



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2013-0023134  
(43) 공개일자 2013년03월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*B01J 8/06* (2006.01) *B01J 19/24* (2006.01)  
*B01J 3/02* (2006.01) *C01B 3/00* (2006.01)  
 (21) 출원번호 10-2012-0092557  
 (22) 출원일자 2012년08월23일  
 심사청구일자 없음  
 (30) 우선권주장  
 11/02602 2011년08월26일 프랑스(FR)

(71) 출원인  
**아이에프피 에너지스 누벨**  
 프랑스 루이-말메종 세데 92852 아브뉴 드 브와  
 브레오 1 & 4  
 (72) 발명자  
**부아에 크리스토프**  
 프랑스 69390 샤를리 뒤 드 라 브로쎄 0626  
**지루디에르 파브리스**  
 프랑스 69530 오를리아나 슈맹 뒤 프로 0197  
 (74) 대리인  
**특허법인코리아나**

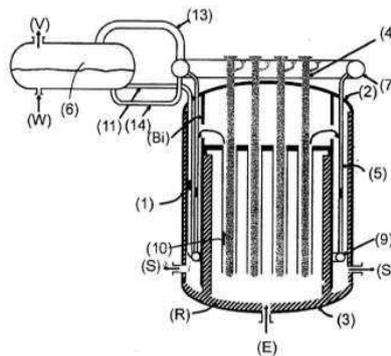
전체 청구항 수 : 총 7 항

(54) 발명의 명칭 **병합된 스팀 발생 다발을 갖는 수소 제조용 교환기-반응기**

**(57) 요약**

본 발명은 교환기-반응기로서, 스팀 발생 다발을 병합시킨, 유분들 또는 알코올들을 스팀 개질하는 것과 같은 흡열 반응들을 실시하여, 열 효율을 증가시킬 수 있는 교환기-반응기를 개시한다.

**대표도** - 도1



## 특허청구의 범위

### 청구항 1

흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기 (exchanger-reactor) 로서,

상기 반응기의 상부 돔 (2) 에 매달려 있고 하부 바닥부 (3) 로 신장하는 복수의 베이어넷 튜브들 (4) 을 포함하고, 상기 복수의 베이어넷 튜브들 (4) 은, 흡열 화학 반응 또는 반응들을 실시하기 위하여 사용되며, 상기 복수의 베이어넷 튜브들 (4) 에 열을 공급하는 고온 연도 가스용 유입 파이프 (E) 및 열 교환에 후속하여 차가운 연도 가스를 배출하는 적어도 하나의 배출 파이프 (S) 를 포함하는 셸 (1) 로 둘러싸이고, 상기 교환기-반응기는, 또한 상기 교환기-반응기의 상기 상부 돔 (2) 에 매달려서 상기 셸 (1) 의 수직벽에 실질적으로 평행한 내부 배플 (Bi) 과 상기 수직벽 (1) 사이에 포함된 주변 공간 (8) 에 들어 있는 복수의 수직 튜브들 (5) 로 구성된 스팀 발생 다발을 더 포함하고, 상기 내부 배플 (Bi) 은 반응기의 중심부로부터 상기 주변 공간 (8) 으로 연도 가스 (10) 를 전달하는 적어도 하나의 개구부 (Oi) 를 가지고, 스팀 발생용의 상기 수직 튜브들 (5) 은 상기 주변 공간 (8) 의 하부 부분에 위치한 하부 피더 헤드 (9) 를 통하여 물을 공급받고, 상기 수직 튜브들 (5) 로부터 나오는 액체-스팀 혼합물은, 반응기 교환기의 상기 상부 돔 (2) 위에 위치한 상부 수집기 (7) 에서 수집되고, 하부 라인 (14) 은 분리기 드럼 (6) 의 액상을 상기 상부 수집기 (7) 에 연결하고 상부 라인 (13) 은 상기 상부 수집기 (7) 를 상기 분리기 드럼 (6) 의 기상에 연결하는, 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기.

### 청구항 2

제 1 항에 있어서,

각각의 스팀 발생 튜브 (5) 는, 상기 스팀 발생 튜브 (5) 의 주위에 상기 연도 가스 (10) 를 전달하기 위하여 당해 발생 튜브와 동축인 실질적으로 수직인 벽을 가진 튜브로 둘러싸이는, 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기.

