



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 104016375 A

(43) 申请公布日 2014. 09. 03

(21) 申请号 201310681769. X

(22) 申请日 2013. 12. 12

(30) 优先权数据

61/738, 657 2012. 12. 18 US

(71) 申请人 英威达科技公司

地址 瑞士圣加仑市

(72) 发明人 约翰·C·卡顿 大卫·W·瑞贝诺德

威廉姆·A·麦克奈特

(74) 专利代理机构 北京聿宏知识产权代理有限

公司 11372

代理人 吴大建 刘华联

(51) Int. Cl.

C01C 3/02 (2006. 01)

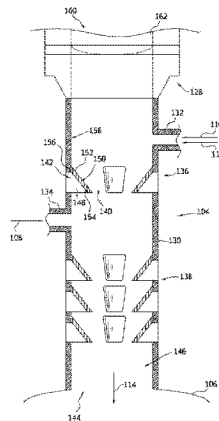
权利要求书1页 说明书17页 附图5页

(54) 发明名称

使用静态混合器来制造氰化氢的方法

(57) 摘要

本发明公开了一种用于制备氰化氢的方法，属于氰化氢制备领域。所述方法包括：将含甲烷气体、含氨气体和含氧气体引入到狭长管道中以制造三元气体混合物，所述狭长管道包括一个或多个具有至少一个非连续槽的静态混合区域，突片嵌件通过所述非连续槽插入，并固定到所述狭长管道的外表面上；以及使三元气体混合物与催化剂床中的催化剂接触，从而提供包含氰化氢的反应产物。根据本发明的方法具有良好的气体混合效果。



1. 一种用于制备氰化氢的方法,包括:

将含甲烷气体、含氨气体和含氧气体引入到狭长管道中以制造三元气体混合物,所述狭长管道包括一个或多个具有至少一个非连续槽的静态混合区域,突片嵌件通过所述非连续槽插入,并固定到所述狭长管道的外表面上;以及

使三元气体混合物与催化剂床中的催化剂接触,从而提供包含氰化氢的反应产物。

2. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,引入的步骤包括:

使含甲烷气体和含氨气体在第一静态混合区域中混合以形成二元气体混合物,所述第一静态混合区域包括一个或多个第一行的非连续槽;

使含氧气体和所述二元气体混合物在第二静态混合区域中混合以形成三元气体混合物,其中所述第二静态混合区域包括一个或多个第二行的非连续槽。

3. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述三元气体混合物在催化剂床的直径上具有小于0.1的变化系数,优选地在催化剂床的直径上具有小于0.05的变化系数。

4. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,还包括使含甲烷气体、含氨气体和/或含氧气体在一个或多个静态混合区域之前流经流动校正器,其中所述流动校正器具有中间体。

5. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述突片嵌件在插入后相对于所述管道的内壁具有5到45度的角度。

6. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述狭长管道具有4到24个非连续槽。

7. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述非连续槽为1形、I形、T形、U形或V形。

8. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述突片嵌件通过形成于所述狭长管道的外表面上的焊接接头而固定在非连续槽上。

9. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述狭长管道中的压降小于35kPa。

10. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述突片嵌件具有0到7度的倾斜度,优选为0到3度的倾斜度,更优选为0到1度的倾斜度。

11. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述突片嵌件具有能够在所述狭长管道内的压力变化下保持一定角度的刚性。

12. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述三元气体混合物包括至少25%体积的氧气。

13. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述三元气体混合物具有1.2到1.6的氨-氧摩尔比和1到1.25的甲烷-氧摩尔比。

14. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,所述混合容器在50到120°C的温度下操作。

15. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于,不使用焊接或粘合剂来从内腔固定突片嵌件。

## 使用静态混合器来制造氰化氢的方法

### [0001] 相关申请的交叉引用

[0002] 本申请要求享有于 2012 年 12 月 18 日提交的美国申请 61/738,657 的优先权,该申请的全部内容和公开结合于本文中。

### 技术领域

[0003] 本发明涉及用于制造氰化氢的方法,并且更确切地说涉及一种用于制造与催化剂相接触的完全混合的三元气体的静态混合器,以及使用和制造该静态混合器的方法。

### 背景技术

[0004] 传统地,氰化氢(HCN)通过 Andrussow 法或 BMA 法来进行工业规模的生产(例如参见 Ullman's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Volume A8, Weinheim 1987, P. 161-163)。例如在 Andrussow 法中,可以在适合的催化剂存在下在反应器中使氨与含甲烷的气体和含氧气体在高温下反应来商业化地制备 HCN (美国专利 1,934,838 和 6,596,251)。硫化物和甲烷的高级同系物可能会影响甲烷的氧化氨解的参数。例如参见 Trusov, Effect of Sulfur Compounds and Higher Homologues of Methane on Hydrogen Cyanide Production by the Andrussow Method, Russian J. Applied Chemistry, 74:10(2001), pp. 1693-1697。通过使反应器流出气流在氨吸收器中与磷酸铵水溶液相接触来将未反应的氨与 HCN 分离。将分离的氨纯化和浓缩,用于再循环到 HCN 的转化中。通常通过将其吸收到水中来从处理后的反应器流出气流中回收 HCN。所回收的 HCN 可以通过进一步的提炼工序来处理,以制备纯化的 HCN。文献 Clean Development Mechanism Project Design Document Form(CDM PDD, Version3), 2006 图示性地解释了 Andrussow HCN 制造法。纯化的 HCN 可用于氢氰化反应,如含有烯烃的基团的氢氰化或者 1,3-丁二烯和戊烯腈的氢氰化,上述的氢氰化可用于制造己二腈(“ADN”)。在 BMA 法中,HCN 在实质上没有氧并在铂催化剂存在的条件下由甲烷和氨合成,其结果是产生了 HCN、氢气、氮气、残留的氨和残留的甲烷(如参见:Ullman's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Volume A8, Weinheim 1987, P161-163)。商业经营者要求工艺安全管理,以控制氰化氢的危险的性质(参见 Maxwell 等人, Assuring process safety in the transfer of hydrogen cyanide manufacturing technology, JHazMat 142 (2007 年), 677-684)。另外,HCN 制造工艺中的来自生产设备的排放可能要遵守法规,这可能影响 HCN 生产的经济性。(参见 Crump, Economic Impact Analysis For The Proposed Cyanide Manufacturing NESHAP, EPA, May 2000 年)。

[0005] 在制造 HCN 时,将氨气、含甲烷的气体和含氧气体混合,以形成输送到反应器中的三元气体混合物。由于 HCN 工艺包含若干反应气体,这些反应气体在接触到催化剂之前进行混合是有利的。然而,当进行反应气体的在先混合时,或许会出现与气体的反应性相关的风险。美国专利 2,803,522 公开了用于含氧气体和氨的混合器。美国专利 3,063,803 公开了与反应器相连的可分离式安装的气体混合室。美国专利 3,215,495 公开了位于气体混合室之内的用于混合反应气体的内部挡板。内部挡板可能会牵涉到相对高的压降。最近已经

提出了将混合室置于反应器之内,如美国专利公开 2011/0171101 所述。该构造要求位于反应器之内的气体可渗透的层和若干混合板。

[0006] 这些在先的用于 HCN 制造的混合室不足以产生完全混合的三元气体,因此导致生产率损失,并且增加了反应气体和 HCN 的分离。

[0007] 美国专利 8,133,458 公开了用于将甲烷、氨、氧气和碱金属或碱土金属的氢氧化物转换成碱金属或碱土金属的氰化物的反应器,这通过两级反应来进行,包括具有气体入口的第一级,其中第一级由具有分布板的锥体形成,分布板在整个催化剂材料上提供了均匀的气体分布,其中分布板置于反应器的气体入口和催化剂材料之间,并且分布板贯穿有多个孔,分布板在气体的流动方向上彼此间隔开,第一分布板主要用来分布气体,而最后的分布板用作热辐射防护物和朝向催化剂材料的分布板,并且催化剂材料呈现为通过催化剂重量固定的催化剂网的形式。

[0008] 已经使用了其它的静态混合器来混合反应气体。美国专利 4,929,088 公开了一种静态混合设备,其适合于插入到相对于封闭的管道具有主流方向的流体流中,该设备包括至少两个突片嵌件(tab),该突片嵌件在流动方向上相对于管道表面以位于  $10^\circ$  和  $45^\circ$  之间的预选的抬升角度倾斜。美国专利 6,000,841 公开了一种静态混合器管道,其包括具有突片嵌件的纵向延长的管道,突片嵌件设置成具有各自的相邻于管道壁的第一边缘,以及各自的与管道壁径向向内间隔开的相对的第二边缘。大致上,静态混合器足以传递流体流,同时保持相对平坦的与紊流相关的速度剖面,但是其难于安装和维护。

[0009] 因此,所需的是适用于 HCN 生产的反应气体的改善的混合,并使其易于安装和维护。

## 发明内容

[0010] 在第一实施例中,本发明涉及一种用于制备氰化氢的反应组件,包括:(a) 混合容器,其包括狭长管道,该狭长管道具有处于狭长管道的近端处的出口、第一进入端口和第二进入端口,各进入端口用于将至少一种反应气体引入到混合容器中,所述反应气体选自自由含甲烷气体、含氨气体、含氧气体及其混合物所构成的组,其中,第二进入端口处于第一进入端口的下游,混合容器还包括第一静态混合区域,其包括一个或多个第一行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件通过这些槽插入,并固定到狭长管道的外表面上,其中第一静态混合区域相邻于第一进入端口,混合容器还包括第二静态混合区域,其包括一个或多个第二行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件通过这些槽插入,并固定到狭长管道的外表面上,其中第二静态混合区域相邻于第二进入端口,各个相应的突片嵌件具有相对于流动方向成角度的上游表面,并且第一和第二静态混合区域提供了所述至少一种反应气体的交叉流混合,以产生三元气体混合物;和(b) 反应容器,其包括与出口操作性相连的用来接收三元气体混合物的反应器入口,以及包括用于生产氰化氢流的催化剂的催化剂床。第一静态混合区域中的行数可以为 1 到 10,第二静态混合区域中的行数可以为 1 到 10。第一行和第二行均可具有 1 到 10 个非连续槽。第二静态混合区域中的行数可以大于或等于第一静态混合区域中的行数。相应的突片嵌件可以具有相对于管道内壁为  $5$  到  $45$  度的角度。反应组件还可以包括一个或多个流动校正器,其位于第一静态混合区域的上游,用于将至少一种反应气体的流动校正,其中该一个或多个流动校正器均具有中间体。反应组件还可以

