## MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE ET DU COMMERCE

## **BREVET D'INVENTION**

SERVICE

de la PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

Gr. 14. — Cl. 8.

\$\frac{1}{2} \text{PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE} \text{N° 1.009.517} \text{N° 1.009.517}

Procédé et installation pour obtenir une répartition régulare des gaz dans des tubes de catalyse séparés en particulier dans le cas de l'hydrogénation catalytique de l'exyde de carbone.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Allemagne.

Demandé le 30 janvier 1950, à 13<sup>h</sup> 16<sup>m</sup>, à Paris. Délivré le 12 mars 1952. — Publié le 30 mai 1952.

(2 demandes de brevets déposées : la 1º en Allemagne le 12 mars 1949; la 2º au Danemark le 15 juillet 1949. — Déclaration du déposant.).

Pour l'hydrogénation catalytique de l'oxyde de carbone et autres opérations analogues de traitement des gaz on utilise pour la synthèse des fours contenant un grand nombre de tubes remplis de catalyscurs, et parcourus de haut en bas on inversement par les gaz de synthèse. Les tubes de catalyse sont refroidis extérieurement par une circulation de fluide réfrigérant; de préférence de l'eau sous pression, fluide qui prélève la chaleur dégagée au cours de la réaction. Pour améliorer l'action de refroidissement, on a déjà placé le catalyseur dans des espaces de forme annulaire; ce résultat est obtenu en disposant à l'intérieur des tubes d'autres tubes coaxiaux également parcourus par le fluide de refroidissement.

La perméabilité de différentes charges de catalyseur présentes dans chacun des tubes est, dans le cas d'un grand nombre de tubes, très variable, ce qui est facilement compréhensible, si l'on considère qu'un four moderne d'hydrogénation de l'oxyde de carbone comporte 2 000-3 000 tubes, qu'il n'est pas facile de remplir de catalyseur d'une manière régulière de façon que tous offrent la même résistance au passage des gaz. Les tubes de catalyse, qui offrent une faible résistance au passage des gaz, laissent passer des quantités de gaz relativement grandes. Dans ce eas, le catalyseur qui se trouve à l'intérieur est surchargé et le taux de transformation est plus faible que dans le cas d'une densité de passage normale. C'est pourquoi les fours de synthèse des grosses installations travailleut toujours dans des conditions moins favorables que les tubes uniques comme ceux qu'on emploie par exemple dans les installations d'essais.

Pour obtenir une densité de passage tout à fait régulière, on dispose, suivant l'invention, immédiatement avant l'entrée des gaz dans les tubes contenant le catalyseur, des dispositifs offrant une résistance au passage des gaz sensiblement égale pour tous et au moins aussi grande et, de préférence, sensiblement plus grande que la résistance qu'offrent au courant gazeux les charges de catalyseur elles-mêmes. De cette manière, le courant gazeux total arrivant en tête du four est divisé par différents étranglements, offrant une résistance relativement grande mais sensiblement la même, en des courants partiels exactement égaux. Lorsque ces courants partiels rencontrent, à l'intérieur des charges disposées derrière les étranglements, des résistances inégales, la vitesse de circulation à l'intérieur des tubes isolés n'est influencée que d'une manière insignifiante.

Le procédé, suivant l'invention, peut être mis en œuvre à l'aide de tout dispositif d'étranglement approprié.

Sur le dessin annexé on a représenté, à titre d'exemple nullement limitatif différentes formes de réalisation de dispositif pour la mis en œuvre du procédé de l'invention.

Sur ce dessin :

Les figures 1 à 4 montrent, en coupe verticale suivant l'axe, des coupelles qui sont disposées à l'entrée des tubes à catalyse;

Les figures 5 et 6 montrent des plaques perforées disposées en tête d'un groupe plus important de tubes à catalyse.

On reconnaît un tube à catalyse 1 contenant un tube de refroidissement coaxial intérieur 2. Entre les deux tubes 1 et 2 se trouve ménagé un espace annulaire 3 qui contient le catalyseur en grains. Du fait que l'espace annulaire 3 est relativement étroit, le catalyseur est ainsi refroidi d'une manière efficace par deux surfaces de refroidissement.

