Beschreibung

Vorrichtung und ihre Verwendung zur Oxichlorierung

Beschreibung

Unter "Oxichlorierung" wird die Umsetzung von Ethylen mit Chlorwasserstoff und Sauerstoff oder einem sauerstoffhaltigen Gas verstanden, wobei 1,2-Dichlorethan (EDC) entsteht. Als Chlorwasserstoff wird hierbei üblicherweise der bei der thermischen Spaltung von EDC zu Vinylchlorid anfallende Chlorwasserstoff genutzt.

Für die Oxichlorierung werden unter anderem Katalysatoren eingesetzt, die auf staubfeinen Trägern wie Aluminiumoxid Metallhalogenide, vorzugsweise Kupferchlorid, enthalten. Die Katalysatorteilchen haben hierbei einen mittleren Durchmesser von etwa 50 µm und bilden ein Fließbett aus, das entweder nur von den Reaktionsgasströmen, gegebenenfalls mit Inertgasanteilen, oder zusätzlich von einem Kreislaufgasstrom getragen wird. Bei diesem Verfahren wird die Reaktionswärme im Fließbett verteilt und an Kühlflächen abgeführt, wodurch eine gleichmäßige Temperaturverteilung im Fließbettreaktor erreicht wird. Hierbei müssen die Katalysatorteilchen eine hohe Abriebfestigkeit besitzen. Diese Eigenschaft wird im wesentlichen durch das Trägermaterial gegeben, wofür neben dem bereits genannten Aluminiumoxid auch Kieselsäure, Kieselgur oder Bimsstein eingesetzt

werden. Bei ungenügender Abriebfestigkeit werden die Katalysatorteilchen zerrieben, insbesondere durch die Gasstrahlen der Gaseinleitungsvorrichtung, und der so auftretende Katalysatorträgerstaub wird vom aufwärtsgerichteten Gasstrom aus dem Oxichlorierungsreaktor ausgetragen. Hierdurch wird nicht nur ein Katalysatorverlust bewirkt, sondern auch eine erhöhte Abrasion in der Apparatur erzeugt.

Die Verwendung eines abriebfesten Trägermaterials bringt andererseits einen verstärkten Verschleiß der Gaseinleitvorrichtungen mit sich, der zu deren häufigem Auswechseln führt, was einen erheblichen Aufwand und zusätzliche Kosten durch die Produktionsunterbrechung bedeutet.

Neben der erforderlichen Abwägung zwischen der Stabilität der Katalysatorteilchen und der dadurch bedingten Abrasion muß auch noch darauf geachtet werden, daß die Katalysatorteilchen nicht agglomerieren, da hierdurch bedingte Verklumpungen zur Störung des Fließbettes führen. Die Folgen wären eine ungleichmäßige Temperaturverteilung im Fließbett mit entsprechend ungünstigerer Reaktionsführung sowie gegebenenfalls Verstopfungen an Engstellen in der Apparatur, beispielsweise in Zyklonen zur Staubabscheidung oberhalb des Fließbettes oder in Fallrohren zur Rückführung des Staubes aus diesen Zyklonen in das Fließbett. Diese Verklumpungsneigung hängt neben der Beschaffenheit des Katalysators und seiner Verteilung auf dem Katalysatorträger insbesondere von der Konzentration der Reaktionsgase im Fließbett ab.

Aus WO 94/19099 ist eine Vorrichtung zur Oxichlorierung bekannt, die gekennzeichnet ist durch einen Reaktor 1, eine untere Begrenzung 2 für einen Fließbett-Katalysator 3, eine Gaseinleitung (Verteilerrohr) 4, die Düsen 5 enthält, wobei die Düsen 5 in Rohre 6 münden, die dem austretenden Gasstrom eine horizontale Komponente in der Strömungsrichtung verleihen, und eine Gaseinleitung 9 unterhalb der Begrenzung 2.

Bevorzugte Ausführungsformen richten sich darauf, daß die genannten Rohre, in die die Düsen münden, am Ende Lenkvorrichtungen mit Austrittsöffnungen enthalten, oder daß diese Rohre schräg nach oben oder in horizontaler Richtung oder schräg nach unten zeigen und diese Rohre frei im Katalysatorbett enden, oder daß diese Rohre beziehungsweise die Austrittsöffnungen benachbarter Rohre so angeordnet sind, daß die ausströmenden Gasstrahlen nicht frontal aufeinandertreffen und/oder nicht ein benachbartes Rohr treffen. Weitere bevorzugte Ausführungsformen richten sich darauf, daß durch die Begrenzung Rohre hindurchgeführt werden, in denen Düsen unterhalb der Begrenzung, aber oberhalb dem unteren Ende der durchgeführten Rohre angeordnet sind, wobei vorzugsweise diese Düsen unterhalb der halben Länge der betreffenden Rohre angebracht sind, insbesondere in der Entfernung von etwa einem Durchmesser des Rohres vom unteren Ende.

Es wurde nun gefunden, daß diese bekannte Vorrichtung bei langem Betrieb und hohen Durchsätzen, also hohen Gasgeschwindigkeiten, in den Gaseinleitungsvorrichtungen einen gewissen Abrieb aufweisen. Überraschenderweise wurde weiterhin gefunden, daß dieser Abrieb nicht oder

nur in erheblich verringertem Umfang auftritt, wenn die Rohre, in welche die Düsen münden, den austretenden Gasstrom im wesentlichen entgegen dem Gasstrom führen, der den Katalysator in Form eines Fließbettes hält.

Die Erfindung betrifft somit eine Vorrichtung zur Oxichlorierung, gekennzeichnet durch

- einen Reaktor 1,
- eine untere Begrenzung 2 für ein Katalysator-Fließbett 3,
- oberhalb der Begrenzung 2 und innerhalb des Katalysator-Fließbettes 3 eine Gaseinleitung (Verteilerrohre) 4, die über den gesamten Querschnitt des Reaktors 1 verteilt Düsen 5 enthält,
- wobei die Düsen 5 in Rohre 6 münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen im Gegenstrom zu dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert und
- eine Gaseinleitung 7 unterhalb der Begrenzung 2.

Vorteilhaft wird die erfindungsgemäße Vorrichtung so ausgestaltet, daß der Anzahl von Rohren 8 die gleiche Anzahl von Rohren 6 gleichmäßig über den Querschnitt eines Reaktors 1 verteilt gegenüber angeordnet ist. Durch das Fluchten jeweils eines der Rohre 8 und 6 ist eine Zuordnung der Mengen miteinander reagierender Gase aus den Rohren 8 und 6 in besonderem Maße gegeben.

In einer anderen Ausführungsform der erfindungsgemäßen Vorrichtung liegen sich eine gleiche Anzahl von Rohren 8 und 6 versetzt gegenüber. Diese Geometrie bewirkt eine möglichst geringe Erosion der Rohre 6 durch den aus den Rohren 8 aufsteigenden Gasstrom. Weiters erreicht man mit dieser Anordnung, daß die aus

den Rohren 8 und 6 in das Katalysator-Fließbett 3 eintretenden Reaktanden sofort einem innigen Kontakt mit dem Katalysator ausgesetzt sind. Dadurch wird die gewünschte Reaktion in Richtung Bildung von EDC begünstigt und Nebenreaktionen, wie zum Beispiel die Verbrennung des Ethylens mit dem Sauerstoff, zurückgedrängt.

