

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

2090

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 834.328

Procédé pour la préparation catalytique d'hydrocarbures liquides par réduction d'oxyde de carbone à pression ordinaire.

M. André Marie Ghislain Maurice LUYCKX résidant en Belgique.

Demandé le 20 juillet 1937, à 10<sup>h</sup> 55<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré le 16 août 1938. — Publié le 17 novembre 1938.

[Brevet d'invention dont la délivrance a été ajournée en exécution de l'art. 11 § 7 de la loi du 5 juillet 1844 modifiée par la loi du 7 avril 1902.]

Il est connu que des hydrocarbures susceptibles d'être substitués à l'essence de pétrole peuvent être préparés par réduction catalytique de l'oxyde de carbone en présence d'hydrogène vers 200° C., à pression ordinaire.

L'expérience actuelle préconise pour cette catalyse des catalyseurs à base de cobalt, activés notamment par de la thorine, voire en outre par du cuivre, du manganèse, etc. Les catalyseurs binaires à base de cobalt et de thorium semblent devoir être plus résistants que les catalyseurs plus complexes. La présence de cuivre, en effet, diminue la résistance et la longévité du catalyseur.

La thorine est cependant coûteuse et d'obtention difficile; aussi a-t-on cherché à la remplacer, partiellement du moins, par d'autres promoteurs, parmi lesquels se trouvent les sels d'uranium. Dans cet ordre d'idées, cependant, les catalyseurs binaires n'ont pas donné de résultats satisfaisants. On a notamment proposé un catalyseur comportant 2 parties d'uranium pour 1 partie de cobalt. Il a fallu opérer vers 270° C.; on n'a obtenu que des produits trop lourds et l'activité du catalyseur baissait très rapidement.

On a aussi tenté de faire intervenir l'uranium en faible quantité en présence de thorine, voire de cuivre, mais le problème de la production d'un catalyseur à la fois économique et résistant n'a encore été résolu qu'imparfaitement.

La présente invention est basée sur la découverte de ce que l'on peut renoncer à faire intervenir la thorine et le cuivre, et obtenir d'excellents rendements en essence par seule activation par les oxydes d'uranium.

A cet effet, on emploie suivant l'invention, un catalyseur binaire à base de cobalt-uranium, contenant une quantité de cobalt supérieure à la quantité d'uranium. De préférence la teneur en uranium sera de l'ordre de 10 à 25 % par rapport au cobalt. On peut alors opérer à une température favorable de l'ordre de 200 à 215° C.

*Exemple.* — Les nitrates de cobalt et d'uranium sont mis en solution dans la proportion Co : U = 100 : 16. A cette solution on ajoute du kieselguhr dans la proportion cobalt : kieselguhr = 2 : 3. On neutralise au moyen de K<sup>2</sup>CO<sup>3</sup>; le précipité est soigneusement lavé, séché à 120° puis réduit vers 350° par de l'hydrogène.

Opérant sur 5 grammes de catalyseur

vers 210° et à raison de 4 litres-heure de mélange  $\text{CO} + 2\text{H}_2$ , on a obtenu un rendement de l'ordre de 120  $\text{cm}^3$  d'hydrocarbures liquides par  $\text{m}^3$  de gaz mis en œuvre.

5 Il est bien entendu que cet exemple est donné à simple titre d'indication et qu'il ne limite nullement les conditions d'application du procédé.

RÉSUMÉ :

10 1° Procédé de préparation catalytique d'hydrocarbures liquides par réduction de  $\text{CO}$  à pression ordinaire, caractérisé en ce que comme catalyseur il intervient un cata-

lyseur binaire à base de  $\text{Co-U}$ , contenant une quantité de cobalt supérieure à la quantité 15 d'uranium ;

2° Procédé selon 1°, caractérisé en ce que le catalyseur comporte de 10 à 25 parties d'U pour 100 de Co ;

3° Comme produit industriel nouveau, 20 un catalyseur pour la préparation catalytique d'hydrocarbures liquides, en substance tel que ci-dessus décrit.

André Marie Ghislain Maurice LUYCKX.

Par procuration :

F. HARLÉ et G. BRUSEFON.