



AUSGEGEBEN AM  
14. NOVEMBER 1933

REICHSPATENTAMT  
PATENTSCHRIFT

№ 585 278

KLASSE 12g GRUPPE 402

A 50373 IV b/12g

Tag der Bekanntmachung über die Erteilung des Patents: 14. September 1933

3420

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

Verfahren zur Ausführung katalytischer exothermer Reaktionen

Patentiert im Deutschen Reiche vom 20. März 1927 ab

Die Priorität der Anmeldungen in Frankreich vom 1. April und 9. August 1926 ist in Anspruch genommen.

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf Verfahren zur Ausführung von chemischen exothermischen Reaktionen, insbesondere für die synthetische Herstellung von Ammoniak aus seinen Bestandteilen. Die Erfindung bezweckt in der Hauptsache die Erzielung einer möglichst gleichförmigen Temperatur auf der ganzen Länge des Kontaktstoffes, bei dessen Berührung die Reaktion stattfindet.

Bekanntlich wird beispielsweise bei der Ammoniaksynthese die größte Wärmemenge bei der Berührung mit den ersten, von den Gasen durchströmten Kontaktschichten entwickelt, und es sind Verfahren bekannt, die eine Abführung der Reaktionswärme längs des Kontaktstoffes in dem Maß und nach Maßgabe ihrer Entstehung fortlaufend ermöglichen.

Die vorliegende Erfindung bezweckt, die erzielten Ergebnisse besonders in dem Fall noch zu verbessern, wenn der Kontaktstoff in einem Behälter oder in einer Patrone von größerem Durchmesser enthalten ist.

Diese Wärmeübertragung wird praktisch folgendermaßen durchgeführt: Zunächst strömen die für die Reaktion bestimmten Gase im

Gegenstrom zu den in Reaktion befindlichen Gasen bis zu der Zone der Kontaktmasse, welche der Zutrittsstelle der Gase zu dieser Masse benachbart ist. Dann werden sie in umgekehrter Richtung in die gegenüberliegende Zone geführt, wobei dafür Sorge getragen wird, daß sie möglichst wenig Wärme auf ihrem Wege von der ersten zur zweiten Zone verlieren. Dies wird dadurch erreicht, daß die zur Reaktion bestimmten Gase nicht um den bzw. die Katalysatorbehälter, sondern durch den Katalysator hindurch in mittelbarer Berührung mit diesem strömen. Nachdem die Gase in der zweiten Zone ihre Wärme teilweise abgegeben haben, kehren sie schließlich zu der ersten Zone zurück, um dort in die Kontaktmasse einzutreten.

In der Zeichnung sind zwei beispielsweise Ausführungsformen des Verfahrens schematisch dargestellt.

Abb. 1 zeigt eine Vorrichtung, bei welcher die zur Reaktion bestimmten Gase durch ein mittleres Rohr eingeführt werden, während

Abb. 2 eine Vorrichtung veranschaulicht, bei welcher die Einführung der Gase durch ein Rohrbündel erfolgt.

Bei der Ausführungsform nach Abb. 1 strömen die bei *A* eintretenden, kalten oder wenig erhitzten, zur Reaktion bestimmten Gase durch das Mittelrohr *B* hindurch und kehren alsdann durch die U-förmigen Rohre *C*, *C'* zurück, um am Ende von *C'* auszutreten und auf den Kontaktstoff zu gelangen. Bei dieser Strömung erhitzen sich die Gase mehr oder weniger im Innern von *B*, je nach der Leitfähigkeit der Wandung dieses Rohres *B*; alsdann erhitzen sie sich weiter in den Teilen der Rohre *C*, die in der Nähe des der Eintrittseite *A* entgegengesetzten Endes des Kontaktstoffes liegen; die so erhitzten Gase geben dann ihre Wärme an den bei der Zuführung *a* liegenden Teil der Rohre *C*, *C'* ab und erhitzen sich von neuem bei ihrer Strömung durch denjenigen Teil der Rohre *C'*, der in der Nähe der Stelle liegt, bei welcher die Gase auf den Kontaktstoff gelangen. Die Gase strömen durch den Kontaktstoff hindurch und treten bei *D* aus.

Während der Durchströmung durch die Rohre *C* und *C'* kann die Wärmeübertragung zwischen den Gasen im Innern und den Gasen außerhalb der Rohre dadurch geregelt werden, daß die Geschwindigkeit des inneren Gasstromes, die Art, die Oberfläche und die Wandstärke der Übertragungswände geändert werden. Man kann z. B. dafür sorgen, daß die Gase, welche die sehr heißen Teile des Kontaktstoffes verlassen, bei ihrer Durchströmung durch die Rohre *C* möglichst wenig Wärme verlieren, bevor sie die weniger heißen Teile erreichen, die den anderen gegenüber auf der entgegengesetzten Seite liegen.