Eine weitere Ausführungsform dieser Vorrichtung läßt für ihre Auslegung und Konstruktion größere Freiräume zu. Hierbei ist die Anzahl der Rohre 6 von der Anzahl der Rohre 8 verschieden. Wichtig ist aber auch hier die möglichst gleichmäßige Verteilung dieser Rohre über den Querschnitt des Reaktors 1. Diese Form ergibt die Möglichkeit, die Anzahl der Rohre 6 in einem vorhandenen Reaktor zu verändern, ohne zugleich die Rohre 8 anzupassen, was einen hohen Aufwand bedeuten würde.

Die Erfindung wird in dem folgenden Beispiel noch näher erläutert.

Beispiel

Es wird eine Apparatur gemäß Figur 1 verwendet. In einen Reaktor 1 von 2,8 m Durchmesser und 26 m Höhe werden die auf 160 °C vorgewärmten Reaktanden gasförmig eingeleitet. Eine Mischung aus 5974 kg/h Chlorwasserstoff und 1417 kg/h Sauerstoff strömt durch die Gaseinleitung 4 über die Düsen 5 und die Rohre 6 in das Katalysator-Fließbett 3. Die Düsen 5 besitzen verschiedene Durchmesser, damit eine möglichst gleichmäßige Gasverteilung auf alle Düsen 5 und somit

über den Querschnitt des Reaktors 1 erreicht wird. Der Durchmesser der Düsen 5 vergrößert sich stromabwärts der Gaseinleitung 4 von 8,6 mm auf 9,3 mm und weiter auf 10 mm, um die verschiedenen Druckverluste entlang der Gaseinleitung bis zu den jeweiligen Düsen 5 zu kompensieren. Die Rohre 6 mit einem Innendurchmesser von 40 mm haben eine Länge von 300 mm. 2380 kg/h Ethylen fließen über die Gaseinleitung 7 und die Rohre 8 mit den Düsen 9 durch die untere Begrenzung 2. Im Reaktor 1 befindet sich als Katalysator Kupfer-(II)-chlorid auf einem Aluminiumoxid-Träger in der Form eines Katalysator-Fließbettes 3. In dieses Fließbett werden die obengenannten Reaktanden eingeführt. Zur Fluidisierung des Fließbettes strömt zusätzlich ein Kreisgasstrom von 8780 kg/h über die Gaseinleitung 7 und die Rohre 8 durch die untere Begrenzung 2 in den Reaktor 1. Die oberen Enden der Rohre 8 sind bündig mit der unteren Begrenzung 2. Der Abstand zwischen dieser unteren Begrenzung und den unteren Enden der Rohre 6 beträgt 400 mm. In diesem Abschnitt werden die Reaktanden über den Reaktorquerschnitt verteilt, und es bilden sich Mischungszonen zwischen den einzelnen Reaktanden und dem Katalysator. Ethylen und Kreisgas strömen im Reaktor von unten nach oben. Auf diesem Weg treffen sie auf den Chlorwasserstoff und Sauerstoff und reagieren unter Mitwirkung des vorhandenen Katalysators zu EDC und Wasser. Die dabei auftretende Reaktionswärme von 238,5 kJ/mol wird über das Katalysator-Fließbett 3 an die Kühlschlange 12 abgeführt, in der Wasser bei 183 °C verdampft. Die Reaktionstemperatur beträgt 225 °C bei einem Überdruck von 3,2 bar im Reaktor. Der Gasstrom am Reaktorkopf, bestehend aus den Reaktionsprodukten und dem Kreisgas, verläßt den Reaktor 1 über drei Zyklone

zur weiteren Verarbeitung (nicht in der Figur dargestellt). Die drei in Reihe geschalteten Zyklone dienen zur Abscheidung des mitgerissenen Katalysatorstaubes aus dem Gasstrom am Reaktorkopf oberhalb des Katalysator-Fließbettes.

Ansprüche

1. Vorrichtung zur Oxichlorierung, gekennzeichnet durch
   - einen Reaktor (1),
   - eine untere Begrenzung (2) für ein Katalysator-Fließbett (3),
   - oberhalb der Begrenzung (2) und innerhalb des Katalysator-Fließbettes (3) eine Gaseinleitung (Verteilerrohre) (4), die über den gesamten Querschnitt des Reaktors (1) verteilt Düsen (5) enthält,
   - wobei die Düsen (5) in Rohre (6) münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen im Gegenstrom zu dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert und
   - eine Gaseinleitung (7) unterhalb der Begrenzung (2).

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8), in denen Düsen (9) unterhalb der Begrenzung (2), aber oberhalb dem unteren Ende von (8) angeordnet sind.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in einem so großen Abstand vom oberen Ende der Rohre (8) angebracht sind, daß sich die nach oben gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (9) bis zum oberen Ende der Rohre (8) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (8) vergleichmäßigt hat.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in der Entfernung von etwa einem Durchmesser der Rohre (8) vom unteren Ende der Rohre (8) angebracht sind.

5. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Länge der Rohre (6) so groß ist, daß sich die nach unten gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (5) bis zum unteren Ende der Rohre (6) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (6) vergleichmäßigt hat.

6. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 und 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (5) unterschiedliche Durchmesser haben, damit die über die Gaseinleitung (4) geführte Gasmenge gleichmäßig über den Querschnitt des Reaktors (1) verteilt wird.

7. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Raum zwischen den oberen Enden der Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6) eine Mischzone bildet, die so groß bemessen ist, daß einerseits die Vermischung der Reaktanden mit dem Katalysator hier bereits stattfinden kann und daß andererseits eine hohe gegenseitige erosive Beanspruchung der Rohre (4, 6, 8) sowie der unteren Begrenzung (2) nicht mehr gegeben ist.

8. Verwendung der Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 7 für die Umsetzung von Ethylen mit Chlorwasserstoff und Sauerstoff oder einem sauerstoffhaltigen Gas zu 1,2-Dichlorethan.

GEÄNDERTE ANSPRUCHE
[beim Internationalen Büro am 4. Dezember 1995 (4.12.95) eingegangen ursprüngliche Ansprüche 1 und 7 geändert; alle weiteren Ansprüche unverändert (2 seiten)]

1. Vorrichtung zur Oxichlorierung, gekennzeichnet durch
   - einen Reaktor (1),
   - eine untere Begrenzung (2) für ein Katalysator-Fließbett (3),
   - oberhalb der Begrenzung (2) und innerhalb des Katalysator-Fließbettes (3) eine Gaseinleitung (Verteilerrohre) (4), die über den gesamten Querschnitt des Reaktors (1) verteilt Düsen (5) enthält,
   - wobei die Düsen (5) in Rohre (6) münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen im Gegenstrom zu dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert,
   - eine Gaseinleitung (7) unterhalb der Begrenzung (2) und
   - durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8),
   - wobei der Raum zwischen den oberen Enden der Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6) eine Mischzone bildet, die so groß bemessen ist, daß die Vermischung der jeweils aus diesen Rohren austretenden Reaktanden mit dem Katalysator hier bereits stattfinden kann.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8), in denen Düsen (9) unterhalb der Begrenzung (2), aber oberhalb dem unteren Ende von (8) angeordnet sind.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in einem so großen Abstand vom oberen Ende der Rohre (8) angebracht sind, daß sich die nach oben gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (9) bis zum oberen

Ende der Rohre (8) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (8) vergleichmäßigt hat.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in der Entfernung von etwa einem Durchmesser der Rohre (8) vom unteren Ende der Rohre (8) angebracht sind.

5. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Länge der Rohre (6) so groß ist, daß sich die nach unten gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (5) bis zum unteren Ende der Rohre (6) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (6) vergleichmäßigt hat.

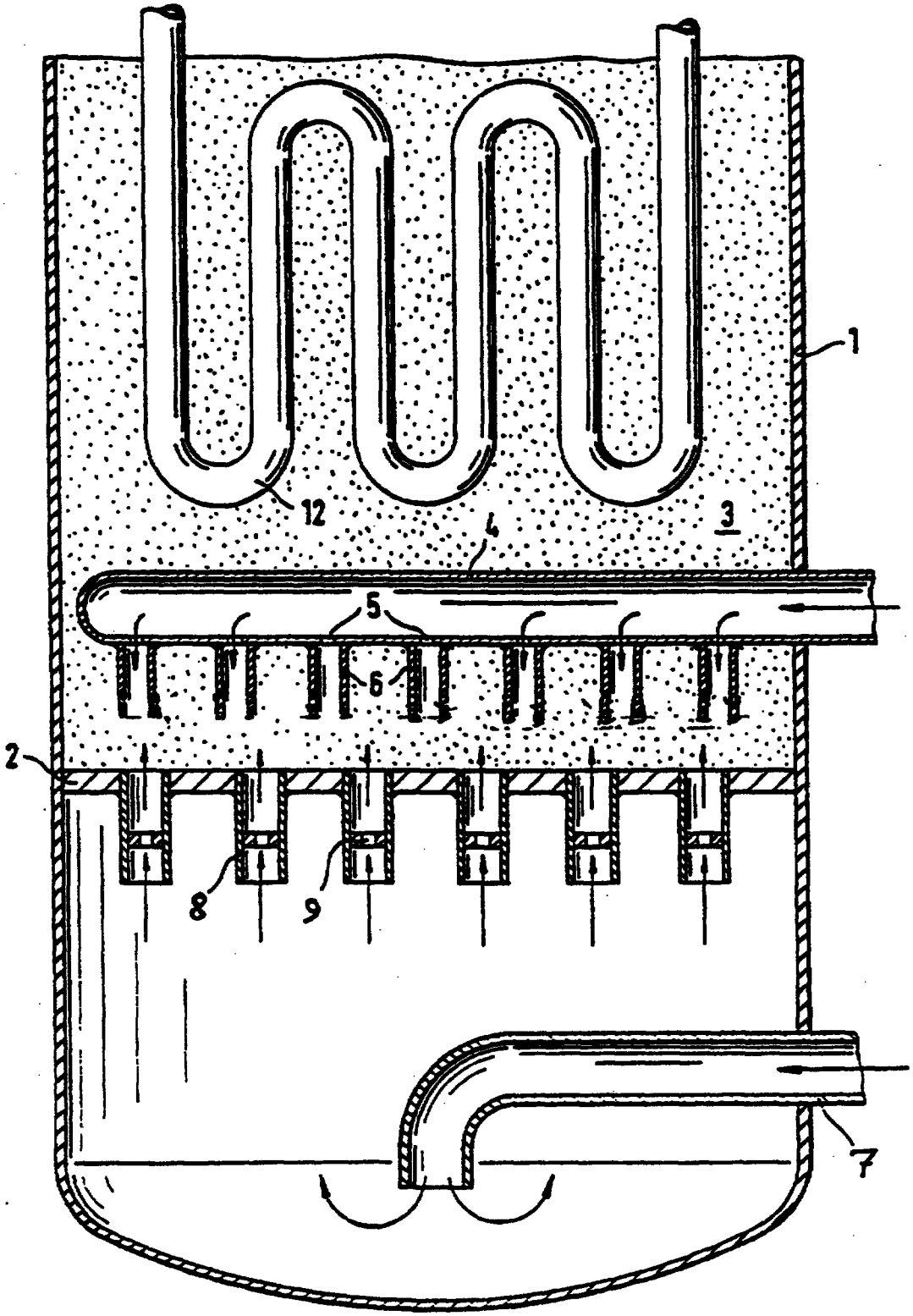
6. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 und 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (5) unterschiedliche Durchmesser haben, damit die über die Gaseinleitung (4) geführte Gasmenge gleichmäßig über den Querschnitt des Reaktors (1) verteilt wird.

7. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Raum zwischen den oberen Enden der Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6) so bemessen ist, daß eine hohe gegenseitige erosive Beanspruchung der Rohre (4, 6, 8) sowie der unteren Begrenzung (2) nicht gegeben ist.

8. Verwendung der Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 7 für die Umsetzung von Ethylen mit Chlorwasserstoff und Sauerstoff oder einem sauerstoffhaltigen Gas zu 1,2-Dichlorethan.

1/1

Fig. 1



Description

Apparatus and its use for oxychlorination

Description

"Oxychlorination" is taken to mean the reaction of ethylene with hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas, 1,2-dichloroethane (EDC) being formed. The hydrogen chloride used in this case is customarily the hydrogen chloride produced in the thermal cracking of EDC to give vinylchloride.

For the oxychlorination use is made, inter alia, of catalysts which contain metal halides, preferably copper chloride, on dust-fine supports such as alumina. The catalyst particles in this case have a mean diameter of about 50 μm and form a fluid bed, which is either supported only by the reaction gas streams, if appropriate with portions of inert gas, or is additionally supported by a circulated gas stream. In this process, the heat of reaction is distributed in the fluid bed and removed at cooling surfaces, which achieves a uniform temperature distribution in the fluid-bed reactor. In this case, the catalyst particles must have a high abrasion resistance. This property is given essentially by the support material, for which, in addition to the alumina already mentioned, silica, kieselguhr or pumice are also used. If the abrasion resistance is inadequate, the catalyst particles are crushed, in particular by the gas jets of the gas inlet apparatus, and the catalyst support dust thus arising is discharged from the oxychlorination reactor by the upwards-directed gas stream. This not only causes a catalyst loss, but also produces increased abrasion in the apparatus.

The use of an abrasion-resistant support material, on the other hand, is accompanied by an increased wear of the

This Sheet Has Been Replaced



THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

gas inlet apparatuses, which leads to their frequent exchange, this signifying considerable outlay and additional costs owing to the interruption in production.

In addition to the necessary balance between the stability of the catalyst particles and the abrasion caused thereby, it must also be further ensured that the catalyst particles do not agglomerate, since agglomerates caused by this lead to disturbance of the fluid bed. The consequences would be a nonuniform temperature distribution in the fluid bed with a correspondingly less favorable reaction course, and, possibly, blockages at points of constriction in the apparatus, for example in cyclones for dust separation above the fluid bed or in descender pipes for returning the dust from these cyclones to the fluid bed. This tendency to agglomeration depends, in particular, on the concentration of the reaction gases in the fluid bed, in addition to the properties of the catalyst and its distribution on the catalyst support.

