

BREVET D'INVENTION.

3431

Gr. 14. — Cl. 8.

N° 699.438

Dispositif pour la réalisation de réactions exothermiques entre gaz au contact d'un catalyseur solide.

SOCIÉTÉ NATIONALE DE RECHERCHES résidant en France (Oisc).

Demandé le 21 octobre 1929, à 14^h 13^m, à Paris.

Délivré le 9 décembre 1930. — Publié le 14 février 1931.

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

La présente invention a pour objet un dispositif pour la réalisation de réactions exothermiques entre gaz au contact d'un catalyseur solide, et spécialement pour
5 la fabrication synthétique, soit du gaz ammoniac aux dépens de mélanges d'hydrogène et d'azote, soit du méthanol ou de tous autres composés organiques aux dépens de mélanges d'hydrogène et d'oxydes
10 du carbone.

Un dispositif suivant cette invention, pour la réalisation des réactions exothermiques entre gaz au contact d'un catalyseur solide, comprend trois organes : un
15 échangeur, un tube catalyseur et un appareil de chauffage du mélange gazeux frais, qui peuvent être, suivant les cas, placés dans une ou dans deux ou dans trois enveloppes distinctes.

20 Deux formes d'exécution d'un dispositif suivant cette invention sont représentées au dessin ci-annexé à titre d'exemple.

La fig. 1 est un schéma d'une forme dans laquelle les trois organes précités sont séparés l'un de l'autre.
25

La fig. 2 montre schématiquement une seconde forme dans laquelle le tube catalyseur et l'appareil de chauffage sont réunis dans une même enveloppe.

Les fig. 3 et 4 représentent en coupe verticale et de façon détaillée les organes essentiels de cette seconde forme d'exécution.

Suivant la fig. 1, le mélange gazeux frais arrive par 1, 2 dans l'échangeur A, circule dans l'espace 3 compris entre les tubes 4, sort par 5, entre par 6 dans l'espace 7 compris entre les tubes 8 du faisceau catalyseur B, en sort par 9 et se rassemble, après avoir traversé le dispositif de chauffage 10, dans la capacité 11, d'où il passe dans
40 les tubes 8 qui contiennent la masse de contact 8a; les produits de la réaction sont amenés, par 12 et 13, à l'échangeur, d'où ils sortent par 14.

Une des caractéristiques du dispositif qui fait l'objet de la présente invention consiste à court-circuiter, d'une part, l'échangeur A, d'autre part, l'espace intertubulaire du catalyseur B, par exemple au
50 moyen :

D'un by-pass 15, 16 à robinet 17, qui met la tuyauterie 1 amenant le mélange frais à l'échangeur en communication directe avec la tuyauterie 5 de sortie de cet
55 appareil;

Et d'un by-pass 18-19 à robinet 20, qui relie la tuyauterie 6 amenant le gaz dans l'espace intertubulaire du faisceau cataly-

seur à la tuyauterie 9 d'adduction du gaz dans l'appareil de chauffage.

Un autre mode d'application de ce principe consiste, comme le représente à titre d'exemple la fig. 2, à disposer sur les tuyauteries deux appareils identiques C et D qu'on désignera dans ce qui suit du nom de répartiteurs; ces appareils sont représentés sous la forme de robinets à boisseau dont la carotte porte trois canaux et une encoche, mais on peut les constituer de toute autre manière susceptible de réaliser le fonctionnement ci-après :

Le répartiteur C sert à diviser le courant du mélange gazeux utilisé comme matière première en deux branches, dont il permet de régler à volonté le rapport des débits, et dont une seule traverse l'échangeur A; avec le montage de la fig. 2, par exemple, une rotation de la carotte dans le boisseau dans le sens de la flèche X a pour effet de diminuer le débit à travers l'échangeur A en augmentant d'autant le débit du courant qui, par 1, 21 et 22, se rend directement au répartiteur D.

