Teilmenge, von in einer monothermen Isotopenaustauschanlage mit Deuterium angereichertem Wasser erzeugt wird und Stickstoff in einer Syntheseanlage gewonnen wird und die andere Teilmenge des angereicherten Wassers zu schwerem Wasser aufkonzentriert wird, wobei weiterhin während der Sommermonate eine Überschussmenge an Wasserstoff

elektrolytisch gewonnen und gespeichert wird und eine Anlage zur Durchführung des Verfahrens.

Derartige Anlagen weisen eine Elektrolyseeinrichtung zur Erzeugung von Wasserstoff und eine Einrichtung zur Erzeugung von Stickstoff, z. B. durch Luftzerlegung und eine Ammoniaksyntheseeinrichtung auf, sowie einen Speicher für elektrolytisch erzeugten Wasserstoff und eine monotherme Isotopenaustauschanlage, in welcher Wasser natürlicher Deuteriumkonzentration an Deuterium angereichert wird und eine Anlage zur Gewinnung von schwerem Wasser aus einer Teilmenge des angereicherten Wassers.

In der Praxis besteht in den meisten Fällen die Aufgabe, Ammoniak kontinuierlich während des ganzen Jahres zu erzeugen. Um eine solche Ammoniaksyntheseanlage wirtschaftlicher zu gestalten, ist es bekannt, damit eine Anlage zur Gewinnung von schwerem Wasser zu kombinieren.

Da jedoch bekanntlich zum Betrieb derartiger Anlagen eine relativ grosse elektrische Energie erforderlich ist und der elektrische Strom während der Wintermonate erheblich teurer als während der Sommermonate ist, da in dieser Zeit ein grosser Teil des elektrischen Stromverbrauches, z. B. für Heizzwecke in Gebäuden wegfällt, ist schon vorgeschlagen worden, die Elektrolyseeinrichtung, die zur Erzeugung des für die Ammoniaksynthese benötigten Wasserstoffes dient, während der Wintermonate stillzusetzen und während der Sommermonate eine Überschussmenge von Wasserstoff in der Elektrolyseeinrichtung zu erzeugen und zu speichern, um den Wasserstoffverbrauch der Ammoniaksyntheseanlage während der Wintermonate zu decken.

Diese Lösung hat jedoch zur Folge, dass die Schwerwassergewinnungsanlage während der Wintermonate ebenfalls ausser Betrieb ist, da kein Wasser als Einspeisestrom in die Isotopenaustauschanlage zur Verfügung steht.

Ausserdem müssen der bzw. die Isotopenaustauschtürme sowie die Elektrolyseeinrichtung für entsprechend grössere Durchsatzmengen dimensioniert werden, da diese Einrichtungen nur während eines Teiles des Jahres, z.B. während sechs Monaten in Betrieb sind.

Aus diesem Grunde weist die vorstehende Anlage wesentliche Nachteile in wirtschaftlicher Beziehung auf.

Die Erfindung hat sich die Beseitigung dieser Mängel zum Ziel gesetzt, d.h. mit Hilfe der Erfindung soll ein Verfahren bzw. die Ausbildung einer Anlage ermöglicht werden, die die kontinuierliche Gewinnung von Ammoniak und schwerem Wasser auf wesentlich wirtschaftlichere Weise als bisher gestatten.

Das erfindungsgemässe Verfahren besteht darin, dass während der Wintermonate die Elektrolyseeinrichtung ausser Betrieb gesetzt wird, und dass während dieser Zeit in der monothermen Isotopenaustauschanlage mit Deuterium angereichertes Überschusswasser gespeichert wird, welches während der Sommermonate elektrolytisch gespalten und der hierbei entstehende, mit Deuterium angereicherte Wasserstoff gespeichert wird.

Eine Anlage zur Durchführung dieses Verfahrens besteht nach der Erfindung darin, dass für die Aufnahme der anderen Teilmenge des angereicherten Wassers zwischen dem Austauschurm und der Elektrolyseeinrichtung ein Speicherbehälter angeordnet ist.

In der Zeichnung ist in einem Fliessschema eine Ausführungsform einer erfindungsgemässen Anlage dargestellt.

Die Betriebsweise der Anlage erfolgt während der Sommermonate in der nachstehenden Weise:

Durch eine Leitung 1 wird Frischwasser mit natürlicher Deuteriumkonzentration (1N) in die Anlage eingeleitet. Mit Hilfe der Pumpe 2 wird das Wasser auf den erforderlichen Druck der monothermen Isotopenaustauscheinrichtung gebracht und durchströmt sodann einen Austauschurm 3 die-

ser Einrichtung. Im Austauschurm 3 wird das Wasser durch Deuteriumaustausch mit einem ersten Zwischenträgermedium, z.B. Ammoniakdampf oder Methyramidampf an Deuterium angereichert. Dieses Zwischenträgermedium wird mit Hilfe eines von einem Elektromotor 4a angetriebenen Kompressors 4 in einem Kreislauf durch die Austauschtürme 3 und 5 gefördert, wobei es im Turm 3 an Deuterium verarmt und im Turm 5 an Deuterium angereichert wird.

