

## BREVET D'INVENTION

Gr. 14. — Cl. 6.

N° 893.155



Cellule pour la réalisation de réactions catalytiques.

MM. Eugène CAZES et Paul CHEFFER résidant en France (Haute-Vienne).

Demandé le 21 décembre 1942, à 14<sup>h</sup> 30<sup>m</sup>, à Lyon.Délivré le 24 janvier 1944. — Publié le 1<sup>er</sup> juin 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.]

La présente invention se réfère aux cellules destinées plus spécialement à assurer une réaction catalytique au sein d'un mélange gazeux.

5 L'invention vise plus particulièrement le cas de réactions exothermiques telles que celle décrite au brevet français du 17 janvier 1941 aux noms des demandeurs pour : « Procédé de fabrication de pétroles synthétiques ».

10 Pour assurer dans des conditions satisfaisantes des réactions du genre en question, il faut pouvoir exercer un contrôle serré de la température, à défaut de quoi la qualité des produits obtenus ainsi que le rendement de la réaction diminuent considérablement. Il est en outre essentiel que le catalyseur soit facilement accessible pour son nettoyage et son changement après

20 épuisement.  
La cellule formant l'objet de l'invention répond particulièrement bien aux conditions qui précèdent et elle possède en outre l'avantage de pouvoir aisément se prêter au groupement sous forme de batteries de cellules à l'intérieur d'une même enveloppe. Elle permet enfin la récupération de la chaleur dégagée par la réaction, ce qui améliore sensiblement le bilan thermique de la fabrication.

Suivant l'une des caractéristiques de l'invention, la cellule renferme un empilage de paniers annulaires perforés tronconiques remplis du catalyseur, chaque panier coiffant le précédent de manière étanche pour réaliser 35 une sorte de cheminée perméable que le mélange gazeux est obligé de traverser radialement. Des moyens sont prévus pour amener le mélange gazeux à l'intérieur de ladite cheminée et pour l'y répartir régulièrement 40 et il est également prévu des dispositifs amovibles de serrage et de fermeture pour permettre le démontage rapide des paniers à catalyseur.

Suivant une autre caractéristique de l'in- 45 vention, la cellule est constituée par un corps cylindrique ou de forme équivalente, à axe vertical et à double paroi, l'espace intérieur de la double paroi étant rempli d'un fluide réfrigérant. Ce fluide peut être de l'eau 50 froide qui circule, ou mieux, de l'eau qu'on transforme en vapeur sous une pression déterminée qui fixe *invariatur* la température des parois de la cellule. Il peut aussi être constitué par de l'huile circulant en circuit 55 fermé à travers un radiateur approprié.

La cellule suivant l'invention est encore remarquable en ce qu'elle comporte à sa base une sorte de four électrique ou équivalent, traversé par le mélange gazeux entrant 60

dans la cellule. Ce dispositif permet d'assurer un préchauffage exactement déterminé tant pour la mise en marche de la cellule froide qu'à titre de chauffage complémentaire lorsqu'il y a lieu de craindre que les premières couches de catalyseur traversées par le mélange gazeux se trouvent à une température insuffisante.

Le dessin annexé, donné à titre d'exemple, fera mieux comprendre l'invention, les caractéristiques qu'elle présente et les avantages qu'elle est susceptible de procurer :

Fig. 1 est une coupe longitudinale générale d'une cellule suivant l'invention;

Fig. 2 est une coupe partielle à grande échelle montrant le détail du joint de deux paniers élémentaires.

La cellule représentée en fig. 1 se compose d'un corps 1 de forme cylindrique à axe vertical et à double paroi. Sous le corps 1 est disposée une chambre d'entrée 2 dans laquelle le mélange gazeux pénètre par une tubulure latérale 3. La chambre 2 renferme des éléments électriques 4 auxquels le courant est amené par des conducteurs appropriés non représentés. La chambre 2 est fermée par un plafond 5 portant en son centre un tube vertical perforé 6 qui s'élève sur à peu près toute la hauteur de la cellule.

