



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 112585086 B

(45) 授权公告日 2024.03.12

(21) 申请号 201980054139.5

(22) 申请日 2019.08.19

(65) 同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 112585086 A

(43) 申请公布日 2021.03.30

(30) 优先权数据
1813431.2 2018.08.17 GB
1814517.7 2018.09.06 GB
1901660.9 2019.02.06 GB

(85) PCT国际申请进入国家阶段日
2021.02.18

(86) PCT国际申请的申请数据
PCT/GB2019/052316 2019.08.19

(87) PCT国际申请的公布数据
W02020/035706 EN 2020.02.20

(73) 专利权人 生物氢技术有限公司
地址 英国东苏塞克斯郡

(72) 发明人 杰弗里·杰拉尔德·威登
杰克·杰拉尔德·威登

(74) 专利代理机构 北京同立钧成知识产权代理
有限公司 11205
专利代理师 郭慧 臧建明

(51) Int.Cl.
C01B 3/38 (2006.01)
B01J 19/24 (2006.01)

(56) 对比文件
DE 10209886 A1, 2003.09.25
DK 126685 D0, 1985.03.21
CN 1514803 A, 2004.07.21
US 2009274593 A1, 2009.11.05
CN 1832900 A, 2006.09.13

审查员 刘子露

权利要求书4页 说明书34页 附图9页

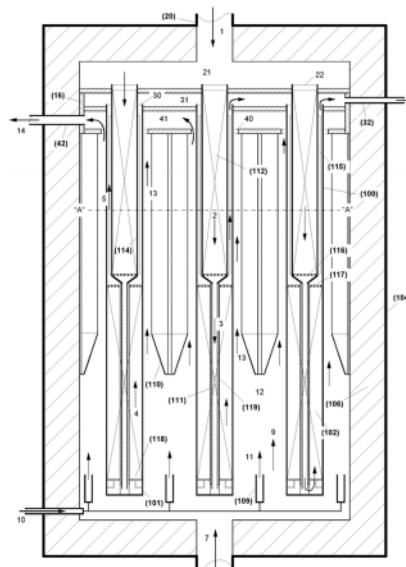
(54) 发明名称

烃类的蒸汽重整或干重整

(57) 摘要

一种用于在重整反应器中对烃类进行蒸汽重整或干重整的方法,包括:(a)使原料在升高温度下通过第一催化区,以形成部分重整的工艺气体,该原料包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂,其中,该第一催化区包括一个或多个细长导管,每个导管均包含重整催化剂;和(b)使该部分重整的工艺气体在升高温度下通过第二催化区,以形成重整气流,其中,该第二催化区包括一个或多个细长导管,每个导管均包含重整催化剂;其中,该方法还包括流体燃料和燃烧维持介质在放热燃烧区域中燃烧以形成热燃烧产物流,其中,该放热燃烧区域邻近并横向围绕各第二催化区细长导管,其中,流体燃料和燃烧维持介质分别进料到放热燃烧区域,然后在放热燃烧区域内彼此引入。

CN 112585086 B



1. 一种用于在重整反应器中对烃类进行蒸汽重整或干重整以形成冷却的重整气体产物流和进一步冷却的燃烧产物流的方法,所述方法包括以下步骤:

(a) 使原料在升高温度下通过第一催化区,以形成部分重整的工艺气体,所述原料包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂,其中,所述第一催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂;和

(b) 使所述部分重整的工艺气体在升高温度下通过第二催化区,以形成重整气流,其中,所述第二催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂;

其中,所述方法涉及使用一种细长工艺管组件,所述工艺管组件包括第一催化区细长导管和第二催化区细长导管,使得单个组件设置:(a) 第一催化区,所述第一催化区包括细长导管,所述细长导管具有入口和出口并且含有重整催化剂,以及 (b) 第二催化区,所述第二催化区包括细长导管,所述细长导管具有入口和出口并且包含重整催化剂,并且其中,在所述工艺管组件中所述第一催化区细长导管和所述第二催化区细长导管彼此纵向对准,使得所述工艺管组件的中心纵向轴线对应于所述第一催化区细长导管的中心纵向轴线并且对应于所述第二催化区细长导管的中心纵向轴线;

并且其中,所述工艺管组件包括同心布置的内管和外管,其中:

- 所述内管包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,所述第一重整催化剂部分是所述第一催化区的一部分,

- 所述外管包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,所述第二重整催化剂部分是所述第二催化区的一部分,

- 所述第一重整催化剂床和所述第二重整催化剂床串联布置,

- 所述内管具有出口,部分重整的气体能够通过所述出口离开所述内管,

- 内部导管,部分重整的气体能够通过所述内部导管流动,从所述内管的出口流动通过所述第二重整催化部分,其中所述内部导管从所述第一重整催化剂床的出口向所述第二重整催化剂床的入口提供部分重整的气体;

其中,所述方法还包括流体燃料和燃烧维持介质在放热燃烧区域中燃烧以形成热燃烧产物流,其中,所述放热燃烧区域邻近并横向围绕各所述第二催化区细长导管,其中,所述流体燃料和所述燃烧维持介质分别进料到所述放热燃烧区域,然后在所述放热燃烧区域内彼此引入;

其中,步骤 (b) 中的提供所述升高温度所用的热量通过从所述放热燃烧区域到所述第二催化区细长导管的热传递直接供给,通过 (i) 所述燃烧本身和 (ii) 所述热燃烧产物流的热传递直接供给,所述热传递均通过对流和气体辐射进行;

由此,所述热燃烧产物流通过向所述第二催化区细长导管的热传递而冷却,从而形成部分冷却的燃烧产物流;

并且其中,步骤 (a) 中的提供所述升高温度所用的热量从 (i) 所述重整气流和 (ii) 所述部分冷却的燃烧产物流供给到所述第一催化区细长导管;

由此,所述重整气流通过向所述第一催化区细长导管的所述热传递而冷却,从而形成冷却的重整气体产物流;和

由此,所述部分冷却的燃烧产物流通过向所述第一催化区的所述热传递而冷却,从而形成进一步冷却的燃烧产物流;

其中,所述外管、所述内部导管和所述第二重整催化剂部分被配置并布置为使得部分重整的气体离开所述内部导管的出口然后改变方向使其以与流过所述内部导管的方向相反的方向通过所述第二重整催化剂部分,并且因此流过所述第一重整催化剂部分的方向与流过所述内部导管的方向相同,从而所述工艺气体以相反方向流过所述第一重整催化剂部分和第二重整催化剂部分,使得燃烧气体能够在所述工艺管组件外管的外部沿单一方向流动。

2. 根据权利要求1所述的方法,其中,在所述细长导管的内部和外部使用附加的热传递增强方式,并且其中,所述热传递增强方式选自:翅片,表面处理,以及流体速度和/或流体流动曲折度增加装置。

3. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述方法在单个包含两个或更多个细长重整组件的容器中执行。

4. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述流体燃料和所述燃烧维持介质在所述放热燃烧区域内经由多个燃烧器喷嘴彼此引入,其中,所述燃烧器喷嘴的数量大于所述第二催化区中的细长导管的数量。

5. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,在步骤(a)中,所述重整气流与所述原料逆向流动且发生间接热交换接触,使得热量从所述重整气流传递至所述原料,并且同时所述部分冷却的燃烧产物流与所述原料逆向流动并发生间接热交换接触,使得热量从所述部分冷却的燃烧产物流传递至所述原料。

6. 根据权利要求5所述的方法,其中,在步骤(a)中,所述部分冷却的燃烧产物流与重整气流并流发生间接热交换接触,使得热量从所述部分冷却的燃烧产物流传递至所述重整气流,并且热量从所述重整气流传递至所述原料。

7. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述流体燃料和所述燃烧维持介质各自以足以维持自燃的温度进料到所述燃烧区。

8. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,控制所述燃烧维持介质的压力,以使得在所述导管壁温度最高时的位置处,所述第二催化区与所述放热燃烧区域之间的压差为:

- a) 小于500千帕,或
- b) 小于100千帕,或
- c) 小于20千帕。

9. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述第一催化区中使用的所述催化剂和所述第二催化区中使用的所述催化剂各自独立地选自:

无规填充催化剂、结构化催化剂、整体式催化剂及其组合。

10. 根据权利要求9所述的方法,其中,所述催化区中的一者或两者包括两种或更多种不同类型的催化剂。

11. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述工艺管组件的所述内管和所述外管在纵向上相对于彼此独立地自由移动,除了仅在将所述内管和所述外管相对于彼此进行固定的位置之外,所述内管和所述外管之间没有直接或间接的连接。

12. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述内部导管与所述内管的包含所述第一重整催化剂床的部分共同接合。

13. 根据权利要求1或2所述的方法,其中,所述工艺管组件具有单个入口和单个出口,

所述入口和所述出口均在所述组件的同一端。

14. 一种装置,适于执行权利要求1至13中任一项所述的方法,其中,所述装置包括:壳体,所述壳体包含:

- 第一催化区,所述第一催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂,并且每个所述细长导管具有入口和出口,从而在使用中原料能够通过第一催化区细长导管的入口进入所述第一催化区细长导管并在升高温度下通过所述第一催化区细长导管,以形成部分重整的工艺气体,所述部分重整的工艺气体然后能够通过所述细长导管的出口离开,其中,所述原料包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂;

- 第二催化区,所述第二催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂,并且每个所述细长导管具有入口和出口,由此在使用中,来自所述第一催化区的部分重整的工艺气体能够通过第二催化区细长导管的入口进入所述第二催化区细长导管并在升高温度下通过所述第二催化区细长导管,以形成重整气流,所述重整气流然后能够通过所述细长导管的出口离开;

- 放热燃烧区域,所述放热燃烧区域横向围绕所述第二催化区,其中,所述放热燃烧区域关联于多个燃烧器喷嘴、流体燃料得以提供的燃料入口以及燃烧维持介质得以提供的燃烧维持介质入口,使得在使用中来自所述燃料入口的流体燃料和来自所述燃烧维持介质入口的燃烧维持介质能够经由所述多个燃烧器喷嘴彼此引入,并且所述流体燃料与所述燃烧维持介质在所述放热燃烧区域中燃烧以形成热燃烧产物流,从而在使用中能够经由所述放热燃烧区域从所述热燃烧产物流向所述第二催化区进行热传递;

- 热回收区域,所述热回收区域在使用中适于在所述热燃烧产物流向所述第二催化区提供热量之后从所述重整气体产物流和所述热燃烧产物流中接收热量,并将热量传递至所述第一催化区;

- 燃烧产物流出口,所述燃烧产物流在所述热回收区域中失去热量之后能够通过所述燃烧产物流出口离开所述壳体;和

- 重整气流出口,所述重整气流在所述热回收区域中失去热量之后能够通过所述重整气流出口离开所述壳体;

其中,所述装置包括一种细长工艺管组件,所述工艺管组件包括第一催化区细长导管和第二催化区细长导管,使得单个组件设置:(a) 第一催化区,所述第一催化区包括细长导管,所述细长导管具有入口和出口并且含有重整催化剂,以及 (b) 第二催化区,所述第二催化区包括细长导管,所述细长导管具有入口和出口并且包含重整催化剂,并且其中在所述工艺管组件中所述第一催化区细长导管和所述第二催化区细长导管彼此纵向对准,使得所述工艺管组件的中心纵向轴线对应于所述第一催化区细长导管的中心纵向轴线并且对应于所述第二催化区细长导管的中心纵向轴线;

并且其中,所述工艺管组件包括同心布置的内管和外管,其中:

- 所述内管包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,所述第一重整催化剂部分是所述第一催化区的一部分,

- 所述外管包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,所述第二重整催化剂部分是所述第二催化区的一部分,

- 所述第一重整催化剂床和所述第二重整催化剂床串联布置,

- 所述内管具有出口,部分重整的气体能够通过所述出口离开所述内管,
- 内部导管,部分重整的气体能够通过所述内部导管流动,从所述内管的出口流动通过所述第二重整催化部分,使得在使用中所述内部导管从所述第一重整催化剂床的出口向所述第二重整催化剂床的入口提供部分重整的气体;

并且其中所述外管、所述内部导管和所述第二重整催化剂部分被配置并布置为使得,在使用中,部分重整的气体离开所述内部导管的出口然后改变方向使其以与流过所述内部导管的方向相反的方向通过所述第二重整催化剂部分,并且因此流过所述第一重整催化剂部分的方向与流过所述内部导管的方向相同,从而所述工艺气体以相反方向流过所述第一重整催化剂部分和第二重整催化剂部分,使得燃烧气体能够在所述工艺管组件外管的外部沿单一方向流动。

15. 根据权利要求14所述的装置,其中,在所述细长导管的内部和外部使用附加的热传递增强方式,并且其中,所述热传递增强方式选自:翅片,表面处理,以及流体速度和/或流体流动曲折度增加装置。

16. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述第二催化区的细长导管和所述燃烧器喷嘴以规则阵列布置,所述规则阵列正交于所述燃烧产物流和所述原料的流动。

17. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述外管包括单个细长管,所述单个细长管部分地位于所述燃烧区域中并且部分地位于所述热回收区域中。

18. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述燃烧器喷嘴的数量大于所述第二催化区中的细长导管的数量。

19. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,包括一个或多个辐射插入物,所述辐射插入物在所述第一催化区和所述第二催化区的外部并且至少部分地位于所述热回收区域中。

20. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述放热燃烧区域横向围绕并且直接邻近所述第二催化区。

21. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述多个燃烧器喷嘴、燃料入口和燃烧维持介质入口相对于所述第二催化区布置成,使得在使用中通过以下方式可能存在所述放热燃烧区域到所述第二催化区的直接热传递:(i)所述燃烧本身和(ii)所述热燃烧产物流的热传递,所述热传递均通过对流和气体辐射进行。

22. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述工艺管组件的所述内管和所述外管在纵向上相对于彼此独立地自由移动,除了仅在将所述内管和所述外管相对于彼此进行固定的位置之外,所述内管和所述外管之间没有直接或间接的连接。

23. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述内部导管与所述内管的包含所述第一重整催化剂床的部分共同接合。

24. 根据权利要求14或15所述的装置,其中,所述工艺管组件具有单个入口和单个出口,所述入口和所述出口均在所述组件的同一端。

烃类的蒸汽重整或干重整

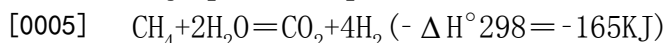
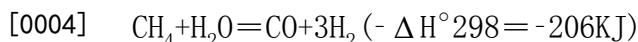
技术领域

[0001] 本发明涉及烃类的蒸汽重整或干重整方法以及烃类的蒸汽重整或干重整装置。

背景技术

[0002] 诸如甲烷等烃类的蒸汽重整是众所周知。烃类的干重整也是已知的,其中,使用CO₂代替全部或部分蒸汽。尽管目前更广泛地使用蒸汽重整,但是本发明同样适用于干重整。因此,对两种工艺进行考虑和讨论。

[0003] 烃蒸汽重整工艺中发生的吸热反应可以通过以下反应方案进行描述:



[0006] 可以建立相应的反应方案,用于蒸汽重整高于甲烷的烃类,同样适用于反应物为CO₂而不是H₂O的干重整。

[0007] 这些蒸汽重整反应发生在原料或工艺气体中,该原料或工艺气体包括烃类(例如,天然气)和蒸汽的混合物。该原料在蒸汽重整条件下通过蒸汽重整催化剂。该反应通常在高温下在蒸汽重整器中进行。吸热反应所需的热量通常通过辐射炉膛中的燃烧供给,在辐射炉膛中,催化剂布置在延伸通过炉膛的垂直管中。

[0008] 通过重整工艺实现高热效率的关键是尽可能有效地利用热产物流中包含的废热。通常,首先将热重整气体产物流送入重整气体锅炉,该锅炉具体设计为避免在高压蒸汽产生情况下的金属粉尘腐蚀。在常规的甲烷蒸汽重整工艺中,所产生的蒸汽量大大超过了甲烷蒸汽重整工艺本身所需的量,因此必须输出过量的蒸汽。这对甲烷蒸汽重整工艺的整体热效率具有明显的负面影响。

[0009] 离开重整器辐射段的燃烧产物中所含的废热通常通过各种方式回收在对流段中,例如,蒸汽的产生、蒸汽过热、进料或中间工艺流的加热、燃烧空气或其它流的预热。炉子对流段通常使用大气压或接近大气压的烟道气运行,从而产生大型且重型的设备项目。

[0010] 另外,特别是在更高的容量下,常规的甲烷蒸汽重整器主要在现场制造,这导致高成本。

[0011] EP0195688 A2描述了一种在重整反应器中对烃类进行蒸汽重整的方法,该方法是在蒸汽重整条件下和外部供热下,使包含蒸汽和一种或多种烃类作为工艺气体的进料流通过给定体积的蒸汽重整催化剂。该方法包括:(a)使工艺气体通过蒸汽重整催化剂的第一部分;然后(b)使在步骤(a)中已部分重整的工艺气体通过蒸汽重整催化剂的其余部分以形成产品流。步骤(b)中吸热反应所需的热量和加热工艺气体所需的热量由热烟道气供给,该热烟道气是由燃烧器中的流体燃料燃烧产生的。由于热烟道气就此提供热量,因此将其冷却,从而形成适度热的烟道气。步骤(a)所需的热量部分地由这种适度热的烟道气供给,部分地由产物流供给。

[0012] EP1403215 A1描述了一种通过催化烃原料的蒸汽和/或CO₂重整来制备合成气体的方法。该方法包括以下步骤:(a)在加热的蒸汽重整单元中加热烃和蒸汽和/或CO₂的反应

混合物,该加热的蒸汽重整单元与来自燃烧管式重整器的包含烟道气的废热段整合在一起,其中,反应混合物的重整通过与固体重整催化剂接触进行,以获得部分蒸汽重整的混合物;以及(b)将部分蒸汽重整的混合物进料到燃烧管式重整器中,并进一步将混合物重整到所需的成份和温度。加热的蒸汽重整单元包括管道系统,该管道系统包含具有固体重整催化剂的反应段,该固体重整催化剂包含催化剂颗粒和/或催化的结构化元素,该管道系统是与含烟道气的废热段集成的工艺气体管道系统的一部分。提供给该工艺的唯一热源由热烟道气供给,该热烟道气是通过燃烧器中的流体燃料燃烧产生的。加热的蒸汽重整单元的热传递主要通过对流发生。在主燃烧管式重整器段中,热传递主要通过辐射进行。

[0013] 如技术人员应理解的,常规燃烧器将在低于燃料自燃温度的温度下操作。因此,燃料和空气首先被混合(在混合区域中)但不发生反应,并且在混合的下游出现“火焰”,这是一个明确定义的大多数或所有燃烧反应都会发生的区域。

