



AUSGEGEBEN AM
2. MÄRZ 1934

REICHSPATENTAMT
PATENTSCHRIFT

№ 593 369

KLASSE 12 g GRUPPE 4 02

A 56936 IVb/12 g

Tag der Bekanntmachung über die Erteilung des Patents: 8. Februar 1934

3421

„L'Air Liquide“ Société Anonyme pour l'Étude et l'Exploitation des Procédés
Georges Claude in Paris

Verfahren und Vorrichtung zur Ausführung katalytischer exothermer Gasreaktionen

Patentiert im Deutschen Reiche vom 26. Februar 1929 ab

Die Priorität der Anmeldung in Frankreich vom 2. März 1928 ist in Anspruch genommen.

Um Gasgemische, die für exotherme Synthesen bestimmt sind, von schädlichen Verunreinigungen zu befreien, unterwirft man diese Gasgemische katalytischen oder nichtkatalytischen Reaktionen, durch welche die Verunreinigungen entweder in kondensierbare oder in unschädliche Stoffe umgesetzt werden. Gewöhnlich leitet man die zu reinigenden Gase durch ein — gegebenenfalls Katalysatoren enthaltendes — Reaktionsgefäß, das mit den üblichen Heizeinrichtungen ausgestattet ist und auch einen Wärmeaustausch zwischen den eintretenden und austretenden Gasen gestattet, so daß die für einen praktisch vollständigen Verlauf der Reinigungsreaktion erforderliche Temperatur eingehalten werden kann.

Wie ohne weiteres verständlich ist, spielen die Heiz- und Wärmeaustauscheinrichtungen hierbei eine große Rolle, da ohne sie die Reaktionstemperatur nicht auf der erforderlichen Höhe gehalten werden kann, wenn die Reinigungsreaktion nicht oder nur schwach exotherm verläuft oder wenn der Gehalt des Gasgemisches an Verunreinigungen nur gering ist.

Es hat sich nun herausgestellt, daß die Reinigungsreaktion bedeutend vereinfacht und vorteilhafter gestaltet werden kann, wenn hierbei die bei der Hauptreaktion entstehende Wärme zur Aufrechterhaltung der erwähnten Reaktionstemperatur in der Weise herangezogen wird, daß man die Reinigungsreaktion nicht in einem

gesonderten Reaktionsgefäß vornimmt, sondern die Haupt- und Reinigungsreaktion im Wärmeaustausch und in unmittelbarer Berührung miteinander in einem gemeinsamen Behälter sich vollziehen läßt. Man erhält so ohne eine wesentliche Vergrößerung der Apparatur einen Verlauf der Reinigungsreaktion von wesentlich höherer Sicherheit und Regelmäßigkeit.

Zur Ausführung der Erfindung leitet man das frische, die Verunreinigungen enthaltende Gas zunächst über die der Reinigung dienenden Stoffe und danach über die der Hauptreaktion dienenden Katalysatoren, entweder in unmittelbarer Aufeinanderfolge oder nach vorangegangener Entfernung der aus den Verunreinigungen gebildeten Stoffe durch Kühlung oder durch sonstige Maßnahmen.

Die den beiden aufeinanderfolgenden Reaktionen unterworfenen Gasmengen können natürlich auch verschieden groß sein, sei es, indem man der gereinigten Gasmischung bestimmte Mengen von reinen Gasen hinzufügt, die z. B. dem Gasgemischanteil entstammen können, der beim Bestreichen des Katalysators der Hauptreaktion unumgesetzt geblieben ist, sei es, indem ein bestimmter Teil des gereinigten Gasgemisches abgetrennt wird, bevor der Rest der Hauptreaktion unterworfen wird.

Soll beispielsweise ein Gasgemisch gereinigt werden, das für die Synthese von Ammoniak bestimmt ist, so unterwirft man dieses einer

Lagerexemplar

Reinigungsreaktion, durch die der Sauerstoff zu Wasser umgesetzt wird, das Kohlenoxyd zu Methan oder zu anderen Kohlenwasserstoffen und zu Wasser.

5 Beispielsweise Ausführungsformen des Verfahrens sind in der Zeichnung erläutert, und zwar zeigt

Abb. 1 einen Axialschnitt durch eine Vorrichtung zur Reinigung mit unmittelbar darauffolgender Synthese,

Abb. 2 einen Axialschnitt durch eine Vorrichtung zur Reinigung und Synthese nach zwischengeschalteter Entfernung der Umsetzungsprodukte der Verunreinigungen.

