

CONFÉDÉRATION SUISSE

BUREAU FÉDÉRAL DE LA



PROPRIÉTÉ INTELLECTUELLE

EXPOSÉ D'INVENTION



1668

Publié le 2 décembre 1940

Demande déposée: 22 mai 1939, 18½ h. — Brevet enregistré: 30 septembre 1940.

BREVET PRINCIPAL

N. V. INTERNATIONALE KOOLWATERSTOFFEN
SYNTHESE MAATSCHAPPIJ (INTERNATIONAL HYDROCARBON
SYNTHESIS COMPANY), La Haye (Pays-Bas).

**Procédé pour la synthèse d'hydrocarbures par transformation du monoxyde
de carbone au moyen d'hydrogène.**

La présente invention se rapporte à un procédé perfectionné pour la production d'hydrocarbures dont la molécule contient plus d'un atome de carbone, par transformation du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène. Antérieurement à la présente invention, le réglage de la température dans cette réaction ne pouvait s'obtenir que par des mesures compliquées, cependant que dans la production d'hydrocarbures de l'espèce des essences, on ne pouvait pas obtenir d'une manière simple des produits satisfaisants quant à leur propriétés à la détonation. Il est absolument nécessaire de maintenir la température de réaction dans des limites déterminées afin d'empêcher les réactions secondaires ou une modification indésirable du produit, telle que la formation de méthane et le dépôt de suie sur le catalyseur.

Dans cette transformation, il est mis en liberté de grandes quantités de chaleur, dont

l'évacuation, nécessaire pour le maintien de la température de réaction désirée, cause souvent des difficultés. L'évacuation de la chaleur par la paroi du récipient est parfois insuffisante, ou bien compliquée, tandis que, lorsqu'on emploie de vastes récipients de réaction, on ne pouvait obtenir jusqu'à ce jour une répartition uniforme de la température que par une construction coûteuse et compliquée de l'appareil.

An cours de la réalisation industrielle de la transformation du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène, on a subdivisé l'enceinte de réaction en faisceaux de tubes étroits baignés par un agent réfrigérant; de plus, on a augmenté la surface de cette enceinte par la disposition de nervures à l'effet d'obtenir une dissipation plus rapide de la chaleur. On a de même disposé à l'intérieur de l'enceinte de réaction des serpentins réfrigérants ou des faisceaux de tuyaux réfrigé-

rants, ordinairement pourvus d'un grand nombre de nervures ou entièrement soudés dans un grand nombre de tôles à l'effet d'augmenter la surface réfrigérante, ou bien on a introduit directement des agents réfrigérants dans les gaz soumis à la réaction. Ces artifices exigent toutefois, d'une part, des installations coûteuses et compliquées et, d'autre part, une grande attention dans la surveillance du cours de la réaction.

Dans le procédé en question, il est déjà connu de ramener dans l'enceinte de réaction des gaz primitifs intacts ou des gaz diluants après en avoir retiré les produits désirés.

Or, on a trouvé que dans la production d'hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone, le cas échéant en même temps que des quantités moins considérables de leurs dérivés oxygénés liquides ou solides, par transformation du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène, on obtient de meilleurs résultats en ramenant dans l'enceinte de réaction des gaz qui ont déjà subi la réaction après les avoir refroidis seulement de manière à établir la température convenable à l'entrée dans l'enceinte de réaction, le volume des gaz réintroduits par unité de temps étant au moins 20 fois ou, mieux, au moins 50 fois supérieur à celui du gaz neuf introduit pendant cette unité de temps.

En règle générale, il ne sera pas économique de réintroduire dans l'enceinte de réaction un volume de gaz plus de 500 fois supérieur à celui du gaz neuf introduit, bien que, si l'on veut, on puisse restituer au cycle de telles quantités considérables, par exemple 1000 fois le volume de gaz neuf. Le volume de gaz ramené dans l'enceinte de réaction sera de préférence compris entre 50 et 200 fois celui du gaz neuf introduit.

Le mode opératoire suivant la présente invention permet de régler de façon précise la température dans l'enceinte de réaction.

