

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

3769

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 819.659

Procédé de fabrication d'un combustible pour moteur à combustion interne, notamment pour moteur Diesel

MM. Friedrich UHDE et Theodor Wilhelm PFIRRMANN résidant en Allemagne.

Demandé le 23 mars 1937, à 16^h 55^m, à Paris.

Délivré le 12 juillet 1937. — Publié le 23 octobre 1937.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 20 mai 1936. — Déclaration des déposants.)

La teneur en hydrogène des huiles brutes ou huiles combustibles qui sont obtenues par distillation de pétroles ou par hydrogénation de lignite ou d'huile de schiste, etc., ne
5 doit pas, conformément aux normes actuelles, être sensiblement inférieure à 12 %. Des huiles essentiellement pauvres en hydrogène telles que celles obtenues par la cokéfaction ou la carbonisation de la houille
10 ou du lignite, ne conviennent pas telles qu'elles à l'alimentation de moteurs Diesel. On a réussi, il est vrai, à adapter à peu près de telles huiles, pauvres en hydrogène, à l'alimentation du moteur Diesel. Grâce
15 à l'utilisation de fortes compressions et de modifications importantes de construction dans la culasse et la chambre de compression, on peut, par exemple, utiliser telle qu'elle de l'huile de goudron dans le moteur
20 Diesel; toutefois, cet emploi d'huile de goudron nécessite, au démarrage et pour la marche à vide, l'utilisation d'une huile inflammable particulière.

On connaît déjà des procédés pour la fabrication économique d'huiles pauvres en
25 hydrogène dont les points d'ébullition correspondent à ceux des huiles pour moteur Diesel; on peut, par exemple, obtenir des

hydrocarbures synthétiques liquides par hydrogénation des variétés les plus diverses de
30 charbon à l'aide de contacts appropriés pour un dosage convenable de l'hydrogène, hydrocarbures dont la teneur en hydrogène, est bien plus basse que la norme précitée de 12 %. De telles huiles, pauvres en hydrogène, peu-
35 vent, par exemple, être obtenues par une hydrogénation poussée de bitume primaire par des contacts ayant une action de condensation. Ces hydrocarbures synthétiques liquides ont une teneur en hydrogène com-
40 prise entre 8 et 9 %. De telles huiles, pauvres en hydrogène, sont évidemment d'un coût sensiblement moins élevé que les huiles riches en hydrogène obtenues par synthèse. On réalise par conséquent un progrès tech-
45 nique appréciable si l'on arrive à brûler telles qu'elles, dans le moteur Diesel, des huiles pauvres en hydrogène obtenues d'une manière peu coûteuse à partir de charbons. On a constaté que les propriétés d'inflam-
50 mabilité des huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène, sont médiocres, ce qui fait que ces huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène, ne s'allument telles qu'elles, dans le moteur Diesel, qu'à des températures de
55 combustion élevées. Pour le démarrage et la

Prix du fascicule : 6 francs.

marche à vide, il faut par conséquent utiliser avec de tels moteurs des agents auxiliaires étrangers pour maintenir le moteur en marche. Un tel procédé n'est pas à envisager d'une manière pratique pour une construction généralisée.

La présente invention a pour objet l'amélioration de l'inflammabilité d'huiles pauvres en hydrogène pour l'alimentation de moteurs Diesel, huiles qui sont obtenues par l'hydrogénation de la houille, du lignite, etc. On peut, par exemple, obtenir de telles huiles, soit par une hydrogénation complète, en une phase, du charbon, hydrogénation poussée jusqu'aux huiles pauvres en hydrogène, soit par un procédé en deux phases, auquel cas, on obtient, dans la première phase, soit un extrait de charbon, soit un bitume primaire, ces corps étant transformés, au cours d'une deuxième phase, en huiles pauvres en hydrogène.

Sous l'expression « bitume primaire », on entend désigner un produit d'hydrogénation analogue au bitume, pratiquement exempt de cendre, fusible et soluble dans des aromates ou des naphthènes, produit obtenu par le traitement du charbon avec une quantité insuffisante d'hydrogène, sous pression, à des températures voisines de 400° C (380 à 420°) et en présence des solvants spécifiés ci-dessus.

