

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3987607号

(P3987607)

(45) 発行日 平成19年10月10日(2007.10.10)

(24) 登録日 平成19年7月20日(2007.7.20)

(51) Int. Cl. F I
C O 7 C 273/04 (2006.01) C O 7 C 273/04
C O 7 C 275/00 (2006.01) C O 7 C 275/00

請求項の数 22 (全 22 頁)

(21) 出願番号	特願平9-234364	(73) 特許権者	000222174
(22) 出願日	平成9年8月29日(1997.8.29)		東洋エンジニアリング株式会社
(65) 公開番号	特開平10-182587		東京都千代田区霞が関3丁目2番5号
(43) 公開日	平成10年7月7日(1998.7.7)	(74) 代理人	100123788
審査請求日	平成15年5月14日(2003.5.14)		弁理士 宮崎 昭夫
(31) 優先権主張番号	特願平8-265969	(74) 代理人	100088328
(32) 優先日	平成8年10月7日(1996.10.7)		弁理士 金田 暢之
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(74) 代理人	100106138
(31) 優先権主張番号	特願平8-279472		弁理士 石橋 政幸
(32) 優先日	平成8年10月22日(1996.10.22)	(74) 代理人	100106297
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		弁理士 伊藤 克博
		(72) 発明者	小嶋 保彦
			千葉県佐倉市西志津6-9-7
		(72) 発明者	藤井 英嗣
			千葉県佐倉市王子台6-4-16
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 改良された尿素合成方法および装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

尿素合成域においてアンモニアと二酸化炭素とを尿素合成温度および圧力において反応させ、得られた尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素および水からなる尿素合成液をストリッピング域において原料二酸化炭素の少なくとも一部と該尿素合成圧力にほぼ等しい圧力において加熱下に接触させて該未反応アンモニアおよび該未反応二酸化炭素をアンモニア、二酸化炭素および水の混合ガスとして分離し、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素合成液をさらに処理して尿素を得、一方該ストリッピング域において分離された混合ガスを縦型凝縮域の底部に導入して吸収媒体と冷却下に接触させ、それによって該混合ガスを凝縮させ、こうして得られた凝縮液を尿素合成域に循環する尿素合成方法において、下方に尿素合成域が、その上方に縦型凝縮域が設置され、かつ、該凝縮域の頂部および該尿素合成域の底部にそれぞれ開口を有し、該凝縮域と該尿素合成域とを連通するための第1のダウンパイプが設置され、該凝縮液は該凝縮域の頂部から該ダウンパイプを通して該尿素合成域の底部に重力により流下し、流下した凝縮液は該尿素合成域を上昇しながら尿素合成反応に付せられ、生成した尿素合成液を該尿素合成域の頂部に開口を有する第2のダウンパイプを通して該ストリッピング域の頂部に重力で流下させることを特徴とする改良された尿素合成方法。

【請求項2】

尿素合成域においてアンモニアと二酸化炭素とを尿素合成温度および圧力において反応させ、得られた尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素および水からなる尿素合成液を

10

20

ストリッピング域において原料二酸化炭素の少なくとも一部と該尿素合成圧力とにほぼ等しい圧力において加熱下に接触させて未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素をアンモニア、二酸化炭素および水の混合ガスとして分離し、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素合成液をさらに処理して尿素を得、一方該ストリッピング域において分離された混合ガスを縦型凝縮域の底部に導入して吸収媒体と冷却下に接触させ、それによって該混合ガスを凝縮させ、こうして得られた凝縮液を尿素合成域に循環する尿素合成方法において、原料液体アンモニアを150～300バールの圧力において予熱してエジェクターに供給し、該液体アンモニアをエジェクターの吐出圧力と吸い込み圧力との差圧が2～10バールとなるようにエジェクターを通して膨張させ、それによって該縦型凝縮器の頂部からの凝縮液を吸引し、該エジェクターからの該液体アンモニアと該凝縮液の混合物を該尿素合成域の底部に導入し、導入された該混合物は該尿素合成域を上昇しながら尿素合成に付せられ、生成した尿素合成液を該尿素合成域の頂部から該ストリッピング域の頂部へ供給することを特徴とする改良された尿素合成方法。

10

【請求項3】

該尿素合成域および該凝縮域が、下部が尿素合成域で、上部が凝縮域であり、これらの両域の間にこれらを仕切るための隔壁を有し、そして該凝縮域の頂部および該尿素合成域の底部のそれぞれに開口を有し、かつ該凝縮域と該尿素合成域とを連通するための第1のダウンパイプを有して一体化されている請求項1に記載の方法。

【請求項4】

該尿素合成域および該凝縮域が、尿素合成域と、その上部に別個に設置されるが、該尿素合成域と一体化された凝縮域と、これらの両方を連通し、該凝縮域の頂部および該尿素合成域の底部とのそれぞれに開口を有する第1のダウンパイプとからなる請求項1に記載の方法。

20

【請求項5】

該尿素合成域、該ストリッピング域および該凝縮域が地上に設置される請求項2に記載の方法。

【請求項6】

該尿素合成域および該凝縮域が、下部が尿素合成域、上部が凝縮域であり、これらの両域の間にこれらを仕切るための隔壁を有し、そして該凝縮域の頂部に開口を有し、かつ該凝縮域と該エジェクターとを連結するための第1ダウンパイプを有して一体化されている請求項2に記載の方法。

30

【請求項7】

該尿素合成域および凝縮域が、尿素合成域と、その上部に別個に設置されるが、該尿素合成域と一体化された凝縮域と、該凝縮域の頂部に開口を有し、該凝縮域と該エジェクターとを連結する第1のダウンパイプとからなる請求項2に記載の方法。

【請求項8】

該凝縮域における凝縮液の温度は165～190に調整され、N/C（アンモニアと二酸化炭素のモル比）が2.5～4.5、H/C（水と二酸化炭素のモル比）が1.0以下、滞留時間が10～30分とされる請求項1、3または4に記載の方法。

【請求項9】

該凝縮域における圧力は130～250バール、凝縮液の温度は165～190に調整され、N/C（アンモニアと二酸化炭素のモル比）が2.5～3.5、H/C（水と二酸化炭素のモル比）が1.0以下、滞留時間が10～30分とされる請求項2および5～7のいずれかに記載の方法。

40

【請求項10】

該凝縮域において凝縮液の二酸化炭素基準で20～60%の合成率で尿素合成反応が行われる請求項8または9に記載の方法。

【請求項11】

該尿素合成域において、該凝縮域から第1のダウンパイプを経て流下する凝縮液に原料二酸化炭素の一部または原料アンモニアが添加され、凝縮液の温度は170～200に

50

調整され、N/Cが3.5～4.5、H/Cが1.0以下、滞留時間が10分～40分とされる請求項1、3、4、8および9のいずれかに記載の方法。

【請求項12】

該尿素合成域において、該凝縮域から第1のダウンパイプを経て流下する凝縮液に原料二酸化炭素の一部または原料アンモニアが添加され、尿素合成域の温度は180～200に調整され、N/Cが3.5～5.0、H/Cが1.0以下、滞留時間が10～40分とされる請求項2、5～7および9のいずれかに記載の方法。

【請求項13】

尿素合成域において二酸化炭素基準で60%～75%の全尿素合成率が達成される請求項1～12のいずれかに記載の方法。

10

【請求項14】

該尿素合成域、該凝縮域および該ストリッピング域の相対的位置関係が、地上から該凝縮域頂部まで高さを100%としたとき、該凝縮域底部までの高さが50～80%、該ストリッピング域頂部までの高さが20～50%、該合成域底部までの高さが5～30%、該ストリッピング域底部までの高さが3～10%で、該凝縮域底部とストリッピング頂部の高さの差が10～60%である請求項3、4、6または7のいずれかに記載の方法。

【請求項15】

(a)縦型の尿素合成塔、(b)該尿素合成塔の上方に設置した、冷却器を有する縦型の凝縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリッピングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパー、(d)該凝縮器の頂部および該尿素合成塔の底部のそれぞれに開口を有し、かつ該凝縮器と該尿素合成塔とを連通して該凝縮器の頂部から凝縮液を該尿素合成塔の底部へ重力により流下させるための第1のダウンパイプ、(e)該尿素合成液の底部に原料アンモニアまたは原料二酸化炭素を導入するための配管、(f)該尿素合成塔の頂部に開口を有し、尿素合成液を該ストリッパーの頂部に重力により導入するための第2のダウンパイプ、(g)該凝縮器の底部に該ストリッパーから該混合ガスを導入するための配管、(h)該凝縮器の底部に吸収媒体または吸収媒体と原料アンモニアとを導入するための配管、(i)該凝縮器の頂部に接続されたイナートガスを排出するための配管、(j)該ストリッパーの底部に接続された、原料二酸化炭素の少なくとも一部を導入するための配管、および(k)該ストリッパーの底部から、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液をさらに処理するために排出するための配管からなる尿素合成装置。

