

ΣΥΝΕΔΡΙΑ ΤΗΣ 7ΗΣ ΦΕΒΡΟΥΑΡΙΟΥ 1980

ΠΡΟΕΔΡΙΑ ΓΕΩΡΓΙΟΥ Ε. ΜΥΛΩΝΑ

ΜΕΤΑΛΛΕΙΟΛΟΓΙΑ.— **Un Procédé original pour la gazéification du pétrole, par L. Moussoulos** *.

La conversion oxydante des combustibles liquides en vue de la production d'un mélange gazeux d' H_2 et de CO a acquis les dernières années une grande importance industrielle.

Les procédés couramment employés traitent surtout de l'huile lourde et utilisent comme agents d'oxydation l'oxygène et la vapeur d'eau. Dans ces procédés, connus sous le nom de «Procédés d'Oxydation Partielle», une partie de l'huile utilisée est brûlée par l'oxygène pour fournir la chaleur nécessaire au cracking du reste; les produits qui en résultent réagissent entre eux et la vapeur d'eau pour donner finalement de l' H_2 et du CO. On obtient ainsi un mélange gazeux où la somme de ces deux constituants ($H_2 + CO$) représente environ le 90% du volume, le rapport H_2/CO étant de l'ordre de 1. Le processus se déroule dans des réacteurs qui opèrent à des températures entre 1000 et 1600°C et sous pressions supérieures à 60 kg/cm².

Dans le procédé que nous présentons ici, une technique foncièrement différente est appliquée. L'huile à gazéifier est traitée, sans apport d'oxygène, avec une certaine quantité d'eau seulement dans un réacteur original, chauffé à l'électricité. Les réactions ont lieu sous très faible

* ΛΟΥΚΑ ΜΟΥΣΟΥΛΟΥ, Πρωτότυπος μέθοδος διά την αεριοποίηση του πετρελαίου.

pression, de quelques millimètres d'eau, et à une température qui ne dépasse pas 800°C. Le produit de cette gazéification est un mélange gazeux où la somme $H_2 + CO$ continue à être très élevé, de l'ordre de 90 %, alors que le rapport H_2/CO se situe entre 2 et 3.

Il s'agit, en fait, d'un procédé allothermique qui présente de réels avantages au point de vue matières premières, conditions opératoires et qualité de gaz produit. Il peut être appliqué pour la conversion oxydante de tout combustible liquide et plus particulièrement du pétrole lourd.

DESCRIPTION DU RÉACTEUR

La particularité fondamentale du procédé est son réacteur ; celui-ci consiste d'un vase métallique clos soigneusement isolé et protégé par un revêtement réfractaire approprié. Il renferme une colonne incandescente de réaction, formée de lits de morceaux de coke alternant avec de lits de granules de magnésie, au milieu desquels sont disposées des couches d'un catalyseur au nickel.

La colonne ainsi composée est portée à la température voulue, dans la région de 800°C, par chauffage électrique. Le courant y est amené par des électrodes en graphite aménagés à travers les parois du réacteur ; il circule dans les lits de coke où il donne naissance à un nombre considérable de petits arcs voltaïques qui s'établissent entre les morceaux dont ces lits sont constitués. Dans de telles conditions, les lits de coke deviennent les sièges d'un fort dégagement de chaleur provenant d'une part de la présence des arcs et d'autre part du passage du courant. De là, la chaleur se transfère aux autres parties de la colonne qui acquiert ainsi une température uniforme sur toute sa hauteur. Des dispositifs de coupure et d'enclenchement automatiques du courant, actionnés par la température, sont prévus pour en assurer le contrôle.

Le réacteur peut être de forme prismatique ou cylindrique, à deux ou trois phases ; l'emploi des trois phases est préférable dans le cas du réacteur cylindrique. L'huile et l'eau arrivent par le sommet du réacteur et sont alimentées à taux constant au moyen de pompes de débit réglable. Le produit de la conversion quitte le réacteur par un trou de sortie situé à la partie inférieure de la colonne de réaction. Il s'agit d'un mé-

lange gazeux de composition stable où la somme des deux constituants combustibles, CO et H₂, est de l'ordre de 90⁰/₀. Dans ce mélange le rapport H₂/CO peut être facilement réglé entre 2 et 3 en faisant varier la quantité d'eau utilisée par unité d'huile.

