

## MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

## DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

## BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 8.

N° 742.760

## Procédé et appareil pour régler le processus des réactions chimiques.

M. HENRY DREYFUS résidant en Angleterre.

Demandé le 12 septembre 1932, à 15<sup>h</sup> 51<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré le 4 janvier 1933. — Publié le 16 mars 1933.

(Demande de brevet déposée en Angleterre le 24 septembre 1931. — Déclaration du déposant.)

Cette invention a trait aux procédés et appareils servant à réaliser des réactions chimiques entraînant un changement thermique, et spécialement des réactions catalytiques exothermiques réalisées dans la phase de gaz ou de vapeur. Elle concerne plus particulièrement les dispositifs servant à fournir l'agent régulateur de température dans ces réactions.

10 L'invention a pour objet un appareil dans lequel des liquides ou fluides à l'état bouillant ou à un autre état sont placés en relation d'échange de chaleur avec la zone de réaction, ainsi que l'application d'un  
15 appareil de ce genre.

Dans un mode de réalisation important de l'invention, le récipient de réaction est muni d'un ou plusieurs éléments échangeurs de chaleur comprenant deux tubes placés l'un  
20 dans l'autre. Le tube extérieur, ou une partie de ce tube, est placé en relation d'échange de chaleur avec la zone de réaction et l'on admet à l'espace compris entre les tubes externe et interne, ou fait circuler  
25 ou passer à travers cet espace, de l'eau ou un autre fluide régulateur de température. Le tube interne débouche dans le tube externe et est disposé de façon que, après que le fluide régulateur de température a traversé  
30 le tube externe, ce fluide pénètre et se meut dans le tube interne pour sortir de l'appareil

(qu'il soit ou non dans le même état physique). Dans une disposition appropriée d'élément échangeur de chaleur, le tube externe est fermé à l'une de ses extrémités 35 et est agencé pour être relié à une source de fluide régulateur de température à son autre extrémité. Le tube interne pénètre dans le tube externe sensiblement sur toute sa longueur et est agencé pour communiquer 40 avec l'intérieur dudit tube externe en un point voisin de l'extrémité fermée de ce dernier. L'extrémité du tube interne opposée à celle qui communique avec l'intérieur du tube externe peut servir elle-même à 45 conduire le fluide régulateur de température provenant du tube externe, ou bien cette extrémité peut être reliée à tout dispositif jouant ce rôle.

Suivant l'invention, on a découvert qu'on 50 peut régler la température de réactions chimiques exothermiques d'une manière particulièrement efficace si le liquide réfrigérant appliqué dans les éléments échangeurs de chaleur est sous forme d'une pellicule mobile 55 dont le mouvement est effectué ou secondé par la production de vapeur du liquide par la chaleur de la réaction. Lorsqu'on applique ce principe, on peut relier l'espace compris entre les organes creux interne et externe à 60 une source de liquide et faire mouvoir la pellicule de liquide le long dudit espace, la

Prix du fascicule : 5 francs.

vapeur engendrée étant évacuée à l'aide de l'organe creux interne. Toutefois, à titre de variante, on peut disposer un seul organe creux à travers lequel passe la pellicule mobile, du liquide étant fourni à l'une des extrémités de l'organe et de la vapeur étant évacuée à l'autre extrémité.

Il est avantageux de disposer le ou les éléments échangeurs de chaleur verticalement dans le récipient de réaction. En pareils cas, surtout lorsque le fluide régulateur est un liquide qui est appelé à bouillir dans ces éléments, on peut avantageusement amener le liquide à l'extrémité inférieure du tube externe, la communication entre les deux tubes étant établie en un point voisin de leurs extrémités supérieures et le liquide ou sa vapeur s'échappant de l'extrémité inférieure du tube interne. Une disposition de ce genre est en particulier utile lorsqu'un échange de chaleur doit être effectué à l'aide d'un liquide réfrigérant qu'on fait mouvoir dans le tube externe sous forme d'une pellicule mobile dont le mouvement est effectué ou secondé par la production de vapeur du liquide par la chaleur de la réaction.

