

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE ET DU COMMERCE.

SERVICE DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. 15. — Cl. 3.

N° 933.719

Procédé de préparation des combustibles.

Société dite : STANDARD OIL DEVELOPMENT COMPANY résidant aux États-Unis d'Amérique.

Demandé le 18 septembre 1946, à 14^h 38^m, à Paris.

Délivré le 5 janvier 1948. — Publié le 29 avril 1948.

(Demande de brevet déposée aux États-Unis d'Amérique le 22 décembre 1945, au nom de M. Frank E. Barr. — Déclaration du déposant.)

L'invention concerne la préparation des combustibles et plus particulièrement celle des combustibles gazeux et liquides, y compris les gaz combustibles et les combustibles
 5 pour moteurs en partant des matières carbonées non volatiles, telles que le charbon, le coke, la tourbe, les sables et schistes bitumineux, les résidus des huiles lourdes, etc.
 Divers procédés de transformation des
 10 matières carbonisables non volatiles, telles que le charbon, le coke, le schiste bitumineux, etc., en gaz combustibles et en produits combustibles liquides sont connus. Le procédé ordinaire le plus souvent appliqué
 15 dans l'industrie de la fabrication du gaz consiste dans un traitement de carbonisation ou de cokéfaction des solides carbonisables tels que le charbon, qui fournit du gaz de houille avec d'autres hydrocarbures
 20 avantageux, normalement liquides et d'autres sous-produits avantageux, suivi d'un traitement de gazéification du coke avec la vapeur pour obtenir du gaz à l'eau ou du gaz de gazogène. L'opération de carbonisation
 25 fournit des produits combustibles normalement gazeux et liquides qui consistent principalement en hydrogène et hydrocarbures de fort pouvoir calorifique en quantités variant entre 10 et 40 % de la charge.

suivant la qualité de la matière carbonisable. Dans tous les cas pratiques, la majeure partie de la charge carbonée est transformée en mélanges de gaz contenant des proportions variables de CO et de H², dont le pouvoir calorifique est d'environ 2.670 calories par m³ de gaz. Il a été proposé pour
 35 obtenir un liquide de fort pouvoir calorifique de faire subir aux mélanges de gaz contenant CO et H² une réaction de synthèse catalytique pour obtenir des hydro-
 40 carbures liquides. Le gaz résiduel provenant de la synthèse des hydrocarbures, qui consiste en hydrocarbures normalement gazeux contenant 1 à 4 atomes de carbone par molécule CO et H² non transformés et des
 45 éléments inertes, tels que CO₂, peut servir de gaz combustible à fort pouvoir calorifique, tandis que les produits de synthèse liquides constituent un rendement supplémentaire en combustibles pour moteurs. Ce
 50 procédé combiné de carbonisation, de gazéification et de synthèse permet d'obtenir une transformation extrêmement efficace et à peu près complète des matières carbonées solides en gaz combustible et combustibles
 55 pour moteurs à fort pouvoir calorifique, en particulier du fait qu'il est devenu possible de remédier aux nombreux inconvé-

niements des opérations périodiques avec lits fixes par l'application du procédé connu des solides fluides qui permet d'opérer d'une manière continue dans un stade quelconque ou dans tous les stades de la transformation.

Cependant ce procédé de transformation, même notablement perfectionné, laisse encore sans solution un problème d'une grande importance qui consiste à régler dans les conditions de vitesse et d'économie nécessaires, la vitesse de production des combustibles pour l'accorder avec les variations considérables de leur consommation. Ce problème est considérablement compliqué du fait que les variations des vitesses de consommation du gaz et du combustible pour moteurs ne sont nullement les mêmes. La consommation du gaz passe par un maximum et un minimum aux différentes heures de la journée; elle atteint un maximum en hiver et est nettement moindre en été. D'autre part, la consommation de combustible pour moteurs ne varie pas d'une manière appréciable pendant la journée pour le fabricant, mais est nettement maximum pendant les mois d'été et atteint un minimum pendant les mois d'hiver. Jusqu'à présent, l'industrie du gaz fabriqué a fait face aux variations de la consommation du gaz par des installations auxiliaires qui peuvent être mises en marche et arrêtées en un temps relativement court. Ce procédé de réglage de la production exige, lorsqu'il s'agit de satisfaire à des spécifications de qualité appropriées du gaz combustible, une installation auxiliaire pour tous les stades de transformation, qui ne fonctionne que temporairement et constitue ainsi une lourde charge au point de vue des frais de premier établissement et de l'économie de l'exploitation. De plus, la production d'une quantité plus ou moins grande de gaz combustible implique une augmentation et une diminution parallèles de la production du combustible pour moteurs, dans des conditions qui ne sont pas avantageuses, puisque la demande en combustible pour moteurs varie normalement en raison inverse de la demande en gaz combustible. Cette situation exige des emplacements considérables pour emmagasiner

le gaz et compenser les variations de la consommation qui sont si coûteux que cette solution devient inapplicable dans la pratique.

