



337160

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

de

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

formulada el 22 de Febrero de 1.967, con el nº. 337.160

en

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de THE GAS COUNCIL, entidad británica, establecida -
en 4-5, Grosvenor Place, Londres, Inglaterra, por:

"UN PROCEDIMIENTO PARA PRODUCIR UN GAS QUE CONTIENE METANO".

Este invento se refiere a un procedimiento para preparar un gas que contiene una gran proporción de metano, en particular un gas que consiste casi totalmente en metano, de manera que es similar o permutable con el gas natural, por síntesis catalítica a partir del gas rico en metano producido por la gasificación a temperatura media de hidrocarburos ligeros -
5 tesis catalítica a partir del gas rico en metano producido por la gasificación a temperatura media de hidrocarburos ligeros -
(por ejemplo destilados ligeros de petróleo) en vapor de agua, o a partir de un gas de composición similar.

Un procedimiento preferido para la gasifica -
10 ción a temperatura media de hidrocarburos ligeros (por ejemplo destilado ligero de petróleo), está descrito y reivindicado en



la Memoria de la patente británica núm. 820.257 de la firma -
soliditante. El procedimiento comprende hacer pasar una mezcla -
de los hidrocarburos, predominantemente parafínicos, y vapor -
de agua, en forma de vapor a una temperatura por encima de 350°C,
5 a través de un lecho de catalizador de níquel bajo la presión -
atmosférica o una superior a la atmosférica, de tal manera que -
el lecho es mantenido por la reacción a temperaturas dentro del
márgen de 400 a 550°C.

El catalizador empleado puede ser un catalizador
10 de níquel y alúmina, formado por precipitación conjunta de sales
de níquel y aluminio, seguido por reducción del níquel de la -
mezcla al estado metálico, a cuyo catalizador se añade una pro-
porción secundaria de un óxido, hidróxido o carbonato de un me-
tal alcalino o alcalino térreo. En ciertas circunstancias, la -
15 velocidad lineal de la mezcla de reacción que pasa a través del
lecho de catalizador puede no exceder ventajosamente de 9 cm. por
segundo, lo cual permite también mejoras de la composición y es -
tado del catalizador. La temperatura de precalentamiento de la -
mezcla reaccionante puede ser tan alta como 600°C, en cuyo caso -
20 la temperatura del lecho de catalizador puede elevarse por enci -
ma de 550°C.

Son conocidos métodos para aumentar la duración -
del catalizador aumentando la proporción de vapor de agua en con-
tacto con el mismo.
25

Los gases resultantes contienen vapor de agua, -
hidrógeno, óxidos de carbono (más CO₂ que CO) y una proporción -
sustancial de metano. Esta proporción puede ser hecha disminuir,
por ulterior reacción sobre un catalizador mantenido a una tempe-
30 ratura más alta, para formar, por ejemplo, gas de ciudad, o puede



ser aumentada por formación de metano a una temperatura más -
baja. Así, la Memoria número 820.257 dice: " el gas rico
en metano producido por el procedimiento de este invento pue-
de ser sometido a la acción de un catalizador de níquel a una
5 temperatura más baja, por ejemplo a 400°C o inferior,,para -
efectuar la formación de metano por reacción entre el dióxido
de carbono, el monóxido de carbono y el hidrógeno presentes en
el gas".

El presente invento se refiere a un procedimiento
10 particular para realizar la operación así descrita, proyectado
especialmente para la producción de gas que consiste de manera
sustancialmente total en metano.

Para aplicar la síntesis de metano a gases que -
contienen hidrógeno y óxidos de carbono, para la producción de
15 gas rico en metano, es bien conocido que es necesario trabajar
a bajas temperaturas y preferiblemente a presiones elevadas, -
ya que entonces el equilibrio favorece el resultado deseado. -
Sin embargo, las reacciones entre el hidrógeno y los óxidos de
carbono son fuertemente exotérmicas, de manera que si se han -
20 de mantener bajas temperaturas y se ha de alcanzar el equili -
brio a la temperatura más baja practicable, se deben crear me -
dios para eliminar el calor liberado.

