

BREVET D'INVENTION

Gr. 14. — Cl. 1.

N° 1.011.483



Procédé et appareil pour le réglage de la température pendant la transformation de mélanges gazeux contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Allemagne.

Demandé le 17 février 1949, à 14^h 20^m, à Paris.

Délivré le 2 avril 1952. — Publié le 23 juin 1952.

(Brevet d'invention dont la délivrance a été ajournée en exécution de l'article 11, § 7, de la loi du 5 juillet 1844 modifiée par la loi du 7 avril 1902.)

Les mélanges gazeux contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène, qu'on obtient de préférence par le procédé de gaz à l'eau ou de carbonisation (cokéfaction), constituent la matière de départ pour de nombreuses synthèses suivant des procédés chimiques à l'échelle industrielle. Leur rapport CO : H² ne correspond guère, dans de nombreux cas, aux nécessités ou conditions requises par la synthèse considérée. Lorsqu'il est nécessaire d'augmenter la teneur en hydrogène, on décompose l'oxyde de carbone en acide carbonique et en hydrogène par conversion, en utilisant des catalyseurs et à l'aide de vapeur d'eau. A cet effet, on utilise comme catalyseur de conversion des oxydes métalliques et des mélanges de ceux-ci, mais en général on emploie simplement des masses d'oxyde de fer.

La transformation catalytique entre l'oxyde de carbone et la vapeur d'eau s'accompagne d'un certain dégagement de chaleur. Il en résulte que la température du gaz à transformer s'élève progressivement au fur et à mesure de son passage à travers la couche de contact. Cette augmentation de température modifie l'équilibre entre CO : H² et CO² : H², ce qui est défavorable à la formation d'hydrogène. Par conséquent, il est nécessaire de maintenir, pendant la conversion, les températures les plus basses possibles, dans la mesure où cela est compatible avec la vitesse de réaction.

En général, on opère de façon à diriger le gaz à transformer, après l'avoir mélangé à la quantité nécessaire de vapeur d'eau à 400° C environ, vers la première couche de catalyseur de contact de l'appareil convertisseur. Après avoir traversé les deux premières couches de catalyseur de contact, la température du gaz atteint déjà, en général, 500° C. Une température aussi élevée était défavorable à la continuation de la transformation, on a jusqu'ici refroidi le gaz après les deux premières couches de contact, à l'aide d'eau vaporisée. Ensuite on faisait circuler le gaz à travers une couche

d'une garniture composée par exemple d'anneaux de Raschig pour que le refroidissement et la répartition de la vapeur d'eau soient particulièrement efficaces.

Pendant, ce mode de traitement comporte de nombreux inconvénients. Par suite de la présence de composants minéraux dans l'eau, même lorsque celle-ci est purifiée, les buses de distribution ou de répartition se bouchent très souvent. Sur les couches de catalyseur de contact même, il se forme des dépôts salins qui donnent lieu à des difficultés considérables de traitement. Pour cette raison, on a abandonné le refroidissement du gaz par pulvérisation, malgré l'amélioration de l'équilibre chimique de la transformation que ce système permettait de réaliser.

Or, on a constaté qu'il est possible d'obtenir un refroidissement efficace du gaz à transformer et une répartition uniforme de l'eau nécessaire pour sa conversion ou transformation ultérieure, lorsque le gaz déjà partiellement converti à travers des couches de contact disposées en amont d'un appareil de vaporisation, et avant de traverser les couches de catalyseur de contact placées en aval de cet appareil de vaporisation est, en vue de son refroidissement, envoyé sur les surfaces d'échange de cet appareil en donnant naissance à de la vapeur d'eau qui se mélange au gaz. La valeur du refroidissement et de la quantité de vapeur mélangée peut être ainsi facilement réglée en fonction de la proportion suivant laquelle les surfaces d'échange de l'appareil de vaporisation, intercalé dans le circuit, sont mises en contact avec l'eau.

On a représenté schématiquement sur l'unique figure du dessin annexé un appareil destiné à la mise en application du procédé suivant l'invention :

Le chiffre de référence 1 désigne une tour cylindrique contenant dans sa partie supérieure les couches de catalyseur de contact 2 et 3 composées de masses d'oxyde de fer. Au-dessous de la couche

de contact 3 sont disposées des grilles 4 et 5 dans lesquelles sont ajustés ou sertis de nombreux éléments tubulaires verticaux 6. La zone de production de vapeur 7 ainsi formée a une hauteur de 1 m. 20, par exemple, et prend place à l'endroit des couches de garniture utilisées dans les appareils convertisseurs actuels, entre les différentes couches de contact. Cette disposition permet de transformer facilement les appareils convertisseurs de types anciens en appareils travaillant conformément à l'invention.

