

MINISTÈRE DES AFFAIRES ÉCONOMIQUES

Direction Générale
de l'Industrie et du Commerce

Administration du Commerce

Service de la
Propriété Industrielle et Commerciale

N^o 469.188

ROYAUME DE BELGIQUE



BREVET D'INVENTION

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la loi du 24 mai 1854 sur les brevets d'invention ;

Vu le procès-verbal dressé le 16 novembre 1946 à 10 h. 25
au Greffe du Gouvernement provincial du Brabant ;

ARRÊTE :

Article 1. — Il est délivré à M^{rs} F. G. F. Gallemants,
50, rue Pygmalion à Anvers,
rep. par M^{rs} L. Dencovici, à Bruxelles,

un brevet d'invention pour : Procédé de gazéification souterraine
des combustibles solides

Article 2. — Ce brevet lui est délivré sans examen préalable, à ses risques et périls,
sans garantie soit de la réalité, de la nouveauté ou du mérite de l'invention, soit de
l'exactitude de la description, et sans préjudice du droit des tiers.

Au présent arrêté demeure joint un des doubles de la spécification de l'invention
(mémoire descriptif et éventuellement dessins) signés par l'intéressé et déposés à l'appui
de sa demande de brevet.

Bruxelles, le 16 mai 1947

Au nom du Ministre et par délégation :
Le Directeur Général,

E. Capon

469188

BREVET D'INVENTION

Procédé de gazéification souterraine des combustibles solides.

Monsieur Frits Adolphe François PALLEMAERTS, à Anvers.

La présente invention est relative à un procédé de gazéification souterraine des combustibles solides, tels que charbons, anthracites, lignites et analogues, l'un des buts de l'invention étant de rendre possible une opération continue de gazéification tout en produisant un gaz d'un pouvoir calorifique élevé.

Un autre but de l'invention est de rendre possible le transport économique à grande distance du gaz de gazéification souterraine sous forme convertie.

Encore un but de l'invention est de convertir le gaz de gazéification en d'autres produits gazeux susceptibles de nombreuses applications industrielles.

La gazéification souterraine des combustibles solides a fait l'objet de réalisation en divers endroits.

La valorisation du combustible solide gazéifié se fait le plus facilement sous forme d'énergie électrique par l'intermédiaire de la vapeur. Cet intermédiaire pourra par la suite être supprimé quand les progrès en turbines à gaz brûlés seront devenus suffisants pour que le rendement de la transformation directe en énergie mécanique soit devenu supérieur au rendement de la transformation par l'intermédiaire de la vapeur, ou de l'air/chaud

La valorisation du combustible sous forme de gaz pour la distribution ou pour l'industrie a été jusqu'à présent réalisée avec moins de succès. La rai-

MINISTRE DES AFFAIRES
ECONOMIQUES
14 DEC 1946
BREVETS

un mot ajouté
à la fin de la phrase

son en est le bas pouvoir calorifique du gaz obtenu, sauf une faible proportion pouvant être obtenue sous forme d'un gaz plus riche contenant une proportion plus élevée de gaz de distillation, par prélèvement intermittent, est trop faible et que le poids spécifique en est trop élevé, ce dont il résulte un prix de revient trop élevé du transport de l'énergie calorifique (prix de revient de la TCal/kilomètre).

La présente invention consiste en ordre principal en un procédé de gazéification dans le sol des combustibles solides, dans lequel la gazéification est opérée par un fluide comburant enrichi ~~à plus de 30%~~ en oxygène (par exemple de l'air enrichi à plus de 30% en oxygène, ou de l'oxygène industriel, ou de l'oxygène pur, ce fluide comburant pouvant contenir de l'oxygène, de la vapeur d'eau et/ou de l'acide carbonique, ce procédé étant caractérisé en ce que la proportion d'oxygène, de vapeur d'eau et/ou d'acide carbonique est telle que la réaction globale de gazéification est thermiquement substantiellement neutre, c'est-à-dire qu'elle n'est ni exothermique, ni endothermique.

La gazéification peut être effectuée à une température inférieure ou supérieure au point de fusion des cendres suivant la nature des cendres, du sol et des roches entre lesquelles les couches de combustible sont intercalées.

Suivant le rapport $CO_2/O_2/H_2O$ /autres gaz dans le comburant, le gaz de gazéification produit pourra contenir une proportion de CO approchant de 100%.

Le gaz de gazéification est de préférence converti en hydrogène et en bioxyde de carbone qui pourront être transportés à distance.

D'autres traits caractéristiques de l'invention deviendront apparents de la description qui suit.

La gazéification de combustibles dans des gazogènes est un procédé connu depuis longtemps, tant la production de gaz pauvre que de gaz à l'eau de coke ou de charbons bitumineux ou autres, chacun de ces gaz pouvant être carburé ou non.

En théorie, chacun de ces procédés peut être appliqué dans le sol aux couches souterraines de combustibles, mais en pratique et jusqu'à ce jour, seule la production de gaz pauvre semble avoir été réalisée avec un succès quelconque. Un certain enrichissement de l'air en oxygène a bien été essayé, mais il a été constaté qu'au fur et à mesure de l'enrichissement en oxygène, une fraction croissante de cet oxygène échappait à la réaction et se retrouvait dans le gaz de gazéification.

D'autre part, l'emploi d'oxygène ou d'air enrichi en oxygène dans la fabrication du gaz pauvre dans des gazogènes à gaz pauvre est également connu.

Le résultat technique de cette dernière invention a été de produire un gaz d'un pouvoir calorifique plus élevé que celui du gaz pauvre et pouvant se rapprocher de celui du gaz à l'eau, d'autant plus élevé que l'air insufflé davantage enrichi en oxygène, le gaz limite correspondant à l'insufflation d'oxygène seul étant un gaz semblable au gaz à l'eau (ou au gaz de gazéification intégrale de charbon dans le cas du charbon au lieu de celui du coke), mais avec un rapport CO/H_2 plus élevé, conformément aux lois d'équilibre $O_2-H_2O-H_2-CO-CO_2$ (négligeant les autres constituants).

La température de la couche de réaction est commandée par le rapport H_2O/O_2 dans l'air insufflé, la réaction globale devant être thermiquement neutre, c'est-à-dire, la chaleur de réaction globale devant rester nulle.

Pour la gazéification souterraine, on peut employer tous modes de réalisation pratiques connus.

L'oxygène est saturé de vapeur d'eau à la température nécessaire pour le maintien du point neutre thermochimique. Cette température de saturation est d'environ 80 à 95° pour le cas où le carburant est de l'oxygène industriel à haute teneur en O_2 ou de l'oxygène thermiquement pur.

La réaction contrôlée par le rapport CO_2/CO dans le gaz produit, peut être conduite, soit à une température inférieure au point de fusion des cendres, soit à une température supérieure à ce point de fusion. Le choix dépendra dans chaque cas particulier de la nature des cendres et du sol, ou des roches dans lesquelles les couches de combustible sont intercalées.