### 청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 주변 공간 (8) 의 벽들에 고정된 디플렉터들의 시스템은 상기 연도 가스 (10) 가 상기 수직 튜브들 (5) 에 실질적으로 수직으로 이동하는 것을 허용하는, 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기.

### 청구항 4

제 1 항에 있어서,

주변 용적 (8) 은 상기 교환기-반응기의 전체 용적의 10% 미만, 바람직하게는 5% 미만을 나타내는, 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기.

### 청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 반응기의 중심부로부터 상기 주변 공간 (8) 으로의 연도 가스의 통과용 개구부 (Oi) 는 상기 내부 배플 (Bi) 의 상부 부분에 위치되는, 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기.

### 청구항 6

제 1 항에 따른 교환기-반응기를 사용하여 유분 (oil cut) 또는 천연가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법으로서, 상기 주변 공간 (8) 내의 연도 가스의 속도는 20m/s ~ 80m/s 의 범위, 바람직하게는 30m/s ~ 60m/s 의 범위 내에 있는, 유분 또는 천연가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법.

### 청구항 7

제 1 항에 따른 교환기-반응기를 사용하여 유분 또는 천연가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법으로서, 상기 연도 가스는 1200℃ 부근의 온도로 교환기-반응기의 내부로 들어가고, 400℃ 미만의 온도로 상기 교환기-반응기

에서 나오는, 유분 또는 천연가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법.

**명세서**

**기술분야**

[0001] 본 발명은, 합성 가스의 제조에 대한 관점에서, 유분들 (oil cuts) 또는 알코올들의 스팀 개질과 같은 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기 분야에 관한 것이다.

**배경기술**

[0002] 이러한 형태의 반응기는 종래 기술에 공지되어 있다; 설명은 US 4 919 844, US 4 690 690, WO 2003 031050 및 WO 03/035242 에서 발견될 수 있다.

[0003] 이러한 교환기-반응기의 원리는 개략적으로 흡열 반응 또는 일련의 일반적인 흡열 반응들이 그 내부에서 발생하는 튜브들의 세트의 둘레에서 고온 연도 가스 (flue gas) 의 움직임으로 이루어지고, 이 고온 연도 가스는 반응기 유입구에서 1200°C 에 이를 수 있다. 이러한 교환기-반응기의 열 효율은 본질적으로 연도 가스의 배출구 온도에 의해 결정된다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0004] 본 발명의 목적은, 적절하게 배치된 스팀 발생 다발을 상기 교환기-반응기의 자체의 내부로 병합시켜 연도 가스의 배출구 온도를 낮춤으로써 이러한 교환기-반응기의 열 효율을 향상시키는 것이다.

[0005] 명세서의 나머지 부분은, 본 발명의 교환기-반응기 내에서 실시되는 대표적인 흡열 반응들과 같이, 천연 가스의 스팀 개질 반응의 예와 관련이 있을 것이다. 하지만, 보다 일반적으로, 본 발명은 고온의 연도 가스를 통하여 열이 추가되어야 하는 임의의 흡열 반응에 관한 것이다.

[0006] 스팀 개질 반응은 통상적으로 900°C 의 매우 높은 온도에서 그리고 통상적으로 20 ~ 30 바 (bar) 의 압력하에서 발생한다. 이는 재료들의 기계적 거동과 관련하는 사항을 포함하는 오직 경제적으로 실현 가능한 해결책으로서, 반응은 튜브들의 세트 내에서 실시되는 것을 의미한다. 따라서, 이러한 촉매 반응기들은 복수의 튜브들, 통상적으로 100,000 Nm<sup>3</sup>/h 의 수소를 제조하는 유닛들에 대하여 대략 200 ~ 400 개의 복수의 튜브들로 구성된다.

[0007] 이 튜브들은, FR 2 852 358 에 기재된 교환기-반응기의 경우와 같이, 예컨대 외부 연소 챔버에서, 교환기-반응기의 상류에서 발생된 고온 연도 가스에 의해 가열되거나 외부 연소 챔버가 후속되는 터빈에 의해 발생된 고온 가스에 의해 가열된다.

[0008] 튜브들은 동일한 단부에서 시약들용 유입구들과 생성물용 배출구들을 갖기 위하여 베이어넷 (bayonet) 형태를 가질 수 있다. 베이어넷 튜브들은 교환기-반응기의 상부 돔 (dome) 으로부터 매달려 있고, 이는 열적 팽창 관리를 용이하게 한다.

