



2460

Procédé de préparation catalytique de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène à partir des hydrocarbures et de la vapeur.

Société dite : N. V. DE BATAAFSCHE PETROLEUM MAATSCHAPPIJ résidant aux Pays-Bas.

Demandé le 4 juin 1948, à 14^h 53^m, à Paris.

Délivré le 22 mars 1950. — Publié le 27 octobre 1950.

(Demande de brevet déposée aux Pays-Bas le 6 juin 1947. — Déclaration du déposant.)

L'invention concerne un procédé de préparation catalytique de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène à partir des hydrocarbures et de la vapeur.

Jusqu'à présent, la transformation du méthane par l'action de la vapeur en oxyde de carbone et hydrogène, a été effectuée dans la pratique dans une chambre de réaction tubulaire contenant le catalyseur sous forme de couche fixe. Le catalyseur qu'on emploie est par exemple le nickel déposé sur la magnésite. La réaction s'effectue de préférence à la pression atmosphérique. La température à laquelle elle s'effectue est d'environ 600 à 700° C.

La réaction est fortement endothermique et par suite il est nécessaire de fournir une quantité de chaleur de 55 kg. cal. par m³ de méthane.

Étant donnée la valeur relativement faible du coefficient de transmission de chaleur entre la paroi de la chambre de réaction et le courant de gaz qui y passe, il est nécessaire, pour empêcher la surchauffe de la paroi de la chambre de réaction, d'employer une chambre de réaction tubulaire. De plus, la température varie très notablement dans la direction de l'axe dans les tubes de la chambre de réaction. Suivant la forme de construction du four, cette variation est de 300 à 700-750° C. et doit être considérée comme nuisible pour la chambre de réaction au point de vue de la construction.

On peut remédier dans une large mesure à ces deux inconvénients, suivant l'invention, en effectuant la transformation en présence d'un catalyseur à l'état fluidifié.

Cette expression doit être considérée comme désignant un catalyseur maintenu par le courant de gaz ascendant, dans un état de suspension tel que l'on obtienne une phase dense, d'une densité de l'ordre de 400 à 800 kg/m³ suivant

le poids spécifique de la masse solide et la vitesse linéaire du gaz. La grosseur des particules est comprise de préférence entre 10 et 200 microns.

En appliquant le procédé suivant l'invention, on supprime à peu près complètement la variation de température dans la direction de l'axe. De plus, le coefficient de transmission de chaleur entre la paroi de la chambre de réaction et le gaz augmente notablement et, par suite, on peut remplacer la chambre de réaction tubulaire par un convertisseur unique de diamètre sensiblement plus grand.

L'opération suivant l'invention peut s'effectuer de diverses manières.

Par exemple, le catalyseur peut être utilisé sous forme de couche immobile ou sensiblement immobile de particules fluidifiées. Lorsque l'activité du catalyseur a diminué jusqu'à une valeur donnée, on peut la rétablir par une régénération par l'action de la vapeur qui peut aussi s'effectuer en maintenant les particules à l'état fluidifié.

On peut aussi faire sortir d'une manière continue une portion de la masse du catalyseur de la chambre de réaction et la recycler après l'avoir chauffée à la température voulue. La quantité de chaleur nécessaire à la réaction est ainsi transmise directement au gaz en cours de réaction. Cette forme de réalisation permet d'éviter l'apport de chaleur indirect. Il suffit alors de prendre les mesures nécessaires pour empêcher les pertes par rayonnement, par exemple, en isolant la paroi du convertisseur, ou en faisant passer les gaz chauds qui sortent du four dans lequel on chauffe le catalyseur autour des parois du convertisseur.

Un avantage spécial du procédé suivant l'invention consiste dans la possibilité de trans-

former par la vapeur, non seulement le méthane, mais encore des hydrocarbures paraffiniques supérieurs tels que ceux qui contiennent au moins 4 atomes de carbone dans la molécule, ainsi que les hydrocarbures oléfiniques et en principe les hydrocarbures d'une manière générale. Le procédé connu ne permet pas de traiter ces substances de base car, pendant que la température s'élève de la température ambiante à une température de la réaction de 700° C. ou plus élevée, la substance passe par un intervalle de température dans lequel il se forme des dépôts considérables de substances carbonées et dans lequel la température n'est pas encore assez élevée pour les transformer par la vapeur. Au contraire, en appliquant le procédé suivant l'invention, il n'est pas nécessaire de chauffer la substance de base aux températures comprises dans cet intervalle critique, mais le chauffage final peut s'effectuer dans la couche fluidifiée elle-même. En raison de la température élevée uniforme de la couche fluidifiée, il ne se forme pas de dépôt de carbone et/ou les dépôts de carbone éventuels réagissent immédiatement avec la vapeur en présence.

RÉSUMÉ.

Procédé de préparation de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène par la transformation des hydrocarbures par l'action de la vapeur en présence de catalyseurs, caractérisé par les points suivants, séparément ou en combinaisons :

1° La transformation s'effectue en présence d'un catalyseur à l'état de fine division et à l'état fluidifié;

2° On utilise le catalyseur sous forme de couche immobile ou sensiblement immobile de particules fluidifiées et la chaleur est fournie de l'extérieur;

3° On fait sortir d'une manière continue une portion de la masse du catalyseur de la chambre de réaction et on la recycle, après l'avoir chauffée à la température voulue;

4° On fait passer autour des parois du convertisseur les gaz qui ont servi à chauffer la masse du catalyseur pour réduire au minimum les pertes par rayonnement.

Société dite :

N. V. DE BATAAFSCHE PETROLEUM MAATSCHAPPIJ.

Par procuration :

P. REGIMBEAU.