



(12) **BREVET DE INVENȚIE**

Hotărârea de acordare a brevetului de invenție poate fi revocată
în termen de 6 luni de la data publicării

(21) Nr. cerere: **96-02117**

(22) Data de depozit: **15.02.1995**

(30) Prioritate: **11.05.1994 CH 01 471/94-2;**
23.12.1994 CH 03 904/94-6

(41) Data publicării cererii:
BOPI nr.

(42) Data publicării hotărârii de acordare a brevetului:
30.09.2003 BOPI nr. **9/2003**

(45) Data eliberării și publicării brevetului:
BOPI nr.

(61) Perfecționare la brevet:
Nr.

(62) Divizată din cererea:
Nr.

(86) Cerere internațională PCT:
Nr. **EP 95/00554 15.02.1995**

(87) Publicare internațională:
Nr. **WO 95/31278 23.11.1995**

(56) Documente din stadiul tehnicii:
RO 72557; EP 0487985A

(71) Solicitant: **UREA CASALE S.A., LUGANO-BESSO, CH**

(73) Titular: **UREA CASALE S.A., LUGANO-BESSO, CH**

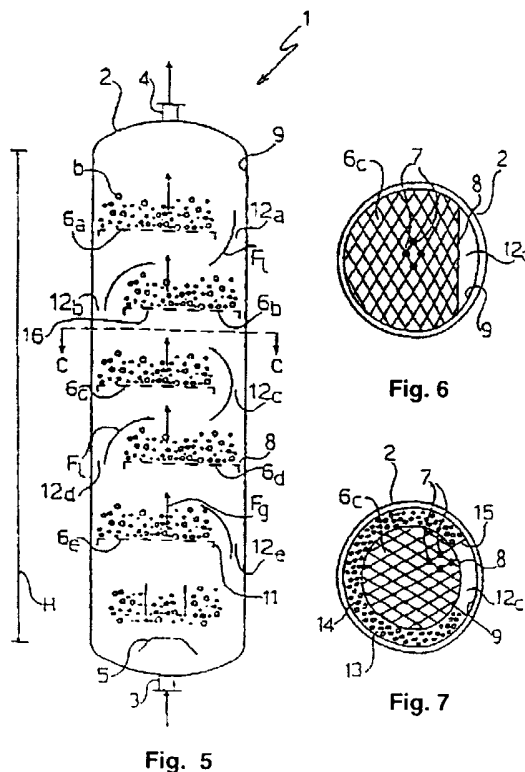
(72) Inventatori: **ZARDI FEDERICO, BREGANZONA, CH; SILVA PAOLO, CEMERANTE, IT**

(74) Mandatar: **ROMINVENT S.A., BUCUREȘTI**

(54) **REACTOR PENTRU REACȚII BIFAZICE, ÎN SPECIAL PENTRU
SINTEZA UREEI LA PRESIUNE ȘI TEMPERATURI ÎNALTE**

(57) **Rezumat:** Invenția se referă la un reactor pentru reacție bifazică, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperaturi înalte, alcătuit dintr-o manta cilindrică verticală, exterioară (2), ce delimitează un spațiu interior în care sunt fixate o multitudine de talere perforate orizontale, suprapuse (6a - 6e), echidistante și prevăzute cu cel puțin o deschidere (12a - 12e) pentru circulația lichidului, corespunzătoare fiecărui taler perforat. Deschiderile (12a - 12e) pentru curgerea lichidului sunt decalate reciproc, astfel încât să se obțină o circulație în zig-zag preferențială, a fazei lichide, în reactor. Invenția se mai referă la metode de obținere a reactorului conform invenției prin optimizarea *in situ* a unui reactor pentru reacții bifazice, care cuprinde etapa de formare, în cel puțin două dintre talerele perforate adiacente (6a - 6e), a unor deschideri (12a - 12e) decalate reciproc, precum și etapa de obturare parțială a unor deschideri (10) definite în legătură cu cel puțin două talere perforate, adiacente (6a - 6e), cu ajutorul unor ecrane (13) care definesc deschiderile (12a - 12e) pentru circulația lichidului.

Revendicări: 31
Figuri: 9



Prezenta invenție se referă, în general, la un reactor pentru reacții bifazice, în special, pentru sinteza ureei la presiune și temperaturi înalte, de tip care cuprinde o manta exterioară cilindrică verticală, o multitudine de talere perforate, suprapuse, orizontale și echidistante în mantaua menționată, și cel puțin o deschidere pentru fluxul de lichid, definită în legătură cu

5

fiecare dintre talerele perforate.

Prezenta invenție se mai referă, de asemenea, la metode de obținere a reactorului menționat mai sus, prin modernizarea *in situ* a reactoarelor pentru reacții bifazice, în special, pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înaltă.

10

În descrierea prezentată mai jos și în revendicări, termenul modernizare *in-situ* înseamnă modificarea, pe loc, a unui reactor pre-existent pentru a-i îmbunătăți performanța și a obține, de exemplu, o capacitate de producție mai mare și/sau conversie mai mare și/sau reducere a consumului de energie. În terminologia din domeniu acest tip de modernizare este denumit de asemenea "retroajustare" sau "recondiționare".

15

În domeniul reacțiilor bifazice, la presiune și temperaturi înalte, de exemplu, pentru sinteza sau hidroliza ureei, se simte din ce în ce mai pregnant necesitatea creșterii conversiei reactoarelor de sinteză pentru a îmbunătăți capacitatea lor de producție și a reduce consumul de energie a instalațiilor în care aceste reactoare operează.

20

Pentru a satisface această cerință, au început să fie utilizate din ce în ce mai mult reactoare de sinteză, alcătuite dintr-o manta verticală tubulară în care sunt fixate o multitudine de talere perforate orizontale, suprapuse, echidistante. Produsul de reacție, de exemplu ureea, se obține punând în contact intim o fază lichidă și o fază gazoasă constând din amoniac și respectiv bioxid de carbon (CO_2) care circulă în manta de jos în sus. Talerele perforate au funcția de a amesteca fazele menționate pentru a facilita contactul lor intim și deci transferul de masă și căldură, indispensabile pentru conversia reactanților, amoniac și CO_2 , în uree. Reactoarele de sinteză pentru reacții bifazice, conform informațiilor din domeniu, sunt în principal de două tipuri depinzând de talerele perforate utilizate.

25

Un prim tip de reactor prezentat în figura 1 constă dintr-o multitudine de talere perforate suprapuse orizontale care ocupă toată secțiunea reactorului și în care există o multitudine de găuri pentru trecerea fluxului bifazic de gaz și lichid. Întrucât fazele lichidă și gazoasă trec prin aceleași găuri, există o trecere alternativă a gazului și lichidului cu o circulație pulsatorie care împiedică amestecarea intimă gaz-lichid. Ca rezultat coeficienții de transfer de masă și căldură sunt scăzuți și deci conversia este scăzută.

30

Într-un alt caz prezentat în figura 3 reactorul de sinteză cuprinde o multitudine de talere orizontale perforate suprapuse echidistante. Între marginea fiecăruia dintre aceste talere și peretele interior al reactorului este definită o deschidere inelară îngustă. Chiar în acest caz totuși nu este posibilă obținerea amestecării intime între faza lichidă și faza gazoasă deoarece lichidul circulă preferențial de-a lungul deschiderilor periferice înguste menționate în vreme ce gazul tinde să se grupeze în partea centrală a reactorului.

35

Întrucât nu asigură contactul intim eficient între reactanți, reactoarele existente cunoscute în domeniu nu sunt în măsură să permită un transfer optim de masă și căldură, care constituie condiția de bază pentru obținerea conversiei optime. Reactoarele menționate operează de aceea mult sub capacitatea lor de producție potențială ceea ce are drept rezultat un consum ridicat de energie al instalației, de exemplu pentru producerea ureei, în care operează reactoarele menționate.

40

Problema tehnică, pe care o rezolvă invenția, este realizarea reactoarelor de sinteză, capabile să opereze cu conversii ridicate, astfel încât să se obțină o capacitate de producție mai ridicată și un consum de energie mult mai mic decât acelea ale lor unor instalații existente cunoscute în domeniu, prezentate mai sus.

45

Problema tehnică, de mai sus, este rezolvată conform prezentei invenții, prin realizarea unui reactor de tipul prezentat mai sus, dar caracterizat prin aceea că deschiderile pentru circularea lichidului definit, în legătură cu cel puțin două talere perforate adiacente, sunt decalate reciproc. În descrierea ce urmează și în următoarele revendicări termenul "deschideri decalate" semnifică o multitudine de deschideri proiectate, în esență, pentru trecerea fazei lichide, a căror proiecție nu se suprapune pe deschiderile corespondente de pe talerele perforate adiacente. S-a constatat că datorită construcției reactorului conform prezentei invenții faza lichidă circulă în acesta în mod preferențial în zig-zag formând un flux care traversează fluxul fazei gazoase în principal vertical.

Astfel, este posibilă obținerea amestecării continue a fazelor menționate de-a lungul întregii traiectorii de curgere, definită, între talerele perforate adiacente. Există astfel un contact intim în mod avantajos sporit între reactanți, rezultând creșterea coeficientului de transfer de masă și căldură între lichid și gaz. În mod avantajos reactorul conform prezentei invenții permite obținerea unei conversii avansate optimizând capacitatea de producție a acestuia și reducând la minimum consumul de energie al instalației în care operează reactorul. Într-o aplicație foarte avantajoasă și preferată a prezentului reactor cel puțin unul dintre talerele perforate adiacente este împărțit în mai multe sectoare perforate și neperforate alăturate. În mod avantajos sectoarele perforate și neperforate de pe cel puțin unul dintre talerele perforate menționate sunt situate între o margine adiacentă deschiderii pentru fluxul de lichid și o margine opusă adiacentă unui perete interior al mantalei. Datorită acestei configurații speciale a talerelor perforate este posibilă mărirea suplimentară a amestecării între faza gazoasă și faza lichidă și deci a randamentului reactorului. Într-adevăr prezența în talere a sectoarelor neperforate facilitează penetrarea fazei lichide, circulând dintr-un taler pe altul de-a lungul unei traiectorii de circulare în zig-zag, în faza gazoasă care traversează reactorul de-a lungul unei traiectorii de circulare în principal vertical. Practic când circulă peste un taler perforat faza lichidă este divizată în mai multe fluxuri care traversează fluxurile fazei gazoase care ies din sectoarele perforate ale talerului. Fluxurile gazoase la rândul lor determină aspirarea fluxurilor de lichid care circulă alături de ele.

Această multitudine de fluxuri alternante, lichide și gazoase, în contact direct unele cu altele, are ca rezultat o creștere a suprafeței de transfer între faze, în timpul trecerii acestora din urmă de la un taler la următorul și astfel determină o creștere a contactului intim între reactanți care facilitează transferul de masă și căldură. Rezultatul obținut prin divizarea cel puțin a unui taler perforat în sectoare perforate și neperforate se concretizează astfel în amestecarea mai rapidă și mai intimă a fazei gazoase și a fazei lichide. S-a constatat de asemenea că amestecarea optimă este obținută când sectoarele perforate și neperforate sunt în principal rectilinii, paralele și de preferință au aceeași lărgime. În mod avantajos deschiderile pentru curgerea lichidului în reactor conform prezentei invenții sunt realizate din părți diametral opuse ale talerelor adiacente încât să crească la maximum traiectoria de curgere a lichidului între talere perforate adiacente pentru a mări contactul intim între reactanți. Conform unui alt aspect al prezentei invenții se realizează o metodă de modernizare in situ a unui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură ridicate, de tipul prezentat mai sus și caracterizat prin aceea că are loc circulația în curent paralel a fazei gazoase și a fazei lichide.

Într-o primă îmbunătățire adusă de invenție, metoda prezentei invenții se referă la obținerea unui reactor prin modernizarea in-situ a acestui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperaturi ridicate, de tipul în care are loc circulația în curent paralel a fazei gazoase și a fazei lichide, și este alcătuit dintr-o manta tubulară verticală în care sunt fixate o multitudine de talere perforate suprapuse echidistant, talerele menționate ocupând în poziție orizontală în respectiva manta, întreaga secțiune transversală a acesteia. În acest caz metoda se caracterizează prin aceea că aceasta cuprinde etapa de formare în cel puțin două talere adiacente perforate a unor deschideri respective decalate reciproc pentru circulația lichidului.

50

55

60

65

70

75

80

85

90

95

100

Într-o a doua îmbunătățire adusă de invenție metoda conform prezentei invenții se referă la modernizarea in-situ a unui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură ridicată fiind de tipul în care are loc circularea în curent paralel a fazei gazoase și a fazei lichide, și care este alcătuit dintr-o manta tubulară verticală în care sunt fixate o multitudine de talere perforate orizontale suprapuse echidistante, cel puțin o deschidere îngustă fiind definită între o margine perimetrică a fiecărui taler menționat și un perete interior al mantalei menționate. În acest caz, metoda se caracterizează prin aceea că, aceasta cuprinde etapa de obturare parțială a deschiderilor înguste definite în legătură cu cel puțin două talere adiacente cu ajutorul unor ecrane, aceste ecrane definind deschiderile decalate reciproc pentru fluxul de lichid.

Într-o a treia îmbunătățire adusă de invenție, metoda conform prezentei invenții se referă la formarea in-situ a zonei de reacție a reactorului conform invenției pentru modernizarea in-situ a unui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură ridicată pentru tipul în care are loc curgerea în curent paralel a fazei gazoase și a fazei lichide, și fiind alcătuit dintr-o manta tubulară verticală în care sunt fixate o multitudine de talere perforate orizontale suprapuse echidistante, cel puțin o deschidere îngustă fiind definită între marginea fiecărui taler menționat și un perete interior al mantalei menționate. În acest caz metoda se caracterizează prin aceea că, aceasta cuprinde etapele de obturare a deschiderilor înguste definite în legătură cu cel puțin două talere adiacente cu ajutorul ecranelor, și de formare în talerele adiacente menționate a deschiderilor respective decalate reciproc pentru fluxul de lichid.

Într-o îmbunătățire preferată adusă de invenție, metoda prezentei invenții cuprinde în plus etapa de formare în cel puțin unul dintre aceste talere perforate adiacente a mai multor sectoare perforate și neperforate alăturate. De preferință sectoarele perforate și neperforate adiacente sunt prevăzute astfel încât să obtureze în zone prestabilite găurile prezente în cel puțin unul dintre talerele perforate adiacente menționate. Ca o alternativă, metoda conform prezentei invenții cuprinde etapa adițională de dispunere în manta a cel puțin unui taler perforat care cuprinde o mulțime de sectoare perforate și neperforate alăturate.

Invenția se mai referă la o metodă pentru creșterea conversiei și a capacității de producție a unui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară în care sunt fixate mai multe talere perforate orizontale suprapuse echidistante și este definită cel puțin o deschidere pentru circularea lichidului în legătură cu fiecare dintre talerele perforate menționate, caracterizată prin aceea că, cuprinde următoarele etape:

- determinarea fazei lichide ureice să circule în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară, de jos în sus de-a lungul unei traiectorii în zig-zag definite între deschiderile menționate pentru curgerea lichidului,
- determinarea fazei gazoase să circule în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară, de jos în sus de-a lungul unei traiectorii în principal rectilinii definite între talerele perforate menționate care traversează traiectoria în zig-zag a lichidului, și
- realizarea între talerele perforate menționate a unei amestecări continue a fazei lichide cu faza gazoasă care circulă de-a lungul traiectoriilor care se intersectează ale lichidului și gazului, astfel încât să se îmbunătățească contactul intim și coeficienții de transfer de masă și căldură.

De asemenea invenția mai prezintă o metodă pentru îndepărtarea ureei dintr-o fază lichidă, inclusiv ureea din soluție apoasă, cu ajutorul unui reactor pentru reacții bifazice, în special pentru hidroliza ureei la presiune și temperaturi înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară

- care delimitează un spațiu interior în care sunt fixate o mulțime de talere perforate orizontale suprapuse echidistante și este definită cel puțin o deschidere pentru circulara lichidului în legătură cu fiecare dintre talerele perforate menționate, caracterizată prin aceea că, cuprinde următoarele etape:
- determinarea fazei lichide care conține uree să circule de jos în sus în spațiul interior delimitat în mantaua exterioară de-a lungul unei traiectorii în zig-zag definite între deschiderile menționate pentru circulara lichidului; 150
 - determinarea unui agent de stripare în fază gazoasă să circule de jos în sus în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară de-a lungul unei traiectorii în principal rectilinii definite între talerele perforate menționate care traversează traiectoria în zig-zag a lichidului, și 155
 - realizarea între talerele perforate menționate a unei amestecări continue a fazei lichide cu faza gazoasă care circulă de-a lungul traiectoriilor intersectate ale lichidului și gazului, astfel încât să se îmbunătățească contactul intim și coeficienții de transfer de masă și căldură pentru a facilita reacția de hidroliză a ureei. 160
- Se prezintă în continuare îmbunătățirile reactorului conform invenției, în care sunt evidențiate caracteristicile și avantajele prezentei invenții cu referire la desenele anexate. 165
- Descrierea menționată se referă, în special, la sinteza ureei la presiune și temperatură înaltă. Este totuși clar că următoarea descriere poate fi de asemenea aplicată și pentru alte tipuri de reacții bifazice ca de exemplu reacția de hidroliză a ureei.
- Se redă mai jos semnificația fig. 1...9. 170
- fig.1, vederea secțiunii longitudinale a unui reactor convențional pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la temperatură și presiune înaltă;
 - fig.2, vederea secțiunii transversale a reactorului din fig.1 de-a lungul liniei **A-A**, din fig.1;
 - fig.3, vederea secțiunii longitudinale a unui reactor convențional pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la temperatură și presiune înaltă;
 - fig.4, vederea secțiunii transversale a reactorului din fig.3 de-a lungul liniei **B-B**, din fig.3;
 - fig.5, vederea secțiunii longitudinale a unui reactor convențional conform prezentei invenții pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la temperatură și presiune înaltă; prezintă, de asemenea, vederea secțiunii longitudinale a unui reactor obținut prin modificarea reactorului din fig.1 și fig.3 prin metoda de modernizare conform unui alt obiect al prezentei invenții;
 - fig.6, vederea secțiunii reactorului conform prezentei invenții de-a lungul liniei **C-C**, din fig.5; prezintă, de asemenea, vederea secțiunii transversale de-a lungul liniei **C-C**, din fig.5 a unui reactor obținut prin modificarea reactorului din fig.1;
 - fig.7, vederea secțiunii transversale de-a lungul liniei **C-C** din fig.5, a unui reactor obținut prin modificarea reactorului din fig.3;
 - fig.8, vederea secțiunii transversale a unei alternative a reactorului conform prezentei invenții de-a lungul liniei **C-C**, din fig.5; de asemenea, prezintă vederea secțiunii de-a lungul liniei **C-C**, din fig.5 a unui reactor alternativ obținut prin modificarea reactorului din fig.1;
 - fig.9, vederea secțiunii transversale de-a lungul liniei **C-C**, din fig.5, a unui reactor alternativ, obținut prin modificarea reactorului din fig.3. 180
- În ceea ce privește fig. 1 - 4, numărul de referință **1** indică în totalitate un reactor, în mod special adecvat sintezei ureei la presiune înaltă (100 - 300 bar) și temperatură mare (180 - 220°C). Reactorul **1** constă dintr-o manta **2**, având la capetele sale duzele **3**, **4** pentru admisia de reactivi reci și reciclați inclusiv amoniacul și CO₂ și respectiv evacuarea 185
- 190
- 195

200 produşilor de reacţie. Reactanţii trec prin reactorul **1** în forma unei faze lichide şi a unei faze gazoase. Reactoarele **1** de tipul ilustrat în figura 3, sunt de obicei prevăzute cu două duze de evacuare independente, care nu au fost figurate, pentru evacuarea separată a unei faze lichide şi respectiv a unei faze gazoase. Un deflector **5** este prevăzut în mantaua **2** lângă duza **3** pentru a orienta curentul de reactivi care intră în reactorul **1**. Reperele **6a - 6e** indică o multitudine de talere perforate orizontale suprapuse echidistante. Talerele **6a - 6e** prezintă o mulţime de orificii indicate prin reperul **7** şi de dimensiuni predeterminate de exemplu între 205 3 mm şi 12 mm. În general talerele perforate sunt distribuite de-a lungul înălţimii utile **H** a reactorului şi au funcţia de a distribui faza gazoasă într-o mulţime de bule de diametru mic pentru a mări suprafaţa de transfer de masă şi căldură între amoniac şi CO_2 .

În exemplul din fig.1, talerele perforate **6a - 6e** ocupă în poziţie orizontală toată secţiunea mantalei **2**. În exemplul din fig.3, talerele perforate menţionate **6a - 6e** au un diametru mai mic decât diametrul interior al mantalei **2**, astfel încât să definească între marginea **8** a fiecărui taler **6a - 6e** şi peretele interior **9** al mantalei **2** o deschidere inelară îngustă **10**. Talerele perforate **6a - 6e** din fig.3 sunt, de asemenea, prevăzute cu un guler **11** care se extinde în jos de-a lungul întregii margini **8** a talerului. În fig.1, săgeţile **F** indică traiectoria de circulare a fluxului reactanţilor prin talerele perforate **6a - 6e**. Comportarea fazei gazoase şi a fazei lichide în reactorul **1** este similară aceleia a unui reactor cu circulare de tip piston întrucât lichidul şi gazul nu pot trece simultan prin orificiile **7**, ci sunt forţate să o facă alternativ. În fig.3, săgeţile **Fg** şi **F₂** indică traiectorii de curgere ale fazei gazoase şi respectiv ale fazei lichide în reactorul **1**.

În fig.5, este prezentat în întregime un reactor adecvat în mod special pentru sinteza ureei la presiune şi temperatură înaltă conform prezentei invenţii. În figura menţionată detaliile reactorului **1** echivalent structural şi funcţional cu acelea prezentate în fig.1 - 4 sunt indicate prin aceleaşi repere numerice de referinţă şi nu mai sunt descrise suplimentar.

Corespunzător cel puţin la două talere perforate adiacente **6a - 6e** ale reactorului **1** din fig.5 sunt definite deschiderile respective **12a - 12e** pentru circulaţia fluxului de lichid, decalate reciproc astfel încât să se formeze o traiectorie de curgere preferenţială pentru faza lichidă în esenţă în zig-zag prezentată de săgeata **F_l**. Talerele perforate **6a - 6e** sunt fixate în manta într-un mod convenţional şi sunt practic prevăzute în principal aderente la peretele interior **9**, cu excepţia unui spaţiu de câţiva milimetri necesar protecţiei împotriva coroziunii. Fiecare deschidere **12a-12e** pentru fluxul lichid este la rândul ei de preferinţă definită prin părţi diametral opuse în legătură cu deschiderile **12a - 12e** pentru fluxul de lichid format pe talerele adiacente **6a - 6e**. Într-o realizare preferată, deschiderile **12a - 12e** pentru curgerea lichidului au în esenţă forma unui segment circular conform fig.6. În mod alternativ deschiderile pentru curgerea lichidului pot fi obţinute prin una sau mai multe deschideri poligonale, circulare sau elipsoidale. Faza gazoasă care este determinată să treacă prin mantaua **2** în curent paralel de-a lungul unei traiectorii indicate în fig.5 cu ajutorul săgeţii **Fg**, este distribuită prin trecerea prin orificiile **7** sub forma unei mulţimi de bule mici **b** care traversează traiectoria lichidului definită între talerele perforate adiacente în timpul amestecării. Astfel este posibilă creşterea contactului intim între reactanţi şi în consecinţă obţinerea unei conversii mărite în acelaşi timp cu optimizarea capacităţii de producţie a reactorului şi reducerea la minim a consumului de energie al instalaţiei de sinteză a ureei. Rezultate deosebit de satisfăcătoare s-au obţinut cu o suprafaţă a secţiunii transversale a deschiderilor **12a - 12e** pentru curgerea lichidului între **1** şi 10% din suprafaţa secţiunii transversale a mantalei **2**.

Conform unei aplicaţii a reactorului conform prezentei invenţii, dar care nu a fost prezentată, deschiderile **12a - 12e** pentru curgerea lichidului corespunzătoare talerelor perforate adiacente **6a - 6e** pot fi definite în mod alternativ lângă axa longitudinală a mantalei şi între marginea **8** a talerelor şi respectiv, un perete interior **9** al mantalei. În ultimul caz se obţine mişcarea radială centrifugă/centripetă a fazei lichide.

Fig.5 prezintă, de asemenea, un reactor în mod adecvat pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înaltă, obținut prin modificarea reactorului din fig.1 și respectiv fig.3, printr-o metodă de modernizare conform unui alt obiect al prezentei invenții.

250

Conform primei aplicații a metodei conform prezentei invenții reactorul 1 din fig.1 este modernizat prin formarea pe cel puțin două din talerele perforate adiacente 6a - 6e a deschiderilor respective 12a - 12e pentru circulația fluxului de lichid, situate decalat astfel, încât să se formeze o traiectorie de curgere preferențială a fazei lichide în zig-zag după cum arată săgeata F₁ în fig.5. Referitor la fig.6, fiecare dintre deschiderile 12a - 12e pentru curgerea lichidului este de preferință formată prin îndepărtarea unei porțiuni periferice a talerului între peretele interior 9 al mantalei și marginea 8 a talerului.

255

Conform celei de-a doua aplicații a metodei conform prezentei invenții reactorul 1 din fig.3 este modernizat prin intermediul unei etape în care cel puțin două deschideri inelare înguste 10 sunt parțial obturate de ecranele 13 definind deschiderile respective 12a - 12e pentru curgerea lichidului decalate astfel încât să asigure o traiectorie de curgere preferențială în zig-zag conform descrierii de mai sus. Această aplicație este în mod special adecvată pentru deschideri inelare înguste 10 având lărgime suficientă astfel că porțiunea din deschiderea 10 neobturată de ecranul 13 va constitui o deschidere 12a - 12e pentru curgerea lichidului. În acest caz, pentru o lărgime suficientă se prevede o lărgime a deschiderilor 10 de cel puțin 4 cm. După cum se arată în fig.7 ecranele 13 au de preferință o multitudine de găuri indicate toate prin reperul 14, care măresc suprafața de trecere a fazei gazoase corespunzătoare talerelor adiacente 6a - 6e. Ecranele 13 sunt montate în mantaua 2 în modul convențional cunoscut ca atare, între talerele perforate 6a - 6e și mantaua 2. Deschiderile 12a - 12e pentru curgerea lichidului realizate prin metoda de modernizare de mai sus sunt de preferință situate în zone diametral opuse ale talerelor adiacente 6a - 6e. Când lărgimea deschiderilor 10 este mai mică de 4 cm, este preferabilă implementarea celei de-a treia aplicații a metodei conform prezentei invenții, care presupune modernizarea in-situ a reactorului din fig.3 printr-o primă etapă în care deschiderile inelare înguste 10 definite în legătură cu cel puțin două talere adiacente 6a - 6e sunt obturate cu ajutorul ecranelor 13, și o a doua etapă în care pe talerele adiacente 6a - 6e menționate se formează deschideri decalate 12a - 12e pentru curgerea lichidului, astfel încât să se formeze o traiectorie de curgere preferențială în zig-zag pentru faza lichidă în mantaua menționată. Datorită metodei de modernizare conform prezentei invenții este posibilă obținerea la un cost de investiții scăzut o creștere a conversiei și a capacității de producție a reactorului modernizat în același timp cu reducerea consumului de energie al instalației de sinteză a ureei.

260

265

270

275

280

În mod avantajos atât marginea 8 a talerelor 6a - 6e din fig.6 și 7 cât și marginea 15 a ecranelor 13 din fig.7 sunt prevăzute cu un guler 11 de tip cunoscut care se prelungește în jos. Gulerul 11 formează împreună cu talerul perforat 6a - 6e și în mod opțional cu ecranul 13 o cameră de colectare a gazului 16 astfel încât să faciliteze o curgere continuă a fazei gazoase prin găurile 7 și opțional 14. S-a observat de asemenea că prezența gulerului 11 facilitează traiectoria de curgere preferențială în zig-zag a fazei lichide între deschiderile 12a - 12e pentru fluxul de lichid.