20

30

【請求項16】

(a)地上に設置された縦型の尿素合成塔、(b)地上に設置された、冷却器を有する縦型凝縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリッピングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパー、(d)原料液体アンモニアを予熱するための熱交換器、(e)予熱された原料液体アンモニアを駆動流体とし、該凝縮器からの凝縮液を被駆動流体とするエジェクター、(f)該凝縮器の頂部に開口し、該凝縮液をエジェクターに供給するためのダウンパイプ、(g)該原料液体アンモニアを熱交換器を通してエジェクターに供給するための配管、(h)エジェクターからの原料液体アンモニアと凝縮液との混合物を該尿素合成管の底部に供給するための配管、(i)該尿素合成塔から尿素合成液を該ストリッパーに供給するための配管、(j)原料二酸化炭素を該ストリッパーおよび所望により該尿素合成塔に供給するための配管、(k)該ストリッパーで分離された混合ガスを該凝縮器底部に供給するための配管、(l)該ストリッパーの底部から未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液を、さらに処理するために排出するための配管、および(m)該凝縮器の底部に吸収媒体を供給するための配管からなる尿素合成装置。

40

【請求項17】

(a)縦型の尿素合成塔、(b)該尿素合成塔の上方に設置した、冷却器を有する縦型凝

50

縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリッピングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパー、(d)原料液体アンモニアを予熱するための熱交換器、(e)予熱された原料液体アンモニアを駆動流体とするエジェクター、(f)該凝縮器の頂部に開口を有し、該凝縮器の頂部から凝縮液をエジェクターの吸い込み側に供給するための第1のダウンパイプ、(g)エジェクターの吐出側から該尿素合成塔の底部に原料液体アンモニアと該凝縮液とを導入するための配管、(h)該尿素合成塔の頂部に開口を有し、尿素合成液を該ストリッパーの頂部に導入するための第2のダウンパイプ、(i)該凝縮器の底部に該ストリッパーからの該混合ガスを導入するための配管、(j)該凝縮器の底部に吸収媒体または吸収媒体と原料アンモニアとを導入するための配管、(k)該凝縮器の頂部に接続されたイナーガスを排出するための配管、(l)該ストリッパーの底部に接続された、原料二酸化炭素の少なくとも一部を導入するための配管、および(m)該ストリッパーの底部から、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液をさらに処理するために排出するための配管からなる尿素合成装置。

10

【請求項18】

該尿素合成塔と該凝縮器とが一体となって縦型凝縮合成反応装置を形成し、下部の尿素合成塔の機能を有する尿素合成域と上部の凝縮器の機能を有する凝縮域との間に、これらを仕切る隔壁を設けた請求項15または17に記載の尿素合成装置。

【請求項19】

該尿素合成塔の上方に該凝縮器が別個に設置され、かつ尿素合成塔と凝縮器とが一体化される請求項15または17に記載の尿素合成装置。

20

【請求項20】

該凝縮器が、その内部に気液接触を良好にするためのバッフルプレートを有する請求項15～19のいずれかに記載の尿素合成装置。

【請求項21】

該尿素合成塔が、その内部に気液接触を良好にするためのバッフルプレートを有する請求項15～20のいずれかに記載の尿素合成装置。

【請求項22】

該尿素合成塔、該凝縮器およびストリッパーの相対的位置関係が、地上から該凝縮器頂部までの高さを100%としたとき、該凝縮器底部までの高さが50～80%、該ストリッパー頂部までの高さが20～50%、該合成域底部までの高さが5～30%、該ストリッパー底部までの高さが3～10%、凝縮器底部とストリッパー頂部との高さの差が10～60%である請求項16および18～20のいずれかに記載の尿素合成装置。

30

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、未反応アンモニアおよび二酸化炭素を尿素合成圧とほぼ等しい圧力において二酸化炭素によりストリッピングを行って分離することを含む尿素合成法において、合成塔等を地上置きすることが可能な、改良された尿素合成方法に関する。

40

【0002】

【従来の技術】

アンモニアと二酸化炭素とを尿素合成圧および尿素合成温度下の尿素合成域で反応させ、得られた尿素合成液から未反応のアンモニウムカーバメートをアンモニアおよび二酸化炭素の混合ガスとして分離し、この混合ガスを吸収媒体に吸収して尿素合成域に循環し、一方、アンモニウムカーバメートを分離した尿素合成液から尿素溶液を得る方法は、良く知られているところであり、種々の尿素合成方法に関する提案がある。

【0003】

ところで、尿素合成方法および生産規模によっても異なるが、尿素プラントは、合成塔、カーバメートコンデンサーおよびストリッパーからなり、これらのうち、合成塔およびカ

50

ーバメートコンデンサーは、これらの底部が地上から20～30mの高さに設置されることがあった。地上から20～30mの高さに設置される場合、鉄骨等の構造物のみで該機器を支える構造を採用することはなく、基礎であるコンクリート等をこの高さまで築くか、あるいは鉄骨構造物との組み合わせが用いられていた。このような背景から、機器の設置および補修に手間がかかること等の理由で、尿素合成塔等を地上置きにする尿素合成プロセスが開発されるようになってきた。

【0004】

地上置きを示唆するプロセスの一例として、特開昭53-149930号公報に開示される尿素の改良合成法が挙げられる。この方法によると、アンモニアと二酸化炭素を高いアンモニア/二酸化炭素モル比（以下、N/Cと略記する）によって反応させ、合成生成物を合成圧と実質上同じ圧力でストリッピング剤の存在下に熱処理し、残留物質と、合成生成物から遊離される過剰の物質とを二つの別個の流れとして等圧で再循環させることからなる、中間体アンモニウムカーバメートを伴って尿素を合成するための等圧複再循環方法において、

10

(1) 尿素合成生成物の処理を尿素合成圧と等圧である二つの連続的な段階で行い、その第一段階では上記生成物を加熱して残留アンモニウムカーバメートの実質上全部を分解させ、かつ、その分解生成物を過剰アンモニアの一部とともに排出させるようにして、そして第二段階では過剰アンモニアの残りの部分を補足的な熱の供給および二酸化炭素流れの注入により排出させるようにし、

(2) 第一段階でストリッピングされた気相を合成に直ちに循環し、そして第二段階でストリッピングされた気相を凝縮および残留ガスパーズ処理に付してから合成に液体状態で再循環する。

20

【0005】

なお、合成圧力は、 $100 \sim 250 \text{ kg/cm}^2$ 、好ましくは $180 \sim 225 \text{ kg/cm}^2$ 、合成温度は、 $170 \sim 205$ 、好ましくは $180 \sim 200$ である。

【0006】

合成部は、二つの合成管を別々に連続した2段にするか一つの合成管中の下方に完全に上下を仕切る仕切板が設けて2段とする。上方に位置する合成管（以下、第1帯域と称す）と下方に位置する合成管（以下、第2帯域と称す）における合成条件は、第1帯域のN/Cより第2帯域のN/Cが常に大となるようにされる。第1帯域においてN/Cは4～7、第2帯域においてN/Cは6～8である。一方、ストリッパーは、二つ設けられ、液相に溶解されたアンモニアの過剰量が二つのストリッピング段階の第1段階で回収されて、第1帯域に供給され、ストリッピング段階の第2段階でストリッピングされた気相を凝縮および残留ガスパーズ処理をしてから凝縮液を第1帯域に循環する。

30

【0007】

この方法の付随的効果として、上記公報の6頁左上欄に、上下2つの部分をもつ反応器の使用により、反応器を高所に設置するのに通常必要とされる大規模で取り扱いにくい足場の設置を回避できる、と記載されており、自立式であることを示唆している。

【0008】

地上置きを示唆するプロセスの別の例として、ヨーロッパ特許EP-0329215A1が挙げられる。この特許公報は、カーバメート凝縮器を高所に置き、ストリッパーガスの一部をエジェクターを使用することにより、合成部に導くプロセスを開示しており、合成塔、ストリッパー等を地上に直に設置できることを示唆している。

40

【0009】

上記2件の従来技術は、合成塔、ストリッパー等を地上に直に設置できることを示唆するが、カーバメート凝縮器を高所に置くことが必要であり、また、エジェクターを用いることが必要とされる場合もある。