包括位于第二静态混合区域上游以将至少一种反应气体的流动校正的一个或多个流动矫正器,其中该一个或多个流动矫正器均具有中间体。非连续槽可以为 L 形、I 形、T 形、U 形或 V 形。两个或多个第一行中的非连续槽可以横向地对齐。两个或多个第二行中的非连续槽可以横向地对齐。狭长管道内的每个相应的突片嵌件可以不平行于流动方向。每个相应的突片嵌件可以具有后缘,后缘具有 30 到 90 度的角度。每个相应的突片嵌件可以具有 0 到 7 度的倾斜度。每个相应的突片嵌件可以具有 50 到 250cm<sup>2</sup> 的表面积。每个相应的突片嵌件可包括 310SS 或 316SS。

[0011] 本发明的第二实施例中涉及一种用于制备氰化氢的反应组件,包括:(a) 混合容器,其包括狭长管道,该狭长管道具有处于狭长管道的近端处的出口、第一进入端口和第二进入端口,各进入端口用于将至少一种反应气体引入到混合容器中,所述反应气体选自自由含甲烷气体、含氨气体、含氧气体及其混合物所构成的组,其中,第二进入端口处于第一进入端口的近端,混合容器还包括第一静态混合区域,其包括一个或多个第一行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件(具有第一角度)通过这些槽插入,并固定到狭长管道的外表面上,其中第一静态混合区域相邻于第一进入端口,混合容器还包括第二静态混合区域,其包括一个或多个第二行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件(具有第二角度)通过这些槽插入,并固定到狭长管道的外表面上,其中第二静态混合区域相邻于第二进入端口和/或处于第二进入端口的近端,其中第一角度不同于第二角度,并且第一和第二静态混合区域提供了所述至少一种反应气体的交叉流混合,以产生三元气体混合物;和(b) 反应容器,其包括与出口操作性相连的用来接收三元气体混合物的反应器入口,以及包括用于生产氰化氢流的催化剂的催化剂床。第一角度和第二角度可以为 5 到 45 度。第一角度可为 30 度并大于第二角度。第一角度可为 30 度并小于第二角度。

[0012] 本发明的第三实施例涉及一种用于制备氰化氢的方法,包括:将含甲烷气体、含氨气体和含氧气体引入到狭长管道中以制造三元气体混合物,所述狭长管道包括一个或多个具有至少一个非连续槽的静态混合区域,突片嵌件通过所述非连续槽插入,并固定到所述狭长管道的外表面上;以及使三元气体混合物与催化剂床中的催化剂接触,从而提供包含氰化氢的反应产物。引入的步骤包括:使含甲烷气体和含氨气体在第一静态混合区域中混合以形成二元气体混合物,所述第一静态混合区域包括一个或多个第一行的非连续槽;以及使含氧气体和二元气体混合物在第二静态混合区域中混合以形成三元气体混合物,其中所述第二静态混合区域包括一个或多个第二行的非连续槽。三元气体混合物在催化剂床的直径上可具有小于 0.1 的变化系数,优选地在催化剂床的直径上具有小于 0.05 的变化系数。该方法还可包括使含甲烷气体、含氨气体或含氧气体在一个或多个静态混合区域之前流经流动校正器,其中所述流动校正器具有中间体。突片嵌件在插入后相对于管道的内壁可具有 5 到 45 度的角度。狭长管道可具有 4 到 24 个非连续槽。非连续槽可为 L 形、I 形、T 形、U 形或 V 形。突片嵌件可通过形成于狭长管道的外表面上的焊接接头而固定在非连续槽上。狭长管道中的压降可小于 35kPa。突片嵌件可具有 0 到 7 度的倾斜度。突片嵌件可具有能够在狭长管道内的压力变化下保持一定角度的刚性。在该方法中,三元气体混合物包括至少 25% 体积的氧气。三元气体混合物具有 1.2 到 1.6 的氨-氧摩尔比和 1 到 1.25 的甲烷-氧摩尔比。混合容器可在 50 到 120°C 的温度下操作。在一些方面,不使用焊接或粘合来从内腔固定突片嵌件。

[0013] 本发明的第四实施例涉及一种用于制备氰化氢的方法,包括:通过第一进入端口将至少一种反应气体引入到狭长管道中,该至少一种反应气体选自含甲烷气体、含氨气体及其混合物所构成的组;使反应气体在第一静态混合区域中混合,第一静态混合区域包括一个或多个第一行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件通过这些槽插入,并固定于狭长管道的外表面上;通过第二进入端口将含氧气体引入到狭长管道中;在第二静态混合区域中使含氧气体与反应气体混合,以形成三元气体混合物,其中第二静态混合区域包括一个或多个第二行的非连续槽,一个或多个相应的突片嵌件通过这些槽插入,并且固定于狭长管道的外表面上;以及在催化剂的存在下使三元气体混合物反应,以形成氰化氢流。三元气体混合物可以包括至少 25% 体积的氧气。每个相应的突片嵌件可以具有与三元气体混合物的流动方向成角度的上游表面。相应的突片嵌件可以具有从 5 到 45 度的角度。混合容器可以构造为提供在催化剂床的直径上具有小于 0.1 的变化系数的三元气体混合物。混合容器中的压降可以少于 35kPa。非连续槽可以为 L 形、I 形、T 形、U 形或 V 形。三元气体混合物可以具有 1.2 到 1.6 的氨-氧摩尔比。三元气体混合物可以具有 1 到 1.5 的氨-甲烷摩尔比。三元气体混合物可以具有 1 到 1.25 的甲烷-氧摩尔比。各个相应的突片嵌件可以具有后缘,后缘具有 30 到 90 度的角度。

[0014] 本发明的第五实施例涉及一种用于制造混合容器的方法,包括:提供一个或多个突片嵌件,突片嵌件包括具有斜边的倾斜的上游表面、下游表面以及下游表面上的支撑件,其中支撑件具有选自 L 形、I 形、T 形、U 形和 V 形所构成的组中的形状,并且延伸过上游表面的平面;以及提供具有内部腔体、第一进入端口和连接到反应容器的出口端口的狭长管道。该方法包括:在第一进入端口的下游切出一个或多个穿过狭长管道的非连续槽,其中非连续槽与支撑件的形状一致;通过将支撑件可滑动地接合到非连续槽中并使斜边靠着狭长管道的位于一个或多个非连续槽上游的内表面上来将一个或多个突片嵌件中的一个从内腔插入到一个或多个非连续槽中的一个内;以及将支撑件固定到狭长管道的外表面上。支撑件可以通过焊接固定到外表面。在一个实施例中,在狭长管道的外表面上加工出斜角,此处切出一个或多个非连续槽。优选地,不通过焊接或粘接来从内腔固定一个或多个突片嵌件。

[0015] 本发明的第六实施例涉及一种用于制造混合容器的方法,包括:提供一个或多个突片嵌件,突片嵌件包括具有斜边的倾斜的上游表面、下游表面以及下游表面上的支撑件,其中支撑件具有一定的形状且延伸过上游表面的平面;以及提供具有内部腔体、第一进入端口、第二进入端口和连接到反应容器的出口端口的狭长管道。该方法包括:在第一进入端口的下游切出至少一行一个或多个穿过狭长管道的第一非连续槽,其中第一非连续槽与支撑件的形状一致;在第二进入端口的下游切出至少一行一个或多个穿过狭长管道的第二非连续槽,其中第二非连续槽与支撑件的形状一致;通过将支撑件可滑动地接合到第一和第二非连续槽中并使斜边靠着狭长管道的位于一个或多个第一和第二非连续槽上游的内表面上来将一个或多个突片嵌件中的一个从内腔插入到一个或多个第一和第二非连续槽中的一个内;以及将支撑件固定到狭长管道的外表面上。

## 附图说明

[0016] 图 1 为根据本发明的一个实施例的 HCN 合成系统的简化的流动示意图;

- [0017] 图 2 为根据本发明的一个实施例的混合容器的剖视图；
- [0018] 图 3 为根据本发明的一个实施例的插入到混合容器中的突片嵌件的详细的剖视图；
- [0019] 图 4A-4C 为根据本发明的一个实施例的突片嵌件的视图；
- [0020] 图 5 为根据本发明的一个实施例的具有反应原料流净化的 HCN 合成系统的简化的流动示意图。

### 具体实施方式

[0021] 此处所用之术语仅出于描述特定实施方案的目的，并不意欲限制本发明。除非上下文中清楚地显示出另外的情况，如此处所用的单数形式“一个”和“该”也包括复数形式。还应当理解，在本说明书中使用的用语“包括”和 / 或“包括有”时说明了存在所述的特征、整体、步骤、操作、部件和 / 或构件，但不妨碍一个或多个其他特征、整体、步骤、操作、部件组、构件和 / 或构件组的存在或添加。

[0022] 例如“包括”、“包含”、“具有”、“含有”或“涉及”的用语及其变体应广泛地理解，并且包含所列出的主体以及等效物，还有未列出的另外的主体。另外，当由过渡性用语“包含”、“包括”或“含有”来引出组分、部件组、工艺或方法步骤或者任何其他表述时，应当理解此处还考虑了相同的组分、部件组、工艺或方法步骤，或者具有在该组分、部件组、工艺或方法步骤或任何其它表述的记载之前的过渡性用语“基本上由...组成”、“由...组成”或“选自...构成的组”的任何其它的表述。

[0023] 如果的适用话，权利要求中的相应的结构、材料、动作以及所有功能性的装置或步骤的等效物包括用于与权利要求中所具体陈述的其他部件相结合地来执行功能的任何结构、材料或动作。本发明的说明书出于介绍和描述的目的而提供，但并不是穷举性的或将本发明限制到所公开的形式。在不偏离本发明的范围和精神的条件下，许多改变和变体对于本领域的普通技术人员来说是显而易见的。这里选择并描述了一些实施方案，目的是对本发明的原理和实际应用进行最佳的解释，并且使得本领域的其他普通技术人员能够理解本发明的不同实施方案具有多种变化，如同适合于该特定用途一样。相应地，尽管本发明已经依据实施方案进行了描述，然而本领域技术人员将认识到，本发明可以有所改变地并在所附权利要求的精神和范围之内实施。

[0024] 现在将详细参考特定的所公开的主题。尽管所公开的主题将结合所列举的权利要求来描述，然而可以理解，它们并不将所公开的主题限制到这些权利要求中。相反，所公开的主题覆盖了所有的替代方案、改变以及等效物，这些可以包含于由权利要求所限定的所公开的主题的范围之内。

[0025] 可根据 Andrussov 法或通过 BMA 法来以工业规模生产氰化氢 (“HCN”)。在 Andrussov 法中，甲烷、氨和含氧原料在高于 1000°C 的温度下在催化剂的存在下反应，以制备包含 HCN、氢气、一氧化碳、二氧化碳、氮气、剩余氨、剩余甲烷和水的氰化氢粗产物。天然气典型地用作甲烷来源，而空气、富氧空气或纯氧可以用作氧气来源。催化剂典型地为丝网铂 / 铑合金或丝网铂 / 铱合金。可以使用其他的催化剂组分，包括但不限于铂族金属、铂族金属合金、负载型铂族金属或负载型铂族金属合金。也可以使用其他的催化剂构造，包括但不限于多孔结构、丝网、突片嵌件、球体、块体、泡沫、浸渍涂层和清洗涂层。在 BMA 法中，

