

MINISTÈRE  
DES  
AFFAIRES ÉCONOMIQUES

Administration du Commerce Intérieur

SERVICE  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
ET COMMERCIALE

N<sup>o</sup> 118492.

ROYAUME DE BELGIQUE



BREVET D'INVENTION

Le Ministre des Affaires Économiques,

Vu la loi du 24 mai 1854;

Vu la convention d'union pour la protection de la propriété industrielle;

Vu le procès-verbal dressé le 49 novembre 1936, à 4.3 h 45',

au Greffe du Gouvernement provincial du Brabant;

ARRÊTE :

Article 1<sup>er</sup> — Il est délivré à J. G. Farbenindustrie A.-G.  
à Frankfurt a. Main. (Allemagne.)  
repr. par l'Offici. Reichspatent H. C. Neuman, Paris,  
et Bruxelles.

un brevet d'invention pour :  
Procédé pour l'effluion des réactions entre les oxydes  
du carbone et l'hydrogène.

faisant l'objet d'une première demande de brevet qui elle a déclaré avoir déposée  
en Allemagne le 13 décembre 1935

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

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

Bruxelles, le 14 décembre 1936.

Au nom du Ministre et par délégation :

Le Directeur, chef d'Administration,

Le Directeur Général DU COMMERCE INTÉRIEUR

*Cayax*

ROYAUME DE BELGIQUE

MINISTÈRE DES AFFAIRES ÉCONOMIQUES

BREVET d'invention n° 418492

DEMANDE DÉPOSÉE, le 13 XI 1935

BREVET ACCORDÉ par arrêté ministériel du 31 XII 1936

MÉMOIRE DESCRIPTIF

DÉPOSÉ A L'APPUI D'UNE DEMANDE

M.

DE

O.Z.9.148

BREVET D'INVENTION

FORMÉE PAR

la Société dite: I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

p o u r :

Procédé pour effectuer des réactions entre les oxydes du  
carbone et l'hydrogène.

Demande de brevet allemand en sa faveur du 13 Décembre 1935.



Il est connu qu'il est nécessaire que les réactions des oxydes du carbone et surtout de l'oxyde de carbone avec l'hydrogène se déroulent dans des conditions de température qu'il faut observer d'une façon très étroite si l'on tient à obtenir un rendement optimum en composés organiques comportant plus d'un atome de carbone, en particulier en hydrocarbures liquides ou leurs dérivés oxygénés, et par conséquent le maximum d'économie du procédé.

Les réactions en question sont exothermiques; c'est-à-dire qu'à partir d'une certaine grandeur de four au-dessus de laquelle la chaleur mise en liberté excède les pertes par

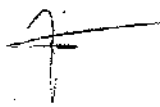
A handwritten signature, possibly 'J. F.', written in ink.

rayonnement, il est nécessaire de pourvoir sans discontinuer à l'évacuation de l'excédent de chaleur. Suivant les procédés de réfrigération connus à ce jour, on établit un échange thermique indirect en courants de même sens ou de sens contraires entre un fluide relativement froid liquide ou gazeux et le mélange de réaction qu'il s'agit de réfrigérer. Le long du trajet que parcourt le fluide réfrigérant sa température s'élève et il perd de son efficacité à cause de la diminution de la différence moyenne des températures. Ces modes opératoires conviennent donc pour effectuer des réactions dans lesquelles le virage de chaleur ne varie pas de façon uniforme, c'est-à-dire par exemple dans lesquelles, au commencement de la réaction, il est nécessaire d'évacuer une fraction sensiblement plus grande de la chaleur totale qu'au milieu et qu'à la fin. Si par contre la réaction s'accompagne d'un dégagement de chaleur constant ou si ce dégagement se déroule sans variations considérables, ce qui est le cas en général pour les réactions qu'on effectue sous des pressions peu élevées, c'est-à-dire normales ou faiblement supérieures, l'inconvénient susindiqué se manifeste alors d'une manière d'autant plus accentuée que la réaction se déroule plus uniformément.