La température des gaz destinés à retourner dans l'enceinte de réaction sera de préférence ramenée sensiblement à celle qui règne à l'entrée de cette dernière, généralement à une température un peu plus élevée, car les

gaz primitifs peuvent alors être introduits à l'état froid, grâce à quoi le mélange de gaz de retour et de gaz neuf atteint la température voulue.

Une partie des gaz issus de l'enceinte de réaction est dérivée du cycle et l'on en retire les produits de réaction. Cette dérivation peut s'effectuer après que les gaz issus de l'enceinte de réaction ont été refroidis sensiblement à la température nécessaire pour le réglage de la température.

Si l'on opère en continu, il faut que la portion des gaz issus de l'enceinte de réaction et dont on sépare les produits désirés ait le même poids que le gaz neuf introduit pour le cas où les constituants gazeux intacts qu'elle renferme ne sont pas ramenés dans l'enceinte de réaction. Si ces constituants gazeux intacts sont restitués complètement ou partiellement, il faut que la portion en question soit supérieure à la quantité de gaz neuf introduite, mais aussi en ce cas la quantité totale de produits retirés du procédé est égale en poids à celle du gaz neuf introduit.

Ce retour du gaz restant permet de transformer dans une très grande mesure les gaz primitifs en produits désirés et de maintenir dans le cycle une plus faible concentration de produits de réaction. En ce cas non plus, il n'est pas nécessaire que les produits désirés soient complètement séparés du courant partiel dérivé.

Si l'on ne veut pas que les sous-produits difficiles à éliminer ou les impuretés primitivement présentes dans le gaz initial s'accablent exagérément dans le cycle, on ne réintroduira pas la totalité du gaz restant et l'on en soustraira une partie afin de maintenir la proportion d'impuretés dans les limites désirées.

La transformation du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène en hydrocarbures dont la molécule renferme plus d'un atome de carbone par le procédé suivant la présente invention, peut s'effectuer sous une pression quelconque, de préférence dans les limites comprises entre environ 10 et 50 atm. Cependant, on peut employer des pressions

encore plus élevées, par exemple de 100 ou 200 atm. ou plus. Des pressions inférieures, ou la pression normale, peuvent également être envisagées. On choisira les températures dans la zone comprise entre 150 et 450 ° C, et en général entre 170 et 400 ° C. La composition des gaz primitifs neufs peut varier dans de larges limites. En général, la quantité de monoxyde de carbone peut varier entre $\frac{1}{4}$ et 4 fois la quantité d'hydrogène et sera de préférence comprise, mesurée en volume, entre $\frac{1}{2}$ et 2 fois la quantité d'hydrogène.

Comme catalyseurs, on peut employer ceux qu'on connaît bien dans la technique. Les substances catalytiques peuvent, si l'on veut, être déposées sur un support tel que le gel de silice ou la terre d'infusoires. Les catalyseurs peuvent également contenir des activants convenables tels que des composés métalliques alcalins. C'est ainsi qu'on peut utiliser des catalyseurs à base de fer, de préférence ceux qu'on obtient en décomposant du ferro-carbonyle et agglutinant ensuite les flocons ou la poudre de fer qu'on obtient ainsi, et ce sont là des catalyseurs de choix à employer suivant la présente invention.

On peut employer également avec avantage des catalyseurs obtenus par réduction de composés du fer avec agglutination ou fusion du produit. Les catalyseurs qui contiennent du cobalt ou du nickel (ou les deux) ou leurs alliages sont également utiles. On peut les employer sous forme de catalyseurs dits „squelettes“ ou déposés sur des supports comme la terre d'infusoires. Une activation de ces catalyseurs au moyen d'oxyde de fluorium ou d'oxyde de magnésium (ou des deux) est ordinairement avantageuse. Les catalyseurs au ruthénium, de préférence déposés sur des supports, donnent aussi de bons résultats.

