

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
26. Oktober 2017 (26.10.2017)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2017/182385 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C01C 1/04 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2017/058933

(22) Internationales Anmeldedatum:
13. April 2017 (13.04.2017)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2016 107 124.2
18. April 2016 (18.04.2016) DE

(71) Anmelder: THYSSENKRUPP INDUSTRIAL SOLUTIONS AG [DE/DE]; ThyssenKrupp Allee 1, 45143 Essen

(DE). THYSSENKRUPP AG [DE/DE]; ThyssenKrupp Allee 1, 45143 Essen (DE).

(72) Erfinder: MEISSNER, Christoph; Moltkestraße 14, 44135 Dortmund (DE). KINNER, Andreas; Südstrasse 22, 45663 Recklinghausen (DE). NÖLKER, Klaus; Arenbergstraße 7, 44265 Dortmund (DE). HEUN, Reinhard; Siedlerstr. 28, 58313 Herdecke (DE).

(74) Anwalt: THYSSENKRUPP INTELLECTUAL PROPERTY GMBH; ThyssenKrupp Allee 1, 45143 Essen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP,

(54) Title: NH₃ SYNTHESIS CONFIGURATION FOR LARGE-SCALE INSTALLATIONS

(54) Bezeichnung: NH₃ SYNTHESekonfiguration FÜR GROSSANLAGEN

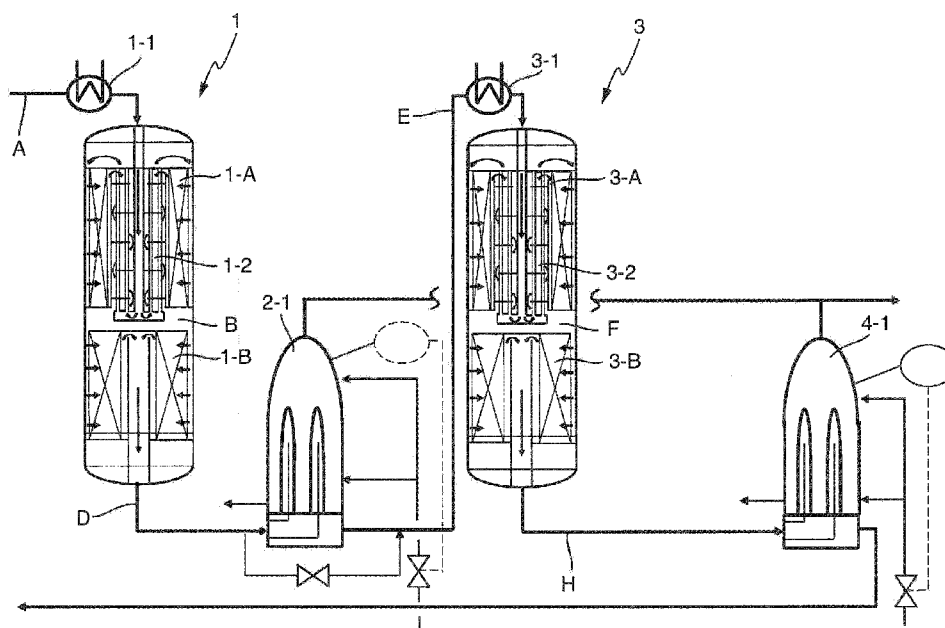


Fig. 1

(57) Abstract: The invention relates to a method and a device for producing ammonia from a syngas in a heterogeneous gas catalysis process in at least two reaction devices (1, 3) connected one behind the other. Each reaction device comprises at least two catalyst beds (1-A, 1-B; 3-A, 3-B) through which the syngas is conducted and in which an at least partial conversion of the syngas into the product gas is carried out. At least one first heat exchanger (1-2) is provided in the first reaction device (1), and the fresh syngas A is pre-heated in the first heat exchanger. The syngas B which is exiting the first catalyst bed (1-A) and which comprises the product and non-converted reactants is cooled before entering the second catalyst bed (1-B). According to the invention, the pre-heating process is carried out in a first heat exchanger (1-2) which is arranged between the first (1-A) and the second catalyst bed (1-B). Thus, the

KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)
- mit geänderten Ansprüchen gemäss Artikel 19 Absatz 1

synthesis conversion can be increased without substantially increasing the process gas quantity.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas unter heterogener Gaskatalyse in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionsvorrichtungen (1, 3), wobei jede dieser Reaktionsvorrichtungen jeweils wenigstens zwei Katalysatorbetten (1-A, 1-B; 3-A, 3-B) umfasst, durch die hindurch das Synthesegas geleitet wird und in denen eine mindestens teilweise Umsetzung zu Produktgas erfolgt, wobei wenigstens ein erster Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) vorgesehen ist, in dem das frische Synthesegas A vorgewärmt wird und wobei ein Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbettes (1-A) austretenden Synthesegases B umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B) vorgesehen ist und erfindungsgemäss das Vorwärmen in einem ersten Wärmetauscher (1-2) erfolgt, welcher zwischen dem ersten (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett (1-B) angeordnet ist. Der Umsatz der Synthese kann dadurch ohne wesentliche Anhebung der Prozessgasmenge gesteigert werden.

NH₃ Synthesekonfiguration für Großanlagen

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas unter heterogener Gaskatalyse in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionsvorrichtungen, wobei jede dieser Reaktionsvorrichtungen jeweils wenigstens zwei Katalysatorbetten umfasst, durch die hindurch das Synthesegas geleitet wird und in denen eine mindestens teilweise Umsetzung zu Produktgas erfolgt, wobei wenigstens ein erster Wärmetauscher in der ersten Reaktionsvorrichtung vorgesehen ist, in dem das frische Synthesegas **A** vorgewärmt wird und wobei ein Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbettes austretenden Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett vorgesehen ist.

[0002] Eine Reihe von Produkten in der Grundstoffindustrie, wie z.B. Ammoniak oder Methanol, werden in großtechnischen Gaskatalysen unter Einsatz von Festbettkatalysatoren synthetisiert. Die Synthesen verlaufen in der Regel bei Volumenabnahme unter sehr hohen Arbeitsdrücken bei hohen Arbeitstemperaturen.

[0003] Bei der Herstellung von Ammoniak enthält das Synthesegas Wasserstoff und Stickstoff und ggf. zusätzlich Inertgase wie Methan und/oder Edelgase. Bei diesem Verfahren wird üblicherweise zunächst das frische Synthesegas auf einen hohen Druck verdichtet und das verdichtete Synthesegas in einen Kreislauf eingespeist, der durch einen oder mehrere katalysatorgefüllte Reaktoren geführt wird, in denen Ammoniak erzeugt wird. Im Kreislauf ist üblicherweise ein Abscheidesystem vorgesehen, mit dem das erzeugte Ammoniak aus dem Kreislauf in flüssiger Form entnommen wird.

[0004] In der industriellen Praxis stoßen Großsynthesen, die üblicherweise als Kreislaufsintensen ausgeführt werden, in der Auslegung als einsträngige Anlagen jedoch zunehmend an Limitierungen durch Apparate, Maschinen und Rohrleitungen. Geht man beispielsweise bei der Ammoniak-Synthese von einem maximal zulässigen Arbeitsdruck von etwa 230 bara aus, so sind wirtschaftliche Baugrenzen für Druckbehälter und Rohrleitungen absehbar. Will man die Kapazität von Kreislaufsintensen weiter steigern, ohne die Anzahl der Druckapparate zu erhöhen, so werden technologische Veränderungen notwendig.

[0005] Die Ammoniak-Bildungsreaktion ist eine ausgeprägte Gleichgewichtsreaktion, deren Gleichgewichtslage sich mit zunehmender Temperatur immer mehr auf die Seite der Reaktanden verlagert. Im Bereich der üblichen Arbeitstemperaturen der Katalysatorbetten und Arbeitsdrücken von etwa 200 bar werden nur Ammoniak-Gleichgewichtskonzentrationen von 20-25% erreicht. Nach dem Prinzip von Le Chatelier kann durch Erhöhung des Arbeitsdruckes die Gleichgewichtslage zu höheren Ammoniakkonzentrationen verschoben werden. Einer Erhöhung des Synthesedruckes sind aber durch die verfügbaren Verdichter enge Grenzen gesetzt. Des Weiteren wirkt sich die zusätzliche Verdichterarbeit negativ auf den Prozesswirkungsgrad aus und der höhere Arbeitsdruck bedingt größere Wanddicken der Apparate und damit spezifisch höhere Herstellungskosten.

[0006] Die Ammoniak-Bildungsreaktion ist stark exotherm, so dass die Temperatur des Prozessgases beim Durchlauf durch das Katalysatorbett fortlaufend zunimmt, wenn keine Wärmeabfuhr vorgenommen wird. Ammoniak-Synthesekonverter mit Bettinnenkühlung wurden vorgeschlagen und in Einzelfällen auch realisiert. Sie sind aber konstruktiv aufwändig und dementsprechend teuer in der Herstellung. Außerdem gestaltet sich die Befüllung und Entnahme des Katalysators ungleich aufwändiger als bei Reaktoren ohne kühlende Einbauten in den Betten.

[0007] Als wirtschaftliches Optimum wird deshalb seit einigen Jahrzehnten die Aufteilung der gesamten Katalysatormenge auf drei Einzelbetten und die Rückkühlung des Prozessgases durch zwischen den Betten angesiedelte Wärmetauscher angesehen.

[0008] Es wurden bisher verschiedene Lösungen zur Erhöhung der Kapazität insbesondere bestehender Anlagen vorgeschlagen.

[0009] DE 100 57 863 A1 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Ammoniak aus Synthesegas, welches außer den Reaktanden Wasserstoff und Stickstoff inerte Bestandteile enthält, in mindestens zwei Reaktionssystemen, wobei die Synthese von Ammoniak aus Synthesegas nacheinander in verschiedenen Synthesesystemen erfolgt, wobei in allen Synthesesystemen aus jeweils einem Teil des Synthesegases Ammoniak erzeugt und davon ein Teil ausgeschleust wird.

[0010] DD 225 029 betrifft ein Verfahren zur Synthese von Ammoniak aus inertenhaltigem Synthesegas, welches durch die Verwendung von zwei

ERSATZBLATT (REGEL 26)

Reaktionssystemen gekennzeichnet ist. Im ersten Reaktionssystem wird nur frisches Synthesegas umgesetzt. Das nicht umgesetzte Synthesegas wird gemeinsam mit dem Gas eines Synthesekreislaufs zum zweiten Reaktionssystem geführt, wo die weitere Umsetzung zu Ammoniak erfolgt.

[0011] Es ist weiterhin Stand der Technik, dass aus energetischen Gründen unmittelbar nach dem Ammoniakreaktor die Abwärme der Reaktion zur Dampferzeugung bzw. zur Kesselspeisewasservorwärmung genutzt wird. Die Abwärme steigt mit der Produktionsmenge an Ammoniak und der Umlaufmenge im Synthesekreislauf an.

[0012] Aus dem US-Patent 5,352,428 A ist ein Verfahren zur Herstellung von Ammoniak mit zwei hintereinander geschalteten Reaktionsvorrichtungen, die jeweils zwei Katalysatorbetten umfassen, bekannt. Bei diesem bekannten Verfahren erfolgt die Abkühlung des Produktgasstroms nach dem ersten Katalysatorbett über einen Quenchgasstrom, durch den ein Teilstrom des frischen Feedgases direkt auf das zweite Katalysatorbett geleitet wird. Diese Maßnahme führt zu einer verringerten Ausbeute an Produktgas, denn dieser zu Kühlung verwendete Quenchgasstrom nimmt nicht an der Reaktion im ersten Katalysatorbett teil.

[0013] In dem US-Patent 7,683,099 B2 werden Verfahren zur Durchführung von exothermen Gasphasenreaktionen mit heterogener Katalyse beschrieben, bei denen zwei Reaktionsvorrichtungen mit insgesamt drei Katalysatorbetten verwendet werden, wobei in einer der Reaktionsvorrichtungen zwei Katalysatorbetten angeordnet sind. In dieser Druckschrift wird auch eine Variante beschrieben, bei der ein Teilstrom des Produktgases nach dem Durchgang durch das zweite Katalysatorbett abgetrennt, stark abgekühlt und das Ammoniak als Produkt auskondensiert und aus der Anlage abgeführt wird. Ein Teilstrom des stark abgekühlten Gases wird dann in eine zweite Reaktionsvorrichtung geleitet, in der sich ein drittes Katalysatorbett befindet. Nachteilig an dieser Vorgehensweise ist jedoch, dass das Gas vor der Einleitung in das dritte Katalysatorbett wieder aufgewärmt werden muss, um die Reaktion in Gang zu bringen, so dass Wärmeenergie verloren geht. Weiterhin sind die Investitionskosten für diese Variante deutlich höher, da für das Abkühlen und Aufwärmen zusätzliche Equipments erforderlich sind. Somit ist das Verfahren gemäß US-Patent 7,683,099 B2 vergleichsweise unwirtschaftlich.