Le tube vertical 6 est lui-même entouré par un ensemble de tiges 7 convenablement entretoisées les unes avec les autres de manière à constituer une sorte de cage sur laquelle sont enfilés des paniers annulaires tronconiques superposés 8 destinés à renfermer le catalyseur. Comme le montre le détail de fig. 2, chaque panier 8 est en tôle perforée et grillage avec une embase 8a pleine et le sommet ouvert, mais entouré d'une sorte de rigole 8b dans laquelle vient s'engager un rebord prolongeant la paroi externe du panier supérieur. Cette rigole 8b est remplie d'un liquide non volatil aux températures mises en jeu, par exemple de brai de pétrole, et qui forme joint hydraulique entre les deux paniers successifs. L'ensemble des paniers superposés (fig. 1) est serré contre un joint inférieur 9 par un couvercle 10 recouvrant l'ensemble, ledit couvercle étant pourvu d'un rebord s'enfonçant dans la rigole du panier immédiatement

inférieur. Le couvercle 10 est lui-même serré en place par un écrou 11 coupé avec une vis 12 solidaire de la cage formée par les tiges 7.

La cellule représentée est fermée à la partie supérieure par un couvercle 13 serré en place par des tiges articulées 14 avec écrous 15 et elle comporte vers le bas un départ 60 de liquide 16 et vers le haut un départ de gaz 17.

La chambre annulaire fermée constituée par la double paroi est pourvue à sa partie supérieure d'une arrivée d'eau 18 venant d'une bêche 19. Un déflecteur 19a est prévu dans ladite chambre pour assurer la répartition régulière de l'eau débouchant du tuyau 18. D'autre part le bas de la chambre en question comporte une sortie d'eau 20 aboutissant d'une part à un robinet de vidage 21, d'autre part à une cheminée d'équilibre 22. Enfin il est encore prévu un départ de vapeur 23. Un niveau 24 permet de vérifier le remplissage en eau de la chambre annulaire.

Il est encore prévu un radiateur 25 relié au haut et au bas de ladite chambre par des tuyauteries 26 et 27 respectivement, ledit radiateur étant immergé dans une cuve 28 alimentée en eau à partir de la bêche 19 par un tuyau 29; un trop-plein 30 évacue l'eau en excès dans la cuve 28.

Le fonctionnement est le suivant :

La cellule étant froide, on commence par mettre en action les résistances 4 qui s'échauffent progressivement et quand elles ont atteint la température désirée, on admet le mélange gazeux, par exemple un mélange d'acétylène et d'hydrogène. Ce mélange gazeux, échauffé par les résistances, s'exerce dans le tube vertical 6 qui le répartit régulièrement à l'intérieur de l'espace de cheminée perméable formée par les paniers 8 superposés, préalablement chargés de catalyseur. Les gaz traversent les paniers, en réagissant en présence de la matière catalysante et en donnant lieu à un dégagement de chaleur relativement marqué dans le cas de la réaction d'hydrogénation de l'acétylène. Au sortir du catalyseur, le mélange se divise en deux parties : les composés liquides à la température interne de la cellule s'évacuent par 16 tandis que les com-

posés gazeux s'échappent par 17 avec les gaz qui n'ont pas réagi.

Au bout d'un certain temps de marche l'échauffement du catalyseur est suffisant pour que la réaction se fasse d'elle-même et il est possible de modérer, ou même d'arrêter complètement le chauffage électrique des éléments 4; et il devient nécessaire de refroidir l'appareil, ce qui peut se faire par deux moyens :

En premier lieu, on peut isoler le radiateur 25 par des vannes telles que 31, et remplir d'eau la chambre annulaire déterminée par la double paroi. Cette eau arrive à l'ébullition et la vapeur produite se dégage par la sortie 23 tandis qu'on doit introduire de l'eau d'alimentation par le tuyau 18 pour maintenir le niveau. La pression de vapeur est celle, relativement faible, déterminée par la hauteur de la cheminée d'équilibre 22. La température de la double paroi reste donc pratiquement constante aux environs immédiats de 100° C. Les choses sont préférablement réglées de telle manière que le refroidissement ainsi obtenu pour la cellule soit excessif, de telle sorte qu'il soit nécessaire de maintenir un certain chauffage auxiliaire par les résistances électriques 4, ce qui fournit un moyen de contrôle facile et rapide de la température moyenne de réaction en agissant sur l'intensité de ce chauffage auxiliaire résiduel.