【0010】

次に、特開昭60-209555号公報に開示される尿素の製法について説明する。上記2件の従来技術とは異なり、この方法は、高い尿素合成率の達成、ストリッピング処理で

50

得られるガス混合物の凝縮熱の回収を小さい熱交換面積で可能にするものである。この方法においては、アンモニウムカーバメートおよび遊離アンモニア（過剰アンモニア）を含む尿素合成溶液を125～350バールの圧力の合成ゾーンで二酸化炭素および過剰のアンモニアから形成し、尿素合成溶液中に存在するアンモニウムカーバメートの少なくとも一部を合成ゾーンの圧力以下の圧力のストリッピングゾーンで熱の供給およびストリッピングガスとの向流接触によって分解し、アンモニウムカーバメート分解生成物を過剰のアンモニアの一部およびストリッピングガスとともにガス混合物としてストリッピングゾーンから除去し、得られたガス混合物の少なくとも一部を凝縮ゾーンで凝縮させ、ストリップした尿素合成溶液を尿素溶液または固体尿素を得るために処理して尿素を製造するに当って、凝縮ゾーンにおいても反応条件下に達成しうる尿素的平衡量の少なくとも30%を形成させ、アンモニウムカーバメートおよび尿素を含む混合物を合成ゾーンへ供給する。なお、凝縮ゾーンの凝縮は、合成圧または合成圧より低いストリッピング処理の圧力で実施する。また、凝縮は浸漬凝縮器、特に、水平に配置した管熱交換器の胴側で行う。さらに、凝縮を反応ゾーンと一体の凝縮ゾーンで実施することもできる。

10

【0011】

ところで、この公報の4ページ左上の欄において浸漬凝縮器は、水平または垂直に配置することができること、凝縮を水平浸漬凝縮器で実施するのが特によいことが記載されている。また、垂直凝縮ゾーンを適用する場合、合成ゾーンおよび凝縮ゾーンを1つの装置内に収容することができるので、コンパクトな構造が得られる、との記載がある。しかしながら、垂直凝縮ゾーンを適用する例すなわち、合成ゾーンおよび凝縮ゾーンを1つの装置内に収容することを示唆しているのみである。

20

【0012】

さらに、水平配置の浸漬凝縮器を使用すると、直接作業床に配置できるので、装置の高さが減少し、装置費用が低下し、組立および分解が簡単である、との記載もあるが、この記載は、装置類の地上置きを示すものではない。

【0013】**【発明が解決しようとする課題】**

本発明は、尿素合成圧と等しい圧力における未反応アンモニアおよび二酸化炭素の原料二酸化炭素によるストリッピング工程およびストリッピング工程からの混合ガスの凝縮工程を含む尿素合成法において、装置を地上置きが可能な改良方法を提供することを目的とする。

30

【0014】**【課題を解決するための手段】**

本発明によって、下記の尿素合成方法およびそのための装置が提供される。

【0015】

本発明の改良された尿素合成方法は、尿素合成域においてアンモニアと二酸化炭素とを尿素合成温度および圧力において反応させ、得られた尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素および水からなる尿素合成液をストリッピング域において原料二酸化炭素の少なくとも一部と該尿素合成圧力にほぼ等しい圧力において加熱下に接触させて該未反応アンモニアおよび該未反応二酸化炭素をアンモニア、二酸化炭素および水の混合ガスとして分離し、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素合成液をさらに処理して尿素を得、一方該ストリッピング域において分離された混合ガスを縦型凝縮域の底部に導入して吸収媒体と冷却下に接触させ、それによって該混合ガスを凝縮させ、こうして得られた凝縮液を尿素合成域に循環する尿素合成方法において、下方に尿素合成域が、その上方に縦型凝縮域が設置され、かつ、該凝縮域の頂部および該尿素合成域の底部にそれぞれ開口を有し、該凝縮域と該尿素合成域とを連通するための第1のダウンパイプが設置され、該凝縮液は該凝縮域の頂部から該ダウンパイプを通して該尿素合成域の底部に重力により流下し、流下した凝縮液は該尿素合成域を上昇しながら尿素合成反応に付せられ、生成した尿素合成液を該尿素合成域の頂部に開口を有する第2のダウンパイプを通して該ストリッピング域の頂部に重力で流下させことを特徴とする改良された尿素合成方法と

40

50

するものである。

【0016】

また、本発明の尿素合成装置は、(a)縦型の尿素合成塔、(b)該尿素合成塔の上方に設置した、冷却器を有する縦型の凝縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリッピングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパー、(d)該凝縮器の頂部および該尿素合成塔の底部のそれぞれに開口を有し、かつ該凝縮器と該尿素合成塔とを連通して該凝縮器の頂部から凝縮液を該尿素合成塔の底部へ重力流下させるための第1のダウンパイプ、(e)該尿素合成塔の底部に原料アンモニアまたは原料二酸化炭素を導入するための配管、(f)該尿素合成塔の頂部に開口を有し、尿素合成液を該ストリッパーの頂部に重力により導入するための第2のダウンパイプ、(g)該凝縮器の底部に該ストリッパーから該混合ガスを導入するための配管、(h)該凝縮器の底部に吸収媒体または吸収媒体と原料アンモニアとを導入するための配管、(i)該凝縮器の頂部に接続されたイナートガスを排出するための配管、(j)該ストリッパーの底部に接続された、原料二酸化炭素の少なくとも一部を導入するための配管、および(k)該ストリッパーの底部から、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液をさらに処理するために排出するための配管からなるものである。

10

【0017】

さらに、本発明の改良されたいま一つの尿素合成方法は、尿素合成域においてアンモニアと二酸化炭素とを尿素合成温度および圧力において反応させ、得られた尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素および水からなる尿素合成液をストリッピング域において原料二酸化炭素の少なくとも一部と該尿素合成圧力とにほぼ等しい圧力において加熱下に接触させて未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素をアンモニア、二酸化炭素および水の混合ガスとして分離し、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素合成液をさらに処理して尿素を得、一方該ストリッピング域において分離された混合ガスを縦型凝縮域の底部に導入して吸収媒体と冷却下に接触させ、それによって該混合ガスを凝縮させ、こうして得られた凝縮液を尿素合成域に循環する尿素合成方法において、原料液体アンモニアを150~300バールの圧力において予熱してエジェクターに供給し、該液体アンモニアをエジェクターの吐出圧力と吸い込み圧力との差圧が2~10バールとなるようにエジェクターを通して膨張させ、それによって該縦型凝縮器の頂部からの凝縮液を吸引し、該エジェクターからの該液体アンモニアと該凝縮液の混合物を該尿素合成域の底部に導入し、導入された該混合物は該尿素合成域を上昇しながら尿素合成に付せられ、生成した尿素合成液を該尿素合成域の頂部から該ストリッピング域の頂部へ供給することを特徴とするものである。

20

30

【0018】

また、本発明による尿素合成装置は、(a)地上に設置された縦型の尿素合成塔、(b)地上に設置された、冷却器を有する縦型凝縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリッピングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパー、(d)原料液体アンモニアを予熱するための熱交換器、(e)予熱された原料液体アンモニアを駆動流体とし、該凝縮器からの凝縮液を被駆動流体とするエジェクター、(f)該凝縮器の頂部に開口し、該凝縮液をエジェクターに供給するためのダウンパイプ、(g)該原料液体アンモニアを熱交換器を通してエジェクターに供給するための配管、(h)エジェクターからの原料液体アンモニアと凝縮液との混合物を該尿素合成管の底部に供給するための配管、(i)該尿素合成塔から尿素合成液を該ストリッパーに供給するための配管、(j)原料二酸化炭素を該ストリッパーおよび所望により該尿素合成塔に供給するための配管、(k)該ストリッパーで分離された混合ガスを該凝縮器底部に供給するための配管、(l)該ストリッパーの底部から未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液を、さらに処理するために排出するための配管、および(m)該凝縮器の底部に吸収媒体を供給するための配管からなるものである。

40

50

【0019】

また、本発明によるいま一つの尿素合成装置は、(a)縦型の尿素合成塔、(b)該尿素合成塔の上方に設置した、冷却器を有する縦型の凝縮器、(c)該尿素合成塔からの尿素合成液に含まれる未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を原料二酸化炭素によるストリップングによりアンモニアと二酸化炭素と水との混合ガスとして分離するためのストリッパ、(d)原料液体アンモニアを予熱するための熱交換器、(e)予熱された原料液体アンモニアを駆動流体とするエジェクター、(f)該凝縮器の頂部に開口を有し、該凝縮器の頂部から凝縮液をエジェクターの吸い込み側に供給するための第1のダウンパイプ、(g)エジェクターの吐出側から該尿素合成液の底部に原料液体アンモニアと該凝縮液とを導入するための配管、(h)該尿素合成塔の頂部に開口を有し、尿素合成液を該ストリッパの頂部に導入するための第2のダウンパイプ、(i)該凝縮器の底部に該ストリッパからの該混合ガスを導入するための配管、(j)該凝縮器の底部に吸収媒体または吸収媒体と原料アンモニアを導入するための配管、(k)該凝縮器の頂部に接続されたイナートガスを排出するための配管、(l)該ストリッパの底部に接続された、原料二酸化炭素の少なくとも一部を導入するための配管、および(m)該ストリッパの底部から、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含有する尿素水溶液をさらに処理するために排出するための配管からなるものである。

10

【0020】

【発明の実施の形態】

本発明において、二酸化炭素基準での尿素合成率とは、全二酸化炭素モル量のうち尿素に転化した二酸化炭素モル量のパーセンテージである。以下単に尿素合成率という。またイナートガスとは、尿素合成塔、ストリッパ、凝縮器等の腐食を防止するために導入された空気と、原料二酸化炭素中に元々含まれている不純物との総称である。

