

⑫

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

⑰ Numéro de dépôt: 85402334.8

⑸ Int. Cl.⁴: **B 01 J 8/02**
C 01 C 1/04
//C07C29/15

⑱ Date de dépôt: 28.11.85

⑳ Priorité: 03.12.84 FR 8418378

㉑ Date de publication de la demande:
13.08.86 Bulletin 86/33

㉒ Etats contractants désignés:
DE FR GB IT NL

㉓ Demandeur: **SOCIETE CHIMIQUE DE LA GRANDE**
PAROISSE, AZOTE ET PRODUITS CHIMIQUES
8, rue Cognacq-Jay
F-75007 Paris(FR)

㉔ Inventeur: **Lesur, Pierre**
20, avenue Rapp
F-75007 Paris(FR)

㉕ Inventeur: **Faury, Christian**
16, avenue Victor Hugo
F-92170 Vanves(FR)

㉖ Inventeur: **Lafleur, Guy**
2, rue du Bordeaux Saint Rémy-L'Honoré
F-78690 Les Essarts-Le-Roi(FR)

㉗ Inventeur: **Papillon, André**
32, avenue Henri Martin
F-94400 Saint-Maur-des-Fosses(FR)

㉘ Mandataire: **Bouton Neuvy, Liliane et al,**
L'Air liquide, Société Anonyme pour L'Etude et
L'Exploitation des Procédés Georges Claude 75, Quai
d'Orsay
F-75321 Paris Cedex 07(FR)

㉙ Réacteur et procédé de synthèse catalytique exothermique, en phase gazeuse et sous pression.

㉚ La présente invention concerne un type de réacteur de synthèse catalytique unicouche exothermique, en phase gazeuse sous pression, horizontal, et le procédé mis en oeuvre.

Ce réacteur est constitué par une virole principale sous haute-pression ou corps de force, composée d'une partie cylindrique (1) et de deux fonds hémisphériques (2) (2') contenant une enceinte porte-catalyseur (10,11,11'), renfermant une couche unique de catalyseur (9,9',9''), concentrique au corps de force et dont la paroi externe est revêtue d'un isolant (39), un espace (31,32,33,34) étant ménagé entre la paroi interne de la virole principale sous haute-pression reposant sur un enroulement métallique hélicoïdal (40) d'une extrémité à l'autre de la virole, la dite virole principale sous haute-pression et l'enceinte porte-catalyseur étant munies de moyens d'introduction (3) et (5) et d'évacuation (3') et (5') des flux gazeux, situés aux extrémités du grand axe et disposés en vis à vis sur les fonds hémisphériques, en outre l'enceinte porte-catalyseur étant équipée d'une tubulure verticale (13) de remplissage et vidange du catalyseur.

Application à la synthèse d'ammoniac et à celle de méthanol.

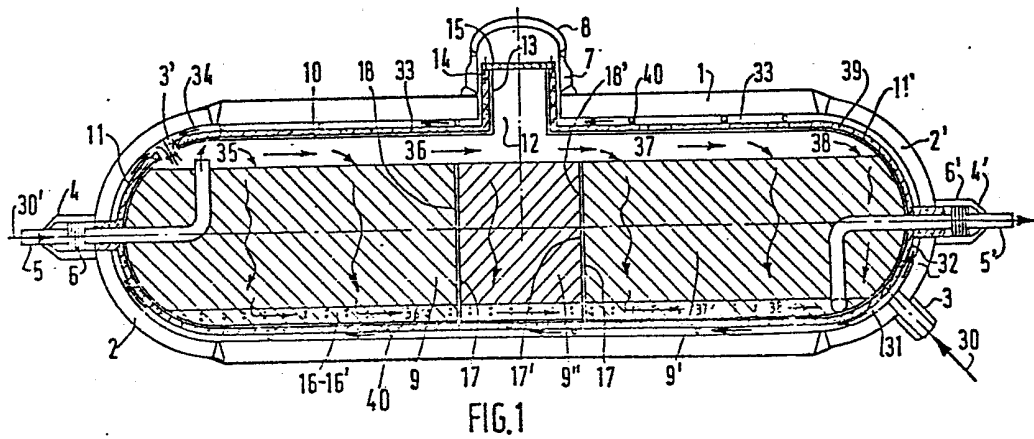


FIG. 1

DESCRIPTION

La présente invention concerne la synthèse catalytique exothermique en phase gazeuse sous pression et plus particulièrement un type de réacteur horizontal permettant de réaliser avantageusement des synthèses, notamment la synthèse d'ammoniac à partir d'azote et d'hydrogène, et celle du méthanol.

Depuis plusieurs décades on conduit les réactions catalytiques exothermiques d'équilibre en phase gazeuse dans des réacteurs de synthèse contenant traditionnellement plusieurs couches de catalyseur entre lesquelles ou au sein desquelles sont disposés des moyens de contrôle et de régulation des températures de réaction. Le refroidissement soit continu au sein de la masse catalytique, soit discontinu entre couches permet d'éloigner les conditions réactionnelles de celles de l'équilibre et donc d'augmenter la vitesse de réaction.

Les contraintes imposées par les conditions économiques ont orienté les recherches vers des installations ayant pour finalité la diminution de la consommation énergétique de la boucle de synthèse, ou plus généralement de la consommation globale de l'atelier de fabrication de l'ammoniac ou du méthanol.

On a notamment proposé la diminution de la pression des synthèses exothermiques en phase gazeuse, ce qui entraîne la construction d'ateliers de taille de plus en plus importante.

L'augmentation du taux de conversion a également été suggérée. Ce taux peut être accru en remplaçant le contrôle des températures par trempe entre lits catalytiques par un ou plusieurs échangeurs internes. La conception mécanique compliquée de tels réacteurs engendre un surcoût élevé et une fiabilité incertaine, et les opérations de chargement et de vidange du catalyseur en sont rendues plus difficiles. Les réacteurs multicouches les plus courants ne se prêtent pas facilement à l'introduction d'un ou plusieurs échangeurs intercouches en plus de l'échangeur de sortie (complexité, risque de fuites internes).

