

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE ET DU COMMERCE.

SERVICE DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 4.



N° 953.555

Perfectionnements apportés à un procédé de synthèse des hydrocarbures.

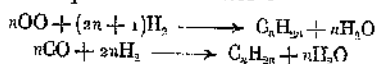
Société dite : STANDARD OIL COMPANY résidant aux États-Unis d'Amérique.

Demandé le 26 septembre 1947, à 16^h 23^m, à Paris.

Délivré le 23 mai 1949. — Publié le 8 décembre 1949.

(Demande de brevet déposée aux États-Unis d'Amérique le 24 avril 1941, au nom de M. Robert C. GUNNESS. — Déclaration du déposant.)

La présente invention a pour objet un procédé et un dispositif perfectionnés permettant de faire la synthèse des hydrocarbures à partir d'oxyde de carbone et d'hydrogène conformément aux équations suivantes :



Le procédé visé par la présente invention permet d'obtenir des produits de synthèse par réaction d'oxyde de carbone et d'hydrogène en mettant un mélange de gaz comprenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène au contact d'un catalyseur de synthèse dans des conditions de synthèse; il consiste à utiliser le catalyseur de synthèse sous forme finement divisée, à le maintenir dans un état quasi-liquide sous forme d'une phase dense en suspension dans la zone de synthèse grâce à l'introduction du mélange d'hydrogène et d'oxyde de carbone dans le bas de ladite zone et au passage des gaz qui y montent lentement, à séparer du catalyseur en suspension les gaz qui n'ont pas réagi et les produits de la réaction et enfin à retirer les gaz qui n'ont pas réagi et les produits légers normalement gazeux des produits plus lourds provenant de la réaction.

Jusqu'ici un des problèmes les plus importants qui se soient posés pour la mise en œuvre de cette synthèse a été celui de l'élimination de la

chaleur et du réglage de la température. La synthèse étant catalytique, il était nécessaire que chaque particule du catalyseur fût à proximité immédiate de la surface le long de laquelle se faisait l'échange de chaleur, c'est-à-dire au plus à quelques millimètres de celle-ci. Les réacteurs de synthèse anciens étaient donc extrêmement compliqués et coûteux et il était très difficile d'avoir accès à la partie intérieure d'un réacteur de synthèse quand on avait à le réparer ou à remplacer le catalyseur. L'un des objets de la présente invention est un dispositif qui permet de supprimer complètement les surfaces d'échange de chaleur de la zone de synthèse et grâce auquel la chaleur développée par la synthèse peut être absorbée dans une zone séparée. Un autre objet est un dispositif permettant de régler la température de synthèse et de la maintenir à l'intérieur de limites très étroites. L'invention a encore pour objet un réacteur de synthèse simple et relativement peu coûteux, qui fonctionne avec un meilleur rendement que les réacteurs compliqués et coûteux employés jusqu'ici.

Le catalyseur employé pour effectuer la synthèse coûte cher; il est donc nécessaire de réduire au minimum les pertes de catalyseur. L'un des objets de la présente invention est un procédé et un dispositif perfectionnés permet-

tant d'empêcher que du catalyseur, placé dans les réacteurs de synthèse, ne se perde.

La synthèse était effectuée jusqu'ici sur des couches fixes de catalyseur, en sorte que le catalyseur s'usait plus vite à un endroit de la couche qu'en un autre. Le mélange d'hydrogène et d'oxyde de carbone était rapidement transformé à l'endroit où commençait la couche de catalyseur, mais, plus loin, la réaction était nettement ralentie à cause de la présence des produits de la réaction dont quelques-uns diluaient le mélange d'hydrogène et d'oxyde de carbone, et dont d'autres recouvraient le catalyseur et le rendaient moins efficace. Un objet de la présente invention est une installation dans laquelle le mélange d'hydrogène et d'oxyde de carbone qui entre dans le réacteur est toujours au contact d'un catalyseur débarrassé des produits de la réaction, dans laquelle l'activité du catalyseur est sensiblement uniforme tout au long de la zone de réaction et dans laquelle on peut régler le degré et le genre de transformation d'une façon plus précise qu'avec toute autre installation antérieure. L'invention a aussi pour objet un dispositif permettant un fonctionnement souple, tel qu'on puisse l'employer sous pression atmosphérique ou sous des pressions supérieures et que l'on puisse produire à volonté en très grande majorité des hydrocarbures à points d'ébullition compris, soit dans la gamme des essences, soit dans celle des huiles de graissage, soit dans toute autre gamme désirée.

Un autre objet de la présente invention est un dispositif amélioré permettant de transformer des hydrocarbures gazeux, tels que ceux du gaz naturel, en hydrocarbures normalement liquides ou normalement solides et d'utiliser dans le dispositif lui-même le méthane et l'éthane qui y sont produits. L'invention a aussi pour objet d'améliorer le rendement de l'installation et de diminuer les frais du traitement destiné à produire un mélange d'hydrogène et d'oxyde de carbone, dans la proportion de deux à un, à partir d'hydrocarbures normalement gazeux, et particulièrement de méthane et d'éthane. L'invention a encore pour objet un procédé et un dispositif perfectionnés permettant de purger l'installation de l'azote qui peut s'y trouver.

Un autre objet de la présente invention est d'empêcher que des gouttes d'huiles visqueuses ne se séparent de la zone de réaction, ou de réduire au minimum cette séparation et de four-

nir un procédé et un dispositif perfectionnés permettant de dégager du catalyseur, à intervalles très rapprochés, les produits de la réaction, ce qui diminue ou supprime par là même la tendance qu'ont les produits de la réaction à s'accumuler dans la masse du catalyseur. D'autres objets de l'invention seront mis en évidence au fur et à mesure qu'on procédera à sa description détaillée.

Pour la mise en œuvre de la présente invention, on peut employer des hydrocarbures normalement gazeux d'origine quelconque, mais on préfère employer le gaz naturel qui se compose principalement de méthane, car il est extrêmement difficile de transformer ce gaz particulier en hydrocarbures à poids moléculaire élevé par tout autre procédé. On débarrasse d'abord le gaz naturel de l'hydrogène sulfuré et des composés organiques contenant du soufre en le lessivant avec un solvant convenable tel que la monoéthanolamine, la triéthanolamine ou des produits analogues, puis, si nécessaire, avec une forte solution caustique. On mélange alors le gaz désulfuré avec du gaz carbonique et de la vapeur d'eau en proportions convenables pour donner un mélange gazeux ayant une proportion atomique, hydrogène-carbone-oxygène, d'environ 4 : 1 : 1. On met alors ce mélange en contact avec un catalyseur de réformation, de préférence un oxyde d'un métal du VIII^e groupe, soit sans support, soit avec un support argileux, Kielsegnbr, gel de silice, alumine, etc. Ce catalyseur peut être, par exemple, un mélange des oxydes de nickel, de fer et de manganèse, dans des proportions de 1 : 1 : 0,5. L'oxyde de nickel ou d'un autre métal du VIII^e groupe qui sert de catalyseur, peut être accompagné d'un « promoteur » choisi parmi les oxydes d'aluminium, de magnésium, de calcium, d'uranium, de chrome, de molybdène, de vanadium, etc.

La vitesse volumétrique au passage à travers le catalyseur qui sert à la réformation du gaz doit être suffisante pour permettre une durée de contact d'environ 2 à 60 secondes et, de préférence, d'environ 10 à 30 secondes. On opère, de préférence, à une température comprise entre 760° C et 899° C et sous une pression qui peut aller de la pression atmosphérique jusqu'à environ 10,5 kg/cm² ou davantage. Cette opération de réformation transforme le mélange méthane-gaz carbonique et vapeur d'eau en un gaz contenant surtout de l'hydrogène et de l'oxyde de

carbone dans des proportions de 2 : 1. On appellera, par la suite, ce mélange de gaz, gaz «à traiter» ou gaz «de syn hèse».

On doit fournir une quantité de chaleur considérable pour la réformation du gaz. On produit de préférence cette chaleur en brûlant une partie du gaz désulfuré mélangé avec une partie du gaz recyclé provenant de l'installation. On peut utiliser une proportion très importante de la chaleur contenue dans le gaz de carneau provenant du brûleur qui est utilisé pour la réformation du gaz pour préchauffer l'air qui doit être envoyé au brûleur. On sépare ensuite l'eau du gaz de carneau refroidi et on lave ce gaz avec un solvant convenable, tel que la monné hanolamine, pour en retirer par absorption le gaz carbonique. L'azote non dissous est dégagé de l'installation. Le gaz carbonique est récupéré et employé avec le gaz désulfuré et la vapeur d'eau pour la production de gaz «à traiter» ou gaz de syn hèse, comme il a été expliqué plus haut.