甲烷和氨使用如美国专利 7, 429, 370 所描述的铂催化剂来反应, 该专利通过引用包含于本文。

[0026] 大致上讲, 图 1 显示了 HCN 合成系统 100。HCN 一般在反应组件 102 中制备, 反应组件 102 包括混合容器 104 和反应容器 106。在 Andrussov 法中, 包括含氧气体原料流 108、含甲烷气体原料流 110 和含氨气体原料流 112 的反应气体引入到混合容器 104 中。应注意到, 图 1 所示的输送位置为示意性的, 并不显示将反应物输送到混合容器 104 中的顺序。在一些实施方案中, 含甲烷气体原料流 110 和含氨气体原料流 112 可以在引入到混合容器 104 中之前混合。在 BMA 法中, 反应气体包括引入到混合容器 104 中的含甲烷气体原料流 110 和含氨气体原料流 112。在一个实施方案中, 混合容器 104 可以包含一个或多个静态混合区域, 用于制备完全混合的三元气体混合物 114。

[0027] 三元气体混合物 114 离开混合容器 104, 并且接触到包含在反应容器 106 之内的催化剂, 以形成包含 HCN 的氰化氢粗产物 116。催化剂可以处于催化剂床 118 之内。在一个实施方案中, 可以使用分布板 120 来将三元气体混合物 114 输送到反应容器 106 中。分布板 120 还可以用来均匀地分布三元气体混合物, 并如所需要地将三元气体混合物进一步混合。可在氨回收部分 122 中从氰化氢粗产物 116 中回收氨, 并通过管线 124 使氨返回。还可以在 HCN 精炼部分 126 中将 HCN 精炼成期望用途所要求的纯度。在一些实施方案中, HCN 可以为高纯度的 HCN, 包含小于 100ppm 重量的水。

[0028] 用于本发明的目的的完全混合的三元气体在催化剂床的直径上具有小于 0.1 的变化系数 (CoV), 或更优选小于 0.05 并且甚至更优选小于 0.01 的变化系数。在范围方面, CoV 可以形成为 0.001 到 0.1, 或更优选地从 0.001 到 0.05。低 CoV 有利地增加了反应物转换为 HCN 的产率。CoV 定义为标准偏差  $\sigma$  与平均偏差  $\mu$  之比。CoV 理想上尽可能地低, 例如小于 0.1, 如 0.05。HCN 单元可在 CoV 为 0.1 上操作, CoV 为 0.2 也不罕见, 即处于 0.01 到 0.2 或 0.02 到 0.15 的范围。然而在 CoV 高于 0.1 时, 运行成本更高而 HCN 产率更低, 例如低 2% 到 7%, 这相当于连续式商业运行中每年几百万美元的损失。完全混合的三元气体有利地增加了 HCN 产率, 并且回报更高产量的 HCN。可以通过在催化剂床上实施大致均匀的床温度来实现性能的改善。

[0029] 当 CoV 超出 0.1 时, 反应气体可能处于在催化剂床的安全操作范围之外的浓度。例如, 当在三元气体中的较高氧气浓度下操作时, 较大的 CoV 可能造成氧气增加, 这导致了回流。另外, 当 CoV 较大时, 催化剂床可能暴露于更多的甲烷下, 这可能导致碳沉淀物的聚集。碳沉淀物可能降低催化剂寿命和性能。因此, 在较大的 CoV 下可能会有更高的原材料消耗。

[0030] 混合容器可以在从 50°C 到 120°C 的温度下操作。在混合容器中使用更高的温度, 如这里所描述地对反应气体进行预热。在一个实施方案中, 优选的是混合容器以低于反应容器的温度操作。混合容器的操作压力可以有较大的变化, 从 130kPa 到 400kPa, 并且更优选地从 130kPa 到 300kPa。除非另有说明, 否则所有压力均为绝对压力。大致上讲, 混合容器可以在与反应容器类似的压力下操作。

[0031] 反应气体在可使混合容器内的压降最小化的条件下混合。在一个实施方案中, 混合容器中的压降小于 35kPa, 优选小于 25kPa。将压降最小化可以减少三元气体的最大压力, 并且因此减少潜在的爆炸情况中的压力。减小压降还将与混合相关联的能量 (例如压缩能量) 最小化。



[0032] 反应气体供应到混合容器中以提供三元气体混合物,该三元气体混合物具有从 1.2 到 1.6 的氨-氧摩尔比(例如从 1.3 到 1.5)、从 1 到 1.5 的氨-甲烷摩尔比(例如从 1.1 到 1.45)、从 1 到 1.25 的甲烷-氧摩尔比(例如从 1.05 到 1.15)。例如,三元气体混合物可具有 1.3 的氨-氧摩尔比和 1.2 的甲烷-氧摩尔比。在另一个示例性实施方案中,三元气体混合物可具有 1.5 的氨-氧摩尔比和 1.15 的甲烷-氧摩尔比。三元气体混合物中的氧浓度可随这些摩尔比而变化。因此,在一些实施方案中,三元气体混合物包括至少 25% 体积的氧气,例如至少 28% 体积的氧气。在一些实施方案中,三元气体混合物包括从 25% 到 32% 体积的氧气,例如从 26% 到 30% 体积的氧气。可以使用多种控制系统来调节反应气体流。例如,可以使用能测量反应气体原料流的流速、温度和压力并允许控制系统为操作者和 / 或控制器件提供经压力和温度补偿的流速的“实时”反馈的流量计。

[0033] 正如本领域技术人员所理解的,前述功能和 / 或方法可以实施为系统、方法或计算机程序产品。例如,功能和 / 或方法可以实施为计算机可执行的程序指令,该指令记录在计算机可读的存储器件中,当通过计算机处理器检索和执行该指令时,其控制计算机系统以执行上述实施方案的功能和 / 或方法。在一个实施方案中,计算机系统可以包括一个或多个中央处理单元、计算机存储器(例如只读存储器、随机访问存储器)和数据存储器件(例如硬盘驱动器)。计算机可执行的指令可以使用任何适合的计算机编程语言(例如 C++、JAVA 等)来编码。相应地,本发明的一些方面可以采取整体为软件的实施方式的形式(包括固件、常驻软件、微码等),或结合了软件方面和硬件方面的实施方式。

[0034] 在一个实施方案中,当将反应气体混合时,所期望的是避免混合容器中的副反应。副反应可以包括甲烷或氨的氧化。在混合容器中还应当避免不利操作条件下的暴燃或爆炸的风险和冲击,这通过在混合容器中保持大于三元气体的火焰前缘的流动速度来实现。此处所用的用语“暴燃”指相对于未燃烧的气体在紧邻于火焰之前以亚声速传播的燃烧波。“爆炸”指相对于未燃烧的气体在紧邻于火焰之前处以超声速传播的燃烧波。暴燃典型地导致适度的压力增高,而爆炸可能导致过度的压力增高。本发明提供了一种有利的解决方案来快速和完全地将反应气体混合,同时在混合过程中将压降最小化,并且避免不想要的副反应,例如氧化和暴燃。

[0035] 在图 2 中显示了混合容器 104 的剖视图。混合容器 104 产生了三元气体混合物 114,该三元气体混合物 114 具有小于 0.1 的 CoV,且通过近端(例如下游端)离开而进入 HCN 反应容器 106 之中。在混合容器 104 的远端(例如上游端)处,设置了压力释放调节器 128,此处将充分地对其进行讨论。混合容器 104 包括狭长管道 130,其在三元气体的流动方向上延伸到反应容器中。在一个实施方案中设有第一进入端口 132(也称作上部入口),它用来引入选自下面组的至少一种反应气体,所述组由含甲烷的气体、含氨气体、含氧气体和它们的混合物组成。优选地,通过第一进入端口 132 引入含甲烷的气体 110 和含氨气体 112。还可以通过第二进入端口 134(也称作下部入口)将另外的反应气体引入到管道 130 中。在一个实施方案中,通过第二进入端口 134 所引入的反应气体可以选自下述组,所述组由含甲烷的气体、含氨气体、含氧气体以及它们的混合物组成。优选地,可以通过第二进入端口 134 引入含氧气体流 108。如图 2 所示,第二进入端口 134 相比于第一进入端口 132 处于近端。因为直到引入含氧气体时才会形成三元气体混合物,优选的是在管道 130 的较下部引入含氧气体流 108,以减少三元气体混合物的体积。

[0036] 狭长管道 130 还包括一个或多个用来产生完全混合的三元气体的静态混合区域。在一个实施方案中,设有至少一个相邻于第一进入端口 132 设置的静态混合区域 136。静态混合区域 136 设置用来将含甲烷气体 110 和含氨气体 112 混合,这在它们与含氧气体 108 混合之前进行。静态混合区域 136 可以形成甲烷和氨的二元气体。还设置有至少一个相邻于第二进入端口 134 或与之相比处于近端的静态混合区域 138。静态混合区域 138 将含氧气体和其他反应气体混合,以产生三元气体混合物。尤其是,静态混合区域 138 应当尽最大的实际可能安装得靠近反应容器 106 中的反应催化剂床(未示出),使得混合容器 104 中的三元气体混合物的体积和停留时间最小。

[0037] 尽管在图 2 中针对端口 132 和 134 显示了一个入口,然而在一个实施方案中可以设置多个第一进入端口和第二进入端口。可以围绕狭长管道 130 的整个圆周设有多个输送入口。输送入口中的每一个可以相对于三元气体混合物的流动方向处于  $5^{\circ}$  到  $90^{\circ}$  的角度。反应物的主输送管线可以连接到(未示出的)围绕着多个第一进入端口和 / 或第二进入端口的环形区域。可以具有多个(未示出的)孔,其限定了进入端口并提供从环形区域到狭长管道 130 的输送入口。不希望被理论束缚,当反应物输送到混合容器 104 中时,所述多个孔可以阻止旋转,即漩涡。

[0038] 在另一个实施方案中,第一进入端口 132 和第二进入端口 136 可以延伸到狭长管道 130 的腔体中。这可允许将反应物引入到狭长管道 130 的中间。不希望被理论束缚,所延伸的入口可以阻止反应物不接触突片嵌件 150 就穿过混合容器 104。优选地,输送含氧气体 108 的第二进入端口 138 延伸到管道 130 中间。

