

414739



Cas U 1691+U.1776+U.1795

Int. Cl. C01C

P A T E N T E
D E
I N V E N C I O N

por "UN PROCEDIMIENTO CON SU DISPOSITIVO PARA LA SINTESIS CATALITICA DE AMONIACO", a favor de la firma italiana MONTECATINI EDISON S.p.A., residente en MILAN (Italia).

= . =

MEMORIA DESCRIPTIVA

El presente invento se refiere a un procedimiento para la síntesis catalítica de amoníaco que comprende la reciclización directa de una porción de los productos brutos de síntesis. El invento se refiere
5. además a un reactor para dicha síntesis catalítica de amoníaco.

Hasta ahora ha sido usual el eliminar calor del interior del reactor debido a que es considerable la exotermicidad de este tipo de síntesis; esta eliminación de calor se lleva a cabo por lo común subdividiendo el lecho catalítico en una pluralidad de capas
10.

414739



adiabáticas separadas por serpentines de refrigeración.

- Todo esto produce una serie de inconvenientes considerables. En efecto, los serpentines de refrigeración citados, dispuestos entre capa y capa, son de construcción complicada y ofrecen poca seguridad, siendo además de difícil mantenimiento. Por otra parte, la subdivisión en capas diferentes hace necesaria la creación de un complicado equipo que debe poderse extraer de la carcasa de presión; la compleja construcción es obviamente mayor con el aumento de la capacidad de producción de la planta.
5. construcción complicada y ofrecen poca seguridad, siendo además de difícil mantenimiento. Por otra parte, la subdivisión en capas diferentes hace necesaria la creación de un complicado equipo que debe poderse extraer de la carcasa de presión; la compleja construcción
10. es obviamente mayor con el aumento de la capacidad de producción de la planta.

- Así pues, un objeto de este invento consiste en reducir los inconvenientes antes indicados; otros objetos aparecerán mas evidentes a partir de la siguiente descripción.
15. descripción.

- Se ha descubierto que se obtienen facilmente todos estos objetos mediante un procedimiento para la síntesis de amoníaco, entre 300° y 600°C y entre 100 y 450 kg/cm², sobre una capa adiabática única de un catalizador a base de hierro, cuyo procedimiento comprende la reciclización directa hacia la entrada de dicha capa de una cantidad comprendida entre 30% y 80% de los gases que salen de dicha capa y que contienen, por lo menos, un 12% molar de amoníaco, siendo la diferencia (Δ s) entre los porcentajes molares del amoníaco en los gases que salen de dicha capa y que respectivamente penetran en ella del 3% al 6%, y estando comprendida la velocidad espacial de dichos gases de entrada entre 20.000 y 70.000 h⁻¹.
20. catalizador a base de hierro, cuyo procedimiento comprende la reciclización directa hacia la entrada de dicha capa de una cantidad comprendida entre 30% y 80% de los gases que salen de dicha capa y que contienen, por lo menos, un 12% molar de amoníaco, siendo la diferencia
25. (Δ s) entre los porcentajes molares del amoníaco en los gases que salen de dicha capa y que respectivamente penetran en ella del 3% al 6%, y estando comprendida la velocidad espacial de dichos gases de entrada entre 20.000 y 70.000 h⁻¹.

414739

- 3 -



La velocidad espacial citada debe entenderse expresada según:

$$\frac{\text{m}^3 \text{ normal/hora de gas de entrada}}{\text{m}^3 \text{ de volumen aparente de catalizador}}$$

5. Los mejores resultados se obtienen cuando dicha velocidad espacial está comprendida entre 50.000 y 70.000 h⁻¹.

Pueden obtenerse resultados muy satisfactorios cuando la citada presión está comprendida entre 200 y 300 kg/cm² y cuando dicha reciclización directa está comprendida entre 60% y 75% de los gases de salida y contiene, por lo menos, el 18% molar de amoníaco; en este caso, el amoníaco se condensa, de preferencia parcialmente, y se separa de los gases afluentes sin reciclar y parcialmente enfriados, mediante enfriamiento indirecto, a una temperatura sustancialmente igual a la temperatura ambiente, con agua, aire o cualquier otro fluido apropiado.

20. Operando según este procedimiento es posible alcanzar rendimientos totales del mismo orden de magnitud que los rendimientos obtenibles con los procedimientos utilizados hasta el presente, aunque de forma mucho más sencilla y económica.

25. En efecto, con el procedimiento según el invento y representado esquemáticamente en la figura 5 con fines ilustrativos pero no limitativos, es posible realizar la síntesis de amoníaco en reactores de elevado rendimiento que son mucho más sencillos y menos gravosos que los reactores utilizados hasta ahora.