Sur l'orifice du tube 1 est disposée une cap-

 $2 \sim 41077$ 

Prix du fascicule: 100 francs.

sule en tôle qui se compose d'un fond 4 et d'un corps 5. Le corps 5 est légèrement conique et peut être introduit dans un rodage ménagé sur le tube 1 de telle sorte qu'on obtient une fermeture étanche et que le gaz de synthèse ne peut pénétrer dans la charge de catalyseur que par des ouvertures capillaires 6. Ces ouvertures capillaires 6 qui peuvent être multiples, possèdent, pour chaque capsule, exactement le même diamètre.

Sur les figures 2 et 3, on voit d'autres formes de réalisation de capsules de fermeture. Dans ce cas la capsule d'obturation formée d'un corps en tôle emboutie possède des anneaux en forme de bourrelet 7 et 8 qui viennent en contact avec une pression suffisante contre la surface intérieure du tube 1. L'entrée du gaz se fait par les ouvertures capillaires 9 et 10.

Les capsules de fermeture utilisées pour l'étranglement peuvent aussi être pourvues d'un joint 11 en amiante ou en céramique (par exemple laine de verre) de façon à assurer une fermeture étanche aux gaz. A la place d'anneaux d'étanchéité, les capsules de fermeture peuvent aussi être rendues étanches par des substances, par exemple, circ, goudron, paraffine ou similaires, versées dans une rainure.

Au lieu d'être réalisées en tôle, les capsules de fermeture ainsi obtenues sous forme d'objets moulés à la presse peuvent être réalisées en céramique ou en résines artificielles résistant à la chalcur. Dans ce cas on peut utiliser des matériaux poreux, dont les pores permettent le passage des gaz, comme par exemple des masses en céramique agglomérées ou frittées à partir de matériaux pulvérulents.

Des couches en matière inerte granuleuse par exemple du sable, autant que possible exempt de poussières et tamisé d'une manière régulière, du gravier, du verre pilé, des billes de métal exercent la même action. La grosseur des grains est de préférence choisie égale à 1 mm. La charge de catalyseur de chaque tube est ainsi recouverte d'une couche d'une hauteur allant de 50 à 200 mm.

Sur les figures 5 ct 6 on a représenté un autre dispositif de mise en œuvre du procédé suivant l'invention. Sur la figure 5, on a représenté la partie supérieure d'un four à catalyse dans lequel les gaz entrent par un tube 12. Le catalyseur se trouve disposé dans des tubes 13 sertis d'une manière étanche aux liquides dans un fond pour tubes 14. Au-dessus du fond pour tubes 14 est disposée une plaque d'étanchéité 15 (fig. 6), qui possède pour chaque tube de catalyse, une ouverture correspondante. Au-dessus est disposée une plaque de fermeture 16 formée par exemple d'une forte plaque d'acier de

10-20 mm et possédant, pour chaque tube de catalyse, une ouverture 17 pour le passage des gaz de synthèse. La plaque 16 peut aussi être faite en un matériau poreux comme on l'obtient par agglomération ou frittage de substances pulvérulentes. Les ouvertures des pores qui se trouvent en avant des ouvertures des tubes engendrent alors la résistance au courant gazeux suivant l'invention. An-dessus de la plaque 16, on peut encore disposer une couche 18 de substance de remplissage (environ 20-80 em de haut) qui est placée dans un récipient 19 en fil métallique.

Les gaz de synthèse s'écoulant d'en haut doivent, dans le cas d'une telle disposition, vaincre d'abord la résistance que leur offre la couche de substance de remplissage puis la résistance due à l'étranglement, offerte par les différents tubes capillaires 17. Etant donné que ces derniers offrent, au passage des gaz tous la même résistance, il entre, par unité de temps, en tête de chaque tube à catalyse, pratiquement les mêmes quantités de gaz, car les différences dans les résistances offertes, au passage des gaz, par les différents tubes à catalyse ne sont pas grandes, en comparaison de la grande résistance offerte par l'étranglement interposé, au point d'occasionner des variations dans la vitesse des gaz dans les différents tubes à catalyse et par là dans la densité de passage des gaz.

