MINISTÈRE
de
L'INDUSTRIE, du TRAVAIL et
de la PRÉVOYANCE SOCIALE

Direction Générale de l'Industrie

SERVICE
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

N° 161718

ROYAUME DE BELGIQUE

BREVET D'INVENTION

Le Ministre de l'Industrie, du Travail et de la Prévoyance Sociale,

Vu la loi du 24 mai 1854;

Vu le procès-verbal dressé le 22 Juin *1929,*

à 11 h 25', *au Greffe du Gouvernement provincial du Brabant.*

ARRÊTE :

Article 1er. — *Il est délivré à* Union Chimique Belge S.A.,
61, Avenue Louise, à Bruxelles,
représentée par Mr L. Descamps à Bruxelles

un brevet d'invention pour : Perfectionnements à la décomposition sous l'action de la chaleur d'un mélange de méthane et de vapeur d'eau.

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

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

Bruxelles, le 9 Juillet *1929.*

Pour le Ministre et par délégation :
Le Directeur Général de l'Industrie :

F. Baetens

Imp. J. De Clercq, Jette-Brux. - 1062

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE, DU TRAVAIL ET DE LA PRÉVOYANCE SOCIALE

ROYAUME DE BELGIQUE

BREVET D'INVENTION N° 361718

DEMANDE DÉPOSÉE LE 27 VI 1929

VU POUR ÊTRE ANNEXÉ À L'ARRÊTÉ MINISTÉRIEL DU 31 VII 1929

POUR LE MINISTRE & PAR DÉLÉGATION

LE DIRECTEUR GÉNÉRAL DE L'INDUSTRIE

B R E V E T D' I N V E N T I O N

PERFECTIONNEMENTS APPORTES A LA DECOMPOSITION SOUS L'ACTION DE LA CHALEUR D'UN MELANGE DE METHANE ET DE VAPEUR D'EAU,

MINISTÈRE DE L'INDUSTRIE DU TRAVAIL ET DE LA PRÉVOYANCE SOCIALE
27 JUIN 1929
BREVETS

par la Société dite :

UNION CHIMIQUE BELGE, S.A.

L'invention a pour objet un procédé servant à produire de l'hydrogène et de l'oxyde de carbone en décomposant sous l'action de la chaleur un mélange de vapeur d'eau, de méthane et d'hydrocarbures gazeux ou volatiles, tels que ceux contenus dans les gaz naturels ou dans les gaz provenant de la carbonisation ou de la gazéification des combustibles.

Pour le méthane, qui par rapport aux autres hydrocarbures du gaz de houille est l'élément prépondérant, la réaction s'effectue suivant le formule suivante :

$C H_4 + H_2 O = C O + 3 H_2 - 51$ calories.

Il sera donc nécessaire de fournir au mélange de gaz et de vapeur d'eau en circulation une certaine quantité de chaleur. Car, d'une part, ce ne sera qu'à une température élevée que la réaction sera suffisamment complète, et d'autre part, cette réaction est endothermique. Cet apport de chaleur peut se faire en brûlant par l'air une certaine partie du

361718

gaz à traiter. Pour obtenir par ce chauffage l'effet utile le plus élevé, il conviendrait de brûler partiellement le gaz à traiter en y ajoutant la proportion voulue d'air. Mais, dans ces conditions, on introduirait dans le mélange une propotion exagérée d'azote.

L'apport de chaleur en question devra donc être fait plutôt d'une façon indirecte, c'est-à-dire en séparant le circuit du gaz à traiter de celui des gaz en combustion.

Un premier moyen consiste à prévoir un échangeur de température en produits réfractaires et comprenant deux circuits, dont l'un sert à la circulation et à la conversion du gaz à traiter et dont l'autre est parcouru par la partie du gaz qui est brûlée.

Un second moyen consiste à réaliser la réaction dans un régénérateur de chaleur qui, pendant une première période emmagasine une partie de la chaleur dégagée par la combustion du gaz servant au chauffage et qui, pendant une seconde période, cède cette chaleur au gaz à traiter, et produit ainsi la conversion voulue.

La chaleur emportée par les fumées sortant des échangeurs de température ou des régénérateurs de chaleur pourra être récupérée économiquement, soit pour le réchauffage de l'air de combustion, soit pour le réchauffage préalable du gaz à traiter, soit pour le réchauffage du gaz de chauffage, soit pour la production ou pour le surchauffage de la vapeur d'eau requise.

