



MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

NUMERO DE PUBLICATION : 1005140A7

NUMERO DE DEPOT : 09100669

Classif. Internat. : C01B

Date de délivrance le : 04 Mai 1993

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l'arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 15 Juillet 1991 à 15H15 à l'Office de la Propriété Industrielle

ARRETE :

ARTICLE 1.- Il est délivré à : CATALYSTS AND CHEMICALS EUROPE S.A.; S.A. TECHMONT place du Champ de Mars 2, B-1050 BRUXELLES (BELGIQUE); avenue Van Oss 1, B-1120 BRUXELLES (BELGIQUE)

représenté(e)(s) par : VOSSWINKEL Philippe, BUREAU GEVERS S.A., Rue de Livourne 7 - B 1050 BRUXELLES.

un brevet d'invention d'une durée de 6 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : NOUVEAU PROCEDE D'ELIMINATION DES OXYDES DE CARBONE DANS LES INSTALLATIONS DE FABRICATION DE GAZ RICHES EN HYDROGENE.

INVENTEUR(S) : Schurmans Jacques, Heuvelhof 7, B-3078 Everberg (BE); Julemont Victor, Spaanse Lindebaan 121, B-1850 Grimbergen (BE); Degand Patrick, Jagersstraat 13, B-9660 Brakel (BE)

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Bruxelles, le 04 Mai 1993
PAR DELEGATION SPECIALE :

WUYTS L
Directeur

**"Nouveau procédé d'élimination des oxydes de carbone
dans les installations de fabrication de gaz riches en hydrogène"**

La présente invention est relative à la transformation et à l'élimination des oxydes de carbone CO et CO₂ dans les installations de fabrication à partir d'hydrocarbures, de gaz riches en hydrogène (gaz de synthèse pour l'ammoniac, hydrogène, gaz réducteurs, etc...).

5 Actuellement l'élimination du CO et du CO₂ s'effectue en général dans les opérations successives suivantes :

- conversion catalytique, en présence de vapeur d'eau, du CO en CO₂ en une ou, plus généralement, en plusieurs étapes.
- Elimination du CO₂ par lavage en colonne d'absorption.
- 10 - Elimination par méthanisation catalytique des faibles quantités de CO et de CO₂ subsistant dans le gaz.

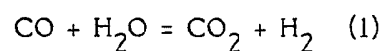
Un schéma simplifié de fonctionnement est donné à titre d'exemple dans la figure I, et concerne le traitement d'un gaz de synthèse pour la fabrication de l'ammoniac.

15 Avant d'être traité le gaz présente en général les caractéristiques typiques suivantes :

- Pression : 20 - 60 bars absolus
- Température : 250 - 400°C
- Composition typique (% molaire)

| | | |
|----|--------------------|-----------|
| 20 | N ₂ + A | 13 - 15 |
| | H ₂ | 30 - 40 |
| | CO | 7 - 9 |
| | CO ₂ | 4 - 6 |
| | CH ₄ | 0.1 - 0.3 |
| 25 | H ₂ O | 30 - 45 |

La réaction exothermique de conversion du CO selon la formule (1) est limitée par des conditions d'équilibre :



Les basses températures améliorent celles-ci et favorisent la réaction; par contre la vitesse de réaction croît avec la température; c'est pourquoi les températures pratiques de fonctionnement résultent d'un compromis entre ces deux influences contradictoires.

Cette réaction de conversion du CO s'effectue généralement en deux étapes; la première, réalisée dans le réacteur catalytique (1) de la figure 1, a lieu le plus souvent à température élevée (300 à 450°C), en présence d'un catalyseur composé principalement d'oxyde de fer et d'oxyde de chrome. Dans certains cas cependant on pourra opérer à température plus basse, supérieure cependant à 180°C, sur un catalyseur contenant notamment des oxydes de cuivre et de zinc. A la sortie du réacteur 1, la teneur en CO se trouve réduite à 1.5 - 2.5 %. Le gaz subit ensuite un refroidissement vers 200°C dans l'échangeur (2), bien que ce refroidissement puisse aussi s'effectuer partiellement ou totalement par une dispersion d'eau, avant d'entrer dans le réacteur catalytique (3) où s'effectue la 2ème étape de conversion du CO dite conversion à basse température soit 180 à 260°C; le catalyseur utilisé dans le réacteur (3) est composé principalement d'oxyde de cuivre et d'oxyde de zinc. La basse température de fonctionnement permet d'améliorer les conditions d'équilibre de la réaction et de réduire le CO à 0.15 - 0.40 %. Après ces deux étapes de conversion le gaz est refroidi entre 20 et 130°C dans l'échangeur (4), où la température est définie par la nature des solutions qui seront utilisées dans la phase d'enlèvement du CO₂, dite de décarbonatation.