[0014] Die bekannten Verfahren und Vorrichtungen zur Herstellung eines Produkts aus Synthesegas sind jedoch nicht in jeder Hinsicht zufriedenstellend, insbesondere wegen der Erhöhung der Anzahl der Druckapparate für Großanlagen, so dass ein Bedarf an verbesserten Verfahren und Vorrichtungen besteht.

[0015] Es ist somit eine Aufgabe der Erfindung, ein vorteilhaftes Verfahren und eine vorteilhafte Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas mit den eingangs genannten Merkmalen zur Verfügung zu stellen.

[0016] Diese Aufgabe wird durch die im Verfahrensanspruch 1 bzw. im Vorrichtungsanspruch 10 genannten Merkmale gelöst.

[0017] Erfindungsgemäß ist vorgesehen, dass das Vorwärmen des frischen Synthesegases **A** in einem ersten Wärmetauscher erfolgt, welcher zwischen dem ersten und dem zweiten Katalysatorbett angeordnet ist.

[0018] Die erfindungsgemäße Lösung hat insbesondere den Vorteil, dass man die Abwärme des ersten Katalysatorbettes für das Vorwärmen des frischen Synthesegases verwenden kann und man somit die Nachteile des Quenchstroms vermeidet, welcher in dem US-Patent 5,352,428 vorhanden ist. Der Umsatz der Synthese kann dadurch ohne wesentliche Anhebung der Prozessgasmenge und bei gleichbleibendem Katalysatorvolumen gesteigert werden.

[0019] Bei der erfindungsgemäßen Aufteilung der Katalysatorbetten in zwei separate Reaktionsvorrichtungen, vorzugsweise Druckbehälter, ist es zudem möglich, auch eine Dampferzeugung auf zwei Apparate aufzuteilen.

[0020] Vorzugsweise erfolgt bei dem erfindungsgemäßen Verfahren das Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbett austretenden Synthesegases **B** vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett mittels des ersten Wärmetauschers, welcher im Strömungsweg hinsichtlich des einen Anteil an Produkt umfassenden Synthesegases **B** zwischen dem ersten und dem zweiten Katalysatorbett angeordnet ist.

[0021] Besonders bevorzugt ist gemäß einer Weiterbildung der erfindungsgemäßen Aufgabenlösung vorgesehen, dass der gesamte Feedgasstrom des frischen Synthesegases **A** durch das erste Katalysatorbett und anschließend auch durch das zweite Katalysatorbett hindurch geleitet wird. Dies hat den Vorteil, dass der gesamte

Feedgasstrom des frischen Synthesegases an der Reaktion in beiden Katalysatorbetten der ersten Reaktionsvorrichtung teilnimmt. Das Abzweigen eines Quenchgasstroms für die Kühlung des Synthesegasstroms **B** nach dem ersten Katalysatorbett, wie im Stand der Technik vorgesehen, führt demgegenüber zu einem Ausbeuteverlust, da dieser Anteil nicht durch das erste Katalysatorbett geleitet wird.

[0022] Eine weitere vorteilhafte Weiterbildung der Erfindung sieht vor, dass ein im Strömungsweg zwischen der ersten Reaktionsvorrichtung (1) und der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) angeordneter Zwischenwärmetauscher (2-1) vorgesehen ist und der aus dem zweiten Katalysatorbett (1-B) austretende heiße Produktgasstrom ohne vorherige Abkühlung zur Erzeugung von Dampf in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) genutzt wird. Durch diese Maßnahme wird die gesamte in dem heißen Produktgasstrom enthaltene Wärmeenergie zur Erzeugung von Dampf genutzt, so dass eine größere Dampfmenge erzeugt werden kann.

[0023] Eine weitere vorteilhafte Weiterbildung der vorgenannten Variante der Erfindung sieht vor, dass eine Abkühlung des Prozessgasstroms **D** in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) unter die für ein nachfolgendes drittes Katalysatorbett (3-A) erforderliche Eintrittstemperatur, und ggf. auch unter die Temperatur des erzeugten Dampfes zur größtmöglichen Nutzung der Energie des Stroms **D**, erfolgt, um in einem nachgeschalteten Schritt den Prozessgasstrom mithilfe eines weiteren Wärmetauschers (3-2), welcher gleichzeitig als Zwischenkühler zwischen dem dritten Katalysatorbett und einem vierten Katalysatorbett dient, wieder auf eine definierte optimale Prozesstemperatur für das Katalysatorbett (3-B) zu bringen. Dies ermöglicht eine optimale Temperaturführung über alle Katalysatorbetten.

[0024] Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung von Ammoniak kann beispielsweise die folgenden Schritte umfassen:

- a) Bereitstellen eines frischen Synthesegases **A** umfassend Reaktanden und ggf. inerte Komponenten;
- b) Synthese von Produkt aus Reaktanden, welche in dem Synthesegas **A** enthalten sind, unter heterogener Gaskatalyse in einer ersten Reaktionsvorrichtung (1), umfassend die Schritte:
 - b₁) ggf. Vorwärmen des frischen Synthesegases **A** in einem ersten Vorwärmetauscher (1-1);

- b₂) Wärmen des frischen Synthesegases **A** in einem ersten Wärmetauscher (1-2);
- b₃) Leiten des frischen Synthesegases **A** über ein erstes Katalysatorbett (1-A) unter Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- b₄) Kühlen des Synthesegases **B** in dem ersten Wärmetauscher (1-2);
- b₅) Leiten des Synthesegases **B** über ein zweites Katalysatorbett (1-B) unter Bildung eines Synthesegases **C** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- b₆) ggf. Kühlen des Synthesegases **C** in einem zweiten Wärmetauscher (1-3) oder in dem ersten Vorwärmetauscher (1-1); und Leiten des Synthesegases **C** über ein drittes Katalysatorbett (1-C) unter Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- b₇) Ausleiten des Synthesegases **D** aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1);
- c) Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **D** in einem ersten Zwischenwärmetauscher (2-1); ggf. Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **D** in einem zweiten Zwischenwärmetauscher (2-2);
- d) Synthese von Produkt aus Reaktanden, welche in dem Synthesegas **D** enthalten sind, unter heterogener Gaskatalyse in einer zweiten Reaktionsvorrichtung (3), umfassend die Schritte:
- d₁) ggf. Vorwärmen des Synthesegases **E** in einem zweiten Vorwärmetauscher (3-1);
- d₂) Wärmen des Synthesegases **E** in einem dritten Wärmetauscher (3-2);
- d₃) Leiten des Synthesegases **E** über ein drittes Katalysatorbett (3-A) unter Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- d₄) Kühlen des Synthesegases **F** in dem dritten Wärmetauscher (3-2);
- d₅) Leiten des Synthesegases **F** über ein viertes Katalysatorbett (3-B) unter Bildung eines Synthesegases **G** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- d₆) ggf. Kühlen des Synthesegases **G** in einem vierten Wärmetauscher (3-3) oder in dem zweiten Vorwärmetauscher (3-1); und Leiten des Synthesegases
- ERSATZBLATT (REGEL 26)

G über ein weiteres Katalysatorbett (3-C) unter Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;

d₇) Ausleiten des Synthesegases **H** aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3); und

e) Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** in einem ersten Nachwärmetauscher (4-1); sowie ggf. Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** in einem zweiten Nachwärmetauscher (4-2).

[0025] Bevorzugt verlässt in Schritt c) das Synthesegas **D** den Zwischenwärmetauscher (2-1) bei einer Temperatur T_A ; und in Schritt d₃) tritt das Synthesegas **E** in das dritte Katalysatorbett (3-A) bei einer Temperatur T_E ein; wobei die Temperatur T_E um mindestens 30°C, bevorzugt um mindestens 50°C größer ist als die Temperatur T_A . Diese Temperaturdifferenz wird anschließend ggf. durch Vorwärmen in Schritt d₁) und Wärmen in Schritt d₂) ausgeglichen. Bevorzugt liegt dabei T_E im Bereich von 360°C bis 430°C, bevorzugt im Bereich von 380°C bis 420°C.

[0026] Es wurde überraschend gefunden, dass durch dieses Kühlen des Synthesegases zwischen der ersten Reaktionsvorrichtung und der zweiten Reaktionsvorrichtung eine signifikant bessere Annäherung an die Gleichgewichtskurve der Ammoniak-Bildungsreaktion ermöglicht wird, als dies bei herkömmlichen Vorrichtungen der Fall ist, bei denen häufig drei Katalysatorbetten in einer einzelnen Reaktionsvorrichtung angeordnet sind, welche auch als gemeinsamer Druckbehälter dient.

[0027] Ein vergrößerter Zwischenkühler entnimmt dem Prozessgas mehr Wärme, welche dann zur Kesselspeisewasservorwärmung und/oder Dampfproduktion genutzt werden kann. Durch Wiederaufwärmen des Prozessgases in einem weiteren Wärmetauscher wird die optimale Eintrittstemperatur in das nachfolgende Katalysatorbett wiederhergestellt. Mit dem eintretenden Gas in das dritte Katalysatorbett, kann wiederum das austretende Prozessgas aus dem dritten Katalysatorbett gekühlt werden. Hierdurch kann auch für das nachfolgende vierte Katalysatorbett die Eintrittstemperatur optimal eingestellt werden, woraus ein gesteigerter Umsatz resultiert.

[0028] Es hat sich überraschend gezeigt, dass die Mehrkosten für eine gegebenenfalls notwendige Vergrößerung des Zwischenkühlers und der Einbringung einer Zwischenkühlung in die zweite Reaktionsvorrichtung geringer sind, als die

Kosten für zusätzlichen Katalysator, um den gleichen Umsatz ohne Zwischenkühlung zu erreichen. Dadurch ist das erfindungsgemäße Verfahren günstiger als der jetzige Stand der Technik.

[0029] Bevorzugt umfassen die Reaktanden im frischen Synthesegas **A** Wasserstoff und Stickstoff im molaren Verhältnis von 2,0-4,0 : 1,0.

[0030] Das Synthesegas **E** wird im dritten Wärmetauscher (3-2) abgekühlt, um einen höheren Umsatz im vierten Katalysatorbett (3-B) zu erreichen. Die abgeführte Wärme aus dem Synthesegas **F** im dritten Wärmetauscher wird dem Synthesegas **E** zugeführt. Um eine optimale Eintrittstemperatur ins dritte Katalysatorbett zu erreichen, muss das Synthesegas **D** im ersten Zwischenwärmetauscher weiter heruntergekühlt werden als in vorangegangenen Konzepten. Durch die größere Abkühlung des Synthesegases **D** ist es möglich, im ersten Zwischenwärmetauscher mehr Dampf zu erzeugen, was die Energieeffizienz des Prozesses insgesamt steigert.

[0031] Durch geeignete Wahl der Reaktionsbedingungen und der Aufteilung des Katalysatorvolumens ist es möglich, die Wärmemenge auf beide Dampferzeuger (2-1 bzw. 4-1) annähernd gleich zu verteilen. Somit kann vermieden werden, dass die Maximalgröße von Neuanlagen durch die Dampferzeuger beschränkt wird.

[0032] In Schritt (a) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird ein frisches Synthesegas **A** umfassend Reaktanden und ggf. inerte Komponenten bereitgestellt. Die inerten Komponenten sind dabei im Hinblick auf die Synthese des Produkts inert. Die Zusammensetzung des frischen Synthesegases **A** ist von der Art des Produkts abhängig. Im Falle des bevorzugten Produktes Ammoniak umfassen die inerten Komponenten bevorzugt Edelgase, insbesondere Argon, sowie Kohlenwasserstoffe, insbesondere Methan. Das frische Synthesegas **A** kann aus unterschiedlichen Quellen stammen, wobei Erdgas als Quelle bevorzugt ist. Bezüglich der Einzelheiten zur Bereitstellung von Synthesegas wird beispielsweise vollumfänglich verwiesen auf A. Nielsen, I. Dybkjaer, *Ammonia - Catalysis and Manufacture*, Springer Berlin 1995, Kapitel 6, Seiten 202-326.

[0033] In einer bevorzugten Ausführungsform wird das in Schritt (a) bereitgestellte frische Synthesegas **A** durch Reformierung von Kohlenwasserstoffen hergestellt wird, wobei die Reformierung in einem Dampfreformer, in einem gasbeheizten Reformer, in

einem autothermen Reformier oder durch partielle Oxidation erfolgt oder das frische Synthesegas A wird durch Elektrolyse von Wasser und Luftzerlegung hergestellt. Bevorzugt wird bei der Reformierung Erdgas, Wasser in Form von Dampf und Luft bzw. Sauerstoff eingesetzt. Der volumenanteilige Hauptbestandteil des Synthesegases ist bevorzugt Wasserstoff, wobei der Stickstoffanteil ggf. auch relativ hoch sein kann, abhängig davon, ob bei der Herstellung Luft, mit Sauerstoff angereicherte Luft oder sogar reiner Sauerstoff eingesetzt wurde.

