

## MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

## DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

## BREVET D'INVENTION.

Gr. 15. — Cl. 3.

N° 759.246

**Procédé et appareil pour la fabrication du gaz.**

Société dite : AIR REDUCTION COMPANY INCORPORATED résidant aux États-Unis d'Amérique.

Demandé le 26 juillet 1933, à 16 heures, à Paris.

Délivré le 16 novembre 1933. — Publié le 31 janvier 1934.

La présente invention est relative à un procédé et un appareil pour la fabrication du gaz pour usages industriels et autres, tels que le chauffage, l'éclairage, etc.

5 L'utilisation d'un combustible gazeux présente de nombreux avantages par rapport à la combustion directe du combustible solide, mais l'emploi des combustibles gazeux ordinaires présente certains inconvénients. Par  
10 exemple, le gaz d'éclairage ayant une valeur calorifique d'environ 5.400 grandes calories par mètre cube est obtenu par la distillation destructive du charbon dans des cornues et est trop coûteux pour servir comme agent  
15 de chauffage dans la plupart des industries. D'autre part, le gaz de gazogène s'obtient en refoulant de la vapeur et de l'air dans un lit incandescent de charbon bitumineux. Toutefois, le gaz obtenu a une très faible  
20 valeur calorifique du fait de la grande proportion d'azote qu'il renferme nécessairement et il ne peut pas être distribué économiquement à partir d'une installation centrale, mais doit être utilisé sur place.

25 Ce qui est connu sous le nom de gaz à l'eau bleu a une utilisation étendue comme gaz ayant un pouvoir calorifique de 2.700 grandes calories par mètre cube, mais on le fabrique au moyen d'un procédé relative-  
30 ment coûteux et de faible rendement. L'opération se fait généralement en deux phases. Dans la première phase, appelée le soufflage,

l'air est soufflé à travers un lit de coke ou de charbon jusqu'à ce que ce dernier soit chauffé à peu près à blanc. Pendant cette 35 période de soufflage, le gaz sortant consiste principalement en gaz carbonique, oxyde de carbone et azote et possède une faible valeur calorifique. Il est surtout utilisé sur place comme gaz combustible pour produire la 40 vapeur ou pour le chauffage des appareils destinés à enrichir le gaz à l'eau bleu obtenu. La seconde phase du procédé est connue comme étant la phase de marche et dans cette opération dans le lit combustible incan- 45 descent, on refoule de la vapeur en produisant ce que l'on appelle du gaz à l'eau bleu qui consiste essentiellement en oxyde de carbone et hydrogène avec un peu de gaz carbonique, d'azote et de vapeur non décomposée. 50 En général, le gaz à l'eau bleu ainsi produit est ultérieurement enrichi en y ajoutant le gaz résultant du cracking ou distillation destructive d'huile de pétrole.

On a proposé, à plusieurs reprises, de 55 rendre le procédé de fabrication du gaz à l'eau bleu continu en supprimant la première phase et en refoulant un mélange de vapeur et d'oxygène plus ou moins pur. Lorsque l'on refoule dans un lit de combus- 60 tible un mélange en quantités appropriées d'oxygène et de vapeur, la température qui en résulte est suffisamment basse pour permettre la formation de gaz carbonique en

Prix du fascicule : 5 francs.

quantité sensible et c'est invariablement le résultat obtenu. Le gaz carbonique formé au voisinage du jet de vapeur et d'oxygène ne peut pas être réduit ensuite pour donner l'oxyde de carbone par l'action du lit de combustible incandescent au delà d'une quantité suffisante pour éviter la présence d'une grande proportion de gaz carbonique dans le produit. Par suite, il y a inconvénient d'utiliser de l'oxygène de cette façon du fait que le gaz obtenu a une teneur élevée en gaz carbonique, ce qui réduit la valeur calorifique et compense l'avantage dû à la suppression du soufflage initial. En conséquence, la modification proposée dans le procédé de fabrication du gaz à l'eau et suivant laquelle on substitue l'oxygène à l'air, n'a jamais pris un développement industriel.

La présente invention vise un procédé et un appareil simples et pratiques permettant de fabriquer, de façon continue, un gaz consistant essentiellement en oxyde de carbone et hydrogène par la réaction d'un combustible solide ou liquide avec de l'oxygène et de la vapeur.