[0014] 在EP0195688 A2和EP1403215 A1中,燃烧器中的流体燃料的燃烧分别发生,以产生热烟道气,并且热烟道气被提供给蒸汽重整工艺。

[0015] EP0195688 A2说明其热交换重整工艺和反应器适用于生产相对少量的氢气。这在图2中进一步示出,图2示出单个燃烧器以及同心管的单个组合,因此最大生产能力有限。

[0016] 化学计量的燃料下或者接近化学计量的燃料下的完全燃烧:空气比率将导致极高的流体温度,例如,天然气在没有空气或燃料预热的情况下约为1900-2000°C,除非使用大量过量的空气进行燃烧、添加惰性气体(例如,冷循环烟道气)或使用低热值燃料,这其中的任何情况都会对工艺的整体热效率产生重大不利影响。燃烧空气或燃料的预热将进一步提高燃烧产物的温度。相反,禁止在如此高的燃烧温度下使用流体,除非相邻的工艺流体容纳材料受到可以连续承受这种温度的材料的保护,或者在可以在扩展操作时间段内保持最大设计温度的速率下适当进行冷却。在常规的蒸汽重整管中;这通常限制为1100°C或1100°C左右。

[0017] 另外,EP0195688 A2示出了围绕并限定燃烧室的侧面的陶瓷管的使用。该陶瓷管的温度接近管内燃烧产物的温度,因此大量热量将通过辐射从陶瓷管传递至相邻的工艺流体容纳壁。这是上述对流热传递的补充。该辐射热通量可能大大超过到达接收器表面的对流热通量。

[0018] 在EP0195688 A2中描述了通过用冷却的再循环烟道气进行稀释将热烟道气(燃烧产物)的最高温度调节至1370°C,从而降低重整催化剂的热传递效率和整个工艺的热效率。

[0019] EP1403215 A1在第一重整段中同时使用催化剂和隔热(未加热)床的加热段。固体催化剂包括催化剂颗粒和/或结构化元素形式的催化硬件,其中,催化层由蒸汽重整催化剂构成。催化的结构化元素和/或催化剂粒料被描述为放置在加热段和隔热反应段中的任一位置。

[0020] 在EP1403215 A1的装置中,加热的蒸汽重整单元包括一个不带催化剂的加热段和一个带催化剂的段。这些段在物理上是分开的和不同的。

[0021] 本发明的一个目的是提供一种以蒸汽重整或干重整方法对烃类进行重整的方法和装置,其热效率明显高于先前实现的效率。

[0022] 另一个目的是提供一种烃类的重整装置,其可以完全或基本上预制,因此减少或消除了与现场制造相关的成本。

[0023] 另一个目的是提供一种适于以小规模和大工业规模能力生产重整气体的方法和装置,其可容易地扩展至工业尺寸。

发明内容

[0024] 第一方面,本发明提供一种用于在重整反应器中对烃类进行蒸汽重整或干重整的方法,所述方法包括以下步骤:

[0025] (a) 使原料在升高温度下通过第一催化区,以形成部分重整的工艺气体,所述原料包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂,其中,所述第一催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂;和

[0026] (b) 使所述部分重整的工艺气体在升高温度下通过第二催化区,以形成重整气流,其中,所述第二催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂;

[0027] 其中,所述方法还包括流体燃料和燃烧维持介质在放热燃烧区域中燃烧以形成热燃烧产物流,其中,所述放热燃烧区域邻近并横向围绕各所述第二催化区细长导管,其中,所述流体燃料和所述燃烧维持介质分别进料到所述放热燃烧区域,然后在所述放热燃烧区域内彼此引入;

[0028] 其中,步骤(b)中的提供所述升高温度所用的热量通过从所述放热燃烧区域到所述第二催化区细长导管的热传递直接供给,通过(i)所述燃烧本身和(ii)所述热燃烧产物流的热传递直接供给,所述热传递均通过对流和气体辐射进行;

[0029] 由此,所述热燃烧产物流通过向所述第二催化区细长导管的热传递而冷却,从而形成部分冷却的燃烧产物流;

[0030] 其中,步骤(a)中的提供所述升高温度所用的热量从(i)所述重整气流和(ii)所述部分冷却的燃烧产物流供给到所述第一催化区细长导管;

[0031] 由此,所述重整气流通过向所述第一催化区细长导管的所述热传递而冷却,从而形成冷却的重整气体产物流;和

[0032] 由此,所述部分冷却的燃烧产物流通过向所述第一催化区的所述热传递而冷却,从而形成进一步冷却的燃烧产物流。

[0033] 第二方面,本发明还提供一种装置,适于执行第一方面所述的方法,其中,所述装置包括:

[0034] 壳体,所述壳体包含:

[0035] • 第一催化区,所述第一催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂,并且每个所述细长导管均具有入口和出口,从而在使用中原料能够通过第一催化区细长导管的入口进入所述第一催化区细长导管并在升高温度下通过所述第一催化区细长导管,以形成部分重整的工艺气体,所述部分重整的工艺气体然后能够通过所述细长导管的出口离开,其中,所述原料包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂;

[0036] • 第二催化区,所述第二催化区包括一个或多个细长导管,每个所述细长导管包含重整催化剂,并且每个所述细长导管均具有入口和出口,由此在使用中,来自所述第一催化区的部分重整的工艺气体能够通过第二催化区细长导管的入口进入所述第二催化区细长导管并在升高温度下通过所述第二催化区细长导管,以形成重整气流,所述重整气流然后能够通过所述细长导管的出口离开;

[0037] • 放热燃烧区域,所述放热燃烧区域横向围绕所述第二催化区,其中,所述放热燃烧区域关联于多个燃烧器喷嘴、流体燃料得以提供的燃料入口以及燃烧维持介质得以提供的燃烧维持介质入口,使得在使用中来自所述燃料入口的流体燃料和来自所述燃烧维持介质入口的燃烧维持介质能够经由所述多个燃烧器喷嘴彼此引入,并且所述流体燃料与所述燃烧维持介质在所述放热燃烧区域中燃烧以形成热燃烧产物流,从而在使用中可以经由所述放热燃烧区域从所述热燃烧产物流向所述第二催化区进行热传递;

[0038] • 热回收区域,所述热回收区域在使用中适于在所述热燃烧产物流向所述第二催化区提供热量之后从所述重整气体产物流和所述热燃烧产物流中接收热量,并将热量传递至所述第一催化区;

[0039] • 燃烧产物流出口,所述燃烧产物流在所述热回收区域中失去热量之后能够通过所述燃烧产物流出口离开所述壳体;和

[0040] • 重整气流出口,所述重整气流在所述热回收区域中失去热量之后能够通过所述重整气流出口离开所述壳体。

[0041] 在本发明装置的一优选实施方式中,所述放热燃烧区域横向围绕各所述第二催化区细长导管。在本发明装置的另一优选实施方式中,所述放热燃烧区域直接邻近并横向围绕各所述第二催化区细长导管。

[0042] 第三方面,本发明还提供一种工艺管组件,其适用于根据第一方面的用于对烃类进行蒸汽重整或干重整的方法中,

[0043] 所述工艺管组件包括两个细长同心管(即,有一个内管和一个外管,所述两个管以同心的方式设置,使得它们共享共同的中心轴),

[0044] 其中,所述内管包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,

[0045] 其中,所述外管包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,

[0046] 由此所述第一重整催化剂床和所述第二重整催化剂床串联布置,

[0047] 由此所述内管具有部分重整的气体得以离开所述内管的出口,

[0048] 由此部分重整的气体得以流过的内部导管从所述内管的出口延伸并通过所述第二重整催化剂部分。

[0049] 在一优选实施方式中,所述工艺管组件的两个同心管在纵向上相对于彼此自由独立移动,除了仅在将两个同心管相对于彼此进行固定的位置之外,两个同心管之间没有直接连接或间接连接。因此,所述工艺管组件是细长的工艺管组件,其包括在单个位置直接或间接接合的两个细长同心管,从而允许各同心管彼此自由移动。

[0050] 所述内管和所述外管均是细长的,并且必须同心布置。然而,这些管中的每个管可以具有沿其长度一致的直径,或者可以具有沿其长度不同的直径。同样,这些管中的每个管可以具有沿其长度一致的横截面形状,或者可以具有沿其长度不同的横截面形状。它们可以具有任何合适的横截面形状,例如,圆形。在一实施方式中,两个管沿其各自的长度具有一致的直径,并且每个管具有圆形的横截面。

[0051] 在一实施方式中,所述外管围绕所述内管的大部分或全部。在一实施方式中,所述内管的一部分延伸出所述外管,但是所述内管的大部分位于所述外管内。例如,所述内管的长度的60%或更多,或65%或更多,或70%或更多,或75%或更多,或80%或更多,或85%或更多可以位于所述外管内。因此,所述外管可以看作是套筒,所述内管的大部分都位于该套

筒中。

[0052] 所述内部导管可以适当地位于所述外管内的大致中心处,穿过位于所述外管中的所述第二重整催化剂部分。优选地,所述内部导管沿着所述外管的细长中心轴线延伸。所述第二重整催化剂部分可以围绕所述内部导管周向定位。

[0053] 在一实施方式中,所述内部导管具有与所述内管出口直接连接的入口,因此所述入口可以从所述内管接收部分重整的气体。所述内部导管穿过所述外管中的所述第二重整催化剂部分。所述内部导管具有出口,该出口位于所述第二重整催化剂部分和所述外管的距所述内管最远的端部之间。因此,部分重整的气体在所述外管的距所述内管最远的端部的位置处离开所述内部导管。

[0054] 所述外管、所述内部导管和所述第二重整催化剂部分被配置和布置成使得部分重整的气体离开内部导管的出口,然后改变方向使得部分重整的气体以与其流过所述内部导管的方向相反的方向通过所述第二重整催化剂部分。流过所述第一重整催化剂部分的方向与流过所述内部导管的方向相同。因此,在使用中,所述工艺气体以相反的方向流过第一重整催化剂部分和第二重整催化剂部分。这是有利的,因为它使得燃烧气体能够沿单个方向在工艺管组件的外管外部流动。

[0055] 本发明的工艺管组件的有益之处在于,其管壁不需要任何绝缘即可有效发挥作用。

[0056] 第三方面的所述工艺管组件可以存在于第二方面的所述装置中。就这一点而言,所述第一重整催化剂部分是所述第一催化区的一部分,所述第二重整催化剂部分是所述第二催化区的一部分,并且穿过所述第二重整催化剂部分的所述内部导管将部分重整的气体从所述第一重整催化剂床的出口提供到所述第二重整催化剂床的入口。

[0057] 在一优选实施方式中,第二方面的装置中设置了两个或更多个第三方面的所述细长工艺管组件,例如,三个或更多个、或者四个或更多个、或者五个或更多个、或者六个或更多个。第二方面的装置中可以设置10个或更多个、或者50个或更多个、或者100个或更多个细长重整组件。本发明的益处在于其易于扩展,因此可以用任何所需数量的组件来操作,以满足所述重整装置的输出需求。因此,在一实施方式中,第二方面的所述装置中可以设置250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个细长重整组件。

[0058] 所述工艺管组件可以从顶部的单个位置直接或间接地支撑,其中,该组件在其自重的作用下自由地向下伸展。

[0059] 使组件中的所述内管和外管在顶部的单个位置处共同接合是有益的。这使得管的重量和催化剂的重量起到拉伸管的作用。两个管都处于拉伸状态(与在压缩状态下相比)使管不太可能横向变形。

[0060] 所述工艺管组件可以设置单个入口和单个出口,并且入口和出口均可以在所述组件的同一段。因此,在另一端不需要连接。所有连接都在顶端(最靠近所述第一催化区的一端)并且底端(最靠近所述第二催化区的一端)没有连接是有利的,因为如果底端需要连接(例如,尾纤),则这些连接需要设计成在装置从冷到热时允许明显的变形。

[0061] 本发明的所述工艺管组件也是有利的,因为其有利于在相对于所述管组件外部的压力更高的内部压力下(即正压差)操作所述内管和所述外管。这意味着管壁处于拉伸状

态,这在机械上是期望的。诸如以上在EP0195688 A2中讨论的那些现有设计必然导致一些管在负压差下操作,即,管壁处于压缩状态,这可能是不期望的。

[0062] 所述细长工艺管组件独立于所述燃烧器喷嘴。所述工艺管组件可以不受约束并且可以自由地垂直移动以共同和单独地适应热膨胀和收缩。

[0063] 第三方面的工艺管组件可以设置在容器中。第四方面,提供了一种工艺管系统,其包括包含两个或更多个(例如,3个或更多个、或者4个或更多个、或者5个或更多个、或者6个或更多个)根据第三方面的工艺管组件的容器。所述容器中可以设置10个或更多个、或者50个或更多个、或者100个或更多个细长重整组件。本发明的益处在于其易于扩展,因此可以用任何所需数量的组件来操作,以满足重整装置的输出需求。因此,在一实施方式中,所述容器中可以设置250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个细长重整组件。

[0064] 尽管第三方面的所述工艺管组件可以在根据第一方面的方法中使用,并且可以是根据第二方面的装置的一部分,但这不是必需的。

[0065] 可以理解,所述工艺管组件可以在如第一方面和第二方面所限定的方法和装置中使用,该方法和装置不涉及燃烧器喷嘴和燃烧区域布置。加热所述工艺管组件中的催化剂所需的热气可以在远离组件的位置(组件上游)产生。因此,在一实施方式中,所述工艺管组件被用于不根据第一方面的方法中,或者被提供在不根据第二方面的装置中,但是其中设置了用于将热的加热气体进料到组件的装置。

[0066] 在以下公开内容中,除非上下文或措辞清楚地另外指出,否则所有优选/可选特征和实施方式均涉及本发明的方法和装置以及工艺管组件中的每一个。

[0067] 此外,除非上下文或措辞另有指示,否则所有优选/可选特征和实施方式可以单独使用或组合使用。

[0068] 与常规方法和装置相比,本发明的方法和装置能够更有效地对烃类进行重整。

[0069] 具体地,本发明通过使用热重整气体产物流和热燃烧产物流直接向所述第一催化区提供热量,从而最大限度地利用了这些流中所含的废热,来进行原料的附加重整(蒸汽重整或干重整)。这与传统方法不同,传统方法是使用重整气体的废热来产生蒸汽,并使用高温燃烧产物的废热来给工艺流提供额外的预热。这种新方法减少了完成重整过程所需的能量,从而减少了相关的燃料消耗。因此,可以实现高的热效率。

[0070] 本发明的另一个优点是该装置易于扩展,因此该方法和装置可以根据需要小规模或大规模使用。所述第一催化区和所述第二催化区中可以设置任何期望数量的细长导管。

[0071] 应当理解,所述燃烧区域横向围绕每个第二催化区细长导管。因此,当存在多个导管时,存在围绕各所述第二催化区细长导管横向延伸的燃烧区域。因此,在整个单个燃烧区域中,传热表面积最大化。

[0072] 使用关联于多个燃烧器喷嘴的放热燃烧区域、流体燃料得以提供的燃料入口以及燃烧维持介质得以提供的燃烧维持介质入口是有益的,因为这意味着流体燃料和燃烧维持介质可以经由所述多个燃烧器喷嘴彼此引入,并且流体燃料与燃烧维持介质可以在放热燃烧区域中燃烧,以形成热燃烧产物流。

[0073] 具有多个燃烧器喷嘴和横向围绕所述(或每个)第二催化区细长导管的放热燃烧区域是有益的。热量以有效的方式提供给所述第二催化区。每个燃烧器喷嘴可向一个以上

第二催化区细长导管供给热量。该设计还易于扩展。

[0074] 在一优选实施方式中,燃烧器喷嘴的数量大于第二催化区细长导管的数量。

[0075] 在本发明的方法中,提供步骤(b)中的升高温度所用的热量通过从(i)燃烧本身;和(ii)热燃烧产物流的热传递,从所述放热燃烧区域供给到所述第二催化区。进一步地,热传递均通过对流和气体辐射进行。

[0076] 在本发明中,热量由燃烧区域提供,其中,燃烧维持介质和流体燃料进行燃烧。

[0077] 在本发明的方法中,提供步骤(b)中的升高温度所用的热量通过从(i)燃烧本身;和(ii)热燃烧产物流的热传递从邻近且横向围绕的放热燃烧区域直接供给到所述第二催化区,热传递均通过对流和气体辐射进行。

[0078] 因此,在本发明的方法中,热量不仅通过燃烧产物传递,而且通过燃烧产物的前体、加热的燃料、加热的燃烧空气和在燃烧过程中形成的部分燃烧的物质传递。热传递通过气体辐射和流动气体的对流进行。在燃烧过程中,热量被移除到所述第二催化区中,这在有限体积中发生。

[0079] 这种布置意味着与在任何热传递之前已经进行完全燃烧(即包括烟气产物的总热传递)相比,燃烧产物的峰值温度得到调节,如EP0195688 A2中所述。所述第二催化区细长导管内的流动工艺气体以及其中的吸热反应在燃烧过程中直接吸收和传递热量。这意味着第二催化区中的导管壁温度可以保持在可接受的机械设计限值内。无需在非常高的温度下传递和分配热燃烧产物。

[0080] 在本发明的装置的一优选实施方式中,多个燃烧器喷嘴、燃料入口和燃烧维持介质入口相对于所述第二催化区布置成使得在使用中通过以下方式可能存在所述放热燃烧区域到第二催化区的直接热传递:(i)燃烧本身和(ii)热燃烧产物流的热传递,该热传递均通过对流和气体辐射进行。适当地,该装置配置和布置成使得放热燃烧区域横向围绕并且直接邻近所述第二催化区细长导管。

[0081] 在一优选实施方式中,每个包含重整催化剂的细长导管仅具有单个容纳壁,目的是将热量从热源传递至导管中的重整催化剂。

[0082] 在一优选实施方式中,所述第一催化区中包含重整催化剂的细长导管通过单个容纳壁直接以对流方式仅从所述重整气流接收热量。在一优选实施方式中,所述第二催化区中包含重整催化剂的细长导管仅直接从燃烧产物接收热量。

[0083] 在一实施方式中,存在多个第二催化区细长导管。

[0084] 在一实施方式中,所述燃烧器喷嘴和所述第二催化区细长导管布置成使得每个燃烧器喷嘴向多个细长导管提供热量。

[0085] 在一优选实施方式中,所述第二催化区细长导管和所述燃烧器喷嘴以规则阵列布置,正交于所述燃烧产物流和所述原料的流动。

[0086] 本发明的方法或装置涉及使用工艺管组件,该工艺管组件包括第一催化区细长导管和第二催化区细长导管。因此,单个组件提供(a)第一催化区和(b)第二催化区,其中,所述第一催化区包括具有入口和出口并且包含重整催化剂的细长导管,所述第二催化区包括具有入口和出口并且包含重整催化剂的细长导管。在所述工艺管组件中,所述第一催化区细长导管和所述第二催化区细长导管适当地在纵向上彼此对准。因此,所述工艺管组件可以是细长的,并且其中心纵轴可以对应于所述第一催化区细长导管的中心纵轴和所述第二