Le taux de conversion a aussi été accru en diminuant la granulométrie du catalyseur, ce qui augmente son activité mais aussi sa perte de charge.

Le taux de conversion a été également augmenté par accroissement du volume du réacteur. Les réacteurs verticaux à circulation axiale ne permettent que de façon limitée cette évolution, leur perte de charge devenant rédhibitoire au-delà de 70 m³ environ de catalyseur. Les réacteurs verticaux à circulation radiale ainsi que les réacteurs

horizontaux multicouches à circulation verticale permettent une augmentation du volume du catalyseur en allongeant le récipient sans augmenter le diamètre. Les réacteurs multicouches radiaux ainsi que de nombreux réacteurs axiaux présentent des inconvénients de fiabilité et de risque de fuites dus à une ouverture égale au diamètre de la virole de force, en vue de l'introduction et du retrait de l'équipement interne lors du changement de catalyseur. L'étanchéité des brides de grand diamètre est difficile à réaliser. Le diamètre est en général limité par celui de l'ouverture à cause de problèmes de construction et des gabarits admissibles pour le transport. De plus, l'augmentation du volume du catalyseur des réacteurs radiaux et horizontaux multicouches conduit à des équipements internes très longs posant des problèmes de construction, de fiabilité et de renouvellement de catalyseur.

Un autre inconvénient des réacteurs multicouches réside dans le fait que leur taux de remplissage : rapport du volume de catalyseur au volume de l'enceinte sous haute pression, diminué du volume des échangeurs internes, n'est environ que de 0,5.

L'évolution des technologies et des conditions économiques dans le secteur de la construction mécanique tend à rendre les équipements internes complexes en acier inoxydable très coûteux et au contraire la technique simple des récipients dits unicouche, en série, compétitive. Cette dernière met en oeuvre non pas un grand réacteur, mais des réacteurs verticaux de petite ou moyenne dimension, contenant une seule couche de catalyseur, en série, et reliés entre eux par des tuyauteries, les échangeurs étant enfermés dans des récipients indépendants. Cette technique ne présente pas tous les inconvénients des réacteurs multicouches, mais elle ne se prête pas aisément à l'emploi d'importants volumes de catalyseur, la perte de charge augmentant vite en raison de la circulation axiale des gaz. Par contre, les réacteurs unicouche horizontaux à circulation verticale se prêtent beaucoup mieux à l'utilisation de grands volumes catalytiques.

Dès 1944, à une époque où la production d'ammoniac était mise en oeuvre dans des capacités catalytiques de faible volume, le brevet allemand 911.490, avait déjà proposé un réacteur horizontal contenant une seule couche de catalyseur dans lequel les gaz sous haute pression et température de la réaction sont en contact avec la virole de force. Ces conditions de fonctionnement nécessitent l'emploi d'aciers fortement alliés très difficiles à mettre en oeuvre dans de gros diamètres. Ce type de réacteur n'est pas transposable dans des grandes unités de

synthèse.

Plus récemment, le brevet français 2.183.985 a décrit un réacteur horizontal pour la synthèse de l'ammoniac, avec un échangeur thermique vertical interne-externe et deux chambres réactives avec lits de catalyseur. Cet échangeur vertical assure un échange thermique entre les courants gazeux. Cette solution apparaît comme manifestement compliquée du point de vue équipement interne, elle présente les inconvénients inhérents aux réacteurs multicouches d'un coût de réalisation élevé, d'une fiabilité relative, et d'une manutention assez difficile du catalyseur avec un taux de remplissage limité.

On a cherché à améliorer la technique des récipients unicouche en s'affranchissant de ses limites et contraintes, en alliant un taux de conversion très élevé à une perte de charge faible dans le catalyseur, ceci quel que soit le volume de catalyseur, tout en recourant à des techniques de construction très simples et éprouvées ; ces avantages étant valables quelle que soit la taille de l'installation. Le type de réacteur proposé est compatible avec l'abaissement de pression de synthèse et l'augmentation de volume de catalyseur consécutive, jusque vers 100 à 150 m³ par exemple. La conception de l'équipement interne, les technologies de construction, montage, manipulation du catalyseur, exploitation sans fuites de gaz sont d'une grande simplicité.

L'invention consiste en la conception de réacteurs de synthèse, unicouche, cylindriques, horizontaux, dépourvus d'échangeurs internes dont les parois sous haute-pression ne sont pas portées à des températures très élevées par les gaz à leur contact. Ainsi, les parois ne travaillent pas au fluage. Ce résultat, obtenu sans compliquer le circuit de circulation des gaz dans l'ensemble du réacteur, permet de diminuer la température de calcul de la virole de force de 550°C jusqu'à 450°C, voire 300°C et inférieure suivant les cas. Au démarrage de l'installation, il est généralement nécessaire d'introduire dans la chambre de catalyse, au moment du démarrage, du gaz de synthèse à une température pouvant approcher 500°C et la température de l'effluent gazeux du lit catalytique peut excéder légèrement les 500°C. La présente technique évite le contact de ces deux flux gazeux très chauds avec la virole sous pression.

L'objet principal de l'invention concerne un appareil et un procédé de synthèse en catalyse hétérogène exothermique en phase gazeuse sous pression mis en oeuvre dans ce type d'appareillage.

Le réacteur cylindrique horizontal à température de paroi

contrôlée est constitué principalement par une virole principale sous haute-pression, ou corps de force composée d'une partie cylindrique et de deux fonds hémisphériques contenant une enceinte porte-catalyseur concentrique dont la paroi externe est revêtue d'un isolant, un espace étant ménagé entre la paroi interne du corps de force et celle de la paroi externe de l'enceinte porte-catalyseur revêtue d'isolant, reposant sur un enroulement métallique hélicoïdal, d'une extrémité à l'autre de la virole, le dit enroulement s'appuyant lui-même sur la paroi interne de la virole sous haute-pression. La virole principale sous haute-pression et l'enceinte porte-catalyseur sont munies de moyens d'introduction et d'évacuation des flux gazeux, aux extrémités du grand axe et disposées en vis à vis sur les fonds hémisphériques, en outre, l'enceinte porte-catalyseur étant équipée d'une tubulure verticale de remplissage et vidange du catalyseur.