Les fig. 1 et 2 donnent les dimensions et certains détails de construction du réacteur utilisé pour tester le procédé. Ce réacteur haut de

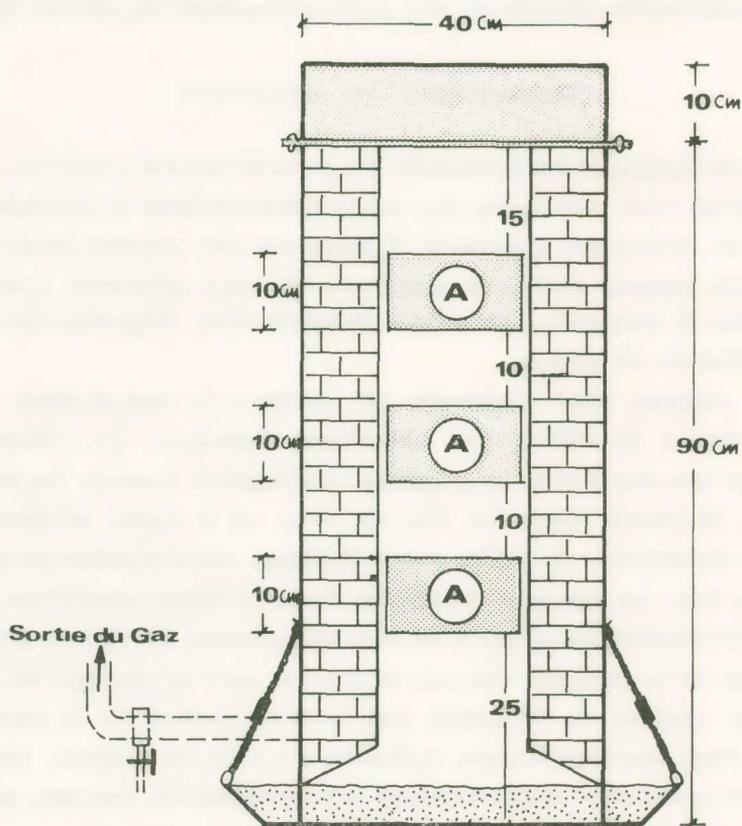


Fig. 1. Dimensions et détails de construction du réacteur d'essais.

90 cm, a la forme d'un prisme rectangulaire dont la section transversale libre est de 60 × 20 cm. Sa colonne de réaction comporte trois lits de coke séparés par le couches de magnésie. Au milieu de ses couches est disposé, en minces bandes, le catalyseur. La magnésie aussi bien que le

coke sont en granules de 20 à 30 mm ; il en est de même du catalyseur qui est constitué de granules de FeNi 30%.

Le réacteur est biphasé ; le courant est amené dans les trois lits de coke par les électrodes en graphite A et B qui sont branchées aux