[0009] 대규모 교환기-반응기의 일 예는 FR 2 918 904 에 기재된 "HyGenSys" 반응기이다. 이러한 교환기-반응기는 큰 직경 (수 미터) 의 셸 (shell) 그리고 처리측 (또는 튜브측) 과 연도 가스측 (또는 셸측) 사이의 높은 압력 차이로 밀봉된 다수 (50 초과) 의 튜브들을 포함한다.

[0010] 그 내부에서 흡열 반응들이 일어나는 베이어넷 튜브들과 연도 가스 사이의 교환계수를 향상시키기 위해 공지되어 있는 일 해결책은, 특히, 침니 (chimney) 튜브들, 또는 보다 간단하게는 각각의 침니가 베이어넷 튜브를 둘러싸는 침니들로 볼릴 수 있는 튜브로 베이어넷 튜브들의 주변에 이들을 통과시킴으로써 높은 연도 가스 순환 속도를 갖도록 하는 것이다.

[0011] 종래 기술 (FR 2 918 904) 에 있어서, 이러한 침니들은 고정되어 있으며, 교환기-반응기의 셸 벽에 고정된 수직 플레이트에 의해 지지된다. 이러한 셸은 그 두께를 최소한으로 하기 위하여 빔 (beam) 에 의하여 바닥부 또는 상부로부터 통상적으로 강화될 수 있다.

[0012] 고온 연도 가스는 그 에너지의 일부를 베이어넷 튜브로 전달하지만, 여전히 교환기-반응기 배출구에서 매우 고

온 (550℃ ~ 700℃, 통상적으로 600℃ ~ 650℃) 이다. 따라서, 열 효율은 매우 높지 않고, 본 발명의 목적들 중 하나는 연도 가스의 배출구 온도를 낮춤으로써 이러한 형태의 교환기-반응기의 열 효율을 향상시키는 것이다.

[0013] 압력하에서 (통상적으로, 상대 압력 2 ~ 5 바) 연도 가스를 교환기-반응기에 사용하는 경우, 연도 가스 배출구들이 550℃ 를 초과하는 온도에 있을 때, 연도 가스 배출구들을 연결하는 것은 매우 어려워진다. 종래 기술에 있어서, 파이프워크 (pipework) 의 내부는 플랜지가 충분히 낮은 온도에 있도록 열적으로 단열되어야 하지만, 이러한 실시 형태는, 파이프 직경이 훨씬 더 커져야 하는 것을 의미하고, 이는 경제적으로 실현가능한 채로 유지하기 위해서는 교환기-반응기의 셸 자체가 비교적 낮은 온도 (통상적으로 300℃ 미만) 로 유지되어야 할 기계적인 문제점들을 야기할 수 있다.

[0014] 추가로, 종래 기술의 해결책에 있어서, 교환기-반응기의 상부를 통하여 나오는 연도 가스는 수집되고, 통상적으로 지면에 위치되는 하류 장치 (2 차 연소 챔버 또는 팽창기 또는 스팀 발생기) 에 공급하기 위해 지면 높이로 적하되어야 한다. 그러나, 이러한 연도 가스의 적하 라인은 또한 내적으로 단열되어야 하고, 이는 부피가 커지며 비용이 많이 들게 한다. 추가로, 이는 시스템의 전체 효율을 저하시키는 열 손실의 원인이다.

[0015] 본 발명은 이러한 연도 가스 적하 라인을 제거하고, 교환기-반응기의 열적 효율을 향상시키는데 사용될 수 있다.