催化区细长导管的中心纵轴。

[0087] 在一实施方式中,本发明使用一个或多个这样的工艺管组件,具体地,所述装置的壳体可以包含一个或多个这样的工艺管组件。

[0088] 在一实施方式中,每个工艺管组件包括两个同心管,每个内管包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,每个外管包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,第一重整催化剂部分和第二重整催化剂部分串联布置,由此内部导管穿过第二重整催化剂部分,目的是将部分重整的气体从第一重整催化剂床的出口向第二重整催化剂床的入口提供。所述第一重整催化剂部分是所述第一催化区的一部分,所述第二重整催化剂部分是所述第二催化区的一部分。

[0089] 因此,在一实施方式中,本发明的方法或装置涉及使用根据本发明第三方面的工艺管组件。

[0090] 在一优选实施方式中,两个同心管的位置相对于彼此固定在单个位置,但是它们可以相对于彼此自由移动。这些管可以直接或间接固定。

[0091] 本发明的装置根据其工作方式可以描述为双对流重整器(Double Convective Reformer, DCR)。

[0092] 本发明的特定有益特征是:

[0093] 1、本发明的方法由此提供反应产物的高等级废热来进行大部分的蒸汽重整或干重整反应,整个装置被赋予很高的热效率。

[0094] 2、在本发明的方法中,使用重整气体的高等级废热来进行大部分的蒸汽重整反应消除了产生蒸汽的需要。在传统的蒸汽重整设备中,通常会输出正常过量的蒸汽。另外,蒸汽输出通常包括在蒸汽重整设备的规定总体能效中,无论是否以有用或高效的方式使用。

[0095] 3、由于以下一项或多项原因,本发明装置的特定投资成本(即产生单位合成气的成本)较低:每个细长导管组件的吞吐量较高以及细长导管组件的间隔较近的能力、通过催化剂的高空速能力、细长导管组件的机械简单性、具有薄壁导管的能力以及所需的装置不需要现场制造。

[0096] 4、与传统的蒸汽重整器相比,装置的重量轻导致热惯性显著降低-意味着启动和关闭的速度更快且成本更低。

[0097] 5、本发明装置的容量范围大,并且位置上不特定。不需要进行现场制造,并且装置容量仅受容器制造或运输尺寸的限制。例如,单个直径为5m的重整器能够产生足够的合成气,以每天生产多达2400公吨的甲醇或每小时生产210000Nm³的纯氢。使用单个细长导管(工艺管)组件的操作特别适合于小批量生产。

[0098] 6、本发明可以在使用传统烃蒸汽重整器的任何地方使用,包括合成气、氢气、氨气、甲醇、费-托合成液和二甲醚的生产。

[0099] 另外,本发明的装置在设计和构造方面很简单,并且可以具有以下机械特征:

[0100] • 所述装置可以包括细长工艺管组件,该工艺管组件包括两个在单个位置直接或间接连接的同心管,从而使得每个同心管能够彼此自由移动。

[0101] • 所述组件内或所述组件周围不需要密封件或热膨胀装置(例如,波纹管)来解决其中的垂直差异膨胀。

[0102] • 每个细长工艺管组件均可以从顶部的单个位置直接或间接地支撑,该组件在其

自重作用下自由向下拉伸。

[0103] • 单个入口和单个出口可以同时设置在每个细长工艺管组件的同一段。另一端不需要连接。所有连接都在顶端(最靠近所述第一催化区的一端)并且底端(最靠近所述第二催化区的一端)没有连接是有利的,因为如果底端需要连接(例如,尾纤(pigtail)),则这些连接需要设计成在装置从冷到热时允许明显的变形。

[0104] • 细长工艺管组件独立于燃烧器喷嘴。工艺管组件可以不受约束并且可以自由地垂直移动以共同和单独地适应热膨胀和收缩。

[0105] 同样,本发明的工艺管组件在设计和构造方面很简单,并且可以具有以下机械特征:

[0106] • 所述工艺管组件包括两个同心管,它们可以在单个位置直接或间接连接,从而使得每个同心管能够彼此自由移动。

[0107] • 所述组件内或组件周围不需要密封件或热膨胀装置(例如,波纹管)来解决其中的垂直差异膨胀。

[0108] • 在使用中,每个工艺管组件均可以从顶部的单个位置直接或间接地支撑,该组件在其自重的作用下自由向下拉伸。

[0109] • 单个入口和单个出口可以同时设置在每个工艺管组件的同一段。另一端不需要连接。所有连接都在顶端(使用中最靠近所述第一催化区的一端),并且底端(使用中最靠近所述第二催化区的一端)没有连接是有利的,因为如果底端需要连接(例如,尾纤),则这些连接需要设计成在装置从冷到热时允许明显的变形。

[0110] • 在使用中,所述工艺管组件独立于所述燃烧器喷嘴。所述工艺管组件可以不受约束并且可以自由地垂直移动以共同和单独地适应热膨胀和收缩。

[0111] 特别有益的是,在本发明中,通过在燃烧区域内使用燃烧器喷嘴,而不是在重整段上游进行完全的燃料燃烧,可以将大量废热以实用的方式用于附加重整,而不受温度的限制。消除了由于高温燃烧产物而引起的过高温(通常 $>1900^{\circ}\text{C}$)和管布置上游端的热传递。

[0112] 本发明还提供了一种实用装置,用于在简单、坚固的机械装置中容纳催化剂部分、布置流量并管理热传递。

附图说明

[0113] 图1是示出本发明中的工艺流和热流的图。

[0114] 图2A是根据本发明的第一装置的示意图。

[0115] 图2B是根据本发明的第二装置的示意图。

[0116] 图3A示出了根据本发明的装置的第一配置。

[0117] 图3B示出了根据本发明的装置的第二配置。

[0118] 图4是图3A和图3B所示的装置沿线“A”-“A”截取的局部剖视图。这提供了装置的热回收区域的局部剖视图。

[0119] 图5示出了根据本发明的装置集成到合适的蒸汽重整系统中。

[0120] 图6A和图6B示出了根据本发明的装置内的燃烧器喷嘴和细长导管的两种可能的布置。

[0121] 图7是示出了使用本发明第三方面的工艺管组件而不需要第一方面和第二方面中

存在的燃烧器喷嘴/燃烧区域的示意图。

具体实施方式

[0122] 本发明的方法使用技术特征的新颖组合来实现流体燃料与空气的近化学计量燃烧中固有的高温。所要求保护的组合的技术益处先前未被认识到。

[0123] 在该方法中,燃烧空气(或其它燃烧维持介质,例如,氧气和CO₂的混合物)和流体燃料单独进料到燃烧区域,该燃烧区域中还包含并且自始至终包含导管,该导管包含第二重整催化剂。燃烧空气(或其它燃烧维持介质)和燃料通过燃烧区域内的一个或多个燃烧器喷嘴进行燃烧。

[0124] 在燃烧过程中,可以适当地将热量同时并且直接移除到包含工艺气体和第二催化剂的相邻导管中,即,热量不仅通过“烟道气”(即燃烧产物)单独传递,而且还通过其前体、加热的燃料、加热的燃烧空气和燃烧过程中形成的部分燃烧的物质传递。热传递通过流动气体的辐射和对流进行。

[0125] 在一优选实施方式中,燃烧在一定温度下使用空气或其它燃烧维持介质在燃烧区域中进行,该温度使得流体燃料与燃烧维持介质(例如,燃烧空气)自燃。因此,燃烧可以通过湍流扩散火焰机制(turbulent diffusion flame mechanism)实现。完全燃烧可能在燃料/空气混合长度上发生,该长度使燃烧热量同时移除到第二催化剂体积的工艺气体中,而又不超过适度和典型的导管设计温度。

[0126] 通过使燃烧布置成在自燃温度以上发生,就没有火焰或火焰前锋。燃烧由“混合即燃烧(mixed is burnt)”模型定义,通过该模型,一旦燃料或部分燃烧的燃料与燃烧维持介质混合,便会立即发生燃烧。因此,发生燃烧的位置,特别是下游长度的位置,由燃料和燃烧维持介质的混合速率确定。在设计上,可以通过调节确定混合速率的燃料和燃烧维持介质的相对和绝对速度,在一定范围内对此进行控制。例如,燃料与燃烧维持介质之间的高差速往往导致混合区较短并向相邻的工艺管提供较高的局部热通量。通过降低差速可以实现具有较低通量的较长轮廓。

[0127] 本发明的装置被设计用于生产小规模和大工业规模的重整气体。它能够利用装置内的多个燃烧器喷嘴,并且能够利用多个细长导管(工艺管)。在一实施方式中,每个第二催化区细长导管可以具有大约一个燃烧器喷嘴,并且在另一实施方式中,每个第二催化区细长导管可以具有一个以上的燃烧器喷嘴,例如,每个第二催化区细长导管具有两个或更多个燃烧器喷嘴。

[0128] 这些特征对于能够构建具有工业生产能力和具有高热效率的实用装置很重要。

[0129] 由于本发明独特的机械结构和高热效率,通过该方法可以容易地获得重整气体和燃烧产物,其出口温度分别低于500°C和600°C,更优选分别低于480°C和550°C。

[0130] 具体地,重整气体产物流可能在500°C或更低的温度下离开装置,例如,490°C或更低,或者480°C或更低,例如,300~500°C或450~490°C或400~480°C。

[0131] 燃烧产物流可能在600°C或更低的温度下离开装置,例如,575°C或更低,或者550°C或更低,例如,350~600°C或425~575°C或450~550°C。

[0132] 然而,上述值是示例性的而不是限制性的。如果需要更高的重整气体出口温度和/或更高的燃烧产物出口温度,则技术人员应理解,这些可以通过设计来调节。

[0133] 在一优选实施方式中,第一催化区细长导管和第二催化区细长导管纵向对齐以形成细长重整组件。可能只有单个包含一个或多个这种细长重整组件的容器。第一催化区细长导管和第二催化区细长导管相对于彼此的位置可能固定在单个位置上,通过导管彼此直接附接或者由于存在附加部件而间接附接,这些附加部件将导管的位置固定在一个位置上。

[0134] 在一优选实施方式中,第一催化区细长导管直接或间接附接到第二催化区细长导管以形成细长重整组件。可能只有单个包含一个或多个这种细长重整组件的容器。

[0135] 在一实施方式中,容器中设置单个细长重整组件。在一优选实施方式中,容器中设置两个或更多个细长重整组件,例如,三个或更多个、或者四个或更多个、或者五个或更多个、或者六个或更多个。容器中可以设置10个或更多个、或者50个或更多个、或者100个或更多个细长重整组件。

[0136] 本发明的益处在于其易于扩展,因此可以用任何所需数量的组件来操作,以满足重整装置的输出需求。因此,在一实施方式中,容器中可以设置250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个细长重整组件。

[0137] 第一催化区

[0138] 本发明包括第一催化区,在第一催化区中,将包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂的原料转化为部分重整的工艺气体。这在升高温度下并且在催化剂的存在下进行。

[0139] 当原料进入第一催化区时,优选其温度为500°C或更低,例如,450°C或更低,或者400°C或更低,例如,300~450°C或325~400°C或350~400°C。

[0140] 原料中的一种或多种烃类可以以任何适于进行蒸汽重整或干重整的合适的烃产物的形式提供。非限制性实例是天然气、LPG(Liquefied Petroleum Gas,液化石油气)、石脑油、煤油、炼厂尾气、沼气和甲醇或其任一组合。

[0141] 在一实施方式中,原料在到达第一催化区之前通过预重整器进行进料。因此,预重整器在第一催化区的上游和外部。预重整器是本领域已知的。预重整器的作用是去除比甲烷重的组分。这用于避免在第一催化区中低温下的热裂解造成的胶质形成或碳沉积。预重整器还将适当地去除痕量的污染物,例如,硫和氯,否则这些污染物将慢慢污染重整催化剂。

[0142] 第一催化区包括细长导管,其包含重整催化剂。重整催化剂可以以催化剂床的形式提供。细长导管具有原料入口,使得包含一种或多种烃类以及蒸汽和/或CO₂的原料可以进入导管中并与催化剂接触。

[0143] 可以存在任何合适数量的第一催化区细长导管,例如,两个或更多个、或者三个或更多个、或者四个或更多个、或者十个或更多个、或者15个或更多个、或者20个或更多个、或者50个或更多个、或者100个或更多个。在一实施方式中,可以存在250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个。当存在两个或更多个细长导管时,这些导管可以适当地彼此平行。它们可以规则阵列布置。在一实施方式中,细长导管彼此平行,并以重复的三角形或正方形阵列布置。

[0144] 在一实施方式中,存在多个第一催化区细长导管,并且所有导管的原料作为单个原料流一起进入装置壳体。可能存在单个组合的原料入口,该入口从装置壳体外部延伸到装置壳体内部的腔室或气室。然后,腔室或气室具有多个出口,每个出口是其中一个第一催

化区细长导管的原料入口。

[0145] 或者,可以存在多个第一催化区细长导管,并且所有导管的原料都通过多个原料入口(例如,2个或4个原料入口)进入装置壳体。入口可以间隔开,例如,装置的每一侧可能存在1个或2个原料入口。原料入口可以从装置壳体外部延伸到装置壳体内部的腔室或气室。然后,腔室或气室具有多个出口,每个出口是一个第一催化区细长导管的原料入口。

[0146] 当存在多个细长导管时,本发明可能使用现有技术中已知的“母管支管(header and lateral)”系统来提供原料。因此,来自装置壳体外部的原料流可以进料到装置壳体内部的多个管或管道(母管)中,然后再进料到装置内的将原料提供给多个细长导管的多个较小的管(支管)中。因此,原料通过“母管支管”系统从装置壳体外部的的位置流向多个细长导管。

[0147] 原料通过细长导管,并且在升高温度下与催化剂接触导致形成部分重整的工艺气体。换言之,在第一催化区中,重整过程已部分进行,但尚未完成。例如,在原料包含天然气的情况下,可能是部分但不是全部的甲烷已被转化,并且基本上所有的高级烃已被转化为氢和碳的氧化物。

[0148] 然后,在第一催化区细长导管内形成的部分重整的工艺气体通过出气口离开导管。

[0149] 本发明的关键特征在于,提供第一催化区中升高温度所用的热量从:(i)部分冷却的燃烧产物流和(ii)重整气流供给到第一催化区。这些热源稍后将在本申请中更详细地描述。

[0150] 在一实施方式中,热量被提供给第一催化区,以使部分重整的工艺气体在650°C或更高温度下,例如,700°C或更高温度下,或者750°C或更高温度下,例如,650~900°C或700~850°C或750~800°C,离开第一催化区。

[0151] 就使本发明方法中发生的重整总量最大化而言,这样高的中间温度是有利的。

[0152] 第二催化区

[0153] 本发明包括第二催化区,在第二催化区中,第一催化区内形成的部分重整的工艺气体被转化为重整气流。这在升高温度下并且在催化剂的存在下进行。

[0154] 优选地,部分重整的工艺气体在650°C或更高温度下例如,700°C或更高温度下或者750°C或更高温度下,例如,650~900°C或700~850°C或750~800°C,进入第二催化区。就使本发明方法中发生的重整总量最大化而言,这是有益的。

[0155] 第二催化区包括包含重整催化剂的细长导管。重整催化剂可以以催化剂床的形式提供。第二催化区细长导管具有部分重整的气体入口,使得来自第一催化区的部分重整的工艺气体可以进入导管中并与催化剂接触。可以存在任何合适数量的第二催化区细长导管,例如,两个或更多个、或者三个或更多个、或者四个或更多个、或者十个或更多个,例如,50个或更多个、或者100个或更多。在一实施方式中,可以存在250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个。当存在两个或更多个第二催化区细长导管时,这些导管可以适当地彼此平行。它们可以规则阵列布置。在一实施方式中,细长导管彼此平行,并以重复的三角形或正方形阵列布置。

[0156] 部分重整的工艺气体通过第二催化区细长导管,并且在升高温度下与催化剂接触从而形成重整气流。换言之,在第二催化区中,重整过程接近完成。

[0157] 技术人员应理解,在实践中,重整过程永远不会完全完成-始终存在“接近平衡”。

因此,本发明不需要重整过程完成,而是在第二催化区中,该方法可以实现具有期望的甲烷浓度的重整气流。

[0158] 在第二催化区中发生的重整使得重整的气流具有如下组成:例如,就 H_2 含量而言,该组成使其成为有用的最终产品。

[0159] 然后,在第二催化区细长导管内形成的重整气流通过出气口离开导管。该重整的气流是热的,并传递至热交换区,热量在该热交换区被传递至第一催化区。

[0160] 本发明的关键特征在于,热量从在第二催化区周围横向延伸的放热燃烧区域提供给第二催化区,其中,热量通过流体燃料和燃烧维持介质进行燃烧在燃烧区域中产生。

[0161] 本发明的方法要求第二催化区中提供升高温度所用的热量从邻近第二催化区并在其周围横向延伸的放热燃烧区供给。该热量通过从(i)燃烧本身;和(ii)燃烧产物流的热传递供给,该热传递均通过对流和气体辐射进行。

[0162] 这些热源稍后将在本申请中更详细地描述。

[0163] 在一实施方式中,热量被提供给第二催化区,以使重整气流在 $750^{\circ}C$ 或更高温度下,例如, $800^{\circ}C$ 或更高温度下或者 $850^{\circ}C$ 或更高温度下,例如, $900^{\circ}C$ 或更高温度下或者 $950^{\circ}C$ 或更高温度下,例如, $750^{\circ}C \sim 1100^{\circ}C$ 或 $800^{\circ}C \sim 1100^{\circ}C$ 或 $850^{\circ}C \sim 1050^{\circ}C$ 或 $900 \sim 1050^{\circ}C$ 或 $950 \sim 1000^{\circ}C$,离开第二催化区。

[0164] 燃烧区域

[0165] 本发明的关键特征是使用燃烧区域,在燃烧区域中,流体燃料和燃烧维持介质进行燃烧,从而产生热量。

[0166] 热量不仅可以通过燃烧的最终产物进行传递,还可以通过其前体、加热的燃料、加热的燃烧空气和燃烧过程中形成的部分燃烧的物质进行传递。

[0167] 具体地,本发明涉及流体燃料和燃烧维持介质在放热燃烧区域中燃烧以形成燃烧产物流。放热燃烧区域横向围绕第二催化区中每个细长导管。

[0168] 流体燃料和燃烧维持介质分别进料到放热燃烧区域,然后在放热燃烧区域内彼此引入,例如,通过一个或多个,特别是多个燃烧器喷嘴。燃烧器喷嘴可以将燃料分配到燃烧维持介质中,或者可以将燃烧维持介质分配到燃料中,优选前者。

