

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 686.161

Procédé permettant d'utiliser l'hydrogène et la chaleur contenus dans le méthane et produit résultant de ce procédé.

Société dite : RUHRCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Allemagne.

Demandé le 5 décembre 1929, à 15^h 51^m, à Paris.

Délivré le 8 avril 1930. — Publié le 23 juillet 1930.

(8 demandes de brevets déposées en Allemagne : 1 le 6 décembre 1928; 6 le 26 janvier 1929; 1 le 16 février 1929. — Déclaration du déposant.)

Le développement économique progressif actuel oblige à utiliser rationnellement les réserves de combustibles. Dans le traitement de ceux-ci on produit chaque jour sur une très grande échelle des mélanges gazeux dont la composition varie fortement suivant la matière de départ et l'utilisation. Les procédés utilisés autrefois, et qui le sont encore fréquemment aujourd'hui, procédés consistant à utiliser directement comme combustibles les mélanges gazeux ainsi produits, qui contiennent des quantités de chaleur différentes, ont été reconnus peu pratiques ou n'ont pu se maintenir devant les efforts tendant à utiliser rationnellement les combustibles.

Les principaux éléments des mélanges gazeux obtenus dans la distillation du charbon et de produits carboniques sont l'oxyde de carbone, l'hydrogène et des hydrocarbures aliphatiques et aromatiques. Les hydrocarbures aliphatiques sont représentés principalement par le méthane, et les hydrocarbures aromatiques par le benzol. Alors que les hydrocarbures aromatiques, qui sont liquides dans les conditions normales, sont ordinairement extraits des mélanges gazeux par des procédés connus, l'extraction des

hydrocarbures aliphatiques, et en particulier celle du méthane, n'ont pas été reconnues pratiques. L'élimination du méthane, qui est chimiquement extrêmement lent dans ses réactions, n'est essentiellement possible que par le refroidissement à basse température, ce procédé entraînant avant tout des frais élevés. Son application ne se justifierait que si l'industrie avait besoin de grandes quantités de méthane et si celui-ci était payé suffisamment cher. Or, comme le méthane, ainsi qu'on vient de le dire, réagit chimiquement fort lentement, et comme il possède des propriétés de combustion défavorables lorsqu'il est brûlé seul, à cause de la faible vitesse de sa combustion, malgré son pouvoir calorifique élevé, on s'est vu obligé de renoncer à éliminer ce corps et de brûler tels quels, sans en extraire le méthane, les gaz riches en méthane obtenus sur une très grande échelle dans l'industrie.

Ces mélanges gazeux (ou le méthane brûlé seul ou dilué) ne peuvent servir de source de force motrice que dans des machines stationnaires, à cause de la difficulté de leur condensation. Or, actuellement on demande de plus en plus de combustibles pour des machines mobiles, en particulier pour des

moteurs de véhicules. Il s'agit avant tout de combustibles liquides et principalement des essences de sortes les plus diverses, c'est-à-dire de liquides à bas point d'ébullition, et aussi depuis quelque temps, dans une mesure croissante, de benzol, et des mélanges des deux sortes qui viennent d'être mentionnées. D'autre part, les gaz riches en méthane sont très abondants. C'est pourquoi il est très désirable qu'on trouve un moyen par lequel le méthane produit journallement en quantités extrêmement grandes puisse être transformé en produits très demandés tels que les combustibles liquides, en particulier des hydrocarbures pour l'industrie chimique et d'autres industries.

Le méthane, qui est l'élément le plus bas de la série des hydrocarbures aliphatiques saturés, réunit les deux éléments constituant la base de la production industrielle de chaleur, c'est-à-dire le carbone et l'hydrogène. Considéré à ce point de vue, le méthane serait un combustible idéal. Toutefois sa lenteur de réaction chimique et sa faible vitesse de combustion empêchent de l'utiliser comme combustible. En outre, il paraît indiqué d'utiliser la grande quantité d'hydrogène contenue dans le méthane, non seulement comme combustible, mais aussi pour d'autres usages qui se présentent de plus en plus, par exemple la fixation de l'azote.

Il semble superflu de donner des indications particulières sur les avantages de l'utilisation de l'hydrogène contenu dans le méthane pour ces usages industriels actuellement très répandus.

Lorsqu'on transforme le méthane en mélanges gazeux contenant de l'hydrogène ou en hydrogène, on peut utiliser commodément ces produits de la transformation pour le réglage du pouvoir calorifique vers le bas, c'est-à-dire pour abaisser le pouvoir calorifique de gaz ayant un pouvoir calorifique très élevé, car on sait que sous le rapport du volume l'hydrogène a un pouvoir calorifique très bas. Par contre, lorsqu'il s'agira d'augmenter le pouvoir calorifique de gaz ayant un pouvoir calorifique peu élevé, on y ajoutera du méthane directement.