Or on a trouvé que dans lesdites réactions des oxydes du carbone avec l'hydrogène, en particulier lorsqu'on fait agir de l'hydrogène sur de l'oxyde de carbone sous pression normale ou élevée en vue de former des hydrocarbures liquides ou leurs dérivés, on peut très avantageusement évacuer par échange de chaleur indirect la chaleur en excès en introduisant de la vapeur humide dans la chambre de réfrigération. On emploiera utilement une vapeur humide dont on maintiendra la saturation dans les limites comprises entre environ 60 et environ 80 %, c'est-à-dire dans laquelle jusqu'à 40 % de l'eau

se trouve dans la phase liquide (sous forme de petites gouttelettes en suspension). En ce cas non seulement la température de la vapeur humide employée comme fluide réfrigérant demeure constante, et avec elle par conséquent la température des substances en réaction pendant l'absorption de chaleur par ledit fluide réfrigérant, mais le coefficient de transmission de chaleur conserve aussi une valeur maximum dans les limites de saturation de 60 à 100 %. Un tel système de réfrigération possède le caractère d'un bain réfrigérant à température rigoureusement uniforme qu'il n'est pratiquement pas possible d'obtenir suivant d'autres procédés. Pour des raisons de thermotechnique c'est la zone de pressions comprise entre 5 et 15 atm qui convient particulièrement suivant la température de réaction à maintenir, car la vapeur saturée à laquelle la vapeur humide donne naissance sous ces pressions par échange de chaleur permet d'utiliser un maximum d'énergie. Il y a également intérêt à maintenir le fluide réfrigérant sous une pression telle que la température de la vapeur saturée ne soit que faiblement inférieure à celle de la réaction. Lorsqu'on constate qu'au cours de la réfrigération la saturation intervient dès avant la fin de la réaction, il y a intérêt à abaisser le degré de saturation, en injectant ou en pulvérisant de l'eau dans la chambre de réfrigération, dans une mesure suffisante pour que dans la suite la température à laquelle se forme de la vapeur saturée ne soit plus dépassée, de sorte qu'il ne se forme ainsi pas de vapeur d'eau surchauffée.

La vapeur humide à employer comme fluide réfrigérant peut se préparer de diverses manières. Par exemple, on peut procéder en chauffant jusqu'à la température de vapeur saturée, au moyen d'une source de chaleur résiduelle quelconque disponible, l'eau qui se trouve sous la pression employée pour la



réfrigération, puis en la vaporisant, auquel cas il se forme une vapeur humide renfermant une forte proportion d'eau liquide. D'autre manière, on détend de l'eau bouillante qui se trouve sous pression, qu'on avait par exemple chauffée avec un virage de chaleur considérable en échange thermique avec une chambre de réaction, jusqu'à la pression employée pour la réfrigération et l'on établit le degré de saturation désiré par une injection d'eau. La vapeur humide ainsi employée pour la réfrigération peut évacuer de la chaleur du récipient de réaction jusqu'à ce qu'il se forme de la vapeur saturée. La vapeur saturée ainsi obtenue peut s'utiliser ensuite pour le chauffage ou bien, après détente à une pression inférieure, pour produire de l'énergie. Il y aura intérêt à restituer au cycle une partie du condensat.

#### E X E M P L E

A travers trois chambres de réaction remplies d'un catalyseur au nickel, branchées à la suite l'une de l'autre et de 20 m<sup>3</sup> de capacité chacune, faisant partie d'un appareil pour préparer des hydrocarbures à partir de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène (voir le dessin) on fait passer par heure 6000 m<sup>3</sup> d'un mélange gazeux formé de 2 parties d'hydrogène (4000 m<sup>3</sup>) pour 1 partie d'oxyde de carbone (2000 m<sup>3</sup>). La chaleur de réaction dégagée au cours de l'opération est de 600 Cal. par m<sup>3</sup> de mélange gazeux introduit; il est donc dégagé au total par heure 3.600.000 Cal. La température de réaction doit être maintenue entre 300 et 302°C. Le calorifugeage étant satisfaisant et la température opératoire relativement peu élevée, on peut compter que la perte par rayonnement sera au maximum de 100.000 Cal. par heure, c'est-à-dire qu'il faudra évacuer par heure 3.500.000 Cal. A cet effet les chambres



de réaction a sont construites de façon telle que le catalyseur se trouve dans chaque cas dans les intervalles d'un faisceau tubulaire b à travers lequel on fait passer de la vapeur humide à 60 % de vapeur et sous une pression de 16 atm introduite par d. La vapeur quitte les faisceaux tubulaires à l'état de vapeur saturée en c. 1 kg de vapeur se charge de 200 Cal.; il est ainsi produit au total et par heure 17,5 T. de vapeur saturée qu'on peut utiliser par exemple pour actionner un groupe de turbines avec un bon rendement. Après avoir évacué les produits de réaction de la dernière chambre de réaction en h on les fait passer à travers l'échangeur de chaleur e et ensuite à travers le refroidisseur f dans lequel s'effectue la condensation des produits liquides à la température ordinaire. On sépare ces derniers des fractions non condensées dans le séparateur g. Les gaz primitifs sont introduits en i et, après les avoir fait passer à travers l'échangeur de chaleur e et le réchauffeur k, on les introduits en l dans la première chambre de réaction a.