[0169] 因此,明显地,燃烧发生在重整过程中。优选地,这直接在形成重整气流的第二催化区旁边并与其平行发生。因此,在一实施方式中,布置一个或多个燃烧器喷嘴,以引导燃料和燃烧维持介质基本平行于第二催化区细长导管。

[0170] 因此,原位产生用于支持吸热重整反应的热量。其直接从放热燃烧区域传递至第二催化区。

[0171] 在本发明的方法中,用于支持吸热重整反应的热量并非仅由燃烧产物(例如,烟道气)提供。相反,第二催化区中的提供重整反应所需的升高温度所用的热量通过从:(i)燃烧本身;和(ii)燃烧产物流两者的热传递供给。此外,该热量通过对流和气体辐射来提供。

[0172] 本发明的装置包括多个燃烧器喷嘴。多个是指两个或更多个,例如,三个或更多个、或者四个或更多个、或者五个或更多个、或者六个或更多个,例如,10个或更多个、或者50个或更多个、或者100个或更多个。在一实施方式中,可以存在250个或更多个、或者500个或更多个、或者750个或更多个、或者1000个或更多个、或者2000个或更多个。

[0173] 在一实施方式中,流体燃料和燃烧维持介质在放热燃烧区域内经由两个或更多个

燃烧器喷嘴彼此引入,并且燃烧器喷嘴的总数大于第二催化区中的细长导管的数量。

[0174] 在一优选实施方式中,第二催化区中的每个细长导管都提供有来自一个或多个燃烧器喷嘴的一部分热量,优选来自两个或更多个燃烧器喷嘴,更优选来自三个或更多个燃烧器喷嘴、或者四个或更多个燃烧器喷嘴。优选地,细长导管首先从围绕其外周的两个或更多个不同的燃烧器喷嘴接收放热燃烧区的热量,例如,三个或更多个、或者四个或更多个不同的燃烧器喷嘴。

[0175] 在一优选实施方式中,本发明使用一种方法,该方法利用流体燃料与空气或其它燃烧维持介质的接近化学计量的燃烧所固有的高温。

[0176] 在一优选实施方式中,空气作为燃烧维持介质与流体燃料单独进料到燃烧区域,该燃烧区域中还包含并且自始至终包含细长导管(管),所述细长导管包含第二重整催化剂。这些含有第二重整催化剂的导管(管)形成第二催化区。燃烧空气和燃料通过燃烧区内的一个或多个燃烧器喷嘴进行燃烧。在燃烧过程中,热量被同时且直接移除到包含工艺气体和第二重整催化剂的相邻导管中,这发生在有限体积中。换言之,热量不仅通过燃烧产物单独传递,而且还通过燃烧产物的前体、加热的燃料、加热的燃烧空气和燃烧过程中形成的部分燃烧的物质传递。热传递通过流动气体的气体辐射和对流进行。导管和催化剂中的流动工艺气体以及其中的吸热反应吸收热量并传递热量,从而将管壁温度降低到可接受的机械设计极限内。

[0177] 本发明的益处在于,与在任何热传递(冷却)之前进行完全燃烧相比,即此后进行总热传递,燃烧产物的峰值温度得到调节。

[0178] 本发明的装置消除了工艺管(细长导管)的上游传递和分配热的高温燃烧产物的需要,该温度通常超过2000°C,这将带来相关的耐火完整性较低且成本增加的实际困难。

[0179] 本发明的燃烧维持介质的分配可限于燃料和燃烧维持介质自燃所需的温度,该温度通常低于650°C。

[0180] 对于给定的重整气体出口温度,燃烧产物的较高入口温度将导致工艺管(细长导管)热端处的工艺管壁温度更高,因此需要提高管设计温度或降低部分重整的气体的温度,从而会降低整个过程的效率。因此,有利的是,本发明允许使用不具有这种高温的燃烧产物或燃烧维持介质进气。

[0181] 为了最小化工艺管(细长导管)的传热表面积,有必要在最大程度上使从燃烧到工艺流体的热通量最大化。这通过以化学计量比或接近化学计量比进行燃料和空气的燃烧而无需稀释而实现。这给出了燃料/空气混合物的最高燃烧温度和最高的热效率。

[0182] 因此,在一优选实施方式中,燃料和燃烧维持介质(例如,空气)的燃烧在没有稀释的情况下以化学计量比或接近化学计量比进行。

[0183] 在一优选实施方式中,燃烧使用部分预热的空气在一定温度下发生在燃烧区域中,该温度使得流体燃料与燃烧空气一起自燃。燃烧通过湍流扩散火焰机制适当地实现。

[0184] 在一优选实施方式中,总燃烧发生在燃料/空气混合长度上,该长度允许燃烧热量同时被移除到第二催化区中,同时不超过适度和典型的导管设计温度。

[0185] 本发明的高热效率意味着在整个过程中,除了为其它需求提供热量,例如,为重整器进料提供蒸汽,预热脱硫原料以及预热预重整原料,可能没有足够的废热来将燃烧维持介质(通常是燃烧空气)预热,例如,达到确保燃烧区域内燃料/空气混合物自燃所需的温

度。因此,如果要对燃烧维持介质进行预热,则可能需要外部供热。

[0186] 预热燃烧维持介质仍然是优选的。因此,在一实施方式中,通过以下方式提供预热的燃烧维持介质(例如,预热的空气):

[0187] • 利用来自另一来源的热空气,例如,燃气轮机空气压缩机;

[0188] • 使用外部废热进行间接加热

[0189] • 重整器上游的燃料燃烧产生的直接加热,

[0190] 或其中两个或多个的组合。

[0191] 在一实施方式中,基于使用废热进行的间接加热和通过本发明方法中在燃烧器喷嘴上游的燃烧空气供应中使用的全部燃料中的一部分燃烧产生的直接加热的组合,提供预热的燃烧维持介质,该燃烧器喷嘴位于重整器的燃烧区域中。直接加热可以通过重整装置内或重整装置上游的一个或多个单独的燃烧器喷嘴进行。

[0192] 在一实施方式中,设置一种启动燃烧器,以在预热装置暂时关闭期间预热燃烧维持介质并从冷状态加热装置或在装置内维持合适的温度。该启动燃烧器可以设置在重整装置内或重整装置上游。

[0193] 适当地,启动燃烧器可以连续地运行,以提供燃烧维持介质所需的部分或全部预热。

[0194] 在一优选实施方式中,燃烧维持介质被预热到400°C或更高温度、或者500°C或更高温度、或者600°C或更高温度,例如,500~800°C或600~750°C,例如,约650°C。因此,燃烧维持介质在这种升高(预热的)温度下适当地提供给燃烧区域。

[0195] 为了使过程的热效率最大化,可以以预热形式将燃料气体形式的流体燃料有效地供给到燃烧区域(只要温度仍低于燃料会发生裂化或降解的温度即可)。如果需要,燃料气体温度的升高允许燃烧维持介质温度的降低,同时仍保持自燃。

[0196] 因此,在一实施方式中,使用预热的燃料可能非常有用,该燃料的温度高达400°C,例如,100~400°C、或200~400°C、或300~400°C、或350~400°C,例如,大约380°C。

[0197] 镍基蒸汽重整催化剂可能会被含硫化合物污染。因此,在蒸汽重整或干重整之前,通常将原料烃中的任何此类化合物去除至低水平,以获得脱硫的烃原料。如本领域中已知的,这通过使用脱硫单元来实现。这种单元可以,例如,使用加氢脱硫催化剂和硫化氢吸附剂(如氧化锌)的组合。因此,在一实施方式中,原料的一种或多种烃类在它们到达第一催化区之前,优选在它们到达位于第一催化区上游的预重整器之前,通过脱硫单元进料。

[0198] 可能是在添加蒸汽/ CO_2 之前,从该脱硫的烃原料中提取了一部分,并将其作为天然气燃料提供给燃烧区域。该预热的天然气燃料的温度可能高达400°C,例如,200~400°C或300~400°C,例如,350~400°C,例如,约380°C。

[0199] 当使用预重整器时,这可以进一步去除在脱硫单元处理后留下的痕量硫。

[0200] 当在下游进行燃烧产物的处理时,例如,当使用 CO_2 捕获时,燃料的脱硫可能是有益的。

[0201] 通过以化学计量的空气/燃料比操作来实现本发明的最高热效率。但是,本发明被设计成能够在燃烧产物中的氧气浓度为0.5%的情况下操作。

[0202] 应注意,燃烧空气或燃料的任何分配不均都会导致低于设计(化学计量)燃烧产物的温度,从而低于设计壁的温度。任何分配不均都会通过下游燃烧产物中氧气和/或 CO 浓度

的升高而观察到。

[0203] 在一实施方式中,重整装置的出口处的燃烧产物包含 $<2\% \text{mol}$,优选 $<1\% \text{mol}$,更优选 $<0.5\% \text{mol}$ 的氧。

[0204] 为了使重整过程的热效率最大化并且使装置内的传热表面积最小化,燃烧应尽可能接近化学计量比。

[0205] 接近化学计量比的操作需要将燃料和燃烧空气充分分配到燃烧区域。分配气体的方法是众所周知的,并且可以采用任何合适的装置。

[0206] 在燃烧区域中产生并到达热传递区域的燃烧产物的温度适当地为 1500°C 或更低,例如, 1400°C 或更低,例如, 1250°C 或更低。在一实施方式中,燃烧区域出口处的燃烧产物的温度为 $750 \sim 1500^{\circ}\text{C}$,例如, $800 \sim 1400^{\circ}\text{C}$,例如, $900 \sim 1250^{\circ}\text{C}$ 。

[0207] 在一实施方式中,在燃烧区域中产生并到达热传递区域的燃烧产物的温度为 1300°C 或更低,例如, 1100°C 或更低。在一实施方式中,在燃烧区域出口处的燃烧产物的温度为 $850 \sim 1500^{\circ}\text{C}$,例如, $950 \sim 1300^{\circ}\text{C}$,例如, $1000 \sim 1100^{\circ}\text{C}$ 。

[0208] 在一实施方式中,重整气流(当其离开第二催化区时)与燃烧产物流(在燃烧区域的出口处)之间的温差为 $50 \sim 250^{\circ}\text{C}$ 或 $50 \sim 200^{\circ}\text{C}$;特别是 $75 \sim 150^{\circ}\text{C}$ 。

[0209] 重整气体与燃烧产物之间的较高温差导致热效率降低,但表面积和成本降低,而重整气体与燃烧产物之间的较低温差导致相反的情况。技术人员应理解,选择合适的温差是优化工作,并且可以根据该过程的期望性质来选择。

[0210] 细长导管和燃烧器喷嘴的布置

[0211] 如上所述,放热燃烧区域邻近第二催化区并横向围绕第二催化区。第二催化区包括一个或多个细长管,并且放热燃烧区域可以包括一个或多个燃烧器喷嘴。

[0212] 因此,在一实施方式中,相对于第二催化区的一个或多个细长管布置有一个或多个燃烧器喷嘴。

[0213] 在一实施方式中,使用了燃烧器喷嘴和细长管交替的三角形或正方形布置。可以使用大约相等数量的燃烧器喷嘴和细长管。

[0214] 图6A示出了正方形间距阵列,图6B示出了三角形间距阵列。

[0215] 在壳体的壁上,其中,设有第二催化区和放热燃烧区域,可以存在附加的燃烧器喷嘴。在一实施方式中,这些燃烧器喷嘴的尺寸可以小于其它燃烧器喷嘴。

[0216] 一旦燃料从每个燃烧器喷嘴流出,与燃烧维持介质的混合就会立即开始,相关的燃烧和热流也会立即开始。燃料和燃烧维持介质的混合将在每个管的上方和周向发生。因此,随着气体向上流动,周向输入到管中的热量将更加均匀/平衡。

[0217] 在燃烧区中围绕每个管周向输入的平衡(不一定相等)热量是有益的。热输入不均匀可能会导致管“弯曲”(一侧比另一侧加热得多),进而导致进一步的热量输入分配不均。

[0218] 因此,相对于第二催化区的细长管布置规则的燃烧器喷嘴阵列是有益的。具体地,优选的布局是燃烧器喷嘴和细长管交替的三角形或正方形间距。总体上,当可能存在于壁上的附加燃烧器喷嘴减少时,优选地,在规则阵列中存在大约相同数量的燃烧器喷嘴和细长管。

[0219] 第一催化区的热量

[0220] 如上所述,在本发明中,存在放热燃烧区域,在该区域中发生流体燃料与燃烧维持

介质的燃烧,以形成热燃烧产物流。该热燃烧产物流向第二催化区提供热量,并且因此通过向第二催化区的热传递而冷却,以形成部分冷却的燃烧产物流。

[0221] 然后,该部分冷却的燃烧产物流向第一催化区提供热量。

[0222] 另外,第二催化区中形成的重整气流的热量被提供给第一催化区。

[0223] 因此,废热被直接用于提供所需的热量以支持第一催化区中含烃原料的吸热催化重整和显热。

[0224] 重整气流通过该向第一催化区的热传递来冷却,从而减少了在重整器下游需要回收的低级废热的量。在一有利的实施方式中,将重整气体冷却,以减少或消除下游金属粉尘腐蚀的风险。

[0225] 同时,部分冷却的燃烧产物流也通过该向第一催化区的热传递而冷却,从而减少了在重整器下游需要回收的低级废热的量,并提高了整个装置的热效率。

[0226] 在一实施方式中,可通过使用惰性材料床,例如,形式为颗粒或其它形状的装置,向第一催化区提供额外的热量。这特别有利于确保原料在到达第一催化区中的催化剂时足够热,从而使催化剂可以有效地操作。在这种实施方式中,原料在到达催化剂床之前经过惰性材料床。以与上述相同的方式,通过部分冷却的燃烧产物流和重整气流,将热量提供给惰性材料,从而提供给经过惰性材料的原料。

[0227] 因此,惰性材料床安装在第一催化区中的细长导管中的催化剂床的上游,以便在原料接触催化剂之前提高原料温度。

[0228] 第一催化区中的热传递

[0229] 期望最大化到第一催化区的热传递,同时最小化所需的传热面积。最大化热传递要求最小化第一催化区入口和出口处的重整气体与原料之间的温差。最小化传热面积需要最大化上述温差。

[0230] 优选地,第一催化区中任何热传递界面处的原料与相邻的重整气流之间的温差为 300°C 或更低,尤其是 250°C 或更低,例如, 20 至 300°C ,优选 50 至 250°C 的范围,例如, 100 至 300°C 或 150 至 250°C 。

[0231] 因此,冷热流体之间可接受的最佳平均温差(Logarithmic mean temperature difference,LMTD)是期望的。

[0232] 在一优选实施方式中,重整气流与原料逆向流动且发生间接热交换接触,使得热量从重整气流传递至原料。同时,部分冷却的燃烧产物流与原料逆向流动且发生间接热交换接触,使得热量从部分冷却的燃烧产物流传递至重整气流。

[0233] 因此,重整气流在导管的原料出口端处于最高温度,并且当重整气流流向导管的原料入口端时冷却,因为热量被传递给原料。同时,随着热量从重整气流传递过来,原料在导管的原料出口端处于最高温度。

[0234] 这种设计实现了冷热流体之间可接受的最佳平均温差(LMTD)。

[0235] 在该实施方式的一种配置中,重整气流与原料逆向流动且发生间接热交换接触,同时部分冷却的燃烧产物流与重整气流并流发生间接热交换,使得热量从部分冷却的燃烧产物流传递至重整气流,并且热量从重整气流传递至原料。

[0236] 在该实施方式的另一种配置中,重整气流通过第一催化区的一个或多个细长导管中的每个导管内部的通道逆向流至原料,同时部分冷却的燃烧产物流在第一催化区的一个

或多个细长导管中的每个导管之外逆向流至原料。

[0237] 第一催化区中每个细长导管的出口端处的原料(部分重整的气体)与重整气流之间的合适的温差为300℃或更低,尤其是250℃或更低,例如,20~300℃,优选50~250℃的范围,例如,100~300℃或150~250℃。

[0238] 例如,在第一催化区的出口端处,重整气流的温度可以为900~1000℃,例如,约950℃,原料(部分重整的气体)的温度可以为700~800℃,例如,约750℃。

[0239] 第一催化区中每个细长导管的入口端处的原料与重整气流之间的合适的温差为200℃或更低,尤其是150℃或更低,优选为50~150℃。

[0240] 例如,在第一催化区的入口端处,重整气流的温度可以为450~500℃,例如,约475℃,原料的温度可以为350至400℃,例如,约375℃。

[0241] 应当理解,当原料沿着导管通过时,其将发生反应,因而将形成部分重整的气体。然而,为了清楚起见,当提及温差时,正在从重整气流吸收热量的导管内部的流体被称为“原料”,尽管实际上,当该原料沿着导管从入口到出口行进时,将变成部分重整的气体。

[0242] 为了使重整和整个过程的热效率最大化,从第一催化区出来的部分重整的气体的出口温度应尽可能高。因此,这需要重整气流的高温来提供足够的热量和温差从而传递到第一催化区中的原料。

[0243] 部分重整的气体的温度适宜为650℃或更高,例如,700℃或更高、或者750℃或更高,例如,650~900℃或者700~800℃,以便使本发明的方法中发生的重整量最大化。

[0244] 为了实现这一点,在第二催化区中产生的重整气流的温度适宜为800℃或更高、或者850℃或更高,例如,900℃或更高或者950℃或更高,例如,800℃~1100℃或850~1100℃或900~1000℃。

[0245] 期望在重整气流离开装置之前对其进行冷却,以使效率最大化并且还减少或避免装置下游的金属粉尘问题。应理解,第一催化区中原料的热传递使得该目的能够实现。

[0246] 在一实施方式中,重整气流离开装置时的温度为550℃或更低,例如,500℃或更低或者475℃或更低或者450℃或更低,例如,300~500℃或350~475℃或400~450℃。

[0247] 需要使用如上所述的原料与重整气流之间的逆流布置来实现所需的热交换。

[0248] 在第一催化区中使用较低的原料入口温度提供了适当冷却的重整气流,同时使传热面积最小。

[0249] 优选地,当原料进入第一催化区时,其温度为500℃或更低,例如,450℃或更低或者400℃或更低,例如,250℃~450℃或300~400℃。

[0250] 在一实施方式中,本发明利用原料与重整气流之间的逆流布置,当原料进入第一催化区时,其温度为500℃或更低,例如,450℃或更低或者400℃或更低,例如,250~450℃或300~400℃。

