

MINISTÈRE DU COMMERCE ET DE L'INDUSTRIE.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

BREVET D'INVENTION.

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 852.269



1215

**Procédé pour dédoubler des hydrocarbures ou les hydrogéner sous pression.**

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

Demandé le 28 mars 1939, à 15<sup>h</sup> 12<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré le 23 octobre 1939. — Publié le 27 janvier 1940.

(Demande de brevet déposée en Allemagne le 1<sup>er</sup> avril 1938. — Déclaration du déposant.)

On a trouvé que lorsqu'on dédouble ou qu'on hydrogène sous pression (ou l'un et l'autre à la fois) des hydrocarbures riches en hydrogène contenant plus de 15 gr. d'hydrogène pour 100 gr. de carbone, par exemple des mélanges d'hydrocarbures suffisamment riches en hydrogène obtenus par réaction de l'oxyde de carbone, ou autres, on obtient de hauts rendements en essence ou, dans des conditions moins fortement dédoublantes, en huile Diesel riche en hydrogène, tout en évitant la formation de grandes quantités d'hydrocarbures gazeux qui sans cela se produit lors du dédoublement ou de l'hydrogénation dédoublante d'hydrocarbures riches en hydrogène à condition d'employer, pour le dédoublement ou l'hydrogénation sous pression, des catalyseurs connus comme très actifs dont on aura préalablement atténué considérablement l'activité en les employant pour le dédoublement ou l'hydrogénation sous pression de substances carbonées pauvres en hydrogène dans la phase liquide ou utilement dans la phase vapeur, en ce dernier cas par l'application d'une pression partielle d'huile supérieure à celle qu'on emploie habituellement, de préférence supérieure à 10 atm., d'une température supérieure d'environ 50 à 100° C. à la température optimum de dédoublement ou d'hydrogénation sous pres-

sion ou par un emploi très prolongé de ces catalyseurs ou par plusieurs de ces mesures à la fois.

Comme catalyseurs très actifs pour le traitement préalable en question conviennent surtout, en particulier pour le dédoublement des substances contenant de l'acide silicique, utilement celles qui contiennent en même temps de l'alumine, par exemple des hydrosilicates d'aluminium naturels, comme les terres décolorantes, ou des substances produites synthétiquement du genre de celles qui sont décrites aux brevets déposés en France le 8 août 1938 sous les numéros 841.898 et 841.899, ou des catalyseurs de la même espèce. Des catalyseurs très actifs pour l'hydrogénation sous pression constituant le traitement préalable sont surtout les sulfures de métaux lourds, en particulier ceux des métaux des groupes 5 et 6 du système périodique ou du groupe du fer, ou encore les oxydes des métaux des groupes 5 à 7 ou les mélanges de ces substances.

Lesdits catalyseurs fortement actifs s'emploieront d'abord par exemple pour le dédoublement ou l'hydrogénation dédoublante ou raffinante sous pression de matières premières pauvres en hydrogène, comme celle de goudrons, d'huiles de goudron, d'huiles brutes à base asphaltique ou mixte

Prix du fascicule : 10 francs.

ou de leurs fractions à point d'ébullition élevé, ou de produits peu volatils de l'hydrogénation sous pression, ou de l'épuisement du charbon ou de la tourbe dans la phase liquide, et cela au moins pendant plusieurs heures, utilement plusieurs jours, ou plus longtemps encore. Il faut alors que se produise une interruption de l'efficacité du catalyseur sans qu'il y ait cependant dépôt d'asphalte sur le catalyseur.

Avant d'employer lesdits catalyseurs pour les substances riches en hydrogène on peut aussi les employer pour le traitement dans la phase vapeur de substances pauvres en hydrogène comme par exemple les huiles moyennées de goudron, la pression partielle d'huile ayant alors une valeur plus élevée qu'il n'est de règle pour le dédoublement ou l'hydrogénation dans la phase vapeur, utilement supérieure à 10 atm. par exemple de 15 atm. et plus. On l'adapte à la teneur en hydrogène de la matière première en employant des pressions partielles d'huile plus élevées pour traiter des matières premières plus riches en hydrogène. Pour le traitement d'huiles moyennes de pétrole pauvres en hydrogène elle sera utilement supérieure à 20 atm.

