

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 814.853

Procédé pour préparer des hydrocarbures.

Société dite : I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Allemagne.

Demandé le 12 décembre 1936, à 14^h 11^m, à Paris.

Délivré le 30 mars 1937. — Publié le 1^{er} juillet 1937.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 20 décembre 1935. — Déclaration du déposant.)

Lorsqu'on transforme du monoxyde de carbone, au moyen d'hydrogène, en hydrocarbures liquides, solides ou gazeux ou se présentant sous plusieurs de ces états, il peut arriver que les produits à poids moléculaire élevé, en particulier les cires paraffiniques, formés au cours de la réaction se déposent sur le catalyseur et nuisent à son activité. Le fort dégagement de chaleur qui se produit dans cette réaction aboutit rapidement à une congestion thermique dans les catalyseurs, si bien qu'il est difficile ou tout à fait impossible de maintenir la température de réaction désirée sans employer de mesures spéciales comme une grande subdivision de la chambre de réaction à l'effet d'éliminer la chaleur.

Or on a trouvé que cette transformation du monoxyde de carbone et de l'hydrogène en hydrocarbures, particulièrement en ceux dont la molécule renferme au moins deux atomes de carbone, qui est très délicate quant à la température à maintenir, peut s'effectuer très aisément sans ennuis ou difficultés considérables en ce qui concerne l'appareil en arrosant sans interruption ou périodiquement le catalyseur rigidement disposé au moyen d'un liquide pendant la transformation, grâce à quoi ledit catalyseur est maintenu à une température voulue. En opérant de cette manière l'activité du catalyseur ne

disparaît pas au cours de la réaction. Comme celle-ci doit s'effectuer dans la phase gazeuse, il faut éviter qu'un niveau de liquide s'établisse dans la chambre de réaction. Grâce à cet arrosage on évite le dépôt de produits à poids moléculaire élevé sur le catalyseur, parce que les produits à poids moléculaire élevé qui ont pu s'y déposer peuvent en être rééliminés par dissolution et aussi parce qu'il se produit une réfrigération du catalyseur, si bien qu'il est possible de disposer celui-ci dans des tubes d'un diamètre quelconque. Comme le liquide ruisselle à la surface du catalyseur et ne couvre ce dernier que sous une faible épaisseur, les gaz destinés à entrer en réaction n'ont pas de peine à atteindre le catalyseur parce que la distance que les gaz ont à parcourir à travers le liquide n'est que très faible. C'est là un avantage considérable par rapport au procédé qui consiste à remplir complètement ou partiellement de liquide la chambre de réaction, les gaz ne pouvant alors pas aussi facilement entrer en contact avec le catalyseur.

Comme catalyseurs convenables pour ladite transformation on peut citer toutes les substances qui favorisent catalytiquement cette transformation et qu'on dispose soit sous forme de fragments soit à l'état précipité sur des supports, avantageusement des supports métalliques. On peut employer

par exemple des fragments, des anneaux, des boules ou des réseaux de substances catalytiques, comme par exemple celles qui renferment des métaux du groupe du fer, telles que le fer ou le nickel. On peut aussi utiliser des précipités de substances catalytiques sur de la pierre ponce, ou des fragments, des réseaux ou des boules de métal, d'argile, de porcelaine ou de verre.

On peut faire passer le liquide suivant la présente invention dans le même sens que les gaz ou à contresens. Des liquides convenables sont les alcools, les hydrocarbures et autres liquides qui n'endommagent pas les catalyseurs et qui demeurent à l'état liquide dans les conditions de la réaction ou qui ne sont que partiellement vaporisés pendant l'opération de réfrigération. Des liquides particulièrement convenables pour réduire le monoxyde de carbone sont ceux dans lesquels les produits à poids moléculaire élevé qui se forment pendant la réaction se dissolvent ou se disséminent facilement, en particulier les solvants organiques comme les huiles moyennes, les huiles lourdes, les huiles paraffiniques et les huiles anthracéniques, et en particulier les substances liquides formées au cours même de la réaction, c'est-à-dire l'huile caractéristique. De cette huile caractéristique il vaut mieux employer les fractions dont au moins une partie considérable demeure liquide dans les conditions de la réaction. De même, lorsqu'on emploie des liquides étrangers, il faut qu'au moins une partie de ceux-ci demeure liquide dans les conditions de la réaction. La quantité de liquide sera de préférence choisie de manière qu'une mince couche de liquide soit toujours présente sur la surface du catalyseur. En certains cas, il peut être avantageux d'interrompre temporairement l'arrosage, surtout lorsqu'on cherche à obtenir une élévation temporaire de la température du catalyseur. Il y aura intérêt à faire parcourir au liquide un cycle fermé, au besoin avec interposition d'échangeurs de chaleur. L'opération suivant la présente invention peut s'effectuer sous des pressions voulues quelconques. On peut par exemple employer une pression légèrement supranormale, telle que de 2, 3, 5 ou 10 atm., ou des pressions plus élevées, telles que de 50, 100 atm. ou