[0251] 如上所述,在一实施方式中,在第一催化区中,重整气流通过与部分冷却的燃烧产物流之间的间接热交换来加热,该部分冷却的燃烧产物流与重整气流并流并在重整气流的外部并流,同时第一催化区中的原料通过与重整气流的间接热交换来加热。因此,热量从部分冷却的燃烧产物流传递至重整气流,并且热量从重整气流传递至第一催化区中的原料。

[0252] 这种布置的益处在于,在第一催化区中仅需要一个催化剂容纳壁和与催化剂接触的传热表面。

[0253] 在这种布置中,重整气体沿细长内、外管(工艺管)壁之间的环形空间向上流动。为了使内壁处的重整气体的热传递系数最大化,从而使传热面积最小,在重整气体压降范围内,使环形空间的两壁之间的间隙(水力半径)尽可能最小。

[0254] 优选地,翅片(fin)或其它合适的装置可以附接到或形成在第一催化区细长导管的外表面上,以进一步提高第一催化区中从重整气体到原料/部分重整的工艺气体的相关传热速率。

[0255] 同样,翅片或其它合适的装置可以附接到外部工艺管的内部和/或外部以提高局部传热速率。

[0256] 当存在多个细长导管时,在一实施方式中,本发明使用现有技术中已知的“母管支管”系统来收集和排出每个冷却的重整气流。因此,冷却的重整气流(在它们各自加热给定的第一催化区细长导管后获得)收集在多个收集管(支管)中,其然后在经由一个或多个出口(例如,1、2或4个出口)离开装置壳体之前进料到较大的管或管道(母管)。因此,冷却的重整气流出口经由“母管支管”系统流向装置壳体外部的位罝。

[0257] 在存在多个细长导管的另一实施方式中,本发明使用现有技术中已知的气室系统来收集和排出冷却的重整气流。因此,仅在各个冷却的重整气流已经合并形成单个组合的冷却的重整气流之后,来自所有导管的冷却的重整气流才能离开装置壳体。换言之,所有细长导管的冷却的重整气流出口合并到位于装置壳体内部的单个腔室或气室中。冷却的重整气流然后经由一个或多个出口(例如,1、2或4个出口)离开单个腔室或气室,并离开装置壳体。

[0258] 当考虑燃烧产物时,在存在多个细长导管并且因此存在多个进一步冷却的燃烧产物流的实施方式中,本发明可使用这样一种配置,通过该配置,这些围绕每个导管的进一步冷却的燃烧产物流在壳体内朝其顶部组合,然后再经由单个出口离开壳体。因此,进一步冷却的燃烧产物流全部通过一种布置流向装置壳体外部的位罝,该布置使得这些流能够在装置内组合,然后再通过一个出口离开。

[0259] 同时,在存在多个细长导管的又一实施方式中,本发明使用现有技术中已知的气室系统来收集和排出进一步冷却的燃烧产物流。因此,仅在各个进一步冷却的燃烧产物流已经合并形成单个组合的进一步冷却的燃烧产物流之后,来自所有导管的进一步冷却的燃烧产物流才能离开装置壳体。换言之,所有细长导管的进一步冷却的燃烧产物流出口合并到位于装置壳体内部的单个腔室或气室中。然后,进一步冷却的燃烧产物流经由一个或多个出口(例如,1、2或4个出口)离开单个腔室或气室,并离开装置壳体。

[0260] 第二催化区中的热传递

[0261] 在第二催化区中,部分重整的气体被转化为重整气流。这要求在部分重整的气体通过第二催化区中的细长导管中的催化剂时,向部分重整的气体提供热量。

[0262] 如上所述,热量从放热燃烧区域传递至第二催化区。热量通过以下方式从放热燃烧区域供给到第二催化区:(i) 燃烧本身和(ii) 热燃烧产物流的热传递,该热传递均通过对流和气体辐射进行。

[0263] 放热燃烧区域邻近第二催化区并横向围绕第二催化区。如上面更详细地讨论的,优选地,第二催化区中的每个细长导管从两个或更多个燃烧器喷嘴提供热量,更优选地,从三个或更多个燃烧器喷嘴、或者四个或更多个燃烧器喷嘴提供热量。这些燃烧器喷嘴可邻

近并横向围绕它们提供热量的细长导管。

[0264] 优选地,第二催化区布置成使得燃烧产物流在部分重整的气体的外部流动并与之并流,该部分重整的气体流过第二催化区中的细长导管。这可以通过将燃烧器喷嘴的出口设置在第二催化区中的细长导管之外并朝向其部分重整的气体入口端以及将它们布置成使得燃烧产物被引导至细长导管的重整气体出口端来实现。

[0265] 在燃料燃烧期间以及此后不久,部分燃烧气体和所得燃烧气体的高温导致第二催化区的相邻细长导管的热通量非常高。如果使用逆向流动的布置,则峰值通量点邻近峰值重整气体温度。这将导致管壁温度极高。这将导致该布置的实用性和成本效益更低。因此,优选使用并流的布置(co-current arrangement),因为这确保了峰值通量出现在重整气体温度显著低于重整气流峰值温度的地方,并且该峰值温度出现在燃烧产物的热通量显著降低的地方。因此,出现了相对较低的管壁温度,更低的设计管壁温度的提供需要比其它所需的更低等级的构造材料和/或更低的管壁厚度,从而导致成本降低。

[0266] 在一实施方式中,本发明可选地利用第一催化区的其它地方所描述的辐射插入物。这些辐射插入物可以改善在邻近第一催化区的区域中向第二催化区中的细长导管的热传递。适当地,位于第二催化区附近的辐射插入物可以是位于第一催化区中的辐射插入物的延续。

[0267] 因此,在第二催化区的下游端,可以增加从燃烧产物到部分重整的气体的传热速率,从而使所需的传热面积和管长最小。

[0268] 辐射插入物

[0269] 在一实施方式中,本发明可选地利用辐射插入物。这些辐射插入物可以改善到第一催化区中细长导管的热传递。

[0270] 辐射插入物可以由任何能够充分辐射热量的材料制成。插入物可能完全由这种材料制成,或者插入物可以用这种材料涂覆或以其它方式处理。

[0271] 在一实施方式中,辐射插入物由陶瓷材料形成或涂覆有陶瓷材料。提高表面辐射率的其它处理方式是众所周知的。

[0272] 辐射插入物位于热回收区域中,并且合适地连续地通过热回收区域。因此,它们相对于第一催化区中的细长导管布置。

[0273] 通过使用这些辐射插入物,可以增强从部分冷却的燃烧产物流到第一催化区的热传递。

[0274] 辐射插入物可以适当地设置在位于第一催化区中的细长导管之间。插入物可以以规则图案或不规则图案设置。两个细长导管之间的每个空间中不必都设置插入物,但是当存在插入物时,应将它们设置成围绕每个细长导管对称地布置。

[0275] 辐射插入物具有两个功能。

[0276] 首先,通过阻塞燃烧产物可流动的大部分区域,燃烧产物的速度和对流热传递系数以及细长导管的传热速率大大提高。

[0277] 其次,燃烧产物的热量通过对流传递至辐射插入物,然后通过表面到表面辐射向前传递至细长导管。因此,传递至第一催化区的热量和其中的重整气流被最大化。

[0278] 插入物可以是任何合适的尺寸和形状。在一实施方式中,它们是细长体。它们可以具有任何合适的横截面形状,例如,圆形,三角形或正方形。插入物和细长导管之间的间隙

可沿周向和纵向变化。在一实施方式中,插入物可具有锥形端。

[0279] 辐射插入物的表面上可以设置翅片,以帮助热传递和流动气体的混合。

[0280] 辐射插入物或外壳与外部细长导管之间的间隙可以适当地变细以在不同高度提供变化的传热速率,从而在不超过细长导管(外部工艺管)壁设计温度的同时最大化局部传热速率。

[0281] 为了保持每个辐射插入物与外部工艺管之间的分隔距离,有效地提供垫片。

[0282] 辐射插入物可以适当地部分延伸到燃烧区域中,因此,它们可以相对于第二催化区中的细长管布置。

[0283] 但是,辐射插入物不应延伸达到燃烧器喷嘴的位置。它们延伸到燃烧区域的距离受到以下因素的限制:(a)不需要辐射插入物(无论如何局部热通量足够高)和(b)温度变得太高,从而超过辐射插入物的机械极限。

[0284] 在另一实施方式中,本发明可选地利用惰性管,其包围每个细长导管。

[0285] 加压燃烧

[0286] 本发明可以在任何合适的燃烧压力下操作,该压力促进燃烧气体经由指定的流路流经该装置。如果在燃烧产物出口处在大气压下或接近大气压下操作,则为了经济性设计,可能需要高达1巴表压或更高的燃烧空气压力。然而,本发明可以在更高的压力下操作,这可以为装置和相关的重整流程带来显著的优点。

[0287] 具体地,本发明提供在这一压力下操作的选择,该压力可以在第二催化区中的细长导管壁上提供压差,该压差为零或仅略微为负或正。使发生重整反应的工艺侧与产生热量以支持重整反应的燃烧侧之间的压力差最小或为零是一项重大的技术优势。

[0288] 就这一点而言,通过在基本为零的压差下操作,可以减小在设计生命周期期间防止破裂所需的导管壁厚。壁厚度可以出于结构稳定性、腐蚀和任何其它设计考虑因素所需保持为最小值,而不是需要增加厚度以使得能够应对方法中承受的压力。当在操作期间考虑在峰值温度(“热点”)位置处的细长导管壁时,这尤其相关。

[0289] 有利地,可以在该“热点”点完全消除径向蠕变,并且在细长导管的长度上的其它地方几乎可以完全消除径向蠕变。与在大气压或接近大气压下操作燃烧区时的情况相比,这提供了利用薄壁和/或较不坚固的/较差机械性能的壁材料的能力。

[0290] 除了降低成本和减轻重量外,将较薄的管壁用于外导管的另一个显著益处在于,对于给定的工艺质量流率,第二催化区和第一催化区的工艺气体流路均具有较大的横截面积,导致两个区的压降降低,或允许较小的催化剂颗粒尺寸以及工艺气体的相应传热速率增加。增加的传热速率降低了金属壁温度和所需的表面积,这两者都是有益的。

[0291] 应当理解,可以控制提供给燃烧区域的燃烧维持介质的压力,并且因此可以将压差控制为零或接近零。

[0292] 在一实施方式中,控制燃烧维持介质的压力,使得第二催化区与放热燃烧区域之间的压差小于500千帕或小于250千帕,例如,小于100千帕,或小于50千帕,例如,小于20千帕或小于10千帕。

[0293] 在一优选实施方式中,燃烧维持介质的压力为1000千帕至8000千帕或更高,第二催化区中细长导管内的重整气体的压力为1000千帕至8000千帕或更高,并且它们之间的压差为500千帕或更低,例如,100千帕或更低或者50千帕或更低,或者10千帕或更低。

[0294] 具体地,操作期间,这种低压差在峰值壁温(“热点”)位置处高度相关。

[0295] 在替代实施方式中,可以选择燃烧维持介质的压力在细长导管相对于压缩燃烧维持介质以实现压力所需的功率这一设计方面而言是最佳的。

[0296] 与管壁材料和管壁厚度相同的情况相比,燃烧维持介质使用更高的压力并因此降低压差使得重整气流的设计和操作能够在更高的峰值温度下进行。更高的温度可具有增加重整过程中烃转化率的益处。高峰值重整气体温度还使在第一催化区中形成的部分重整的气体的温度最大化,从而使在第一催化区中实现的重整比例最大。这意味着通过利用废热实现的重整比例最大,这显然是有益的。因此,它提高了工艺的整体热效率。

[0297] 因此,重整气体的温度可能超过950℃,同时热效率更高。然而,这必须权衡以下事实:升高的设计温度可能导致第二催化区和一部分第一催化区中的细长导管需要更高规格的材料。

[0298] 技术人员可以理解,重整气体的最佳温度将基于整体经济性考虑。

[0299] 催化剂

[0300] 烃类蒸汽(H₂O)重整和烃类干(CO₂)重整的催化剂是已知的。为实现烃进料的重整,选择用于第一催化区的催化剂体系和用于第二催化区的催化剂体系是在技术人员的能力范围内的。

[0301] 第一催化区的催化剂体系和第二催化区的催化剂体系可以相同或不同。催化剂体系可包括单一催化剂类型或不止一种催化剂类型。

[0302] 催化剂通常以催化剂床的形式提供。因此,第一催化区将在每个细长导管中具有第一催化剂床,并且第二催化区将在每个细长导管中具有第二催化剂床。

[0303] 对于给定的工艺流率,重整过程所需的催化剂体积通常由细长导管(重整工艺管)的传热表面积决定,所有用于加热工艺气体的热量以及重整反应的吸收热量必须通过该传热表面积。其它考虑因素是催化剂中气体的停留时间/空速、催化剂的类型、大小、形状和有效表面积及其组成,例如,镍含量。技术人员可以考虑所有这些因素以实现所需的原料转化程度。

[0304] 催化剂的类型、大小和形状均对细长导管的壁上以及横向穿过催化剂床本身的热传递有影响。大小尤其重要。细长导管壁上的热传递影响管壁温度。横向穿过催化剂床本身的热传递影响催化剂床的整体效率(即,平衡排出的重整气体的方法)。

[0305] 如上所述,在一优选实施方式中,提供给第一催化区中细长导管入口的原料的温度相对较低。

[0306] 在第一催化区中的催化剂床中,除了催化剂床出口附近,金属壁设计的主要温度是温和的。因此不需要高的壁表面内部热传递系数来使金属设计温度最小化。

[0307] 如技术人员将意识到的,在相对较低的温度下进行重整需要使用具有大表面积的高活性催化剂。这些催化剂是已知的并且通常用于预重整催化剂床中。合适的催化剂包括,例如,镍含量高的催化剂。

[0308] 适用于至少一部分第一催化区的传统预重整颗粒催化剂也倾向于具有小的特征尺寸,例如,直径为3至6mm。该特征尺寸或颗粒尺寸也在细长导管壁处提供了足够高的热传递系数,从而使所需的导管长度最小化。可以理解,这种催化剂因此适合用于第一催化区,特别是入口附近。

[0309] 对于第一催化区的出口,使用尺寸更大、活性更低的催化剂来使通过催化剂床的压降最小化是更合适的。因此,催化剂的特征尺寸可以是,例如,直径为5mm或更大或者6mm或更大,例如,5~9mm,优选例如,6~8mm。通常,催化剂的尺寸不应太大,以至于不能正确填充细长导管(工艺管)。例如,对于球体,较低的D/d比(其中,D为内管直径,d为球体直径)可能会导致壁上气体流速过高,或导致催化剂床中的其它流量分配不均。

[0310] 整体式催化剂或结构化催化剂的使用可能特别适用于第一催化区中。这些催化剂可以部分地与其它催化剂一起使用,或者可以是唯一的催化剂类型。

[0311] 在第一催化区中选择最佳催化剂是在催化剂尺寸/形状、表面积、活性、热传递和压降之间做出的折衷。技术人员将能够考虑到可用的那些以及要平衡和优化的因素来选择合适的催化剂类型。

[0312] 为了保持活性并确保较长的催化剂生命周期,必须消除催化剂随时间而降解的可能性,例如,通过碳/胶的堆积或者硫化物或其它毒物导致的失活,特别是在催化剂床的入口处。这可以通过在第一催化剂床上游的细长导管内安装预重整催化剂床来实现。替代地,并且更实际地,其可以在装置内或装置外的第一催化区的外部提供。如果在装置外部,则催化剂将直接更换,并且必要时可以在装置在线正常操作期间进行更换。然后,除去预重整催化剂床中痕量的硫使第一催化剂床内的活性在低温下保持较长时间。

[0313] 在第二催化区中,选择标准是不同的。在此,由于在第一催化区中重整,气体中的氢含量高,催化剂将被很好地还原,并且由于高的操作温度,反应速率将很高。此处选择催化剂的最重要标准是:确保细长导管壁上的热传递系数始终足够高,以将壁温度限制在合理的设计范围内,并且确保不超过允许的压降。第二个标准是确保足够的催化剂活性以适应催化剂床入口处的高局部热通量。通常,第二催化区中的催化剂特征尺寸将小于第一催化区中使用的催化剂特征尺寸,例如,<6mm,优选3~5.5mm,更优选3.5~5mm,以便在细长导管壁处提供必要的高热传递系数,并且在整个流路上具有可接受的气体分布。

[0314] 如果需要,可以在第二催化剂床内的不同位置使用不同尺寸或形状的催化剂,但这不是必需的。

[0315] 本发明所需的催化剂量可以比已知的蒸汽重整操作的典型量低一些。对于所需的催化剂尺寸和气体组成,本发明中使用的空速是相对典型的。

[0316] 传统上,蒸汽重整催化剂由催化活性组分形成,例如,沉积在诸如陶瓷载体材料之类的载体材料上的镍,蒸汽重整催化剂通常被制造为颗粒,并且通常被形成为具有孔的短圆柱体以提供扩大的表面积。粒状或颗粒状催化剂被称为“无规填充”催化剂或无规催化剂。无规填充催化剂的优点在于,它们通常在整个加热管长度上,特别是在管壁上,一致地填充重整管。这对于保持高湍流和高热传递很重要,以便将管壁温度保持在设计极限之内。这也很有用,因为典型的重整管在其整个生命周期中都会受到径向“蠕变”的影响,因此管的直径可以增长几个百分比。无规填充催化剂通过沉降并保持管壁接触来适应这种情况。

[0317] 无规填充催化剂的缺点是,在加热/冷却循环过程中,它们的热膨胀/收缩程度不同于容纳重整管。因此,在管加热(启动时)时,管会膨胀,催化剂填充所产生的额外体积时往往会掉落。在管冷却后(关闭时),催化剂颗粒会受到压碎力,在较弱的位置(例如,拐角)处会发生破裂。因此,催化剂随着时间而降解,通常表现为通过催化剂床的压降增加。

[0318] 具体的潜在问题是粒状催化剂包含在环形空间内,从而使内管壁和外管壁膨胀和

收缩的量不同。当系统冷却且催化剂被压缩并趋于“抓紧”管壁时,这会导致管的严重变形和潜在的超限应力,从而阻止管壁之间的自由移动。

[0319] 较新开发的结构化(填充)催化剂通常由陶瓷整料或金属箔制成,该陶瓷整料或金属箔由在其上形成规则流路的催化剂基材块组成,催化剂施加在该催化剂基材块上。

[0320] 结构化催化剂的优点是可以通过低压降实现高活性(通过高表面积)。结构化催化剂随着时间推移应经受较少的物理降解,并且在其整个生命周期中应保持相同的垂直尺寸。