15 Die Vorrichtung nach Abb. 1 besteht im wesentlichen aus einem druckfesten Reaktionsgefäß *A*. Die Stickstoff-Wasserstoff-Mischung, die ein wenig Sauerstoff und ein wenig Kohlenoxyd enthält, tritt durch die Bohrung 1 ein, steigt im Ringraum 2 empor und erwärmt sich dabei, strömt durch das Rohr 3 wieder nach abwärts und bestreicht danach die Katalysator-

20 schicht *B* für die Reinigungsreaktion. Das durch die Öffnungen 4 entweichende Gasgemisch enthält kein Kohlenoxyd mehr und trifft im Ringarm *C* auf den Katalysator für die Ammoniakbildung, worauf es samt den umgesetzten Gasgemischanteilen und dem Wasserdampf bei 5 entweicht. Die im Ring-

25 raum *C* entstehende Wärme dient teilweise dazu, im Ringraum *B* die für den vollständigen Verlauf der Reinigungsreaktion erforderliche Temperatur aufrechtzuerhalten.

30 Sofern dies wünschenswert oder nötig ist, kann die Temperatur der Gefäßwandung *A* mit bekannten Mitteln verhältnismäßig niedrig gehalten werden.

Bei der Durchführung des Verfahrens der Erfindung mit Hilfe der in Abb. 2 dargestellten

40 Vorrichtung umströmt das frische Gasgemisch, durch die Bohrung 1 der druckfesten Gefäßwandung *A* eintretend, zunächst die Hülse *D* und gelangt durch die Öffnungen 2 in den Ringraum *B*, in dem sich der Katalysator für die Reinigungsreaktion befindet. Durch das

45 Rohr 3 mit der wärmeisolierenden Umhüllung *L* austretend, gelangt das Gasgemisch zum Kühler *H*, in dem das Wasser und die anderen Reaktionsprodukte der Verunreinigungen kondensiert werden, so daß sie im Gefäß *J* gesammelt und durch den Hahn 7 abgelassen werden können.

Das Gasgemisch gelangt danach durch die Bohrung 4 der Reaktionsgefäßwandung *A* in

55 den Ringraum an der Innenseite der Hülse *D* und tritt durch die Öffnungen 5 mit der Katalysatorsubstanz im Ringraum *C* in Berührung. Nach teilweiser Umsetzung zu Ammoniak entweicht der Gasstrom durch die Bohrung 6. Durch

60 die elektrische Heizrichtung *E* wird die erforderliche Temperaturhöhe erreicht.

Das Verfahren ist im allgemeinen für katalytische exotherme Reaktionen anwendbar, denen eine Reinigungsreaktion vorausgeht, z. B. für die Ammoniaksynthese, bei welcher das Gas-

65 gemisch durch Bindung des auszuscheidenden Kohlenoxyds mit einem Teil Wasserstoff gereinigt wird. Für die Reinigungsreaktion wird z. B. ein Zinkoxydkatalysator benutzt. Auch ist das Verfahren besonders geeignet für die

70 Synthese von organischen Sauerstoffverbindungen, wie Methylalkohol, aus Kohlenoxyd und Wasserstoff, bei welcher vor der Reaktion die schwer entfernbaren organischen Schwefel-

75 verbindungen durch Überleiten des Gasgemisches z. B. über einen Eisenoxydkatalysator ausgeschieden werden. Schließlich ist auch die Synthese von Methan aus Kohlenoxyd und Wasserstoff zu erwähnen, bei welcher die Ent-

80 fernung der Schwefelverbindungen in der oben angegebenen Weise geschieht.

Beispiel

In einer der Abb. 2 entsprechenden Vorrichtung wurden nacheinander die katalytische

85 Reinigung und die synthetische Behandlung eines Stickstoff-Wasserstoff-Gemisches in für die Ammoniaksynthese erforderlichem Mengenverhältnis durchgeführt. Das Rohr, das den für die Reinigung bestimmten Katalysator ent-

90 hielt, hatte einen Durchmesser von 50 mm und wies etwa 5 kg Katalysatormasse auf; das Rohr, welches den für die Synthese bestimmten Katalysator enthielt, wies dagegen einen Durch-

95 messer von 100 mm auf und enthielt 22 kg Katalysatormasse. Der Katalysator für die Synthese bestand aus eisenhaltigem, katalytischem Material, das nach Patent 476 380 hergestellt worden war. Den Katalysator für die Reinigung bildete eine gebrauchte katalytische Masse, die vorher für die Ammoniak-

100 synthese gedient hatte und einem Syntheserohr entnommen worden war. Die Temperatur des Katalysators für die Hauptreaktion betrug ungefähr 560° beim Zutritt der Gase zu dem Katalysator und 400° beim Austritt der Gase; das gasförmige Stickstoff-Wasserstoff-Gemisch wies einen Druck von etwa 1000 Atm. auf, während sein Gehalt an Kohlenoxyd und Sauer-

105 stoff 1% und sein stündlicher Durchgang 300 cbm betrug. In dem Abscheidegefäß *J* sammelte sich stündlich eine Wassermenge von 2,5 l an. Die stündlich auf synthetischem Wege erzeugte Ammoniakmenge betrug 40 kg.

