

## MINISTÈRE DE LA PRODUCTION INDUSTRIELLE ET DU TRAVAIL.

DIRECTION DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE.

**BREVET D'INVENTION.**

Gr. 14. — Cl. 4.

N° 862.536



**Perfectionnements à la production d'hydrocarbures par transformation catalytique du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène.**

Société dite: N. V. INTERNATIONALE KOOLWATERSTOFFEN SYNTHESE MAATSCHAPPII  
(INTERNATIONAL HYDROCARBON SYNTHESIS COMPANY résidant aux Pays-Bas.)

**Demandé le 22 décembre 1939, à 16 heures, par poste.**

**Délivré le 9 décembre 1940. — Publié le 8 mars 1941.**

On sait que dans la production d'hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone par transformation catalytique du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène on peut obtenir les hydrocarbures désirés avec des rendements plus élevés à condition d'effectuer la transformation en deux ou plusieurs étapes successives. Toutefois, lorsqu'on opère de cette manière, l'activité du catalyseur employé dans la première étape de la réaction diminue très rapidement à cause de la présence d'impuretés dans les gaz primitifs, et cela dans une mesure telle qu'il devient nécessaire de renouveler ou de régénérer fréquemment le catalyseur.

Or on a trouvé que, dans cette transformation effectuée en deux ou plusieurs étapes on peut avantageusement traiter les gaz primitifs dans la première étape au moyen d'un catalyseur qu'on a déjà utilisé dans l'une au moins des étapes subséquentes. L'activité dudit catalyseur a de ce fait disparu et l'on prendra de préférence un catalyseur dont l'activité a déjà diminué dans une mesure telle qu'il ne se produise dans la première étape de la réaction aucune transformation sensible mais principalement une épuration du gaz primitif. Ledit catalyseur peut s'employer dans l'étape

préliminaire de la réaction en quantité inférieure à celle du catalyseur présent dans l'étape subséquente, et on l'emploiera de préférence pendant un laps de temps tel que son pouvoir épuratif diminue au point que l'activité du catalyseur utilisé dans l'étape subséquente s'est affaiblie à un degré inadmissible par suite de la présence d'impuretés dans les gaz primitifs. Au catalyseur employé pour l'épuration dans l'étape préliminaire de la réaction on peut alors substituer le catalyseur de l'étape subséquente dont l'activité s'est le plus amoindrie, ou une partie de ce catalyseur. Lorsqu'on emploie une moins forte quantité de catalyseur dans l'étape préliminaire de la réaction on peut effectuer l'épuration dans un récipient de réaction d'autant plus petit.

Le présent procédé peut avantageusement être mis en œuvre dans un système annulaire où, après qu'a été mis hors d'action pour cause de fort amoindrissement du pouvoir épuratif du catalyseur le premier récipient de réaction alimenté de gaz neuf, on admet ce dernier dans le second récipient de réaction en même temps qu'un récipient de réaction supplémentaire chargé de catalyseur neuf ou régénéré est annexé au circuit comme étape finale. Quant au catalyseur contenu dans le récipient de réaction

**Prix du fascicule : 10 francs.**

qu'on a éliminé du circuit, on peut le remplacer par du catalyseur neuf ou bien le soumettre à un traitement régénérateur.

Le dessin ci-annexé représente schématiquement un système annulaire pour la mise en œuvre du présent procédé. Il doit être entendu toutefois que la présente invention ne se limite pas aux dispositions particulières représentées au dessin.

Le système annulaire représenté se compose de six récipients de réaction *a*, *b*, *c*, *d*, *e* et *f* branchés en série entre eux. Le gaz neuf entre en *g* et le gaz résiduel s'échappe en *h*. Chaque récipient de réaction communique avec la conduite annulaire *k* affectée au gaz neuf ainsi qu'avec la conduite annulaire *l* affectée au gaz résiduel. Dans le système représenté au dessin les récipients de réaction *a* à *e* sont en activité. Le gaz neuf entre dans le système à l'entrée du récipient *a* tandis que le gaz résiduel s'échappe par la sortie du récipient *e*. Lorsque le pouvoir épuratif du catalyseur présent dans le premier récipient de réaction *a* a fortement

diminué on débranche ledit récipient *a*, on admet le gaz neuf dans le récipient *b* et, garni d'une nouvelle charge de catalyseur, le récipient *f* est mis en service comme récipient de réaction final du système.