### 과제의 해결 수단

[0016] 본 발명은 흡열 반응들을 실시하는 교환기-반응기로서 규정될 수 있고, 이 교환기-반응기는 상기 반응기의 상부 돔 (2) 에 매달려 있고 하부 바닥부 (3) 로 신장하는 복수의 베이어넷 튜브들을 포함하고, 이 베이어넷 튜브들 (4) 은 흡열 화학 반응 또는 반응들을 실시하도록 사용되며 베이어넷 튜브들 (4) 에 열을 공급하는 고온 연도 가스용 유입 파이프 (E) 및 열 교환에 후속하여 차가운 연도 가스를 배출하는 적어도 하나의 배출 파이프 (S) 를 포함하는 셸 (1) 로 둘러싸여 지고, 이 교환기-반응기는, 또한 교환기-반응기의 상부 돔 (2) 에 매달려 있고 하부 바닥부 (3) 로 신장하는 복수의 실질적으로 수직인 스팀 발생 튜브들 (5) 로 구성된 스팀 발생 다발을 더 포함하고, 이 스팀 발생 튜브들 (5) 은 셸 (1) 의 수직벽에 실질적으로 평행한 내부 배플 (internal baffle, Bi) 과 상기 수직벽 (1) 사이에 포함된 주변 공간 (8) 에 들어 있다. 상기 내부 배플 (Bi) 은 반응기의 중심부로부터 주변 공간 (8) 으로 연도 가스 (10) 를 전달하는 적어도 하나의 개구부 (0i) 를 가진다. 스팀 발생용의 수직 튜브들 (5) 은 주변 공간 (8) 의 하부 부분에 위치한 하부 피더 헤드 (9) 를 통하여 물을 공급받고, 수직 튜브들 (5) 에서 비롯되는 액체 스팀 혼합물은, 분리기 드럼 (6) 과 실질적으로 동일한 높이에 있는, 반응기 교환기의 상부 돔 (2) 위에 위치한 상부 수집기 (7) 에 수집된다.

[0017] 본 발명의 교환기-반응기의 제 1 변형예에 있어서, 각각의 스팀 발생 튜브 (5) 는 스팀 발생 튜브 (5) 의 주위에 연도 가스를 전달할 수 있는 튜브로 둘러싸여진다.

[0018] 본 발명의 교환기-반응기의 제 2 변형예에 있어서, 주변 공간 (8) 의 벽들에 고정된 디플렉터들의 시스템은 연도 가스 (10) 가 수직 튜브들 (5) 에 실질적으로 수직으로 이동하는 것을 허용한다.

[0019] 바람직하게는, 반응기의 중심부로부터 주변 공간 (8) 으로의 연도 가스 통과용 개구부 (0i) 는 내부 배플 (Bi) 의 상부 부분에 위치된다.

[0020] 본 발명의 교환기-반응기에 있어서, 정확하게 치수화된 주변 용적 (8) 은 교환기-반응기의 전체 용적의 10% 미만, 바람직하게는 5% 미만을 나타낼 수 있다.

[0021] 특히 본 발명의 교환기-반응기는 유분 또는 천연 가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법을 실시하기 위하여 사용될 수 있다.

[0022] 이 경우에, 주변 공간 (8) 내의 연도 가스의 속도는 일반적으로 20m/s ~ 80m/s 의 범위, 바람직하게는 30m/s ~ 60m/s 의 범위 내에 있다.

[0023] 그럼에도 불구하고, 유분 또는 천연 가스 또는 알코올을 스팀 개질하는 방법에 있어서 본 발명의 교환기-반응기를 사용하는 경우, 연도 가스는 1200℃ 부근의 온도에서 교환기-반응기의 내부로 들어가고, 바람직하게 400℃ 미만의 온도에서 상기 교환기-반응기를 나온다.

### 도면의 간단한 설명

[0024] 도 1 은, 공급 피더 헤드 (9), 스팀 발생 튜브 다발 (5), 상부 수집기 (7) 및 분리기 드럼 (6) 을 포함하는 스팀 발생 회로를 나타내는 본 발명의 교환기-반응기의 개략도를 나타낸다.

도 2 는 공정의 베이어넷 튜브들 용의 중앙 공간 및 스팀 발생 튜브들을 포함하는 주변 공간을 나타내는 교환기-반응기의 단면도이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0025] 본 발명은 교환기-반응기로서, 상기 반응기 내에 완전하게 병합시킨, 즉 베이어넷 튜브들의 다발에 의해 채워지는 반응기의 중심부에 대해 주변 공간에 위치되는 스팀 발생 다발의 위치 결정 (positioning) 때문에 향상된 에너지 효율을 가진 교환기-반응기로 규정될 수 있고, 이는 연도 가스가 보다 우수하게 배출될 수 있다는 것을 의미한다.

[0026] 본 발명의 해결책은, 제 1 교환 이후에 프로세스의 화학 반응들을 실시하기 위하여 베이어넷 튜브들 (4) 로 연도 가스를 냉각시켜, 이로 인해, 교환기-반응기 (1) 를 빠져나오기 이전에 교환기-반응기의 주변에 위치한 공간 (8) 에서 스팀을 발생시키는 것으로 구성된다.