PATENTANSPRÜCHE:

1. Verfahren zur Ausführung katalytischer exothermer Gasreaktionen, bei welchen die für die Synthese bestimmten Gase einer vorausgehenden Reinigung unterworfen werden, dadurch gekennzeichnet, daß die

120 Reinigungsreaktion unter Verwendung der

5 durch die Hauptreaktion entwickelten Wärme in der Weise ausgeführt wird, daß man die Haupt- und Reinigungsreaktion im Wärmeaustausch und in unmittelbarer Berührung miteinander in einem gemeinsamen Behälter sich vollziehen läßt.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das unreine Gasgemisch an der Wandung des den Katalysator für die

Hauptreaktion enthaltenden Innenbehälters 10 vorbeigeleitet wird, bevor es in die Reinigungssubstanz gelangt.

3. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die gegebenenfalls katalytisch wirksame Reinigungsmasse innerhalb des eigentlichen Katalysators angeordnet ist. 15

Hierzu 1 Blatt Zeichnungen

Abb. 1

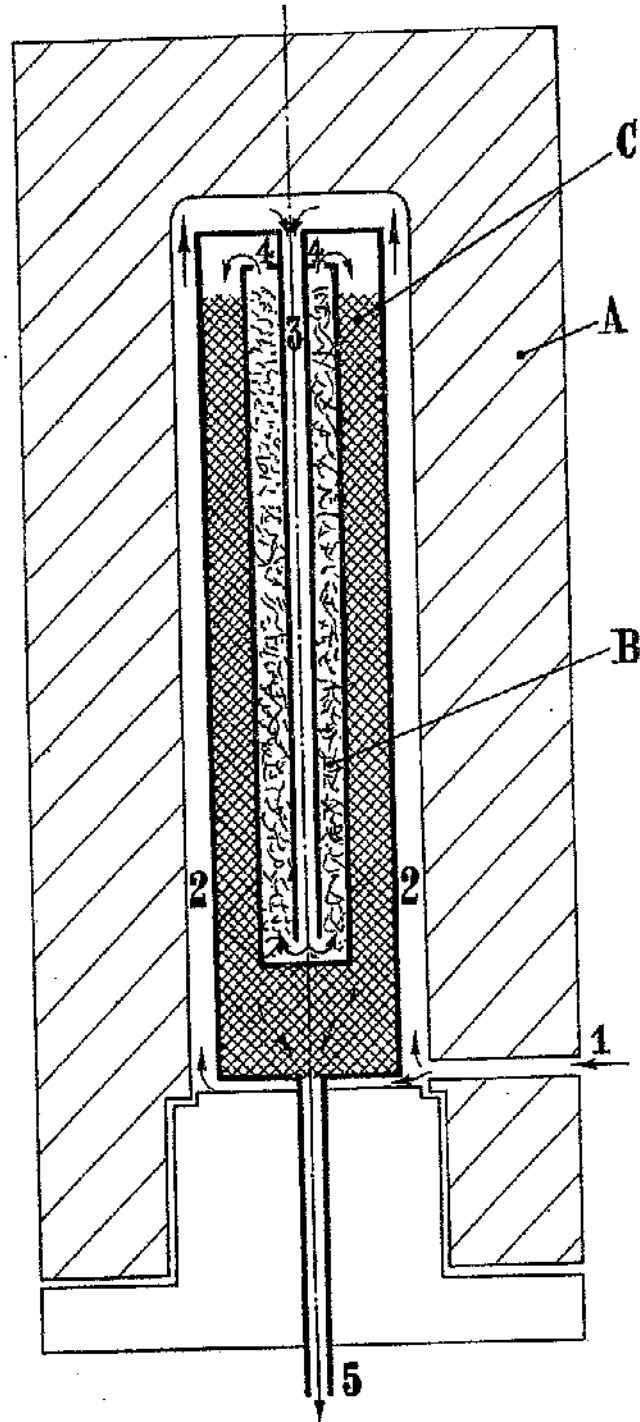


Abb. 2