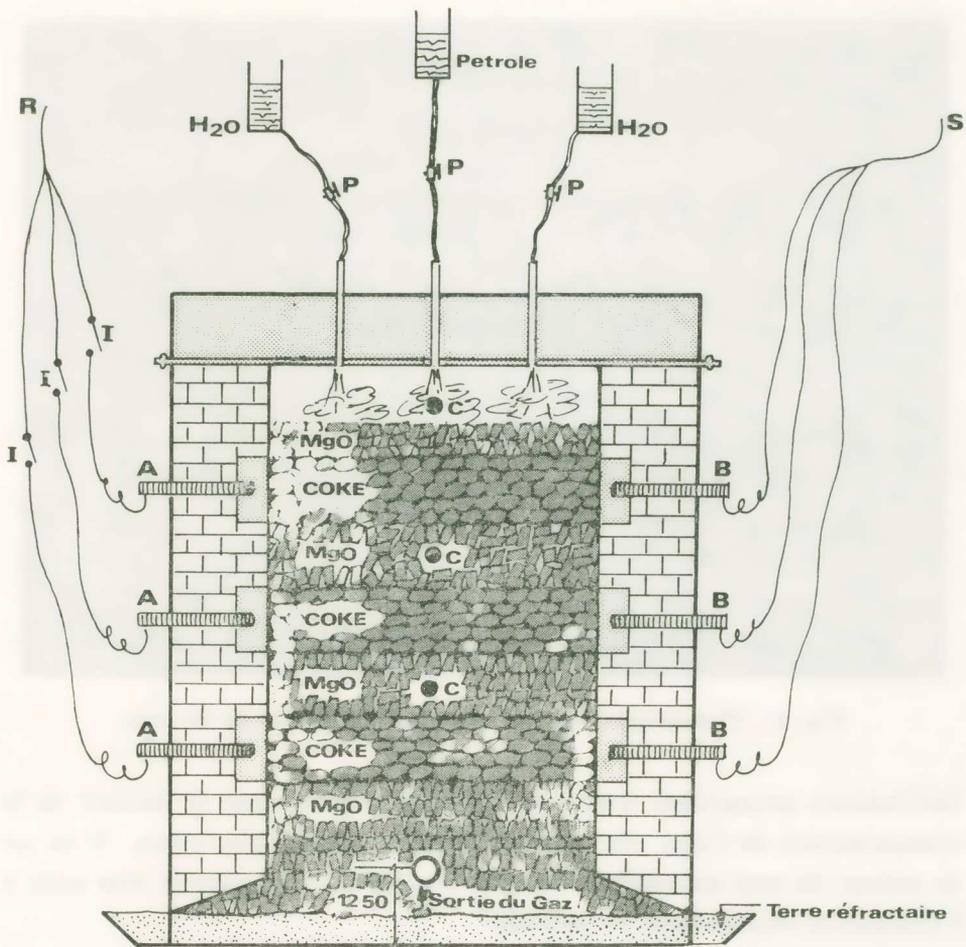


Fig. 2. Coupe verticale du réacteur de laboratoire montrant les détails de la colonne de réaction.

phases R et S d'un transformateur muni d'un commutateur pour le réglage du voltage. La photographie de la Fig. 3 présente l'aspect de ces lits pendant le passage du courant.

Trois couples C relèvent la température sur la surface de la colonne de réaction et en contrôlent les variations par l'intermédiaire des interrupteurs automatiques I. L'alimentation en mazout et eau se fait à rythme constant au moyen de deux pompes dosométriques P. Les

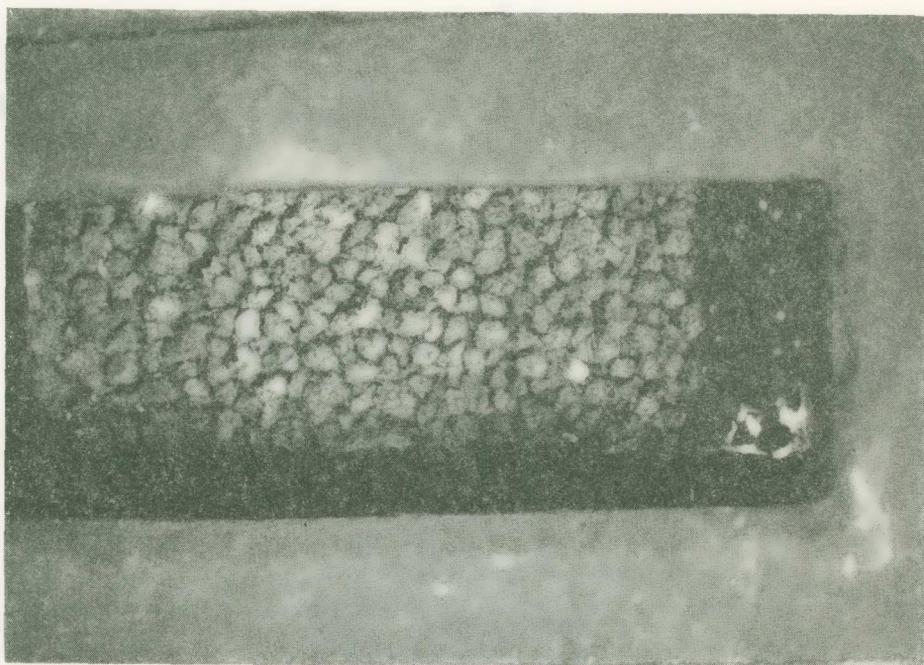


Fig. 3. Photographie des arcs voltaïques dans le lit de coke.

instruments nécessaires sont naturellement prévus pour la mesure de la consommation de l'eau, du mazout et de l'énergie électrique. Il en est de même de tout paramètre, tel que le $\cos\varphi$ G qui pourrait être utile à l'évaluation économique du procédé.

PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE

Avec le réacteur ci-dessus comme base, nous avons monté un poste d'essai aux Laboratoires de Métallurgie de l'Université Nationale Technique d'Athènes pour étudier la conversion du mazout. La photographie de la Fig. 4 illustre le dispositif expérimental mis en oeuvre ;

il s'agit en fait d'une petite installation pilote dont la capacité horaire est de l'ordre de 4 Nm³.

Dans une première série d'essais d'orientation nous nous sommes efforcés de définir les conditions opératoires les plus appropriées. C'est

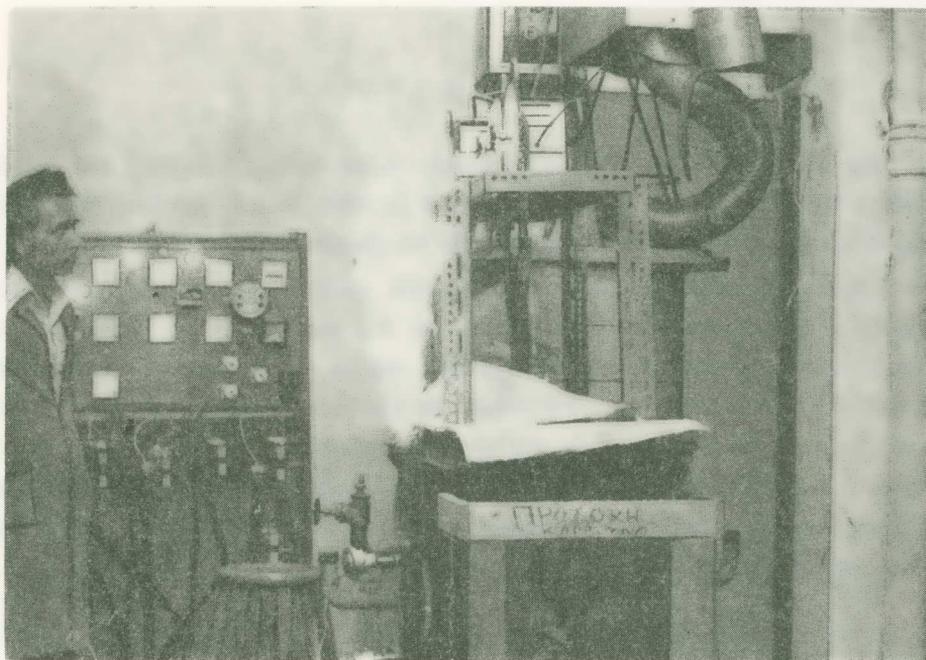


Fig. 4. Photographie de l'installation pilote.

ainsi que nous avons été amenés à retenir comme température de conversion celle qui correspond à 800⁰C, mesurée sur la paroi intérieure du réacteur et à fixer la procédure expérimentale de la façon suivante ;

1. Préchauffage du réacteur avant toute alimentation en le mettant sous tension et en suivant la température aux couples C jusqu'à ce qu'elle atteigne 800⁰C.

2. Maintien de cette situation pendant le temps nécessaire pour que les températures sur l'enveloppe métallique extérieure du réacteur se stabilisent.

3. Mesure dans les conditions de la stabilité ci-dessus de la consommation d'énergie électrique ce qui fournit les pertes par rayonnement

du réacteur et permet d'évaluer la consommation d'énergie par le procédé lui-même.

4. Alimentation du réacteur à rythme constant, échantillonnage systématique et analyse du gaz produit, dont la quantité est enregistrée par compteur approprié.

R É S U L T A T S

En suivant la procédure ci-dessus nous avons effectué un grand nombre d'essai pour mettre en évidence le rôle de l'alimentation sur la qualité du gaz produit et la marche du réacteur.