Eine Teilmenge des angereicherten Wassers wird in eine Schwermwassergewinnungsanlage 6 eingeleitet, in welcher es in bekannter Weise zu schwerem Wasser aufkonzentriert und durch eine Leitung 7 aus der Anlage weggeführt wird. Beispielsweise wird das angereicherte Wasser in einer Elektrolyseeinrichtung gespalten und sodann der sich im abgetrennten Wasserstoff befindende an Deuterium weiter angereicherte Wasserdampf auskondensiert und durch anschließende Rektifikation zu schwerem Wasser aufkonzentriert. Der in der Schwermwassergewinnungsanlage freiwerdende Sauerstoff wird aus der Anlage durch eine Leitung 8 entnommen, während der freiwerdende Wasserstoff in das Synthesegasleitungssystem durch eine Leitung 9 eingespeist wird, nachdem er in einem Kompressor 10, der von einem Elektromotor 10a angetrieben wird, auf den erforderlichen Druck gebracht worden ist.

Die übrige Teilmenge des im Austauschurm 3 angereicherten Wassers, die wesentlich grösser als in die Schwermwassergewinnungsanlage eingespeiste Wassermenge ist, wird in den Wasserspeicher 11 eingeleitet und bei geöffnetem Ventil 12 mit Hilfe einer Pumpe 13 in eine Elektrolyseeinrichtung 14 gefördert.

Durch eine Leitung 1' wird während der Zeit, in der die Elektrolyseeinrichtung in Betrieb ist, bei geöffnetem Ventil 1" Frischwasser in die Elektrolyseeinrichtung eingeleitet.

Während der Wintermonate wird die Elektrolyseeinrichtung stillgesetzt (in diesem Fall ist Ventil 12 geschlossen), und der Speicher 11 wird mit angereichertem Wasser aufgefüllt und zwar wird eine solche Menge gespeichert, die zur Erzeugung der im Speicher 15 während der Sommermonate gespeicherten Wasserstoffmenge erforderlich ist. Wenn die Elektrolyseeinrichtung während sechs Sommermonaten in Betrieb ist, wird in ihr während dieser Zeit die doppelte Menge an Wasserstoff durch die Spaltung von angereichertem Wasser erzeugt gegenüber derjenigen Wasserstoffmenge, die während sechs Monaten für die Ammoniak-syntheseanlage 16 erforderlich ist.

Während der Sommermonate wird dann ausser der im Austauschurm 3 angereicherten Wassermenge eine gleich grosse Wassermenge aus dem Speicher 11 in der Elektrolyseeinrichtung gespalten.

5 Der bei der Spaltung abgetrennte Sauerstoff wird durch eine Leitung 17 aus der Einrichtung entnommen und kann einem nicht dargestellten Verbraucher zugeführt werden.

Der abgetrennte Wasserstoff wird im Kompressor 18, der von einem Elektromotor 18a angetrieben wird, verdichtet und bei geöffnetem Ventil 19, das während der Wintermonate geschlossen ist, in den Speicher 15 eingeleitet.

In einer Stickstoffherstellungsanlage, beispielsweise in einer Luftzerlegungsanlage 20 wird die für die Ammoniak-syntheseanlage erforderliche Menge Stickstoff kontinuierlich während des ganzen Jahres gewonnen. Hierzu wird durch eine Leitung 21 Luft in die Anlage 20 eingeleitet, der abgetrennte Sauerstoff durch eine Leitung 22 entnommen, während der Stickstoff von einem, von einem Elektromotor 23a angetriebenen Kompressor 23 in die Synthesegasleitung 20 24 gefördert wird.

Das im wesentlichen aus Wasserstoff und Stickstoff bestehende Synthesegas wird in einem, von einem Elektromotor 25a angetriebenen Kompressor 25 verdichtet und in einen Isotopenaustauschurm 26 der monothermen Austauschrichtung gefördert. In diesem Austauschurm wird das Synthesegasgemisch und die durch die Leitung 9 zugeführte Wasserstoffmenge durch Isotopenaustausch mit einem zweiten Zwischenträgermittel, z. B. flüssigem Ammoniak oder flüssigem Methylamin an Deuterium abgereichert, so dann in einen Tropfenabscheider 27 eingeführt und mittels eines Kompressors 28 in die Syntheseanlage 16 eingeleitet. Das gewonnene Ammoniak wird in einem Kühler 29 kondensiert und durch eine Produktleitung 30 aus der Anlage weggeführt.

35 Das zweite Zwischenträgermittel wird, nachdem es im Austauschurm 26 an Deuterium angereichert worden ist, in einem Drosselventil 31 entspannt und dann im Austauschurm 5 durch Isotopenaustausch mit dem ersten Zwischenträgermittel an Deuterium verarmt, anschliessend mittels 40 Pumpe 32 auf den erforderlichen Betriebsdruck des Austauschturmes 26 gebracht und in diesem wieder an Deuterium angereichert.

Durch eine Leitung 33 wird eine geringe aus Stickstoff, Wasserstoff und Argon bestehende Teilmenge aus der Anlage weggeführt. Hierdurch wird vermieden, dass sich Argon in der Syntheseanlage 16 anreichert.