On sait qu'on peut extraire l'hydrogène contenu dans le méthane, ainsi que dans d'autres hydrocarbures aliphatiques, par le

chauffage, et qu'on obtient simultanément un dépôt de carbone. Une telle utilisation du méthane est presque toujours peu pratique à cause du peu de valeur industrielle du carbone solide ainsi formé. Récemment on a mis au point plusieurs procédés par lesquels on réussit à extraire par dissociation la majeure partie de l'hydrogène contenu dans le méthane et d'autres hydrocarbures en transformant simultanément le carbone en hydrocarbures liquides contenant peu d'hydrogène. Il y a lieu de citer principalement les procédés de Franz Fischer et de ses collaborateurs, procédés par lesquels le méthane ou les gaz qui en contiennent sont transformés, par un court chauffage à des températures élevées ou par un autre traitement, en hydrocarbures solides ou liquides, notamment en hydrocarbures du benzol, avec une séparation simultanée de quantités proportionnelles d'hydrogène.

Les procédés indiqués ci-dessous pour l'utilisation de l'hydrogène et de la chaleur contenus dans le méthane pur ou dilué utilisent avant tout ceux qui viennent d'être cités. Il est essentiel que le méthane soit transformé, par une application unique ou répétée de ces procédés, en un mélange contenant plus ou moins d'hydrogène, tandis qu'une quantité correspondante du carbone contenu dans le méthane est transformée simultanément, non pas en carbone solide, mais en hydrocarbures contenant peu d'hydrogène, principalement en hydrocarbures du benzol et du goudron. Cela fait, le mélange modifié ou les différents éléments sont utilisés, après la décomposition du mélange, en mélange quelconque ou individuellement, comme combustible ou comme addition à des combustibles gazeux ou pour d'autres usages industriels.

Toutefois le présent procédé n'est pas limité à l'utilisation du méthane pour les usages indiqués ci-dessous. On a reconnu par exemple que le rendement en hydrocarbures du benzol ou du goudron peut être augmenté dans tous les cas lorsqu'on ajoute au méthane ses homologues supérieurs tels que l'éthane et le propane ou des corps de la série de l'éthylène ou de l'acétylène. Suivant la quantité et la nature des corps des séries homologues à non saturation simple ou mul-

5 tiple; corps ajoutés au méthane ou le remplaçant partiellement ou complètement, il convient, pour obtenir le maximum de rendement, de régler particulièrement la température ainsi que la durée du chauffage envisagé. Les corps obtenus indépendamment du méthane et appartenant aux séries homologues en question, par des procédés connus (par exemple le procédé Concordia-Linde-Bronn), par exemple dans la décomposition du gaz de fours à coke et du gaz d'éclairage, peuvent aussi être soumis séparément ou mélangés entre eux sans méthane, à un procédé de transformation analogue à la trans-
15 formation du méthane.

Si l'on part par exemple de méthane à 100 p. 100 dans la dissociation du méthane, on obtient, après l'élimination des hydrocarbures du benzol et du goudron, un gaz
20 composé essentiellement de méthane et d'hydrogène et d'une petite quantité d'hydrocarbures gazeux. Dans le procédé en question de décomposition du méthane, la continuation de la transformation est limitée
25 par le fait que le rendement en hydrocarbures du benzol et du goudron extraits du méthane dilué par exemple avec de l'hydrogène, diminue continuellement, lorsqu'on utilise une même quantité de chaleur, au
30 fur et à mesure que la dilution du méthane augmente, de sorte qu'il n'est pas possible d'obtenir économiquement une utilisation complète du méthane dans le traitement.

35 On obtient un tel traitement intégral en concentrant de nouveau le méthane dilué pendant la décomposition, résultat qu'on obtient en accouplant l'installation de décomposition du méthane avec une installation
40 de décomposition de gaz pouvant fonctionner de façon connue, par exemple par le procédé Concordia-Linde-Bronn déjà cité ou par un autre procédé. On peut alors obtenir également, en séparant les gaz qui diluent
45 le méthane, un méthane dont la concentration est égale ou semblable à celle du méthane de départ, de sorte qu'il peut être renvoyé, le cas échéant après addition de méthane frais, dans l'appareil de décomposition du méthane. En répétant ce procédé
50 on arrive à traiter intégralement le méthane. En pratique on peut aussi opérer de façon à

prendre le gaz provenant de la décomposition du méthane, à le mélanger avec d'autres gaz contenant du méthane, par exemple du gaz
55 de cokerie et l'envoyer dans une installation de décomposition de gaz.