D'autre part, il a été trouvé utile de prévoir des appareils servant à récupérer d'une façon rationnelle la chaleur emportée par le gaz ayant subi la conversion.

Dans certains cas il n'est pas indispensable d'obtenir un gaz ayant une teneur en méthane aussi réduite que possible. Il conviendra alors de se servir pour la récupération en question soit d'un échangeur de température, soit d'un régénérateur de chaleur.

Dans d'autres cas il faut limiter autant que possible la teneur en méthane dans le gaz converti. La réaction en question étant réversible, aux températures voisines de celle à laquelle elle est pour ainsi dire complète, il importe de prévoir, pour le refroidissement du gaz traité, des mesures en vue d'éviter, autant que possible, toute rétrogression de la réaction. Or, à la température de 300 à 400° et en l'absence de catalyseurs, il ne se produit plus aucune transformation du mélange. Il faudra donc se servir d'un agent pouvant diminuer rapidement vers 400 à 300° C la température des gaz traités. L'eau étant un agent convenant spécialement pour cet usage, il a été trouvé utile de mettre le gaz, aussitôt à la sortie de l'appareil de conversion, en contact soit avec les parois d'un appareil contenant une masse donnée d'eau (par exemple une chaudière), soit directement avec de l'eau liquide.

Les dessins ci-joints montrent quelques dispositions schématiques indiquant, à titre d'exemple, divers modes de réalisation de l'objet de l'invention.

Les figures 1, 2, 3, 4, 5 et 6 se rapportent au cas où un échange de température se fait à travers une cloison en produits réfractaires séparant le circuit des gaz en combustion de celui du gaz à traiter.

Les figures 7, 8, 9 et 10 se rapportent au cas où pendant une première période la chaleur produite par les gaz en combustion est emmagasinée dans l'empilage d'un régénérateur et où, pendant une seconde période, cette chaleur est cédée au gaz à traiter.

Dans le cas prévu à la figure 1, il se fait en outre un échange de température entre l'air de combustion arrivant par 2 dans l'échangeur A, et les fumées sortant par 1 de ce même échangeur. La conversion se produit dans l'échangeur C qui reçoit en 5 le gaz de chauffage et qui cède la chaleur

dégagée au courant de gaz à traiter arrivant par la branche 3 de l'échangeur B et sortant par la branche 4. Il y a échange de température entre ces deux branches et récupération partielle de la chaleur produite.

La figure 2 se rapporte au cas où il y a échange de température entre les produits de la combustion sortant en 1 et le gaz à traiter entrant par 8..Le gaz converti sort à température élevée par le conduit 4 et il est dirigé dans une chaudière D, où il céde rapidement sa chaleur. L'élément C de l'appareil est muni à sa partie supérieure d'une admission 5 pour le gaz de chauffage et d'une admission 2 pour l'air de combustion.

La figure 3 indique une modification de la figure 2 dans laquelle la chaudière D est remplacée par un laveur à injection d'eau E.

Dans la fig. 4 ce laveur E est prolongé par un saturateur d'humidité F, dans lequel le gaz à traiter se charge de la quantité voulue de vapeur d'eau.

Dans les exemples indiqués ci-dessus la récupération partielle des chaleurs se faisait dans des échangeurs de température.

L'exemple indiqué à la figure 5 se rapporte au cas où cette récupération se fait dans des régénérateurs de chaleur. Les régénérateurs A et B sont parcourus alternativement par les fumées et par l'air de combustion, tandis que les régénérateurs D et E sont parcourus alternativement par le gaz converti et par le gaz à traiter. L'échangeur de température C sert à porter le gaz à traiter à la température voulue. La vanne d'inversion F sert à la distribution alternative du gaz à traiter et du gaz converti. La vanne d'inversion G sert à la distribution alternative de l'air de combustion et des fumées. Rien n'empêche de remplacer les régénérateurs D et E par les appareils à circulation d'eau indiqués aux figures 2, 3 et 4.

361718

La figure 6 donne un développement du schéma de la figure 5 montrant une disposition spéciale de l'échangeur de température qui est raccordé de part et d'autre aux régénérateurs en question et qui présente la surface de chauffe requise pour obtenir la conversion voulue.