Lorsqu'un courant ou jet continu d'un combustible solide pulvérisé ou liquide est combiné à l'état de fines particules avec de l'oxygène, on obtient une température excessivement élevée du fait de la combustion du combustible et cette température élevée empêche la formation de gaz carbonique ou, au moins, réduit la quantité de celui-ci à une valeur négligeable. Les quantités relatives de combustible et d'oxygène ajoutées dans cette partie de l'opération sont telles que tout l'oxygène est consommé pour donner de l'oxyde de carbone. Un excès de combustible qui peut être ajouté en même temps que le combustible qui sert à former l'oxyde de carbone ou ultérieurement sous forme d'un second jet venant frapper le premier jet, donne dans l'un ou l'autre cas une température excessivement élevée. Si un jet de vapeur saturée ou surchauffée rencontre ou vient se mélanger au jet de gaz et de combustible à température élevée résultant de la combustion partielle du combustible et de l'oxygène, comme on l'a indiqué ci-dessus, le combustible en excès réagit avec la vapeur de façon à donner de l'oxyde de

carbone et de l'hydrogène sans formation de gaz carbonique même si la température résultante finale des gaz sortants n'est pas plus élevée que dans le cas des méthodes existantes bien connues.

Le combustible en excès de ce qui est nécessaire pour former l'oxyde de carbone avec l'oxygène présent peut être ajouté comme partie du jet initial de combustible et d'oxygène ou bien, il peut être ajouté sous forme d'un jet séparé venant en contact avec le jet initial de combustible et d'oxygène avant ou après que la combustion initiale de combustible et d'oxygène présent ait eu lieu. Cet excès de combustible peut également être ajouté avec la vapeur du jet de vapeur. Toutefois, les résultats obtenus sont indépendants de l'une quelconque des trois méthodes d'introduction du jet de combustible.

Pour comprendre les caractéristiques de l'invention il est utile d'examiner brièvement les aspects physicochimiques du procédé de façon à déterminer si les résultats obtenus concordent avec les faits physicochimiques connus pour les réactions qui se produisent dans les fours qui ont été utilisés pour faire les expériences selon l'invention.

Si l'on considère un espace occupé par un combustible carboné liquide ou solide finement divisé donnant lieu à une combustion dans une atmosphère composée essentiellement d'oxygène avec ou sans gaz diluant inerte l'accompagnant et si l'on suppose que la quantité de combustible carboné présent dans cet espace est considérablement en excès par rapport à la quantité qui réagira avec l'oxygène présent dans l'espace pour former l'oxyde de carbone, c'est un fait bien connu, que l'on va prouver ci-dessous que dans ces conditions, même pour la totalité de l'espace il y a un excès sensible de combustible par rapport à celui qui est nécessaire pour former de l'oxyde de carbone, il y a une forte tendance à former du gaz carbonique. Ce fait a été reconnu il y a un certain nombre d'années et l'explication en est indiscutablement la suivante :

Au voisinage immédiat, de petites particules quelconques de carbone ou de combustible carboné, il existe pour la combinaison

d'un nombre relativement grand de molécules d'oxygène, c'est-à-dire par rapport aux atomes de carbone qui, dans la particule de combustible, sont disponibles pour se combiner avec l'oxygène. Ceci est dû au fait que les molécules d'oxygène sont mobiles, tandis qu'un pourcentage sensible des atomes de carbone sont protégés par rapport aux atomes d'oxygène du fait qu'ils se trouvent à l'intérieur d'une particule de combustible.

En outre de la réaction  $C + O^2 = CO^2$  est, ainsi qu'on le sait, une réaction excessivement rapide, si rapide en fait que ses progrès sont limités non par la vitesse de la réaction elle-même mais par la vitesse de diffusion des molécules d'oxygène jusqu'au carbone ou aux particules carbonées, voir Haslam et Russell, « Fuels and their combustion », page 148.