Ce procédé est surtout plein de promesses au point de vue économique lorsqu'on part dès le début d'un méthane obtenu dans un
60 appareil de décomposition de gaz et ne contenant par conséquent que très peu d'impuretés. Transformé par le procédé cité, un tel méthane donne non seulement des
65 hydrocarbures très purs, entre autres des hydrocarbures entièrement exempts de soufre, les uns à point d'ébullition bas et les autres à point d'ébullition élevé, l'hydrogène obtenu en plus du méthane dans la
70 décomposition à concentration des gaz de transformation est aussi d'une très grande pureté, ce qui est très précieux pour les usages industriels.

Le procédé, décrit ci-dessus, de traitement intégral du méthane peut naturellement être
75 utilisé aussi pour le traitement intégral de mélanges contenant, en plus du méthane ou au lieu du méthane, des homologues de celui-ci ainsi que de l'éthylène et de l'acétylène ou leurs homologues.
80

Le procédé mentionné de dissociation du méthane et de gaz contenant du méthane ou du gaz contenant d'autres hydrocarbures aliphatiques en plus ou au lieu du méthane, est particulièrement intéressant en ce qui
85 concerne la production de gaz d'éclairage ou de gaz combustibles analogues. La production de ces gaz par la dissociation du méthane en carbone et en hydrogène est peu économique, parce que dans cette décom-
90 position le pouvoir calorifique du gaz est réduit par la séparation de carbone solide de qualité médiocre pour le chauffage industriel. C'est pourquoi ces procédés de décomposition du méthane n'ont une certaine
95 importance que lorsqu'il s'agit d'utiliser l'hydrogène qui se dégage, soit dans des transformations catalytiques, soit dans d'autres usages de haute valeur pouvant supporter une telle charge économique, parce qu'un tel
100 procédé aura toujours l'inconvénient, déjà mentionné, de la séparation du carbone sous une forme qui n'est pas rationnelle au point de vue économique.

Par contre, par l'utilisation rationnelle du procédé de dissociation du méthane ou d'autres hydrocarbures aliphatiques en hydrocarbures contenant peu d'hydrogène et en hydrogène, on réussit à utiliser les gaz cités plus haut pour la production du gaz d'éclairage ou de gaz combustibles analogues. Au lieu du méthane on peut également utiliser, pour la décomposition, des homologues du méthane ou des corps de la série de l'éthylène ou de l'acétylène, soit individuellement sans méthane, soit mélangés de façon appropriée sans méthane, soit encore mélangés avec du méthane. On a constaté que si l'on part de gaz riches en hydrocarbures ce procédé permet d'obtenir de façon économique des gaz utilisables, contrairement au gaz de départ, pour assurer une distribution de gaz ou pour des usages analogues. Ceci est important par exemple pour des villes ou des régions dans lesquelles on dispose, pour une raison quelconque, de gaz riches en hydrocarbures, pouvant être transformés suivant la présente invention, ce qui permet parfois de se dispenser d'installer une usine à gaz municipale.

Ce procédé est également plein de promesses en ce qu'il permet par exemple une réduction des conduites d'une distribution de gaz à longue distance, en envoyant par ces conduites, jusqu'au point d'utilisation, du méthane de peu de volume et d'un grand pouvoir calorifique, et en ne transformant ce méthane qu'au point d'utilisation ou de distribution, par le procédé indiqué, en un gaz combustible approprié pour une distribution de gaz d'éclairage, gaz ayant un volume supérieur, un pouvoir calorifique inférieur et des propriétés de combustion normales. On citera à titre d'exemple l'application suivante du procédé décrit, sans que cette application soit limitée toutefois à un gaz d'une telle composition.

En partant d'un gaz riche en méthane et ayant la composition suivante : acide carbonique 0,0 %; hydrocarbures lourds 0,9 %; oxygène 0,3 %; oxyde de carbone 1,6 %; hydrogène 0,8 %; méthane 92 %; azote 4,7 %; on réussit, le carbone de décomposition mentionné étant extrait sous forme d'hydrocarbures du goudron ou du benzol, qui ont une haute valeur, à obtenir un gaz

ayant la composition suivante : acide carbonique 0,6 %; hydrocarbures lourds 3,4 %; oxygène 0,2 %; oxyde de carbone 1,0 %; hydrogène 65,3 %; méthane 26,2 %; azote 3,5 %, et correspondant à un excellent gaz d'éclairage tout à fait normal ne contenant pas d'éléments inertes.