L'échangeur de température consiste en une chambre allongée 1, dont les parois verticales et parallèles se trouvent à faible distance l'une de l'autre. Ces parois séparent la chambre 1 de deux chambres 2 et 2^a, qui communiquent entre elles à leur partie supérieure par des briques perforées 3, constituant un faisceau tubulaire normal aux parois de la chambre 1.

Dans ce faisceau la disposition des briques perforées est en quinconce. La partie inférieure de chacune des chambres 2 et 2^a est remplie par des empilages 4 et 4^a. La partie inférieure de la chambre 1 est divisée en son milieu par une cloison transversale et verticale séparant deux empilages 5 et 5^a.

Le circuit de chauffage est constitué par les régénérateurs 4 et 4^a, la partie supérieure des chambres 2 et 2^a et les briques perforées 3. L'air de combustion est admis par la vanne d'inversion 6 à la base de l'un ou de l'autre empilage 4 ou 4^a et il y monte pour arriver dans la chambre 2 ou 2^a, où il brûle le gaz admis par le robinet 7 à trois voies. Les produits de cette combustion traversent les briques perforées 3 pour descendre dans la chambre 2^a ou 2 et dans l'empilage 4^a ou 4 et pour s'échapper à la cheminée par la vanne d'inversion 6.

Dans le circuit du gaz à traiter le gaz est admis en 9 par la vanne d'inversion 8 à la base de l'un ou de l'autre des empilages 5 ou 5^a, et il y monte pour arriver dans le faisceau tubulaire de la chambre 1 et pour s'échauffer au contact des parois de cette chambre, ainsi que de celles des briques perforées 3. En descendant dans le régénérateur 5^a ou 5, il y

361718

cède une partie de sa chaleur et il sort en 10 par la vanne d'inversion 8.

Dans le cas prévu à la figure 7, le régénérateur en question est indiqué par la lettre C. Pendant l'une des périodes le gaz de chauffage y est admis directement. L'air pour sa combustion arrive par l'échangeur de température A qui contient aussi le conduit d'échappement des fumées. Pendant l'autre période, le gaz de chauffage est fermé ainsi que l'arrivée d'air et l'échappement à la cheminée. Le gaz à traiter est admis dans l'échangeur de température B et il vient en contact avec l'empilage C, où il est converti pour céder ensuite une partie de sa chaleur lors de sa sortie par l'échangeur de température B.

La figure 8 est une modification de la figure 7, dans laquelle les échangeurs de température sont remplacés par des régénérateurs de chaleur. Le régénérateur de conversion est toujours indiqué par la lettre C.

Il y a lieu de distinguer 4 périodes de marche.

Dans la première période, le gaz de chauffage admis en C y est brûlé par l'air admis par le régénérateur A, et les fumées s'échappent par le régénérateur B.

Dans la seconde période, l'admission du gaz de chauffage est fermée, ainsi que le circuit par les régénérateurs A et B. Le gaz à traiter est admis dans le régénérateur D et il est converti dans le régénérateur C pour céder ensuite une partie de sa chaleur dans le régénérateur E.

Dans la troisième période, l'admission du gaz à traiter est fermée, ainsi que le circuit des régénérateurs D et E.

Le gaz de chauffage est admis dans le régénérateur C, où il est brûlé par l'air arrivant par le régénérateur B. Les fumées s'échappent par le régénérateur A.

Dans la quatrième période, l'admission du gaz de chauffage est fermée, ainsi que le circuit des régénérateurs A et B. Le gaz à traiter est admis dans le régénérateur E et il est converti dans le régénérateur C, pour céder ensuite une partie de sa chaleur dans le régénérateur D.

La figure 9 indique un exemple où la disposition ne comprend que deux régénérateurs A et B, qui sont raccordés à leur partie supérieure par un conduit C.

Pendant la période de chauffage, le gaz de chauffage est admis dans le conduit C et l'air est admis à la partie inférieure du régénérateur B. L'air réchauffé au contact de l'empilage du régénérateur B brûle dans le régénérateur A le gaz admis dans le conduit C, et les fumées s'échappent par le conduit E. Lorsque l'empilage de A est porté à la température voulue, le conduit E est fermé, ainsi que l'arrivée d'air D. Le gaz à traiter est admis dans la partie inférieure du régénérateur A, où il est converti en y montant, et il est dirigé par le conduit C dans le régénérateur B, où il cède une partie de sa chaleur, avant sa sortie par la partie inférieure. La période de réaction est à nouveau suivie d'une période de chauffage.

