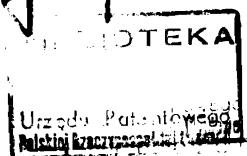


Warszawa, 2 marca 1935 r.

URZĄD PATENTOWY



Bohj 9/00 al.



## RZECZYPOSPOLITEJ POLSKIEJ

# OPIS PATENTOWY

Nr 20953.

Kl. 12 g, 4/02.

Bohj 9/00

The Selden Company  
(Pittsburgh, Pennsylvania, Stany Zjednoczone Ameryki).

### Urządzenia do przeprowadzania reakcji katalitycznych.

Zgłoszono 10 grudnia 1929 r.

Udzielono 21 stycznia 1935 r.

Pierwszeństwo: 22 grudnia 1928 r. (Stany Zjednoczone Ameryki).

Wynalazek dotyczy urządzenia, służącego do przeprowadzania reakcji egzotermicznych lub wymagających dokładnego regulowania temperatur. Znane są urządzenia katalityczne, składające się z większej liczby komór, z których pierwsza komora jest ochładzana gazami reakcji dla zapobieżenia przeciążaniu; komora ta jest połączona z warstwami katalizatora lub z komorami, które nie są ochładzane gazami reakcji.

Urządzenie to pracuje z dobrym wynikiem przy pewnych reakcjach, o ile komory urządzenia nie przekraczają wielkości określonej. Jeżeli jednak przeprowadza się reakcje silnie egzotermiczne lub też reak-

cje, które wymagają innej temperatury w pierwszych warstwach lub komorach, niż w warstwach następujących, np. przy wytwarzaniu kwasu siarkowego sposobem kontaktowym, to nie można regulować temperatury w warstwach słabo ochładzanych. Z drugiej strony, przy reakcjach, przy których ostatnie warstwy katalizatora lub komory powinny posiadać niższą temperaturę dla utrzymywania równowagi reakcji, gazy posiadają zbyt wysoką temperaturę i muszą być ochładzane zapomocą chłodziw pośrednich i urządzeń do wymiany ciepła, nie mogą więc ochładzać ostatniej warstwy katalizatora. Chłodziwa i urządzenia do wymiany ciepła wymagają dla swego umie-

szczenia większej przestrzeni oraz utrudniają regulowanie temperatury w ostatnich warstwach katalizatora lub komorach.

Według wynalazku stosuje się większą liczbę warstw katalizatora lub komór reakcyjnych, z których pierwsza warstwa lub komora jest ochładzana gazami reakcji, podczas gdy ochładzanie drugiej warstwy lub komory jest zupełnie odrębne i może być dokonywane w pewnych przypadkach takimi gazami reakcji, które nie przepływały przez pierwszą warstwę. Warstwy katalizatora i komory reakcyjne umieszcza się w jednej osłonie dla dogodności i zaoszczędzenia miejsca, można je jednak umieścić oddzielnie jedną obok drugiej.

Urządzenie według wynalazku nadaje się do utleniania: benzenu, toluenu, fenolu, fenolu smołowego lub furfurołu na kwas jabłkowy lub fumarowy; krezolu na aldehyd salicylowy lub kwas salicylowy; toluenu i jego produktów chlorowcowych i azotowych na odpowiednie aldehydy i kwasy; ksylenu, pseudokumolu, mezytylenu, paracytolu i innych pochodnych na aldehydy odpowiednie i kwasy; naftalenu na a - naftachinon, bezwodnik kwasu ftalowego i kwas jabłkowy; antracenu na antrachinon; fenantrenu na fenatrachinon, bezwodnik kwasu ftalowego i kwas jabłkowy; acenaftenu na acenaftylen, acenaftachinon, kwas nafto-aldehydowy i półmelitowy; fluorenu i fluoru odwodnionego na fluorenon; eugenolu lub izoeugenolu na wanilinę lub kwas wanilinowy; alkoholu metylowego i metanu na formaldehyd; alkoholu etylowego na kwas octowy.

