

**BREVET D'INVENTION.**

Gr. 14. — Cl. 8.



N° 891.202

Perfectionnements aux appareils de catalyse destinés aux réactions catalytiques fortement exothermiques entre gaz.

Société dite : ÉTABLISSEMENTS BRUNON-VALLETTE & C<sup>ie</sup> (SOCIÉTÉ À RESPONSABILITÉ LIMITÉE)  
et Société dite : SOCIÉTÉ ANONYME DE GAZ COMPRIMÉ (SOCIÉTÉ ANONYME) résidant en France (Loire).

Demandé le 26 octobre 1942, à 16 heures, à Lyon.

Délivré le 29 novembre 1943. — Publié le 1<sup>er</sup> mars 1944.

[Brevet d'invention dont la délivrance a été ajournée en exécution de l'art. 11 § 7 de la loi du 5 juillet 1844 modifiée par la loi du 7 avril 1902.]

Il est reconnu que certaines réactions de catalyse exigent un réglage de température entre des limites étroites, et le rendement de la réaction dépend beaucoup de la précision de ce réglage. A titre d'exemple, on citera l'enrichissement du gaz de ville en méthane par réaction entre l'oxyde de carbone et l'hydrogène en présence de nickel Raney. Dans ce cas particulier, il est nécessaire, pour amorcer la réaction de fournir d'abord des calories destinées à porter le catalyseur à la température voulue, puis, lorsque la réaction est amorcée, il faut limiter la hausse de température par une réfrigération appropriée. Des exemples analogues pourraient être trouvés dans un grand nombre de réactions catalytiques fortement exothermiques entre gaz en présence de nickel Raney, ou de tout autre catalyseur. C'est ainsi que le champ d'application de la présente invention n'est pas limité à l'exemple de l'enrichissement du gaz de ville en méthane.

Pour que la température reste dans les limites étroites qui lui sont assignées, il faut que le procédé utilisé et l'appareil en service permettent de fournir ou d'extraire

très rapidement des grandes quantités de calories, de façon que l'inertie thermique soit aussi réduite que possible, et qu'il ne se produise à aucun moment d'accumulations inopportunes de calories dans le catalyseur. Les dispositions adoptées jusqu'ici consistent à enfermer le catalyseur dans des récipients, généralement circulaires, autour desquels est placé un enroulement électrique chauffant. Ils ont l'inconvénient d'offrir pour les échanges thermiques par conductibilité certaines surfaces extérieures faibles par rapport au volume intérieur, et, de plus, l'enroulement chauffant forme calorifuge partiel et devient nuisible dans les parties de réaction où des calories doivent être extraites du catalyseur. Pour parer à cet inconvénient on a proposé d'insérer à l'intérieur de la masse du catalyseur des serpentins ou des tubes dans lesquels on a fait circuler un fluide réfrigérant, généralement de l'air plus ou moins humidifié.

Ces serpentins ou tubes ont l'inconvénient d'être encombrants dans l'appareil et d'être gênants pour la manutention de la matière catalysante.

Prix du fascicule : 15 francs.

Selon la présente invention, on a recours pour apporter au catalyseur ou pour lui retirer des calories, à un liquide dont le point d'ébullition dans les conditions d'emploi est supérieur à la température de régime de la réaction à produire et que l'on fait circuler extérieurement à l'appareil de catalyse auquel on donne une forme appropriée présentant une grande surface de contact par rapport au volume de la masse catalysante en présence. On évite ainsi les inconvénients dus à une ébullition du liquide et on facilite les échanges par un meilleur contact avec les surfaces à chauffer ou à réfrigérer sans encombrer l'appareil catalyseur et sans apporter de gêne à la manutention de la matière.

L'appareil de catalyse, objet de la présente invention, permet de réaliser ces conditions de fonctionnement d'une manière particulièrement simple et sûre, tout en présentant l'avantage d'un faible encombrement.

