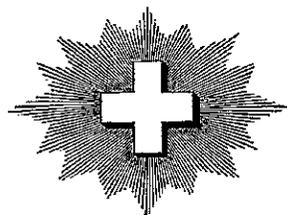


EIDGEN. AMT FÜR



GEISTIGES EIGENTUM

## PATENTSCHRIFT

Veröffentlicht am 16. Mai 1928

---

 Nr. 125971 (Gesuch eingereicht: 22. September 1925, 18½ Uhr.) Klasse 38b

## HAUPTPATENT

Dr. Luigi CASALE, Rom (Italien).

Verfahren zur kontinuierlichen Darstellung von flüssigen Gemischen aliphatischer, gesättigter, sauerstoffhaltiger Verbindungen durch katalytische Umsetzung von Wasserstoff mit Oxyden von Kohlenstoff.

343

Es ist bekannt, daß Wasserstoff mit den Oxyden des Kohlenstoffes bei Gegenwart eines Katalysators und unter Einfluß von Druck und Wärme in Wechselwirkung tritt, wobei sauerstoffhaltige organische Verbindungen entstehen.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur kontinuierlichen Darstellung von flüssigen Gemischen aliphatischer, gesättigter, sauerstoffhaltiger Verbindungen durch katalytische Umsetzung von Wasserstoff mit Oxyden von Kohlenstoff, mit Umlauf in einem geschlossenen Arbeitskreise von Apparaten, und unter Anwendung von Druck. Gemäß diesem Verfahren führt man das Gemisch der der Reaktion zu unterwerfenden Gase mit einem Drucke in den Arbeitskreis ein, welcher den in letzterem herrschenden Betriebsdruck übersteigt. Der Umlauf des Gasgemisches wird durch Vermittlung einer injektorartigen, nur mittelst ruhender Teile wirkenden Vorrichtung bewerkstelligt, welche die potentielle Energie des eintretenden Gasgemisches teilweise in kinetische Energie umwandelt.

Der Wasserstoff kann entweder in reinem Zustand oder gemischt mit andern Gasen verwendet werden.

Es lassen sich nach diesem Verfahren flüssige Gemische gesättigter aliphatischer sauerstoffhaltiger Verbindungen erhalten, die hauptsächlich aus Methyl- und Äthylalkohol bestehen, daneben höhere Alkohole, Aldehyde, Ketone und Säuren enthalten können, je nach den Arbeitsbedingungen, unter welchen die Umsetzung verlief. Die Gemische eignen sich beispielsweise zur Verwendung als Lösemittel, Denaturierungsmittel, Brennstoff, sowohl für Heizung als Beleuchtung.

Nur eine bestimmte Menge der über den Katalysator geleiteten Mischung reagiert unter Bildung einer oder mehrerer Verbindungen, weshalb die nach Abscheidung der Reaktionsprodukte verbleibende Mischung mit einer weiteren Menge der entsprechenden Mischung versetzt wird, um die Bedingungen des Reaktionssystemes unverändert zu lassen. Die Anlage umfaßt außer dem katalytischen Apparat einen Apparat zur Kondensation und Abscheidung der Reaktionsprodukte,

eine Zirkulationspumpe, die entweder eine Kolbenpumpe, eine Zentrifugal- oder rotierende Pumpe sein kann, sowie in einigen Fällen andere Apparate, wie Gasreiniger, Wärmeaustauscher usw.

Die Verwendung von Pumpen hat den Nachteil, daß die Gase etwas von dem für die Schmierung der Kolben und Stopfbüchsen verwendeten Öl mitreißen, das sorgfältig abgetrennt werden muß, damit es den Katalysator nicht vergiftet. Die gewöhnlichen Ölabscheider genügen hierzu nicht, weshalb besondere Reinigungsapparate zur Entfernung der letzten äußersten Spuren von Öl in den Kreislauf eingeschaltet werden müssen. Die Zirkulationspumpe, Ölabscheider und Reiniger bilden als Ganzes eine Anlage von hohem Gewichte, deren Betriebskosten einschließlich Kraft, Schmieröl, Arbeit, Reparatur etc., die Kosten der Herstellung der fraglichen Verbindungen erheblich steigert. Man muß hierzu auch die Verluste durch Entweichen der Gasmischung beim Durchgehen durch die Anlage und die durch die periodische Entleerung des Ölabscheiders eintretenden Verluste hinzureichen.