#### R E S U M E

-----

1°) Procédé pour effectuer des réactions entre les oxydes du carbone et l'hydrogène, en particulier la réaction de l'oxyde de carbone avec l'hydrogène sous pression ordinaire ou élevée en vue de former des hydrocarbures liquides ou leurs dérivés oxygénés, consistant à maintenir la température voulue pour la réaction en éliminant l'excédent de la chaleur mise en liberté par échange thermique indirect entre les substances en réaction et de la vapeur humide introduite dans la chambre de réfrigération.

2°) On maintient la saturation de la vapeur humide



418492

6.-

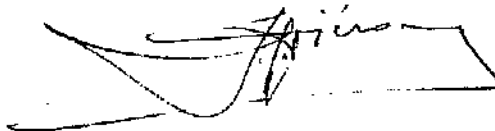
dans les limites comprises entre environ 60 et 80%.

3°) La vapeur humide employée comme milieu réfrigérant est maintenue sous une pression telle que la température de vapeur saturée ne soit que faiblement inférieure à la température de réaction.

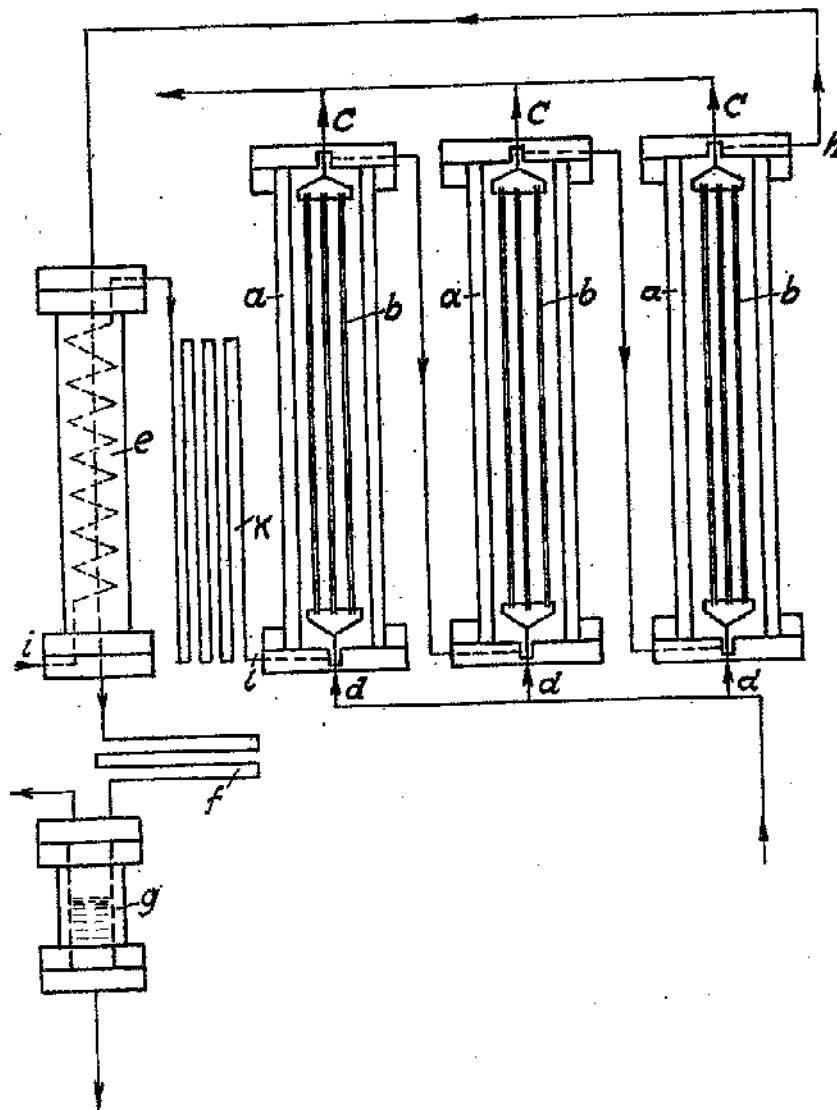
Bruxelles, le 19 Novembre 1936

P.pon.de la Soc.dite: I.G. FARBENINDUSTRIE AKT.GES.

OFFICE KIRKPATRICK  
H. & C. PLUCKER Succrs.

A handwritten signature in dark ink, appearing to be 'H. Plucker', written over a rectangular stamp or box.

418492



Bruxelles, le 19 Novembre 1936  
 P. pour ce la Soc. dite: L.G. FARZENINDUSTRIE ART.GES.  
 OFFICE NIEKPATRICK - H. & C. PLOUËR Succrs.

*[Signature]*