20

【0021】

縦型の凝縮器とは、胴側にアンモニウムカーバメート液および合成液を流す型の熱交換器、例えばシェル・アンド・チューブ型熱交換器であり、縦に設置されるものをいう。

【0022】

図1および2は、本発明の実施形態を示すフローシートであり、凝縮器、尿素合成塔、ストリッパ等の各設置位置(地上からの高さ)を示している。各機器については、後に詳述するが、これらの実施態様において各機器が地上置きできる理由について以下に説明する。

30

【0023】

尿素合成塔AからストリッパCへ液を重力のみで落下させるためにはヘッド差がなければ、液は流れない。従来、合成塔の底部からストリッパ頂部に液を流す場合、合成塔の位置、とりわけ、合成塔の底部およびストリッパの頂部、とりわけ、ストリッパへの供給部の位置の差が上記ヘッド差となっていた。通常、尿素生産量1000t/d~1700t/dのプロセスでは上記ヘッド差としては10m~15mが採用されていた。なお、生産量の規模が異なってもヘッド差が大きく異なることはない。

【0024】

上記ヘッド差を得るため、まず、凝縮器Bと合成塔Aとを一体化させて、両者に直結する第1のダウンパイプ3を有する一体型の縦型凝縮合成反応装置とした。また、合成塔では内部仕切板(合成塔のライニング材と同材質、例えば、316LSS改良型からなる。)30近傍の下方に設けた第2のダウンパイプ40は、合成部においてストリッパCの頂部に設けられた供給口より下方の位置まで浸され、その位置からストリッパの頂部に設けられた供給口に連結する構造としている。この構造を採ることにより、上記第2のダウンパイプがシールの役目をなし10m~15mのヘッド差を確保できるため、地上置きが可能となった。

40

【0025】

この縦型凝縮合成反応装置において、内部仕切り板の位置は、尿素の生産量によっても多少異なるが、地上から10m~30mが選択される。例えば、生産量1700t/dのプ

50

ラントでは地上から約 27 m に設置される。

【0026】

本発明においては縦型凝縮器が用いられるが、この理由は以下のとおりである。二酸化炭素ストリッピングを用いる尿素合成プロセスにおいて、凝縮器に供給されるものは、吸収媒体としてのアンモニウムカーバメート溶液およびストリッパーから流入するストリッピングガスである二酸化炭素、過剰のアンモニア、アンモニウムカーバメートが分解して生成する二酸化炭素、アンモニア、水およびイナーガスからなる混合ガスである。凝縮器においては、その運転温度、運転圧力等の条件にもよるが、上記アンモニウムカーバメート溶液および凝縮器において凝縮した液が、凝縮器に供給される上記混合ガスを吸収することでN/Cを上げることでしか高い尿素合成率（二酸化炭素基準）で尿素を生成することはない。また、滞留時間を長くとることが、尿素を合成するために必要となる。

10

【0027】

このような観点から、胴側に上記液を流される縦型凝縮器は、設置面積が小さいことに加え、ガス吸収に必要な液深を確保できること、縦型凝縮器の胴側ではその底部から上記混合ガスが供給され上昇流の気液並流となるため、邪魔板等を設置すること、により該気液の接触時間を長くとることができる。したがって、より多くの尿素が生成するように滞留時間を長くとることができることになる。

【0028】

さらに、凝縮器の頂部でイナーガスを分離することにより、後述する合成塔Aでのガスの占める割合が大幅に減少し、本来、液相反応である尿素合成反応が進行し易くなる。また、凝縮器で防食空気と上記アンモニウムカーバメート溶液および凝縮器において凝縮した液が充分混合されるため、イナーガスを分離しても合成塔での防食に必要な溶存酸素が該液中に存在し、合成塔の腐食が防止できる。

20

【0029】

ダウンパイプについて記載する。凝縮器Bで尿素合成率20%～60%の尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素等を含む合成液は、オーバーフローして第1のダウンパイプ3を通り重力によって流下し、合成塔Aに導入される。

【0030】

また、第1のダウンパイプを合成塔の下部の十分に深いところまで到達させることにより液シールを形成し、液およびガスの逆流を防止する。第1のダウンパイプの材質は、尿素合成塔のライニングと同材質、通常316LSS改良型が選択される。

30

【0031】

なお、このダウンパイプは機器の外部を通る配管でもよい。この場合、高圧のステンレス配管を用いることで充分である。

【0032】

合成塔A中には、液シール効果を持たせるため、仕切り板30近傍の下方に開口を有する第2のダウンパイプが40設置される。この第2のダウンパイプを経てストリッパーへ重力で尿素合成液が流れる。

【0033】

なお、合成塔では、180～200になるように原料アンモニアまたは原料二酸化炭素を供給することができる。合成塔に上記原料が供給されると、凝縮器から合成塔に流下してきた液と、合成塔を上昇する気液混相流体との間に密度差（以下、ドラフト力と称す）が生ずる。このドラフト力について、図1において、原料アンモニアライン1を経て合成塔に供給する場合を例にとって説明する。原料液体アンモニアは熱交換器Dにて予熱され合成塔に供給される。このとき、合成塔においては、前記凝縮器でのN/C（2.5～4.5）より高いN/C（3.5～4.5）に保たれ、合成塔での液密度は概ね870 kg/m³である。凝縮器での液の密度は概ね1000 kg/m³であり、この密度の差がドラフト力となる。このドラフト力により、重力による流動をさらに促進し、凝縮器とストリッパーの高低差を小さくすることができる。

40

【0034】

50

図1および2の実施態様において、後に詳述する凝縮器と合成塔との容積比は、概ね3：7～5：5に選択される。尿素の生産量にもよるが、凝縮器の容積が合成塔と凝縮器の容積の和の30%未満であると、凝縮器での滞留時間が不充分である場合があり、50%を越えると合成塔での滞留時間が不充分である場合がある。

【0035】

図1および2の実施態様における凝縮器、尿素合成塔およびストリッパーの相対的位置関係を一般的に示すと、凝縮器頂部の地上高を100とした場合に、凝縮器底部の地上高は50～80、ストリッパー頂部の地上高は20～50、尿素合成塔底部の地上高は5～30、ストリッパー底部の地上高は3～10、凝縮器底部とストリッパー頂部との高さの差は10～60とされる。このような相対的位置関係をとることによって、凝縮器で生成する凝縮液の尿素合成塔への導入、尿素合成塔Aから尿素合成液のストリッパーCへの導入およびストリッパーCから混合ガスの凝縮器Bへの導入が重力によって円滑に行われ、エジェクターの使用、尿素合成塔を高所に放置する等の必要がない。

10

【0036】

なお、後述の実施例1と参考例1に示すように、同一尿素合成条件（同一尿素生産量）で、合成塔のみで反応させる従来の方法の合成塔容積を1とすると、本発明の凝縮器と合成塔との容積の和は1未満であり、総容積として減少している。

【0037】

以上のように、図1および2の実施態様では合成塔と凝縮器が一体化され、凝縮器も尿素合成機能を有するため、合成塔でのみ尿素を合成していた従来法に比較して明らかにプロセスとして単純化され、同時に装置も小型化される。

20

【0038】

図1および2を参照して、ヘッド差のみで液、ガスを凝縮器B、合成塔A、ストリッパーCに循環する場合の本発明を詳細に説明する。これらの図面および後記の図3および4において、用いる符号は共通である。

【0039】

図1および2において尿素合成塔Aの上に、凝縮器Bが設置され、これらは仕切板30で仕切られ、第1のダウンパイプ3は、凝縮器Bの頂部から合成塔Aの底部へ練通するよう設置されている。また、合成塔A中には、液シール効果をもたせるため、仕切板30の下方の近傍に開口を有する独立した第2のダウンパイプ40が設置されている。

30

【0040】

なお、図1および2には凝縮器Bと尿素合成塔Aとが両者の間を仕切る隔壁を介して一体となった装置が示されているが、尿素合成塔の上方に別個に凝縮器を設置してもよく、あるいはこれら別個に設けられた凝縮器と尿素合成塔を、例えば円筒体（耐圧を要求されない）で連結して一体化することもできる。

【0041】

図1のプロセスについて説明するとこの図に記載されていない工程において未反応アンモニア、二酸化炭素をアンモニウムカーバメート水溶液として回収した回収液の一部はライン7からライン8、ライン11を通り凝縮器Bに供給され、一方、残部はライン9を通りスクラパーFに供給される。縦型凝縮器Bに供給された回収液は後述のストリッパーCからライン5を通り凝縮器Bに供給された二酸化炭素、アンモニア、イナータガス等の混合ガスと接触・混合され、二酸化炭素およびアンモニアを吸収する。