Le méthane utilisé pour la décomposition peut provenir de sources naturelles, d'une installation de décomposition de gaz ou d'autres opérations industrielles. Suivant la nature et la concentration des hydrocarbures du gaz de départ on poussera le traitement thermique jusqu'à ce qu'il en résulte un gaz correspondant à ce qu'on exige du gaz combustible normal. Les sous-produits tels que le benzol, le goudron, etc. obtenus dans chaque cas envisagé, sont extraits de façon connue.

Il y a un problème dont on s'est occupé fréquemment, mais qui n'a reçu jusqu'ici aucune solution satisfaisante, c'est celui de la transformation de combustible solide en gaz tellement semblables aux gaz des distributions usuelles qu'ils peuvent servir directement pour les distributions de gaz. On a cherché par exemple, par une combinaison de procédés de distillation à basse température avec une gazéification ultérieure du demi-coke obtenu, à produire, dans des gazogènes de gaz à l'eau ou dans des gazogènes ordinaires, des gaz ayant des propriétés analogues à celles du gaz d'éclairage. On obtient ainsi des gaz ayant le même pouvoir calorifique que le gaz d'éclairage, mais les propriétés de combustion sont totalement différentes de celles du gaz d'éclairage. D'autres procédés n'ont également pas donné de résultats satisfaisants.

Or la fabrication de gaz d'éclairage ou de mélanges gazeux semblables au gaz d'éclairage avec l'utilisation intégrale de combustibles solides réussit de la façon suivante.

On gazéifie du charbon ou des combustibles carboniques solides dans le gazogène de gaz à l'eau, le cas échéant de façon continue, en utilisant de l'oxygène ou de l'air de combustion enrichi en oxygène. Les gaz ainsi obtenus, contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène, sont soumis, après épuration préalable, à un procédé connu de

la synthèse de l'essence; à cet effet on fait par exemple passer les gaz, aux pressions ordinaires ou sous des pressions élevées et à une température élevée, sur des corps de contact ayant une action catalytique. Dans cette transformation on obtient, en plus d'hydrocarbures liquides à base d'essence pouvant être extraits du gaz par des procédés connus, des hydrocarbures aliphatiques volatils, à moins qu'on ne préfère partir directement du méthane. On peut régler le cas échéant la concentration de ces hydrocarbures en intercalant, de façon à séparer les éléments non désirés du gaz, un appareil de décomposition de gaz fonctionnant suivant un procédé connu, par exemple une installation utilisant le procédé Concordia-Linde-Bronn. Les gaz ayant la concentration désirée en hydrocarbures sont ensuite décomposés en hydrogène et en hydrocarbures par l'un des procédés cités de dissociation du méthane. Par ce procédé, en transformant une partie du méthane en hydrocarbures aromatiques solides ou liquides, de préférence en hydrocarbures du benzol, on produit simultanément un gaz ayant par exemple la composition suivante : 0,0 % d'acide carbonique, 3, 4 % d'hydrocarbures lourds, 0,2 % d'oxygène, 1,0 % d'oxyde de carbone, 65,3 % d'hydrogène, 26,2 % de méthane, 3, 5 % d'azote et correspondant entièrement à un excellent gaz d'éclairage normal. On peut donc, par l'utilisation primaire de la gazéification de combustibles carboniques solides dans un gazogène de gaz à l'eau et la transformation secondaire des gaz ainsi obtenus en méthane ou en gaz contenant du méthane, le cas échéant avec une production simultanée d'essence et une transformation ultérieure de ces gaz contenant du méthane et le cas échéant concentrés, transformation accompagnée d'une production de benzol et d'autres hydrocarbures ayant une teneur en hydrogène réduite par rapport au méthane, transformer intégralement les combustibles carboniques solides, par un procédé continu, en gaz d'éclairage de haute valeur.

On sait qu'en partant de mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène ou de gaz contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène, on peut produire de l'essence ou des

corps semblables à l'essence. On obtient ce résultat en faisant passer les gaz à la pression ordinaire ou sous une haute pression et à une température élevée sur des corps de contact ayant une action catalytique. Dans cette transformation il se produit, à partir d'oxyde de carbone et d'hydrogène, en plus de l'essence liquide extraite du gaz par le procédé connu, des hydrocarbures tels que le méthane ou des corps voisins du méthane, qui sont volatils à la température ordinaire. On sait aussi qu'en ajoutant du benzol à l'essence, on peut enlever à l'essence sa propriété désagréable de provoquer un léger cognement dans les moteurs.