Le réacteur de syn hèse visé par l'invention est, de préférence, une tour verticale qui ne contient aucune surface d'échange de chaleur.

Le catalyseur est mis en suspension dans cette tour par le gaz «à traiter» qui y passe de bas en haut. En réglant convenablement la vitesse de montée du gaz à traiter et la quantité de catalyseur pulvérisé que l'on introduit dans la tour, on peut régler la quantité de catalyseur contenue dans la tour et le temps de séjour du gaz de syn hèse dans la tour, ce qui permet d'obtenir le contact d'une quantité donnée de gaz de syn hèse avec une quantité quelconque de catalyseur choisie à volonté, pendant tout le temps désiré.

Avec une densité volumétrique du catalyseur d'environ 162 à 648 kilogrammes par mètre cube, et avec des dimensions de particule uniformément faibles, la vitesse de montée du gaz à traiter est ordinairement comprise entre 3 centimètres et 3 mètres par seconde environ, dans la plupart des cas, entre 15 et 46 centimètres par seconde environ, mais cela dépend, bien entendu, de la densité, des dimensions des particules et des caractéristiques du catalyseur particulier qu'on emploie, aussi bien que des conditions dans lesquelles on désire que se fassent la transformation et la réaction, conditions telles que la température, la pression, etc. La densité volumétrique du catalyseur dans le réacteur est ordinairement inférieure d'au

moins 32 à 162 kilogrammes par mètre cube à celle du catalyseur déposé, mais la densité volumétrique du catalyseur dans le réacteur doit être suffisamment grande pour que le mélange de catalyseur en suspension se comporte comme un liquide et présente une turbulence telle qu'il y ait mélange intime et uniforme du catalyseur dans toute la zone de réaction. La vitesse du gaz doit être suffisamment faible pour qu'elle produise et maintienne une phase opaque et dense de catalyseur en suspension. Elle doit être suffisamment élevée pour empêcher le catalyseur de se déposer en se séparant des gaz et de se prendre en masse ainsi que pour transporter d'une façon continue une fraction appréciable du catalyseur jusqu'à une zone située en haut de la tour où il se dépose de façon qu'on puisse le refroidir et le recycler pour régler la température.

La température à laquelle se fait la syn hèse est ordinairement comprise entre 107° et 218° C environ, les températures les plus basses favorisant la formation des hydrocarbures les plus lourds tels que ceux qui constituent la paraffine, et les températures les plus élevées favorisant la production d'hydrocarbures plus légers tels que ceux qui sont gazeux. Avec les catalyseurs ordinaires, la syn hèse doit être effectuée à une température comprise entre des limites relativement rapprochées, allant de 163° C à 202° C environ. On obtient à ces températures le maximum de rendement en hydrocarbures liquides, avec un minimum de production d'hydrocarbures plus légers et plus lourds.

On règle la température en refroidissant, soit le catalyseur, soit les gaz qui passent dans la tour, soit tous les deux à la fois, dans une zone ou dans des zones situées en dehors de la zone de syn hèse. Jusqu'ici on a toujours considéré comme essentiel que les gaz, à leur arrivée dans la tour, fussent à la température de syn hèse et que les surfaces d'échange de chaleur fussent placées au plus à quelques millimètres de chacune des particules de catalyseur qui se trouvent dans le réacteur de syn hèse. On a découvert que si l'on maintient en état de turbulence dans le réacteur, comme on l'a déjà dit, les particules du catalyseur qui se trouvent en suspension dans le gaz, la température est sensiblement uniforme dans toutes les parties du réacteur. Aussi, au lieu d'employer la chaleur de syn hèse pour faire bouillir de l'eau dans la zone de syn hèse,

comme dans les procédés antérieurs, on emploie la chaleur de synthèse pour amener à la température de réaction les gaz à traiter et le catalyseur qui pénètre dans la tour.

5 Étant donné que la température de réaction est atteinte à peu près instantanément, on maintient la température de réaction à l'intérieur de limites plus étroites qu'il n'était possible de le faire dans les réacteurs volumineux à échange
10 de chaleur employés jusqu'ici. En d'autres termes, le catalyseur relativement froid que l'on introduit d'une façon continue dans le réacteur est dispersé instantanément dans tout le réacteur et chaque particule de ce catalyseur est en contact
15 intime avec des particules de catalyseur de la surface desquelles il se dégage de la chaleur. Comme chaque particule de catalyseur est entourée d'une enveloppe gazeuse et est en contact intime avec d'autres particules de catalyseur, il
20 n'est pas possible qu'il se forme des endroits chauds ou surchauffés. Une caractéristique importante de la présente invention est constituée par ce dispositif qui permet de régler d'une façon remarquablement pratique et efficace la
25 température de l'intérieur du réacteur de synthèse.

L'invention est aussi caractérisée par un procédé et un dispositif permettant de séparer complètement le catalyseur des gaz et des vapeurs
30 et de recycler ce catalyseur en le ramenant dans le réacteur de synthèse après l'avoir fait passer dans des réfrigérants appropriés. Il existe au-dessus du réacteur une zone de plus grande section servant au dépôt et, dans cette
35 zone de dépôt on peut placer plusieurs séparateurs centrifuges. Le catalyseur déposé est intimement mêlé au catalyseur séparé par centrifugation et ce mélange de catalyseur est épuré au moyen de gaz chaud avant d'être refroidi
40 pour être réintroduit dans la zone de synthèse afin d'empêcher l'accumulation sur les particules de catalyseur de produits lourds de la réaction tels que des huiles ou des paraffines. Ainsi, au lieu de placer dès le début comme dans les
45 techniques antérieures, le gaz nouveau à traiter au contact d'un catalyseur mouillé par les produits de réaction, le traitement prévu par l'invention met le gaz nouveau à traiter au contact d'un catalyseur débarrassé des produits de la
50 réaction.

On refroidit les produits de la réaction pour en retirer l'eau et l'on peut récupérer avec l'eau

condensée toutes les traces de catalyseur qui n'ont pas été enlevées par les séparateurs du type « cyclone » (ou par les séparateurs électro-
55 statiques si on en utilise) pour les remettre en état et s'en servir pour la préparation de catalyseur frais. On peut obtenir aussi la vapeur d'eau servant à l'épuration en évaporant par détente la boue formée par le catalyseur mêlée
60 d'eau de façon que la vapeur d'eau servant à l'épuration ramène ce catalyseur dans la masse de catalyseur qui est recyclée et passe à travers le réfrigérant avant de retourner au réacteur. On peut utiliser également du gaz carbonique
65 comme gaz d'épuration, puis l'envoyer avec le méthane, ou d'autres hydrocarbures recyclés, à l'appareil où s'opère la reformation du gaz en vue de la préparation du gaz de synthèse.

On peut fractionner les produits de la réaction de n'importe quelle manière classique, mais on
70 préfère employer un dispositif d'absorption pour séparer les hydrocarbures en C_2 et en C_4 des gaz à traiter qui n'ont pas réagi, du méthane, de l'éthane et de l'éthylène. Les hydrocarbures
75 en C_2 et en C_4 sont riches en oléfines et peuvent être transformés par polymérisation, alkylation, «reversion» gazeuse ou tout autre procédé connu, en essence de qualité supérieure ou en huiles plus lourdes. Le courant de gaz à traiter
80 ainsi séparé, qui contient une proportion considérable de méthane, d'éthane et d'éthylène est ordinairement divisé en deux, une partie étant envoyée à l'appareil de réformation du gaz et l'autre au brûleur de l'appareil de réformation,
85 cette dernière partie étant suffisamment importante pour maintenir l'installation pratiquement sans azote.

On comprendra mieux la présente invention par la description détaillée qui va suivre et
90 en se reportant au dessin annexé sur lequel :

La fig. 1 est un schéma de principe de toute l'installation visée par l'invention;

La fig. 2 est une vue de détail en coupe représentant les éléments qui composent la partie
95 inférieure du réacteur de la fig. 1;

La fig. 3 est une coupe verticale de la partie inférieure d'un réacteur analogue au réacteur de la fig. 1, mais présentant certains avantages
100 supplémentaires;

La fig. 4 est une coupe verticale d'un réacteur et d'un dispositif de refroidissement et de recyclage du catalyseur présentant des variantes de réalisation.

Comme réalisation particulière de la présente invention on va décrire une installation permettant de traiter environ 1.132.000 mètres cubes par jour de gaz naturel essentiellement composé de méthane. Les personnes compétentes se rendront compte, en lisant la description qui va suivre, de la façon dont on peut appliquer l'invention au traitement d'autres matières premières et à des installations plus ou moins importantes.