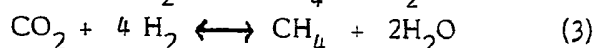
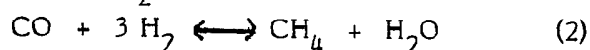
Une composition typique du gaz avant son entrée dans la colonne d'absorption du CO₂ est la suivante :

| | |
|--------------------|----------------|
| N ₂ + A | 13 - 15 % |
| H ₂ | 30 - 40 % |
| CO | 0.15 - 0.40 % |
| CO ₂ | 12.50 - 13.5 % |
| CH ₄ | 0.10 - 0.30 % |
| H ₂ O | 25 - 35 % |

Le gaz pénètre alors au pied de la colonne d'absorption (5) où il est lavé à contre-courant par des solutions qui peuvent être à base de carbonate de potasse, de méthanolamine, etc... ou même par de l'eau. La température de fonctionnement de la colonne varie selon le type de liquide absorbant et les nécessités du procédé mais ne dépasse pas généralement 130°C.

La solution absorbante est recueillie en pied de colonne d'absorption et envoyée dans une colonne de régénération avant d'être recyclée dans la colonne d'absorption. En tête de la colonne d'absorption le gaz sort à des températures généralement comprises entre 20 et 100°C; à cet endroit il ne contient plus que de faibles quantités de CO₂, de 0.005 à 0.3 % selon les conditions de fonctionnement et le type de système de décarbonatation adopté.

Dans la 3^{ème} phase d'épuration le gaz est chauffé dans le système d'échangeur (6) à des températures de l'ordre de 240 à 320°C avant d'entrer dans le réacteur de méthanisation (7) où le CO et le CO₂ sont éliminés selon les réactions suivantes :



Ces réactions de méthanisation réduisent la somme des teneurs en CO + CO₂ dans le gaz de synthèse en dessous de 10 ppm. Le gaz est finalement refroidi dans l'échangeur (8) avant d'être comprimé, séché et envoyé dans l'unité de synthèse de l'ammoniaque; une composition typique du gaz avant compression est la suivante :

| | | |
|----|----------------------|--------------------|
| 25 | N ₂ + A | 24.7 % |
| | H ₂ | 73.2 % |
| | CH ₄ | 0.60 % |
| | H ₂ O | 1.5 % |
| | CO + CO ₂ | inférieur à 10 ppm |

Dans le procédé décrit ci-dessus on voit que la transformation incomplète du CO par la réaction de conversion à la vapeur d'eau entraîne une consommation non négligeable d'hydrogène, de l'ordre de 0.8 à 1.5 % et une augmentation, indésirable, du contenu en CH₄ du gaz de synthèse. Diverses solutions ont été proposées pour résoudre partiellement ce problème; en particulier une solution consiste à opérer la conversion du CO à basse température en deux

étapes séparées par une opération supplémentaire d'élimination du CO_2 par lavage afin d'améliorer les conditions d'équilibre de la réaction de conversion.

5 Cette solution est décrite schématiquement par la figure 2; le gaz sortie du premier réacteur de conversion à basse température (3) est refroidi entre 20 et 120°C dans l'échangeur (9) avant de subir un premier lavage du CO_2 dans la colonne (10); il est ensuite réchauffé à environ 200°C et est mélangé à de la vapeur d'eau en (13) avant de pénétrer dans le second réacteur de conversion
10 du CO à basse température (12) à la sortie duquel la teneur en CO est réduite aux environs de 0.05 à 0.1 %. Le gaz est à nouveau refroidi à 20-120°C pour subir un second lavage du CO_2 dans la colonne (5).

Cette solution, outre qu'elle nécessite un investissement supplémentaire, entraîne une augmentation non négligeable
15 des consommations de vapeur et donc d'énergie puisqu'il est nécessaire, avant d'entrer dans le second réacteur de conversion du CO à basse température, d'injecter de la vapeur d'eau dans le gaz, notamment pour compenser la vapeur d'eau condensée par refroidissement avant l'entrée du gaz dans la première colonne de lavage du CO_2 .

20 La procédure selon la présente invention permet de réduire substantiellement la teneur en CO, et donc de produire plus d'hydrogène sans qu'il soit nécessaire d'introduire des quantités supplémentaires de vapeur d'eau; ceci est obtenu par une meilleure intégration des opérations de conversion du CO et d'absorption du
25 CO_2 ; cette meilleure intégration a été rendue possible par les progrès techniques réalisés dans deux domaines :

- l'absorption de CO_2 , maintenant réalisable efficacement à des températures élevées (de 150 à 210°C).
- L'activité du catalyseur de conversion CO qui peut maintenant
30 atteindre des valeurs élevées à des températures aussi basses que 180°C;

De plus le procédé selon la présente invention assure une protection très efficace contre l'empoisonnement des catalyseurs de conversion du CO à basse température et augmente donc considéra-
35 blement la durée de vie de ces catalyseurs.

La présente invention permet également de réduire les consommations de vapeur d'eau et d'opérer à pression très élevée sans réduire le taux de conversion du CO; une autre possibilité du procédé est de permettre l'augmentation de capacité des installations existantes.