Si l'on soumet des mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène ou de gaz contenant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène d'abord à un procédé de fabrication d'hydrocarbures de l'essence, et les gaz débarrassés de l'essence à un procédé de transformation des hydrocarbures incondensables contenus dans les gaz en hydrocarbures du benzol et si l'on extrait le benzol de ces gaz, on obtient, en mélangeant les hydrocarbures de l'essence et les hydrocarbures du benzol produit dans cette opération continue, un combustible moteur précieux très efficace dans les moteurs et ne faisant pas cogner ceux-ci.

Il s'agit dans bien des cas de régler le pouvoir calorifique d'un gaz combustible, par exemple du gaz d'éclairage, à une valeur donnée de façon à le maintenir constant, car l'utilisation économique du gaz augmente lorsque la nature du gaz est constante. En pareil cas, il est possible d'augmenter le pouvoir calorifique par les moyens connus qui sont, soit la carburation, soit l'addition de méthane ou de gaz de distillation à basse température.

Toutefois on désire souvent aussi réduire le pouvoir calorifique, ou bien cela est nécessaire. Ceci se faisait jusqu'ici en ajoutant des gaz riches en azote et ayant un pouvoir calorifique peu élevé, par exemple du gaz à l'eau ou du gaz pauvre. Toutefois, l'addition de ces gaz augmente le poids spécifique du gaz combustible. On sait que lorsque le poids spécifique augmente les vitesses de sortie des gaz sortant des ajutages des brûleurs diminuent. Les propriétés de combustion

sont ainsi altérées et rendues plus mauvaises; il se produit parfois des retours de flamme, la combustion est imparfaite et vacillante.

5 On réussit de la façon suivante à régler le pouvoir calorifique du gaz sans modifier sensiblement ses propriétés de combustion.

On prélève une partie du courant de gaz total destiné à la combustion ou bien on prend à une autre source de gaz une proportion, aliquote à la quantité de gaz, d'un gaz de composition semblable. On envoie cette partie dans un appareil de décomposition du gaz. Si l'on utilise du gaz d'éclairage et si l'on applique ce procédé, on obtient des fractions de gaz riche contenant le propylène, l'éthylène, l'éthane ou le méthane et par suite la partie essentielle du gaz en ce qui concerne le pouvoir calorifique, ainsi que des fractions contenant de l'oxyde de carbone et l'hydrogène et n'ayant qu'un pouvoir calorifique peu élevé. Les fractions pauvres en hydrogène du gaz riche sont transformées entièrement ou partiellement, par exemple par le chauffage sans pression ou par des catalyseurs, en mélanges gazeux à haute teneur en hydrogène. Le goudron ainsi formé le cas échéant, ou le benzol, ou les autres composés solides ou liquides pouvant se produire, sont extraits du gaz par des procédés également connus. On mélange de nouveau avec celles des fractions de la décomposition du gaz qui ont un faible pouvoir calorifique les gaz ainsi obtenus contenant beaucoup d'hydrogène et n'ayant qu'un faible pouvoir calorifique, et on les ajoute le cas échéant de nouveau au gaz combustible, dont on peut ainsi faire varier le pouvoir calorifique à volonté, suivant la quantité détournée pour la décomposition, sans altérer ou diminuer sensiblement ses propriétés de combustion.

On peut aussi procéder d'autre façon en traitant en vue d'autres usages une partie ou la totalité des fractions à pouvoir calorifique peu élevé ou riches en hydrogène et en ajoutant de nouveau au gaz les fractions de gaz riche transformées entièrement ou partiellement. On peut toujours choisir la quantité ou le degré de transformation de façon à obtenir un gaz ayant les propriétés

désirées. On peut aussi, par le procédé cité, transformer en gaz riches des gaz pauvres tels que le gaz de gazogène ou le gaz de hauts-fourneaux. En ajoutant des gaz riches contenant primitivement beaucoup d'hydrocarbures et transformés totalement ou partiellement par le procédé cité, on obtient des gaz combustibles plus riches en hydrogène pouvant remplacer le gaz d'éclairage dans les usages envisagés. On voit que ce procédé permet donc de régler le pouvoir calorifique économiquement et suivant les besoins, sans modifier sensiblement de façon quelconque les propriétés de combustion du gaz. Il est évident qu'on peut aussi utiliser ce procédé lorsqu'il s'agit simplement d'obtenir un enrichissement en hydrogène.