La matière première provenant du tuyau est d'abord désulfurée dans une installation classique quelconque. Quand le gaz ne contient pas de composés organiques sulfurés, cette désulfuration peut être effectuée par un procédé Girdler classique où le gaz est lessivé avec de la monoéthanolamine ou de la triéthanolamine. On peut aussi enlever l'hydrogène sulfuré par le procédé Koppers ou par le traitement dit « au phosphate » traitement dans lequel le gaz est lessivé à contre-courant dans une tour étanche au moyen d'une solution de phosphate de potassium à deux molécules. S'il y a du soufre organique, il peut être nécessaire de compléter le traitement d'extraction par un lavage à la soude caustique concentrée. La teneur en hydrogène sulfuré doit être réduite jusqu'à au moins 2,3 mgr. par mètre cube environ et cette désulfuration peut être effectuée par n'importe quel moyen connu. L'opération de désulfuration ne fait pas partie par elle-même de la présente invention et ne sera pas décrite d'une façon plus détaillée.

Le courant de gaz désulfuré qui provient de l'installation de traitement est divisé en deux; 311.465 mètres cubes par jour environ sont amenés par les canalisations 12 et 13 au brûleur qui sert à chauffer les chambres ou serpentins 14 où se fait la réformation du gaz, et les 821.135 mètres cubes par jour restant sont employés dans les canalisations 15 et 16. Pour qu'ils passent dans les chambres ou serpentins 14 de l'installation de réformation en même temps que la vapeur d'eau introduite dans la canalisation 17; le gaz carbonique introduit par la canalisation 18 et le gaz recyclé introduit par la canalisation 19. La charge journalière que l'on peut faire passer par les serpentins de réformation peut avoir sensiblement la composition suivante :

Méthane (venant de la canalisation 15), 821.135 mètres cubes par jour;

Gaz carbonique, 254.835 mètres cubes par jour;

Vapeur d'eau, 707.875 mètres cubes par jour; 55

Gaz recyclé, 1.132.600 mètres cubes par jour.

On fait passer ce mélange de gaz dans une chambre ou un serpentin de catalyse 14 sous une pression qui peut aller de la pression atmosphérique à une pression de 10,5 kg/cm² environ ou davantage, 1,05 kg/cm² par exemple, et à une température comprise entre 760° et 900° environ, 815° à 843° C environ par exemple, avec une vitesse volumétrique telle que la durée de contact soit comprise entre 2 et 60 secondes environ, 10 à 30 secondes environ par exemple. Comme il a été indiqué plus haut, le catalyseur utilisé pour cette opération de transformation peut être constitué par un ou plusieurs oxydes des métaux du VIII^e groupe, par exemple l'oxyde de nickel ou l'oxyde de fer ou un mélange d'oxyde de nickel et d'oxyde de fer. On peut utiliser comme promoteur du catalyseur d'autres oxydes métalliques, tels que les oxydes d'aluminium, de magnésium, de manganèse, de calcium, d'uranium, de chrome, de molybdène, de vanadium etc., et on peut lui donner un support convenable quelconque tel que l'argile, le Kieselguhr, un gel de silice, l'alumine, etc. Un catalyseur peut être constitué, par exemple, par un mélange des oxydes de nickel, de fer et de manganèse, où les métaux sont dans les proportions 1 : 1 : 0,5. L'invention ne concerne pas le catalyseur lui-même et, puisque ces catalyseurs sont bien connus dans la technique de la catalyse, une description plus détaillée n'est pas nécessaire.

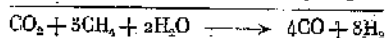
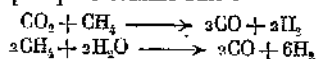
La chaleur nécessaire à l'opération de réformation du gaz dans ce cas particulier est d'environ 160 millions de calories par heure. Une proportion considérable de la chaleur provenant des gaz de combustion qui sortent du foyer de l'installation de réformation du gaz par la canalisation 20 peut être utilisée au préchauffage de l'air dans l'échangeur de chaleur 21, l'air étant introduit par la canalisation 22 pour alimenter la combustion qui se produit dans le foyer de l'installation de réformation du gaz. Les gaz de combustion qui ont été partiellement refroidis dans l'échangeur de chaleur 21 peuvent être refroidis davantage dans l'échangeur de chaleur 23 jusqu'à atteindre une température suffisamment basse pour permettre la condensation de l'eau que l'on peut séparer des

gaz de combustion refroidis dans le purgeur-séparateur 24 et extraire par le tuyau 25. On peut introduire le mélange de gaz restant par la canalisation 26 à la base de la tour d'absorption 27 où il est lessivé au moyen de monoéhanolamine froide ou de tout autre liquide de lessivage approprié introduit par la canalisation 28. L'azote n'est pas absorbé par le liquide de lessivage; on l'extrait du haut de la tour par la canalisation 29.

On pompe le liquide de lessivage enrichi contenant du gaz carbonique pour l'envoyer, par la canalisation 30 et l'échangeur de chaleur 31, dans le haut de la tour d'épuration 32 qui est munie, à sa base, d'un dispositif de chauffage 33. On extrait ce liquide de lessivage du bas de la tour par la canalisation 34 et on le pompe pour le renvoyer, par l'échangeur de chaleur 31 et le réfrigérant 35, dans le haut de la tour d'absorption 27.

On peut refroidir dans l'échangeur de chaleur 36 le gaz carbonique extrait du haut de la tour 32 et le faire passer par le purgeur 37 d'où l'on peut retirer toute l'eau condensée par la canalisation 38. Le gaz provenant du haut de l'appareil à chicanes 37 passe par le compresseur 39 pour venir dans la canalisation 18 où est préparée la charge de gaz à traiter destinée à l'insufflation de réformation du gaz.

Les équations de principe correspondant à l'opération de réformation du gaz peuvent être écrites à peu près comme suit :



Le gaz qui suit le cycle des opérations contient évidemment de l'éthane et de l'éthylène aussi bien que du méthane et du gaz à traiter qui n'a pas réagi, mais la réaction de ces hydrocarbures est analogue à celle qui a été indiquée ci-dessus. Les proportions de gaz carbonique et de vapeur d'eau doivent être, en tous cas, réglées de façon à donner un gaz à traiter ou gaz de synthèse contenant environ 2 parties d'hydrogène pour 1 partie d'oxyde de carbone.

On refroidit le gaz à traiter chaud dans un réfrigérant 40 jusqu'à une température voisine de la température ambiante ou plus basse et on le fait passer par le purgeur séparateur 41 d'où l'on peut retirer l'eau condensée, par la canalisation 42. On fait alors passer les gaz par le compresseur 43 et, de là, ils sont envoyés par la

canalisation 44 à la base du réacteur de synthèse 45. Dans l'exemple ici décrit, environ 3.680.950 mètres cubes par jour, soit environ 152.901 mètres cubes par heure, soit encore environ 2.548 mètres cubes par minute de gaz à traiter sont ainsi chargés dans le réacteur de synthèses.

Le catalyseur qui sert à l'opération de synthèse peut être du cobalt ou du nickel mélangé sur un support convenable tel que le Kieselguhr, le gel de silica, l'alumine, etc., avec un ou plusieurs oxydes « promoteurs » tels que les oxydes de magnésium, de thorium, de manganèse, d'aluminium, etc. Par exemple, environ une partie en poids de cobalt peut avoir pour support deux parties environ en poids de Kieselguhr et, comme promoteur une petite proportion d'oxyde de thorium ou d'oxyde de magnésium, ou d'un mélange d'oxydes de thorium et de magnésium. Un mélange d'oxydes de nickel et de cuivre convenablement calcinés donne un bon catalyseur de synthèse. On a trouvé que le ruthénium était aussi un excellent catalyseur de synthèse. Les catalyseurs qui conviennent à la réaction de synthèse sont bien connus en ce qui concerne leur nature même dans la technique de la catalyse et ils sont décrits dans de nombreux brevets et de nombreuses publications. Comme l'invention ne vise pas le catalyseur lui-même, il n'est pas nécessaire de décrire davantage sa composition.

Il faut noter que, conformément à la présente invention, le catalyseur doit être, de préférence, assez finement divisé et que les dimensions de ses particules doivent être bien uniformes. Par exemple, on peut employer des catalyseurs dont les particules ont des dimensions telles qu'elles passent dans des tamis de 39 à 156 mailles au centimètre carré environ, ou des dimensions plus petites, mais on doit comprendre que l'on peut utiliser des catalyseurs dont les particules ont de plus grandes dimensions, à condition que la vitesse du gaz, le tracé du réacteur, etc., soient modifiés en conséquence. La densité volumétrique du catalyseur déposé peut être d'environ 160 à 641 kilogrammes par mètre carré.