40

【0042】

凝縮器Bにおいて、運転圧力は、後述の合成塔の運転圧力と同一圧力であり、N/Cは2.5～4.5、H/Cは0.0～1.0、滞留時間は10分～30分である。運転温度は、170～190に調整され、以上の条件で尿素合成率20%～60%を達成することができる。

【0043】

N/Cが2.5未満であると、アンモニウムカーバメート溶液の二酸化炭素分圧の上昇による凝縮率の低下およびアンモニウムカーバメート固結温度の上昇のため、また、N/C

50

が4.5を越えると、アンモニア蒸気圧の上昇により凝縮率が低下するので、いずれも避けるのが好ましい。H/Cが1.0を越えると、尿素の平衡合成率が低下するので、避けるのが好ましい。滞留時間が10分未満であると、尿素合成率の低下による蒸気圧の上昇と凝縮率の低下のため、また、30分を越えても時間をかける割には尿素合成率の顕著な向上が望めないで、いたずらに、凝縮器の容積が大きくなりすぎるため、いずれも避けるのが好ましい。運転温度が、170 未満であると、尿素合成率が低下するため、また、190 を越えると、蒸気圧の上昇に伴う凝縮率の低下および機器材料の腐食を招くため、いずれも避けるのが好ましい。

【0044】

なお、スクラバーFに供給された上記回収液は、ライン6を経てスクラバーFに導入される少量のアンモニア、二酸化炭素等を含むイナートガス中のアンモニア、二酸化炭素を吸収し、再びスクラバーFに循環される。アンモニア、二酸化炭素を吸収して増量した分に相当する回収液はライン10を経てエジェクターEで昇圧されライン11を経て凝縮器Bに導入される。一方、イナートガスは、スクラバーFの塔頂から大気に放出される。

10

【0045】

この図ではエジェクターEを使用する例を示したが、本発明は、言うまでもなくこれに限られるものではない。このエジェクターEを使用する場合、該回収液は、スクラバーFとエジェクターEに半分ずつ分配され、一方はスクラバーFの充填層においてイナートガスの洗浄に、他方はスクラバーFの出口のエジェクターEによる昇圧に用いられる。なお、スクラバーFを凝集器Bより上の位置に設置すれば、上記エジェクターEは不要となること

20

【0046】

一方、原料二酸化炭素の一部はライン2を通りストリッパーCに供給される。なお、この図には記載されていないが、防食用の空気もストリッパーCに供給される。ストリッパーCには、合成塔A中の第2のダウンパイプ40から尿素、アンモニウムカーバメート、アンモニア等からなる合成液が供給され、加熱下に二酸化炭素でストリッピングされる。運転条件は、通常、圧力140バール~200バール、温度160 ~ 200 である。原料二酸化炭素の残部は、この図には記載されていないが、例えば、低压分解塔に供給される。尿素と未反応のアンモニアおよび二酸化炭素を含む液はストリッパーの底部から抜き出され、ライン12を経て低压分解工程に送られる。

30

【0047】

原料液体アンモニアは例えば70 ~ 90 に予熱され、ライン1から導入され、スクラバーF、熱交換器Dを通してさらに予熱され、合成塔Aの下部に供給される。合成塔Aでは、この液体アンモニアは、凝縮器Bから第1のダウンパイプ3を通り重力流下した合成液と合流する。合流した液は、合成塔の塔頂へと移動し、合成塔中に設けられた第2のダウンパイプ40からライン4を通りストリッパーCへ供給される。

【0048】

合成塔の運転圧力は、通常のプロセスのように130バール~250バールが選択される。N/Cは3.5~5.0、H/Cは1.0以下、滞留時間は10分~40分が選択される。運転温度は180 ~ 200 に調整され、以上の条件下で60%~75%の尿素合成率を達成する。

40

【0049】

N/Cは3.5未満であると、平衡合成率が低いため、また、5.0を越えるとアンモニアのガス化を招き蒸気圧が上がるため、避けるのが好ましい。H/Cが1.0を越えると合成率の低下をきたすため、避けるのが好ましい。滞留時間は、10分未満であると、平衡合成率近傍に達するのに不十分であり、また、40分を越えても既に充分平衡合成率近傍に達しているため、避けるのが好ましい。

【0050】

図2のプロセスについて説明すると、図1に示したプロセスを以下のように代えたものである。すなわち、図1においては原料液体アンモニアを合成塔に、原料二酸化炭素をスト

50

リッパ-を経て凝縮器にそれぞれ供給しているが、図2のプロセス例では原料液体アンモニアを凝縮器に供給し、原料二酸化炭素の一部をストリッパ-を通り凝縮部に、そして残りを合成部に供給している点で相違している。これらの図において基本的に大きく異なる点は、凝縮器および合成塔での運転条件、とりわけ、N/Cが異なることである。

【0051】

図2のプロセスでは、凝縮器での運転条件は、N/Cが3.0~4.5、H/Cが1.0以下、温度が160~180、圧力が合成塔と同一であり、合成塔での運転条件としては、N/Cが、3.0~4.0、H/Cが、1.0以下、温度が、180~200、圧力が130バール~250バールである。

【0052】

次に、本発明の別の実施態様である凝縮液を合成塔へ導入するためにエジェクターを使用するプロセスを図3および4を参照して詳細に説明する。図3のプロセスにおいて、原料液体アンモニアは、ライン1から150~300バールの圧力で熱交換器Dに入り、ここで、100~200に予熱されて駆動流体としてエジェクターGに入る。エジェクターの吐出圧力と吸い込み圧力との差圧が2~10バールとなるよう原料液体アンモニアはエジェクターを通して膨張され、これによって縦型凝縮器Bのダウンパイプ3を通してエジェクターの吸い込み側に供給される凝縮液が吸引されて昇圧され、駆動流体である原料液体アンモニアとの混合物として尿素合成塔Aの底部に導入される。原料二酸化炭素のうち、未反応アンモニアおよび二酸化炭素のストリッピングに必要とされる量はライン2および2bを経てストリッパ- Cの底部に供給され、残りの量はライン2aを経て尿素合成塔Aの底部に供給されるか、または図示されない低压分解工程に供給される。

【0053】

エジェクターGからの原料液体アンモニアと、凝縮液の混合物と、所望ならばライン2aから供給される二酸化炭素は尿素合成塔Aを上昇しながら反応し、60~75%の全尿素合成率が達成される。尿素合成塔Aの圧力は130~250バール、N/Cは3.5~5.0、H/Cは1.0以下、滞留時間は10~40分、温度は180~200とするのが好ましい。

【0054】

N/Cが3.5未満では平衡合成率が低いため、また5.0を越えるとアンモニアのガス化を招き蒸気圧が上昇するため、これらのN/Cは避けるのが好ましい。滞留時間が10分未満では平衡合成率の近傍に到達するのに不十分であり、また40分を越えても既に平衡合成率の近傍に達しているので、それ以上の合成率の上昇が期待できないので、これらの滞留時間は避けるのが好ましい。

【0055】

尿素合成塔Aで生成した尿素、未反応アンモニア、未反応二酸化炭素および水からなる尿素合成液は合成塔の頂部から抜き出され、ライン4を経て合成塔の圧力と実質的に等しいか、やや低い圧力のストリッパ- Cの頂部に供給される。この尿素合成液はストリッパ- Cを流下しながらライン2bを経てストリッパ- Cの底部に供給される原料二酸化炭素と加熱下に接触せしめられて未反応アンモニアおよび二酸化炭素がアンモニア、二酸化炭素、イナートガスおよび水の混合ガスとして分離される。この混合ガスはストリッパ- Cの頂部からライン5を経て凝縮器Bの底部に導入される。ストリッパ- Cには装置防食用の空気も導入される。

【0056】

ストリッパ-の運転条件は、圧力は130~250バール、特に140~200バール、温度160~200とされる。ストリッパ- Cに供給される原料二酸化炭素と尿素合成塔Aまたは低压分解工程に供給される二酸化炭素の量は、ストリッパ- Cで分離すべき未反応アンモニアおよび二酸化炭素の量等の諸条件を勘案して適宜に決定される。

【0057】

ストリッパ- Cの底部からは、未分離の未反応アンモニアおよび未反応二酸化炭素を含む尿素水溶液がライン12を経て抜き出され、低压分解工程に送られて処理され尿素が得ら

10

20

30

40

50

れる。

【 0 0 5 8 】

凝縮器 B の頂部にはスクラバー F が一体化されている。もちろんスクラバー F は凝縮器 B とは別個に設けることができる。スクラバー F の頂部にはライン 7 を経て低圧回収工程（図示されない）からの回収液が吸収媒体として供給される。この吸収媒体は凝縮器 B からのイナートガスと接触して同伴するアンモニアおよび二酸化炭素を吸収して除去する。イナートガスはライン 15 を経て放出される。

