



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 698 12 585 T2** 2004.01.08

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 0 951 345 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **698 12 585.1**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/EP98/00141**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **98 905 287.3**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 98/030322**

(86) PCT-Anmeldetag: **06.01.1998**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **16.07.1998**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **27.10.1999**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **26.03.2003**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **08.01.2004**

(51) Int Cl.⁷: **B01F 15/00**
B01J 8/02, C01B 3/38

(30) Unionspriorität:
97200033 07.01.1997 EP

(73) Patentinhaber:
**Shell Internationale Research Maatschappij B.V.,
Den Haag, NL**

(74) Vertreter:
JUNG HML, 80799 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:
CH, DE, DK, ES, FR, GB, IT, LI, NL, SE

(72) Erfinder:
**WENTINCK, Martinus, Hendrik, NL-1031 CM
Amsterdam, NL; VAN WOLFSWINKEL, Arend,
NL-1031 CM Amsterdam, NL**

(54) Bezeichnung: **FLUIDMISCHER UND VERFAHREN FÜR SEINE VERWENDUNG**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine Vorrichtung zum Mischen und Zerstreuen von reaktiven Fluiden, ein Verfahren und eine Anwendung dafür, insbesondere auf eine Vorrichtung für das rasche und wirksame Mischen von Fluidströmen und deren Zerstreuung, um einen gemischten Strom von expandierter Querschnittsfläche zu bilden, ein Verfahren und eine Anwendung dafür, in einem Verfahren zum Umwandeln eines Fluidsubstrates bei erhöhter Raumgeschwindigkeit, Temperatur und erhöhtem Druck, insbesondere in einem Verfahren für die teilweise katalytische Oxidation von Kohlenwasserstoff-Einsatzmaterial.

[0002] Konversionsprozesse unter Anwendung von Schnellreaktionszonen, wie Oxidations- oder Verbrennungszonen für die Umwandlung eines gasförmigen oder flüssigen Fluidsubstrates in Axialströmung, erfordern eine Einrichtung zum Mischen des Substrates in dem gewünschten Verhältnis mit einem Oxidations- oder Verbrennungsgas für den gleichmäßigen Kontakt mit der erwünschten Verweilzeit innerhalb der Reaktionszone. Das nicht-einheitliche Mischen, d. h. die Zusammensetzung, und die nicht-einheitliche Geschwindigkeit, d. h. die Verweilzeit, können zu Über- und Unterreaktion führen, und, wenn dies kritisch ist, sind sie für die schlechte Qualität oder das schlechte Prozeßergebnis typisch.

[0003] Ein wirksames Mischen kann beispielsweise durch Anwendung von großen Mischvolumina, Diffusorringen, die im Strom angeordnet sind, oder von kleinen Mischvolumina, die bei hohen Oberflächengeschwindigkeiten arbeiten, erreicht werden. Der Mischer sollte darüber hinaus keine unannehmbare Druckdifferenz oder exzessiv kleine Fluidstromdimensionen einführen, die unannehmbare Änderungen in der kritischen Strömungsimpedanz durch Verschmutzung und Erosion herbeiführen können.

[0004] Eine weitere Gefahr entsteht bei den vorerwähnten Umwandlungsprozessen, die entflammbare Fluide anwenden, welche der Entzündung oder Explosion im Falle einer Fehloperation unterliegen. Die Gefahr kann wesentlich durch Minimieren der entflammbaren Fluidvolumina in potentiellen Gefahrenzonen und durch einen Betrieb bei erhöhter Oberflächengeschwindigkeit der entflammbaren Fluide vermindert werden, wobei die Verweilzeit kleiner ist als die Entzündungs-Verzögerungszeit. Das Mischen solcher Fluide in Umwandlungsprozessen bei erhöhtem Druck ist möglicherweise der gefährvollste Verfahrensschritt stromaufwärts der Reaktionszone, und deshalb sind das Volumen und die Oberflächengeschwindigkeit der gemischten Fluide stromaufwärts der Reaktionszone kritisch.

[0005] Die europäische Patentanmeldung Nr. 656.317 enthält eine Beschreibung eines Verfahrens für die teilweise katalytische Oxidation eines Kohlenwasserstoff-Einsatzmaterials, bei welchem der Kohlenwasserstoff mit einem Sauerstoff enthaltenden

Gas gemischt und mit einem Katalysator in Kontakt gebracht wird. Der Katalysator wird in einer fixen Anordnung mit einem hohen Verwindungscharakter von zumindest 1,1 (definiert als Verhältnis der Länge des Pfades, dem ein durch die Struktur strömender Gasstrom folgt, zur Länge der kürzestmöglichen geraden Linie durch die Struktur) und mit zumindest 750 Poren pro Quadratzentimeter gehalten. Der Katalysator weist vorzugsweise ein katalytisch aktives Metall auf, das von einem Träger getragen wird. Geeignete Trägermaterialien werden beschrieben, wie beispielsweise Feuerfestoxide, wie Silizium, Aluminium, Titan, Zirkon und Gemische derselben. Ein Katalysator mit einem feuerfesten Zirkonschaum als Träger ist speziell herausgestellt. Vergleichbare Verfahren werden in den europäischen Patentanmeldungen 576.096 und 629.578, und in der internationalen Patentanmeldung WO 96/04200 beschrieben.