En la figura 5 se indica que las fracciones molares porcentuales del amoníaco de los gases de entrada, que han de incorporarse a la reciclización (R), son diferentes de cero. Esto se debe a que resulta posible, según el invento, alimentar una mezcla de gases reactivos exentos de amoníaco o, según se ilustra, una mezcla obtenida adicionando a los reactivos frescos (nitrógeno e hidrógeno, conteniendo porciones inferiores de argón, metano y otros gases inertes) parte de los gases sin reaccionar procedentes de la zona de separación (S) en la que no se ha separado por completo el amoníaco.

La separación parcial del amoníaco puede obtenerse de forma muy conveniente por medio de una refrigeración indirecta no muy intensa, por ejemplo, con agua, utilizando las presiones parciales elevadas del amoníaco de los gases sin reaccionar; de este modo es posible evitar el empleo del ciclo refrigerante de frío intenso que se utiliza normalmente para reducir el porcentaje de amoníaco de los gases residuales.

Asimismo las figuras que se exponen en la figura 5 tienen un valor puramente ilustrativo y no limitativo; en la figura 6 se representa, igualmente con fines puramente ilustrativos, un esquema distinto del contenido de amoníaco en los gases que entran y salen de la capa catalítica.

El procedimiento que precede puede llevarse a cabo en diferentes tipos de aparatos.

Un nuevo y útil tipo de aparato, de conformidad con el invento, es un reactor que incorpora en una carcasa de presión única, preferiblemente vertical, de for-

414739

- 5 -



5. ma cilíndrica y dotada de cabezas acopadas o semiesféricas: un inyector completo con una cámara mezcladora y un difusor divergente, una cesta adiabática portadora de catalizador de sección transversal anular, cuyas paredes exteriores e interiores, coaxiales y externas con respecto a dicho inyector, están dotadas con orificios para la distribución y flujo radial de los gases procedentes de dicho inyector y, por último, una camisa térmicamente aislada, externa y coaxial con respecto a dicho inyector y cesta, cuya camisa recicla parte de los gases, procedentes de la cesta, hacia la entrada de dicho inyector.

15. Un ejemplo ilustrativo pero no limitativo se representa esquemáticamente en la figura 1. El reactor según este invento comprende, además, convenientemente, como se ilustra en la figura 2, una salida para la descarga del catalizador, situada en la parte inferior del reactor y, de preferencia, en el centro de la cabeza inferior, y otra salida para la descarga final de los productos de síntesis, dispuesta en la parte inferior del reactor, de preferencia en una posición coaxial externa con respecto a dicha salida de catalizador.

20. Por último puede preverse, de conveniencia, un interespacio de aislamiento térmico entre la pared exterior térmicamente aislada de la camisa y la pared interior de la carcasa de presión citada, y una entrada que introduzca, desde el exterior, en dicho interespacio una porción del gas de alimentación, de preferencia inferior al 20% del gas total, estando conectado directa-



mente dicho interespacio con la entrada de dicho inyector y, de preferencia, con la cavidad interna de la tobera de dicho inyector.

5. La proporción de la relación de reciclización entre el fluido propulsor y el gas reciclizado puede variarse desviando parte del fluido propulsor hacia la reciclización, según se indica, por ejemplo, en la figura 7. Por consiguiente, el control de la reciclización se logra por medio de una válvula de fluido.

10. Según se ilustra en la figura 3, el área de la sección de salida de la tobera de dicho inyector (S_1), de la cámara mezcladora citada (S_2) y de la salida terminal de dicho difusor (S_3), y además de longitud (L) y el diámetro (D) de la cámara mezcladora citada están

15. relacionados entre sí según las proporciones siguientes:

$$-S_2 : S_1 = \text{de } 3 : 1 \text{ a } 10 : 1$$

$$-S_3 : S_2 = \text{de } 10 : 1 \text{ a } 18 : 1$$

$$-L : D = \text{de } 6:1 \text{ a } 10 : 1;$$

20. además, la relación entre el área de la sección S_3 citada y el área de la sección anular de la cámara comprendida entre la pared externa del difusor y la pared interna de la cesta porta catalizador (S_4), debe ser sustancialmente igual a 1:1.

25. Una característica ulterior del reactor de conformidad con el invento consiste en una relación entre el área de las aberturas de las paredes interna y respectivamente externa de la cesta porta catalizador, superior a 1 y de preferencia comprendida entre 1,1 y 1,5.

Una realización apropiada del reactor de con-

414739



- formidad con este invento (ilustrada de forma esquemática en la figura 4) comprende, en el interior de la propia carcasa de presión que contiene el inyector, la cesta y la camisa antes referidos, asimismo un cambiador de calor en el que parte, por lo menos, de los gases de reciclización provenientes de dicha cesta, cambian calor, de forma indirecta, con otro fluido. En calidad de fluido que ha de ser empleado para el cambiador de calor puede utilizarse un fluido que no tome parte en la reacción, por ejemplo, agua, o un fluido implicado en la reacción, como son los gases de alimentación que, en este caso, se someten a un precalentamiento ulterior.