Le réacteur de synthèse peut consister en une ou plusieurs tours verticales dont le diamètre peut aller de 2,45 m. à 12,20 m. environ ou davantage et la hauteur de 6,10 m. à 15,25 m. environ ou davantage. On peut munir la base du réacteur d'une trémie conique inclinée ou

d'un fond 46 en forme d'entonnoir, ayant une pente d'environ 60 degrés ou davantage pour que le catalyseur n'ait pas tendance à s'échapper quand les gaz à traiter sont introduits par le bas de ce fond de réacteur en forme d'entonnoir. On peut aussi munir la base du réacteur d'un dispositif de distribution pour assurer une répartition uniforme des gaz à traiter dans toute la chambre du réacteur et pour empêcher le catalyseur de se séparer de la suspension. On peut placer un tamis 47 au-dessous de l'orifice d'introduction du gaz à traiter et un puisard au-dessous de ce tamis pour que les huiles paraffineuses qui s'y déposeraient puissent être évacuées par le tuyau 48. Quand on utilise le présent procédé pour la production d'hydrocarbures liquides relativement légers et que le catalyseur est réellement bien épuré, d'ordinaire cet ensemble de tamis, de puisard et de tuyau de vidange n'est pas nécessaire et l'on peut introduire directement les gaz à traiter dans le bas du réacteur.

Le sommet du réacteur peut également avoir la forme d'une cheminée, comme le montre le dessin, et il peut se terminer par un tuyau 49 vertical dont la partie haute pénètre dans une chambre de décantation 50 de plus grand diamètre. On peut monter une chicane 51 au-dessus du tuyau 49 pour dévier la trajectoire des particules de catalyseur en suspension et répartir uniformément les produits et le catalyseur dans la partie destinée à la décantation ou séparation.

On peut monter plusieurs séparateurs centrifuges à la partie supérieure de la chambre de décantation. Par exemple, un ou plusieurs séparateurs «cyclone» primaires 52 peuvent recueillir, par l'orifice d'introduction 53, les gaz et vapeurs dont la plus grande partie du catalyseur s'est séparée par décantation. On peut renvoyer ce qui restait du catalyseur, après l'avoir extrait des gaz et vapeurs dans le séparateur centrifuge primaire, en un point situé bien au-dessous de la surface du catalyseur séparé, au moyen du tuyau plongeur 54, le poids de catalyseur séparé qui se trouve dans le tuyau plongeur équilibrant la différence de pression entre l'intérieur de la chambre de décantation et l'intérieur du séparateur «cyclone» primaire.

On peut amener, par la canalisation 55, les gaz et vapeurs venant du séparateur primaire

dans un ou plusieurs séparateurs «cyclone» secondaires 56 munis de tuyaux plongeurs 57. Là aussi la couche de catalyseur qui se trouve dans le tuyau plongeur équilibre la différence de pression entre l'intérieur de la chambre de décantation et l'intérieur du séparateur «cyclone». On peut munir chaque tuyau plongeur d'une vanne manœuvrable de l'extérieur et de prises de vapeur disposées au-dessus et au-dessous de la vanne afin que, si l'un quelconque des tuyaux plongeurs s'obstrue, on puisse enlever la matière qui l'obstrue en fermant la vanne et en faisant une chasse à la vapeur des deux côtés de la vanne. On peut utiliser un nombre quelconque d'étages de séparateurs «cyclone» et, s'il est nécessaire ou si on le désire, on peut utiliser un séparateur électrostatique, par exemple un Cottrell, pour récupérer les particules très fines du catalyseur.

Le catalyseur récupéré se dépose dans l'espace annulaire situé entre le tuyau 49 et les parois de la chambre 50, cet espace servant de trémie pour le catalyseur récupéré et de réservoir de stockage dans lequel on peut charger le catalyseur frais au début d'une opération, ou en introduire de temps en temps au cours de l'opération pour compenser les pertes de catalyseur. On maintient le catalyseur séparé qui se trouve dans cette trémie supérieure dans un état aéré fluide en introduisant dans la trémie, par des tuyaux 58, un gaz épureur chaud, tel que de la vapeur d'eau, des hydrocarbures gazeux ou du gaz carbonique. On peut répartir un certain nombre de ces tuyaux autour du bas de la trémie, ou bien on peut placer une canalisation annulaire perforée 59 à la base de la trémie et l'alimenter en gaz d'épuration par la canalisation 58. Le gaz d'épuration sert non seulement à maintenir le catalyseur dans un état mouvant ou quasi-liquide, mais il remplit encore un rôle très important en retirant les produits de la réaction du catalyseur décanté, empêchant ainsi qu'il ne se produise sur le catalyseur une accumulation d'hydrocarbures liquides qui pourrait diminuer l'activité du catalyseur ou gêner sa formation, dans le réacteur, en une suspension convenable.

Le catalyseur s'écoule du bas de la trémie supérieure dans un certain nombre de tubes réfrigérants 60, entourés par des enveloppes, qui contiennent un fluide d'échange de chaleur de l'eau par exemple. Ces tubes amènent le catalyseur à la partie inférieure du réacteur.

On peut réaliser de diverses façons l'installation de réfrigération. On peut faire sortir le catalyseur de la trémie par une ou plusieurs grandes canalisations, lui faire traverser les tubes d'un échangeur de chaleur tubulaire, puis le renvoyer dans la chambre du réacteur. On peut simplement entourer les tubes d'enveloppes d'eau de réfrigération comme le représente la fig. 2. On peut placer autour du réacteur de synthèse une chambre annulaire contenant un grand nombre de tubes verticaux et on peut faire passer par ces tubes le catalyseur provenant de la trémie pour l'amener dans le bas du réacteur tout en faisant circuler un fluide réfrigérant autour des tubes qui se trouvent dans la chambre annulaire, comme le représente la fig. 3. Quant à l'appareil de réfrigération du catalyseur lui-même, on préfère, si on utilise un échangeur de chaleur tubulaire, que le catalyseur passe à l'intérieur des tubes et que les extrémités de ceux-ci soient dessinées et profilées d'une façon qui permette une répartition uniforme du catalyseur et évite les points morts.

Les dispositions représentées schématiquement sur les fig. 1, 2 et 3, offrent l'avantage d'un effet de syphonage par gravité, car le catalyseur qui se trouve dans le réacteur de synthèse a une densité inférieure d'environ 32 à 160 kilogrammes par mètre cube à celle du catalyseur aéré qui se trouve dans les tubes 60. Ce catalyseur plus dense s'écoule vers le bas sans qu'il soit nécessaire d'employer des gaz d'injection ou des appareils d'injection mécaniques.

Avec le dispositif de renvoi du catalyseur représenté sur les fig. 1 et 2, il peut être avantageux de disperser le catalyseur ainsi envoyé dans le courant gazeux ascendant et il peut être aussi avantageux de maintenir une légère aération du catalyseur dans le tube réfrigérant, afin de lui conserver ses qualités de mobilité. Dans ce but, on peut utiliser une pièce obturatrice 61, de préférence conique, et portée par une tige ou arbre creux 62 qui traverse la paroi du réacteur pour aboutir au dispositif extérieur de manœuvre 63. On peut introduire de l'hydrogène, du méthane, de la vapeur d'eau ou un autre gaz inerte par la canalisation 64 dans l'arbre creux et le faire passer par les orifices 65 inclinés latéralement ménagés à l'intérieur de la pièce obturatrice 61. On peut aussi laisser sortir une fraction ou la totalité de ce gaz de la partie cen-

trale de l'obturateur par l'orifice 66 pour fournir du gaz d'aération au tuyau 60. L'obturateur 61 a, de préférence, une forme conique de façon à dévier le catalyseur qui revient et à le répartir au milieu des gaz ascendants introduits par la canalisation 44. La répartition du catalyseur au milieu de ces gaz est aidée par les gaz qui sortent des orifices latéraux 65.