Sa première caractéristique, c'est que ses éléments sont au contact d'un liquide, à point d'ébullition supérieur à la température de régime de la réaction catalytique, qui est chauffé lors de la mise en route, par exemple électriquement ou qui est au contraire refroidi, dès que la réaction est amorcée. Accessoirement des agitateurs ou une circulation forcée du liquide peuvent être disposés pour favoriser les échanges thermiques.

Sa 2<sup>e</sup> caractéristique c'est que ses éléments catalytiques ont une forme très aplatie, par exemple une forme parallépipédique avec deux petits côtés.

L'invention sera de toute façon bien comprise en se reportant au dessin ci-annexé et à la description complémentaire s'y rapportant, lesquels description et dessin sont, bien entendu, donnés seulement à titre d'indication dans le cas d'un appareil comportant deux éléments catalytiques.

Dans ces dessins :

Fig. 1 est une vue en élévation par côté de cet appareil en coupe suivant I-I de la figure 2.

Fig. 2 en est une vue de face en élévation ;

Fig. 3 est une vue en plan ;

Fig. 4 est une coupe transversale suivant 4-4 de la figure 2 ;

Fig. 5 représente, vue de face en élévation, une variante de réalisation ;

Fig. 6 en est une vue en coupe transversale suivant 6-6 de la figure 5.

Dans la réalisation représentée sur les fig. 1 à 4, l'appareil comporte essentiellement deux éléments 1 plongés dans des réservoirs 2 contenant un liquide à point d'ébullition élevé, une enveloppe 3 à circulation d'eau et des bougies de chauffage électrique disposées dans des tubes 4.

L'élément d'appareil de catalyse 1 est constitué par un corps en tôle soudé, fortement aplati, afin de réaliser une grande surface de réfrigération, et fermé à l'aide d'un couvercle étanche 5.

Le catalyseur sous forme de grains, tel que par exemple du nickel « Raney », est supporté par les plateaux perforés 6 fixés d'une façon appropriée à l'intérieur du corps de l'appareil de catalyse et ayant pour but de limiter la hauteur de la couche, afin d'éviter l'écrasement des grains sous l'effet de leur propre poids.

Ces plateaux servent également à répartir régulièrement le catalyseur dans un volume supérieur à celui occupé par cette matière, l'augmentation de volume étant parfois nécessaire pour obtenir des surfaces de réfrigération suffisantes.

Les gaz destinés à réagir pénètrent dans l'appareil de catalyse par les conduites 7 et s'échappent par les conduites 8, leur trajet à travers l'appareil de catalyse étant représenté par les flèches a.

Les réservoirs 2 dans lesquels sont plongés les éléments de catalyse 1 sont remplis, à quelques centimètres de leur bord supérieur, d'un liquide à point d'ébullition élevé, tel que par exemple de l'huile à cylindre ou de l'huile pour transformateur dans le cas de l'enrichissement du gaz de ville en méthane.

Le corps de l'appareil de catalyse se trouve ainsi entouré d'une couche d'huile de plusieurs centimètres d'épaisseur destinée, d'une part, à porter l'appareil de catalyse à la température voulue pour amorcer la réaction catalytique (200° environ dans le cas précité d'enrichissement en méthane

du gaz de ville par de l'huile accusant un point d'ébullition de l'ordre de 280°) et, d'autre part, à évacuer la chaleur de réaction.

5 L'huile est refroidie par la circulation d'eau dans l'enveloppe 3 le long des parois des réservoirs 2.

Elle est chauffée par des bougies électriques placées dans les tubes 4.

10 Avant le chauffage, l'eau de l'enveloppe est vidangée en 9.

La circulation d'eau se fait comme il est représenté à la fig. 4 : l'arrivée en 10, la sortie en 11, le trajet se faisant comme

15 l'indiquent les flèches 7.

Il va de soi que le mode de circulation d'eau peut se faire de toute autre manière; on peut, par exemple, prévoir un réglage de circulation par élément de l'appareil de catalyse; la variante représentée aux tracés

20 n'étant donnée qu'à titre d'exemple.