- Las ventajas que se derivan del reactor de conformidad con este invento son muy considerables.
- Una ventaja considerable viene dada, por ejemplo, por la posibilidad de descargar el catalizador por gravedad a través del fondo del reactor, con un apreciable ahorro de tiempo y de dispositivos elevadores que tendrían que emplearse si fuera necesario extraer las partes internas del reactor.

- Los reactores de conformidad con el invento son más sencillos, de mantenimiento mucho más fácil y menos gravosos que los adoptados hasta ahora, especialmente con respecto a los reactores de capas múltiples; éstos permiten reducir considerablemente las caídas de presión y energía, al tiempo que aseguran una excelente distribución del gas.

Por lo menos es posible obtener una reducción del número de dispositivos de control y refrigeración



entre las capas, así como una reducción de las áreas y volúmenes implicados, obteniéndose una simplificación de los problemas relacionados con las expansiones térmicas.

5. Así pues, habiéndose descrito el reactor y el procedimiento según el invento se ofrecen a continuación algunos ejemplos con fines ilustrativos pero no limitativos.

Ejemplo 1

10. Según se indica en la figura 2, una porción correspondiente al 15% de un flujo de gas de alimentación (1), conteniendo 8,5 % de amoníaco, a una temperatura de 50°C y bajo una presión de unos 250 kg/cm², penetra en el interespacio (2) y recubre las paredes interiores de la carcasa de presión (3) manteniéndolas a una temperatura inferior a 250°C.

15. A partir del interespacio comprendido entre la carcasa de presión y la camisa (4), con aislamiento térmico apropiado, el gas pasa a través de una abertura secundaria hacia el interior de la tobera (5), en donde se mezcla con la porción restante (35%) del gas de alimentación (6) precalentado a una temperatura de unos 350°C.

20. La mezcla arrastra el flujo de reciclización (7) del que recibe indirectamente el calor y lo vuelve a comprimir. Luego la mezcla pasa a la cámara mezcladora (8) y al difusor (9) y, a través de las aberturas (10), dentro de la cavidad interior (11) de la cesta de catalizador de flujo radial centrifugo (12). Esta cámara, que se extiende coaxialmente en torno del cuerpo

25.

44739

- 9 -



inyector, actúa en toda su extensión como un distribuidor de gas cuyas caídas de presión son totalmente inapreciables en comparación con las del lecho catalítico.

5. Los gases, a través de los orificios de entrada (13) y de salida (14), alcanzan el catalizador a una velocidad espacial de unos 52.500 h^{-1} , en donde reaccionan y luego pasan al interespacio (15).

Luego parte de los gases alcanzan el canal de salida (16) y abandonan el reactor.

10. La parte restante de los gases forma la reciclización (7) que es comprimida de nuevo por el inyector.

La abertura de salida (16) para el gas se encuentra en posición coaxial y externa con respecto a la boca (17) de descarga del catalizador.

15. La relación entre el área total de las aberturas (13) y respectivamente (14) es prácticamente igual a 1,4 : 1.

Ejemplo 2

20. Según la figura 5, una mezcla de gas fresco se comprime y mezcla con una corriente de gases sin reaccionar procedente de la zona de separación (S) y que contiene el 10% molar, aproximadamente, de amoníaco.

25. La mezcla resultante tiene una presión de unos 250 kg/cm^2 y es precalentada a 335°C utilizando el calor de los gases afluentes del reactor; éste comprende un inyector dispuesto en el interior de una cesta hueca y cilíndrica, llena con un catalizador, y la propia cesta.

En la cabeza del inyector los gases de entrada arrastran una reciclización de gases calientes que



5. forma el 68,8%, aproximadamente, de los gases que salen de la capa catalítica y que contienen el 18% molar, aproximadamente, de amoníaco. La mezcla que entra en contacto con el catalizador contiene el 14,5% molar, aproximadamente, de amoníaco. La reciclización conduce la temperatura de los gases, en la entrada hacia la capa catalítica, hasta unos 430°C.

La velocidad espacial asciende a unos 52.500 h⁻¹.

10. La porción de los gases que salen de la capa de catalizador, la cual no es reciclizada inmediatamente hacia el inyector y abandona el reactor, se enfría indirectamente con agua (con la consiguiente producción de vapor) y luego con los gases de alimentación. Por último estos gases se enfrían a unos 35°C por medio de un cambio de calor indirecto con agua.

15. De este modo se separan, por una parte el amoníaco y por la otra los gases sin reaccionar; éstos, debido a que la refrigeración en (S) no es muy intensa, contienen todavía una pequeña porción de amoníaco, de modo que la alimentación al inyector contendrá el 8,5% molar aproximadamente de NH₃.