[0034] Das in Schritt (a) bereitgestellte frische Synthesegas **A** kann bereits herkömmlichen Aufarbeitungsmaßnahmen unterzogen worden sein, wie z.B. Heliumentfernung, Erdgasentschwefelung, Konvertierung von Kohlenmonoxid zu Kohlendioxid und Kohlendioxidentfernung. Auch nach Durchführung dieser Aufbereitungsmaßnahmen kann das frische Synthesegas **A** neben Wasserstoff und Stickstoff ggf. weitere, insbesondere inerte Komponenten umfassen.

[0035] Das Synthesegas **A** kann vorzugsweise frisch sein, d.h. es kann erfindungsgemäß bevorzugt zuvor aus keiner vorgeschalteten Kreislaufsynthese als Spülgasstrom ausgeschleust worden sein.

[0036] Das in Schritt (a) bereitgestellte frische Synthesegas **A** kann ggf. bereits komprimiert sein, vorzugsweise auf einen Druck im Bereich von 50 bis 400 bara, bevorzugter auf einen Druck im Bereich von 170 bis 230 bara. Ebenso bevorzugt wird das in Schritt (a) bereitgestellte frische Synthesegas **A** in einem oder mehreren geeigneten Verdichtern auf einen Druck im Bereich von 50 bis 400 bara verdichtet, bevorzugter auf einen Druck im Bereich von 170 bis 230 bara.

[0037] In Schritt (b) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird Produkt aus Reaktanden synthetisiert, welche in dem Synthesegas **A** enthalten sind, unter heterogener Gaskatalyse in einer ersten Reaktionsvorrichtung, umfassend beispielsweise die Schritte:

b₁) ggf. Vorwärmen des frischen Synthesegases **A** in einem ersten Vorwärmetauscher (1-1);

b₂) Wärmen des frischen Synthesegases **A** in einem ersten Wärmetauscher (1-2);

- b₃) Leiten des frischen Synthesegases **A** über ein erstes Katalysatorbett (1-A) unter Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- b₄) Kühlen des Synthesegases **B** in dem ersten Wärmetauscher (1-2);
- b₅) Leiten des Synthesegases **B** über ein zweites Katalysatorbett (1-B) unter Bildung eines Synthesegases **C** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- b₆) ggf. Kühlen des Synthesegases **C** in einem zweiten Wärmetauscher (1-3) oder in dem ersten Vorwärmetauscher (1-1); und Leiten des Synthesegases **C** über ein drittes Katalysatorbett (1-C) unter Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden; und
- b₇) Ausleiten des Synthesegases **D** aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1).

[0038] Die Technologie der Synthese ist von der Art des Produkts abhängig. Reaktoren und Katalysatoren zur Gasphasenreaktion bei hohem Druck unter heterogener Gaskatalyse sind einem Fachmann bekannt. Im Hinblick auf die erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt wird beispielsweise ebenfalls vollumfänglich verwiesen auf A. Nielsen, I. Dybkjaer, *Ammonia - Catalysis and Manufacture*, Springer Berlin 1995, Kapitel 6, Seiten 202-326.

[0039] Bevorzugt erfolgt die Synthese von Produkt in Schritt (b) in einer einzelnen Reaktionsvorrichtung (1), welche bevorzugt als Druckbehälter ausgebildet ist. Das frische Synthesegas **A** wird bevorzugt am Kopfende in die Reaktionsvorrichtung (1) eingeleitet. Nach dem Einleiten in die Reaktionsvorrichtung wird das frische Synthesegas **A** in einem ersten Wärmetauscher (1-2) und ggf. zuvor ggf. in einem ersten Vorwärmetauscher (1-1) gewärmt, bevorzugt um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C.

[0040] Anschließend wird das frische Synthesegas **A** über ein erstes Katalysatorbett (1-A) unter Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das erste Katalysatorbett (1-A) von dem frischen Synthesegas **A** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen, wodurch die thermische Belastung des Druckbehälters reduziert wird. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die

erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0041] Anschließend wird das Synthesegas **B** in dem ersten Wärmetauscher (1-2) gekühlt, bevorzugt um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C. Bevorzugt wird dabei zumindest ein Teil der Wärme des Synthesegases **B** auf das frische Synthesegas **A** übertragen. Die Beschaffenheit des ersten Wärmetauschers (1-2) ist erfindungsgemäß nicht eingeschränkt. In einer bevorzugten Ausführungsform ist der erste Wärmetauscher (1-2) als Geradrohrwärmetauscher mit Zentralrohr ausgebildet. Ein Geradrohrwärmetauscher ist eine Bauform eines Rohrbündelwärmetauschers. Bei Geradrohr-Wärmetauschern werden viele dünne Einzelrohre gerade durch ein großes Rohr geführt. Er kann sowohl im Gleichstromprinzip als auch im Gegenstromprinzip betrieben werden. Der Geradrohrwärmetauscher ist vor allem dadurch gekennzeichnet, dass er im Betrieb nur einen sehr geringen Druckverlust erzeugt.

[0042] Erfindungsgemäß bevorzugt sind

- der ggf. vorhandene erste Vorwärmetauscher (1-1); und/oder
- der erste Wärmetauscher (1-2); und/oder
- der ggf. vorhandene zweite Wärmetauscher (1-3); und/oder
- der erste Zwischenwärmetauscher (2-1); und/oder
- der ggf. vorhandene zweite Vorwärmetauscher (3-1); und/oder
- der dritte Wärmetauscher (3-2); und/oder
- der ggf. vorhandene vierte Wärmetauscher(3-3); und/oder
- der erste Nachwärmetauscher (4-1)

[0043] jeweils unabhängig voneinander als Geradrohr-, U-Rohr oder Plattenwärmetauscher ausgebildet.

[0044] Anschließend wird das Synthesegas **B** über ein zweites Katalysatorbett (1-B) unter Bildung eines Synthesegases **C** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das zweite Katalysatorbett (1-B) von dem Synthesegas **B** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die

erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0045] In einer möglichen Ausführungsform wird anschließend das Synthesegas **C** über ein drittes Katalysatorbett (1-C) unter Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das dritte Katalysatorbett (1-C) von dem Synthesegas **C** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0046] Sofern in dem erfindungsgemäßen Verfahren ein erster Vorwärmetauscher (1-1) zum Einsatz kommt, so wird dieser bevorzugt auch in Schritt b₆) zum Kühlen des Synthesegases **D** eingesetzt.

[0047] Das erste Katalysatorbett (1-A), das zweite Katalysatorbett (1-B) sowie das ggf. vorhandene dritte Katalysatorbett (1-C) befinden sich in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) und sind bevorzugt übereinander angeordnet, wobei das erste Katalysatorbett (1-A) bevorzugt oberhalb des zweiten Katalysatorbettes (1-B) angeordnet ist, welches wiederum bevorzugt oberhalb des ggf. vorhandenen dritten Katalysatorbetts (1-C) angeordnet ist.

[0048] Das Synthesegas **D** wird bevorzugt am Fußende aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1) ausgeleitet.

[0049] In Schritt (c) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird bevorzugt zumindest ein Teil des Synthesegases **D** in einem ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) gekühlt. Bevorzugt werden mindestens 50 Vol.-% des Synthesegases **D** in dem ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) gekühlt, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, mindestens 70 Vol.-%, mindestens 80 Vol.-% oder mindestens 90 Vol.-%. Bevorzugt wird zumindest ein Teil des Synthesegases **D** in Schritt (c) um mindestens 20°C gekühlt, bevorzugter um mindestens 30°C, mindestens 40°C, mindestens 50°C, mindestens 60°C, mindestens 80°C oder mindestens 100°C.

[0050] Die Abkühlung ist erforderlich, um für den folgenden Schritt (d) geeignete Eintrittstemperaturen des Synthesegases **D** in das dritte, vierte und ggf. vorhandene weitere Katalysatorbetten (3-A, 3-B und ggf. 3-C) mithilfe des dritten Wärmetauschers (3-2) einstellen zu können. Diese Temperaturdifferenz wird ggf. durch Vorwärmen in Schritt d₁) und Wärmen in Schritt d₂) ausgeglichen. Höhere Umsätze bzw. Anlagenkapazitäten wären somit ohne diesen Schritt nicht kosteneffizient realisierbar.

[0051] In einer möglichen Ausführungsform ist dem ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) ein zweiter Zwischenwärmetauscher nachgeschaltet.

[0052] In Schritt (d) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird Produkt aus Reaktanden synthetisiert, welche in dem Synthesegas **D** enthalten sind, unter heterogener Gaskatalyse in einer zweiten Reaktionsvorrichtung, umfassend die Schritte:

- d₁) ggf. Vorwärmen des Synthesegases **E** in einem zweiten Vorwärmetauscher;
- d₂) Wärmen des Synthesegases **E** in einem dritten Wärmetauscher;
- d₃) Leiten des Synthesegases **E** über ein drittes Katalysatorbett unter Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- d₄) Kühlen des Synthesegases **F** in dem dritten Wärmetauscher;
- d₅) Leiten des Synthesegases **F** über ein viertes Katalysatorbett unter Bildung eines Synthesegases **G** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden;
- d₆) ggf. Kühlen des Synthesegases **G** in einem vierten Wärmetauscher oder in dem zweiten Vorwärmetauscher und Leiten des Synthesegases **G** über ein weiteres Katalysatorbett unter Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden; und
- d₇) Ausleiten des Synthesegases **H** aus der zweiten Reaktionsvorrichtung.

[0053] Bevorzugt erfolgt die Synthese von Produkt in Schritt (d) in einer einzelnen Reaktionsvorrichtung (3), welche bevorzugt als Druckbehälter ausgebildet ist. Das Synthesegas **E** wird bevorzugt am Kopfende in die zweite Reaktionsvorrichtung (3) eingeleitet. Nach dem Einleiten in die zweite Reaktionsvorrichtung wird das Synthesegas **E** in einem dritten Wärmetauscher (3-2) gewärmt, bevorzugt um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C.

[0054] Anschließend wird das Synthesegas **E** über ein drittes Katalysatorbett unter Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das dritte Katalysatorbett (3-A) von dem Synthesegas **E** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0055] Anschließend wird das Synthesegas **F** in dem dritten Wärmetauscher (3-2) gekühlt, bevorzugt um mindestens 20°C, bevorzugter um mindestens 40°C. Bevorzugt wird dabei zumindest ein Teil der Wärme des Synthesegases **F** auf das Synthesegas **E** übertragen. Die Beschaffenheit des dritten Wärmetauschers (3-2) ist erfindungsgemäß nicht eingeschränkt. In einer bevorzugten Ausführungsform ist der dritte Wärmetauscher als Geradrohrwärmetauscher mit Zentralrohr ausgebildet.

[0056] Anschließend wird das Synthesegas **F** über ein viertes Katalysatorbett (3-B) unter Bildung eines Synthesegases **G** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das vierte Katalysatorbett (3-B) von dem Synthesegas **F** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0057] In einer bevorzugten Ausführungsform wird anschließend das Synthesegas **G** über mindestens ein weiteres Katalysatorbett (3-C) unter Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden geleitet. Bevorzugt wird das weitere Katalysatorbett von dem Synthesegas **G** vorwiegend radial durchströmt, vorzugsweise von außen nach innen. Die Wahl des Katalysators ist von der Art des Produkts abhängig. Im Hinblick auf die erfindungsgemäß bevorzugte Synthese von Ammoniak als Produkt sind beispielsweise Magnetit- oder Rutheniumkatalysatoren geeignet, welche ggf. mit weiteren Komponenten versetzt sein können.

[0058] Sofern in dem erfindungsgemäßen Verfahren ein zweiter Vorwärmetauscher zum Einsatz kommt, so wird dieser bevorzugt auch in Schritt d₆) zum Kühlen des Synthesegases **G** eingesetzt.

[0059] Das dritte Katalysatorbett (3-A), das vierte Katalysatorbett (3-B) sowie das ggf. vorhandene weitere Katalysatorbett (3-C) befinden sich in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) und sind bevorzugt übereinander angeordnet, wobei das dritte Katalysatorbett (3-A) bevorzugt oberhalb des vierten Katalysatorbettes (3-B) angeordnet ist, welches wiederum bevorzugt oberhalb des ggf. vorhandenen weiteren Katalysatorbetts (3-C) angeordnet ist.

[0060] Das Synthesegas **H** wird bevorzugt am Fußende aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) ausgeleitet.

[0061] In Schritt (e) des erfindungsgemäßen Verfahrens wird zumindest ein Teil des Synthesegases **H** in einem ersten Nachwärmetauscher (4-1) gekühlt. Bevorzugt werden mindestens 50 Vol.-% des Synthesegases **H** in dem ersten Nachwärmetauscher gekühlt, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, mindestens 70 Vol.-%, mindestens 80 Vol.-% oder mindestens 90 Vol.-%. Bevorzugt wird zumindest ein Teil des Synthesegases **H** in Schritt (e) um mindestens 20°C gekühlt, bevorzugter um mindestens 30°C, mindestens 40°C, mindestens 50°C, mindestens 60°C, mindestens 80°C oder mindestens 100°C.