Dans l'exemple indiqué à la figure 10, le régénérateur B de l'exemple précédent est supprimé et remplacé par une chaudière. Pendant la période de chauffage, le régénérateur A est alimenté par du gaz et de l'air froid. Pendant la période de conversion, la chaudière récupère la chaleur qu'emporte le gaz traité.

Dans tous les exemples, indiqués ci-dessus, la température, tant des gaz traités que des fumées, pourra être abaissée au dégré voulu par leur passage par des chaudières qui fourniront

361718

la quantité requise de vapeur.

Pour le cas du gaz de fours à coke qui contient 50% d'hydrogène et 26% de méthane, la quantité de vapeur requise sera de 220 grammes par M3 de gaz converti, et la quantité de gaz de combustion correspondante sera de 1/2 m3. La récupération des diverses chaleurs jusqu'à la température de 300°C donnera 280 grammes de vapeur par m3 de gaz.

Quant au gaz converti, dans ces conditions, son volume sera de 1,75 m3 par 1 m3 de gaz à traiter et il contiendra 70% d'hydrogène et des traces de méthane. Aux 500 litres d'hydrogène par 1 m3 de gaz à traiter correspondront 1250 litres, après conversion. La différence, soit 750 litres, sera produite par la combustion de 1/2 m3 du gaz à traiter.

REVENDICATIONS

1.- Procédé servant à produire de l'hydrogène et de l'oxyde de carbone, en décomposant sous l'action de la chaleur un mélange de vapeur d'eau, de méthane et d'hydrocarbures gazeux ou volatiles, tel que ceux contenus dans les gaz naturels ou dans les gaz provenant de la carbonisation ou de la gazéification des combustibles, la chaleur requise étant fournie par la combustion au moyen d'air d'une certaine partie du gaz à traiter, procédé caractérisé en ce que le circuit du gaz à traiter et celui des gaz en combustion sont séparés pendant le traitement.

2.- Procédé tel que revendiqué sous 1, caractérisé en ce que le gaz à traiter et les gaz en combustion parcourent un échangeur de température en produits réfractaires et comprenant deux circuits, dont l'un sert à la circulation et à la conversion du gaz à traiter et dont l'autre est parcouru par la partie du gaz qui est brûlée.

3.- Procédé tel que revendiqué sous 1, caractérisé en ce que la réaction est réalisée dans un régénérateur de chaleur

13

qui, pendant une première période, emmagasine une partie de la chaleur dégagée par la combustion du gaz servant au chauffage et qui, pendant une seconde période, cède cette chaleur au gaz à traiter.

4.- Procédé tel que revendiqué dans les revendications précédentes, caractérisé en ce que la chaleur emportée par les fumées sortant des échangeurs de température ou des régénérateurs de chaleur sera récupérée, soit pour le réchauffage de l'air de combustion, soit pour le réchauffage du gaz à brûler, soit pour un réchauffage préalable du gaz à traiter, soit pour la production ou pour la surchauffe de la vapeur d'eau requise.

5.- Procédé tel que revendiqué dans les revendications précédentes et caractérisé en ce que la chaleur emportée par les produits provenant de la réaction est récupérée, soit dans un échangeur de température, soit dans un régénérateur de chaleur.

6.- Procédé tel que revendiqué dans les revendications n° 1 à 4, caractérisé en ce qu'il est provoqué un abaissement rapide de la température des gaz ayant subi la conversion à la température requise.

7.- Procédé tel que revendiqué dans la revendication n°6 et caractérisé en ce que cet abaissement rapide de la température des gaz convertis est réalisé, soit au contact de la surface de chauffe d'une chaudière, soit au contact d'eau liquide.

8.- Procédé servant à produire de l'hydrogène et de l'oxyde de carbone, en décomposant sous l'action de la chaleur un mélange de vapeur d'eau, de méthane et d'hydrocarbures gazeux ou volatiles, tels que ceux contenus dans les gaz naturels ou dans les gaz provenant de la carbonisation ou de la gazéification des combustibles, substantiellement comme décrit ci-dessus.

361718

9.- Procédé servant à produire de l'hydrogène et de l'oxyde de carbone, en décomposant sous l'action de la chaleur un mélange de vapeur d'eau, de méthane et d'hydrocarbures gazeux ou volatiles, tels que ceux contenus dans les gaz naturels ou dans les gaz provenant de la carbonisation ou de la gazéification des combustibles, substantiellement comme décrit ci-dessus, en se rapportant aux dessins ci-joints.

