

Four de catalyse pour la conduite de réactions catalytiques entre gaz.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT et Société dite : LUTICI GESELLSCHAFT FÜR WÄRMETECHNICK M. B. H. résidant en Allemagne.

Demandé le 1^{er} octobre 1952, à 13^h 36^m, à Paris.

Délivré le 24 février 1954. — Publié le 27 juillet 1954.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 6 octobre 1951, au nom de Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT.)

La conduite de réactions catalytiques entre gaz est en général liée au dégagement de grandes quantités de chaleur. Dans certains cas, des réactions de ce genre absorbent cependant de la chaleur de telle sorte qu'il est nécessaire de fournir de la chaleur sous forme appropriée. Au cours du développement de la grosse industrie chimique, on construit des récipients pour des réactions exothermiques ou endo-thermiques entre gaz tenant compte des données exactes de la technique de la chaleur et de la pression. Par exemple pour les opérations industrielles de l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone en vue de la préparation d'hydrocarbures, c'est-à-dire un processus fortement exothermique pour la synthèse dite sous pression normale s'est développée la fabrication de fours pour l'échange de chaleur (fours lamellaires), dans lesquels l'espace de catalyse est traversé par de nombreux tubes de refroidissement horizontaux perpendiculairement auxquels se trouvent, à des intervalles déterminées des lames traversant entièrement le four et entre lesquelles est placée la masse de catalyse. Pour des synthèses à des pressions de 5-15 atmosphères environ, on a construit des fours dans lesquels le catalyseur se trouve entre deux tubes disposés concentriquement. Un nombre correspondant de ces éléments tubulaires doubles sont réunis dans un récipient d'eau sous pression et sont entourés par de l'eau bouillante. On a proposé aussi, pour l'hydrogénation de l'oxyde de carbone conduite sous pression, de disposer, dans des tubes de réaction verticaux, des tubes de refroidissement entre lesquels se trouve la masse du catalyseur. La chaleur de réaction cédée à ces tubes de refroidissement est transmise par les parois à un fluide de refroidissement liquide qui peut être, à son tour, refroidi en dehors de l'espace de réaction.

Une construction particulièrement avantageuse, au point de vue de la technique de la chaleur et de la pression, des fours de catalyse pour la conduite

de réactions catalytiques entre gaz, de préférence pour l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone, qui comprend un récipient de réaction résistant à la pression, dans lequel est disposé un système de tubes entièrement soudés rempli d'un agent de chauffage ou de refroidissement, est caractérisée par le fait que plusieurs, par exemple 3, tubes en épingle à cheveux emboîtés les uns dans les autres sont réunis en éléments, auquel cas les tubes conduisant l'agent de refroidissement ou de chauffage se dirigeant vers le haut débouchent, à leur extrémité supérieure, dans des tubes collecteurs qui de leur côté sont reliés, par des tubes ascendants, à un collecteur principal se trouvant en tête du récipient de réaction, duquel on peut soutirer, par exemple dans le cas d'emploi de l'eau sous pression comme agent de refroidissement, de la vapeur sous pression. En même temps les tubes contenant l'agent de refroidissement ou de réchauffage descendant, conduisent à leur extrémité supérieure à des tubes collecteurs, qui sont reliés, à leur tour, par des conduites à des tubes collecteurs intermédiaires transversaux et traversant la paroi du four auquel cas on soutire par pompage, du collecteur principal dont l'extrémité sort du tube de réaction, l'agent de refroidissement ou de réchauffage et on l'envoie dans les deux collecteurs intermédiaires sortant également du récipient de réaction.

En intercalant une pompe, on peut réaliser une circulation de l'agent de réchauffage ou de refroidissement convenant dans tous les cas aux conditions pour l'élimination ou pour l'apport de chaleur. On peut, en même temps, choisir la direction de circulation de l'agent de réchauffage ou de refroidissement dans les tubes. Par un dispositif approprié de commande de l'ensemble des pompes on peut rendre l'appareil de catalyse réversible en ce qui concerne le sens de circulation. La chaleur ou le froid récupéré de l'espace réactionnel proprement dit sont disponibles pour d'autres buts, par exemple

pour le refroidissement ou le réchauffage de gaz servant de milieu de travail ou pour l'obtention de vapeur.