Afin d'accroître le coefficient de transmission de chaleur entre l'huile et le catalyseur, on a prévu un agitateur 12 dont les

25 branches se déplacent dans le réservoir 2, le long des parois de l'appareil de catalyse. Cet agitateur est mis en mouvement par un vilebrequin 13 entraîné à l'aide d'une poulie 14 et relié aux leviers de commande

30 15 par des biellettes 16.

L'ensemble de l'appareil de catalyse est introduit par le haut dans un récipient calorifugé 27 formant une sorte de marmite norvégienne.

35 Les fig. 5 et 6 représentent une variante d'exécution dans laquelle le réfrigérant d'huile est séparé du catalyseur et l'agitation est remplacée par circulation forcée d'huile.

40 L'huile est chauffée à l'aide d'éléments de chauffage électrique 17 disposés le long des parois latérales du réservoir d'huile, la circulation d'huile étant assurée par une pompe 18 entraînée à l'aide d'une poulie

45 19. Pendant le chauffage du catalyseur, l'huile circule comme l'indiquent les flèches

g. Après la mise en route de la réaction catalytique, le courant électrique de chauffage est coupé et la circulation d'huile se

50 fait à travers un réfrigérant d'huile (non représenté) comme l'indiquent les flèches h, le robinet 20 étant fermé; on réalise ainsi

une réfrigération énergique du catalyseur;

Dans le cas où le catalyseur travaille sous pression, les parois latérales sont renforcées à l'aide de cloisons intérieures convenablement disposées. 55

Comme il va de soi et comme il ressort d'ailleurs déjà de ce qui précède, l'invention ne se limite aucunement aux seuls modes de réalisation indiqués ci-dessus uniquement à titre d'exemple; elle en embrasse, au contraire, toutes les variantes d'exécution, quel que soit le nombre d'éléments que comporte l'appareil. 60 65

#### RÉSUMÉ.

1° Perfectionnements aux appareils de catalyse destinés aux réactions catalytiques fortement exothermiques entre gaz permettant, d'une part, la mise en température, pour amorcer la réaction, et, d'autre part, le refroidissement pendant la réaction, caractérisés en ce qu'un liquide à point d'ébullition nettement supérieur à la température de régime de la réaction catalytique est chauffé lors de la mise en route ou au contraire, refroidi dès que la réaction est amorcée, de telle sorte qu'il sert, soit à apporter au catalyseur des calories, soit à lui en retirer. 70 75 80

2° Perfectionnements, tel que spécifié en 1°, dans lequel le même liquide sert successivement à chauffer et à refroidir la masse en réaction.

3° Appareil de catalyse tel que spécifié en 1° ou en 2° caractérisé en outre par les points suivants pouvant être pris ensemble ou séparément: 85

Tous les éléments de catalyse ou certains d'entre eux ont une forme aplatie, par exemple, celle de parallépipède fortement aplati; 90

Le catalyseur est placé sur des plateaux intermédiaires perforés;

Les parois des réservoirs contenant le liquide à point d'ébullition élevé sont réfrigérées par circulation d'eau; 95

Le liquide à point d'ébullition élevé est chauffé électriquement;

L'échange thermique est activé par agitation. 100

4° Variante d'exécution selon laquelle l'échange thermique est assuré par circula-

tion forcée du liquide à point d'ébullition élevé et son refroidissement est obtenu par circulation au travers d'un réfrigérant.

5° A titre de produit industriel nouveau, tout appareil de catalyse, de faible encom-

brement comportant, en tout ou partie, application de semblables dispositions pour réactions catalytiques fortement exothermiques entre gaz, notamment pour enrichir le gaz de ville en méthane.