WO 94/19099 discloses an apparatus for oxychlorination which comprises a reactor 1, a lower delimitation 2 for a fluid-bed catalyst 3, a gas inlet (distributor tube) 4 which contains nozzles 5, the nozzles 5 opening into tubes 6 which impart a horizontal component in the direction of flow to the exiting gas stream, and a gas inlet 9 beneath the delimitation 2.

Preferred embodiments are focused on said tubes, into which the nozzles open out, containing at the end guiding apparatuses having outlet orifices, or these tubes pointing at an angle upwards or in a horizontal direction or at an angle downwards and these tubes ending open in the catalyst bed, or these tubes or the outlet orifices of adjacent tubes being arranged in such a way that the effluent gas jets do not meet one another frontally and/or do not meet an adjacent tube. Other preferred embodiments are focused on tubes being run through the

This Sheet Has Been Replaced

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

delimitation, in which tubes nozzles are arranged beneath the delimitation, but above the lower end of the tubes which have been run through, these nozzles preferably being installed in the lower half of the tubes in question, in particular at a distance of about one tube diameter from the lower end.

It has now been found that this known apparatus, in long-term operation and with high throughputs, that is at high gas velocities, exhibits a certain abrasion in the gas inlet apparatuses. Surprisingly, it has further been found that this abrasion does not occur, or occurs only to a considerably reduced extent, if the tubes into which the nozzles open conduct the exiting gas stream essentially in the opposite direction to the gas stream which keeps the catalyst in the form of a fluid bed.

The invention thus relates to an apparatus for oxychlorination, which comprises

- a reactor 1,
- a lower delimitation 2 for a catalyst fluid bed 3,
- a gas inlet (distributor tubes) 4 above the delimitation 2 and within the catalyst fluid bed 3, which gas inlet contains nozzles 5 distributed over the entire cross section of the reactor 1,
- the nozzles 5 opening into tubes 6 which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst, and
- a gas inlet 7 beneath the delimitation 2.

The apparatus of the invention is advantageously designed so that there are arranged opposite the number of tubes 8 the same number of tubes 6, uniformly distributed over the cross section of a reactor 1. The alignment of the respective tubes 8 and 6 gives particularly a correspondence of the amounts of gases reacting with one another from the tubes 8 and 6.

In another embodiment of the apparatus of the invention,

This Sheet Has Been Replaced



THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

an identical number of tubes 8 and 6 are situated opposite each other in a staggered manner. This geometry produces the lowest possible erosion of the tubes 6 due to the gas stream ascending from the tubes 8. Furthermore, this arrangement enables the reactants entering into the catalyst fluid bed 3 from the tubes 8 and 6 to be immediately exposed to an intimate contact with the catalyst. By this means, the desired reaction in the direction of the formation of EDC is promoted, and side reactions, for example the combustion of ethylene with oxygen, are suppressed.

A further embodiment of this apparatus permits greater freedom for its design and construction. In this case, the number of tubes 6 is different from the number of tubes 8. However, in this case also, the most uniform distribution possible of these tubes over the cross section of the reactor 1 is important. This form makes it possible to change the number of tubes 6 in an existing reactor, without at the same time adapting the tubes 8, which would signify a high expenditure.

The invention is described in more detail in the following example.

Example

An apparatus according to Figure 1 is used. The reactants preheated to 160°C are introduced in the gaseous state into a reactor 1 of diameter 2.8 m and height 26 m. A mixture of 5974 kg/h of hydrogen chloride and 1417 kg/h of oxygen flows through the gas inlet 4 via the nozzles 5 and the tubes 6 into the catalyst fluid bed 3. The nozzles 5 have different diameters, so that as uniform a gas distribution as possible is achieved at all nozzles 5 and thus over the cross section of the reactor 1. The diameter of the nozzles 5 increases in the downstream direction of the gas inlet 4 from 8.6 mm to 9.3 mm and

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

further to 10 mm, in order to compensate for the various pressure drops along the gas inlet up to the individual nozzles 5. The tubes 6 of an internal diameter of 40 mm have a length of 300 mm. 2380 kg/h of ethylene flow through the lower delimitation 2 via the gas inlet 7 and the tubes 8 containing the nozzles 9. In the reactor 1, there is situated as catalyst copper(II) chloride on an alumina support in the form of a catalyst fluid bed 3. The abovementioned reactants are introduced into this fluid bed. To fluidize the fluid bed, a circulated gas stream of 8780 kg/h additionally flows via the gas inlet 7 and the tubes 8 through the lower delimitation 2 into the reactor 1. The upper ends of the tubes 8 are flush with the lower delimitation 2. The distance between this lower delimitation and the lower ends of the tubes 6 is 400 mm. In this section, the reactants are distributed over the reactor cross section, and mixing zones between the individual reactants and the catalyst form. Ethylene and circulated gas flow from bottom to top in the reactor. On this path, they meet the hydrogen chloride and oxygen and react with interaction of the catalyst present to form EDC and water. The heat of reaction of 238.5 kJ/mol arising in this case is taken off via the catalyst fluid bed 3 to the cooling coil 12 in which water vaporizes at 183°C. The reaction temperature is 225°C at a gauge pressure of 3.2 bar in the reactor. The gas stream at the reactor top, comprising the reaction products and the circulated gas, leaves the reactor 1 via three cyclones for further processing (not depicted in the figure). The three cyclones connected in series serve for separating off the entrained catalyst dust from the gas stream at the reactor top above the catalyst fluid bed.

This Sheet Has Been Replaced

This Sheet Has Been Replaced



THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

Claims

1. An apparatus for oxychlorination, which comprises
   - a reactor (1),
   - a lower delimitation (2) for a catalyst fluid bed (3),
   - a gas inlet (distributor tubes) (4) above the delimitation (2) and within the catalyst fluid bed (3), which gas inlet contains nozzles (5) distributed over the entire cross section of the reactor (1),
   - the nozzles (5) opening into tubes (6) which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst, and
   - a gas inlet (7) beneath the delimitation (2).

2. The apparatus as claimed in claim 1, which comprises tubes (8) leading through the delimitation (2), in which tubes nozzles (9) are arranged beneath the delimitation (2), but above the lower end of (8).

3. The apparatus as claimed in claim 2, wherein the nozzles (9) are installed at such a distance from the upper end of the tubes (8) that the upwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (9) has become uniform over the respective cross section of a tube (8) by the upper end of the tubes (8).

4. The apparatus as claimed in claim 3, wherein the nozzles (9) are installed at a distance of about one diameter of the tubes (8) from the lower end of the tubes (8).

5. The apparatus as claimed in claim 1, wherein the length of the tubes (6) is such that the downwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (5) has become uniform over the respective



This Sheet Has Been Replaced

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

cross section of a tube (6) by the lower end of the tubes (6).

6. The apparatus as claimed in claims 1 and 5, wherein the nozzles (5) have different diameters, so that the gas conducted via the gas inlet (4) is uniformly distributed over the cross section of the reactor (1).

7. The apparatus as claimed in claims 1 to 6, wherein the space between the upper ends of the tubes (8) and the lower ends of the tubes (6) forms a mixing zone which is dimensioned so large that, on the one hand, the mixing of the reactants with the catalyst can occur as early as here and that, on the other hand, a high mutual erosive stress of the tubes (4, 6, 8) and of the lower delimitation (2) no longer results.

8. Use of the apparatuses as claimed in claims 1 to 7 for the reaction of ethylene with hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas to give 1,2-dichloroethane.

