



[B] (11) **KUULUTUSJULKAISU** 71540
UTLÄGGNINGSSKRIFT

C (45) Patenti myönnetty
Patent beviljat 10 01 1987

(51) Kv.lk./Int.Cl.⁴ C 01 C 1/04

SUOMI—FINLAND

(FI)

Patentti- ja rekisterihallitus
Patent- och registerstyrelsen

(21) Patentihakemus — Patentansökning 770763
(22) Hakemispäivä — Ansökningsdag 09.03.77
(23) Alkupäivä — Giltighetsdag 09.03.77
(41) Tullut julkiseksi — Blivit offentlig 11.09.77
(44) Nähtäväsipanon ja kuul.julkaisun pvm. —
Ansökan utlagd och utl.skriften publicerad 10.10.86
(86) Kv. hakemus — Int. ansökan
(32)(33)(31) Pyydetty etuoikeus — Begärd prioritet 10.03.76
Englanti-England(GB) 9452/76

- (71) Haldor Topsøe A/S, 55, Nymøllevej, Lyngby, Tanska-Danmark(DK)
(72) Haldor Frederik Axel Topsøe, Vedbæk, Erik Andreas Gam, Humbebæk,
Tanska-Danmark(DK)
(74) Oy Kolster Ab
(54) Menetelmä ammoniakin valmistamiseksi kohotetussa paineessa ja lämpö-
tilassa sekä laite menetelmän toteuttamiseksi - Förfarande för fram-
ställning av ammoniak vid höjt tryck och höjd temperatur samt apparat
för genomförande av förfarandet

Esillä oleva keksintö koskee menetelmää ammoniakin valmistamiseksi kohotetussa paineessa ja lämpötilassa, jossa menetelmässä käytetään syöttövirtauksen syöttöaukolla ja tuotevirtauksen poistaukolla varustetun reaktorivaipan sekä vaipan ympäröimän, katalyyttikerroksilla varustetun katalyyttiosan käsittävää reaktoria, ja jossa menetelmässä syötetään synteetikaasun prosessivirtaus peräkkäin ensimmäisen katalyyttikerroksen läpi, keskeisesti sijoitetun lämmönvaihtimen läpi ja toisen katalyyttikerroksen läpi, jolloin käytetään synteetikaasun syöttövirtausta reaktorin vaipan jäähdyttämiseksi ja synteetikaasun syöttövirtausta prosessivirtauksen jäähdyttämiseksi.

Keksintö käsittää myös laitteen menetelmän toteuttamiseksi.

Ammoniakkisynteesi suoritetaan antamalla synteetikaasun prosessivirtauksen, jossa on suunnilleen 3 osaa vetyä ja 1 osa typpeä, virrata katalyytin läpi, joka on reaktorissa yhtenä tai usempana kerroksena kohotetussa paineessa ja lämpötilassa.

Vaikka vedyn ja typen konsentraatio synteetikaasussa on lähes stökiometrisessä suhteessa ammoniakin muodostumiseksi ei tapahdu

täydellistä reagoimista ammoniakiksi prosessivirtauksen kulkiessa ker-
ran reaktorin läpi. Syynä tähän on se, että ammoniakin tasapainokon-
sentraatio stökiometrisessä synteesikaasussa on normaalikäyttöolosuh-
teissa alle 20 tilavuus-% ja tyypillisesti 15 - 18 tilavuus-%. Niinpä,
kun on erotettu suurin osa ammoniakista synteesikaasun reaktorista
poistuvasta tuotevirtauksesta, jää jäljelle ammoniakkia sisältävää
synteesikaasua, joka johdetaan uuden synteesikaasun mukana uudelleen
reaktoriin.

Ammoniakkituotannon tärkeä tekijä on synteesikaasun puristami-
sen ja uudelleenkierrätyksen energiakustannukset. Tämä merkitsee sitä,
että voidaan saavuttaa huomattavia säästöjä lisäämällä ammoniakkimää-
rää, joka määrätyissä käyttöolosuhteissa muodostuu katalyytin läpi vir-
taavan synteesikaasun tilavuusyksikköä kohti. Toisin sanoen, suuri am-
moniakkipitoisuus synteesikaasun katalyytin jälkeisessä tuotevirtauk-
sessa on tärkeä ammoniakkivalmistuksen hyvän taloudellisuuden saavutta-
miseksi.

Ammoniakkisynteesi on eksotermien reaktio, so. synteesikaasun
virratessa katalyytin läpi sen lämpötila kasvaa. Tämä lämpötilan kas-
vu siirtää tasapainokonsetraatiota pienemmän ammoniakkikonsentraation
suuntaan. Siten on tärkeää rajoittaa lämpötilan kasvua jäähdyttämällä
joko katalyyttiä tai synteesikaasua. Useat jäähdytystavat ovat tunnet-
tuja.

GB-patenttijulkaisussa n:o 1 204 634 katalyytti asetetaan reak-
toriin kahtena tai useampana erillisenä katalyyttikerroksena ja kerros-
ten väliin johdetaan kylmää synteesikaasua. Tämä voidaan suorittaa yk-
sinkertaisella menetelmällä mutkistamatta käyttöä liiaksi, mutta tämän
menetelmän haittana on se, että osittain reagoanut synteesikaasu lai-
mentuu reagoimattomalla synteesikaasulla, jolloin synteesikaasun vii-
meisestä katalyyttikerroksesta tulevan tuotevirtauksen ammoniakkipi-
toisuus tulee olemaan alhaisempi.

Osittain reagoineen synteesikaasun laimeneminen voidaan välttää
käyttämällä toista, epäsuoraan jäähdyttämiseen perustuvaa jäähdytys-
menetelmää. Tällöin reaktoriin asennetaan yksi tai useampi lämmönvaih-
din joko suoraan katalyyttikerrokseen tai eri katalyyttikerrosten vä-
liin. Tällä tavalla voidaan jäähdyttää lämmönvaihtimien kierrättäessä
kylmää synteesikaasua, joka tällöin lämpiää käytettäväksi ammoniakki-
synteesissä. Tällaisissa lämmönvaihtimissa käytetty jäähdytysaine voi
myös olla paineenalainen vesi, jota myöhemmin voidaan käyttää höyryn
valmistukseen.

Epäsuoraa jäähdytystä ei kuitenkaan ole tähän saakka teollisesti käytetty suuremmassa mittakaavassa. Tämä johtuu lähinnä siitä, että lämmönvaihdin putkineen, jäähdytysaineen johtamiseksi siihen ja siitä pois, vie paljon tilaa. Erityisesti tapauksissa, jolloin suora lämmönvaihto perustuu höyryn muodostumiseen, tarvittavat laitteet ovat melko monimutkaisia, koska jäähdytysvesi on johdettava ulkopuoliseen höyrynkehittimeen reaktorivaipan läpi.

Esillä oleva keksintö perustuu ajatukseen, että yllä mainitut haitat voidaan vähentää tai poistaa menetelmällä, jossa synteetikaasua jäähdytetään katalyyttikerrosten välissä kylmällä lisäsynteetikaasulla epäsuoran lämmönvaihdon avulla. Tällöin käytetään lämmönvaihdinta, jonka tilantarve on mahdollisimman pieni ja joka mahdollistaa huomattavasti yksinkertaisemman hoidon.

Keksinnön mukaiselle menetelmälle on tunnusomaista, että prosessivirtaus aikaansaadaan yhdistämällä yhdistämiskohdassa synteetikaasun erilliset syöttövirtaukset, jotka sitä ennen yhteensä ovat suorittaneet seuraavat tehtävät:

- a) vaipan jäähdyttäminen siten, että vaippavirtaus kulkee tuloaukosta yhdistämiskohtaan rengasmaisen tilan kautta, vaippaa pitkin,
- b) ensimmäisestä katalyyttikerroksesta tulevan prosessivirtauksen jäähdyttäminen ennen sen saapumista toiseen katalyyttikerrokseen siten, että lämmönvaihtovirtaus kulkee tuloaukosta yhdistämiskohtaan sisäisen lämmönvaihtimen kautta, ja
- c) yhdistetyn prosessivirtauksen lämpötilan säätäminen siten, että kylmempi kiertovirtaus johdetaan tuloaukosta yhdistämiskohtaan, ja että tällä tavalla yhdistetty prosessivirtaus johdetaan peräkkäin radiaalisesti sisäänpäin ensimmäisen katalyyttikerroksen läpi, sisäisen lämmönvaihtimen läpi, jolloin prosessivirtaus jäähtyy lämmönvaihtimivirtauksen kanssa tapahtuvan epäsuoran lämmönvaihdon ansiosta, ja radiaalisesti sisäänpäin tai ulospäin toisen katalyyttikerroksen läpi.