Sur la fig. 3 on a représenté une variante dans laquelle le réacteur de synthèse est entouré d'une chambre annulaire contenant un grand nombre de tubes verticaux. Dans cette variante la paroi extérieure de la chambre annulaire peut être élargie de façon qu'elle entoure complètement le bas du réacteur. Par exemple, le fond conique 46a peut être utilisé comme réservoir servant à introduire le catalyseur aéré dans le réacteur par l'extrémité non fermée du fond de forme conique du réacteur. Dans ce cas le tamis 47 peut être monté dans le bas du fond conique 46a et on peut introduire un gaz d'aération par le tuyau 64a pour maintenir le catalyseur sous forme aérée et mouvante, non seulement dans la chambre inférieure 46a, mais aussi dans les tubes réfrigérants 60. Le fluide d'aération peut être introduit en des points répartis autour du fond 46a ainsi qu'en des points espacés dans le sens vertical pour éviter tout dépôt du catalyseur en 46a et assurer l'aération voulue à l'intérieur des tubes 60. Étant donné que le catalyseur qui se trouve dans le réservoir en 46a est sous une forme mouvante ou quasi-liquide, il s'élève et pénètre dans le bas du réacteur où il est saisi par le gaz de synthèse introduit par la canalisation 44 et mis par lui en suspension sous forme de phase dense à l'intérieur du réacteur. La vitesse de passage dans le réacteur de synthèse peut être réglée par une vanne à diaphragme à iris 61a manœuvrée par la tige 62a qui traverse la paroi 46a pour aboutir au dispositif extérieur de manœuvre 63a. On doit comprendre, bien entendu, qu'au lieu d'une vanne à diaphragme à iris on peut utiliser une simple vanne coulissante à ouvertures opposées en forme de V, ou tout autre genre de vanne permettant de régler la vitesse de passage du catalyseur mouvant dans le réacteur.

La présente invention n'est pas limitée au renvoi par gravité du catalyseur refroidi et, sur la fig. 4, on a représenté une installation dans laquelle le catalyseur est refroidi à l'extérieur, puis renvoyé au réacteur au moyen

d'un gaz constituant agent de suspension.

Dans ce cas on peut faire passer le catalyseur de la trémie de la zone de décantation 50 à grand diamètre dans un réfrigérant convenable schématiquement représenté par le tube d'équilibre de pression 67 qu'entoure l'enveloppe réfrigérante 68. Le tube 67 peut être muni, à sa base, d'une vanne à coulisse ou d'un distributeur en étoile convenables 69. Le catalyseur qui se trouve dans ce tube d'équilibre peut être aéré au moyen d'un gaz inerte introduit par la canalisation 70. Le catalyseur refroidi, qui sort du bas de ce tube et passe par la vanne 69, est entraîné par les gaz à traiter provenant de la canalisation 44 et dispersé avec eux directement dans le bas 46 du réacteur 45.

Au lieu d'injecter le catalyseur refroidi avec les gaz à traiter qui arrivent au réacteur, on peut recycler le catalyseur qui vient de la trémie supérieure en le faisant passer par un tuyau 71 qui l'amène à un échangeur de chaleur 72 et, de là, à un tube d'équilibre de pression 73 que l'on peut aérer au moyen du gaz qu'on introduit par la canalisation 74. Le catalyseur qui sort du bas de ce tube d'équilibre peut être entraîné par un gaz inerte provenant de la canalisation 75 et emmené par lui dans la canalisation 76, d'où il pénètre dans le réacteur en des points espacés dans le sens vertical par un ou plusieurs des conduits 77. Ce sont là seulement quelques exemples des nombreuses variantes d'installation permettant la réfrigération du catalyseur dans une zone extérieure et le renvoi du catalyseur refroidi pour réglage de la température dans le réacteur de synthèse.

Avec un catalyseur ordinaire ayant une densité volumétrique (à l'état déposé) de 160 à 640 kilogrammes par mètre carré environ et des dimensions de particules correspondant à des tamis de 39 à 156 mailles au centimètre carré environ, la vitesse verticale de la vapeur dans le réacteur peut être comprise entre 3 centimètres et 3 mètres par seconde environ, sa valeur ordinaire étant de 15 centimètres à 46 centimètres par seconde. Le gaz d'aération qui passe dans le tube vertical doit avoir une vitesse verticale beaucoup plus faible, par exemple 1,5 mm. à 30 millimètres ou davantage par seconde.

La quantité réelle de catalyseur qui se trouve dans le réacteur à un moment donné dépend de l'activité du catalyseur particulier utilisé et du genre particulier de transformation que l'on

veut obtenir. Si on utilise, comme catalyseur, du cobalt supporté par du Kieselguhr avec comme promoteur de l'oxyde de thorium, et si l'installation a l'importance de celle qu'on décrit ici, il peut être nécessaire d'introduire dans le réacteur jusqu'à 850 mètres cubes de catalyseur, c'est-à-dire environ 150 à 200 tonnes de catalyseur. Si on utilise un réacteur unique, il doit avoir jusqu'à 18 mètres de haut et 7,5 à 9 mètres de diamètre environ. On peut, cependant, utiliser un certain nombre de réacteurs plus petits montés en parallèle, car il peut être avantageux d'utiliser des réacteurs ayant environ 4,57 à 6,10 m. de diamètre et 9,15 à 15,25 m. de hauteur. La zone de dépôt peut avoir approximativement le même diamètre que le réacteur, ou même un diamètre moindre, car il se produit une contraction nette du volume des gaz de la réaction de synthèse. On peut fabriquer des réacteurs, des chambres de décantation, etc... de formes et de dimensions variées sans s'écarter de l'esprit de l'invention.

Pour mettre en route l'installation, on charge en premier lieu les trémies supérieures avec le produit catalyseur et on introduit un fluide de chauffage tel que la vapeur d'eau dans les enveloppes qui entourent le tuyau 60 de façon que le catalyseur soit porté à une température de 193° C par exemple. On fait pénétrer le courant de gaz à traiter dans la base du réacteur, de manière qu'il ait une vitesse verticale d'environ 0 m. 30 par seconde et l'on disperse et met en suspension le catalyseur en poudre dans ce courant de gaz ascendant jusqu'à ce que le réacteur soit rempli d'une phase dense de catalyseur en suspension. A très une période préliminaire pendant laquelle le catalyseur s'imprègne, la réaction de synthèse commence et aussitôt qu'il se produit une élévation de température dans le réacteur, on remplace par de l'eau la vapeur qui entoure le tube vertical 60.

On règle la température de cette eau en maintenant à une pression déterminée la vapeur produite par sa vaporisation. On peut maintenir la température à l'intérieur du réacteur dans des limites très étroites en agissant sur la réfrigération des tubes ou sur la quantité de catalyseur recyclé, ou à la fois sur l'un et l'autre. Quand l'équilibre s'est établi, l'installation fonctionne sans à-coups et d'une façon continue

à la température choisie qui peut être, dans le cas présent, de 193° C.

Les produits liquides de la réaction sont séparés du catalyseur déposé qui se trouve dans la trémie supérieure, par les gaz d'épuration introduits par les canalisations 58 en passant par le distributeur 59. Les produits obtenus par cette épuration, en même temps que les produits de la réaction, sortent du haut de la tour par la canalisation 78 et passent par le réfrigérant 79 pour arriver au séparateur 80 dans lequel l'eau se sépare en une couche inférieure, l'huile en une couche intermédiaire et les gaz en une couche supérieure. On évacue l'eau par la canalisation 81 pour l'amener à une installation 82 de récupération du catalyseur. On peut faire déposer ou filtrer le catalyseur qui se trouve dans l'eau et le remettre en état comme catalyseur frais. On peut aussi porter à l'ébullition l'eau chargée de catalyseur pour former de la vapeur d'eau contenant en suspension des particules de catalyseur et on peut faire rasser cette vapeur d'eau dans la canalisation 58 pour que le catalyseur soit renvoyé à la trémie supérieure en même temps qu'on débarrasse des hydrocarbures le catalyseur qui se trouve dans cette trémie.

On extrait l'huile de la couche intermédiaire du décanteur 80 par le tuyau 83 et on l'envoie à une installation de fractionnement 84 qui est schématiquement représentée sous forme d'une colonne unique mais qui, en réalité, se composerait de deux ou plusieurs colonnes, l'essence et les fractions plus légères étant retirés comme produit de tête de la première colonne, l'essence étant stabilisée dans la seconde colonne, etc. Étant donné que l'invention ne concerne pas cette installation de fractionnement, on l'a représentée schématiquement sous la forme d'une colonne d'où l'on extrait les gaz comme produit de tête par la canalisation 85, l'essence comme produit intermédiaire par la canalisation 86, les huiles lourdes étant extraites de la partie inférieure par la canalisation 87.

Les gaz provenant du haut du séparateur 80 sont amenés par une canalisation 88 dans une tour d'absorption 89 dans laquelle on envoi également, par la canalisation 90, une huile destinée à l'absorption, telle que du kerosène. L'hydrogène non absorbé, l'oxyde de carbone, le méthane, l'éthane et l'éthylène sont extraits du haut de la tour 89 au moyen de la canalisa-

tion 91. Une partie de ce courant de gaz 75 0/0 par exemple, est envoyée à l'installation 14 de réformation du gaz par la canalisation 55 19 pour fournir des quantités supplémentaires de gaz à traiter. L'autre partie du courant gazeux qui passe par la canalisation 91 est envoyée par la canalisation 92 à la canalisation 13 et brûlée dans le foyer de l'installation de réformation du gaz pour fournir de la chaleur et du gaz carbonique destinés à l'épuration de réformation du gaz.

