

12

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

21 Numéro de dépôt: 84400070.3

51 Int. Cl.³: **B 01 J 8/04, C 01 C 1/04,**
C 07 C 29/15

22 Date de dépôt: 13.01.84

30 Priorité: 17.01.83 FR 8300630

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

43 Date de publication de la demande: 25.07.84
Bulletin 84/30

72 Inventeur: **Papillon, André, 32 avenue Henri Martin,**
F-94400 Saint-Maur-Des-Fosses (FR)
Inventeur: **Lesur, Pierre, 20 avenue Rapp, F-75007 Paris**
(FR)
Inventeur: **Lafleur, Guy, 2 rue du Bordeau**
Saint-Rémy-L'Honoré, F-78690 Les Essarts-Le-Roi (FR)
Inventeur: **Faury, Christian, 16 avenue Victor Hugo,**
F-92170 Vanves (FR)

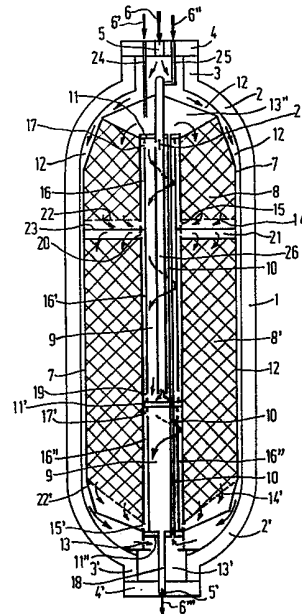
84 Etats contractants désignés: **AT BE CH DE FR GB IT LI**
LU NL SE

74 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)

54 **Procédé de régulation des températures de fonctionnement d'un réacteur de synthèse et équipement interne de mise en oeuvre.**

57 La régulation des températures de fonction d'un réacteur de synthèse exothermique est faite par échange indirect de chaleur à contre-courant dans une zone unique d'échange thermique à circulation axiale, interne, au centre de la zone catalytique, avec introduction directe d'une fraction du gaz sortant du premier lit catalytique à l'entrée du deuxième lit catalytique.

Application aux réacteurs des grandes unités de production d'ammoniac et de méthanol.



La présente invention concerne un procédé de régulation des températures de fonctionnement d'un réacteur de synthèse et l'équipement interne de mise en oeuvre.

Il est bien connu que dans les réacteurs de synthèse où sont industriellement effectuées des réactions catalytiques exothermiques d'équilibre en phase gazeuse, comme par exemple dans la synthèse de l'ammoniac ou dans celle du méthanol, il est nécessaire de faire un contrôle précis des conditions de réaction, ce qui signifie que, pour une pression donnée, il convient de disposer des moyens de régulation des températures. En effet, d'une part, en théorie, il est souhaitable de maintenir la température à la fois à une valeur suffisamment basse pour favoriser l'équilibre et à une valeur suffisamment élevée pour favoriser la vitesse de réaction en présence d'un catalyseur de caractéristiques données. D'autre part, notamment dans la conduite de la synthèse du méthanol, il est impératif d'éviter la surchauffe du catalyseur et la naissance éventuelle de réactions parasites. Le moyen dont on peut s'approcher de ce régime idéal dépend étroitement de la structure interne du réacteur de synthèse et de la méthode utilisée pour le réglage de la température.

Avec l'apparition des unités de grande capacité de production comportant un réacteur unique, fonctionnant à une pression modérée - comprise entre 5 et 35 MPa pour la synthèse d'ammoniac et entre 5 et 15 MPa pour la synthèse de méthanol, la méthode classique consistant à refroidir la masse elle-même du catalyseur, soit en disposant directement celui-ci à l'intérieur de plusieurs tubes d'échange de chaleur, soit au contraire en le plaçant à l'extérieur des dits tubes, en raison de difficultés technologiques de réalisation a été remplacée par une nouvelle méthode consistant à diviser le catalyseur en plusieurs lits, de façon à ce que le gaz réagisse adiabatiquement à l'intérieur de chaque lit individuel et que l'on procède à son refroidissement à la sortie du lit considéré et avant son entrée dans le lit suivant. Et l'on connaît deux méthodes de refroidissement intermédiaire.

