

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 8.

N° 692.736

517

Perfectionnements à la fabrication des composés aliphatiques.

M. HENRY DREYFUS résidant en Angleterre.

Demandé le 25 mars 1930, à 16^h 3^m, à Paris.

Délivré le 5 août 1930. — Publié le 10 novembre 1930.

(Demande de brevet déposée en Angleterre le 5 juin 1929. — Déclaration du déposant.)

Cette invention a trait à la synthèse des composés organiques oxygénés.

Comme exemples de synthèses de ce genre on mentionnera plus particulièrement celles
5 dans lesquelles on soumet à l'action de catalyseurs chauffés des mélanges d'oxyde de carbone et d'hydrogène, des mélanges d'oxyde de carbone (ou de gaz qui en contiennent) et d'alcool méthylique ou
10 d'esters tels que par exemple, le formate de méthyle, ou les vapeurs d'esters (par exemple le formate de méthyle) en l'absence d'oxyde de carbone.

Dans la pratique, il est usuel d'effectuer
15 la synthèse de composés organiques oxygénés en faisant circuler les gaz ou vapeurs (ou des mélanges de ces gaz et vapeurs) d'une façon répétée sur le catalyseur dans un circuit fermé, étant donné qu'un pas-
20 sage unique sur le catalyseur donne des rendements de conversion très faibles, usuellement trop faibles pour être économiques. Toutefois, lorsque la circulation au contact des catalyseurs est effectuée d'une façon
25 répétée, on est sujet à éprouver certaines difficultés, car on constate usuellement, par exemple, qu'un équilibre est atteint dans la réaction à une phase à laquelle une proportion considérable du gaz ou des
30 vapeurs n'est pas encore convertie. De plus, des réactions secondaires ou latérales

indésirables sont sujettes à se produire comme résultat des contacts répétés des produits de conversion avec le catalyseur. Si des mesures sont prises pour éliminer
35 les produits de conversion (par exemple par condensation) avant de les faire circuler de nouveau sur les catalyseurs, ces inconvénients sont diminués jusqu'à un certain point, mais on constate que le pourcentage
40 de conversion des gaz ou vapeurs n'est pas augmenté dans une mesure considérable et que des réactions latérales indésirables sont encore très sujettes à se produire comme résultat de la circulation répétée des
45 faibles quantités de produits de conversion restant dans les gaz ou vapeurs.

Suivant l'invention, on a découvert qu'il est possible de surmonter en grande partie ou entièrement ces difficultés en soumettant
50 les gaz ou vapeurs (ou des mélanges de gaz et de vapeurs) à la réaction en les faisant passer successivement à travers un certain nombre de récipients de réaction disposés en série en circuit ouvert. En outre par
55 ce moyen, on peut effectuer facilement une conversion sensiblement complète des gaz ou vapeurs de réaction.

Dans la mise en pratique de l'invention, on peut faire usage de tous catalyseurs
60 susceptibles de favoriser la synthèse des composés organiques oxygénés. Les réci-

Prix du fascicule : 5 francs.

ipients de réaction peuvent être tous chargés du ou des mêmes catalyseurs, ou bien on peut appliquer un ou plusieurs catalyseurs différents dans un ou plusieurs des 5 récipients de réaction. Dans certains cas, il est avantageux de faire usage de catalyseurs dissemblables dans un ou plusieurs des récipients de réaction. Par exemple, dans la production du méthanol ou d'autres 10 composés organiques oxygénés à l'aide de gaz ou vapeurs de réaction contenant des gaz industriels à base de CO (ou CO et H) et lorsque des catalyseurs sujets à être corrompus par le soufre (par exemple ceux 15 constitués par ou contenant du cuivre ou des composés de cuivre) sont appliqués dans un ou plusieurs des récipients de réaction, il est avantageux de faire d'abord passer les gaz ou vapeurs de réaction à travers un 20 ou plusieurs récipients de réaction chargés d'un catalyseur moins sensible tel que, par exemple, l'oxyde de zinc ou les oxydes de zinc et de chrome.

Le procédé suivant l'invention peut être 25 réalisé sous les pressions et températures appliquées usuellement ou jusqu'à ce jour pour la synthèse particulière envisagée et le ou les catalyseurs appliqués, et ces températures et pressions peuvent être les 30 mêmes dans les divers récipients de réaction de l'appareil ou différer d'un récipient à l'autre.