Suivant les cas ce type de réacteur permet d'utiliser une température de calcul de la virole de force inférieure ou égale à 300°C et au plus de l'ordre de 450°C, en raison de la protection thermique de la paroi de la virole principale sous haute-pression.

La paroi de la virole principale sous haute-pression est protégée thermiquement de deux manières, avec d'une part le revêtement extérieur isolant de l'enceinte interne porte-catalyseur, et d'autre part, par un courant de gaz isotherme de température moins élevée que celle du gaz contenu dans l'enceinte interne porte-catalyseur, le dit gaz isotherme circulant de façon hélicoïdale entre la paroi de force et celle revêtue de son isolant. Ce gaz n'est autre que le gaz réactif d'alimentation sous pression du réacteur.

Le revêtement extérieur isolant de l'enceinte porte-catalyseur ayant une haute résistance à la compression dans les conditions de service, assume la fonction de supportage de l'enceinte, en appui sur l'enroulement hélicoïdal, ce qui permet de supprimer les ponts thermiques entre celle-ci et la virole résistant à la pression. L'isolant est lui-même enfermé dans des viroles de protection mécanique, concentriques à l'enceinte porte-catalyseur, s'appuyant sur des frettes-supports circulaires non représentées, dans lesquelles sont ménagés des orifices assurant le passage du gaz de protection de la virole de force à circulation hélicoïdale. En outre, cet isolant est avantageusement inerte et insensible à l'eau introduite lors de la vidange du catalyseur.

Pour maintenir la paroi interne de la virole principale à une

température égale ou inférieure à 300°C, on fait passer un courant d'alimentation vers 200°C, 120 - 250°C, dans l'espace ménagé entre la virole sous pression et l'enceinte interne contenant le catalyseur, suivant une trajectoire hélicoïdale, d'une extrémité à l'autre du récipient. Ce gaz ressort ensuite du réacteur, puis est réchauffé avant son introduction dans l'enceinte catalytique.

Ce matelas de gaz à 200°C est quasiment isotherme en raison du revêtement isolant de l'enceinte porte-catalyseur. Et, la température de calcul de 300°C autorise l'emploi d'aciers faiblement alliés, de mise en oeuvre facile, travaillant très en-dessous de leur limite élastique, d'épaisseur modérée.

Selon une variante de la technique, et dans le but de simplifier au maximum l'équipement interne de l'appareillage, le courant de gaz de protection est introduit dans l'espace ménagé entre la virole sous pression et l'enceinte interne après avoir été réchauffé dans un échangeur extérieur jusqu'à la température d'entrée en réaction, par exemple 400°C, dans le cas de la synthèse d'ammoniac. Le circuit du gaz de protection isotherme est le même que précédemment, excepté que le gaz ne ressort pas du réacteur, il est introduit directement dans l'enceinte porte-catalyseur entre 370 et 420°C. Cette enceinte interne étant toujours revêtue extérieurement d'un isolant, de sorte que le matelas gazeux soit maintenu à environ 400°C; la température de calcul de la virole sous pression peut donc être de 450°C, alors que le gaz traversant l'enceinte catalytique peut atteindre 500°C.

Les aciers de construction sont moins alliés que si la température de calcul était de 550°C, comme dans d'autres types de réacteur, et ils travaillent encore en dessous de leur limite élastique, l'épaisseur de la paroi sous pression reste ainsi raisonnable et la mise en oeuvre aisée.

Dans ces deux types de fonctionnement, les aciers sont soumis à des conditions éloignées de la corrosion à chaud par l'hydrogène.

De plus, pour éviter tout contact avec la virole de force, le gaz très chaud du démarrage de la réaction est introduit dans la chambre de catalyse, soit par l'intermédiaire d'une boîte résistante à la haute pression, mais de faible diamètre, et calorifugée intérieurement, soit à l'aide d'une tuyauterie interne. De même le gaz très chaud effluent de la chambre de catalyse est évacué soit par l'intermédiaire d'une boîte de mêmes caractéristiques que précédemment soit à l'aide d'une tuyauterie interne.

Dans ce type de réacteur chimique adiabatique, adapté aux réactions exothermiques, sous pression élevée, en phase gazeuse et catalyse hétérogène, les gaz réactifs circulent verticalement, de haut en bas, ou de bas en haut, à travers le lit catalytique. La forme du réacteur et la direction de circulation des gaz dans la zone de catalyse par rapport à l'axe de l'enceinte réactionnelle, sont adaptées au volume de catalyseur de façon à augmenter la section de passage des gaz à travers le catalyseur, diminuer donc fortement la perte de charge et ainsi permettre l'utilisation de catalyseur de granulométrie très petite.

Les réactifs et les effluents sont acheminés via deux tuyauteries internes, à travers des canaux de distribution assurant une bonne répartition du gaz dans la masse catalytique. A l'intérieur de l'enceinte porte-catalyseur, dans sa partie inférieure, sont disposés deux canaux-collecteurs de gaz reliés à la tubulure des gaz réactionnels effluents.

La mise en place et le retrait de la grande quantité de catalyseur s'effectuent par l'orifice ménagé à la partie supérieure de la chambre de catalyse, de préférence au centre de celle-ci, correspondant à une tubulure ou virole interne soudée sur la virole principale de l'enceinte. Ces opérations d'introduction ou de récupération du catalyseur usagé sont facilitées par au moins deux cloisons amovibles verticales, constituées d'au moins deux secteurs de cercle emboîtables, qui ménagent temporairement entre elles un espace de travail. Ceci permet également d'araser à distance le catalyseur aux extrémités de l'enceinte.