L'admission d'eau d'alimentation peut se faire automatiquement par le moyen d'une vanne thermostatique 32 soit en fonction du niveau dans la chambre annulaire, soit même en fonction de la température au haut de la cellule, température prise par un thermomètre 33.

Si les épaisseurs et les résistances des parois sont suffisantes, l'appareil peut être agencé pour que l'eau bouille sous pression, la cheminée 22 étant alors supprimée et une pompe d'alimentation étant disposée sur le tuyau 18. Dans ce cas, on dispose d'un moyen de réglage particulièrement efficace du degré de refroidissement en faisant varier la pression d'ébullition, ce qui, ainsi qu'on le sait, fait varier la température de l'eau. Cette variation de pression peut s'obtenir par élargement de la sortie de la vapeur.

Comme second moyen de refroidissement,

quand on dispose d'une quantité d'huile suffisante, on peut remplir la chambre annulaire de ce liquide en ouvrant alors les vannes 31. L'huile circule par thermo-siphon dans le radiateur 25 où elle se refroidit au contact de l'eau de la cuve 28. Le réglage du degré de refroidissement se fait alors soit par une vanne thermostatique 34 insérée sur le circuit d'huile, soit par une vanne thermostatique 35 disposée sur l'arrivée d'eau 29 à la cuve 28, soit encore par les deux moyens simultanément. Les choses peuvent être agencées de telle manière que l'eau qui s'écoule en soit bouillante, ce qui permet de l'utiliser à des emplois divers. Au reste comme la température de l'huile sortant de la chambre annulaire peut être notablement supérieure à 100° C., la cuve 28 peut être remplacée par un échangeur de température clos formant une véritable chaudière à vapeur susceptible de fournir de la vapeur sous une pression notable.

Bien entendu, quand on récupère la chaleur produite par la cellule on a intérêt à éviter toutes pertes par radiation et il est particulièrement avantageux de calorifuger les parois.

Lorsque le catalyseur est encrassé ou épuisé, il est très facile de dégager et de retirer l'ensemble des paniers 8 et de les remplacer par d'autres garnis de catalyseur frais ou nettoyé. L'interruption du service de la cellule est ainsi de fort peu de durée.

Outre les avantages qui précèdent, la cellule suivant l'invention présente celui de pouvoir aisément se monter en batteries dans des chambres calorifugées où les pertes de chaleur sont pratiquement négligeables.

Il doit au reste être entendu que la description qui précède n'a été donnée qu'à titre d'exemple et ne limite nullement l'invention dont on ne sortirait pas en remplaçant les détails de réalisation sus-exposés par tous autres équivalents. On ne sortirait pas non plus du domaine de l'invention en ne mettant en œuvre que certaines seulement des caractéristiques sus-énoncées et en remplaçant les autres par les dispositions connues.

Enfin et ainsi qu'il va de soi, l'invention englobe non seulement les cellules du genre décrit ou de tout autre équivalent, mais

encore les installations qui les comportent et notamment les appareils et installations pour la production de pétroles synthétiques par hydrogénation d'acétylène ou analogue.

## RÉSUMÉ.

6 Cellule de catalyse notamment pour la réalisation de réactions exothermiques entre réactifs gazeux tels que l'acétylène et l'hydrogène, présentant certaines au moins des caractéristiques remarquables ci-après, séparément ou en combinaison :

10 1° Elle renferme un empilage de paniers annulaires perforés tronconiques, chacun coiffant le précédent de manière étanche pour réaliser une sorte de cheminée perméable que le mélange gazeux est obligé de traverser radialement;

20 2° L'étanchéité entre les paniers successifs est obtenue en faisant comporter à chacun d'eux un rebord inférieur tourné vers le bas et une rigole supérieure propre à recevoir le rebord du panier précédent, ladite rigole étant remplie d'un corps liquide à la température régnant à l'intérieur de la cellule;

25 3° Des moyens sont prévus pour amener le mélange gazeux à l'intérieur de la cheminée créée comme exposée sous 1° et l'y répartir régulièrement;

4° Des dispositifs de serrage sont prévus 30 pour maintenir en place l'ensemble des paniers tout en permettant leur enlèvement rapide;