L'invention permet de remédier à ces difficultés et procure en outre divers avantages supplémentaires. Ces avantages, la nature de l'invention et la manière dont elle peut être mise en application sont faciles à comprendre d'après la description qui en est donnée ci-après avec le dessin ci-joint à l'appui qui représente sous forme semi-schématique des installations convenant particulièrement à sa mise en application.

Les principaux objets de l'invention sont les suivants :

Un procédé plus souple de transformation des matières carbonées non volatiles du type précité en produits combustibles normalement gazeux et liquides.

La transformation des matières carbonées non volatiles en gaz combustibles et en combustibles pour moteurs, par une opération continue qui peut être effectuée avec un rendement maximum continu et peut être facilement adaptée aux variations de la consommation du gaz combustible et du combustible pour moteurs, sans variation de la capacité de l'installation de traitement.

Un procédé perfectionné du type précité qui permet de faire varier en sens inverse la production du gaz combustible et du combustible pour moteurs sans exercer aucune influence fâcheuse sur le rendement, la capacité de l'installation de traitement ni la qualité des produits.

La transformation des matières carbonées non volatiles en gaz combustibles pour moteurs par un procédé combiné perfectionné, continu de gazéification et de synthèse des hydrocarbures par l'application de la technique des solides fluides et permettant d'adapter complètement et instantanément les vitesses de production de ces deux combustibles à celles de leur consommation, exercer aucune influence fâcheuse sur le rendement, la capacité de l'installation de traitement ni la qualité des produits.

D'autres objets et avantages de l'inven-

tion apparaîtront au cours de la description qui en est donnée ci-après.

La demanderesse a découvert que ces résultats et avantages peuvent être obtenus d'une manière tout à fait générale en transformant les matières premières carbonées non volatiles par une première opération de transformation en combustibles volatils formés de mélanges gazeux contenant CO et H², en faisant subir à CO et H² une réaction de synthèse catalytique des hydrocarbures, de façon à obtenir des combustibles liquides et un gaz combustible résiduel à utiliser à titre de gaz de ville et en prévoyant un dispositif de recyclage du gaz de synthèse résiduel dans la première opération de transformation, de façon à améliorer le rendement du procédé combiné au point de vue de la transformation de la charge combustible non volatile en produits combustibles liquides et gazeux dans les proportions voulues.

Suivant une des formes de réalisation de l'invention, le gaz de synthèse résiduel recyclé sert de combustible dans la première opération de transformation pour fournir au moins une partie de la chaleur nécessaire à la carbonisation et/ou à la production du gaz, et remplacer ainsi une quantité correspondante de la charge combustible non volatile qui aurait dû être brûlée à cet effet. Une autre forme de réalisation de l'invention consiste à recycler le gaz de synthèse résiduel dans l'opération de production du gaz à l'eau ou du gaz de gazogène de la première opération de transformation, de façon à modifier par reforming des hydrocarbures, la teneur en CO et en H² du gaz produit et/ou à enrichir le gaz de synthèse introduit et, par suite, le gaz résiduel de synthèse servant de gaz de ville, par les hydrocarbures gazeux.

On conçoit facilement que la quantité de gaz de synthèse résiduel recyclé et utilisé dans l'opération de transformation peut être réglée conformément aux besoins du marché en gaz combustible. Lorsque la demande en gaz combustible est forte, la proportion de gaz de synthèse recyclé est faible et inversement. En même temps, la production du combustible liquide peut être soit maintenue à un taux constant absolu, soit