L'appareil suivant l'invention peut être appliqué au réglage de toutes réactions chimiques impliquant un changement thermique, y compris les réactions endothermiques, mais il est en particulier avantageusement applicable au réglage de réactions exothermiques catalytiques dans la phase de gaz ou de vapeur, et on le décrira ci-après en se référant plus particulièrement à cette application. Les éléments échangeurs de chaleur appliqués au réglage de réactions de ce genre peuvent être agencés pour régler la température du catalyseur ou de lits, couches ou ceintures de catalyseurs de toute manière appropriée. De préférence, on dispose un certain nombre d'éléments échangeurs de chaleur agencés pour traverser le catalyseur ou un ou plusieurs lits, ceintures ou couches de catalyseur, étant donné que, par ce moyen, on peut facilement éviter le surchauffage local et les inconvénients qui en résulteraient. Une série d'éléments échangeurs de chaleur verticaux peuvent être disposés dans ou à travers un ou plusieurs lits, ceintures ou couches de catalyseurs.

Les éléments échangeurs de chaleur peuvent souvent avantageusement être disposés en relation d'échange de chaleur avec les gaz ou vapeurs qui doivent être soumis à la réaction et (ou) avec les produits de la réaction, ainsi qu'avec le catalyseur. Ceci est spécialement le cas lorsqu'un liquide réfrigérant est appelé à bouillir dans les éléments échangeurs de chaleur, et en particulier lorsque le liquide réfrigérant qui s'évapore est appelé à se mouvoir dans lesdits éléments sous forme d'une pellicule mobile de la façon précédemment décrite. Ainsi, par exemple, par une disposition convenable, on peut faire en sorte que les éléments échangeurs de chaleur préchauffent les gaz ou vapeurs destinés à être soumis à la réaction en transférant à ces éléments de la chaleur engendrée dans la réaction. En outre, par exemple, lorsqu'un liquide réfrigérant est appelé à se mouvoir dans les éléments échangeurs de chaleur sous forme d'une pellicule mobile, les gaz ou vapeurs de réaction peuvent, par une disposition convenable, servir à chauffer l'eau ou autre liquide que renferment les tubes externes des éléments échangeurs de chaleur et, de cette façon, à favoriser ou peut-être même effectuer le mouvement de la pellicule de liquide évaporant qu'ils renferment. Ainsi, par exemple, les éléments échangeurs de chaleur peuvent être prolongés au delà des deux côtés d'un lit, ceinture ou couche de catalyseur, les prolongements pénétrant, d'un côté, dans la zone de parcours des gaz ou vapeurs de réaction qui se rendent au catalyseur et, de l'autre côté, dans la zone de parcours des vapeurs ou des produits de réaction gazeux sortant du catalyseur, ce côté des éléments échangeurs de chaleur étant relié à l'admission d'eau ou autre liquide. Dans cette disposition, les éléments échangeurs de chaleur, en particulier lorsque le liquide réfrigérant est soumis à une évaporation dans ces éléments, peuvent effectuer un préchauffage des gaz ou vapeurs de réaction admis, tandis que les vapeurs ou produits gazeux qui s'échappent peuvent facilement servir à permettre l'évaporation de l'eau ou autre liquide dans lesdits éléments, et, de cette façon, produire ou contribuer au mouvement du liquide dans lesdits éléments

de la manière précédemment décrite.

Pour les buts de l'invention, on peut appliquer tout fluide régulateur de température. Lorsque le liquide à appliquer sera appelé à bouillir dans les éléments échangeurs de chaleur ou à y recevoir un mouvement effectué ou secondé par la vapeur résultant du chauffage du liquide par la chaleur de la réaction, ce liquide devra naturellement posséder un point d'ébullition n'excédant pas celui auquel la réaction doit être réalisée. En pareils cas, il est préférable que le point d'ébullition du liquide soit un peu ou même beaucoup plus faible que la température à laquelle la réaction doit être effectuée.

En général, l'eau est un liquide très utile pour les buts de l'invention, en particulier lorsque le liquide doit être évaporé dans les éléments échangeurs de chaleur, que ce liquide soit ou non appelé à se mouvoir dans ces éléments sous forme d'une pellicule mobile comme indiqué précédemment.

Les dessins annexés représentent une disposition d'appareil suivant l'invention lorsque celle-ci est appliquée, à titre d'exemple, à une opération catalytique exothermique réalisée dans la phase de gaz ou de vapeur, telle que la conversion d'alcool en acétaldéhyde par oxydation. Il est bien entendu toutefois que ce dessin n'a pour but que de faire comprendre l'invention.