Dans le jet décrit ici, la vitesse de diffusion de l'oxygène jusqu'à ou autour d'une particule carbonée est rendue excessivement rapide du fait de l'action de déchirage du jet d'oxygène sur les particules carbonées solides ou liquides lorsque ces dernières se déplacent dans le jet. En conséquence, on peut conclure que la réaction ci-dessus se produira, de préférence, à moins que d'autres conditions non remarquées jusqu'ici empêchent la formation de gaz carbonique. Dans le procédé décrit ici cette formation initiale du gaz carbonique est empêchée, même si l'on suppose une condition d'oxydation transitoire au voisinage d'une particule carbonée quelconque du fait de la température extrêmement élevée atteinte lorsqu'on laisse brûler adiabatiquement le carbone pour qu'il se transforme en oxyde de carbone. Si cette température n'est pas trop élevée pour empêcher la formation initiale de gaz carbonique ce dernier se forme pour la raison donnée par Haslam et la réduction subséquente du gaz carbonique en oxyde de carbone par la réaction  $CO^2 + C = 2CO$  est relativement si lente qu'elle ne pourrait avoir lieu en quantité sensible avant le contact et le refroidissement brusques de l'oxygène et des particules de combustible avec le jet de vapeur. Cela revient à dire que si la température résultant de la combustion initiale du carbone et de l'oxygène n'est pas

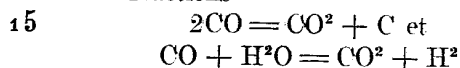
suffisamment élevée, le gaz carbonique qui se formera ne sera plus ensuite réduit à l'état d'oxyde de carbone au moyen de combustible en excès présent. Dans le cas où le contenu gazeux du jet combustible-oxygène renferme seulement de l'oxygène pur, la température résultant de la combustion du carbone pour donner de l'oxyde de carbone est si élevée qu'il ne peut pas y exister de gaz carbonique en quantité appréciable même dans les conditions d'oxydation qui se présentent partiellement autour d'une particule de charbon.

Au lieu d'introduire un excès de combustible avec l'oxygène, la quantité du combustible fourni au début peut être telle que le carbone du combustible est converti sensiblement seulement en oxyde de carbone. Une quantité supplémentaire de combustible suffisant pour réagir avec l'oxygène fourni par la vapeur peut être introduite indépendamment dans la chambre de réaction, par exemple, sous forme d'un jet de combustible séparé ou bien il peut être amené avec la vapeur en contact avec les gaz fortement chauffés résultant de la réaction initiale. Ce combustible additionnel se trouve fortement chauffé et réagit avec la vapeur qui est fournie en quantité suffisante pour donner un mélange gazeux consistant sensiblement uniquement en oxyde de carbone et hydrogène.

Par suite, le procédé consiste à introduire le combustible solide ou liquide à l'état finement divisé avec de l'oxygène dans une chambre de combustion où se produit la combustion initiale. La quantité du combustible fourni au début doit être telle que tout l'oxygène est consommé. On peut introduire un excès de combustible avec l'oxygène ou bien l'ajouter plus tard. La réaction donne une température extrêmement élevée des produits gazeux et le combustible en excès fourni au débit où le combustible supplémentaire introduit dans la chambre de réaction est porté à une température élevée. A la température atteinte par le mélange de gaz de combustion et de particules de combustible, le gaz carbonique ne se forme pas en quantité sensible, le carbone brûlé étant converti en oxyde de carbone. Quoiqu'il en soit le mélange de combustible et les particules

combustibles soient à la température élevée résultant de la réaction, on ajoute de la vapeur saturée ou surchauffée en proportions voulues pour réagir avec le combustible  
 5 fortement chauffé conformément à la réaction  $C + H^2O = CO + H^2$ . Cette réaction est fortement endothermique et la chaleur des gaz de la combustion initiale est absorbée rapidement. La température des produits se  
 10 trouve en conséquence réduite et peut être plus basse que la température des gaz sortants, dans les procédés habituels de fabrication de gaz à l'eau.