Również utlenianie materiałów organicznych, przy którym zanieczyszczenia zostają spalane lub przemieniają się w materiały, usuwane łatwo, wymaga dokładnego regulowania temperatury. Do tych reakcji należy spalanie karbazolu, zawartego w antracenie i fenantrenie, oczyszczanie surowego naftalenu, węglowodorów aromatycznych, surowych związków alifatycz-

nych, np. olejów, zawierających siarkę, i paliw do silników, wydzielanie smoły gazowej z amonjaku. Urządzenie nadaje się do przeprowadzania rozkładu i utleniania amonjaku, do egzotermicznych reakcji katalitycznych w fazie parowej, np. uwodorniania, zgęszczania, do reakcji, odbywających się pod wielkim ciśnieniem, do katalitycznego oczyszczania gazów, do rozkładu kwasu cyjanowodorowego, do wytwarzania produktów redukcji tlenku węgla, np. metanolu lub paliw silnikowych, do redukowania ciał azotowych na aminy, np. nitrobenzolu na anilinę, fenoli na cykloheksan, naftalenu na tetralinę, aldehydu krotonowego na alkohol butylowy, aldehydu octowego na alkohol etylowy.

Urządzenie według wynalazku nadaje się zwłaszcza do wytwarzania kwasu siarkowego sposobem kontaktowym, ponieważ umożliwia ono osiąganie w pierwszych warstwach lub komorach wysokich temperatur i wielkich szybkości reakcji, a więc w warstwach lub komorach następujących — temperatur niskich.

Na rysunku przedstawiono przykłady wykonania urządzeń, odpowiadających wynalazkowi.

Fig. 1 przedstawia urządzenie, zaopatrzone wewnątrz w aparat do wymiany ciepła, w przekroju pionowym, fig. 2 — przekrój wzdłuż linii 2 — 2 na fig. 1, fig. 3 i 4 — odmienne wykonania urządzenia w przekroju pionowym, fig. 5 — szczegół urządzenia według fig. 4, fig. 6 — następny odmienny przykład wykonania urządzenia w przekroju pionowym, a fig. 7 — przekrój wzdłuż linii 7 — 7 na fig. 6.

W wykonaniu, uwidocznionem na fig. 1, aparat składa się z osłony 1, która otacza pierwszą warstwę lub komorę i w której umieszczony jest na sicie 2 katalizator 3. W przestrzeni, zajętej przez katalizator, znajdują się rury 4, które są zamknięte dnami i których końce dolne występują poniżej sita 2, a wewnątrz rur 4 umieszczo-

ne są rury 5, które są otwarte na obu końcach i przymocowane u góry do płyty 6, sięgając prawie do dna rur 4. Katalizator doprowadza się wewnątrz aparatu otworami, umieszczonemi w płycie 6 i zamykanemi czopami 7. Poniżej osłony 1 w osłonie węższej 8 na sicie 9 jest umieszczona druga warstwa katalizatora, otaczająca poziome urządzenia podwójne do wymiany ciepła, pracujące przeciwnie. Urządzenie to składa się z rur 10 i 11, wsuniętych jedna w drugą, przyczem rury 10 są na jednym końcu zamknięte, a rury 11 — na obu końcach otwarte. Końce zewnętrzne rur 11 są połączone ze sobą rurami 12, podczas gdy rury 10 łączą się z rurą 13. Liczba 14 oznacza nakrywę aparatu, a 15 — jego dno.

Gazy, np. mieszanina kwasu siarkowego i gazu, zawierającego wodór, dopływają do urządzenia przez otwór nakrywy 14, płyną wzdłuż płyt rozdzielczych, a następnie — przez rury 5, w których pośrednio wymieniają ciepło z katalizatorem. Ponieważ rury 4 są zamknięte dnami, kierunek przepływu gazów zmienia się, płyną więc one następnie w górę w przestrzeni pomiędzy rurami 4 i 5, przyczem wymieniają bezpośrednio ciepło z katalizatorem. Po ponownej zmianie kierunku gazy płyną przez katalizator 3 i sito 2 w dół, a następnie — wzdłuż dolnych części końców rur 4 i przez drugą warstwę katalizatora, której temperaturę reguluje się gazem, dopływającym rurą 12 do rur 10, 11 i odpływającym rurą 13. Gazy po przejściu przez sito 9 uchodzą otworem w dnie 15. Gazy płyną przez pierwszą warstwę z wielką szybkością na bardzo długiej drodze, dzięki czemu wymieniają ciepło w takim stopniu, iż ich skuteczność ochładzająca jest w szerokich granicach proporcjonalna do ich ilości. Ponieważ jednak ilość ciepła, wytwarzana podczas przepływu tych gazów przez katalizator, jest również proporcjonalna do ilości gazów, osiąga się ochładzanie równomierne nawet w tym przypadku,