adaptée aux variations de la demande en réglant d'une manière appropriée les conditions de la synthèse de façon connue en soi, par exemple en modifiant la température de la synthèse à partir de la valeur la plus avantageuse au point de vue de la production du liquide, si on désire réduire la production des produits de synthèse liquides, ou inversement. Pendant les périodes où on ne désire pas réaliser un rendement maximum en liquide, on peut régler le fonctionnement de l'installation de façon à réduire la dépense, par exemple en se servant du catalyseur plus longtemps sans le régénérer ou le remplacer, en réduisant le nombre des stades de l'opération, si ce nombre est normalement supérieur à un, etc. Si on désire régler les conditions de la synthèse de façon à maintenir faible la transformation de CO et de H², par exemple à moins de 90 %, pour contribuer au réglage du pouvoir calorifique et du poids spécifique du gaz résiduel, pour régler la répartition des hydrocarbures de synthèse, ou le rapport de l'élimination de l'O à l'état de H²O et CO², le gaz de synthèse résiduel contient normalement de fortes proportions de CO et H² de pouvoir calorifique relativement faible et dans ce cas il est particulièrement avantageux de recycler une partie du gaz de synthèse résiduel dans le stade de production du gaz de la première opération de transformation, en augmentant ainsi la teneur en gaz d'hydrocarbures du gaz de synthèse introduit, et le gaz de synthèse résiduel vendu sur le marché à titre de gaz combustible, peut être enrichi avec des gaz d'hydrocarbures. Il est évident que ces formes de réalisations et variantes de l'invention peuvent être combinées à volonté pour faire correspondre les rendements en combustibles liquides et gazeux à toutes les variations pouvant être envisagées des demandes quantitatives et qualitatives du marché sans qu'il soit nécessaire de prévoir aucune installation auxiliaire, ni emplacement excessif de stockage.

Quoique l'utilisation du gaz de synthèse résiduel suivant l'invention puisse s'effectuer entre certaines limites dans la préparation du gaz de synthèse par les techniques ordinaires du lit fixe au moyen d'installa-

tions ordinaires de production du gaz à l'eau ou du gaz de gazogène, alimentées en coke, on a constaté qu'on peut obtenir une souplesse pratiquement illimitée de l'opération, et employer une proportion quelconque comprise entre 0 et 100 % de gaz de synthèse résiduel dans l'installation de production du gaz de synthèse, en faisant fonctionner cette installation suivant le procédé des solides fluidifiés. Cette installation de production du gaz de synthèse fonctionnant par le procédé des solides fluidifiés peut comporter par exemple un étage de production du gaz dans lequel on fait réagir la matière carbonée solide fluidifiée à l'état de fine division avec la vapeur pour obtenir du gaz à l'eau, tandis que la chaleur nécessaire à la réaction du gaz à l'eau est fournie sous forme de chaleur sensible du résidu solide chaud provenant d'un étage séparé de combustion à l'état fluidifié, ou réchauffeur dans lequel une portion des solides carbonés brûle en contact avec l'air. L'installation séparée d'un réchauffeur et d'un gazogène a encore l'avantage de permettre de recycler d'une manière continue le gaz de synthèse résiduel en proportions quelconques à volonté, simultanément ou alternativement à titre de combustible de substitution dans le réchauffeur et de produit de modification du gaz dans le gazogène, en augmentant ainsi la souplesse de l'opération. Cependant, il doit être bien entendu que l'invention est applicable à tout autre type d'installation de synthèse des gaz, fonctionnant par le procédé de fluidification ou des lits fixes ou mobiles.

Sur le dessin ci-joint :

La figure 1 est une vue en plan schématique représentant d'une manière générale une installation convenant à la mise en application du procédé suivant l'invention, et

La figure 2 représente en partie sous forme schématique et en partie sous forme de diagramme une installation convenant à la mise en application d'une forme de réalisation de l'invention choisie de préférence.

L'installation représentée schématiquement sur la figure 1 comporte en principe une installation 2 de gaz de synthèse servant à préparer un gaz de synthèse contenant CO et H² en partant de combustibles

