(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
03. Oktober 2024 (03.10.2024)

WIPO | PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2024/200086 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C01C 3/02 (2006.01) *B01J 19/24* (2006.01)
C07C 253/24 (2006.01) *B01J 23/42* (2006.01)
F01D 15/10 (2006.01) *B01J 12/00* (2006.01)
B01J 8/02 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2024/057216

(22) Internationales Anmeldedatum:
19. März 2024 (19.03.2024)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
23163941.0 24. März 2023 (24.03.2023) EP

(71) Anmelder: **EVONIK OPERATIONS GMBH** [DE/DE]; Rellinghauser Strasse 1-11, 45128 Essen (DE).

(72) Erfinder: **BINDERNAGEL, Ulf**; Kämpchensweg 8, 50933 Köln (DE). **BECKER, Catrin Dorothee**; Emmerich-Josef-Strasse 18, 65929 Frankfurt (DE). **MÜLLER, Thomas**; Leimenkautenfeld 2, 63674 Altenstadt (DE). **KÖSTNER, Martin**; Am Kaiserschlag 34, 64295 Darmstadt (DE). **LI, Zhen**; Auheimer Sand 9, 63457 Hanau (DE).

(74) Anwalt: **EVONIK PATENT ASSOCIATION**; c/o Evonik Industries AG, IP Management, Bau 1042A, PB15, Paul-Baumann-Strasse 1, 45772 Marl (DE).

(81) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart)*: AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH,

(54) Title: APPARATUS FOR THE PRODUCTION OF NITRILES AND USE THEREOF

(54) Bezeichnung: APPARAT FÜR DIE HERSTELLUNG VON NITRILEN UND SEINE VERWENDUNG

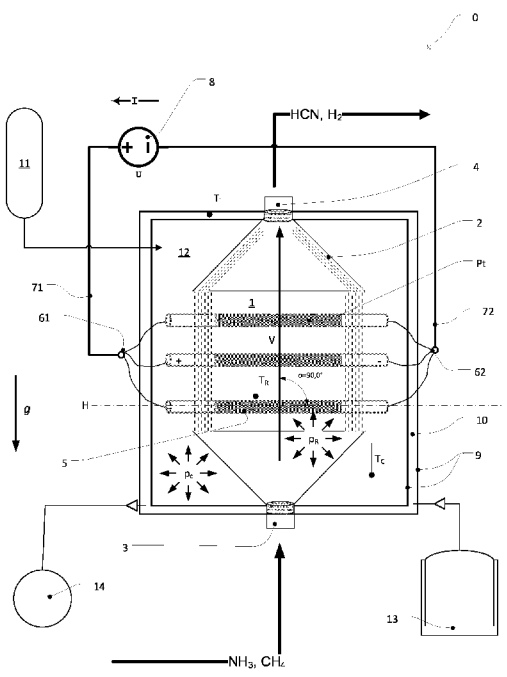

Fig. 1

(57) Abstract: It is an object of the invention to specify an electrically heatable reactor for hydrogen cyanide production and the production of other nitriles, which enables a differentiated temperature profile and works with inexpensive standard components. The core of the inventive apparatus (0) is a chamber (1) made from gas-permeable, thermally insulating material that constitutes the actual reaction space. Electrical heating elements (5) project into the chamber (1), such that the chamber (1) can be heated from the inside by heating elements (5). The electrical terminals of the heating elements are outside the reaction space but within the surrounding shell. Unlike in the case of the industrially implemented BMA process, the heat is thus not transported into the reaction space from the outside but generated in the reaction space. Heat is generated by conversion of electrical energy by means of the heating elements (5) by the principle of resistance heating. In order to ensure gastightness of the apparatus (0), a shell (9) is provided, which surrounds the chamber (1) in a gastight manner.

(57) Zusammenfassung: Der Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde, einen elektrisch beheizbaren Reaktor für die Blausäureherstellung und die Herstellung anderer Nitrile anzugeben, der ein differenziertes Temperaturprofil ermöglicht und mit kostengünstigen Standard-Bauteilen auskommt. Kern des erfindungsgemäßen Apparats (0) ist eine Kammer (1) aus gasdurchlässigem, wärmeisolierendem Material, welche den eigentlichen Reaktionsraum darstellt. In die Kammer (1) ragen elektrische Heizelemente (5), sodass sich die Kammer (1) von innen mit den Heizelementen (5) beheizen lässt. Die elektrischen Anschlüsse der Heizelemente befinden sich außerhalb des Reaktionsraumes, aber innerhalb des umschließenden Mantels. Anders als beim industriell praktizierten BMA-Verfahren wird die Wärme also nicht von außen in den Reaktionsraum transportiert, sondern im Reaktionsraum erzeugt. Die

WO 2024/200086 A1

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart)*: ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Erklärungen gemäß Regel 4.17:

— *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii)*

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

Wärme-Erzeugung erfolgt durch Umwandlung elektrischer Energie vermittels der Heizelemente (5) nach dem Prinzip einer Widerstandsheizung. Um die Gasdichtigkeit des Apparats (0) sicherzustellen ist ein Mantel (9) vorgesehen, welcher die Kammer (1) gasdicht umschließt.

Apparat für die Herstellung von Nitrilen und seine Verwendung

Die Erfindung betrifft einen Apparat für die Herstellung von mindestens einem Produktgas aus mindestens einem Eduktgas. Insbesondere ist der Apparat für die Herstellung von Nitrilen bestimmt. Des Weiteren betrifft die Erfindung die Verwendung des Apparats in der Herstellung von Nitrilen, insbesondere von Blausäure sowie in der Bereitstellung von negativer Regelleistung.

Blausäure (HCN), das einfachste Nitril, ist ein wichtiger Synthesebaustein in der organischen Chemie. Die Herstellung von Blausäure erfolgt im industriellen Maßstab meist nach dem Andrussow-Verfahren oder dem BMA-Verfahren.

Eine Einführung in die Technologie der Blausäureherstellung bieten:

> Gail, E., Gos, S., Kulzer, R., Lorösch, J., Rubo, A., Sauer, M., Kellens, R., Reddy, J., Steier, N. and Hasenpusch, W. (2011). Cyano Compounds, Inorganic. In Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, (Ed.). DOI 10.1002/14356007.a08_159.pub3

Beim BMA-Verfahren (BMA = Blausäure aus Methan und Ammoniak) wird Blausäure aus Methan (CH_4) und Ammoniak (NH_3) in einer stark endothermen Reaktion hergestellt, die mit 1000°-1300°C vergleichsweise hohe Reaktionstemperaturen benötigt. Im Gegensatz zu dem Andrussow-Verfahren wird das BMA-Verfahren in Abwesenheit von Sauerstoff durchgeführt. Der notwendige Einsatz fossiler Energieträger zur Bereitstellung der Reaktionsenthalpie in Verbindung mit der geringen energetischen Ausbeute für die Blausäure bedingen eine signifikante Erzeugung von CO_2.

Durch die Verbrennung von Erdgas oder rückgeführtem Wasserstoff (H_2), der als das Nebenprodukt des BMA-Verfahrens entsteht, wird die im BMA-Verfahren benötigte Energie in einem separaten Brennraum bereitgestellt. Dabei wird aufgrund der notwendigen Mindesttemperaturen für die Blausäurereaktion nur ein Teil der eingesetzten Heizenergie für die Reaktion selbst genutzt, der andere Teil wird zur Aufheizung der Verbrennungsluft und der Brennstoffe benötigt.

Als eine alternative Energiequelle kann HCN mit elektrischer Energie statt mit fossilen Brennstoffen produziert werden. Bei Einsatz von Elektrizität aus regenerativ erzeugten Quellen ist das Verfahren energetisch weitestgehend CO_2 neutral. Darüber hinaus weist ein strombeheiztes BMA-Verfahren weitere Vorteile gegenüber einem fossil beheiztem BMA-Verfahren auf, wie z. B. im Bereich der Betriebskosten:

- Durch Vermeidung des zwangsweisen Energieverlustes auf der Brenngasseite aufgrund der Aufheizung der Verbrennungsluft auf die hohen notwendigen Mindestreaktionstemperatur ist ein besserer energetischer Wirkungsgrad zu erwarten.
- Da keine Feuerfestmaterialien zur Ausmauerung des Reaktors eingesetzt werden müssen, werden schnellere An- und Abfahrzyklen erreicht.

- Eine homogenere Temperaturfahrweise erlaubt höhere Ausbeuten, wodurch sich die spezifischen Einsatzmengen an Methan und Ammoniak zur Blausäureherstellung verringern. Es ist nämlich bekannt, dass bei homogener Temperaturverteilung deutlich höhere Ausbeuten bei gleichzeitig geringerer Nebenproduktbildung erzielt werden können.

Auch im Bereich der Investitionskosten sind Vorteile auf Seiten einer elektrisch beheizten BMA-Anlage gegenüber einer thermisch beheizten Anlage zu sehen:

- die Abwesenheit von Brenngas- und Rauchgasräumen erlaubt eine kompaktere Bauweise und höhere Raumzeitausbeuten,

- ebenso sind günstige, modulare Verschaltungen möglich.

Schließlich ist ein elektrisches betriebenes BMA Verfahren nachhaltiger:

- das anfallende, wasserstoffhaltige Restgas kann ggf. in nachgeschalteten Prozessen Erdgas als Heizgas substituieren und hier eine zusätzliche CO_2 Minderung erreichen.

- Durch Wegfall der Feuerfestmaterialien und einem Prozessdesign, das einen höheren Automatisierungsgrad erlaubt, können bei Betriebsstörungen Fackelzeiten deutlich minimiert werden.

- Der Wasserstoff im anfallenden Restgas hat einen erheblich niedrigen CO_2-Rucksack als Wasserstoff, der aus fossilen Kohlenwasserstoffen im Steam Reformer erzeugt wird und kann, nach eventuell notwendiger Aufreinigung, als Rohstoff für weitere chemische Reaktionen eingesetzt werden.

Aus all diesen Gründen besteht ein Interesse daran, ein mit elektrischer Energie betriebenes BMA Verfahren zu entwickeln, mit welchem im industriellen Maßstab Blausäure produziert werden kann.

Zur Herstellung von HCN in elektrisch beheizten Reaktoren sind verschiedenen Konzepte bekannt:

Zum einen wird für die Blausäureherstellung die Anwendung von elektrisch beheizten Festbettreaktoren beschrieben, wobei die Aufheizung der Katalysatorschüttung durch Induktion erfolgen kann; vgl. WO2017186437A1.

Zum anderen werden strukturierte Katalysatorkörper, sogenannten Monolithe, aus elektrisch leitfähigem Material eingesetzt, wie dies in WO2019228798A1 oder WO2021/063799A1 beschrieben ist. In den genannten Veröffentlichungen werden die Edukte durch die mit Katalysator beschichteten Kanäle einer elektrisch beheizten Struktur (Widerstandsheizung) geleitet.

Aus der DE10317197A1 ist ein Reaktor zur Herstellung von Blausäure nach dem BMA Verfahren bekannt, der wahlweise mit einer Induktionsheizung oder einer Widerstandsheizung versehen sein kann. Die Beheizung erfolgt über ein im Reaktionsraum angeordnetes Modul, welches von den Reaktionsgemisch längs durchströmt wird. Der Reaktor ist von einer Wärmeisolierung umgeben und mit einem gasdicht abschließenden Doppelmantel versehen. Der Doppelmantel wird mit einem Inertgas gefüllt. Nachteil dieses Reaktors ist eine monolithische Struktur, die eine fehlerfreie, homogene Fertigung aus einem Grünling sehr aufwendig macht, anfällig für Materialbeanspruchung bis hin zu Rissen aufgrund thermischer Spannungen ist und als aufwändig angesehen wird für Baugrößen im industriellen Maßstab.

In Hinblick auf diesen Stand der Technik liegt der vorliegenden Erfindung die Aufgabe zu Grunde, einen elektrisch beheizbaren Reaktor für die Herstellung von gasförmigen Produkten wie Blausäure und anderen Nitrilen anzugeben, der beständig gegen thermische (Wechsel-)Beanspruchung ist und eine hohe Verfügbarkeit der Heizelemente aufweist, ein differenziertes Temperaturprofil ermöglicht und mit kostengünstigen Standard-Bauteilen auskommt.