jeżeli ilość przepływających gazów reakcji zmienia się znacznie. Przy wytwarzaniu kwasu siarkowego sposobem kontaktowym pożądaną jest utrzymywanie w pierwszej warstwie wysokiej temperatury dla umożliwienia szybkiej reakcji. Korzystną równowagę osiąga się, jeżeli temperatura obniży się, zanim gaz dopłynie do drugiej warstwy. Mianowicie, przed zetknięciem się z drugą warstwą gazy opływają dolne końce rur 4, znajdujące się poniżej sita 2. Temperaturę w drugiej warstwie reguluje się dokładnie zapomocą gazów, płynących przez rury 10, 11. Umożliwia to utrzymywanie w tej warstwie o wiele niższej temperatury, niż w warstwie pierwszej.

Rury 4 i 5 mogą sięgać tylko do sita 2, nie obniżając w tym przypadku temperatury gazów, odpływających przez sito 2. Urządzenie do wymiany ciepła w drugiej warstwie, umieszczonej ewentualnie w oddzielnej osłonie, może składać się z rur pojedynczych, których skuteczność jest jednak mniejsza.

Oprócz otrzymywania w warstwach katalizatora temperatury najkorzystniejszej, wynalazek umożliwia regulowanie szybkości gazów przepływających, względnie czasu, w ciągu którego gazy stykają się z katalizatorem. Czas ten powinien być w komorze górnej krótszy; w tym celu rury 4 umieszcza się gęściej, niż rury 10. Fig. 1 i 2 nie uwidoczniają tego, w praktyce jednak rury te są tak gęsto umieszczone obok siebie, że z powodu zmniejszenia ilości katalizatora pomiędzy rurami zwiększa się szybkość gazów przepływających, a więc zmniejsza się czas zetknięcia się gazów z katalizatorem. Długość tego czasu zależy od rodzaju przeprowadzanej reakcji.

W urządzeniu, przedstawionem na fig. 3, osłona 1 posiada nakrywę 14 i dno 16, do którego przymocowane są rury 17, napełnione katalizatorem. Rury te znajdują się wewnątrz rur 18, których górne końce są zamknięte dnami, a końce dolne posia-

dają otwory 19. Płyta rozdzielcza 20 umożliwia ściśle mieszanie gazów. Ostoną 1 jest połączona z ostoną 8, zaopatrzoną w dna 21, 22. Otwory w tych dnach są połączone ze sobą rurami 24, zaopatrzonymi w siła 23, na których spoczywa katalizator. Gaz ochładzający dopływa otworem 25 do dolnej komory 8, zaopatrzonej w dno 15, płynie wzdłuż rur 24, zmieniając swój kierunek wskutek napotkania płytek 26, i odpływa otworem 27.

Gazy reakcji, dopływające przez otwór nakrywy 14, płyną wzdłuż rur 18, wymieniając pośrednio ciepło z katalizatorem, dostają się przez otwory 19 do przestrzeni pomiędzy rurami 18, 17 i płyną w górę, wymieniając przytem bezpośrednio ciepło z katalizatorem i z gazami, płynącymi zewnątrz rur 18. Po ponownej zmianie kierunku ruchu, gazy płyną przez warstwę katalizatora w rurach 23 i odpływają otworem w dnie 15. Regulowanie temperatury w tem urządzeniu odpowiada regulowaniu w urządzeniu według fig. 1. Również w tym przypadku gazy wymieniają dwukrotnie ciepło w przeciwnym kierunku, pomimo że umieszczenie katalizatora względem urządzeń do wymiany ciepła jest odwrotne, niż na fig. 1. Katalizatory mogą być rozmieszczone w oddaleniach dowolnie małych, dzięki czemu osiąga się pożądane regulowanie temperatury. W komorze dolnej reguluje się temperaturę gazami ochładzającymi, niezależnie od temperatury w komorze górnej.

Komorę 8 urządzenia według fig. 3 można zastąpić komorą 8 urządzenia według fig. 1 lub odwrotnie.