L'huile enrichie provenant de la base de la tour 89 est pompée à travers la canalisation 93 et envoyée au sommet de la tour d'épuration 94; quant aux fractions d'essence légère, elles sont extraites en même temps que les hydrocarbures en C_2 et C_4 par la partie supérieure de cette tour et envoyées, par la canalisation 95, à l'installation de fractionnement 84. L'huile qui a servi à l'absorption, maintenant épurée, est alors pompée pour être renvoyée, par la canalisation 96, l'échangeur de chaleur 97 et le réfrigérant 98 au sommet de la tour d'absorption 89.

Les gaz provenant de la canalisation 85 peuvent être soutirés de l'installation par la canalisation 99 et envoyés vers une installation quelconque de transformation, polymérisation, alkylation, etc. Les gaz usés, etc., destinés à la réformation d'essences supérieures, d'huiles de graissage, etc. On peut aussi faire passer certains de ces gaz par la canalisation 100, le réchauffeur 101, puis par la canalisation 58 pour les utiliser comme produit épurateur dans la trémie supérieure. La température de ces gaz à l'intérieur de la canalisation 58 doit être suffisamment élevée pour effectuer la vaporisation et l'épuration de tous les hydrocarbures liquides déposés sur le catalyseur. Au lieu d'employer des hydrocarbures gazeux pour cette épuration, on peut employer simplement, bien entendu, la vapeur d'eau provenant de la canalisation 102. Si on doit employer de la vapeur d'eau, il peut être avantageux d'évaporer avec détente le catalyseur contenant de l'eau qui provient de l'installation de récupération 82 et de renvoyer la vapeur d'eau ainsi produite, avec les particules solides de catalyseur qui s'y trouvent en suspension, par la canalisation 103. On peut utiliser le gaz carbonique provenant de la canalisation 104 comme gaz d'épuration puisque ce gaz est parfois recyclé et renvoyé à

l'installation de reformation du gaz en vue d'une production supplémentaire de gaz de synthèse.

Habituellement il suffit d'un seul étage de synthèse avec le recyclage décrit plus haut pour obtenir d'excellents rendements. On peut cependant envoyer les gaz, provenant du séparateur 80, à un deuxième étage de synthèse dont l'installation peut être semblable à l'installation du premier étage qu'on vient de décrire, mais avec des dimensions plus petites. Avec un seul étage et le recyclage tels qu'ils ont été décrits ci-dessus, voici les rendements que l'on peut obtenir pour les produits suivants :

15 «Naphtha» léger, 238.500 l; «Naphtha» lourd, 238.500 l; Gas Oil, 174.900 l; Paraffine, 79.500 l.

Le rendement exact en différents produits dépend, bien entendu, de la température particulière choisie, de la nature du catalyseur employé, de la durée de contact entre le catalyseur et le gaz à traiter, de la quantité de catalyseur qui a été en contact avec le gaz à traiter, etc. D'une façon générale, la durée du contact peut être de 5 à 60 secondes environ, ou davantage; elle est d'ordinaire d'au moins 10 à 20 secondes environ.

L'essence ou le «naphtha» (essence lourde) obtenus par ce traitement sont ordinairement caractérisés par un pouvoir anti-détonant plutôt faible et on peut les soumettre à un traitement de reformation catalytique du genre dans lequel les vapeurs d'essence ou de «naphtha» sont mises en contact d'un catalyseur à support argileux du type silice-alumine à une température d'environ 454° C à 538° C, sous une pression comprise entre la pression atmosphérique et 3,5 Kg/cm² environ et une vitesse volumétrique d'environ 4 à 40 volumes de charge liquide par volume occupé par le catalyseur et par heure.

On peut aussi mettre le «naphtha» vaporisé au contact du catalyseur à une température d'environ 454° C à 554° C (d'ordinaire 496° à 510° C environ), sous une pression d'environ 3,5 à 42,2 Kg/cm² (de préférence 14 à 21 Kg/cm²), à une vitesse volumétrique d'environ 0,2 à 2,0 volumes de charge liquide par volume occupé par le catalyseur et par heure (de préférence de 0,5 à 1,0 v/v/heure), avec une durée de passage d'environ 1 à 12 heures (de préférence pendant 6 heures environ) et avec

un catalyseur comprenant de l'oxyde de molybdène ou de l'oxyde de chrome supporté par de l'alumine activée ou un produit analogue. Pour ce traitement de reformation catalytique, on préfère employer de 28,3 à 141,5 environ, et plutôt 70,7 mètres cubes environ, le gaz recyclé (contenant environ 40 0/0 à 75 0/0 d'hydrogène) par 0 m³ 159 de produit chargé. Cette opération de reformation catalytique de l'essence synthétique donne un rendement élevé en hydrocarbures isomérisés et aromatisés ayant un pouvoir antidétonant très élevé.

On peut évidemment soumettre le «naphtha» à un traitement de «réversion» gazeuse en même temps que les hydrocarbures en C₈ et C₁₀. On peut le débarrasser des oléfines et ses composants paraffiniques peuvent être isomérisés avec du chlorure d'aluminium ou un composé contenant du chlorure d'aluminium.

Les fractions lourdes peuvent être soumises à un cracking catalytique pour lequel elles constituent une excellente matière de charge.

Les paraffines produites par le présent procédé sont par elles-mêmes des sous-produits de valeur et en employant des températures de synthèse relativement et/ou des pressions de synthèse élevées, on peut accroître d'une façon notable les rendements en huiles lourdes et en paraffines. En employant des températures relativement élevées, par exemple 204° 5 à 218° C environ, on peut obtenir de grandes quantités d'hydrocarbures liquides légers et d'hydrocarbures normalement gazeux qui peuvent être particulièrement utiles comme matières de charge pour la polymérisation, l'alkylation, la «réversion» gazeuse et autres traitements complémentaires des procédés de synthèse. Tous ces produits sont utilisables pour la synthèse chimique par suite de leur caractère strictement aliphatique et de l'absence d'hydrocarbures naphthéniques et aromatiques (qui se trouvent normalement dans les produits du pétrole et qui sont très difficiles à séparer des hydrocarbures aliphatiques à points d'ébullition voisins).

Bien qu'on ait décrit en détail des modes de réalisation préférés de la présente invention et donné un exemple des conditions de fonctionnement, on comprendra que la présente invention n'est pas limitée à l'un quelconque des détails exposés ci-dessus, car les personnes

compétentes se rendront compte, en lisant la description qui précède, qu'il existe de nombreuses conditions de fonctionnement différentes et qu'on peut apporter aux modes de réalisation ici décrits divers changements, additions ou perfectionnements sans que l'on s'écarte pour cela de l'esprit de l'invention.

résumé.

La présente invention concerne la synthèse des hydrocarbures. Elle a pour objet un procédé de synthèse qui présente les caractéristiques suivantes prises isolément ou en combinaison :

1° Le procédé permet d'obtenir des produits de synthèse par réaction d'oxyde de carbone et d'hydrogène en mettant un mélange de gaz comprenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène en contact avec un catalyseur de synthèse dans les conditions de synthèse. Le procédé consiste à employer le catalyseur de synthèse sous forme finement divisé, à maintenir le catalyseur de synthèse dans un état quasi-liquide sous forme de phase dense en suspension dans la zone de synthèse en introduisant le mélange d'oxyde de carbone et d'hydrogène dans le bas de la zone et en faisant monter les gaz à faible vitesse à l'intérieur de cette zone, à séparer les gaz qui n'ont pas réagi et les produits de la réaction du catalyseur en suspension et à extraire les gaz qui n'ont pas réagi, et les produits légers normalement gazeux des produits plus lourds de la réaction;

2° Les dimensions des particules du catalyseur sont en grande majorité telles qu'elles

puissent passer à travers des tamis ayant de 39 à 156 mailles au centimètre carré environ. La vitesse verticale des gaz dans la zone de synthèse est approximativement de 0,15 m. à 0 m. 45 par seconde;

3° Le catalyseur de synthèse est refroidi après avoir été séparé des gaz et des produits de la réaction et le catalyseur refroidi est réintroduit ensuite pour absorber la chaleur de réaction qui se produit au cours de l'opération de synthèse;

4° Le gaz de charge relativement froid est introduit dans le mélange de catalyseur de synthèse grâce à quoi la chaleur de la réaction de synthèse amène le gaz ainsi introduit à la température de réaction;

5° Le procédé comprend l'épuration des produits de la réaction qu'on débarrasse des produits à séparer avant de les renvoyer dans la zone de synthèse;

6° Le procédé comprend l'introduction du catalyseur provenant de la zone de synthèse dans une zone de contact distincte, l'épuration du catalyseur dans cette zone distincte et le renvoi du catalyseur épuré dans la zone de synthèse;

7° Le procédé comprend la séparation par centrifugation du catalyseur dans la partie supérieure de la zone de synthèse et le renvoi dans cette zone du catalyseur séparé par centrifugation.