[0039] 静态混合区域 136、138 中的每个包括一个或多个非连续的槽 142 的行 140。每个静态混合区域 136、138 可以包括一到十行非连续的槽 142。在一个实施方案中,第二静态混合区域 138 中的行数可以大于或等于第一静态混合区域 136 中的行数。例如,第二静态混合区域 138 可以具有一到三行。每行 140 可以包括一到十个非连续的槽 142,并且优选地包括二到六个非连续的槽 142。在每个行 140 内,非连续的槽 142 优选均匀地间隔开,并且在管道 130 的周围为非连续的。随着行数和 / 或每行中突片嵌件 150 的数量增加,混合容器 104 中的压降也会增加。因此,所期望的是使用行和突片嵌件的组合来提供完全的混合,同时保持小于 35kPa 的压降。在一个方面,用于混合容器的非连续的槽 142 以及突片嵌件 150 的数量可以为 4 到 24 个,例如 8 到 20 个,或者 10 到 16 个。

[0040] 在第二静态混合区域 138 的近端并在混合容器 104 的出口 144 之前可以具有空区域 146。空区域 146 允许三元气体混合物具有非混合区域。空区域 146 可以具有从  $0.1*d$  到  $10*d$  的高度,其中  $d$  为狭长管道 130 的内直径。

[0041] 在一个实施方案中,非连续的槽 142 可以与三元气体的流动方向对齐,或可以为 I 形、I 形、T 形、U 形或 V 形。如图 4A-4C 所示,支撑件 148 为条棒,例如 I 形或 I 形,并且延伸通过上游表面 152 的平面。在另外的实施方案中,当每个突片嵌件 150 具有多于一个支撑件 148 时,可以使用 V 形或 U 形的非连续槽 142。

[0042] 如图 4B 所示,突片嵌件 150 包括斜边 156,如图 3 所示,该斜边 156 延伸于非连续的槽 142 之上,并且顶靠着狭长管道 130 的内壁 158。斜边 156 还可以延伸于支撑件 148 之上。优选地,斜边 156 不接触另一个相邻的行 140 中的突片嵌件 150。斜边 156 的角度可以由上游表面 152 的角度决定。

[0043] 突片嵌件 150 可由不锈钢材料、例如 310SS 和 316SS 来构造。

[0044] 支撑件 148 可以为突片嵌件 150 提供刚性,使得突片嵌件 150 在压力变化下不会形变。由于非连续的槽 142 和突片嵌件 150 的布置,以及在狭长管道 130 的内表面上未使用粘合或焊接,突片嵌件 150 可以具有刚性以在狭长管道 130 内的压力变化下保持某一角度。当狭长管道 130 内有压力变化时,突片嵌件可以比表面焊接到管道 130 内部的弯曲的角焊混合突片嵌件更强。出于本发明的目的,突片嵌件在大于 5MPa 的压力变化、优选大于 13MPa 的压力变化下不发生形变。一旦压力条件恢复到通常操作条件,则突片嵌件维持并保持原始的角度。因此,在这样的压力变化下,混合容器 104 不会遭受混合效果的较低。

[0045] 非连续的槽 142 为穿过管道 130 的其中不输送反应气体的开口。非连续的槽 142 可机加工到管道 130 中。突片嵌件 150 通过非连续的槽 142 插入,并且突片嵌件 150 延伸到管道 130 的腔体中。支撑件 148 延伸通过上游表面的平面,并从狭长管道 130 的内腔中可滑动地接合到非连续的槽 142 之中。突片嵌件 150 可以指被割透的混合突片嵌件。突片嵌件 150 固定在管道 130 的外壁上。优选地是,突片嵌件 150 从管道 130 的外侧插入,并通过粘合或焊接来固定。与很难合适地对齐和固定的内部焊接相反,这大大增加了管道 130 之内的定位突片嵌件 150 的有效性和精确性。另外,通过允许从管道的外部而不是从管道之内进行作业,这可允许容易地插入突片嵌件。

[0046] 当定位每个静态混合区域中的行时,在管道的外表面上可以生产出斜面,而通过该斜面制造非连续的槽。一旦插入了突片嵌件 150,可以用焊接金属来填充斜面,以便固定突片嵌件 150。可以从管道的内部插入突片嵌件 150,而突片嵌件 150 和支撑件 148 可以延伸通过管道,以从外部固定突片嵌件 150。

[0047] 在一个实施方案中,突片嵌件 150 具有在流动方向上弯折的上游表面 152。弯折角度可以在  $5^{\circ}$  到  $45^{\circ}$  之间、并且更优选地在  $20^{\circ}$  到  $35^{\circ}$  之间变化。下游表面 154 可具有与上游表面近似的角度。一行内的突片嵌件可以具有大致近似的角度,例如在  $\pm 5^{\circ}$  之内。相邻行之间的突片嵌件以及不同的混合区域之间的突片嵌件的角度可以不同。在具有多行的混合区域中,下游行中的突片嵌件的角度可小于上游行中的突片嵌件的角度。在一个示例性的实施例中,第一混合区域 136 可以具有角度为  $30^{\circ}$  的突片嵌件,而第二混合区域 138 可以具有角度为  $25^{\circ}$  的突片嵌件。在另一个示例性实施例中,第一混合区域 136 可以具有角度为  $30^{\circ}$  的突片嵌件,而第二混合区域 138 可以具有角度为  $45^{\circ}$  的突片嵌件。各突片嵌件 150 的表面 152 上游的表面被限制为可防止压力降的增大,并通常处于  $50$  到  $250\text{cm}^2$ 、例如从  $75$  到  $150\text{cm}^2$  的范围内,这取决于突片嵌件和行的数量。随着所有突片嵌件 150 的总表面积增加,压力降也可能增加。

[0048] 另外,突片嵌件 150 没有斜面,即突片嵌件 150 不是扭曲的,并且其在管道 130 的内壁上对齐,从而大致上平行于三元气体混合物的流动。在一个实施例中,突片嵌件 150 的倾斜度从  $0^{\circ}$  到  $7^{\circ}$ ,例如从  $0^{\circ}$  到  $3^{\circ}$ 。具有大于  $8^{\circ}$  的轻微倾斜度可以导致很差的混合性能,后者可能导致床的温度变化的增加和 / 或不期望的压降增加。因此,本发明的割透的非连续的槽适用于这样的突片嵌件,所述突片嵌件具有降低的倾斜度和针对减少床的温度变化的增高的性能。在一个实施例中,在整个床上,床的温度变化可以为从  $15^{\circ}\text{C}$  到  $25^{\circ}\text{C}$ 。

[0049] 在反应器中的压力波动下,突片嵌件 150 设置在贯穿的切割处之内,以承受扭曲并且在压力波动下不产生形变。这避免了用于修复的昂贵的延误。如果有任何损伤,受损

的突片嵌件可以容易地移除和用新的突片嵌件来替代,这通过将它通过非连续的槽插入并且从狭长管道的外表面进行焊接来实现。

[0050] 另外,静态混合区域内的突片嵌件可以具有大致近似的角度。不同行中的突片嵌件和不同静态混合区域中的突片嵌件可具有不同的角度。在一个示例性实施例中,第一静态混合区域 136 中的突片嵌件的角度不同于第二静态混合区域 138 中的突片嵌件的角度。增加角度可以得到提升的混合,但是也会相应得到不期望的压降增加。狭长管道 130 内的各个突片嵌件 150 均不平行于流动方向。换言之,在管道 130 的腔体之内,突片嵌件 150 不具有大致上平行于管道 130 的壁的表面。支撑件 148 可以大致上平行于流动方向,但是支撑件 148 定位在下游表面 154 上,并且对混合物不具有显著的冲击。相反,突片嵌件 150 和支撑件 148 穿过非连续的槽 142 而插入,突片嵌件 150 固定到管道 130 的外壁。沿着管道 130 的外壁,突片嵌件 150 可以具有大致上平行于外壁的表面。

[0051] 每个突片嵌件 150 可以具有从 0.1 到 2.5cm(如 0.5cm 到 1.5cm)的适合厚度,以保持突片嵌件 150 的刚性。突片嵌件的后缘是突片嵌件的从管道的内壁延伸到混合区域中最远的边缘。突片嵌件的后缘可以如所需要地为圆的、锥形的或方的,以便提供必要的混合。在一个实施例中,突片嵌件的后缘可以为锋利的,例如刀子的边缘,其具有从 30° 到 90°、例如 45° 到 90° 的角度。锋利的边缘可以在混合容器 104 之内提供增加的混合。具有小于 30° 的角度的钝的边缘可能会不期望地增加混合容器之内的压降。

[0052] 管道 130 之内的突片嵌件 150 如同流体箔一样地操作,所述流体箔随着反应气体流过混合容器 104 而具有针对它们的上游表面 152 所呈现出来的较大的流体压力和针对它们的下游表面 154 的降低的流体压力。每个突片嵌件 150 的相邻的和相互间反向的表面上流体的压力差导致从每个突片嵌件 150 上流过的纵向流动再定位,因此导致了在通过管道 130 的流体的纵向流动上增加了径向的交叉流量。每个突片嵌件的边缘上的流体流动导致流体被弯折的上游表面向内和向上偏转,从而在每个突片嵌件的尖端处产生多对反向地旋转且主要为流束式的旋涡,以及将由单个突片嵌件产生的相邻的流束式旋涡相连的下游发卡旋涡。每个这种成对的旋涡具有相互间反向的围绕着旋转轴的旋转,该旋转轴大致上沿着纵向的流束式流体流动方向且沿着两个边界表面之间的环形间隔定位。由静态混合区域 136 和 138 所产生的紊流混合产生了具有小于 0.1 的 CoV 的完全混合的三元气体混合物。

[0053] 在一个实施方案中,当静态混合区域 136 和 138 包括多于两个行 140 时,来自每个行的突片嵌件 150 可以与相邻的行横向对齐,以达到所期望的混合效果。在一些实施方案中,可以使用横向偏置的、即“错开的”突片嵌件 150。

[0054] 突片嵌件 150 的上游表面 152 的形状可以包括梯形、方形、平行四边形、半椭圆形、圆角方形或矩形。在一个实施方案中,可以使用具有梯形形状的渐缩的突片嵌件。另外,突片嵌件可以轻微弯曲或成曲形。在一个实施方案中,在主流束流动的方向上,突片嵌件的纵向尺寸不超出突片嵌件的宽度的两倍。

[0055] 混合容器 104 的尺寸可以有很大的变化,并且可以很大程度上取决于反应容器 106 的容量。在此处所公开的本发明的一个示例性实施例中,混合容器 104 具有处于从 2 到 20 的范围内(例如从 2 到 10)的外侧长度与直径之比。混合容器的尺寸可以变化,但可具有 1 到 5m(例如 1.2 到 2.5m)的长度,以及 5 到 60cm(例如 10 到 35cm)的内径。