Fig. 4 przedstawia urządzenie, w którym gazy płyną najpierw przez komorę dolną, a następnie przez komorę górną. Komora dolna 1 posiada urządzenia do wymiany ciepła, pracujące w przeciwnym kierunku i wykonane według fig. 1, przyczem jednak rury są odwrócone. Rury urządzenia do wymiany ciepła, zastosowanego w komorze 8,

są pionowe. Gazy ochładzające płyną z rur komory 8 przez rurę 27 do chłodnicy 28, poczem pompa 29 doprowadza je rurą 30 zpowrotem do rur 10, 11. Rura 31, umieszczona równolegle do rur chłodnicy 28 i zaopatrzona w zawór 32, oraz zawór 33 rury 27 umożliwiają regulowanie ilości gazów, doprowadzanych do rur 10, 11 przez chłodnicę i przez rurę 31.

Dla zrównoważenia ochładzania, wywołanego przez ściany komór, nawet w tym przypadku, jeżeli są one izolowane, warstwy katalizatora wewnątrz komory ochładza się silniej, niż na jej obwodzie. W tym celu umieszcza się w rurach komory górnej, ewentualnie dolnej, czopy 34, zmniejszające ilości przepływających gazów. Czopy takie można również stosować w aparacie według fig. 1.

Fig. 5 uwiarygadnia podziurawiony koniec dolny rury wewnętrznej 11; dzięki tym otworom gazy nie natrafiają z wielką siłą na dno rury 10, co w przypadku przeciwnym wytwarza oziębienie i jest powodem nierównomierności temperatury.

W urządzeniu, przedstawionem na fig. 6, gazy płyną w sposób podobny, jak w urządzeniu według fig. 4. Również komory górne obu urządzeń są objętościowo równe sobie. Urządzenie do wymiany ciepła komory dolnej (fig. 6) posiada pierścienie 35, 36, umieszczone współśrodkowo, przyczem pierścienie 35 są napełnione katalizatorem i na dolnych końcach 37 przedziurawione tak, że gazy mogą dopływać do katalizatora. Gazy, płynące pomiędzy pierścieniami 36 i 37, wymieniają pośrednio ciepło z katalizatorem, a po zmianie kierunku płyną przez przewód 36 w dół. Po powtórnej zmianie kierunku dostają się one przez otwory 37 do katalizatora i płyną w górę. Zaletą tego urządzenia polega na tem, że pierścienie mogą być wsunięte jeden w drugi, przyczem zbędne są dna do podpierania rur, a powierzchnia katalizatora, wymieniająca ciepło, jest większa, niż

przy wykonaniach według fig. 1 i 4. Dla zrównoważenia ochładzania przy ścianie aparatu zwiększa się grubość pierścieni katalizatora od środka ku obwodowi lub zmniejsza się ilości gazów, przepływających przez pojedyncze części.

Przy wykonaniu komory górnej według fig. 1, 4 i 6 niezbędne są uszczelnienia połączeń. Następstwem ulatniania się małej ilości gazu przez połączenia jest tylko zmniejszenie ilości gazu, przepływającego przez urządzenia do wymiany ciepła, podczas gdy uszczelnienie komór rurowych (komora dolna na fig. 3) posiada ważne znaczenie i jest trudne, ponieważ przy reakcjach stosuje się temperatury wysokie, wywołujące odkształcanie się części urządzenia.

Na fig. 6 uwidocznione jest również urządzenie do podgrzewania dopływających gazów reakcji przez wymianę ciepła. Gazy, doprowadzane do rury 39 zapomocą dmuchawy 38, płyną wzdłuż urządzenia do wymiany ciepła, a następnie rurą 40, zaopatrzoną w zawór, do komory 41. Budowa komory 41 zależy od celów reakcji: przy utlenianiu dwutlenku siarki na trójtlenek służy ona do spalania siarki, a przy utlenianiu gazowych związków organicznych — do odparowywania. Gazy reakcji, wytworzone w komorze 41, płyną przez rurę 42 do komory dolnej (fig. 6).

