

Ludwigshafen,

Patent-Abteilung.

Sehr eilig!
Dr. H. H. Kump
"Runde B"

Hd./Br.

29. Juli 1942. S.

O.Z. 13 274 - I. 71 657 IVb/12 g - "Verfahren zur Durchführung katalytischer Gasreaktionen."

Bescheid vom 30. April 1942.

Der mit dem Anmeldungsgegenstand verbundene Fortschritt gegenüber dem im Hauptpatent beschriebenen Verfahren ist bereits in der Beschreibung, Seite 2, Absatz 2, bis Seite 3, Absatz 1, ausführlich aus-einandergesetzt.

Bei dem Verfahren des Hauptpatents hat es sich als nachteilig herausgestellt, daß der bei F ausgeschleuste und bei A wieder eingeführte Katalysator infolge der Abkühlung auf dem Transport nicht mehr genügend Wärme für die Durchführung der Spaltreaktion besaß. Man versuchte nun, die erforderliche Temperatur durch Anwendung einer zusätzlichen Heizung zu erzielen, wobei man die bei der Reaktion entstandenen gasförmigen Kohlenwasserstoffe in dem Spaltraum umwälzte. Hierdurch traten aber Verkohlungen auf, die den Katalysator inaktivierten.

Es gelingt nun nach vorliegendem Verfahren, diese Mißstände dadurch zu beheben, daß man umgekehrt arbeitet, d.h. in dem oberen Teil die Wiederbelebung und in dem unteren Teil die katalytische Reaktion vornimmt. Der Vorteil hierbei ist, daß die bei der Wiederbelebung entstehende Temperatur unmittelbar in die anschließende Reaktionszone eingebracht wird. Es wird somit vermieden, daß der Katalysator auf seinem Weg außerhalb des Reaktionsgefäßes vor der Spaltung abgekühlt wird. Gleichzeitig fällt bei dieser Anordnung die oben geschilderte Verunreinigung des Katalysators durch Kohlenstoffabscheidungen weg, weil nun in dem ersten Teil des Reaktionsgefäßes, der jetzt der Wiederbelebung dient, keine kohlenwasserstoffhaltigen Gase mehr umgewälzt werden, so daß der Katalysator ohne Verunreinigung in den Spaltteil gelangt. Hieraus ergibt sich auch, wie der Prüfer richtig annimmt, die höhere Ausbeute bei vorliegendem Verfahren.

Das neue Verfahren hat gegenüber dem alten außer der den eigentlichen Anmeldungsgegenstand bildenden Änderung noch verschiedene andere Abwandlungen technischer Art erfahren, die zwar im Rahmen der

neuen Arbeitsweise besonders zweckmäßig, aber nicht unbedingt charakteristisch sind; vor allem ist das Aufheizen des Katalysators dadurch verbessert worden, daß man eine bei der Einreichung des Hauptpatents noch nicht vorhandene besondere Heizzone vorgesehen hat. Hieraus erklärt sich das Auftreten der neuen Bezugszeichen f, H, K, L.

Es hat sich ferner vom wärmetechnischen Standpunkt aus mitunter als zweckmäßig erwiesen, das Wiederbelegungsgas in entgegengesetzter Richtung zu bewegen, wodurch sich der Unterschied in der Zeichnung gegenüber der des Hauptpatents ergibt. Doch kann man das Wiederbelegungsgas auch im Gleichstrom zu dem Katalysator führen.

Da bei dem neuen Anmeldungsgegenstand die wärmetechnischen Gesichtspunkte eine größere Rolle spielen, war es erforderlich, bei der vorliegenden Zeichnung etwas mehr ins einzelne zu gehen als bei der Zeichnung des Hauptpatents. Im übrigen ist es für den Erfindungsgedanken gänzlich unwesentlich, daß im vorliegenden Fall die verhältnismäßig sehr geringe Menge Sperrgas nicht unmittelbar wieder aus dem Gefäß, z.B. bei a, abgeführt wird wie bei dem Hauptpatent, sondern erst bei d, da eine Beimischung dieses für gewöhnlich aus Stickstoff bestehenden Sperrgases zu dem Wiederbelegungsgas in keiner Weise schädlich ist.

