

VERWENDUNG VON FURFUROL. XVI*

Untersuchungen von Reaktoren für exotherme katalytische Prozesse. IV

Ein wärmegradientenfreier heterogen-katalytischer Dampfphasen-Reaktor

Von

L. MÉSZÁROS und GY. KERÉKES

Institut für Angewandte Chemie der Attila-József-Universität, Szeged, Ungarn

(Eingegangen am 24. Juni 1971)

In früheren Arbeiten berichteten wir über Versuche und Berechnungen zur Ausmaßvergrößerung von heterogen-katalytischen Gasphasen-Reaktoren. Auf die früheren Untersuchungen gestützt wurde ein wärmegradientenfreier Reaktor entwickelt. Als Zentrifugalventilator dient eine rotierende Drahtbürste, die im Katalysatorraum die Reaktionsdämpfe mit einer so großen Geschwindigkeit zirkulieren läßt, daß weder längs der Achse, noch in der Längsrichtung ein Wärmegradient entstehen kann. Das gleiche Prinzip ist auch als kontinuierlicher Emulgator für Flüssigkeit/Flüssigkeit-Phasen oder als chemischer Reaktor verwendbar. Infolge der hohen Leistungsfähigkeit entspricht es den Forderungen der „Ausmaßvergrößerung“.

Es wurde ein wärmegradientenfreier chemischer Reaktor entwickelt. Zur besseren Verständnis ist es zweckmäßig, drei Reaktoren kurz zu beschreiben, die der Entwicklung als Grundlage dienen.

1. Die Ausmaßvergrößerung linearer Reaktoren zu zwei- und dreidimensionalen Reaktoren konnte auf Grund linearer Berechnungen durchgeführt werden, die es gestatteten, die Ähnlichkeitsbedingungen soweit zu bewahren, daß die bestimmenden Faktoren der chemischen Reaktion nicht wesentlich verändert wurden [1].

2. Bei der Längenvergrößerung zylindrischer heterogen-katalytischer Dampfphasenreaktoren [2] muß — wenn die Reaktorlänge l und der Radius r um das a -fache vergrößert und die spezifische Einspeisegeschwindigkeit beibehalten werden soll — in das vergrößerte Volumen während der gleichen Zeit t eine n -fache Menge der Reaktionskomponenten mit einer linearen Geschwindigkeit nc eingeführt werden. Zu Beginn des theoretischen Versuchs war bei dem Wert c die Strömung laminar. Der Wert von n ist dabei so zu wählen, daß die ursprünglich laminare Strömung turbulent wird. In diesem Falle wird der Wärmegradient infolge der Turbulenz minimal. Dies ist dadurch zu erreichen, daß die Geschwindigkeit im Verhältnis zu den Apparaten mit granuliertem Festkörper-Katalysator groß gewählt wird.

3. Amerikanische Verfasser [3—5] haben sich mit heterogen-katalytischen organischen Reaktionen in der Dampfphase beschäftigt und dabei einen speziellen

* XV. Mitteil. s. Acta Phys. et Chem. Szeged 17, 99 (1971).

Mikroreaktor von einigen ml Faßungsvermögen benützt, in dem 12 kugelförmige Katalysatorkörner von etwa 5 mm \varnothing in einem Rahmen mit großer Geschwindigkeit rotierten, wodurch bei der Temperatur der Reaktion ein wärmegradientenfreier chemischer Reaktionsablauf erreicht wurde, da die gasförmige Reaktionskomponente den rotierenden Katalysatorraum mehrmals und mit großer Geschwindigkeit passierte. Der Vorteil ist auch hier in der relativ großen Geschwindigkeitsdifferenz zwischen dem festen granulierten Katalysator und der gasförmigen Reaktionskomponente zu finden.

