

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. XV. — Cl. 3.

N° 631.927

Combustibles liquides synthétiques.

720

M. JACQUES-LOUIS FOHLEN résidant en France (Seine).

Demandé le 14 avril 1927, à 9^h 55^m, à Paris.

Délivré le 24 septembre 1927. — Publié le 29 décembre 1927.

La présente invention a pour objet un procédé industriel destiné à obtenir des combustibles liquides, solvants et lubrifiants de synthèse, au cours des opérations métallurgiques de réduction par le carbone (et ses composés), de minerais métalliques.

L'application décrite ci-dessous dudit procédé est donnée à titre d'exemple. Elle envisage l'invention appliquée à la métallurgie du fer, lors de la fabrication de la fonte en hauts-fourneaux.

Il est inutile de rappeler ici la théorie de la fabrication de la fonte.

Les matières premières seront exactement les mêmes que celles qui servent à cette fabrication.

Le procédé objet du présent brevet sera en premier lieu caractérisé par l'opération qui consistera à insuffler dans le haut-fourneau de l'hydrogène ou des corps gazeux, liquides, ou solides pulvérisés, qui contiendront de l'hydrogène sous forme de combinaisons ou de mélanges, ou bien encore un mélange de plusieurs des corps précités.

De ce fait, la marche du haut-fourneau, au point de vue de la fabrication des produits du fer, ainsi que de celle des laitiers, nécessitera évidemment un nouveau réglage.

Par contre il se produira au sein de la masse des réactions nouvelles et complexes telles que les suivantes :

L'eau ou sa vapeur, injectée ou provenant

de la combustion des atomes d'hydrogène, réagira sur les carbures métalliques existants à l'état stable ou instable au sein de la masse et donnera des carbures d'hydrogène.

Une partie des carbures d'hydrogène sera partiellement oxydée et donnera des alcools, aldéhydes, cétones, etc.

Tous ces corps organiques subiront des transformations et des condensations moléculaires complexes, etc.

D'autre part, l'hydrogène, soit injecté, soit provenant de la dissociation des corps hydrogénés tels que l'eau, le méthane, etc.; d'une part agira comme agent de réduction des minerais métalliques, et d'autre part se combi- nera aux corps organiques non saturés sous l'influence catalytique des métaux réduits. Et d'autres réactions complexes de transformations et de condensations prendront encore naissance: La nature des gangues influera par ailleurs sur la production plus ou moins grande de composés organiques oxygénés par rapport aux simples carbures d'hydrogène.

En second lieu, le rendement en combustibles liquides sera favorablement influencé par l'augmentation de pression qu'on pourra assez facilement réaliser à l'intérieur du haut-fourneau par perfectionnement mécanique assez simple du gueulard de chargement.

En troisième lieu, les gaz qui s'échappent à la partie supérieure du haut fourneau et qui habituellement sont partiellement brûlés dans

les récupérateurs et d'autre part sont livrés à la consommation industrielle ou domestique pourront sans qu'il soit nécessaire de les additionner d'autres gaz ou vapeurs, mais sans inconvénients, si on le fait, être dirigés sur des tubes à catalyse qui augmenteront encore le rendement de l'installation. La catalyse pourra être faite à une pression voisine de la pression atmosphérique, mais une augmentation de pression augmentera le rendement. Cette augmentation de pression pourra simplement être obtenue par liaison directe du tube à catalyse avec le haut-fourneau modifié au gueulard de façon à supporter à son intérieur une surpression automatique due à l'échauffement des gaz, et le décompresseur pourra donc être installé après le tube à catalyse. Il n'est pas spécifié de matière catalysante particulière. Certains métaux, comme le platine (sous forme de mousse), le nickel réduit, le cobalt réduit, etc., sont particulièrement indiqués pour l'obtention des carbures d'hydrogènes. Certains oxydes, comme l'oxyde de zinc, favoriseraient plus particulièrement la formation d'alcools. Certains sels, comme le chlorure d'aluminium, favoriseraient les polymérisations. Mais, d'une façon générale, les corps formés dépendront plus particulièrement de la constitution du gaz avant son passage dans le tube catalyseur. Pour éviter les empoisonnements des tubes catalyseurs, des tubes ou appareils de purification des gaz pourront être intercalés entre le haut-fourneau et les tubes à catalyse. En principe ces éléments de purification contiendront les mêmes matières que les tubes à catalyse qui les suivent et seront régénérées par des procédés spéciaux qui ne font pas l'objet du présent brevet. Lorsque les tubes à catalyse contiendront des métaux réduits, l'épuration préalable ne sera pas en général nécessaire, car les éléments nocifs se seront incorporés à la fonte en fusion qu'on recueille à la base du haut-fourneau.