Zu der Frage der Prüfungsstelle über die Temperaturverteilung in den Reaktionsgefäßen bei dem Vergleichsbeispiel geben wir Ihnen die nachstehende Übersicht:

	Altes Verfahren		Neues Verfahren	
	Temp. °C	Vorgang	Temp. °C	Vorgang
Temperatur des Katalysators beim Einfüllen	300		300	
Temperaturen im 1. Teil des Reaktionsgefäßes:				
Anfang	430	Spaltung	420	Wiederbelegung
Mitte	420		560	
Ende	410		430	
Temperaturen im 2. Teil des Reaktionsgefäßes:				
Anfang	410	Wiederbelegung	430	Spaltung
Mitte	560		420	
Ende	420		410	
Art der Heizung im 1. Teil des Reaktionsgefäßes	elektr. Außenbeheizg.	Spaltung	gasbeheizte Rohre (innen)	Wiederbelegung
Art der Heizung im 2. Teil des Reaktionsgefäßes	keine	Wiederbelegung	keine	Spaltung

AMMONIAKWERK MERSEBURG

Gesellschaft mit beschränkter Haftung
LEUNAWERKE (Kreis Merseburg)

00002407

~~00001817~~

Lu., Patent-Abteilung.

O.Z. 13 274 usw.

Hd./Br. 29.7.1942 3

Außer den vorgenannten Heizquellen kann man die Temperaturen bei der Spaltung noch durch die Temperatur des eingeführten Öls und bei der Wiederbelebung durch die Temperatur und Menge des Wiederbelegungsgases abstimmen.

Da die entgegengehaltenen E.P. 518 944 und F.P. 858 557 identisch sind mit dem Hauptpatent DRP. 715 066, so gilt für sie das gleiche wie das für DRP. 715 066 Gesagte.

Wir sind bei etwa noch bestehenden Unklarheiten bereit, das Verfahren in einer mündlichen Besprechung vor der Prüfungsstelle näher zu erklären.

AMMONIAKWERK MERSEBURG
Gesellschaft mit beschränkter Haftung

gg. Erklärung gg. Walzen

00002408

0000151

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

*besonders!**Dr. Kaufmann.**Dr. Karmann.*

D.R.P. 762 486.

Unser Zeichen: O.Z. 13 274.

Ludwigshafen/Rh., den 23. Februar 1942
Hb/Wg.Verfahren zur Durchführung katalytischer
Gasreaktionen.

Zusatz zu Patent 715 066.

Im Hauptpatent 715 066 ist ein Verfahren zur Durchführung katalytischer Gasreaktionen, insbesondere katalytischer Spaltungen von Öldämpfen, unter Verwendung körniger oder stückiger Katalysatoren, die von Zeit zu Zeit wiederbelebt werden müssen, beschrieben, wobei der Katalysator durch ein längliches Gefäß geführt wird in dem im ersten Teil die Reaktion und darauffolgend im zweiten die Wiederbelebung des Katalysators vorgenommen wird, wobei beide Teile durch eine Zone getrennt sind, in der (zweckmässig durch Einleiten eines inerten Gases) ein höherer Druck aufrecht erhalten wird als im Reaktions- und Wiederbelebungsraum.

