

**Procédé pour effectuer l'hydrogénation de l'oxyde de carbone dans un four de contact refroidi par de l'eau sous pression.**

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Allemagne.

Demandé le 17 février 1949, à 14<sup>h</sup> 21<sup>m</sup>, 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.)*

Pour effectuer l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone on utilise des fours de contact dans lesquels la matière de contact est logée soit dans des tubes, soit dans des poches en tôle. Les gaz de synthèse circulent de haut en bas à travers les garnitures de contact. Pour disperser la chaleur produite par la synthèse on refroidit les tubes ou poches de tôle à l'aide de liquides susceptibles de s'évaporer, et plus spécialement à l'aide d'eau sous pression.

On a représenté schématiquement sur le dessin annexé une disposition habituelle pour un appareillage de synthèse travaillant sous pression moyenne. Sur l'unique figure du dessin, on voit en 1 le four de contact qui comprend de nombreux tuyaux 2 disposés verticalement et qui sont remplis du catalyseur choisi qu'une tôle perforée 3 empêche de tomber. Les gaz de synthèse pénètrent en 4 dans le four de contact, tandis que les produits de la synthèse, accompagnés des gaz résiduels non transformés, sont évacués en 5. Dans le cas de synthèse sous pression normale ou sous basse pression, on remplace généralement le four à éléments tubulaires par un four à lamelles ou ailettes intérieures, dans lequel le passage du gaz s'effectue de la même façon.

Au-dessus du four de synthèse on dispose un réservoir ou collecteur à vapeur 6 dont on peut prélever la vapeur produite à travers la conduite 7. L'eau de refroidissement circule du fond du réservoir 6 à la partie inférieure du four de synthèse en empruntant la conduite 8. A l'extrémité supérieure du four de synthèse, cette eau, réchauffée, est renvoyée au collecteur 6 par l'intermédiaire de la conduite 9. Une conduite 10 alimente le collecteur 6 avec la quantité d'eau correspondant à la quantité de vapeur extraite du collecteur.

Ces types de fours de synthèse présentent l'inconvénient de produire la plus grande partie de la transformation dès la partie supérieure de la gar-

niture de contact, avec une perte considérable de chaleur, alors que dans la partie inférieure de la garniture de contact, il ne se produit qu'une conversion plus réduite du gaz. Par suite de la perte considérable de chaleur, la température de contact reste, dans la partie supérieure des tuyaux de contact et malgré la circulation de l'agent réfrigérant, supérieure à la température des couches de contact inférieures. Cela a pour conséquence d'intensifier localement la transformation, ce qui produit une utilisation très irrégulière du catalyseur de contact.

Or, on a constaté qu'il est possible de réaliser, dans l'installation ordinaire d'un four de synthèse, une charge et une utilisation considérablement mieux réparties du catalyseur de contact, si l'eau de refroidissement revenant vers le four de contact, est soumise à un réchauffage immédiatement avant son entrée dans la partie inférieure du four de contact. Ainsi, les couches inférieures de contact subissent une légère élévation de température jusqu'à la température régnant dans la partie supérieure de la garniture de contact. Cette élévation de températures, pourtant faible par rapport aux modes opératoires utilisés jusqu'ici, détermine déjà une petite amélioration de la transformation dans les couches inférieures de contact. Par ce moyen, on libère dans la masse supérieure des chaleurs de réaction, ce qui a pour conséquence une autre augmentation de la température de contact et, de ce fait, un accroissement léger et répété de la transformation. On peut ainsi, par un réchauffage de l'agent réfrigérant restitué à l'appareil, améliorer d'une façon surprenante l'uniformité d'action de la charge de catalyseur de contact.

L'augmentation de la température de l'eau de refroidissement immédiatement avant son admission dans le four de contact et conformément à la présente invention, peut être assurée de différentes façons. Par exemple, on peut par un échangeur de chaleur 11 agir par chauffage indirect de l'agent

réfrigérant. Le dispositif de chauffage 11 est prévu, de préférence, dans une branche ascendante d'un tuyau en U 12 afin d'éviter toute perturbation du sens de circulation thermique de l'agent réfrigérant.

On obtient des résultats analogues lorsqu'on introduit, dans le fond du four de contact et par l'intermédiaire d'une conduite 13, de la vapeur d'eau additionnelle surchauffée. La conduite de vapeur 13 peut être soit commune avec la conduite de retour en U 12 précitée, soit distincte de ce tuyau et peut alors déboucher en un point supérieur ou inférieur dans la chambre de refroidissement du four de contact. La chaleur de condensation de la vapeur introduite détermine à l'extrémité inférieure des tuyaux de contact, l'augmentation désirée de la température de contact.

Lorsqu'on effectue l'hydrogénation de l'oxyde de carbone à l'aide d'un catalyseur de contact en cobalt, la température régnant dans la partie supérieure de la garniture de contact est, par exemple, de 190° C, alors que dans les couches de contact inférieures elle n'atteint que 184° C. Grâce à la disposition suivant l'invention, on parvient à maintenir la température de l'eau de refroidissement aussi bien dans la partie supérieure que dans la partie inférieure de la garniture de contact, à 190° C environ. Ceci s'applique également au cas

de l'hydrogénation de l'oxyde de carbone par un catalyseur de contact en fer, où l'on travaillait jusqu'ici aux extrémités supérieure et inférieure de la garniture de contact à des températures respectives, par exemple de 225° C et 219° C. Dans ce cas également, la disposition suivant l'invention permet de maintenir uniformément la température de l'eau de refroidissement en haut et en bas à 225° C.

#### RÉSUMÉ.

La présente invention a pour objet :

Un procédé pour effectuer l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone dans un four de contact refroidi par de l'eau sous pression, caractérisé par les points suivants pris séparément ou en combinaison :

1° L'agent réfrigérant renvoyé au four de contact est réchauffé à proximité de son point de réadmission dans la partie inférieure du four de contact;

2° On introduit de la vapeur surchauffée dans la chambre de circulation de l'agent réfrigérant, dans le bas du four de contact parallèlement ou confondu avec le retour de cet agent réfrigérant.

Société dite :

**RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT.**

Par procuration :

G. BEAT DE LOUËSIE, André ARMENGAUD & G. HOUSSARD.