On a proposé d'utiliser la forte chaleur de combustion du méthane pour le travail autogène des métaux. La réalisation pratique a échoué jusqu'ici parce que la vitesse de combustion du méthane est trop petite pour cet usage. On a constaté par des essais qu'une addition d'hydrogène au méthane remédie suffisamment à cet inconvénient en augmentant la vitesse de combustion. Si le méthane n'a cependant pas pu être utilisé sur une grande échelle pour le travail autogène des métaux, cela provient de ce qu'il fallait, pour obtenir l'effet désiré, par exemple dans la décomposition du gaz de fours à coke, ajouter de nouveau au méthane entièrement ou partiellement, l'hydrogène préalablement séparé du méthane par une opération difficile. Lorsque le méthane est du gaz naturel, il faudrait même se procurer de l'hydrogène provenant d'une autre source, ce qui renchérirait considérablement le mélange gazeux.

Quant à la transformation du méthane pur en méthane ayant une teneur en hydrogène telle que le mélange gazeux puisse servir à la soudure, en évitant l'addition toujours coûteuse d'hydrogène, on peut la réaliser simplement en chauffant le méthane à une température de 900° à 1200° pendant très peu de temps par un traitement simple ou répété, ou en le mettant en contact avec des surfaces ayant cette température. Pendant ce chauffage le méthane se décompose suivant la température, la durée du chauffage et

l'étendue de la surface active, de façon bien réglable telle que le gaz sortant contienne jusqu'à 60 % d'hydrogène. Pendant le chauffage la chaleur du méthane sortant

5 peut être transmise au gaz allant à la réaction, cette transmission se faisant par régénération, récupération ou sous une autre forme usuelle de l'échange de température.

10 Le gaz sortant est essentiellement un mélange de méthane et d'hydrogène pouvant être mis dans des bouteilles en acier après refroidissement et traitement usuel par compression ou transporté jusqu'au point d'utilisation de toute autre façon usuelle.

15 Pour la fabrication de mélanges gazeux riches en hydrogène particulièrement propres au travail autogène des métaux on pourrait aussi utiliser, suivant le procédé décrit, des mélanges contenant, en plus ou au lieu du

20 méthane, des homologues du méthane ainsi que d'autres hydrocarbures aliphatiques.

Pour la dissociation d'hydrocarbures aliphatiques en hydrocarbures contenant peu d'hydrogène avec production simultanée d'hydrogène, on peut utiliser tous les procédés connus jusqu'ici. On a déjà dit à différentes reprises que le procédé, trouvé par Franz Fischer et ses collaborateurs, de dissociation d'hydrocarbures aliphatiques par un

30 court chauffage à de hautes températures avec ou sans catalyseurs, convenait bien dans ce but. On a d'ailleurs constaté aussi qu'un autre procédé convient également particulièrement bien, c'est le traitement d'hydrocarbures tels que le méthane, l'éthylène ou leurs homologues ou de mélanges qui en contiennent (par exemple le gaz de fours à coke, le gaz naturel, le gaz résiduel de la synthèse du benzol ou des gaz contenant

40 du méthane et produits par la transformation catalytique de mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène), ces gaz ou mélanges étant soumis à l'action de champs électriques (tels que des oscillations à haute fréquence) sous une pression réglée suivant la nature de ces champs. Les hydrocarbures indiqués séparent de l'hydrogène en même temps qu'il se produit des produits de polymérisation pouvant être extraits le cas échéant. On évite aussi

50 dans ces conditions la diminution de pouvoir calorifique extrêmement antiéconomique produite par exemple par la séparation de

carbone solide de qualité médiocre, séparation inévitable dans le procédé de pyrolyse (cracking), généralement usité. 55

La séparation de l'hydrogène avec formation de produits de polymérisation pouvant être extraits est particulièrement franche et son rendement est bon, lorsque le traitement électrique est combiné avec le traitement thermique de façon que le chauffage soit accompagné par l'action simultanée des champs électriques ou ait lieu immédiatement après cette action. Dans ce procédé combiné on réussit à augmenter sensiblement le rendement en hydrocarbures liquides et en hydrocarbures solides pouvant être extraits, par rapport au rendement des divers procédés pour la même dépense de chaleur ou d'énergie électrique. 60 65 70

Les gaz enrichis en hydrogène peuvent être soumis à un traitement ultérieur suivant l'usage envisagé, comme on l'a décrit plus haut.