Keksinnön mukaiselle reaktorille on tunnusomaista, että reaktorissa on 2 katalyyttikerrosta, joissa kummassakin on katalyyttiä samankeskeisten rei'ällisten seinämien ja näiden päihin liitettyjen levyjen rajoittamissa rengasmuotoisissa tiloissa, kanavia 2 syöttövirtausta varten, käsittäen yhden kanavan, joka on tarkoitettu tuloaukosta tulevaa vaippavirtausta varten, joka kulkee vaipan ja tämän kanssa samankeskeisen lieriömäisen levyn rajoittaman rengasmaisen ti-

lan kautta yhdistämiskohtaan, mahdollisesti toisen katalyyttikerroksen keskelle sijoitetun sisäisen lämmönvaihtimen kautta, ja toisen kanavan, joka on tarkoitettu tuloaukosta tulevaa syöttövirtausta varten, johtaen sitä kiertovirtauksena yhdistämiskohtaan, mahdollisesti kolmas kanava kolmatta syöttövirtausta varten, joka kulkee lämmönvaihtovirtauksena tuloaukosta sisäisen lämmönvaihtimen kautta yhdistämiskohtaan, ja kanavia synteetikaasun prosessivirtausta varten, joka muodostuu, kun syöttövirtaukset yhtyvät yhdistämiskohdassa, ja joka kulkee mainitusta yhdistämiskohdasta radiaalisesti sisäänpäin ensimmäisen katalyyttikerroksen läpi, sitten sisäisen lämmönvaihtimen läpi, jossa se jäähtyy välillisesti tuloaukosta tulevan syöttövirtauksen johdosta, ja radiaalisesti sisäänpäin tai ulospäin toisen katalyyttikerroksen läpi, jolloin muodostuu tuotevirtaus, joka kulkee poistoaukkoon.

Seuraavassa keksintöä kuvataan tarkemmin viitaten kuvioihin, joista kuviot 1 - 6 esittävät kaavamaisesti keksinnön mukaisen reaktorin erilaisia toteuttamismuotoja pitkittäisleikkauksena ja kuviossa 7 on kaavio, jossa verrataan keksinnön mukaista menetelmää ja tunnettua menetelmää ammoniakkin valmistamiseksi.

Keksinnön mukaisen reaktorin tärkeimmät osat ovat ensimmäinen katalyyttikerros 21, toinen katalyyttikerros 22, ensimmäiseen katalyyttikerrokseen asennettu keskuslämmönvaihdin 41, ja yhdysputki 42, joka ulottuu toisen katalyyttikerroksen keskustan läpi. Tämä yhdysputki kuljettaa yhtä syöttövirtausta.

Reaktoria ympäröi vaippa 11. Tämä on varustettu synteetikaasun useiden erillissyöttövirtausten tuloaukoilla, jolloin tuloaukko 12 on synteetikaasun vaippavirtausta varten, tuloaukko 13 on synteetikaasun lämmönvaihtovirtausta varten ja tuloaukko 14 on synteetikaasun kierrätysvirtausta varten. Vaipassa on lisäksi synteetikaasun tuotevirtauksen poistoaukko 15. Joissakin tapauksissa sama tuotevirtaus voi ensin toimia vaippavirtauksena ja sitten lämmönvaihtovirtauksena, jolloin kuvioiden 2, 3 ja 5 mukaisesti tuloaukko 13 voidaan jättää pois.

Kuvioissa 1 ja 6 esiintyy reaktorivaipan pohjassa oleva alin lämmönvaihdin 61, mutta se ei ole oleellinen osa keksinnön mukaisessa reaktorissa ja voidaan joissakin tapauksissa jättää pois, kuten kuvioista 2, 3, 4 ja 5 ilmenee. Reaktorin tärkeiden osien ja mahdollisen pohjalämmönvaihtimen 61 tarkastuksen ja huollon helpottamiseksi reaktori on varustettu irrotettavalla kannella 16.

Molemmat katalyyttikerrokset 21 ja 22 ovat alekkain yhteisen akselin ympärillä ja molemmissa on tämän akselin ympärillä lieriömäinen keskustila. Lämmönvaihdin 41 on asennettu toisen katalyyttikerroksen lieriömäiseen tilaan ja keskusyhdysputki 42 toisen katalyyttikerroksen lieriömäiseen tilaan.

Ensimmäinen katalyyttikerros 21 on rengasmainen ja asennettu kahden samankeskisen rei'itetyn seinämän, eli sisäseinämän 23 ja ulkoseinämän 24, väliin. Näiden rei'itettyjen seinämien alapää on kiinnitetty levyyn 25, joka kannattaa ensimmäisen katalyyttikerroksen katalyyttiä. Yläpäästään rei'itetty levyt on kiinnitetty toiseen levyyn 26, joka sulkee ensimmäisen katalyyttikerroksen ja samalla kannattaa toisen katalyyttikerroksen katalyyttiä. Jotta katalyytti voidaan helposti lisätä ensimmäiseen katalyyttikerrokseen 21 ja poistaa siitä, levy 26 on varustettu irrotettavalla kannella (ei näy kuviossa 1), joka voidaan avata toisen katalyyttikerroksen ollessa tyhjä.

Kuten ensimmäinen katalyyttikerros 21 on toinenkin katalyyttikerros 22 rengasmainen ja asennettu kahden samankeskisen rei'itetyn seinämän eli sisäseinämän 27 ja ulkoseinämän 28 väliin. Näiden rei'itettyjen seinämien alapää on kiinnitetty levyyn 26 ja yläpää peitelevyyn 29. Katalyytin täytön tai poiston aikana peitelevy 29 voidaan poistaa kokonaan tai se voidaan avata osittain.

Prosessin optimoimiseksi toisessa katalyyttikerroksessa 22 on enemmän katalyyttiä kuin ensimmäisessä katalyyttikerroksessa 21.

Keskukslämmönvaihdin 41 on asennettu ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 lieriömäisen tilan keskelle. Keskukslämmönvaihtimen ja rei'itetyn sisäseinämän 23 välissä on rengasmainen tila, jossa ensimmäisestä katalyyttikerroksesta tuleva prosessivirtaus kulkee. Kuten kuviossa 1 keskukslämmönvaihdin 41 voi olla useilla samansuuntaisilla putkilla 43 varustettua tyyppiä. Tässä tyyppissä virtaa yksi syöttövirtauksista jäähtytysaineena putkien läpi ja prosessivirtaus rengasmaisesta tilasta 52 virtaa putkien ympärillä, jolloin se jäähtyy ennen syöttämistä toiseen katalyyttikerrokseen 22. Keskukslämmönvaihdin voi myös olla muuta sopivaa tyyppiä, esim. samalla tavoin toimivaa lamellityyppiä.

Yhdysputki 42 on asennettu toiseen katalyyttikerrokseen ja sen tehtävänä on syöttövirtauksen kuljettaminen keskukslämmönvaihtimeen 41. Yhdysputken 42 ja rei'itetyn sisäseinämän 27 välissä on rengasmainen tila 53, jossa prosessivirtaus johdetaan toiseen katalyyttikerrokseen 22.

Lieriölevy 31 muodostaa reaktorivaipan kanssa rengasmaisen välitilan 55 synteesikaasun vaippavirtausta varten, joka syötetään tuloaukon 12 ja katalyyttikerrosta 22 ympäröivän rengasmaisen tilan 54 kautta. Toinen lieriölevy 32 ympäröi ensimmäistä katalyyttikerrosta 31 muodostaen rengasmaisen välitilan 51. Lisäksi on kanavia synteesikaasun vaippavirtauksen johtamiseksi rengasmaisesta tilasta 55 pohjalämmönvaihtimen 61 kautta rengasmaiseen tilaan 51. Vaippavirtauksen kulkiessa näiden kanavien läpi siihen yhtyy synteesikaasun kierrätysvirtaus tuloaukosta 14 ja synteesikaasun lämmönvaihtovirtaus keskuslämmönvaihtimesta 41 ja muodostuu synteesikaasun prosessivirtaus, joka syötetään ensimmäiseen katalyyttikerrokseen.

Kaikkien syöttövirtausten kanavat kohtaavat kohdassa 45 katalyyttikerrosten yhteisellä akselilla. Tästä kohdasta 45 synteesikaasuvirtaus suunnataan ulospäin säteissuuntaisen kanavan 46 kautta ensimmäisen katalyyttikerroksen ulkopuolelle. Tässä säteiskana-
vassa syöttövirtaukset sekoittuvat synteesikaasun lämpötilaerojen tasoittamiseksi ennen sen syöttämistä ensimmäiseen katalyyttikerrokseen.

Kuvioissa 2, 3, 4, 5 ja 6 nähdään keksinnön mukaisen reaktorin muita toteuttamismuotoja. Neljässä näistä (kuviot 2, 3, 4 ja 5) on kuviossa 1 näkyvä reaktorin pohjalämmönvaihdin 61 jätetty pois ja kahdessa muussa (kuviot 5 ja 6) virtaussuunta toisen katalyyttikerroksen läpi muutettu sisäänpäinsuuntautuvaksi. Lisäksi eri osien keskinäinen järjestys on toinen kuin kuviossa 1. Tämä merkitsee muutoksia syöttövirtausten tulokohdissa ja synteesikaasuvirtauksen kanavissa reaktorissa. Kuitenkin kaikki oleelliset olosuhteet ja toiminnot reaktorissa pysyvät muuttumattomina ja siksi kaikissa kuvioissa on vastaavista osista käytetty samoja viitemerkintöjä. Niinpä kuvioita 2, 3, 4, 5 ja 6 kuvataan vain, jos ne huomattavasti poikkeavat kuviosta 1.