Selon la première méthode, on assure ce refroidissement par simple mélange du gaz provenant de la réaction dans un lit catalytique donné et sortant de celui-ci à une température relativement élevée, telle 450 à 525°C dans le cas de la synthèse de l'ammoniac, avec du gaz frais n'ayant pas encore réagi, à une température nettement inférieure à celle de la réaction, par exemple 100 à 250°C, toujours pour la synthèse de l'ammoniac. Ainsi, une certaine proportion du gaz frais

doit être introduite comme moyen de refroidissement entre les lits successifs de catalyseur, ce qui signifie qu'une partie seulement du gaz de boucle est introduite dans le premier lit, et que la proportion du gaz de boucle passant dans chacun des lits successifs augmente progressivement au fur et à mesure de l'addition du gaz de refroidissement. Suivant ce principe, la totalité du gaz de boucle à traiter n'est au contact du catalyseur que dans le dernier lit catalytique. A la sortie de ce dernier lit, le gaz total ayant réagi - à une température de 425 à 475°C pour la synthèse de l'ammoniac - passe alors dans un échangeur de chaleur, qui permet de porter la fraction du gaz entrant dans le premier lit à la température convenable pour l'amorçage de la réaction, à 350-425°C pour l'ammoniac. Cet échangeur dénommé "échangeur final" est le plus souvent placé dans le même tube de force que les lits de catalyseur à la partie inférieure de ce tube, ou bien disposé dans un tube de force séparé.

Suivant la seconde méthode on effectue le refroidissement intermédiaire au moyen d'un échangeur de chaleur indirect ; le fluide refroidissant étant un fluide extérieur ou le gaz frais de synthèse lui-même n'ayant pas encore réagi. Dans ce cas, la totalité du gaz de boucle peut ainsi passer successivement à travers tous les lits de catalyseur, ceci ayant pour effet principal, toutes autres conditions étant égales par ailleurs, pour une quantité donnée de catalyseur, d'accroître le rendement de la réaction de synthèse. Sachant que la synthèse s'effectue dans les conditions les plus favorables au début du premier lit catalytique, on comprendra tout l'intérêt du passage de la totalité du gaz à traiter au travers de ce premier lit. On connaît une mise en oeuvre de cette méthode avec positionnement d'un échangeur entre chaque couche catalytique.

Dans le cadre de l'application du principe de cette seconde méthode de régulation des températures de fonctionnement d'un réacteur de synthèse à lits de catalyseur superposés dans lequel sont effectués des réactions catalytiques exothermiques d'équilibre en phase gazeuse, on a recherché des conditions de circulation des gaz d'échange de chaleur et de réglage des températures permettant l'utilisation de grands diamètres pour les lits de catalyseur, tout en limitant la perte de charge des gaz traversant ceux-ci, même lorsque la granulométrie du catalyseur est faible de façon à améliorer le rendement de la réaction de synthèse.

On a trouvé que, même dans des unités modernes de très gran-

des capacités, pouvant atteindre plusieurs milliers de tonnes par jour, il est possible d'obtenir un excellent rendement de la réaction de synthèse, avec des pertes de charge minimales des gaz traversant les différents lits catalytiques, tout en assurant leur écoulement d'une manière uniforme à travers toute la section traversée, et ceci d'une manière particulièrement simple, en faisant circuler axialement les gaz réagissants, sans être contraint de recourir à des circulations radiales ou axialo-radiales, mettant en oeuvre des dispositifs de circulation des gaz, d'échange de chaleur et d'étanchéité des différents circuits entre eux, plus compliqués, toujours délicats de réalisation et difficiles à mettre en place.

Le gaz frais de boucle n'ayant pas encore réagi est réchauffé à la température convenable d'amorçage pour son entrée dans le premier lit de catalyseur par échange indirect, d'abord avec le gaz sortant du dernier lit de catalyseur, et ensuite, successivement avec le gaz sortant de l'avant-dernier lit de catalyseur, dans le but également de refroidir ce dernier gaz à la température convenable à son entrée dans le dernier lit de catalyseur, puis avec le gaz sortant de l'antépénultième lit de catalyseur, dans le but également de refroidir ce dernier gaz à la température convenable à son entrée dans l'avant-dernier lit de catalyseur, jusqu'à ainsi avec le gaz sortant du premier lit de catalyseur, dans le but également de refroidir ce dernier gaz à la température convenable à son entrée dans le deuxième lit de catalyseur.