Además es necesario utilizar un catalizador que -
tenga una actividad suficiente para hacer que transcurran las -
25 reacciones de formación de metano, preferiblemente sustancial -
mente hasta el equilibrio. Su actividad deberá ser protegida -
del deterioro o degradación debido a la exposición a altas tem-
peraturas por los métodos, que se han de describir, que son -
30 necesarios para asegurar el trabajo a baja temperatura.



Es un aspecto de la presente solicitud para la formación de metano, el hecho de que en el gas suministrado, el dióxido de carbono puede predominar convenientemente en los óxidos de carbono, mientras que la formación de metano se aplica más usualmente a un gas de síntesis en que el óxido de carbono principal es el monóxido.

El presente invento crea un procedimiento para preparar un gas que contiene una alta proporción de metano a partir de una mezcla reaccionante que comprende metano, hidrógeno, monóxido de carbono, dióxido de carbono, y vapor de agua, siendo la concentración de metano al menos de 25% en volumen de la mezcla, método el cual comprende hacer pasar la mezcla reaccionante, en una primera etapa de formación de metano, sobre un catalizador de formación de metano, cuya temperatura es de 200°C a 450°C, retirar al menos parte de vapor de agua desde la mezcla que abandona la primera etapa de formación de metano, hacer pasar a la mezcla a una segunda etapa de formación de metano sobre un catalizador de formación de metano cuya temperatura está dentro de un margen que es menor que la temperatura de salida de la mezcla desde el catalizador de formación de metano de la primera etapa de formación de metano, de manera que tiene lugar una nueva formación de metano, siendo la cantidad de vapor de agua presente en cada una de las etapas al menos suficiente para impedir deposición de carbono sobre el catalizador, y retirar subsiguientemente dióxido de carbono y cualquier cantidad remanente de vapor de agua desde la mezcla.

Los técnicos en la materia comprenderán que las temperaturas de los gases en contacto con los catalizadores de formación de metano deberán ser suficientes para que estos catalizadores



hagan que la reacción tenga lugar a una velocidad adecuada. Estas temperaturas serán diferentes para catalizadores diferentes, pero pueden ser determinadas mediante experimentos. También, resultará evidente que la composición de las mezclas gaseosas - que penetran en cada etapa deberá ser tal que no tenga lugar deposición de carbono a la temperatura que reina en los lechos de catalizador. Las reacciones implicadas están gobernadas por equilibrios bien conocidos, que serán descritos seguidamente de manera más completa.

5
10 El gas de producto contendrá usualmente al menos - 90,0% y preferiblemente al menos 95% o incluso 97,5% o 98,5%, en volumen de metano, después de eliminar o retirar el vapor de agua y el dióxido de carbono.

15 La concentración de metano presente en el gas reaccionante que penetra en la primera etapa de formación de metano - deberá ser al menos de 25%, y preferiblemente deberá estar entre 25 y 50% en volumen.

20 Los márgenes de concentración preferidos para los - otros constituyentes de la mezcla reaccionante que penetra en la primera etapa de formación de metano son (en volumen): CO_2 : de 5 a 20%; CO : de 0 a 5%; H_2 : de 5 a 30%; y H_2O : de 30 a 60%.

25 En el procedimiento aplicado al gas producido por el método de la memoria de la firma solicitante, antes mencionada, - o de cualquiera de sus variantes subsiguientes, el gas utilizado es el que abandona el catalizador de gasificación de hidrocarburo y vapor de agua, y consiste en una mezcla de metano, óxidos de carbono, hidrógeno y vapor de agua no descompuesto, en cuya mezcla - el metano y el vapor de agua son los constituyentes principales, - y en la cual la proporción de dióxido de carbono es considerable -
30 mente mayor que la de monóxido de carbono.