Les réactions



ne se produisent pas en quantité sensible et le produit est pratiquement exempt de gaz carbonique. Ceci peut être attribué au fait  
 20 que les réactions mentionnées en dernier lieu sont relativement plus lentes que les réactions inverses et les produits de la combustion qui sont au début à une température qui empêche la formation de gaz carbonique,  
 25 se refroidissent trop rapidement pour permettre la formation du gaz carbonique dans la dernière phase de l'opération. Ceci peut être exprimé en disant que les gaz sont « congelés » dans leur composition primaire  
 30 avant qu'une quantité sensible de gaz carbonique puisse se former. En conséquence, il est possible de produire un gaz qui consiste presque complètement en oxyde de carbone et hydrogène. Le gaz carbonique  
 35 est exclu par la température atteinte pendant la combustion initiale et par le refroidissement rapide lorsque la vapeur vient en contact avec les produits de la combustion initiale. On évite la présence d'azote en  
 40 utilisant de l'oxygène au lieu d'air, l'oxygène ayant, en outre, le rôle de donner la température initiale élevée qui est essentielle pour l'opération. Le combustible utilisé dans l'opération peut être du combustible  
 45 solide pulvérisé constitué par des différentes sortes de charbon ou bien il peut être un combustible liquide d'origine pétrolifère ou autre qui peut être pulvérisé et introduit ainsi dans la chambre de combustion. On a  
 50 constaté que le combustible solide pulvérisé donne d'excellents résultats. Il peut être amené, de façon continue, par n'importe

quel mécanisme approprié susceptible de l'amener uniformément à une vitesse déterminée.

Il est préférable d'utiliser de l'oxygène  
 55 relativement pur venant d'une source quelconque, par exemple, d'une installation ordinaire de liquéfaction de l'air. Quoique l'oxygène puisse être obtenu à un degré de  
 60 pureté supérieur à 99 %, il n'est pas essentiel que l'oxygène soit exempt d'impuretés quoique, évidemment, l'impureté habituelle qui est l'azote doit être exclue autant qu'il est possible industriellement du fait qu'il  
 65 est inerte et ne sert qu'à diluer les produits résultants. On peut utiliser, pour la mise en œuvre du procédé, de l'oxygène contenant 10 % d'azote ou même plus quoique la qualité du gaz résultant soit moins bonne du  
 70 fait que le produit gazeux est dilué avec de l'azote et que sa valeur calorifique est réduite de façon correspondante.

On peut facilement déterminer la quantité de carbone qui sera brûlée par une quantité déterminée d'oxygène. La quantité totale fournie soit au début, soit par introduction de combustible supplémentaire doit être considérablement en excès par rapport à celle qui est nécessaire pour réagir  
 75 avec l'oxygène et suffisante pour réagir avec la vapeur qui peut être convertie par ce carbone en hydrogène et oxyde de carbone en utilisant la chaleur produite par la réaction initiale. Tout excès de carbone serait superflu, car il ne pourrait réagir et il serait  
 80 simplement entraîné avec les gaz. De même un excès de vapeur ne servirait à rien.

L'oxygène et la vapeur doivent être introduits à une pression suffisante pour  
 85 assurer leur mélange nécessaire avec le combustible pour obtenir les résultats désirés. Un excès de pression ne servirait à rien. Les réactions sont sensiblement instantanées et le produit gazeux résultant peut être retiré  
 90 de façon continue à une température relativement basse. On peut faire passer le produit dans un séparateur de poussière pour enlever les cendres et, de là, dans un laveur de gaz pour enlever les impuretés solides et  
 95 dans un réservoir du type habituel.

Pour la mise en œuvre de l'invention, on peut utiliser n'importe quel appareil approprié, mais sur le dessin annexé on a repré-

senté schématiquement un appareil propre à la mise en pratique de l'invention.

Une chambre de combustion 5 est faite en une matière réfractaire appropriée quelconque susceptible de résister à la température relativement élevée de la réaction initiale. Un tuyau d'arrivée de combustible 6 pénètre dans l'une des extrémités de la chambre et est relié à une trémie 7 contenant du combustible solide pulvérisé, par exemple. Une vis d'Archimède 8 est disposée dans le tube d'arrivée de combustible, et est actionnée par une source de force motrice telle qu'un moteur électrique 9. Le combustible pulvérisé est alors amené de façon continue et uniforme dans la chambre de combustion. Si l'on utilisait un combustible liquide, on supprimerait la vis d'Archimède et la trémie et le liquide serait amené sous pression par le tuyau à un ajustage de pulvérisation approprié (non représenté).