Gelöst wird diese Aufgabe durch einen Apparat nach Anspruch 1. Ein erster Gegenstand der Erfindung ist mithin ein Apparat zur Herstellung von mindestens einem Produktgas aus mindestens einem Eduktgas, insbesondere für die Herstellung von Nitrilen als Produkt mit den folgenden Merkmalen:

a) der Apparat umfasst eine Kammer mit einer gasdurchlässigen und wärmeisolierenden Wandung, mit einem Zulauf für das Eduktgas, mit einem Ablauf für das Produktgas und mit einer Hauptströmungsrichtung, die sich vom Zulauf zum Ablauf erstreckt;
b) der Apparat umfasst einen gasdichten Mantel, welcher die Kammer umschließt, wobei der Zulauf und der Ablauf durch den Mantel hindurchgeführt sind;
c) zwischen Kammer und Mantel ist ein Zwischenraum vorgesehen, welcher die Kammer umschließt und seinerseits von dem Mantel umschlossen ist;
d) der Apparat umfasst mindestens ein elektrisches Heizelement, welches sich durch die Kammer erstreckt und deren Wandung zumindest einmal durchstößt, und

welches mindestens zwei elektrische Anschlüsse aufweist, welche innerhalb des Zwischenraums und außerhalb der Kammer angeordnet sind;

e) der Apparat umfasst eine außerhalb des Mantels angeordnete elektrische Spannungsquelle, welche zumindest über eine erste elektrische Leitung mit dem ersten elektrischen Anschluss des Heizelements und über eine zweite elektrische Leitung mit dem zweiten elektrischen Anschluss des Heizelements verbunden ist, wobei die erste und zweite elektrische Leitung durch den Mantel hindurchgeführt sind;

f) der Apparat umfasst mindestens ein Anschlusselement für eine außerhalb des Mantels angeordnete Füllgasquelle, die über eine Füllgasleitung mit dem Zwischenraum dergestalt fluidleitend verbindbar ist, dass der Zwischenraum mit einem von der Füllgasquelle bezogenen Füllgas beaufschlagbar ist;

g) in der Kammer ist ein Katalysator angeordnet.

Kern des erfindungsgemäßen Apparates ist eine Kammer, welche den eigentlichen Reaktionsraum darstellt. In der Kammer befinden sich die elektrischen Heizelemente, sodass sich die Kammer von innen mit den Heizelementen elektrisch beheizen lässt. Anders als bei industriell praktizierten BMA-Verfahren wird die Wärme also nicht von außen in den Reaktionsraum transportiert, sondern im Reaktionsraum erst erzeugt. Die Wärme-Erzeugung erfolgt in den Heizelementen durch Umwandlung elektrischer Energie nach dem Prinzip einer Widerstandsheizung. Anders als bei industriell praktizierten BMA-Verfahren gibt es bei dem erfindungsgemäßen Apparat keinen Energieverlust durch Rauchgas, das mit Reaktionstemperatur anfällt. Dadurch ist die energetische Effizienz deutlich erhöht.

Ein wesentlicher Aspekt des erfindungsgemäßen Apparates besteht darin, dass die Heizelemente durch die Wandung der Kammer hindurch stoßen. Dies bedeutet, dass die Heizelemente sich nicht nur innerhalb der Kammer befinden, sondern teilweise auch außerhalb der Kammer. Der Abschnitt der Heizelemente, der sich innerhalb der Kammer befindet, dient der Beheizung der Kammer. Die Abschnitte der Heizelemente, die sich außerhalb der Kammer befinden, dienen dem elektrischen Anschluss. Jedes Heizelement weist mindestens zwei außerhalb der Kammer liegende Abschnitte auf, weil jedes Heizelement mindestens zwei elektrische Anschlüsse benötigt. Jeder elektrische Anschluss befindet sich auf einem Abschnitt des Heizelements, welcher außerhalb der Kammer liegt.

Da die Wandung der Kammer mit einem wärmeisolierenden Material ausgekleidet ist und/oder aus einem wärmeisolierenden Material besteht, ist die Temperatur außerhalb der Kammer niedriger als innerhalb der Kammer, sodass dort die elektrische Kontaktierung einfacher zu bewerkstelligen ist.

Die erfindungsgemäße Durchführung der Heizelemente durch die Wandung hindurch beruht zudem auf der Erkenntnis, dass eine Abdichtung der Kammer im Bereich der Heizelemente ohnehin nicht möglich ist. Aufgrund der Wärmedehnung muss genügend Spielraum in der Durchführung der

Heizelemente gewährleistet sein, um eine Relativbewegung zwischen Wandung und Heizelemente zu ermöglichen. Erfindungsgemäß ist gewollt, dass die Durchführung der Heizelemente durch die Wandung gasdurchlässig ist. Um einen Übergang von Edukt- oder Produktgasen in den Zwischenraum zu verhindern, wird das aufgegebene Füllgas genutzt. Dies bedeutet auch, dass **im Zwischenraum immer mindestens derselbe oder ein höherer Druck als in der Kammer herrschen muss,** um einen Austritt von Edukt- oder Produktgasen aus der Kammer zu verhindern.

Um die Gasdichtigkeit des Apparats sicherzustellen, ist erfindungsgemäß ein Mantel vorgesehen, welcher die Kammer gasdicht umschließt. Auf diese Weise entsteht zwischen dem Mantel und der Wandung der Kammer der Zwischenraum. Der Zwischenraum wird gemäß der Erfindung mit dem Füllgas beaufschlagt, welches aufgrund der Gasdichtigkeit des Mantels den Zwischenraum nach außen nicht verlassen kann. Bei dem Füllgas handelt es sich überwiegend um Stickstoff oder Wasserstoff oder Kohlenwasserstoff oder um ein Gemisch aus überwiegend Stickstoff und Wasserstoff und Kohlenwasserstoff. In dem Füllgas können ggf. Spuren anderer Gase enthalten sein. Das Füllgas kann aus dem Downstreamprozess des Verfahrens rezykliert werden, da das im BMA-Verfahren anfallende Restgas die oben angeführten Füllgase enthalten kann.

Der Gasdruck im Zwischenraum wird im Betrieb so eingeregelt, dass er kontinuierlich ein wenig höher liegt als der Reaktionsdruck in der Kammer. Auf diese Weise wird weitestgehend verhindert, dass Gase aus dem Innern der Kammer in den Zwischenraum gelangen. Wenn dies doch geschieht, ist dies nicht weiter schlimm, weil der Mantel gasdicht ausgeführt ist. Wenn umgekehrt etwas von dem Füllgas durch die gasundichte Wandung in die Kammer gelangt, ist das ebenfalls unkritisch.

Der Mantel ist aus wärmeleitfähigen Metall gefertigt und dient auch zur Wärmeabfuhr. Dazu nimmt der Mantel die von der Wandung ausgehende Wärmestrahlung auf und führt sie an die Umgebung ab. Da der Zwischenraum zwischen Wandung und Mantel lediglich mit Füllgas gefüllt ist, wird die Wärmestrahlung von der Wandung auf den Mantel nicht beeinträchtigt.

Um die Wärmeabfuhr weiter zu verbessern, kann der gasdichte Mantel mit einem zusätzlichen Wärmetauscher versehen sein. Der Wärmetauscher wird außerhalb des Mantels angeordnet und wärmeleitend mit dem Mantel verbunden. Die von dem Mantel aufgenommene Strahlungswärme wird so über den Wärmetauscher abgeführt. Der Wärmetauscher wird vorzugsweise mit einem Kühlfluid beaufschlagt. Dazu wird der Wärmetauscher über einen Vorlauf mit einer Kühlfluidquelle und über einen Rücklauf mit einer Kühlfluidsenke fluidleitend verbunden. Auf diese Weise fließt das Kühlfluid von der seiner Quelle durch den Vorlauf in den Wärmetauscher, nimmt dort die Wärme des Mantels auf und fließt über der Rücklauf zur Senke. Die Temperatur des Kühlfluids nimmt dabei in der Regel zu, sodass die Temperatur des Kühlfluids im Rücklauf höher ist als im Zulauf. Es ist auch denkbar, die Quelle und Senke des Kühlfluids in einem zweiten Wärmetauscher zusammenzuschließen und so einen Kühlfuidkreislauf zu schaffen.

Als Kühlfluid eigenen sich Luft, gasförmiger oder flüssiger Stickstoff, gasförmiges Argon, gasförmiges oder flüssiges Wasser, flüssiges Öl, gasförmiger Ammoniak, gasförmiger Kohlenwasserstoff oder Mischungen daraus. Das Kühlfluid kann seinen thermodynamischen Zustand im Wärmetauscher ändern, etwa verdampfen. Es ist auch denkbar, das Eduktgasgemisch als Kühlfluid zu verwenden und dies im Wärmetauscher vorzuwärmen. Der Rücklauf führt dann unmittelbar in die Kammer oder über den Einlauf in die Kammer. Die Kammer dient insoweit als Kühlmittelsenke.

Es kommen verschiedene Ausführungsformen des Wärmetauschers in Betracht. In einer ersten Ausführungsform wird der gasdichte Mantel doppelwandig ausgeführt (Doppelmantel). Zwischen den beiden Wänden des Mantels entsteht ein Hohlraum, der mit dem Kühlfluid gefüllt wird. Die Wärmeübertragung erfolgt dann direkt von der inneren Wand des Doppelmantels auf das Kühlfluid. Der mit Kühlfluid gefüllte Doppelmantel hat den Vorteil, dass das Kühlfluid zusätzlich vor Gasausbruch schützt, falls der innere Mantel versagen sollte.

Alternativ ist es denkbar, dass der Wärmetauscher als eine Kühlschlange ausgeführt wird, welche um den Mantel herumgeschlungen wird. Die Kühlschlange stellt eine Verbindung zwischen Vorlauf und Rücklauf des Kühlfluids dar.

Einfachstenfalls handelt es sich bei der Kühlschlange um ein mit Kühlfluid gefülltes Rohr, welches über Wärmebrücken mit der Außenseite des gasdichten Mantels verbunden ist. Das Rohr besteht wie der Mantel aus Stahl. Bei den Wärmebrücken handelt es sich um Stahlstege, die mit dem Rohr und dem Mantel verschweißt sind. Die Stahlstege dienen somit der Befestigung der Kühlschlange auf dem Mantel als auch als Wärmebrücke zwischen Mantel und Kühlschlange.

Alternativ kann die Kühlschlange dadurch erhalten sein, dass ein offenes Profil auf der Außenseite des gasdichten Mantels aufgeschweißt ist. Das Kühlfluid befindet sich dann zumindest teilweise zwischen Profil und der Außenseite des gasdichten Mantels. Diese Ausführungsform hat den Vorteil, dass der Wärmeübergang direkt von dem Mantel in das Kühlfluid erfolgt – ohne Umweg über Wärmebrücken.

Die Wandung der Kammer ist vorzugsweise mehrschichtig ausgeführt. Sie umfasst vorzugsweise eine äußere Schale aus Metall und eine innen in der Schalung angeordnete Isolation aus einem wärmeisolierenden Material. Die Schale aus Metall stabilisiert die Kammer und gibt die Wärmestrahlung in den Zwischenraum ab. Um den Wärmeabfluss gering zu halten, wird eine Isolation aus einem wärmeisolierenden Material verwendet, dessen Wärmeleitfähigkeit viel geringer ist als die von der metallischen Schale.

Die Isolation wird vorzugsweise aus einem mineralischem oder keramischen Material hergestellt, das eine hohe Temperaturbeständigkeit und eine geringe spezifische Wärmeleitfähigkeit aufweist. Vorzugsweise werden mineralische Mikrofaserplatten als Isolation verwendet.

Es ist auch denkbar, eine mehrschichtige Wärmeisolierung zu verwenden, wobei die einzelnen Schichten der Wärmeisolierung eine unterschiedliche spezifische Wärmeleitfähigkeit aufweisen.

Besonders bevorzugt umfasst die wärmeisolierende Wandung auf der Seite der Kammer eine innere Schicht mit einer geschlossenen Oberfläche auf. Unter einer geschlossenen Oberfläche ist zu verstehen, dass die Oberfläche weitestgehend porenfrei ist.. Dies kann zum Beispiel dadurch erreicht werden, dass einzelne Strukturelemente mit geeigneter Oberfläche versetzt übereinander angeordnet werden. Insbesondere kann die Wandung an ihrer Innenseite mit metallischen oder keramischen Elementen versehen sein, die nicht aus Fasermaterial bestehen. Metallische und keramische Elemente können mit für diese Werkstoffe üblichen Technologien weitestgehend porenfrei hergestellt werden.