non volatils, tels que le charbon, le schiste bitumineux, les résidus d'huile lourde, le coke, etc., et une installation 6 de synthèse des hydrocarbures servant à la transformation catalytique de CO et de H² à l'état de combustibles synthétiques liquides et gazeux. Les deux installations de production du gaz de synthèse et de synthèse des hydrocarbures 2 et 6 peuvent être d'un type quelconque connu. Par exemple, l'installation de production du gaz de synthèse 2 peut consister dans un étage unique de production du gaz, servant à transformer le charbon ou le coke avec la vapeur et à oxyder les gaz à l'état de gaz à l'eau, ou comporter un étage de carbonisation servant à la préparation du gaz de houille, des produits de carbonisation liquides et du coke, outre l'étage de production du gaz à l'eau. La chaleur nécessaire à la production du gaz à l'eau et/ou à la carbonisation peut être fournie par combustion partielle de la matière carbonée par intermittence, ou d'une manière continue, dans des zones de carbonisation et/ou de production du gaz à l'eau ou dans un réchauffeur séparé. La température peut varier entre 537° C. environ et 1.093° C. environ pour la carbonisation et entre 760° C. et 1.200° C. pour la production du gaz à l'eau et entre 982° C. et 1.370° C. pour les réchauffeurs séparés, suivant la nature de la matière première et des produits qu'on désire obtenir. On peut appliquer d'une manière connue en soi les procédés du lit fixe, du lit mobile ou de la fluidification. L'installation peut comporter des dispositifs de séparation et de raffinage des produits de carbonisation gazeux et liquides. L'installation de synthèse des hydrocarbures 6 peut comporter les dispositifs ordinaires de purification, en particulier de désulfuration du gaz de synthèse, une ou plusieurs chambres de réaction catalytique à lit fixe, mobile, ou à fluidification et une installation permettant de recueillir les produits en séparant les produits liquides des produits gazeux, ainsi que des installations ordinaires de raffinage de l'huile. Les catalyseurs de synthèse ordinaires, tels que les métaux du groupe du fer, en particulier le fer ou le cobalt et, si on le désire, déposés sur des supports sil-

eux, peuvent être utilisés à des températures comprises entre environ 177° C. et environ 427° C. et sous des pressions absolues comprises entre environ 1 et environ 50 atmosphères, suivant la composition des produits qu'on désire obtenir. Ces conditions sont connues et ne font pas partie de l'invention. Mais suivant l'invention, une corrélation appropriée doit être établie entre toutes ces conditions en tant qu'elles affectent les proportions relatives entre les produits finalement obtenus liquides et gazeux et le recyclage du gaz de synthèse résiduel dans l'installation de production du gaz de synthèse, ainsi qu'on le verra plus nettement ci-après.

En fonctionnement, l'installation de production du gaz de synthèse, maintenue sous la même pression que l'installation de synthèse des hydrocarbures, transforme la charge de matière carbonée non volatile introduite en 1 en gaz de synthèse qui sort par le tuyau 3 et si on le désire en gaz de houille et en combustibles liquides provenant de la carbonisation, qui peuvent être raffinés d'une manière quelconque ordinaire, recueillis par les tuyaux 4 (gaz de

houille) et 5 (combustibles liquides) et vendus respectivement sous forme de gaz combustible et de combustibles liquides pour moteurs. On fait passer le gaz de synthèse dans l'installation de synthèse des hydrocarbures et on le transforme, après purification appropriée en produits d'hydrocarbures liquides et en gaz résiduel contenant CO et H² non transformés, en hydrocarbures gazeux contenant un à quatre atomes de carbone par molécule et en produits inertes, tels que CO² et N².

La proportion relative et la composition des produits synthétiques liquides et du gaz de synthèse résiduel peuvent être réglées facilement, conformément aux demandes du marché, en choisissant d'une manière appropriée les conditions de la synthèse. Par exemple, le tableau ci-dessous donne une comparaison des conditions-types de l'opération et des résultats obtenus avec un catalyseur de fer, au point de vue du réglage du rapport de sélectivité entre les hydrocarbures liquides et gazeux et du degré de non saturation des hydrocarbures de synthèse à bas point d'ébullition.

OPÉRATION TYPE	RENDÉMENT MAXIMUM en liquide.	RENDÉMENT MAXIMUM EN GAZ par rapport au pouvoir calorifique		RENDÉMENT MAXIMUM en produits non saturés.
		gazole.	gaz.	
Température de synthèse °C.....	317	289-303	330.	317-330
Volume de gaz de synthèse frais/volume du catalyseur/heure.....	500	500	500	1000
Age du catalyseur effectif.....	moyen.	assez vieux.	vieux.	moyen.
Pression atmosphérique.....	20	10	10	20
Sélectivité en cal. liq./cal. gaz.....	1,2-3,0	0,6-1,2	0,4-1,2	1,2-2,5
Produits non saturés % C ² -C ³	—	—	—	75-90
Composition du gaz résiduel:				
H ² %.....	2-15	10-40	1-10	5-20
CO %.....	1-5	5-15	1-5	1-5
CH ⁴ -C ² %.....	10-30	5-25	25-50	10-30
CO ² -N ² %.....	50-75	30-60	55-60	50-75