Le tuyau 6 est entouré d'une conduite d'arrivée d'oxygène 10 dans lequel cet oxygène arrive en venant d'une source quelconque appropriée par une admission 11 et avec le degré de pureté voulu et sous une pression suffisante pour assurer le mélange de l'oxygène et du combustible en proportions appropriées. La combustion qui se produit lorsque le combustible est allumé donne des gaz de combustion consistant sensiblement en oxyde de carbone entraînant des particules de combustible à température très élevée généralement à plus de 1.000° et souvent plus près de 3.000°.

Un certain nombre de tuyères 12 passent à travers les parois pour venir dans la chambre de combustion, de préférence, perpendiculairement au courant de gaz et de la vapeur saturée ou surchauffée avec ou sans addition de combustible est introduite par les tuyères sous une pression suffisante pour assurer le mélange avec le gaz d'où il résulte que la réaction secondaire s'effectue avec le carbone ou les particules carbonées fortement chauffées de façon à donner le produit gazeux. Comme on l'a indiqué plus haut, on peut introduire du combustible supplémentaire avec la vapeur. La température est réduite rapidement par la réaction secondaire,

Les produits gazeux consistant principalement en oxyde de carbone et hydrogène s'échappent par la partie étranglée 13 de la chambre à combustible pour aller dans un séparateur de poussière 14 d'un type courant. La cendre se sépare et peut être enlevée par une porte 15 située dans le fond. Le gaz s'échappe par une sortie 16 pour aller à un laveur 17 d'un type quelconque courant et il arrive par un tuyau 18 à un réservoir à gaz 19.

A titre d'exemple pratique de l'application du procédé dans un appareil tel que celui que l'on vient de décrire, 5 kg. 450 par minute de charbon pulvérisé avec 3 kg. 800 par minute d'oxygène à 99 % pour la réaction initiale, et 2 kg. 950 par minute de vapeur ont été amenés à la chambre de réaction, l'oxygène étant sous une pression d'environ 0 kg. 350 par cm<sup>2</sup>. L'opération a donné, de façon continue, un produit gazeux consistant essentiellement en oxyde de carbone ou hydrogène ayant une valeur calorifique bien supérieure à 2.700 grandes calories par mètre cube.

Etant donné que sensiblement tout le carbone ou la matière carbonée est convertie en oxyde de carbone et qu'une grande partie de la chaleur est utilisée pour obtenir la décomposition de la vapeur, il est évident que le procédé décrit ci-dessus est d'un rendement excellent et procure une économie importante dans les quantités de combustible et de vapeur nécessaires par unité de volume de gaz produit. La simplicité et la facilité du fonctionnement de l'appareil sont également un facteur important au point de vue de la valeur économique de l'invention.

Par l'expression : « combustible carboné », il y a lieu de comprendre les combustibles tant solides que liquides et l'expression : « oxygène » comprend non seulement l'oxygène sensiblement pur, mais des mélanges de celui-ci avec d'autres gaz qui peuvent être utilisés pour brûler les combustibles et atteindre la température qui est nécessaire pour empêcher la formation sensible de gaz carbonique. L'expression : « vapeur » s'applique à de la vapeur saturée ou surchauffée.

Différentes modifications peuvent être faites dans des détails de l'opération et du procédé utilisé sans s'écarter de l'esprit de

l'invention et sans renoncer aux avantages qu'elle procure.

#### RÉSUMÉ.

Procédé pour produire, de façon continue, 5 du gaz pour utilisations industrielles ou autres, dans lequel un combustible carboné et de l'oxygène ne contenant sensiblement pas d'azote sont amenés de façon continue à une chambre de réaction chauffée, la quan- 10 tité d'oxygène étant limitée de façon que le carbone d'une partie du combustible réagisse avec cette quantité de façon à ne produire sensiblement que de l'oxyde de carbone, de la vapeur étant amenée de façon continue 15 à la chambre de réaction en quantité limitée pour réagir avec le restant du combustible en vue de donner uniquement de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène.