20. Si bien se ha descrito el invento con referencia a formas particulares de realización, podrán introducirse modificaciones sin por ello apartarse del alcance de la esencialidad inventiva.

25.

= . =

N O T A

Se declaran nuevas y de propia invención, con prioridad italiana núms. 24342 A/72 del 15.5.72, 31854 A/72 del 20.11.72 y 33455 A/72 del 22.12.72, las siguientes:

414739



REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento con su dispositivo para la síntesis catalítica de amoníaco, a partir de 300° a 500°c y bajo una presión de entre 100 y 450 kg/cm², sobre una capa adiabática única de un catalizador a base de hierro, cuyo procedimiento comprende la reciclización directa hacia la entrada de dicha capa de una cantidad comprendida entre 30% y 80% de los gases que salen de la capa y que contienen, por lo menos, el 12% molar de amoníaco, siendo la diferencia (Δ s) entre los porcentajes molares del amoníaco en los gases que salen de dicha capa y que respectivamente penetran en ella del 3% al 6%.

2. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 1, caracterizado porque la velocidad espacial de dichos gases de entrada está comprendida entre 20.000 y 70.000 h⁻¹.

3. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 2, caracterizado porque dicha velocidad espacial está comprendida entre 50.000 y 70.000 h⁻¹.

4. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 1, caracterizado porque dicha presión está comprendida entre 200 y 300 kg/cm² y porque dicha reciclización directa está comprendida entre el 60% y el 75% de dichos gases afluentes y contiene, por lo menos, el 18% molar de amoníaco.

5. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 1, caracterizado porque la relación de

ME



reciclización se regula desviando parte del gas de alimentación, constituido por una porción de productos brutos de síntesis.

- 5. 6. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 1, caracterizado porque el dispositivo para su realización esta formado por un reactor que comprende en una carcasa de presión única, preferiblemente vertical, cilíndrica y con cabezas acopadas o semiesféricas: un inyector completo con una cámara mezcladora y un difusor
- 10. divergente, una cesta adiabática portadora de catalizador de sección transversal anular, cuyas paredes exteriores e interiores, coaxiales y externas con respecto a dicho inyector, están dotadas de aberturas para la distribución y flujo radial del gas procedente de dicho inyector y, por último, una camisa térmicamente aislada,
- 15. externa y coaxil con respecto a dicho inyector y cesta, reciclando dicha camisa parte de los gases procedentes de la cesta citada hacia la entrada de dicho inyector.

- 20. 7. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 6, caracterizado porque el dispositivo comprende una abertura de salida para la descarga del catalizador, situada en la parte inferior del reactor, de preferencia en el centro de la cabeza inferior.

- 25. 8. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 7, caracterizado porque el dispositivo comprende una abertura de salida para la descarga final de los productos de síntesis, situada en la parte inferior del

ME



414739

reactor, de preferencia en una posición coaxil y externa con respecto a dicha abertura de salida para la descarga del catalizador.

5. 9. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 6, caracterizado porque el dispositivo comprende, en el interior de la propia carcasa de presión única, asimismo un cambiador de calor en el que una porción, por lo menos, de los gases de reciclización, que salen de dicha cesta, cambia indirectamente calor con otro fluido.

10. 10. Un procedimiento, de conformidad con la reivindicación 6, caracterizado porque en el dispositivo para su realización el área de la sección transversal de salida de la tobera de dicho inyector (S₁), de la cámara mezcladora citada (S₂) y de la boca terminal de dicho difusor (S₃), y además la longitud (L) y el diámetro (D) de la cámara mezcladora citada están relacionados entre sí según las proporciones siguientes:

- S₂ : S₁ = de 3 : 1 a 10 : 1
- S₃ : S₂ = de 10 a 1 a 18 : 1
- L : D = de 6 : 1 a 10 : 1.

20. 11. Un procedimiento con su dispositivo para la síntesis catalítica de amoníaco.

Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 13 hojas foliadas y escritas a máquina por una sola cara.

25.

