

## MINISTÈRE DE LA PRODUCTION INDUSTRIELLE ET DU TRAVAIL.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.



## BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 864.161

Procédé et appareil pour produire des hydrocarbures par transformation catalytique du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène.

Société dite : N. V. INTERNATIONALE KOOLWATERSTOFFEN SYNTHESE MAATSCHAPPIJ (INTERNATIONAL HYDROCARBON SYNTHESIS COMPANY) résidant aux Pays-Bas.

Demandé le 19 mars 1940, à 17 heures, par poste.

Délivré le 13 janvier 1941. — Publié le 21 avril 1941.

Lorsqu'on transforme catalytiquement du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène en vue de produire des hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone il est nécessaire de maintenir la température de réaction dans des limites étroites.

Afin d'éliminer rapidement la chaleur engendrée au cours de cette transformation qui est fortement exothermique on a déjà proposé d'entourer l'enceinte de réaction de liquides subissant une vaporisation, en particulier d'eau subissant une vaporisation. On condense la vapeur et on restitue l'eau à l'enceinte de réfrigération en un cycle réfrigérant fermé. D'autre manière, on utilise la vapeur formée à des fins de chauffage ou pour produire de la puissance. Dans le cas de cette seconde alternative il est nécessaire de remplacer par du liquide frais le liquide réfrigérant qui s'est vaporisé, et si ce liquide réfrigérant est impur il peut se produire des difficultés dues à la formation de dépôts tels que des incrustations.

On a déjà proposé, lorsqu'on emploie plusieurs appareils de réaction, de recueillir dans un seul récipient commun la vapeur formée. En ce cas on se heurte à cette difficulté que le réglage de la température dans les divers appareils de réaction devient

moins souple, car pour tous ces appareils le liquide réfrigérant a la même température, celle du récipient commun dans lequel on recueille la vapeur, par exemple la vapeur d'eau.

Or on a trouvé que, lorsqu'on produit des hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone par transformation catalytique du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène dans plusieurs appareils de réaction desquels la chaleur engendrée est éliminée au moyen d'un liquide réfrigérant, les inconvénients précités ne se produisent pas si, d'une part, chacun des appareils de réaction est pourvu d'un système réfrigérant fermé distinct contenant le liquide réfrigérant, lequel est vaporisé dans une enceinte réfrigérante par échange thermique indirect avec le contenu de celui des appareils de réaction auquel appartient le système réfrigérant, tandis que les vapeurs du liquide réfrigérant sont condensées et renvoyées dans l'enceinte de réfrigération et si, d'autre part, la condensation des vapeurs de divers systèmes réfrigérants appartenant à deux ou plusieurs appareils de réaction s'effectue par échange de chaleur indirect avec un liquide subissant une vaporisation dans un évaporateur secondaire commun.

La fig. 1 du dessin ci-annexé représente

Prix du fascicule : 10 francs.

schématiquement un appareil destiné à servir dans le procédé suivant la présente invention, tandis que la fig. 2 représente de façon plus détaillée un appareil de réaction et le système réfrigérant fermé qui s'y rapporte. 5  
 Considérant la fig. 1, à chaque appareil de réaction  $a, a', a'', a'''$  est affecté un système réfrigérant fermé distinct, respectivement 1, 2, 3, 4. Les serpentins condenseurs  $d, d', d''$  et  $d'''$  appartenant à ces systèmes réfrigérants sont contenus dans un évaporateur secondaire commun  $e$  de manière que la chaleur provenant des vapeurs du liquide réfrigérant soit transmise au liquide subissant la 15 vaporisation dans ledit évaporateur secondaire. Les systèmes réfrigérants sont pourvus respectivement des vannes  $g, g', g'', g'''$  destinées à y régler la pression de la vapeur ainsi qu'il sera décrit plus en détail par la 20 suite.

Comme il se peut que les divers appareils ou les diverses enceintes de réaction soient maintenus à des températures fort différentes et que le dégagement de chaleur dans 25 l'enceinte de réaction varie au cours d'une période de fonctionnement, il y a intérêt, considérant que les surfaces d'échange de chaleur des serpentins réfrigérants  $d, d', d''$  et  $d'''$  ont approximativement des grandeurs 30 égales et invariables à commander la température dans chacun des appareils de réaction en réglant la chaleur transmise dans l'évaporateur secondaire par le liquide réfrigérant en voie de condensation par rapport 35 à celle dont ce dernier se charge dans l'enceinte de réaction en agissant sur la tension de vapeur du liquide réfrigérant au lieu même où la vapeur se condense.