Le four de catalyse peut être construit de telle sorte que le collecteur intermédiaire et le collecteur pour l'alimentation du fluide de refroidissement au collecteur principal soient disposés au-dessous de la couche de catalyseur, auquel cas, au lieu de tubes en épingle à cheveux, des tubes droits conduisent aux collecteurs supérieurs pour l'agent de refroidissement sortant, collecteurs qui sont également reliés au collecteur principal de telle sorte que la circulation de l'agent de refroidissement peut avoir lieu aussi bien à l'aide d'une pompe que naturellement, à savoir sous l'action d'un thermo-siphon.

La liaison au point de vue de la soudure des tubes de refroidissement en épingle à cheveux a lieu de telle sorte que le tube collecteur est pourvu à une distance aussi faible que possible de collets auxquels les tubes de refroidissement sont soudés. De cette manière il y a partout le même espace pour la masse de catalyseur c'est-à-dire qu'à chaque endroit il y a le même écart entre deux tubes de refroidissement.

Les avantages du four de catalyse suivant l'invention résident dans la possibilité du réglage de la température dans des limites très étroites et le maintien de la même température dans toutes les parties du four de catalyse. La disposition particulière du système de tube permet de contrôler les pressions élevées de l'agent de refroidissement qui peuvent être notablement plus élevées que la pression du gaz dans l'espace de catalyse entourant le système de tubes.

En général, on préfère, pour des questions de conduite de l'opération utiliser un refroidissement par eau. L'eau bouillante offre, par suite de sa chaleur de vaporisation élevée, en tant qu'agent de refroidissement la garantie la meilleure pour l'élimination de la chaleur de réaction considérable dégagée dans de nombreuses réactions entre gaz. En outre, l'eau bouillante permet, de la manière la plus simple, la transformation directe de la chaleur de réaction éliminée sous forme de vapeur utilisable.

On a représenté sur la figure 1 une coupe longitudinale du four de catalyse. Le four se compose d'un récipient de réaction 1 résistant à la pression, cylindrique, dont la partie inférieure a une forme conique tandis que la partie supérieure peut être fermée par un couvercle 2 bombé amovible. Dans la chemise cylindrique est monté un collecteur principal 3, dont une extrémité se trouve dans l'espace intérieur et dont la tête fait saillie hors du récipient. Au-dessous du collecteur principal sont disposés parallèlement deux collecteurs intermédiaires 4 de diamètre inférieur qui sont placés horizontalement de façon analogue. Au-dessous des deux collecteurs intermédiaires 4 sont disposés perpendicu-

lairement à ceux-ci deux séries de tubes collecteurs qui ne sortent pas du récipient de réaction cylindrique. La série supérieure 5 de ces collecteurs est reliée directement au collecteur principal par des tubes pénétrant dans ce dernier. Des deux collecteurs intermédiaires 4 partent des tubes droits vers la série inférieure des tubes collecteurs 6.

Chaque ensemble de trois tubes en épingle à cheveux emboîtés l'un dans l'autre est donc connecté de telle sorte que, de la série inférieure 6, trois tubes conduisent l'agent de refroidissement ou de réchauffage descendant, tandis que la partie montante de ces trois tubes conduit à la série supérieure des tubes collecteurs 5. A partir du collecteur principal 3, l'agent de réchauffage ou de refroidissement est amené, par des tubulures d'aspiration, à une pompe qui refoule, par des tubulures 8, l'agent de refroidissement ou de réchauffage dans les deux collecteurs intermédiaires 4 à partir desquels il est envoyé par des tubes à la série inférieure des tubes collecteurs 6; à cet endroit il pénètre dans des tubes en épingle à cheveux 14 et après avoir traversé ceux-ci, il est envoyé à la série supérieure 5 des tubes collecteurs. De là, le fluide de réchauffage ou de refroidissement est envoyé à nouveau au collecteur principal 3. Lors de l'emploi d'eau, éventuellement sous pression, comme agent de refroidissement, on peut soulever du collecteur principal 3 de la vapeur sous pression.

L'élimination ou l'apport de chaleur obligatoire pour régler la réaction peut en outre être réalisé au moyen d'un échangeur de chaleur interposé sur la conduite d'aspiration ou de compression de la pompe rotative. L'échangeur de chaleur peut être rendu apte à fournir de la chaleur ou du froid.