La mezcla está generalmente de manera sustancial en el equilibrio a la salida del catalizador. En la realización preferida del procedimiento, es enfriada, antes de ser introducida en una primera etapa de formación de metano, que incorpora un catalizador apropiado de formación de metano, hasta una temperatura que es suficientemente baja para que tenga lugar la síntesis de metano hasta una extensión sustancial cuando es introducido en esta etapa, pero que no sea tan baja que exista una actividad catalítica insuficiente para que la reacción transcurra a una velocidad adecuada. En general, la temperatura del catalizador de formación de metano está dentro del margen de 200°C a 450°C, y preferiblemente dentro del margen de 250°C a 400°C. La reacción de formación de metano transcurre preferiblemente en esta primera etapa de formación de metano, hasta la extensión en que se produce al menos la mitad de la masa (o volumen en condiciones normales) de metano, que se produce en todo el procedimiento del invento. Alguna cantidad del vapor de agua puede ser dejada condensarse antes de introducir en la primera etapa de formación de metano, pero esto no es necesario y se pueden escoger condiciones apropiadas para que no se retire vapor de agua en este punto.

Una consecuencia de la reacción de formación de metano es que la temperatura del gas aumenta, y se establece un gradiente de temperatura por todo el lecho de catalizador, que aumenta en el sentido de circulación del gas; pero la temperatura máxima alcanzada no es mayor que el vapor impuesto (tal como se describe en el 49th Report of the Joint Research Committee of the Gas Research Board and the University of Leeds, página 32 y siguientes) por la previa presencia de metano en el gas de síntesis. Según se produce metano, la temperatura aumenta hasta que los gases están en equilibrio a temperatura alcanzada, en cuyo momento



7

no puede tener lugar ningún nuevo cambio, en ausencia de medios para enfriar el lecho de catalizador. La máxima temperatura alcanzada es la temperatura de equilibrio; en general, cuanto mayor es el contenido inicial de metano, menor es la temperatura de equilibrio. Los gases que abandonan la primera etapa de formación de metano son enfriados de manera que se condensa alguna cantidad de vapor de agua, y preferiblemente la mayor parte del mismo, siendo el objeto de ésto dejar sólo en los gases el vapor de agua suficiente para impedir la deposición de carbono. Entonces, la mezcla gaseosa es introducida en una segunda etapa de formación de metano, que incorpora un catalizador apropiado a una temperatura a la cual puede volver a comenzar la síntesis de metano. Puede ser necesario un precalentamiento después de la etapa de condensación; es decir, la temperatura a la que los gases son enfriados puede estar por debajo de la que se desea para introducirlos en la segunda etapa. Se forma más metano y de nuevo la temperatura aumenta hasta un máximo. Se aplican las mismas consideraciones, en cuanto a la temperatura del catalizador de formación de metano, en la segunda etapa que en la primera, con la condición de que el margen esté siempre por debajo de la temperatura de salida de los gases de la primera etapa de formación de metano. Preferiblemente, la temperatura máxima alcanzada en la segunda etapa no excede de 350°C.

Si se desea, el enfriamiento y la formación de metano pueden ser repetidos, pero son generalmente suficientes dos etapas de estas operaciones para producir un gas que consiste casi enteramente en metano y dióxido de carbono, a partir del cual, mediante métodos conocidos de eliminación de dióxido de carbono, se puede producir un gas que consiste casi enteramente en metano.

30
30.3.67.

El procedimiento trabaja preferiblemente por encima -

- 7 -

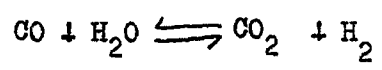
337160



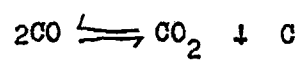
de la presión atmosférica, por ejemplo, dentro del margen de -
5 a 100 atmósferas, pero si se requiere se pueden utilizar pre-
siones más altas, siempre que se evite la condensación indeseable
de vapor de agua. Un margen más preferido es de 20 a 80 atmósfe-
5 ras. La utilización de las presiones más altas dentro de estos -
márgenes puede ser especialmente ventajosa cuando se desea ali-
mentar los gases en un sistema de distribución a alta presión,-
tal como el utilizado para la distribución de gas natural. Una -
temperatura conveniente de introducción de la mezcla de gases en-
10 las etapas de formación de metano está dentro del margen de 250 -
a 300°C. Se pueden utilizar temperaturas más bajas siempre que -
se escojan catalizadores de actividad suficiente, y pueden dar -
como resultado el que el gas final se aproxime todavía más en su -
composición al metano puro.