[0062] In einer bevorzugten Ausführungsform ist dem ersten Nachwärmetauscher (4-1) ein zweiter Nachwärmetauscher nachgeschaltet.

[0063] In einer bevorzugten Ausführungsform wird die im ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und ggf. vorhandenen zweiten Zwischenwärmetauscher; und/oder im ersten Nachwärmetauscher (4-1) und ggf. vorhandenen zweiten Nachwärmetauscher abgeführte Wärme bevorzugt zur Bildung von Dampf eingesetzt, wobei der Dampf, vorzugsweise Hochdruckdampf entweder in dem erfindungsgemäßen Verfahren oder in jedem anderen Verfahren eingesetzt werden kann.

[0064] Bevorzugt wird in den

ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und ggf. vorhandenen zweiten Zwischenwärmetauscher; und/oder

im ersten Nachwärmetauscher (4-1) und ggf. vorhandenen zweiten Nachwärmetauscher

Wasser eingeleitet wird, welches bevorzugt zuvor temperiert wurde.

[0065] Bevorzugt wird dabei Wasser und/oder Dampf eingeleitet, welches zuvor auf eine Temperatur im Bereich von 20 bis 220°C temperiert wurde, bevorzugter auf eine Temperatur im Bereich von 140 bis 220°C. In einer bevorzugten Ausführungsform wird zumindest ein Teil des Synthesegas **D** im ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und/oder zumindest ein Teil des Synthesegases **H** im ersten Nachwärmetauscher (4-1) um mindestens 50°C gekühlt, bevorzugter um mindestens 70°C, mindestens 90°C oder mindestens 100°C.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird nach Schritt (e) zumindest ein Teil des Synthesegases **H** in einem Kreislauf geführt und mit dem in Schritt (a) bereitgestellten frischen Synthesegas **A** vermischt. Bevorzugt werden nach Schritt (e) mindestens 50 Vol.-% des Synthesegases **F** bzw. **G** in einem Kreislauf geführt, bevorzugter mindestens 60 Vol.-%, mindestens 70 Vol.-%, mindestens 80 Vol.-% oder mindestens 90 Vol.-%. Durch das Führen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** in einem Kreislauf wird ein Synthesekreislauf gebildet, in welchem sich ggf. inerte Komponenten anreichern können. Ein zu hoher Anteil an inerten Komponenten im Synthesegas ist jedoch nachteilig, da dadurch der Partialdruck der Reaktanden und damit die Ausbeute an Produkt verringert werden. Bevorzugt wird der Anteil an dem Synthesegas **H**, welcher in einem Kreislauf geführt wird, so gewählt, dass der Anteil an inerten Komponenten in dem Synthesekreislauf höchstens 20 Vol.-% beträgt, bevorzugter höchstens 15 Vol.-%.

[0066] Gemäß einer bevorzugten Weiterbildung der Erfindung ist wenigstens ein weiterer Wärmetauscher (3-2), der von dem in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintretenden Synthesegas durchströmt wird, um dieses vorzuwärmen, in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) zwischen dem dritten Katalysatorbett (3-A) und dem vierten Katalysatorbett (3-B) angeordnet und dieser weitere Wärmetauscher (3-2) dient gleichzeitig dazu, das in das vierte Katalysatorbett (3-B) eintretende Synthesegas **F** abzukühlen.

[0067] In dem erfindungsgemäßen Verfahren können niedrigere Umlaufzeiten im Synthesekreislauf erzielt werden, und folglich kann dadurch die Vorrichtung zur Herstellung eines Produkts insgesamt kleiner ausgeführt werden bzw. erzielt bei gleicher Größe einen höheren Umsatz. Aufgrund der zusätzlichen Vorwärmung des Synthesegases **E** im dritten Wärmetauscher (3-2) der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) und den ggf. vorhandenen zweiten Vorwärmetauscher ist es möglich, dass Synthesegas **E** im ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) nach dem Austritt aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1) weiter abzukühlen als dies bei konventionellen Verfahren üblich ist.

[0068] Somit ist es möglich, in dem erfindungsgemäßen Verfahren im Vergleich zu konventionellen Verfahren mehr Dampf zu erzeugen, welcher in dem erfindungsgemäßen Verfahren bzw. in jedem anderen Verfahren verwendet werden kann. Zudem ist es durch zusätzliche Zwischenkühlungen möglich, höhere Umsätze zu erreichen, ohne dabei die Gesamtmenge an Katalysator zu erhöhen.

[0069] Es ist Stand der Technik, dass ebenfalls vier Katalysatorbetten verbaut werden, in der Regel jedoch ohne eine Zwischenkühlung zur Dampferzeugung und/oder zur Kesselspeisewasservorwärmung. Die Variante ohne Zwischenkühlung zur Dampferzeugung ist in der Regel weniger energieeffizient als mit Zwischenkühlung.

[0070] In einer bevorzugten Ausführungsform erfolgt die Synthese in einem Maßstab, welcher eine Tagesproduktion von mindestens 1.800 t Produkt übersteigt, bevorzugter eine Tagesproduktion von mindestens 2.500 t Produkt oder von mindestens 3.000 t Produkt.

[0071] Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft eine Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas **A** unter heterogener Gaskatalyse, insbesondere zur Verwendung in einem Verfahren der zuvor beschriebenen Art, wobei die Vorrichtung die folgenden miteinander in Wirkverbindung stehenden Komponenten umfasst:

[0072] eine erste Reaktionsvorrichtung (1) umfassend:

- a) ein erstes Katalysatorbett (1-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus einem frischen Synthesegas **A**;

- b) einen ersten Wärmetauscher (1-2) konfiguriert zum Wärmen des frischen Synthesegases **A** vor Eintritt in das erste Katalysatorbett (1-A) und zum Kühlen eines Synthesegases **B** nach dem Austritt aus dem ersten Katalysatorbett (1-A);
- c) ein zweites Katalysatorbett (1-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **B**;
- d) Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases **D** aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1);

[0073] einen Zwischenwärmetauscher (2-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **D**;

[0074] eine zweite Reaktionsvorrichtung (3) umfassend:

- a) ein drittes Katalysatorbett (3-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegases **E**;
- b) einen dritten Wärmetauscher (3-2) konfiguriert zum Wärmen des Synthesegases **E** vor Eintritt in das dritte Katalysatorbett (3-A) und zum Kühlen des Synthesegases **F** nach dem Austritt aus dem dritten Katalysatorbett (3-A);
- c) ein viertes Katalysatorbett (3-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **F**;
- d) Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases **H** aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3); und

[0075] einen Nachwärmetauscher (4-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **H**, wobei erfindungsgemäß der erste Wärmetauscher (3-2) konzentrisch radial innerhalb des ersten Katalysatorbetts (3-A) angeordnet ist und/oder der dritte Wärmetauscher (3-3) konzentrisch radial innerhalb des dritten Katalysatorbetts (3-B) angeordnet ist.;

[0076] Die Komponenten der erfindungsgemäßen Vorrichtung stehen miteinander in Wirkverbindung, d.h. sind durch geeignete Rohrleitungen etc. miteinander in einer

Weise verbunden, welche die allgemeine Funktionsfähigkeit der Vorrichtung gewährleistet. Die dafür erforderlichen Maßnahmen sind einem Fachmann bekannt.

[0077] Alle bevorzugten Ausführungsformen, welche vorstehend im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines Produkts beschrieben wurden, gelten analog auch für die erfindungsgemäße Vorrichtung zur Herstellung eines Produkts und werden daher nicht wiederholt.

[0078] Die erste (1) und/oder die zweite Reaktionsvorrichtung (3) umfasst bevorzugt einen im Wesentlichen zylindrischen Behälter mit einer vertikalen Längsachse. Reaktoren zur Gasphasenreaktion bei hohem Druck sind einem Fachmann bekannt. Im Hinblick auf die erfindungsgemäße Synthese von Ammoniak wird beispielsweise verwiesen auf A. Nielsen, I. Dybkjaer, *Ammonia - Catalysis and Manufacture*, Springer Berlin 1995, Kapitel 6, Seiten 202-326.

[0079] Im ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und im ersten Nachwärmetauscher (4-1) wird jeweils Wärme von dem Synthesegas **D** und/oder von dem Synthesegas **H** auf Wasser bzw. auf Dampf übertragen, wobei bevorzugt Hochdruckdampf > 100 bara gebildet wird, mindestens jedoch 20 bara Dampf. Dazu wird Wasser bzw. Dampf in den ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und den ggf. vorhandenen zweiten Zwischenwärmetauscher bzw. in den ersten Nachwärmetauscher (4-1) und den ggf. vorhandenen zweiten Nachwärmetauscher eingeleitet, welches bevorzugt zuvor temperiert wurde.

[0080] In einer bevorzugten Ausführungsform umfasst die erfindungsgemäße Vorrichtung weiterhin:

(I) Mittel zum Rückführen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** vom ersten Nachwärmetauscher zur ersten Reaktionsvorrichtung.

[0081] Die Mittel zum Rückführen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** vom ersten Nachwärmetauscher (4-1) zur ersten Reaktionsvorrichtung (1) umfassen bevorzugt geeignete Rohrleitungen, deren Ausgestaltung einem Fachmann bekannt sind.

[0082] In einer bevorzugten Ausführungsform umfasst die erfindungsgemäße Vorrichtung weiterhin:

(J) Mittel zum Wärmen des Wassers und/oder des Dampfs, welches in den ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) und den ggf. vorhandenen zweiten Zwischenwärmetauscher und/oder in den ersten Nachwärmetauscher (4-1) und den ggf. vorhandenen zweiten Nachwärmetauscher zur Bildung von Dampf geleitet wird

[0083] Bevorzugt kann die Menge an Wasser und Dampf sowie die Temperatur für jeden Wärmetauscher jeweils unabhängig voneinander geregelt werden.

[0084] Sofern in dem erfindungsgemäßen Verfahren ein erster Vorwärmetauscher (1-1) zum Einsatz kommt, so wird dieser bevorzugt auch zum Kühlen des Synthesegases **D** eingesetzt und entsprechend konfiguriert.

[0085] Sofern in dem erfindungsgemäßen Verfahren ein zweiter Vorwärmetauscher (3-1) zum Einsatz kommt, so wird dieser bevorzugt auch zum Kühlen des Synthesegases **F** eingesetzt und entsprechend konfiguriert.

[0086] In einer bevorzugten Ausführungsform umfasst

- die erste Reaktionsvorrichtung mindestens zwei Katalysatorbetten, d.h. das erste Katalysatorbett (1-A) und das zweite Katalysatorbett (1-B) sowie ggf. zusätzlich ein drittes Katalysatorbett (1-C); und
- die zweite Reaktionsvorrichtung mindestens zwei Katalysatorbetten, d.h. ein drittes Katalysatorbett (3-A) und ein viertes Katalysatorbett (3-B) sowie ggf. zusätzlich wenigstens ein weiteres Katalysatorbett (3-C).

[0087] In der einfachsten bevorzugten Ausführungsform umfasst

- die erste Reaktionsvorrichtung (1) genau zwei Katalysatorbetten, d.h. das erste Katalysatorbett (1-A) und das zweite Katalysatorbett (1-B); und
- die zweite Reaktionsvorrichtung (2) genau zwei Katalysatorbetten, d.h. das dritte Katalysatorbett (3-A) und das vierte Katalysatorbett (3-B).

[0088] In einer anderen bevorzugten Ausführungsform umfasst

- die erste Reaktionsvorrichtung (1) genau zwei Katalysatorbetten, d.h. das erste Katalysatorbett (1-A) und das zweite Katalysatorbett (1-B); und
- die zweite Reaktionsvorrichtung (3) mindestens zwei Katalysatorbetten, d.h. das dritte Katalysatorbett (3-A) und das vierte Katalysatorbett (3-B) sowie ggf. zusätzlich ein weiteres (fünftes) Katalysatorbett (3-C).

[0089] In einer anderen bevorzugten Ausführungsform umfasst

- die erste Reaktionsvorrichtung (1) mindestens zwei Katalysatorbetten, d.h. das erste Katalysatorbett (1-A) und das zweite Katalysatorbett (1-B) sowie ggf. zusätzlich wenigstens ein weiteres (drittes) Katalysatorbett (1-C); und
- die zweite Reaktionsvorrichtung (3) genau zwei Katalysatorbetten, d.h. ein viertes Katalysatorbett (3-A) und ein fünftes Katalysatorbett (3-B).

[0090] Gemäß einer bevorzugten Ausführungsvariante der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist der erste Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung so angeordnet, dass er zunächst von dem frischen Synthesegas **A** durchströmt wird, bevor dieses in das erste Katalysatorbett (1-A) eintritt und dann vorzugsweise im Gegenstrom von dem aus dem ersten Katalysatorbett (1-A) austretenden Synthesegas **B**, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des ersten Katalysatorbetts (1-A) und vor dem Eintreten in das zweite Katalysatorbett (1-B) durchströmt wird.