【 0 0 5 9 】

一方、スクラバー F からの吸収液（アンモニアおよび二酸化炭素を吸収した吸収媒体）はスクラバー F の底部に設けられた受器 16 に流下し、ダウンパイプ 11 を経て凝縮器 B の底部にストリッパーからの混合ガスの吸収媒体として流下する。流下した吸収媒体は、13 および 14 で示される冷却器による冷却下に上記混合ガスと接触してこれを凝縮する。生成した凝縮液は凝縮器内を上昇し、頂部に開口を有するダウンパイプ 3 を経てエジェクター G の吸い込み側に供給され、前記のとおり原料液体アンモニアとともに合成塔 A の底部に供給される。

10

【 0 0 6 0 】

凝縮器 B の運転圧力は、ストリッパー C のそれとほぼ同じであって 140 ~ 250 バールから選ばれ、温度は 130 ~ 250、特に 170 ~ 190 に調整される。また、凝縮器 B における N/C は 2.5 ~ 3.5、H/C は 1.0 以下、滞留時間は 10 ~ 30 分とされ、以上の条件で 20 ~ 60 % の尿素合成率を達成することができる。

20

【 0 0 6 1 】

凝縮器 B において、N/C が 2.5 未満では凝縮液の二酸化炭素分圧が上昇し、凝縮率が低下し、かつ、凝縮液の固結温度が上昇し、また N/C が 3.5 を越えるとアンモニア蒸気圧の上昇して凝縮率が低下するので、これらの N/C はいずれも避けるのが好ましい。H/C が 1.0 を越えると尿素の平衡合成率が低下するので、これらの H/C は避けるのが好ましい。滞留時間が 10 分未満では、凝縮器における尿素合成率が低いので蒸気圧が上昇して凝縮率が低下し、また、30 分を越えても時間を延長した割には凝縮器における尿素合成率の顕著な上昇が望めず、凝縮器の容積が増大するのみなので、これらの条件はいずれも避けるのが好ましい。運転温度が 170 未満では尿素合成率が低下し、また 190 を越えると蒸気圧の上昇に伴う凝縮率の低下および装置の腐食が増大、するので、

30

【 0 0 6 2 】

図 3 に示したプロセスによれば、合成塔 A、凝縮器 B およびストリッパー C をすべて地上置きすることが可能である。凝縮器 B およびストリッパー C の圧力を合成管の圧力よりやや低く選択し、かつストリッパーから凝縮器へ混合ガスが流れる程度にストリッパーと凝縮器との間に圧差を設けても、凝縮器からより高圧の合成塔への凝縮液の導入がエジェクターによって可能となるからである。

【 0 0 6 3 】

次に図 4 に示したプロセスについて説明する。このプロセスでは、図 1 および 2 のプロセスにおけるように、縦型凝縮器 B を尿素合成塔 A の上方に、両者が一体化されるように設けた装置を用いる。本来、このような装置を用いると、装置を地上置きしても重力により尿素合成塔 A、ストリッパー C および凝縮器間を液およびガスを循環できるのであるが、凝縮器からの凝縮液を、原料液体アンモニアで駆動するエジェクター G により吸引、昇圧して合成塔 A に送ることにより、合成塔 A、ストリッパー C および凝縮器 B の圧力配合をより自由に決定することができる。

40

【 0 0 6 4 】

図 4 において、図示されていない工程において未反応アンモニア、二酸化炭素をアンモニウムカーバメート水溶液として回収した回収液の一部はライン 7 からライン 8、ライン 11 を通り縦型凝縮器 B に吸収媒体として供給され、一方、残部はライン 9 を通りスクラバー F に供給される。

50

【0065】

縦型凝縮器 B に供給された上記回収液は後述のストリッパ C からライン 5 を通り凝縮器 B に供給された二酸化炭素、アンモニア、イナートガスおよび水の混合ガスと接触せしめられ、二酸化炭素およびアンモニアを吸収する。

【0066】

凝縮器の運転圧力は、後述の合成塔の運転圧力と実質的に同一か、やや低い圧力で 130 ~ 250 パールから選択される。N/C は 2.5 ~ 3.5、H/C は 1.0 以下、滞留時間は 10 ~ 30 分から選択される。運転温度は 130 ~ 250、特に 170 ~ 190 に調整され、以上の条件で凝縮器 B において尿素合成率 20 ~ 60 % を達成することができる。

10

【0067】

凝縮器 B において N/C が 2.5 未満であると、アンモニウムカーバメート溶液の二酸化炭素分圧の上昇による凝縮率の低下およびアンモニウムカーバメート固結温度の上昇のため、また、N/C が 3.5 を越えると、アンモニア蒸気圧の上昇による凝縮率の低下のため、いずれの N/C も避けるのが好ましい。H/C が 1.0 を越えると、尿素の平衡合成率低下のため、1.0 以上の H/C は避けるのが好ましい。滞留時間が 10 分未満であると、低尿素合成率による蒸気圧上昇と凝縮率低下のため、また、30 分を越えても時間をかける割には尿素合成率の顕著な向上が望めず、凝縮器の容積が大きくなりすぎるため、いずれの条件も避けるのが好ましい。運転温度が 170 未満であると、尿素合成率が低下するため、また、190 を越えると、蒸気圧の上昇に伴う凝縮率低下および機器材料

20

【0068】

なお、スクラバー F に供給された回収液は、ライン 6 を経てスクラバー F に導入される少量のアンモニア、二酸化炭素等を含むイナートガス中のアンモニア、二酸化炭素を吸収し、図示されないが、再びスクラバー F に循環される。一方、イナートガスは、スクラバー F の塔頂からライン 15 を経て大気に放出される。

【0069】

図 4 ではエジェクター E を使用する例を示したが、本発明は、言うまでもなくこれに限られるものではない。このエジェクター E を使用する場合、上記回収液は、スクラバー F とエジェクター E に半分ずつ分配され、一部はスクラバー F の充填層においてイナートガスの洗浄に用いられ、残部はスクラバー F の出口のエジェクター E による昇圧に用いる。なお、スクラバー F を凝縮器 B より上の位置に設置すれば、上記エジェクター E は不要となることは言うまでもないことである。

30

【0070】

原料二酸化炭素の一部はライン 2 を通りストリッパ C に供給される。なお、この図には記載されていないが、防食用の空気もストリッパ C に供給される。ストリッパ C には、合成塔 A 中の第 2 のダウンパイプ 40 およびライン 4 から尿素、アンモニウムカーバメート、アンモニア等からなる合成液が供給され、加熱下に二酸化炭素でストリッピングされる。ストリッパ C の運転条件は、通常、圧力が合成塔 A と実質的に同一か、やや低い圧力であって、140 ~ 200 パールから選ばれ、温度が 160 ~ 200 から選ばれる。原料二酸化炭素の残部は、この図には記載されていないが、例えば、低压分解塔に供給される。尿素と未反応のアンモニアおよび二酸化炭素を含む液はストリッパの底部から抜き出され、ライン 12 を経て低压分解工程に送られて処理され、尿素が得られる。

40

【0071】

原料液体アンモニアは例えば 70 ~ 90 に予熱され、ライン 1 から導入されスクラバー F の冷却器を通り、さらに 150 ~ 300 パールにおいて熱交換器 D を通って 100 ~ 200 に予熱され、エジェクター G に駆動流体として供給される。一方、凝縮器 B の頂部から第 1 のダウンパイプ 3 を通り重力で流下した凝縮液はエジェクター G の吸い込み側に供給され、昇圧されて駆動流体である原料液体アンモニアとともに合成塔 A の底部に供給され尿素合成に付される。合成塔 A の頂部から、前記のとおり第 2 のダウンパイプ 40 お

50

よびライン 4 を経て尿素合成液がストリッパ C の頂部に供給される。

【 0 0 7 2 】

合成塔 A の運転圧力は、通常のプロセスのように 1 3 0 ~ 2 5 0 バールが選択される。また、N / C は 3 . 5 ~ 5 . 0、H / C は 1 . 0 以下、滞留時間は 1 0 ~ 4 0 分の範囲から選択される。運転温度は 1 8 0 ~ 2 0 0 に調整され、以上の条件下で 6 0 ~ 7 5 % の全尿素合成率が達成される。

【 0 0 7 3 】

合成塔 A において、N / C が 3 . 5 未満であると、平衡合成率が低いため、また、5 . 0 を越えるとアンモニアのガス化を招き蒸気圧が上がるため、これらの条件は避けるのが好ましい。尿素合成率の低下をきたすため、1 . 0 を超える H / C は避けるのが好ましい。滞留時間は、1 0 分未満であると、平衡合成率近傍に達するのに不十分であり、また、4 0 分を越えても既に充分平衡合成率近傍に達しているため、これらの条件は避けるのが好ましい。

10

【 0 0 7 4 】

なお、合成温度を 1 8 0 ~ 2 0 0 になるように、ストリッパに供給する原料二酸化炭素の残りの部分の全部または一部を合成塔 A に供給することができる。

【 0 0 7 5 】

図 4 に示したプロセスにおいて用いられる、尿素合成塔と凝縮器とが一体となった装置は、エジェクターが設けられている以外は、図 1 において用いられたものと同様である。