Eine besonders bevorzugte Ausführungsform sieht vor, dass die innen liegende Wandung zur Kammer auf der Oberfläche mit einer katalytisch aktiven oder aktivierbaren Beschichtung versehen ist, welche den Katalysator enthält. Dadurch wird die Wandung der Kammer selbst katalytisch aktiv, was Ablagerungen auf der Wärmeisolierung vermeidet.

Es kann vorteilhaft sein, wenn die Kammer in Hauptströmungsrichtung gesehen einen unrunden Querschnitt aufweist. Insbesondere macht es Sinn, wenn die Kammer in Hauptströmungsrichtung gesehen einen rechteckigen Querschnitt aufweist. Auf einem rechteckigen Querschnitt lassen sich die Heizelemente gleichmäßiger verteilen.

Zur Anordnung der Heizelemente ist anzumerken, dass dies vorzugsweise so erfolgt, dass die Heizelemente in Hauptströmungsrichtung gesehen hintereinander angeordnet oder zueinander versetzt angeordnet sind. Falls die Heizelemente in Hauptströmungsrichtung gesehen hintereinander angeordnet sind, entsteht ein lichter Durchgang zwischen den Heizelementen, der den Strömungswiderstand senkt. Sind die Heizelemente versetzt hintereinander angeordnet, ist der Strömungswiderstand zwar höher, weil kein freier Durchgang besteht, aber dafür kommen alle Strömungspfade mit Heizelementen in Kontakt, sodass der Wärmeübergang intensiver ist.

Es ist besonders bevorzugt, wenn die innersten Schichten der wärmeisolierenden Wandung mit der geschlossenen Oberfläche eine hohen Temperaturwechselbeständigkeit besitzen. Die wird durch Materialauswahl und Verarbeitung erreicht. Eine hohe Temperaturwechselbeständigkeit hat den Vorteil, dass der Apparat schnell aufgeheizt und wieder abgekühlt werden kann, ohne dass die Wärmeisolierung der Wandung Schaden nimmt.

Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn der Reaktor zur Bereitstellung von negativer Regelleistung im Rahmen der Stromnetzstabilisierung genutzt werden kann. Herkömmliche BMA Reaktoren weisen eine feuerfeste Ausmauerung auf, die über mehrere Stunden aufgeheizt oder gekühlt werden müssen, um nicht zu reißen. Für die Bereitstellung von Regelleistung ist das viel zu träge, hier kommt es auf Minuten an.

Die Verwendung des erfindungsgemäßen Apparats zur Bereitstellung negativer Regelleistung zwecks Stabilisierung von Stromnetzen ist ein weiterer Gegenstand der Erfindung. Bevorzugt kann der Apparat zur Bereitstellung einer negativen Minutenreserve genutzt werden. Negative Regelleistung bedeutet, dass der Apparat nur dann mit von der elektrischen Spannungsquelle bezogenen Spannung beaufschlagt wird, wenn in dem Netz, mit dem die elektrische Spannungsquelle verbunden ist, ein Überangebot an elektrischer Leistung herrscht. Umgekehrt kann der Apparat auch von der elektrischen Spannungsquelle getrennt werden, falls sich ein Unterangebot an elektrisch verfügbarer Leistung einstellt. Auf beide Weisen wird das Netz, in dem die elektrische Spannungsquelle eingegliedert ist, stabilisiert. Dies ist insbesondere dann interessant, wenn in dem Netz viele Naturstromquellen wie Windkraft oder Photovoltaik genutzt werden, deren Leistungsabgabe stark fluktuiert.

Ein Vorteil der erfindungsgemäßen Konstruktion des Apparats besteht darin, dass herkömmliche, kommerziell erhältliche Heizelemente als Widerstandsheizung verwendet werden können, wie sie in herkömmlichen, elektrisch beheizten Industrie-Öfen verwendet werden. Eine Sonderkonstruktion der elektrischen Widerstandsheizung oder ein kostspieliger 3D-Druck entfällt.

Elektrische Heizelemente sind kommerziell erhältlich aus Siliciumcarbid oder Molybdänsilicid oder anderen Materialien und bei den Reaktionsbedingungen beständig.

Es ist vorteilhaft, wenn die Heizelemente quer zu der Strömung ausgerichtet werden. Dies führt dazu, dass die Heizelemente nur geringe Temperaturunterschiede erfahren. Da der erfindungsgemäße Apparat dafür eingerichtet ist, in einem kontinuierlichen Verfahren betrieben zu werden, entstehen im Betrieb Bereiche mit annähernd gleicher Temperatur, die sich durch die Kammer erstrecken; und zwar im Wesentlichen quer zur Hauptströmungsrichtung der Reaktanten durch die Kammer. Werden die Heizelemente entlang dieser Richtung angeordnet, ist die Belastung der Heizelemente durch Temperaturunterschiede sehr gering.

Darüber hinaus sind die Heizelemente in einfacher Weise separat regelbar. Die Verwendung separat regelbarer Heizelemente ermöglicht gegebenenfalls die Einstellung eines Temperaturprofils, um so den Temperaturverlauf der Reaktion gezielt zu steuern. So ist es möglich, den Umsatz und die Ausbeute der Reaktion zu optimieren und die Bildung unerwünschter Nebenprodukte zu unterdrücken. Das Temperaturprofil wird durch die Regelung der elektrischen Leistung eingestellt: Die Einstellung eines Leistungsprofils über die Reaktorlänge ergibt ein Temperaturprofil.

Die bevorzugte Ausführungsform des Apparates orientiert sich an der Ausführung kommerziell erhältlicher Heizelemente Diese sind entweder I-förmig, U-förmig, W-förmig oder M-förmig. Alle diese Heizelemente weisen eine gedachte Hauptwiderstandsachse auf, die quer zur Strömungsrichtung anzuordnen ist.

Die Heizelemente sind im Wesentlichen zylindrisch ausgeformt, können aber auch andere Querschnitte, z.B. einen elliptischen Querschnitt, aufweisen. Die I-förmigen Heizelemente weisen genau zwei elektrische Anschlüsse auf, nämlich einen an jedem Ende. Eingebaut erstrecken sich die I-förmigen Heizelemente linear durch die Kammer und ragen mit ihren endseitigen elektrischen Anschlüssen aus der Wandung heraus. Ihre Hauptwiderstandsachse entspricht ihrer Längsachse.

Die U-förmigen Heizelemente weisen auch zwei elektrische Anschlüsse auf, nämlich jeweils am offenen Ende der Schenkel. Die Anschlüsse liegen somit auf derselben Seite. Eingebaut erstrecken sich die beiden Schenkel parallel durch die Kammer. Die Schenkel durchstoßen die Wandung, sodass die Enden mit den elektrischen Anschlüssen herausragen. Die Hauptwiderstandsachse entspricht der Symmetrieachse.

Die W-förmigen Heizelemente entsprechen einem doppelten U und weisen drei elektrische Anschlüsse auf. Sie sind für den Einsatz in Dreiphasen-Netzen bestimmt. Die Hauptwiderstandsachse entspricht der Symmetrieachse.

Die Heizelemente werden vorzugsweise so eingebaut, dass die Hauptwiderstandsachse mit der Hauptströmungsrichtung einen Winkel φ einschließen, der mindestens 0° und höchstens 90° beträgt. Besonders bevorzugt beträgt der Winkel φ 90°. Die Hauptwiderstandsachse der Heizelemente steht dann senkrecht auf der Hauptströmungsrichtung. Dies ist strömungs- und thermodynamisch am günstigsten.

Vorzugsweise wird der Apparat so aufgestellt, dass die Hauptströmungsrichtung vertikal, also parallel zur Erdbeschleunigung verläuft. Auf diese Weise wird die Hauptströmungsrichtung nicht durch die Gravitation abgelenkt, sodass die Ausrichtung der Heizelemente zu der Strömung beibehalten wird. Vorzugsweise verläuft Hauptströmungsrichtung entgegen der Erdbeschleunigung also aufwärts. Dies verhindert einen Wärmeauftrieb quer zur Strömungsrichtung.

Vorzugsweise wird eine Vielzahl von Heizelementen in dem Apparat verbaut. Diese können per Reihen-, Parallel- oder Sternschaltung oder einer Mischung dieser Schaltungen mit der ersten und der zweiten elektrischen Leitung und ggf. auch mit der dritten elektrischen Leitung elektrisch leitend verbunden sind.

Bevorzugt werden Heizelemente aus Siliciumcarbid oder aus Molybdänsilicid eingesetzt, die mit Katalysator beschichtet sind. Es kann sinnvoll sein, auf der Oberfläche der Heizelemente eine Schutzbeschichtung vorzusehen, auf welche der Katalysator aufgetragen wird. Dies verhindert eine chemische oder physikalische Reaktion zwischen Katalysator und Kern.

Alternativ kann der Katalysator auf einen herkömmlichen, unbeheizten Katalysatorträger aufgebracht und in die Kammer eingefüllt werden.

Da sich im Bereich der Wandung Kurzschlussströmungen ausbilden können kann dies zu einem suboptimalen Reaktionsverlauf führen. Um die Bildung unerwünschter Strömungsregimes zu vermeiden, können unbeheizte Heizelemente zusätzlich eingebracht werden.

Der erfindungsgemäße Aufbau des Apparats erschließt somit eine Vielzahl von Vorteilen, die sich insbesondere bei der Herstellung von Produktgasen wie Blausäure oder anderen Nitrilen, zum Beispiel Aceto- oder Acrylnitril heben lassen.

Ein zweiter Gegenstand der Erfindung ist mithin ein Verfahren zur Herstellung von Nitrilen unter Verwendung des erfindungsgemäßen Apparats. Ein solches Verfahren weist die folgenden Schritte auf:

a) Bereitstellen eines erfindungsgemäßen Apparats
b) Beaufschlagen des Zulaufs mit einem Eduktgasgemisch; enthaltend zumindest Ammoniak und gasförmiger Kohlenwasserstoff;
c) Beaufschlagen des Heizelements mit von der elektrischen Spannungsquelle bezogenen elektrischem Strom;
d) Abziehen eines Produktgasgemisches enthaltend zumindest ein gebildetes Nitril, aus dem Ablauf.

Vorzugsweise wird auf diese Weise Blausäure hergestellt. Bei der Blausäure handelt es sich um ein Nitril, das in dem Produktgasgemisch anfällt. In dem Eduktgasgemisch muss dafür der Kohlenwasserstoff Methan enthalten sein. Sofern Blausäure hergestellt werden soll, wird als Katalysator ein Material verwendet, das Platin enthält.

Sofern das Eduktgasgemisch zusätzlich Sauerstoff enthält, entsteht ein potentiell zündfähiges Gemisch. Die Zündfähigkeit ist dann gegeben, wenn die Konzentration des Sauerstoffs KO_2 innerhalb des Eduktgasgemisches oberhalb der Sauerstoffgrenzkonzentration *SGK* des Gemisches liegt. Die Sauerstoffgrenzkonzentration *SGK* hängt von der Zusammensetzung des Eduktgasgemisches ab und ist entsprechenden Tabellenwerken zu entnehmen. Vorzugsweise weist das Eduktgasgemisch so wenig Sauerstoff auf, dass Konzentration des Sauerstoffs KO_2 unterhalb

der Sauerstoffgrenzkonzentration *SGK* liegt. Dies bedeutet, dass das Eduktgasgemisch nicht zündfähig ist. Dadurch lässt sich die Sicherheit des Betriebes mit geringerem Aufwand sicher stellen.

Ein unterhalb der Zündgrenze betriebenes Verfahren zur Herstellung von Blausäure ist als BMA-Verfahren aufzufassen. Da die für die Reaktion benötigte Wärmeenergie elektrisch bereit gestellt wird, wird es im Folgenden als „E-BMA-Verfahren" bezeichnet.

Anders als die klassischen, thermisch beheizten BMA- und Andrussow-Verfahren ermöglicht das E-BMA-Verfahren eine nahezu komplette Stoffumwandlung der Edukte mittels elektrischer Energie, im Falle des Einsatzes von grünem Strom sogar potentiell CO_2-neutral. (Das beim Andrussow-Verfahren eingesetzte Methan wird aufgrund der Prozesscharakteristik anteilig immer zu CO_2 umgewandelt.)

Dank der besonderen Konstruktion des erfindungsgemäßen Apparats ist es möglich, den damit betriebenen E-BMA Prozess hinsichtlich Ausbeute und Umsatz so zu optimieren, dass er mit klassischem BMA und Andrussow-Prozessen konkurrenzfähig ist.

Neben E-BMA-Verfahren kann der erfindungsgemäße Apparat auch für ähnliche Reaktionen eingesetzt werden, so zum Beispiel für die Herstellung von Aceto- und Acrylnitril.