Kuviossa 2 synteesikaasun vaippavirtaus toimii samalla lämmönvaihtovirtauksena. Tästä syystä synteesikaasun lämmönvaihtovirtauksen tuloaukko 13 on jätetty pois ja yhdysputki 42 on liitetty siten, että se vastaanottaa vaippavirtauksen ja johtaa sen keskuslämmönvaihtimeen 41, jossa se toimii lämmönvaihtimen toisena virtauksena. Kaikissa muissa suhteissa reaktorin eri osien keskinäinen järjestys on sama kuin kuviossa 1 lukuunottamatta pohjalämmönvaihtimen poisjättämistä.

Kuvioiden 3 ja 2 ainoa ero on, että kuviossa 3 keskuslämmönvaihdin 41 on asennettu erilleen toisesta katalyyttikerroksesta 22. Tämä merkitsee sitä, että vaippavirtaus voidaan johtaa suoraan keskuslämmönvaihtimeen 41, jossa se toimii toisena virtauksena yhdysputken 42 vastaanottaessa sen lämmönvaihtimesta 41. Muita seurauksia on rengasmaisen tilan 53 asentaminen sisäseinämän 27 ja keskuslämmönvaihtimen 41 väliin ja rengasmaisen tilan 52 asentaminen sisäseinämän 23 ja yhdysputken 42 väliin. Kuviossa 4 ensimmäinen katalyyttikerros 21 on asennettu toisen katalyyttikerroksen 22 yläpuolelle, so. levy 26 kantaa ensimmäistä katalyyttikerrosta 21 ja sen sulkee levy 29, ja levy 25 kantaa toista katalyyttikerrosta ja sen sulkee levy 26. Kaikissa muissa suhteissa levyillä 25, 26 ja 29 on samat tehtävät kuin kuviossa 1. Keskuslämmönvaihdin 41 on asennettu erilleen ensimmäisestä katalyyttikerroksesta 21. Kuviossa 4 nähdään, että tämä katalyyttikerrosten keskinäinen järjestys on yksinkertaistanut synteesikaasun eri virtausten kanavien kulkua. Siten levy 32 ei ole välttämätön rengasmaisen välitilan 51 muodostamiseksi ja tästä syystä se on jätetty pois.

Kuviossa 5 ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 ja toisen katalyyttikerroksen 22 sekä keskuslämmönvaihtimen 41 keskinäinen järjestys kuten kuviossa 4. Kuitenkin on muutettu eri virtausten kanavien kulkua prosessivirtauksen suuntaamiseksi toisen katalyyttikerroksen 22 läpi, so. rengasmaisesta tilasta 54 kanavan kautta rengasmaiseen tilaan 53. Tämä edellyttää, että kuvion 4 levy 26 on korvattu kahdella erillisellä levyllä 26a ja 26b kuviossa 5 antamaan tilaa kanavalle ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 ja toisen katalyyttikerroksen 22 välillä. Vastaavasti rengasmaisen levy 32, joka voitiin jättää pois kuviossa 4, on mukana kuviossa 5 muodostaen rengasmaisen tilan 51 ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 ympärillä.

Rakenne kuviossa 6 on pääasiassa sama kuin kuvion 5 toteuttamis-
muodossa sillä erolla, että kuviossa 6 lämmönvaihdin 61 on asennettu pohjaan.

Kuvioiden 5 ja 6 reaktorirakenteiden erilliset levyt 26a ja 26b, jotka muodostavat kanavan katalyyttikerrosten 21 ja 22 väliin, mahdollistavat ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 ja keskuslämmönvaihtimen 41 irrottamisen tarkastusta, huoltoa tai katalyytin vaihtoa varten.

Keksinnön mukaista ammoniakkisynteesimenetelmää kohotetussa lämpötilassa ja paineessa kuvataan seuraavassa yleisesti viitaten kuvioiden 1, 2, 3, 4, 5 ja 6 mukaisiin reaktoreihin.

Katalyyttikerrosten läpi syötettävä synteesikaasuprosessivirtaus saadaan yhdistämällä synteesikaasun kahta tai useampaa syöttövirtausta. Nämä syöttövirtaukset ovat vaippavirtaus tuloaukosta 12, lämmönvaihtovirtaus tuloaukosta 13 ja kierrätysvirtaus tuloaukosta 14. Joissakin tapauksissa, kun pohjassa ei ole lämmönvaihdinta, vaippavirtaus voi sitten toimia lämmönvaihtovirtauksena ja siten lämmönvaihtovirtauksen tuloaukko 13 voidaan jättää pois (kuviot 2, 3 ja 5). Mutta pohjalämmönvaihtimen mukanaolosta riippumatta käytön monipuolisuuden kannalta on eduksi, että vaippavirtauksella ja lämmönvaihtovirtauksella on erillissyöttövirtaukset (kuvio 4).

Käytettäessä pohjalämmönvaihdinta 61 on välttämätöntä, että erilliset syöttövirtaukset toimivat vaippavirtauksena ja lämmönvaihtovirtauksena (kuviot 1 ja 6). Synteesikaasun prosessivirtaus, joka eri virtausten suhteen ja lämpötilan oikealla säädöllä on saavuttanut ensimmäisen katalyyttikerroksen edellyttämän lämpötilan, johdetaan rengasmaisesta tilasta 51 säteissuuntaisesti ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 läpi, josta se joutuu rengasmaiseen tilaan 52. Sitten synteesikaasun prosessivirtaus virtaa keskuslämmönvaihtimen 41 lämpimälle puolelle jäähtyen epäsuorassa lämmönvaihdossa synteesikaasun lämmönvaihtovirtauksen kanssa joutuessaan rengasmaiseen tilaan 53 (kuviot 1, 2, 3 ja 4) tai rengasmaiseen tilaan 54 (kuviot 5 ja 6). Niistä synteesikaasun prosessivirtaus johdetaan säteissuuntaisesti toisen katalyyttikerroksen 22 läpi ja synteesikaasun tuotevirtaus saadaan rengasmaisessa tilassa 54 (kuviot 1, 2, 3 ja 4) tai rengasmaisessa tilassa 53 (kuviot 5 ja 6).

Esimerkki 1

Ammoniakkitehtaassa, jonka tuotantoteho on 1000 tonnia päivää kohti, voidaan keksinnön mukainen menetelmä kuvion 1 mukaisen reaktorin avulla toteuttaa pääpiirteittäin tässä esimerkissä kuvatulla tavalla.

Molemmat katalyyttikerrokset täytettiin ammoniakkisynteesikatalyytillä, hiukkaskoko 1,5-3,0 mm. Ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 katalyyttitilavuus oli 12 m³ ja toisen katalyyttikerroksen 22 29 m³. Eri virtausten synteesikaasun koostumus, tuotevirtauksen koostumus ja muut tähän esimerkkiin liittyvät arvot ilmevät taulukosta I. Reaktori toimi paineessa noin 270 kg/cm².

Syötettiin lämpötilassa noin 120°C $151\ 480\ \text{Nm}^3/\text{h}$ vaippavirtausta tuloaukon 12 kautta. Vaippavirtaus kulki ensin rengasmuotoisen tilan 55 kautta, jossa se jäähdytti riittävästi reaktorin vaippaa suojaten sitä liialliselta lämmöltä. Sitten vaippavirtaus virtasi pohjassa olevaan lämmönvaihtimeen 61. Täällä vaippavirtaus lämpeni epäsuorassa lämmönvaihdossa tuotevirtauksen kanssa, joka poistui sitten aukon 15 kautta.

Syötettiin lämpötilassa noin 120°C $191\ 450\ \text{Nm}^3/\text{h}$ synteesikaasun lämmönvaihtovirtausta tuloaukon 13 ja yhdysputken 42 kautta keskuslämmönvaihtimen 41 läpi. Täällä lämmönvaihtovirtaus jäähdyttää prosessivirtausta, joka johdetaan ensimmäisestä katalyyttikerroksesta 21 toiseen katalyyttikerrokseen 22. Lämmönvaihtovirtaus luovuttaa lämmönvaihtimelle lähellä reaktiolämpötilaa olevan lämpötilan ja johdetaan vaippavirtauksen kera pohjalämmönvaihtimesta 61.

Syötettiin lämpötilassa noin 120°C $40\ 000\ \text{Nm}^3/\text{h}$ kierrätysvirtausta tuloaukon 14 kautta. Määrätyssä kohdassa molempien katalyyttikerrosten yhteisellä akselilla kierrätysvirtaus, vaippavirtaus ja lämmönvaihtovirtaus yhtyvät muodostaen $382\ 930\ \text{Nm}^3/\text{h}$ synteesikaasun prosessivirtausta lämpötilassa 360°C . Prosessivirtauksen muodostavan kolmen virtauksen keskinäistä suhdetta voidaan säätää ajon aikana halutun lämpötilan saavuttamiseksi ensimmäisen katalyyttikerroksen tulokohdassa. Rengasmaisen tilan 51 kautta prosessivirtaus virtaa ensimmäisen katalyyttikerroksen 21 läpi, jonka lämpötila kohoaa 520°C :seen eksotermisen reaktion ansiosta, jolloin ammoniakkipitoisuus kasvaa 3,5 tilavuus-%:sta 14,4 tilavuus-%:iin. Virratessaan sitten keskuslämmönvaihtimen 41 läpi prosessivirtaus jäähtyy 390°C :seen ja johdetaan rengasmaisen tilan 53 kautta toisen katalyyttikerroksen 22 läpi, jossa se lämpiää 472°C :seen ja samalla ammoniakkipitoisuus kasvaa 20,8 tilavuus-%:iin. Synteesikaasun tuotevirtaus joutuu rengasmaiseen tilaan 55, virtaa jäähtyen pohjalämmönvaihtimen 61 läpi ja lopuksi poistokohtaan 15 lämpötilassa 360°C .