D'une manière analogue, le répartiteur D sert à diviser le courant gazeux sortant du répartiteur C en deux branches, dont il permet de régler à volonté le rapport des débits, et qui sont ensuite dirigées, l'une, sur l'espace intertubulaire 7 du faisceau catalyseur B, puis sur le dispositif de chauffage 10, l'autre directement sur ce dispositif de chauffage. Dans le cas de la fig. 2, par exemple, la première branche du courant passé par 23, 24, 6, 7, 25 et 26, la seconde par 23, 27 et 9; une rotation de la carotte du boisseau dans le sens de la flèche Y augmente le débit de la première aux dépens du débit de la seconde.

L'emploi des deux répartiteurs qu'on vient de décrire permet de régler convenablement la température de la masse de contact et, par voie de conséquence, d'une part, de combattre aussi bien le développement de certaines réactions parasites de la réaction principale que les effets pernicieux qui résultent, pour l'activité d'un grand nombre de catalyseurs, de leur maintien à une température trop élevée; d'autre part, de rendre la production horaire par litre de volume catalytique indépendante

des variations d'activité de la masse de contact.

Sur la figure 2, les deux répartiteurs sont représentés dans la position qui correspond pour les tubes du faisceau au catalyseur B au régime le plus chaud; une rotation de leurs carottes dans le sens des flèches X et Y permet de modifier ce régime par suite de la mise en circulation dans l'espace intertubulaire d'un courant gazeux dont le débit est réglable et dont on peut en outre faire varier la température initiale entre des limites écartées.

De son côté le tube de catalyse B représenté schématiquement par la fig. 3, présente cinq caractéristiques essentielles, savoir :

1° La masse de contact est chargée dans une série de tubes verticaux 8 fixés à leurs deux extrémités sur deux plaques métalliques horizontales 28, 29; la plaque supérieure 28 est fixée par des vis ou des boulons sur un rebord 30 de l'enveloppe en acier qui supporte la pression de marche, tandis que la plaque inférieure 29 est laissée libre de se déplacer; l'ensemble du faisceau se trouve ainsi suspendu à l'intérieur de l'enveloppe.

2° La masse de contact est retenue à l'intérieur des tubes 8 par une plaque perforée 32 qui fait partie d'une pièce métallique 33, en forme de boîte creuse assemblée avec la plaque de fond par un joint étanche 34. Le serrage de 33 sur 29 est assuré par des vis de serrage 35 portées par une pièce 36, laquelle prend appui sur un bossage 37, de la plaque de fond 29 par un filetage à filets interrompus, ou de toute autre manière permettant un démontage rapide.

3° Une chambre 10 est ménagée suivant l'axe du tube à catalyse et renferme le dispositif de chauffage du mélange gazeux frais; ce dispositif de chauffage, indiqué schématiquement en 38 et suspendu à un bouchon auxiliaire 39, est complètement indépendant du reste de l'appareil.

4° Le gaz de l'espace intertubulaire est amené au contact du dispositif 38 par un organe formé de deux tubes coaxiaux 40 et 41, assemblés de manière rigide, à leur partie supérieure sur un même couvercle annulaire; à la partie inférieure, l'un de

ces tubes est fixé à demeure sur la plaque de fond 29, tandis que l'autre est laissé libre de glisser sur un épaulement 29a de cette même plaque. L'ensemble des deux tubes glisse d'autre part librement, à la partie supérieure, à travers un orifice circulaire ménagé dans la plaque 28, l'étanchéité du joint étant assurée par une garniture plastique 42.

5° Deux tubes coaxiaux de faible diamètre, 43 et 44, fixés sur la plaque de fond, sont engagés à frottement doux dans des alésages correspondants du bouchon inférieur 45 de l'enveloppe en acier 31, l'étanchéité des assemblages étant assurée par des garnitures plastiques 46 et 47 serrées l'une par le bouchon 45, l'autre par un presse-étoupe 48.

Le tube 43 sert à l'introduction directe dans la chambre de chauffage 10 du mélange gazeux frais amené par la tuyauterie 9;

Le tube 44 sert à l'évacuation à l'extérieur de l'enveloppe des produits de la réaction qui, à la sortie des tubes du faisceau, se rassemblent dans la boîte 33 et s'écoulent par un orifice 49 dans l'espace annulaire compris entre 43 et 44.

