



(12) PATENTSKRIFT

Patent- og
Varemærkestyrelsen

- (51) Int.Cl.: **C 01 C 1/04** **B 01 J 35/08**
(21) Patentansøgning nr: **PA 1998 00892**
(22) Indleveringsdag: **1998-07-02**
(24) Løbedag: **1998-07-02**
(41) Alm. tilgængelig: **2000-03-27**
(45) Patentets meddelelse bkg. den: **2002-02-18**
- (73) Patenthaver: **Haldor Topsøe A/S, Nymøllevej 55, 2800 Lyngby, Danmark**
(72) Opfinder: **Claus J.H. Jacobsen, Runestien 9, 3630 Jægerspris, Danmark**
Michael Boe, Taarbæk Strandvej 86, st., 2930 Klampenborg, Danmark
-

(54) Benævnelse: **Fremgangsmåde til fremstilling af ammoniak**

(56) Fremdragne publikationer:
WO A1 98/35938
DE C1 4.035.089
DE A1 4.405.202
GB A 1.578.365
EP A2 372.453

(57) Sammendrag:

Fremgangsmåde til fremstilling af ammoniak ved kontakt mellem en syntesegas for ammoniak og ammoniakkatalysatorpartikler arrangeret på fast leje, hvor det faste leje omfatter katalysatorpartikler af ammoniakkatalysatoren med en partikelstørrelse i området fra < 1,5 mm til 0,2 mm.

Denne opfindelse er rettet på fremstilling af ammoniak ved katalytisk omdannelse af en syntesegas for ammoniak.

Konventionelt er industriel ammoniaksyntese baseret på omdannelse af syntesegas for ammoniak bestående af hydrogen og nitrogen i et i det væsentlige støkiometrisk molforhold på 3:1. Syntesegassen føres under højt tryk gennem et fast leje af ammoniakkatalysatorpartikler, hovedsagelig af magnetit, der ved reduktion omdannes til den katalytisk aktive form α -jern.

Procesydelsen styres ikke blot af katalysatorsammensætningen, men også af størrelsen og formen af katalysatorpartiklerne. For ammoniaksynteseprocesser udført på katalysatorlejer med en aksial strømning af syntesegas er den sædvanlige katalysatorpartikelstørrelse inden for intervallet 6-10 mm.

På grund af den reducerede strømningsmodstand i ammoniakreaktorer af typen med radial strømning er den i disse reaktorer benyttede katalysatorpartikelstørrelse mellem 1,5 og 3 mm.

US patentskrift nr. 4495145 omhandler, et fødeapparat til påfyldning af sfæriske kugler i forskellige størrelser, i en brændselsstav. Kuglerne skal bruges i en kernereaktor, og de kan have tre forskellige størrelser. En hensigtsmæssig pakning af kuglerne resulterer i en tilstrækkelig densitet.

DE offentliggørelsesskrift nr. 2631237 beskriver hvordan der opnås en bedre fyldningfaktor ved pakning af en zone med store og små grafitkugler. De små kugler ligger i hulrummene mellem de store kugler, og de har en diameter, der er 0,15-0,2 gange de store kuglers diameter.

DK patentansøgning nr. 1989 00227 angår en

trykvekslingsadsorptionsproces til gasadskillelse. Et molekylsigtemateriale benyttes i forholdet 5:1-15:1, hvor forholdet angiver den mindste dimension af de grove partikler til den største dimension af de fine partikler. Egnede molekylsigtematerialer til gasadsorption er aktivt kul, glasperler eller zeolitmaterialer. Herved opnås en berigelse af een eller flere af komponenterne i en gasblanding.

Ovennævnte skrifter omhandler fysiske processer uden nogen form for kemisk reaktion, og de beskriver kugler samt pellets, der også er =kugleagtige= i form. Ved ammoniak fremstilling sker der en kemisk omsætning af udgangsmaterialerne, og denne omsætning finder sted i katalysatorporerne. Kommercielle katalysatorpartikler til ammoniakfremstilling kan være kugleformede, eller kan være f.eks. kubisk i form eller flisformet med spidse kanter.

Udover partiklernes form og størrelse er andre parametre såsom katalysatorlejets flowmodstand, trykfald over lejet og partiklernes diffusionsmodstand også vigtige parametre for katalysatorens virkning ved ammoniakfremstilling, og disse parametre er relateret til partiklernes form og størrelse, samt til partiklernes bulkdensitet.

Det er nu blevet fundet, at procesydelsen ved ammoniaksyntese yderligere kan forbedres i henseende til et større udbytte af produktet ammoniak, når der i radialammoniakreaktorer benyttes et fast leje af ammoniakkatalysator omfattende katalysatorpartikler med en størrelse under 1,5 mm.

I overensstemmelse med det ovennævnte er denne opfindelse en fremgangsmåde til fremstilling af ammoniak ved kontakt mellem en syntesegas for ammoniak og ammoniakkatalysatorpartikler arrangeret på fast

leje med radial strømning af syntesegassen, ejendommelig ved, at det faste leje indeholder en blanding af ammoniakkatalysatorpartikler med partikelstørrelser på 1,5-3,0 mm, 0,8-1,5 mm og 0,3-0,8 mm i rumfangsforholdet 40-70:10-40: 10-30.

Ved hjælp af nedsættelsen af størrelsen af katalysatorpartiklerne forøges rumvægten og forårsager et større tryktab hen over katalysatorlejet og herved en forbedret fordeling af strømmen af syntesegas inden i lejet.

Når fremgangsmåden ifølge opfindelsen udøves under industrielle betingelser, vil man opnå en forbedret fordeling af strømmen af syntesegas, hvis katalysatorlejet indeholder mindst 10 vol% ammoniakkatalysatorpartikler med en partikelstørrelse på under 1,5 mm.

Nedenstående Tabel sammenfatter den relative densitet for forskellige partikelstørrelser af konventionelle ammoniakkatalysatorer, der er tilgængelige i handelen fra Haldor Topsøe A/S.

Tabel

Partikelstørrelse/mm	n rel.
1,5-3,00	1,00
0,8-1,5	0,97
0,3-0,8	0,95

I fremgangsmåden ifølge opfindelsen benyttes en partikelstørrelse for ammoniakkatalysatorer arrangeret som et fast leje ved at blande partikler med størrelser 1,5-3,0 mm, 0,8-1,5 mm og 0,3-0,8 mm i et rumfangsforhold på 40-70 : 10-40 : 10-30.

Eksempel:

I et tilfælde af opfindelsen indbefattet af
5 ovenstående foretrukne partikelstørrelsesfordeling,
hvor partikler med størrelser 1,5-3 mm, 0,8-1,5 mm og
0,3-0,8 mm blandes i et rumfangsforhold på 60:20:20
blev en relativ densitet på 1.09 opnået til
sammenligning med værdierne i ovenstående tabel. Med
10 den højere relative densitet opnås en højere
aktivitet på volumenbasis og ikke mindst en bedre
flowfordeling af syntesegas over katalysatorlejet,
hvis anvendt i en radialflowkonverter.

P A T E N T K R A V

1. Fremgangsmåde til fremstilling af ammoniak ved kontakt mellem en syntesegas for ammoniak og ammoniak-
5 katalysatorpartikler arrangeret på fast leje med radial strømning af syntesegassen, k e n d e t e g -
n e t ved, at det faste leje indeholder en blanding af ammoniak-katalysatorpartikler med partikelstørrelser på 1,5-3,0 mm, 0,8-1,5 mm og 0,3-0,8 mm i
10 rumfangsforholdet 40-70: 10-40: 10-30.