La variation qu'on désire peut être parfois obtenue en ne modifiant qu'une seule des variables indiquées ci-dessus à titre de changement. La composition exacte du catalyseur peut également exercer une influence sur la répartition et les propriétés des produits, en particulier lorsqu'elle est influencée par des activants. Les caractéristiques

du catalyseur peuvent être modifiées sans interrompre le fonctionnement de l'installation, si on le désire, en introduisant d'une manière continue ou périodique dans la zone de réaction des éléments séparés du catalyseur à volonté.

Ainsi qu'il a été dit ci-dessus, les produits synthétiques liquides peuvent être

raffinés par un procédé quelconque ordinaire, tel qu'un cracking thermique et/ou catalytique, une hydrogénation, un reforming, une isomérisation, une alkylation, une polymérisation, etc. Lorsque la réaction de synthèse s'effectue dans des conditions provoquant la formation d'une proportion considérable de produits non saturés, le procédé suivant l'invention permet de préparer des combustibles fortement antidétonnants pour moteurs d'aviation et autres. A cet effet, on peut traiter les produits liquides de carbonisation, recueillis dans l'installation de production du gaz de synthèse, de façon à séparer la fraction contenant du benzène et d'autres composés aromatiques appropriés à points d'ébullition compris dans l'intervalle de ceux du combustible pour moteurs, puis alkyler ces produits aromatiques en faisant usage des produits non saturés provenant de la réaction de synthèse en présence d'un catalyseur, tel que le chlorure d'aluminium, l'acide phosphorique, etc., d'une manière comme en soi. Les produits non saturés à C³, C⁴ et C⁵ sont normalement avantageux à cet effet et l'alkylation peut s'effectuer en l'absence ou en la présence d'autres produits de synthèse à points d'ébullition compris dans le même intervalle que ceux des produits non saturés d'alkylation. Le combustible liquide final passe au stockage par le tuyau 7.

Le gaz de synthèse résiduel ayant la composition et le pouvoir calorifique qui conviennent aux spécifications du marché concernant le gaz combustible, sort par le tuyau 8. On dérive une portion correspondant à la demande du marché par le tuyau 9 et on la refoule aux points de consommation. CO² peut être éliminé par des opérations d'épuration connues, s'il est nécessaires de le faire pour satisfaire aux conditions des spécifications. Ou bien une portion du CO² peut être éliminée par lavage du gaz avec un solvant basique, sous pression et mise en liberté du CO² par détente de la solution sous la pression atmosphérique sans chauffage. Il doit être également bien entendu que la composition, le pouvoir calorifique et le poids spécifique du gaz résiduel peuvent encore être réglés en le mé-

langeant avec une proportion quelconque à volonté du gaz de synthèse dérivé sans passer dans la chambre de réaction de synthèse. D'autres moyens connus peuvent aussi servir à régler la composition du gaz, pour contribuer à satisfaire aux conditions des spécifications en les combinant dans un ordre de succession à volonté. Le gaz combustible éventuellement produit en excès passe dans le tuyau de recyclage 10 et revient dans l'installation de production du gaz de synthèse, soit pour remplacer le combustible et y fournir de la chaleur, soit pour modifier la composition du gaz de synthèse produit dans l'étage de production du gaz, ou pour ces deux raisons, ainsi qu'il est indiqué ci-dessus et décrit d'une manière plus détaillée à propos de la figure 2 du dessin.

La figure 2 représente une forme de réalisation choisie de préférence de l'invention, comportant l'application du procédé des solides fluidifiés dans l'installation de production du gaz de synthèse, qui à titre d'exemple comporte en principe un générateur de gaz 202 à solides fluidifiés et un réchauffeur 210 à solides fluidifiés. Certaines installations facultatives et certaines installations auxiliaires ordinaires, nécessaires, telles que l'installation de cokéification ou de carbonisation, les séparateurs de gaz et de matières solides, les préchauffeurs, les dispositifs faisant arriver et sortir les solides fluidifiés, les soupapes, etc., ont été supprimés pour abréger et simplifier la description, car ces installations auxiliaires et leur fonctionnement ne font pas partie de l'invention. Lorsque l'installation fonctionne, on fait arriver d'une manière connue en soi, par le tuyau 201 dans le générateur de gaz 202, la matière carbonée solide à l'état de fine division, telle que le charbon, le schiste bitumineux, le coke, etc., sous forme de particules pouvant être fluidifiées, sensiblement uniformes, de gros- seurs pouvant être comprises entre les limites approximatives des particules passant au tamis à ouverture de mailles de 30 microns, et 6,34 mm. de diamètre. Si on emploie du coke, il peut provenir d'un étage de carbonisation antérieur de la même installation. Les particules solides à l'état de fine division sont maintenues dans le géné-