La catalyse se fait à température relativement basse, qui du reste à rendement égal doit croître avec la pression, et s'opère entre 100 et 400° centigrades.

Les gaz et vapeurs, soit directement à la sortie du haut-fourneau si l'on ne fait pas de catalyse supplémentaire; sans décompression si le gueulard n'a pas été modifié pour obtenir des surpressions; soit après passage dans les

tubes catalyseur et avec ou sans décompression suivant la nature du gueulard dans le cas contraire; seront alors dirigés dans les installations habituelles de lavage, extraction, condensation des usines à gaz ou des cokeries. C'est dans ces installations qu'on recueillera les combustibles liquides formés. Les gaz résiduels de l'opération seront soit dirigés dans des gazomètres et utilisés aux besoins industriels ou domestiques, soit remis à nouveau en circuit au cas où ils contiendraient une proportion notable d'hydrogène, de méthane, d'éthane, etc., ou de corps hydrogénés. Il va de soi qu'une partie de ces gaz pourrait comme à l'habitude être brûlée dans les récupérateurs de chaleur du haut-fourneau.

Le procédé ci-dessus décrit comme appliqué à la métallurgie du fer peut être étendu à la métallurgie des autres métaux, pourvu que la réduction des minerais soit faite à l'aide de carbone ou d'éléments carbonés. Il y aura alors dans ce cas non seulement réduction par le carbone, mais réduction supplémentaire par l'hydrogène.

Les corps contenant de l'hydrogène qui seront plus spécialement utilisés dans le procédé expliqué ci-dessus, lequel peut du reste être considéré comme une extension des méthodes et débouchés métallurgiques, sont les suivants: hydrogène, soit pur, soit mélangé à d'autres gaz (gaz pauvre, gaz à l'eau, etc.); eau sous forme de liquide ou de vapeur; méthane, éthane, etc. (gaz remis en circuit, ou gaz naturel); mélanges de ces corps.

On peut du reste utiliser des mélanges de ces corps.

D'autres corps hydrogénés pourraient également être utilisés. Mais comme ils présentent certaines réactions acides ou basiques, leur emploi serait plus délicat, tant à cause des sous-produits formés qu'en raison des matériaux spéciaux dans lesquels les appareils métallurgiques devraient être conçus. On peut citer l'hydrogène sulfuré, lequel aurait souvent l'effet de sulfure le métal obtenu ou de contrarier sa métallurgie l'ammoniacque, avec lequel il faudrait faire attention pour ne pas obtenir des cyanures (à moins que précisément on veuille fabriquer ces corps), les acides halogénés, qui pourraient permettre la fabrication directe, dans certains cas, de quelques dérivés halogénés organiques, etc.

RÉSUMÉ.

Procédé industriel d'obtention de produits organiques liquides pouvant être considérés comme sous-produits résultant d'opérations métallurgiques de réduction par le carbone (ou par des corps contenant du carbone), de minerais métalliques et caractérisé par :

1° L'insufflation ou la pulvérisation d'hydrogène ou de corps renfermant de l'hydrogène à l'état de combinaisons ou de mélanges au sein de la masse en réaction métallurgique habituelle.

2° Le fait que cette opération pourra être réalisée sous pression pour en améliorer le rendement. La pression pouvant être obtenue par modification mécanique du gueulard de l'appareil de réaction semblable à un haut-fourneau.

3° Le fait que les vapeurs, à la sortie de l'appareil analogue au haut-fourneau, peuvent — et ce sans adjonction à eux de nouveaux gaz ou vapeurs — être astreints à passer dans des tubes à catalyse, après avoir ou non subi une purification sur des matières semblables à celles renfermées dans les tubes à catalyse. Cette catalyse supplémentaire des vapeurs pouvant être faite sous pression, ou bien à des pressions voisines de la pression atmosphérique, la température de catalyse variant suivant la pression et dans le même sens que celle-ci de 100 à 450° maximum.

Jacques-Louis FOHLEN,
rue de Rome, 67. Paris (8^e).