RESUME.

Procédé servant à produire de l'hydrogène et de l'oxyde de carbone, en décomposant sous l'action de la chaleur un mélange de vapeur d'eau, de méthane et d'hydrocarbures gazeux ou volatiles, tels que ceux contenus dans les gaz naturels ou dans les gaz provenant de la carbonisation, ou de la gazéification des combustibles, la chaleur requise étant fournie par la combustion au moyen d'air d'une certaine partie du gaz à traiter, procédé caractérisé en ce que le circuit du gaz à traiter et celui des gaz en combustion sont séparés pendant le traitement.-

Bruxelles, le 24 juin 1929.

pp. de la Société dite :
UNION CHIMIQUE BELGE, S.A.
p.p. de L. Brcomi,
[signature]

[initials]

Union Chimique Belge.

361718

FIG 1

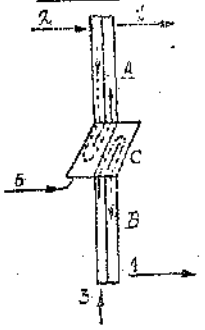


FIG 2

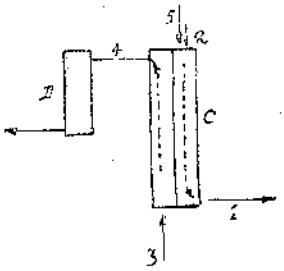


FIG 3

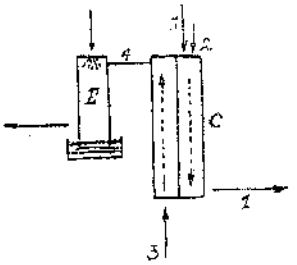


FIG 4

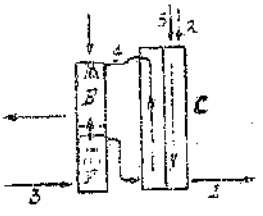


FIG 5

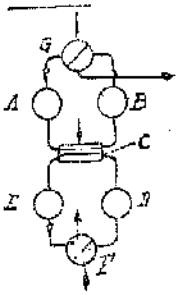


FIG 6

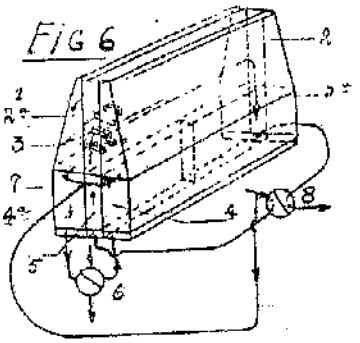


FIG 7

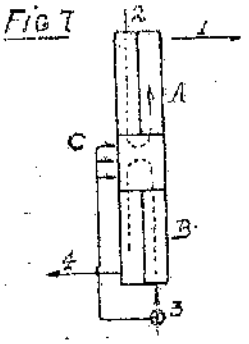


FIG 8

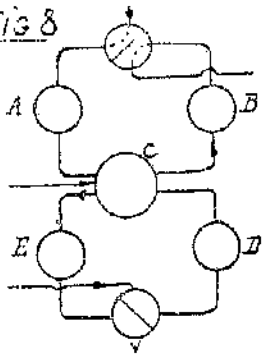


FIG 9

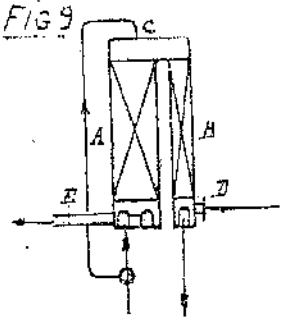
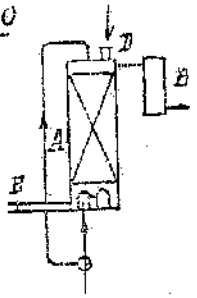


FIG 10



MINISTERE DE L'INDUSTRIE DU TRAVAIL ET DE LA PREVOYANCE SOCIALE
27 JUIN 1929
BREVETS

Bruxelles, le 24 juin 1929,
p.p. de la Société dite:
Union Chimique Belge, S.A.
p.p. de L. Baeconin,