[0321] 一个缺点是,由于横向尺寸是固定的,因此随着管向外“蠕变”,催化剂块和管壁之间的间隙会随着时间的推移而增加。这可以降低局部气体速度和热传递系数,从而减少管壁的冷却。结构化催化剂在总体设计中需要考虑到这一点,因为管壁温度控制至关重要。

[0322] 第二个缺点是最大操作温度的实际/经济限制,特别是对于金属基材。

[0323] 技术人员将能够权衡优点和缺点并选择合适的催化剂或催化剂的组合。

[0324] 在一实施方式中,本发明中使用的催化剂选自结构化催化剂、无规填充催化剂及其组合。

[0325] 在一实施方式中,本发明可以在细长导管的较冷段中使用一种或多种结构化催化剂的组合并且在细长导管的较热段中使用一种或多种无规填充催化剂的组合。这具有平衡和优化实际和经济考虑的益处。

[0326] 通常,可以在第一催化剂床和第二催化剂床中使用不同重整催化剂的各种组合。所用的催化剂可以在组成方面不同,例如,镍含量或促进剂的引入,和/或可以在颗粒形状和/或尺寸方面不同。可以进行选择以优化催化剂活性和热传递特性。

[0327] 蒸汽重整催化剂可以在上流或下流方向上使用。必要时,可方便地从底侧(细长导管的底部)装载催化剂。

[0328] 在一实施方式中,在每个细长导管内可以存在连续的催化剂床。在一替代实施方式中,第一催化区中的每个细长导管内可以设置催化剂的不连续部分。这些不连续部分可以适当地散布有惰性块或形状,该惰性块或形状用于将流动引导到邻近于壁的环形空间中,以实现高的热传递。因此,将有一系列单独的加热和反应步骤,代替在细长管内的连续催化剂床。这种布置的益处是可以减少所需催化剂的总量。

[0329] 燃烧维持介质

[0330] 燃烧维持介质可以适当地是燃烧空气。

[0331] 然而,使用燃烧空气的替代方法是氧气和CO₂的混合物。例如,有用的实施方式可以使用再循环的CO₂(例如,从燃烧产物获得)和氧气。例如,在通过捕获CO₂产生氢气时,这在减少能源方面可能是有益的。

[0332] 工艺操作参数

[0333] 蒸汽/碳比

[0334] 本发明可以使用原料中一定范围的蒸汽/碳(S/C)比来实施。通常,本发明的方法可以以本领域已知的任一S/C比进行。技术人员将理解,这可以根据最终用途来选择。典型的S/C比的范围将在1.5至3.0或更大范围内。在一实施方式中,S/C比的范围可以在1.5至2.5,例如,2.0至2.5。

[0335] 使用较高的S/C比通常会导致较低的总体工艺效率。S/C比为1.5或更低是可能的,

这取决于催化剂的配置、操作条件和原料组成。在主要的工艺条件下,太低S/C比下的操作会导致碳沉积在重整催化剂和/或工艺管壁上,从而导致催化剂损坏和管堵塞。

[0336] 在重整反应中,可使用CO₂代替部分或全部蒸汽。在最终产物中需要高CO:H₂比的情况下,添加CO₂是有益的。通过降低必要的蒸汽比率,添加CO₂可以提高整体工艺效率。这将适用于,例如,费托合成产物和甲醇的生产。

[0337] 对于氢气的生产,添加CO₂不是有益的,但是较低的S/C比确实会提高工艺效率。

[0338] 工艺操作压力

[0339] 本发明可以在任一压力下操作,该压力在出口处以所需产物压力产生重整气体,例如,200~8000千帕或更高的压力。

[0340] 通常,较低的蒸汽重整操作压力会增加重整量,同时会增加重整装置本身的成本和下游重整气体压缩的成本。因此,最佳操作压力是操作成本和资本成本之间的平衡,并且会因情况而异。

[0341] 可以看出,本发明的方法适用于在相对较高的压力下操作,因为增加的压力成比例地降低了气体速度和装置的压差。

[0342] 细长导管

[0343] 细长导管的尺寸和形状

[0344] 在第一催化区和第二催化区中均使用细长导管。在每种情况下,导管都包含催化剂,如上所述。

[0345] 以下对于细长导管尺寸和形状的讨论适用于第一催化区中使用的导管和第二催化区中使用的导管。这两个区的导管可以独立选择,因此它们不必具有相同的尺寸和/或相同的形状。

[0346] 在一实施方式中,优选圆形横截面的细长管作为细长导管的形状,尽管其它形状也可以使用。

[0347] 与常规的蒸汽重整器管相比,导管的直径优选相对较小,例如,细长导管的直径范围可以在25~150mm,例如,25~100mm,优选50~100mm,例如,40~80mm。然而,也可以使用其它直径的管。

[0348] 小直径管需要比大直径管更薄的壁才能在相同的温度和压差下工作,因此成本较低。对于给定的总吞吐量,数量更多的较小管还提供相对较大的传热表面积。

[0349] 然而,较小的管需要更多的管才能获得相同的吞吐量和相应的成本增加。同样,小直径可能会导致催化剂填充问题,导致热传递不良。对于给定的总吞吐量,较小数量的较大直径管可能提供相对较低的传热表面积。

[0350] 因此,技术人员可以考虑这些因素来选择期望的管直径。

[0351] 细长导管的布置

[0352] 在第一催化区和第二催化区中均使用一个或多个细长导管。

[0353] 在使用一个以上细长导管的情况下,导管相对于彼此的布置优选地呈规则图案或阵列。

[0354] 在优选实施方式中,导管以三角形或正方形取向的间距布置。

[0355] 在以规则阵列使用多个细长导管的情况下,管距,即从每个细长导管组件的中心线到下一细长导管组件的中心线的距离,主要是通过考虑燃烧产物到第二催化区的热传递

及其前体在燃烧区域中的热传递来确定的。

[0356] 通常,最小化管间距,从而最小化相邻管之间的间隙,对于给定的容纳容器直径而言,将导致更高的总吞吐量,从而降低成本。

[0357] 应当理解,细长导管布置在一起越近,间距与外管直径的比率越接近1。

[0358] 在常规的辐射蒸汽重整器中,通过在管和外壳之间的相对大的平均束长来促进主要的热传递(辐射)模式。

[0359] 在本发明中,热传递既是对流的又是辐射的,后者尤其在温度最高的燃烧器喷嘴附近的初始燃烧区域中。

[0360] 通过减小管间距并因此减小管之间的距离,将减小辐射分子的平均束长,从而减少传递至工艺管(细长导管)的热量。然而,对于给定的管直径,管间距的相同减小将导致可用于燃烧产物流的较小横截面面积。燃烧产物气体的速度将因此而增加,从而增加对流热传递系数和传递至工艺管的热量。

[0361] 因此,可以通过调节管间距来改变热传递方法和速率的设计。

[0362] 另外,在一实施方式中,外部工艺管的直径(并且必然是内管直径)在管长度上发生改变,以便优化对流和辐射热输入的混合。

[0363] 实际的机械考虑因素也可能影响管间距。例如,组件的支撑可能需要每个组件的外部之间的空间固定,或者进料分配导管或重整气体产物流收集导管可能需要这样的间隔。

[0364] 本发明中可以使用间距与外管直径的比率为2.0或更小,例如,1.8或更小或者1.6或更小。优选地,间距与外管直径的比率为1.5或更小,更优选为1.3或更小。

[0365] 在本发明中,不需要在分隔工艺流的壁上具有任何隔热。因此,在一实施方式中,在分隔工艺流的壁上没有隔热。

[0366] 构造材料

[0367] 细长导管(工艺管)可以由适当规格的适当常用钢制成,这在蒸汽重整服务中是众所周知的。

[0368] 通常,本发明的装置可以使用传统蒸汽重整器的典型材料。在高温区域,优选的金属合金将具有高温强度(对蠕变和蠕变断裂的抵抗力)以及对氧化和工艺气体腐蚀的高抵抗力。

[0369] 在温度较低的区域,可以使用适当的低等级材料,例如,奥氏体不锈钢,例如,347H级。

[0370] 在本发明的装置中,有利地,每个细长导管可以由一种以上的合金制成,并且沿着其长度可以具有相同或不同的壁厚。这些差异可以考虑沿导管长度的不同温度和压力。

[0371] 最高设计温度出现在外部细长导管中,尤其是在放热燃烧区域中并与之相邻。在操作中,峰值壁温度优选地临近峰值重整气体温度,尽管该装置可以被设计成具有更接近或接近燃烧器喷嘴的峰值壁温度。

[0372] 在适用于典型蒸汽重整的合金中,应用有各种镍基合金,其包含各种量的镍、铬以及诸如钨或铌等改性剂。通常优选离心铸造管。

[0373] 在本发明的装置中,使用相对较小直径的细长导管意味着期望在实际中尽可能地减小壁厚,以便使气体流路最大化,并因此使通过每个管的重整气体流率最大化。

[0374] 根据优选实施方式的操作利用高压燃烧使管壁上的压差和所需的最终设计壁厚最小化。因此,可以使用具有适当规格的更薄壁厚的锻造管,例如,海恩斯合金230™ (Haynes Alloy230™)。通过降低管的成本并最大程度地提高每个管(组件)的重整气体产量,可以降低总体成本。

[0375] 燃料气体分配

[0376] 燃料气体可以经由与燃料气体入口流体连通并且位于放热燃烧区域上游(下方)的至少多个导管供给到每个燃烧器喷嘴。

[0377] 在另一实施方式中,燃料气体入口可以将燃料供给到位于放热燃烧区域上游的燃料分配气室。燃料分配气室又与从气室的上管板向上延伸的多个喷嘴管(燃烧器喷嘴)的入口端连通。对于较大的容器,优选使用气室。

[0378] 优选地,每个燃烧器喷嘴具有与其相关联的限流装置,例如,节流孔,该限流装置的作用是使喷嘴之间的燃料流率更加均匀。

[0379] 每个燃烧器喷嘴的出口尖端可以是任何合适的形状,例如,圆的(圆形)、直的或圆形狭槽或者为其它形状,并且可以是开放式的或包含其它装置以控制燃料和燃烧维持介质的混合方向和长度。

[0380] 燃烧维持介质的分配

[0381] 燃烧维持介质分配系统设计成将空气或其它燃烧维持介质在其上游端引入放热燃烧区域,使得在整个流路上提供基本均匀的速度分布。

[0382] 分配系统的详细设计将取决于装置的容量,即细长导管组件的数量,从而取决于容纳容器的直径。

[0383] 用于在容器中分配气体的装置是众所周知的,并且可以包括,例如,挡板、导流板、带孔的板、管等。可以单独或组合使用任何已知的装置。

[0384] 在一实施方式中,在使用气室来分配燃料气体的情况下,可以使用空气分配管。在这方面,多个平行管可以以规则的阵列设置。每个管可以从气室的底部管板穿过气室到气室的顶部管板。每个管的尺寸可设置成提供基本上相同的通过其的空气流量。

[0385] 每个空气分配管和气室管板可以适当地设置有隔热材料,以防止容纳在其中的燃料气体过热。

[0386] 可选地,每个空气分配管可具有与其相关联的限流装置,例如,节流孔,该限流装置的作用是使管与管之间的空气流率更加均匀。

[0387] 金属粉尘

[0388] 金属粉尘是金属和合金在碳过饱和气态环境中在高温(300~850℃)下腐蚀降解的一种严重形式。

[0389] 技术人员将意识到金属粉尘并且可以使用金属粉尘涂层来防止金属粉尘。这种涂层是本领域众所周知的。铝扩散涂层是一个具体的例子。铝扩散涂层表面的进一步处理也是可能的,以进一步增强保护。例如,磷化被认为是进一步处理的例子。

[0390] 因此,合适的涂层和处理可用于本发明中以防止/减少金属粉尘。

[0391] 当重整气体从其峰值温度冷却抵达第一细长导管与外部工艺管之间的环形空间中的围壁时,管壁将达到开始发生金属粉尘腐蚀的温度,这取决于重整气体的成分。随着温度进一步降低,发生金属粉尘的可能性和程度趋于下降。对于环形空间的内壁和外壁,可能

开始发生金属粉尘的位置区域将不同。

[0392] 内壁和外壁均可以设置有合适的涂层/处理以防止金属粉尘。在可能的金属粉尘区内,环形空间中的翅片或其它附件可进行类似处理。

[0393] 离开环形空间的重整气体的温度相对较低确保了在装置的下游不应发生金属粉尘问题。

[0394] 本发明的其它可选特征

[0395] 本文中描述的方法和装置的进一步改进和选择是:

[0396] • 在细长导管内使用氢膜以促进氢的去除并增加装置内的总氢产量。

[0397] • 在细长导管内使用水煤气变换催化区,以增加装置内的总氢气产量。

[0398] • 在细长导管的内部和外部使用附加的热传递增强方式,其可以是对流和/或辐射方式。这些方式包括但不限于:设置翅片、表面处理、流体速度和/或流体流动曲折度增加装置。

[0399] • 使用细长导管的附加外部连接以,例如,在不通过第一催化床的情况下促进蒸汽的添加或第二重整催化剂的吹扫。

[0400] 参考图1至图7所示的非限制性实施方式,可以理解本发明的方法和装置。

[0401] 装置可以从图中所示的方向反转操作。

[0402] 本发明在蒸汽重整的背景下进行描述,但是应当理解,其也可以容易地进行修改以用于干重整,其中,一些或全部蒸汽用CO₂代替。

[0403] 所描述的整个方法可以在单个外壳或壳体(104)中进行,该单个外壳或壳体(104)包含单个细长重整组件或多个平行布置的细长重整组件(100)。为了简单起见,本说明书涉及多个细长重整组件(也称为工艺管)(100)。

[0404] 细长重整组件(100)均包括外部工艺管,该外部工艺管形成第二催化区细长导管(101)和第一催化区细长导管(114)。

[0405] 在图3A所示的实施方式中,每个第二催化区细长导管(101)包含并附连到第一催化区细长导管(114),使得这两个导管(101、114)纵向对准。

[0406] 在图3A所示的实施方式中,每个第一催化区细长导管(114)经由单独的原料入口接收原料(1)。这可以适当地经由母管支管系统进行。

[0407] 在图3A所示的该实施方式中,每个热重整气流(5)将热量损失到第一催化区细长导管(114),然后,所得的分离的冷却重整气体产物流(6)被收集到一起(例如,收集到母管支管系统中)以形成组合的冷却重整气体产物流。然后,该单个冷却的重整气体产物流经由一个或多个出口离开装置。

[0408] 在图3A所示的实施方式中,每个燃烧产物流(13)将热量损失到第一催化区细长导管(114),然后,所得的进一步冷却的燃烧产物流(14)在经由单个出口离开壳体之前朝向顶部组合到壳体内。

[0409] 可以理解,图3A所示的装置包括根据本发明的第三方面的工艺管组件。工艺管组件包括同心布置的内管(114)和外管(101),其中,内管(114)包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,其中,外管(101)包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,由此第一重整催化剂床和第二重整催化剂床串联布置,由此内管(114)具有部分重整的气体可离开内管(114)的出口,由此部分重整的气体可流过的内部导管(111)从内管(114)

的出口延伸并且通过第二重整催化剂部分。

[0410] 在图3B所示的实施方式中,每个第二催化区细长导管(101)包含第一催化区细长导管(114),并且这两个导管(101、114)纵向对准。第一催化区细长导管(114)的位置固定在单个位置,在这里第一催化区细长导管(114)通过气室单元(16)保持在适当的位置。第二催化区细长导管(101)的位置同样固定在单个位置,在这里第二催化区细长导管(101)通过气室单元(16)保持在适当的位置。因此,第二催化区细长导管(101)和第一催化区细长导管(114)可以被认为是经由气室单元仅间接附接在单个位置处。

[0411] 可以理解,图3B所示的装置包括根据本发明的第三方面的工艺管组件。工艺管组件包括同心布置的内管(114)和外管(101),其中,内管(114)包含具有第一重整催化剂床的第一重整催化剂部分,其中,外管(101)包含具有第二重整催化剂床的第二重整催化剂部分,由此第一重整催化剂床和第二重整催化剂床串联布置,由此内管(114)具有部分重整的气体可离开内管(114)的出口,由此部分重整的气体可流过的内部导管(111)从内管(114)的出口延伸并且通过第二重整催化剂部分。

[0412] 在图3B所示的实施方式中,气室单元(16)包括冷却的重整气体气室。冷却的重整气体气室具有多个入口(30),每个入口是冷却的重整气流的入口,该冷却的重整气流在其已经加热给定的第一催化区细长导管(114)之后获得。多个入口(30)合并到位于装置壳体内部的单个腔室(31)中。该腔室或气室具有一个或多个用于组合的冷却重整气流(6)的出口(32);该出口或每个出口延伸到装置壳体外的位置。

[0413] 在图3B所示的该实施方式中,气室单元(16)还包括进一步冷却的燃烧产物流气室。进一步冷却的燃烧产物流气室具有多个入口(40),每个入口是进一步冷却的燃烧产物流的入口,该进一步冷却的燃烧产物流在其已经加热给定的第一催化区细长导管(114)之后获得。多个入口(40)合并到位于装置壳体内部的单个腔室(41)中。该腔室或气室具有一个或多个用于组合的进一步冷却的燃烧产物流(14)的出口(42);该出口或每个出口延伸到装置壳体外的位置。

[0414] 可以看出,在图3B所示的实施方式中,气室单元(16)还用于将各第一催化区细长导管(114)的顶部和各第二催化区细长导管(101)的顶部保持在适当位置。因此,间接地确保了它们相对于彼此的位置。

[0415] 在图3B所示的该实施方式中,装置包括单个组合的原料入口(20),其从装置壳体的外部延伸到装置壳体内部的腔室(21),以提供原料(1)。然后,腔室(21)具有多个出口(22),每个出口是其中一个第一催化区细长导管(114)的原料入口。

[0416] 在本发明的所有实施方式中,脱硫天然气(或任何其它烃类来源)和蒸汽可在300至500°C范围内的温度下提供原料(1)。该原料被引入到第一催化区细长导管(工艺管)(114)的顶部。然后,原料(1)作为流(2)向下流过第一重整催化区(112),每个第一重整催化区包括第一重整催化剂床。在第一重整催化区中,部分所含的甲烷以及基本上所有的高级烃类被转化为氢和碳的氧化物。因此,形成了部分重整的工艺气体(3)。第一重整催化区(112)中的第一重整催化剂床可以由一种以上的催化剂类型组成。

[0417] 每个第二催化区细长导管(101)中设置第二重整催化区(102)。第二催化区(102)各自包括第二重整催化剂床。

[0418] 部分重整的工艺气流(3)经由输送导管(111)被引导通过这些第二催化区(102)。

[0419] 然后,部分重整的工艺气流(4)向上流过第二催化区(102)。

[0420] 在第二催化区中进行进一步的重整和甲烷转化以产生氢和碳的氧化物。该气流通常在750℃~1100℃的温度范围下离开催化剂床,优选900℃~1000℃的温度范围。由此形成热重整气流(5)。