[0006] Ein attraktives katalytisches teilweises Oxidationsverfahren zur Anwendung in einem wirtschaftlichen Maßstab würde bei erhöhten Drücken, typischerweise über 10 bar, beispielsweise um etwa 50 bar, und bei hohen stündlichen Gasraumgeschwindigkeiten (Normalliter Gas pro Kilogramm Katalysator pro Stunde), typischerweise in der Größenordnung von 20.000 bis 100.000.000 NI/kg/h liegen (NI ist das Volumen bei STP (0°C, 1 bar)). Infolge des thermodynamischen Verhaltens der Teiloxidationsreaktion zur Erzielung eines hohen Ausstoßes von Kohlenmonoxiden und Sauerstoff bei erhöhten Drücken ist es notwendig, die Reaktion bei erhöhten Temperaturen durchzuführen. Temperaturen in der Größenordnung von 800°C oder höher, und in einigen Fällen 1000°C oder höher, sind notwendig, um die bei wirtschaftlichen Verfahren geforderte Ausbeute zu erzielen.

[0007] Die Durchführung dieser Verfahren ist kritisch hinsichtlich:

(1) des Erfordernisses der Steuerung der Betriebsbedingungen, eines gleichmäßigen Mischens des Einsatzmaterials und der Geschwindigkeit, sowie des Kontaktes zwischen Katalysator und Einsatzmaterial, um im wesentlichen eine reduzierte Umwandlung in die gewünschten Produkte infolge einer unvollständigen oder übermäßigen Oxidation zu verhindern;

(2) des Erfordernisses einer kleinen Oberflächengeschwindigkeit des Einsatzmaterials am Katalysator; und

(3) des Erfordernisses, gefährliche Volumina von gemischtem Einsatzmaterial und Verweilzeiten zu reduzieren, um die Möglichkeit einer Entzündung und Explosion unter erhöhten Druckbedingungen zu minimieren.

[0008] Es besteht bei solchen Verfahren ein Erfordernis für eine Einrichtung zum Mischen reaktiver gasförmiger Fluide unter erhöhtem Druck mit einer gleichmäßigen Zusammensetzung und Geschwindigkeit, um das erwünschte Kontaktieren des Katalysators und des Einsatzmaterials sicherzustellen, ohne die Volumina der gemischten Fluide und die

Verweilzeit hinsichtlich der Gefahr einer Entzündung oder Explosion zu erhöhen, ohne die Oberflächengeschwindigkeit zu erhöhen, um exzessive Druckdifferenzen am Katalysator zu erzeugen, und ohne unannehmbare Änderungen der kritischen Strömungsimpedanz durch Verschmutzung und Erosion.

[0009] Es sind Gas- und Fluidmischer bekannt, beispielsweise in Teilverbrennungsvorgängen zur gesteuerten Verbrennung von Kohlenwasserstoffgasen in Anwesenheit von Sauerstoff enthaltenden Gasen für die Acetylenproduktion, bei welchen hohle kegelförmige Kammern mit zunehmender Querschnittsfläche in stromabwärtiger Richtung verwendet werden. Es sind auch Diffusoren für das Divergieren eines Gas- oder Fluidstromes bekannt, typischerweise mit zunehmender Strömungsquerschnittsfläche, um eine gleichmäßige Geschwindigkeit aufrecht zu erhalten, und um die Rezirkulation und das Druckdifferential zu minimieren (durch Minimieren der Verweilzeit). Beispielsweise wenden vollständige Verbrennungsvorgänge Fluidströmungsablenker an, wie Scheiben oder rohrförmige Strukturen, die sich in radialer Richtung senkrecht zum Fluidströmungsweg erstrecken und Auslaßöffnungen in der stromabwärtigen Scheibe oder langgestreckten Fläche derselben aufweisen, wodurch eine radial nach außen gerichtete Fluidströmung durch reduzierte Auslaßöffnungen gefördert wird. Es sind auch Diffusoren mit einem hohlen Diffusorkegel und einem Verteiler aus hohlen dreh-symmetrischen Aufteilungsschaufeln von kegelschalenförmiger Gestalt bekannt, um ein Profil zu erzeugen, welches zur Aufrechterhaltung und Minimierung der vorerwähnten Eigenschaften beiträgt.

[0010] Es zeigt sich, daß diese bekannten Vorrichtungen zum Mischen und Zerstreuen von entflammaren Fluiden unzureichend sind, beispielsweise wie dies bei den vorerwähnten Umwandlungsprozessen erforderlich ist, die bei erhöhten Drücken stattfinden, welche durch reduzierte Selbstentzündungs-Verweilzeiten und die Gefahr einer Explosion bei erhöhtem Druck charakterisiert sind, wodurch die Beschränkungen der vorstehenden Mischer hinsichtlich einer Minimierung der Entzündungs- oder Explosionsgefahr, eines Druckabfalles, Änderungen der kritischen Strömungsimpedanz und Optimierung des Fluidmischens durch einheitliche Zusammensetzung und Geschwindigkeit in dem erwünschten Verhältnis, um hochqualitative Umwandlungsprodukte bei hoher Ausbeute zu erzielen, miteinander in Konflikt kommen.

[0011] Dementsprechend besteht ein Bedarf für eine Einrichtung zum Mischen und Zerstreuen von entflammaren reaktiven Fluiden zur Anwendung in Umwandlungsprozessen, wie sie vorstehend beschrieben worden sind, in einer ausreichenden Weise, um sowohl den Sicherheits- als auch den Leistungsanforderungen gerecht zu werden, zur Beschränkung des Schadens im Falle eines Fehlbetriebes, ohne die Ausbeute und die Wirksamkeit des Prozesses zu beeinträchtigen, wie z. B. durch Aufer-

legen eines Betriebes unter extremen Bedingungen.