En raison de ce mode de remplissage, ce type de réacteur horizontal est bien adapté aux couches catalytiques de grand et très grand volume.

Le taux de remplissage de ces réacteurs horizontaux unicouche est très élevé, de l'ordre de 0,7 à 0,9.

Les opérations de manutention du catalyseur sont simplifiées et les engins de levage sont de portée et de puissance très modestes. En effet, l'équipement interne étant introduit dans le réacteur lors de la construction, il n'est jamais nécessaire, même au montage sur le site, d'introduire ou sortir le panier porte-catalyseur, voire même l'équipement interne complet. On parvient à supprimer les risques de fuite d'hydrogène par l'adoption d'un orifice de remplissage et de vidange du catalyseur de faible diamètre obturé par un couvercle soudé pouvant être découpé, ou par un couvercle à bride de petit diamètre à joint soudé.

Le changement de catalyseur étant une opération de moins en moins fréquente, il peut être intéressant d'utiliser un couvercle soudé.

Les problèmes de dilatations longitudinales sont résolus en soudant verticalement la virole interne, d'introduction du catalyseur, sur la virole principale de l'enceinte catalytique, cette virole interne étant équipée de moyens, tels que des vis diamétralement opposées qui permettent par serrage-appui sur le corps de force, d'assurer un point fixe ; ce point n'étant pas fixe par rapport aux dilatations verticales qui peuvent s'effectuer librement.

Suivant les volumes de catalyseur, le taux de conversion, la perte de charge et d'autres critères technico-économiques spécifiques, il est avantageux de proposer une association de réacteurs catalytiques contenant chacun un seul lit de catalyseur avec circulation verticale des gaz réactifs, et dépourvus d'échangeur interne. Ces divers réacteurs associés en série ou parfois en parallèle à un ou plusieurs réacteurs horizontaux, peuvent être du type vertical ou sphérique. On peut envisager plusieurs réacteurs horizontaux en série, en général deux ou trois, ou pour des volumes de catalyseur couramment employés, un premier réacteur, soit vertical, soit sphérique et un deuxième réacteur horizontal qui peut être suivi d'un autre réacteur horizontal.

Dans une petite installation dont le coût d'investissement minimum, la simplicité du schéma seraient recherchés, sans récupération énergétique poussée, on peut utiliser deux réacteurs en série et, suivant les volumes de catalyseur, un premier réacteur, soit vertical, soit sphérique, et un deuxième réacteur vertical ou sphérique ou horizontal. Le refroidissement entre réacteurs pourra être direct, c'est-à-dire assuré par une trempe. En effet, la diminution du taux de conversion, due à l'emploi d'une trempe, et l'augmentation consécutive de la taille des équipements de la boucle de synthèse sont largement compensées par l'absence de l'échangeur intermédiaire en acier inoxydable. Le taux de conversion est maintenu à une valeur élevée par l'utilisation de granulométries très petites. Ceci est rendu possible par la forme des réacteurs, comme on l'a vu précédemment.

Au contraire, dans une grande installation où le coût énergétique serait déterminant, on pourra utiliser des réacteurs en série, de grande capacité, et éventuellement, en plus grand nombre (trois ou quatre pratiquement). Suivant les volumes de catalyseur, le ou les premiers réacteurs seront sphériques ou horizontaux, le ou les derniers réacteurs seront généralement horizontaux, les réacteurs non horizon-

taux pouvant être multicouches. Le taux de conversion sera augmenté par l'utilisation d'un refroidissement entre couches indirect, par échange thermique. La récupération thermique pourra être optimisée par l'utilisation d'une ou plusieurs chaudières haute-pression sur un ou plusieurs des effluents des réacteurs en série, les autres effluents étant refroidis dans des échangeurs de chaleur par le gaz d'alimentation du premier lit. Cette combinaison de réacteurs et d'autres appareils permet alors un taux de conversion global plus élevé. La perte de charge globale est plus faible que dans les plus performants des réacteurs multi ou unicouche actuels.

Entre ces deux exemples extrêmes, toutes les combinaisons de types de réacteurs unicouche verticaux, horizontaux ou sphériques, de refroidissement direct par trempe ou indirect par échange de chaleur, de récupération thermique de la chaleur de réaction par une ou plusieurs chaudières ou réchauffeur d'eau haute-pression et échangeurs de chaleur avec le gaz d'alimentation, sont possibles. Cela signifie que cette technique autorise une adéquation parfaite aux contraintes technico-économiques quelles qu'elles soient, avec un rendement supérieur.

Il est donné ci-après des exemples de réalisation non limitatifs de réacteurs unicouche horizontaux du type décrit dans l'invention, adaptés à la synthèse de l'ammoniac et du méthanol. Plus spécifiquement, dans la description ci-après les températures indiquées et les termes gaz de synthèse ou protection, gaz après réaction ou effluent réactionnel concernent la synthèse de l'ammoniac. Le type de réacteur est compatible avec toutes les pressions, et pratiquement il peut être avantageusement mis en oeuvre entre 50 bars et 350 bars.

Exemple 1.

Réacteur unicouche horizontal à température de paroi contrôlée à un niveau de l'ordre de 400°C, représenté sur les figures 1, 2 et 3 du dessin annexé.

Le corps du réacteur est constitué d'une virole en acier ou corps de force (1) et de deux fonds hémisphériques en acier du même type (2) et (2').

Le fond (2') est équipé d'une tubulure (3) d'entrée de gaz de synthèse ou de protection, préchauffé à 400°C au maximum, et utilisé pour maintenir le corps de force à une température inférieure à celle de la chambre de catalyse, d'une tubulure (4') formant manchon thermique et boîtier pour les compensateurs (6') de la tubulure axiale

horizontale de sortie de gaz chaud effluent de synthèse (5') à la température d'environ 500°C, entre 450-530°C.