Dans le passage des vapeurs d'un récipient de réaction au suivant, on peut, si 35 on le désire, traiter ces vapeurs pour en éliminer les produits de conversion, par exemple par condensation, ce traitement pouvant, si on le désire, être effectué entre les éléments de chacune des paires succes- 40 sives de récipients de réaction de l'appareil. Les synthèses mentionnées ci-après sont des applications extrêmement avantageuses de l'invention, mais il est bien entendu qu'elles ne sont indiquées qu'à titre d'exem- 45 ples : synthèse du méthanol en partant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène (ou de gaz industriels contenant CO et H) ; synthèse de l'acide acétique en partant de l'oxyde de carbone et du méthanol, d'es- 50 ters d'acides organiques ou d'esters aliphatiques (par exemple du formate de méthyle, de l'acétate de méthyle ou du

diméthyl-éther) ; synthèse de l'acide acétique par « l'isomérisation » du formate de méthyle. 55

On indiquera ci-après à titre d'exemple une façon commode de préparer le méthanol par le procédé suivant l'invention :

Exemple. — Un courant de gaz à l'eau (ou d'un autre gaz industriel) contenant 60 50 à 65 0/0 environ de CO et 30 à 45 0/0 d'hydrogène est refoulé sous une pression de 50 à 150 kg. à travers un chaîne de récipients de réaction disposés en série. Dans le ou les premiers récipients de la 65 série est placé un catalyseur qui est relativement peu sujet à être corrompu par le soufre, comme par exemple de l'oxyde de zinc pur. Dans les récipients de réaction restants de la série est placé un catalyseur 70 au méthanol contenant du cuivre ou du manganèse, par exemple un mélange d'oxyde de cuivre et d'oxyde de zinc. La température de la réaction dans les récipients de réaction est maintenue à la valeur habi- 75 tuellement appliquée pour le catalyseur particulier envisagé. Cette température est usuellement comprise entre 200 et 540° C. et plus particulièrement 300 et 450° C. Entre les éléments de chaque paire de réci- 80 pients de réaction on traite les gaz de réaction en vue d'en éliminer le méthanol le plus possible, par exemple par une opération de refroidissement et (ou) de lavage à l'eau et, après ce traitement, les gaz 85 peuvent, le cas échéant, être de nouveau portés à la température de réaction par tout dispositif convenable avant d'être conduits dans le récipient de réaction sui- 90 vant de la série. Si on le désire, on peut prévoir dans la série un nombre suffisamment grand de récipients de réaction pour qu'on soit sûr que sensiblement tout le gaz sera soumis à la conversion ; quatre ou cinq récipients de réaction conviennent 95 usuellement à cet effet.

RÉSUMÉ.

Procédé de synthèse de composés organiques oxygénés, ce procédé consistant à soumettre à la réaction les gaz ou vapeurs 100 ou des mélanges de gaz et de vapeurs entrant dans la synthèse en les faisant passer à travers un certain nombre de récipients de réaction contenant des catalyseurs ap-

propriés à la synthèse et disposés en série dans un circuit ouvert. Ce procédé peut, en outre, être caractérisé par les points suivants, ensemble ou séparément :

5 a. Lorsque les gaz ou (et) les vapeurs sont destinés à passer à travers un ou plusieurs récipients de réaction munis de catalyseurs sujets à être corrompus par le soufre (par exemple de catalyseurs
10 constitués par ou contenant du cuivre ou des composés de cuivre), on les fait s'abord passer à travers un ou plusieurs récipients de réaction munis de catalyseurs relativement peu sujets à être corrompus par le
15 soufre, comme par exemple l'oxyde de zinc ou les oxydes de zinc et de chrome.

b. Dans leur passage d'un récipient de réaction au suivant ou dans un tel passage
20 en éliminer les produits de la conversion.

c. Le nombre de récipients de réaction à travers lesquels les gaz, etc., passent successivement est suffisamment grand pour assurer la conversion de sensiblement tous ces gaz.

d. Le procédé est appliqué à la synthèse
25 du méthanol en partant de l'oxyde de carbone et de l'hydrogène (ou de gaz industriels contenant CO et H) ; à la synthèse de l'acide acétique en partant de l'oxyde de carbone
30 et du méthanol, d'esters d'acides organiques ou d'éthers aliphatiques (par exemple du formate de méthyle, de l'acétate de méthyle ou du diméthyl-éther) ou à la synthèse de l'acide acétique par « l'isomérisation »
35 du formate de méthyle.

H. DREYFUS.

Par procuration :

Société BRANDON, SIMONOT et RUBY.