Der erfindungsgemäße Apparat ist dafür eingerichtet, bei einem in der Kammer herrschenden Reaktionsdruck p_R von mindestens $1*10^5$ Pa absolut und höchstens $5*10^5$ Pa absolut betrieben zu werden. Vorzugsweise herrscht im Zwischenraum ein leicht größerer Gasdruck p_C, um ein geringes Druckgefälle zum Reaktionsraum zu schaffen. Auf diese Weise ist die Wandung des Reaktionsraumes nahezu druckfrei. Der Überdruck zum Umgebungsdruck wird indes von der Wandung des Mantels getragen. Die Wandung des Mantels ist entsprechend druckfest auszuführen.

Der Gasdruck p_C in dem Zwischenraum wird von dem Füllgas aufgebracht. Bei dem Füllgas handelt es sich überwiegend um Stickstoff oder Wasserstoff oder Methan oder um ein Gemisch aus überwiegend Stickstoff, Wasserstoff und Methan. In dem Füllgas können ggf. Spuren anderer Gase enthalten sein.

Vorzugsweise wird der Prozess so betrieben, dass die Heizelemente in Reaktionsraum gleichmäßig angeströmt werden, so dass sich bei konstanter Oberflächenleistung ein nahezu konstantes Temperaturprofil über das jeweilige Heizelement ausbildet. Die thermische Belastung ist auf diese Weise für die Heizelemente besser zu ertragen. Die Lebensdauer der Heizelemente verlängert sich.

Das Temperaturfenster für die Reaktion liegt zwischen 800°C und kleiner 1500°C. Die Reaktionstemperatur ist nicht notwendigerweise an allen Orten in der Kammer identisch, sondern

kann unterschiedliche Werte in dem genannten Temperaturfenster annehmen. Im Zwischenraum herrscht eine Zwischentemperatur T_c von kleiner 400°C, vorzugsweise kleiner 150°C.

Um die Temperatur im Zwischenraum auf kleiner 400°C zu halten wird vorzugsweise mittels eines Kühlfluids Wärme über einen Wärmetauscher von dem Mantel abgeführt. Dafür wird das Kühlfluid kontinuierlich von der Kühlfluidquelle bezogen, der Wärmetauscher kontinuierlich mit dem Kühlfluid beaufschlagt wird, und dass kontinuierlich Kühlfluid aus dem Wärmetauscher abgezogen wird, wobei die Temperatur des Kühlfluid in dem Vorlauf geringer ist als in dem Rücklauf.

In einer besonderen Ausführungsform wird das Eduktgasgemisch als Kühlfluid genutzt. Als Kühlfluidsenke dient dann die Kammer des Apparats. Auf diese Weise wird das Eduktgasgemisch vorgewärmt und die Wärme zurückgewonnen.

Ausführungsbeispiele

Die Erfindung soll nun anhand von Ausführungsbeispielen erläutert werden. Hierfür zeigen:

Fig. 1 Erste Ausführungsform des Apparats (lineare Heizelemente), schematisch;
Fig. 2 Zweite Ausführungsform des Apparats (U-förmige Heizelemente), schematisch.

Figur 1 zeigt den erfindungsgemäßen Apparat 0 schematisch. Der Apparat 0 umfasst eine Kammer 1 mit einer nicht gasdichten Wandung 2. Die Wandung 2 umfasst ein wärmeisolierendes Material und eine darum gelegte Schale aus einem metallischen Werkstoff. Innerhalb der Kammer 1 wird eine chemische Reaktion durchgeführt. Die Kammer 1 stellt somit den Reaktionsraum dar.

Bei der chemischen Reaktion handelt es sich beispielhaft um die Umsetzung von Methan CH_4 mit Ammoniak NH_3 in Abwesenheit von Sauerstoff O_2, wodurch Blausäure HCN und Wasserstoff H_2 entstehen (E-BMA-Verfahren).

Der Eduktstrom, der überwiegend Methan CH_4 und Ammoniak NH_3 enthält, wird als ein Gasgemisch durch einen Zulauf 3 über eine Verteileinrichtung (z.B. ein Lochblech) in die Kammer 1 geführt. Die Produkte Blausäure HCN und Wasserstoff H_2 sowie unverbrauchte Edukte und Nebenprodukte werden ebenfalls gasförmig aus der Kammer 1 abgezogen, nämlich durch einen dafür vorgesehenen Ablauf 4.

Für die chemische Umsetzung wird thermische Energie benötigt. Diese wird erfindungsgemäß durch Umwandlung von elektrischer Energie innerhalb der Kammer 1 erzeugt. Die Wärme wird auf einem Temperaturniveau im Bereich zwischen 800°C und 1500°C benötigt (Reaktionstemperatur T_R).

Für diesen Zweck sind in der Kammer 1 eine Vielzahl von Heizelementen 5 vorgesehen, die sich durch die Kammer 1 hindurch erstrecken. Bei den Heizelementen 5 handelt es sich einfachstenfalls

um zylindrische Elemente aus Siliciumcarbid. Siliciumcarbid ist sehr temperaturstabil und wird aufgrund seiner physikalischen Eigenschaften häufig in der Praxis zur Umwandlung von elektrischer Energie in Wärme eingesetzt. Jedes Heizelement 5 weist mindestens zwei elektrische Anschlüsse +/- auf. Aufgrund der hohen Reaktionstemperatur (T_R = 800°C bis 1500°C), die innerhalb der Kammer 1 herrscht, ist es wichtig, dass die elektrischen Anschlüsse (+/-) der Heizelemente 5 sich außerhalb der Kammer 1 befinden. Aus diesem Grund erstrecken sich die Heizelemente 5 durch die Wandung 2 der Kammer 1 hindurch. Im Bereich der Durchführung ist jeweils eine Hülse zwischen Wandung und Heizelement angeordnet (nicht dargestellt). Da die Wandung 2 aus wärmeisolierendem Material besteht und der Apparat 0 eine später beschriebene aktive Kühlung aufweist, ist die Temperatur außerhalb der Kammer 1, im Bereich der elektrischen Anschlüsse +/- viel niedriger; sie liegt etwa bei kleiner 400°C. Diese Temperatur wird hier Zwischentemperatur T_c genannt.

In diesem niedrigeren Temperaturbereich sind die elektrischen Anschlüsse +/- mit einer ersten Verschaltung 61 und einer zweiten Verschaltung 62 jeweils an eine erste elektrische Leitung 71 bzw. an eine zweite elektrische Leitung 72 angeschlossen. Bei den Verschaltungen 61, 62 kann es sich um eine Reihenschaltung (nicht dargestellt) oder um eine Parallelschaltung (dargestellt) oder um eine Mischung aus beiden handeln. In dreiphasigen Netzen ist auch eine Sternschaltung möglich (nicht dargestellt). Die erste und die zweite elektrische Leitung 71, 72 führen zu einer elektrischen Spannungsquelle 8. In dreiphasigen Netzen wird eine dritte elektrische Leitung zur Spannungsquelle 8 benötigt (nicht dargestellt).

Die Spannungsquelle 8 stellt die für den Prozess notwenige Energie in elektrischer Form bereit. Vorzugweise wird die gesamte Energie, welche für die chemische Umsetzung von Methan und Ammoniak in Blausäure und Wasserstoff notwendig ist, in elektrischer Form bereitgestellt.

Im Betrieb werden die elektrischen Heizelemente über die elektrischen Leitungen 71, 72 und die Verschaltungen 61, 62 mit einer von der elektrischen Spannungsquelle 8 bezogenen elektrischen Spannung U beaufschlagt, sodass durch die elektrischen Heizelemente 5 ein elektrischer Strom I fließt. Die Heizelemente 5 wandeln die elektrische Energie in Wärmeenergie um, wodurch sich die Oberfläche der Heizelemente erhitzt. Dies ermöglicht die Reaktion.

Im Gegensatz zum klassischen thermisch beheizten BMA-Verfahren, wird die für die Reaktion benötigte Wärme nicht von außen in die Kammer 1 eingeleitet, sondern in-situ im Reaktionsraum mit den Heizelementen 5 erzeugt.

Um die Reaktionsgeschwindigkeit zu erhöhen, wird in der Kammer 1 ein Katalysator eingesetzt. Der Katalysator kann Platin enthalten und ist vorzugsweise auf der Oberfläche der Heizelemente 5 aufgetragen.

Die in dem Prozess erzeugte Blausäure HCN ist hochgiftig. Um einen Ausbruch der Blausäure zu vermeiden, ist die Kammer 1 von einem gasdichten Mantel 9 umgeben, der doppelwandig als ein Doppelmantel ausgeführt ist. Der Doppelmantel 9 dient gleichzeitig als ein Wärmetauscher 10, der mit einem Kühlfuid gefüllt wird.

Damit die gasförmigen Edukte CH_4, NH_3 durch den gasdichten Mantel 9 in die Kammer 1 und die Produkte HCN, H_2 und nicht umgesetzte Edukte sowie Nebenprodukte aus der Kammer 1 wieder heraus gelangen, sind der Zulauf 3 und der Ablauf 4 jeweils durch den Mantel 9 hindurchgeführt und demgegenüber gasdicht abgedichtet.

Zwischen Mantel 9 und Kammer 1 erstreckt sich ein Zwischenraum 12. Die Heizelemente 5 erstrecken sich durch die Wandung 2 der Kammer 1 in den Zwischenraum 12, wo sich ihre elektrischen Anschlüsse +/- befinden.

Die Durchführung der Heizelemente 5 durch die Wandung 2 ist nicht gasdicht, weil hier aufgrund der Wärmeausdehnung eine gewisse Beweglichkeit der Heizelemente 5 gegenüber der Wandung 2 erforderlich ist. Auch die Wandung 2 der Kammer 1 ist anders als der Mantel 9 nicht gasdicht, weswegen Reaktionsteilnehmer aus der Kammer 1 in den Zwischenraum 12 gelangen könnten. Um dies zu verhindern, lässt sich der Zwischenraum 12 mit einem Füllgas statisch beaufschlagen, welches gegebenenfalls kleine Mengen der Edukte enthalten kann und welches ein Druckgefälle zum Reaktionsraum aufweist. Das Füllgas wird von einer Füllgasquelle 11 bezogen und über eine nicht gezeichnete Füllgasleitung und ein nicht gezeichnetes Anschlusselement in den Zwischenraum 12 geleitet.

In ähnlicher Weise wird der Doppelmantel 9 von innen mit einem Kühlfluid beaufschlagt, welches von einer Kühlfluidquelle13 bezogen wird. Allerdings wird das Kühlfluid aus dem Mantel 9 wieder abgezogen; und zwar zu einer Kühlfluidsenke14. Das Kühlfluid fließt somit von der seiner Quelle 13 durch den Mantel 9 hindurch zu seiner Senke 14. Auf diese Weise wird über das Kühlfluid Wärme aus dem Doppelmantel 9 abgeführt. Der Doppelmantel 9 wirkt gleichzeitig als Wärmetauscher 10. Der Apparat 0 erhält so eine aktive Kühlung. Für diesen Zwecke wird als Kühlfluid eine Substanz mit guter spezifischer Wärmekapazität verwendet, etwa flüssiges Wasser oder flüssiges Öl. Bei der über das Kühlfluid zur Senke 14 abgeführte Wärme handelt es sich um Wärme, welche durch Wärmestrahlung von der metallischen Schale der Wandung 2 auf den Doppelmantel 9 übertragen worden ist. Diese ist dank der Isolierung der Wandung 2 vergleichsweise gering.

Als Alternative zu dem Doppelmantel 9 kann der Wärmetauscher 10 auch mit einer Kühlschlage verwirklicht werden, die um dem Mantel 9 herum geschlungen ist (nicht dargestellt). Der Mantel 9 kann dann einwandig ausgeführt sein, denn das Kühlfluid fließt durch die Kühlschlange.