Au-dessous du fond 5 supportant les éléments tubulaires 6 on a disposé un fond 8 supportant des éléments en forme de cloche. Ce fond est destiné à accumuler l'eau pouvant s'écouler des éléments tubulaires 6 par défaut d'étanchéité, en empêchant que cette eau ne s'écoule sur les couches de contact 9 et 10 disposés au-dessous. Cette eau peut être dirigée vers un siphon 16 par l'intermédiaire d'une conduite 20. Au-dessous du fond 8 se succèdent vers le bas deux autres couches 9 et 10 de catalyseur de contact. La partie inférieure de l'appareil convertisseur est constituée par un échangeur de chaleur 11.

Le mélange de gaz et de vapeur à transformer pénètre dans l'appareil convertisseur en 12. Il traverse d'abord l'échangeur de chaleur 11 pour être dirigé, par la conduite 13, vers le sommet de l'appareil. Après avoir traversé les deux couches de contact 2 et 3 placées en haut de l'appareil, le gaz a une température d'environ 500° C. Cette température élevée donne lieu à un dégagement intense de vapeur d'eau au cours du passage du gaz à travers les éléments tubulaires 6 de la chambre 7. La vapeur d'eau ainsi produite est ramenée par une conduite 14 au mélange gazeux au-dessous de la deuxième couche 3 du catalyseur où elle produit une humidification uniforme du gaz 3. Cette disposition est particulièrement avantageuse car, par suite de la température élevée du gaz, il se produit de la vapeur surchauffée qui en se mélangeant ne produit aucune séparation d'eau.

La hauteur du niveau d'eau dans la chambre de vaporisation 7 peut être vérifiée à l'aide d'un voyant tubulaire extérieur 15 en verre. On peut régler ce niveau à l'aide d'un siphon 16 dont la branche d'écoulement 17 peut être fixée à la hauteur de niveau désirée. L'eau à vaporiser est introduite au moyen d'une conduite 18 et sa quantité peut être réglée automatiquement à l'aide de dispositifs de commande de tout type connu. Il est avantageux

d'utiliser de l'eau préalablement purifiée au moyen du procédé « Permutit ». Une conduite 19 de décharge permet d'évacuer les matières résiduelles de vaporisation.

Après avoir traversé les couches de contact 9 et 10, le gaz transformé cède les calories qu'il contient, à l'intérieur d'un échangeur de chaleur 11, aux gaz d'admission qui pénètrent en 12 et quitte l'appareil convertisseur par une conduite 22.

RÉSUMÉ.

La présente invention a pour objet :

A. Un procédé pour le réglage de la température dans la conversion de mélanges gazeux contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène sous l'action de masses de contact à base d'un oxyde métallique et de préférence d'oxyde de fer, ce procédé présentant les particularités suivantes considérées isolément ou en combinaison :

1° Le gaz, déjà partiellement converti par des couches de contact intercalées en amont d'un appareil de vaporisation, produit en circulant sur les surfaces d'échange de cet appareil de vaporisation et avant de passer à travers les couches de contact placées en aval dudit appareil de la vapeur d'eau qui est mélangée au gaz;

2° Le refroidissement du gaz se dirigeant vers la zone de transformation complémentaire est réglée en fonction de l'étendue de la surface chauffée en contact avec l'eau de l'appareil vaporisateur traversé par le courant gazeux.

B. Un appareil pour la mise en œuvre du procédé ci-dessus, présentant les caractéristiques suivantes considérées isolément ou en combinaison :

1° Le dispositif se compose d'un générateur de vapeur à éléments tubulaires, incorporé dans la section de l'appareil convertisseur au moyen de deux fonds supportant les éléments tubulaires à travers lesquels on fait circuler le mélange gazeux à transformer, tandis que l'espace intérieur du générateur reçoit l'eau à vaporiser dont le niveau peut être réglé à l'aide d'un joint à siphon;

2° Au-dessous du fond inférieur du générateur de vapeur est disposé un autre fond muni d'éléments en forme de cloche, sur lequel s'accumule l'eau qui s'échappe du générateur par suite de la non-étanchéité de celui-ci.

Société dite :

RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT.

Par représentation :

G. BEAU DE LOMÉNIS, André ARMENGAUD & G. HOUSSARD.