Le fond (2) est équipé d'une tubulure (4) formant manchon thermique et boîtier pour les compensateurs (6) de la tubulure d'entrée (5) axiale horizontale, diamétralement opposé à la tubulure (5') et introduisant le mélange réactionnel préchauffé pour le démarrage de la réaction.

La virole (1), au centre de sa partie supérieure, est équipée d'une tubulure (7) de grand diamètre, adaptée au remplissage et à la vidange du catalyseur, un fond soudé (8) obture cette tubulure.

A l'intérieur du réacteur est disposée une capacité ou chambre de catalyse (10,11,11') concentrique au corps de force, destinée à recevoir le catalyseur (9,9', 9"). La capacité non démontable est mise en place dans le corps du réacteur avant soudure du fond sphérique (2'). Cette capacité est constituée d'une partie cylindrique (10) ou virole et de deux fonds hémisphériques (11 et 11'), le tout calorifugé extérieurement. Un orifice (12) est prévu au centre à la partie supérieure. Cet orifice correspond à la tubulure (7) par laquelle est introduite la virole (13) terminée par une bride (14) et une bride pleine (15).

Cette tubulure (13) soudée sur la virole (10) est équipée de moyen, tel que des vis diamétralement opposées qui permettent par serrage-appui sur le corps de force (1) d'assurer un point fixe répartissant ainsi les dilatations longitudinales, tout en laissant à la dilatation dans le sens vertical la latitude de s'effectuer librement.

A l'intérieur de la capacité, dans sa partie inférieure sont disposés deux canaux-collecteurs de gaz (16 et 16') reliés à la tubulure des gaz réactionnels effluents (5').

Dans la partie centrale de la chambre réactionnelle (10) deux cloisons amovibles (17-18) et (17'-18') constituées de deux secteurs de cercles emboîtables sont disposées verticalement afin de faciliter la mise en place du catalyseur qui s'effectue par les orifices (7) et (12) en commençant par les extrémités, les cloisons amovibles étant déposées. Le catalyseur étant arasé au niveau des deux plats (19) et (20) figure 2, lorsque le remplissage, compte-tenu du talus d'éboulement arrive à l'emplacement des cloisons, les cloisons (17) et (17') sont montées, le remplissage est poursuivi, ensuite les cloisons (18) et (18') sont montées, la fin du remplissage et l'arasement en (9) et (9') sont réalisés, puis on effectue le remplissage en (9"), enfin

l'orifice interne (12) est obturé par le couvercle (15) et l'orifice externe (7) par soudure du fond (8).

La protection thermique du corps de force (1) est assurée par un calorifuge (39) disposé à l'extérieur de la virole (10) et protégé par une série de viroles assemblées sur des frettes-support circulaires. Le type de calorifuge adapté possède, outre ses qualités isolantes une bonne résistance à la compression. Le calorifuge assume la fonction de supportage de l'enceinte porte-catalyseur, ce qui permet de supprimer tous les ponts thermiques entre la virole (10) contenant le catalyseur et la virole protégeant le calorifuge (39). En outre, le corps de force (1) est aussi protégé thermiquement par la circulation du gaz de protection (30), sous pression, entrant à 400°C par la tubulure (3) puis pénétrant à l'intérieur de la chambre catalytique par la tubulure interne (3') diamétralement opposée. Ce gaz de protection traverse les trous ménagés dans les frettes-supports, et son circuit est canalisé, entre les spires d'une tige métallique (40) à enroulement hélicoïdal, dans l'espace (31, 32, 33, 34) ménagé entre la paroi interne de la virole (1) et des fonds hémisphériques (2) et (2') et la paroi externe protégeant le calorifuge (39), concentrique à la chambre catalytique.

Au démarrage de l'installation, le gaz (30) de protection thermique de la paroi du corps de force (1,2,2'), sous pression entre en (3) à 400°C, circule en (31,32,33,34) et pénètre par la communication (3') dans la chambre catalytique à une température pratiquement de l'ordre de 400°C dans la zone libre (35) au-dessus du catalyseur.

Le gaz de synthèse (30'), préalablement réchauffé à l'extérieur jusqu'à une température maximale de 500°C pour l'amorçage entre dans le réacteur par l'intermédiaire de la tubulure (5), se mélange avec le gaz de protection (30) dans l'espacement (35) entre la surface supérieure du catalyseur et la paroi interne de la chambre catalytique, le mélange réactionnel se répartit en (36,37,38) dans le canal distributeur de gaz réactifs, traverse les zones de catalyseur (9,9',9"). Après réaction, l'effluent de synthèse chaud (35',36',37',38') est capté par les canaux (16) et (16') d'où il ressort par l'intermédiaire du collecteur-tubulure (5') à une température de l'ordre de 500°C, suivant le régime de marche entre 490 et 520°C.

En marche, après amorçage de la réaction, l'injection en (5) est arrêtée et seul le gaz de synthèse ayant joué le rôle de gaz de protection (30) continue à circuler à travers le passage (3') à tempé-

rature voisine de 400°C, puis à entrer en (35) dans la chambre catalytique et passer sur le catalyseur puis ressortir en (5') à une température de 500°C au maximum.

Exemple 2.

Réacteur unicouche horizontal à température de paroi contrôlée à un niveau très modéré de l'ordre de 200°C.

Ce réacteur représenté sur les figures 2,3 et 4 du dessin annexé, est une variante du réacteur précédemment décrit, quant à la structure de circulation du gaz de protection thermique et la température de celui-ci.

Le corps du réacteur est constitué d'une virole (1) de deux fonds hémisphériques (2) et (2'). Le fond (2') est équipé d'une tubulure (3) d'entrée du gaz frais, ou gaz de synthèse ou de protection à une température voisine de 200°C, qui maintient le corps de force (1) à une température très modérée, d'une tubulure (4') formant manchon thermique et boîtier pour les compensateurs (6') de la tubulure axiale horizontale de sortie du gaz chaud (5') après réaction à 500°C environ.