Esimerkit 2-6

Keksinnön mukaisen ammoniakksynteesimenetelmän lisäesimerkkien arvot ilmenevät taulukosta I. Esimerkit 2-6 vastaavat esimerkkiä 1, paitsi että menetelmä toteutetaan kuvioiden 2 - 6 reaktorien muina rakenteina. Kuten esimerkeistä 1-6 ilmenee pohjalämmönvaihdin 61 jäähdyttää tuotekaasua sen poistuessa reaktorista reaktorivaipan poistokohdan 15 kautta. Ilman tätä jäähdytystä

tuotekaasu poistuu reaktorista hyvin korkeassa lämpötilassa. Joskin tällainen kohonnut lämpötila edellyttää lämmönkestävien materiaalien huolellisempaa valintaa, pohjalämmönvaihdin voidaan jättää pois tapauksissa, joissa tuotekaasun lämpö halutaan käyttää korkeapainehöyryn valmistukseen. Siksi pohjalämmönvaihdin on jätetty pois esimerkeissä 2 - 5 (kuviot 2 - 5).

Keksinnön mukaisen reaktorin ja menetelmän huomattavana taloudellisena etuna on, että voidaan saavuttaa suuri tuotemäärä katalyyttikerrosten läpi syötettävän synteetikaasun tilavuusyksikköä kohti. Tämä suuri tuotemäärä saavutetaan jäädyttämällä laimentamatta synteetikaasun prosessivirtausta molempien katalyyttikerrosten välissä ja säätämällä haluttu lämpötila molempien katalyyttikerrosten tulokohdassa. Ammoniakkisynteetikatalyytin optimihyödyn saavuttamiseksi on ratkaisevaa, että katalyyttikerrosten lämpötilat voidaan valita toisistaan riippumatta. Tämä on mahdollista keksinnön mukaisessa konvertterissa ja menetelmässä synteetikaasun eri virtausmäärien keskinäisen suhteen joustavuuden ansiosta.

Tämä keksinnön mukaisen reaktorin ja menetelmän etu voidaan edelleen osoittaa käyrien avulla, joista ilmenee lämpötila- ja ammoniakkipitoisuusvaihtelut synteetikaasun prosessivirtauksen virratessa molempien katalyyttikerrosten läpi. Kuvion 7 käyrä A esittää termodynaamista tasapainokonsentraatiota, joka vastaa esimerkin 1 painesuhdetta ja synteetikaasukoostumusta. Käyrä B esittää tämän tasapainon 10⁰C:een likiarvoa vastaten käytännössä saavutettavaa likiarvoa.

Kuvion 7 muut käyrät esittävät muutoksia synteetikaasun prosessivirtauksen lämpötilassa ja ammoniakkipitoisuudessa sen virratessa katalyyttikerrosten läpi kahdessa eri tapauksessa. Esimerkin 1 olosuhteita vastaava tapaus on merkitty jatkuvalla viivalla. Tällöin synteetikaasu syötettiin ensimmäiseen katalyyttikerrokseen lämpötilassa 360⁰C ammoniakkipitoisuuden ollessa 3,5 %. Prosessivirtauksen virratessa ensimmäisen katalyyttikerroksen läpi nämä kaksi muuttujaa muuttuivat jatkuvan viivan 1-2 mukaan siten, että lämpötila oli 520⁰C ja ammoniakkipitoisuus 14,4 % ensimmäisen katalyyttikerroksen poistokohdassa. Ennen syöttöä toiseen katalyyttikerrokseen synteetikaasun prosessivirtaus jäähdyi epäsuorassa lämmönvaihdossa, jolloin muuttujat muuttuvat jatkuvan viivan 2 - 3a mukaan (ammoniakkipitoisuus oli vakio). Toisen katalyyttikerroksen tulokohdassa lämpötila oli 390⁰C ja ammoniakkipitoisuus jatkuvasti 14,4 %.

Prosessivirtauksen virratessa toisen katalyyttikerroksen läpi muuttujat muuttuvat jatkuvan viivan 3a-4 mukaan siten, että toisen katalyyttikerroksen poistokohdassa lämpötila oli 472°C ja ammoniakkipitoisuus 20,8 %.

Toinen tapaus, jota esittävät kuvion 7 katkoviivat, vastaa esimerkin 1 olosuhteita, paitsi että prosessivirtausta ei jäähdytetty katalyyttikerrosten välissä epäsuoran lämmönvaihdon avulla, vaan jäähdytys tapahtui suoraan. Tämä ei vaikuta ensimmäiseen katalyyttikerrokseen ja muuttujat eivät muut jatkuvalla viivalla 1 - 2, mutta jäähdytyksen aikana ammoniakkipitoisuus vähenee, koska synteesisikaasuun ensimmäisestä katalyyttikerroksesta syötetty jäähdytyskaasu sisältää vähemmän ammoniakkia. Niinpä muuttujat muuttuvat katkoviivan 2 - 3b mukaan. Toisen katalyyttikerroksen tulokohdassa lämpötila on 390°C , mutta laimentumisesta johtuen ammoniakkipitoisuus on vain 10,5 %. Toisen katalyyttikerroksen läpivirtauksen aikana muuttujat muuttuvat katkoviivan 3b - 4 mukaan ja toisen katalyyttikerroksen poistokohdassa lämpötila on 493°C ja ammoniakkipitoisuus 18,0 %.

Kuvion 7 käyrät kuvaavat etua, joka saavutetaan toteutettaessa ammoniakkisynteesi keksinnön mukaisen reaktorin ja menetelmän avulla. Keksinnön ansiosta ammoniakin tuotemäärä katalyyttikerrosten läpi virtaavan synteesisikaasun tilavuusyksikköä kohti kasvaa huomattavasti.

Taulukko I

Esimerkki	1 - 6
Reaktorirakenne, kuviot	1 - 6
Reaktorin tuotantoteho (tonnia/päivä)	1000
Katalyyttitilavuus, m ³	
Ensimmäinen kerros	12
Toinen kerros	19
Virtauskoostumus, tilavuus-%	
Syöttövirtaus, ensimmäisen kerroksen tulokohta	
H ₂	63,4
N ₂	21,1
NH ₃	3,5
reagoimattomia kaasuja	12,0
Syöttövirtaus, ensimmäisen kerroksen poistokohta	
H ₂	54,2
N ₂	18,1
NH ₃	14,4
reagoimattomia kaasuja	13,3
Tuotevirtaus, toisen kerroksen poistokohta	
H ₂	48,9
N ₂	16,3
NH ₃	20,8
reagoimattomia kaasuja	14,0

Taulukko II

Esimerkki	1	2	3	4	5	6
Reaktorirakenne, kuva	1	2	3	4	5	6
<u>Virtausmäärä Nm³/h</u> Vaippavirtaus	151,480	322,930	322,930	322,930	322,930	131,480
Lämmönvaihdinvirtaus	191,450					211,450
Kierrätysvirtaus	40,000	60,000	60,000	60,000	60,000	40,000
Kokonaisprosessivirtaus ensimm. kerrok-	382,930	382,930	382,930	382,930	382,930	382,930
Tuotevirtaus reaktorin poisto-	328,090	328,090	328,090	328,090	328,090	328,090
kohdassa						
<u>Virtauslämpötila °C</u>						
Syötevirtaus reaktorin tulokohdassa	110	237	237	237	237	150
Prosessivirtaus ensimm. kerroksen tulokohdassa	360	360	360	360	360	360
Prosessivirtaus ensimm. kerroksen poistokohdassa	520	520	520	520	520	520
Prosessivirtaus toisen kerroksen tulokohdassa	390	390	390	390	390	390
Prosessivirtaus toisen kerroksen poistokohdassa	472	472	472	472	472	472
Prosessivirtaus reaktorin poistokohdassa	345	472	472	472	472	385