Sous l'expression « extrait de charbon », on entend désigner un produit d'extraction obtenu à partir de charbon bitumineux au moyen d'un solvant et sans action de l'hydrogène.

On a constaté que les propriétés d'inflammabilité des huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène, peuvent être considérablement améliorées par une addition d'huiles riches en hydrogène. On constate que les huiles pauvres en hydrogène se mélangent avec les huiles riches en hydrogène, et ceci la plupart du temps sans apparition de phénomènes de précipitation. On constate en outre que les quantités d'huiles additionnelles doivent être maintenues relativement petites, ce qui fait que l'économie réalisée, lors de la fabrication d'une huile bien inflammable par mélange de quantités importantes d'huiles peu coûteuses et pauvres en hydrogène avec de petites quantités d'huiles

riches en hydrogène, est très sensible en comparaison de ce qui a lieu avec d'autres procédés conformément auxquels on obtient des huiles normales riches en hydrogène et convenant pour les moteurs Diesel, par une hydrogénation directe de charbons.

Les types d'huiles riches en hydrogène envisagés conformément à la présente invention sont, par exemple, des huiles obtenues par hydrogénation de charbons et des huiles obtenues par synthèse à partir d'oxyde de carbone et d'hydrogène, par exemple conformément au procédé connu de Fischer-Tropsch. On a fait des essais avec une huile intermédiaire pauvre en hydrogène et obtenue par hydrogénation de charbons, huile dont la teneur en hydrogène était de 8,6 %. A cette huile intermédiaire qui présentait de médiocres propriétés d'inflammabilité, on a ajouté des quantités croissantes d'huile intermédiaire obtenue d'après le procédé Fischer. Cette huile d'addition avait une teneur en hydrogène de 14 %. Une addition de 15 à 20 % d'huile intermédiaire Fischer à l'huile hydrogénée, pauvre en hydrogène, était suffisante pour que l'on obtienne, dans un moteur à chambre de précombustion et tournant à grande vitesse, un fonctionnement convenable dans toutes les conditions de conduite pouvant se présenter. Une quantité de 30 à 40 % d'huile intermédiaire Fischer était nécessaire pour répondre convenablement à toutes les conditions de conduite avec un moteur à injection et tournant à vitesse élevée. Les mêmes essais ont été effectués avec le distillat, pauvre en hydrogène, d'huile hydrogénée ayant une teneur de 8,6 % en hydrogène avec une addition d'une huile intermédiaire riche en paraffine obtenue par hydrogénation poussée de la fraction 300-380° d'une huile hydrogénée, pauvre en hydrogène. Ces essais avec addition d'une huile intermédiaire, riche en hydrogène, ont également montré que les propriétés d'inflammabilité des huiles pauvres en hydrogène peuvent être considérablement améliorées par des additions relativement petites d'huiles riches en hydrogène.

Lorsque l'on veut mettre en œuvre le procédé avec une addition d'huiles riches en paraffine obtenues par l'hydrogénation

des charbons, il faut déterminer dans chaque cas d'espèce quelles sont les fractions de l'huile hydrogénée qui se laissent le plus facilement transformer en huile riche en 5 hydrogène. On choisit avantageusement des fractions qui peuvent s'enrichir en hydrogène avec une petite formation de gaz et d'essence. Ce choix des fractions doit être 10 déterminé dans chaque cas d'espèce et dépend essentiellement de la matière première, c'est-à-dire du charbon à hydrogéner.

Le choix d'huile additionnée et des quantités d'huile additionnelle riche en hydrogène doit également toujours être adapté 15 aux moteurs appropriés. C'est ainsi, par exemple, que par des additions variables d'huile intermédiaire de Fischer aux huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène, on peut obtenir différents types de combustible pour 20 moteurs Diesel dont les qualités d'huile Diesel peuvent aller de celles nécessaires aux moteurs Diesel d'appareils de navigation aérienne jusqu'à celles nécessaires pour le moteur Diesel normal des véhicules. 25 Dans tous les cas, il est nécessaire, lors de l'addition d'huiles riches en hydrogène, de maintenir aussi faible que possible la fraction d'huiles riches en hydrogène, qui est de grande valeur et coûteuse.