Le fond (2) est équipé d'une tubulure (3') de sortie du gaz de protection à température légèrement supérieure de quelques degrés à la température d'entrée diamétralement opposée à la tubulure (3), d'une tubulure (4) formant manchon thermique et boîtier pour les compensateurs (6) de la tubulure d'entrée (5) de gaz de synthèse avant réaction, diamétralement opposée à la tubulure de sortie (5') des gaz chauds après réaction.

Comme sur la réalisation précédente le corps de force (1,2,2') est équipé de la tubulure (7) et du fond soudé (8). La chambre de catalyse (10,11,11') est disposée à l'intérieur du dit corps de force, celle-ci est munie des orifice (12), tubulure (7), virole (13), bride (14) et couvercle (15) ayant les mêmes fonctions que sur le réacteur de l'exemple 1. Les canaux (16 et 16') sont disposés de la même manière. Et, la chambre catalytique est munie des cloisons amovibles (emboîtables (17-18) (17'-18')), le remplissage du catalyseur (9,9',9'') et son arasement en (19) et (20) s'effectuent suivant la technique déjà décrite.

La protection thermique du corps de force est assurée comme précédemment par le même type de calorifuge (39). Elle est aussi assurée par la circulation du gaz de protection (30) entrant à 200°C en (3) et ressortant par la tubulure (3') à une température supérieure de

quelques degrés. Ce circuit du gaz (30) est canalisé entre les spires de la tige métallique (40) dans l'espace (31,32,33,34):

Au démarrage de l'installation, le gaz de protection, ayant la composition du gaz de synthèse entre en (3) à température de l'ordre de 200°C, circule en (31,32,33,34) et ressort en (3') à 200°C. Ce gaz préalablement réchauffé à l'extérieur du réacteur jusqu'à une température maximale de 500°C entre par la tubulure (5) dans le réacteur, est amené en (35) et réparti dans le canal distributeur (36,37,38), traverse les zones de catalyseur (9,9',9"). Après réaction le gaz chaud constituant l'effluent réactionnel est capté par les canaux (16, 16') d'où il ressort par l'intermédiaire du collecteur précédant la tubulure (5') à 500°C maximum. En marche normale, après amorçage de la réaction, le même processus est suivi excepté que le gaz de synthèse entrant n'est plus préchauffé à 500°C maximum, mais est introduit à une température de l'ordre de 400°C dans la chambre catalytique et ressort à une température d'environ 500°C.

REVENDEICATIONS

1. Réacteur de synthèse catalytique unicouche exothermique en phase gazeuse sous pression, cylindrique, horizontal, caractérisé en ce qu'il est constitué par une virole principale sous haute-pression ou corps de force, composée d'une partie cylindrique (1) et de deux fonds hémisphériques (2)(2'), contenant une enceinte porte-catalyseur (10,11,11'), renfermant une seule couche de catalyseur (9,9',9"), concentrique au corps de force et dont la paroi externe est revêtue d'un isolant (39), un espace (31,32,33,34) étant ménagé entre la paroi interne du corps de force et celle de la paroi externe de l'enceinte porte-catalyseur revêtue d'isolant, reposant sur des frettes et sur un enroulement métallique hélicoïdal (40) d'une extrémité à l'autre de la virole, la virole principale sous haute-pression et l'enceinte porte-catalyseur étant munies de moyen d'introduction (3) et (5), et d'évacuation (3') et (5') des flux gazeux situés aux extrémités du grand axe et disposés en vis à vis sur les fonds hémisphériques, en outre l'enceinte porte-catalyseur étant équipée d'une tubulure verticale (13) de remplissage et vidange du catalyseur.

2. Réacteur de synthèse selon la revendication 1, caractérisé en ce que le revêtement extérieur isolant (39) de l'enceinte porte-catalyseur (10,11,11') hautement résistant à la compression dans les conditions de service assure le supportage de l'enceinte, le dit revêtement isolant (39) étant enfermé dans des viroles de protection mécanique, concentriques à l'enceinte porte-catalyseur (10,11,11'), les dites viroles s'appuyant sur des frettes-supports dans lesquelles sont ménagés des orifices pour le passage des gaz.

3. Réacteur de synthèse selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il comporte deux tuyauteries internes (5) et (5') d'acheminement des gaz réactifs et effluents, et à l'intérieur de l'enceinte porte-catalyseur (10) dans sa partie supérieure un canal distributeur de gaz réactifs (35,36,37,38) et dans sa partie inférieure des canaux-collecteurs (16) et (16') de gaz reliés à la tubulure (5') des gaz effluents.

4. Réacteur de synthèse selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'enceinte porte-catalyseur (10) comporte au moins deux cloisons verticales amovibles (17,18) et (17',18') constituées d'au moins deux secteurs de cercle emboîtables, ménageant temporairement entre elles un espace de travail lors du remplissage du catalyseur.

5. Réacteur de synthèse selon la revendication 4, caractérisé

en ce que la mise en place et le retrait du catalyseur s'effectuent par l'orifice (12) ménagé à la partie supérieure de la chambre de catalyse (10)(11)(11'), celui-ci correspondant à une tubulure ou virole (13), soudée sur la virole principale (10), la virole (13) étant elle-même équipée de moyens (14) permettant par serrage-appui sur la tubulure (7) du corps de force (1) d'assurer un point fixe par rapport aux dilatations longitudinales et l'orifice (12) étant obturé par un couvercle (15), la virole (7) étant obturée par un couvercle (8) soudé.

6. Réacteur de synthèse selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il est associé à au moins un réacteur du même type ou à au moins un réacteur vertical unicouche ou à tout autre type de réacteur.