* C L M S *

This Sheet Has Been Replaced

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

AMENDED CLAIMS

[filed at the International Bureau on December 4, 1995 (4.12.95)
original claims 1 and 7 amended;
all other claims unchanged (2 pages)]

1. An apparatus for oxychlorination, which comprises
   - a reactor (1),
   - a lower delimitation (2) for a catalyst fluid bed (3),
   - a gas inlet (distributor tubes) (4) above the delimitation (2) and within the catalyst fluid bed (3), which gas inlet contains nozzles (5) distributed over the entire cross section of the reactor (1),
   - the nozzles (5) opening into tubes (6) which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst,
   - a gas inlet (7) beneath the delimitation (2) and
   - tubes (8) leading through the delimitation (2),
   - the space between the upper ends of the tubes (8) and the lower ends of the tubes (6) forming a mixing zone which is dimensioned so large that the mixing of the reactants each exiting from these tubes with the catalyst can occur as early as here.

2. The apparatus as claimed in claim 1, which comprises tubes (8) leading through the delimitation (2), in which tubes nozzles (9) are arranged beneath the delimitation (2), but above the lower end of (8).

3. The apparatus as claimed in claim 2, wherein the nozzles (9) are installed at such a distance from the upper end of the tubes (8) that the upwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (9) has become uniform over the respective cross section of a tube (8) by the upper end of the

* C L M S *

This Sheet Has Been Replaced

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

tubes (8).

4. The apparatus as claimed in claim 3, wherein the nozzles (9) are installed at a distance of about one diameter of the tubes (8) from the lower end of the tubes (8).

5. The apparatus as claimed in claim 1, wherein the length of the tubes (6) is such that the downwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (5) has become uniform over the respective cross section of a tube (6) by the lower end of the tubes (6).

6. The apparatus as claimed in claims 1 and 5, wherein the nozzles (5) have different diameters, so that the gas conducted via the gas inlet (4) is uniformly distributed over the cross section of the reactor (1).

7. The apparatus as claimed in claims 1 to 6, wherein the space between the upper ends of the tubes (8) and the lower ends of the tubes (6) is dimensioned so that a high mutual erosive stress of the tubes (4, 6, 8) and of the lower delimitation (2) does not result.

8. Use of the apparatuses as claimed in claims 1 to 7 for the reaction of ethylene with hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas to give 1,2-dichloroethane.

* C L M S *

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

Abstract

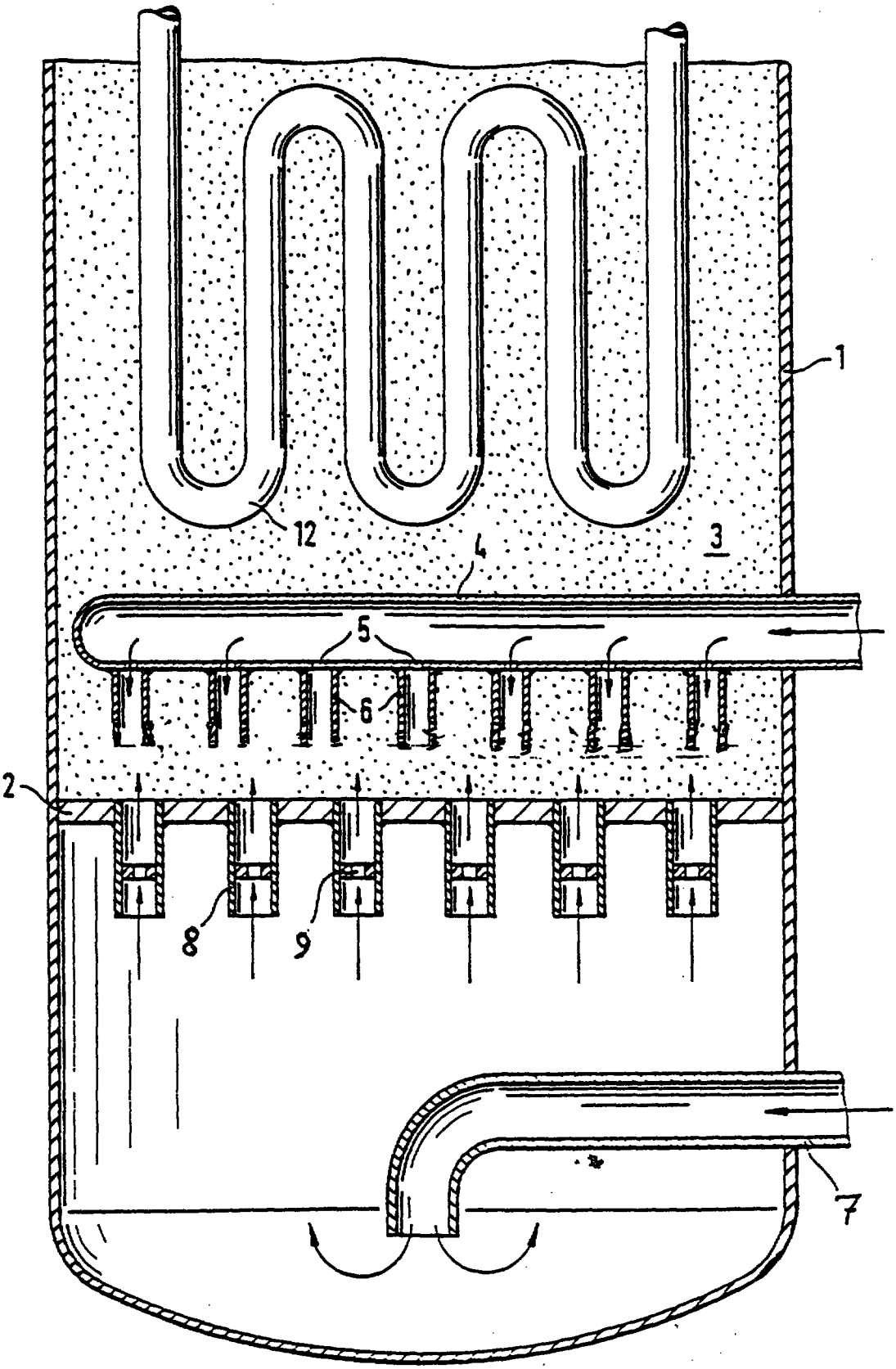
Apparatus and its use for oxychlorination

The preparation of 1,2-dichloroethane from ethylene, hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas (oxychlorination) advantageously proceeds in a reactor having a lower delimitation for a catalyst fluid bed, a first gas inlet (distributor tubes) being arranged above the delimitation and within the catalyst fluid bed, which gas inlet contains nozzles distributed over the entire cross section of the reactor, these nozzles opening into tubes which conduct the exiting gas stream essentially in the opposite direction to the gas stream which fluidizes the catalyst, this gas stream being fed through a second gas inlet beneath the delimitation.