[0091] Gemäß einer bevorzugten Ausführungsvariante der erfindungsgemäßen Vorrichtung ist weiterhin der dritte Wärmetauscher (3-2) in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) so angeordnet, dass er zunächst von dem die erste Reaktionsvorrichtung (1) verlassenden Synthesegas **D** durchströmt wird, bevor dieses in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintritt und dass er vorzugsweise im Gegenstrom von dem aus dem dritten Katalysatorbett (3-A) austretenden Synthesegas, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des dritten Katalysatorbetts (3-A) und vor dem Eintreten in das vierte Katalysatorbett (3-B) durchströmt wird.

[0092] Die erfindungsgemäße Vorrichtung eignet sich besonders zum Durchführen des erfindungsgemäßen Verfahrens. Ein weiterer Aspekt der Erfindung umfasst daher die Verwendung der erfindungsgemäßen Vorrichtung in dem erfindungsgemäßen Verfahren.

[0093] Figur 1 illustriert schematisch eine Anlage gemäß einem ersten Ausführungsbeispiel der Erfindung, mit deren Hilfe ein erfindungsgemäß bevorzugtes Verfahren durchgeführt werden kann;

[0094] Figur 2 zeigt in schematischer Ansicht eine Anlage gemäß einem alternativen Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung.

[0095] Die in Figur 1 gezeigte Ausführungsvariante zeigt eine erfindungsgemäße Anlage mit zwei Reaktionsvorrichtungen (1), (2), welche beide jeweils zwei Katalysatorbetten enthalten, so dass die Anlage insgesamt vier Katalysatorbetten umfasst. Ein frisches Synthesegas **A** umfassend Reaktanden und ggf. inerte Komponenten wird in eine erste Reaktionsvorrichtung (1) eingeleitet, welche ein erstes Katalysatorbett (1-A) und ein zweites Katalysatorbett (1-B) sowie einen ersten Wärmetauscher (1-2) umfasst. Bevor das frische Synthesegas **A** in die erste Reaktionsvorrichtung (1) gelangt kann dieses noch einen in der Zuleitung vorgeschalteten Vorwärmetauscher (1-1) durchströmen. Danach wird das frische Synthesegas **A** in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) in dem ersten Wärmetauscher (1-2) gewärmt. Anschließend wird das gewärmte frische Synthesegas **A** über das erste Katalysatorbett (1-A) geleitet unter Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden.

[0096] Wie man in Figur 1 erkennen kann, ist der erste Wärmetauscher (1-2) so angeordnet, dass er radial innen innerhalb des ersten Katalysatorbetts (1-A) liegt. Mit anderen Worten, dass Katalysatorbett (1-A) ist ringförmig ausgebildet, befindet sich in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) radial außen liegend und umgibt den ersten Wärmetauscher (1-2) ringförmig. Das erste Katalysatorbett (1-A) und der konzentrisch innerhalb dieses liegende Wärmetauscher (1-2) haben in etwa die gleiche axiale Länge und erstrecken sich beide jeweils nur über einen oberen Teil der axialen Länge der ersten Reaktionsvorrichtung (1).

[0097] Im Detail ist der Strömungsweg des frischen Synthesegases **A** wie folgt. Zunächst gelangt das frische Synthesegas **A** in ein gerades Rohr des ersten Wärmetauschers (1-2), welches sich mittig etwa in Achsrichtung im oberen Bereich in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) erstreckt und von dem frischen Synthesegas **A** von oben nach unten durchströmt wird. Am unteren Ende erfolgt eine Umkehr der Strömungsrichtung und das frische Synthesegas strömt durch die Rohre im ersten Wärmetauscher (1-2) wieder nach oben, wo es dann oberhalb des ersten Wärmetauschers in Richtung der Pfeile radial nach außen strömt, um dann das erste Katalysatorbett (1-A) von radial außen nach radial innen zu durchströmen, wobei die katalytische Reaktion stattfindet. Danach strömt das Synthesegas, welches sich durch die Reaktion erwärmt hat, in den radial innen liegenden ersten Wärmetauscher (1-2) ein. Hierbei wird das Synthesegas so geleitet, dass der Wärmetauscher von oben nach unten durchströmt wird, wobei es sich abkühlt, da ein Wärmetausch mit dem ebenfalls den ersten Wärmetauscher durchströmenden kühleren frischen Synthesegas **A** stattfindet. Dann verlässt das Synthesegas den ersten Wärmetauscher (1-2) am unteren Ende, um unterhalb des ersten Wärmetauschers wieder radial nach außen zu strömen.

[0098] Dadurch erfolgt der Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B), welches stromabwärts zu dem ersten Katalysatorbett (1-A) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) angeordnet ist, wieder von radial außen her in Richtung der Pfeile. Das in dem ersten Wärmetauscher (1-2) abgekühlte Synthesegas **B** strömt dann radial von außen nach innen in Richtung der horizontalen Pfeile durch das zweite Katalysatorbett (1-B) unter Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden. Im radial inneren Bereich erfolgt im oberen Bereich des zweiten Katalysatorbetts (1-B) eine Umlenkung der horizontalen Strömung in eine vertikale Strömung, so dass das Synthesegas **D** nach der Reaktion im zweiten Katalysatorbett (1-B) in Richtung des großen mittigen Pfeils nach unten strömt und am unteren Ende aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1) austritt. Dem zweiten Katalysatorbett (1-B) ist innerhalb der ersten Reaktionsvorrichtung (1) kein weiterer Wärmetauscher zugeordnet, so dass das zweite Katalysatorbett (1-B) eine größere radiale Ausdehnung aufweisen kann als das erste Katalysatorbett und entsprechend mehr Volumen für die Reaktion im zweiten Katalysatorbett (1-B) zur Verfügung steht.

[0099] Nach dem Ausleiten aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1) wird zumindest ein Teil des Synthesegases **D** über einen ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) geleitet und dabei gekühlt. Der erste Zwischenwärmetauscher (2-1) wird

vorzugsweise von einem Kesselspeisewasser durchströmt, welches zuvor temperiert wurde. In dem ersten Zwischenwärmetauscher (2-1) wird Wärme von dem Synthesegas **D** auf das Kesselspeisewasser unter Bildung von Hochdruckdampf (5) übertragen.

[00100] Das abgekühlte Synthesegas **E** wird anschließend in eine zweite Reaktionsvorrichtung (3) eingeleitet, welche ein drittes Katalysatorbett (3-A) und ein viertes Katalysatorbett (3-B) sowie einen dritten Wärmetauscher (3-2) umfasst. Zunächst wird das Synthesegas **E** in dem dritten Wärmetauscher (3-2) gewärmt. Anschließend wird das gewärmte Synthesegas **E** über das dritte Katalysatorbett (3-A) geleitet unter Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden. Der Aufbau des dritten Katalysatorbetts (3-A) und des diesem zugeordneten Wärmetauschers (3-2) sind im Prinzip analog zu den Verhältnissen bezüglich des ersten Katalysatorbetts (1-A) und des diesem zugeordneten ersten Wärmetauschers (1-2). Dies gilt ebenso für die räumliche Anordnung und die Strömungsverhältnisse des Synthesegases wie sie bereits oben erläutert wurden. Der dritte Wärmetauscher (3-2) liegt somit konzentrisch innerhalb des dritten Katalysatorbetts (3-A) und wird von dem Synthesegas **E** zweimal durchströmt, nämlich zum einen beim Eintritt des Synthesegases **E** in die zweite Reaktionsvorrichtung (3) zu dessen Erwärmung und außerdem nach der Reaktion im dritten Katalysatorbett zur Abkühlung, um die bei der Reaktion im Katalysatorbett entstehende Wärme abzuführen.

[00101] Das Synthesegas **F** wird nach dem Austritt aus dem dritten Wärmetauscher (3-2) und der dortigen Abkühlung anschließend über das vierte Katalysatorbett (3-B) geleitet, unter Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden. Dem vierten Katalysatorbett (3-B) ist ebenso wie bei dem zweiten Katalysatorbett (1-B) kein weiterer Wärmetauscher innerhalb der Reaktionsvorrichtung (3) direkt zugeordnet und es daher eine größere radiale Ausdehnung als das dritte Katalysatorbett (3-A). Die Anordnung und die Strömungsverhältnisse entsprechen denjenigen wie zuvor bei dem zweiten Katalysatorbett (1-B) beschrieben und das Synthesegas **H** verlässt die zweite Reaktionsvorrichtung (3) in axialer Richtung am unteren Ende wie durch den Pfeil in Figur 1 angedeutet.

[00102] Nach dem Ausleiten aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) wird zumindest ein Teil des Synthesegases **H** über einen ersten Nachwärmetauscher (4-1) geleitet

und dabei gekühlt. Der erste Nachwärmetauscher (4-1) wird vorzugsweise von einem Kesselspeisewasser durchströmt, welches zuvor temperiert wurde. In dem ersten Nachwärmetauscher (4-1) wird Wärme von dem Synthesegas **H** auf das Kesselspeisewasser unter Bildung von Hochdruckdampf (5) übertragen.

[00103] Nachfolgend wird unter Bezugnahme auf die Figur 2 ein alternatives Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung beschrieben. Anders als bei der zuvor beschriebenen Anlagenvariante sind bei dieser Variante in jeder der beiden Reaktionsvorrichtung (1), (3) jeweils drei Katalysatorbetten vorgesehen, so dass insgesamt sechs Katalysatorbetten vorhanden sind. Dies sind in der ersten Reaktionsvorrichtung die Katalysatorbetten (1-A), (1-B) und (1-C), die in Strömungsrichtung des Prozessgasstroms in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) hintereinander angeordnet sind und die jeweils in einer wie hier etwa zylindrischen Reaktionsvorrichtung (1) axial aufeinander folgen. Dabei sind dem ersten Katalysatorbett (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett (1-B) jeweils Wärmetauscher (1-2), (1-3) zugeordnet, welche wie zuvor bereits unter Bezugnahme auf Figur 1 beschrieben jeweils konzentrisch innerhalb der jeweiligen Katalysatorbetten (1-A, 1-B) angeordnet sind und in der oben beschriebenen Weise von dem Prozessgas durchströmt werden. Das dritte Katalysatorbett (1-C) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) weist hingegen keinen diesem zugeordneten Wärmetauscher aus und kann entsprechend mehr Katalysatorvolumen aufweisen, da es sich weiter nach radial innen hin erstreckt.

[00104] In der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) sind hier ebenfalls drei Katalysatorbetten (3-A), (3-B) und (3-C) vorgesehen, die in Strömungsrichtung des Prozessgasstroms in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) hintereinander angeordnet sind und die jeweils in einer wie hier etwa zylindrischen Reaktionsvorrichtung (3) axial aufeinander folgen. Dabei sind dem insgesamt vierten Katalysatorbett (3-A) und dem fünften Katalysatorbett (3-B) jeweils Wärmetauscher (3-2), (3-3) zugeordnet, welche wie zuvor bereits unter Bezugnahme auf Figur 1 beschrieben jeweils konzentrisch innerhalb der jeweiligen Katalysatorbetten (3-A, 3-B) angeordnet sind und in der oben beschriebenen Weise von dem Prozessgas durchströmt werden. Das dritte Katalysatorbett (3-C) in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) weist hingegen keinen diesem zugeordneten Wärmetauscher aus und kann entsprechend mehr Katalysatorvolumen aufweisen, da es sich weiter nach radial innen hin erstreckt.

[00105] Bei dieser Variante tritt aus dem zweiten Katalysatorbett ein Synthesegas **C** aus und die erste Reaktionsvorrichtung (1) verlässt nach dem dritten Katalysatorbett (1-C) ein Synthesegasstrom **D**. Ein Synthesegas **E** tritt in die zweite Reaktionsvorrichtung (3) ein, das das vierte Katalysatorbett (3-A) verlassende Synthesegas ist mit **F** bezeichnet, aus dem fünften Katalysatorbett (3-B) tritt ein Synthesegas **G** aus und das die zweite Reaktionsvorrichtung (3) nach dem sechsten Katalysatorbett (3-C) verlassende Produktgas ist mit **H** bezeichnet. Die übrigen Anlagenteile sind in der Ausführungsvariante gemäß Figur 2 analog ausgebildet wie oben bereits in dem ersten Ausführungsbeispiel gemäß Figur 1 beschrieben, so dass diesbezüglich auf die dortigen Ausführungen Bezug genommen wird.

[00106] Weitere mögliche Varianten bestehen aus einer Mischung der erwähnten Varianten gemäß Figur 1 und Figur 2. In einem Fall würde die erste Reaktionsvorrichtung (1) gemäß Figur 2 ausgeführt, das heißt mit drei Katalysatorbetten (1-A), (1-B) und (1-C), und die zweite Reaktionsvorrichtung (3) gemäß Figur 1 aus zwei Katalysatorbetten bestehen, (3-A) und (3-B). In einem anderen Fall würde die erste Reaktionsvorrichtung (1) gemäß Figur 2 ausgeführt, das heißt mit zwei Katalysatorbetten (1-A) und (1-B), und die zweite Reaktionsvorrichtung (3) aus drei Katalysatorbetten bestehen, (3-A), (3-B) und (3-C).