[0012] Es hat sich nun überraschenderweise gezeigt, daß eine Vorrichtung und ein Verfahren zum Mischen und Zerstreuen von reaktiven Fluiden auf eine Weise geschaffen werden kann, in welcher ein exzellentes Mischen in stromabwärtiger Richtung erzielt wird, ohne daß ein Konflikt der vorerwähnten Beschränkungen auftritt. Insbesondere minimieren die Vorrichtung und das Verfahren das Fluidvolumen in dem Mischer bei hoher Oberflächengeschwindigkeit, und eine nachfolgendes Divergieren senkt die Oberflächengeschwindigkeit ab, wodurch eine Entzündungs- oder Explosionsgefahr minimiert wird, ohne übermäßige Druckunterschiede oder Änderungen der kritischen Strömungsimpedanz quer über den Mischer, so daß die Betriebsprobleme minimiert werden, und welche Verfahren und Vorrichtungen nichtsdestoweniger dazu beitragen, einen gemischten Fluidstrom zu erzielen, der für exzellente Umwandlungsqualität und Ausbeute in einer nachfolgenden Reaktionszone geeignet ist.

[0013] In ihrem weitesten Aspekt bezieht sich die Erfindung auf eine Vorrichtung zum Mischen von reaktiven Fluiden, die bei erhöhter Temperatur und erhöhtem Druck entzünden oder explodieren können, zur nachfolgenden Umwandlung durch Kontakt mit einem Katalysator, wie einem (teilweisen) Oxidationskatalysator oder in einer Verbrennungszone, mit der Reihe nach einem stromabwärtigen Einlaßende, einem Mischer, einem Expandierer, einem Diffusor und einem stromabwärtigen Auslaßende, wobei das Auslaßende eine größere verfügbare Querschnittsfläche als irgendeines der Einlaßenden des Mixers und des Expandierers hat, und der Expandierer eine Innenquerschnittsfläche hat, die in stromabwärtiger Richtung zunimmt, derart, daß die Innenquerschnittsfläche an dem stromabwärtigen Ende des Expandierers zumindest das Vierfache der Innenquerschnittsfläche an dem stromaufwärtigen Ende beträgt, wobei der Expandierer einen Einsatz aufweist, der im wesentlichen nicht-porös und so ausgebildet ist, daß er in dem Expandierer angeordnet werden kann, um den verfügbaren Querschnitt desselben zu modifizieren, wobei die verfügbare Querschnittszone des Expandierers an irgendeinem Punkt entlang seiner Länge kleiner als der Unterschied in der Innenquerschnittsfläche des Expandierers an seinem stromabwärtigen und stromaufwärtigen Ende ist, und wobei die verfügbare Querschnittsfläche an dem stromaufwärtigen Aufnahmeabschnitt des Diffusors rasch zunimmt, um sich der Innenquerschnittsfläche desselben anzugleichen, wobei der Diffusor an seinem stromabwärtigen Abschnitt eine im wesentlichen konstante gleiche Innen- und verfügbare Querschnittsfläche aufweist, wobei die verfügbare Querschnittsfläche (Aa) als (Querschnittsfläche definiert ist, die für einen Fluidstrom verfügbar ist, und die Innenquerschnittsfläche (Ai) als die (Querschnittsfläche, die von den Innenwänden der Vorrichtung umschlossen wird.

[0014] Vorzugsweise beträgt die verfügbare Quer-

schnittsfläche des Expandierers stärker als 75%, noch bevorzugt weniger als 50%, noch weiter bevorzugt weniger als 25% des Unterschiedes der Innenquerschnittsfläche des Expandierers an seinem stromabwärtigen und stromaufwärtigen Ende. Die Innenquerschnittsfläche des Expandierers an diesem stromabwärtigen Ende kann das Fünf- bis Hundertfache, vorzugsweise Zehn- bis Sechzigfache der Innenquerschnittsfläche am stromaufwärtigen Ende betragen.

[0015] Es versteht sich, daß die Vorrichtung gemäß der Erfindung das Mischen und Zerstören von Fluiden durch anfängliche Expansion des Fluidstromes hinsichtlich der größten Querschnittsabmessung (d. h. durch Erhöhung der Innenquerschnittsfläche) ohne signifikante Zunahme, d. h. bis zum Fünffachen, speziell bis zum Dreifachen, vorzugsweise bis zum Zweifachen der Fluidstrom-Querschnittsfläche (d. h. verfügbare Querschnittsfläche) erreicht, und durch das anschließende Divergieren der Fluidstrom-Querschnittsfläche auf eine Weise, um die vorstehend erwähnten Ziele zu erreichen.

[0016] Die Bezugnahme auf die Querschnittsfläche des Stromes oder der Vorrichtung bedeutet jene Fläche des Querschnittes in einer Ebene senkrecht zum Strom oder zur Längsachse der Vorrichtung.