L'élévation de température admissible dans l'enceinte de réaction, c'est-à-dire l'échauffement des gaz pendant qu'ils traversent cette enceinte, dépend du catalyseur particulier employé, et elle est en général d'au

plus 50° C et de préférence au maximum 40° C. Dans le cas des catalyseurs au nickel ou au cobalt, qui sont actifs aux températures d'environ 200° C, la zone de température qui donne les résultats les plus convenables n'est qu'assez peu étendue, et par conséquent, l'élévation de température sera de préférence maintenue, avec ces catalysateurs, au-dessous de 30° C, le mieux étant de maintenir l'élévation de température, avec ces catalyseurs, inférieure à 10° C, par exemple, à environ 5 ou 2° C. En ce qui concerne les catalyseurs à base de fer, pour lesquels la température de réaction peut être supérieure à 300° C, une élévation quelque peu plus forte de la température est admissible.

Comme la rapidité de la réaction augmente très vite à mesure que la température s'élève, une large zone de température a pour conséquence que, dans les couches de catalyseur qui entrent les premières en contact avec les gaz réagissants, il ne se produit qu'une faible transformation et que, dans les couches subséquentes, c'est une forte transformation qui a lieu, accompagnée d'un fort dégagement de chaleur. Dans ces circonstances, les conditions de réaction deviennent instables, de sorte qu'il est préférable de maintenir l'élévation de température dans d'étroites limites afin de maintenir la température à un niveau qui ne diffère que de peu de la température optimum de réaction.

Suivant la présente invention, la chaleur dégagée dans la réaction peut être éliminée de façon presque complète par les gaz de réaction eux-mêmes. La quantité de chaleur que peuvent absorber ces gaz dépend de leur chaleur spécifique et de leur propre quantité, et elle dépend en outre de l'élévation de température permise dans chaque cas. Dans le procédé suivant la présente invention, les produits de réaction formés demeurent en partie dans le gaz de retour et, par conséquent, participent à l'absorption de chaleur. Comme la chaleur spécifique des produits formés est supérieure à celle du gaz à synthèse primitif, la capacité calorifique du gaz en circulation se trouve ainsi accrue.

Le dégagement de chaleur par unité de temps dépend de divers facteurs, comme l'activité des catalyseurs, la composition des gaz et en particulier de la concentration des constituants participant à la réaction et de la température (car à des températures supérieures la rapidité de la réaction augmente, si bien que dans des conditions d'ailleurs identiques la quantité de chaleur dégagée par unité de temps est plus forte aux températures élevées), ce qui fait que la durée du séjour des gaz de réaction peut varier dans de larges limites.

La durée du séjour peut s'exprimer par exemple par le quotient obtenu en divisant le volume de l'enceinte par le volume du gaz, mesuré dans les conditions existantes de température et de pression, qui passe par unité de temps.

C'est ainsi par exemple que sous une pression de 10 à 25 atm. et en présence d'un catalyseur de fer agglutiné, on réglera la durée du séjour à environ 1 seconde si le mélange de gaz et de vapeurs introduits dans l'enceinte de réaction se compose volumétriquement de 40% de monoxyde de carbone et hydrogène et de 60% de produits de réaction (anhydride carbonique, hydrocarbures et vapeur d'eau). La température initiale étant d'environ 315° C, il se produit alors un accroissement de 10° C environ. On fait alors circuler un volume de gaz qui correspond à environ 100 fois le volume de gaz neuf introduit. Si l'on ne peut admettre qu'une faible élévation de température, on prendra comme durée du séjour des fractions de seconde et l'on fera circuler le gaz beaucoup plus rapidement. C'est ainsi par exemple que, dans des conditions d'ailleurs identiques, avec un accroissement de température de 5° C, il faut remettre en circulation un volume de gaz environ 200 fois supérieur au volume de gaz neuf introduit.

En général, dans le procédé suivant la présente invention, la durée du séjour des gaz de réaction à chacun de leurs passages à travers une enceinte de réaction appartenant

à un cycle donné est comprise entre 0,1 et 5 secondes.

Grâce au brassage intime assuré par la circulation, la température des gaz en réaction peut être maintenue complètement uniforme dans l'ensemble de la section du récipient de réaction et c'est seulement dans le sens de l'écoulement du gaz qu'on observe une élévation de température résultant des progrès de la transformation.

Lorsqu'une faible élévation de température est seule admissible, il est nécessaire de remettre en circulation par unité de temps une grande quantité de gaz, ce qui exige une énergie de circulation plus considérable. Lorsqu'on opère sous des pressions élevées, l'énergie nécessaire est plus faible.