Patenttivaatimukset

1. Menetelmä ammoniakkin valmistamiseksi kohotetussa paineessa ja lämpötilassa, jossa menetelmässä käytetään syöttövirtauksen syöttöaukolla ja tuotevirtauksen poistoaukolla varustetun reaktori-vaipan sekä vaipan ympäröimän, katalyyttikerroksilla varustetun katalyyttiosan käsittävää reaktoria, ja jossa menetelmässä syötetään synteetikaasun prosessivirtaus peräkkäin ensimmäisen katalyyttikerroksen läpi, keskeisesti sijoitetun lämmönvaihtimen läpi ja toisen katalyyttikerroksen läpi, jolloin käytetään synteetikaasun syöttövirtausta reaktorin vaipan jäähdyttämiseksi ja synteetikaasun syöttövirtausta prosessivirtauksen jäähdyttämiseksi, t u n n e t t u siitä, että prosessivirtaus aikaansaadaan yhdistämällä yhdistämiskohdassa (45) synteetikaasun erilliset syöttövirtaukset, jotka sitä ennen yhteensä ovat suorittaneet seuraavat tehtävät:

a) vaipan (11) jäähdyttäminen siten, että vaippavirtaus kulkee tuloaukosta (12) yhdistämiskohtaan (45) rengasmaisen tilan (55) kautta, vaippaa (11) pitkin,

b) ensimmäisestä katalyyttikerroksesta (21) tulevan prosessivirtauksen jäähdyttäminen ennen sen saapumista toiseen katalyyttikerrokseen (22) siten, että lämmönvaihtovirtaus kulkee tuloaukosta (13 tai 12) yhdistämiskohtaan (45) sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta, ja

c) yhdistetyn prosessivirtauksen lämpötilan säätäminen siten, että kylmempi kiertovirtaus johdetaan tuloaukosta (14) yhdistämiskohtaan (45), ja että tällä tavalla yhdistetty prosessivirtaus johdetaan peräkkäin radiaalisesti sisäänpäin ensimmäisen katalyyttikerroksen (21) läpi, sisäisen lämmönvaihtimen (41) läpi, jolloin prosessivirtaus jäähtyy lämmönvaihdinvirtauksen kanssa tapahtuvan epäsuoran lämmönvaihdon ansiosta, ja radiaalisesti sisäänpäin tai ulospäin toisen katalyyttikerroksen (22) läpi.

2. Patenttivaatimuksen 1 mukainen menetelmä, t u n n e t t u siitä, että vaippavirtaus kuljettuaan rengasmaisen tilan (55) läpi, ja ennen kuin se saapuu yhdistämispisteeseen (45) täyttää tehtävänsä lämmönvaihdinvirtauksena kulkemalla sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta.

3. Patenttivaatimuksen 1 mukaisessa menetelmässä käytettävä reaktori ammoniakkin synteesiä varten kohotetussa paineessa ja lämpötilassa, joka käsittää syöttövirtauksen tuloaukolla ja tuotevirtauksen poistoaukolla varustetun vaipan, sekä vaipan ympäröimän katalyyttiosan rengasmaisine katalyyttikerroksineen, jotka sijaitsevat samalla suoralla yhteisen akselin ympärillä, jolloin katalyyttikerrosten läpi virtaa synteesikaasua oleva prosessivirtaus, sisäisen lämmönvaihtimen prosessivirtauksen jäädyttämistä varten katalyyttikerrosten välissä, mikä tapahtuu epäsuoran lämmönvaihdon avulla syöttövirtauksen kanssa, sekä ohjauslevyt ja lieriömäiset levyt, joilla aikaansaadaan vaipan rajoittama rengasmaisen välitila katalyyttikerrosten ympärille, siten että muodostuu lisäkanavia synteesikaasuvirtauksia varten, t u n n e t t u siitä, että reaktorissa on 2 katalyyttikerrosta (21 ja 22), joissa kummassakin on katalyyttiä samankeskeisten rei'ällisten seinämien (23, 24, 27 ja 28) ja näiden päihin liitettyjen levyjen (25, 26 ja 29) rajoittamissa rengasmuotoisissa tiloissa, kanavia 2 syöttövirtausta varten, käsittäen yhden kanavan, joka on tarkoitettu tuloaukosta (12) tulevaa vaippavirtausta varten, joka kulkee vaipan (11) ja tämän kanssa samankeskeisen lieriömäisen levyn (31) rajoittaman rengasmaisen tilan (55) kautta yhdistämiskohtaan (45), mahdollisesti toisen katalyyttikerroksen keskelle sijoitetun sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta, ja toisen kanavan, joka on tarkoitettu tuloaukosta (14) tulevaa syöttövirtausta varten, johtaen sitä kiertovirtauksena yhdistämiskohtaan (45), mahdollisesti kolmas kanava kolmatta syöttövirtausta varten, joka kulkee lämmönvaihtovirtauksena tuloaukosta (13) sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta yhdistämiskohtaan (45), ja kanavia synteesikaasun prosessivirtausta varten, joka muodostuu, kun syöttövirtaukset yhtyvät yhdistämiskohdassa (45), ja joka kulkee mainitusta yhdistämiskohdasta (45) radiaalisesti sisäänpäin ensimmäisen katalyyttikerroksen (21) läpi, sitten sisäisen lämmönvaihtimen (41) läpi, jossa se jäähtyy välillisesti tuloaukosta (12 tai 13) tulevan syöttövirtauksen johdosta, ja radiaalisesti sisäänpäin tai ulospäin toisen katalyyttikerroksen (22) läpi, jolloin muodostuu tuotevirtaus, joka kulkee poistoaukkoon (15).

4. Patenttivaatimuksen 3 mukainen reaktori, t u n n e t t u siitä, että reaktorissa on 2 kanavaa tuloaukkoja (12 ja 14) varten, joista toinen kanava on tarkoitettu tuloaukosta (12) tulevaa syöttövirtausta varten, joka kulkee rengasmaisen tilan (55) kautta, ja sen

jälkeen sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta, ja edelleen yhdistämiskohtaan (45), ja joista kanavista toinen on tarkoitettu tuloaukosta (14) tulevaa syöttövirtausta varten, johtaen virtausta kiertovirtauksena yhdistämiskohtaan (45).

5. Patenttivaatimuksen 3 mukainen reaktori, tunnettu siitä, että reaktorissa on 3 kanavaa tuloaukoista (12, 13 ja 14) tulevia syöttövirtauksia varten, joista yksi on tarkoitettu tuloaukosta (12) tulevaa syöttövirtausta varten, joka kulkee vaippavirtauksena rengasmaisen tilan (55) kautta yhdistämiskohtaan (45), joista toinen on tarkoitettu tuloaukosta (13) tulevaa syöttövirtausta varten, joka kulkee lämmönvaihtovirtauksena sisäisen lämmönvaihtimen (41) kautta yhdistämiskohtaan (45), ja joista kolmas on tarkoitettu tuloaukosta (14) tulevaa syöttövirtausta varten, joka kulkee kiertovirtauksena yhdistämiskohtaan (45).

6. Patenttivaatimuksen 3 mukainen reaktori, tunnettu siitä, että siinä on toinen lämmönvaihdin (61) lämmön vaihtamiseksi epäsuorasti toisen katalyyttikerroksen (22) jälkeisen tuotevirtauksen ja vaippavirtauksen välillä.

Patentkrav

1. Förfarande för syntetisering av ammoniak vid förhöjt tryck och temperatur, vid vilket förfarande användes en reaktor omfattande en reaktormantel som är försedd med en mataröppning för matningsströmmen och en avloppsöppning för produktströmmen, samt en katalysatorbeläggning inom manteln och försedd med katalysatorskikt, och vid vilket förfarande inmatas en procesström av syntesgas successivt genom ett första katalysatorskikt, genom en centralt placerad värmeväxlare och genom ett andra katalysatorskikt, varvid en matningsström av syntesgas användes för avkylning av reaktormanteln och en matningsström av syntesgas för avkylning av procesströmmen, k ä n n e t e c k n a t därav, att procesströmmen åstadkommes genom att sammanföra vid en sammanföringspunkt (45) de separata syntesgasmatningsströmmarna, vilka dessförinnan sammanlagt utfört följande uppgifter:

(a) avkylning av manteln (11) så, att mantelströmmen passerar från ingångsöppningen (12) till sammanföringspunkten (45) genom ett ringformigt utrymme (55), längs manteln (11),

(b) avkylning av den från det första katalysatorskiktet (21) kommande procesströmmen förrän den kommer till det andra katalysatorskiktet (22) så, att värmeväxlingsströmmen går från ingångsöppningen (13 eller 12) till sammanföringspunkten (45) genom den inre värmeväxlaren (41), och

(c) reglering av den förenade procesströmmens temperatur så, att den kallare cirkulationsströmmen ledes från ingångsöppningen (14) till sammanföringspunkten (45), och att den så förenade procesströmmen ledes successivt radialt inåt genom det första katalysatorskiktet (21), genom den inre värmeväxlaren (41), varvid procesströmmen avkyles genom den indirekta värmeväxlingen med värmväxlarströmmen, och radialt inåt eller utåt genom det andra katalysatorskiktet (22).

2. Förfarande enligt patentkravet 1, k ä n n e t e c k n a t därav, att mantelströmmen efter det den gått genom det ringformiga utrymmet (55) och innan den anländer till sammanföringspunkten (45) uppfyller sin uppgift som värmväxlarström genom att den passerar den inre värmväxlaren (41).