15 Catalizadores particularmente apropiados para las eta-
pas de formación de metano son catalizadores de níquel y alúmina
activos, que pueden ser preparados por precipitación conjunta. -
Las dos etapas pueden contener catalizadores de la misma composi-
ción, pero no lo necesitan. Las temperaturas a la que los gases -
20 son introducidos en las dos etapas pueden ser iguales, pero no ne-
cesitan serlo.

En las reacciones de gasificación catalítica que com-
prenden óxidos de carbono, se utiliza vapor de agua, según es co-
nocido, para controlar las proporciones relativas del monóxido -
25 y del dióxido mediante la reacción



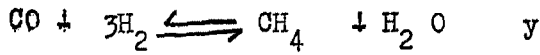
de manera que se evita que la reacción de Boudouard



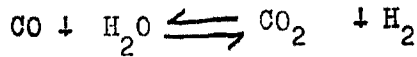
30 se desplace hacia la derecha y origine depósitos de carbono y blo-



queos del catalizador. La concentración mínima de vapor de -
agua suministrado a ambas etapas del procedimiento es tal que
cuando los gases alcanzan el equilibrio en las reacciones



5



hay un exceso de dióxido de carbono sobre el monóxido de carbono con relación al equilibrio de Boudouard.

10 La composición y la temperatura de los gases que abandonan la etapa de gasificación del procedimiento descrito en la Memoria número 820.257 es tal que no hay peligro de deposición de carbono, habiendo más dióxido de carbono en relación con el monóxido de carbono que lo que requiere el equilibrio. Cuando los gases son enfriados, no hay cambio material en la
15 composición, y el margen de seguridad en lo que respecta a la deposición de carbono resulta más estrecho y eventualmente desaparece. Esto es debido a que la presión parcial del monóxido de carbono que es estable en la presencia de una presión parcial dada de dióxido de carbono, disminuye progresivamente según des-
20 ciende la temperatura, debido al cambio de la constante de equilibrio de la reacción de Boudouard con la temperatura. Sin embargo, no es necesario interrumpir el enfriamiento antes del punto en que resulta termodinámicamente posible la deposición de carbono, a causa de que cuando los gases alcanzan un catali-
25 zador activo, las reacciones de formación de metano que comienzan inmediatamente, y que consumen monóxido de carbono, son suficientes para reducir la concentración de monóxido de carbono por debajo de un nivel en el que sea posible la formación de carbono.

30 Ya que el vapor de agua es un producto de las reacciones de síntesis, su presencia continua impediría alcanzar la



concentración final deseada de metano. Sin embargo, después -
que los gases han atravesado la primera etapa, y la concen -
tración de monóxido de carbono ha sido reducida a un nivel -
muy bajo, desde luego con relación a la de dióxido de carbo -
no, al alcanzar el equilibrio a una temperatura comparativa -
5 mente baja, resulta posible eliminar una gran parte o casi la
totalidad del vapor de agua por enfriamiento y condensación -
parcial, sin incurrir en ningún riesgo de deposición de carbo -
no en la subsiguiente etapa de formación de metano. En esta -
10 etapa es posible entonces consumir casi todo el hidrógeno re -
sidual en la formación de metano, dejando sólo un exceso de -
dióxido de carbono que puede ser eliminado fácilmente.

Es un aspecto del presente invento el hecho de que -
no es necesario crear medios para enfriar ningún lecho de cata -
lizador, para fabricar un gas que contenga más de 90 o 95% de -
15 metano, o incluso más de 97,5 o 98,5%, después de eliminar el -
vapor de agua y el dióxido de carbono, siempre que la formación
de metano se realice a una temperatura suficientemente baja, y -
en la realización preferida del procedimiento, ésto se logra por
20 control apropiado de las temperaturas de los gases que penetran -
en las etapas de formación de metano.

