

MINISTÈRE DES
AFFAIRES ÉCONOMIQUES,
DES CLASSES MOYENNES,
ET DE L'AGRICULTURE

SERVICE
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

No. 428.938

ROYAUME DE BELGIQUE



BREVET D'INVENTION

Le Ministre des Affaires Economiques, des Classes Moyennes et de l'Agriculture,

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 1 juillet 1938 à 13 h.05.,

au Greffe du Gouvernement provincial du Brabant ;

ARRÊTE :

Article 1. — Il est délivré à J.G. Forben Industrie Elektro-
-gesellschaft, à Frankfurt a/Main (Allemagne)
rep. par l'Office Reichpatent, H. & L. Plucker
succurs. à Bruxelles,
un brevet d'invention pour Procédé pour préparer des
produits de polymérisation,

faisant l'objet d'une première demande de brevet qu'elle a déclaré avoir déposée
en Allemagne le 5 juillet 1937.

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 11 août 1938.

Au nom du Ministre et par délégation :

Le Directeur, chef de service

CI

ROYAUME DE BELGIQUE
MINISTÈRE DES AFFAIRES ÉCONOMIQUES
DES CLASSES MOYENNES ET DE L'AGRICULTURE
BREVET d'invention n° 428938
DEMANDE DÉPOSÉE, le 1. VII. 1938
BREVET ACCORDÉ par arrêté ministériel du 31. VIII. 1938

MÉMOIRE DESCRIPTIF

DÉPOSÉ A L'APPUI D'UNE DEMANDE

M.

DE

G.Z.10085

BREVET D'INVENTION

FORMÉE PAR

la Société dite: I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT



p o u r :

Procédé pour préparer des produits de polymérisation.

Demande de brevet allemand en sa faveur du 5 Juillet 1937.

On a trouvé qu'on obtient d'intéressants produits de polymérisation à poids moléculaire élevé en polymérisant au moyen d'halogénures inorganiques réagissant de façon acide, ou de substances présentant une grande surface, des composés présentant une double liaison se prêtant à la polymérisation et qui, polymérisés isolément au moyen d'halogénures inorganiques réagissant de façon acide, ou de substances présentant une grande surface, donnent des produits à poids moléculaire élevé, conjointement à des produits de dédoublement ou de déshydrogénation d'hydrocarbures ou conjointement à des hydrocarbures susceptibles d'être obtenus lors de la synthèse de l'essence à partir de l'oxyde de carbone et de

HW

l'hydrogène, dans la mesure où ces hydrocarbures contiennent des constituants non saturés.

Comme composés présentant une double liaison se prêtant à la polymérisation et qui, polymérisés isolément au moyen d'halogénures inorganiques réagissant de façon acide, ou de substances présentant une grande surface, donnent des produits à poids moléculaire élevé, on peut citer le styrène, les alcoyl-styrènes, les éthers vinyliques comme les éthers éthyl-, isobutyl- ou oléyl-vinyliques, l'isobutylène, les monovinyl- et divinyl-acétylènes, la coumarone et l'indène. Pour cette polymérisation on peut également employer des mélanges de ces substances.

Des produits convenables du dédoublement ou de la déshydrogénation d'hydrocarbures sont en particulier ceux qu'on obtient à partir d'hydrocarbures riches en hydrogène, renfermant de préférence plus de 13,5 et en particulier plus de 15 gr. d'hydrogène pour 100 gr de carbone, ou à partir de pétroles à base paraffinique ou de leurs fractions, ou à partir de produits d'hydrogénation de charbons, de goudrons ou d'huiles ou de fractions de ces produits. Conviennent également des produits de dédoublement ou de déshydrogénation de substances susceptibles d'être obtenues lors de la synthèse de l'essence à partir de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène avec ou sans application de pression, ou ces substances elles-mêmes dans la mesure où elles renferment des constituants non saturés. Les produits qui conviennent le mieux sont ceux qu'on obtient en dédoublant les dites substances à des températures supérieures à 350°C, le cas échéant en présence de catalyseurs, comme l'alumine ou les terres décolorantes, qu'on peut aussi avoir traités au moyen d'acides comme l'acide chlorhydrique, ou particulièrement par dédoublement à

IMP.

des températures de 450 à 800°C. Dans ce dernier cas les produits de dédoublement renferment beaucoup de constituants plusieurs fois non saturés.

Quant aux produits de déshydrogénation, on peut également les obtenir de manière connue, par exemple en faisant passer les matières premières à travers des tubes à haute température ou sur des catalyseurs de déshydrogénation connus, en traitant des hydrocarbures saturés au moyen d'halogène avec élimination d'acide halogénhydrique ou en les traitant au moyen d'oxygène ou de soufre, le cas échéant en présence de terres décolorantes, d'acide borique ou d'acide oxalique.