Sofern der Gasdruck p_c des Füllgases in dem Zwischenraum 12 nur geringfügig größer ist als der Reaktionsdruck p_R in der Kammer 1, wird die die Wandung 2 der Kammer 1 kaum mechanisch belastet ist. Insbesondere braucht sie keinem massiven Innendruck standhalten. Folglich kann die Wandung 2 hinsichtlich Wärmeisolierung optimiert werden. Druckbelastet hingegen ist der Doppelmantel 9. Dieser muss nämlich im Gegensatz zu der Wandung 2 der Kammer 1 einem Innendruck standhalten, welcher der Differenz des Gasdrucks p_c und dem Umgebungsdruck p_0 entspricht. Da der Mantel 9 thermisch nicht so stark belastet ist – die Temperatur T_i des Kühlfluids innerhalb des Mantels 9 beträgt zumeist weniger als 100°C – ist hier die Drucksicherheit viel einfacher zu bewerkstelligen. Außerdem kann der Doppelmantel 9 aus Stahl bestehen, der zwar nicht wärmeisolierend ist, aber dafür mechanisch belastbarer als ein Isolationsmaterial, welches die Wandung 2 der Kammer 1 enthält. Die Wandung 2 erfüllt somit bei dem erfindungsgemäßen Apparat allein die Funktion der Wärmeisolierung, währenddessen die Funktion der Gasdichtigkeit und der Druckhaltung von dem Mantel 9 übernommen wird.

Ein weiterer wichtiger Aspekt des erfindungsgemäßen Apparats ist die Ausrichtung seiner Heizelemente 5 in Relation der Erdbeschleunigung g und der Hauptströmungsrichtung V der Reaktionsteilnehmer:

Die Hauptströmungsrichtung V erstreckt sich von dem Zulauf zu dem Ablauf durch die Kammer 1 hindurch. Entlang dieser Hauptströmungsrichtung V strömen die Edukte CH_4, NH_3 in die Kammer 1 ein und die Produkte HCN, H_2 sowie nicht ungesetzte Edukte und Nebenprodukte aus der Kammer 1 wieder aus.

Bei der in Figur 1 gezeigten Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Apparats sind die Heizelemente 5 quer zur Hauptströmungsrichtung V angeordnet, sodass die Längsachse H der Heizelemente 5 mit der Hauptströmungsrichtung V einen Winkel ϕ von 90° einschließen.

Dies hat den Vorteil, dass jedes Heizelement 5 lediglich geringe Temperaturunterschiede erfährt: Die Reaktionstemperatur T_R ist nämlich nicht überall in der Kammer 1 gleich, sondern ändert sich entlang der Hauptströmungsrichtung V. Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, dass sich die Temperatur aufgrund es fortschreitenden Umsatzes entlang der Hauptströmungsrichtung ändert. Zum anderen können die Heizelemente 5 auch über die Leistungszufuhr auf unterschiedliche Temperatur eingestellt sein, um der Reaktion entlang der Hauptströmungsrichtung ein optimales Temperaturprofil aufzuprägen. Die Leistungszufuhr und damit letztendlich auch die Temperatur lässt sich über die Größe des Stroms einstellen, der von der Spannungsquelle 8 bezogen wird.

Wenn die Heizelemente 5 quer zur Hauptströmungsrichtung V angeordnet sind, ist das Temperaturprofil an der Position eines einzelnen Heizelements nahezu konstant Folglich ist die Temperaturausdehnung des Heizelements über seine gesamte Länge konstant, was wiederum seine Stabilität verbessert.

Bei der in Figur 1 gezeigten Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Apparats ist die Hauptströmungsrichtung *V* vertikal angeordnet, und zwar entgegen der Erdbeschleunigung *g*. Die Kammer 1 wird also bevorzugt von unten nach oben durchströmt, andere Strömungsrichtungen sind ebenfalls möglich, wenn die Bauform dies erfordert.

Unter der Maßgabe, dass sich die Hauptströmungsrichtung V vertikal erstreckt und die Längsachse der Heizelemente 5 unter 90° quer dazu, verläuft die Längsachse *H* der Heizelemente 5 optimalerweise horizontal.

In der in Figur 1 dargestellten Ausführungsform weist der Apparat 0 zylindrische Heizelemente 5 auf, bei denen die Längsachse *H* horizontal angeordnet ist.

Für den Fall, dass Heizelemente in einer anderen Bauform gewählt werden, ist die Ausrichtung innerhalb der Kammer entsprechend zu wählen.

So zeigt Figur 2 eine zweite Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Apparats 0, bei der die Heizwiederstände 5 U-förmig sind. Um U-förmige Heizelemente entlang einer Isotherme auszurichten, sollten die Schenkel des U quer zur Hauptströmungsrichtung *V* ausgerichtet sein und an der gleichen Stelle entlang der Hauptströmungsrichtung *V* in der Kammer 1 positioniert sein. Bei einer vertikalen Hauptströmungsrichtung *V* können die Schenkel des U auf demselben Höhenniveau (nicht dargestellt). Insoweit erstrecken sich U-förmige Heizelemente ebenso wie zylindrische Heizelemente entlang einer Hauptwiderstandsachse *H*, die quer zur Hauptströmungsrichtung *V* angeordnet ist. Die Schenkel des U verlaufen parallel beidseitig der Hauptwiderstandsachse *H*, welche der Symmetrieachse des U entspricht. Bei zylindrischen Heizelementen (Figur 1) entspricht die Längsachse der Hauptwiderstandsachse *H*.

Wesentliche Aspekte der Erfindung sollen noch einmal zusammen gefasst werden:

Der Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde, einen elektrisch beheizbaren Reaktor für die Blausäureherstellung und die Herstellung anderer Nitrile anzugeben, der ein differenziertes Temperaturprofil ermöglicht und mit kostengünstigen Standard-Bauteilen auskommt. Kern des erfindungsgemäßen Apparats 0 ist die Kammer 1 aus gasdurchlässigem, wärmeisolierendem Material, welche den eigentlichen Reaktionsraum darstellt. In die Kammer 1 ragen die elektrische Heizelemente 5, sodass sich die Kammer 1 von innen mit den Heizelementen 5 beheizen lässt. Die elektrischen Anschlüsse der Heizelemente befinden sich außerhalb des Reaktionsraumes, aber innerhalb des umschließenden Mantels. Anders als beim industriell praktizierten BMA-Verfahren wird die Wärme also nicht von außen in den Reaktionsraum transportiert, sondern im Reaktionsraum erzeugt. Die Wärme-Erzeugung erfolgt durch Umwandlung elektrischer Energie vermittels der

Heizelemente 5 nach dem Prinzip einer Widerstandsheizung. Um die Gasdichtigkeit des Apparats 0 sicherzustellen ist der Mantel 9 vorgesehen, welcher die Kammer 1 gasdicht umschließt.

Versuche

Die vorteilhafte Wirkung des erfindungsgemäßen Apparats verdeutlichen folgende Versuche.

Bei den Versuchen handelt es sich um Simulationen mit Hilfe von Computational Fluid Dynamics (CFD). Es wurde die Software Ansys Fluent (Version Fluent 2021R2) verwendet.

Der Reaktionsraum ist rechteckig und enthält ca. 900 Heizelemente.

Bei allen drei Versuchen besteht das Synthesegas aus Ammoniak und Methan im molaren Verhältnis von 1,1 : 1 bei einem absoluten Druck vom 2.8 bar ($2.8*10^5$ Pa). Das Gas ist auf 200°C vorgeheizt, die Eduktmenge beträgt 1440 kg/h. Die Simulationen werden unter adiabaten Bedingungen mit einer Heizleistung von 4.1 MW durchgeführt.

Die Ergebnisse der Simulationen sind graphisch in den Figuren 3 bis 6 dargestellt:

Fig 3: Temperatur entlang eines Heizelements im Zentrum des Reaktors bei horizontal und vertikaler Ausrichtung der Heizelemente;

Fig 4: Temperaturverlauf durch den Reaktor;

Fig. 5: Verlauf der Ausbeute;

Fig. 6: Verlauf Leistungsprofil in Versuch 3.

<u>Versuch 1 (vertikale Ausrichtung der Heizelemente – konstante Leistung)</u>

Die Heizelemente sind vertikal, d.h. parallel zur Erdbeschleunigung angeordnet und der Reaktor wird in horizontaler Richtung durchströmt. Die Leistung der Heizelemente ist im hier beschrieben Beispiel auf 38 kW/m^2 gesetzt.

Aufgrund des thermischen Auftriebs können entlang des Heizelementes Temperaturgradienten von 500 bis 700 K vorliegen (vgl. gestrichelte Linie in Figur 3), welche die Lebensdauer des Heizelements negativ beeinflussen könnten.

Der Temperaturverlauf durch den Reaktor ist in der gestrichelten Linie der Figur 4 aufgezeigt. Die Ausbeute an HCN basierend auf NH_3 ist in der gestrichelten Linie der Figur 5 dargestellt. Die Ausbeute beträgt 72 %.

Versuch 2 (horizontale Ausrichtung der Heizelemente – konstante Leistung)

Die Betriebsparameter von Versuch 1 wurden beibehalten, d.h. die Leistung der Heizelemente ist im hier ebenfalls auf konstant 38 kW/m^2 gesetzt. Die Heizelemente werden jedoch horizontal angeordnet und der Reaktor von unten nach oben durchströmt.

Aufgrund der horizontalen Anordnung der Heizelemente stellt über jedem Heizelement eine relativ homogene Temperatur ein, die die Lebensdauer des Heizelements positiv beeinflussen kann (vgl. durchgezogene Linie in Figur 3).

Der Temperaturverlauf ist in der gepunkteten Linie der Figur 4 aufgezeigt. Die Ausbeute an HCN basierend auf NH_3 ist in der gepunkteten Linie der Figur 5 dargestellt. Die maximale Gas-Temperatur liegt oberhalb von 1400°C was die Lebensdauer des Heizelements negativ beeinflussen kann. Die Ausbeute an HCN basierend auf NH_3 beträgt 80 %.

Versuch 3 (horizontale Ausrichtung der Heizelemente mit variablen Leistungsprofil)

Die Heizelemente werden horizontal angeordnet und der Reaktor von unten nach oben durchströmt. Die Leistung der Heizelemente wird über ein Profil geregelt, wobei die Leistung zwischen 4 und 60 kW/m^2 variiert. Der Verlauf des Leistungsprofil ist in Figur 6 dargestellt.

Aufgrund der horizontalen Anordnung der Heizelemente stellt sich über jedem Heizelement eine nahezu homogene Temperatur ein, welche die Lebensdauer des Heizelements positiv beeinflussen kann. Der Temperaturverlauf über die Stablänge ist in der durchgezogenen Linie der Figur 3 dargestellt.

Der Temperaturverlauf durch den gesamten Reaktor ist in Figur 4 dargestellt (durchgezogene Linie) Die maximale Gas-Temperatur liegt im Bereich von 1300°C. Aufgrund des zum Ende sinkenden Leistungsprofil (Figur 6) nimmt auch die Temperatur zum Ende in Versuch 3 wieder ab (durchgezogene Linie der Figur 4).

Die Ausbeute an HCN basierend auf NH_3 ist in der durchgezogenen Linie der Figur 5 dargestellt. Die Ausbeute an HCN basierend auf NH_3 beträgt 83 % und damit höher als im Versuch 1 und 2.

Fazit

Die höchste Ausbeute ist zu erzielen, wenn die Heizelemente horizontal angeordnet werden und ein variables Leistungsprofil vorgesehen ist. Zudem leiden horizontale Heizelemente weniger Temperaturstress.