Sin embargo, es posible, aunque no preferido, disponer
medios para enfriar, al menos en la primera etapa, utilizando -
preferiblemente enfriamiento interno, estando el catalizador de -
25 formación de metano en la forma de un lecho fluidificado; la so -
licitud de patente británica núm. 553/66 pendiente de la firma -
solicitante, describe aparatos apropiados en los que una mezcla -
reaccionante es distribuida en un lecho fluidificado del catali -
zador de formación de metano, siendo enfriado el lecho por un -
30

337 160



7

5 fluido de refrigeración que circula a través de una serie de -
tuberías dentro del lecho. Cuando se utiliza dicho sistema, -
los gases que penetran en la etapa de formación de metano no -
necesitan ser enfriados a una temperatura tan baja como en la-
manera preferida de emplear el invento.

Es posible utilizar un lecho fluidificado en la se-
gunda etapa del aparato de formación de metano de manera simi-
lar, con o sin enfriamiento interno, aunque no existe ventaja -
en obrar de esta manera. Esto se debe a que es necesario que -
10 los gases que abandonan la primera etapa de formación de metano
sean enfriados hasta una temperatura tal que una gran propor-
ción de vapor de agua sea condensada, de manera que éste pueda-
ser desechado en forma de agua. Esta temperatura está general-
mente por debajo de la temperatura a la que los gases son intro-
15 ducidos en la segunda etapa, de manera que el modo de funciona-
miento o trabajo más conveniente consiste en llevar la tempera-
tura del gas hasta el nivel requerido después de esta operación-
de enfriamiento y hacer funcionar el segundo aparato de forma-
ción de metano sin enfriamiento interno y con el catalizador -
20 en forma de un lecho fijo.

Los siguientes ejemplos ilustran el invento.

EJEMPLO I.- Un gas seco rico en metano, que había -
sido preparado por gasificación catalítica en vapor de agua de -
un destilado ligero de petróleo bajo presión, a temperaturas del
25 catalizador de 400 a 550°C, fué tomado del almacenamiento, y se
le añadió vapor de agua, para simular el gas húmedo tal como -
sale del reactor.

La mezcla fué introducida a 300°C y 25 atmósferas -
de presión en una columna de catalizador de 4,4 mm. de diámetro
30 y 0,6 m. de longitud, que funciona adiabáticamente, y se observó



una elevación de temperatura de aproximadamente 90°C.

5 Por conveniencias experimentales, los productos -
fueron enfriados hasta la temperatura ambiente, y el gas casi -
seco fué mezclado con una cantidad apropiada de vapor de agua -
antes de entrar, también a 300°C y 25 atmósferas de presión, en-
una segunda etapa de formación de metano de las mismas dimensio-
nes que la primera. El lecho de catalizador de esta etapa fué -
mantenido, mediante control externo, a 338°C, que es la tempera-
tura final adiabática calculada.

10 El catalizador de ambas etapas era un catalizador
de níquel y alúmina precipitado conjuntamente, preparado general-
mente como en la patente española núm. 297.627 de la firma soli-
citante, que contenía 75% de níquel (calculado como metal) y 1,6%
de potasio (calculado como metal) que había sido añadido en for-
ma de carbonato de potasio, estando los porcentajes con relación
15 al total del níquel, la alúmina y el potasio en el catalizador.

Se obtuvieron los siguientes resultados.

Velocidades espaciales (volúmenes en condiciones
normales de gas seco de salida por volumen de espacio de catali-
zador por hora): Etapa número 1: 7100, Etapa núm. 2: 6.800.
20

Composiciones del gas (% en volumen):

	Entrada en la etapa 1, húmedo.	Salida de la etapa 1, húmedo.	Entrada en la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, seco	Salida de la etapa 2 seco y exer- to de CO ₂
25						
CO ₂	11,9	10,3	18,2	17,5	21,0	-
CO	0,7	0,1	0,2	0,1	0,1	0,1
H ₂	12,4	2,7	4,8	0,9	1,1	1,4
CH ₄	30,6	35,2	62,3	64,6	77,8	98,5
H ₂ O	44,4	51,7	14,5	16,9	-	-

30 Estos resultados fueron obtenidos después de -



Velocidad espacial, volúmenes en condiciones normales de gas seco producido/volumen de espacio de catalizador/hora. 5010 4360

5 Velocidad de producción de gas (seco, - antes de la eliminación de CO₂), m³/hora. - 122,341.

Composiciones de gases (% en volumen):