rateur 202 sous forme de masse dense, turbulente, bouillonnante, fluidifiée par la vapeur, arrivant par le tuyau 203 à la partie inférieure du générateur 202. La quantité de vapeur doit être suffisante pour transformer une notable portion des éléments carbonés, des matières solides en gaz à l'eau à une température comprise entre environ 760 et 1.092° C. Une notable portion au moins de la quantité de chaleur nécessaire à la réaction de gazéification est fournie sous forme de chaleur sensible du résidu de combustion solide recirculant en provenance du réchauffeur 210, ainsi qu'on le verra et-après. La vitesse superficielle du mélange de vapeur et de gaz dans le générateur 202 est choisie de façon à provoquer la fluidification voulue dans le générateur 202 et peut généralement varier entre 0,15 et 3,0 m./seconde suivant la grosseur et le poids spécifique des matières solides chargées.

Le résidu de gazéification solide, fluidifié, qui peut encore contenir environ 0,5 à 5 % d'éléments carbonés sort par la partie inférieure du générateur 202 par le tuyau 204, qui peut avoir la forme d'une colonne de charge fluidifiée et est mis en suspension dans l'air ou autre gaz oxydant passant dans le tuyau 205. La suspension pénètre dans le réchauffeur 210 par le tuyau 206 dans lequel peut arriver le gaz de synthèse résiduel recyclé par le tuyau 208 en provenant de l'installation de synthèse des hydrocarbures, ainsi qu'on le verra ci-après. Les matières solides forment dans le réchauffeur 210 une masse dense, turbulente, bouillonnante, fluidifiée par l'air, le gaz de synthèse résiduel et le gaz brûlé formé. La combustion des éléments carbonés des matières solides et le CO, le H² et les hydrocarbures gazeux du gaz de synthèse résiduel arrivant par le tuyau 208, s'effectue à une température qui peut être comprise entre environ 982 et 1.370° C suivant la quantité d'oxygène apportée, qui peut être réglée conformément à la quantité de chaleur nécessaire dans le générateur de gaz 202. Le gaz brûlé sort à la partie supérieure par le tuyau 212 et peut être utilisé à volonté, par exemple à la récupération de la chaleur dans l'installa-

tion. Le résidu de combustion solide fluidifié sort à la partie inférieure et arrive sensiblement à la température du réchauffeur par le tuyau 213 dans le générateur de gaz 202, en quantité suffisante pour y apporter la chaleur nécessaire. Le résidu de combustion solide en excès peut sortir par le tuyau 214 et être rejeté après récupération de la chaleur dans l'installation. La vitesse de circulation des matières solides chaudes passant du réchauffeur 210 dans le générateur 202 dépend évidemment de la différence de températures entre le réchauffeur 210 et le générateur 202, mais peut varier en général entre 25 kg. et 200 kg. de matières solides recirculant par kg. de charge nouvelle introduite dans le générateur 202. Si on le désire, une quantité de chaleur supplémentaire peut être produite par une combustion particelle dans le générateur 202 en y introduisant avec la vapeur de l'oxygène ou de l'air enrichi par l'oxygène.

Le gaz de synthèse brut sort de la partie supérieure du générateur 202 et arrive par le tuyau 215 dans l'installation de synthèse des hydrocarbures 218 pour y être purifié et transformé en combustible liquide synthétique et en gaz combustible résiduel recueillis respectivement par les tuyaux 219 et 220 d'une manière analogue à celle qui a été décrite, à propos de l'installation de synthèse 6 de la figure 1.