Der Zweck des vorliegenden Verfahrens besteht darin, die angeführten Nachteile zu vermeiden. Nach der vorliegenden Erfindung wird als Zirkulationsapparat ein Apparat benutzt, der, obgleich er keine sich bewegenden Teile enthält, den Umlauf der Gase in dem Kreislaufe bewirkt. Die einzige Bedingung für den Betrieb besteht darin, daß die in den Kreislauf eingeführte Mischung unter dem Druck von beispielsweise einer bestimmten Anzahl von Atmosphären über dem innerhalb des Kreislaufes selbst bestehenden Drucke steht.

Unter diesen Bedingungen unterliegt die in den Kreislauf eintretende Mischung einer Druckverminderung und ein Teil ihrer Potentialenergie kann in kinetische Energie umgewandelt werden. Diese kinetische Energie wird zur Erzielung des Umlaufes der Gase benutzt.

Eine Ausführungsform des Zirkulationsapparates, wie er zur Ausführung der Erfin-

dung benutzt werden kann, ist in Fig. 1 der Zeichnung im Querschnitt veranschaulicht, während

Fig. 2 schematisch einen geschlossenen Kreislauf mit diesem Zirkulationsapparat veranschaulicht.

In Fig. 1 bedeutet *a* den Körper des Apparates, der mit entsprechend sehr dicken Wänden aus einem passenden Metall versehen ist. *b* ist ein Diffusor, *c* eine Düse, *d* eine Regulier-nadel für die Düse *c*, *e* eine Stopfbüchse und *f* ein Filter zum Zurückhalten von Verunreinigungen, welche die Düse verstopfen könnten.

Die frische Gasmischung wird bei *A* durch das Filter *f* geleitet, wobei die Mischung vorher auf einen Druck komprimiert wurde, welcher denjenigen der zu zirkulierenden Gasmischung um eine bestimmte Anzahl von Atmosphären übersteigt. Sie fließt aus der Düse *c* mit großer Geschwindigkeit aus, indem sie die Betriebsmischung mitreißt, welche letztere bei *B* eintritt. Der Überdruck der frischen Gasmischung wird durch die Masse und die Geschwindigkeit der in Bewegung zu setzenden Gase, durch den Gesamtwiderstand der Apparatenreihe und durch den Arbeitsdruck bestimmt.

Der geschilderte Zirkulationsapparat kann in irgend einem Punkte des Kreislaufes, an dem man die Einführung der Gasmischung für passend hält, eingeschaltet werden. Dadurch, daß bewegliche Teile fehlen, werden die Nachteile der Verwendung von Zirkulationspumpen vermieden, während der Gebrauch von Ölabscheider und Reiniger unnötig ist. Außerdem hat der Apparat den Vorteil in der Herstellung billig zu sein. Er ist außerordentlich leicht zu betreiben und nimmt nur einen sehr geringen Raum ein. Die Kosten der Kraft, um die Mischung auf den über dem Drucke des Kreislaufes liegenden Druck zu bringen, sind stets wesentlich niedriger, als die zur Betreibung einer Zirkulationspumpe.

Mit dem beschriebenen Apparate ist die Zirkulation der Gase auch dann möglich, wenn keine Reaktion zwischen ihnen statt-

findet, nämlich in dem Zeitraume, wo die Anlage in Gang gesetzt oder eingestellt wird.