Pour maintenir faible l'énergie de circulation, il est en général avantageux de prévoir des couches de catalyseur relativement peu épaisses, par exemple d'un mètre ou à peu près, et par conséquent de les étaler sur une grande surface.

Le récipient de réaction peut être subdivisé par des cloisons en chambres dans lesquelles on peut disposer les couches de catalyseur. Le gaz primitif peut être réparti parmi les diverses chambres. Les produits de réaction peuvent être retirés séparément de chaque chambre et mélangés ensuite seulement. Il peut également être avantageux de combiner la circulation à haute température des gaz avec l'adjonction de gaz réfrigérant froid dans le récipient de réaction en un point de celui-ci où les gaz de la réaction n'ont pas encore traversé toute la couche de catalyseur, par exemple entre deux couches de catalyseur. En ce cas, au sortir d'une couche de catalyseur, la chaleur formée est absorbée par le gaz ajouté, par exemple par une partie des gaz issus de l'espace de réaction et dont on aura abaissé la température au-dessous de celle du gaz de circulation chaud, après quoi le courant gazeux pénètre dans une autre couche de catalyseur. Cette mesure peut être répétée plusieurs fois à volonté.

Le mode de réglage de la température dans l'enceinte de réaction au moyen de gaz

de circulation chaud suivant la présente invention peut, si l'on veut, être combiné avec d'autres procédés de réfrigération. C'est ainsi que le gaz qui subsiste après qu'on a éliminé les produits désirés de la portion soustraite peut être réintroduit au moins en partie sous forme de gaz réfrigérant froid.

L'enceinte de réaction peut être subdivisée. C'est ainsi qu'on peut brancher à la suite l'un de l'autre deux ou plusieurs réseaux cycliques, une séparation des produits étant, si l'on veut, prévue de l'un à l'autre. Du premier réseau, on soustrait assez de gaz pour que la transformation n'ait lieu que dans une mesure telle qu'un enrichissement en produits de réaction ou en impuretés ne se produise que dans une mesure limitée dans le premier cycle. Après élimination des produits de réaction, le gaz soustrait pénètre dans le second cycle où la transformation est menée à son terme. On obtient ainsi une plus grande vitesse de transformation dans le premier cycle.

Les dessins ci-annexés représentent des installations dans lesquelles le procédé décrit peut avantageusement être mis en œuvre.

Dans l'installation représentée à la fig. 1, le gaz neuf froid est ajouté en *A* au gaz de circulation chaud provenant de la pompe de circulation *C*. On fait passer le mélange à travers une chambre de mélange *B* et on l'introduit ensuite dans le récipient de réaction *D*, où il se transforme dans la couche de catalyseur *E* et atteint une température supérieure dans les limites admissibles à cause de la chaleur de réaction dégagée. Dans la chaudière à vapeur à haute pression *F* branchée à la suite de l'enceinte de réaction, la température du gaz de circulation est abaissée de manière qu'une fois mélangé avec le gaz neuf admis, la température désirée soit de nouveau atteinte à l'entrée du récipient. Un petit courant partiel est soustrait en aval de la chaudière à vapeur afin qu'après abaissement de sa température dans le refroidisseur *G*, ou absorption, ou les deux, on en retire les produits de réaction par séparation dans le séparateur *H*. Le préchauffeur *J*, dis-

posé en amont du récipient de réaction, sert uniquement à amener le gaz primitif à la température de réaction au commencement de l'opération; on le débranche ensuite. Les produits liquides sont évacués en *L* et les gaz restants en *K*.

La fig. 2 montre une installation analogue à celle de la fig. 1, mais dans laquelle, après élimination des produits de réaction liquides, le courant partiel soustrait est restitué au cycle afin d'utiliser complètement les gaz primitifs. Les gaz débarrassés des constituants liquides sont refoulés par la pompe *M* dans le récipient de lavage *N*, où ils sont traités au moyen d'un liquide de lavage introduit à son sommet par la pompe *O*. La portion des gaz non absorbée par le liquide de lavage se rend par la conduite *P* au point d'admission du gaz neuf en *A*. Au sortir du récipient *N*, le liquide de lavage est purgé, dans le séparateur *Q*, des gaz et vapeurs qu'il a absorbés, après quoi il est ramené dans le récipient de lavage *N* au moyen de la pompe *O*. Les gaz et vapeurs sont évacués en *R*.