Fig. 1 est une coupe verticale d'un convertisseur ou récipient de réaction muni d'un élément échangeur de chaleur établi suivant un mode de réalisation de l'invention.

Fig. 2 est une coupe suivant 2-2 (fig. 1).

Fig. 3 montre en coupe un récipient de réaction muni d'éléments échangeurs de chaleur suivant la disposition modifiée susmentionnée, qui est propre à effectuer le réglage de la température de la réaction exothermique à l'aide d'une pellicule mobile de liquide.

Fig. 4 est une coupe horizontale suivant 4-4 (fig. 3).

Dans les fig. 1 et 2, le récipient de réaction 1 est muni d'un certain nombre d'éléments échangeurs de chaleur verticaux 2 qui traversent le lit, ceinture ou couche horizontal 3 de catalyseur. Les gaz ou va-

peurs de réaction sont introduits dans le récipient 1 par un tuyau 4 et, à leur sortie du catalyseur 3, quittent le récipient par le tuyau d'échappement 5. Chacun des éléments échangeurs de chaleur comprend un tube externe 6, fermé à leur extrémité supérieure et relié par leur extrémité inférieure à une boîte d'admission d'eau commune 7, et un tube interne 8 ouvert à son extrémité supérieure pour communiquer avec l'intérieur du tube externe 6 et débouchant à son extrémité inférieure 9 dans un collecteur commun 10. De préférence, l'espace entre le tube interne 8 et le tube externe 6 est relativement étroit, afin que l'appareil puisse être utilisé d'une manière propre à permettre à une pellicule montante de liquide d'être constituée dans ledit espace par l'évaporation de l'eau.

En supposant que l'appareil soit en service et appliqué de telle manière qu'il se forme une pellicule montante de liquide dans l'espace compris entre les tubes interne 8 et externe 6, les gaz ou vapeurs de réaction, par exemple un mélange d'alcool et de gaz oxydants (tel qu'un mélange de vapeur d'eau, de vapeur d'alcool et d'air), pénètrent dans l'appareil par le tuyau 4, entrent en contact avec les parties supérieures des éléments échangeurs de chaleur, arrivent au catalyseur 3, traversent ce catalyseur, descendent en se mouvant au contact des parties inférieures des éléments échangeurs de chaleur et sortent du récipient par le tuyau 5. Les tubes externes 6 des éléments échangeurs de chaleur 2 reçoivent de l'eau de la boîte d'admission d'eau 7, et l'on maintient cette eau à un niveau convenable à l'intérieur desdits tubes en réglant l'admission d'eau à la boîte 7 par le tuyau d'admission 13. On peut observer le niveau de l'eau à l'intérieur des tubes 6 à l'aide d'un indicateur 11 relié d'une part à la boîte d'admission d'eau 7 et d'autre part au collecteur 10. L'eau que renferment les tubes internes 8 est maintenue en ébullition par la chaleur de la réaction et monte dans les tubes externes 6 sous forme d'une pellicule, la vapeur engendrée passant dans les tubes internes et descendant dans le collecteur 10. En réglant la hauteur de l'eau ou autre liquide dans

les tubes 6, on peut régler facilement la chaleur de la réaction. Il ne faut pas que le niveau s'élève au-dessus de celui du catalyseur car, s'il en était autrement, ce dernier ne serait pas en relation d'échange de chaleur avec la pellicule montante. Usuellement, il est désirable que le niveau soit maintenu sensiblement au-dessous de celui de la couche de catalyseur. La vapeur d'eau quitte l'appareil par le tuyau 12 et peut, si on le désire, servir au chauffage des gaz ou vapeurs destinés à être soumis à la réaction. De même la chaleur des produits de la réaction, sortant de l'appareil par le tuyau 5, peut servir à un usage semblable. Ainsi, par exemple, dans le cas d'une réaction d'oxydation ou d'une autre réaction exothermique réalisée sur des vapeurs d'alcool ou d'autres vapeurs organiques, on peut utiliser la vapeur d'eau et (ou) la chaleur des produits de réaction de toute manière appropriée en vue de la vaporisation de l'alcool ou autre composé organique destiné à être soumis à la réaction.