Eine Anlage zur Gewinnung der verschiedenen Verbindungen aus den angeführten Gasmischungen nach der Erfindung ist schematisch in Fig. 2 veranschaulicht. 1 ist ein ein- oder mehrstufiger Kompressor, 2 das Rohr, durch welches die komprimierten Gase strömen, 3 der in Fig. 1 veranschaulichte Zirkulationsapparat, während 4, 5, 6 und 7 verschiedene in den Arbeitskreis eingeschaltete Apparate sind. Es sind vier derartige Apparate veranschaulicht, doch kann eine größere oder geringere Zahl verwendet werden, weil ihre Zahl und ihr Zweck von dem ausgeübten Verfahren der Synthese und von dem Punkte des Kreislaufes abhängt, an welchem der Zutritt der Gasmischung für passend angesehen wird. 8 ist ein Rohr, welches den Kreislauf der Gase mit dem Saugrohre 9 des Kompressors verbindet, während 10 ein Hahn ist, dessen Öffnung nach Belieben geregelt werden kann, und 11 ein Rohr, welches die Apparate 3 bis 7 verbindet. Der Pfeil zeigt den Lauf der Gase. Hahn 10 wird nicht bei normalem Arbeitsgange betätigt, sondern nur in den Perioden des Ingangsetzens und des Einstellens der Anlage oder in Fällen eventueller Störungen des Arbeitsganges. Wenn die von Volumenverminderung begleitete Reaktion sich noch nicht vollzieht oder der richtige normale Gang noch nicht erreicht ist, so hat man keine, oder wenigstens nur eine kleinere Druckverminderung; die Einführung der frischen Gasmischung muß aber gleichwohl geschehen, da diese Einführung nicht nur den Zweck hat die Gase, welche reagiert haben zu ersetzen, sondern auch denjenigen, die Zirkulation der gesamten Gasmasse herbeizuführen. Wenn man nicht durch Hahn 10 einen Teil der Gase während der Perioden des In-

gangsetzens der Anlage entfernte, so würde der Druck in der Apparatur zu hoch steigen. Haben sich die normalen Reaktionsverhältnisse einmal eingestellt, so hat Hahn 10 keine Funktion mehr. Wie die Sache beim Einstellen der Anlage steht, ist leicht zu ersehen. Desgleichen wenn die Reaktion gestört ist; durch Regulierung der Öffnung des Hahnes 10 kann man die gleichen Bedingungen wie beim Stattfinden der Reaktion herbeiführen.

#### PATENTANSPRUCH I:

Verfahren zur kontinuierlichen Darstellung von flüssigen Gemischen aliphatischer, gesättigter, sauerstoffhaltiger Verbindungen durch katalytische Umsetzung von Wasserstoff mit Oxyden von Kohlenstoff, mit Umlauf in einem geschlossenen Arbeitskreis von Apparaten, unter Anwendung von Druck, dadurch gekennzeichnet, daß das Gemisch der der Umsetzung zu unterwerfenden Gase mit einem Drucke in den Arbeitskreis eingeführt wird, welcher den in letzterem herrschenden Betriebsdruck übersteigt, und daß der Umlauf des Gasgemisches durch Vermittlung einer injektorartigen, nur mittelst ruhender Teile wirkenden Vorrichtung bewerkstelligt wird, welche die potentielle Energie des eintretenden Gasgemisches teilweise in kinetische Energie umwandelt.

#### PATENTANSPRUCH II:

Vorrichtung zur Ausübung des Verfahrens gemäß Patentanspruch I, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine injektorartige Vorrichtung aufweist, um das Gasgemisch im Arbeitskreise in Umlauf zu setzen.

Dr. Luigi CASALE.

Vertreter: H. KIRCHHOFER  
vormals Bourry-Séquin & Co., Zürich.

Fig. 1

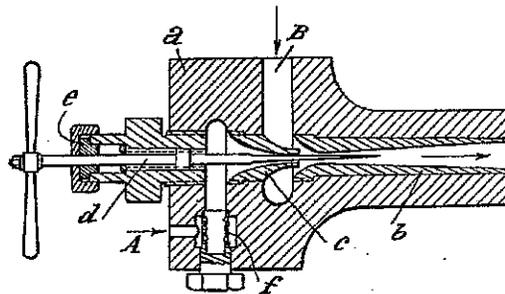


Fig. 2