Nach dem Verfahren des Hauptpatents rutscht der Katalysator von dem Vorratsbehälter A in den Reaktionsraum B, in dem die Spaltung stattfindet, und von hier weiter durch die Sperrzone C in den Wiederbelebungsraum D. Die Geschwindigkeit der Katalysatorbewegung wird durch eine Fördereinrichtung, z.B. die Schleuse E, bestimmt, die den Katalysator zu einem Raum F führt, aus dem er über G durch bekannte Vorrichtungen wieder in den Vorratsbehälter A gefördert wird. Die zu behandelnden Gase, z.B. Öldämpfe, treten

bei a in den Reaktionsraum B und verlassen ihn nach der Reaktion bei b in den Wiederbelebungsraum D. Bei b wird im Hauptpatent nicht mehr beschrieben, in welcher Weise das Gas zu behandelnden Gase, z.B. Öldämpfe, gefördert wird. Bei b wird im Hauptpatent nicht mehr beschrieben, in welcher Weise das Gas zu behandelnden Gase, z.B. Öldämpfe, gefördert wird. Bei b wird im Hauptpatent nicht mehr beschrieben, in welcher Weise das Gas zu behandelnden Gase, z.B. Öldämpfe, gefördert wird.

bei f. Die Wiederbelegungsgase treten bei c in den Wiederbelegungsraum D und verlassen ihn bei b. Das Sperrgas, z.B. Stickstoff, tritt in die Sperrzone C bei e unter etwas höherem Druck als bei a und b ein; es strömt infolge seines Überdruckes einerseits nach unten durch b, andererseits nach oben in den Reaktionsraum B ab. Es verhindert so ein Übertreten des Wiederbelegungsgases in das Reaktionsgas und umgekehrt. Um mit möglichst geringen Sperrgasmen-gen auszukommen, hält man zweckmässig durch eine selbsttätige Druckregelung den Druck des Reaktionsgases bei a auf derselben Höhe wie den des Wiederbelegungsgases bei b; ausserdem sieht man zur Verminderung des Sperrgasverbrauches die Sperrzone C zweckmässig nicht zu kurz vor. Auch fängt eine längere Sperrzone etwa doch auftretende Gasstösse auf und verhindert, dass Reaktions- und Wiederbelegungsgas sich mischen. Die bei f austretenden dampfförmigen Erzeugnisse werden durch Kühlung in Flüssigkeit und Gas getrennt (hier nicht abgebildet).

Es hat sich nun gezeigt, dass der Katalysator, der nach seiner Wiederbelegung aus dem Wiederbelegungsraum D über den Vorratsbehälter A in den Reaktionsraum B zurückgeführt wird, dort im allgemeinen nicht mehr die für die Reaktion erforderliche Temperatur besitzt. Daher ist es gewöhnlich notwendig, ihn in einer besonderen Aufheizzone H auf die Reaktionstemperatur zu bringen. Zwecks besserer Wärmeübertragung hat es sich dabei als vorteilhaft erwiesen, diesen zur Aufheizung verwendeten Teil des Gefässes als gasbeheizten Röhrenofen auszugestalten. Um hierbei einen geeigneten Wärmeträger für den Katalysator in dieser Aufheizzone zur Verfügung zu haben, kann man z.B. die von den flüssigen Erzeugnissen

abgetrennten kohlenwasserstoffhaltigen Gase über die Leitung K bei d in die Aufheizzone einführen und von dort über f und L umwälzen. Diese Arbeitsweise hat aber den Nachteil, dass sich ein mehr oder weniger erheblicher Teil des kohlenwasserstoffhaltigen Wälzgases unter Kohlenstoffabscheidung zersetzt, wodurch einerseits die Wirksamkeit des Katalysators vorzeitig geschädigt wird, andererseits in der Aufheizzone Verstopfungen entstehen.