Dans toute la section au-dessous des deux séries de tubes collecteurs 5 et 6, les tubes en épingle à cheveux présentent la répartition suivante : les tubes connectés trois par trois forment un triangle équilatéral de telle sorte que chaque tube soit à la même distance du point central des espaces intermédiaires et en même temps possède la même surface de refroidissement.

Au-dessus des tubes en épingle à cheveux se trouvent également des tamis 9 amovibles qui supportent toute la masse de catalyseur. Ces tamis peuvent être actionnés, de l'extérieur, par un levier 10. Au-dessous de la partie conique se trouve un fond 11 amovible qui porte, en son milieu, des tubulures 12 pour la sortie des gaz. Les gaz de réaction sont introduits par les tubulures 13 dans le four de catalyse.

La figure 2a montre une coupe longitudinale après rotation de 180°. Le demi-cercle inférieur de la figure 2b représente une section de la moitié du four au-dessus de la série 5 de tubes collecteurs. Le demi-cercle supérieur de la figure 2b représente une section de la moitié du four au-dessous des

tubes collecteurs 6. Chaque groupe de deux collecteurs, se trouvant côte à côte, des séries de tubes collecteurs 5 et 6 forme un élément de tubes, dans lequel suivant l'espace disponible plusieurs groupes de tubes en épingle à cheveux sont réunis. De même les tubes transportant le fluide vers le haut, conduisant au tube collecteur principal ou aux tubes collecteurs intermédiaires sont disposés constamment par paires. Sur le demi-cercle supérieur de la figure 2b, on voit que les tubes de refroidissement ou de réchauffage sont arrangés de telle sorte que l'on dispose pratiquement partout du même espace pour la masse de catalyse, de telle sorte qu'on est assuré d'obtenir un apport régulier ou une élimination régulière de la chaleur de réaction. Entre les tubes extérieurs et la chemise du four est prévue une couche isolante 15 qui doit empêcher que, entre la chemise du four et la masse et les tubes extérieurs, la masse de catalyse puisse stationner, garantissant en même temps ainsi l'écart entre les surfaces de refroidissement.

La figure 3a représente, en coupe, un tube collecteur avec les tubes soudés. Les collets sont visibles sur la figure.

La figure 3b représente la réalisation des tubes en épingle à cheveux après une rotation de 180° par rapport à 3a.

La figure 4 montre une forme de réalisation du four de catalyse, dans laquelle la circulation du fluide de refroidissement ou de réchauffage peut avoir lieu non seulement grâce à une pompe mais aussi par un thermo-siphon (circulation naturelle).

Dans cette forme de réalisation, les collecteurs intermédiaires 4 et les tubes collecteurs 6 sont disposés au-dessous de la masse de catalyse. Au lieu de tubes en épingle à cheveux, des tubes droits 16 conduisent au collecteur supérieur pour l'agent de réchauffage ou de refroidissement sortant, tubes qui sont reliés directement avec le collecteur principal 3.

Le retour a lieu par circulation naturelle de la tubulure d'écoulement 7 aux tubulures 8 dans le cas du refroidissement (réaction exothermique) ou dans la direction inverse en passant par un système réchauffeur dans le cas de réchauffage (réaction endothermique). Comme dans le premier cas, on peut soutirer ici aussi, dans le cas d'une marche exothermique, par détente dans le collecteur 3, de la vapeur et de même que, par un échangeur de chaleur intercalé sur la conduite de liaison entre 7 et 8 on peut, éliminer la quantité nécessaire de chaleur. L'échangeur peut être construit de telle sorte qu'on peut l'utiliser pour produire du froid ou de la chaleur.

La figure 5 représente la même coupe que la figure 4 après rotation de 180°.

RÉSUMÉ

La présente invention a pour objet un four de catalyse pour la conduite de réactions catalytiques entre gaz de préférence pour l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone, se composant d'un récipient de réaction résistant à la pression dans lequel est disposé un système de tubes entièrement soudés remplis d'un fluide de réchauffage ou de refroidissement, four de catalyse présentant les particularités suivantes considérées isolément ou en combinaison :