7. Application du réacteur de synthèse selon la revendication 1 à la synthèse d'ammoniac et du méthanol.

8. Procédé de synthèse catalytique exothermique en phase gazeuse sous pression mis en oeuvre dans le réacteur, selon l'une des revendications 1 à 5, selon lequel la réaction est conduite en présence d'une seule couche de catalyseur avec circulation verticale des gaz réactifs dans la dite couche, caractérisé en ce qu'un courant de gaz isotherme de température moins élevée que celle du gaz contenu dans l'enceinte interne porte-catalyseur, constitué par le gaz d'alimentation sous pression avant son introduction dans la chambre catalytique circule à l'extérieur de celle-ci, d'une extrémité à l'autre, en assurant la protection thermique de la paroi sous haute-pression.

9. Procédé de synthèse catalytique selon la revendication 8, caractérisé en ce que le gaz de protection thermique, sous pression, circule de façon hélicoïdale.

10. Procédé de synthèse catalytique d'ammoniac, selon la revendication 8, caractérisé en ce que le gaz de protection thermique, sous pression, en fin de circuit est introduit directement à la synthèse à une température comprise entre 370 et 420°C.

11. Procédé de synthèse catalytique d'ammoniac, selon la revendication 8, caractérisé en ce que le gaz de protection thermique sous-pression, circulant à une température comprise entre 120 et 250°C, en fin de circuit est réchauffé extérieurement avant d'être réintroduit dans l'enceinte catalytique à un niveau de température d'entrée en réaction.

12. Procédé de synthèse catalytique d'ammoniac, selon la revendication 10, caractérisé en ce que dans la phase d'amorçage de la réaction, on introduit dans la chambre catalytique un gaz d'alimentation

sous pression, à une température au plus égale à 500°C, en cours de marche la température d'entrée du gaz réactif dans la chambre catalytique est de l'ordre de 400°C.

13. Procédé de synthèse catalytique d'ammoniac, selon la revendication 11, caractérisé en ce que dans la phase de démarrage, le gaz réactif est constitué par le mélange du gaz de synthèse sous-pression, préalablement réchauffé à l'extérieur et du gaz de protection isothermique sous la même pression.

14. Procédé de synthèse catalytique d'ammoniac, selon la revendication 13, caractérisé en ce que dans la phase de marche normale, le gaz réactif est uniquement constitué par le gaz de protection thermique.