Es wurde nun gefunden, dass man diesen Mißstand in einfacher Weise beseitigen und die Ergebnisse des Verfahrens des Hauptpatents noch verbessern kann, wenn man das Verfahren so durchführt, dass man in dem oberen Teil B des länglichen Gefäßes die Wiederbelebung und in dem unteren Teil D die katalytische Reaktion vornimmt. Es ist zwar auch in diesem Fall die Aufheizung des Katalysators in der Zone H ^{nicht} unter Umständen erforderlich, wenn der zurückgeführte Katalysator auf dem Weg in den Raum ^{nicht} B so viel Wärme verloren hat, dass die zur Zündung der Koksablagerungen durch das sauerstoffhaltige Wiederbelebungsgas notwendige Temperatur unterschritten ist. ^{aufheizen, wenn man hier darauf legt} Aber man kann nun in der Aufheizzone H ohne die Gefahr einer Kohlenstoffabscheidung mit ihren oben erwähnten Nachteilen anstelle des Reaktionsgases das gesamte oder einen Teil des heißen kohlenwasserstofffreien Wiederbelebungsgases durch diese Aufheizzone führen, damit den Katalysator auf Zündtemperatur bringen und so die Wiederbelebung einleiten.

Man führt also bei dem abgeänderten Verfahren z.B. bei a das Wiederbelebungsgas ein und, je nach der Temperatur, auf die es in dem Wiederbelebungsraum B gestiegen ist, bei d oder d und f über K oder K und L aus, wobei man einen Teil hiervon über das

unverbessert!

Gebälse J in dem Wiederbelebungsraum B umwälzen kann. Dafür leitet man nun bei c die katalytisch umzusetzenden gas- oder dampfförmigen Ausgangsstoffe in den unteren Raum D ein und zieht die Erzeugnisse bei b ab. Sie werden durch Kühlung in dem Abscheider M in Flüssigkeit und Gas getrennt. Die Grössenverhältnisse der beiden Räume B und D werden gegenüber dem Verfahren des Hauptpatents zweckmässig entsprechend vertauscht. Im übrigen bleibt die Arbeitsweise im wesentlichen unverändert.

Die günstige Wirkung des vorliegenden Verfahrens zeigt sich vor allem in der Wirksamkeit und der Lebensdauer des verwendeten Katalysators, wie aus der nachstehenden Übersicht hervorgeht, in der die Ergebnisse der Spaltung eines rumänischen schweren Mittelöles (250 bis 360°) unter Verwendung von Aluminiumsilikat als Katalysator nach dem Verfahren des Hauptpatents und nach dem vorliegenden Verfahren gegenübergestellt sind:

	<u>Verfahren des Hauptpatents</u>	<u>Vorliegendes Verfahren</u>
Reaktionsraum	2 Liter (B)	2 Liter (D)
Stündlich geschleuster Katalysator	4 "	4 "
Spalttemperatur	420°	420°
je Stunde eingespritzte Öldampfmenge	<i>durch Heißeinwirkung od. gasförmigen Öls im Ofen</i> 3 kg	<i>Nein Erzeugnisse</i> 3 kg
je Stunde erhaltenes flüssiges Erzeugnis	2,65 kg	2,75 kg
Benzin bis 200°	0,95 "	1,20 "
Restöl > 200°	1,70 "	1,55 "
C ₃ - und C ₄ -Kohlenwasserstoffe	0,10 "	0,13 "
Gas und Koks	0,25 "	0,12 "
Oktanzahl des Benzins	85	87

Patentansprüche.

1. Abänderung des Verfahrens des Patents 715 066 zur Durchführung katalytischer Gasreaktionen, insbesondere zur Durchführung katalytischer Spaltungen von Öldämpfen, dadurch gekennzeichnet, dass hier im oberen Teil des länglichen Gefässes die Wiederbelebung des Katalysators und im unteren die Reaktion vorgenommen wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der vom Reaktionsraum in den Wiederbelebungsraum zurückgeführte Katalysator zunächst in einer unmittelbar dem Wiederbelebungsraum vorgeschalteten Heizzone durch einen Teil der Wiederbelebungsgase, der zweckmässig umgewälzt wird, auf Wiederbelebungstemperatur gebracht wird.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESellschaft ¹⁶

Zeichnung.

00002413