[0056] 如图 2 所示,尽管设有两个进入端口和两个静态混合区域,然而在其他实施例中也可以设有一个进入端口和一个静态混合器。另外,可以设有两个进入端口和一个设置在下部进入端口的近端的静态混合器。在本发明的范围内,可以使用其他的进入端口和静态混合器的构造。

[0057] 三元气体混合物 114 可以从混合容器 104 进入到反应容器 106 的进入端口中。在一个实施方案中,可以设置一个或多个分布板 120 来在催化剂床上提供均匀分布的三元气体混合物。还可以结合分布板使用阻火器,以将三元气体分布在催化剂床上。优选地,分布板不应当导致大于 35kPa 的、例如更优选小于 25kPa 的反应容器中的压降。在一个实施方案中,在反应容器之内在入口下游和阻火器的上游布置有一个分布板。分布板可以具有大于进入端口并小于反应容器的最大直径的直径。分布板具有由一个或更多孔洞形成的空区域,空区域至少为分布板的面积的 50% 到 80%。空区域可以在上游表面上具有抬升的锥形特征来扩散三元气体混合物。分布板还可以包括实心区域,该实心区域与进入端口的中心点对齐,优选居中地对齐。在一个实施方案中,分布板可以为丝网材料。

[0058] 用于混合容器和突片嵌件的构造的材料可以不同,并且可以为任何与三元气体混合物相容的材料,所述材料能够承受混合容器中的设计温度和压力而没有显著的退化,并且其不会促进三元气体混合物中的气体的反应。使用包括 310SS 和 316SS 的不锈钢材料的构造已经达到了令人满意的结果。

[0059] 在一个实施方案中,通过将那些暴露于气流的表面抛光以降低内表面的比表面积(粗糙度)来减少混合器的内部表面的催化剂活性。例如,将混合容器的内直径加工到大约 125 微英寸(3.2 微米)的表面粗糙度(rms)可显著降低催化剂活性。

[0060] 混合容器 104 可以设有一个或多个适合的分析仪,用来测量离开第一静态混合区域 136 和 / 或第二静态混合区域 138 的甲烷和氨的浓度。这种线上和线下的分析仪在现有技术中熟知。这种分析仪的非限定性的例子包括红外分析仪、傅里叶变换红外分析仪、气体色谱分析仪和质谱分析仪。类似地,第二静态混合区域 138 可以设置有一个或多个适合的分析仪,用来测量三元气体混合物中的氧气浓度。

[0061] 在图 2 未示出的一个可选的实施方案中,上部入口 132 和下部入口 134 设置有具有自动阀门的惰性气体接头,使得必要时可以净化掉混合容器 104 的管线中的反应物,例如用于维护停工或反应器的停工。

[0062] 在一个实施方案中,混合容器 104 也可以包括(未示出的)可选的流动校正器。流动校正器可以具有可在气体原料流接触到静态混合区域之前将流动对齐的构造。流动校正器还可以围绕管道 130 的整个区域分布气体,并且阻止反应气体向下直接通过混合容器 104 的中间。

[0063] 当使用时,流动校正器可以置于第一进入端口 132 和 / 或第二进入端口 134 的近端,例如下游。优选地,流动校正器直接定位在第一静态混合区域 136 第一行突片嵌件的上游以及第二静态混合区域 138 的上游。

[0064] 在一个实施方案中,流动校正器可以具有多个在中央处连接的径向板。一些流动校正器可以在中间处具有中间体,以阻止反应气体向下穿过狭长管道的中间。中间体可以为圆锥形的或角锥形的。中间体通常定位成至少部分与混合容器的中心线重叠。通过阻止流动通过混合容器的中部并迫使三元气体混合物接触从内壁上伸出的突片嵌件,中间体可

有利地增强混合。当气体被阻止流经混合容器的中间时,各静态混合区域中的三元气体混合物的混合得到了改善。

[0065] 可以在混合容器 104 的通风管线 160 中安装紧急压力释放调节器 128,例如破裂膜片。压力释放调节器 128 限制了狭长管道 130 中的压力,并且因此限制了第一静态混合区域 136 和(未示出的)催化床之间所包含的总质量和势能,因此可在不利的操作条件下减少了暴燃的冲击或爆炸的风险和冲击。在一个实施方案中,压力释放调节器 128 具有从混合容器 104 的操作压力的 110% 到 115% 的压力释放设定点。

[0066] 当压力释放调节器 128 被支撑在第一静态混合区域 136 的远端以与延伸到堆叠 162 中的通风管线 160 连通时,得到了良好结果。因此,在混合容器 104 中形成的过压力下,压力释放调节器 128 打开,而加热过的气体从反应容器 106 和混合容器 104 中排放。可以使用氮气净化流来净化通过压力释放调节器 128 的蒸汽容量。

[0067] 在 HCN 的制造中,如图 5 所示,每种反应气体分别通过适合的原料制备系统 170、172 和 174 进行处理。相应的反应气体的来源可以通过任何现有技术中已知的适合的输送系统如管道、推车、舟皿或轨道等输送到每个相应的原料制备系统中。

[0068] 如图 5 所示,含氧源 176 可以由氧气原料制备系统 170 来提供,该氧气原料制备系统 170 包括用来调节引入到工艺过程中的含氧源 176 的压力的装置以及用来将细颗粒从未过滤的含氧源 176 中移除的过滤器。增加含氧源 176 的氧气含量对于增加反应产量和减少处理装置的尺寸来说是有利的。增加空气的氧气含量也增加了通常在空气中为可燃的物质的易燃性。如果不移除原料流中所夹带的金属颗粒(例如铁或钢)和/或其他污染物以及副产物,则可能导致氧气管道的火情。可以使用任何适合的机构来从未过滤的含氧源 176 中移除所夹带的金属颗粒和其他的污染物,所述机构例如过滤器、旋风分离器、聚结器、防雾装置以及除雾器。当含氧进气的来源要求压缩时,使用本领域技术人员已知的无油压缩机和密封设计也可以缓解污染。针对富氧空气,或许需要压缩机。

[0069] 如这里使用的用语“空气”指成分与取自大气(通常在地面处)的气体的原始成分大致相同的气体混合物。在一些例子中,空气取自周围环境。空气具有如下组成,包括约 78% 体积的氮气、约 21% 体积的氧气、约 1% 体积的氩气和约 0.04% 体积的二氧化碳,以及少量的其它气体。

[0070] 如这里使用的用语“富氧空气”指成分包含比空气中所存在的更多的氧气的气体混合物。富氧空气具有如下组成,包括大于 21% 体积的氧气、少于 78% 体积的氮气、少于 1% 体积的氩气和少于 0.04% 体积的二氧化碳。在一些实施方案中,富氧空气包括至少 28% 体积的氧气,例如至少 80% 体积的氧气、例如至少 95% 体积的氧气,或者至少 99% 体积的氧气。

[0071] 利用含氧源 176(例如低含量的惰性气体,比如氮气)中的高氧气浓度提供了减少在其他情况中必须处理大体积的惰性氮气的下游装置的尺寸和操作成本的机会。在一个实施方案中,含氧气体包括大于 21% 体积的氧气,例如大于 28% 体积的氧气,大于 80% 体积的氧气,大于 90% 体积的氧气,大于 95% 体积的氧气或大于 99% 体积的氧气。此处为了明确起见,当使用用语“富氧空气”时,该用语包含从大于 21% 体积直到并包括 100% 体积的氧气含量(例如纯氧)。当使用用语“含氧进气流”时,该用语包含从 21% 体积直到并包括 100% 体积的氧气含量,例如纯氧。

[0072] 随着含氧源 176 的氧气含量的提升,可以更精确地控制含甲烷源 178 的纯

度。正如本领域技术人员所理解的, 甲烷的来源可以不同, 并且可以从可再生的来源处获得, 例如填埋的垃圾堆、农牧场、发酵的沼气, 或来自化石燃料如天然气、含油气、煤气和气体水合物, 如 VN Parmon “Source of Methane for Sustainable Development”, Pages273-284 和 Derouane, eds. Sustainable Strategies for the Upgrading of Natural Gas: Fundamentals, Challenges, and Opportunities (2003) 中所进一步描述的。出于本发明的目的, 甲烷纯度和含甲烷源 178 的始终如一的组分意义重大。甲烷可以净化后的状态、以半净化的状态或以不纯的状态输送到 HCN 合成系统 100 中。

[0073] 天然气例如为甲烷的不纯状态。也就是说, 天然气大致上为可以用来提供在本发明的工艺中所制备的 HCN 的碳元素的含甲烷气体。然而, 除了甲烷, 天然气可能包含污染物, 例如硫化氢、二氧化碳、氮气、水, 以及更高分子量的碳氢化合物如乙烷、丙烷、丁烷、戊烷等, 所有这些在存在时对 HCN 的生产是有害的。天然气组分可以随着来源的不同而显著不同。由管道所提供的天然气的组分也可能随着时间显著地变化, 甚至在很短的时间跨度内显著变化, 因为会对管道开放和切断气源。这种组分的变化导致难于维持最佳的和稳定的工艺性能。随着惰性负载通过含氧源 176 的氧气富集而减少, HCN 合成工艺对这些变化的敏感性变得更严重。

[0074] 参照图 5, 含甲烷来源 178 可以由甲烷原料制备系统 172 提供, 该甲烷原料制备系统 172 包括用来浓缩甲烷并将更高分子量的碳氢化合物、二氧化碳、硫化氢和水从天然气中移除且过滤天然气以移除细粒的装置。例如, 天然气的净化提供了高度浓缩有甲烷的含甲烷进气流 110, 该含甲烷进气流 110 具有大幅度减少的组分和燃烧值的变化度。当与含氧气体 108 和含氮气体 112 混合时, 净化的含甲烷气体 110 提供了这样的三元气体混合物, 相比于使用未净化的含甲烷的气体原料流而言, 它在 HCN 的合成中能更加可预测地反应。对含甲烷气体的更持续的净化和控制可稳定工艺, 并且允许判定和控制甲烷 / 氧气和氮 / 氧气的最佳摩尔比, 这因此导致了更高的 HCN 产率。

[0075] 使用净化的天然气来获得含甲烷气体原料流 110、即包含大致上纯的甲烷的原料流以制造 HCN 也提升了催化剂寿命和 HCN 产率。尤其是, 使用大致上纯的含甲烷气体 110: (1) 减少了会对下游带来不良影响或对工艺而言无益的杂质的浓度, 所述杂质例如为硫、CO<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>O; (2) 使得剩余的组分稳定在一致的水平, 以便 (a) 允许下游的 HCN 合成最优化, 以及 (b) 通过减轻 HCN 合成步骤中的大的温度偏离来而使得能够使用高度富集的或纯的含氧气体, 其中所述温度偏离典型地与高级烃的含量变化有关, 并且对于最佳的产量和可操作性是有害的 (例如催化剂损坏、联锁和工作时间的损失); 并且 (3) 减少了高级烃 (例如 C<sub>2</sub> 和高级烃) 以降低合成反应中的高级腈类 (例如乙腈、丙烯腈和丙腈) 的形成, 并且降低了移除腈类时相关的 HCN 产率损失。