[0421] 通过热重整气流(5)的逆流冷却,为第一重整催化区(112)中的吸热重整反应以及原料和部分重整的工艺气体(3)的进一步加热提供热量,至温度高达650~800℃。

[0422] 在图2A所示的布置中,热重整气流(5)在第一催化区细长导管(114)和外部工艺管(101)之间的环形空间中流动。热重整气流(5)还通过在外部工艺管(101)外部流动的燃烧产物流(13)同时加热。

[0423] 在图2B所示的布置中,热重整气流(5)在第一催化区(112)的细长导管(114)内部的通道中流动。第一催化区(112)还通过在外部工艺管(101)外部流动的燃烧产物流(13)同时加热。

[0424] 翅片或其它装置(115)可附接到第一催化区(112)的细长导管(114)的外表面,以增加从重整气体到原料/部分重整的工艺气体(2)的相关传热速率。

[0425] 同样,翅片或其它合适的装置(未示出)可附接到邻近第一催化区的外部工艺管(101)的内部和/或外部,以增加局部传热速率。

[0426] 有效地设置适当的间隔物以保持每个第一催化区细长导管(114)和每个外部工艺管(101)之间的分隔距离。

[0427] 为了防止输送导管(111)内的部分重整的工艺气流(3)显著加热,可以在一部分或全部导管长度的内部或外部施加合适的隔热材料。

[0428] 在一优选实施方式中,当外部工艺管(101)相对于内导管(114)和输送导管(111)的温度和膨胀度不同时,在启动或关闭期间,输送导管(111)垂直自由移动。这通过提供与第二重整催化区(102)中的催化剂接触的外管(119)来实现。输送导管(111)能够相对于该外管(119)垂直滑动,因此也允许内导管(114)相对于外部工艺管(101)自由移动。外管(119)配置成允许该移动。例如,外管(119)可以由不连续的部分形成,可以是除圆柱形以外的形状,或者可以是波纹状。

[0429] 输送导管(111)的内表面可以镀有或涂覆有合适的重整催化剂表面,或者导管可以设置有催化插入物以辅助整个重整过程。

[0430] 为了在催化区内提供催化剂的支撑和约束,提供了适当的支撑或约束装置(116、117、118)。第一装置(116)在第一催化区下方,第二装置(117)在第二催化区上方,第三装置(118)在第二催化区下方。

[0431] 催化剂支撑装置(116)允许部分重整的气体自由地流向导管(111),同时防止催化剂从上方的第一催化区流失。

[0432] 约束装置(117)防止催化剂和重整气体向上流到(114)和(101)之间上方的环形空间。该装置可有效地附接到导管(114)的底部,从而防止两者之间的分离增大。增大的分离将导致外管壁(101)处的局部气体速度较低,相应地较低的局部热传递系数导致较高的局部管壁温度。

[0433] 设置支撑装置(118)以防止当气体流量低时催化剂沿相反方向通过,同时允许部分重整的气体向上流动通过。它被设计成在操作中向上移动,以支撑底部催化剂并防止催

化剂颗粒在第二催化区内流化。

[0434] 为了增加燃烧区上部的工艺管的热通量,在工艺管周围设置了辐射插入物(110)或其它装置,以提高燃烧产物的速度并提高细长重整组件(工艺管)(100)的传热速率。

[0435] 在一优选实施方式中,辐射插入物(110)设置在热回收区域(2000)中,并且部分地延伸到放热燃烧区域(1000)中。这些插入物分别在催化区(102)和(112)的外部,并且可以由恒定或变化的形状形成。这些形状提供惰性体积,以增加在外部工艺管(101)的上方和外部流动的部分冷却的燃烧产物流(13)的气体速度和局部热传递系数,并以对流方式吸收热量,随后将热量经由直接辐射传递至工艺管。

[0436] 热重整气流(5)离开第二催化区(102),沿管(101)和第一催化区细长导管(114)之间的环形空间向上流动,为第一催化区提供反应热量。因此,其损失热量,并因此变成冷却的重整气体产物流(6)。

[0437] 冷却的重整气体产物流(6)从工艺管(101)的顶部排出,并在通常400~500°C的温度下离开重整器,优选为约475°C或更低的温度。

[0438] 在图2A所示的实施方式中,热重整气流(5)与原料(1)逆向流动并发生间接热交换接触,同时燃烧产物流(13)与热重整气流(5)并向流动发生间接热交换接触,使得热量从燃烧产物流(13)传递至重整气流(5),并且热量从热重整气流(5)传递至原料(1)。

[0439] 在图2B所示的实施方式中,热重整气流(5)流过第一催化区(112)的细长导管(114)内部的通道,并将热量从细长导管(114)内向原料(1)提供,同时燃烧产物流(13)在第一催化区(112)的细长导管(114)外部流动,热量从燃烧产物流(13)传递至原料(1)。

[0440] 通过诸如空气等氧化剂和流体燃料的燃烧来提供重整器下部(第二催化区)中用于重整反应的反应热。

[0441] 在燃烧空气和燃料的组合高于燃料自燃温度并且燃烧可以经由湍流扩散火焰来维持的温度下,在外壳或壳体(104)的底部或底部附近引入外部预热和加压的燃烧维持介质(例如,空气流)(7)。尽管可以使用更高的温度,但通常将燃烧空气流(7)加热到约600°C~750°C的最低温度。高于自燃温度的较高温度在机械上趋于不利。热的燃烧空气作为流(9)分配到燃烧区中。如果需要,可以通过使用合适的催化燃烧装置来降低自燃温度。

[0442] 冷的或外部部分预热的燃料气流(10)经由燃烧器喷嘴(109)引入燃烧区的空气中,其在燃烧区中燃烧(11)形成燃烧产物流(12),该燃烧产物流通过对流和气体辐射将热量传递到工艺管(101),然后传递到工艺气流(4)和第二催化区(102)。

[0443] 外壳或壳体(104)的内壁包覆有合适的耐火材料(106),以对外壳或壳体(104)提供保护,并使外部热量损失最小。

[0444] 图5中示出了适用于本发明的蒸汽重整系统的以下组件:

[0445] 设备项目

[0446] 201. 脱硫容器

[0447] 202. 原料饱和器

[0448] 203. 饱和器水循环泵

[0449] 204. 原料/重整气体热交换器

[0450] 205. 预重整器

[0451] 206. 双对流重整器=本发明的装置

- [0452] 207. 高温CO变换反应器(可选的-仅用于H₂生产)
- [0453] 208. 重整气体饱和器热水器
- [0454] 209. 低温CO变换反应器(可选的-仅用于H₂生产)
- [0455] 210. 饱和补水加热器
- [0456] 211. 重整气体冷却器
- [0457] 212. 重整气分离器
- [0458] 213. 燃烧空气压缩机
- [0459] 214. 燃烧产物膨胀器
- [0460] 215. 燃烧空气加热器
- [0461] 216. 燃烧空气预热器
- [0462] 217. 脱硫预热器
- [0463] 218. 燃烧产物饱和器热水器
- [0464] 219. 低级余热回收换热器
- [0465] 220. 燃烧产物冷却器
- [0466] 221. 燃烧产物分离器
- [0467] 流编号
- [0468] 301 天然气原料
- [0469] 302 氢气回收
- [0470] 303 至脱硫单元的预热原料
- [0471] 304 至饱和器的脱硫原料
- [0472] 305 至DCR的脱硫燃料气体
- [0473] 306 至CA(Combustion air,燃烧空气)加热器的脱硫燃料气体
- [0474] 307 冷却的饱和器循环水
- [0475] 308 热的饱和器循环水
- [0476] 309 饱和进料气体
- [0477] 310 加热的预重整器进料
- [0478] 311 DCR进料
- [0479] 312 DCR重整气体产物
- [0480] 313 部分冷却的重整气体
- [0481] 314 部分冷却的重整气体
- [0482] 315 部分冷却的重整气体
- [0483] 316 冷却的分离重整气体
- [0484] 317 工艺冷凝物
- [0485] 320 大气燃烧空气
- [0486] 321 压缩的预热燃烧空气
- [0487] 322 至DCR的加热燃烧空气
- [0488] 323 来自DCR的燃烧产物
- [0489] 324 部分冷却的燃烧产物
- [0490] 325 冷却的分离燃烧产物

[0491] 326 蒸汽冷凝水

[0492] 327 至膨胀器的燃烧产物

[0493] 328 排入大气的燃烧产物

[0494] 图6A和图6B示出了用于布置第二催化区的细长管(101)和燃烧器喷嘴(109)的两种不同的选项。其它布置也是可能的,但是就效率和热量分布均匀而言,这些是有益的布置。在这些布置中,使用燃烧器喷嘴和细长管交替的三角形或正方形布置,并且使用大约相等数量的燃烧器喷嘴和细长管。图6A示出了正方形布置,而图6B示出了三角形布置。两种布置都允许每个燃烧器喷嘴向多个细长导管提供热量。

[0495] 尽管在优选实施方式中,第三方面的工艺管组件用于第一方面的方法中并且存在于第二方面的装置中,但是第三方面的工艺管组件也可以用于其它方法和装置中。图7示出了一这样的实施方式。图7是示意图,并且仅示出了工艺管组件的一部分,但是应当理解,图7的重点是在不同的环境中利用工艺管组件进行的改变,其中,加热工艺管组件中的催化剂所需的热气体在在组件的远端(上游)生产。

[0496] 工艺管组件401包括以同心布置设置的内管和外管402。可以在组件内看到第二重整催化剂床403。

[0497] 部分重整的气体405可流过的内部导管404穿过第二重整催化剂部分。

[0498] 热燃烧产物406被提供给组件,其在组件的远端(上游)生产。

[0499] 通过在工艺管组件401的端部401a处包括一层或多层辐射屏蔽层407和隔热层408,对工艺管组件401进行了适配,以显著减小外管402该位置处的热负荷。辐射屏蔽层407和隔热层408中可能只有一者被用来实现这一点,但是在所示的实施方式中,两者都存在。

[0500] 还必须除去外管402底部的热量以维持合适的最大壁温度。例如,管组件401可配置成邻近工艺管组件壁而形成流路409,使得工艺流体流动接触工艺管组件壁,以去除在工艺管组件401的端部401a附近的外管402的热量。

[0501] 根据图3B所示的装置,以下表1中列出了根据本发明的方法的操作数据示例。根据前面描述的优选布置,假定原料已通过紧接装置上游的隔热预重整器,而燃烧空气已使用附加的燃料气体(表1中未示出)预热到燃料自燃温度以上。

[0502] 该示例基于离开装置的重整气体压力为3410千帕。这需要原料入口压力为4110千帕,表明整个装置的压差为700千帕。这种相对较高的压差是由于需要在相对较小的催化剂颗粒尺寸上提供较高的工艺气体速度,以便在催化剂床中产生高的热传递系数从而确保充分的重整,并在细长导管(工艺管)壁上产生较高的热传递系数,以便最小化管壁温度。

[0503] 示例中流动气体的空速约为 1400小时^{-1} ,该空速在重整催化剂的典型范围之内,但在较高端,而在预重整型催化剂的典型范围的低端。典型的预重整催化剂的特征尺寸(大小)与催化区所需的特征尺寸(大小)相似。

[0504] 因此,就典型的催化剂体积以及表面积和活性而言,可以看出,本发明的装置的总催化剂体积足以实现所需的重整量。

[0505]

表 1: 流数据

流编号	1	2	5	6	10	7	13	14
流描述	至重整器的原料	部分重整的气体	热的重整气体	最终的重整气体产物	至燃烧区域的燃料气体	至燃烧区域的燃烧空气	热燃烧产物	最终燃烧产物
H ₂ O	5,425.1	4,032.2	3,156.3	3,156.3	0.0	379.5	1,458.7	1,458.7
H ₂	167.3	3,392.1	6,262.8	6,262.8	21.0	0.0	0.0	0.0
CO	0.2	439.4	1,558.4	1,558.4	6.0	0.0	0.0	0.0
CO ₂	159.1	635.9	514.4	514.4	22.0	134.2	705.0	705.0
CH ₄	2,226.5	1,310.5	313.1	313.1	495.1	0.0	0.0	0.0
C ₂ H ₆	0.0	0.0	0.0	0.0	15.1	0.0	0.0	0.0
C ₃ H ₈	0.0	0.0	0.0	0.0	3.3	0.0	0.0	0.0
C ₄ H ₁₀	0.0	0.0	0.0	0.0	1.9	0.0	0.0	0.0
N ₂	125.2	125.2	125.2	125.2	30.0	5,107.1	5,137.1	5,137.1
A	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	60.7	60.7	60.7
O ₂	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	1,122.3	37.0	37.0
kg mol/hr	8,103.5	9,935.4	11,930.3	11,930.3	594.4	6,803.9	7,398.5	7,398.5
kg/hr	144,307	144,307	144,307	144,307	10,671	194,151	204,821	204,821
mol wt.	17.808	14.525	12.096	12.096	17.954	28.535	27.684	27.684
温度 (°C)	352	757	950	469	380	650	1,050	529
压力 (kPa)	4,110	3,700	3,420	3,410	4,310	3,420	3,420	3,410

区	1	2	总计
每个区的催化剂体积百分比	53.4%	46.4%	100.0%
每个区的甲烷转化率	41.1%	44.8%	85.9%
每个区的热负荷	347.7	315.6	663.3 GJ/hr
每个区的热负荷百分比	52.4%	47.6%	100.0%