3. Vid förfarandet enligt patentkravet 1 användbar reaktor för ammoniaksyntes vid förhöjt tryck och temperatur, vilken omfattar en mantel försedd med en ingångsöppning för matningsströmmen och med en avloppsöppning för produktströmmen, samt en katalysatordel belägen innanför manteln och försedd med ringformiga katalysatorskikt, vilka är placerade i en linje kring en gemensam axel, varvid genom katalysatorskikten strömmar en procesström av syntesgas, en inre värmeväxlare för avkylning av procesström mellan katalysatorskikten genom indirekt värmeväxling med matningsströmmen, samt styrplåtar och cylindriska plåtar för att åstadkomma ett av manteln avgränsat ringformigt utrymme omkring katalysatorskikten, så att ytterligare kanaler för syntesgasströmmar bildas, k ä n n e t e c k n a t därav, att det i reaktorn finns 2 katalysatorskikt (21 och 22), i vilka båda det finns katalysator i ringformiga utrymmen som begränsas av koncentrisk, perforerade väggar (23, 24, 27 och 28) och av plåtar (25, 26 och 29) som fästs vid dessas ändrar, kanaler för 2 matningsströmmar, omfattande en kanal för ledning av en mantelström från ingångsöppningen (12), vilken går genom det av manteln (11) och den med manteln koncentriska cylindriska plåten (31) avgränsade ringformiga utrymmet (55) till sammanföringspunkten (45), möjligen genom en inre värmeväxlare (41) i mitten av det andra katalysatorskiktet, och en andra kanal för den från ingångsöppningen (14) inkommande matningsströmmen, som leder strömmen som cirkulationsström till sammanföringspunkten (45), möjligen en tredje kanal för en tredje matningsström, vilken går som värmeväxlingsström från ingångsöppningen (13) genom den inre värmeväxlaren (41) till sammanföringspunkten (45), och kanaler för syntesgasprocesström, vilken bildas, då matningsströmmarna förenas vid sammanföringspunkten (45), och vilken går från nämnda sammanföringspunkt (45) radialt inåt genom det första katalysatorskiktet (21), sedan genom den inre värmeväxlaren (41), där den avkyles indirekt på grund av den genom ingångsöppningen (12 eller 13) kommande matningsströmmen, och radialt inåt eller utåt genom det andra katalysatorskiktet (22), varvid en produktström bildas, vilken går till avloppsöppningen (15).

4. Reaktor enligt patentkravet 3, k ä n n e t e c k n a d därav, att det i reaktorn finns 2 kanaler för ingångsöppningarna (12) och (14), av vilka den ena kanalen är avsedd för matningsström från ingångsöppningen (12), vilken går genom det ringformade mellanrummet (55), och därefter genom den inre värmeväxlaren (41), och vidare till sammanföringspunkten (45), och av vilka kanaler den andra är avsedd för en matningsström från ingångsöppningen (14), som leder strömmen som cirkulationsström till sammanföringspunkten (45).

5. Reaktor enligt patentkravet 3, k ä n n e t e c k n a d därav, att det i reaktorn finns 3 kanaler för matningsströmmar från ingångsöppningarna (12, 13 och 14), av vilka en är avsedd för matningsströmmen från ingångsöppningen (12), vilken strömmar som mantelström genom det ringformade utrymmet (55) till sammanföringspunkten (45), av vilka den andra är avsedd för matningsströmmen från ingångsöppningen (13), vilken ström går som värmewäxlingsström genom den inre värmeväxlaren (41) till sammanföringspunkten (45), och av vilka den tredje är avsedd för matningsströmmen från ingångsöppningen (14), vilken går som cirkulationsström till sammanföringspunkten (45).

6. Reaktor enligt patentkravet 3, k ä n n e t e c k n a d därav, att där finns en andra värmeväxlare (61) för indirekt värmewäxling mellan produktströmmen efter det andra katalysatorskiktet (22) och mantelströmmen.

Viitejulkaisuja:-Anförda publikationer

Kuulutusjulkaisuja:-Utläggningsskrifter: Saksan liittotasavalta-Föbundsrepubliken Tyskland(DE) 1 142 586 (12 g 4/01).

Patenttijulkaisuja:-Patentskrifter: Saksan liittotasavalta-Föbundsrepubliken Tyskland(DE) 1 767 230 (B 01 J 8/00). Itävalta-österrike(AT) 215 436 (12 i 6/01).