Dans le procédé selon la présente invention une grande partie du CO₂ du gaz est absorbée par lavage à une température élevée, généralement entre 160 et 215°C, la température étant proche ou supérieure au point de rosée du gaz; cette opération s'effectue en une ou plusieurs étapes, préalablement à ou simultanément avec l'opération de conversion du CO à basse température et est complétée par un lavage final du CO₂ à des températures classiques de 20 à 130°C; le CO et le CO₂ résiduels sont ensuite éliminés par des procédés classiques tels que la méthanisation.

L'application du procédé est illustrée par les exemples suivants :

Exemple 1

Dans cet exemple décrit schématiquement dans la figure 3 on intègre le procédé selon l'invention dans une usine classique de fabrication de gaz de synthèse d'ammoniac, comportant déjà deux réacteurs de conversion du CO, l'un opérant à haute température (1) l'autre opérant à basse température (3), et une colonne d'absorption du CO₂ (5); la modification du procédé nécessite une deuxième colonne d'absorption du CO₂ (6) ainsi qu'éventuellement un nouvel échangeur (7).

Dans l'installation modifiée le gaz sortant du réacteur (1) est refroidi dans l'échangeur (2) à environ 180°C au lieu de 190°C dans le procédé classique, sans qu'il y ait de condensation de vapeur d'eau, le gaz pénètre ensuite dans la nouvelle colonne d'absorption (6), opérant à 180°C où la teneur en CO₂ est ramenée de 17 à 3.5 % en volume, sur base de gaz sec. A la sortie de la colonne d'absorption (6) le gaz est chauffé à 190°C soit par l'échangeur (7) soit par une injection de gaz chaud à 430°C prélevé à la sortie du réacteur (1). Aucune injection additionnelle de vapeur n'est requise avant l'entrée dans le réacteur de conversion du CO.

La teneur en CO est réduite dans le réacteur (3) à 0.10 % en volume sur base de gaz sec, au lieu de 0.25 % dans l'installation classique existante; le procédé selon l'invention permet de réduire le volume de catalyseur nécessaire à la réaction de conversion dans le réacteur (3) pour deux raisons :

- 5
- Les conditions de la réaction exigent moins de catalyseur, soit environ 10 % de moins.
 - Protégé par l'opération d'absorption de tout empoisonnement par le soufre et le chlore, la vie du catalyseur devient pratiquement
- 10 illimitée et son volume peut être réduit d'au moins 20 %.
- Ces réductions de volume du catalyseur de conversion ont un intérêt supplémentaire : celui de permettre des augmentations considérables de capacité dans les zones de conversion du CO et d'absorption du CO₂.

15 Les principales caractéristiques de fonctionnement de l'installation classique et de l'installation modifiée sont comparées dans le tableau suivant :

| | Installation classique | Installation modifiée |
|---|---------------------------|--------------------------|
| 20 | | |
| - % CO sortie réacteur de conversion (% volume, base gaz sec) | 0.25 | 0.10 |
| 25 | | |
| - Volume de catalyseur nécessaire, (base 100 pour installation classique) | 100 | 70 |
| - Perte de charge dans le réacteur de conversion (base 100 pour installation classique) | 100 | 70 |
| 30 | | |
| - Consommation d'hydrogène dans le réacteur de méthanisation (% de l'hydrogène total) | 1.9 % | 1 % |
| 35 | | |
| - % CH ₄ après méthanisation (% volume, sur base gaz sec) | 0.6 | 0.4 |

Exemple 2

Cet exemple est décrit schématiquement par la figure 4 et est également relatif à la production de gaz de synthèse d'ammoniac.

5 Dans ce cas le gaz produit généralement à haute température par l'opération de réformage à la vapeur est préalablement refroidi à environ 185°C dans un ensemble (1) de chaudières et d'échangeurs avant d'entrer dans une première colonne de lavage du CO₂ (2).

10 Une composition typique du gaz avant l'entrée dans la colonne (2) est la suivante (composition sur base sèche, en % vol) :

| | |
|--------------------|--------|
| N ₂ + A | 22.9 % |
| H ₂ | 55.8 |
| CO | 13.1 |
| CO ₂ | 7.9 |
| 15 CH ₄ | 0.3 |

Rapport volumétrique vapeur d'eau/gaz sec : 0.59

La pression du gaz est de 30 bars absolus.

20 Dans la colonne (2) opérant à 185°C, la teneur en CO₂ du gaz est ramenée de 7.9 % à 3.2 %. Le gaz sortant de la colonne (2) à 185°C est ensuite surchauffé dans l'échangeur (3) à 220°C ou, alternativement par une faible quantité de gaz à très haute température prélevée avant l'échangeur (1).

Aucune injection de vapeur d'eau n'est nécessaire avant l'entrée dans le réacteur (4).