On peut par exemple, par un procédé connu de refroidissement à basse température ou un procédé analogue, débarrasser l'hydrogène des corps étrangers indésirables provenant de la décomposition, en utilisant ces corps économiquement, et l'utiliser pour la catalyse. 75 80

On peut aussi utiliser le procédé pour transformer le gaz riche en hydrocarbures provenant d'une décomposition de gaz de fours à coke ou d'une source naturelle, le cas échéant de façon à obtenir simultanément des produits de condensation pouvant être utilisés économiquement, en un gaz voisin du gaz d'éclairage quant à sa composition et ses propriétés d'utilisation et propre à être distribué. 85 90

Un autre but que le traitement proposé permet d'atteindre consiste à utiliser le procédé en question pour régler le pouvoir calorifique de gaz distribué à longue distance en produisant, à partir de la totalité ou d'une partie de ce gaz, ou d'un autre gaz de composition analogue, dans une installation de décomposition de gaz dans laquelle on opère suivant des procédés connus une fraction enrichie en hydrocarbures qu'on expose à l'action des champs électriques. Après transformation on débarrasse les gaz provenant de la décomposition de leurs élé- 95 100

ments indésirables par des procédés connus et on les mélange aux fractions de décomposition pauvres en hydrocarbures ou on les ajoute seules au gaz distribué à longue distance dont on peut régler le pouvoir calorifique à volonté par ce procédé suivant la quantité de gaz prélevés et le degré de décomposition. Enfin on peut transformer intégralement en hydrogène et en produits de condensation un gaz riche contenant des hydrocarbures et difficile à utiliser, en utilisant le procédé de traitement électrique à plusieurs reprises le cas échéant après épuration préalable avant chaque nouveau traitement.

Un fait qui a une grande importance au point de vue industriel, c'est que dans le traitement électrique des gaz la composition des gaz définitifs peut être adaptée de façons très différentes aux usages envisagés, ce résultat étant obtenu par le réglage de la pression, de l'intensité ainsi que de la durée et de la nature de l'action des champs électriques. Par une épuration ultérieure suivant des procédés connus, on peut éliminer du gaz provenant de la transformation les éléments indésirables pour l'usage définitif.

Il reste à dire que tous les modes d'utilisation indiqués plus haut pour des mélanges gazeux obtenus par la dissociation de méthane ou de mélanges gazeux contenant du méthane, s'appliquent aussi aux mélanges gazeux obtenus par la dissociation de l'éthylène et de l'acétylène ou de leurs homologues ou par un traitement, en vue du même but, de mélanges gazeux contenant des composés en plus ou au lieu de méthane.

On ajoutera également qu'on peut utiliser pour la catalyse ou des usages analogues après un traitement approprié, non seulement l'hydrogène produit par l'action de champs électriques à partir d'hydrocarbures ou de mélanges contenant des hydrocarbures, mais aussi celui qu'on obtient d'autre façon quelconque par la dissociation d'hydrocarbures.

RÉSUMÉ :

1° Procédé permettant d'utiliser l'hydrogène et la chaleur contenue dans le méthane pur ou dilué, ainsi que dans des mélanges

gazeux de composition quelconque contenant du méthane, procédé comportant la décomposition du méthane en corps contenant plus ou moins de chaleur et caractérisé par le fait qu'on prépare en partant du méthane, par l'application simple ou répétée de procédés connus, en transformant le carbone en hydrocarbures contenant peu d'hydrogène, principalement en hydrocarbures du benzol et du goudron, en général du type C^xH^y , un mélange contenant plus ou moins d'hydrogène, après quoi le mélange primitif ou les éléments obtenus par la décomposition du mélange sont utilisés, en mélange quelconque ou individuellement, comme combustible ou comme addition à des combustibles gazeux ou pour d'autres usages industriels.

Ce procédé peut être caractérisé en outre par les points suivants, ensemble ou séparément.

a. Avant le traitement, le méthane ou les gaz contenant du méthane sont mélangés avec des corps homologues tels que l'éthane, l'éthylène, l'acétylène, ou des homologues de la série de l'éthylène ou de l'acétylène, seuls ou mélangés entre eux.

b. Au lieu du méthane on transforme des homologues du méthane, de l'éthylène, de l'acétylène ou des corps de la série de l'éthylène ou de l'acétylène, seuls ou mélangés entre eux, ou des mélanges gazeux contenant ces corps.

c. Pour traiter intégralement les gaz contenant les hydrocarbures cités, lorsque la transformation a eu lieu et que les hydrocarbures à point d'ébullition bas et les hydrocarbures à point d'ébullition élevé qui se sont formés ont été sensiblement éliminés, les gaz sont traités dans un appareil de décomposition et débarrassés de façon connue des gaz dilués qui se sont produits et qui peuvent être envoyés à d'autres transformations telles que des réactions catalytiques, et ce dans la mesure indispensable pour une nouvelle transformation des gaz, le procédé pouvant être répété le cas échéant après chaque transformation.

d. On ajoute du méthane frais au méthane concentré de nouveau.

e. Le gaz transformé est envoyé dans un appareil de décomposition, en vue de sa

décomposition, mélangé avec d'autres gaz, par exemple du gaz de cokerie.