4. Mit Benützung von rotierenden Drahtbürsten haben wir einen Superfilmreaktor, einen Superemulgator hergestellt [6, 7], der geeignet ist, das in einem geschlossenen Zylinder befindliche Gas das Katalysatorsystem unter kontinuierlicher Zirkulation mehrmals passieren zu lassen. Die Zahl der Rückführungen nimmt mit kleineren Einspeisegeschwindigkeit bzw. mit der Leistungsfähigkeit der Drehbürste — in allgemeinen mit der Umdrehungszahl — zu. Bei Reaktionssystemen in der Gasphase ist der Zylinder mit dem Katalysator zu füllen, durch den die Drahtbürste die gasförmigen Reaktionskomponenten zirkulieren läßt, wodurch die erwähnte Turbulenz gesichert und die Geschwindigkeitsdifferenz zwischen Katalysator und Reaktionsgaskomponente erreicht werden kann. In diesem Falle ist der gewünschte, zuvor mit nc bezeichnete, lineare Geschwindigkeitswert der turbulenten, wärmegradientfreien Strömung auch in einem wesentlich kürzeren zylinderischen Reaktorraum nl erreichbar: l kann sogar kürzer sein als ursprünglich. Auf diese Weise läßt sich

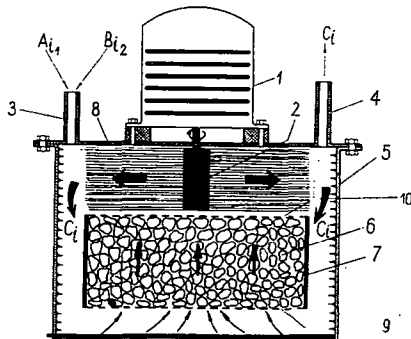


Fig. 1

sogar ein zu Oxydationszwecken dienender Reaktor von so großem Durchmesser herstellen, wie er bisher im Falle hoher Reaktionstemperaturen nicht angewandt wurde.

Der Reaktor ist schematisch in Fig. 1 dargestellt. Die durch den Stutzen (3) mit der Einspeisegeschwindigkeit Ai_1 bzw. Bi_2 eingespeisten Ausgangsstoffe verlassen den Reaktor — nach einer entsprechend langen Zirkulation — durch den Stutzen (4) mit der Abfuhrgeschwindigkeit Ci .

Der Reaktor besteht aus dem mit den Netzen (9) und (10) und dem Metallmantel (7) umgebenen Katalysatorraum (6), der im Reaktorraum (5) untergebracht ist. Auf dessen Deckel (8) befinden sich die Einspeise-

und Abfuhrstutzen (3, 4), sowie die die Zirkulation im Katalysatorraum hervorrufofende Drahtbürste (2) mit dem Antriebmotor (1).

Die Rotation der Drahtbürste erzeugt eine Zentrifugalkraft, die die Reaktionsgase aus dem Katalysatorraum durch die Drahtfäden der Bürste herausaugt. Sie gelangen dann entlang der Wand des Reaktorraumes abwärts ziehend erneut in den Katalysatorraum. Infolge der intensiven Zirkulation in der Richtung der Pfeile passiert das Reaktionsgemisch den Katalysatorraum mehrere hundert Male, bevor es den Reaktor verläßt. Durch die regulierbare Anzahl der Rückführungen wird eine wärme- und konzentrationsgradientenfreie Zirkulation erreicht und die Kontaktzeit verlängert. Der Wärmeaustausch des ganzen Systems erfolgt am Boden und an der Seitenwand des Reaktors. Diese neue Möglichkeit erlaubt die Ausbildung

eines neuartigen Katalysatorraumes unter oxydativen Bedingungen auch im Falle eines Volumens von mehreren zehn Litern. Die Ausmaße sind auch dann zweckmäßig, wenn das Verhältnis zwischen Höhe und Durchmesser des Katalysatorraumes 1:1 beträgt. Die aus wärmebeständigem und gegen die Chemikalien bei der Reaktionstemperatur widerstandsfähigem Material bestehende Drehbürste wirkt als Zentrifugalventilator.

Die Leistung des Elektromotors ist bei hohen Drehzahlen am höchsten. Die feinen Metallfäden der Bürste intensivieren die Zirkulation. Die Geschwindigkeitsdifferenz zwischen Katalysator und Reaktionsgas kann den optimalen Wert der unter 2. und 3. geschilderten Reaktoren erreichen. Der beschriebene Reaktor 4 ist als eine Ausmaßvergrößerung von Reaktor 3 zu betrachten; beide Reaktoren sind durch die hohe Geschwindigkeitsdifferenz zwischen Katalysator und Reaktionsgas, das Fehlen von Wärme- und Konzentrationsgradienten und durch intensives Mischen charakterisiert. Gradienten der Wärmequellendichte im Reaktorraum sind bei beiden Reaktoren praktisch gleich Null. Der Reaktor besitzt auch die Vorteile des unter 2. beschriebenen Reaktors, indem es die lineare Geschwindigkeitsdifferenz zwischen den Gasen und dem Festkörperkatalysator auf kurzer Strecke, aber unter „ähnlichen“ Bedingungen verwirklicht.