[0017] Die Bezugnahme auf „verfügbare“ und „Innen-“ Querschnittsfläche bedeuten die für den Fluidstrom verfügbare Querschnittsfläche, d. h. die Fluidstrom-Querschnittsfläche selbst, und die Fläche definiert durch und umschlossen von den Innenwänden der Vorrichtung, d. h. die von der Begrenzung des (gemischten) Fluidstromes umschlossene Fläche. Die letztere kann eine Fläche umfassen, die für den Fluidstrom nicht verfügbar ist. Der verfügbare Querschnitt wird unter Bezugnahme auf die Entzündungs- oder Explosionsbeschränkungen und auf jene Beschränkungen bestimmt, die einer unannehmbaren Änderung der kritischen Strömungsimpedanz unterliegen. Wo sich die Innenquerschnittsfläche des Expandierers in dessen stromabwärtigen Abschnitt und des Diffusors in dessen stromaufwärtigem Abschnitt, d. h. an der Grenzfläche, rasch ändern, wird die Innenquerschnittsfläche des Expandierers an dessen stromabwärtigem Ende als maximale Innenquerschnittsfläche des Expandierers genommen oder als ein geringfügig kleinerer Wert entsprechend irgendeiner Profilierung des Expandierers oder Diffusors.

[0018] Die Bezugnahme auf einen Expandierer oder auf die Expansion eines Fluidstromes bedeutet, daß die Vorrichtung oder das Verfahren für das Ausbreiten des Fluidstromes ausgerüstet sind, um eine Fluidstromfront mit einer Querschnittsfläche entsprechend der verfügbaren Querschnittsfläche des Expandierers zu schaffen, und mit erhöhter größter Fluidstrom-Querschnittsdimension. Vorzugsweise enthält eine derartige Stromfront keinerlei im Strom befindlichen Gegenstände, Trennwände od. dgl., welche die Flammenstabilisierung oder Entzündung begünstigen könnten. Vorzugsweise weist der Expan-

dierer ein stromaufwärtiges Fluidaufnahmeende, einen Ausbreitungsabschnitt und ein stromabwärtiges Abgabeende auf, wobei die verfügbare Querschnittsfläche im wesentlichen wie vorstehend beschrieben definiert ist, und die Innenquerschnittsfläche an dem stromabwärtigen Abgabeende am größten ist.

[0019] Die Bezugnahme auf einen Diffusor oder auf die Zerstreuung eines Fluidstromes bedeutet, daß die Vorrichtung oder das Verfahren für ein Divergieren des Fluidstromes ausgerüstet sind, um eine Fluidstromfront von vergrößerter Querschnittsfläche an dem stromabwärtigen Ende des Diffusors zu bilden, wodurch die Oberflächengeschwindigkeit reduziert wird, während eine gleichmäßige Geschwindigkeit aufrechterhalten wird. Vorzugsweise nimmt die verfügbare Querschnittsfläche in dem stromaufwärtigen Aufnahmeabschnitt des Diffusors rasch zu, um sich der Innenquerschnittsfläche desselben anzugleichen, wodurch der Diffusor an seinem stromabwärtigen Abschnitt im wesentlichen konstante, gleichmäßige und verfügbare Innenquerschnittsfläche hat.

[0020] Vorzugsweise ist der stromaufwärtige Aufnahmeabschnitt des Diffusors profiliert, um den expandierten gemischten Fluidstrom gegen die Achse zu richten, wodurch eine Rezirkulation auf bekannte Weise im wesentlichen verhindert wird, beispielsweise nimmt die Innenquerschnittsfläche in Richtung stromabwärts geringfügig ab.

[0021] Vorzugsweise wird durch die vorliegende Erfindung jede zufällige Flammenbildung im Anschluß an eine Entzündung in dem stromabwärtigen Abschnitt des Diffusors, welche durch Schaffung einer Front eines gemischten Stromes mit expandierter Querschnittsfläche wie vorstehend beschrieben, auf den stromabwärtigen Abschnitt der Diffusorkammer der Vorrichtung gemäß der Erfindung beschränkt, infolge der gleichmäßigen hohen Fluidstromgeschwindigkeit in dem Expandierer und in dem stromaufwärtigen Aufnahmeabschnitt des Diffusors.

[0022] Die Bezugnahme auf einen Fluidstrom bedeutet jede erwünschte Form oder Geometrie einer umschlossenen Fluidleitung, beispielsweise mit kontinuierlicher oder polygonaler Begrenzung, wie kreisförmig, oval, sechseckig od. dgl. Es versteht sich, daß es für einen Betrieb mit hohem Druck und hoher Raumgeschwindigkeit bevorzugt wird, mit im wesentlichen kontinuierlichen umschlossenen Fluidströmen zu arbeiten. Dementsprechend werden die Begrenzungen der Vorrichtung gemäß der Erfindung, beispielsweise der Katalysatoraufhängung u. dgl. in einer Reaktionszone, zweckmäßig so ausgebildet, daß sie mit den stromabwärtigen Fluidstrombegrenzungen kontinuierlich sind, wodurch eine Fluidstromabweichung und die Entwicklung einer Entzündungs- oder Explosionsgefahr minimiert wird.