Société dite : STANDARD OIL COMPANY.

Par procuration :

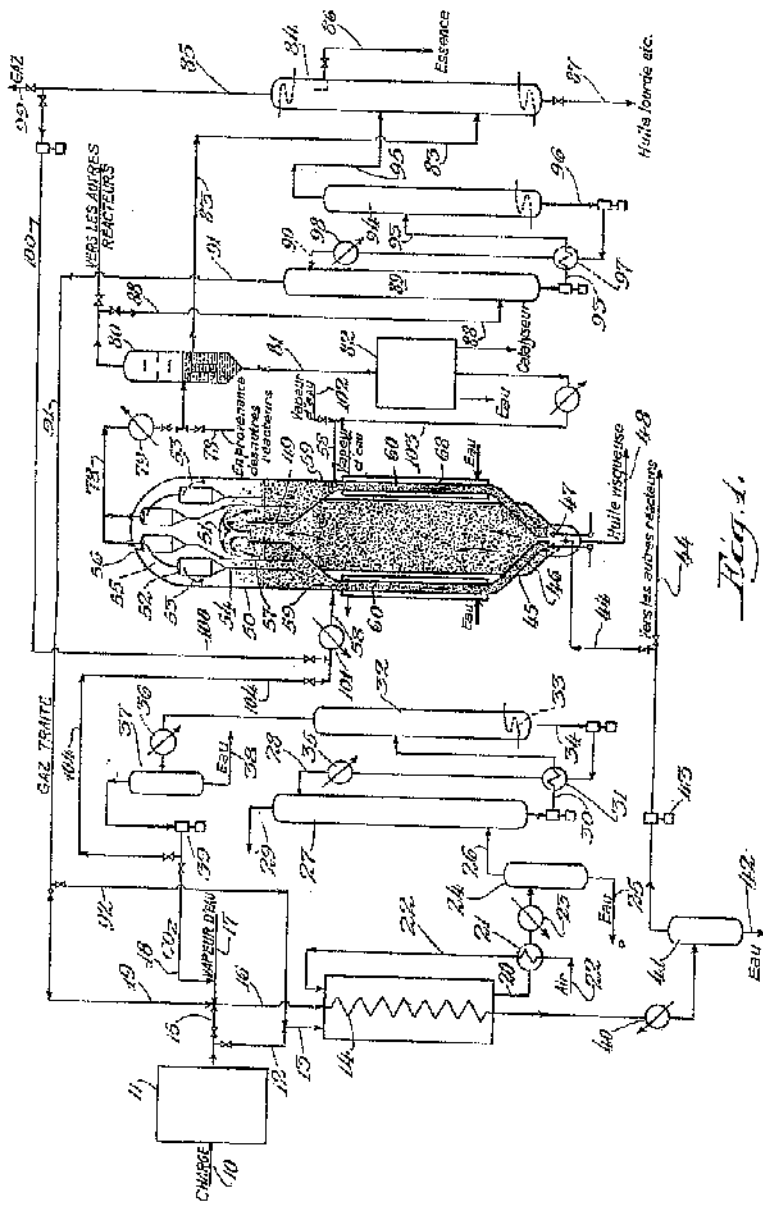
D.-A. CASALONDA.

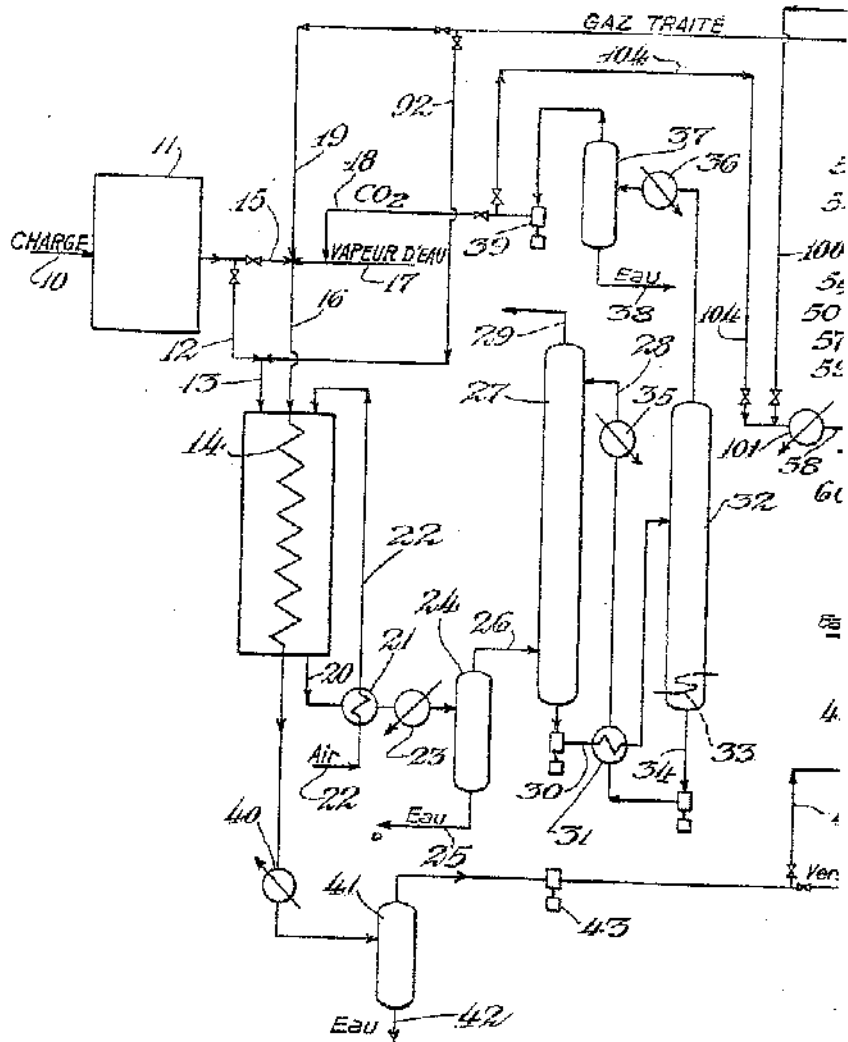
N 958.556

Société dite :