Dans une variante simplifiée avec deux lits de catalyseur, le gaz frais de boucle n'étant pas encore à la température convenable d'amorçage pour son entrée dans le premier lit catalytique, utilise d'abord la chaleur du gaz sortant du deuxième et dernier lit catalytique, et ensuite celle, seulement du gaz sortant du premier lit de catalyseur, afin de refroidir ce dernier gaz à la température convenable à son entrée dans le deuxième lit du catalyseur.

L'échange indirect de chaleur à contre-courant s'effectue dans une zone d'échange thermique à circulation axiale unique, interne, au centre de la zone catalytique, de hauteur égale à celle de la zone catalytique. Le gaz frais de boucle, subdivisé en un grand nombre de courants, circule dans le sens ascendant sur toute la longueur de la zone d'échange thermique, elle-même subdivisée en un nombre de sections d'échange thermique égal au nombre de lits catalytiques. La longueur de chaque section d'échange thermique est proportionnelle

0114138
au degré de réaction dans chaque lit catalytique, c'est-à-dire à la quantité de chaleur à enlever. En conséquence, les longueurs des sections d'échange thermique vont en décroissant de la section supérieure à la section inférieure de la zone d'échange thermique.

5 Selon l'invention, la régulation des températures de fonctionnement d'un réacteur de synthèse, peut être complétée par l'introduction directe d'une fraction du gaz frais de boucle dans le premier lit catalytique. Ce réglage par introduction de gaz non réchauffé, a pour effet de limiter partiellement l'action de l'échange thermique interne en diminuant le débit de gaz frais réchauffé et donc de modérer et de contrôler la température d'entrée au 1er lit catalytique.

10 On peut mettre en oeuvre deux autres moyens de réglage complémentaires de la température de fonctionnement du réacteur, en agissant sur la température d'entrée sur le deuxième lit de catalyseur. Ces moyens complémentaires sont utilisés en fonction de la composition du gaz de réaction, du degré de réaction souhaité dans le lit catalytique et de l'âge du catalyseur.

15 L'introduction directe d'une fraction du gaz frais de boucle n'ayant pas encore réagi dans le gaz entrant dans le deuxième lit catalytique, modère la température d'entrée dans celui-ci; cette fraction du gaz frais ne passe alors ni dans l'échangeur interne ni dans le premier lit catalytique.

20 On peut aussi procéder à une introduction directe d'une fraction du gaz sortant du premier lit catalytique directement à l'entrée du deuxième lit catalytique. Ce dernier réglage a pour résultat que cette fraction du gaz ne passe plus dans l'échangeur thermique interne de la section supérieure d'échange et donc d'élever la température d'entrée au deuxième lit catalytique.

25 Dans le cas d'un plus grand nombre de lits catalytiques on met en oeuvre des moyens supplémentaires de réglage de la température à l'entrée des lits catalytiques suivants, soit pour la modérer, soit pour l'augmenter selon les mêmes moyens que décrits précédemment.

30 Le réacteur de synthèse adapté à la régulation des températures de fonctionnement selon l'invention est d'un type vertical ou sphérique.

35 Ce réacteur est généralement constitué d'une manière classique par un tube ou corps de force, comportant une virole cylindrique verticale, munie à chaque extrémité d'une calotte hémisphérique, comportant des tubulures d'entrée et de sortie des gaz. Dans un réac-

teur de type sphérique les deux hémisphères sont réunis sans virole cylindrique intermédiaire.

5 A l'intérieur du réacteur est placé un équipement interne démontable, aucune soudure n'étant effectuée à l'intérieur du corps de force au moment du montage.

10 L'équipement interne du réacteur est constitué d'une enveloppe étanche généralement calorifugée contenant au moins deux lits catalytiques superposés, supportés par des grilles, la sortie d'un lit étant séparée de l'entrée du lit suivant par une cloison étanche de séparation ; l'ensemble constituant la cartouche catalytique, et la dite enveloppe comportant à sa partie supérieure une chambre de répartition uniforme des gaz entrant dans le premier lit de catalyseur. Les grilles supportant le catalyseur peuvent être inclinées en montant du centre vers l'extérieur du réacteur.