30 Une autre possibilité pour la diminution du coût de ce mélange combustible est donnée par le mélange lui-même d'extrait de charbon ou de bitume primaire. Au lieu du bitume, on peut également mélanger des 35 fractions à point d'ébullition élevé obtenues à partir de bitume primaire ou d'extrait de charbon, ou des fractions à point d'ébullition élevé obtenues à partir d'huile hydrogénée. De telles fractions à point d'ébullition 40 élevé sont avantageusement obtenues par distillation dans le vide. Le mélange des produits précités, par exemple des extraits de charbon, du bitume primaire, des fractions à point d'ébullition élevé d'huiles hydrogénées, n'aboutit pas à une diminution 45 du coût du combustible moteur par une « extension » ordinaire: on a au contraire constaté que la dissolution ou le mélange des extraits solides des bitumes et des huiles hydrogénées à point d'ébullition élevé 50 améliore les propriétés d'inflammabilité des huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène.

Ces corps à point d'ébullition élevé présentent, malgré leur teneur relativement assez faible en hydrogène, de très bonnes qualités 55 d'inflammabilité. Une simple utilisation de telles fractions à point d'ébullition élevé ou de bitume aboutira, en raison de leur viscosité, à un échec. En combinaison toutefois avec les huiles intermédiaires, pauvres en 60 hydrogène, et obtenues par hydrogénation, ils constituent un moyen excellent pour maintenir faible la fraction d'huiles intermédiaires, riches en hydrogène qui sont de grande valeur et de coût élevé. 65

Les corps susvisés tels que l'extrait de charbon, le bitume primaires, etc., sont en général insolubles dans les huiles riches en hydrogène et à base de paraffine. Si, par conséquent, on dissout les extraits précités 70 ou les bitumes, etc., dans les huiles hydrogénées, pauvres en hydrogène, et si l'on y ajoute ensuite des huiles intermédiaires à base de paraffine, il se produit des flocculations que l'on peut toutefois éliminer de 75 nouveau après le mélange par une centrifugation ou par un filtrage. On peut également rendre parfaitement stable la solution obtenue de façon qu'après un emmagasinage prolongé et contact avec l'air et à la suite 80 de variations de température, il ne se produise pas de précipitation, ni de flocculation. Dans ce but, on ajoute une quantité un peu plus importante d'huile intermédiaire riche en hydrogène, à base de paraffine et 85 ayant une action de précipitation: il en résulte la précipitation d'une quantité un peu plus grande de bitume que dans le mélange normal. Le chauffage de la solution provoque la réunion du bitume précipité qui 90 peut facilement être éliminé par centrifugation ou par filtrage. L'excès de la fraction ajoutée d'huile riche en hydrogène peut de nouveau être éliminé par distillation et l'on obtient, par ce moyen un mélange normal 95 d'huile intermédiaire, pauvre en hydrogène, et de bitume, mélange qui a la teneur normale désirée en huile intermédiaire riche en hydrogène, qui est stable aux températures basses et qui ne donne pas lieu 100 à des précipitations.

Exemple. — On mélange, tout en chauffant, avec 25 parties de bitume une huile hydrogénée ayant une teneur en hydrogène

de 8,5 % et obtenue par hydrogénation poussée de bitume primaire, huile dont 40 % bout à 300° et dont 85 % bout jusqu'à 380°. On ajoute à 100 parties de la solution chauffée 25 parties d'une huile intermédiaire riche en hydrogène et dont le point d'ébullition est compris entre 200 et 300°. L'huile intermédiaire riche en hydrogène peut être obtenue soit par hydrogénation décomposante de matériaux distillables contenant du charbon, soit par synthèse à partir d'oxyde de carbone et d'hydrogène. Après le mélange, il se précipite 8 % d'une substance asphaltique collante que l'on élimine par centrifugation et qui peut être ajoutée lors de l'hydrogénation du bitume primaire. La solution restante est distillée jusqu'à 220°, grâce à quoi on récupère 12 % de l'huile riche en hydrogène ajoutée. Cette fraction éliminée riche en hydrogène est toujours réutilisée. La solution refroidie est relativement fluide, ne présente pas de séparations lors de variations de température et présente une bonne inflammabilité dans le moteur Diesel.