285

Funcție de diametrul reactorului de sinteză va fi ușor celor cu experiență în domeniu să determine înălțimea optimă a gulerului 11. În general înălțimea gulerului 11 este între 100 mm și 300 mm. Într-o aplicație deosebit de avantajoasă și preferată a reactorului conform prezentei invenții la cel puțin două talere preferate adiacente, de exemplu talerele 6b - 6c, talerul perforat inferior 6c este împărțit în sectoare perforate 17 intercalate cu sectoare neperforate 18 după cum se arată în fig.8. Sectoarele perforate 17 și sectoarele neperforate

290

295 **18** se extind pe talerul perforat **6c** între o margine **19** adiacentă deschiderii **12c** pentru
 curgerea lichidului și o margine opusă **20** adiacentă peretelui interior **9** al mantalei **2**. Astfel
 faza lichidă și faza gazoasă care circulă în reactor sunt în mod spontan divizate într-o mul-
 titudine de fluxuri alternante permițând o amestecare mai rapidă și mai intimă a fazelor și deci
 o creștere a randamentului sintezei în reactor. Această alternare a fluxului este posibilă dato-
 300 rită prezenței de sectoare neperforate **18** de-a lungul cărora circulă faza lichidă, intercalate
 cu sectoare perforate **17** prin care trece faza gazoasă. Pentru a facilita trecerea fazei lichide
 către sectoarele marginale, sectoarele care se învecinează cu sectoarele menționate se
 îngustează longitudinal lângă marginea **19** după cum este indicat de reperul numeric **21** în
 fig.8. Pentru a obține amestecarea optimă sectoarele perforate **17** și sectoarele neperforate
 305 **18** sunt în esență rectilinii compatibile cu forma circulară a talerului perforat **6c** și sunt para-
 lele și de lărgime egală. Divizarea talerelor perforate **6a - 6e** în sectoare perforate **17** și sec-
 toare neperforate **18** poate fi obținută în mod avantajos chiar prin metoda de modernizare
 conform prezentei invenții care poate include etapa de formare în cel puțin unul dintre tale-
 rele perforate adiacente, de exemplu talerul **6c**, a unei multitudini de sectoare perforate **17**
 310 și sectoare neperforate **18** alăturate după cum se arată în fig.8 și fig.9. De preferință sectoa-
 rele perforate **17** și sectoarele neperforate **18** alăturate sunt formate prin obturarea selectivă
 a găurilor prezente pe talerul **6c**.

Într-o altă formă metoda de modernizare conform prezentei invenții poate include
 etapa de dispunere în mantaua **2** a unui taler perforat **6c** incluzând o multitudine de sectoare
 315 perforate **17** și sectoare neperforate **18** alăturate. Sectoarele perforate **17** și sectoarele ne-
 perforate **18** astfel obținute au aceleași caracteristici structurale și funcționale descrise mai
 sus în cadrul reactorului conform prezentei invenții.

În mod avantajos, cu ajutorul reactorului de sinteză a ureei **1** din fig.5 este de aseme-
 nea posibilă implementarea unei metode pentru creșterea conversiei și capacității de pro-
 320 ducție a unui reactor pre-existent de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în cu-
 rent paralel, reactorul constând dintr-o manta tubulară verticală în care sunt prevăzute o mul-
 țime de talere perforate orizontale suprapuse echidistante și în care este definită cel puțin
 o deschidere pentru curgerea lichidului corespunzătoare fiecărui taler perforat menționat,
 în modul următor. În primul rând faza lichidă este determinată să circule în manta de jos în
 325 sus de-a lungul unei traiectorii de curgere în zig-zag definită între deschideri. În al doilea
 rând faza gazoasă este determinată să circule în manta de jos în sus de-a lungul unei traiec-
 torii de circulație în esență rectilie definită între talerele perforate și traversând traiectoria
 de circulație a lichidului. În al treilea rând are loc între talerele perforate o permanentă ames-
 tecare a fazei lichide cu faza gazoasă care circulă de-a lungul traiectoriilor care se întretaie
 330 ale fazei lichide și ale fazei gazoase.

În acest fel este posibilă creșterea contactului intim și îmbunătățirea coeficienților de
 transfer de masă și căldură între lichid și gaz.

Reactorul conform prezentei invenții poate fi în mod avantajos utilizat chiar pentru
 reacții ca hidroliza ureei la presiune și temperaturi înalte. Într-adevăr, caracteristicile structu-
 335 rale speciale ale prezentei invenții fac posibilă îndepărtarea ureei conținute într-o fază lichidă
 în soluție apoasă prin acționarea asupra parametrilor de proces cum ar fi presiunea, tem-
 peratura, timpul de staționare și utilizarea agenților de stripare adecvați. Aceasta se reali-
 zează determinând faza lichidă să circule în reactorul **1** din fig.5 de jos în sus de-a lungul
 unei traiectorii de curgere în zig-zag definită între deschiderile **12a - 12e** pentru curgerea
 lichidului și supunând simultan hidrolizei ureea conținută în faza lichidă cu ajutorul unui agent
 340 de stripare în fază gazoasă, de exemplu abur la presiune și temperaturi înalte alimentat de
 jos în sus de-a lungul unei traiectorii în esență liniară definită între talerele perforate **6a - 6e**,

traversând traiectoria lichidului. Astfel între talerele perforate **6a - 6e** are loc o continuă amestecare a fazei lichide (soluția conținând uree) cu faza gazoasă (agent de stripare), acest amestec circulând de-a lungul traiectoriei intersectate ale lichidului și gazului astfel încât să mărească contactul intim al acestora și să îmbunătățească coeficienții de transfer de masă și căldură pentru a facilita reacția de hidroliză a ureei.

În următorul exemplu sunt comparate într-un mod mai mult indicativ și nelimitativ conversiile care se pot obține într-un reactor conform prezentei invenții sau modernizat prin metoda prezentei invenții și într-un reactor cunoscut în acest domeniu.

Se prezintă în continuare următorul exemplu de realizare a invenției.

Într-o instalație de producere a ureei randamentul care se poate obține într-un reactor conform prezentei invenții sau modernizat prin metoda prezentei invenții este comparat cu acela care se poate obține într-un reactor convențional cunoscut prezentat în fig.1 și 2.

Cele două reactoare considerate au următoarele dimensiuni:

- diametrul interior al mantalei	2,3 m
- înălțimea utilă	35,0 m
Condițiile de operare sunt următoarele:	
- presiune:	155 at
- temperatură:	190°C
- raport molar NH_3/CO_2 :	3,3
$\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2$:	0,6

Reactorul convențional conține 10 talere perforate distribuite de-a lungul înălțimii utile a reactorului și ocupând orizontal întreaga secțiune transversală a mantalei.

În reactorul conform prezentei invenții în legătură cu talerele perforate sunt definite deschideri pentru fluxul de lichid ca cele prezentate în fig.5 și 6, sub formă de segment circular, reprezentând 5% din suprafața secțiunii transversale a mantalei. De-a lungul marginii fiecăruia dintre talerele perforate. Este de asemenea prevăzut un guler extins în jos și având înălțimea de 200 mm. Cu ajutorul unui model cinetic sigur descris în publicația "Gas-Liquid Reactor in the Synthesis of Urea", M.Dente et al., Chemical Reactor Engineering, Vol. 47, nr.9/II, 6/8 1992, a fost apoi determinată conversia (în % molare) CO_2 în uree evacuată din reactor.

Conversia este prezentată mai jos:

- reactor convențional:	60,0%
- reactor conform invenției:	63,0%

O creștere a randamentului cu 3 procente în cazul reactorului conform prezentei invenții trebuie considerată un rezultat foarte important în domeniul sintezei ureei deoarece permite reducerea reciclării produșilor nereacționați în reactor de aproximativ 7-9% comparativ cu ceea ce se cunoaște în domeniu, concomitent cu o creștere rezultantă considerabilă a capacității de producție a reactorului de sinteză și o reducere a consumului de energie al instalației de sinteză a ureei.