Bezugszeichenliste

0	Apparat
1	Kammer
2	Wandung
3	Zulauf
4	Ablauf
5	Heizelement
61	erste Verschaltung
62	zweite Verschaltung
71	erster elektrische Leitung
72	zweite elektrische Leitung
8	elektrische Spannungsquelle
9	Mantel (als Doppelmantel ausgeführt)
10	Wärmetauscher
11	Füllgasquelle
12	Zwischenraum
13	Kühlfluidquelle
14	Kühlfluidsenke
+	erster elektrischer Anschluss
-	zweiter elektrischer Anschluss
Pt	Platin-Katalysator
T_R	Reaktionstemperatur
T_c	Zwischentemperatur
T_i	Temperatur des Kühlfluids
p_R	Reaktionsdruck
p_c	Gegendruck
p_0	Umgebungsdruck
CH_4	Methan
NH_3	Ammoniak
HCN	Blausäure
H_2	Wasserstoff
O_2	Sauerstoff
g	Erdbeschleunigung
V	Hauptströmungsrichtung
H	Hauptwiderstandsachse
ϕ	Winkel

Patentansprüche

1. Apparat (0) zur Herstellung von mindestens einem Produktgas aus mindestens einem Eduktgas, insbesondere für die Herstellung von Nitrilen, umfassend die folgenden Merkmale:
   a) eine Kammer (1) mit einer gasdurchlässigen und wärmeisolierenden Wandung (2), mit einem Zulauf (3) für Eduktgas, mit einem Ablauf (4) für Produktgas und mit einer Hauptströmungsrichtung (V), die sich vom Zulauf (3) zum Ablauf (4) erstreckt;
   b) ein gasdichter Mantel (9), welcher die Kammer (1) umschließt, wobei der Zulauf (3) und der Ablauf (4) durch den Mantel (9) hindurchgeführt sind;
   c) ein zwischen Kammer (1) und Mantel (9) angeordneter Zwischenraum (12), welcher die Kammer (1) umschließt und seinerseits von dem Mantel (9) umschlossen ist;
   d) mindestens ein elektrisches Heizelement (5), welches sich durch die Kammer (1) erstreckt und deren Wandung (2) zumindest einmal durchstößt, und welches mindestens zwei elektrische Anschlüsse (+,-) aufweist, welche innerhalb des Zwischenraums (12) und außerhalb der Kammer (1) angeordnet sind;
   e) eine außerhalb des Mantels (9) angeordnete elektrische Spannungsquelle (8), welche zumindest über eine erste elektrische Leitung (71) mit dem ersten elektrischen Anschluss (+) des Heizelements (5) und über eine zweite elektrische Leitung (72) mit dem zweiten elektrischen Anschluss (-) des Heizelements (5) verbunden ist, wobei die erste und zweite elektrische Leitung (71, 72) durch den Mantel (9) hindurchgeführt sind;
   f) mindestens ein Anschlusselement für eine außerhalb des Mantels (9) angeordnete Füllgasquelle (11), die über eine Füllgasleitung mit dem Zwischenraum (12) dergestalt fluidleitend verbindbar ist, dass der Zwischenraum (12) mit einem von der Füllgasquelle (11) bezogenen Füllgas beaufschlagbar ist;
   g) ein in der Kammer (1) angeordneter Katalysator.

2. Apparat (0) nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch mindestens einen außerhalb des gasdichten Mantels (9) angeordneten Wärmetauscher (10), der dem Mantel (9) wärmeleitend verbunden ist.

3. Apparat (0) nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Wärmetauscher (10) ein Kühlfluid umfasst, und dass der Wärmetauscher (10) über einen Vorlauf mit einer Kühlfluidquelle (13) und über einen Rücklauf mit einer Kühlfluidsenke (14) fluidleitend verbunden ist.

4. Apparat (0) nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der gasdichte Mantel (9) doppelwandig als ein Doppelmantel (9) ausgeführt ist, und dass das Kühlfluid zumindest teilweise innerhalb des Doppelmantels (9) leitbar ist.

5. Apparat (0) nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der Wärmetauscher (10) eine Kühlschlange umfasst, welche den Vorlauf mit dem Rücklauf kühlfluidleitend verbindet und um den Mantel (9) herumgeschlungen ist.

6. Apparat (0) nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Kühlschlange als ein Rohr ausgeführt ist, welches über Wärmebrücken mit der Außenseite des gasdichten Mantels (9) verbunden ist.

7. Apparat (0) nach Anspruch 5, wobei die Kühlschlange dadurch erhalten ist, dass ein offenes Profil auf der Außenseite des gasdichten Mantels (9) aufgeschweißt ist, und wobei das Kühlfluid zumindest teilweise zwischen Profil und Außenseite des gasdichten Mantels (9) leitbar ist.

8. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 3 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass das Kühlfluid ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus den folgenden Kühlfluiden: Luft, gasförmiger Stickstoff, gasförmiges Argon, gasförmiges Wasser, flüssiges Wasser, flüssiger Stickstoff, flüssiges Öl, gasförmiger Ammoniak, gasförmige Kohlenwasserstoffe oder Mischungen daraus.

9. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das elektrische Heizelement (5) genau zwei elektrische Anschlüsse (+, -) aufweist und sich linear durch die Kammer (1) erstreckt.

10. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das elektrische Heizelement (5) genau zwei elektrische Anschlüsse (+, -) aufweist und sich U-förmig oder M-förmig durch die Kammer (1) erstreckt oder dass das elektrische Heizelement (5) genau drei elektrische Anschlüsse aufweist und sich W-förmig durch die Kammer erstreckt oder Kombinationen davon.

11. Apparat (0) nach Anspruch 9 oder 10, wobei sich das elektrische Heizelement (5) entlang einer Hauptwiderstandsachse (H) durch die Kammer (1) erstreckt, wobei die Hauptwiderstandsachse (H) und die Hauptströmungsrichtung (V) einen Winkel (φ) einschließen, der mindestens 0° und höchstens 90° beträgt.

12. Apparat (0) nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Winkel (φ) 90° beträgt.

13. Apparat (0) nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, die Hauptströmungsrichtung (V) vertikal verläuft.

14. Apparat (0) nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass die Hauptströmungsrichtung (V) entgegen der Erdbeschleunigung (*g*) verläuft.

15. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 14, gekennzeichnet durch eine Vielzahl elektrischer Heizelemente (5), die in Reihen- und/oder Parallelschaltung miteinander elektrisch verschaltet sind.

16. Apparat (0) nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator in Gestalt einer katalytisch aktiven Beschichtung auf die Oberfläche zumindest eines elektrischen Heizelementes (5) aufgebracht ist.

17. Apparat (0) nach Anspruch 16, gekennzeichnet durch mindestens ein Heizelement (5), das frei von einer katalytisch aktiven Beschichtung ist.

18. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass die wärmeisolierende Wandung (2) der Kammer (1) mehrschichtig ausgeführt ist.

19. Apparat (0) nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, dass die wärmeisolierende Wandung (2) mindestens zwei Schichten umfasst, die sich hinsichtlich ihrer spezifischen Wärmeleitfähigkeit unterscheiden.

20. Apparat (0) nach Anspruch 18 oder 19, gekennzeichnet durch eine zusätzliche innere Schicht auf der Wandung der Kammer mit einer geschlossenen Oberfläche.

21. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 18 bis 20, dadurch gekennzeichnet, dass die innere Schicht auf der Wandung (2) der Kammer (1) mit einer katalytisch aktiven oder aktivierbaren Beschichtung versehen ist, welche den Katalysator enthält.

22. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 21, dadurch gekennzeichnet, dass die Kammer (1) in Hauptströmungsrichtung (V) einen unrunden Querschnitt aufweist.

23. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 22, dadurch gekennzeichnet, dass die Heizelemente (5) in Hauptströmungsrichtung (V) gesehen hintereinander angeordnet oder zueinander versetzt angeordnet sind.

24. Apparat (0) nach Anspruch 22 oder 23, gekennzeichnet durch mindestens ein Heizelement (5), welches in unmittelbarer Nachbarschaft zur Wandung (2) parallel zur Wandung (2) verläuft und welches an zumindest eine der beiden elektrische Leitungen (71, 72) nicht angeschlossen ist.

25. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 24, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator Platin (Pt) enthält.

26. Apparat (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 25, dadurch gekennzeichnet, dass das Heizelement (5) einen Kern aus Siliciumcarbid oder aus Molybdänsilicid umfasst, wobei auf dem Kern eine Schutzbeschichtung aufgebracht ist und auf der Schutzbeschichtung eine katalytisch aktive Beschichtung aufgebracht ist.

27. Verfahren zur Herstellung von Nitrilen, insbesondere von Blausäure (HCN) mit den folgenden Schritten:

a) Bereitstellen eines Apparats (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 26;
b) Beaufschlagen des Zulaufs (3) mit einem Eduktgasgemisch; enthaltend zumindest Ammoniak (NH_3) und gasförmiger Kohlenwasserstoff, bevorzugt Methan (CH_4);
c) Beaufschlagen des Heizelements (5) mit von der elektrischen Spannungsquelle (8) bezogenen elektrischem Strom;
d) Abziehen eines Produktgasgemisches enthaltend zumindest ein gebildetes Nitril, bevorzugt Blausäure (HCN), aus dem Ablauf (4) und
e) Beaufschlagen des Zwischenraums (12) mit einem Füllgas, sodass in dem Zwischenraum ein Gasdruck (p_c) herrscht, der gleich oder größer ist als der in der Kammer (1) herrschende Reaktionsdruck (p_R).

28. Verfahren nach Anspruch 27, dadurch gekennzeichnet, dass das Eduktgasgemisch Methan (CH_3) enthält, sodass Blausäure (HCN) hergestellt wird.

29. Verfahren nach Anspruch 27 oder 28, wobei das Eduktgasgemisch zusätzlich Sauerstoff (O_2) enthält, sodass dem Eduktgasgemisch eine Sauerstoffgrenzkonzentration (SGK) zuzuordnen ist, oberhalb derer das Eduktgasgemisch zündfähig ist, dadurch gekennzeichnet, dass die Konzentration des Sauerstoffs (KO_2) innerhalb des Eduktgasgemisches unterhalb der Sauerstoffgrenzkonzentration (SGK) liegt.

30. Verfahren nach Anspruch 27, 28 oder 29, durchgeführt bei einem in der Kammer (1) herrschenden Reaktionsdruck (p_R) von mindestens $1*10^5$ Pa absolut und höchstens $5*10^5$ Pa absolut.

31. Verfahren nach einem der Ansprüche 27 bis 30, kontinuierlich durchgeführt, dergestalt, dass eine Strömung entlang einer Hauptströmungsrichtung (V) durch die Kammer (1) entsteht, die sich von dem Zulauf (3) zu dem Ablauf (4) erstreckt, wobei sich das Heizelement (5) entlang einer Hauptwiderstandsachse (H) durch die Kammer (1) erstreckt, dadurch gekennzeichnet, dass sich die Hauptströmungsrichtung (V) senkrecht zu der Hauptwiderstandsachse (H) des Heizelementes (5) erstreckt.

32. Verfahren nach einem der Ansprüche 27 bis 31, durchgeführt bei mindestens einer in der Kammer (1) herrschenden Reaktionstemperatur (T_R) größer 800°C und kleiner 1500°C, wobei in dem Zwischenraum (12) eine Zwischentemperatur (T_c) von kleiner 400°C herrscht.

33. Verfahren nach einem der Ansprüche 30 bis 33, dadurch gekennzeichnet, dass das Füllgas aus der Gruppe bestehend aus den folgenden Füllgasen ausgewählt ist: gasförmiger Stickstoff, gasförmiger Wasserstoff, gasförmiger Kohlenwasserstoff, gasförmiger Ammoniak oder Mischungen daraus,

34. Verfahren nach einem der Ansprüche 27 bis 33, wobei ein Apparat (0) nach einem der Ansprüche 3 bis 26 bereitgestellt wird, dadurch gekennzeichnet, dass das Kühlfluid kontinuierlich von der Kühlfluidquelle (13) bezogen, der Wärmetauscher (10) kontinuierlich mit dem Kühlfluid beaufschlagt wird, und dass kontinuierlich Kühlfluid aus dem Wärmetauscher (10) abgezogen wird, wobei die Temperatur des Kühlfluids in dem Vorlauf geringer ist als in dem Rücklauf.

35. Verfahren nach Anspruch 34, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem Kühlfluid um Eduktgasgemisch handelt, und dass es sich bei der Kühlfluidsenke um die Kammer (1) handelt, sodass das Eduktgasgemisch in dem Wärmetauscher (10) vorgeheizt wird.

36. Verwendung eines Apparats (0) nach einem der Ansprüche 1 bis 26 zur Bereitstellung negativer Regelleistung zwecks Stabilisierung von Stromnetzen.