Prinzipiell zu erwähnen ist, daß — sofern kein Wärmegefälle zustandekommt — der ganze Raum mit Katalysator gefüllt werden könnte, der Zylinder (7) aber im Interesse der Zirkulation unverändert nötig ist. Die gleiche Einrichtung kann in der chemischen Technologie der kontinuierlichen heterogenen Flüssigkeit/Flüssigkeit-Reaktionen ebenfalls zur Intensivierung der Reaktion benutzt werden.

Ein die Erfahrungen mit unseren Apparaten zusammenfassendes Laboratoriumspraktikum ist erschienen. Auf diesen Prinzipien beruhende Laboratoriums- und Betriebseinrichtungen wurden erbaut [8, 9].

Literatur

- [1] *Mészáros, L. u.a.*: Verwendung von Furfurol, Teile I—XIII. *Acta Phys. et Chem. Szeged* **4**, 144, 153, 161 (1958); **13**, 121, 77 (1967); **6**, 97 (1960); **7**, 42 (1961); **11**, 63 (1965); **15**, 61 (1969); **14**, 117, 127 (1968); **15**, 67, 163 (1969).
- [2] *Mészáros, L.*: *Acta Phys. et Chem. Szeged* **16**, 59 (1970).
- [3] *Carberry, J. J.*: *Ind. Eng. Chem.* **56**, 39 (1964).
- [4] *Tajbl, D. G., J. B. Simons, J. J. Carberry*: *Ind. Eng. Chem., Fundamentals* **5**, 171 (1966).
- [5] *Tajbl, D. G.*: *Ind. Eng. Chem., Process Design and Development* **8**, 364 (1969).
- [6] *Mészáros, L.*: Verfahren und Apparat zur Intensivierung der Bewegung von Flüssigkeiten. Ungarische Patentanmeldung Nr. ME—1019 (1968).
- [7] *Mészáros, L.*: Verfahren und Einrichtung zur Intensivierung von chemischen Reaktionen in Flüssigkeitsfilmen. Ungarische Patentanmeldung Nr. ME—977 (1968).
- [8] *Mészáros, L.*: *Acta Phys. et Chem. Szeged* **17**, 99 (1971).
- [9] *Mészáros, L.*: *Acta Phys. et Chem. Szeged* **16**, Supplementum 1 (1970).
- [10] *Mészáros, L.*: Préparation de furane a partir de furfurol sous des conditions oxydatives et exploitation du sujet. Vortrag. 39^e Congrès International de Chimie Industrielle. Bucaresti, 7—11 Sept. 1970.; 39^e Congrès Intern. Chim. Ind., Vol. 1. 13/42—48 (1970).
- [11] *Mészáros, L.*: Beschleunigung chemischer Reaktionen durch Oberflächenvergrößerung in einem Reaktor. *Dechema-Monographien*, Bd. 68—192. (1971).

ГЕТЕРОГЕННЫЙ КАТАЛИТИЧЕСКИЙ РЕАКТОР В ГАЗОВОЙ ФАЗЕ БЕЗ ТЕПЛООВОГО ГРАДИЕНТА

Л. Месарош и Дь. Керекеш

Авторы проводили опыты и вычисления с гетерогенными каталитическими реакторами в газовой фазе для увеличения размера. В этой работе, опираясь на ранее полученных результатов описывается приготовление реактора без теплового градиента. Вращающаяся металлическая щетка применяется в роле центробежного вентилятора, который вводит нары реакций в циркуляцию в камеру реакций со скоростью, что ни аксиальный ни линейный тепловой градиент не получается. Такой же принцип применяется и как у химических реакторов или эмульгаторов в непрерывной фазе жидкость/жидкость. В следствии высокого выхода, реактор удовлетворяется и критерий „увеличение размера“.