

BREVET D'INVENTION.

1276

Gr. 14. — Cl. 1.

N° 838.010

Procédé pour préparer des composés du carbone relativement pauvres en hydrogène.

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

Demandé le 14 mai 1938, à 14<sup>h</sup> 14<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré le 28 novembre 1938. — Publié le 24 février 1939.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 24 juin 1937. — Déclaration du déposant.)

On a trouvé qu'à partir de composés du carbone relativement riches en hydrogène on peut d'une manière avantageuse, par chauffage à des températures suffisamment élevées, obtenir des composés qui en sont moins riches en employant des catalyseurs renfermant des mélanges d'alumine et d'une proportion plus ou moins forte d'un métal du 6° groupe ou de l'un de ses composés.

Le métal du 6° groupe ou ses composés peuvent avantageusement s'employer en proportion de 0,5 à 40 %, plus particulièrement de 2 à 30 %, par rapport au mélange avec l'alumine.

Si la dose excède environ 40 % dans l'ensemble du catalyseur il se produit une diminution de rendement qui augmente à mesure que la teneur en alumine baisse.

Des métaux qui se distinguent parmi ceux du 6° groupe sont le molybdène et le chrome ainsi que leurs oxydes. On envisagera en outre le tungstène et l'uranium ainsi que leurs composés. Parmi leurs composés il faut citer avant tout les oxydes. Ceux-ci se prêtent très facilement à une régénération après usage.

L'alumine qui constitue le composant prépondérant du catalyseur s'emploiera avantageusement en mélange avec de l'alumine activée soluble dans l'eau.

Le catalyseur peut également être déposé sur des supports, comme par exemple le charbon actif, le menu coke de lignite, les terres décolorantes, par exemple la terre de Floride, la terre à fouions, etc., qui le cas échéant peuvent avoir subi un traitement préalable au moyen d'acides, par exemple d'acides halogénhydriques comme l'acide fluorhydrique ou d'acide sulfurique ou nitrique.

Comme matières premières on envisagera surtout des hydrocarbures aliphatiques comme le pentane, l'hexane, l'heptane, l'octane, etc., ou leurs mélanges, ainsi que les essences qu'on obtient par réduction de l'oxyde de carbone ou à partir du pétrole ou par hydrogénation sous pression de matières carbonées ou les essences retirées d'essences relativement pauvres en hydrogène par traitement au moyen de solvants sélectifs pour les composés cycliques. Conviennent également les huiles moyennes aliphatiques.

La réaction s'effectue à des températures supérieures à environ 250° C., utilement comprises entre 350 et 500° C. On peut déjà opérer sous la pression normale, mais aussi bien sous des pressions supérieures, par exemple de 3 à 50 atm. ou plus; de même, la présence d'hydrogène n'est pas nécessaire.

Les produits de réaction obtenus peuvent être traités au moyen de solvants sélectifs et l'on peut soumettre de nouveau au traitement considéré ici les constituants riches en hydrogène.

Le présent procédé permet, à partir d'hydrocarbures aliphatiques volatils, d'obtenir par aromatisation du benzène et ses homologues, par exemple du toluène à partir de l'heptène.

*Exemple 1.* — On a imprégné d'une solution aqueuse d'acide chromique de l'alumine active granulée obtenue en mélangeant de l'alumine hydratée ordinaire du commerce avec de l'alumine soluble dans l'eau et chauffant ensuite, puis on l'a desséchée et finalement on l'a chauffée à une température de 450° C. afin de la décomposer. Le catalyseur ainsi obtenu renferme 70 parties d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et 30 parties de Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Sur ce catalyseur faire passer à une température de 460° C. des vapeurs d'heptane normal ( $d = 0,686$ ). La densité du produit obtenu est de 0,735 et son indice d'octane

36. Sa teneur en hydrocarbure aromatiques est d'environ 30 %. La teneur du produit en hydrocarbures non saturés provenant de réactions secondaires est faible. Le gaz recueilli renferme 85 à 90 % d'hydrogène.

On restitue au catalyseur son activité primitive en en chassant par chauffage à des températures d'environ 500 à 600° C. les substances cokéiformes fortement condensées qui se déposent sur lui au cours de l'opération.

*Exemple 2.* — Sur un catalyseur obtenu d'une manière analogue à celle décrite à l'exemple 1 par imprégnation d'alumine au moyen d'une solution de molybdate d'ammonium, dessiccation et chauffage et qui se compose de 75 parties d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et de 25 parties de MoO<sub>3</sub> faire passer à une température de 460° C. les vapeurs d'heptane normal. On obtient un produit ayant une densité de 0,750, une teneur en hydrocarbures aromatiques d'environ 45 % et un indice d'octane de 52. Le gaz formé renferme 90 % d'hydrogène.

Par chauffage du catalyseur on peut lui restituer son activité primitive.

*Exemple 3.* — Sur le catalyseur décrit à l'exemple 2 faire passer à une température de 460° C. les vapeurs d'une fraction essence bouillant entre les températures limites de 80 et de 150° C., de densité 0,750 et débarrassée des hydrocarbures aromatiques au moyen de solvants. On obtient un produit ayant une densité de 0,780, renfermant 31 % d'hydrocarbures aromatiques qui comprennent environ 35 % de benzène et 45 % de toluène. La valeur d'indétonance de cette fraction s'élève de l'indice d'octane 70 à l'indice 81.

*Exemple 4.* — Sur le catalyseur envisagé à l'exemple 2 faire passer à une température de 460° C. la fraction bouillant aux températures comprises entre 80 et 160° C. d'une essence de densité 0,700 et d'indice d'octane 34 obtenue lors de la synthèse de l'essence à partir de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène. On obtient un produit de densité comprise entre 0,750 et 0,755, ayant un indice d'octane de 60 et une teneur en hydrocarbures aromatiques d'environ 35 %.

#### RÉSUMÉ :

1° Procédé pour préparer des composés du carbone relativement pauvres en hydrogène à partir de composés qui en sont plus riches, en particulier pour aromatiser des hydrocarbures aliphatiques, par chauffage à des températures élevées, utilement comprises entre 350 et 500° C., en présence de catalyseurs, caractérisé en ce qu'on emploie comme catalyseurs des mélanges d'alumine et d'une proportion inférieure d'un métal du 6° groupe du système périodique ou de ses composés ;

2° Comme métaux du 6° groupe on emploie du molybdène ou du chrome ou leurs composés ;

3° A titre de produits industriels nouveaux, les hydrocarbures relativement pauvres en hydrogène obtenu à partir d'hydrocarbures relativement riches par le procédé ci-dessus défini.

Société dite : I. G. FARBENINDUSTRIE  
AKTIENGESELLSCHAFT.

Par procuration :  
BLÉRY.