[0027] 이를 위해, 수직 스팀 발생 튜브들 (5) 은 한편으로는, 하부 바닥부 (3) 로부터 상부 돔 (2) 으로 신장하는 실질적으로 수직인 내부 배플 (Bi) 에 의하여, 다른 한편으로는, 교환기-반응기의 셸 (1) 의 수직벽에 의하여 규정된 주변 공간 (8) 의 내부에서 교환기-반응기 (1) 의 주변에 설치된다.

[0028] 이 수직 스팀 발생 튜브들 (5) 은 반응기의 상부 돔 (2) 으로부터 매달려 있고, 자유롭게 아래쪽으로 팽창하도록 한다.

[0029] 수직 튜브들 (5) 은, 바람직하게는 하부의 고리 모양 피더 (feeder) 헤드 (9) 를 통해 교환기-반응기 (1) 의 상부 높이보다 더 높은 높이에 위치된 스팀 드럼 (6) 으로부터 액체의 물을 공급받는다. 이 하부 피더 헤드 (9) 는, 주변 공간 (8) 내부에 위치한 실질적으로 수직인 워터 라인 (11) 자체에 의하여 분리기 드럼 (6) 으로부터 물을 공급받는다.

[0030] 스팀 발생 튜브들 (5) 에서, 물은 개구부 (Oi) 로부터 배출 파이프 (S) 까지 교환기-반응기 (1) 의 주변 공간 (8) 으로 적하하는 연도 가스 (10) 와의 열 교환에 의하여 통상적으로 5% ~ 100% 기화 사이에서 부분적으로 기화된다.

[0031] 스팀 발생 튜브들 (5) 의 상부 부분들은 분리기 드럼 (6) 에 공급하기 이전에 스팀 또는 물/스팀 혼합물을 수집하기 위하여 반응기 외측 상부 수집기 (7) 에 연결된다.

[0032] 그런 다음, 연도 가스 (10) 는 400°C 미만, 바람직하게는 300°C ~ 350°C 의 범위에서 냉각되고, 이는 가스가 예컨대 스테인리스 강 316 의 표준 금속들 (standard metals) 로부터 형성된 적어도 하나의 플랜지 (S) 를 통하여 교환기-반응기 (1) 를 나갈 수 있다는 것을 의미한다. 이 플랜지 (S)(또는 이들 플랜지들 (S)) 는 바람직하게는 교환기-반응기의 하부 부분에 위치된다.

[0033] 내화물 재료 (R) 는 하부 바닥부 (3) 를 따라서, 공정의 튜브들을 향하여 배향된 측면 상의 배플 (Bi) 의 벽을 따라서, 그리고 셸 (1) 의 수직벽을 따라서 배치된다.

[0034] 이로 인해 주변 공간 (8) 은 연도 가스 (10) 가 열 손실을 최소화할 수 있는 수단으로 이동하도록 형성된다. 추가로, 셸 (1) 부근의 저온의 연도 가스는, 셸 (1) 의 수직벽을 따라 배치된 내화물 (R) 의 두께를 최소화할 수 있다는 것을 의미한다.

[0035] 스팀 발생 튜브들 (5) 에는 연도 가스와의 교환계수를 증가시키기 위하여 외부 핀들 (pins) 이 제공될 수 있다.

[0036] 하부의 고리 모양 피더 헤드 (9) 는, 특히 스팀 드럼이 충분히 높게 위치되지 않을 때, 펌프를 통하여 또는 열 사이펀 (액체의 물과 부분적으로 기화된 물 사이의 밀도 차이) 을 통하여 스팀 드럼 (6) 으로부터 기원하는 포점 (bubble point) 에서 라인 (11) 을 통해 액체의 물이 공급된다.

[0037] 하부 라인 (14) 은 상부 수집기 (7) 에 분리기 드럼 (6) 의 액상을 연결시킨다.

[0038] 상부 라인 (13) 은 분리기 드럼 (6) 의 기상에 상부 수집기 (7) 를 연결시킨다.

[0039] 유입 파이프 (E) 로부터 나오는 연도 가스는 반응기의 중심부로부터 내부 배플 (Bi) 까지 신장하고, 내부 배플 (Bi) 내에 제공된 적어도 하나의 개구부 (Oi) 를 통하여 스팀 발생 튜브들 (5) 을 포함하는 주변 공간 (8) 내로

들어가, 셸 (1) 의 하부 부분에 위치한 배출 파이프 (S) 를 통하여 상기 주변 공간 (8) 을 나온다. 개구부 또는 개구부들 (O<sub>i</sub>) 은 바람직하게는, 도 1 에 나타낸 바와 같이, 배플 (B<sub>i</sub>) 의 상부 부분에 위치된다.