10

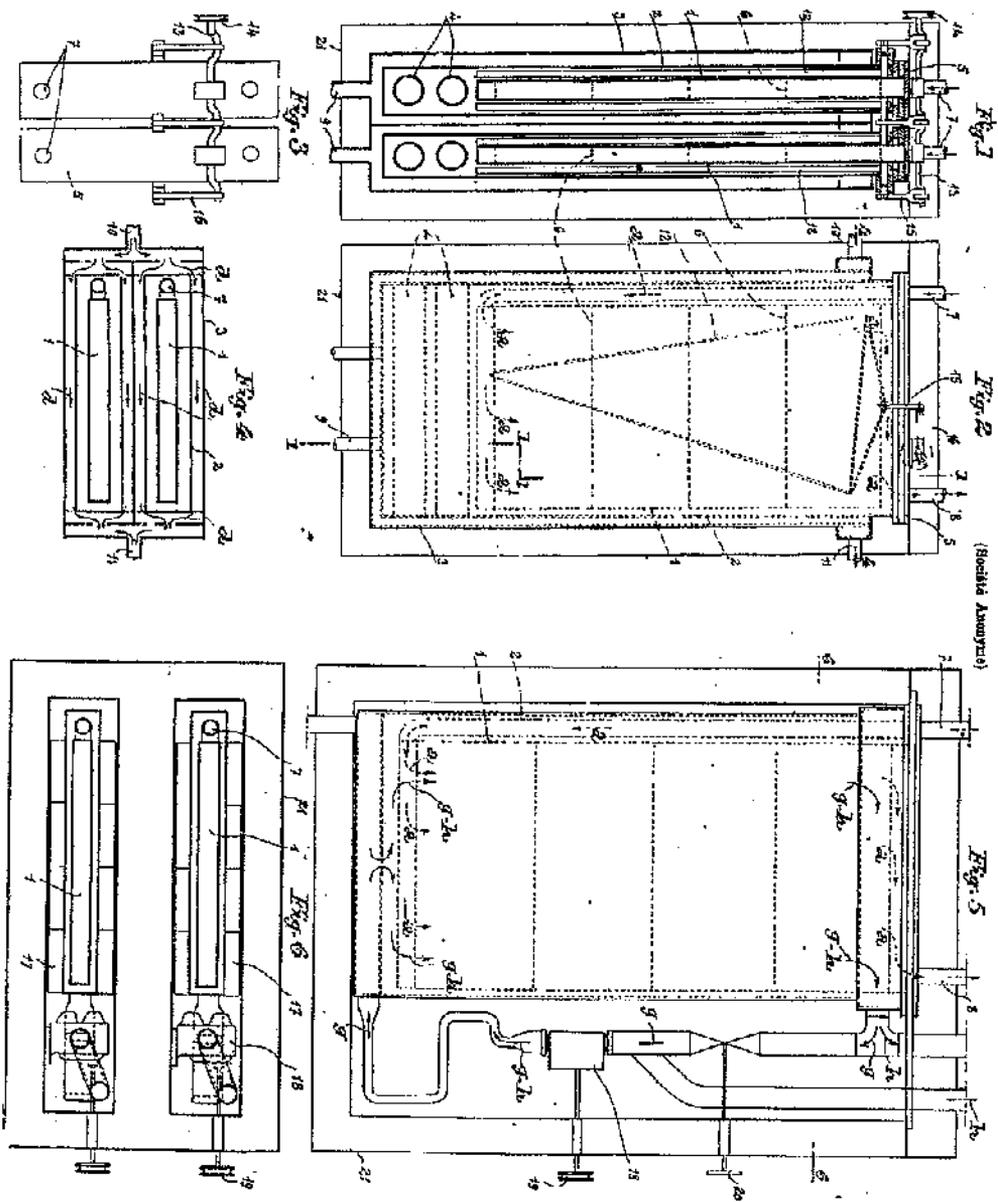
Société dite :  
ÉTABLISSEMENTS BRUNON-VALLETTE & C<sup>e</sup> (SOCIÉTÉ À RESPONSABILITÉ LIMITÉE)  
et Société dite : SOCIÉTÉ ANONYME LE GAZ COMPRIMÉ (SOCIÉTÉ ANONYME).

