



Four pour catalyses.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT et Société dite : LURGI GESELLSCHAFT FÜR WÄRMETECHNIK M. B. H. résidant en Allemagne.

Demandé le 14 novembre 1952, à 13^h 49^m, à Paris.

Délivré le 17 mars 1954. — Publié le 13 septembre 1954.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 1^{er} avril 1952, au nom de Société dite : METALLGESELLSCHAFT AKTIENGESELLSCHAFT.)

Pour effectuer la synthèse de Fischer-Tropsch sous pression normale ou peu élevée on a employé des fours à catalyses dont les systèmes réfrigérants étaient constitués par plusieurs paquets d'ailettes traversés par des faisceaux tubulaires refroidis au moyen d'eau bouillante sous pression. Dans le cas de la synthèse sous pression moyenne le catalyseur était logé dans des tubes verticaux ou entre des tubes doubles concentriques, la distance entre le tube intérieur et le tube extérieur étant en ce cas d'environ 10 mm. Le four à catalyses contenait environ 2 000 de ces tubes doubles. On y faisait passer par heure 100 m³ de gaz à synthèse par mètre cube de catalyseur. Les gaz à traiter pour la production d'hydrocarbures et de dérivés de ceux-ci par hydrogénéation catalytique de l'oxyde de carbone y étaient introduits à la température à laquelle ils se présentaient. Il était alors indifférent que ces gaz fussent à la température de synthèse ou à des températures sensiblement inférieures, parce que même froids ces gaz se trouvaient très rapidement portés à la température de réaction après leur entrée en contact avec le catalyseur. Dans les fours récemment proposés on opère avec des taux horaires d'alimentation variant de 500 à 1 000 m³ et des vitesses de passage qui sont de 50 à 100 fois supérieures à celles qu'on employait primitivement pour la synthèse de Fischer-Tropsch. On constate ici qu'au lieu de réagir immédiatement les gaz qu'on amène au four à des températures sensiblement inférieures à la température de réaction doivent parcourir au sein du catalyseur un trajet considérable, pouvant atteindre par exemple 1 ou 2 mètres, avant que la réaction s'amorce franchement. C'est pourquoi il y a intérêt à porter ces gaz à la température de synthèse avant qu'ils pénètrent dans le catalyseur. Toutefois, ce chauffage préparatoire des gaz soulève des difficultés, car suivant le taux d'alimentation et les

autres conditions opératoires les températures de réaction varient et il faut de même modifier en conséquence la température de préchauffage.

La présente invention remédie désormais à cet inconvénient du fait que, pour échauffer les gaz à introduire dans les fours à catalyse, on emploie des chauffe-gaz qui sont eux-mêmes chauffés positivement en fonction de la température de synthèse. L'invention s'applique de préférence au cas de fours à catalyse de grande capacité dans lesquels on peut loger une quantité considérable de catalyseur grâce à l'emploi de tubes, garnis de catalyseur, ayant une longueur supérieure à 5 m, avantageusement de 10 à 20 m. et un diamètre supérieur à 15 mm, avantageusement de 30 à 100 mm. Suivant l'invention, le préchauffage des gaz admis dans les fours à catalyse pour la transformation par hydrogénéation de l'oxyde de carbone en hydrocarbures ou en composés organiques oxygénés ou en mélanges de ces substances s'effectue au moyen des vapeurs dégagées dans le four à catalyse, par exemple dans un chauffe-gaz fonctionnant par échange indirect de chaleur et dans lequel des vapeurs de réfrigérant engendrées dans le four à catalyse servent d'agent de chauffage, par exemple se condensent. On obtient ainsi ce résultat que la température de préchauffage se trouve réglée automatiquement en fonction de la température de réaction. Suivant l'aire chauffante qu'on utilise on peut maintenir la différence entre la température de préchauffage et la température de réaction à la valeur désirée dans chaque cas, par exemple de 3 à 10° ou plus, par exemple jusqu'à 50°C. On peut, par exemple, disposer le chauffe-gaz dans le four à catalyse lui-même, ou l'intercaler dans la conduite par laquelle les vapeurs de réfrigérant sont évacuées du four à catalyse et dont, en général, une partie seulement se condense dans le chauffe-gaz tandis qu'on peut utiliser le

surplus de manière connue pour récupérer la chaleur qu'il contient encore, par exemple pour produire de la vapeur d'eau.