[00107] Das unten stehende Diagramm beschreibt verschiedene Reaktionsvorrichtungen gemäß dem Stand der Technik, im Vergleich zum Erfindungsgegenstand. Die Darstellung zeigt den Reaktionsverlauf über mehrere Katalysatorbetten samt Abkühlung, genauer den Zusammenhang zwischen Produktkonzentration und Reaktionstemperatur im Vergleich zum Reaktionsgleichgewicht. Alle drei Reaktorkurven starten unten im Diagramm bei ähnlichen Temperaturen.

[00108] Die grüne Kurve für den Dreibettkonverter startet bei Punkt 1, hier beginnt die exotherme Reaktion, Produktkonzentration und Temperatur steigen an. An Punkt 2 ist das Katalysatorbett durchströmt, die Reaktion stoppt und das Gas wird bei gleichbleibender Konzentration hin zu Punkt 3 abgekühlt. Nun wird das Gas in das zweite Katalysatorbett geleitet, Konzentration und Temperatur steigen wieder bis Punkt 4 an. Von Punkt 4 zu Punkt 5 wird das Gas wieder in einem Wärmetauscher abgekühlt. Im dritten Katalysatorbett reagiert das Gas weiter bis zu Punkt 6.

[00109] Die braune Kurve für den Quenchreaktor verläuft analog zur grünen Kurve, mit dem Unterschied, dass die Zwischenkühlungen durch das Quenchgas (Punkt 2 zu 3 und Punkt 4 zu 5) nicht nur die Temperatur, sondern durch das Zumischen von Frischgas auch die Konzentration absenkt.

[00110] Die blaue Kurve zeigt den Verlauf für den in der Erfindung beschriebenen 4-Bettreaktor. Die Kurve verläuft in diesem Diagramm ebenfalls analog zu den anderen Kurven. Im Unterschied zu den anderen Kurven, gibt es hier 8 Eckpunkte auf der Kurve, entsprechend durch die höhere Anzahl der Betten. Ebenfalls kann man diesem Diagramm entnehmen, dass der 4-Bettreaktor die höchste Produktkonzentration am Austritt erzeugt (oberster Punkt der Kurve) und somit deutliche Vorteile gegenüber den anderen Reaktortypen aufweist.

Bezugszeichenliste:

- A Synthesegas **A**
- 1 erste Reaktionsvorrichtung
- 1-1 vorgeschalteter Wärmetauscher
- 1-2 erster Wärmetauscher
- 1-A erstes Katalysatorbett
- B Synthesegas **B**
- 1-B zweites Katalysatorbett
- C Synthesegas **C**
- 1-3 zweiter Wärmetauscher
- 1-C drittes Katalysatorbett
- 2-1 Zwischenwärmetauscher
- 5 Hochdruckdampf
- 3 zweite Reaktionsvorrichtung
- 3-1 vorgeschalteter Wärmetauscher
- 3-2 dritter Wärmetauscher
- 3-A drittes bzw. viertes Katalysatorbett
- E Synthesegas **E**
- 3-B viertes bzw. fünftes Katalysatorbett
- F Synthesegas **F**
- G Synthesegas **G**
- 3-3 dritter Wärmetauscher
- 3-C sechstes Katalysatorbett
- H Synthesegas **H**
- 4-1 Nachwärmetauscher

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas unter heterogener Gaskatalyse in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionsvorrichtungen (1, 3), wobei jede dieser Reaktionsvorrichtungen jeweils wenigstens zwei Katalysatorbetten (1-A, 1-B; 3-A, 3-B) umfasst, durch die hindurch das Synthesegas geleitet wird und in denen eine mindestens teilweise Umsetzung zu Produktgas erfolgt, wobei wenigstens ein erster Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) vorgesehen ist, in dem das frische Synthesegas **A** vorgewärmt wird und wobei ein Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbettes (1-A) austretenden Synthesegases (B) umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B) vorgesehen ist, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Vorwärmen in einem ersten Wärmetauscher (1-2) erfolgt, welcher zwischen dem ersten (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett **B** angeordnet ist.
2. Verfahren gemäß Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbett (1-A) austretenden Synthesegases **B** vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B) mittels des ersten Wärmetauschers (1-2) erfolgt, welcher im Strömungsweg hinsichtlich des einen Anteil an Produkt umfassenden Synthesegases **B** zwischen dem ersten (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett (1-B) angeordnet ist.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** der gesamte Feedgasstrom des frischen Synthesegases **A** durch das erste Katalysatorbett (1-A) und anschließend auch durch das zweite Katalysatorbett (1-B) hindurch geleitet wird.
4. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** ein im Strömungsweg zwischen der ersten Reaktionsvorrichtung (1) und der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) angeordneter Zwischenwärmetauscher (2-1) vorgesehen ist und der aus dem zweiten Katalysatorbett (1-B) austretende heiße Produktgasstrom ohne vorherige Abkühlung zur Erzeugung von Dampf und/oder zur Vorwärmung von Kesselspeisewasser in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) genutzt wird.

5. Verfahren gemäß Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** eine Abkühlung des Prozessgasstroms **D** in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) unter die für ein nachfolgendes drittes Katalysatorbett (3-A) erforderliche Eintrittstemperatur, und ggf. auch unter die Temperatur des erzeugten Dampfes zur größtmöglichen Nutzung der Energie des Stroms **D**, erfolgt, um in einem nachgeschalteten Schritt den Prozessgasstrom mithilfe eines weiteren Wärmetauschers (3-2), welcher gleichzeitig als Zwischenkühler zwischen dem dritten Katalysatorbett (3-A) und einem vierten Katalysatorbett (3-B) dient, wieder auf eine definierte optimale Prozesstemperatur für das Katalysatorbett (3-A) zu bringen, welches eine optimale Temperaturführung über alle Katalysatorbetten ermöglicht.

6. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** zumindest ein Teil eines Synthesegases **H**, welches aus dem vierten Katalysatorbett (3-B) austritt, in einem Kreislauf geführt wird und mit dem frischen Synthesegas **A** vermischt wird.

7. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** wenigstens ein weiterer Wärmetauscher (3-2), der von dem in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintretenden Synthesegas durchströmt wird, um dieses vorzuwärmen, in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) zwischen dem dritten Katalysatorbett (3-A) und dem vierten Katalysatorbett (3-B) angeordnet ist und gleichzeitig dazu dient, das in das vierte Katalysatorbett (3-B) eintretende Synthesegas (E) abzukühlen..

8. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** der gesamte aus dem zweiten Katalysatorbett (1-B) austretende, einen Anteil an Produkt umfassende, Synthesegasstrom **D** in das dritte Katalysatorbett (3-A) eingeleitet wird.

9. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** das frische Synthesegas **A** durch Reformierung von Kohlenwasserstoffen hergestellt wird, wobei die Reformierung in einem Dampfreformer, in einem gasbeheizten Reformer, in einem autothermen Reformer oder durch partielle Oxidation erfolgt oder dass das frische Synthesegas **A** durch Elektrolyse von Wasser und Luftzerlegung hergestellt wird.

10. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Synthese in einem Maßstab erfolgt, welcher eine Tagesproduktion von 1.800 t, vorzugsweise von 2.500, besonders bevorzugt 3.000 t Produkt übersteigt.

11. Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas (A) unter heterogener Gaskatalyse, insbesondere zur Verwendung in einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei die Vorrichtung die folgenden miteinander in Wirkverbindung stehenden Komponenten umfasst:

eine erste Reaktionsvorrichtung (1) umfassend:

ein erstes Katalysatorbett (1-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus einem frischen Synthesegas **A**;

einen ersten Wärmetauscher (1-2) konfiguriert zum Wärmen des frischen Synthesegases **A** vor Eintritt in das erste Katalysatorbett (1-A) und zum Kühlen eines Synthesegases **B** nach dem Austritt aus dem ersten Katalysatorbett (1-A);

ein zweites Katalysatorbett (1-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **B**;

Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases **D** aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1);

einen Zwischenwärmetauscher (2-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **D**;

eine zweite Reaktionsvorrichtung (3) umfassend:

ein drittes Katalysatorbett (3-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **E**;

einen dritten Wärmetauscher (3-2) konfiguriert zum Wärmen des Synthesegases **E** vor Eintritt in das dritte Katalysatorbett (3-A) und zum Kühlen des Synthesegases **F** nach dem Austritt aus dem dritten Katalysatorbett (3-A);

ein viertes Katalysatorbett (3-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **F**;

Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases **H** aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3); und

einen Nachwärmetauscher (4-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **H**, **dadurch gekennzeichnet, dass** der erste Wärmetauscher (1-2) konzentrisch radial innerhalb des ersten Katalysatorbetts (1-A) angeordnet ist und/oder der dritte Wärmetauscher (3-2) konzentrisch radial innerhalb des dritten Katalysatorbetts (3-A) angeordnet ist.

12. Vorrichtung gemäß Anspruch 11, **dadurch gekennzeichnet, dass**

- der erste Wärmetauscher (1-2); und/oder
- der Zwischenwärmetauscher (2-1); und/oder
- der dritte Wärmetauscher (3-2); und/oder
- der Nachwärmetauscher (4-1)

jeweils unabhängig voneinander als Geradrohr-, U-Rohr oder Plattenwärmetauscher ausgebildet sind.

13. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 oder 12, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Vorrichtung zusätzlich umfasst:

Mittel konfiguriert zum Rückführen zumindest eines Teils des Synthesegases **H** vom Nachwärmetauscher (4-1) zur ersten Reaktionsvorrichtung (1).

14. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Vorrichtung zusätzlich umfasst:

Mittel konfiguriert zum Wärmen von Wasser, welches in den Zwischenwärmetauscher (2-1) und/oder in den Nachwärmetauscher (4-1) zur Bildung von Dampf und/oder zur weiteren Vorwärmung des Wassers geleitet wird.

15. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** diese ein weiteres Katalysatorbett (1-C bzw. 3-C) umfasst, welches in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) stromabwärts der zweiten

Katalysatorbetts (1-B) oder in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) stromabwärts des vierten Katalysatorbetts (3-B) angeordnet ist.

16. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 bis 15, **dadurch gekennzeichnet, dass** diese in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) wenigstens drei in Strömungsrichtung des Synthesegasstroms hintereinander angeordnete Katalysatorbetten und/oder in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) wenigstens drei in Strömungsrichtung des Synthesegasstroms hintereinander angeordnete Katalysatorbetten umfasst.

17. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 bis 16, **dadurch gekennzeichnet, dass** der erste Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) so angeordnet ist, dass er zunächst von dem frischen Synthesegas **A** durchströmt wird, bevor dieses in das erste Katalysatorbett (1-A) eintritt und dass er bevorzugt im Gegenstrom von dem aus dem ersten Katalysatorbett (1-A) austretenden Synthesegas **B**, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des ersten Katalysatorbetts (1-A) und vor dem Eintreten in das zweite Katalysatorbett (1-B) durchströmt wird.

18. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 11 bis 17, **dadurch gekennzeichnet, dass** der dritte Wärmetauscher (3-2) in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) so angeordnet ist, dass er zunächst von dem die erste Reaktionsvorrichtung (1) verlassenden Synthesegas **C** durchströmt wird, bevor dieses in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintritt und dass er bevorzugt im Gegenstrom von dem aus dem dritten Katalysatorbett (3-A) austretenden Synthesegas, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des dritten Katalysatorbetts (3-A) und vor dem Eintreten in das vierte Katalysatorbett (3-B) durchströmt wird.