15 L'équipement interne du réacteur est caractérisé par un échangeur de chaleur, interne, central, démontable, placé symétriquement par rapport à la cartouche catalytique. Cet échangeur unique disposé verticalement dans l'axe du réacteur, comporte les différents conduits ou passages permettant la circulation désirée des gaz entre 20 les différentes sections de l'équipement interne.

L'échangeur central est constitué par un grand nombre de tubes verticaux disposés dans une virole concentrique à l'axe du réacteur, à l'intérieur desquels circule de bas en haut le gaz frais de boucle avant réaction en vue de son réchauffement à la température 25 convenable d'amorçage de la réaction de synthèse pour son entrée dans le premier lit de catalyseur.

Le dimensionnement de l'échangeur est tel que compte-tenu de l'échange thermique désiré suivant le type de synthèse, sa hauteur soit égale à la somme des hauteurs des lits de catalyseurs, y compris 30 les hauteurs des espaces intermédiaires entre les lits, c'est-à-dire à la cartouche catalytique.

La paroi externe de la virole de l'échangeur est en contact avec la cartouche catalytique, et un espace concentrique est ménagé entre cette paroi externe de la virole et le périmètre externe des 35 tubes échangeurs, sur toute la hauteur de l'échangeur, en vue de la circulation des gaz provenant des différents lits catalytiques.

L'échangeur de chaleur comporte un nombre de plaques tubulaires supérieur de une unité au nombre de lits de catalyseurs. Pour un réacteur comportant seulement deux lits catalytiques, l'échangeur

comporte alors trois plaques tubulaires ; c'est-à-dire deux plaques aux extrémités supérieure et inférieure de l'échangeur et une plaque intercalaire.

5 Le positionnement de la ou des plaques intermédiaires est en relation fonctionnelle avec l'échange thermique désiré entre les différents circuits de gaz ; les longueurs relatives entre les plaques tubulaires étant proportionnelles au degré de réaction dans chaque lit. Sachant que la quantité de chaleur à enlever de chacun des lits catalytiques individuels diminue en fonction du taux de trans-
10 formation dans chaque lit, c'est-à-dire du premier au dernier lit catalytique les tailles relatives des différentes zones de l'échangeur vont en diminuant du haut en bas de l'échangeur ; la plus grande longueur étant comprise entre la plaque tubulaire supérieure de l'échangeur et la première plaque intermédiaire.

15 Entre la plaque tubulaire inférieure et la plaque tubulaire intermédiaire, le gaz frais avant réaction circulant dans les tubes verticaux de l'échangeur est réchauffé à contre-courant par les gaz sortant du dernier lit catalytique. Entre la plaque tubulaire intermédiaire et la plaque tubulaire supérieure de l'échangeur le gaz frais
20 avant réaction circulant dans les tubes verticaux de l'échangeur est réchauffé à contre-courant par le gaz ayant réagi sortant du précédent lit catalytique, c'est-à-dire du premier lit dans le cas d'un réacteur à deux lits.

25 Les nombreux tubes de l'échangeur thermique sont fixés par exemple par soudage sur les plaques tubulaires extrêmes, et fixés par exemple par dudgeonnage sur la ou les plaques intermédiaires, lessoudures des tubes sur les plaques extrêmes sont facilement accessibles, à partir des tubulures supérieure et inférieure du réacteur.

30 Les parois externe et interne délimitant l'espace concentrique externe de l'échangeur thermique comportent des orifices de circulation des gaz aux niveaux supérieur et inférieur de chacune des sections délimitées par les plaques tubulaires, et au niveau de la sortie d'un lit catalytique et de l'entrée du lit suivant.

35 Dans un réacteur à deux lits superposés, le gaz sortant du dernier lit catalytique traverse l'orifice de la paroi externe de l'espace concentrique au niveau de la sortie de ce lit, juste au-dessus de la plaque tubulaire inférieure pour monter dans l'espace concentrique, de façon à pénétrer par l'orifice situé au-dessous de la face inférieure de la plaque tubulaire intermédiaire, dans la paroi

0114138

interne de l'espace concentrique, pour circuler de haut en bas, dans un chicanage approprié autour des tubes verticaux, dans lesquels le gaz frais est réchauffé à contre-courant, et ensuite sortir à la partie inférieure du réacteur.