Le fonctionnement du tube catalyseur qui vient d'être décrit est le suivant : Les deux branches du mélange gazeux frais, que sépare le répartiteur D, pénètrent dans le tube de catalyse, l'une par 6, l'autre par 9. Le gaz introduit par 6 parcourt en s'élevant l'espace intertubulaire 7, pénètre par les orifices 25 dans l'espace annulaire compris entre les tubes 40 et 41, circule de haut en bas entre ces tubes, et, par les orifices 26, entre dans la chambre de chauffage 10, où il se mélange au gaz arrivant par 9. Le mélange monte le long du dispositif de chauffage 38 jusqu'à la chambre supérieure 11, d'où il passe dans les tubes 8 contenant la masse de contact; il parcourt des tubes de haut en bas et se rassemble dans la boîte 33 pour être finalement évacué par l'orifice 49, l'espace annulaire compris entre 43 et 44, et la tuyauterie 13.

Les propriétés caractéristiques de l'appareil ainsi agencé sont les suivantes :

a. L'étanchéité du dispositif qui règle la circulation du gaz est assurée au moy

d'un nombre minime de garnitures plastiques, lesquelles n'ont en outre que de faibles diamètres.

b. Les différents éléments de ce dispositif sont néanmoins entièrement libres de se dilater; cela permet de faire abstraction, dans le choix des métaux employés pour les construire, des valeurs des coefficients de dilata- tion pour se préoccuper exclusivement des conditions mécaniques et chimiques à satisfaire.

c. La masse de contact chargée dans les tubes 8 du faisceau peut être vidangée rapidement; il suffit en effet, pour cela, de desserrer les vis 35, de dégager la pièce 36 du bossage 37 par rotation d'une fraction de tour et de descendre les pièces 36 et 33.

d. Le dispositif de chauffage est complètement indépendant du dispositif de catalyse et de circulation du gaz; cela permet, d'une part, d'employer les sources de chauffage les plus variées, électricité, fluide gazeux ou liquide, combustion interne, etc., d'autre part, de changer l'appareil de chauffage, par simple dévissage du bouchon 39— sans avoir à toucher à quelque autre organe que ce soit.

e. Le dispositif de catalyse et de circulation des gaz ne touche l'enveloppe en acier que par un très petit nombre de points; cette particularité facilite l'application sur la face interne de cette dernière des revêtements qu'il peut y avoir intérêt à utiliser pour empêcher que le mélange gazeux ne vienne à son contact.

f. Le montage et le démontage du tube s'effectuent avec une grande facilité.

L'échangeur A représenté en détail par la fig. 4 présente trois caractéristiques essentielles, savoir :

1° Les tubes verticaux 4 du faisceau qui en constitue l'un des éléments essentiels sont fixées à leurs extrémités sur deux plaques métalliques horizontales 50 et 51; la plaque supérieure 50 est fixée par des vis sur un rebord intérieur de l'enveloppe en acier qui supporte la pression de marche, tandis que la plaque inférieure 51 est laissée libre de se déplacer. Le faisceau est ainsi suspendu à l'intérieur de l'enveloppe.

2° La plaque inférieure 51 est complétée

par une pièce 53, en forme de boîte, avec laquelle elle est assemblée suivant un joint étanche 54.

3° Deux tuyaux de faible diamètre 55 et 56 mettent en communication avec l'extérieur : l'un, 55 fixé sur la pièce 53, l'intérieur de celle-ci et des tubes 4 du faisceau ; l'autre, 56 fixé sur la plaque supérieure 50, l'espace intertubulaire 3.

10 Ces deux tubes traversent les bouchons inférieur 57 et supérieur 58, de l'enveloppe par des orifices dans lesquels ils sont libres de glisser, l'étanchéité des joints étant assurée par des garnitures plas-

15 tiques 59 et 60.