GEÄNDERTE ANSPRÜCHE
beim Internationalen Büro eingegangen am 25. August 2017

1. Verfahren zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas unter heterogener Gaskatalyse in mindestens zwei hintereinander geschalteten Reaktionsvorrichtungen (1, 3), wobei die erste Reaktionsvorrichtung (1) wenigstens zwei Katalysatorbetten (1-A, 1-B) umfasst, durch die hindurch das Synthesegas geleitet wird und in denen eine mindestens teilweise Umsetzung zu Produktgas erfolgt, wobei wenigstens ein erster Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) vorgesehen ist, in dem das frische Synthesegas A vorgewärmt wird und wobei ein Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbettes (1-A) austretenden Synthesegases (B) umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B) vorgesehen ist, **wobei** das Vorwärmen in einem ersten Wärmetauscher (1-2) erfolgt, welcher zwischen dem ersten (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett B angeordnet ist und wobei ein im Strömungsweg zwischen der ersten Reaktionsvorrichtung (1) und der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) angeordneter Zwischenwärmetauscher (2-1) vorgesehen ist und der aus dem zweiten Katalysatorbett (1-B) austretende heiße Produktgasstrom ohne vorherige Abkühlung zur Erzeugung von Dampf und/oder zur Vorwärmung von Kesselspeisewasser in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) genutzt wird, **dadurch gekennzeichnet, dass** auch die zweite Reaktionsvorrichtung wenigstens zwei Katalysatorbetten (3-A, 3-B) umfasst, durch die hindurch das Synthesegas geleitet wird und in denen eine mindestens teilweise Umsetzung zu Produktgas erfolgt und dass eine Abkühlung eines Prozessgasstroms D in dem Zwischenwärmetauscher (2-1) unter die für ein nachfolgendes drittes Katalysatorbett (3-A) erforderliche Eintrittstemperatur, und ggf. auch unter die Temperatur des erzeugten Dampfes zur größtmöglichen Nutzung der Energie des Stroms D, erfolgt, um in einem nachgeschalteten Schritt den Prozessgasstrom mithilfe eines weiteren Wärmetauschers (3-2), welcher gleichzeitig als Zwischenkühler zwischen dem dritten Katalysatorbett (3-A) und einem vierten Katalysatorbett (3-B) dient, wieder auf eine definierte optimale Prozesstemperatur für das Katalysatorbett (3-A) zu bringen, welches eine optimale Temperaturführung über alle Katalysatorbetten ermöglicht.

2. Verfahren gemäß Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Kühlen des aus dem ersten Katalysatorbett (1-A) austretenden Synthesegases B vor dem Eintritt in das zweite Katalysatorbett (1-B) mittels des ersten Wärmetauschers (1-2) erfolgt, welcher im Strömungsweg hinsichtlich des einen Anteil an Produkt

umfassenden Synthesegases **B** zwischen dem ersten (1-A) und dem zweiten Katalysatorbett (1-B) angeordnet ist.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** der gesamte Feedgasstrom des frischen Synthesegases **A** durch das erste Katalysatorbett (1-A) und anschließend auch durch das zweite Katalysatorbett (1-B) hindurch geleitet wird.

4. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** zumindest ein Teil eines Synthesegases **H**, welches aus dem vierten Katalysatorbett (3-B) austritt, in einem Kreislauf geführt wird und mit dem frischen Synthesegas **A** vermischt wird.

5. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** wenigstens ein weiterer Wärmetauscher (3-2), der von dem in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintretenden Synthesegas durchströmt wird, um dieses vorzuwärmen, in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) zwischen dem dritten Katalysatorbett (3-A) und dem vierten Katalysatorbett (3-B) angeordnet ist und gleichzeitig dazu dient, das in das vierte Katalysatorbett (3-B) eintretende Synthesegas (**E**) abzukühlen.

6. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** der gesamte aus dem zweiten Katalysatorbett (1-B) austretende, einen Anteil an Produkt umfassende, Synthesegasstrom **D** in das dritte Katalysatorbett (3-A) eingeleitet wird.

7. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** das frische Synthesegas **A** durch Reformierung von Kohlenwasserstoffen hergestellt wird, wobei die Reformierung in einem Dampfreformer, in einem gasbeheizten Reformer, in einem autothermen Reformer oder durch partielle Oxidation erfolgt oder dass das frische Synthesegas **A** durch Elektrolyse von Wasser und Luftzerlegung hergestellt wird.

8. Verfahren gemäß einem der vorstehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Synthese in einem Maßstab erfolgt, welcher eine

Tagesproduktion von 1.800 t, vorzugsweise von 2.500, besonders bevorzugt 3.000 t Produkt übersteigt.

9. Vorrichtung zur Herstellung von Ammoniak aus einem Synthesegas (A) unter heterogener Gaskatalyse, insbesondere zur Verwendung in einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei die Vorrichtung die folgenden miteinander in Wirkverbindung stehenden Komponenten umfasst:

eine erste Reaktionsvorrichtung (1) umfassend:

ein erstes Katalysatorbett (1-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **B** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus einem frischen Synthesegas **A**;

einen ersten Wärmetauscher (1-2) konfiguriert zum Wärmen des frischen Synthesegases **A** vor Eintritt in das erste Katalysatorbett (1-A) und zum Kühlen eines Synthesegases **B** nach dem Austritt aus dem ersten Katalysatorbett (1-A);

ein zweites Katalysatorbett (1-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **D** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **B**;

Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases **D** aus der ersten Reaktionsvorrichtung (1);

einen Zwischenwärmetauscher (2-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases **D**;

eine zweite Reaktionsvorrichtung (3) umfassend:

ein drittes Katalysatorbett (3-A) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **F** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **E**;

einen dritten Wärmetauscher (3-2) konfiguriert zum Wärmen des Synthesegases **E** vor Eintritt in das dritte Katalysatorbett (3-A) und zum Kühlen des Synthesegases **F** nach dem Austritt aus dem dritten Katalysatorbett (3-A);

ein viertes Katalysatorbett (3-B) konfiguriert zur Bildung eines Synthesegases **H** umfassend Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden aus dem Synthesegas **F**;

Mittel konfiguriert zum Ausleiten des Synthesegases H aus der zweiten Reaktionsvorrichtung (3); und

einen Nachwärmetauscher (4-1) konfiguriert zum Kühlen zumindest eines Teils des Synthesegases H, **dadurch gekennzeichnet, dass** der erste Wärmetauscher (1-2) konzentrisch radial innerhalb des ersten Katalysatorbetts (1-A) angeordnet ist und/oder der dritte Wärmetauscher (3-2) konzentrisch radial innerhalb des dritten Katalysatorbetts (3-A) angeordnet ist.

10. Vorrichtung gemäß Anspruch 9, **dadurch gekennzeichnet, dass**

- der erste Wärmetauscher (1-2); und/oder
- der Zwischenwärmetauscher (2-1); und/oder
- der dritte Wärmetauscher (3-2); und/oder
- der Nachwärmetauscher (4-1)

jeweils unabhängig voneinander als Geradrohr-, U-Rohr oder Plattenwärmetauscher ausgebildet sind.

11. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 oder 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Vorrichtung zusätzlich umfasst:

Mittel konfiguriert zum Rückführen zumindest eines Teils des Synthesegases H vom Nachwärmetauscher (4-1) zur ersten Reaktionsvorrichtung (1).

12. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 11, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Vorrichtung zusätzlich umfasst:

Mittel konfiguriert zum Wärmen von Wasser, welches in den Zwischenwärmetauscher (2-1) und/oder in den Nachwärmetauscher (4-1) zur Bildung von Dampf und/oder zur weiteren Vorwärmung des Wassers geleitet wird.

13. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 12, **dadurch gekennzeichnet, dass** diese ein weiteres Katalysatorbett (1-C bzw. 3-C) umfasst, welches in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) stromabwärts der zweiten Katalysatorbetts (1-B) oder in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) stromabwärts des vierten Katalysatorbetts (3-B) angeordnet ist.

14. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** diese in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) wenigstens drei in

Strömungsrichtung des Synthesegasstroms hintereinander angeordnete Katalysatorbetten und/oder in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) wenigstens drei in Strömungsrichtung des Synthesegasstroms hintereinander angeordnete Katalysatorbetten umfasst.

15. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** der erste Wärmetauscher (1-2) in der ersten Reaktionsvorrichtung (1) so angeordnet ist, dass er zunächst von dem frischen Synthesegas **A** durchströmt wird, bevor dieses in das erste Katalysatorbett (1-A) eintritt und dass er bevorzugt im Gegenstrom von dem aus dem ersten Katalysatorbett (1-A) austretenden Synthesegas **B**, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des ersten Katalysatorbetts (1-A) und vor dem Eintreten in das zweite Katalysatorbett (1-B) durchströmt wird.

16. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 15, **dadurch gekennzeichnet, dass** der dritte Wärmetauscher (3-2) in der zweiten Reaktionsvorrichtung (3) so angeordnet ist, dass er zunächst von dem die erste Reaktionsvorrichtung (1) verlassenden Synthesegas **C** durchströmt wird, bevor dieses in das dritte Katalysatorbett (3-A) eintritt und dass er bevorzugt im Gegenstrom von dem aus dem dritten Katalysatorbett (3-A) austretenden Synthesegas, welches Produkt und nicht umgesetzte Reaktanden umfasst, nach dem Verlassen des dritten Katalysatorbetts (3-A) und vor dem Eintreten in das vierte Katalysatorbett (3-B) durchströmt wird.

17. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 9 bis 16, **dadurch gekennzeichnet, dass** ein erster Vorwärmetauscher (1-1) vorgesehen ist, um das frische Synthesegas **A** vorzuwärmen.

18. Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 16 oder 17, **dadurch gekennzeichnet, dass** ein zweiter Vorwärmetauscher (3-1) vorgesehen ist, um das Synthesegas **C** bzw. **D** vorzuwärmen.