L'oxygène saturé de vapeur d'eau à la température voulue sera surchauffé, tout au moins au début de la campagne de production, de façon à éviter toute condensation d'eau dans la mine. A cet effet, l'allumage des fronts de gazéification pourra être conduit de façon à surchauffer les parois des puits d'insufflation. Eventuellement, une température de paroi supérieure à la température de saturation de l'oxygène d'insufflation pourra être maintenue par une surchauffe constante ou intermittente par des brûleurs placés dans le courant d'oxygène, ou par l'emploi intermittent d'un artifice semblable au procédé d'allumage lui-même

1/3

A noter que la précaution du maintien d'une température supérieure à la température de saturation correspondant à la réaction thermique neutre devient inutile dans le cas de l'alternative décrite où la neutralité thermique est réalisée par le CO₂ en lieu et place de la vapeur d'eau; dans cette alternative, le fluide comburant peut être injecté froid. Dans la combinaison des deux procédés, une température de saturation plus basse est à réaliser, d'autant plus basse qu'une plus grande proportion de la vapeur serait remplacée par de l'acide carbonique.

Dans le cas de l'emploi de la vapeur seule comme gaz assurant la neutralité thermique de la réaction de gazéification, la quantité d'oxygène nécessaire est de 1/4 à 1/6 du volume du gaz de gazéification produit.

Cet oxygène ne doit pas nécessairement être pur et peut contenir plusieurs dizaines de unités pour cent d'azote sans affecter notablement les avantages du procédé.

Afin de réaliser un bas prix de revient de cet oxygène (soit ^{de O₂ sous forme} de 0,25 à 0,50 Kwh par m³ d'oxygène à 80-95% de O₂, il est nécessaire de recourir à un système de production par grosses unités comportant les particularités suivantes :

échanges de froid par régénérateurs alternatifs, au lieu de par récupérateurs continus tubulaires;

compression initiale de l'air par turbocompresseurs, avec récupération de l'énergie de détente par turbines des fractions restant gazeuses et des fractions séparées à l'état liquide, après leur ré-évaporation dans les sections correspondantes des régénérateurs.

Dans le cas où l'application du principe Joule-Thomson du refroidissement self-intensif serait incorporée au procédé de production de l'oxygène, l'emploi de régénérateurs alternatifs reste cependant possible et avantageux, de même que la récupération d'une partie de l'énergie de compression sur certaines fractions de l'air soumis à condensation fractionnée dans les appareils.

quatre mots ajoutés
B

Réchelle à laquelle l'application de l'invention est envisagée ^{ou de plusieurs millions} étant par unités de capacités de l'ordre du million/de m³ de gaz par jour, l'ordre de grandeur des unités d'oxygène se-
deux mots ajoutés ^{rait} d'environ 10,000 m³ par heure, ou plus.

La chaleur sensible du gaz de gazéification souterraine est récupérée à sa sortie du sol dans une chaufferie centrale à laquelle il est amené des différents puits d'aspiration par des conduites calorifugées de préférence intérieurement ou doublées de réfractaire.

Deux mots ajoutés En admettant que le ^{gaz de} gazéification intégrale ait 1.000° à sa sortie des puits d'aspiration, il emportera environ 310 KCal./m³, dont environ 70-80% de récupérable sous forme de vapeur, soit 220-240 KCal., produisant 0,3 à 0,4 Kg. de vapeur

Cette quantité est insuffisante pour la conversion et il faudra ~~prévoir~~ prévoir une source de vapeur d'appoint, soit en brûlant une faible partie du Gaz de gazéification intégrale souterraine par l'oxygène, soit, de préférence, en empruntant de la vapeur de soutirage à la chaufferie de la centrale thermo-électrique marchant au Gaz pauvre de gazéification souterraine ou en brûlant du gaz pauvre de gazéification souterraine produit par d'autres puits, dans des chaudières séparées. En principe, toute production de vapeur devrait être à moyenne pression supérieure ou à haute pression, avec récupération d'énergie électrique et soutirage de la vapeur d'utilisation chimique ou thermique.

Les chaudières sont de préférence à pression moyenne ou haute et alimenteraient une centrale électrothermique. Les turbines seraient à simple ou à double soutirage, un soutirage à moyenne pression servant à fournir la vapeur nécessaire à la conversion sous pression ^{en hydrogène} du gaz de gazéification ~~en hydrogène~~, un deuxième soutirage, à basse pression, servant à fournir la vapeur d'injection (i.e. de saturation) à la gazéification dans le sol.

Si la pression de distribution de l'hydrogène industriel qui aura été choisie en fonction de la distance sur laquelle

Le transport de l'énergie calorifique doit avoir lieu, ainsi qu'en fonction des autres facteurs économiques-techniques, est élevée dans l'échelle des pressions qu'il entretient en ligne de compte pour ce transport, d'après la pratique actuellement appliquée notamment en Allemagne et aux Etats-Unis, il pourra ne pas être intéressant de prévoir un soutirage de vapeur intermédiaire, et il peut, dans ce cas, être plus simple d'utiliser des chaudières marchant à une pression légèrement supérieure à celle à laquelle la conversion sous pression est appliquée.

Quant à la pression du soutirage destiné à la saturation de l'oxygène de gazéification (ou du mélange d'oxygène et de CO_2), elle dépendra de la résistance à l'insufflation dans le sol; cette insufflation peut se faire à des pressions variables suivant la nature du sol et des couches de combustible ainsi que des superficies attaquées et il sera bon de prévoir sur les turbines deux ou trois alternatives de soutirage à basse pression à des étages différents.

Dans les cas où la gazéification par le mélange oxygène-acide carbonique serait adoptée, le besoin de vapeur à la gazéification disparaît et dans ce cas, il ne serait pas nécessaire de prévoir des soutirages basse pression. Toutefois, l'amorçage d'une nouvelle campagne de gazéification ou d'une nouvelle zone d'attaque se fera généralement par le procédé air-vapeur ou oxygène-vapeur ou air oxygéné-vapeur (à moins que des quantités suffisantes d'acide carbonique soient disponibles, provenant d'autres zones de gazéification en exploitation). Il sera donc prudent, du moins jusqu'à ce que la nouvelle technique se soit stabilisée, de prévoir des soutirages basse pression ou un moyen auxiliaire de production de vapeur.

Il pourra arriver que dans certaines circonstances de distance, de coût des canalisations et de leur pose, et de coût -particulièrement bas- de la force motrice notamment si l'énergie électrique est produite par le gaz pauvre de gazéification souterraine, des pressions de transport très élevées soient adoptées pour le transport de l'hydrogène industriel, soient

des pressions de l'ordre de celles qui sont de pratique courante dans l'industrie de synthèse. Dans ce cas, comme la conversion sous pression de l'oxyde de carbone se pratique de préférence aux pressions moyennes, il sera utile d'opérer cette conversion à une pression moyenne élevée, et ensuite d'effectuer la sur-compression de l'hydrogène industriel à la pression de transport.

A sa sortie des chaudières de récupération, le gaz de gazéification souterrain est dégoudronné, dépeussié et lavé. Les extracteurs sont placés sur le gaz propre froid. La dépression à laquelle le gaz de gazéification est extrait aux puits d'extraction dépendra des conditions locales. Cette dépression doit être suffisante pour éviter des déperditions importantes de gaz par porosité du sol, tout en évitant autant que possible l'aspiration d'air brûlé ou non. Surtout dans le cas d'application de la gazéification par l'oxygène-acide carbonique, où le gaz de gazéification a une composition se rapprochant de 100% de CO, le procédé devra être conduit de manière à éviter en tout cas les fuites de gaz par porosité dans les agglomérations habitées.