Dès les premiers essais on constatait qu'un gaz riche pouvait être produit à partir soit de l'eau seule soit du mazout seul. Mais dans le premier cas on assiste à une destruction rapide de la colonne de réaction du fait de la consommation du coke; en revanche, dans le second cas, il se produit un dépôt massif de carbone qui bouche les vides par où circule le gaz à travers cette colonne et augmente progressivement la pression à l'intérieur du réacteur. Des analyses typiques du gaz produit dans ces deux cas extrêmes sont données dans le tableau I:

T A B L E A U I

**Analyse du gaz produit dans les cas
d'une alimentation en eau et en mazout**

	Eau seule	Mazout seul
CO %	32	15
H ₂	54	74
CO + H ₂	86	89

T A B L E A U II

Conditions et résultats dans le cas de l'alimentation simultanée
de mazout et d'eau

	Température au couple supérieur (C_s)	790° C
1	Température au couple moyen (C_m)	800
	Température au couple inférieur (C_i)	800
2	Production de gaz m^3/h (à 15° C)	4,45
3	Consommation de mazout, Kg/m^3	0,339
4	Consommation d'eau, Kg/m^3	0,384
5	Consommation de C dans la colonne, Kg/m^3	—
6	Production de C dans la colonne, Kg/m^3	0,244
7	Perte par rayonnement, Kwh/h	7
8	Perte par rayonnement, Kwh/m^3	1,57
9	Consommation d'énergie, Kwh/m^3	0,674
10	Température du gaz au sortir du réacteur	350°
	CO_2 %	3,4
	O_2	0,6
11	CO	27,0
	H_2	63,25
	C_xH_y	5,75

A la suite de ces constatations l'effort fût concentré sur les essais avec alimentation mixte. Ces essais ont démontré qu'on peut produire, de manière continue un gaz riche, de composition pratiquement constante et de l'ordre de 90% en $H_2 + CO$, en jouant sur le rapport mazout/eau. En réglant convenablement ce rapport, on arrive à maintenir la colonne de réaction stable car le carbone qui se dépose est instantanément brûlé par l'eau. Ainsi, il s'établit une sorte d'équilibre dynamique, facile à régler et à maintenir, car elle se manifeste par la pression qui règne à l'intérieur du réacteur, qu'on peut enregistrer et suivre.

Dans le tableau II sont résumés les résultats obtenus au cours d'une marche avec défaut d'eau. Ce défaut trouve son expression dans une augmentation progressive de la pression due à la partielle consommation du carbone déposé ; en fait, au cours de l'essai qui dura 4 heures la pression passa de 15 mm d'eau à 60 mm.

CONCLUSIONS

Des résultats ci-dessus et des observations faites durant les expériences on peut tirer les conclusions suivantes :

1. Un gaz très riche en énergie chimique et à prédominance nette de la teneur en H_2 sur celle en CO est facilement obtenu avec une stabilité satisfaisante.

2. Les paramètres qui exercent une influence critique sur le procédé sont la température et la constitution de l'alimentation c'est à dire le rapport $H_2O/mazout$. Ils sont tous les deux facilement et efficacement contrôlables.

3. En jouant sur le rapport $H_2O/mazout$ on peut faire varier la composition du gaz produit et notamment le rapport H_2O/CO dans ce gaz ce qui est de prime abord un avantage. En réalité, cet avantage est théorique car le rapport $H_2O/mazout$ doit être fixé par la nécessité de brûler le noir de carbone déposé afin de maintenir la colonne de réaction propre.

BIBLIOGRAPHIE

1. J. Meunier, Gazéification et oxydation des Combustibles. Ed. Masson & Cie, 1958.
2. J. Brame - J. King Fuel. Ed. Edward Arnold Ltd, 5th ed, 1956.
3. J. Finneran - J. Yarze - M. Greene - N. Watson, Low cost reducing gas. J. of Metals, February 1972.
4. L. Mousoulou, Extractive Metallurgy, Theoretical and Technological bases. Ed. National Technical University of Athens, 1975.
5. Α. Μούσουλος, 'Απλή μέθοδος παραγωγής αναγωγικών αερίων δια συνδυασμού υγρών και στερεών καυσίμων. Πρακτικά της 'Ακαδημίας 'Αθηνών, Τόμος 52ος, 'Ετος 1977.
6. E. Child, Texaco: Heavy Oil Gasification. Texaco Development Corporation, New York, Paper 1867.
7. The Shell Gasification Process. Shell Company.
8. The Texaco Partial Oxydation - Hydrogen, Hydrocarbon Processing, April 1975.