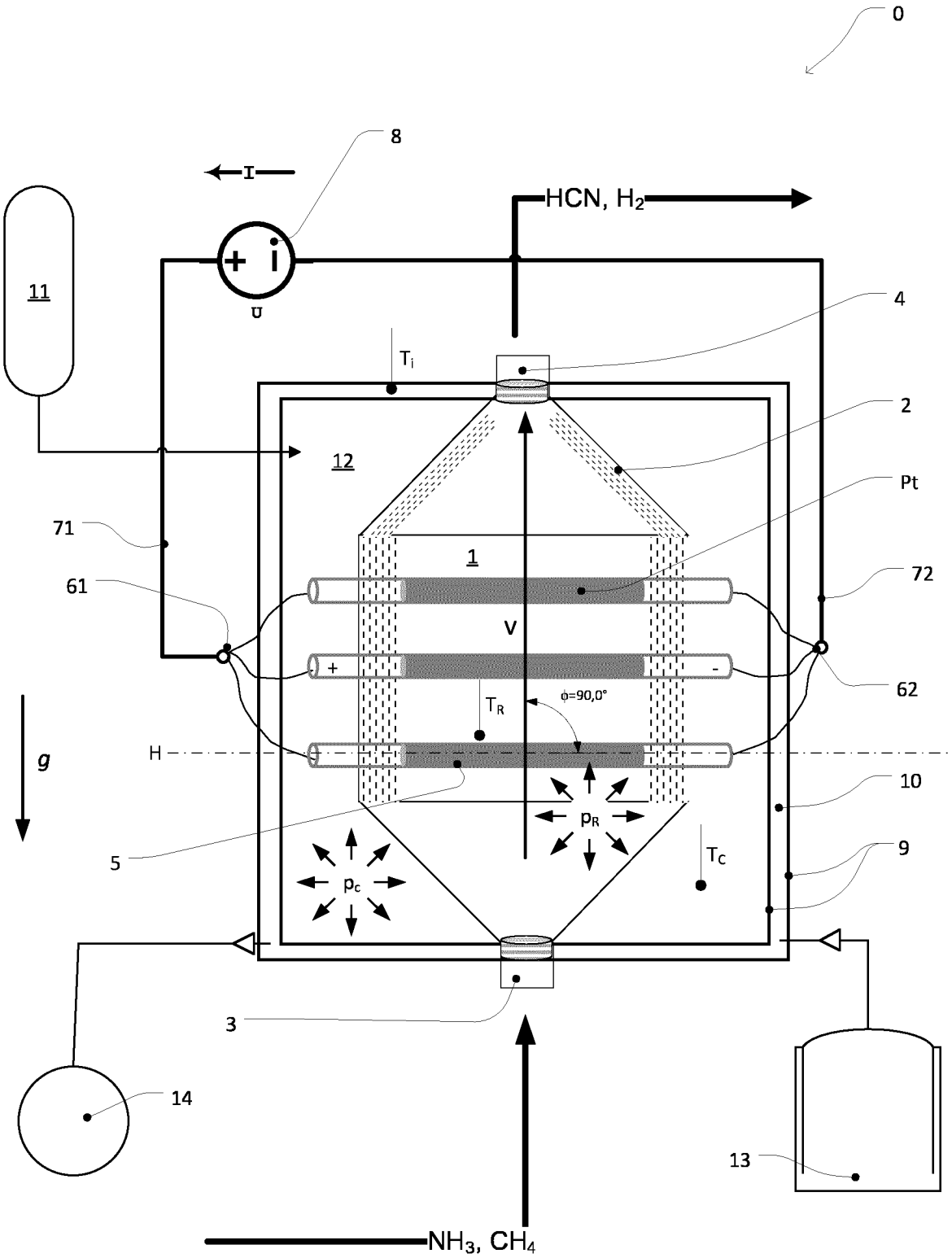
0
8
I
HCN, H2
11
U
4
Ti
2
12
Pt
71
1
72
61
V
+
-
62
TR
ϕ=90,0°
g
H
10
pR
5
TC
9
pC
3
14
13
NH3, CH4

Fig. 1

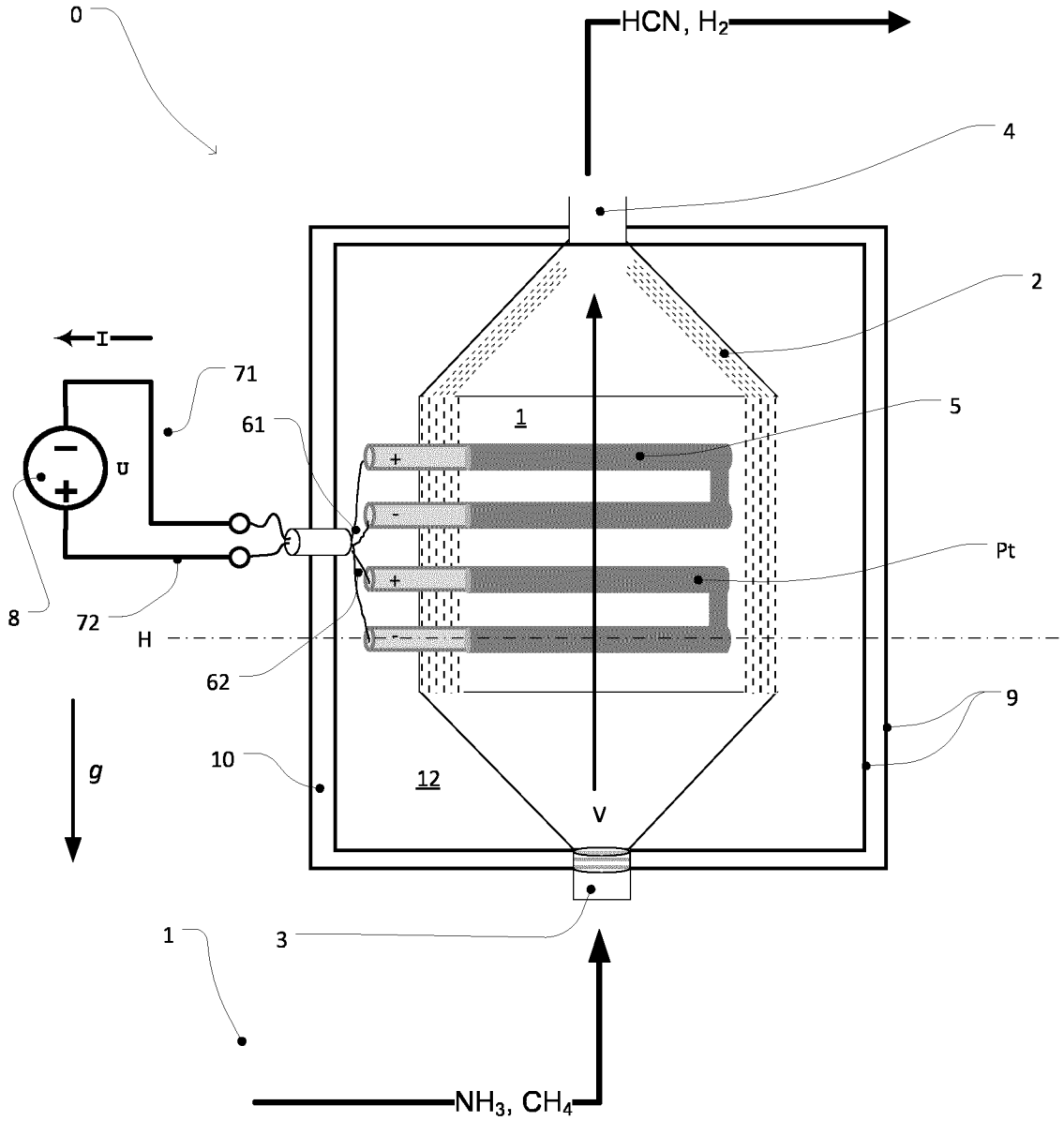

Fig. 2

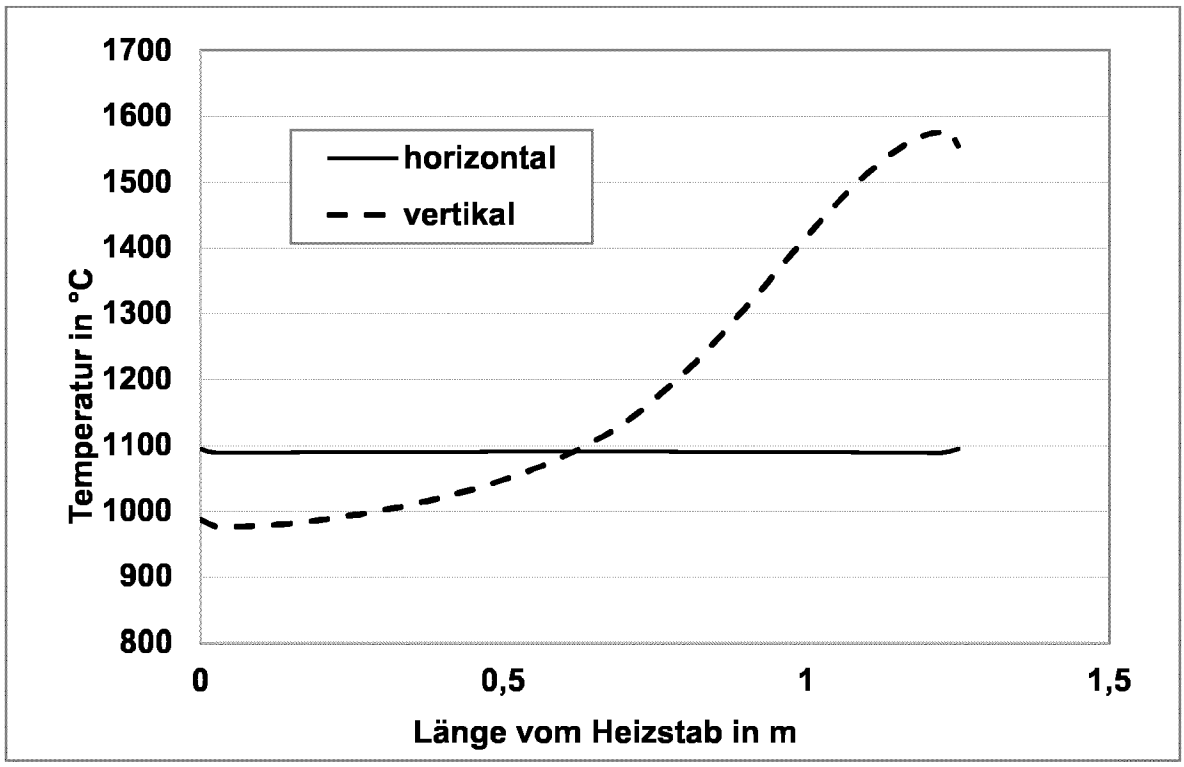
1700
1600
1500
1400
1300
1200
1100
1000
900
800
Temperatur in °C
horizontal
vertikal
0
0,5
1
1,5
Länge vom Heizstab in m

Fig. 3

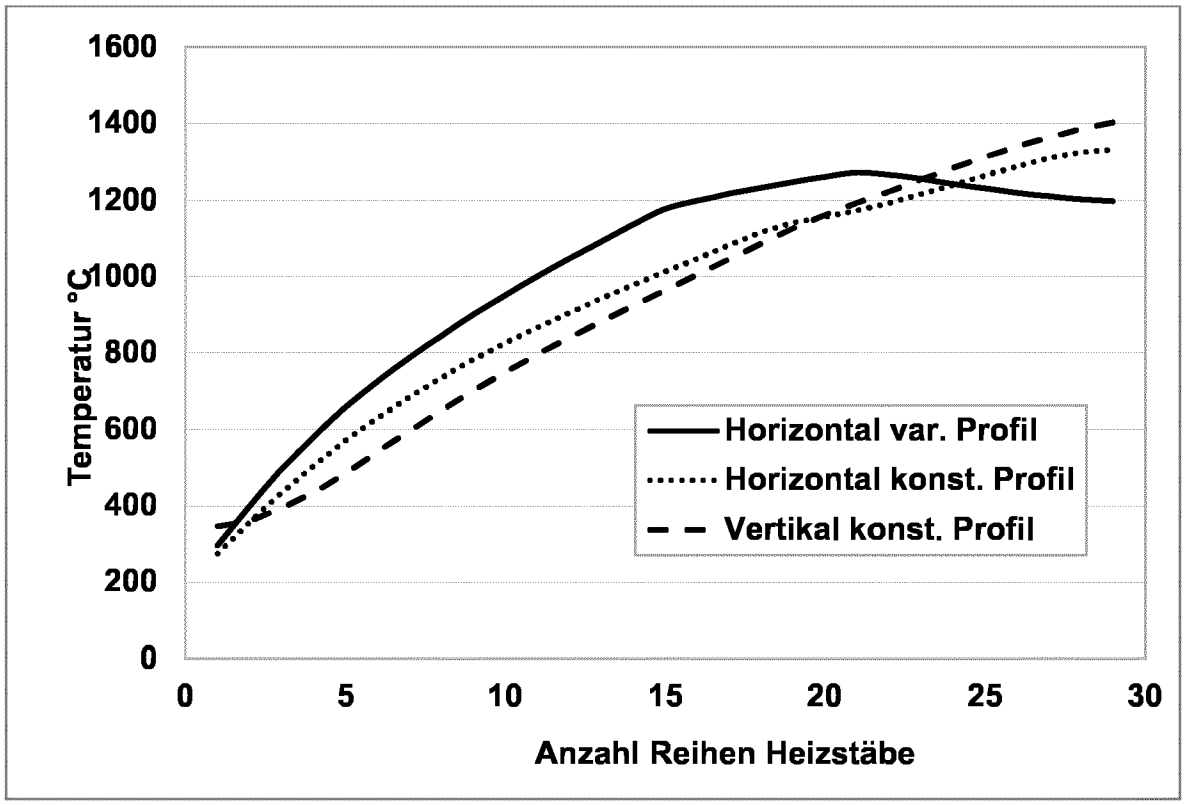
1600
1400
1200
1000
800
600
400
200
0
Temperatur °C
0
5
10
15
20
25
30
Anzahl Reihen Heizstäbe
Horizontal var. Profil
Horizontal konst. Profil
Vertikal konst. Profil