## résumé.

L'invention a pour objet :

1º Un procédé pour répartir d'une manière régulière les gaz dans les différents tubes d'un four à catalyse, procédé caractérisé par le fait qu'on interpose avant l'entrée des gaz dans les tubes contenant le catalyseur des dispositifs qui, pour tous les tubes dans l'ensemble, offrent, au passage des gaz, une résistance égale et au moins aussi grande, et de préférence sensiblement plus forte que celles qu'opposent, au passage des gaz, les différentes charges contenues dans les tubes;

2º Un dispositif pour la mise en œuvre du procédé ci-dessus, dispositif présentant les caractéristiques suivantes prises isolément ou en combinaison :

a. Il est constitué par des capsules d'obturation des houchous se plaçant à l'orifice d'entrée de gaz dans les tubes et présentant une ou plusieurs ouvertures pour le passage des gaz:

b. La partie des capsules d'obturation précitées s'engageant dans l'orifice des tubes à catalyse est pourvue d'un bourrelet formant ressort et s'appliquant contre la paroi intérieure des tubes à catalyse;

c. Le bouchon de fermeture est fait en une

substance poreuse, de préférence en matières agglomérées ou frittées;

- d. On dispose, on coule entre le tube à catalyse et les bouchons, des joints en amiante, céramique, cire, goudron, paraffine et substances analogues:
- e. Les charges de catalyseur sont recouvertes, à la partie supérieure des tubes de catalyse, par une conche de substance inerte en grains, de préférence du sable, gravier, verre pilé, bille de métal.
- f. Il comporte une plaque de fermeture placée au-dessus des orifices d'un groupe plus important de tubes à catalyse, avec, de préfé-

rence, interposition de joints, ladite plaque possédant, pour chaque tube, une ouverture pour le passage des gaz;

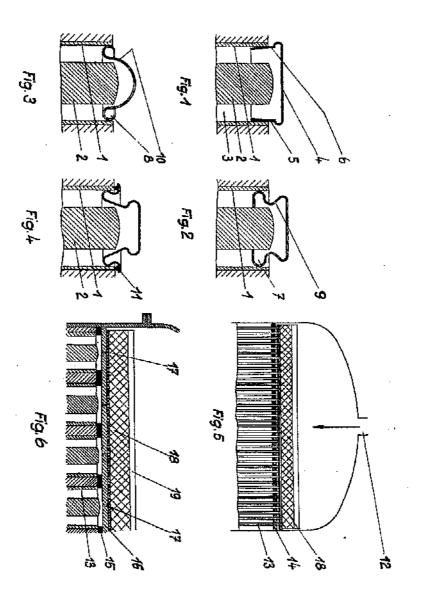
g. La plaque de fermeture ci-dessus est réalisée en matière poreuse, de préférence en matériau aggloméré ou fritté;

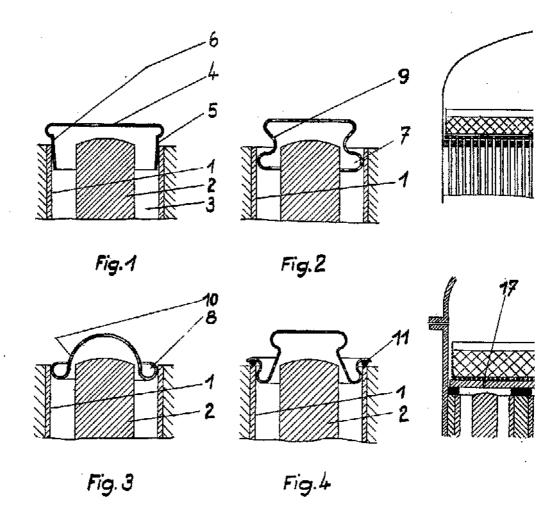
h. On dispose, au-dessus de la plaque de fermeture pourvue d'ouvertures capillaires, une couche de substance de remplisage.

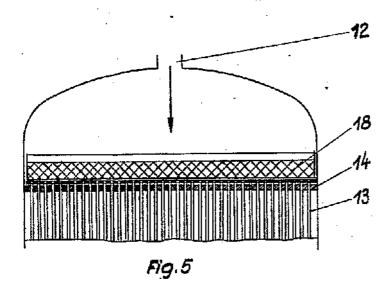
## Société dite : RUMRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT.

Par procuration :

G. BEAU DE LOMÉNIE, André AIMENGAUD et G. HOUSSARD.







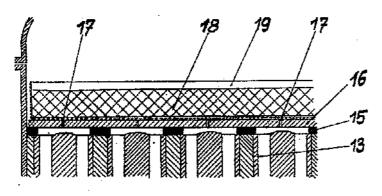


Fig.6