Comme halogénures inorganiques réagissant de façon acide on peut citer le chlorure d'aluminium, le chlorure de fer, le chlorure de zinc, le chlorure de titane et en particulier le fluorure de bore, de même que ses produits d'addition avec des alcools, des éthers, des acides ou l'eau.

Des substances convenables présentant une grande surface sont en particulier celles dont la nature est acide, comme le gel de silice ou les terres décolorantes connues sous les noms de "Terrana", "Terre de Floride" et "Terre à foulons". Leur action est souvent intensifiée par l'adjonction d'acides, comme l'acide borique ou l'acide phosphorique, ou de sels acides.

La polymérisation des mélanges des dites substances peut s'effectuer à température normale, élevée ou même subnormale, par exemple inférieure à -10°C jusqu'à -70°C et même au-dessous.

Pour la polymérisation on peut employer aussi en même temps des solvants, par exemple des hydrocarbures comme le benzène ou l'essence, ou des hydrocarbures halogénés comme

le tétrachlorure de carbone, le chloroforme, le chlorure d'éthylène ou encore des esters ou des mélanges de tels solvants.

Les produits de polymérisation obtenus sont solubles dans les huiles et constituent d'intéressants améliorants de viscosité. Alors que les améliorants de viscosité sont fréquemment très sensibles à la chaleur et qu'ils perdent leur activité aux températures supérieures à 300°C, ces produits de polymérisation sont stables à la chaleur et ils conservent l'action améliorante qu'ils exercent sur les huiles lubrifiantes lorsqu'on chauffe ces dernières durant longtemps à des températures élevées. Ces produits de polymérisation conviennent également de façon remarquable comme adjuvants pour les huiles et graisses à mouvements.

EXEMPLE 1.- Introduire à la température ordinaire du fluorure de bore gazeux dans un mélange de 70 parties de styrène et de 130 parties d'un mélange renfermant des hydrocarbures non saturés et qu'on aura obtenu en dédoublant à une température de 500°C de la paraffine solide. La température du mélange s'élève alors à environ 60°C. Maintenir durant 10 heures le mélange à cette température. A l'effet d'en chasser le fluorure de bore chauffer le polymérisat à une température de 250°C et le distiller ensuite dans le vide. Comme distillat on obtient 10 parties d'huile moyenne et 50 parties d'huile à broches. Il demeure en résidu 126 parties sous forme d'une masse plastique compacte qui donne à l'essai de Conradson une valeur de 0,16 %. Cette masse convient remarquablement comme adjuvant pour l'huile lubrifiante. C'est ainsi que si l'on en ajoute 5 % à une huile à mouvements ayant à la température de 50°C une viscosité Engler de 6,5° et un indice de viscosité de 5 on élève sa viscosité Engler à 8,6° et son indice de viscosité à 49.

Int.

EXEMPLE 2.- Refroidir à une température de -5°C un mélange de 50 parties d'isobutylène, de 50 parties de styrolène et de 55 parties d'un produit liquide obtenu en dédoublant de la paraffine à une température de 500°C, puis le polymériser en présence de fluorure de bore. Au cours de la réaction la température s'élève lentement à 50°C. On obtient avec un rendement de 92 % une huile très visqueuse qui présente à la température de 100°C une viscosité Engler de 80°. Elle convient excoellemment pour améliorer les caractéristiques de viscosité des hydrocarbures huileux, en particulier des huiles lubrifiantes, et elle ne perd pas son efficacité lorsqu'on chauffe à une température de 300°C ses mélanges avec les huiles.

R E S U M E

1.- Procédé pour préparer des produits de polymérisation, consistant à polymériser au moyen d'halogénures inorganiques réagissant de façon acide, ou de substances présentant une grande surface, des composés présentant une double liaison se prêtant à la polymérisation et qui, polymérisés isolément au moyen d'halogénures inorganiques réagissant de façon acide, ou de substances présentant une grande surface, donnent des produits à poids moléculaire élevé, conjointement à des produits de dédoublement ou de déshydrogénation d'hydrocarbures ou conjointement à des hydrocarbures susceptibles d'être obtenus lors de la synthèse de l'essence à partir de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène.

2.- A titre de produits industriels nouveaux, les produits de polymérisation susceptibles d'être obtenus par le procédé ci-dessus défini, ainsi que leurs applications industrielles, notamment pour l'amélioration des caractéristiques de viscosité des huiles lubrifiantes.

Bruxelles, le 1er Juillet 1938
P.pon.de la Soc.dite: I.G. FARBENINDUSTRIE AKT.GES.
OFFICE KIRKPATRICK - H. & C. PLUCKER Succrs.

H. Plucker