ME

Madrid, a 14 de Mayo de 1973
P. a. JAIME ISERN

P. P.

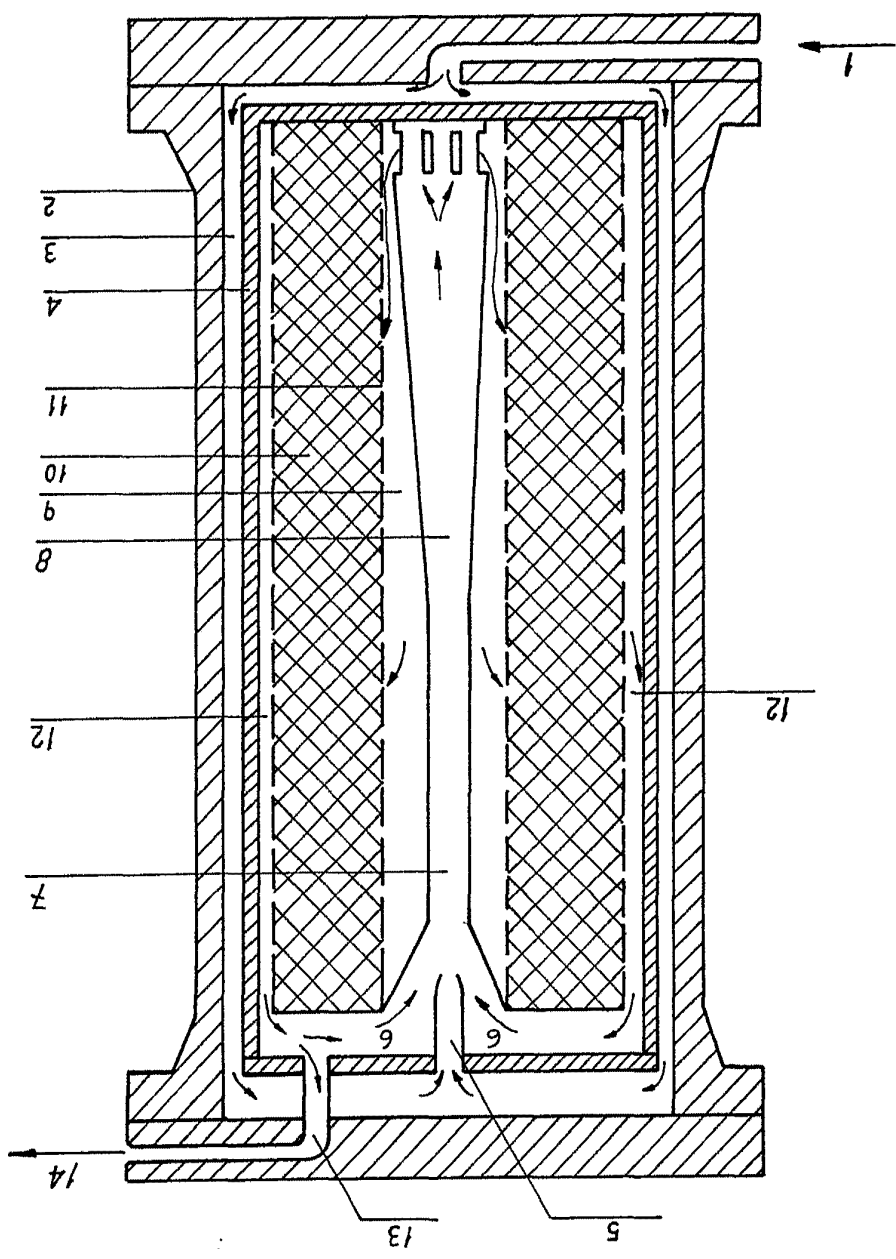
Firmado: JOSE L. MORA

INVENTOR: J. A. IBERN

J. A. Ibern
P. A.
JAIMÉ IBERN

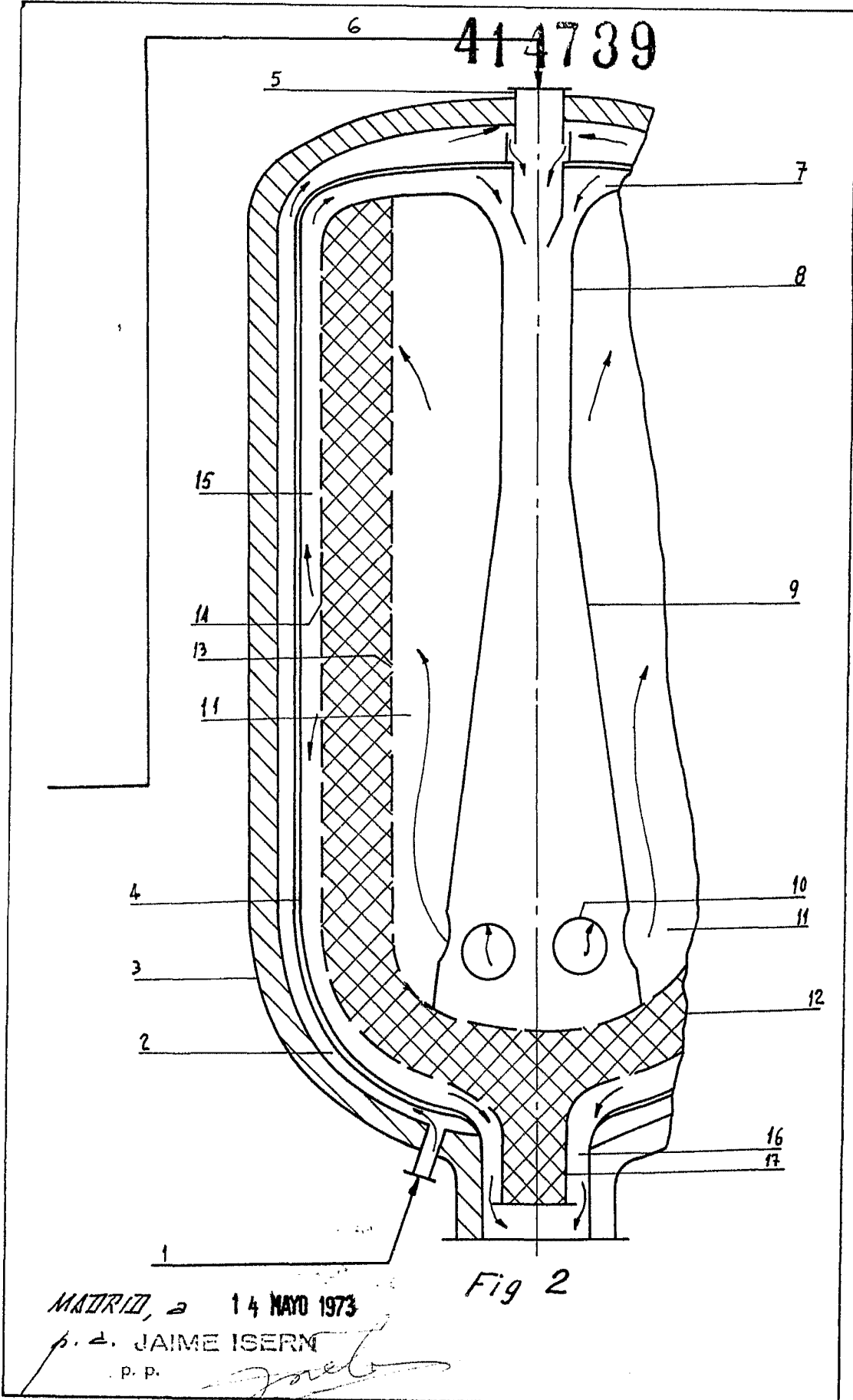
MADRID, a 14 MARZO 1973

Fig 1



414739

MONTEFATTINI EDISON S.P.A. 740045 MADRID



MADRID, a 14 MAYO 1973

p. d. JAIME ISERN

P. P.

Firmado: FENIFE PRIETO

414739

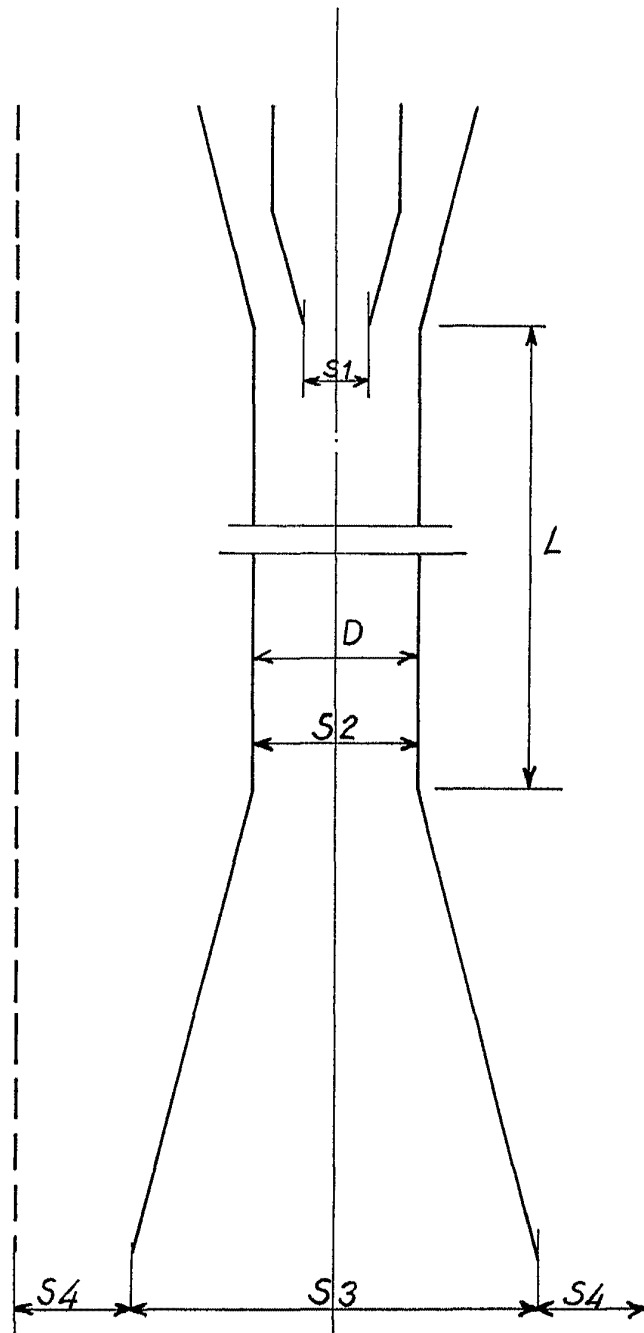