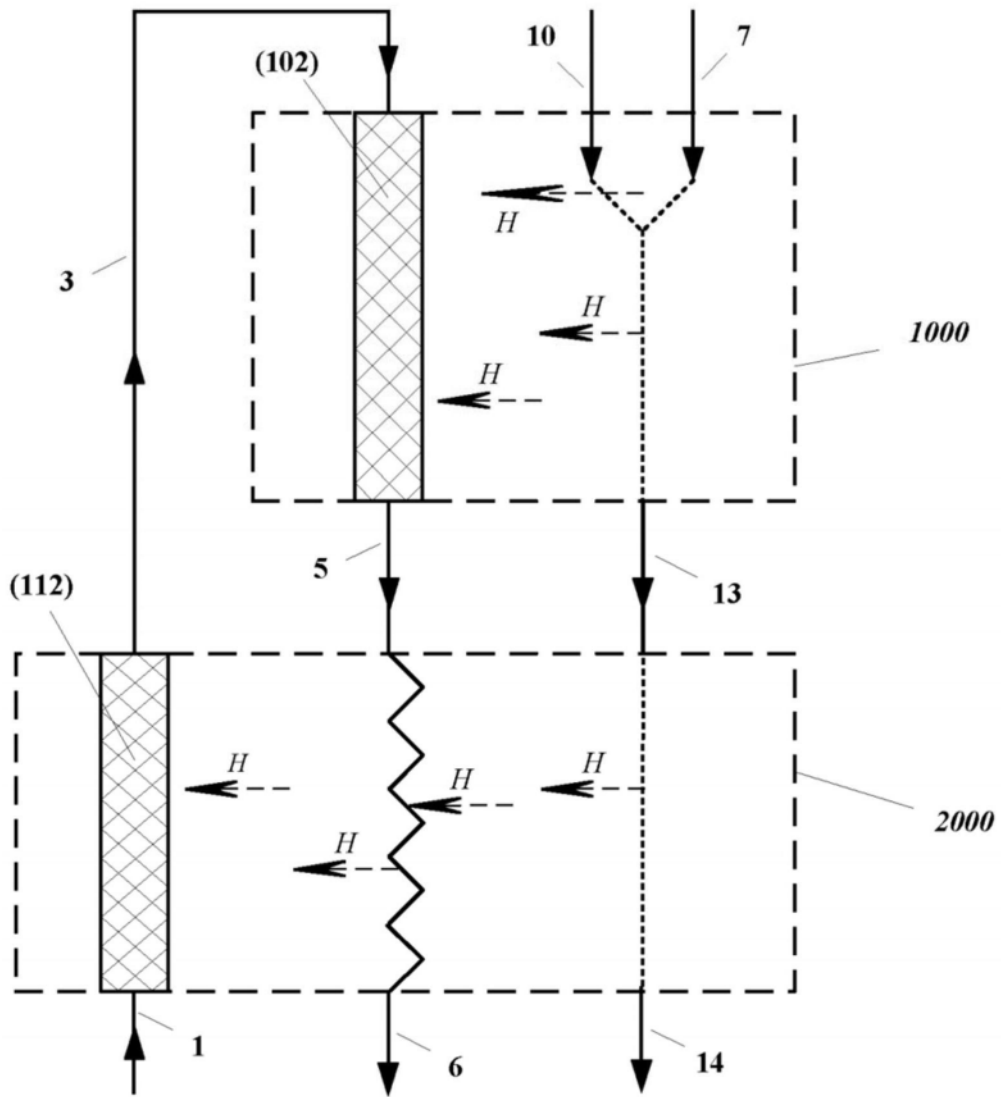


图1

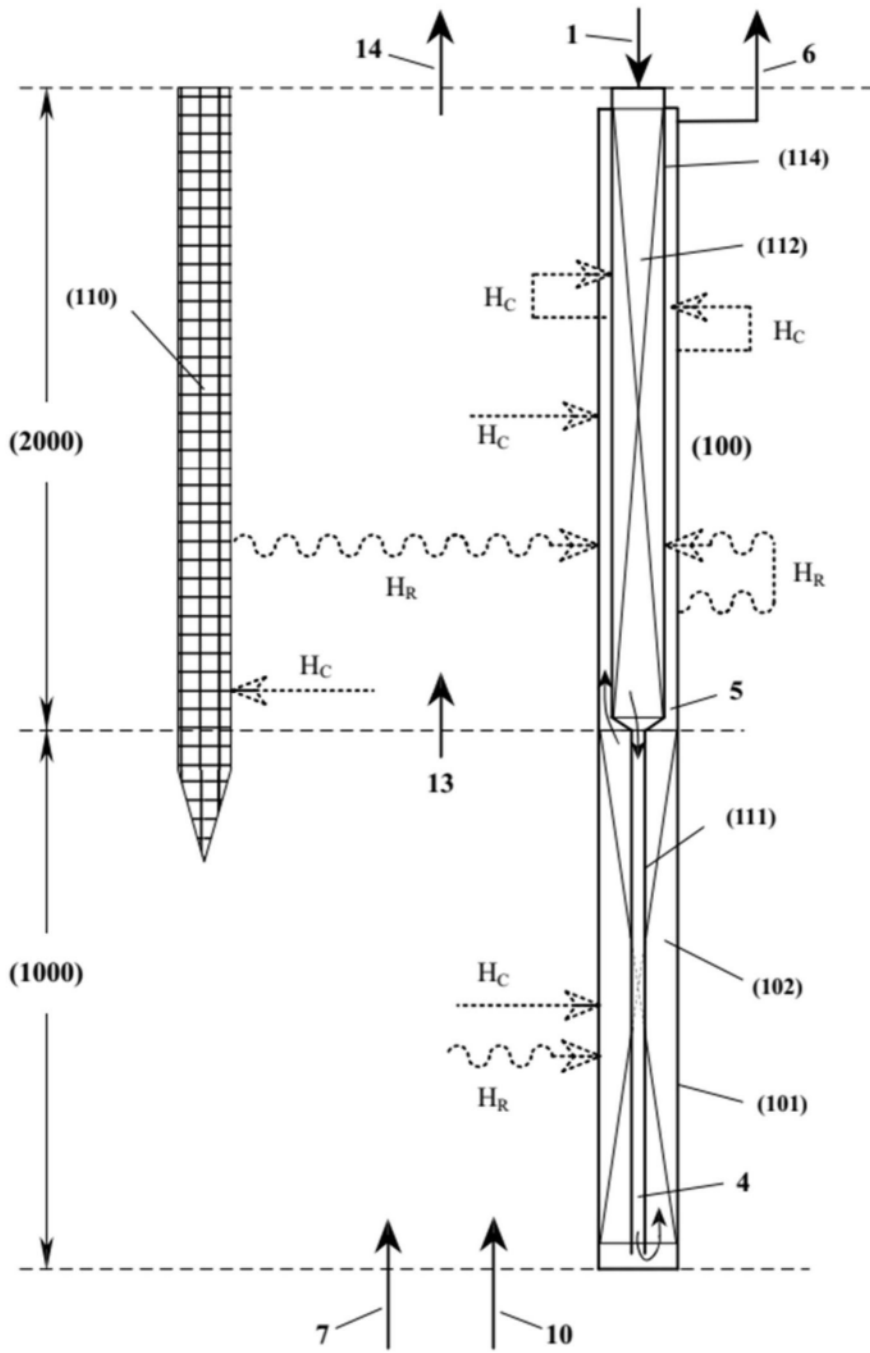


图2A

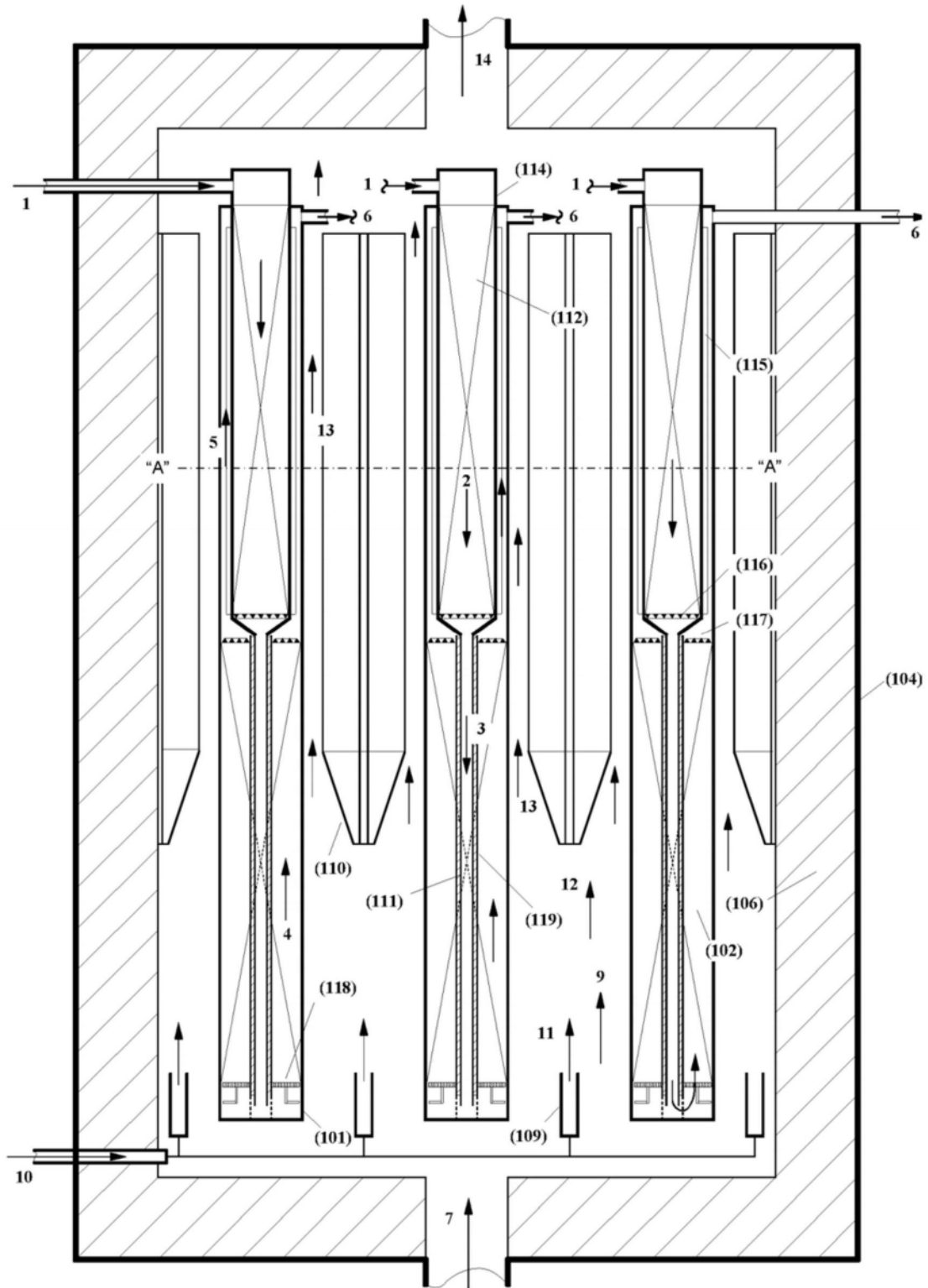


图3A

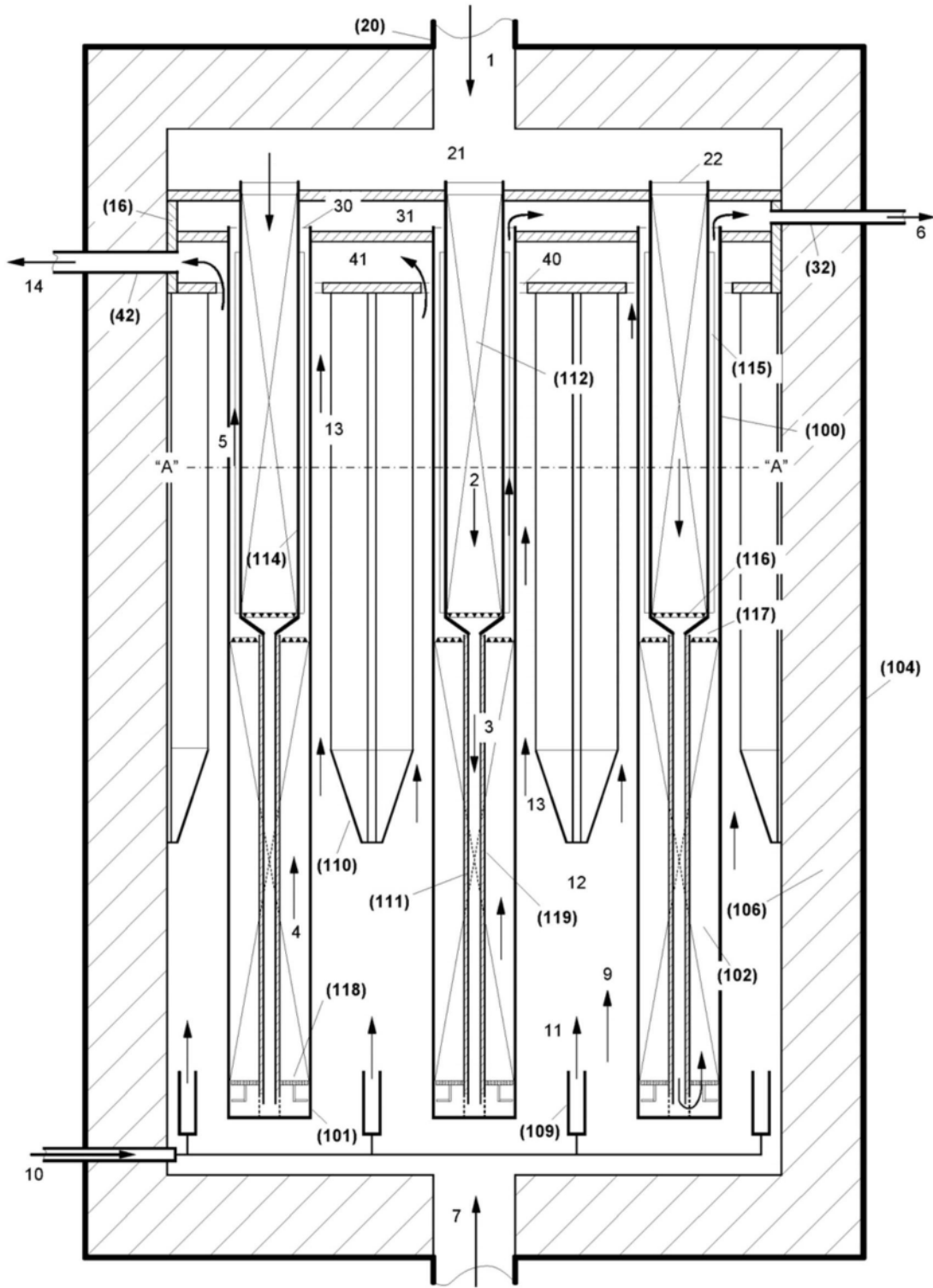


图3B

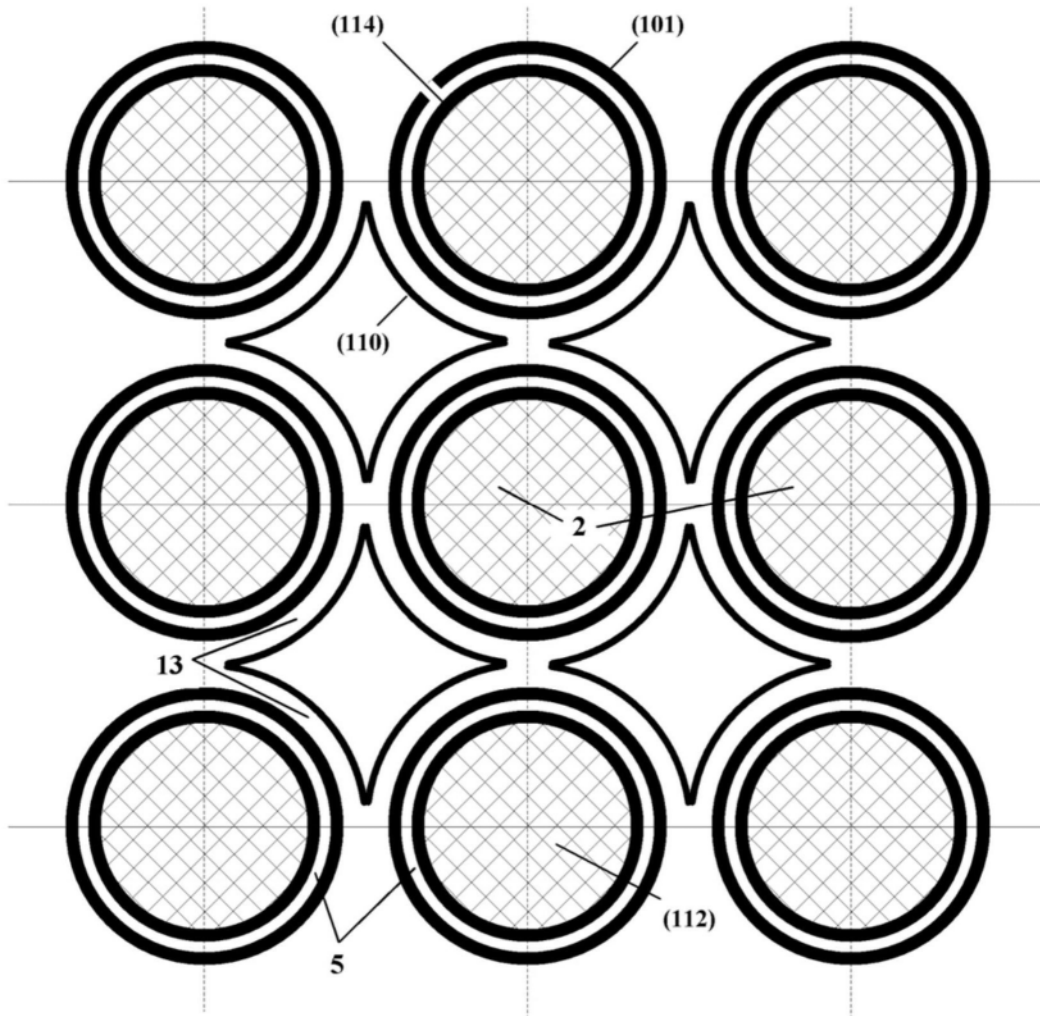


图4

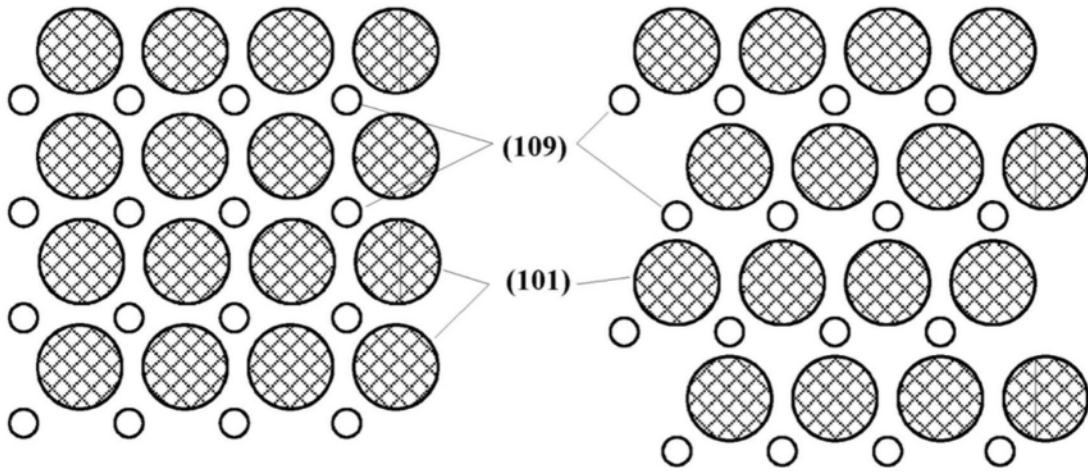


图 6A

图 6B

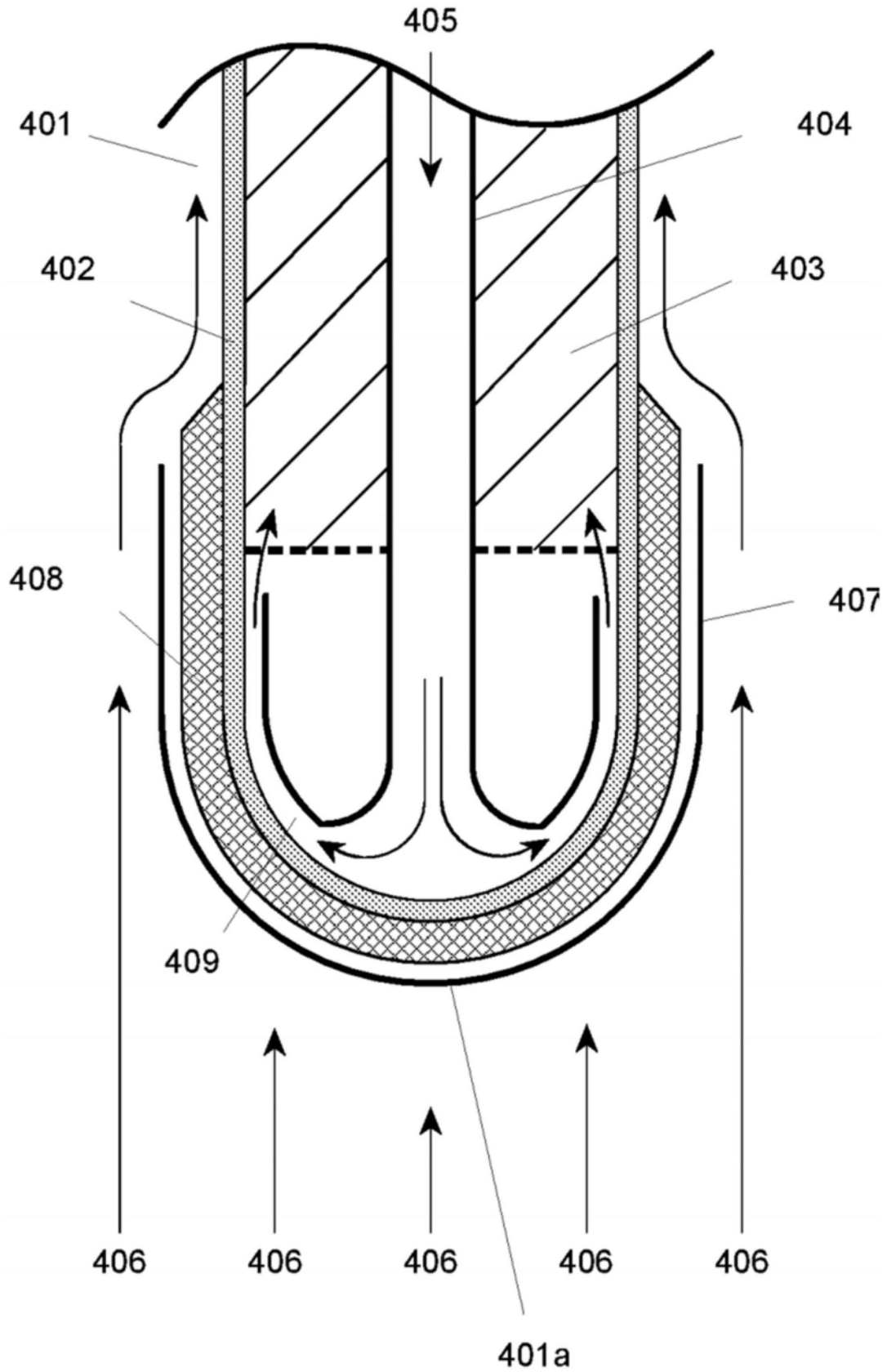


图7