1° Plusieurs, par exemple trois tubes en forme d'épingle à cheveux emboîtés l'un dans l'autre, sont connectés pour former des éléments, les tubes conduisant l'agent de réchauffage ou de refroidissement ascendant débouchant à leur extrémité supérieure dans des tubes collecteurs qui, de leur côté, sont reliés par des tubes ascendants avec un collecteur principal, se trouvant en tête du récipient de réaction, duquel on peut soutirer, par exemple dans le cas d'emploi d'eau sous pression comme agent de refroidissement, de la vapeur sous pression, tandis que les tubes conduisant l'agent de refroidissement ou de réchauffage descendant conduisent, à leur extrémité supérieure, à des tubes collecteurs qui sont reliés, à leur tour, à des tubes collecteurs intermédiaires perpendiculaires qui traversent les parois du four, et à partir du collecteur principal dont l'extrémité fait saillie hors du four l'agent de refroidissement ou de réchauffage est aspiré à l'aide de pompe et est envoyé sous pression dans les deux collecteurs intermédiaires sortant également du récipient de réaction.

2° Les collecteurs intermédiaires et les collecteurs pour l'alimentation du fluide de refroidissement à partir du collecteur principal sont disposés au-dessous de la couche de catalyseur, auquel cas, au lieu de tubes en épingle à cheveux, des tubes droits conduisent au collecteur supérieur pour l'agent de refroidissement sortant, tubes qui sont également reliés au collecteur principal de telle sorte que la circulation du fluide de refroidissement peut soit être provoquée par une pompe, soit avoir lieu naturellement (thermo-siphon).

3° La liaison par soudure des tubes de réchauffage ou de refroidissement en épingle à cheveux avec les collecteurs a lieu de telle sorte que les tubes collecteurs sont prévus à des distances aussi faibles que possible avec des collets auxquels les tubes sont soudés de telle sorte que partout on dispose du même espace pour la masse de catalyse et que l'écart des tubes est aussi faible que possible.

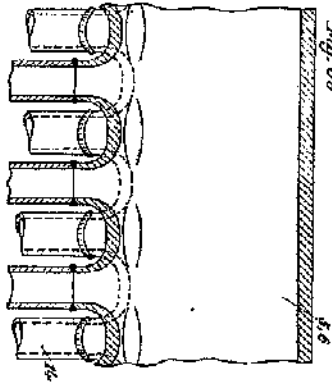
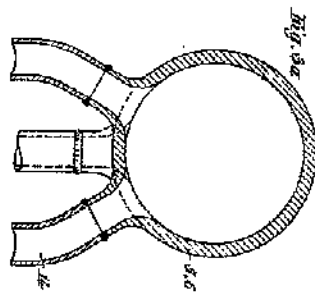
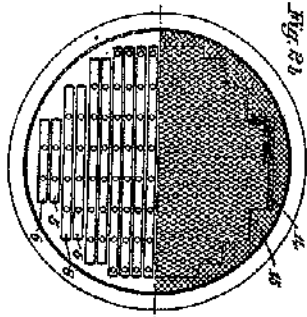
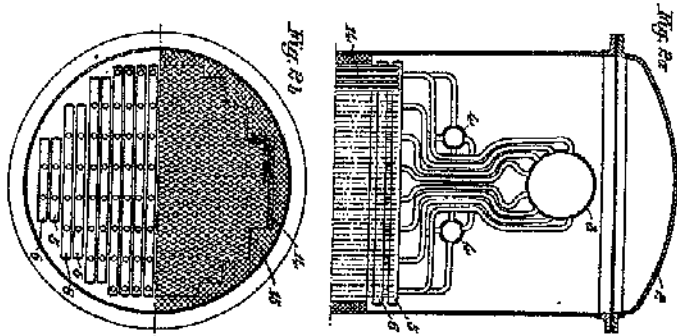
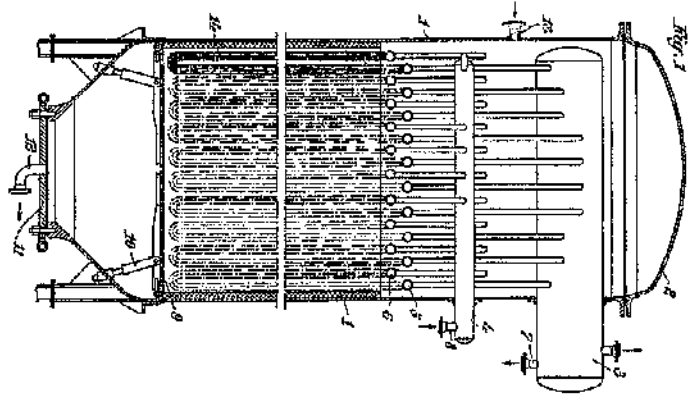
Société dite : RUIRCHEMIE AKTIENGESSELLSCHAFT