Par exemple, dans la partie supérieure d'un four à catalyse, où le catalyseur est logé dans des tubes d'un diamètre d'environ 30 à 100 mm et pouvant avoir une hauteur de 4 à 20 m, on dispose un certain nombre de tubes spiraux ou autres éléments chauffants à travers lesquels les vapeurs d'agent réfrigérant s'échappent de la chambre de refroidissement. On peut ramener directement dans celle-ci le condensat qui se forme dans les serpentins. L'excédent de vapeurs de réfrigérant sera évacué de la chambre de refroidissement, par exemple, par une conduite spéciale et pourra être utilisé de manière connue. Quant au gaz à chauffer, on le répartit depuis la conduite d'amenée dans l'espace compris entre les serpentins, d'où il se rend dans les tubes de catalyse.

Cependant, on peut aussi monter l'échangeur de chaleur à l'extérieur du four à catalyse dans la conduite d'amenée du gaz, on le pourvoit d'une conduite pour amener de la chambre de refroidissement du four à catalyse les vapeurs d'agent réfrigérant et d'une autre conduite pour ramener dans ces chambres le condensat formé dans les serpentins.

Cependant, on peut aussi choisir d'autres constructions d'échangeur de chaleur, par exemple du type à tubes horizontaux ou hélicoïdaux, et l'on peut aussi faire passer le gaz à travers les tubes et baigner des vapeurs de réfrigérant l'extérieur de ceux-ci. Dans bien des cas, on emploiera souvent des tubes présentant d'un côté une surface d'échange thermique plus grande, afin de compenser la médiocre transmission de chaleur du côté du gaz comparativement à la bonne transmission de chaleur du côté du réfrigérant, par exemple aussi des tubes à ailettes ou des dispositifs analogues.

Un exemple d'exécution d'un appareil suivant l'invention est représenté au dessin.

On a choisi comme exemple un four pour catalyses à échangeur de chaleur encastré. Le four à catalyse se compose d'une enveloppe 1 stable à la pression ayant un diamètre de 3 000 mm et dans sa partie cylindrique une hauteur de 12 m et dans laquelle sont montées une plaque tubulaire supérieure 2 et une plaque tubulaire inférieure 3. Dans ces deux plaques tubulaires sont soudées à l'auto-gène 2 000 tubes de catalyse 4 ayant un diamètre extérieur de 50 mm et une épaisseur de paroi de 2 mm, leur longueur étant de 12 m. Dans ces tubes de catalyse se trouve le catalyseur qui repose sur un appui perméable au gaz, par exemple des plaques perforées 5. Dans une enveloppe 6 stable à la pression et coiffant le four à catalyse est logé un échangeur de chaleur 7. Ce dernier se compose de serpentins 8 auxquels on peut donner du seul côté du

gaz une surface agrandie grâce à des cannelures laminées, ou autres. Du collecteur de vapeur 9 du four à catalyse et par l'intermédiaire d'une soupape d'arrêt 10 montée dans la conduite 15 reliant ce collecteur à l'échangeur de chaleur, de la vapeur afflue dans ce dernier et cède de la chaleur à travers les parois tubulaires de l'échangeur de chaleur 7 aux gaz à synthèse tout en se condensant. Le condensat s'écoule par la conduite 11 munie de la soupape d'arrêt 12 pour revenir dans l'échangeur de chaleur 9. Le gaz à synthèse pénètre dans le four catalytique par la tubulure 13, s'échauffe dans l'échangeur de chaleur 7, traverse ensuite les tubes de catalyse 4 et quitte le four à catalyse par la tubulure 14.