Die Anordnung der Rohre *C*, *C'* bietet ferner den Vorteil, daß der Temperaturunterschied zwischen den auf den Kontaktstoff gelangenden Gasen und diesem Stoff selbst vermieden oder vermindert wird, wenn die Eintrittstemperatur der Gase in die Vorrichtung aus irgendeinem Grund zum Sinken neigt, was eine Verringerung oder gar ein Aufhören der Reaktion zur Folge haben könnte.

Die Art und Weise, wie die Gase vor ihrem Eintritt in die Rohre *C*, *C'* geführt und erhitzt werden, kann natürlich eine beliebige sein, und statt der mittleren Einführung *B* könnten z. B. mehrere ähnliche, in dem Kontaktstoff verteilte Gaszuführungen vorgesehen werden.

Es ist auch zu bemerken, daß die in der Abbildung dargestellte Anordnung mit U-förmigen Rohren die Ausdehnung dieser Rohre unter dem Einfluß der Wärme bis zu einem gewissen Grad zuläßt und daß die Rohrschenkel nicht gerade, sondern schlangenartig ausgebildet werden können. Der von dem Kontaktstoff der Ausdehnung der Rohre entgegengesetzte Widerstand kann übrigens auch

dadurch verringert werden, daß man die Rohrenden mit zugespitzten oder verjüngten Teilen versieht. Ebenso ließen sich leicht andere Anordnungen finden, die zu demselben Ziel führen.

Bei der Ammoniaksynthese kann, um für die Rohrwand des äußeren druckfesten Rohres *H* eine zu hohe Temperatur zu vermeiden, wie Abb. 1 zeigt, das in der deutschen Patentschrift 359 900 angegebene Verfahren verwendet werden. Zu diesem Zweck läßt man einen Teil der zur Reaktion bestimmten, wenig oder gar nicht erhitzten Gase bei *E* eintreten und in dem Mantel zwischen der den Kontaktstoff enthaltenden Patrone *J* und dem äußeren Rohr *H* durchströmen; das Rohr *J* wird vorzugsweise außen mit Wärmeschutzmasse *X* verkleidet. Der durch diese Durchströmung etwas erhitze Gasteil gelangt alsdann durch die Öffnungen *K* auf den Kontaktstoff.

Die Abb. 2 zeigt eine abgeänderte Ausführungsform des Verfahrens.

Bei dieser Ausführungsform treten die zur Reaktion bestimmten Gase bei *A* ein und steigen in den Rohren des äußeren Rohrbündels *F*, die in einem größeren oder kleineren Abstand von der Wand des Reaktionsraumes *J* liegen. Die am Ende dieses Rohrbündels angelangten Gase strömen durch ein inneres Rohrbündel *F'* wieder nach unten, um endlich durch ein mittleres Rohr *B* von neuem zu steigen, aus welchem sie austreten, um den Kontaktstoff zu durchströmen und sich bei der Berührung mit demselben zu verbinden. Von dort tritt das Gasgemisch bei *D* aus der Patrone heraus. Die Reaktionspatrone *J* liegt in einem druckfesten Behälter *H*, und in dem Raum zwischen *J* und *H* strömt ein Gas, das durch *E* ein- und bei *K* austritt.

Es wurde endlich gefunden, daß es von Vorteil sein kann, wenn man die Wärmeaustauschvorrichtung wie die Rohre *B* der oben erwähnten Ausführungen teilweise oder ganz mit Kontaktstoff füllt. Wenn nun die Temperatur der durch die Rohre *B* strömenden Gase aus irgendeinem Grund während des Betriebes die Reaktionstemperatur erreicht, bevor die Gase nach *C* gelangen, können die Gase auf diese Weise wegen des vorhandenen Kontaktstoffes sofort zur Reaktion kommen.

Diese Anordnung ist auch dazu geeignet, die Temperatur in dem in die Wärmeaustauschvorrichtung eingebrachten Kontaktstoff mit Hilfe der größeren Geschwindigkeit der durch diese Vorrichtung strömenden Gase auszugleichen, wodurch die Heftigkeit der Reaktion selbst verringert wird; diese größere Geschwindigkeit rührt daher, daß der Querschnitt der Wärmeaustauschvorrichtung

im allgemeinen geringer ist als der Querschnitt des Volumens des Kontaktstoffes in den bisherigen Vorrichtungen.

Anstatt der Rohre *B* kann man auch den gekrümmten Verbindungsteil zwischen den auf der Abbildung 1 dargestellten Rohren *C* und *C'* mit Kontaktstoff füllen.

#### PATENTANSPRÜCHE:

1. Verfahren zur Ausführung katalytischer exothermer Reaktionen, bei welchem die für die Reaktion bestimmten Gase zwecks Wärmeaustausches in mittelbarer Berührung mit der Kontaktmasse strömen, dadurch gekennzeichnet, daß diese Gase, bevor sie in unmittelbare Berührung mit der Kontaktmasse selbst gelangen, zunächst im Gegenstrom zu den in Reaktion befindlichen Gasen bis zu der Zone der Kontaktmasse strömen, welche der Zutrittsstelle der Gase zu dieser Masse benachbart ist (erste Strömungsstufe), dann in umgekehrter Richtung in die gegenüberliegende Zone geführt werden (zweite Strömungsstufe), wobei in be-

kannter Weise dafür Sorge getragen wird, daß sie möglichst wenig Wärme auf ihrem Wege von der ersten zur zweiten Zone verlieren, in der zweiten Zone jedoch ihre Wärme teilweise abgeben und schließlich zu der ersten Zone zurückkehren (dritte Strömungsstufe), um dort in die Kontaktmasse einzutreten.