This Sheet Has Been Replaced



Fig. 1



Beschreibungsnachtrag (aufzunehmen zwischen Seite 2 und Seite 3)

Aus der EP-A-0 446 379 ist ein Reaktor zur Herstellung α-β-ungesättigter Nitrile bekannt, in dessen unterem Teil eine waagrecht angeordnete Gaszuführung für ein Olefin oder tertiären Butylalkohol vorgesehen ist, wobei an der Unterseite der Gaszuführung eine Vielzahl von Düsen angeordnet ist, sowie eine weitere Zuführung für ein Sauerstoff enthaltendes Gas, die unterhalb und parallel zu der anderen Gaszuführung angeordnet ist, wobei der Abstand zwischen den beiden Gaszuführungen 25 bis 300 mm beträgt. Ein zu kurzer Abstand kann zu einer Beschädigung der Gaszuführungen durch Schmelzen aufgrund einer ungewöhnlichen Reaktion führen, während bei zu langen Abständen das Olefin beziehungsweise der tertiäre Butylalkohol nicht ausreichend mit dem Sauerstoff enthaltenden Gas gemischt wird, was die Ausbeute an Nitril verringert.

Aus der GB-A-1 265 770 ist ein Reaktor für Fließbettreaktionen mit einer Verteilerplatte im unteren Teil des Reaktors bekannt, unter der eine Gaszuführung und im Randbereich des Reaktorgehäuses oberhalb und benachbart zu der Verteilerplatte eine weitere Gaszuführung vorgesehen ist. Diese weitere Gaszuführung bewirkt, daß sich im Randbereich der Katalysator nicht absetzt. Diese Vorkehrung dient insbesondere dazu, daß der Katalysator nicht reduziert wird. Innerhalb des Fließbetts kann eine weitere Gaszuführung vorgesehen sein, die im unteren Teil des Reaktors angeordnet ist, damit eine gute Durchmischung der Reaktanden an der Basis des Fließbetts erfolgt.

Neuer Patentanspruch 1

1. Vorrichtung zur Oxichlorierung, gekennzeichnet durch
   - einen Reaktor (1),
   - eine untere Begrenzung (2) für ein Katalysator-Fließbett (3),
   - oberhalb der Begrenzung (2) und innerhalb des Katalysator-Fließbettes (3) eine Gaseinleitung (Verteilerrohre) (4), die über den gesamten Querschnitt des Reaktors (1) verteilt Düsen (5) enthält,
   - wobei die Düsen (5) in Rohre (6) münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen im Gegenstrom zu dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert,
   - eine Gaseinleitung (7) unterhalb der Begrenzung (2) und
   - durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8),
   - wobei der Raum zwischen den oberen Enden der durch die Begrenzung (2) hindurchgeführten Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6), in die die Düsen (5) münden, eine Mischzone bildet, die so groß bemessen ist, daß die Vermischung der aus diesen Rohren austretenden Reaktanden mit dem Katalysator hier bereits stattfinden kann, wobei eine Mischzone von 25 bis 300 mm ausgeschlossen ist.

Anlage zu unserem Schreiben vom 29.11.19
PCT/EP 95/01874 - 95/F 902
Hoechst Aktiengesellschaft

Ergänzte Fassung gemäß Schreiben vom 29.07.1996 (es wurde die Zeile 35 hinzugefügt)

Neue Patentansprüche

1. Vorrichtung zur Oxichlorierung, gekennzeichnet durch
   - einen Reaktor (1),
   - eine untere Begrenzung (2) für ein Katalysator-Fließbett (3),
   - oberhalb der Begrenzung (2) und innerhalb des Katalysator-Fließbettes (3) eine Gaseinleitung (Verteilerrohre) (4), die über den gesamten Querschnitt des Reaktors (1) verteilt Düsen (5) enthält,
   - wobei die Düsen (5) in Rohre (6) münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen im Gegenstrom zu dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert,
   - eine Gaseinleitung (7) unterhalb der Begrenzung (2) und
   - durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8),
   - wobei der Raum zwischen den oberen Enden der Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6) eine Mischzone bildet, die so groß bemessen ist, daß die Vermischung der jeweils aus diesen Rohren austretenden Reaktanden mit dem Katalysator hier bereits stattfinden kann.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch durch die Begrenzung (2) hindurchgeführte Rohre (8), in denen Düsen (9) unterhalb der Begrenzung (2), aber oberhalb dem unteren Ende von (8) angeordnet sind.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in einem so großen Abstand vom oberen Ende der Rohre (8) angebracht sind, daß sich die nach oben gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (9) bis zum oberen

AMENDED SHEET

Ende der Rohre (8) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (8) vergleichmäßigt hat.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (9) in der Entfernung von etwa einem Durchmesser der Rohre (8) vom unteren Ende der Rohre (8) angebracht sind.

5. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Länge der Rohre (6) so groß ist, daß sich die nach unten gerichtete Strömungsgeschwindigkeit der Gasstrahlen aus den Düsen (5) bis zum unteren Ende der Rohre (6) über den jeweiligen Querschnitt eines Rohres (6) vergleichmäßigt hat.

6. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 und 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsen (5) unterschiedliche Durchmesser haben, damit die über die Gaseinleitung (4) geführte Gasmenge gleichmäßig über den Querschnitt des Reaktors (1) verteilt wird.

7. Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Raum zwischen den oberen Enden der Rohre (8) und den unteren Enden der Rohre (6) so bemessen ist, daß eine hohe gegenseitige erosive Beanspruchung der Rohre (4, 6, 8) sowie der unteren Begrenzung (2) nicht gegeben ist.

8. Verwendung der Vorrichtungen nach den Ansprüchen 1 bis 7 für die Umsetzung von Ethylen mit Chlorwasserstoff und Sauerstoff oder einem sauerstoffhaltigen Gas zu 1,2-Dichlorethan.

AMENDED SHEET

Annex to our letter of 08.01.1997
PCT/EP 95/01874 - 95/F 902
Hoechst Aktiengesellschaft

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

This Sheet Has Been Replaced

New patent claim 1

1. An apparatus for oxychlorination, which comprises
   - a reactor (1),
   - a lower delimitation (2) for a catalyst fluid bed (3),
   - a gas inlet (distributor tubes) (4) above the delimitation (2) and within the catalyst fluid bed (3), which gas inlet contains nozzles (5) distributed over the entire cross section of the reactor (1),
   - the nozzles (5) opening into tubes (6) which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst,
   - a gas inlet (7) beneath the delimitation (2) and
   - tubes (8) leading through the delimitation (2),
   - the space between the upper ends of the tubes (8) leading through the delimitation (2) and the lower ends of the tubes (6) into which the nozzles (5) open forming a mixing zone which is dimensioned so large that the mixing of the reactants each exiting from these tubes with the catalyst can occur as early as here.

* C L M S *

Annex 1 to our letter of 01.04.1997
PCT/EP 95/01874 - 95/F 902
Hoechst Aktiengesellschaft

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

This Sheet Has Been Replaced

New patent claim 1

1. An apparatus for oxychlorination, which comprises
   - a reactor (1),
   - a lower delimitation (2) for a catalyst fluid bed (3),
   - a gas inlet (distributor tubes) (4) above the delimitation (2) and within the catalyst fluid bed (3), which gas inlet contains nozzles (5) distributed over the entire cross section of the reactor (1),
   - the nozzles (5) opening into tubes (6) which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst,
   - a gas inlet (7) beneath the delimitation (2) and
   - tubes (8) leading through the delimitation (2),
   - the space between the upper ends of the tubes (8) leading through the delimitation (2) and the lower ends of the tubes (6) into which the nozzles (5) open forming a mixing zone which is dimensioned so large that the mixing of the reactants exiting from these tubes with the catalyst can occur as early as here, a mixing zone of 25 to 300 mm being excluded.