L'appareil représenté dans le dessin peut servir utilement à effectuer l'échange de chaleur entre la zone de réaction et le fluide réfrigérant de la manière précédemment indiquée, c'est-à-dire sous forme d'une pellicule montante de liquide s'évaporant dans le tube externe 6, ou par la simple évaporation du liquide réfrigérant à l'intérieur du tube externe, ou en faisant simplement circuler le fluide réfrigérant à travers les tubes externes sans permettre au dit liquide de bouillir dans ces tubes. On peut facilement réaliser ces diverses méthodes d'échange de chaleur en réglant l'amenée de liquide réfrigérant à la boîte d'admission 7 et, de là, aux tubes externes 6. De cette façon, en fournissant l'eau à la boîte d'admission 7 à une vitesse convenable, il est facile de constituer de la manière précédemment indiquée une pellicule montante dans les tubes externes 6, tandis que, en fournissant l'eau à des vitesses convenablement augmentées, on peut effectuer une simple évaporation du liquide à l'intérieur des tubes externes 6 ou, si l'on fournit l'eau à des vitesses encore plus grandes, absorber simplement la chaleur de la réaction sans

évaporer l'eau qui, dans ce cas, circule simplement à travers les tubes internes et externes, ainsi qu'il est évident. Dans les cas où il est désirable de préchauffer les gaz ou vapeurs par les éléments échangeurs de chaleur dans le passage desdits gaz vers le catalyseur, il est préférable de faire en sorte que l'eau soit admise aux éléments échangeurs de chaleur à une vitesse telle qu'elle puisse s'y évaporer, et en particulier monter dans les tubes externes sous forme d'une pellicule de la manière précédemment indiquée.

Fig. 3 et 4 représentent un autre mode de réalisation muni d'éléments échangeurs de chaleur constitués à l'aide de tubes simples. Les pièces de ces figures qui correspondent à celles des fig. 1 et 2 ont été désignées par les mêmes nombres.

Dans les fig. 3 et 4, on voit que l'appareil est identique à celui des fig. 1 et 2, excepté que chacun des éléments échangeurs de chaleur est constitué par un tube unique relié, à son extrémité inférieure, à la boîte à eau 7 et, à son extrémité supérieure, à la boîte à vapeur 10. Le fonctionnement de l'appareil est très analogue à celui des fig. 1 et 2 lorsque ce dernier sert à effectuer le réglage de la température à l'aide d'une pellicule mobile. Comme dans les fig. 1 et 2, les gaz de réaction pénétrant dans l'appareil des fig. 3 et 4 entrent en contact, dans une certaine mesure, avec la vapeur, ce qui les soumet à un préchauffage secondé par leur contact avec les parties supérieures des éléments échangeurs de chaleur 2. L'eau qui s'évapore dans les tubes 14 monte dans ces tubes sous forme d'une pellicule d'une manière analogue à celle décrite au sujet des fig. 1 et 2, mais la vapeur d'eau engendrée monte directement des tubes à la boîte à vapeur 10. A part ces différences, l'appareil fonctionne de la même manière que celui des fig. 1 et 2.

#### RÉSUMÉ :

1° Appareil pour le réglage des réactions chimiques qui impliquent un changement thermique, cet appareil comprenant deux organes creux disposés l'un dans l'autre et communiquant entre eux, l'organe externe ou une partie de cet organe étant agencé pour être en relation d'échange de

chaleur avec la zone de réaction, et un dispositif pour fournir un fluide régulateur de température dans l'espace séparant les parois des deux organes creux. Cet appareil peut, en outre, être caractérisé par les points suivants, ensemble ou séparément :

5 *a.* Les organes creux sont tubulaires ;

*b.* L'organe externe est fermé à l'une de ses extrémités et le dispositif servant à

10 fournir le fluide régulateur est situé à ou près de l'autre extrémité ;

*c.* L'organe interne pénètre dans l'organe externe sensiblement sur toute la longueur de ce dernier ;

15 *d.* Les organes sont agencés pour permettre à une pellicule d'eau ou autre liquide de se mouvoir le long de l'espace constitué entre les deux organes ;

*e.* Le récipient de réaction renferme un

20 catalyseur à travers lequel passent les organes creux ;

*f.* Ces organes sont disposés verticalement dans le récipient de réaction ;

25 2° Appareil pour régler des réactions chimiques exothermiques, cet appareil comprenant un ou plusieurs organes présentant des conduits allongés, ces organes étant agencés pour être en relation d'échange de chaleur avec la zone de réaction et pour

30 permettre à une pellicule d'eau ou autre liquide de se mouvoir le long desdits conduits allongés, un dispositif pour fournir de l'eau ou un autre liquide à ces conduits et pour évacuer la vapeur de l'eau ou autre

35 liquide desdits conduits.