25 La teneur en CO du gaz est ensuite réduite à 0.45 % par conversion catalytique dans le réacteur (4) d'où le gaz sort à 260°C. Le catalyseur utilisé dans le réacteur (4) est un catalyseur à base de cuivre et de zinc; ce réacteur catalytique est soit pourvu d'un refroidissement tubulaire, soit constitué d'une première partie catalytique tubulaire refroidie et d'un lit catalytique fixe non refroidi.
30 La composition du gaz en sortie du réacteur est la suivante en % volume sur base de gaz sec :

- 8 -

| | | |
|---|--------------------|--------------|
| | CH ₄ | 0.25 |
| | CO | 0.45 |
| | CO ₂ | 14.50 |
| | H ₂ | 63.50 |
| 5 | N ₂ + A | <u>21.30</u> |
| | Total | 100.00 |

Rapport molaire vapeur d'eau/gaz sec : 0.43.

Le gaz est ensuite refroidi dans l'échangeur (5) à une température de 175°C avant de pénétrer dans la colonne d'absorption (6), opérant à 175°C; la teneur en CO₂ est réduite dans la colonne (6) à 3 % en volume, sur base de gaz sec. En sortie de la colonne (6) le gaz est réchauffé de 175°C à 200°C dans l'échangeur (7), ou, alternativement, par un apport de gaz chaud, avant d'entrer dans le réacteur de conversion adiabatique (8) où la teneur en CO est réduite à 0.06 %, sur base de gaz sec.

En sortie du réacteur le gaz est refroidi aux environs de 120°C dans le système d'échangeurs et de bouilleurs (9) avant d'entrer dans la colonne finale d'absorption du CO₂ (10) dont il sort vers 85°C avec la composition suivante, en % molaire sur base de gaz sec :

| | | |
|----|--------------------|--------------|
| | CH ₄ | 0.32 |
| | CO | 0.07 |
| | CO ₂ | 0.02 |
| | H ₂ | 74.73 |
| 25 | N ₂ + A | <u>24.86</u> |
| | | 100.00 |

Ce système présente de multiples avantages par rapport aux systèmes classiques :

- Il n'utilise qu'un seul type de catalyseur, à base de cuivre et de zinc.
- Il protège le catalyseur contre tout empoisonnement, notamment par le chlore et le soufre; les conséquences pour le catalyseur en sont des volumes réduits et une durée de vie considérablement augmentée.

35

- Le système n'exige aucune addition supplémentaire de vapeur d'eau dans le gaz après l'opération de réformage.
- Les teneurs en CO obtenues sont nettement inférieures, avec les conséquences suivantes :

- 5 a) consommation moindre d'hydrogène lors de l'opération de méthanisation ultérieure.
- b) contenu moindre en méthane dans le gaz de synthèse.

Exemple 3

10 Dans cet exemple, illustré par la figure 5, l'intégration des systèmes de conversion du CO et d'absorption du CO₂ est plus poussée que dans les exemples précédents puisque l'absorption par lavage du CO₂ s'effectue simultanément avec la réaction de conversion du CO; dans le réacteur (2) les particules de catalyseur sont utilisées à la fois comme catalyseur et comme corps de remplissage pour le lavage du CO₂; le gaz circule de bas en haut et la solution de décarbonatation circule à contre courant du gaz; la possibilité de ces opérations simultanées en phases liquide et vapeur n'a été

15 rendue possible que par la mise au point de catalyseurs à haute résistance mécanique et à activité élevée à basse température pour la conversion du CO à basse température; ces catalyseurs sont à base

20 de cuivre et de zinc et peuvent contenir également d'autres éléments : alumine, oxyde de chrome, etc...; dans ce type de réacteur le CO₂ est éliminé dans la solution au fur et à mesure de son apparition ce qui améliore continuellement les conditions d'équilibre de la réaction

25 dans le sens de la transformation du CO en CO₂.

 Dans cet exemple le gaz préalablement refroidi à 190°C dans l'ensemble d'échangeurs (1) pénètre dans le bas des deux étages de la tour catalytique (2) où il est arrosé à contre-courant par la solution de décarbonatation provenant de la deuxième colonne d'absorption (4); la solution, reprise de la colonne (4) par la pompe

30 (8) est réchauffée dans l'échangeur (6) avant de pénétrer en tête de la tour catalytique (2); en sortie de l'étage supérieur de la tour (2) elle est reprise par la pompe 8, refroidie dans l'échangeur 5 et mélangée avec une partie de la solution provenant du pied de la colonne

35 (4) avant d'être renvoyée en tête de l'étage inférieur de la tour (2).

A la sortie en tête de la tour (2) le gaz ne contient plus que 0.04 % de CO; il entre ensuite, après refroidissement à 120°C, dans la colonne d'absorption (4) où sa teneur en CO₂ est réduite à environ 150 ppm.

5

Exemple 4

L'exemple 3 n'est qu'une illustration de la présente invention consistant à mettre en contact, sur le catalyseur, le gaz et la solution d'absorption du CO₂; de nombreuses autres combinaisons peuvent être adoptées qui utilisent le même principe; un autre exemple d'application est donné par la figure 6.

10

Le gaz produit dans la section de réformage est refroidi dans la batterie d'échangeurs (1) et entre ensuite dans le réacteur catalytique (2) où s'effectue une première étape de conversion du CO à moyenne température. Refroidi dans l'échangeur (3) le gaz pénètre ensuite dans la tour catalytique (4) où s'effectue simultanément un complément de conversion du CO et un premier lavage du CO₂. Refroidi dans l'échangeur (5) le gaz pénètre dans la colonne de lavage (6) où il subit une seconde absorption du CO₂.