[0023] Der Expandierer umfaßt einen Einsatz, der im wesentlichen nicht-porös und so ausgebildet ist, daß er in dem Expandierer angeordnet werden kann, wodurch die verfügbare Querschnittsfläche desselben modifiziert wird. Ein solcher Einsatz kann jede er-

wünschte Gestalt oder Form haben, die sich für die vorerwähnten Zwecke eignet. Vorzugsweise hat der Einsatz einen stromaufwärtigen und einen stromabwärtigen Abschnitt, wobei der stromaufwärtige Abschnitt eine im wesentlichen zunehmende Querschnittsfläche in Richtung stromabwärts hat, und die Querschnittsfläche an der Grenzfläche des stromaufwärtigen und stromabwärtigen Abschnittes am größten ist, so daß der Einsatz axial innerhalb des Expandierers montiert werden kann, wobei die Grenzfläche des stromaufwärtigen und stromabwärtigen Abschnittes am stromabwärtigen Ende des Expandierers so vorgesehen wird, daß ein im wesentlichen ringförmiger Fluidströmungsweg in dem Expandierer mit zunehmendem Radius in stromabwärtiger Richtung geschaffen wird.

[0024] Die Außenfläche des Einsatzes und die Innenflächen des Expandierers und des stromaufwärtigen Aufnahmeabschnittes des Diffusors können im wesentlichen ähnliche Profile haben. Der Einsatz kann jedoch einen konkav profilierten stromaufwärtigen Abschnitt haben, der befähigt ist, den Fluidstrom unter Bildung einer minimalen Druckdifferenz aufzunehmen, und er kann an seinem stromabwärtigen Abschnitt ähnlich profiliert sein, wie dies hier für den stromaufwärtigen Aufnahmeabschnitt des Diffusors definiert ist, um den expandierten gemischten Fluidstrom gegen die Achse zu richten, wodurch eine Rezirkulation in bekannter Weise im wesentlichen verhindert wird. Der Einsatz kann einen konvex profilierten stromabwärtigen Abschnitt haben, der in den Diffusorabschnitt der Vorrichtung ragt.

[0025] Es ist zweckmäßig, den Expandierer und den stromaufwärtigen Abschnitt des Einsatzes durch einen halben Kegelwinkel zu definieren, der im Bereich von 30° bis 90° zur Achse sein kann, vorzugsweise im Bereich von 30° bis 80°, noch bevorzugter im Bereich von 50° bis 70°. Der halbe Kegelwinkel wird zweckmäßig unter Bezugnahme auf die anderen Parameter, wie die Fluidraumgeschwindigkeit, annehmbare Druckdifferenzen, Profilierung des Expandierers, des Einsatzes und des stromaufwärtigen Diffusorabschnittes, und der annehmbaren Verweilzeit in dem Expandierer gewählt.

[0026] Die Bezugnahme auf den halben Kegelwinkel ist jener Winkel, der durch die zentrale Längsachse des Kegels und durch irgendeine Erzeugende definiert ist, d. h. eine Linie, welche in der Kegelfläche enthalten ist.

[0027] Zweckmäßig sind der Expandierer und der Einsatz durch das gleiche oder ein unterschiedliches Verhältnis der axialen Durchschnittslänge zum Durchschnittsdurchmesser im Bereich von 1 : 20 bis 1 : 1, vorzugsweise 1 : 15 bis 1 : 1, noch bevorzugter im Bereich von 1 : 4 bis 1 : 1 definiert. Die relativen und besonderen Abmessungen können beispielsweise von der annehmbaren Verweilzeit, der annehmbaren Druckdifferenz für gegebene Betriebsbedingungen und der Entzündungs- oder Explosionsgefahr abhängen.

[0028] Der Einsatz kann in dem Expandierer auf irgendeine gewünschte Weise montiert werden. Zweckmäßig wird der Einsatz durch Axial- oder Oberflächenbefestigung montiert, beispielsweise mittels eines oder mehrerer Vorsprünge, Rücksprünge oder Befestigungen, die sich vom Einsatz wegerstrecken oder diesem an dem stromaufwärtigen und/oder stromabwärtigen Ende desselben zugeordnet sind, um mit entsprechenden Rücksprüngen, Vorsprüngen oder Befestigungsmitteln in der Expandierer- und/oder Diffusorwand u.dgl. zusammenzuwirken. Die Art der Befestigung kann auf bekannte Weise unter Bezugnahme auf die Art der eingesetzten Materialien, die Wirkungen von Temperatur und Druckunterschieden und Beschränkungen hinsichtlich Flammenstabilisierung oder Entzündung gewählt werden.

[0029] Zweckmäßig werden der Expandierer und der Diffusor als zwei unterschiedliche Teile konstruiert, von denen jeder eine kegelförmige Fläche hat, die wie vorstehend beschrieben um einen Einsatz herum angeordnet wird, und an den Kegelflächen mittels diesen zugeordneten Seitenteilen, beispielsweise Flanschvorsprüngen, auf bekannte Weise befestigt wird.

[0030] Die Vorrichtung kann in irgendeiner gewünschten Orientierung angewendet werden, beispielsweise mit vertikaler oder horizontaler Substratströmung. Die Vorrichtung kann auch irgendwelche vorstehend definierten Dimensionen haben, insbesondere irgendeine erwünschte Größe, vorausgesetzt, daß die Verweilzeit die Selbstentzündungs-Verzögerungszeit nicht überschreitet, wobei die vorteilhaften Effekte derselben im wesentlichen maßstabunabhängig sind. Typischerweise hat die Vorrichtung einen Querschnitt an ihrer größten Dimension im Bereich von 1 bis 50 cm, insbesondere von 5 bis 40 cm.