Dans le traitement en question de matières premières pauvres en hydrogène dans la phase vapeur on se servira du catalyseur jusqu'à ce que son activité soit assez diminuée pour que même si on le réutilise pour le dédoublement ou l'hydrogénation sous pression d'autres espèces de matières premières, elle ne revienne pas à sa valeur primitive.

On peut aussi maintenir dans les limites habituelles la pression partielle d'huile et la température lors de l'hydrogénation sous pression de matières premières pauvres en hydrogène, mais alors une longue durée d'utilisation, par exemple de six mois ou plus, est alors nécessaire avant que le catalyseur puisse être utilisé pour le traitement de substances riches en hydrogène.

Les catalyseurs utilisés pour le traitement de substances pauvres en hydrogène sont employés pour le dédoublement ou l'hydrogénation sous pression de substances riches en hydrogène, par exemple d'huiles moyennes ou d'huiles lubrifiantes. De tels

catalyseurs conviennent particulièrement pour le dédoublement ou l'hydrogénation des hydrocarbures obtenus par réduction de l'oxyde de carbone, par exemple de l'huile dite « Kogasine ». La formation d'hydrocarbures gazeux étant en même temps peu abondante, on obtient ainsi des essences avec un bon rendement ou encore, si l'on opère dans des conditions moins fortement dédoubletantes et en particulier si, l'on introduit en même temps de l'hydrogène sous pression, de bonnes huiles Diesel riches en hydrogène. Les catalyseurs employés pour le traitement de substances pauvres en hydrogène conviennent également pour l'hydrogénation raffinante sous pression d'hydrocarbures impurs très riches en hydrogène, par exemple de produits de la réduction de l'oxyde de carbone contenant de petites quantités de composés organiques de l'oxygène.

*Exemple.* — Sur du disulfure de tungstène disposé à demeure dans le récipient de réaction faire passer pendant trois jours à une température de 410° C. en même temps que de l'hydrogène sous une pression de 200 atm. une huile de goudron bouillant aux températures comprises entre environ 200 et 400° C., la pression partielle de celle-ci étant de 13 atm. L'activité du catalyseur se trouve ainsi réduite de 25 % environ. Après cela faire passer sur ce même catalyseur, à la même température et sous la même pression, un mélange d'hydrocarbures bouillant aux températures comprises entre 200 et 325° et provenant de la réduction de l'oxyde de carbone. On obtient un produit renfermant 70 % d'essence, 6 % seulement de la matière première se sont transformés en hydrocarbures gazeux.

#### RÉSUMÉ :

1° Procédé pour dédoubler ou hydrogéner sous pression des hydrocarbures riches en hydrogène contenant plus de 16 gr. de celui-ci pour 100 gr. de carbone, consistant à employer des catalyseurs connus comme très actifs dont on aura préalablement atténué l'activité dans une mesure considérable en les employant pour dédoubler ou pour hydrogéner sous pression des substances carbonées pauvres en hydrogène dans la

phase liquide ou utilement dans la phase  
vapeur, en ce dernier cas par l'application  
d'une pression partielle d'huile supérieure  
à celle qu'on emploie habituellement, de  
5 préférence supérieure à 10 atm., d'une tem-  
pérature supérieure d'environ 50 à 100° C.  
à la température optimum de dédoublement  
ou d'hydrogénation sous pression ou par un  
10 emploi très prolongé de ces catalyseurs ou  
par plusieurs de ces mesures à la fois.  
2° Les catalyseurs utilisés pour le traite-  
ment de matières premières pauvres en

hydrogène sont employés pour dédoubler ou  
pour hydrogéner sous pression des mélanges  
d'hydrocarbures obtenus par réduction de 15  
l'oxyde de carbone.

3° A titre de produits industriels nou-  
veaux, les produits de dédoublement ou  
d'hydrogénation sous pression tirés d'hydro-  
carbures par le procédé ci-dessus défini. 20

Société dite :

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT.

Par procuration :

B. Lévy.