On peut conduire ce four à catalyse de diverses manières, par exemple, d'après les brevets déposés en Allemagne par la même firme sous les indicatifs : brevet français n° 1.031.052, du 16 janvier 1951; et brevets allemands n° 872.938, 895.442, 838.598, du 2 octobre 1948; n° 848.035, du 26 février 1949; n° 900.811, du 27 avril 1949; P. 39.962, du 14 avril 1949 et P. 40.059, du 16 avril 1949. Par exemple, on peut employer un réfrigérant liquide se convertissant totalement ou en partie en vapeur lors de l'absorption de chaleur, ou employer comme réfrigérant un liquide ou une matière fondue qui ne se vaporise pas et qui emmagasine avec élévation de sa température la chaleur engendrée par la réaction. Il y a avantage à faire circuler ces réfrigérants à travers les fours de réaction et le chauffe-gaz suivant l'invention d'une manière positive, par exemple au moyen de pompes. Il est alors possible également de soumettre au préchauffage la totalité ou seulement une partie du réfrigérant en circulation. En ce dernier cas on peut se servir de la chaleur non affectée au chauffage préalable pour d'autres usages, par exemple pour produire de la vapeur, etc.

Comme on l'a déjà proposé, on peut aussi réaliser à l'intérieur de fours à synthèse une élévation de température variant automatiquement avec le taux d'alimentation en gaz en employant des mélanges vaporisables de liquides à points d'ébullition différents, et cela d'une façon telle qu'on réalise ainsi une sorte de rectification. Ce résultat se manifeste du fait qu'aux diverses hauteurs de la chambre à réfrigérant du four à synthèse, et par suite, également du côté du catalyseur, règnent des températures inégales. Suivant l'invention, dans le cas de cette disposition, il est de même avantageux de relier la chambre de chauffage du dispositif chauffe-gaz avec la chambre à réfrigérant du four à catalyse.

RÉSUMÉ

1° Appareil pour effectuer par hydrogénation catalytique la transformation de l'oxyde de carbone en hydrocarbures ou en composés oxygénés d'hy-

drocarbures ou en mélanges de ces substances, ou pour effectuer avec l'oxyde de carbone d'autres réactions catalytiques exothermiques, par exemple l'oxosynthèse, caractérisé en ce qu'il comprend un échangeur de chaleur dans lequel tout ou partie des gaz introduits dans le four à catalyse sont portés à la température de réaction ou à son voisinage, ledit échangeur étant relié par sa partie affectée à l'agent chauffant à la chambre du four à catalyse affectée à l'agent réfrigérant;

2° Dans le cas d'un four à catalyse où le refroidissement s'effectue au moyen d'un agent bouillant, une liaison est prévue pour permettre au condensat qui se forme dans l'échangeur de chaleur de refluer dans la chambre à réfrigérant du four à catalyse;

3° L'échangeur de chaleur est disposé dans la partie supérieure du four à catalyse ou au-dessus;

4° L'échangeur de chaleur est intercalé dans la conduite amenant les gaz dans le four à catalyse, ou entoure cette conduite;

5° En plus de la liaison entre le côté chauffage de l'échangeur de chaleur et le côté refroidissement

du four de réaction une conduite partant de ce côté est prévue pour évacuer le réfrigérant chauffé, ou ses vapeurs, en vue de l'utilisation, de manière connue en soi, de la chaleur y contenue;

6° Le four à catalyse est muni de tubes d'environ 30 à 100 mm de diamètre et de 4 à 20 m de hauteur qui contiennent le catalyseur, ou de tubes refroidisseurs entre lesquels le catalyseur est disposé en couches d'environ 20 à 60 mm d'épaisseur, la disposition étant telle qu'on puisse maintenir des vitesses de 4 à 12 m (par rapport à 0° et 760 mm de mercure et à la section de l'espace catalytique), les couches de catalyseur ayant alors éventuellement des sections croissantes dans la direction de l'écoulement des gaz, ou des surfaces d'échange thermique spécifiques décroissantes.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT
et Société dite :
LURGI GESELLSCHAFT FÜR WÄRMETECHNIK M. R. H.

Par représentation :

BILÉTRV.

N° 1.072.414

Société dite :

Pl. unique

Ruhrchemie Aktiengesellschaft

et Société dite :

Lurgi Gesellschaft für Wärmetechnik m. b. H.