Le gaz de gazéification ne doit pas être soumis à une épuration chimique. En effet, les catalyseurs de conversion dont l'emploi est prévu sont insensibles aux poisons de la famille du soufre. Les composés sulfurés sont réduits en hydrogène sulfuré sur le catalyseur de conversion du CO. Cet hydrogène sulfuré est éliminé avec l'acide carbonique lors du lavage sous pression par l'eau de décarbonatation-désulfuration. Il en résulte que l'hydrogène industriel produit par ce procédé est automatiquement épuré et prêt pour la distribution.

Le gaz de gazéification est soumis à conversion sous pression sur des catalyseurs qui opèrent la conversion du CO en H₂ mais qui ne catalysent pas la réaction d'hydrogénation en méthane. Les catalyseurs qui sous pression favorisent la formation de méthane, sont donc exclus. Les catalyseurs répondant à ces conditions existent et seul leur emploi en conjonction avec la présente invention est revendiqué.

La conversion sous pression est adoptée dans le présent procédé à cause de ses avantages importants dans le cas particulier sont les caractéristiques qui influent sur ce choix sont les suivantes :

- a) L'hydrogène industriel sera transporté sous pression;
- b) L'élimination du CO_2 (et de H_2S) peut donc se faire à la pression du transport.
- c) le gaz devant donc en tout cas être comprimé, il y a intérêt à effectuer cette compression au point de son circuit de transformation où son volume est le plus petit;

Or, la conversion ayant pour effet une augmentation du volume sec, (la vapeur, qui est injectée après compression, n'intervenant pas au point de vue compression), il y a intérêt à effectuer la compression avant conversion.

Le procédé de conversion sous pression du gaz à l'eau est connu en soi.

L'avantage de la compression avant conversion qui n'est déjà pas négligeable dans le cas de la conversion du gaz à l'eau, devient important dans le cas du présent procédé. En effet

Dans le cas habituel de la conversion du gaz à l'eau, l'augmentation de volume est de 100 à 130-135 pour un gaz contenant 35 à 40% de CO ; il ne faut donc comprimer que 71% du volume du gaz converti si l'on opère la conversion sous pression.

Dans le cas du gaz de gazéification par l'oxygène, à 37% de CO , il ne faut comprimer avant conversion que 100 volumes pour 167 volumes de gaz converti, soit 60% du volume du gaz converti;

Enfin, dans le cas du gaz de gazéification par l'oxygène-acide carbonique, la composition du gaz converti étant théoriquement de 100% de CO , le volume à comprimer avant conversion est de 100 volumes pour 200 volumes de gaz converti, soit de 50% seulement du volume de ce dernier. Les frais de compression sont donc diminués de moitié par rapport à la conversion à la pression ordinaire où la compression en vue du lavage - élimination du CO_2 et du transport à distance doit avoir lieu sur le gaz converti, c'est-à-dire après la conversion.

Afin de réduire à un minimum les frais de conversion du CO, gaz de gazéification souterraine, il faut réduire les frais de compression et les frais de vapeur.

Frais de compression: la récupération sur place de l'énergie de compression étant exclue, celle-ci ne pouvant avoir lieu qu'aux points d'aboutissement des lignes de transport à distance de l'hydrogène industriel, il y a lieu d'adopter les machines qui donnent le rendement maximum à la compression; on adoptera donc des turbocompresseurs à étages avec refroidissement du gaz intermédiaire entre les étages successifs, de façon à se rapprocher le plus près possible de la compression isothermique; la limite de cette recherche du rendement maximum sera fixée comme dans toute application calculée économiquement, par le calcul d'amortissement.

Les turbos seront actionnés par des turbines à vapeur utilisant la vapeur de récupération des chaleurs sensibles du gaz de gazéification. Des moteurs électriques seraient utilement prévus sur le même arbre, en guise d'alternative les accouplements, tant des turbines que des moteurs électriques aux turbos étant à embrayage ou amovibles.

Les turbos peuvent éventuellement effectuer en même temps l'extraction du gaz de gazéification; il pourra toutefois être plus prudent de séparer l'extraction de la compression et d'y affecter des machines différentes, avec une capacité géométrique intercalée en vue de créer un tampon. D'autant plus que, comme les extracteurs aspireront dans certains cas en parallèle sur plusieurs puits d'extraction et que des réglages individuels devront dans ce cas être prévus sur chaque aspiration, en vue d'assurer à chaque puits la dépression nécessaire, il pourra être préférable d'éviter la répercussion de ces perturbations sur les turbocompresseurs.

Frais de vapeur: le prix de revient de la vapeur obtenue par récupération des chaleurs sensibles, éventuellement après sa valorisation préalable dans des turbines de soutirage, sera le plus bas possible.

Toutefois, sa récupération doit néanmoins être recherchée au maximum et à cet effet, il y a lieu de prévoir, pour la saturation du gaz préalablement à la conversion du CO en hydrogène, des échangeurs-saturateurs perfectionnés dans lesquels l'échange-saturation a lieu par intervalles de température au lieu de par un circuit unique d'eau chaude, comme il se pratique habituellement. Comme d'autre part, il est prévu d'utiliser des catalyseurs actifs à des températures basses auxquelles l'excès de vapeur d'eau nécessaire à la réaction est faible, et que, dans la production d'hydrogène industriel pour la distribution il n'est pas nécessaire de pousser à l'extrême l'élimination du CO, bien que le poids spécifique soit rapidement affecté par la présence de quelques unités pour cent de CO et d'autres gaz, la consommation effective de vapeur pourra être réduite à un faible surplus par rapport au besoin théorique, qui est de 800 grammes par m³ de CO converti ou d'hydrogène produit.

La conversion catalytique du CO en hydrogène par la vapeur dans un gaz à haute teneur en CO pouvant atteindre près de 100% dans le cas du gaz de gazéification par l'oxygène-acide carbonique pose sous une forme plus impérative le problème du maintien de la température optimum de catalyse. Dans le cas de la conversion du gaz à l'eau ordinaire, cette question n'était pas d'une importance capitale. Il suffisait d'un échange de température entre le gaz à convertir et le gaz converti; tout au plus, prévoyait-on dans certains cas une conversion en deux phases avec un échange de chaleur entre les deux, la température du gaz partiellement converti dans la première phase étant ramenée à une température un peu inférieure à la température optimum correspondant au catalyseur particulier employé avant d'être soumis à la réaction de parachèvement dans la deuxième phase de la conversion.

Dans le cas de gaz riches en CO toutefois, surtout quand la conversion a lieu sous pression, et surtout quand on emploie des catalyseurs très actifs aux basses températures en présence de faibles excès de vapeur d'eau, l'importance de la chaleur dé-

gagée et qui se porte sur une masse de gaz beaucoup moindre et sur un espace beaucoup plus restreint du fait de l'emploi de la pression, oblige à adopter des systèmes combinés d'échanges de températures extérieurs et intérieurs aux convertisseurs, de façon à limiter à un faible intervalle les élévations de température optimum. Dans le cas du gaz de gazéification par l'oxygène-acide carbonique notamment l'élévation de température due à la réaction de conversion serait de 600 à 700 degrés C, contre moins d'une centaine de degrés dans le cas de la conversion du gaz à l'eau sur les catalyseurs ordinaires de la famille fer. Il faut donc dans le présent procédé utiliser des convertisseurs comportant intérieurement à la masse du catalyseur des échangeurs de chaleur convenablement étudiés suivant le principe et les conditions quantitatives du présent procédé.