Standard Oil Company

2 planches. --- Pl. I





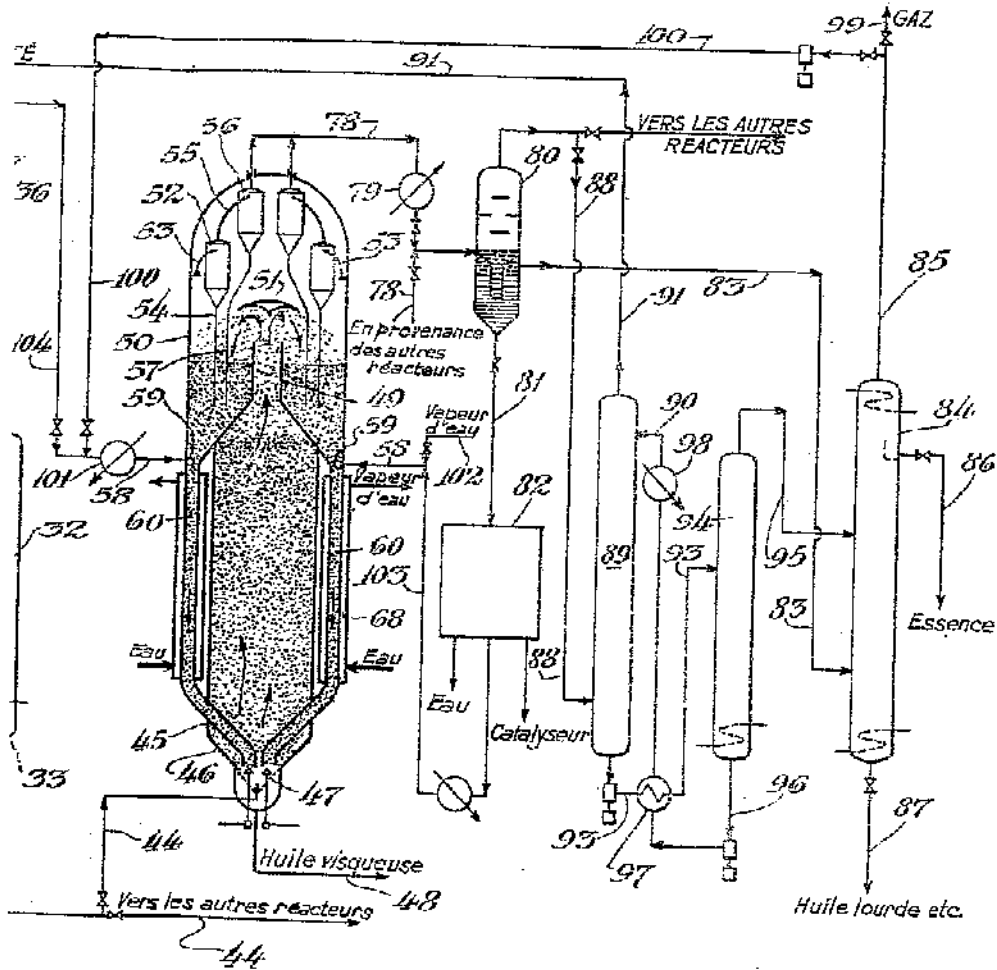


Fig. 1.

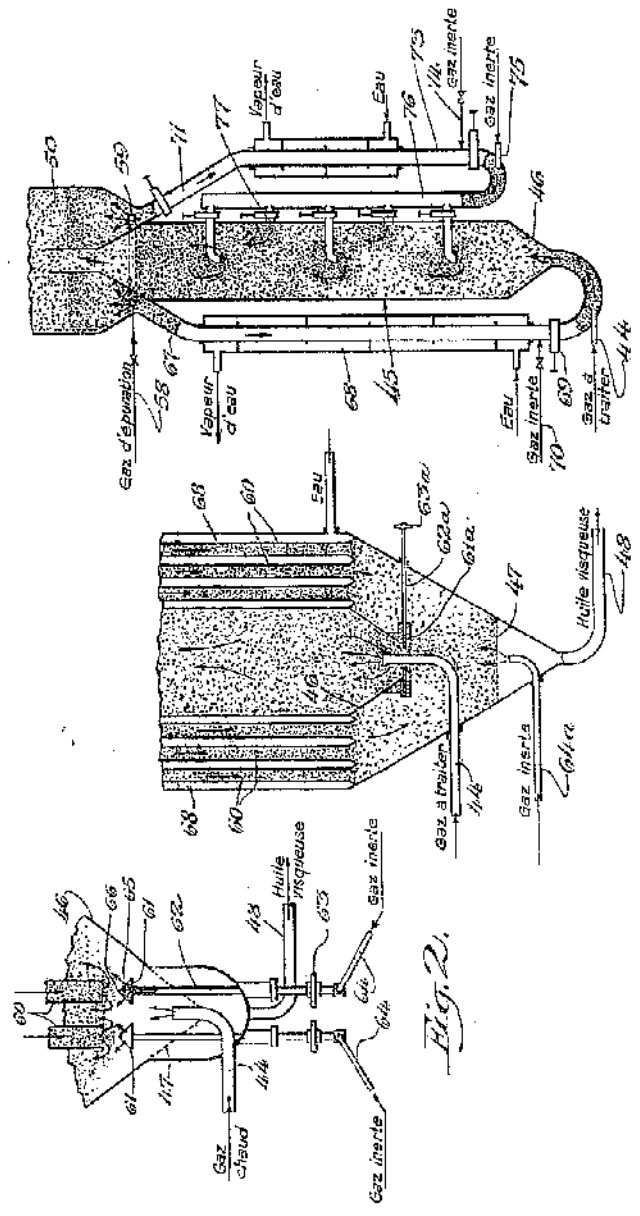


Fig. 2.

Fig. 3.

Fig. 4.

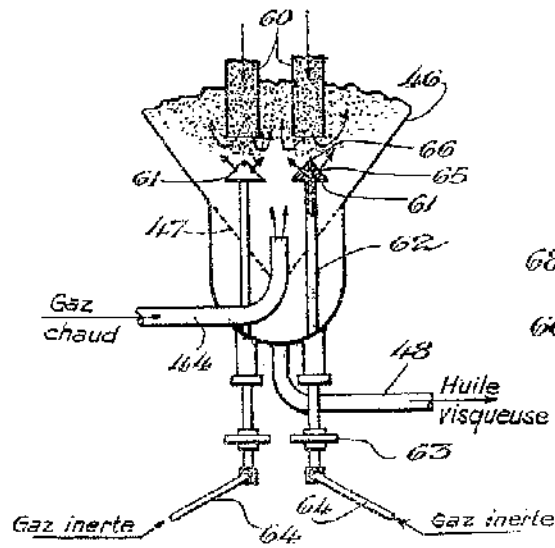


Fig. 2.

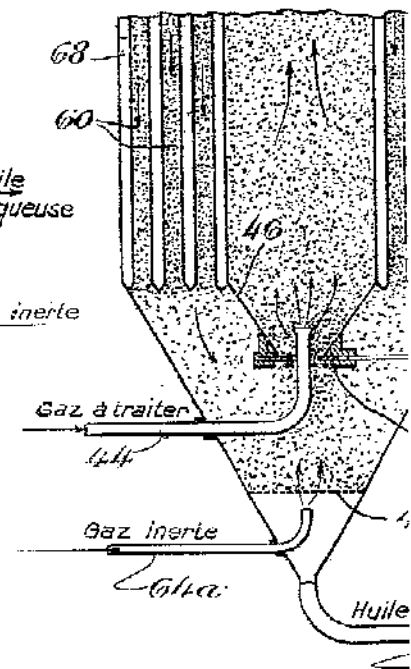


Fig. 3

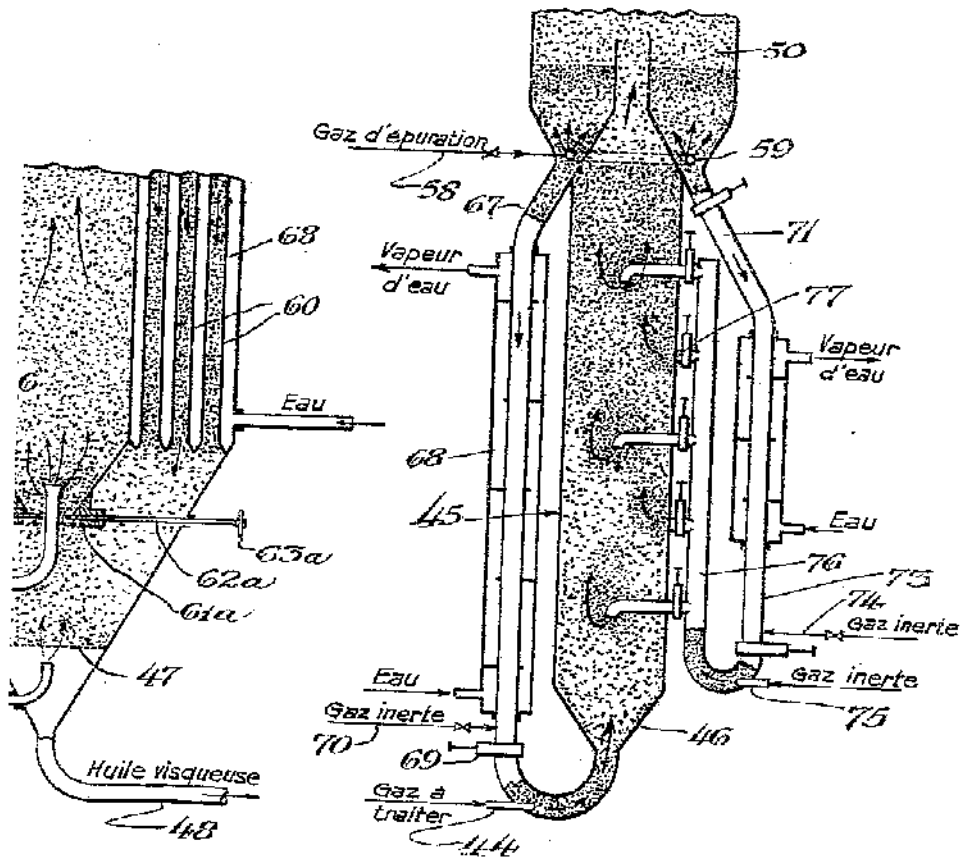


Fig. 3.

Fig. 4.