2. Ausführungsform des Verfahrens nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Gase vor der dritten Strömungsstufe durch einen Teil der Kontaktmasse geführt werden, wo sie eine Einleitung der Reaktion erfahren.

3. Verfahren gemäß Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß den in mittelbarer Berührung mit dem Kontaktstoff strömenden Gasen eine Geschwindigkeit erteilt wird, die größer ist als die Geschwindigkeit der den Kontaktstoff durchströmenden Gase, und zwar dadurch, daß der Querschnitt des Raumes, der von den in Reaktion zu bringenden Gasen durchströmt wird, geringer ist als der Querschnitt des Raumes, durch den die in Reaktion befindlichen Gase strömen.

Hierzu 1 Blatt Zeichnungen

Abb. I

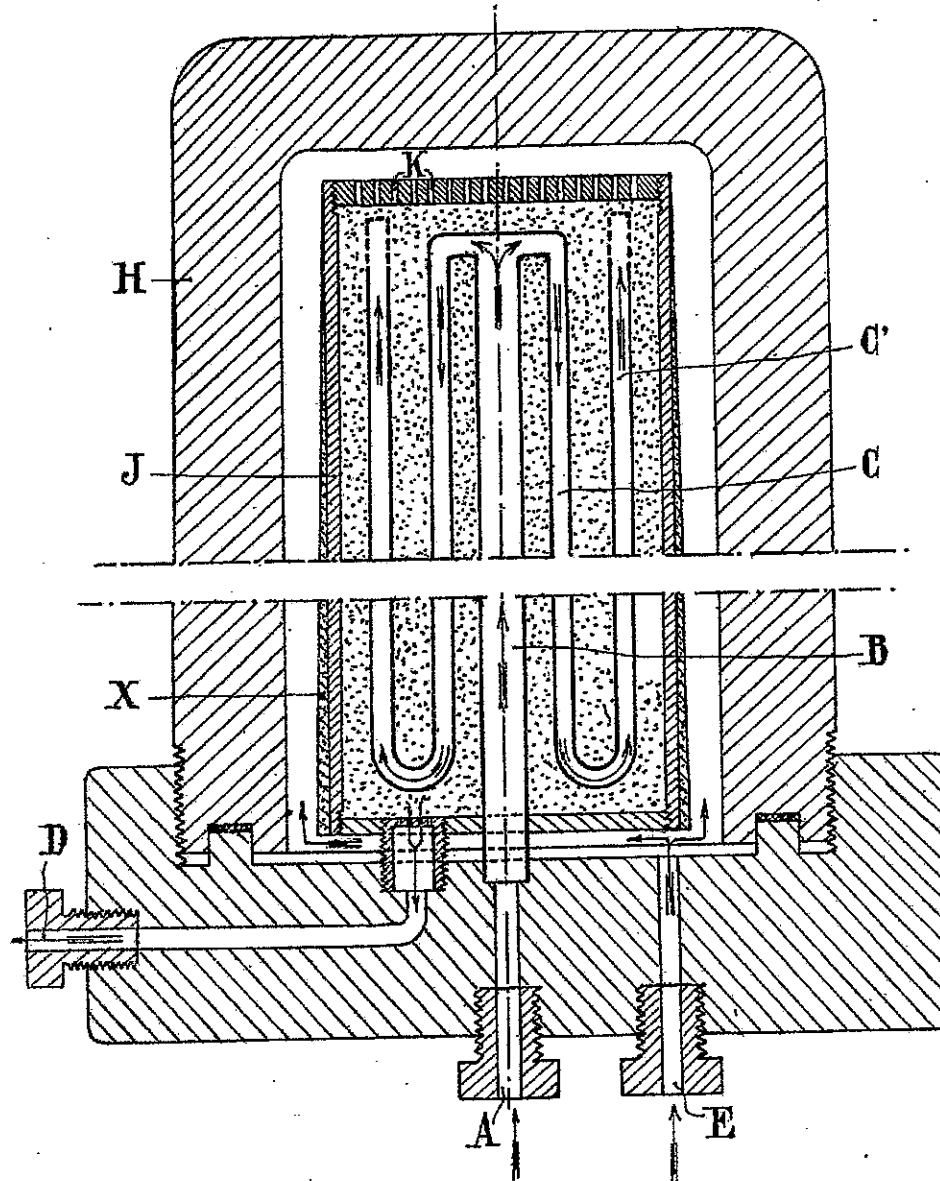


Abb. 2