[0031] Die Vorrichtung weist Mittel zum Mischen der entsprechenden Fluide auf, die zur Reaktion gebracht werden, wie dies vorstehend definiert worden ist. Zweckmäßig hat die Vorrichtung an ihrem stromaufwärtigen Ende einen Mischer, der so ausgebildet ist, daß er eine rasche und gründliche Mischung der entsprechenden Reaktionsfluide bewirkt. Der Mischer weist vorzugsweise entsprechende Einlaßmittel für jedes Fluid auf, die als ein Fluidstrom mit der entsprechenden Raumgeschwindigkeit eintreten. Vorzugsweise werden Einlaßmittel in den entsprechenden Leitungsmitteln zur Aufnahme der entsprechenden, zu mischenden Fluide vorgesehen. Vorzugsweise münden die Leitungsmittel auf geeignete Weise in eine Mischkammer, die stromaufwärts oder integral mit den Mischfluid-Leitungsmitteln ausgebildet sein kann. Es ist ein besonderer Vorteil dieser Erfindung, daß sowohl in einer Richtung wirkende Mischer als auch rotierende Mischer mit einer entsprechenden Profilanpassung des Expandierers, des Einsatzes und/oder des stromaufwärtigen Abschnittes des Diffusors angewendet werden können, wie dies erforderlich ist.

[0032] Die Vorrichtung gemäß der Erfindung kann zum Mischen von zwei oder mehr Fluiden ausgebildet sein.

[0033] Die Vorrichtung gemäß der Erfindung ist zur Verwendung mit Hochdruckumwandlungsverfahren ausgebildet, wie sie vorstehend definiert worden sind, die der Gefahr von Entzündung oder Explosion bei Fehlbedienung unterliegen. Vorzugsweise weist deshalb der Diffusor eine poröse Abschirmung auf, die in dem Strömungsweg des gemischten Fluids am stromabwärtigen Ende desselben angeordnet ist, wodurch das Geschwindigkeitsprofil verbessert und die Gefahr eines unbeabsichtigten Entzündens minimiert wird. Eine poröse Abschirmung kann jede geeignete nach dem Stand der Technik bekannte Abschirmung oder jeden Stoff umfassen und weist vorzugsweise ein flammenfestes Material in Form eines Fasernetzes, einen porösen Monolith, wie Schaum u. dgl., auf. Es versteht sich, daß eine derartige Abschirmung im wesentlichen so konstruiert ist, daß sie die Durchführung der Reaktion nicht beeinträchtigt, und sie ist gekennzeichnet durch eine ausreichend hohe mechanische Festigkeit und Wärmeschockfestigkeit, um ihre Funktionsweise zu ermöglichen.

[0034] Die Komponententeile der Vorrichtung können aus irgendeinem Material konstruiert sein, das sich für die überwiegenden oder zufälligen Bedingungen eignet, unter denen es eingesetzt wird. Zweckmäßig weisen der Diffusor, der Expandierer und der Einsatz, der Mischer und gegebenenfalls die poröse Abschirmung und ihre entsprechenden Befestigungen eine temperaturstabile Metallegierung, vorzugsweise rostfreien Stahl oder Inconel, auf.

[0035] Die poröse Abschirmung kann alternativ oder zusätzlich ein anorganisches Material aufweisen, wie ein Feuerfestoxid, und zusätzliche Materialien, die die erforderliche mechanische Festigkeit u. dgl. gewährleisten, noch bevorzugter eine Faserverstärkung, wie eine kontinuierliche anorganische faserverstärkte anorganische Matrix.

[0036] Aus der vorhergehenden Beschreibung geht hervor, daß sich die Vorrichtung gemäß der Erfindung ausgezeichnet zur Verwendung bei Verfahren eignet, die vorstehend beschrieben worden sind, auf eine Weise, die dem Ziel der Erfindung gerecht wird. Insbesondere ergibt sich, daß die Vorrichtung den Betrieb eines solchen Verfahrens ohne wesentliche Interferenz oder Unterbrechung ermöglicht. Ein solches Verfahren ist im Anspruch 7 beschrieben.

[0037] Die Erfindung wird nun in nicht einschränkender Weise unter Bezugnahme auf die **Fig. 1** bis 3 beschrieben, in denen

[0038] **Fig. 1** einen Längsschnitt durch einen katalytischen Umwandlungsreaktor zeigt, der eine Vorrichtung zum Mischen reaktiver Fluide gemäß der vorliegenden Erfindung aufweist,

[0039] **Fig. 2** einen Längsschnitt durch den Expandierer und den stromaufwändigen Aufnahmeabschnitt des Diffusors des Reaktors nach **Fig. 1** zeigt,

[0040] **Fig. 3** einen Querschnitt nach einer zur

Längsachse des Expandiererschnittes des Reaktors nach **Fig. 1** senkrechten Ebene zeigt.

[0041] **Fig. 1** zeigt eine Vorrichtung (1) mit einem Einlassende (2), einem Mischer (3) mit einer Mischkammer (4), einem Expandierer (5), einem Einsatz (6), einem Diffusor (7), einschließlich einer porösen Abschirmung (8) und einem Auslassende (9). Stromaufwärts der Vorrichtung (1) sind die entsprechenden Leitungen (10, 11) für gasförmiges Fluid vorgesehen. Die Leitungen für das gasförmige Fluid sind so ausgebildet, daß sie ein Sauerstoff enthaltendes Gas und ein Brenngas, wie Erdgas, einführen. Das Mischungsverhältnis der entsprechenden gasförmigen Fluide kann durch bekannte Mittel gesteuert werden, wie durch Veränderung des Durchlasses der entsprechenden Fluidleitungen oder durch Änderung der Konzentration oder des Durchsatzes der Fluide selbst.