Revendicări

1. Reactor pentru reacții bifazice, în special, pentru sinteza ureei la presiune și temperaturi înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care cuprinde o manta exterioară, cilindrică, verticală (2), o multitudine de talere perforate

395 suprapuse (6a-6e), extinse orizontal și echidistante în spațiul interior, delimitat de mantaua exterioră (2) și cel puțin o deschidere (12a-12e) pentru fluxul de lichid definită în legătură cu fiecare dintre talerele perforate (6a-6e), **caracterizat prin aceea că** deschiderile (12a-12e) pentru fluxul de lichid definite în legătură cu cel puțin două talere perforate adiacente (6a-6e) sunt decalate reciproc.

400 2. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că** cel puțin unul dintre talerele perforate adiacente (6a-6e) este împărțit în mai multe sectoare perforate (17) și sectoare neperforate (18) alăturate.

405 3. Reactor conform revendicării 2, **caracterizat prin aceea că** sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18), menționate se extind pe cel puțin unul din talerele perforate (6a-6e) orizontale între o margine (19) adiacentă deschiderii menționate (12a-12e) pentru fluxul de lichid și o margine opusă (20) adiacentă unui perete interior (9) al mantalei exterioare (2).

410 4. Reactor conform revendicării 2, **caracterizat prin aceea că** sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) menționate sunt, în principal, rectilinii și paralele.

5. Reactor conform revendicării 4, **caracterizat prin aceea că** sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) menționate au lățime egală.

415 6. Reactor conform revendicării 3, **caracterizat prin aceea că** sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) care se învecinează cu sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) extreme ale cel puțin unuia din talerele perforate (6a-6e) orizontale sunt îngustate longitudinal la un capăt de lângă marginea menționată (19) adiacentă deschiderii respective (12a-12e) pentru circulația lichidului.

7. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că** deschiderile menționate (12a-12e) pentru circulația lichidului sunt formate între părți diametral opuse ale respectivelor talere adiacente (6a-6e).

420 8. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că** deschiderile (12a-12e) pentru circulația lichidului au forma, în principal, a unui segment circular.

425 9. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că**, deschiderile respective (12a-12e) pentru circulația lichidului, corespunzătoare talerelor perforate adiacente menționate (6a-6e), sunt definite alternativ lângă axa longitudinală a mantalei menționate (2) și între o margine perimetrică (8) a acestor talere (6a-6e) și respectiv un perete interior (9) al mantalei menționate (2).

430 10. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că** cel puțin două talere perforate (6a-6e) sunt prevăzute cu un guler (11) care se extinde în jos de-a lungul uneia dintre marginile talerelor menționate (6a-6e) și a deschiderilor respective (12a-12e) pentru fluxul de lichid.

11. Reactor conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că** suprafața secțiunii transversale a deschiderilor menționate (12a-12e) pentru fluxul de lichid este egală cu o valoare cuprinsă între 1% și 10% din suprafața secțiunii transversale a mantalei exterioare (2).

435 12. Reactor conform revendicării 11, **caracterizat prin aceea că** suprafața secțiunii transversale a deschiderilor menționate (12a-12e) pentru fluxul de lichid este de 5% din suprafața secțiunii transversale a mantalei exterioare (2).

440 13. Metodă pentru obținerea unui reactor definit în revendicările 1...12, prin optimizarea *in situ* a unui reactor destinat pentru reacții bifazice, în special, pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară (2) ce delimitează un spațiu interior în care sunt fixate o multitudine de talere (6a-6e) perforate suprapuse echidistante,

aceste talere perforate menționate (6a-6e) extinzându-se orizontal în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară (2), în întreaga secțiune transversală a acesteia, **caracterizată prin aceea că**, cuprinde etapa de formare în cel puțin două dintre talerele perforate adiacente (6a-6e) a unor deschideri (12a-12e) reciproc decalate pentru circularea lichidului.

445

14. Metodă pentru obținerea unui reactor definit în revendicările 1...12, prin optimizarea *in situ* a unui reactor destinat pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară (2) ce delimitează un spațiu interior în care sunt fixate o multitudine de talere (6a-6e) perforate orizontale suprapuse echidistante, și cel puțin o deschidere îngustă (10) este definită între o margine (8) a fiecăruia dintre talerele menționate (6a-6e) și un perete interior (9) al mantalei exterioare (2), **caracterizată prin aceea că** aceasta cuprinde etapa de obturare parțială a unor deschideri (10) definite în legătură cu cel puțin două talere perforate adiacente (6a-6e) cu ajutorul unor ecrane (13) care definesc deschiderile (12a-12e) reciproc decalate pentru circularea lichidului.

450

455

15. Metodă pentru obținerea unui reactor definit în revendicările 1-12, prin optimizarea *in situ* a unui reactor destinat pentru reacții bifazice, în special pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară (2) în care sunt fixate o mulțime de talere (6a-6e) perforate orizontale suprapuse echidistante, și cel puțin o deschidere îngustă (10) este definită între o margine (8) a fiecăruia dintre talerele menționate (6a-6e) și un perete interior (9) al mantalei exterioare (2), **caracterizată prin aceea că** aceasta cuprinde etapa de obturare a deschiderilor (10) definite în legătură cu cel puțin două talere perforate adiacente (6a-6e) cu ajutorul ecranelor (13) și etapa de formare în talerele adiacente menționate (6a-6e) a deschiderilor reciproc decalate (12a-12e) pentru circularea lichidului.

460

465

16. Metodă conform revendicărilor 13 - 15, **caracterizată prin aceea că** aceasta cuprinde în plus etapa de formare a unei multitudini de sectoare perforate (17) și sectoare neperforate (18) alăturate în cel puțin unul dintre talerele perforate adiacente (6a-6e).

17. Metodă conform revendicării 16, **caracterizată prin aceea că**, în etapa de formare a sectoarelor perforate (17) și sectoarele neperforate (18), acestea sunt prevăzute astfel încât să obtureze în zone predeterminate găurile prezente în cel puțin unul dintre talerele (6a-6e) perforate adiacente menționate.

470

18. Metodă conform revendicărilor 13...15, **caracterizată prin aceea că** mai cuprinde, în plus, etapa de dispunere în spațiul interior delimitat de mantaua (2) menționată a cel puțin unui taler perforat (6a-6e) conținând mai multe sectoare perforate (17) și sectoare neperforate (18) alăturate.

475

19. Metodă conform revendicărilor 16, 18, **caracterizată prin aceea că** se formează sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) menționate, astfel încât să se extindă peste cel puțin unul dintre talerele perforate adiacente (6a-6e) între o margine (19) adiacentă deschiderii menționate (12a-12e) pentru circularea lichidului și o margine opusă (20) adiacentă unui perete interior (9) al mantalei exterioare (2).

480

20. Metodă conform revendicărilor 16-18, **caracterizată prin aceea că** se formează și se dispun sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) menționate astfel încât acestea să fie în principal rectilinii și paralele.

21. Metodă conform revendicării 20, **caracterizată prin aceea că** se formează sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) menționate, astfel încât acestea să aibă lățimi egale.

485

22. Metodă conform revendicării 19, **caracterizată prin aceea că** se formează și se dispun sectoarele (17) și (18), astfel încât sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) care se învecinează cu sectoarele perforate (17) și sectoarele neperforate (18) extreme ale cel puțin unuia dintre talerele perforate (6a-6e) orizontale să se îngusteze longitudinal la un capăt de lângă marginea menționată (19) adiacentă deschiderii respective (12a-12e) pentru circulația lichidului.