f. Pour fabriquer du gaz d'éclairage ou des gaz combustibles analogues on prend 5 du méthane ou des gaz qui en contiennent et on les transforme en gaz de composition analogue à celle du gaz d'éclairage normal, le carbone qui se sépare étant obtenu 10 sous forme d'hydrocarbures contenant peu d'hydrogène, en général de corps du type C^xH^y .

g. La transformation a lieu au point d'utilisation ou de distribution.

h. Pour obtenir des gaz propres à la dis- 15 tribution par l'utilisation intégrale de combustibles solides, on transforme d'abord ces combustibles solides en gaz à l'eau à partir duquel on produit, par le procédé connu, le cas échéant en obtenant des hydrocarbures 20 de l'essence, des gaz contenant du méthane, gaz qu'on transforme en gaz d'éclairage par des procédés également connus, le cas échéant après concentration et en produisant simultanément des hydrocarbures contenant peu 25 d'hydrogène, en général des corps du type C^xH^y .

i. Pour obtenir un combustible ne faisant pas cogner les moteurs, à partir d'un mélange gazeux contenant de l'oxyde de carbone et 30 de l'hydrogène, on soumet d'abord ce mélange à un procédé de synthèse de l'essence et après avoir obtenu les hydrocarbures aliphatiques condensables on soumet le gaz résiduel contenant les hydrocarbures ali- 35 phatiques non condensables à un procédé connu de préparation d'hydrocarbures du benzol, qu'on extrait du gaz au moyen d'un lavage par un procédé connu et qu'on ajoute à l'essence obtenue en premier lieu, le cas 40 échéant après épuration.

j. Pour régler le pouvoir calorifique de gaz combustibles on traite une partie ou la totalité du gaz combustible ou une quantité aliquote d'une autre source de gaz de com- 45 position analogue dans une installation de décomposition de gaz, de façon connue, en vue d'obtenir des fractions de gaz pauvres en hydrogène, riches en hydrocarbures et ayant un pouvoir calorifique élevé, qu'on 50 transforme par un procédé également connu en mélanges gazeux ayant un pouvoir calorifique moins élevé, plus riches en hydrogène

qu'on mélange avec les fractions riches en hydrogène et ayant un pouvoir calorifique moins élevé provenant de la décomposition 55 du gaz, et qu'on ajoute le cas échéant de nouveau au gaz combustible.

k. On n'ajoute de nouveau au gaz combustible ou bien on n'utilise comme gaz combustible que les mélanges gazeux obtenus à 60 partir des fractions de gaz riches ayant été transformées.

l. Pour faire des mélanges d'hydrocarbures avec de l'hydrogène pour le travail autogène des métaux, on soumet le méthane à un trai- 65 tement simple ou répété par lequel il est transformé dans une mesure plus ou moins grande en hydrogène et en hydrocarbures contenant peu d'hydrogène.

m. L'hydrogène produit au cours de la 70 transformation est utilisé pour des transformations catalytiques après élimination plus ou moins complète ou totale des autres éléments indésirables du gaz, par un refroidissement à basse température ou par des 75 procédés analogues.

n. Pour obtenir de l'hydrogène ou des gaz riches en hydrogène, on soumet les gaz sous une pression déterminée et réglée à l'action de champs électromagnétiques (par 80 exemple à des oscillations de haute fréquence) et ceux des produits de la réaction qui sont inutilisables pour les usages envisagés sont éliminés, de façon connue, du gaz provenant de la transformation, ces produits étant 85 obtenus le cas échéant dans des conditions économiques.

o. Dans le traitement électrique la composition des gaz définitifs est adaptée à l'usage final envisagé par le réglage de la pression, 90 ainsi que de la durée, de l'intensité et de la nature de l'action des champs électriques.

p. Les gaz sont soumis simultanément ou successivement à l'action d'un traitement électrique et d'un traitement thermique, la 95 durée de l'action, la pression, l'intensité et la nature des champs électromagnétiques, ainsi que la durée de l'action et la température pouvant être réglées au cours du traitement thermique suivant la nature des gaz 100 entrant en réaction ainsi que suivant la nature des produits définitifs désirés.

q. Les gaz de la réaction du traitement électromagnétique et du traitement combiné

électromagnétique et thermique sont soumis à des traitements ultérieurs par les procédés ci-dessus.

2° A titre de produits industriels nouveaux, les gaz ou mélanges gazeux obtenus à l'aide des procédés ci-dessus. 5

Société dite : RUHCHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT.

Par procuration :

Société BRANDON, SIMONNOT et RINUT.