15

Les principales conditions de fonctionnement sont données dans le tableau qui suit :

20

| | <u>Entrée</u> <u>réacteur (2)</u> | <u>Entrée</u> <u>tour (4)</u> | <u>Sortie</u> <u>tour (4)</u> | <u>Sortie</u> <u>colonne(6)</u> |
|---------------------------------------|--------------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| - Température, °C | 250 | 185 | 185 | 85 |
| - Pression, bars abs | 30 | 29.4 | 29.4 | 28.8 |
| - Composition en volume (gaz sec) | | | | |
| % CO | 13.0 | 1.4 | 0.03 | 0.03 |
| % CO ₂ | 7.9 | 17.9 | 3.45 | 0.02 |
| % H ₂ | 55.9 | 60.4 | 72.60 | 75.18 |
| CH ₄ , N ₂ , Ar | 23.2 | 20.8 | 23.92 | 24.77 |

30

35

On voit à nouveau que ce système permet de réduire la teneur en CO à des niveaux nettement inférieurs aux solutions classiques (0.03 % au lieu de 0.2 %) sans consommation supplémentaire de vapeur d'eau.

5

Exemple 5

Cet exemple, décrit schématiquement dans la figure 7 concerne une application du procédé selon la présente invention dans une unité de fabrication de gaz de synthèse de l'ammoniac opérant à la pression de 80 bars absolus.

10

Sous cette pression élevée la réaction de conversion de CO ne peut se faire dans les systèmes classiques qu'à température relativement élevée ou en présence de quantités relativement faibles de vapeur d'eau, car il y a lieu d'éviter les condensations de vapeur d'eau; ceci influence défavorablement l'équilibre de la réaction de conversion du CO.

15

Grâce à la présente invention on compense ces conditions d'équilibre défavorables en opérant la décarbonatation et la conversion du CO en une succession d'étapes, sans aucune nécessité pour une injection de vapeur supplémentaire entre les étages successifs.

20

Le gaz à traiter est d'abord refroidi dans l'échangeur (1) vers 185°C avant d'entrer dans la tour (2) où il subit successivement :

25

- Une opération de lavage du CO₂
- Un réchauffage à 200°C par injection de gaz chaud, suivi d'une conversion catalytique du CO.
- Une deuxième opération de lavage du CO₂.
- Un nouveau réchauffage à 200°C par injection de gaz chaud, suivi d'une deuxième étape de conversion catalytique à 200°C.
- Une troisième opération de lavage du CO₂
- Un troisième réchauffage à 200°C suivi d'une dernière étape de conversion catalytique du CO.

30

Après chacune des 3 étapes de lavage, le gaz est réchauffé d'une quinzaine de degrés pour éviter la présence de liquide sur les lits de catalyseur; ce réchauffage peut se faire soit par injection de gaz à haute température prélevé dans l'installation soit dans des échangeurs de chaleur.

35

Le gaz sort ensuite de la tour (2), est refroidi dans l'échangeur (3) et subit un dernier lavage du CO₂ dans la colonne (4).

Les trois premières opérations de lavage sont effectuées entre 170 et 200°C, de préférence vers 185°C tandis que la dernière opération de lavage s'effectue vers 100°C dans la colonne 4.

Dans l'exemple 5 on a utilisé un gaz présentant, à son entrée dans la tour (2), les caractéristiques suivantes :

| | | |
|----|---------------------------------|-----------------|
| | Pression : | 80 bars absolus |
| | Température : | 185°C |
| 10 | Composition (% volume, gaz sec) | |
| | CH ₄ | 0.9 |
| | CO | 12.9 |
| | CO ₂ | 7.9 |
| | H ₂ | 55.0 |
| 15 | N ₂ + A | <u>23.3</u> |
| | | 100.0 |

Rapport molaire H₂O/gaz sec : 0.16

La teneur en CO évolue de la manière suivante (% vol sur gaz sec) :

| | | |
|----|---------------------------------|------|
| 20 | Après 1er étage de conversion : | 4.2 |
| | Après 2me étage de conversion : | 0.65 |
| | Après 3me étage de conversion : | 0.11 |

A la sortie de la colonne (4) le gaz ne contient plus que 0.12 % de CO et 0.015 % de CO₂.

Ces résultats sont rendus possibles par le procédé faisant l'objet de la présente invention malgré la faible quantité de vapeur d'eau présente dans le gaz et sans appoint intermédiaire d'eau ou de vapeur d'eau.

Les cinq exemples qui précèdent montrent que l'originalité du procédé faisant l'objet de la présente invention réside dans le fait que l'on combine les opérations de lavage du CO₂ à température élevée avec les opérations de conversion du CO de manière à améliorer les conditions d'équilibre de la réaction de conversion du CO et à réduire en conséquence les teneurs résiduelles en CO, les deux opérations pouvant se réaliser à des températures proches

ou identiques sans qu'aucune injection additionnelle de vapeur d'eau soit nécessaire; le procédé permet également un fonctionnement à pression élevée sans augmentation de la teneur résiduelle en CO.