【 0 0 7 6 】

20

【実施例】

さらに本発明を詳細に実施例を用いて説明する。なお、本発明は、以下に記載の実施例のみに制限されることがないのは、言うまでもないことである。

【 0 0 7 7 】

実施例 1

図 1 に示す日産 1 4 0 0 トンの地上置き装置を用いる改良された尿素合成プロセスで尿素合成を実施した。

【 0 0 7 8 】

ライン 1 から原料アンモニア 7 9 1 t / d が、またライン 2 から原料二酸化炭素 1 0 2 5 t / d が供給される。熱交換器 D においてスチーム凝縮水で 1 7 5 に加熱された原料アンモニアは、ライン 1 から合成塔 A の底部に、原料二酸化炭素 9 6 9 t / d と防食用空気約 1 7 t / d がライン 2 からストリッパ C の底部に、また残りの原料二酸化炭素は、この図に記載されていない低压分解塔に供給された。一方、ライン 7 からの吸収媒体としての回収液 1 3 1 4 t / d は、下記組成を有し、1 0 8、1 9 0 バールに昇圧され、スクラバー F とエジェクター E に半分ずつ分配される。

30

【 0 0 7 9 】

尿素	0 . 4 %
アンモニア	3 4 . 8 %
二酸化炭素	4 0 . 0 %
水	2 4 . 4 %

40

スクラバー F に供給された回収液は充填層においてイナートガスの洗浄に用いられ、エジェクターに供給された回収液はスクラバー出口液 (ライン 1 0) のエジェクター E による昇圧に用いた。スクラバー F は、1 7 5 バール、1 7 5 で運転された。スクラバー出口液 (ライン 1 0) とエジェクター駆動用回収液 (ライン 8) は、エジェクター E で混合され、ライン 1 1 から凝縮器 B の底部に供給された。

【 0 0 8 0 】

ストリッパ C で分離されたアンモニア、二酸化炭素および水からなる混合ガスは、ライン 5 を経て凝縮器 B の底部に送られた。凝縮器 B の胴側は、前記回収液と凝縮によって生じたアンモニウムカーバメートで満たされており、この液により上記混合ガスが吸収される。なお、吸収熱は、ライン 1 3 およびライン 1 4 で示される冷却器で除熱される。混合

50

ガスを吸収した液は、15分の滞留時間後、第1のダウンパイプ3を重力で流下して合成塔Aに供給され、凝縮器Bの塔頂では、ライン6を通りイナータガスが抜き出された。

【0081】

合成塔Aの底部に供給された凝縮液は、ライン1からの前記175に加熱された液体アンモニアと混合され、ゆっくりと合成塔を上昇しながらさらに尿素合成反応をがすすんだ。その際の滞留時間は25分であった。なお、尿素合成塔Aの内部には、邪魔板が設置されガス分散を促進するとともに液の逆混合を防いでいる。

【0082】

合成塔Aから第2のダウンパイプ40およびライン4を通りストリッパCに供給された合成液は、アンモニウムカーバメートの加熱分解およびアンモニア、二酸化炭素ガスとしての分離がなされる。ストリッパCは、塔頂温度191、下部温度179、圧力175バールで運転された。

10

【0083】

以上述べたように、気体および液が凝縮器B、合成塔AならびにストリッパC間で循環されて運転された。凝縮器B、合成塔A、およびストリッパCの運転条件および組成を表1に記載する。

【0084】

参考例1(図1のプロセスに対応)

従来の尿素合成プロセス(凝縮器を合成塔の上部に設置せず凝縮器および合成塔は、それぞれ地上30mおよび28mの位置に設置した。)において実施例1と運転条件をあわせて実施した。ここで、合成塔の容積を1としてこれを実施例1の凝縮器と合成塔との総容積を比較した。結果を表1に併記する。

20

【0085】

実施例2

図2に示す尿素合成プロセスを、表1に記載した凝縮器B、合成塔AおよびストリッパCの運転条件により実施した。

【0086】

【表1】

	実施例1	実施例2	参考例1
原料アンモニア供給量 (t/d)	792	792	—
原料二酸化炭素供給量 (t/d)	1025	1025	—
回収液量 (t/d)	1314	1462	—
尿素 (%)	0.4	0.4	—
アンモニア (%)	34.8	38.7	—
二酸化炭素 (%)	40.4	36.4	—
水 (%)	24.4	24.5	—
凝縮器 B			
圧力 (バー)	175	170	—
温度 (°C)	185	170	—
尿素 (%)	21.1	15.9	—
アンモニア (%)	34.3	47.5	—
二酸化炭素 (%)	26.7	21.6	—
水 (%)	17.9	15.0	—
尿素合成率 (%)	42.6	35.1	—
N/C	2.85	4.40	—
H/C	0.67	0.76	—
滞留時間 (分)	15	20	—
容積比	0.34	—	—
合成塔 A			
圧力 (バー)	175	170	175
温度 (°C)	185	185	185
尿素 (%)	31.8	32.4	31.8
アンモニア (%)	36.8	34.8	36.8
二酸化炭素 (%)	12.2	13.4	12.2
水 (%)	19.2	19.4	19.2
尿素合成率 (%)	65.7	63.9	65.7
N/C	4.0	3.70	4.0
H/C	0.67	0.64	0.67
滞留時間 (分)	25	30	—
容積比	0.54	—	1.0
ストリッパ C (ライン 12)			
尿素 (%)	48.1	46.3	—
アンモニア (%)	13.2	15.5	—
二酸化炭素 (%)	13.7	13.5	—
水 (%)	25.0	24.7	—
ストリッパ C (ライン 2)			
二酸化炭素 (t/d)	969	700	—

10

20

30

40

【 0 0 8 7 】

実施例 3

図 3 に示す日産 1 4 0 0 トンの地上置き装置を用いる改良された尿素合成プロセスで尿素合成を実施した。

【 0 0 8 8 】

ライン 1 から原料アンモニア 7 9 2 t / d が、またライン 2 から原料二酸化炭素 1 0 2 5

50

t/dが供給される。ライン1から導入され熱交換器Dにおいてスチーム凝縮水で175に加熱された、250バールの圧力の原料液体アンモニアは、エジェクターGを通過して尿素合成塔Aの底部に、また原料二酸化炭素969t/dと防食用空気約17t/d尿素は、それぞれライン2および2bを経てストリッパCの底部に、さらに残部原料二酸化炭素は、この図に記載されていない低圧分解塔に供給された(ライン2aからの原料二酸化炭素の量を0とした)。一方、ライン7からの吸収媒体としての回収液1314t/dは、下記組成を有し、108の温度で、190バールに昇圧され、スクラバーFに供給される。

【0089】

尿素	0.4%
アンモニア	34.8%
二酸化炭素	40.0%
水	24.4%

10

スクラバーFは、175バール、175で運転された。スクラバー出口液は、受器16およびダウンパイプ11を経て凝縮器Bの底部に供給された。一方、スクラバーFの塔頂からライン15を経てイナーートガスが放出された。

【0090】

ストリッパCで分離されたアンモニア、二酸化炭素、水およびイナーートガスからなる混合ガスは、ライン5を経て凝縮器Bの底部に送られた。凝縮器Bの胴側は、前記回収液と凝縮によって生じたアンモニウムカーバメートで満たされており、この液により上記混合ガスが吸収される。なお、吸収熱は、ライン13およびライン14で示される冷却器で除熱される。混合ガスを吸収した凝縮液は、15分の滞留時間後、ダウンパイプ3を重力で流下し、エジェクターGにて昇圧後、合成塔Aの底部に供給された。

20

【0091】

合成塔Aの底部に供給された原料液体アンモニアと凝縮液とは、合成塔を上昇しながら、さらに尿素合成反応をすすめた。その際の滞留時間は25分であった。なお、合成塔Aの内部には、邪魔板が設置されガス分散を促進するとともに液の逆混合を防いでいる。

【0092】

合成塔Aの頂部からライン4を経てストリッパCに供給された合成液は、アンモニウムカーバメートの加熱分解およびアンモニア、二酸化炭素の混合ガスとしての分離がなされる。ストリッパCは、塔頂温度191、下部温度179、頂部圧力177バールで運転された。以上述べたように、気体および液が凝縮器B、合成塔AならびにストリッパC間で循環され運転された。このためのドライビングフォースとして用いられる、原料液体アンモニアを駆動流体とするエジェクターの吐出側と吸い込み側の差圧は約3バールであった。凝縮器B、合成塔A、およびストリッパCの運転条件および組成を表1に記載する。