3° Procédé pour régler des réactions chimiques impliquant un changement thermique, ce procédé consistant à amener un fluide régulateur de température en

40 relation d'échange de chaleur avec la zone

de réaction et, de là, en relation d'échange de chaleur avec des réactifs admis, puis à ramener ce fluide (dans le même ou à un autre état physique) par un chemin entouré par celui initialement suivi. Ce procédé peut, 45 en outre, être caractérisé par les points suivants, ensemble ou séparément :

*a.* Le fluide régulateur de température est un agent de refroidissement servant à régler une réaction chimique exother-

50 mique ;

*b.* De l'eau ou un autre liquide est amené en relation d'échange de chaleur avec la zone de réaction et la vapeur de l'eau ou autre liquide est ramenée par un chemin qui est 55 entouré par celui suivi par l'eau ou autre liquide ;

*c.* Lorsque la réaction chimique est effectuée catalytiquement, le fluide régulateur de température est en relation d'échange 60 de chaleur avec le catalyseur ;

*d.* La partie de l'eau ou autre liquide qui est en relation d'échange de chaleur avec la zone de réaction se meut sous forme d'une pellicule dont le mouvement est 65 effectué ou secondé par l'évaporation du liquide par la chaleur de la réaction ;

4° Procédé pour régler des réactions chimiques exothermiques, ce procédé consistant à évaporer par la chaleur de la réaction de l'eau ou un autre liquide qu'un ou 70 plusieurs éléments échangeurs de chaleur disposés dans le récipient de réaction contiennent sous forme d'une pellicule mobile dont le mouvement est effectué ou secondé 75 par l'évaporation.

HENRY DREYFUS.

Par procuration :

Société BRANDON, SIMONNOT et RINGY.

FIG. 1.

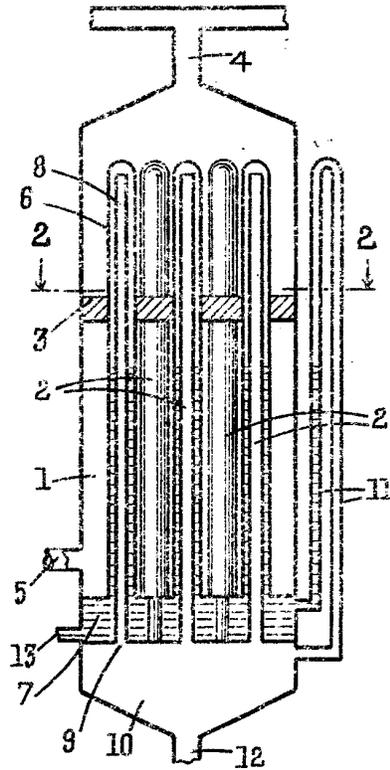


FIG. 2.

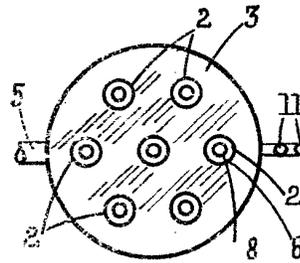


FIG. 3.

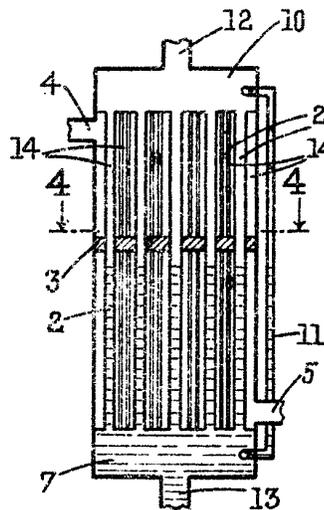


FIG. 4.