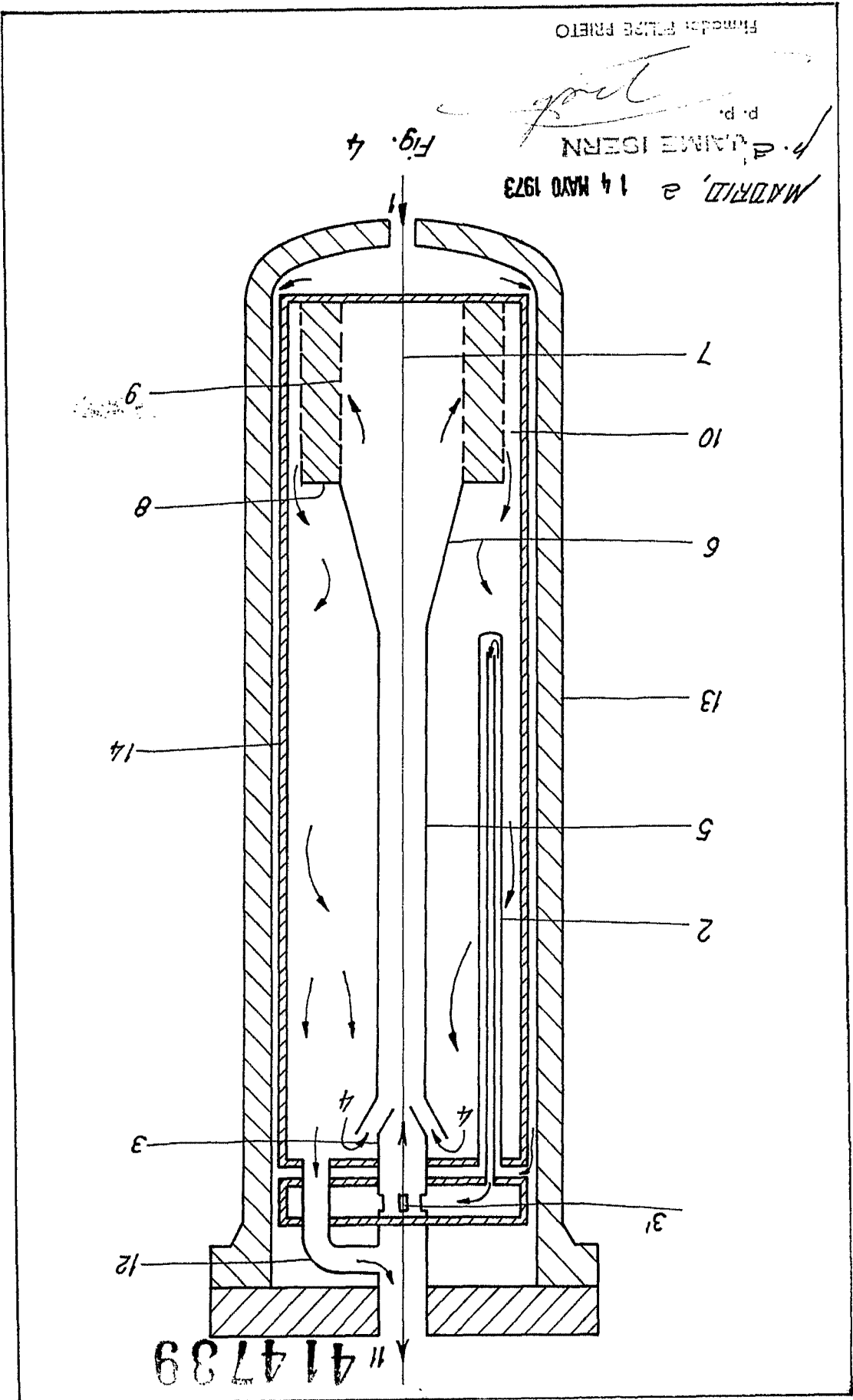
Fig 3

MAZIRIZ, a 14 MAYO 1973

p. a. JAIME ISERN

p. p.

Firmado: FELIPE PRIETO



INVENTOR: FELIX PRIETO

MADRID, a 14 MAYO 1973

F. P. RAINIERI SERN

pat. no.