W urządzeniu do wymiany ciepła, umieszczonem w komorze górnej, gazy płyną w kierunku przeciwnym, t. j. najpierw przez przestrzenie pomiędzy rurami 10 i 11, a następnie przez rury 11, i mogą być rozdzielane zapomocą czopów 43 lub w inny sposób tak, że ochładzanie przez ściany osłony zostaje zrównoważone. Przepływ gazów może jednak odbywać się również w kierunku przeciwnym. Regulowanie ochładzania osiąga się zmianą szybkości działania dmuchawy lub przeprowadzaniem części gazów przez rurę 44, przez którą może przepływać w niektórych przypadkach, np.

przy uruchomianiu urządzenia, całkowita ilość gazów. Jeżeli dolna komora jest zamknięta, to całkowita ilość gazów płynie również przez rurę 44, dopływając rurą 45, zaopatrzoną w zawór. Umożliwia to zmianę kierunku przepływu przez urządzenie do wymiany ciepła, ponieważ przy otwartych zaworach w rurach 45 i 44 i zamkniętym zaworze w rurze 40 gaz, dopływający przez rurę 45, płynie wzdłuż rur wewnętrznych, następnie przez przestrzenie pomiędzy temi rurami i rurami, zamkniętymi dnami, a odpływa przez rury 39 i 44.

Urządzenie do podgrzewania gazów reakcji lub części tych gazów może być stosowane również w innych przykładach wykonania urządzenia, opisanych powyżej. Urządzenie, przewody i osłony komór są izolowane.

W pewnych przypadkach jest pożądaný obieg kołowy gazów, omijających jednak komorę 41. Dla podgrzania całego aparatu przeprowadza się przez urządzenie do wymiany ciepła gazy gorące, ogrzewające katalizator w komorze górnej, mianowicie, zamykając zawory w rurach 40 i 44, a otwierając zawór w rurze 45. Gaz płynie więc przez rurę 39 i urządzenie do wymiany ciepła, a odpływa przez rury 45 i 46, przyczem kłapa 47 zapobiega dopływowi gazu do dmuchawy 38.

Opisane przykłady wykonania wykazują, że aparat może być dostosowany do każdej reakcji gazowej. W pewnych przypadkach jest pożądané połączenie takiego aparatu z komorami, zaopatrzonemi w urządzenie ochładzające innego rodzaju lub wcale nieochładzanemi. Liczba takich komór zależy od rodzaju reakcji i budowy komory. Pewne reakcje wymagają zetknięcia się gazów z katalizatorami, przeprowadza się więc gazy w ciągu krótkiego czasu przez większą liczbę komór, umieszczonych jedna za drugą, tak że w każdej komorze gaz przepływa tylko przez bardzo krótki przedział czasu.

## Zastrzeżenia patentowe.

1. Urządzenie do przeprowadzania reakcji katalitycznych, składające się z dwóch lub większej liczby komór, zaopatrzonych w warstwy katalizatora i umieszczonych jedna za drugą, względnie z dwóch lub większej liczby warstw katalizatora, znamienne tem, że jedna komora względnie warstwa lub ich większa liczba posiada urządzenie ochładzające, np. podwójne urządzenie do wymiany ciepła, pracujące przeciwnie, które działa odpowiednio do szybkości gazów, przepływających przez komory względnie warstwy katalizatora, oraz odpowiednio do ilości tych gazów, natomiast urządzenie, ochładzające jedną z pozostałych komór względnie warstw lub ich większą liczbę, jest zaopatrzone w narządy do doprowadzania i odprowadzania środka ochładzającego, którego temperatura może być regulowana niezależnie od przebiegu reakcji w komorach lub warstwach pierwszych.

2. Urządzenie według zastrz. 1, znamienne tem, że komory względnie warstwy katalizatora są umieszczone w osłonie wspólnej.

3. Urządzenie według zastrz. 1, znamienne tem, że komory względnie warstwy katalizatora są umieszczone w osłonach oddzielnych.

4. Urządzenie według zastrz. 1, znamienne tem, że jest zaopatrzone w narządy, umożliwiające obieg kołowy środka, ochładzającego komory lub warstwy katalizatora.

5. Urządzenie według zastrz. 1, znamienne tem, że jest zaopatrzone w narządy, doprowadzające co najmniej część gazów reakcji, zanim przepłyną one przez pierwszą komorę lub warstwę, do komór lub warstw dalszych w celu ich ochładzania.

6. Urządzenie według zastrz. 1 — 3, znamienne tem, że jest zaopatrzone w narządy, umożliwiające nierównomierne ochładzanie oddzielnych części komór lub warstw katalizatora, dzięki czemu działanie ochładzające osłony urządzenia zostaje wyrównane.

The Selden Company.  
Zastępca: Inż. H. Sokal,  
rzecznik patentowy.