Ce procédé peut être caractérisé, en outre,

par les points suivants, ensemble ou séparé- 20 ment :

1° La température atteinte par les produits gazeux de la réaction initiale du combustible avec l'oxygène empêche sensiblement la formation de gaz carbonique; 25

2° Les produits fortement chauffés de la réaction initiale sont refroidis si rapidement par la réaction endothermique avec la vapeur que l'on empêche sensiblement la formation de gaz carbonique; 30

3° La quantité totale de combustible est amenée avec l'oxygène où une proportion du combustible est introduite avec l'oxygène et une quantité supplémentaire de combustible est introduite avec la vapeur. 35

Société dite :

AIR REDUCTION COMPANY INCORPORATED.

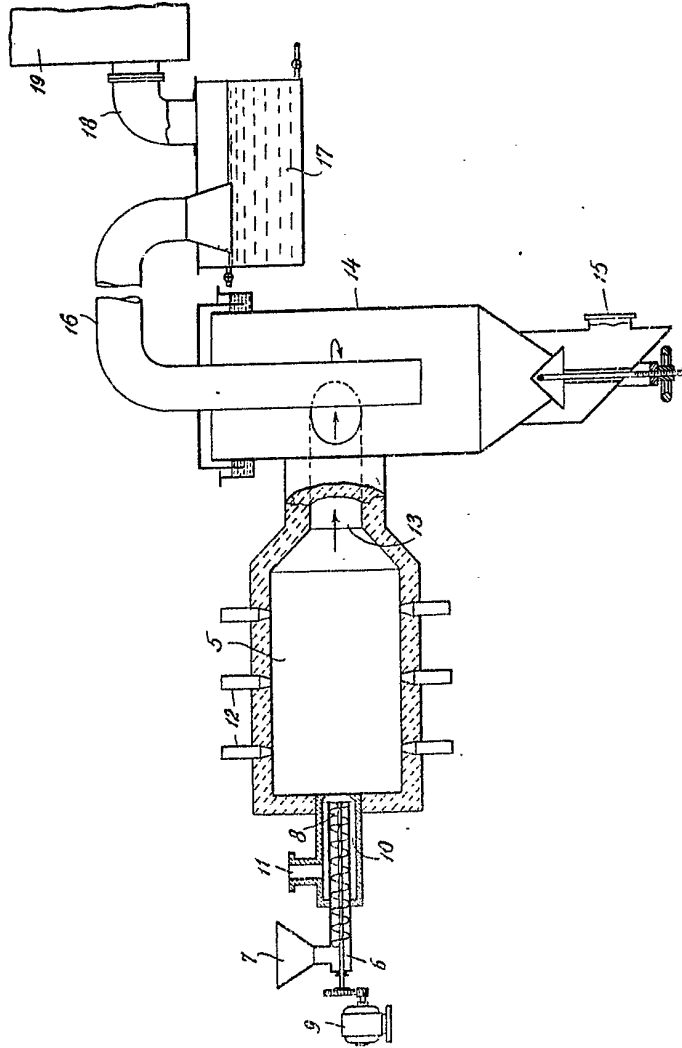
Par procuration :

Société BRANDON, SIMONNOT et RINUR.

N° 759.246

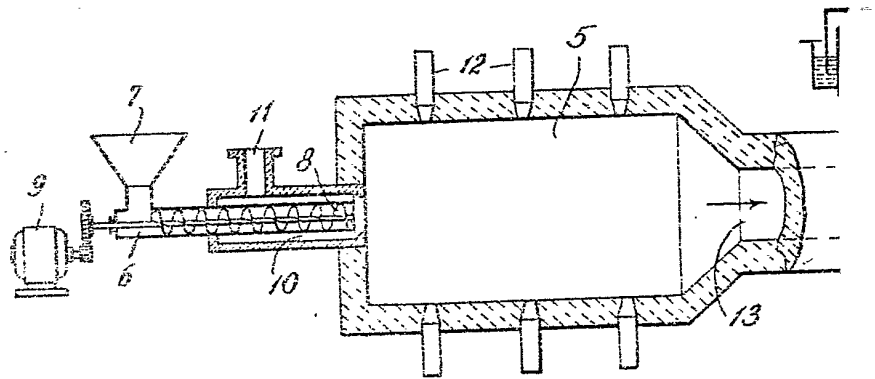
Société dite :  
Air Reduction Company, Incorporated

Pl. unique



N° 759.246

Société dite :  
Air Reduction Company, Incorp





été dite :

Pl. unique

company, Incorporated