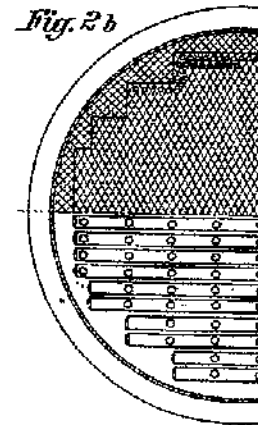
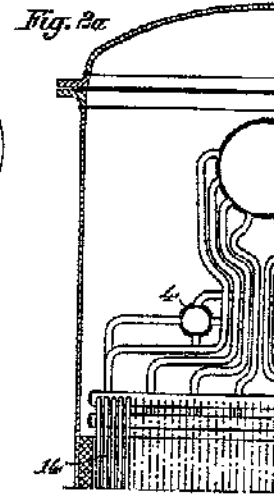
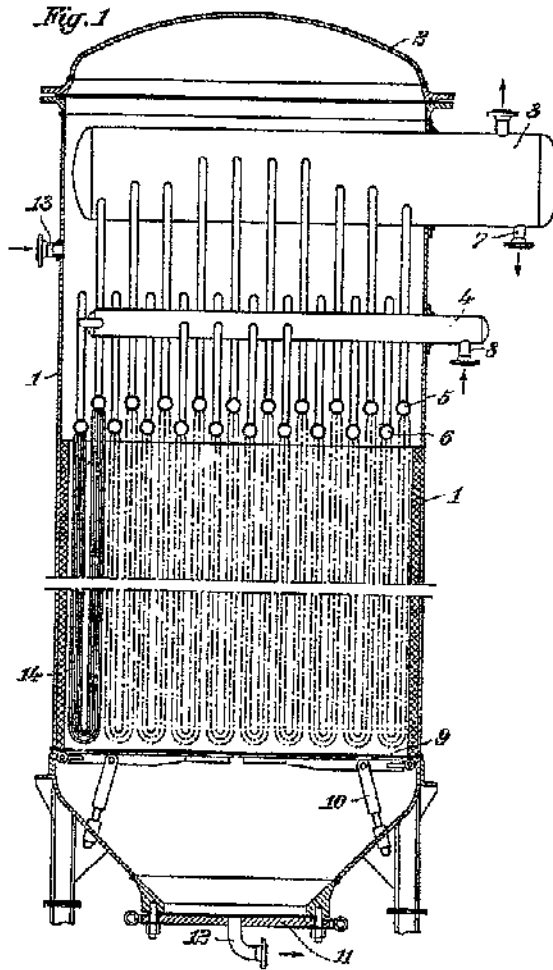
et Société dite :

LURGI GESSELLSCHAFT FÜR WÄRMETECHNIK M. B. H.

Par procuration :

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





Société dite :
Bijouerie et Bijouterie
et Société dite :
Lurgi (Gesellschaft für Wärmetechnik m. b. H.)