On peut y parvenir, comme on l'a représenté à la fig. 2, au moyen de la vanne de réglage  $g$  prévue dans la conduite de vapeur  $c$  et fonctionnant à la main ou automatiquement, vanne qui étrangle le flux de vapeur arrivant au serpentín de condensation  $d$  pour 45 le cas où la tension de vapeur dans le séparateur  $b$ , dans lequel les vapeurs se séparent du liquide, tombe au-dessous d'une valeur prédéterminée. Par suite de la chute de pression en aval de la vanne régulatrice comprise 50 dans la conduite de vapeur  $c$  ainsi que dans le serpentín réfrigérant  $d$  lui-même il se produit également une chute de la tempéra-

ture de la vapeur dans ces régions, et par suite une diminution de la quantité de chaleur transmise au liquide qui subit une vaporisation dans l'évaporateur secondaire  $e$ . Par 55 suite de l'abaissement de la pression de vapeur dans la conduite  $c$  et le serpentín de condensation  $d$  il se produit un refoulement de liquide dans la conduite  $f$  à cause de la 60 pression plus forte qui règne dans le séparateur  $b$ . Si la différence de niveau entre le serpentín  $d$  et le séparateur  $b$  n'est pas suffisante pour que la pression de la colonne de liquide qui s'élève dans  $f$  compense la 65 diminution de la pression de vapeur dans la conduite  $c$  et le condenseur  $d$  résultant de l'étranglement de la vapeur par la vanne  $g$ , la colonne de liquide présente dans  $f$  est aspirée jusqu'au condenseur  $d$ , si bien que la 70 transmission de chaleur dans l'évaporateur  $e$  continue à diminuer jusqu'à ce que l'équilibre entre le dégagement de chaleur dans  $a$  et la transmission de chaleur du condenseur  $d$  dans  $e$  se soit établi. 75

Bien qu'on puisse employer de l'eau comme liquide réfrigérant dans le système réfrigérant fermé, le procédé décrit ici est particulièrement avantageux lorsqu'il est 80 préférable d'utiliser comme liquide réfrigérant un autre liquide que l'eau. Tel est le cas lorsque la température de transformation est si élevée qu'un appareil capable de résister à la pression de vapeur qui s'établit en ce cas devient fort coûteux. Il est alors plus 85 avantageux d'employer comme liquide réfrigérant dans le système fermé un liquide ayant une faible tension de vapeur, par exemple de l'oxyde de diphényle, auquel cas la vapeur de l'oxyde de diphényle est uti- 90 lisée pour produire de la vapeur d'eau dans l'évaporateur secondaire  $e$  qui peut être réalisé, à bien moins de frais que l'appareil tout entier, de façon à résister à une forte 95 pression de vapeur.

Les enceintes de réaction peuvent être construites de toute façon appropriée pourvu qu'elles se prêtent à une réfrigération au moyen d'un liquide subissant une vaporisation. On peut combiner plusieurs enceintes 100 de réaction en un seul appareil de réaction refroidi au moyen d'un seul et même système réfrigérant fermé. Entre autres, un certain nombre de tubes de réaction peuvent

être renfermés dans un même espace réfrigérant, tout comme le liquide réfrigérant destiné à une même enceinte de réaction peut être contenu dans un grand nombre de tubes communiquant tous avec un même système réfrigérant.

Les températures de transformation sont en général comprises entre 150 et 380° C. On peut les utiliser sous pression normale ou élevée, par exemple comprise entre 5 et 30 atm. ou même à des pressions supérieures, par exemple atteignant 100 atm. et plus.