La quantité de gaz demandée par le marché est transmise par le tuyau 221 dans les canalisations, tandis que le gaz résiduel éventuellement en excès est recyclé par les tuyaux 222 et 208 dans l'installation de production du gaz de synthèse. Ainsi que l'indique le dessin, le gaz résiduel de recyclage peut être ramené dans le réchauffeur 210 par les tuyaux 208 et 206 ou dans le générateur 202 par les tuyaux 224 et 203 ou à la fois dans les deux. Dans le premier cas, le gaz résiduel sert de combustible supplémentaire dans le réchauffeur 10, ce qui permet de réduire dans des proportions correspondantes la quantité de matière solide carbonée introduite dans le générateur 202. Dans le second cas, le gaz résiduel peut servir à modifier la composition du gaz de synthèse en ce qui concerne sa teneur en CO, H² et/ou en hydrocarbures gazeux. Si on

le désire, on peut régler les conditions de fonctionnement du générateur 202, de façon à transformer par exemple en élevant la température du générateur au-dessus de 982° C. environ, une proportion notable des hydrocarbures contenus dans le gaz résiduel en quantités supplémentaires de CO et H².

On voit, d'après ce qui précède, que les installations fonctionnant suivant l'invention possèdent une souplesse pratiquement illimitée au point de vue de leur adaptation possible aux variations quantitatives ou qualitatives des besoins du marché en gaz combustible. Ces variations peuvent être obtenues en faisant fonctionner l'installation en permanence avec un rendement constant maximum en recyclant simplement l'excès du gaz combustible sans exercer aucune influence sur la production des combustibles liquides pour moteurs qui peut être maintenue constante à une valeur quelconque. Cependant, si on le désire, on peut également faire varier la production du combustible liquide, en réglant d'une manière appropriée, les conditions de la synthèse des hydrocarbures sans exercer aucune influence que la quantité de gaz combustible disponible sur le marché. De même, certaines fractions, en particulier celles dont les points d'ébullition sont supérieurs à l'intervalle de ceux du combustible pour moteurs, peuvent être recyclées dans l'étage de préparation du gaz de synthèse, de la même manière que le gaz résiduel. De préférence, l'installation est construite de façon à ménager une marge de sécurité pour le gaz combustible en excès à recycler, même lorsque la demande en gaz combustible est la plus forte. Le fonctionnement dans ces conditions ne donne lieu à aucune perte de rendement, étant donné que le gaz recyclé peut servir à fournir la chaleur nécessaire à l'opération. L'opération peut donc être effectuée pendant l'été, de façon à produire des quantités minima de gaz combustible et une quantité maximum de combustible liquide. Au contraire, pendant l'hiver, lorsque la demande en gaz augmente et que la demande en essence diminue, on peut donc augmenter la quantité de gaz recueillie, avec une diminution simultanée de la production

du combustible liquide, et sans modifier les conditions de fonctionnement les plus avantageuses de l'installation pendant toute l'année.

Les exemples suivants donnent une explication plus complète de l'invention.

Exemple 1. — On suppose qu'on dispose d'une installation ayant une capacité de production de gaz de synthèse de 2.832.000 mc. par jour de CO + H². On désire fournir pendant l'hiver aux consommateurs 1.047.840 mc. par jour de gaz fabriqué, d'un pouvoir calorifique de 4.800 calories par m³ et d'un poids spécifique de 0,6. En faisant fonctionner l'installation à une température de 289 à 303 C. avec un catalyseur d'âge moyen, on transforme 80 % de CO + H² en hydrocarbures gazeux et liquides et en hydrocarbures légèrement oxygénés. On débarrasse le gaz résiduel, provenant de l'opération et contenant les 20 % de CO + H² non transformés, d'environ 288.200 mc. par jour de CO², en obtenant ainsi un gaz combustible satisfaisant aux conditions spécifiées ci-dessus et ayant une composition de 25 % CO, 31 % H², 15 % N², 20 % CH⁴ et 9 % de gaz d'hydrocarbures supérieurs. Aucune portion du gaz n'est retournée dans l'installation de préparation du gaz de synthèse. On recueille également 381 mc. par jour de produits liquides ou liquéfiables dont la totalité peut être facilement transformée en essence à indice d'octane élevé et 39 mc. par jour d'alcools, etc. La consommation totale de charbon de l'installation est de 1.800 tonnes par jour.