Le fonctionnement de l'appareil qui vient d'être décrit est le suivant : la fraction du mélange gazeux frais que le répartiteur C dirige sur l'échangeur y pénètre

20 par la tuyauterie 2, circule dans l'espace intertubulaire 3 et sort par le tube 56 et la tuyauterie 5. Les produits de la réaction qui viennent du tube de catalyse pénètrent dans l'échangeur par la tuyauterie

25 13, circulent de haut en bas dans les tubes 4, se rassemblent dans la pièce creuse 53 et sortent par 55 et 14.

La caractéristique de cet appareil échangeur de chaleur réside dans le fait que l'étanchéité du dispositif qui assure la circulation des gaz est obtenue sans nuire à la libre dilatation de ses organes.

RÉSUMÉ.

Un dispositif pour la réalisation de réactions chimiques entre gaz au contact d'un catalyseur et pouvant servir à la fabrication soit du gaz ammoniac aux dépens des mélanges d'hydrogène et d'azote, soit du méthanol ou de tous autres composés

35 organiques aux dépens des mélanges d'hydrogène et d'oxydes de carbone, cet appareil présentant les caractéristiques ci-après :

40 1° Des dispositifs à débit réglable, établis sur la canalisation du mélange gazeux frais, mettent en communication, d'une

part, l'entrée et la sortie de l'échangeur et, d'autre part, l'entrée de l'espace intertubulaire du tube à catalyse et l'entrée de la chambre de chauffage.

2° La masse de contact est chargée dans 50 des tubes verticaux assemblés à leurs extrémités par des plaques horizontales dont une seule est fixée à l'enveloppe du tube à catalyse, l'autre plaque étant laissée libre de se déplacer, de sorte que le faisceau 55 catalyseur se trouve suspendu à l'intérieur de l'enveloppe qui supporte la pression de marche.

3° Une boîte, assemblée de façon étanche et facilement démontable à la plaque inférieure 60 supporte la masse de contact au moyen d'une plaque perforée.

4° Une chambre est ménagée suivant l'axe du tube à catalyse pour loger le dispositif de chauffage du mélange gazeux 65 frais, ce dispositif étant suspendu à un bouchon et complètement indépendant du reste de l'appareil.

5° Le mélange gazeux est canalisé au contact du dispositif de chauffage par un 70 système de deux tubes concentriques fixé de manière rigide sur la plaque inférieure du faisceau et glissant librement à travers un orifice de la plaque supérieure.

6° La chambre de chauffage, d'une part, 75 la chambre dans laquelle les produits de la réaction se rassemblent à la sortie du faisceau, d'autre part, communiquent avec l'extérieur par deux tubes coaxiaux de faible diamètre, solidaires de la plaque 80 inférieure du faisceau, lesquels glissent librement et de manière étanche dans des alésages du bouchon inférieur de l'enveloppe.

7° Le montage du faisceau tubulaire de 85 l'échangeur est analogue à celui du faisceau du tube à catalyse.

SOCIÉTÉ NATIONALE DE RECHERCHES.

Par procuration :

Bézier.