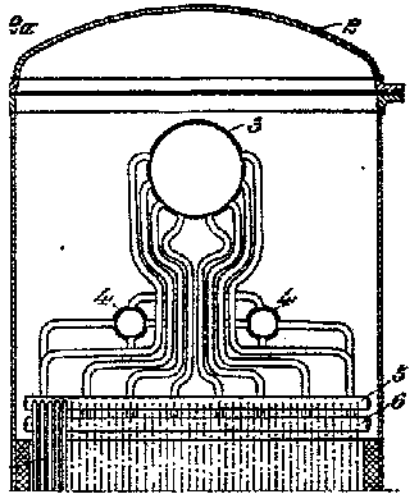


Fig. 3a

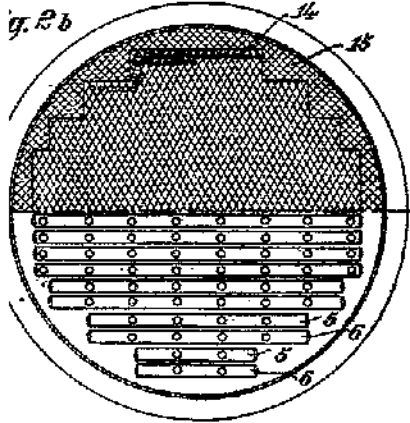
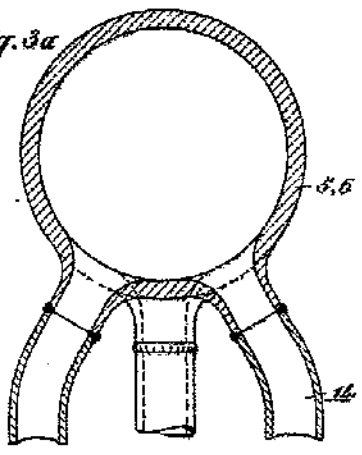
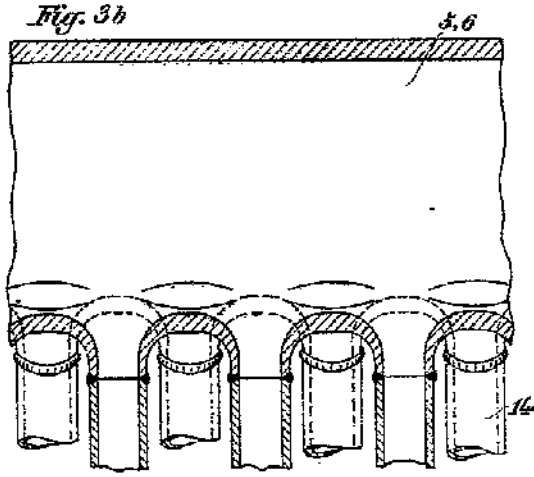


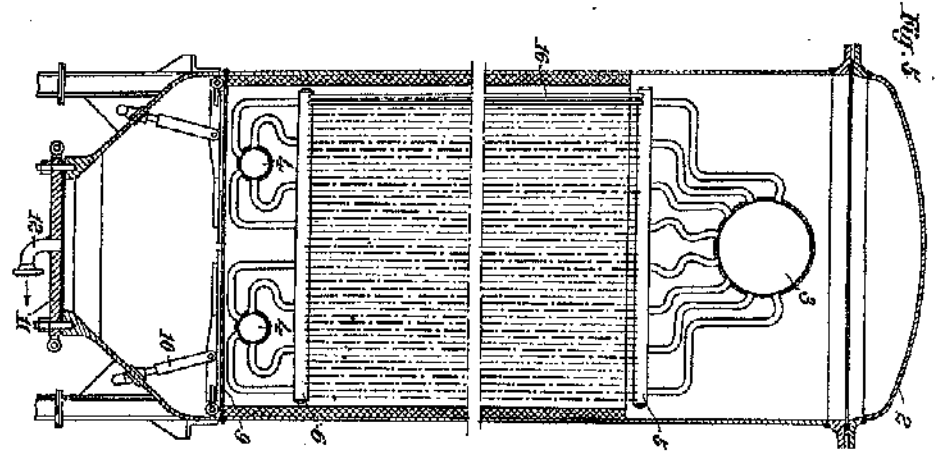
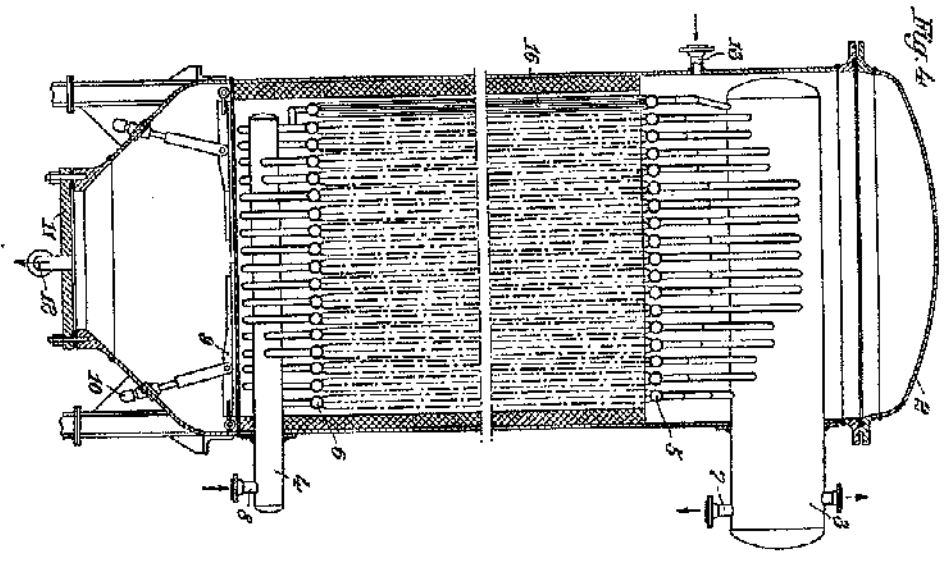
Fig. 3b