[0076] 另外, 使用大致上纯的含甲烷的气体 110 可以 (1) 将原料中的可变性消除或最小化 (例如其将碳和氢的含量以及燃烧值稳定化), 并且因此将整个 HCN 合成系统 100 稳定化, 从而允许判定和控制最佳的甲烷和氧之比以及氮和氧之比, 用于稳定的操作和最有效的 HCN 产量; (2) 将相关的温度尖峰和所导致的催化剂损坏消除或最小化; 并且 (3) 将二氧化碳最小化, 因此减少了存在于氮的再生过程中的和再生的或再循环的氮流中的二氧化碳的量, 其中所述氮流来自可能位于反应容器 106 下游的氮的再生过程。在这种氮的再生过程中和在再生的或再循环的氮流中将二氧化碳消除或最小化减少了形成氨基甲酸酯的可能

性,氨基甲酸酯的形成会导致管路和其他工艺装置的阻塞和 / 或污垢沉积。

[0077] 在混合容器 104 中与含氧气体 108 和含甲烷气体 110 混合之前,“合成的”或新鲜的氨流 180 通过新鲜氨原料制备系统 174 处理。大致上,新鲜氨原料制备系统 174 的主要功能是在含氨气体 112 引入到混合容器 104 中之前从新鲜的氨流 180 中移除杂质,例如水、油和铁。含氨气体 112 中的杂质可能减少催化剂的寿命,这造成低下的反应产量。新鲜氨原料制备系统 174 可以包括处理设备,例如蒸发器和用于“合成的”或新鲜的氨流 180 的过滤器,以提供经处理的新鲜的氨流 112。

[0078] 例如,可以在蒸发器中处理商业可得的液态氨,以便提供部分净化的氨蒸汽流以及包含水、铁、铁微粒和其他非挥发性杂质的第一液体流。可以使用例如氨除雾器的氨分离器来分离出现在部分净化的氨蒸汽流存在中的杂质和任何液体,从而制备经处理的新鲜的氨流(大致纯的氨蒸汽流),以及包含有所夹带的杂质和存在于部分净化的氨蒸汽流中的任何液体氨的第二液体流。

[0079] 在一个实施方案中,包含水、铁、铁微粒和其他非挥发性杂质的第一液体流输送到第二蒸发器中,其中使一部分液体流蒸发来形成第二部分净化的氨蒸汽流,以及能够作为泻流或废物流来进一步处理的包含水、铁、铁微粒和其他非挥发性杂质的更浓缩的第二液体流。第二部分净化的氨蒸汽流可以输送到氨分离器。在另一个实施方案中,包含水、铁、铁微粒和其他非挥发性杂质的更浓缩的第二液体流输送到第三蒸发器中,以在作为泻流或废物流处理之前进一步降低氨含量。

[0080] 蒸发器中的泡沫形成会限制氨的蒸发率并且降低所制备的氨蒸汽的纯度。一般通过将消泡剂直接引入到蒸发器中或引入到蒸发器的原料流中来阻止泡沫形成。消泡剂属于广义上的能够消除或显著减少液体和 / 或液体与气体混合物的形成泡沫的能力的聚合材料和溶液。消泡剂通过减少溶液的表面张力来在搅动的液体中抑制气泡形成。消泡剂的例子包括硅树脂、有机磷酸盐和醇类。在一个实施例,将足够量的消泡剂添加到新鲜的氨流中,以在新鲜的氨流 180 中将消泡剂浓度保持到从 2ppm 到 20ppm 的范围中。消泡剂的一个非限定性的例子是 Unichem of Hobbs, NM (新墨西哥) 所制造的 UNICHEM7923。

[0081] 新鲜的氨原料制备系统 174 还可以设有过滤系统,以从所处理的新鲜的氨流 180 中移除微粒,从而阻止反应容器 106 中的催化剂中毒。过滤系统可以为单个的过滤器或多个过滤器。

[0082] 氨也在氨再生部分 112 中分离和再生,作为能够在再循环氨原料制备系统 182 中单独处理的再循环氨流 124。再循环氨原料制备系统 182 可以包括处理设备,用来过滤和加热再循环氨流 182,以产生经处理的再循环氨流 112。加热由管道输送的再循环氨流 124 可协助阻止管道内壁上的沉积。经处理的再循环氨流 124 可以与经处理的新鲜的氨流 180 相结合。

[0083] 反应容器 106 中所发生的 HCN 合成反应为吸热反应,其在 1000°C 到 1250°C 范围中的反应温度下和 100kPa 到 400kPa 范围中的压力下进行。催化剂典型地为丝网铂 / 铑合金或丝网铂 / 铱合金。在一个方面,可在平面催化剂载体上使用 85/15 铂 / 铑合金。也可以在相比于平面催化剂载体具有更大的表面积波纹状支撑上使用 90/10 铂 / 铑合金。可以使用其他的催化剂组分,包括但不限于铂族金属、铂族金属合金、负载型铂族金属或负载型铂族金属合金。也可以使用其他的催化剂构成,包括但不限于有孔结构、丝网、突片嵌件、球



体、块体、泡沫状、浸渍涂层和清洗涂层。催化剂负载在反应容器中,直到处于 0.7 到 1.4(g 催化剂)/(kg 原料气体 / 小时)范围中的催化剂负载。三元气体混合物在反应容器中与催化剂接触,从而提供含氰化氢的反应产物,例如氰化氢粗产物。

[0084] 在一个实施方案中,能够将加热的三元气体转化成 HCN 的催化剂床由支撑组件来支撑,所述支撑组件由能够减少硅化铂形成且优化反应器管道的热应力抗性和污垢沉积的材料形成。催化剂支撑组件大致上相邻于催化剂床布置。阻火器在空间上布置在催化剂床之上,以在那里提供空间。阻火器可熄灭任何内部反应室内的由于回流所导致的上游燃烧。陶瓷泡沫沿着限定了内部反应室和催化剂的壳体的内壁的至少一部分布置。当反应器关闭时,陶瓷泡沫将由于催化剂收缩所导致的原料气体的旁流最小化。布置在催化剂床之上的陶瓷泡沫用于在反应器的操作过程中将三元气体的体积最小化、减少压降并且抑制自由基的形成。在壳体的每个出口中布置有套圈,其提供了催化剂床和余热锅炉的上方部分之间的流体连通。具有大致蜂窝状构造的下部支撑件大致相邻于催化剂支撑件的下表面布置,用来减少横跨下部支撑件的压降。

[0085] 阻火器可以由任何合适的现有技术中已知的材料来制造,只要阻火器能够执行下述功能中的任一种:(1)在存在来自催化剂床的回流的情况下熄灭上游的燃烧;(2)作为流动分布器以保证在催化剂床上的均匀流动和消除可能回流的低气体速度的区域;(3)作为空间填充器来减少反应器中的反应物体积,以将那里的势能最小化;和/或在热催化剂床和反应器的上部部分中的三元气体混合物之间提供热绝缘。所采用的阻火器可以由这样的材料制造,所述材料(1)具有最小催化效应;(2)在制造 HCN 所采用的温度下是热稳定的;(3)不会分解氨;和(4)不会触发氧化。在构造阻火器时可以采用的材料的例子为处于任何稳定形式的陶瓷耐火材料,包括但不限于:陶瓷丸体、陶瓷泡沫、陶瓷纤维覆层、硅铝耐火材料、非纺织覆层以及它们的组合等。适合的陶瓷耐火材料组合物的非限定性例子包括 90% 重量的矾土、94% 重量的矾土和 95% 重量的矾土。另外,当使用丸体作为材料来构造阻火器时,丸体的尺寸和形状可以不同,只要阻火器中所使用的丸体能够执行上述功能。

[0086] 需要理解的是,阻火器的使用显著地减少了所加热的三元气体混合物通过从暴燃到爆炸的转换变成成为易爆的可能性。例如,如果判定 304kPa 和 100°C 下三元气体混合物的火焰速度为 1.2m/sec,则通过阻火器、例如包含 3/8 英寸(9.5mm)直径的丸体的丸状床的经预热的三元气体混合物的表观速度应该明显大于 1.2m/sec,凭此阻止了火焰传播通过丸状床。虽然丸状床中所使用的丸体的尺寸可以广泛地不同,然而丸体的直径尺寸一般为从 1/8 英寸到 1/2 英寸(3mm 到 13mm)。

[0087] 阻火器的特征(例如丸状床的深度)选择为使得经预热的三元气体混合物在阻火器上的压降被三元气体混合物的增加的速度以及阻火器和催化剂床之间的减少的敞开空间平衡掉,从而将在暴燃中释放的潜在能量最小化,而不会明显地有损于到混合容器中的压力释放器件的回流。在一个实施例中,丸状床的深度至少为 0.4m。

[0088] 从上述说明中可以清楚,本发明能很好地适合于实现目标并达到这里所提及的优势以及本公开所固有的优势。虽然出于本公开的目的已经描述了本发明的优选的实施方案,然而可以理解的是,可以进行对于本领域技术人员而言显而易见的并且能够在本发明的精神下所完成的改变。

[0089] 本发明可以参照下述例子来进一步理解。

**[0090]** 例 1

**[0091]** 如图 2 所示,多个具有 L 形支撑件的突片嵌件可以穿过狭长管道上的相应的非连续的槽而插入,从而在第一静态混合区域中形成一个四个突片嵌件的行,以及在第二静态混合区域中形成三个四个突片嵌件的行。第一静态混合区域处于含甲烷和含氨气的气体的进入端口之间,而第二静态混合区域处于含氧气体的进入端口与出口端口之间。每个突片嵌件具有  $30^{\circ} \pm 1^{\circ}$  的角度,但第二静态混合区域中的最下一行中的突片嵌件具有  $25^{\circ} \pm 1^{\circ}$  的角度。每个突片嵌件具有约  $77.5\text{cm}^2$  的表面积。每个突片嵌件从狭长管道的内部插入,并且与狭长管道的外表面焊接。一行中的突片嵌件与相邻行中的突片嵌件对齐,并且第一混合区域的突片嵌件和第二混合区域的突片嵌件对齐。突片嵌件的倾斜度可以为从  $0^{\circ}$  到  $3^{\circ}$ 。这形成了用来制备三元气体混合物的示例性混合容器。