Le procédé suivant la présente invention peut aussi se mettre en œuvre dans un système annulaire sans récipient de rechange, les cinq récipients *a*, *b*, *c*, *d* et *e* étant alors seuls disponibles. Pendant le remplacement ou la régénération du catalyseur du récipient *a* seuls les récipients *b*, *c*, *d* et *e* demeurent en activité et c'est seulement après que le récipient *a* a été garni de catalyseur neuf ou régénéré et a été mis en service comme récipient de réaction final à la suite du récipient *e* que tous les étages sont à nouveau en activité. Toutefois et dans la plupart des cas il est préférable de disposer d'un récipient de réaction supplémentaire, parce qu'alors l'espace catalytique disponible est toujours le même.

Le procédé décrit ne se limite pas à un type défini des divers récipients de réaction.

Les conditions de réaction employées dans le présent procédé sont celles qu'on emploie habituellement pour la production d'hydrocarbures par réaction du monoxyde

de carbone avec l'hydrogène. Les températures utilisées sont généralement comprises entre 150 et 350° C., et l'on peut opérer aussi bien à la pression à peu près normale qu'à des pressions supérieures, par exemple de 10, 20, 50, 100, 200, 500, 1.000 atm. ou plus. De plus, dans l'une ou plusieurs des étapes, ou même dans toutes, on peut effectuer la réaction sous forme d'une opération cyclique dans laquelle une partie du gaz de la réaction est restituée au cycle.

Le rendement en hydrocarbures dans le procédé suivant la présente invention est faible dans la première étape, où c'est principalement une épuration des gaz qui s'effectue, mais on réalise une amélioration du rendement dans les étapes subséquentes. Comparativement au procédé habituel employé jusqu'à ce jour et ne comportant pas d'étape d'épuration préliminaire le présent procédé offre l'avantage, primo, que le catalyseur a une durée bien plus longue, et secundo qu'en utilisant le catalyseur durant aussi longtemps que dans un traitement sans épuration préliminaire les valeurs moyennes du taux de transformation et le rendement total en hydrocarbures sont plus élevés.

L'exemple ci-après, auquel l'invention n'est cependant pas limitée, montrera mieux comment le procédé qui en fait l'objet peut être mis en œuvre.

*Exemple.* — Faire passer à une température de 195° C. un gaz à synthèse composé en volume de 28 parties de monoxyde de carbone, de 56 parties d'hydrogène et de 16 parties d'un gaz inerte à travers un récipient de réaction présentant un espace catalytique de 200 litres, espace qui est garni d'un catalyseur composé de 46 parties de cobalt, 8 parties d'oxyde de thorium et 46 parties de terre de diatomées (toutes parties mesurées en poids). On obtient ainsi, par mètre cube du mélange de monoxyde de carbone et d'hydrogène, 80 gr. d'hydrocarbures liquides. Si par contre on fait d'abord passer le mélange gazeux à travers un récipient de réaction présentant un espace catalytique de 20 litres garni d'un catalyseur qu'on a déjà employé pendant 3 mois pour la transformation, récipient qu'on maintiendra lui aussi à une température

de 195° C., on obtient, par mètre cube du mélange d'hydrogène et de monoxyde de carbone, 92 gr. d'hydrocarbures liquides dans le récipient de 200 litres et en opérant à la même température et avec le même taux d'alimentation que dans le cas mentionné en premier lieu.

RÉSUMÉ.

Procédé pour transformer catalytiquement au moyen d'hydrogène du monoxyde de carbone en hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone,

l'opération s'effectuant en deux ou plusieurs étapes de transformation successives, consistant à faire passer le mélange gazeux neuf dans la première étape sur un catalyseur qu'on a déjà employé dans au moins l'une des étapes subséquentes.

Société dite : N. V. INTERNATIONALE  
KOOLWATERSTOFFEN SYNTHESE  
MAATSCHAPPIJ (INTERNATIONAL  
HYDROCARBON SYNTHESIS COMPANY).

Par procuration :

BLÉTEY.

N° 862.536

Société dite : N. V. Internationale  
Koolwaterstoffen Synthese Maatschappij  
(International Hydrocarbon Synthesis  
Company)

Pl. unique