5 Puis le gaz sortant du premier lit catalytique emprunte l'orifice situé dans la paroi externe délimitant l'espace concentrique au niveau de l'espace intercalaire entre la grille supportant le catalyseur et la plaque de séparation, pour remonter dans l'espace concentrique de l'échangeur, de façon à pénétrer par l'orifice supérieur
10 situé sur la paroi interne délimitant l'espace concentrique au-dessous de la face interne de la plaque tubulaire supérieure, pour circuler de haut en bas dans un chicanage autour des tubes et sortir à la partie inférieure de la première section de l'échangeur, par l'orifice inférieur situé juste au-dessus de la face supérieure de
15 la plaque tubulaire intermédiaire, pour circuler de bas en haut dans l'espace concentrique de l'échangeur, et après passage par l'orifice situé dans la face externe de la paroi délimitant l'espace concentrique au niveau de l'entrée du deuxième lit catalytique, pénétrer dans celui-ci et le traverser de haut en bas.

20 Si le réacteur comporte plus de deux lits catalytiques, par exemple 3 ou 4 lits, le principe de circulation du gaz entre la sortie d'un lit et l'entrée dans le suivant reste identique à celui décrit précédemment, avec bien entendu la mise en place du nombre de plaques intermédiaires nécessaire, deux ou trois, et l'adaptation
25 des orifices et des espaces concentriques de circulation des gaz nécessaires.

 L'équipement interne est muni d'un dispositif complémentaire de réglage donnant la possibilité de modérer éventuellement la température d'entrée du gaz sur le deuxième lit catalytique.
30 Selon cette disposition, la section supérieure de l'échangeur thermique, délimitée par la plaque tubulaire supérieure et la première plaque intermédiaire, est équipée sur toute sa longueur d'un tube central en relation avec le sommet du réacteur par une tuyauterie aboutissant à sa partie supérieure.

35 Le tube central de la section supérieure de l'échangeur thermique comporte, à sa partie supérieure au niveau de l'orifice

supérieur de circulation des gaz provenant du lit catalytique supérieur, en dessous de la plaque tubulaire supérieure, un orifice dont l'ouverture est réglable à distance et par lequel on introduit une certaine fraction du gaz sortant du premier lit directement à l'entrée du deuxième lit catalytique. Cet autre moyen de réglage complémentaire est mis en oeuvre quand il est souhaitable d'élever la température d'entrée des gaz dans le deuxième lit catalytique.

Le réacteur est équipé d'un troisième moyen complémentaire de contrôle des températures de fonctionnement, représenté par une tuyauterie pénétrant directement dans la partie supérieure de l'enveloppe étanche dans la boîte de répartition du gaz entrant dans le premier lit catalytique. Ce dispositif est mis en fonctionnement quand il est souhaitable de modérer la température d'entrée au premier lit.

Dans le cas d'un réacteur contenant trois ou quatre lits catalytiques superposés, des moyens et dispositifs complémentaires de réglage de la température à l'entrée des troisième et quatrième lit, soit pour la modérer, soit pour l'élever, sont prévus selon les mêmes principes que ceux choisis pour le réglage de la température d'entrée au deuxième lit.

De plus, un espace de circulation du gaz frais n'ayant pas réagi est ménagé entre le corps de force et l'enveloppe étanche de l'équipement interne, dans lequel le gaz frais circulant de haut en bas est légèrement préchauffé avant son entrée dans les nombreux tubes verticaux de l'échangeur thermique.

L'ensemble de l'échangeur, construit préalablement, est introduit dans le réacteur au moment du montage par l'intermédiaire de la tubulure supérieure, puis, ensuite, le reste de l'équipement interne, constitué d'éléments préfabriqués, est alors monté autour de l'échangeur interne, ainsi que le catalyseur mis en place au fur et à mesure. L'échangeur dans son intégralité, est, par la suite, démontable, après vidange préalable du catalyseur. Le diamètre de la tubulure supérieure du réacteur est choisi juste nécessaire pour procéder au montage, et éventuellement, au démontage de l'ensemble de l'échangeur; le diamètre de la tubulure inférieure peut être plus petit.