23. Metodă conform revendicărilor 13, 15, **caracterizată prin aceea că**, se formează deschiderile menționate (12a-12e) pentru circularea lichidului din părți diametral opuse ale talerelor perforate (6a-6e) orizontale.

24. Metodă conform revendicării 13, **caracterizată prin aceea că** mai cuprinde etapa de formare pe cel puțin două talere adiacente (6a-6e) a unui guler (11) care se extinde în jos de-a lungul unei margini (8) a talerelor orizontale (6a-6e) și a deschiderilor menționate (12a-12e) pentru circularea lichidului.

25. Metodă conform revendicărilor 13, 15, **caracterizată prin aceea că**, în cadrul etapei de formare a deschiderilor menționate (12a-12e), pentru circularea lichidului, acestea se realizează prin îndepărtarea porțiunilor de segment circular din cel puțin două talere perforate adiacente (6a-6e).

26. Metodă conform revendicării 14, **caracterizată prin aceea că** se definesc deschiderile (12a-12e) pentru circularea lichidului prin ecranele (13) în zone diametral opuse ale talerelor orizontale adiacente (6a-6e).

27. Metodă conform revendicării 14, **caracterizată prin aceea că** se formează pe cel puțin două talere adiacente orizontale (6a-6e) și ecranele menționate (13), gurile respective (11) care se extind în jos de-a lungul marginilor (8,15) ale acestora.

28. Metodă conform revendicării 16, **caracterizată prin aceea că** se formează pe cel puțin două talere adiacente menționate (6a-6e) un guler (11) care se extinde în jos de-a lungul unei margini (8) a ecranelor menționate (13) și a deschiderilor (12a-12e) pentru circulația lichidului.

29. Metodă pentru creșterea conversiei și a capacității de producție a unui reactor definit în revendicările 1...12, pentru reacții bifazice, în special, pentru sinteza ureei la presiune și temperatură înalte, de tipul în care faza gazoasă și faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară (2) în care sunt fixate mai multe talere (6a-6e) perforate orizontale suprapuse echidistante și este definită cel puțin o deschidere (12a-12e) pentru circularea lichidului în legătură cu fiecare dintre talerele perforate menționate (6a-6e), **caracterizată prin aceea că**, cuprinde următoarele etape:

- determinarea fazei lichide ureice să circule în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară (2) de jos în sus de-a lungul unei traiectorii în zig-zag definite între deschiderile menționate (12a-12e) pentru curgerea lichidului,

- determinarea fazei gazoase să circule în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară (2) de jos în sus de-a lungul unei traiectorii, în principal, rectilinii definite între talerele perforate (6a-6e) menționate care traversează traiectoria în zig-zag a lichidului, și

- realizarea între talerele perforate menționate (6a-6e) a unei amestecări continue a fazei lichide cu faza gazoasă care circulă de-a lungul traiectoriilor care se intersectează ale lichidului și gazului, astfel încât să se îmbunătățească contactul intim și coeficienții de transfer de masă și căldură.

30. Metodă pentru îndepărtarea ureei dintr-o fază lichidă, inclusiv ureea din soluție apoasă, cu ajutorul unui reactor definit în revendicările 1...12, pentru reacții bifazice, în special, pentru hidroliza ureei la presiune și temperaturi înalte de tipul în care faza gazoasă și

RO 118699 B1

- faza lichidă circulă în curent paralel și care este alcătuit dintr-o manta verticală tubulară (2) care delimitează un spațiu interior, în care sunt fixate o mulțime de talere perforate (6a-6e) orizontale suprapuse echidistante și este definită cel puțin o deschidere (12a-12e) pentru circulara lichidului în legătură cu fiecare dintre talerele perforate menționate (6a-6e), **caracterizată prin aceea că** aceasta cuprinde următoarele etape: 535
- determinarea fazei lichide care conține uree să circule de jos în sus în spațiul interior delimitat în mantaua exterioară (2) de-a lungul unei traiectorii în zig-zag definite între deschiderile menționate (12a-12e) pentru circulara lichidului; 540
 - determinarea unui agent de stripare în fază gazoasă să circule de jos în sus în spațiul interior delimitat de mantaua exterioară (2) de-a lungul unei traiectorii în principal rectilinii definite între talerele perforate (6a-6e) menționate care traversează traiectoria în zig-zag a lichidului, 545
 - realizarea între talerele perforate menționate (6a-6e) a unei amestecări continue a fazei lichide cu faza gazoasă care circulă de-a lungul traiectoriilor intersectate ale lichidului și gazului, astfel încât să se îmbunătățească contactul intim și coeficienții de transfer de masă și căldură pentru a facilita reacția de hidroliză a ureei. 550
31. Metodă conform revendicării 30, **caracterizată prin aceea că** agentul de stripare menționat în fază gazoasă constă din abur la presiune și temperatură înaltă.

Președintele comisiei de examinare: **chim. Hăulică Mariela**
Examinator: **ing. Georgescu Mirela**