L'élimination de l'acide carbonique formé à la conversion du CO par la vapeur se ferait, comme d'habitude, sous pression par lavage à l'eau, le H₂S étant éliminé par la même occasion. L'énergie de pompage de cette eau de lavage sous pression est théoriquement constante quelle que soit la pression sous laquelle le lavage (ou la conversion) a lieu; en effet, la solubilité du CO étant de l'ordre de 1 aux températures ordinaires, il faudra à chaque pression un volume d'eau de lavage égal au volume du gaz à laver qu'il occupe à la pression en question; comme l'énergie de pompage est théoriquement proportionnelle à la pression et proportionnelle au débit; mais que ce dernier est inversement proportionnel à la pression du gaz du fait des lois de la solubilité des gaz, cette énergie de pompage est théoriquement constante. Toutefois, ici encore, le procédé faisant l'objet de la présente invention se montre particulièrement avantageux et économique; en effet, le rendement du lavage à l'eau sous pression sera beaucoup plus élevé que dans le cas habituel de la conversion du gaz à l'eau tel quel ou corrigé par du gaz à l'air comme il est de pratique habituelle dans l'industrie de l'azote notamment; dans le cas de la conversion du gaz de gazéification par l'oxygène-acide carbonique en

effet, la composition du gaz converti étant théoriquement 50% H_2 -50% CO_2 , un volume d'eau à 30 kilos de pression lavera 30 volumes d'hydrogène industriel et dissoudra 30 volumes d'acide carbonique mesurés à la pression ordinaire, alors que, dans le cas habituel de conversion du gaz à l'eau à la pression ordinaire un volume d'eau lavera (sous 3 kilos de pression de lavage) 6 volumes d'hydrogène industriel et dissoudra environ 2,4 volumes de CO_2 , si la teneur en CO du gaz à convertir est de l'ordre de 40%.

L'énergie de pompage de l'eau de lavage - élimination du CO_2 et du H_2S doit en tout cas être récupérée par turbine à eau accouplée au groupe moto-pompe, comme il est d'ailleurs de pratique courante. Vu l'échelle massive à laquelle le procédé faisant l'objet de la présente invention est destiné à être appliqué, il y aura lieu de rechercher à l'extrême l'amélioration des rendements mécaniques des machines centrifuges qui seront utilisées.

Le volume de CO_2 dissous par l'eau de lavage étant énorme et pouvant même être égal au volume de l'hydrogène industriel lui-même (dans le cas de la gazéification par l'oxygène-acide carbonique), il sera utile de récupérer l'énergie de compression du gaz relative à cette quantité de CO_2 ; à cet effet, une turbine spéciale de détente-récupération de l'énergie de pompage de l'eau devra être projetée.

A noter qu'étant donné le poids spécifique élevé de l'acide carbonique, de l'ordre de 2, contre un poids spécifique de l'ordre de 1,2 du gaz avant conversion (dans le cas de la gazéification par l'oxygène-acide carbonique) et que le volume d'acide carbonique dégazé est du même ordre que le volume du gaz de

gazéification lui-même, on pourra récupérer une fraction intéressante de l'énergie de compression du gaz initial; c'est-à-dire qu'en accouplant la turbine de détente de l'acide carbonique dégazé au turbocompresseur du gaz initial, l'hydrogène industriel est obtenu et transporté sous pression sans grande dépense d'énergie mécanique (ou électrique) de compression. Le degré auquel ce résultat pourra être atteint pratiquement dépendra du degré de perfectionnement qui pourra être atteint dans la réalisation des machines centrifuges décrites, tant turbines à eau que turbines à gaz et turbo-compresseurs pompes. Il faudra prévoir le réchauffage atmosphérique ^{ou} à l'aide de vapeur ou de chaleurs perdues du gaz carbonique entre les étages successifs de détente, afin de poursuivre le rendement maximum de la récupération de l'énergie, par approximation avec la détente isothermique.

La recherche de l'optimum de récupération sera d'ailleurs limitée par le calcul d'amortissement des perfectionnements des machines pour les tranches progressives de récupération, comme il est usuel.

La quantité d'acide carbonique produite étant égale au volume de la production de l'hydrogène industriel lui-même, même un tiers seulement de cette quantité étant ré-utilisée à la gazéification, théoriquement les 2/3 sont disponibles. Pour une unité de production d'un million de m³ d'hydrogène industriel par jour, la production disponible d'acide carbonique sera donc de 2/3 de million de m³ d'acide carbonique.

La purification de l'acide carbonique de dégazage comportera notamment l'élimination catalytique du H₂S avec production de soufre; l'élimination catalytique de l'hydrogène et du SO; éventuellement, une purification chimique liquide. La liquéfaction et le transport de l'acide carbonique liquide par wagons-citernes et par camions-citernes sous pression, ainsi que la production massive d'acide carbonique solide sont des corollaires qui peuvent être intéressants. Même si l'on part du principe que, dans la fabrication de l'acide carbonique industriel,

telle qu'elle se pratique actuellement, la matière première ne coûte rien, vu qu'on la prélève sous forme de gaz brûlés de chaudières, son absorption et sa libération sous forme concentrée ne se font pas sans frais; or, dans le présent procédé, l'acide carbonique est obtenu directement à une concentration se rapprochant de 100% et à une grande pureté.

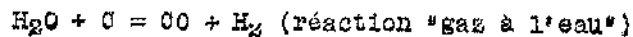
La conversion du CO et le lavage sous pression pour l'élimination des gaz solubles se feraient de préférence à la pression de transport de l'hydrogène industriel. Toutefois, si le calcul économique devait montrer qu'il y aurait intérêt à effectuer le transport à des pressions supérieures à celles qu'on est habitué à appeler "moyennes", il est préférable d'effectuer la conversion et éventuellement, le lavage à pression moyenne et ensuite de surcomprimer l'hydrogène industriel à la pression de transport choisie. A noter qu'aux pressions de l'ordre de celles qui sont courantes dans les synthèses sous hautes pressions, les canalisations pour le transport de quantités de gaz massives sont encore de faibles diamètres et se prêtent à la pose aérienne. La récupération d'une fraction optimum économique de l'énergie de compression au point d'aboutissement de la ligne haute pression s'impose évidemment.

Comme signalé plus haut dans la description de l'invention, une partie du CO₂ de dégazage peut être recyclé à la phase gazéification comme suit:

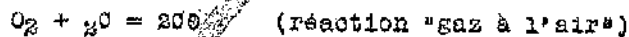
Le CO₂ peut remplir, seul ou conjointement avec la vapeur d'eau le rôle de la vapeur d'eau dans la gazéification. En effet, la réaction



est endothermique tout comme la réaction

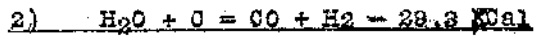
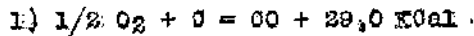


et peut servir à maintenir thermiquement neutre la réaction globale de la gazéification, c'est-à-dire à neutraliser la réaction exothermique



Les caractéristiques théoriques des deux procédés de gazéification par l'oxygène, c'est-à-dire l'un par l'oxygène-vapeur, et l'autre par l'oxygène-acide carbonique, sont d'ailleurs résumées comme suit:

A- Procédé Oxygène-vapeur :



3) Réaction thermiquement neutre résultante :



4) Composition théorique du gaz de gazéification:

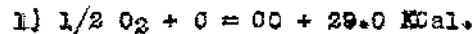
67% CO

33% H₂

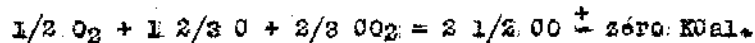
5) Oxygène nécessaire : 1/3 du volume du gaz produit.