Fig. 4

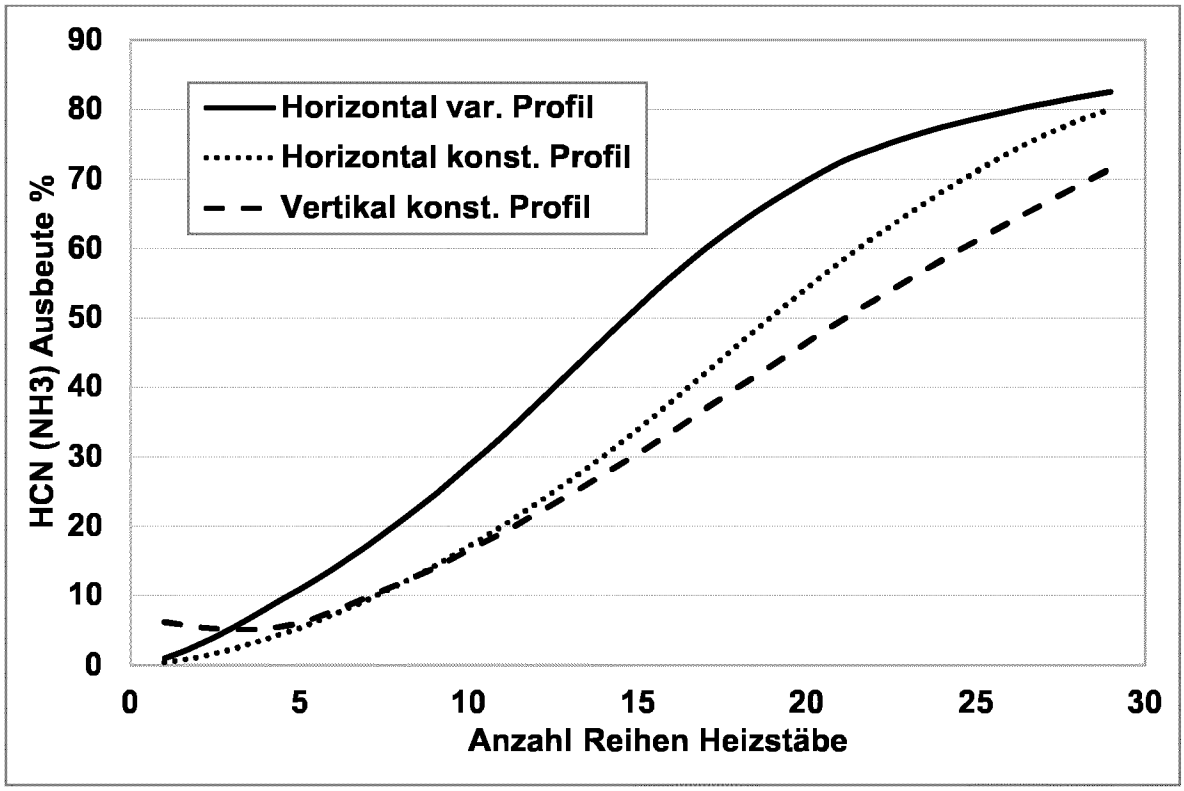
Horizontal var. Profil
Horizontal konst. Profil
Vertikal konst. Profil
HCN (NH3) Ausbeute %
Anzahl Reihen Heizstäbe
0
10
20
30
40
50
60
70
80
90
0
5
10
15
20
25
30

Fig. 5

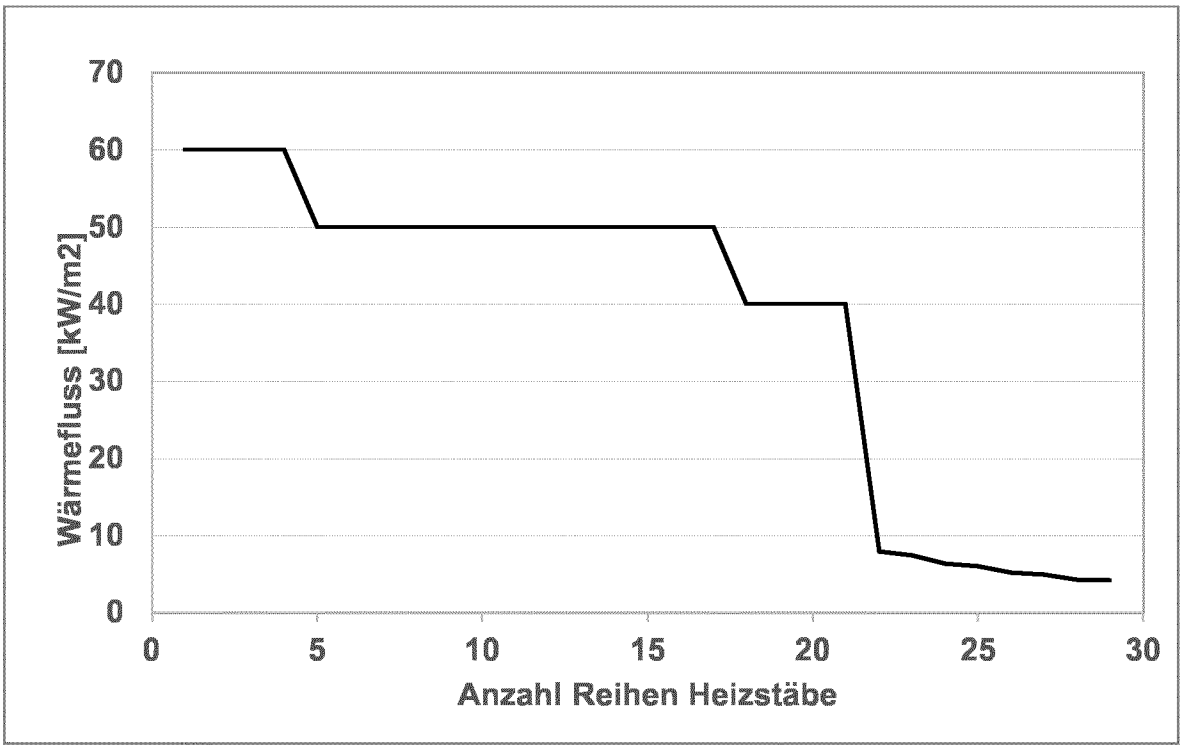
70
60
50
40
30
20
10
0
Wärmefluss [kW/m2]
0
5
10
15
20
25
30
Anzahl Reihen Heizstäbe

Fig. 6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2024/057216

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01C 3/02(2006.01)i; ***C07C 253/24***(2006.01)i; ***F01D 15/10***(2006.01)i; ***B01J 8/02***(2006.01)i; ***B01J 19/24***(2006.01)i; ***B01J 23/42***(2006.01)i; ***B01J 12/00***(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01C; C07C; F01D; B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2022259056 A1 (MORTENSEN PETER MØLGAARD [DK] ET AL) 18 August 2022 (2022-08-18) paragraphs [0166] - [0171]; claims 1,5; figure 1	1-35
A	US 2003175196 A1 (BLACKWELL BENNY E [US] ET AL) 18 September 2003 (2003-09-18) paragraphs [0025], [0026], [0027], [0030], [0031], [0033] - [0035]; figures 1-3	1-35
A	US 2020330944 A1 (MORTENSEN PETER MØLGAARD [DK] ET AL) 22 October 2020 (2020-10-22) paragraphs [0027], [0040] - [0047]; figures 2,3	1-35
A	DE 102013206992 A1 (SIEMENS AG [DE]) 23 October 2014 (2014-10-23) Claim 1	36

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
29 May 2024	**24 June 2024**

Name and mailing address of the ISA/EP
European Patent Office
p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk
Netherlands (Kingdom of the)
Telephone No. **(+31-70)340-2040**
Facsimile No. **(+31-70)340-3016**

Authorized officer
Werner, Håkan
Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/EP2024/057216

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
US 2022259056 A1	18 August 2022	AU 2020360751 A1	03 March 2022
		CA 3148730 A1	08 April 2021
		CN 114430699 A	03 May 2022
		EP 4038018 A1	10 August 2022
		JP 2022552134 A	15 December 2022
		KR 20220077130 A	08 June 2022
		US 2022259056 A1	18 August 2022
		WO 2021063799 A1	08 April 2021
US 2003175196 A1	18 September 2003	AT E429974 T1	15 May 2009
		AU 2003222264 A1	29 September 2003
		CN 1652868 A	10 August 2005
		EP 1480740 A1	01 December 2004
		ES 2324776 T3	14 August 2009
		JP 4425638 B2	03 March 2010
		JP 2005519832 A	07 July 2005
		MY 135822 A	31 July 2008
		RU 2339576 C2	27 November 2008
		TW I275415 B	11 March 2007
		US 2003175196 A1	18 September 2003
		WO 03078054 A1	25 September 2003
US 2020330944 A1	22 October 2020	CN 109070035 A	21 December 2018
		SA 518400317 B1	22 May 2022
		US 2020330944 A1	22 October 2020
		WO 2017186437 A1	02 November 2017
DE 102013206992 A1	23 October 2014	CN 105121812 A	02 December 2015
		DE 102013206992 A1	23 October 2014
		DK 2971652 T3	09 April 2018
		EP 2971652 A1	20 January 2016
		US 2016064933 A1	03 March 2016
		WO 2014170058 A1	23 October 2014

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2024/057216

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

INV. C01C3/02 C07C253/24 F01D15/10 B01J8/02 B01J19/24
B01J23/42 B01J12/00
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C01C C07C F01D B01J

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 2022/259056 A1 (MORTENSEN PETER MØLGAARD [DK] ET AL) 18. August 2022 (2022-08-18) Absätze [0166] - [0171]; Ansprüche 1,5; Abbildung 1	1-35
A	US 2003/175196 A1 (BLACKWELL BENNY E [US] ET AL) 18. September 2003 (2003-09-18) Absätze [0025], [0026], [0027], [0030], [0031], [0033] - [0035]; Abbildungen 1-3	1-35
A	US 2020/330944 A1 (MORTENSEN PETER MØLGAARD [DK] ET AL) 22. Oktober 2020 (2020-10-22) Absätze [0027], [0040] - [0047]; Abbildungen 2,3	1-35

-/--

[x] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen [x] Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung;; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung;; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
29. Mai 2024	24/06/2024

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Werner, Håkan

1

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2024/057216

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 10 2013 206992 A1 (SIEMENS AG [DE]) 23. Oktober 2014 (2014-10-23) Anspruch 1 -----	36

1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2024/057216

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2022259056 A1	18-08-2022	AU 2020360751 A1	03-03-2022
		CA 3148730 A1	08-04-2021
		CN 114430699 A	03-05-2022
		EP 4038018 A1	10-08-2022
		JP 2022552134 A	15-12-2022
		KR 20220077130 A	08-06-2022
		US 2022259056 A1	18-08-2022
		WO 2021063799 A1	08-04-2021
US 2003175196 A1	18-09-2003	AT E429974 T1	15-05-2009
		AU 2003222264 A1	29-09-2003
		CN 1652868 A	10-08-2005
		EP 1480740 A1	01-12-2004
		ES 2324776 T3	14-08-2009
		JP 4425638 B2	03-03-2010
		JP 2005519832 A	07-07-2005
		MY 135822 A	31-07-2008
		RU 2339576 C2	27-11-2008
		TW I275415 B	11-03-2007
		US 2003175196 A1	18-09-2003
		WO 03078054 A1	25-09-2003
US 2020330944 A1	22-10-2020	CN 109070035 A	21-12-2018
		SA 518400317 B1	22-05-2022
		US 2020330944 A1	22-10-2020
		WO 2017186437 A1	02-11-2017
DE 102013206992 A1	23-10-2014	CN 105121812 A	02-12-2015
		DE 102013206992 A1	23-10-2014
		DK 2971652 T3	09-04-2018
		EP 2971652 A1	20-01-2016
		US 2016064933 A1	03-03-2016
		WO 2014170058 A1	23-10-2014