5° La cellule est constituée par un corps cylindrique à axe vertical et à double paroi, 35 l'espace intérieur de la double paroi étant rempli d'un liquide réfrigérant;

6° Comme liquide réfrigérant on utilise de l'eau qu'on vaporise comme dans une 40 chaudière;

7° Le réglage de la température de la double paroi, dans le cas prévu sous 6°, est obtenu en faisant varier la température de vaporisation de l'eau;

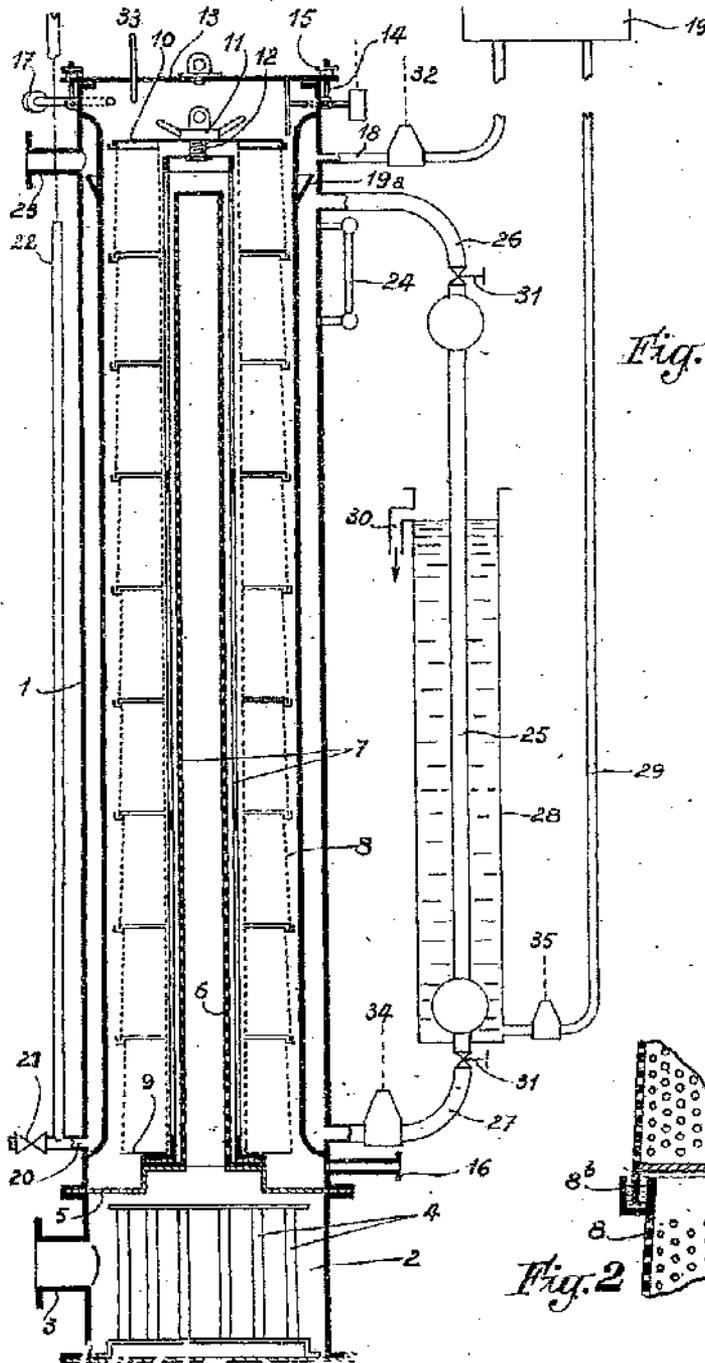
8° Comme liquide réfrigérant on utilise 45 de l'huile circulant en circuit fermé à travers un radiateur;

9° La cellule comporte à sa base une sorte de four électrique traversé par le mélange gazeux avant son entrée dans la cellule proprement dite, ledit four déterminant un 50 préchauffage réglable soit pour la mise en marche, soit pour le réglage de l'allure de la réaction.

EUGÈNE GAZES et PAUL CHEFFER.

Par procuration :

Jh. MOKKIER.



*Fig. 1*

*Fig. 2*