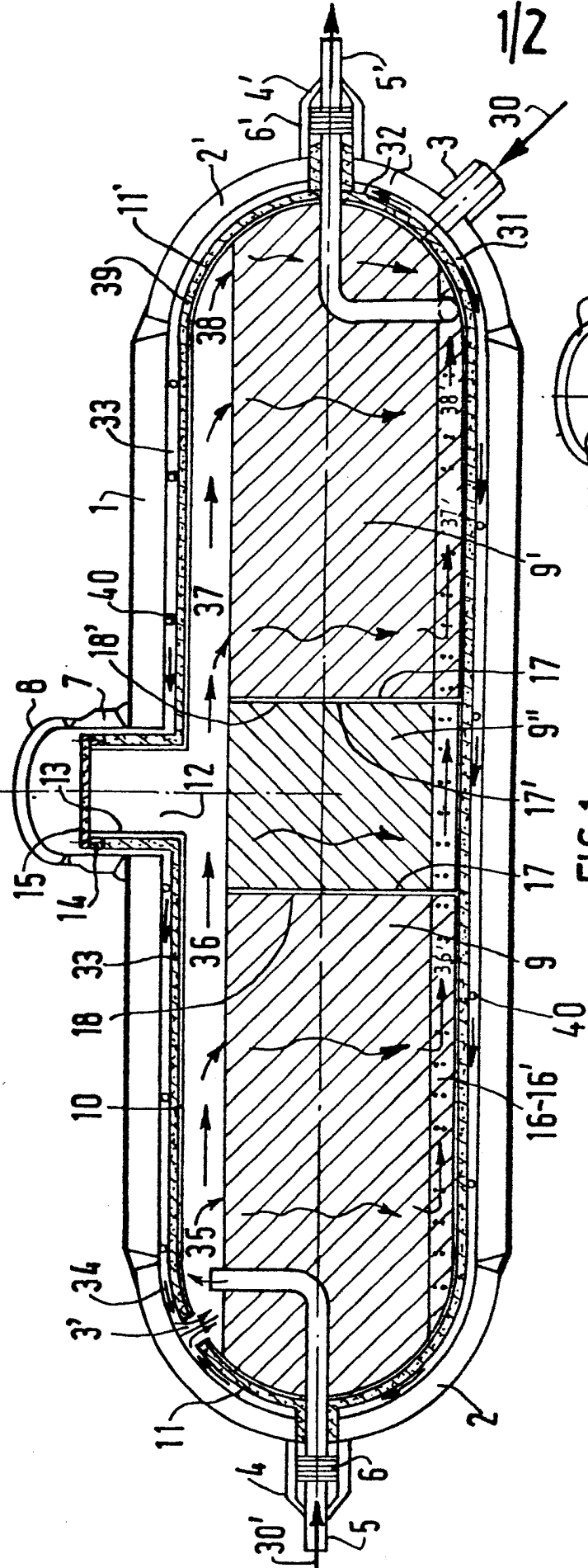


FIG. 1

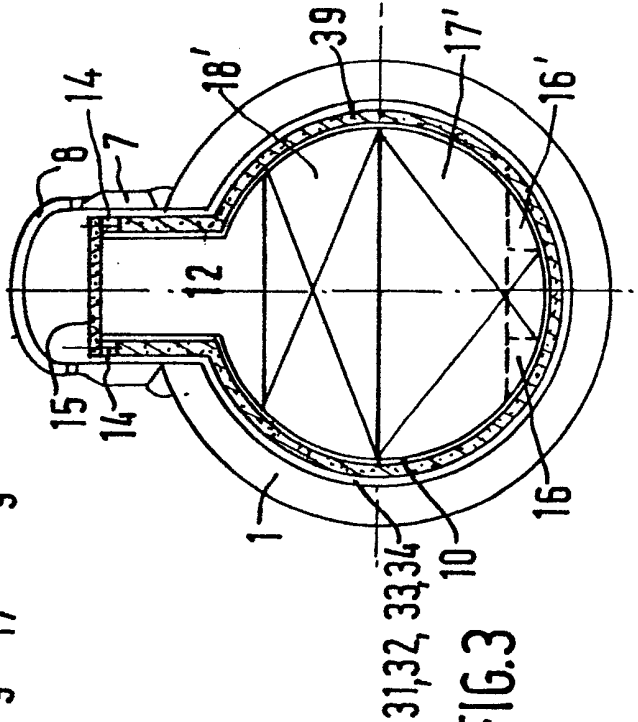


FIG. 3

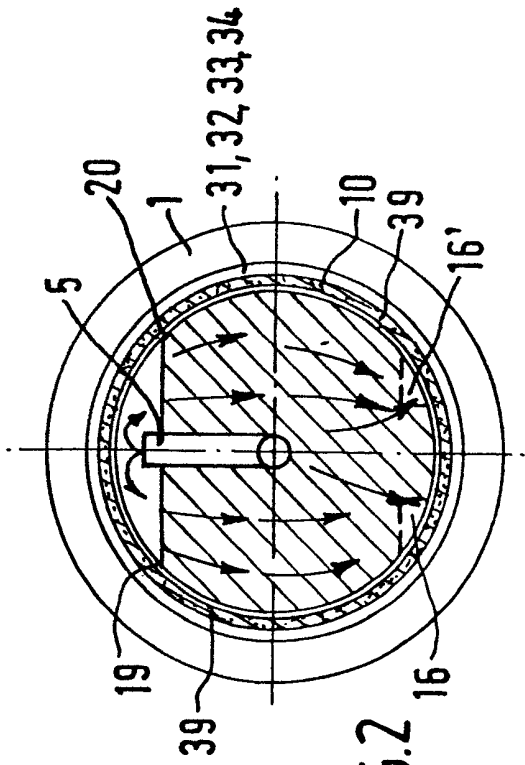


FIG. 2

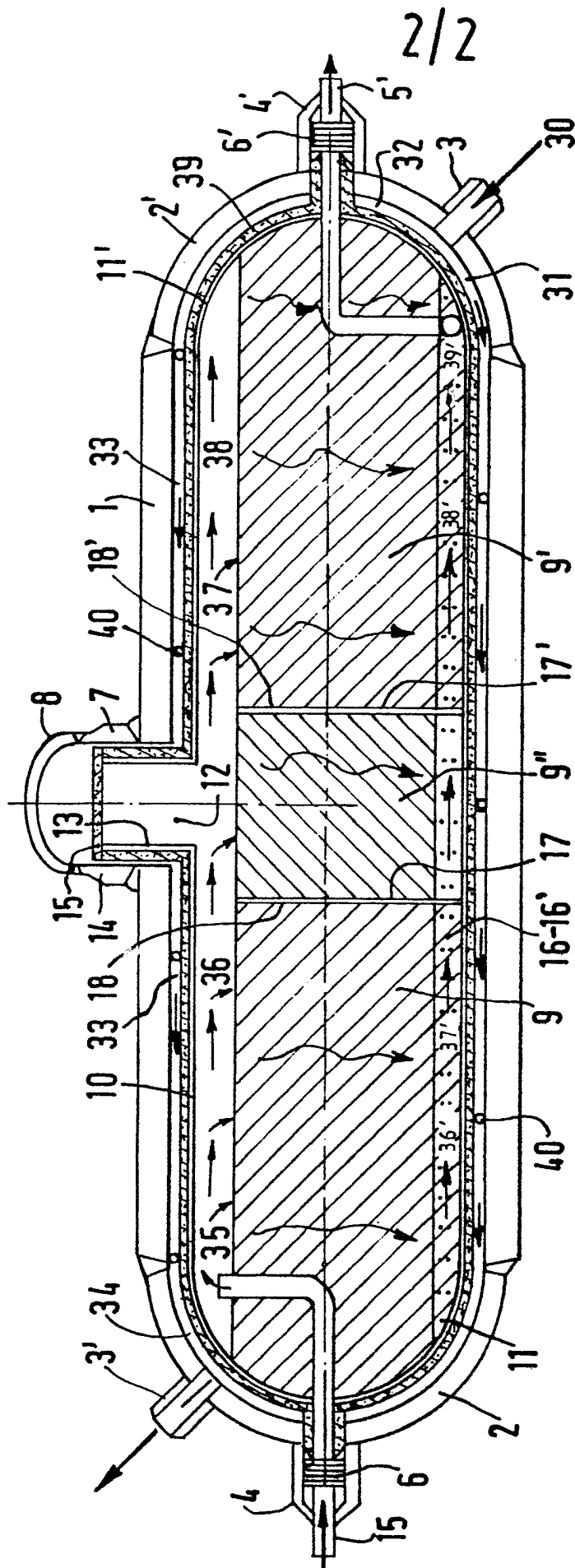


FIG.4



DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl. 4)
A	DE-C- 911 490 (LINDE) * Page 1, lignes 54-81; figures 1,2 *	1,5	B 01 J 8/02 C 01 C 1/04 // C 07 C 29/15
A	US-A-4 452 760 (R.B. PETERSON et al.) * Résumé; figure 1A *		
A	FR-A-2 183 985 (INSTYTUT NAWOZOW SZTUCZNYCH) * Figures 1,2 *		
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl. 4)
			B 01 J C 01 C C 07 C
Le présent rapport de recherche a été établi pour toutes les revendications			
Lieu de la recherche LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 11-03-1986	Examineur SIEM T.D.
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES			
X : particulièrement pertinent à lui seul		T : théorie ou principe à la base de l'invention	
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie		E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date	
A : arrière-plan technologique		D : cité dans la demande	
O : divulgation non-écrite		L : cité pour d'autres raisons	
P : document intercalaire		& : membre de la même famille, document correspondant	