N^o 1590,487

Société dite :
Kuhnenrie Aktiengesellschaft
et Société dite :
Langt Gesellschaft für Wärmetechnik m. b. H.

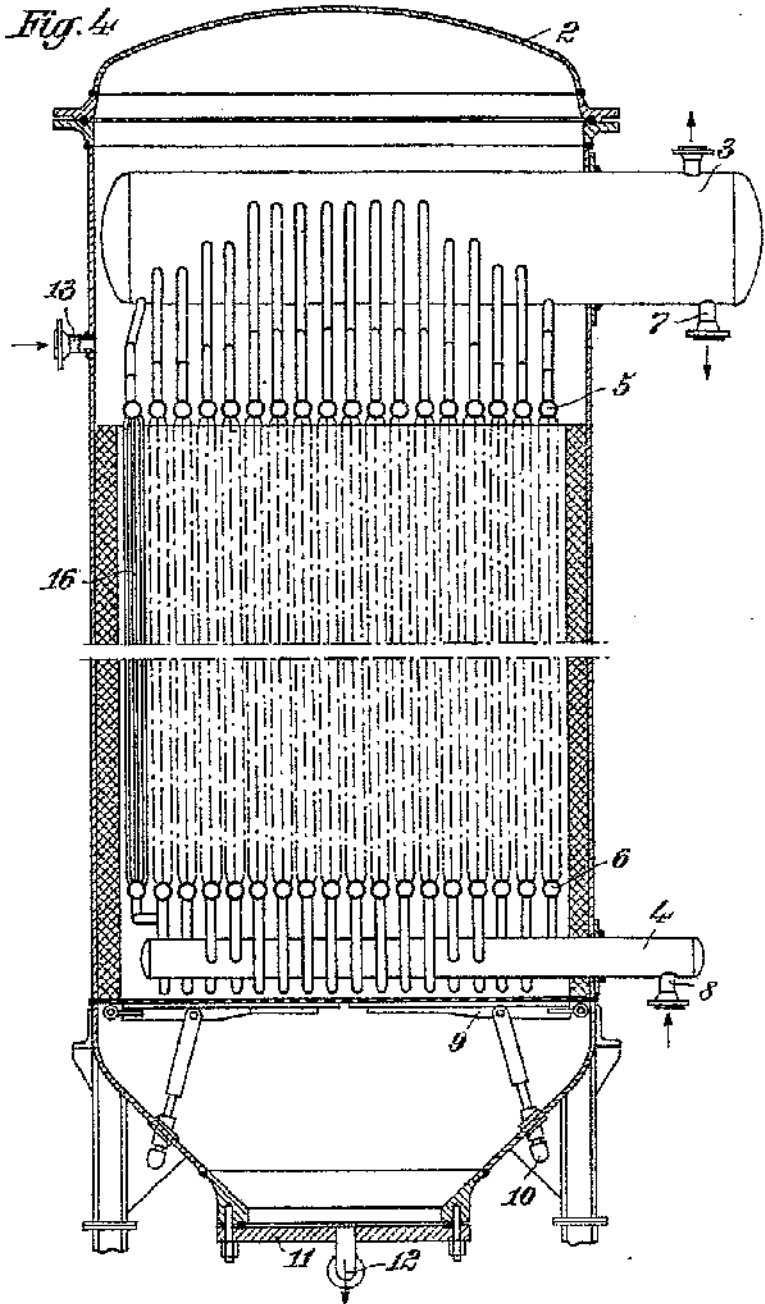
2 planches ... Pl. II



N° 1.070.487

Société dite :
Ruhrahemie Aktienges
et Société dite
Lurgi Gesellschaft für Wärmet

Fig. 4



Société dite :
Archemie Aktiengesellschaft
et Société dite :
Gesellschaft für Wärmetechnik m. b. H.

2 planches. — Pl. II