Au lieu de l'addition précitée de 25 % de bitume primaire, on peut également utiliser une partie correspondante d'une fraction de bitume primaire bouillant jusqu'à 400°, fraction ayant été obtenue par distillation dans le vide. Cette fraction qui bout au-dessous de 400°, est dissoute dans l'huile pauvre en hydrogène et en améliore son inflammabilité, ce qui fait que la partie d'huile additionnelle riche en hydrogène peut être abaissée entre 8 et 12 %.

Les produits obtenus conformément au procédé susvisé ont la même valeur, en ce qui concerne leur inflammabilité, que les huiles Diesel normales. Lorsque l'on voulait obtenir par hydrogénation complète de charbon une huile Diesel aussi inflammable, on ne pouvait pas empêcher une formation importante d'essence et de gaz hydrogénés, riches en hydrogène, par suite de la fixation nécessairement plus élevée de l'hydrogène. C'est pour cette raison que, lors d'une telle hydrogénation poussée du charbon pour le transformer en huile Diesel, la consommation totale en hydrogène s'approche beaucoup de la consommation qui a lieu lors de l'hydrogénation complète de charbon

pour le transformer en essence. Pour cette raison, il est non seulement plus avantageux, mais également beaucoup plus simple, de ne pousser l'hydrogénation de matériaux distillables contenant du charbon que jusqu'à l'obtention d'une huile intermédiaire pauvre en hydrogène et d'améliorer les propriétés d'inflammabilité par une addition d'huiles intermédiaires, riches en hydrogène. Lorsque l'on désire obtenir l'huile additionnelle désirée par l'hydrogénation sous pression, on peut avantageusement choisir celles des fractions qui se laissent considérablement hydrogéner de la manière la plus simple et avec une formation faible d'essence et de gaz.

RÉSUMÉ.

La présente invention a pour objet un procédé pour la fabrication de combustible pour moteurs Diesel, ce procédé présentant les caractéristiques suivantes prises isolément ou en combinaison:

1° On fabrique par hydrogénation de matériaux distillables contenant du charbon, par exemple de la houille, du lignite, des extraits de charbon, du bitume primaire, etc., des huiles pauvres en hydrogène auxquelles on ajoute des huiles riches en hydrogène;

2° L'huile additionnelle riche en hydrogène est obtenue par synthèse à partir d'oxyde de carbone et d'hydrogène;

3° L'huile additionnelle riche en hydrogène est fabriquée par hydrogénation de houille, de lignite, d'extraits de charbon ou de bitume primaire;

4° On ajoute à l'huile pauvre en hydrogène, avant ou après son mélange avec l'huile riche en hydrogène, des hydrocarbures à point d'ébullition élevé, obtenus par distillation d'extraits de charbon et de bitume primaire;

5° On ajoute à l'huile pauvre en hydrogène, avant ou après son mélange avec l'huile riche en hydrogène, des hydrocarbures bitumineux solides tels que des extraits de charbon et des bitumes primaires obtenus à partir de charbon;

6° On ajoute l'huile riche en hydrogène et bouillant facilement dans une proportion

supérieure à celle qui est nécessaire, et l'on | des corps précités de poids moléculaire éle-
récupère de nouveau l'excès précité de cette | vé, grâce à quoi le mélange se trouve sta- 5
huile riche en hydrogène après séparation | bilisé.

Friedrich UHDE
et Theodor Wilhelm PFIRRMANN.

Par procuration :
Dom. CASALONGA.