**[0092]** 混合容器还具有安装在排放管线中的破裂膜片。在第一静态混合区域的上游设有具有四个径向板和中间体的流动校正器。在第二静态混合区域的上游和含氧气体的进入端口的下游设有具有四个径向板和中间体的第二流动校正器。

**[0093]** 比较例 A

**[0094]** 对比用静态混合器与例 1 中的示例性混合容器具有相同数量的突片嵌件和行的构造,不同在于突片嵌件焊接到狭长管道的内表面。该对比用静态混合器未设非连续的槽。突片嵌件的倾斜度大于  $8^{\circ}$ ,这导致了静态混合器中的增加的旋转和差的混合。

**[0095]** 例 2

**[0096]** 含甲烷和氨的反应气体输入第一静态混合区域,而含氧的反应气体输入第二静态混合区域。反应气体以 1.2 的甲烷-氧摩尔比和 1:1.5 的氨-氧摩尔比来供应,以产生含有约 28.5% 体积的氧气的三元气体混合物。该三元气体混合物然后供应到具有位于平面催化剂床上的 85/15 铂/铈催化剂的反应容器内。反应温度为 1000 到  $1200^{\circ}\text{C}$ 。使用例 1 的示例性混合容器,三元气体混合物可在催化剂床上具有少于 0.1 的变化系数  $\text{CoV}$ 。另外,例 1 中的示例性混合容器内的压降小于 35kPa。

**[0097]** 例 3

**[0098]** 使用例 1 的示例性混合容器并在类似于例 2 的反应条件下,催化剂床将具有从  $15^{\circ}\text{C}$  到  $25^{\circ}\text{C}$  的横跨床的床温度变化。该床温度变化用于表明完全混合的三元气体混合物。相反,对比例 A 的静态混合器在类似于例 2 的反应条件下产生了导致  $35^{\circ}\text{C}$  到  $100^{\circ}\text{C}$  的横跨床的床温度变化的三元气体混合物。对比例 A 的静态混合器的劣质混合可能缘于由于在狭长管道的内侧焊接而难以对齐突片嵌件。

**[0099]** 例 4

**[0100]** 使用例 1 的示例性混合容器并在类似于例 2 的反应条件下,反应器波动将导致大于 13MPa 的巨大的压力增加,其通过可破裂膜片爆发。例 1 的示例性混合容器中的突片嵌件将承受住该压力波动而不会形变。突片嵌件将保持其形状,且倾斜度将保持在从  $0^{\circ}$  到  $3^{\circ}$ 。相反地,对比例 A 的静态混合器的突片嵌件将无法承受住压力波动,并且会变形。这要求替换受损的突片嵌件和 / 或替换混合容器,导致 HCN 生产的停工期。

**[0101]** 例 5

**[0102]** 测试例 1 的示例性混合容器,以确定在插入和焊接了突片嵌件之后是否存在含氧气体、含甲烷气体或含氨气体经 16 个非连续的槽的任何泄漏。气体输送到混合容器,并且

混合容器被密封和加压。使用检测器来确定是否有任何气体从混合容器中泄漏。没有观察到泄漏。

[0103] 例 6

[0104] 将多个具有 1 形支撑的突片嵌件经相应的非连续槽插入到狭长管道内, 以在静态混合区域中形成处于含氧气体的进入端口和出口端口之间的四行突片嵌件, 每行四个。与例 1 不同, 在含甲烷气体和含氨气体的进入端口之间未设突片嵌件。每个突片嵌件具有  $30^\circ \pm 1^\circ$  的角度, 但最下一行中的突片嵌件具有  $25^\circ \pm 1^\circ$  的角度。每个突片嵌件具有约  $77.5\text{cm}^2$  的表面积。每个突片嵌件从狭长管道的内部插入, 并且与狭长管道的外表面焊接。一行中的突片嵌件与相邻行中的突片嵌件对齐。突片嵌件的倾斜度可以为从  $0^\circ$  到  $3^\circ$ 。这形成了用来制备三元气体混合物的示例性混合容器。在类似于例 2 的反应条件下, CoV 高于例 2, 这表明降低的混合效率。

