

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 8.

N° 644.147

Procédé pour la transformation catalytique d'hydrocarbures ou de mélanges gazeux qui en renferment.

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

Demandé le 18 novembre 1927, à 13^h 41^m, à Paris.

Délivré le 26 mai 1928. — Publié le 2 octobre 1928.

(2 demandes de brevets déposées en Allemagne les 26 et 27 novembre 1926. — Déclaration du déposant.)

On sait qu'on peut transformer les hydrocarbures ou des mélanges gazeux qui en renferment en mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène en les traitant en présence de catalyseurs par la vapeur d'eau ou par l'acide carbonique ou par l'oxygène ou l'air ou par plusieurs de ces agents. Ce procédé a l'inconvénient qu'une transformation avancée ne se produit qu'à la température relativement élevée de 900-1000°, si l'on n'utilise pas de grandes quantités de catalyseur.

Or, on a trouvé, d'après la présente invention, que la réaction s'effectue aussi à des températures moins élevées si l'on élimine des gaz à un degré avancé non seulement les composés inorganiques du soufre, mais aussi les composés sulfurés organiques. On y parvient par exemple en dirigeant le gaz sur une masse métallique qui fixe les composés sulfurés ou sur un catalyseur qui transforme les composés sulfurés organiques en hydrogène sulfuré, qu'on élimine ensuite de façon quelconque.

Si on réalise la transformation catalytique des hydrocarbures en mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène au moyen de vapeur d'eau ou d'acide carbonique, la réaction est fortement endotherme, et, comme elle s'effectue à haute température, l'apport de la quantité nécessaire de chaleur est difficile.

Or, on a encore trouvé, d'après la présente invention, que le procédé peut s'exécuter sans difficultés, si on place la masse de contact dans des enceintes allongées dont les parois consistent en aciers spéciaux, notamment en acier au chrome et au nickel ou en alliages du nickel de haute valeur, tels que le chromonickel. On peut utiliser comme enceintes allongées, entre autres, des tubes dont la section n'est pas trop grande, par exemple de 100 cm² ou moins. On peut se servir par exemple d'une chaudière tubulaire et placer la masse de contact dans les tubes et faire passer des gaz de foyer chauds dans l'espace entre les tubes ou aussi opérer inversement. Quand on se sert de masses de contact non activées et que les gaz ou vapeurs pris pour point de départ sont très impurs, on emploiera de préférence des courants inverses. Avec des catalyseurs activés et des matières premières pures, il est toutefois préférable de faire circuler les gaz dans le même sens. Si l'on désire obtenir essentiellement de l'hydrogène et pas d'oxyde de carbone, on peut ajouter à la masse de contact en son entier ou seulement dans sa dernière partie encore des catalyseurs qui accélèrent la réaction de l'oxyde de carbone avec la vapeur d'eau. Si les matières premières sont fortement souillées, notamment par des composés

Prix du fascicule : 5 francs.

sulfurés organiques, il faut d'abord éliminer ces derniers, par exemple en faisant passer le mélange sur des oxydes métalliques chauffés au delà de 300° ou d'après n'importe quel autre procédé connu.

On peut ajouter au mélange d'hydrocarbures et de vapeur d'eau ou d'hydrocarbures et d'acide carbonique encore d'autres gaz, notamment de l'oxygène ou de l'air. On peut en outre effectuer le traitement des hydrocarbures, selon le procédé du brevet français n° 630.629 du 10 mars 1927, en deux étapes, en soumettant les gaz dans la première, éventuellement sous addition d'oxygène ou d'air, à des températures plus élevées, de façon telle que le mélange obtenu ait encore une teneur notable en hydrocarbures, et en achevant ensuite la transformation dans la seconde phase.

Exemple 1. — Du gaz d'éclairage, débarrassé de benzène et d'hydrogène sulfuré et saturé de vapeur d'eau, est dirigé vers 400° sur de l'oxyde de fer activé, après quoi l'hydrogène sulfuré formé aux dépens des composés sulfurés organiques est éliminé par le charbon actif. On obtient ainsi un gaz de la composition approximative suivante :

CO ²	3 %
C ^m H ^m	2 %
CO.....	6 %
H ²	52 %
CH ⁴	31 %
N ²	6 %
	<hr/>
	100 %

On fait réagir ce gaz vers 600°, en présence d'une masse de contact à base de nickel activé, avec de la vapeur d'eau prise en quantité double à triple de celle nécessaire à la décomposition du méthane. Après la réaction, le mélange renferme à peu près :

CO ²	14,5 %
H ²	78,0 %
CO.....	4,6 %
CH ⁴	0,2 %
N ²	2,7 %
	<hr/>
	100,0 %

Exemple 2. — Du gaz d'éclairage, débarrassé de benzène et d'hydrogène sulfuré est dirigé, pour en éliminer les composés sulfurés organiques, vers 300° sur de l'oxyde

de fer activé. Le mélange gazeux ainsi formé passe ensuite vers 700-800°, avec 2 à 3 fois la quantité de vapeur d'eau nécessaire à la décomposition du méthane, sur une masse de contact en nickel activé et est converti de la sorte en un mélange composé comme suit :

CO ²	12,6 %
H ²	77,5 %
CO.....	7,0 %
CH ⁴	0,2 %
N ²	2,7 %
	<hr/>
	100,0 %

Si l'on néglige d'éliminer préalablement les composés sulfurés organiques, il faut, dans les mêmes conditions, opérer à des températures d'environ 1.000° pour réaliser une transformation satisfaisante.

Exemple 3. — 50 m³ de gaz d'éclairage ayant approximativement la composition suivante :

CO ²	3 %	
C ^m H ^m	2 %	
CO.....	6 %	
H ²	52 %	55
CH ⁴	31 %	
N ²	6 %	

sont mélangés avec environ 100 kg. de vapeur d'eau, de préférence surchauffée, et dirigés sur une masse de contact consistant en nickel activé par Al²O³, placée dans des tubes en acier spécial chauffés extérieurement à des températures allant de 600 à 800°. Il se forme un gaz composé à peu près comme suit :

CO ²	14,5 %
H ²	78,0 %
CO.....	4,6 %
CH ⁴	0,2 %
N ²	2,7 %

Si la transformation s'effectue au-dessous de 1.000°, le procédé est susceptible d'une réalisation industrielle.

RÉSUMÉ.

L'invention a pour objet :

1° Un procédé pour la conversion d'hydrocarbures ou de mélanges gazeux qui en renferment en mélanges d'hydrogène et d'oxyde de carbone au moyen de vapeur d'eau ou d'acide carbonique ou d'oxygène ou d'air ou de plusieurs de ces agents, en présence de catalyseurs, procédé consistant

à éliminer des matières prises pour point de départ, avant le traitement, tant les composés inorganiques du soufre que les composés sulfurés organiques.

- 5 2° Pour la conversion catalytique d'hydrocarbures au moyen de vapeur d'eau ou d'acide carbonique en mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène, un procédé consistant à diriger les gaz sur des catalyseurs
10 placés dans des enceintes allongées, dont les parois consistent en aciers spéciaux, notam-

ment en acier au chrome et au nickel ou en alliages de nickel de haute valeur, tels que le chromo-nickel, et qui sont chauffées extérieurement à des températures n'atteignant pas 1.000°, de préférence au moyen de gaz chauds provenant d'une combustion. 15

Société :

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT.

Par procuration :

BLÉTRY.