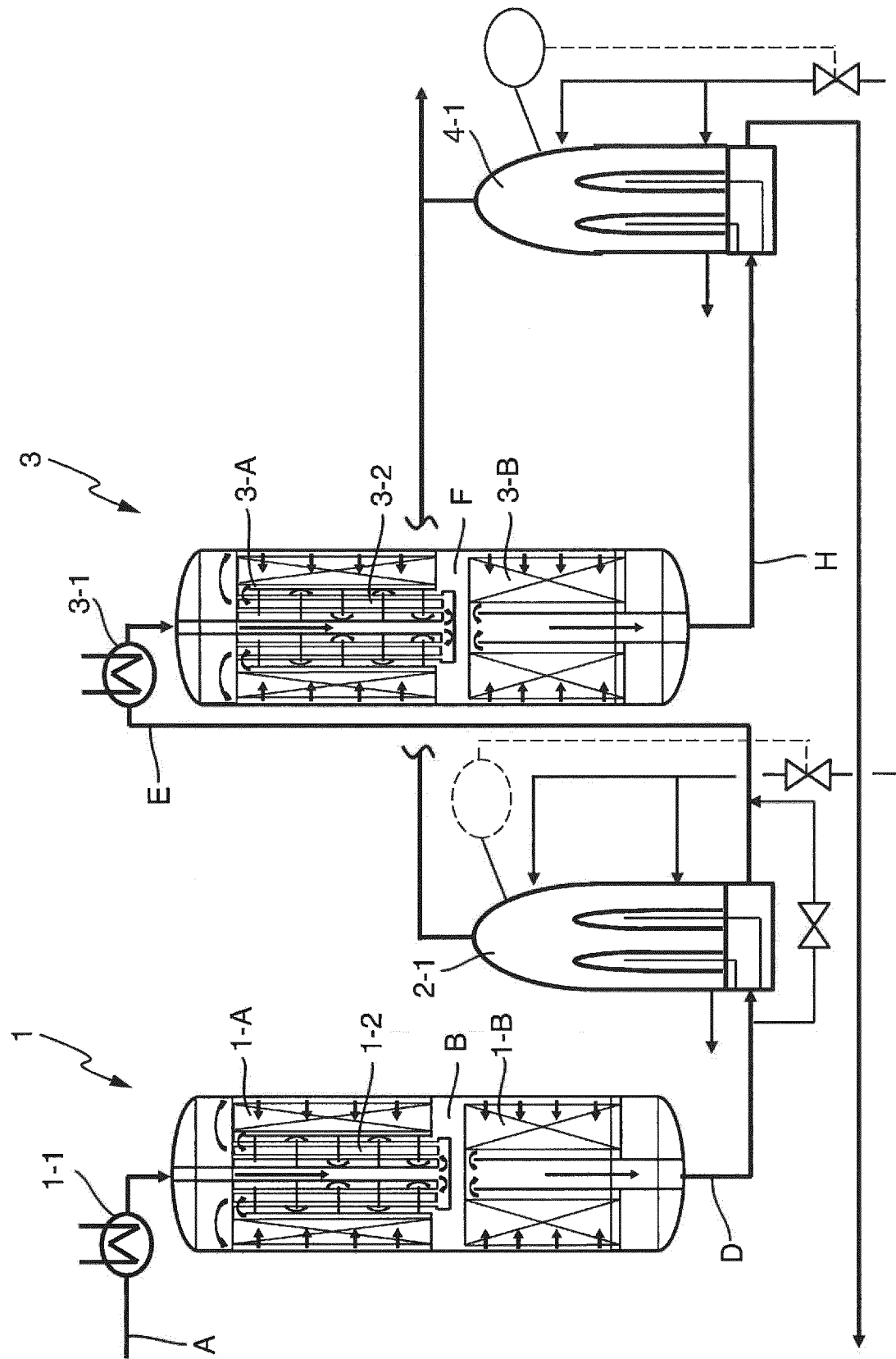


Fig. 1

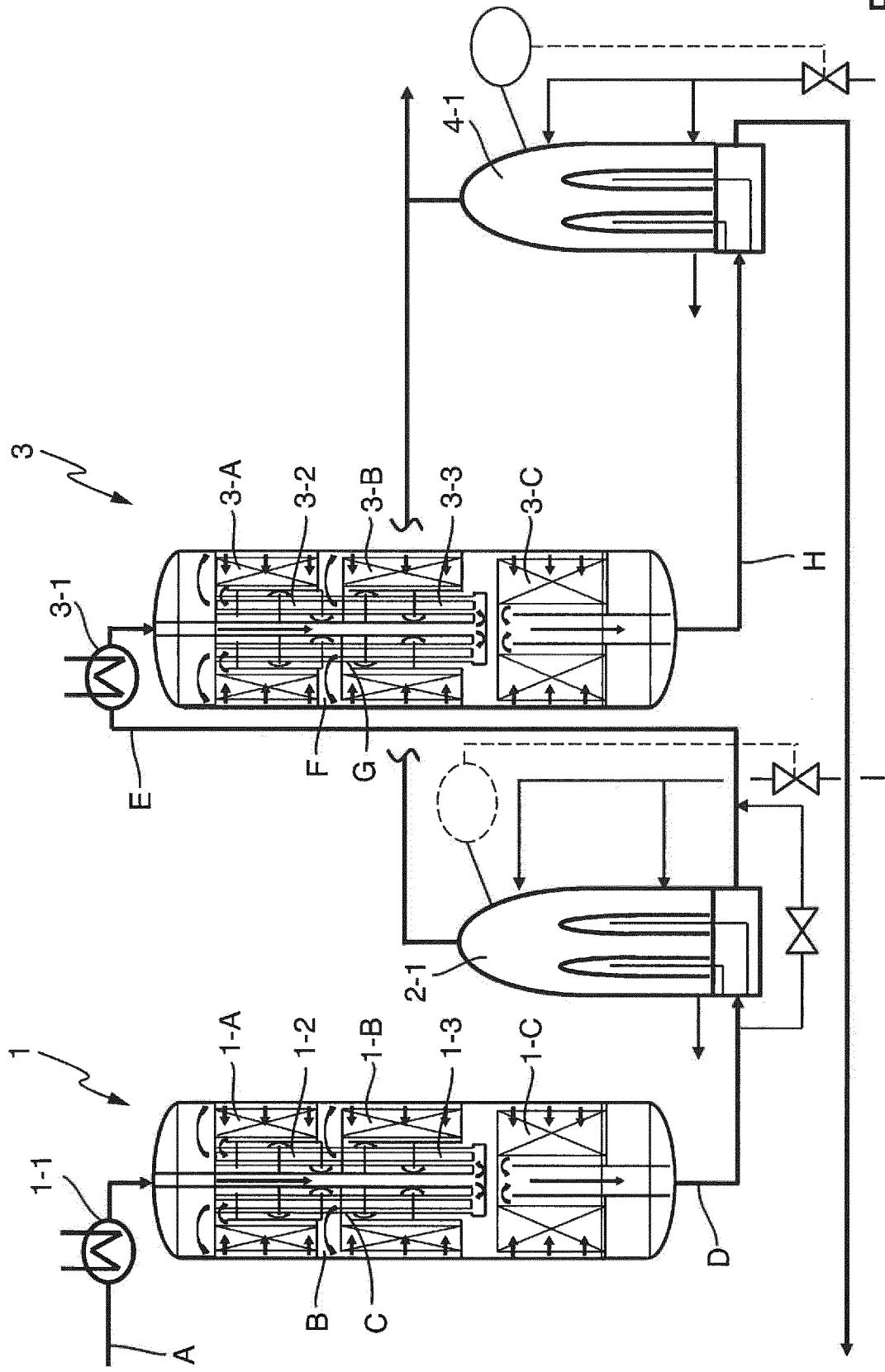


Fig. 2

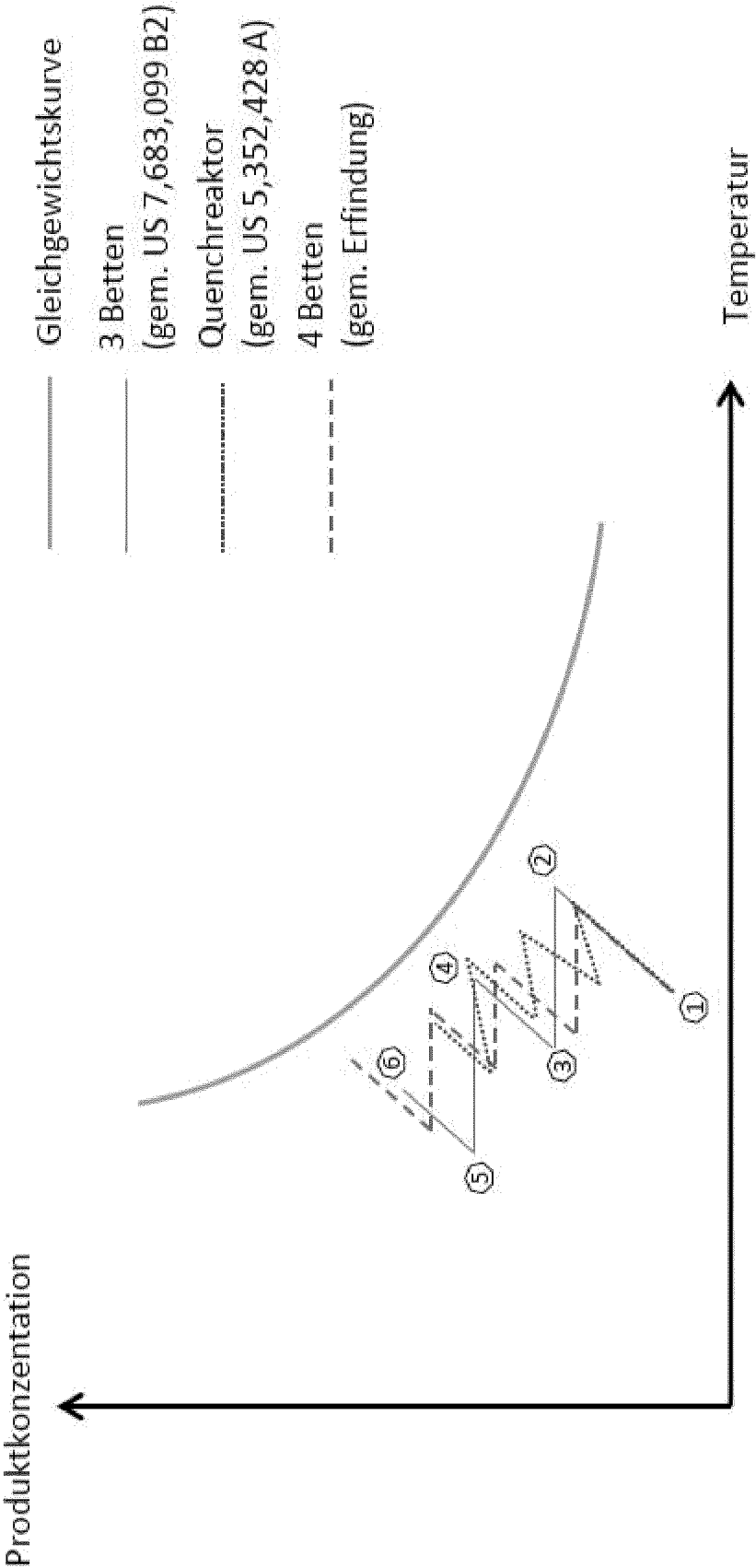


Fig. 3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2017/058933

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C01C1/04
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C01C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EP0-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Max Appl ET AL: "Ammonia, 2. Production Processes" In: "Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry", 8 November 2012 (2012-11-08), Wiley-VCH, Weinheim, XP055359081, ISBN: 978-3-527-30673-2 DOI: 10.1002/14356007.o02_o11, figure 51 ----- -/--	1-18



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 June 2017

Date of mailing of the international search report

06/07/2017

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Harf-Bapin, E

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2017/058933

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Dennis Lippmann ET AL: "Uhde dual-pressure process for large-scale ammonia plants", ThyssenKrupp techforum, July 2004 (2004-07), pages 56-61, XP055385465, Retrieved from the Internet: URL:https://www.thyssenkrupp-industrial-solutions.com/media/download_1/ammonia_2/uhde_publications_pdf_en_5000002.pdf [retrieved on 2017-06-27] figure 5	1-18
Y	----- US 7 683 099 B2 (HIPPE ANTON J [DE]) 23 March 2010 (2010-03-23) cited in the application column 2, line 55 - column 3, line 19 claims 1,2,12,13	1-18
A	----- EP 0 272 448 A2 (UHDE GMBH [DE]) 29 June 1988 (1988-06-29) figure 1	1-18
A	----- EP 0 143 280 A2 (UHDE GMBH [DE]) 5 June 1985 (1985-06-05) figure -----	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2017/058933

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 7683099	B2	23-03-2010	AT 385438 T 15-02-2008
		AU 2005247609 A1 08-12-2005	
		BR PI0511587 A 02-01-2008	
		CA 2568297 A1 08-12-2005	
		CN 1972743 A 30-05-2007	
		DE 102004028200 B3 15-12-2005	
		DK 1773483 T3 09-06-2008	
		EP 1773483 A1 18-04-2007	
		RU 2381058 C2 10-02-2010	
		US 2007293590 A1 20-12-2007	
		WO 2005115607 A1 08-12-2005	

EP 0272448	A2	29-06-1988	AU 592245 B2 04-01-1990
		CA 1287481 C 13-08-1991	
		CN 87108154 A 19-10-1988	
		DE 3643726 A1 30-06-1988	
		DK 612387 A 21-06-1988	
		EP 0272448 A2 29-06-1988	
		FI 875282 A 21-06-1988	
		JP S63190707 A 08-08-1988	
		NO 874935 A 21-06-1988	
		ZA 8708825 B 20-05-1988	

EP 0143280	A2	05-06-1985	CA 1242867 A 11-10-1988
		DE 3343114 A1 05-06-1985	
		DK 559884 A 30-05-1985	
		EP 0143280 A2 05-06-1985	
		GB 2152405 A 07-08-1985	
		IN 162238 B 16-04-1988	
		JP H0432693 B2 01-06-1992	
		JP S60179131 A 13-09-1985	
		US 4976928 A 11-12-1990	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2017/058933

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C01C1/04
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C01C

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EP0-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	Max Appl ET AL: "Ammonia, 2. Production Processes" In: "Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry", 8. November 2012 (2012-11-08), Wiley-VCH, Weinheim, XP055359081, ISBN: 978-3-527-30673-2 DOI: 10.1002/14356007.o02_o11, Abbildung 51 ----- -/--	1-18



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

28. Juni 2017

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

06/07/2017

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Harf-Bapin, E

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	Dennis Lippmann ET AL: "Uhde dual-pressure process for large-scale ammonia plants", ThyssenKrupp techforum, Juli 2004 (2004-07), Seiten 56-61, XP055385465, Gefunden im Internet: URL:https://www.thyssenkrupp-industrial-solutions.com/media/download_1/ammonia_2/uhde_publications_pdf_en_5000002.pdf [gefunden am 2017-06-27] Abbildung 5	1-18
Y	----- US 7 683 099 B2 (HIPPE ANTON J [DE]) 23. März 2010 (2010-03-23) in der Anmeldung erwähnt Spalte 2, Zeile 55 - Spalte 3, Zeile 19 Ansprüche 1,2,12,13	1-18
A	----- EP 0 272 448 A2 (UHDE GMBH [DE]) 29. Juni 1988 (1988-06-29) Abbildung 1	1-18
A	----- EP 0 143 280 A2 (UHDE GMBH [DE]) 5. Juni 1985 (1985-06-05) Abbildung -----	1-18

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2017/058933

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 7683099	B2	23-03-2010	AT 385438 T 15-02-2008
		AU 2005247609 A1 08-12-2005	
		BR PI0511587 A 02-01-2008	
		CA 2568297 A1 08-12-2005	
		CN 1972743 A 30-05-2007	
		DE 102004028200 B3 15-12-2005	
		DK 1773483 T3 09-06-2008	
		EP 1773483 A1 18-04-2007	
		RU 2381058 C2 10-02-2010	
		US 2007293590 A1 20-12-2007	
		WO 2005115607 A1 08-12-2005	

EP 0272448	A2	29-06-1988	AU 592245 B2 04-01-1990
		CA 1287481 C 13-08-1991	
		CN 87108154 A 19-10-1988	
		DE 3643726 A1 30-06-1988	
		DK 612387 A 21-06-1988	
		EP 0272448 A2 29-06-1988	
		FI 875282 A 21-06-1988	
		JP S63190707 A 08-08-1988	
		NO 874935 A 21-06-1988	
		ZA 8708825 B 20-05-1988	

EP 0143280	A2	05-06-1985	CA 1242867 A 11-10-1988
		DE 3343114 A1 05-06-1985	
		DK 559884 A 30-05-1985	
		EP 0143280 A2 05-06-1985	
		GB 2152405 A 07-08-1985	
		IN 162238 B 16-04-1988	
		JP H0432693 B2 01-06-1992	
		JP S60179131 A 13-09-1985	
		US 4976928 A 11-12-1990	