Cette manière de procéder est intéressante car elle permet de limiter le diamètre de la tubulure supérieure du réacteur, à ce qui est strictement indispensable au passage de l'ensemble de l'échangeur thermique. Elle autorise donc l'utilisation de grands diamètres pour les lits de catalyseur, sans que l'on soit obligé de prévoir à la partie supérieure, et éventuellement à la partie inférieure, du corps de force une ouverture d'un diamètre aussi grand que celui de l'équipement interne contenant le catalyseur.

De ce fait, les grands diamètres ne sont limités que par les possibilités technologiques de construction des corps de force. Actuellement, on peut réaliser pour des pressions internes de l'ordre de 5 à 25 MPa, des diamètres intérieurs de l'ordre de 8 mètres, tout en ayant la possibilité d'envisager l'utilisation de diamètres intérieurs encore plus grands.

Le nouveau type de réacteur, malgré les importantes quantités de catalyseur mises en oeuvre dans les unités modernes de très grande capacité de production, de l'ordre de plusieurs milliers de tonnes jour, rend possible la limitation des pertes de charge des gaz traversant les lits de catalyseurs, même lorsque la granulométrie est faible, tout en assurant leur écoulement d'une manière uniforme à travers la section traversée, et ceci d'une manière particulièrement simple.

A titre non limitatif, un mode de réalisation et de mise en oeuvre de l'invention est figuré schématiquement sur la figure unique du dessin annexé, qui représente la coupe d'un réacteur de synthèse, comportant deux lits de catalyseur, et muni de son équipement interne de circulation des gaz, d'échange de chaleur entre eux, et de réglage des températures. Les températures indiquées ci-après correspondent au cas particulier d'une unité de production d'ammoniac.

Sur la figure, ce réacteur de synthèse est constitué par un tube de force, comportant une virole cylindrique (1), munie à chaque extrémité d'une calotte hémisphérique (2) et (2'), comportant chacune une tubulure (3) et (3'), fermée par un couvercle (4) et (4'), au travers duquel est pratiqué un orifice (5) et (5').

Par l'orifice supérieur (5), on introduit le gaz frais de boucle n'ayant pas encore réagi (6). Par l'orifice inférieur (5'),

0114138

on sort le gaz ayant réagi (6'') dans l'appareillage situé à l'intérieur du réacteur, et décrit ci-après.

5 A l'intérieur du réacteur, l'équipement interne démontable est constitué d'une enveloppe étanche (7), en général calorifugée contenant le catalyseur déposé en deux lits horizontaux (8) et (8'), et l'échangeur de chaleur (9) placé verticalement dans l'axe du réacteur.

10 L'échangeur central (9) est constitué d'un grand nombre de tubes verticaux (10) dont la longueur est celle de l'échangeur, disposés dans une virole concentrique à l'axe du réacteur, à l'intérieur desquels circule, de bas en haut, le gaz frais de boucle n'ayant pas encore réagi (6) de façon à ce qu'il soit réchauffé à la température convenable d'amorçage pour son entrée dans le premier lit catalytique (8).

15 Dans ce réacteur à deux lits catalytiques, l'échangeur de chaleur comporte les 3 plaques tubulaires respectivement numérotées (11), (11') et (11''). Les nombreux tubes (10) de l'échangeur sont fixés, par exemple, par soudage sur les plaques tubulaires extrêmes (11) et (11'') et, par exemple, par dudgeonnage sur la plaque tubulaire intermédiaire (11'). Les fixations des tubes sur les plaques extrêmes sont facilement accessibles, à partir respectivement des tubulures (3) et (3'). Le diamètre de la tubulure (3) est dimensionné juste nécessaire pour procéder au montage, et, éventuellement, au démontage de l'ensemble de l'échangeur. Les impératifs
20 n'étant pas les mêmes pour la tubulure inférieure (3'), le diamètre peut être plus petit.