414739

MONTECATINI EDISON S.P.A. 740045 40744

414739

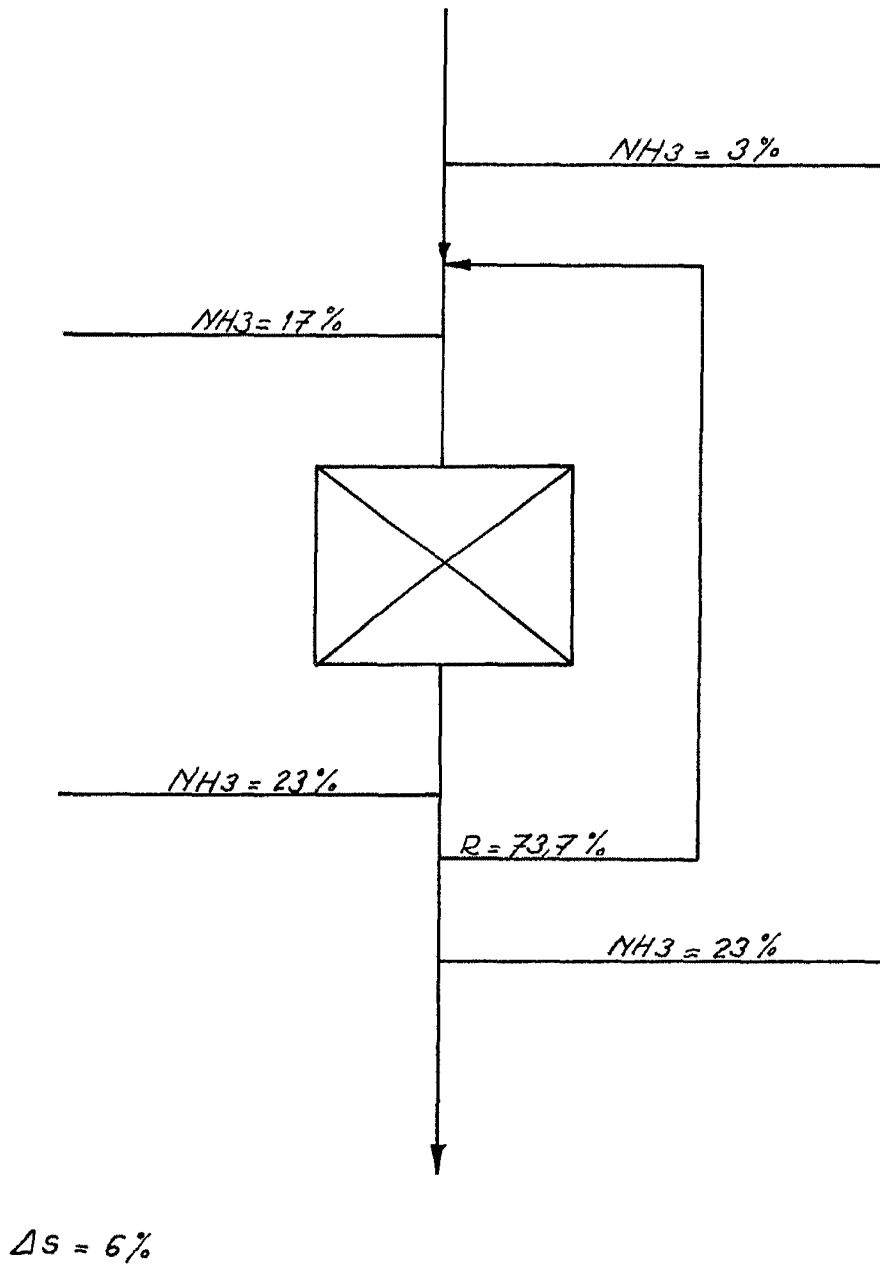


Fig. 6

MADRID, 14 MAYO 1973

p. 2. JAIME ICERN
p. p. *[Signature]*

414739

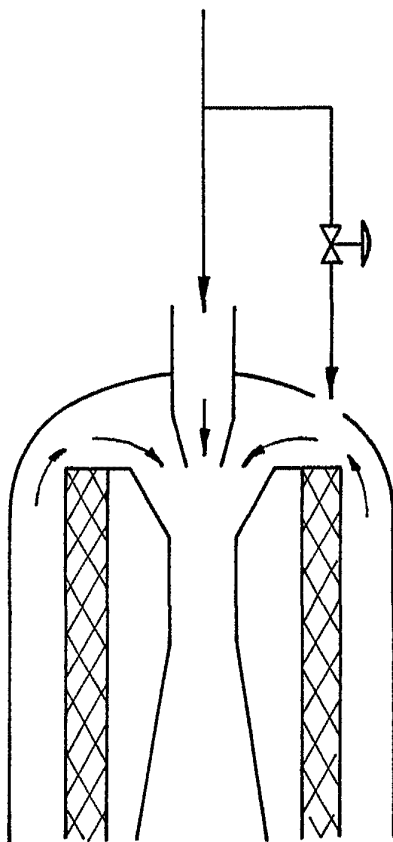


Fig. 7

MADRID, a 14 MAYO 1973

JAIMÉ ISERN

P. P.

Encomendado: FELIPE PRIETO