[0042] Stromabwärts der Vorrichtung (1) ist ein Katalysator (12) gezeigt, der eine monolithische Struktur hat, die in dem Fluidstrom derart angeordnet ist, daß sie eine gleichmäßige Kontaktierung des Fluidkatalysators mit dem zerstreuten Fluid sicherstellt, das ein im wesentlichen gleichförmiges Radialgeschwindigkeitsprofil hat.

[0043] Die gasförmigen Fluide treten in die Vorrichtung (1) ein und werden gemischt. Die gemischten Fluide treten in den Expandierer (5) an dessen stromaufwärtigem Ende ein und werden gleichmäßig um den axial montierten Einsatz (6) herum verteilt. Im stromabwärtigen Abschnitt des Einsatzes (6) fließt der ringförmige Fluidgemischstrom durch radial nach innen gerichtete Eintrittsöffnungen um die konvexe Oberfläche des Einsatzes (6) zusammen. Der Diffusor (7) ist zweckmäßig so profiliert, daß er eine radial nach innen gerichtete Strömungskomponente auf den gemischten Fluidstrom aufbringt, um eine Stromtrennung zu vermeiden (beispielsweise von der Wand her). Der zerstreute gemischte Fluidstrom strömt durch die poröse Abschirmung (8) und setzt seinen Weg über einen ausreichenden Abstand fort, um das erwünschte Konditionieren des Einsatzes vor dem Kontaktieren mit dem Katalysator (12) zu erreichen. Die Sauerstoff und Abgase enthaltenden Fluide werden vorerhitzt, bevor sie in die Vorrichtung (1) eintreten. Die Reaktion wird durch Entzünden des Einsatzes an dem Katalysator begonnen, wodurch die gasförmigen Fluide auf eine Reaktionstemperatur gebracht werden, wenn sie sich dem Katalysator nähern. Dementsprechend werden der Mischer (3, 4), der Expandierer (5), der Einsatz (6) und der Diffusor (7) aus geeigneten Materialien konstruiert, deren Wärmefestigkeit größer als 400°C ist, zweckmäßig werden sie aus einer Metallegierung oder aus ähnlichen kompatiblen Materialien konstruiert. Der Katalysator ist zweckmäßig ein katalytisch aktives Material, wie vorhin definiert, abgestützt auf einem porösen monolithischen scheibenförmigen Träger, wie dies vorhin definiert worden ist.

[0044] In **Fig. 2** ist der Expandierer (5) und der Ein-

satz (6) nach Fig. 1 gezeigt, wobei die verfügbare Querschnittsfläche (Aa) gezeigt ist, in einem Schnitt A-A, wobei diese Fläche kleiner als die Differenz der Expandierer-Innenquerschnittsfläche an dessen stromabwärtigen und stromaufwärtigen Ende ist (Aid und Aiu).

[0045] In Fig. 3 ist die Innen- und die verfügbare Querschnittsfläche (Ai und Aa) auf dem Querschnitt A-A in Fig. 2 gezeigt, und strichliert sind die Begrenzungen dargestellt, welche Aid und Aiu nach Fig. 2 definieren.

[0046] Die Erfindung wird nun in nicht einschränkender Weise unter Bezugnahme auf die folgenden Beispiele illustriert.

Beispiel 1-Selbstentzündungstests

[0047] Methan und Sauerstoff wurden mit einem Druck in der Größenordnung von 50 bis 60 bar und mit einer Temperatur von bis zu 300°C den Leitungen (10) und (11) der Vorrichtung nach Fig. 1 zugeführt, wobei sie gründlich gemischt waren. Das Mischen erfolgte bei einem Sauerstoff-Kohlenstoff-Verhältnis von 0,5. Das Gemisch wurde mit einer stündlichen Raumgeschwindigkeit des Gases von 2.000.000 NI/kg/h zugeführt.

[0048] Wenn der Temperaturbereich bis zu 300°C beträgt, findet keine Selbstentzündung statt.

Beispiel 2-Fluidströmungsprofile gemäß der Erfindung

[0049] Das Verfahren nach Beispiel 1 wurde unter atmosphärischen Bedingungen wiederholt. Der resultierende Strom wurde am Auslassende (9) analysiert.

[0050] Die Strömungsgeschwindigkeit und die Sauerstoffkonzentration des Gases, welches den Reaktor verläßt, wurden mit einem Pitot-Rohr und durch Univox gemessen.

[0051] Das Geschwindigkeitsprofil war im wesentlichen gleichmäßig innerhalb von 20%, wobei Oberflächeneffekte vernachlässigt wurden. Der Sauerstoffteildruck schwankte weniger als 1% über den Querschnitt.

Beispiel 3-Beschränkung des Entzündungs- oder Fehlbetriebschadens

[0052] Das Verfahren nach Beispiel 1 wurde wiederholt. Eine zufällige Entzündung wurde initiiert. Der Schaden infolge der Explosion, der auf die Entzündung folgte, wurde auf eine Deformation der Inneneinbauten beschränkt. Ein sicheres Abschalten des Verfahrens wurde erreicht.

[0053] Dementsprechend ergibt sich, daß die Vorrichtung gemäß der Erfindung auf ausgezeichnete Weise in dem Verfahren gemäß der Erfindung angewendet werden kann, wie es vorher definiert wurde.