25 Le gaz frais de boucle est introduit par l'orifice (5) à une température relativement modérée, dépendante du système adopté pour la récupération de la chaleur de réaction à l'extérieur
30 du réacteur lui-même (par exemple 100 à 250°C), circule dans l'espace (12) compris entre le corps de force (2, 1, 2') et l'enveloppe étanche (7) de l'équipement interne de haut en bas par exemple, de façon à maintenir ce corps de force à cette température modérée de 100 à 250°C, alors que le régime des températures à l'intérieur de
35 l'enveloppe (7) est nettement plus élevé (350 à 525°C). L'espace (12) est muni d'un dispositif de bonne circulation du gaz non représenté sur la figure.

0114138

A la partie inférieure du réacteur, le gaz frais, légèrement réchauffé de quelques degrés par rapport à sa température d'entrée à travers les passages (13) s'introduit dans la boîte (13') d'où il pénètre à l'intérieur de l'ensemble des tubes (10) de l'échangeur (9), pour être réchauffé, d'abord, en parcourant la longueur comprise entre la plaque tubulaire (11'') et la plaque tubulaire (11'), puis en parcourant celle comprise entre la plaque tubulaire (11') et la plaque tubulaire (11) jusqu'à une température finale de l'ordre de 350 à 425°C, convenable pour l'amorçage de la réaction de synthèse de l'ammoniac. Le gaz entrant est alors réparti uniformément dans la boîte de répartition (13'') d'où il pénètre dans le premier lit de catalyseur (8).

Entre la plaque tubulaire inférieure (11'') et la plaque intermédiaire (11') le gaz frais n'ayant pas réagi circulant dans les tubes (10) de l'échangeur thermique est réchauffé à contre courant par le gaz (14') sortant du second lit de catalyseur (8') qui est passé par l'orifice (15') pour monter dans l'espace concentrique (16'') aux tubes de l'échangeur de chaleur, de façon à pénétrer ensuite par l'orifice (17') pour circuler de haut en bas, dans un chicanage approprié non représenté, autour des tubes (10) et sortir à la partie inférieure de l'échangeur de chaleur (9) par la tuyauterie (18) et l'orifice (5').

De même, entre la plaque tubulaire intermédiaire (11') et la plaque tubulaire supérieure (11) le gaz frais est réchauffé à contre-courant par le gaz (14) sortant du premier lit catalytique (8) qui est passé par l'orifice (15), pour monter dans l'espace concentrique (16) de façon à pénétrer ensuite par l'orifice (17) pour circuler de haut en bas, dans un chicanage approprié, autour des tubes (10) et sortir finalement à la partie inférieure du second segment de l'échangeur de chaleur juste au-dessus de la plaque tubulaire intermédiaire (11') par l'orifice (19) avant de remonter de bas en haut dans l'espace concentrique (16') et passer par l'orifice (20) avant d'entrer en (21) dans le second lit de catalyseur.

Les lits de catalyseur sont supportés par les grilles (22) et (22'). Et la sortie du premier lit est séparée de l'entrée du deuxième par la cloison de séparation étanche (23).

0114138

Le gaz ayant réagi sort du premier lit catalytique en (14) à une température comprise entre 475 et 525°C, pour être ensuite refroidi à l'entrée du deuxième lit (21) jusqu'à une température comprise entre 350 et 425°C, pour l'élever à nouveau dans le deuxième lit catalytique jusqu'à 425 à 475°C en sortie (14').

Le réacteur est muni d'un ensemble de moyens permettant de contrôler le régime des températures de fonctionnement à l'entrée de chacun des lits de catalyseur.

La tuyauterie (24), au sommet du réacteur, permet l'introduction directe d'une certaine fraction de gaz frais de boucle(6') dans la boîte (13") puis dans le premier lit catalytique (8).

Par l'intermédiaire de la tuyauterie (25), également au sommet du réacteur, et du passage central (26) de l'échangeur thermique (9), on peut introduire directement une certaine fraction du gaz frais de boucle (6"), qui après passage par l'orifice (19) se mélange au gaz provenant de la réaction dans le premier lit catalytique (8) ayant circulé dans la partie supérieure de l'échangeur entre les plaques tubulaires (11) et (11') , et remonte en mélange avec ce dit gaz, dans l'espace concentrique (16') et après passage par l'orifice (20) pénètre en (21) dans le second lit catalytique.