30

【0093】

実施例4

図4に示す尿素合成プロセスを表2に記載した、凝縮器B、合成塔A、およびストリッパCの運転条件によって実施した。

40

【0094】

実施例5

図3に示す日産1725トンの地上置き装置を用い、表2に記載した凝縮器B、合成塔AおよびストリッパCの運転条件により尿素合成を実施した。

【0095】

【表2】

		実施例3	実施例4	実施例5
原料アンモニア供給量 (t/d)		792	792	978
原料二酸化炭素供給量 (t/d)		1025	1025	1264
回収液量 (t/d)		1314	1314	1457
尿素 (%)		0.4	0.4	0.5
アンモニア (%)		34.8	34.8	36.4
二酸化炭素 (%)		40.4	40.4	37.0
水 (%)		24.4	24.4	26.1
凝縮器B				
圧力 (バール)	頂部	175	175	156
	底部	176	176	157
温度 (°C)		185	185	185
尿素 (%)		21.1	21.1	29.2
アンモニア (%)		34.3	34.3	32.0
二酸化炭素 (%)		26.7	26.7	18.0
水 (%)		17.9	17.9	20.8
尿素合成率 (%)		42.6	42.6	54
N/C		2.85	2.85	3.18
H/C		0.67	0.67	0.74
滞留時間 (分)		15	15	20
容積比		0.34	0.34	—
エジェクター				
圧力 (バール)	吸い込み側	176	176	157
	吐出側	179	179	160
合成塔A				
圧力 (バール) 頂部		177	177	158
温度 (°C)		185	185	188
尿素 (%)		31.8	31.8	32.9
アンモニア (%)		36.8	36.8	35.3
二酸化炭素 (%)		12.2	12.2	12.6
水 (%)		19.2	19.2	19.2
尿素合成率 (%)		65.7	65.7	65.5
N/C		4.0	4.0	3.8
H/C		0.67	0.67	0.62
滞留時間 (分)		25	25	20
容積比		0.54	0.54	—
ストリッパーC (ライン12)				
圧力 (バール) 頂部		177	177	158
尿素 (%)		48.1	48.1	49.0
アンモニア (%)		13.2	13.2	13.5
二酸化炭素 (%)		13.7	13.7	12.3
水 (%)		25.0	25.0	25.2
ストリッパーC (ライン2)				
二酸化炭素 (t/d)		969	969	863

10

20

30

40

【0096】

【発明の効果】

本発明の改良された尿素合成方法によれば、以下に記載の効果が達成される。

【0097】

(1) 合成塔、凝縮器およびストリッパーを地上に設置するプロセスが達成できたため、従来必要としていたコンクリート、鉄骨構造物が不要である。

50

【0098】

(2) 縦型凝縮器と合成塔を一体化した場合、プロセスの単純化が図れる。

【0099】

(3) 凝縮液の尿素合成塔への供給に原料液体アンモニアを駆動流体とするエジェクターを用いるので、ストリッパーおよび凝縮器の設置位置および圧力配分の自由度が増大する。

【0100】

(4) 凝縮器を原料ガス等が充分吸収されてアンモニウムカーバメートが生成し易い縦型凝縮器とし、液を胴側に流す構造を採用したため、凝縮器の容積を調整することで凝縮器で尿素が生成する。

10

【0101】

(5) また、尿素合成塔と凝縮器とが一体化された場合、凝縮器と合成塔で尿素が合成できるため、これらの装置の総容積は従来の合成塔および凝縮器の総容積に比較して小さくてよい。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施態様を示すフローシートであり、各装置の地上高を示す。

【図2】本発明の別の実施態様を示すフローシートである。

【図3】本発明のさらに別の実施態様を示すフローシートである。

【図4】本発明のなお別の実施態様を示すフローシートである。

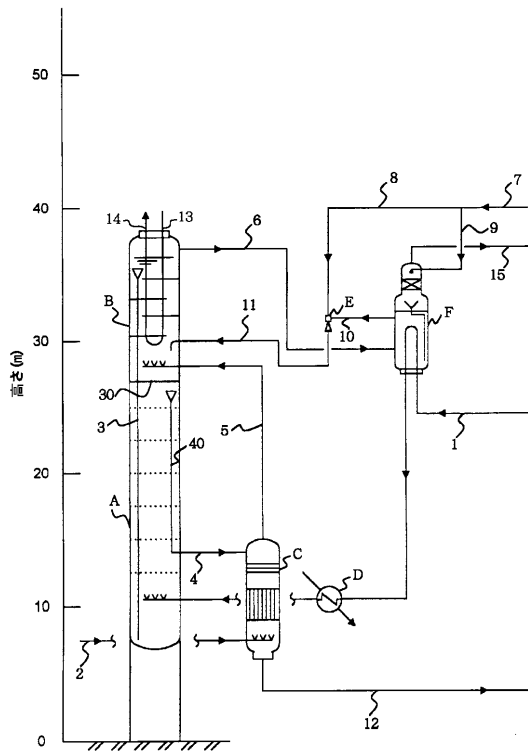
【符号の説明】

20

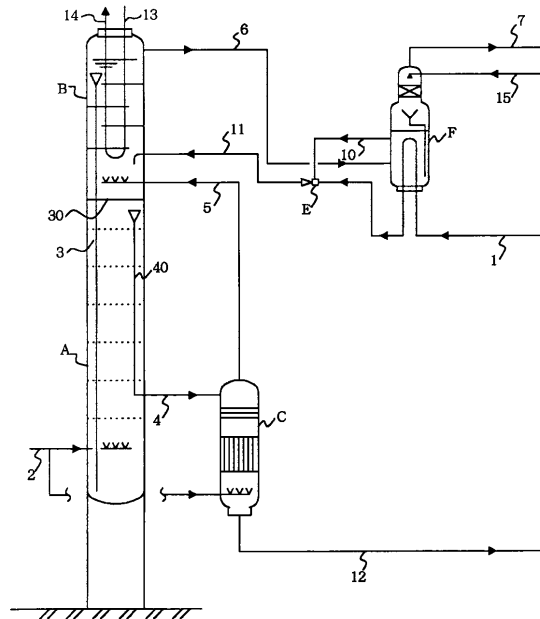
- A (尿素)合成塔
- B (縦型)凝縮器
- C ストリッパー
- D 熱交換器
- E エジェクター
- F スクラバー
- G エジェクター
- 3 第1のダウンパイプ
- 30 仕切板
- 40 第2のダウンパイプ

30

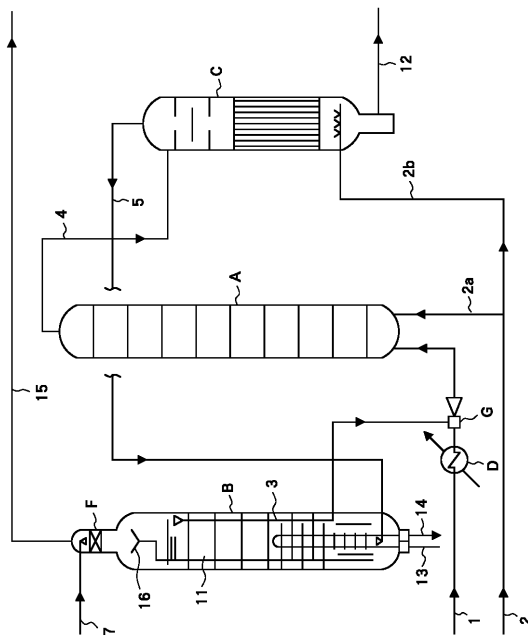
【 図 1 】



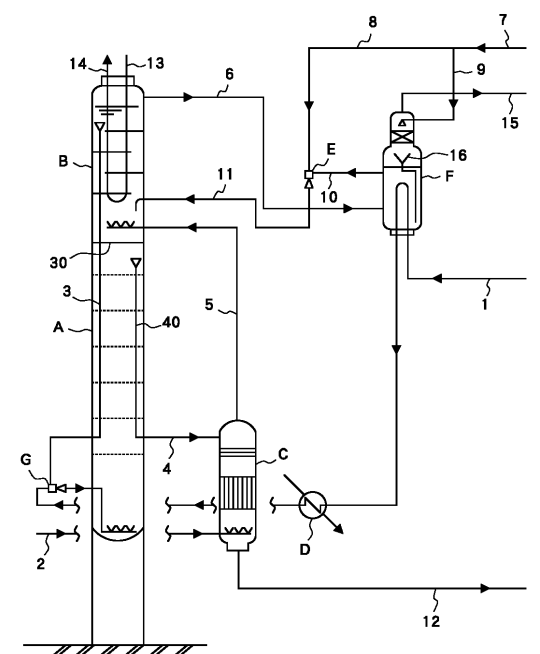
【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】



フロントページの続き

審査官 品川 陽子

(56)参考文献 欧州特許出願公開第00329215 (EP, A1)

特開昭60-209555 (JP, A)

特開昭57-128669 (JP, A)

特開昭53-149930 (JP, A)

特開昭56-012358 (JP, A)

英国特許第01188051 (GB, B)

ZARDI U. and ORTU F., Recycle Carbanate via Ejector, HYDROCARBON PROCESSING, 1970年, p.115-116

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07C 273/04