6) Température de saturation de l'oxygène à réaliser (à la pression atmosphérique) 88°C

B- Procédé Oxygène-acide carbonique



3) Réaction thermiquement neutre résultante:



100% CO

5) Oxygène nécessaire à la gazéification: 1/3 du volume du gaz produit.

6) Acide carbonique nécessaire: 3/10 du volume du gaz produit.

7) Composition du mélange oxygène - acide carbonique à insuffler

40% O₂

60% CO₂

Les chiffres sont théoriques et ne tiennent pas compte de la chaleur sensible emportée par le gaz de gazéification intégrale lui-même. En réalité, la réaction "oxygène" serait proportionnellement un peu plus importante et la réaction "vapeur" ou "CO₂" un peu moins. Si l'on opère la correction pour une température du gaz de gazéification intégrale de 1.000° p.ex., les chiffres pour le procédé "oxygène" - "acide carbonique" deviennent :

- 1°) $1/2 O_2 + C = CO + 29,1 - 7 = CO + 22$
- 2°) $CO_2 + C = 2 CO - 28,72 - 14 = 2 CO - 52,72$
- 3°) Réaction globale thermiquement neutre :
- $$1/2 O_2 + 1,42 C + 0,42 CO_2 = 1,84 CO \pm 0 \text{ Kal.}$$
- 4°) Composition du gaz de gazéification intégrale : 100% CO
- 5°) Oxygène nécessaire : $\frac{1}{3,7}$ du gaz produit (ou de l'hydrogène industriel produit après conversion)
- 6°) Acide carbonique nécessaire : $\frac{1}{4,4}$ du gaz produit
- 7°) Mélange oxygène acide carbonique à insuffler 54 O₂ - 40 CO₂
- 8°) Vapeur produites par les chaleurs sensibles: 0,35 à 0,40 Kg/ms de gaz de gazéification intégrale produit ou d'hydrogène industriel produit.

A la conversion subséquente du CO en H₂, une quantité de CO₂ égale au volume de CO converti est produite; comme il ne faut pour la gazéification par l'oxygène-acide carbonique que 3/10 du volume du gaz produit en CO₂, il en résulte qu'un volume de CO₂ égal aux 7/10 du volume de gaz produit est en excès et est utilisable à des buts divers. Un de ces emplois les plus intéressants sera la fabrication de sulfate d'ammoniaque

Les deux procédés de gazéification par de la vapeur ou par l'anhydride carbonique décrits ont chacun des avantages qui peuvent le rendre préférable suivant les circonstances. A noter que l'hydrogène qui n'est pas produit lors de la gazéification doit l'être lors de la conversion; que la consommation globale de vapeur, reste donc du même ordre; que le rendement de l'utilisation de la vapeur peut être plus élevé dans la gazéification par l'oxygène-vapeur que dans la conversion, pour la même quantité d'hydrogène produite (bien qu'en effectuant la conversion à basse température sur des catalyseurs hyperactifs le rendement d'utilisation de la vapeur soit très satisfaisants); que la nécessité de réaliser une température de saturation en vapeur de l'oxygène dans le cas du procédé oxygène-vapeur peut nécessiter des mesures supplémentaires dans le but d'empêcher la condensation d'eau dans la mine.

Les deux procédés peuvent d'ailleurs se combiner ce qui

permet de réaliser un point de saturation moins élevé de l'oxygène-acide carbonique omburant.

Les deux procédés peuvent être utilisés dans l'exploitation de gazogène en surface conjointement avec la gazéification souterraine.

Par exemple, et ceci est une autre caractéristique de l'invention, la gazéification et conversion en surface pourront se faire de la manière suivante :

Du CO_2 est injecté dans un gazogène en même temps que de l'air enrichi en oxygène, de l'oxygène industriel ou de l'oxygène pur. A la sortie du gazogène, on obtient un gaz dont la composition peut atteindre 100% de CO . Celui-ci est converti de la manière décrite ci-dessus en H et CO_2 . Le CO_2 peut rentrer dans la fabrication souterraine et/ou la gazéification en surface.

La gazéification souterraine se faisant, suivant le mode d'exploitation adopté et suivant la nature des couches de combustible, dans des conditions qui peuvent ne pas réaliser un contact intime entre le comburant gazeux insufflé et le combustible, c'est-à-dire dans des conditions où la surface de contact est faible par rapport au débit de comburant insufflé il peut arriver que la composition du gaz de gazéification souterraine soit plus ou moins éloignée de la composition d'équilibre thermochimique; c'est-à-dire qu'il peut arriver que le gaz produit contienne encore un pour cent anormalement élevé d'oxygène dans le cas de la gazéification par l'oxygène-vapeur, ou d'oxygène et d'acide carbonique dans le cas du procédé oxygène-acide carbonique. Ceci serait sans effet sur la composition finale de l'hydrogène industriel, l'oxygène étant éliminé lors de la conversion catalytique et le CO_2 étant éliminé au lavage sous pression par l'eau.

Toutefois, cette façon d'exploiter le procédé pourrait, suivant l'importance des teneurs en O_2 et CO_2 résiduelles, devenir désavantageuse et il peut y être remédié comme suit:

La gazéification souterraine, conduite de façon à laisser dans le gaz de gazéification des pourcentages non négligeables d'oxygène, ou d'oxygène et de CO_2 suivant la variante du procédé qui serait appliquée, est complétée par une réaction de parachèvement en surface. Cette réaction a lieu dans des gazogènes de parachèvement où le gaz de gazéification souterraine traversera une couche de combustible incandescente, cette incandescence étant maintenue par le parachèvement de la réaction elle-même; comme ces gazogènes de parachèvement ne feront en quelque sorte que filtrer le gaz et fourniront une faible production propre (uniquement celle correspondant aux O_2 et CO_2 résiduaux du gaz de gazéification souterraine), ils consommeront peu de combustible en comparaison du combustible gazéifié dans le sol. Dans ces conditions, les déperditions de chaleur étant plus élevées relativement à la chaleur de réaction dans des gazogènes normaux, il peut être nécessaire de modifier en une certaine mesure le rapport O_2 /vapeur, ou le rapport O_2/CO_2 , ou le rapport O_2 /vapeur/ CO_2 dans l'air insufflé; ou bien une correction peut être introduite sous forme d'un appoint d'oxygène au gaz de gazéification souterraine avant son introduction dans les gazogènes de parachèvement.

L'intensité de production du gaz dans le sol (le débit) peut être augmentée par l'application du parachèvement de la réaction de gazéification dans des gazogènes de parachèvement.

Le parachèvement peut se faire sur le gaz de gazéification souterraine refroidi; il sera toutefois plus économique de traiter le gaz directement à sa sortie des puits d'extraction. Le fait d'opérer sur gaz à haute température entraînera des changements dans la construction des gazogènes, afin d'éviter des détériorations aux grilles et autres organes. L'invention prévoit donc l'emploi de gazogènes de parachèvement comportant des insufflations latérales, centrales,



ou périphériques à la grille, de façon que la grille ne soit pas dans le courant gazeux; ou bien des grilles construites en matériaux réfractaires, notamment en fonte, acier coulé, ou acier réfractaire. Tant l'alimentation du charbon que l'extraction des cendres seront conçues dans des gazogènes normaux de telle manière que la section transversale de passage du gaz à parachever est, par rapport aux débits des appareils d'alimentation du combustible et d'extraction des cendres, notablement plus élevée que dans des gazogènes normaux, ou bien l'alimentation et l'extraction des cendres seront comme dans des gazogènes normaux, de façon à permettre, en cas de besoin, l'utilisation des gazogènes de parachèvement comme gazogènes de production.