plus. On peut aussi employer une pression normale ou réduite.

On a trouvé également qu'il y a intérêt à retirer le liquide en même temps que les produits de réaction de la chambre de réaction à l'extrémité inférieure de celle-ci. Le liquide peut être séparé des produits de réaction par des procédés connus, comme par exemple par une réfrigération énergique, une distillation ou l'emploi de solvants sélectifs.

Lorsqu'on fait passer le liquide en cycle fermé par dessus le catalyseur, ledit liquide et les produits de réaction à poids moléculaire élevé qu'il a absorbés peuvent en être retirés sans interruption ou à des intervalles déterminés.

La transformation s'effectuera aux températures habituelles, de préférence supérieures à 150° C. et avantageusement comprises entre 200 et 450° C.

La composition des gaz primitifs peut être comme à l'ordinaire.

L'exemple ci-après est donné en se référant au dessins ci-joint qui représente schématiquement et en coupe verticale un exemple d'appareil convenable suivant la présente invention; il met de plus en lumière la façon dont on peut mettre en œuvre la présente invention qui toutefois ne se limite pas à cet exemple ni aux détails de l'appareil représenté en particulier.

Exemple. — Par une conduite 2 introduire un mélange de monoxyde de carbone et d'hydrogène dans la partie supérieure d'une chambre de réaction 1 chargée d'un catalyseur rigidement disposé et constitué par exemple par du fer additionné de 5% d'oxyde d'aluminium. Par la conduite 3 introduire de l'huile de paraffine, ce liquide étant réparti uniformément sur la section de la chambre catalytique par le gicleur 4. Le catalyseur, qui est disposé sous forme de fragments dans la chambre de réaction, se trouve ainsi uniformément arrosé d'huile paraffinique. Aucun niveau de liquide n'est maintenu dans la chambre de réaction, de sorte que les espaces compris entre les fragments de catalyseur sont presque entièrement remplis par les gaz de réaction. Le mélange d'huile de paraffine et de produits de réaction liquides et gazeux s'écoule vers le bas dans un

récepteur séparateur réfrigéré 5 où s'effectue la séparation entre le liquide et les gaz et où on maintient un niveau de liquide 8. La fraction gazeuse, composée principalement de gaz primitif intact, est évacuée par la conduite 6 et peut être amenée à réagir dans une seconde chambre de réaction ou bien réintroduite dans la même chambre de réaction en vue de réagir plus complètement. La fraction liquide est évacuée par la conduite 7.

RÉSUMÉ :

1° Procédé pour effectuer la réaction du monoxyde de carbone avec l'hydrogène en vue de produire des hydrocarbures en présence d'un catalyseur rigide disposé, consistant à faire passer le monoxyde de carbone et l'hydrogène en question à température de réaction sur un tel catalyseur et à arroser en même temps ce dernier au moyen d'un fluide au moins partiellement liquide

dans les conditions considérées tout en empêchant la formation d'un niveau de liquide dans l'espace catalytique;

2° On arrose le catalyseur au moyen d'un fluide liquide dans lequel les hydrocarbures formés par la réaction se dissolvent facilement;

3° Ceux des hydrocarbures liquides formés par la transformation qui demeurent en partie liquides dans les conditions opératoires sont recueillis et utilisés comme fluide liquide pour l'arrosage du catalyseur;

4° A titre de produits industriels nouveaux, les hydrocarbures préparés par le procédé ci-dessus défini.

Société dite :

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Par procuration :

BLÉTRY.

I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft