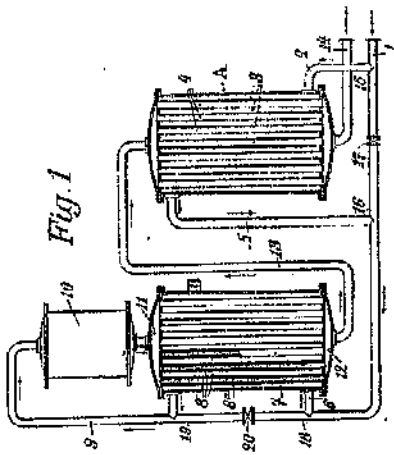


Fig. 1

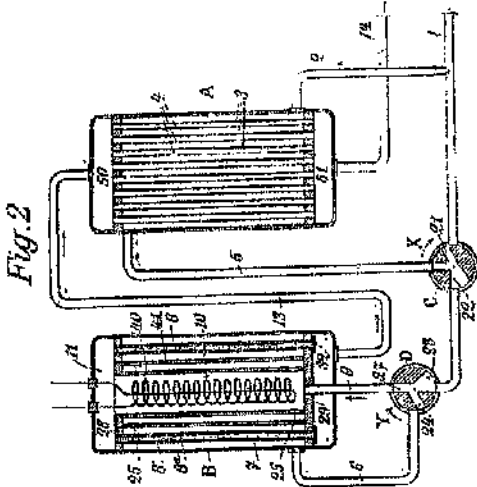


Fig. 2

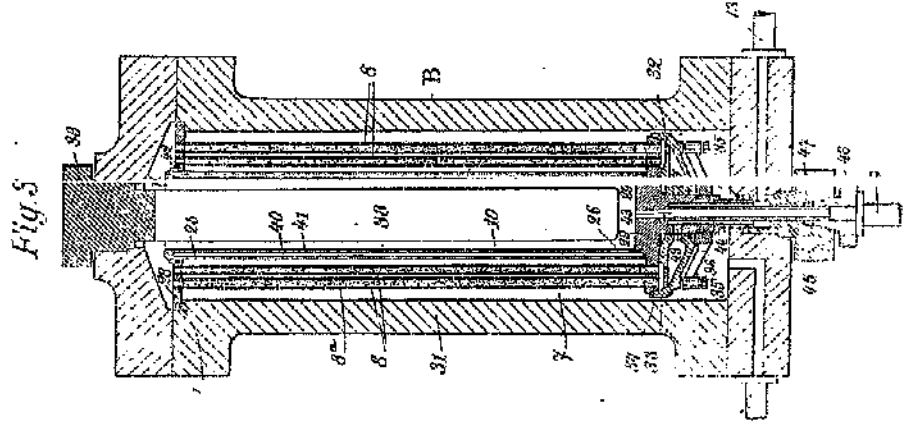
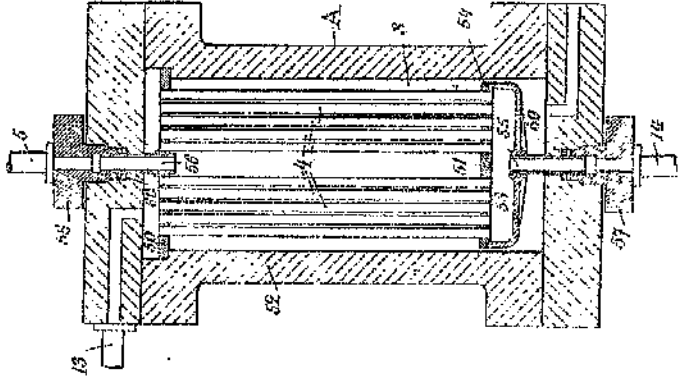
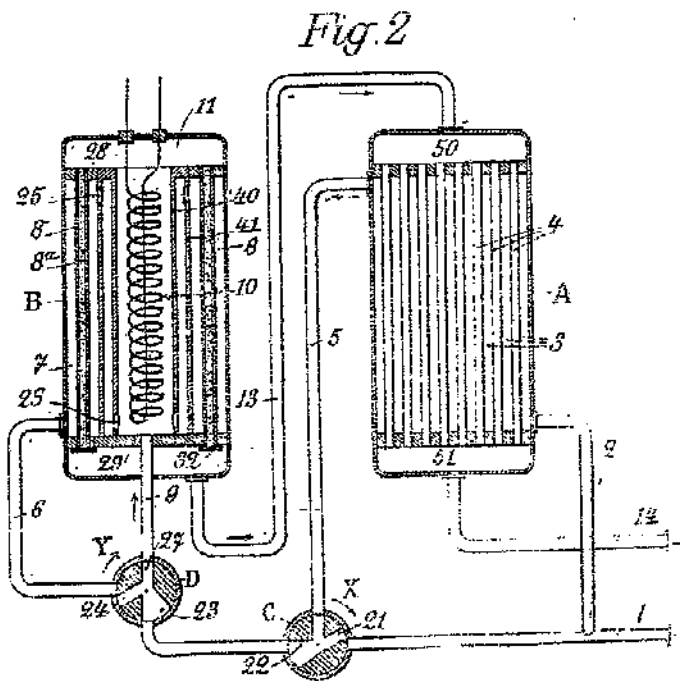
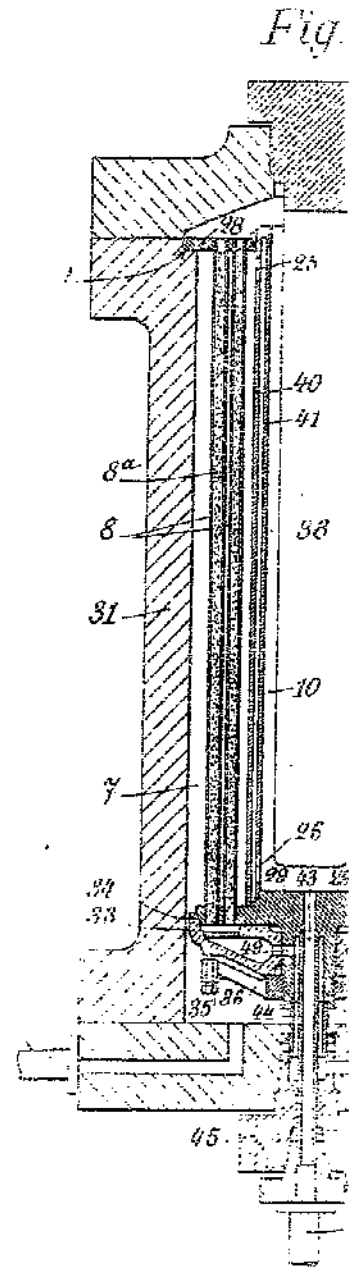
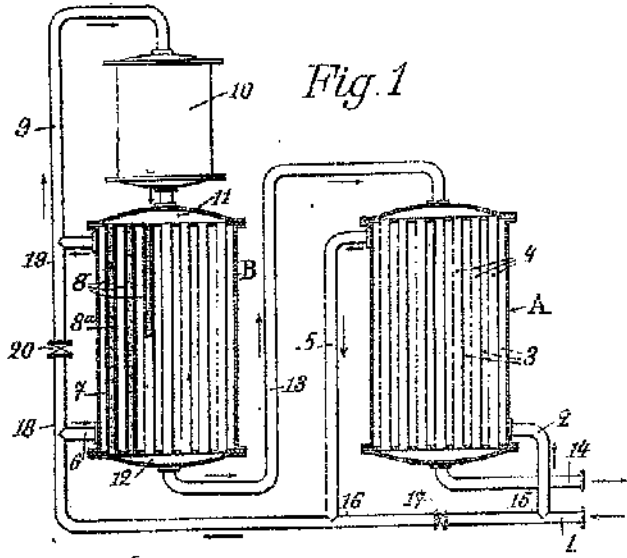