5 Ce nouveau procédé a été rendu possible par le fait qu'il est maintenant possible de laver le CO₂ à des températures élevées et d'utiliser des catalyseurs de conversion du CO à basse température d'une part et fonctionnant également en présence de solution de décarbonatation d'autre part.

10

15

20

25

30

35

REVENDEICATIONS

1. Procédé d'élimination combinée du CO₂ et CO contenus dans les gaz de synthèse, l'hydrogène, les gaz réducteurs, etc..., le procédé étant caractérisé par le fait qu'il comporte au minimum et successivement une étape de lavage du CO₂ à des températures comprises entre 160 et 220°C, une étape de conversion catalytique du CO à des températures comprises entre 180 et 250°C, et une étape de lavage du CO₂ à des températures comprises entre 20 et 130°C, et qu'il ne nécessite aucune introduction additionnelle d'H₂O, que ce soit sous forme d'eau liquide ou de vapeur d'eau, dans le gaz à épurer.

2. Procédé selon la revendication 1 comportant successivement :

- une étape de lavage du CO₂ à des températures comprises entre 160 et 220°C,
- une étape de conversion catalytique du CO à basse température, comprise entre 180 et 250°C ou à moyenne température, comprise entre 240 et 350°C, ces opérations s'effectuent soit dans un réacteur tubulaire refroidi soit dans un réacteur adiabatique, soit encore dans un réacteur mixte tubulaire-adiabatique,
- une deuxième étape de lavage du CO₂ à des températures comprises entre 160 et 220°C,
- une deuxième étape de conversion du CO à basse température, comprise entre 180 et 230°C,
- une troisième étape de lavage du CO à des températures comprises entre 20 et 130°C.

3. Procédé selon la revendication 2 caractérisé par le fait qu'après la deuxième étape de conversion du CO il comporte un ou plusieurs groupes supplémentaires de fonctionnement, chaque groupe étant constitué d'une étape de lavage du CO₂ à des températures comprises entre 160 et 220°C et d'une étape de conversion du CO à basse température, comprise entre 180 et 230°C.

4. Procédé selon les revendications 1, 2, et 3 caractérisé par le fait que la première étape de lavage du CO, opérant entre 160 et 220°C est précédé d'une ou de plusieurs étapes de conversion catalytique du CO.

5. Procédé d'élimination combinée du CO_2 et du CO caractérisé par le fait qu'il comporte obligatoirement une ou plusieurs étapes dans lesquelles simultanément le CO est converti en CO_2 sur un lit fixe de catalyseur opérant entre 180 et 220°C et le CO_2 est éliminé par lavage dans une solution ruisselant sur le lit de catalyseur, celui-ci étant utilisé à la fois et simultanément comme catalyseur pour la réaction de conversion du CO et comme corps de remplissage pour le lavage du CO_2 .