* C L M S *

THIS SHEET HAS BEEN REPLACED

Supplement to description (to be incorporated between page 2 and 3)

EP-A-0 446 379 discloses a reactor for preparing α-β-unsaturated nitriles, in the lower part of which there is provided a horizontally arranged gas feed duct for an olefin or tertiary butyl alcohol, a multiplicity of nozzles being arranged on the underside of the gas feed duct, and also a further feed duct for an oxygen-containing gas which is arranged below and parallel to the other gas feed duct, the distance between the two gas feed ducts being 25 to 300 mm. A distance which is too short can lead to damage of the gas feed ducts by melting owing to an unusual reaction, while if the distance is too great the olefin or the tertiary butyl alcohol is not mixed sufficiently with the oxygen-containing gas, which reduces the yield of nitrile.

GB-A-1 265 770 discloses a reactor for fluid-bed reactions having a distributor plate in the lower part of the reactor; under the distributor plate there is provided a gas feed duct and in the outer region next to the reactor housing above and adjacent to the distributor plate there is provided a further gas feed duct. This further gas feed duct prevents the catalyst from settling in the outer region. This precaution serves, in particular, to prevent the catalyst from being reduced. Within the fluid bed there can be provided a further gas feed duct which is arranged in the lower part of the reactor so as to give good mixing of the reactants at the base of the fluid bed.

This Sheet Has Been Replaced

9706295-4
IPOS

gas inlet apparatuses, which leads to their frequent exchange, this signifying considerable outlay and additional costs owing to the interruption in production.

In addition to the necessary balance between the stability of the catalyst particles and the abrasion caused thereby, it must also be further ensured that the catalyst particles do not agglomerate, since agglomerates caused by this lead to disturbance of the fluid bed. The consequences would be a nonuniform temperature distribution in the fluid bed with a correspondingly less favorable reaction course, and, possibly, blockages at points of constriction in the apparatus, for example in cyclones for dust separation above the fluid bed or in descender pipes for returning the dust from these cyclones to the fluid bed. This tendency to agglomeration depends, in particular, on the concentration of the reaction gases in the fluid bed, in addition to the properties of the catalyst and its distribution on the catalyst support.

EP-A-0 446 379 discloses a reactor for preparing α-β-unsaturated nitriles, in the lower part of which there is provided a horizontally arranged gas feed duct for an olefin or tertiary butyl alcohol, a multiplicity of nozzles being arranged on the underside of the gas feed duct, and also a further feed duct for an oxygen-containing gas which is arranged below and parallel to the other gas feed duct, the distance between the two gas feed ducts being 25 to 300 mm. A distance which is too short can lead to damage of the gas feed ducts by melting owing to an unusual reaction, while if the distance is too great the olefin or the tertiary butyl alcohol is not mixed sufficiently with the oxygen-containing gas, which reduces the yield of nitrile.

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

GB-A-1 265 770 discloses a reactor for fluid-bed reactions having a distributor plate in the lower part of the reactor; under the distributor plate there is provided a gas feed duct and in the outer region next to the reactor housing above and adjacent to the distributor plate there is provided a further gas feed duct. This further gas feed duct prevents the catalyst from settling in the outer region. This precaution serves, in particular, to prevent the catalyst from being reduced. Within the fluid bed there can be provided a further gas feed duct which is arranged in the lower part of the reactor so as to give good mixing of the reactants at the base of the fluid bed.

WO 94/19099 discloses an apparatus for oxychlorination which comprises a reactor 1, a lower delimitation 2 for a fluid-bed catalyst 3, a gas inlet (distributor tube) 4 which contains nozzles 5, the nozzles 5 opening into tubes 6 which impart a horizontal component in the direction of flow to the exiting gas stream, and a gas inlet 9 beneath the delimitation 2.

Preferred embodiments are focused on said tubes, into which the nozzles open out, containing at the end guiding apparatuses having outlet orifices, or these tubes pointing at an angle upwards or in a horizontal direction or at an angle downwards and these tubes ending open in the catalyst bed, or these tubes or the outlet orifices of adjacent tubes being arranged in such a way that the effluent gas jets do not meet one another frontally and/or do not meet an adjacent tube. Other preferred embodiments are focused on tubes being run through the

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

REPLACEMENT SHEE
19 JUL 2000

delimitation, in which tubes nozzles are arranged beneath the delimitation, but above the lower end of the tubes which have been run through, these nozzles preferably being installed in the lower half of the tubes in question, in particular at a distance of about one tube diameter from the lower end.

It has now been found that this known apparatus, in long-term operation and with high throughputs, that is at high gas velocities, exhibits a certain abrasion in the gas inlet apparatuses. Surprisingly, it has further been found that this abrasion does not occur, or occurs only to a considerably reduced extent, if the tubes into which the nozzles open conduct the exiting gas stream essentially in the opposite direction to the gas stream which keeps the catalyst in the form of a fluid bed.

The invention thus relates to an apparatus for oxychlorination, which comprises

- a reactor 1,
- a lower delimitation 2 for a catalyst fluid bed 3,
- a gas inlet (distributor tubes) 4 above the delimitation 2 and within the catalyst fluid bed 3, which gas inlet contains nozzles 5 distributed over the entire cross section of the reactor 1,
- the nozzles 5 opening into tubes 6 which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst, and
- a gas inlet 7 beneath the delimitation 2.

The apparatus of the invention is advantageously designed so that there are arranged opposite the number of tubes 8 the same number of tubes 6, uniformly distributed over the cross section of a reactor 1. The alignment of the respective tubes 8 and 6 gives particularly a correspondence of the amounts of gases reacting with one another from the tubes 8 and 6.

In another embodiment of the apparatus of the invention,

REPLACEMENT S
19 JUL 200

an identical number of tubes 8 and 6 are situated opposite each other in a staggered manner. This geometry produces the lowest possible erosion of the tubes 6 due to the gas stream ascending from the tubes 8. Furthermore, this arrangement enables the reactants entering into the catalyst fluid bed 3 from the tubes 8 and 6 to be immediately exposed to an intimate contact with the catalyst. By this means, the desired reaction in the direction of the formation of EDC is promoted, and side reactions, for example the combustion of ethylene with oxygen, are suppressed.

A further embodiment of this apparatus permits greater freedom for its design and construction. In this case, the number of tubes 6 is different from the number of tubes 8. However, in this case also, the most uniform distribution possible of these tubes over the cross section of the reactor 1 is important. This form makes it possible to change the number of tubes 6 in an existing reactor, without at the same time adapting the tubes 8, which would signify a high expenditure.

The invention is described in more detail in the following example.