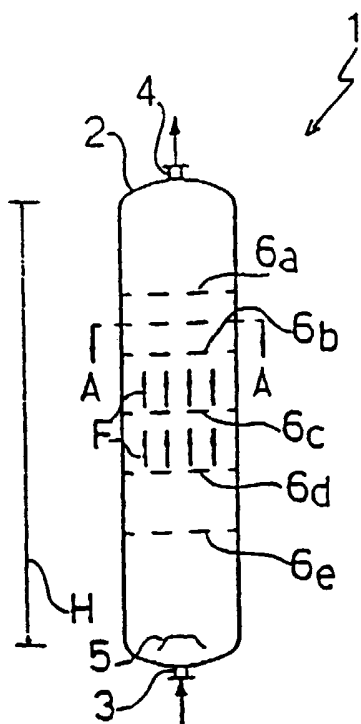


Fig. 1

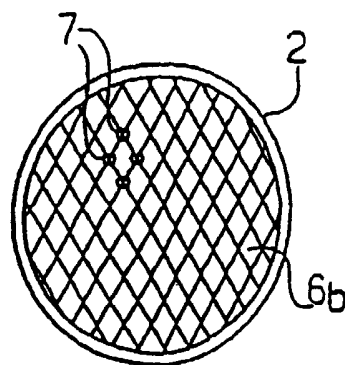


Fig. 2

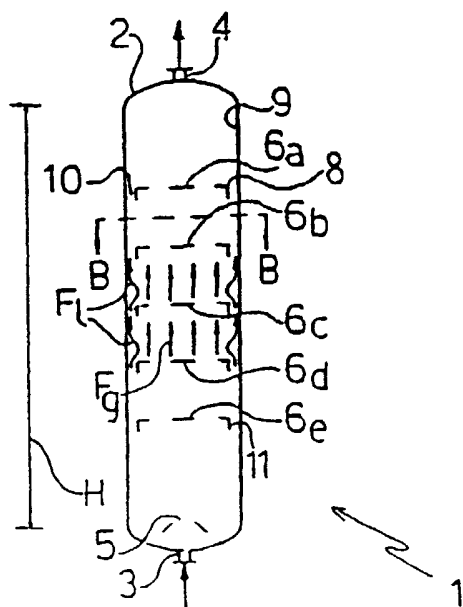


Fig. 3

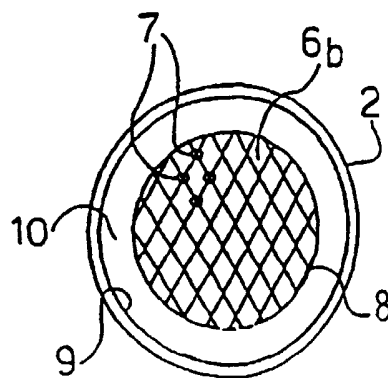


Fig. 4

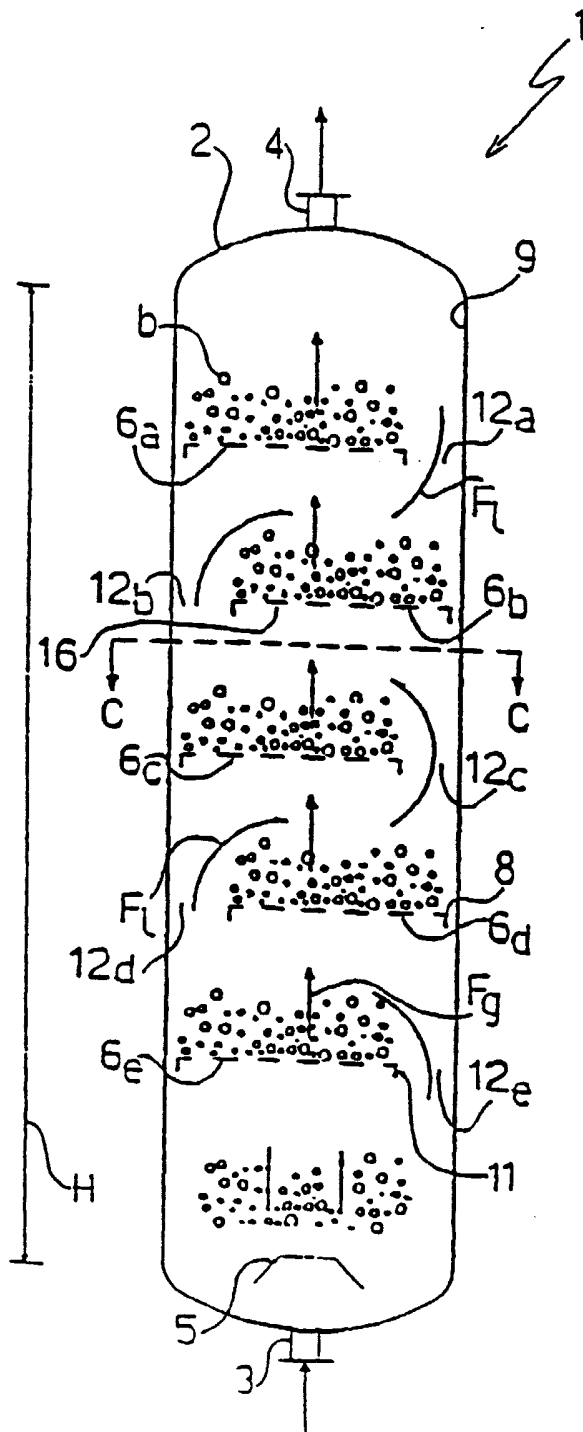


Fig. 5

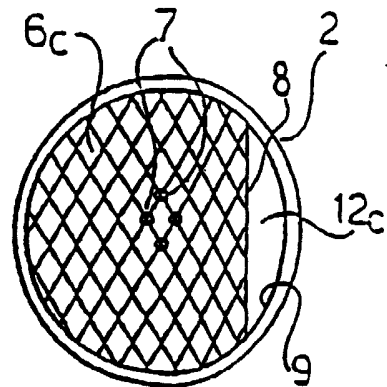


Fig. 6

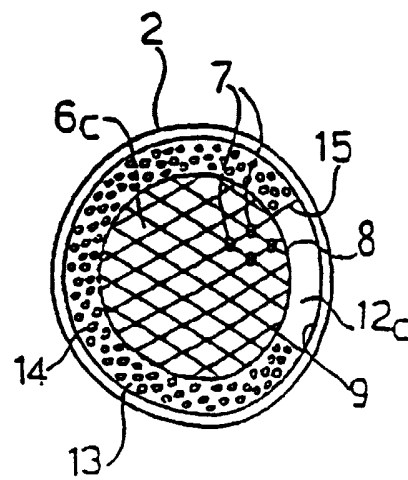


Fig. 7

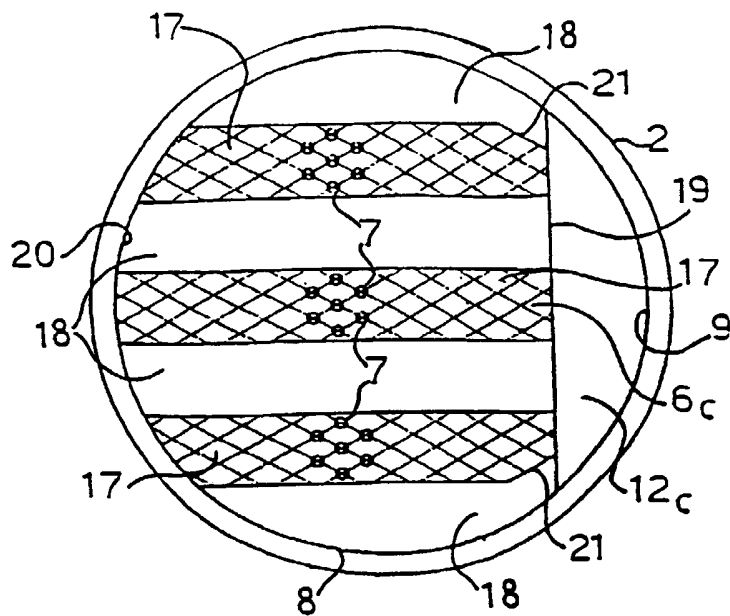


Fig. 8

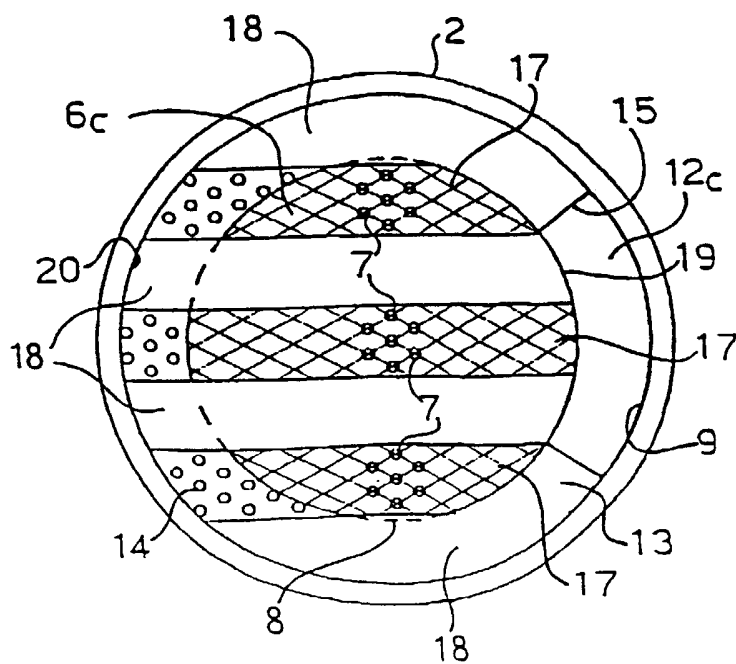


Fig. 9