Du point de vue économique, les procédés et les combinaisons de procédés décrits dans la présente invention réalisent le résultat avantageux suivant, non encore atteint précédemment par les procédés connus à ce jour:

L'expérience acquise à ce jour en gazéification dans le sol a, d'après les rapports sur les exploitations à l'étranger, déjà montré que le prix de revient par unité thermique est de l'ordre du tiers de ce qu'il est pour la production de gaz en surface. Par contre, à cause du pouvoir calorifique trop bas du gaz et de son poids spécifique trop élevé, il ne se prête pas au transport à distance; du fait, qu'il doit être consommé sur place ou dans un faible rayon, son utilisation se borne à la production d'énergie électrique et il est inutilisable pour l'alimentation des réseaux de distribution de gaz.

Si l'on admet que, dans les procédés de gazéification qui font l'objet de la présente invention, le prix de revient de l'unité thermique n'est pas abaissé du fait du pouvoir calorifique plus élevé du gaz de gazéification brut (ce qui n'est pas le cas), les frais supplémentaires qui viennent s'ajouter au prix de revient qui, comme indiqué ci-dessus, serait environ le tiers du prix

de revient du gaz produit en surface, sont les suivants :

coût de l'oxygène d'insufflation

coût de la conversion du CO en H₂

Or, si l'on estime que l'oxygène impur produit dans des unités de grande capacité à régénérateurs alternatifs comme décrits ci-dessus sera de l'ordre de quelques centimes le m³ (35 à 50 kWh/m³ oxygène à 60-85% O₂) et qu'il ne faut que 1/5 de m³ de cet oxygène par m³ de gaz de gazéification ou d'hydrogène industriel, il est clair que le prix de revient de ce dernier en sera peu affecté.

Quant à la conversion, elle consomme de la vapeur et de l'énergie de compression. La consommation de vapeur minimum est de l'ordre de 0,8 kilo par m³ d'hydrogène industriel; cette consommation est majorée de l'excès non récupéré; environ la moitié de cette quantité sera fournie par récupération des chaleurs sensibles du gaz de gazéification dans les chaudières de récupération; l'appoint devra être fourni par des chaudières brûlant par exemple du gaz pauvre de gazéification souterraine, dont le prix de revient serait comme signalé par les rapports étrangers. Même en admettant que la totalité de la vapeur nécessaire doive être produite séparément, le prix de revient de l'hydrogène industriel en serait majoré de 1/8; il coûterait donc 4/9 des gaz produits en surface. L'énergie de compression étant en grande partie récupérable, l'hydrogène industriel sous pression pour transport à distance reviendrait à moins de la moitié à la calorie des gaz banals produits en surface, à la pression ordinaire, c'est-à-dire "départ" au lieu de "franco destination" et fourniture sous pression. Les procédés faisant l'objet de l'invention fournissent donc à un prix de revient moitié un gaz à un potentiel d'utilisations diverses; notablement plus élevé. De ce prix de revient, il convient encore de retrancher :

- L'énergie électrique produite par la détente de la vapeur dans les turbines;
- L'énergie récupérée à la détente avec travail extérieur aux points d'aboutissement des feeders des réseaux alimentés;

quatre cents unités
187

les suppléments de prix qui peuvent être comptés aux utilisateurs de l'hydrogène industriel sous pression;

la valeur des sous-produits, déduction faite des frais de mise en valeur: acide carbonique, soufre.

Il résulte de ce qui précède que les procédés et combinaisons de procédés faisant l'objet de la présente invention fournissent une solution avantageuse des problèmes de la valorisation des combustibles dans le sol, du transport de l'énergie calorifique à distance et de l'alimentation des réseaux de distribution publique de gaz, sans compter les possibilités industrielles diverses obtenues grâce à l'invention.

Le système et l'appareillage de production d'oxygène peut comporter des échanges de froid par régénérateurs alternatifs discontinus, la compression de l'air par turbocompresseur à étages à refroidissements intermédiaires, la détente de l'azote avec production de travail dans une turbine branchée sur l'arbre du groupe turbocompresseur, la détente éventuelle d'autres fractions plus riches en oxygène que l'air initial également avec production de travail extérieur, le tout dans le but de produire en quantités massives de l'oxygène industriel contenant le moins possible d'azote et au prix de revient le plus bas possible.

La production de froid par détente avec travail extérieur peut être remplacée par la production de froid par détente sans travail extérieur par refroidissement sel-intensif (effet Joule-Thompson).

L'on peut employer dans la conversion catalytique sous pression du gaz de gazéification produit, d'échangeurs-saturateurs réalisant l'échange-saturation par intervalles de température de saturation, au lieu de globalement par un un circuit unique d'eau chaude; ceci afin de réaliser un rendement élevé de l'échange-saturation de façon à réduire le plus possible la consommation de vapeur au-delà de celle relative à la réaction chimiques

Dans le procédé de gazéification continue par l'oxygène,

on peut employer de l'acide carbonique provenant de la conversion du CO du gaz comme décrit ci-dessus.

On peut réaliser la récupération sur l'arbre des turbo-compresseurs à gaz de gazéification qui compriment ce gaz préalablement à sa conversion catalytique sous pression, de l'énergie de détente de l'acide carbonique libéré de l'eau de dissolution sous pression des gaz solubles acide carbonique et hydrogène sulfuré produits par la conversion, cette énergie de détente étant supérieure à l'énergie de compression du gaz initial, du fait du poids spécifique élevé du gaz CO₂.

On peut également réaliser la détente de l'eau de lavage sous pression du gaz converti dans des machines à étages, les gaz séparés dans chaque étage de détente de l'eau sortant des tours de lavage-décarbonatation-désulfuration sous pression du gaz converti étant séparés de l'eau et étant introduits dans les étages successifs correspondants en pression d'une turbine à gaz à alimentation progressive par étages, cette turbine étant accouplée aux turbocompresseurs du gaz préalablement à sa conversion catalytique sous pression.

L'hydrogène industriel peut être surcomprimé à une pression supérieure à celle à laquelle la conversion catalytique du gaz de gazéification a été effectuée.

Le gaz d'huile peut être obtenu par un procédé consistant à opérer la gazéification de l'huile par la vapeur, à la pression ordinaire ou sous pression ou sous un vide partiel, l'huile étant gazéifiée, soit en totalité en CO et H₂, à haute température, soit, à plus basse température, partiellement en hydrocarbures, la proportion de ces hydrocarbures croissant au fur et à mesure que la température de gazéification baisse jusqu'à un point où des parties croissantes de l'huile ne sont plus gazéifiées ni crackées en hydrocarbures volatils ni en CO et H₂; le procédé permettant de combiner et d'effectuer simultanément la gazéification à haute température en CO et H₂, d'une partie de l'huile et le cracking-gazéification en hydrocarbures gazeux et volatils, à une température intermédiaire, d'une autre partie

de l'huile, le procédé permettant également la récupération par lavage à l'huile de désencrassage ou par un des autres procédés de récupération d'hydrocarbures volatils, de produits des carburants liquides comme sous-produit de la gazéification de l'huile.