	Entrada en la etapa 1, húmedo.	Salida de la etapa 1, húmedo.	Entrada en la etapa 2, húmedo	Salida de la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, seco	Salida de la etapa 2, seco y exento de CO ₂
10 CO ₂	10,85	10,20	19,05	17,90	20,25	-
CO	0,55	0,05	0,10	0,0	0,0	0,0
H ₂	8,95	2,55	4,75	0,80	0,9	1,15
CH ₄	30,95	36,05	67,25	69,65	78,85	98,85
H ₂ O	48,70	51,15	8,85	11,65	-	-

15

El suministro de vapor de agua a la primera etapa - (ignorando las reacciones) es equivalente a 2,0 kg. por kg. de destilado inicial, no habiendo condensación después del reactor de gasificación, y la de la segunda etapa corresponde a 0,7 kg/kg, sobre la misma base.

20

Los resultados anteriores se obtuvieron después de 268 horas de funcionamiento de las etapas de formación de metano. - Se continuó sustancialmente bajo las mismas condiciones de funcionamiento durante 1138 horas en total, y después de 1008 horas se obtuvieron gases con las siguientes composiciones.

25

30



Composiciones de gases (% en volumen):

	Entrada en la etapa 1, húmedo.	Salida de la etapa 1, húmedo.	Entrada en la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, seco.	Salida de la etapa 2, seco y exento de CO ₂	
5	CO ₂	9,5	9,35	18,9	17,8	20,25	-
	CO	0,55	0,1	0,25	0,0	0,0	0,0
	H ₂	6,45	2,2	4,5	0,9	1,0	1,25
	CH ₄	30,5	33,1	67,0	69,25	78,75	98,75
10	H ₂ O	53,0	55,25	9,35	12,05	-	-

Por lo tanto no había evidencia de cambio en el rendimiento de los catalizadores de formación de metano.

El experimento sobre el que está basado el Ejemplo III, demostró la aptitud del invento para ser aplicado a la producción de un gas que contenía una proporción de metano aún mayor que en el experimento II, utilizando temperaturas de entrada menores para las etapas de formación de metano. Entre el final del primer experimento y el comienzo del segundo, se cambiaron las relaciones de vapor de agua a destilado, y el material de alimentación de destilado ligero, y se estudiaron ciertas condiciones de trabajo afines.

Ejemplo III.- Después del final del experimento descrito en el Ejemplo II y de los cambios en las condiciones de trabajo antes mencionadas, se disminuyeron las temperaturas de entrada en las etapas de formación de metano, permaneciendo invariable el catalizador.

Los detalles de los experimentos están indicados seguidamente.

Etapas de gasificación de destilado ligero:

30 Altura del lecho de catalizador, m. 1,2

3.3.67.

337 160



Diámetro del lecho de catalizador, mm. 135.

Material de alimentación hidrocarbonado. Destilado de petróleo ligero, punto de ebullición final 139°C.

Relación en peso de vapor de agua/destilado. 1,6

5 Presión, atmósferas manométricas. 24,5

Etapas de formación de metano:

	Etapa 1	Etapa 2
Altura del lecho de catalizador, m.	1,5	1,35
Diámetro " " mm.	144	159
10 Presión, atmósferas manométricas.	24,5	24,5
Temperatura, °C, entrada	250	250
salida	353	275
15 Velocidad espacial, volúmenes en condiciones normales del gas seco producido/volumen de espacio de catalizador/hora.	5179	4590
Velocidad de producción de gas - (seco antes de la eliminación de CO ₂), m ³ /hora.	-	128,906

Composiciones de gases (% en volumen)

	Entrada en la etapa 1, húmedo	Salida de la etapa 1, húmedo	Entrada en la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, húmedo.	Salida de la etapa 2, seco.	Salida de la etapa 2, seco y exento de CO ₂
CO ₂	13,4	12,25	21,45	20,0	21,45	-
CO	0,7	0,15	0,25	0,1	0,1	0,15
H ₂	10,2	1,5	2,65	0,25	0,25	0,3
25 CH ₄	38,2	41,35	72,45	72,95	78,2	99,55
H ₂ O	37,5	44,75	3,2	6,7	-	-