[0040] 연도 가스 (10) 와 스팀 발생 튜브들 (5) 사이의 힘 교환을 위하여, 연도 가스 (10) 가 튜브들 (5) 을 따라서라기보다는 튜브들 (5) 을 가로질러 나아가지 않을 수 없도록, 디플렉터들 (도 1 및 도 2 에 도시되지 않음) 이 설치될 수 있다.

[0041] 다른 실시형태에서, 스팀 발생 튜브들 (5) 은 이들 스스로, 상기 연도 가스를 가속시키고 스팀 발생 튜브들 (5) 과의 열 교환을 강화시키기 위하여 연도 가스 (10) 를 전달하는 튜브들 (도 1 및 도 2 에 도시되지 않음) 내에 위치될 수 있다.

[0042] 교환 다발 (5) 은 스팀을 과열시키기 위하여 사용될 수 있다.

[0043] 실시예

[0044] 본 발명을 구현하는 예는 100,000Nm<sup>3</sup>/h 의 순수소 생산용 유닛에 대하여 구현된다. 이러한 용량에 대하여, HyGenSys 반응기는 15m 의 높이로 301 개의 촉매 튜브들로 구성된다.

[0045] 튜브들 사이의 피치는 450mm 가 되도록 고려된다. 공정에 필요한 스팀의 일부는 스팀 드럼에 연결된 반응기의 내부 교환기에 의해 생성되도록 고려되었고 열 사이편으로서 역할한다.

[0046] 기화에 필요한 열의 양은 30MW 이다. 공정은 반응기 주입구에서 3 바의 절대 압력으로 400T/h 유속으로 연도 가스를 생성한다.

[0047] 촉매 튜브들을 가진 교환 부분으로부터 배출구에서의 연도 가스의 온도는 600°C 이다.

[0048] 기화 부분으로부터 배출구에서의 연도 가스의 온도는 375°C 이다.

[0049] 기화 부분은 50mm 의 외경을 가지고, 44mm 의 내경을 가진다.

[0050] 이 기화 튜브들은 반응기 주위에 위치한 폭이 120mm 인 환형 영역에 위치된다. 튜브들 사이의 연도 가스의 속도는 92m/s 이다.

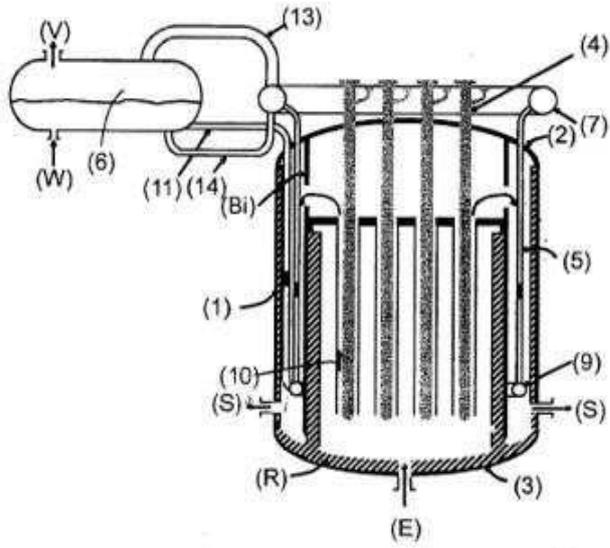
[0051] 전체 교환계수는 285W/m<sup>2</sup>/°C 이고, 교환은 촉매 튜브들과 동일한 높이의 210 개의 튜브들을 제공하는 것을 필요로 한다.

[0052] 튜브들 사이의 피치는 134mm 이다.

[0053] 내화물을 제외한, 반응기의 내경은 9m 이지만, 기화 부분을 제외한 내경은 8.76m 일 것이다. 따라서, 병합된 스팀 발생 다발의 존재에 의하여 야기된 추가의 용적은 5.2% 이고, 연도 가스의 배출구 온도에 직접적으로 관련된 에너지 효율의 이득 (gain) 은 32% 이다.

도면

도면1



도면2