Par présentation :  
GERMAIN et MAUREAU.

N° 591.902

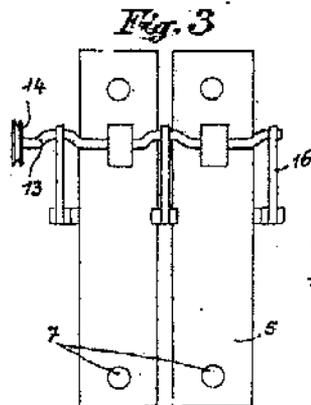
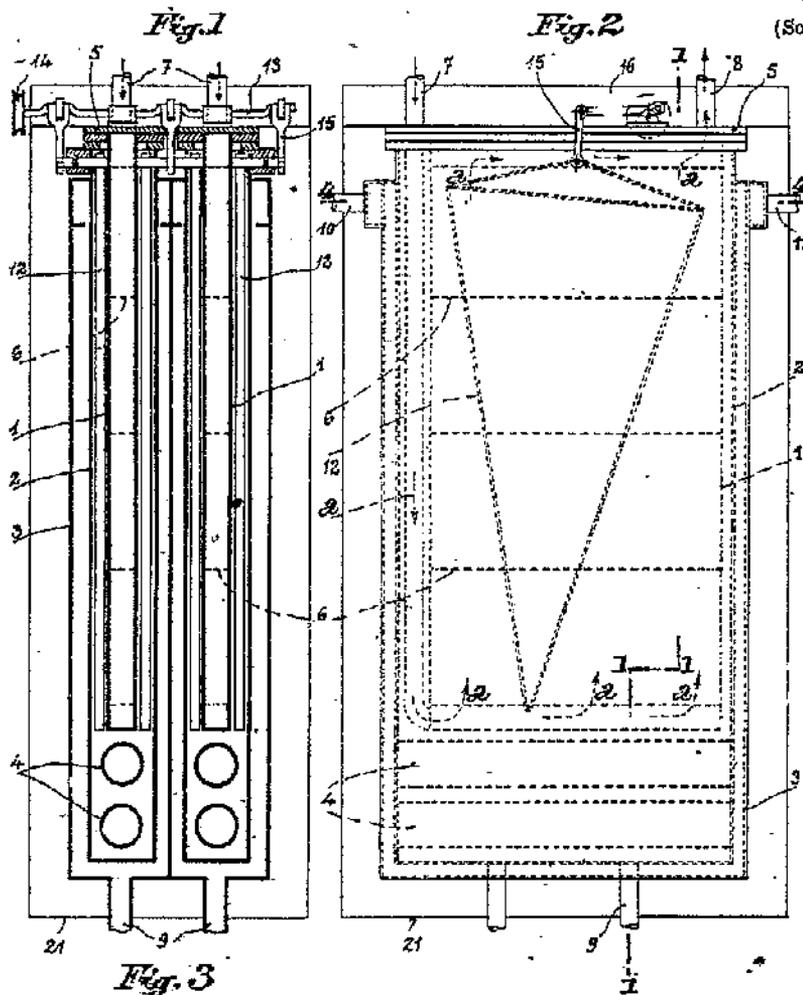
Société dite :  
Etablissement Brunon, Valère & C<sup>e</sup>  
(Société à responsabilité limitée)  
et Société dite :  
Société Anonyme « Le Gaz Omniprime »  
(Société Anonyme)

Et, unique



N° 891202

Société  
Établissements Br  
(Société à respoi  
et Socié  
Société Anonyme «  
(Société 1



Société dite :  
 établissements Brunon-Vallette & C<sup>e</sup>  
 (Société à responsabilité limitée)

et Société dite :  
 Société Anonyme « Le Gaz Comprimé »  
 (Société Anonyme)

Pl. unique