FIG. 1

71540

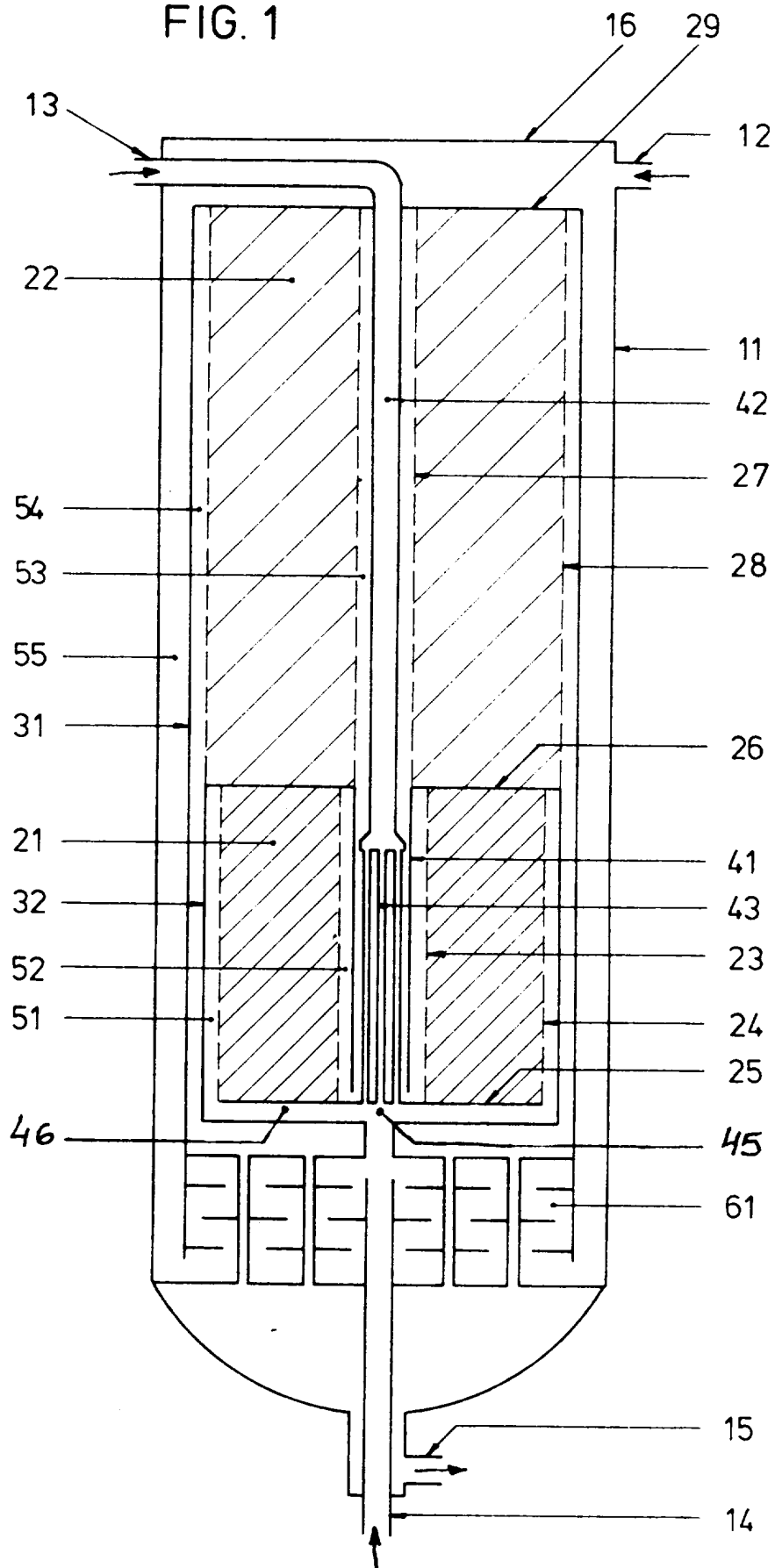


FIG. 2

16 29

71540

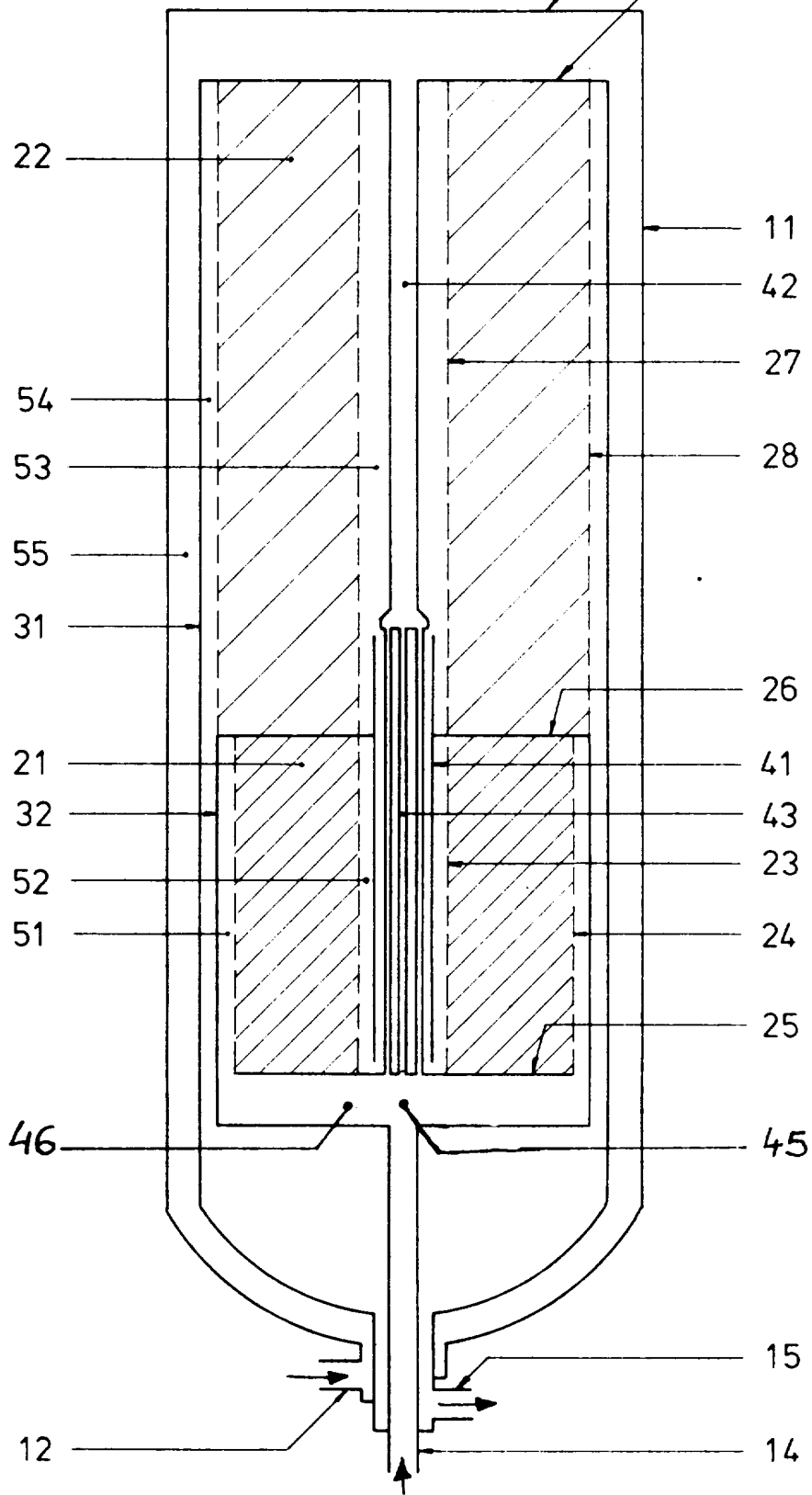


FIG. 3

16 29

71540

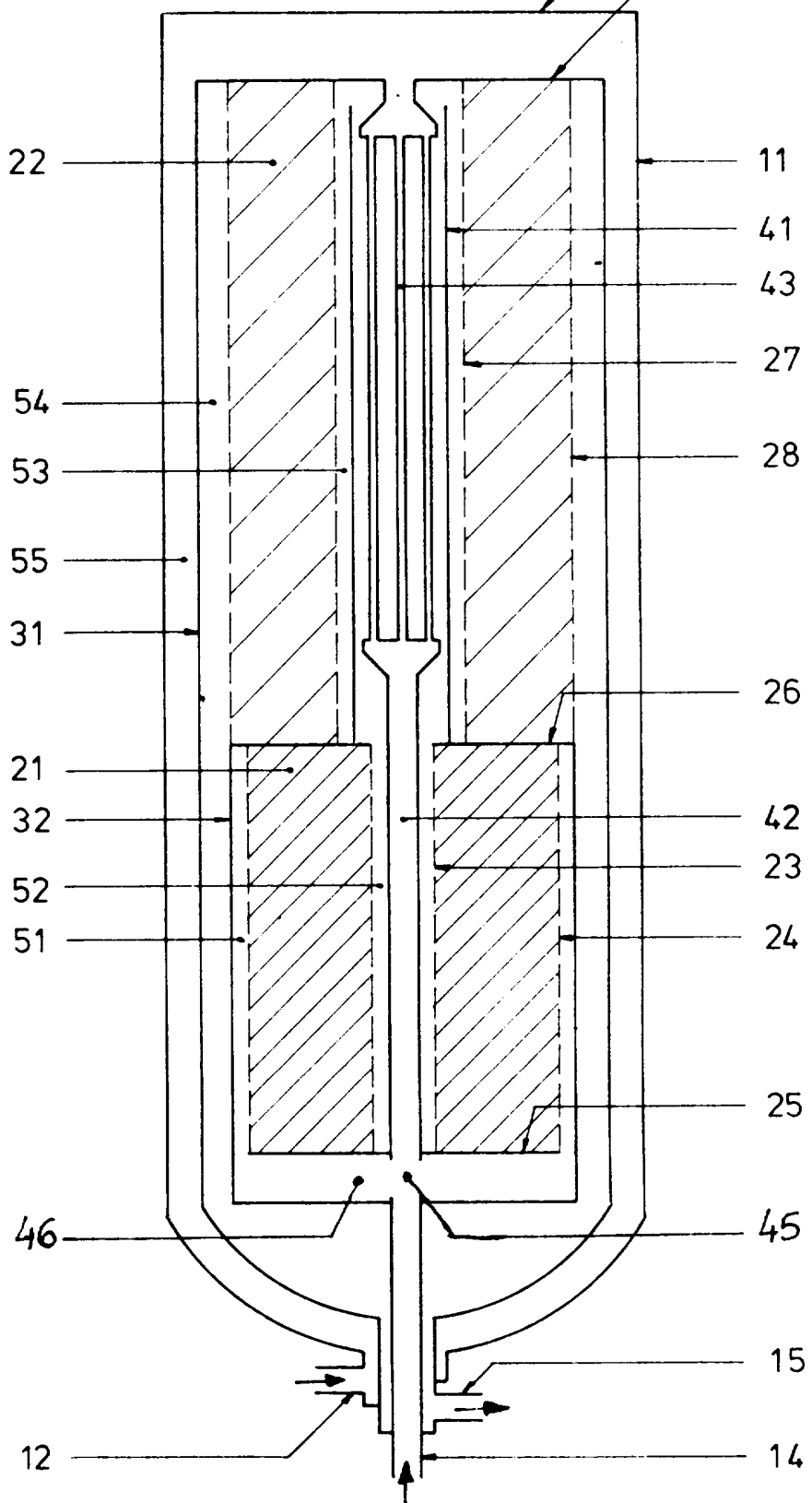