10

15

20

25

30

35

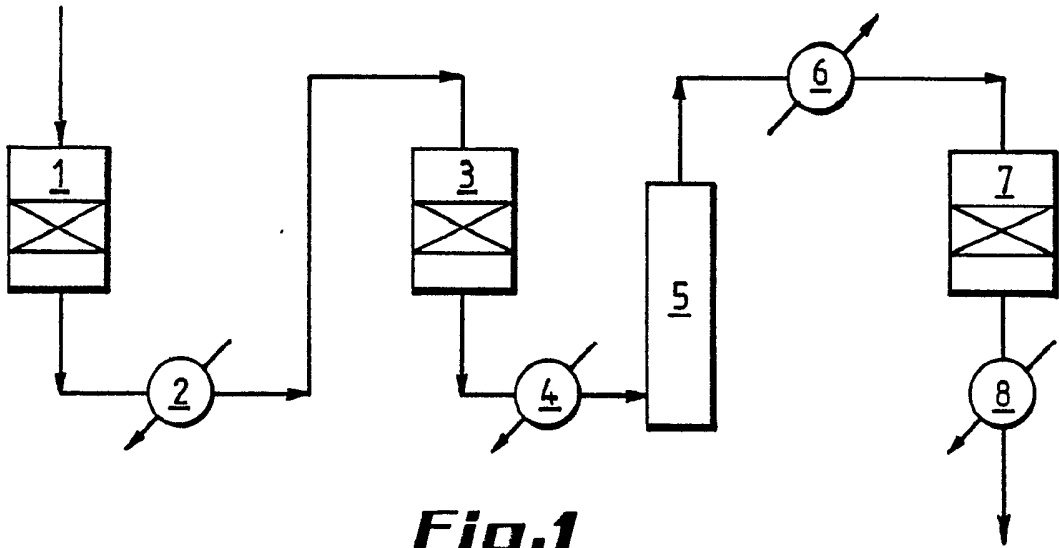


Fig.1

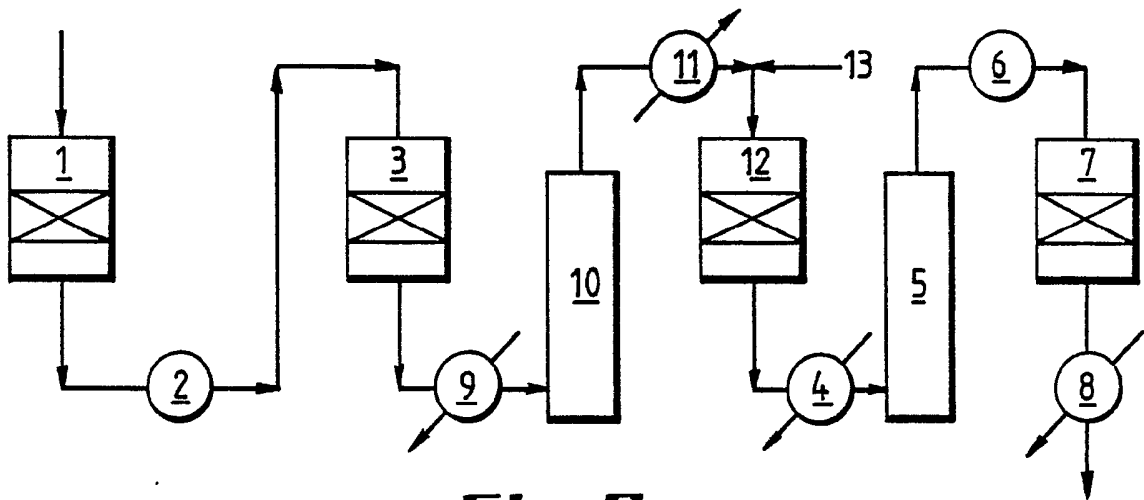


Fig.2