Par l'intermédiaire de l'orifice (27), dont l'ouverture est réglable à distance, ménagé dans le passage central (26) de l'échangeur (9), juste en dessous de la plaque tubulaire supérieure (11), au niveau de l'orifice(17) on peut introduire directement une fraction du gaz sortant (14) du premier lit catalytique (8) qui emprunte l'orifice (15), remonte dans l'espace concentrique (16), en sort par l'orifice (17), s'introduit dans le tube central de l'échangeur (26) par l'orifice (27) qui est ouvert, circule de haut en bas dans le dit tube central puis passe par l'orifice (19) ménagé à la base de la partie supérieure de l'échangeur thermique, circule de bas en haut dans l'espace concentrique(16'), et après passage par l'orifice (20) s'introduit en (21) dans le second lit catalytique.

L'ensemble de l'appareillage, ainsi que les moyens d'entrée et de sortie des gaz dans les différents circuits sont munis des systèmes d'étanchéité et des dispositifs de dilatation des matériaux adaptés, en fonction des variations des températures, tant au démarrage, qu'en cours de marche et au moment de l'arrêt.

REVENDEICATIONS

1. Procédé de régulation des températures de fonctionnement d'un réacteur de synthèse exothermique catalytique, sous pression, en phase gazeuse dont la zone catalytique contient au moins deux lits catalytiques superposés, et à circulation interne, verticale et axiale des gaz, selon lequel le gaz frais de boucle avant réaction est réchauffé par échange indirect avec le gaz sortant du dernier lit de catalyseur, et ensuite successivement, avec le gaz sortant de l'avant-dernier lit de catalyseur, puis avec le gaz sortant de l'antépénultième lit de catalyseur, jusqu'à ainsi avec le gaz sortant du premier lit de catalyseur, l'échange indirect de chaleur à contre-courant s'effectuant dans une zone d'échange thermique à circulation axiale, interne, au centre de la zone catalytique, le gaz frais de boucle subdivisé en un grand nombre de courants circulant dans le sens ascendant sur toute la longueur de la zone thermique, caractérisé en ce que l'on procède à l'introduction directe d'une fraction du gaz sortant du premier lit catalytique, à l'entrée du deuxième catalytique.

2. Réacteur de synthèse exothermique, catalytique, en phase gazeuse, sous pression en vue de la mise en oeuvre du procédé selon la revendication 1, constitué d'un tube de force à l'intérieur duquel est placé un équipement interne constitué d'une enveloppe étanche (7) contenant au moins deux lits catalytiques superposés (8), supportés par des grilles 22 et 22', la sortie d'un lit étant séparée de l'entrée du lit suivant par une cloison étanche de séparation (23), l'ensemble constituant la cartouche catalytique, et ladite enveloppe comportant à sa partie supérieure une chambre de répartition uniforme du gaz entrant (13") dans le premier lit de catalyseur (8), selon lequel l'équipement interne contient un échangeur de chaleur (9) interne, central, démontable, vertical, placé symétriquement par rapport à la cartouche catalytique, ledit échangeur (9) comportant un nombre de plaques tubulaires (11, 11', 11") supérieur de une unité au nombre de lits catalytiques (8), (8'), caractérisé en ce que la section supérieure de l'échangeur de chaleur délimitée par la plaque tubulaire supérieure (11) et la première plaque intermédiaire (11') est équipée sur pratiquement toute sa longueur d'un tube central fermé au sommet (26), en relation avec le sommet du réacteur par une tuyauterie

aboutissant à la partie supérieure de ce dernier (6"), et ouvert à sa partie inférieure, ledit tube central comportant à sa partie supérieure, juste en dessous de la plaque tubulaire supérieure (11), au niveau de l'orifice supérieur (17) de circulation des gaz provenant du lit catalytique supérieur, un orifice dont l'ouverture est réglable à distance (27).

3. Application du procédé de régulation des températures de fonctionnement selon la revendication 1, aux réacteurs de grands diamètres, utilisables en particulier dans les unités de production de grosse capacité d'ammoniac et de méthanol.