Fig. 5

Fig. 4





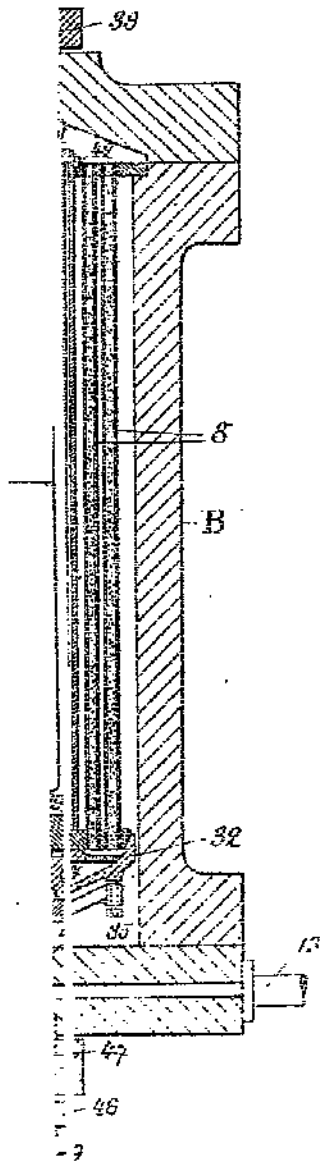


Fig. 4