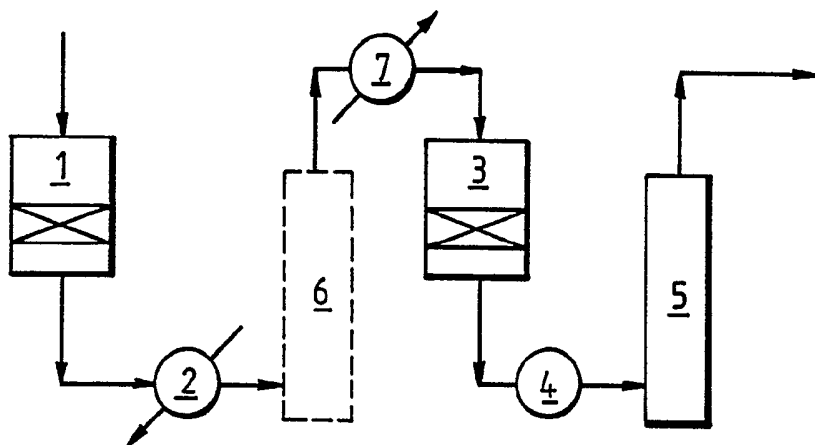


Fig. 3

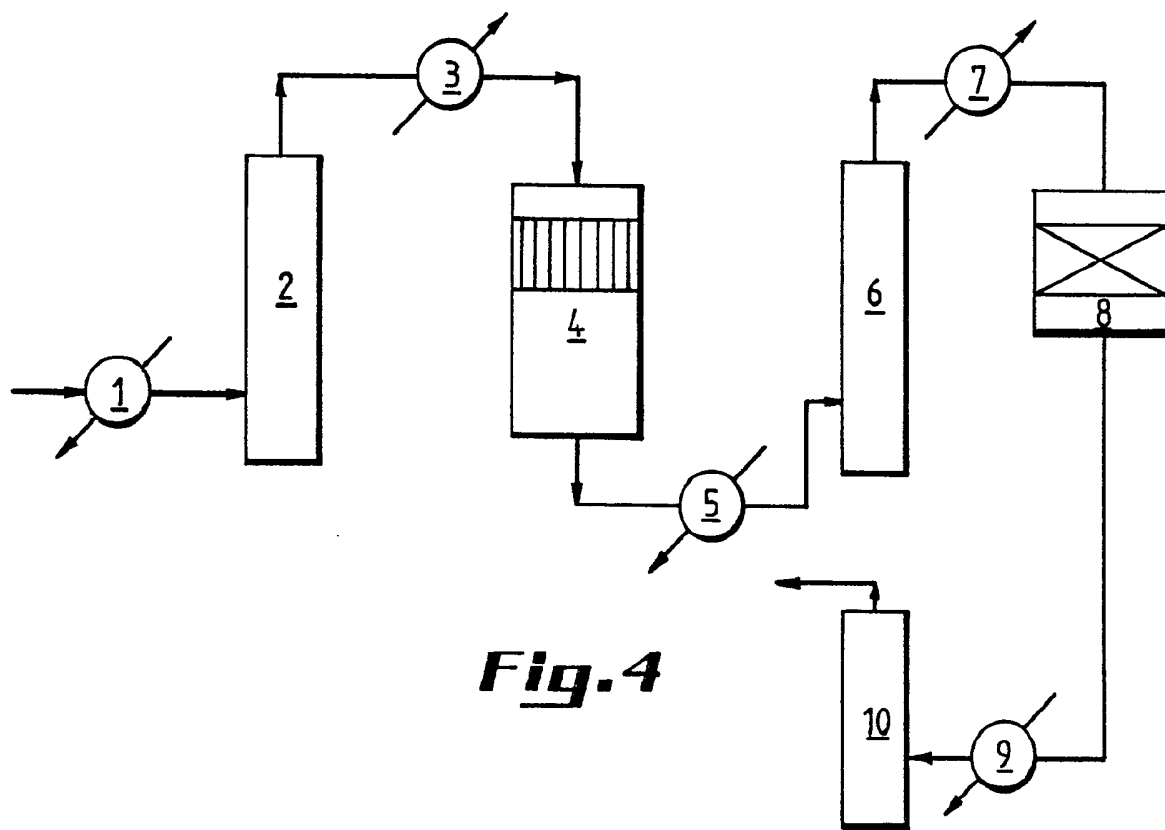


Fig. 4

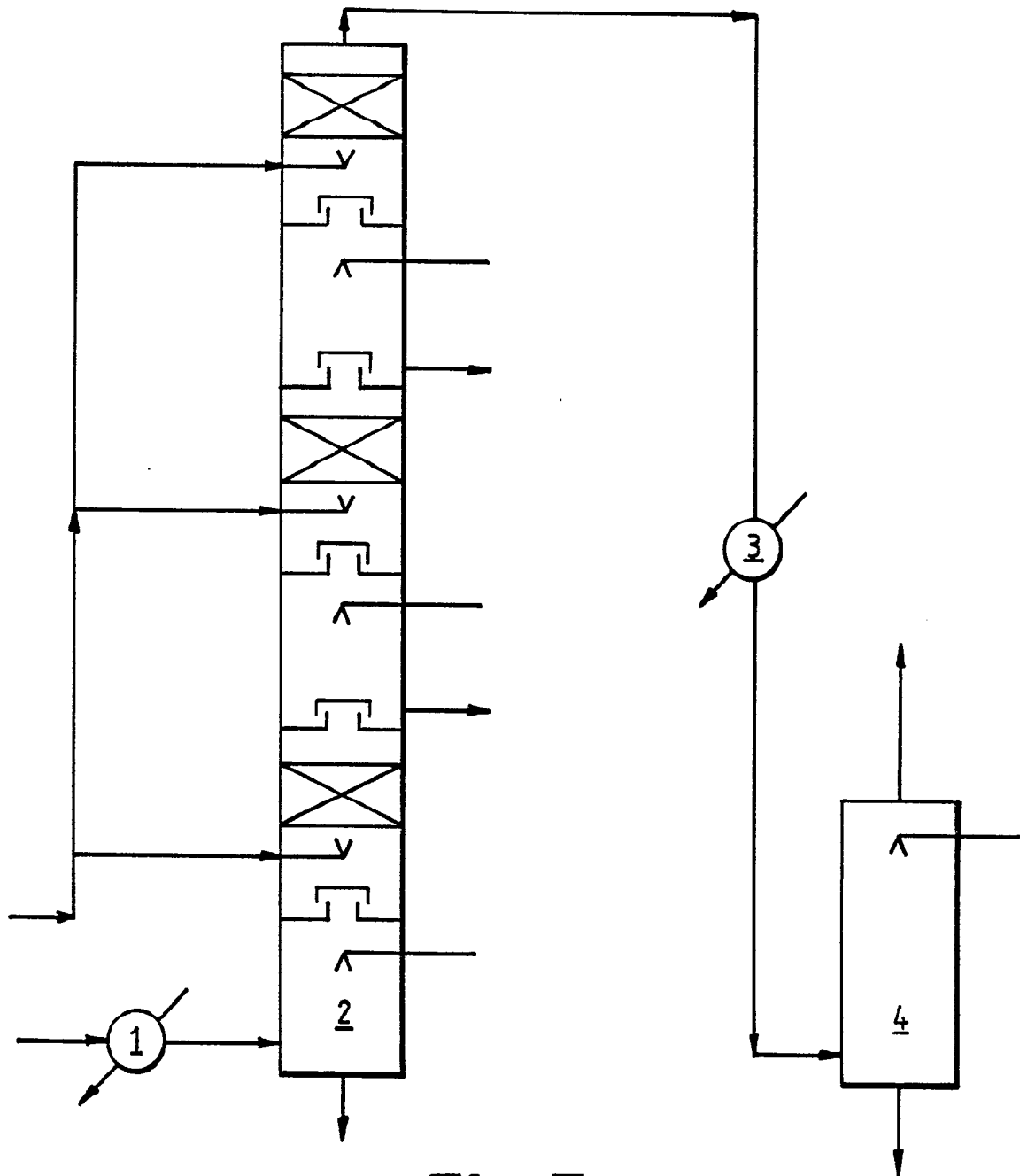


Fig.7