Example

An apparatus according to Figure 1 is used. The reactants preheated to 160°C are introduced in the gaseous state into a reactor 1 of diameter 2.8 m and height 26 m. A mixture of 5974 kg/h of hydrogen chloride and 1417 kg/h of oxygen flows through the gas inlet 4 via the nozzles 5 and the tubes 6 into the catalyst fluid bed 3. The nozzles 5 have different diameters, so that as uniform a gas distribution as possible is achieved at all nozzles 5 and thus over the cross section of the reactor 1. The diameter of the nozzles 5 increases in the downstream direction of the gas inlet 4 from 8.6 mm to 9.3 mm and

further to 10 mm, in order to compensate for the various pressure drops along the gas inlet up to the individual nozzles 5. The tubes 6 of an internal diameter of 40 mm have a length of 300 mm. 2380 kg/h of ethylene flow through the lower delimitation 2 via the gas inlet 7 and the tubes 8 containing the nozzles 9. In the reactor 1, there is situated as catalyst copper(II) chloride on an alumina support in the form of a catalyst fluid bed 3. The abovementioned reactants are introduced into this fluid bed. To fluidize the fluid bed, a circulated gas stream of 8780 kg/h additionally flows via the gas inlet 7 and the tubes 8 through the lower delimitation 2 into the reactor 1. The upper ends of the tubes 8 are flush with the lower delimitation 2. The distance between this lower delimitation and the lower ends of the tubes 6 is 400 mm. In this section, the reactants are distributed over the reactor cross section, and mixing zones between the individual reactants and the catalyst form. Ethylene and circulated gas flow from bottom to top in the reactor. On this path, they meet the hydrogen chloride and oxygen and react with interaction of the catalyst present to form EDC and water. The heat of reaction of 238.5 kJ/mol arising in this case is taken off via the catalyst fluid bed 3 to the cooling coil 12 in which water vaporizes at 183°C. The reaction temperature is 225°C at a gauge pressure of 3.2 bar in the reactor. The gas stream at the reactor top, comprising the reaction products and the circulated gas, leaves the reactor 1 via three cyclones for further processing (not depicted in the figure). The three cyclones connected in series serve for separating off the entrained catalyst dust from the gas stream at the reactor top above the catalyst fluid bed.

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

CLAIMS

1. An apparatus for oxychlorination, which comprises

- a reactor (1),
- a lower delimitation (2) for a catalyst fluid bed (3),
- a gas inlet (distributor tubes) (4) above the delimitation (2) and within the catalyst fluid bed (3), which gas inlet contains nozzles (5) distributed over the entire cross section of the reactor (1),
- the nozzles (5) opening into tubes (6) which conduct the exiting gas stream essentially in countercurrent to the gas stream which fluidizes the catalyst,
- a gas inlet (7) beneath the delimitation (2) and
- tubes (8) leading through the delimitation (2),
- the space between the upper ends of the tubes (8) leading through the delimitation (2) and the lower ends of the tubes (6) into which the nozzles (5) open forming a mixing zone which is dimensioned so large that the mixing of the reactants exiting from these tubes with the catalyst can occur as early as here, a mixing zone of 25 to 300 mm being excluded.

2. The apparatus as claimed in claim 1, which comprises tubes (8) leading through the delimitation (2), in which tubes nozzles (9) are arranged beneath the delimitation (2), but above the lower end of (8).

3. The apparatus as claimed in claim 2, wherein the nozzles (9) are installed at such a distance from the

* C L M S *

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

upper end of the tubes (8) that the upwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (9) has become uniform over the respective cross section of a tube (8) by the upper end of the tubes (8).

4. The apparatus as claimed in claim 3, wherein the nozzles (9) are installed at a distance of about one diameter of the tubes (8) from the lower end of the tubes (8).

5. The apparatus as claimed in claim 1, wherein the length of the tubes (6) is such that the downwards-directed flow velocity of the gas jets from the nozzles (5) has become uniform over the respective cross section of a tube (6) by the lower end of the tubes (6).

6. The apparatus as claimed in claims 1 and 5, wherein the nozzles (5) have different diameters, so that the gas conducted via the gas inlet (4) is uniformly distributed over the cross section of the reactor (1).

7. The apparatus as claimed in claims 1 to 6, wherein the space between the upper ends of the tubes (8) and the lower ends of the tubes (6) is dimensioned so that a high mutual erosive stress of the tubes (4,6,8) and of the lower delimitation (2) does not result.

8. Use of the apparatuses as claimed in claims 1 to 7 for the reaction of ethylene with hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas to give 1,2-dichloroethane.

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

* C L M S *

Apparatus and its use for oxychlorination

Abstract

The preparation of 1,2-dichloroethane from ethylene, hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas (oxychlorination) advantageously proceeds in a reactor having a lower delimitation for a catalyst fluid bed, a first gas inlet (distributor tubes) being arranged above the delimitation and within the catalyst fluid bed, which gas inlet contains nozzles distributed over the entire cross section of the reactor, these nozzles opening into tubes which conduct the exiting gas stream essentially in the opposite direction to the gas stream which fluidizes the catalyst, this gas stream being fed through a second gas inlet beneath the delimitation.

REPLACEMENT SHEET
19 JUL 2000

9706295-4

IPOS copy
+
IPER
+
Annexes
+
Translation

PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

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

(51) Internationale Patentklassifikation 6 :		(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:
B01J 8/24, C07C 17/15, 19/045	A1	WO 96/26003
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 29 August 1996 (29.08.96)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP95/01874

(22) Internationales Anmeldedatum: 17. Mai 1995 (17.05.95)

(30) Prioritätsdaten:
195 05 664.7 20. Februar 1995 (20.02.95) DE

(71) Anmelder: HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-65926 Frankfurt am Main (DE).

(72) Erfinder: KRUMBÖCK, Reinhard; Lohnerstrasse 40, D-84508 Burgkirchen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AM, AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, EE, FI, GE, HU, IS, JP, KG, KP, KR, KZ, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TT, UA, UZ, VN, ARIPO Patent (KE, MW, SD, SZ, UG), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht
Mit internationalem Recherchenbericht.
Mit geänderten Ansprüchen.

(54) Title: DEVICE AND USE THEREOF FOR OXI-CHLORINATION

(54) Bezeichnung: VORRICHTUNG UND IHRE VERWENDUNG ZUR OXICHLORIERUNG

(57) Abstract

The production of 1,2-dichloroethane from ethylene, hydrogen chloride and oxygen or an oxygen-containing gas (oxi-chlorination) is done advantageously in a reactor with a lower boundary for a catalyst-fluidised bed, a first gas inlet duct (distributor pipes) (4) being provided above the boundary within the catalyst-fluid bed. The first gas inlet duct is provided with nozzles (5) distributed over the entire cross-section of the reactor; these nozzles open out into pipes (6) which conduct the emerging gas stream in a direction essentially opposed to that of the gas stream which fluidises the catalyst after entering via a second gas inlet duct (7) below the boundary.

(57) Zusammenfassung

Die Herstellung von 1,2-Dichlorethan aus Ethylen, Chlorwasserstoff und Sauerstoff beziehungsweise einem sauerstoffhaltigen Gas (Oxichlorierung) erfolgt vorteilhaft in einem Reaktor mit einer unteren Begrenzung für ein Katalysator-Fließbett, wobei oberhalb der Begrenzung und innerhalb des Katalysator-Fließbettes eine erste Gaseinleitung (Verteilerrohre) (4) angeordnet ist, die über den gesamten Querschnitt des Reaktors verteilt Düsen (5) enthält, wobei diese Düsen (5) in Rohre (6) münden, die den austretenden Gasstrom im wesentlichen entgegen dem Gasstrom führen, der den Katalysator fluidisiert, wobei dieser Gasstrom durch eine zweite Gaseinleitung (7) unterhalb der Begrenzung zugeführt wird.