FIG. 4

71540

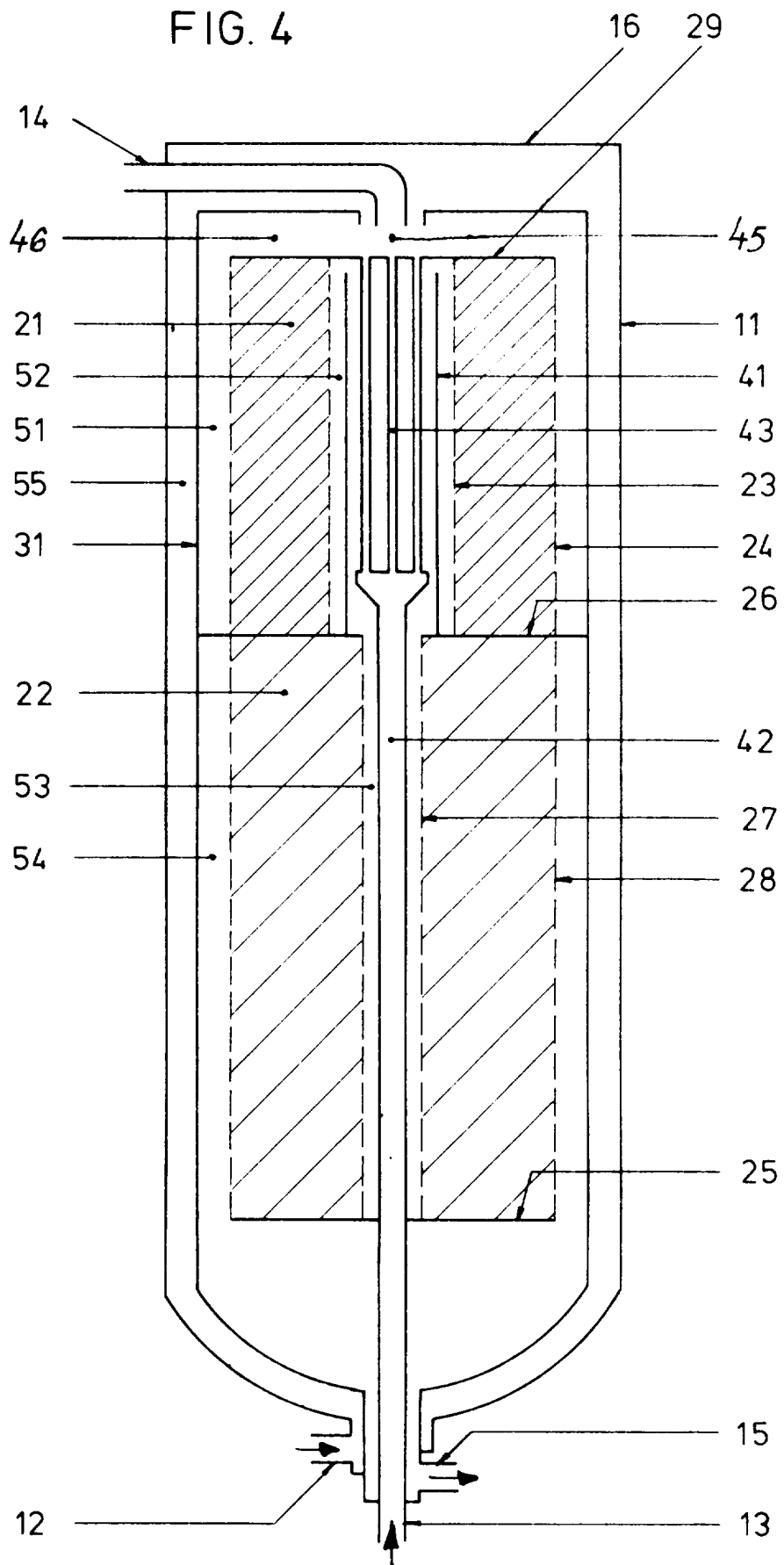


FIG. 6

71540

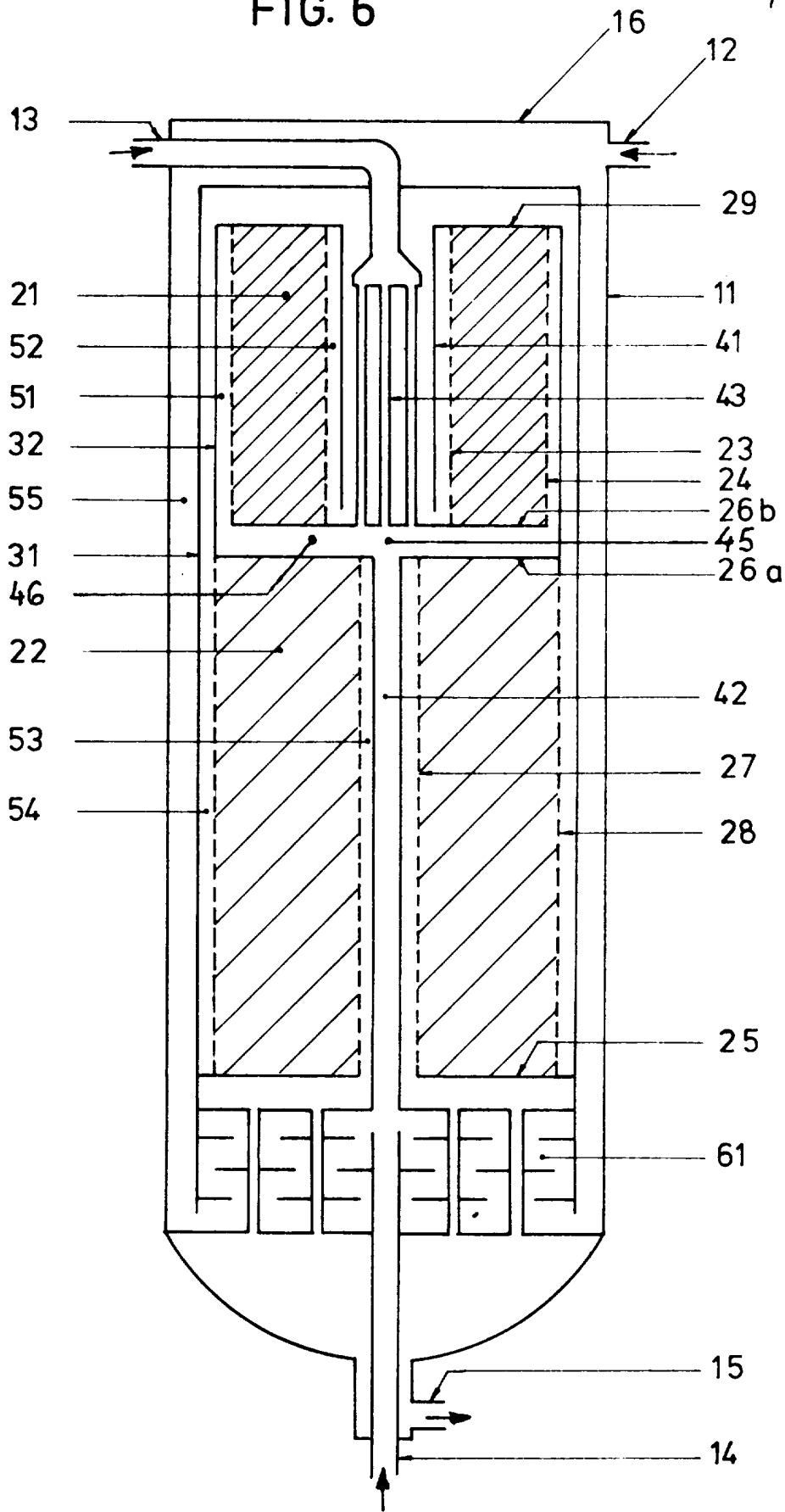


FIG. 5

71540

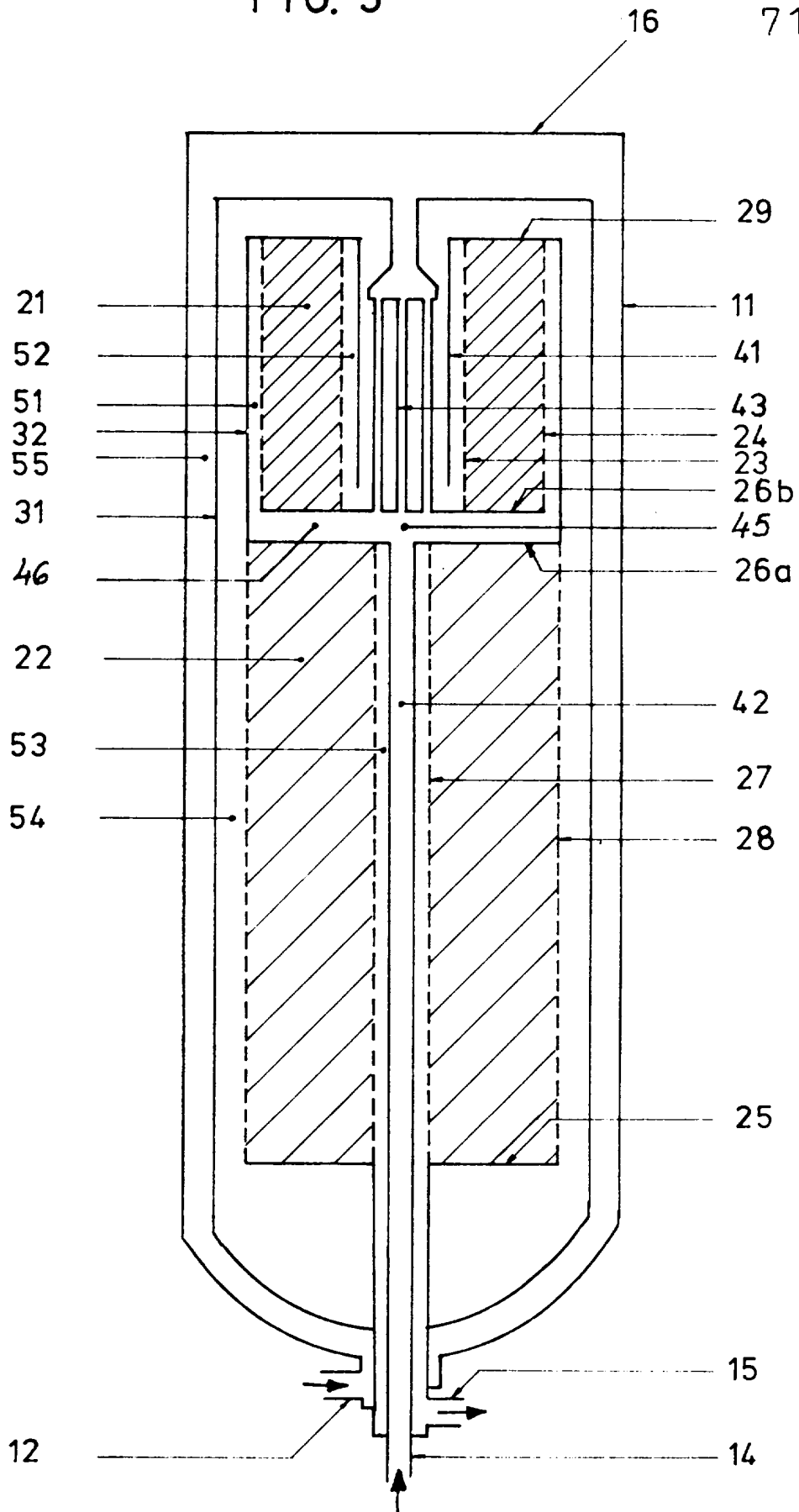


FIG. 7