Le présent procédé permet de réaliser d'une façon très simple les dispositifs réfrigérants des enceintes de réaction. Un autre avantage important réside dans le fait que ces espaces de réfrigération, qui ne sont que très difficilement accessibles, demeurent garantis contre tout amas d'incrustations et de boue, car c'est toujours le même liquide réfrigérant qui s'écoule en cycle fermé. Le procédé permet de plus, par l'utilisation de liquides autres que l'eau, de maintenir dans les espaces de réfrigération des températures qui sont sensiblement supérieures à la zone des températures d'ébullition de l'eau sous la pression normale et sous des pressions modérément élevées. Enfin, grâce à l'emploi d'un certain nombre de systèmes réfrigérants distincts et d'un évaporateur secondaire commun, on obtient une grande souplesse dans le réglage de la température opératoire d'une installation comportant un nombre considérable d'appareils de réaction.

#### RÉSUMÉ :

1° Procédé pour produire des hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone par transformation catalytique du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène dans plusieurs appareils de réaction desquels la chaleur engendrée est éliminée au moyen d'un liquide réfrigérant, consistant d'une part à pourvoir chacun des appareils de réaction d'un système réfrigérant fermé distinct contenant le liquide réfrigérant, lequel est vaporisé dans une en-

ceinte réfrigérante par échange thermique indirect avec le contenu de celui des appareils de réaction auquel appartient le système réfrigérant, tandis que les vapeurs du liquide réfrigérant sont condensées et renvoyées dans l'enceinte de réfrigération, et d'autre part à effectuer la condensation des vapeurs de divers systèmes réfrigérants appartenant à deux ou plusieurs appareils de réaction par échange de chaleur indirect avec un liquide subissant une vaporisation dans un évaporateur secondaire commun;

2° On règle la température dans chacun des appareils de réaction en réglant la chaleur transmise dans l'évaporateur secondaire par le liquide réfrigérant en voie de condensation par rapport à celle dont ce dernier se charge dans l'enceinte de réaction agissant pour cela sur la tension de vapeur du liquide réfrigérant au lieu même où la vapeur se condense;

3° Installation pour la mise en œuvre du procédé ci-dessus défini, caractérisée en ce qu'elle comprend plusieurs appareils de réaction pourvus chacun d'un système réfrigérant fermé comportant un espace réfrigérant renfermant un liquide réfrigérant, un séparateur pour le liquide et les vapeurs, une conduite reliant le séparateur à un serpentín réfrigérant placé au-dessus de lui et munie d'une vanne d'étranglement, enfin une conduite servant à ramener le liquide condensé du serpentín condenseur dans le liquide réfrigérant présent dans l'espace de réfrigération, les serpentins réfrigérants appartenant à deux ou plusieurs systèmes réfrigérants étant disposés dans un évaporateur secondaire commun;

4° A titre de produits industriels nouveaux, les hydrocarbures de synthèse obtenus par le procédé ci-dessus défini.

Société dite :

N. V. INTERNATIONALE KOOLWATERSTOFFEN  
SYNTHESE MAATSCHAPPIJ (INTERNATIONAL  
HYDROCARBON SYNTHESIS COMPANY).

Par procuration :

BLÉRY.

FIG. 1

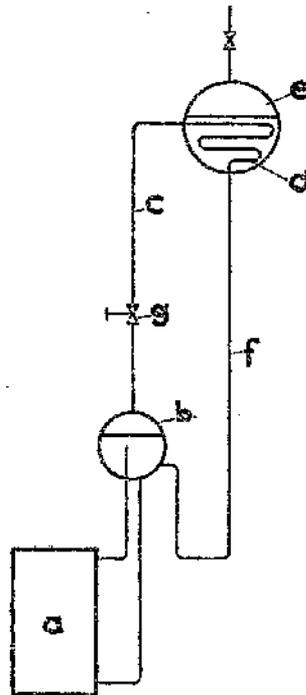
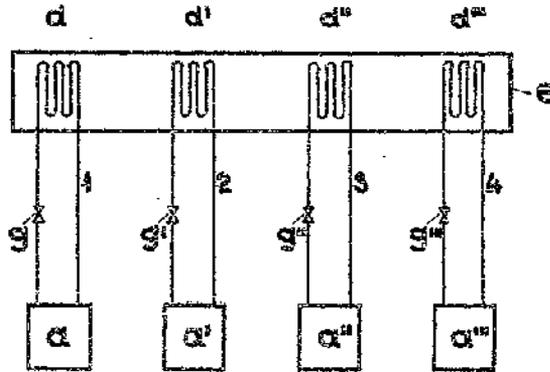


FIG. 2