Patentansprüche

1. Vorrichtung (1) zum Mischen reaktiver Fluide, die entzündungs- oder explosionsfähig sind, bei erhöhter Temperatur und erhöhtem Druck, für die nachfolgende Umwandlung durch Kontakt mit einem Katalysator (12), wie einem (Teil-) Oxidationskatalysator oder in einer Verbrennungszone, wobei der Reihe nach ein stromaufwärtiges Einlassende (2), ein Mischer (3), ein Expandierer (5), ein Diffusor (7) und ein stromabwärtiges Auslassende (9) vorgesehen sind, wobei das Auslassende (9) eine größere verfügbare Querschnittsfläche als das Einlassende (2), der Mischer (3) oder der Expandierer (5) hat, und der Expandierer (5) eine Innenquerschnittsfläche (Ai) aufweist, die in Richtung stromabwärts zunimmt, derart, daß die Innenquerschnittsfläche am stromabwärtigen Ende (Aid) des Expandierers (5) zumindest das Vierfache der Innenquerschnittsfläche am stromaufwärtigen Ende (Aiu) beträgt, wobei der Expandierer (5) einen Einsatz (6) aufweist, der im wesentlichen nicht-porös und so ausgebildet ist, daß er in dem Expandierer angeordnet werden kann, wodurch die verfügbare Querschnittsfläche desselben modifiziert wird und wodurch die verfügbare Querschnittsfläche (Aa) des Expandierers (5) an irgendeinem Punkt über dessen Länge kleiner als die Differenz der Innenquerschnittsfläche (Ai) des Expandierers (5) an dessen stromaufwärtigem und stromabwärtigem Ende ist, wobei die verfügbare Querschnittsfläche am stromaufwärtigen Aufnahmeende des Diffusors (7) rasch zunimmt, um sich der Innenquerschnittsfläche desselben anzugleichen, wobei der Diffusor an seinem stromabwärtigen Abschnitt im wesentlichen konstante und gleiche Innenquerschnittsfläche und verfügbare Querschnittsfläche aufweist, wobei die verfügbare Querschnittsfläche (Aa) als jene Querschnittsfläche definiert ist, die für einen Fluidstrom verfügbar ist, und die Innenquerschnittsfläche (Ai) als die Querschnittsfläche, die von den Innenwänden der Vorrichtung umschlossen wird.

2. Vorrichtung (1) nach Anspruch 1, bei welcher die verfügbare Querschnittsfläche (Aa) des Expandierers (5) weniger als 75%, vorzugsweise weniger als 50%, noch bevorzugter weniger als 25% der Differenz der Innenquerschnittsfläche (Ai) des Expandierers (5) an dessen stromaufwärtigem und stromabwärtigem Ende ist.

3. Vorrichtung (1) nach Anspruch 1 oder 2, bei welcher der Einsatz (6) einen stromaufwärtigen und einen stromabwärtigen Abschnitt aufweist, und die Querschnittsfläche an der Grenzfläche des stromaufwärtigen und stromabwärtigen Abschnittes am größten ist, wobei der stromaufwärtige Abschnitt eine im wesentlichen zunehmende Querschnittsfläche in Richtung stromabwärts hat, wobei der Einsatz (6) so ausgebildet ist, daß er axial innerhalb des Expandierers (5) montiert werden kann, so daß die Grenzflä-

che zwischen dem stromaufwärtigen und stromabwärtigen Abschnitt am stromabwärtigen Ende des Expandierers (5) liegt, derart, daß ein im wesentlichen ringförmiger Fluidströmungsweg in dem Expander (5) mit zunehmendem Radius in Richtung stromabwärts geschaffen wird.

4. Vorrichtung (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 3, bei welcher der Expandierer (5) und der stromaufwärtige Abschnitt des Einsatzes (6) durch einen halben Kegelwinkel definiert sind, der im Bereich von 30° bis 90° , vorzugsweise im Bereich von 30° bis 80° , noch bevorzugter im Bereich von 50° bis 70° zur Achse liegen kann.

5. Vorrichtung (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 4, bei welcher der Expandierer (5) und der Einsatz (6) durch das gleiche oder ein verschiedenes Verhältnis der durchschnittlichen Axiallänge zum durchschnittlichen Durchmesser im Bereich von 1 : 20 bis 1 : 1, vorzugsweise 1 : 15 bis 1 : 1, noch bevorzugter 1 : 4 bis 1 : 1 definiert sind.

6. Vorrichtung (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 5, welche eine poröse Abschirmung (8) aufweist, die in dem Gemischfluidströmungsweg am stromabwärtigen Ende desselben angeordnet ist.

7. Verfahren zum katalytischen teilweisen Oxidieren von Kohlenwasserstoff-Einsatzmaterial, welches das Kontaktieren eines Einsatzes, der einen Kohlenwasserstoffeinsatz und ein Sauerstoff enthaltendes Gas enthält, mit einem Katalysator umfaßt, bei einer Temperatur in der Größenordnung von 800°C bis 1400°C , bei einem Druck in der Größenordnung von bis zu 150 bar, und bei einer stündlichen Gasraumgeschwindigkeit in der Größenordnung von 20.000 bis 100.000.000 NI/kg/h, wobei der Kohlenwasserstoffeinsatz und das Sauerstoff enthaltende Gas unter Anwendung der Vorrichtung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6 gemischt werden, bevor sie mit dem Katalysator in Kontakt gebracht werden.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

FIG.1