Dans le présent procédé, le gaz de gazéification souterraine est rendu disponible pour le transport à distance essentiellement sous forme d'hydrogène industriel.

Les avantages de l'hydrogène industriel par rapport au gaz pauvre obtenu à ce jour dans la gazéification souterraine, sont au point de vue du transport à distance, les suivants :

a) P. Cal. 3078 (en pratique environ 3000) contre environ 300 à 1000, ou au maximum 1600.

b) poids spécifique 0,09 (en pratique, environ 0,1 à 0,2) contre environ 1,2.

(La composition de l'hydrogène industriel se rapprochera de 100% H₂ si l'on emploie un oxygène pur, si l'on évite l'aspiration d'air brûlé ou d'air non brûlé à l'extraction du gaz de gazéification intégrale dans le sol, et si la conversion du CO est poussée; le poids spécifique sera alors de 0,09 (H₂ pur) à 0,1 et le pouvoir calorifique de 3,078 à 3,050).

Si l'on pousse moins loin le souci de pureté de l'hydrogène industriel, la composition pourra par exemple tomber à la suivante:

H₂ 93% - CO 5% - CO₂ 1% - N₂ 1% - d = 0,12, P Cal. 3000

La présence du gaz de carbonisation affecte en une certaine mesure la composition du gaz de gazéification ainsi que celle de l'hydrogène industriel final, ce dernier accusant un certain pour cent d'hydrocarbures, principalement de méthane, d'autant plus élevé que le combustible gazéifié sera plus riche en matières volatiles. Comme dans la gazéification souterraine par l'air, le gaz de distillation peut, au besoin, être récolté séparément partiellement, en interrompant le sourçlage.

La conversion en hydrogène de l'oxyde de carbone du gaz de gazéification a pour effet de majorer légèrement le pouvoir calorifique supérieur mais par contre d'abaisser légèrement le pouvoir calorifique inférieur. Comme dans la plupart des applications thermiques du gaz l'effet utile (pouvoir calorifique "utile") de la combustion du gaz dépend du pouvoir calorifique inférieur, la vapeur d'eau produite par la combustion n'étant pas condensée et la chaleur latente de condensation de cette vapeur qui est comprise dans le pouvoir calorifique supérieur, n'étant donc pas utilisée, la conversion en hydrogène du gaz de gazéification n'est pas désirable qu'en vue du transport à distance, surtout à grande distance, du gaz, et en vue de l'alimentation des réseaux de distribution publique, un très bas poids spécifique du gaz étant une condition essentielle dans ces cas. Quant aux emplois industriels chimiques du gaz, seul l'hydrogène entre en ligne de compte pour les applications massives de l'industrie des synthèses, hydrogénations et réductions qui sont déjà devenues de pratique industrielle et pour celles que le fait de rendre disponibles des quantités massives d'hydrogène industriel rendra possibles dans l'avenir.

Il résulte de ce qui précède que, sous forme d'hydrogène industriel, on transportera pour la même dépense d'énergie mécanique de transport : environ 6 fois plus d'énergie calorifique que sous forme de gaz pauvre à 1.000 KCal.;
 environ 1 1/4 fois plus d'énergie calorifique que sous forme de gaz distribution à 4.250 Cal. ;

environ la même quantité d'énergie calorifique que sous forme de gaz pauvre de fours à coke pur à 5.000 Cal.

A noter qu'au fur et à mesure que l'on adopte des pressions de transport plus élevées, l'importance de l'énergie de transport proprement par rapport à l'énergie de compression proprement dite (statique), est donc par rapport à l'énergie de compression totalement diminuée. De petites différences dans l'énergie de transport proprement dite (dynamique) n'ont donc pas grande importance dans le cas du transport à distance sous pressions.

L'alimentation des réseaux de distribution de gaz se fera donc économiquement par feeders en partant des charbonnages.

Le choix de la pression de transport la plus économique se fera d'après le calcul dans chaque cas particulier.

Pour le transport aux grandes distances, il pourra être avantageux d'utiliser des pressions élevées avec récupération de l'énergie de compression à l'arrivée. Cette récupération se fera de préférence à l'aide de machines à étages, à turbines ou à pistons, avec réchauffage atmosphérique entre les étages, afin de se rapprocher de la détente isothermique, ou par chaleur ou vapeur.

B

perdues.

Les canalisations sous haute pression seront de faibles diamètres et peuvent courir nues, le long des voies de chemin de fer, par exemple.

Aux points d'alimentation des réseaux de distribution par les feeders d'hydrogène industriel venant des charbonnages, le pouvoir calorifique du gaz peut être augmenté par mélange avec des gaz de P. Cal. plus élevé. Ceci peut notamment s'effectuer à l'aide d'une production locale de gaz de gazéification d'huile. Des usines à gaz d'huile érigées dans les ports maritimes ou fluviaux, et qui reçoivent leur matière première par bateaux citernes, constituent le moyen correctif et d'appoint le plus avantageux suivant le rapport des prix de l'huile et du charbon. Toutefois, les procédés de fabrication du gaz d'huile sont susceptibles de perfectionnements qui font un des objets du présent brevet.

La combinaison gazéification souterraine - production d'hydrogène industriel - transport à distance de cet hydrogène industriel - alimentation des réseaux de distribution en hydrogène industriel par feeders sous pression - et correction du P. Cal. aux points d'alimentation, notamment par le gaz d'huile, offre une solution avantageuse au problème de la distribution publique du gaz.

En effet, les moyens actuels de production, de transport et de distribution du gaz sont insuffisants. La demande de gaz, principalement pour le chauffage, tant domestique que de grands locaux (par l'air pulsé) et industriel, croît en effet rapidement et les besoins sont hors proportion avec les possibilités actuelles de production, de transport, et de distribution. D'autre part, un abaissement du prix du gaz tel qu'il devrait être rendu possible par le transport à distance de l'hydrogène industriel produit suivant la présente invention et les moyens correctifs qu'elle prévoit, doit immédiatement intéresser de nouvelles tranches de consommateurs, tant domestiques qu'industriels, et de ce fait, accroître cumulativement la demande.

A noter d'ailleurs que la production du gaz, telle qu'elle est organisée actuellement dans certains pays, dépend en ordre principal de la métallurgie, le gaz de fours à coke, constituant principal du gaz de distribution, étant un sous-produit ou un produit simultané du coke, suivant qu'il s'agit de cokeries métallurgiques ou de cokeries gazeuses (la distinction n'est d'ailleurs que de forme). Or, les besoins du public (privé, commercial, ou industriel) en gaz n'ont aucun rapport avec la marche de la métallurgie et la production de gaz par cette branche de l'activité industrielle ne devrait constituer qu'un élément des sources de gaz pour la distribution; les possibilités d'emploi du gaz ^{sont} en effet hors de proportion avec sa production par la métallurgie.

un mot ajouté

Signalons que le "feeding" des réseaux de distribution avec l'hydrogène industriel aura pour effet d'abaisser en une mesure importante la teneur en oxyde de carbone du gaz de ville. Vu la toxicité du CO, cet avantage n'est pas à négliger.

De nombreux accidents d'asphyxie se sont notamment produits suite aux irrégularités dans l'émission qui ont résulté de la pénurie de gaz. Une basse teneur en CO ne peut que diminuer le danger d'accidents de ce genre.