Exemple 2. — L'installation de l'exemple 1 est supposée devoir fournir pendant l'été aux consommateurs 425.000 mc. par jour de gaz fabriqué. On élève la température de fonctionnement de la réaction de synthèse à 317° C. et on active la vitesse de remplacement du catalyseur jusqu'à ce que l'âge moyen du catalyseur en service soit nettement inférieur à celui de l'exemple 1. On transforme 95 % de CO + H² en hydrocarbures gazeux en hydrocarbures liquides et en composés oxygénés. On recueille 604 mc. par jour d'hydrocarbures liquides ou liquéfiables et 63,6 mc. par jour d'alcools, etc., semblables à la production de liquide

de l'exemple 1. On dispose de 3.280 millions de calories par jour de gaz résiduel, mais 2.050 millions de calories seulement sont nécessaires pour alimenter les consommateurs, après avoir traité le gaz pour le rendre conforme aux spécifications. On fait donc retourner une quantité de gaz résiduel équivalente à 1.230 millions de calories dans l'installation de production du gaz de synthèse et la consommation totale de charbon de l'installation est réduite à 1.600 tonnes par jour.

L'invention ne doit pas être considérée comme limitée aux formes de réalisation représentées et décrites, qui n'ont été choisies qu'à titre d'exemple.

RÉSUMÉ.

20 Procédé de transformation de matières carbonées non volatiles en produits combustibles volatils avantageux, caractérisé par les points suivants, séparément ou en combinaisons :

25 1° On fait subir à ces matières carbonées un traitement thermique consistant en une réaction de gazéification avec la vapeur, de façon à obtenir CO et H², on fait subir au CO et H² un traitement catalytique pour
30 obtenir des hydrocarbures normalement liquides et un gaz combustible, on recueille les hydrocarbures liquides et on recycle au moins une portion du gaz combustible dans le traitement thermique précité ;

35 2° Une portion au moins de la chaleur nécessaire au traitement thermique est fournie par la combustion de la portion recyclée du gaz combustible ;

40 3° Une portion du gaz combustible est recyclée dans la réaction de gazéification ;

45 4° La proportion des gaz combustibles recyclés dans le traitement thermique augmente lorsque la demande en combustibles diminue et diminue lorsque cette demande augmente ;

50 5° Le traitement thermique comporte en outre une opération de carbonisation, de laquelle on recueille des combustibles liquides et du gaz combustible, on transforme catalytiquement CO et H² en hydrocarbures liquides et en gaz résiduel, on recueille une notable portion du gaz combustible résiduel

et on recycle une portion de ce gaz dans le traitement thermique ;

6° Les éléments aromatiques des combustibles liquides à points d'ébullition compris dans l'intervalle de ceux du combustible pour moteurs sont alkylés avec les éléments non saturés des hydrocarbures liquides ;

7° Les matières carbonées non volatiles sous forme de masse fluidifiée, dense, bouillonnante de particules solides subissent le traitement thermique qui comporte, en outre, une réaction de combustion avec un gaz oxydant pour fournir la chaleur nécessaire à la réaction de gazéification ;

8° Les réactions de combustion et de gazéification s'effectuent dans des zones séparées, la chaleur produite dans la zone de combustion est transmise dans la zone de gazéification et le gaz combustible résiduel est recyclé et brûlé dans la zone de combustion ;

9° La zone de gazéification fonctionne dans des conditions provoquant la transformation des hydrocarbures en CO et H² ;

10° Elle fonctionne dans des conditions dans lesquelles les éléments d'hydrocarbures gazeux du gaz combustible résiduel ne subissent aucune influence ;

11° On fait circuler la matière carbonée solide fluidifiée dans la zone de combustion, on fait circuler le résidu solide fluidifié de la combustion dans la zone de gazéification sensiblement à la température de la zone de combustion et on recycle une portion du gaz combustible résiduel dans au moins une de ces zones ;

12° Le traitement thermique comporte une zone de carbonisation et la chaleur nécessaire à la carbonisation est fournie sous forme de chaleur de combustion ;

13° Le gaz combustible résiduel recyclé dans la zone de combustion y subit une combustion ;

14° Les gaz d'hydrocarbures contenus dans le gaz combustible résiduel recyclé dans la zone de gazéification y sont transformés au moins partiellement en CO et H² ;

15° Les conditions de la transformation catalytique sont réglées de façon à fournir des rendements maxima en produits liquides au moment où la demande en combustible pour moteurs est relativement forte et des

rendement maxima en combustibles gazeux - 16° La transformation de CO et H² est
au moment où cette demande en combus- maintenance inférieure à 95 %. 5
tible pour moteurs est faible ;

Société dite : STANDARD OIL DEVELOPMENT COMPANY.

Par procuration :

SIMONNOT, RIBET, BLENDEL et POYR.