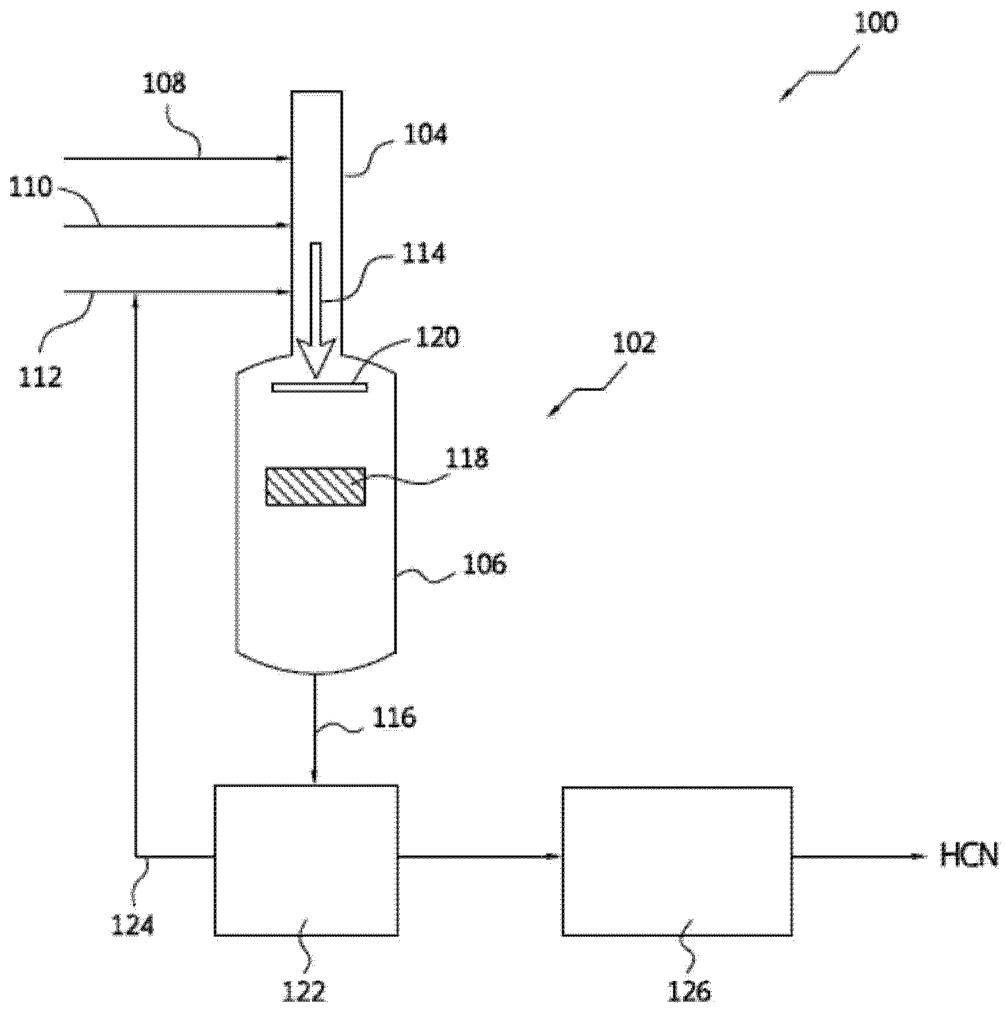


图 1

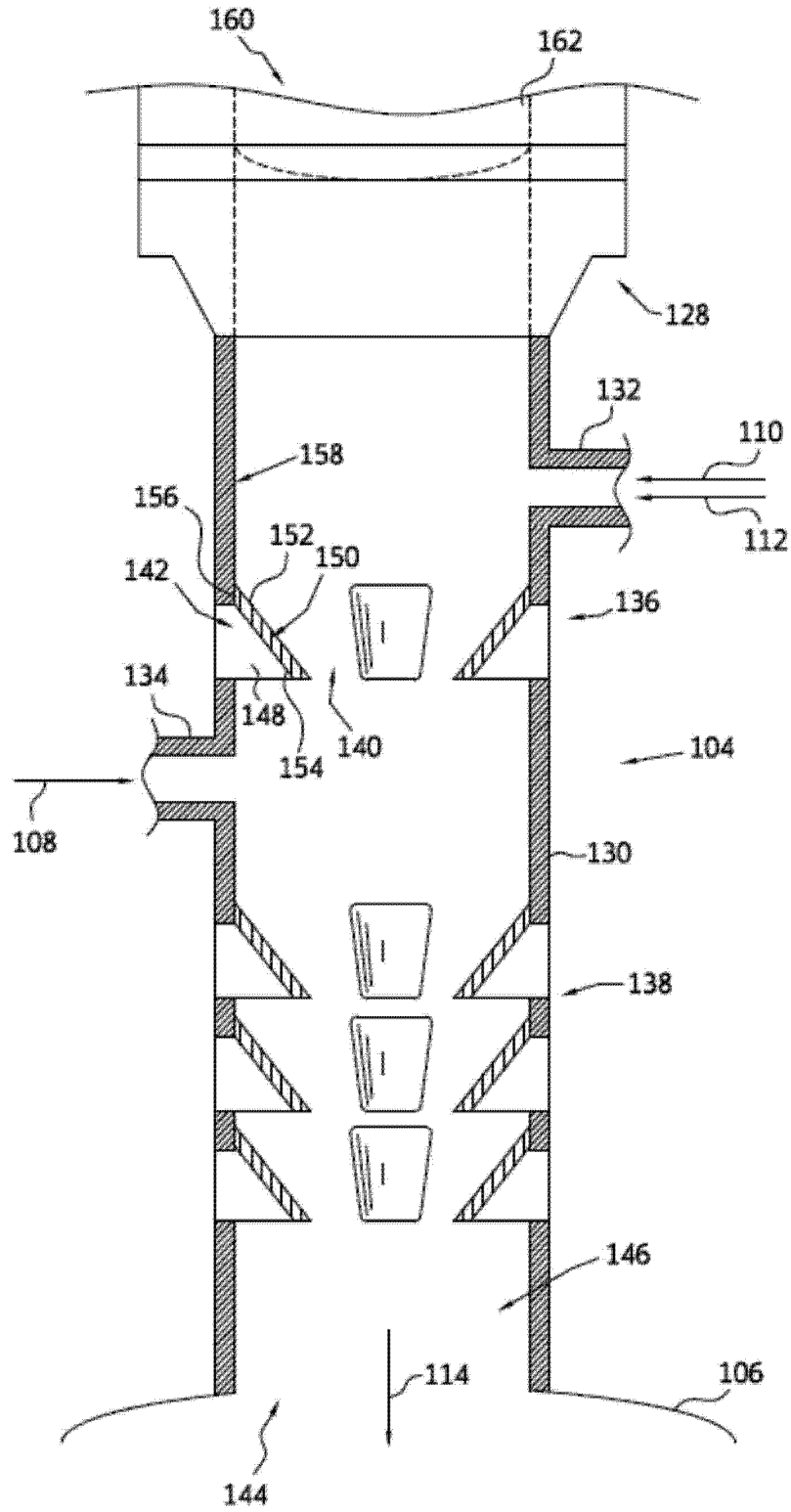


图 2

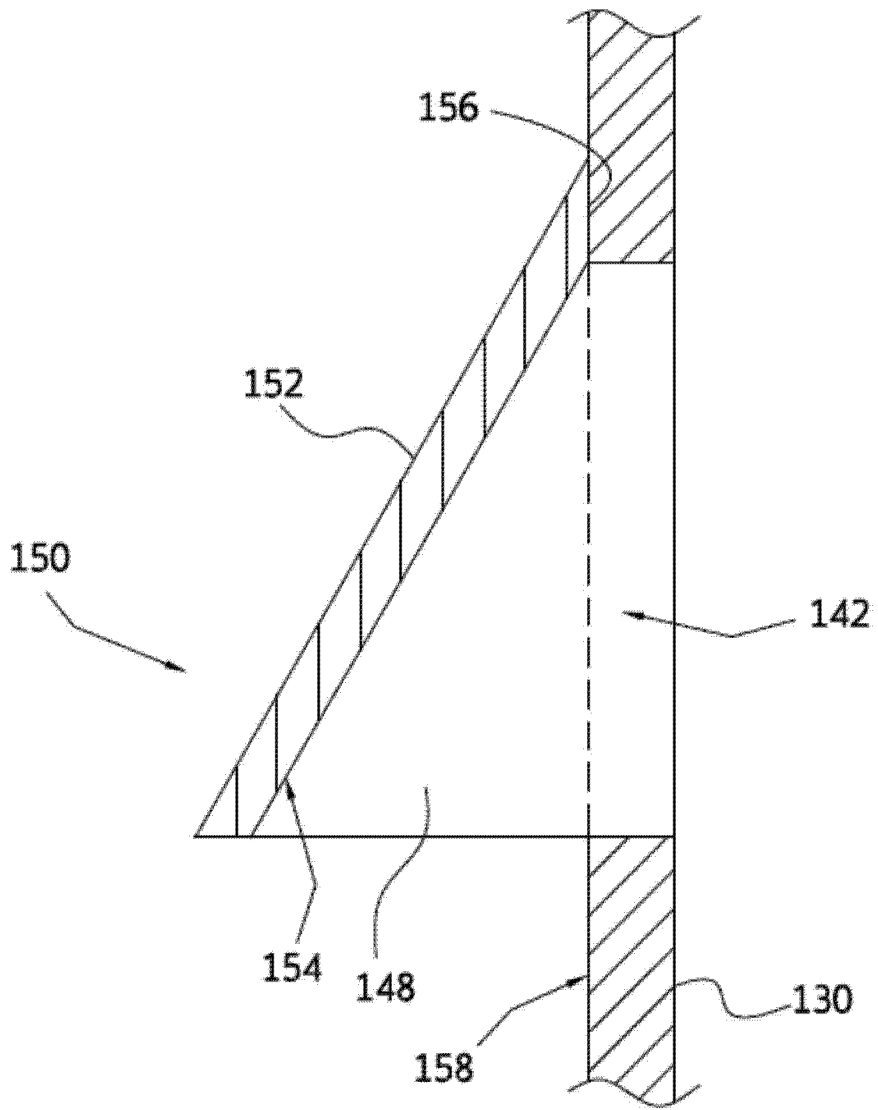


图 3

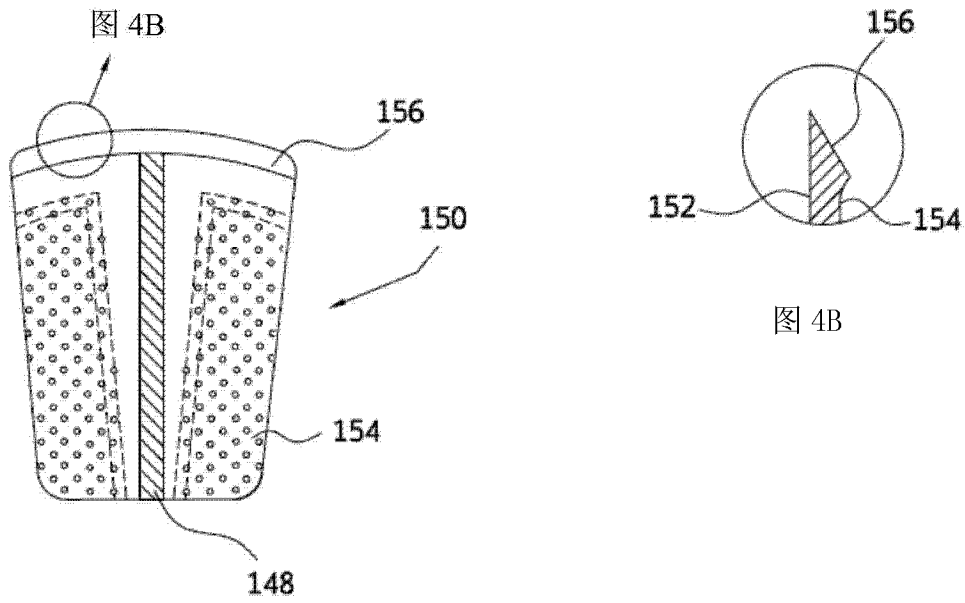


图 4A

图 4B

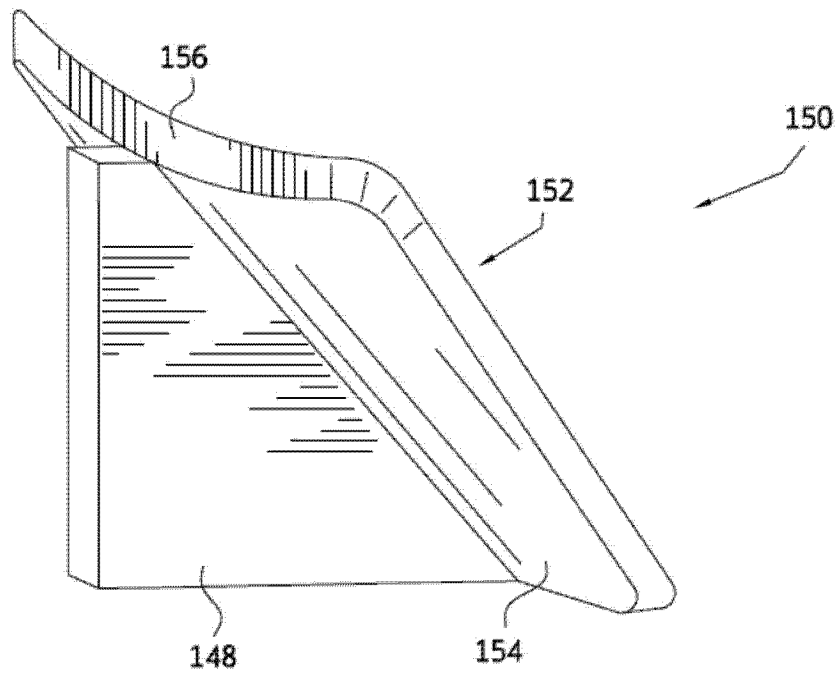


图 4C

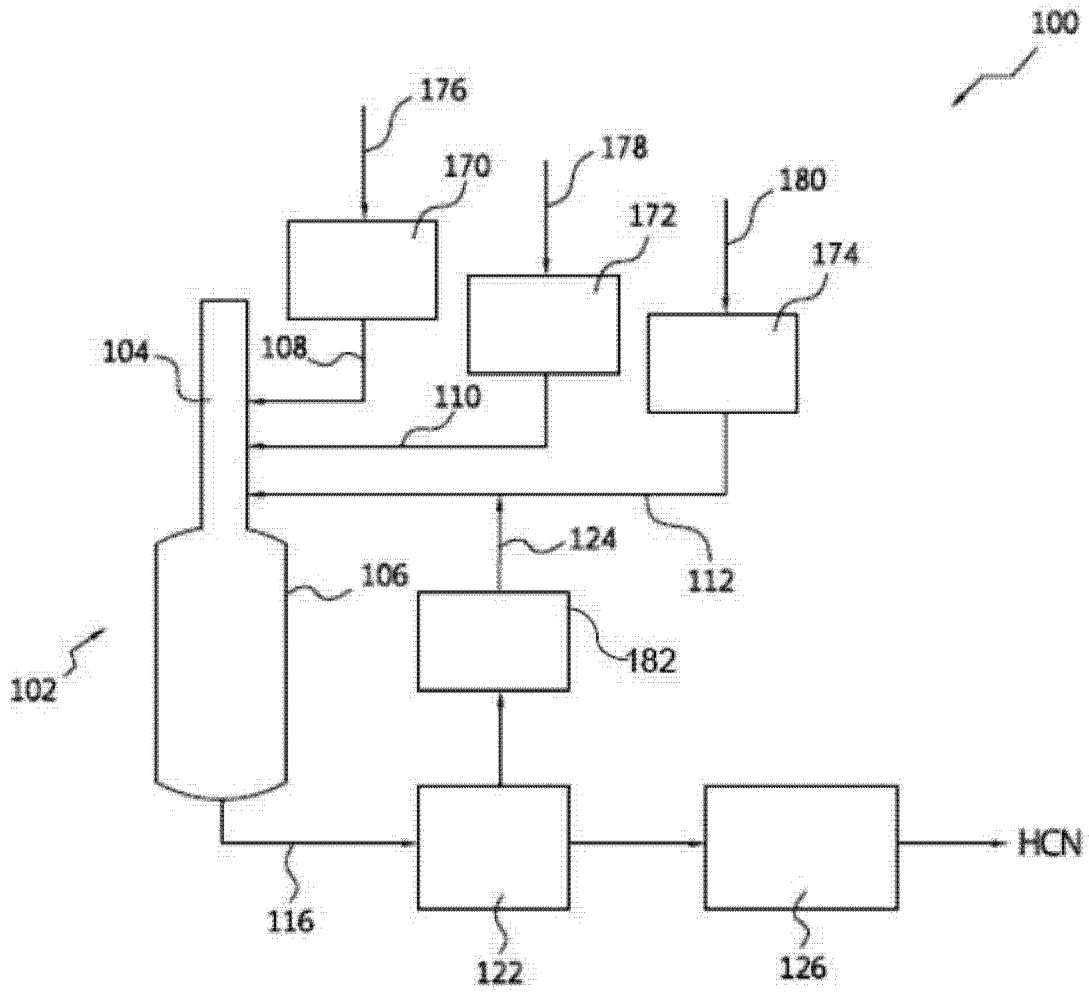


图 5