A noter que beaucoup d'industries utilisatrices d'hydrogène industriel emploient ce dernier sous pression. Elles peuvent donc être alimentées directement sous pression. Les purifications complémentaires que l'hydrogène industriel devrait éventuellement subir pour satisfaire aux exigences de chaque application particulière peuvent également se faire sous pression.

REVENDICATIONS ET RESUME.

1. Procédé de gazéification dans le sol des combustibles solides, dans lequel la gazéification est opérée par un fluide comburant enrichi en oxygène, (par exemple de l'air enrichi à plus de 30% d'oxygène, ou de l'oxygène industriel, ou de l'oxygène pur) ce fluide comburant pouvant contenir de l'oxygène, de la vapeur d'eau et/ou de l'acide carbonique, procédé caractérisé en ce que la proportion d'oxygène, de vapeur d'eau et/ou

[Signature]

1. L'acide carbonique est telle que la réaction globale de gazéification est thermiquement substantiellement neutre.

2. Procédé tel que revendiqué sous 1, caractérisé en ce que la gazéification est effectuée à une température inférieure ou supérieure au point de fusion des cendres suivant la nature de ces cendres et du sol.

3. Procédé tel que revendiqué sous 1 ou 2, caractérisé en ce que le gaz de gazéification produit a une haute teneur en oxyde de carbone, pouvant approcher 100% de CO.

4. Procédé tel que revendiqué sous 1 à 3, caractérisé en ce que le gaz de gazéification produit est converti en hydrogène et bioxyde de carbone.

5. Procédé tel que revendiqué sous 4, caractérisé en ce que la conversion en hydrogène se fait catalytiquement sous pression.

6. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé par l'emploi dans la conversion catalytique sous pression du gaz de gazéification produit, d'échanges de température extérieure et intérieure aux convertisseurs de façon à limiter à un faible intervalle les variations de température dans le catalyseur et dans les gaz soumis à catalyse, et de façon à produire la réaction de conversion dans les parages immédiats de la température minimum optimum caractéristique du catalyseur employé.

7. Procédé tel que revendiqué sous 1 à 6, caractérisé en ce que l'on utilise pour la gazéification continue par l'oxygène de l'acide carbonique provenant de la conversion du CO.

8. Procédé tel que revendiqué sous 1 à 7, caractérisé en ce que le gaz de gazéification est comprimé dans des turbo-compresseurs préalablement à sa conversion catalytique sous pression, l'énergie de détente de l'acide carbonique libéré de l'eau de dissolution sous pression des gaz solubles acide carbonique et hydrogène sulfuré produits par la conversion étant récupérés, par exemple dans une turbine branchée sur l'arbre du turbo-compresseur.

9. Procédé tel que revendiqué sous 4 ou 5, caractérisé par la surcompression de l'hydrogène industriel à une pression supé-

rière à celle à laquelle la conversion catalytique du gaz de gazéification a été effectuée, en vue de son transport à grande distance.

10. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé en ce que la conversion catalytique sous pression du gaz de gazéification continue par l'oxygène se fait à la pression choisie pour le transport à distance de l'hydrogène industriel.

11. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé en ce que l'énergie de compression de l'hydrogène industriel est récupérée aux points d'alimentation des réseaux de distribution de gaz.

12. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé en ce que le pouvoir calorifique de l'hydrogène industriel est corrigé aux points d'alimentation en ce gaz par une production locale de gaz d'huile.

13. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé par l'emploi à la conversion en hydrogène du gaz de gazéification, de catalyseurs hyperactifs effectuant la conversion catalytique du CO par la vapeur à des températures basses comprises entre 200 et 400°C, en présence de faibles excédents de vapeur.

14. Procédé tel que revendiqué sous 5, caractérisé par l'emploi de convertisseurs comportant intérieurement des échangeurs de chaleur placés dans la masse de catalyseur, et ayant pour effet, conjointement avec les échangeurs initiaux et intermédiaires extérieurs aux convertisseurs, de limiter à un faible intervalle de part et d'autre de la température minimum optimum du catalyseur, les variations de température des gaz soumis à catalyse et de la masse du catalyseur, malgré la haute teneur en CO du gaz soumis à la conversion, tel que le gaz de gazéification continue par l'oxygène.

15. Comme nouveau produit industriel, l'hydrogène produit dans la gazéification suivant les revendications précédentes.

16. Comme nouveau produit industriel, l'anhydride carbonique produit dans la gazéification suivant les revendications précédentes.

17. Comme nouveau produit industriel l'hydrogène sulfuré obtenu de la conversion catalytique du gaz de gazéification continue par l'oxygène.

18. Procédé de gazéification souterraine, substantiellement comme décrit.

19. Procédé de gazéification souterraine, dans lequel le gaz produit reçoit en appoint du gaz de gazogène produit par injection de CO_2 dans le gazogène en même temps que de l'air enrichi en oxygène, ou de l'oxygène industriel ou de l'oxygène pur.

20. Procédé tel que revendiqué sous 19, caractérisé en ce que, à la sortie du gazogène, le gaz est converti en H et CO_2 , celui-ci pouvant rentrer dans la fabrication souterraine et/ou dans la gazéification en surface.

21. Procédé tel que revendiqué dans les revendications 1 à 18 et 19 et 20, dans lequel la réaction de gazéification dans le sol est parachèvement en surface dans des gazogènes de parachèvement.

22. Procédé tel que revendiqué sous 21, dans lequel ce parachèvement est opéré sur le gaz de gazéification à sa sortie des puits d'extraction, c'est-à-dire sur le gaz chaud.

23. Procédé tel que revendiqué sous 21 ou 22, dans lequel le parachèvement de la réaction de gazéification a lieu sur le gaz refroidi.

24. Procédé tel que revendiqué sous 1 à 18, ainsi que dans les revendications 19 et 23, dans lequel, préalablement au parachèvement de la réaction de gazéification, la composition du gaz de gazéification à son entrée dans les gazogènes de parachèvement est modifiée en principe par une addition d'oxygène.

25. Procédé de gazéification souterraine, tel que revendiqué dans les revendications 1 à 18, 19 et 20 à 24, dans lequel on augmente l'intensité de production du gaz dans le sol (le débit) par l'application du parachèvement de la réaction de gazéification dans des gazogènes de parachèvement.

26. Gazogène de parachèvement pour un procédé de gazéification souterraine, caractérisé en ce que le gaz dont la réaction est à parachéver est introduit dans le gazogène latéralement, centralement, ou périphériquement par rapport à la grille, de façon que ni le mécanisme de celle-ci, ni la grille elle-même ne soient soumis au chauffage par les gaz traités, ou bien, le gaz chaud à parachéver est introduit latéralement à un niveau supérieur à celui de la grille, les introductions pouvant se faire à travers un talus naturel, constitué par des cendres.

27. Gazogène de parachèvement tel que revendiqué sous 26, caractérisé en ce que la surface de grille (ou la section transversale de passage du gaz à parachéver) est, par rapport aux débits des appareils d'alimentation du combustible et d'extraction des cendres, notablement plus élevée que dans des gazogènes normaux.

28. L'alimentation des réseaux de distribution publique de gaz, en hydrogène industriel produit suivant la présente invention.

Bruxelles, le 16 novembre 1946.

pp. Monsieur Frits Adolphe François FALLEMAERTS

Frits