Se comenzó el trabajo bajo estas condiciones después que los catalizadores hubieron estado en utilización durante -

30

30.3.67.



un total de 1893 horas y se continuó durante 117 horas adicionales, no efectuándose intentos de continuar durante un período prolongado. Los resultados indicados se obtuvieron después de 108 horas de trabajo bajo las condiciones establecidas. Aunque no había evidencia de deterioro o degradación del catalizador, o de cualquier incapacidad de los catalizadores de formación de metano para funcionar a la temperatura más baja, después de ser utilizados a la temperatura más alta, sería preferible utilizar catalizadores de nueva aportación si se deseara trabajar durante un largo tiempo a una temperatura de entrada de 250°C.

Esta Solicitud, que corresponde a la presentada en Gran Bretaña el 24 de Febrero de 1.966, bajo el número 8257/66, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

N O T A

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta Solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

1). Un procedimiento para preparar un gas que contiene metano a partir de una mezcla reaccionante que comprende metano, hidrógeno, monóxido de carbono, dióxido de carbono, y vapor de agua, método que comprende hacer pasar la mezcla reaccionante sobre un catalizador de formación de metano a una temperatura de 400°C o menor, caracterizado porque el contenido de metano de la mezcla reaccionante es al menos de 25% en volumen y porque el método comprende hacer

30.3.67.

- 17 - 337160



5 pasar la mezcla reaccionante en una primera etapa de forma -
ción de metano sobre un catalizador de formación de metano,-
cuya temperatura es desde 200°C a 450°C, eliminar al menos -
parte del vapor de agua de la mezcla que abandona la primera
5 etapa de formación de metano, hacer pasar la mezcla en una -
segunda etapa de formación de metano sobre un catalizador de-
formación de metano, cuya temperatura está dentro de un margen
que es menor que la temperatura de salida de la mezcla desde -
el catalizador de formación de metano de la primera etapa de -
10 formación de metano, de manera que tiene lugar nueva formación
de metano, siendo la cantidad de vapor de agua presente en ca-
da una de las etapas al menos suficiente para impedir la depo-
sición de carbono sobre el catalizador, y eliminar subsiguien-
tamente dióxido de carbono y cualquier cantidad remanente de -
15 vapor de agua de la mezcla.

2). Un procedimiento según la reivindicación 1, -
caracterizado porque la mezcla reaccionante que penetra en la-
primera etapa de formación de metano comprende de 25 a 50% en-
volumen de metano, de 5 a 20% en volumen de dióxido de carbono,
20 de 0 a 5% en volumen de monóxido de carbono, de 5 a 30% en -
volumen de hidrógeno, y de 30 a 60% en volumen de vapor de agua.

3). Un procedimiento según la reivindicación 1 o -
la reivindicación 2, caracterizado porque la temperatura del -
catalizador en cada caso es de 250°C a 400°C.

25 4). Un procedimiento según una cualquiera de las -
precedentes reivindicaciones, caracterizado porque la tempera-
tura del catalizador de la segunda etapa es de 250°C a 350°C.

5). Un procedimiento según una cualquiera de las -
precedentes reivindicaciones, caracterizado porque la cantidad

30



de vapor de agua presente en la mezcla, después que el vapor de agua ha sido eliminado después de la primera etapa de formación de metano, no es sustancialmente mayor que la requerida para impedir la deposición de carbono sobre el catalizador.

5 6). Un procedimiento según una cualquiera de las precedentes reivindicaciones, caracterizado porque el catalizador de la primera etapa y/o de la segunda etapa es un catalizador de níquel y alúmina, preparado por precipitación conjunta.

10 7). Un procedimiento según una cualquiera de las precedentes reivindicaciones, caracterizado porque la mezcla es precalentada antes de ser introducida en la segunda etapa de formación de metano.

15 8). Un procedimiento para producir un gas que contiene metano.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de diecinueve hojas escritas a máquina por una sola de sus caras.

20

Madrid,

7 ABR. 1957

P.A.

Alfredo de Elzaburu
Ingeniero

337 160