La fig. 3 représente une installation permettant de combiner le procédé décrit avec une réfrigération au moyen d'un gaz froid. Une partie des produits issus du récipient est refroidie à plus basse température que la masse du gaz en circulation, puis est introduite dans le récipient de réaction en un ou plusieurs points situés entre deux couches de catalyseur; de cette manière, après que le mélange de réaction a traversé une couche de catalyseur, sa température est ramenée à un degré convenable et il peut traverser une nouvelle couche de catalyseur sans que se produisent d'indésirables élévations de température. Cela permet de diminuer considérablement la masse du courant de circulation chaud. Dans l'installation suivant la fig. 3, une quantité convenable des constituants gazeux du courant partiel soustrait au cycle chaud pour servir de gaz réfrigérant froid, provenant par la conduite *S* du sommet du récipient de lavage *N* et après mélange avec du gaz neuf, est introduite dans le milieu du récipient de réaction *D*.

La présente invention rend possible l'utilisation de vastes récipients de réaction, simples à construire, et contenant par exemple une ou plusieurs couches de catalyseurs de un mètre d'épaisseur et de 3 mètres de diamètre. Un avantage de ce procédé est qu'il permet de produire une essence remarquablement indétonante.

Par le procédé suivant la présente invention, on recueille également des oléfines gazeuses, telles que le propylène et le butylène, des gasoils et de la cire de paraffine. On peut les utiliser à des fins quelconques connues ou comme matières premières pour la fabrication de produits de l'industrie du pétrole ou de l'industrie chimique. Par exemple, le butylène peut servir de matière première pour la production d'octanes. Les gasoils peuvent être employés comme combustibles Diesel ou comme constituants de tels combustibles ou comme matières premières pour leur production; quant aux hydrocarbures solides, on peut s'en servir comme matières premières pour la préparation d'acides gras par oxydation ou pour la production d'huiles lubrifiantes.

Les exemples ci-après montreront mieux la nature de la présente invention et la façon dont on peut la mettre en œuvre, mais il doit être entendu cependant que l'invention n'est nullement limitée à ces exemples.

Exemple 1:

Dans le cycle chaud d'une installation de synthèse telle qu'elle est représentée à la fig. 1, introduire sous une pression de 20 atm. et à raison, par heure, de 700 m³ mesurés dans les conditions normales de température et de pression, un mélange contenant 4 parties de monoxyde de carbone et 5 parties d'hydrogène, obtenu dans un générateur de gaz à l'eau et dans lequel la teneur en soufre a été abaissée à moins de 5 mgr par m³. Le catalyseur, constitué principalement par du fer agglutiné qu'on a produit par décomposition du ferro-carbonyle, est présent dans le récipient de réaction sous forme d'une couche de 1 m d'épaisseur. On fera circuler le

gaz de cycle assez rapidement pour qu'il en passe par heure 70 000 m³ à travers l'enceinte de réaction. A l'entrée de celle-ci, on maintiendra une température de 320 ° C, et à sa sortie une température de 330 ° C. Dans le refroidisseur *F* (une chaudière à vapeur à haute pression), on enlève aux gaz issus du récipient de réaction assez de chaleur pour qu'après adjonction de gaz neuf, le gaz de cycle ramené dans le récipient de réaction ait une température de 320 ° C. Du cycle chaud on retirera une quantité de gaz égale en poids à celle du gaz neuf introduit dans le réseau. Les produits formés seront séparés de la portion soustraite par refroidissement. On obtient par heure 96 kg de produits solides, liquides et gazeux dont la composition est la suivante:

17 kg de méthane et d'éthane, 20 kg d'éthylène et d'hydrocarbures gazeux contenant 3 et 4 atomes de carbone dans la molécule et consistant principalement en oléfines, 42 kg de benzène à point d'ébullition inférieur à 200 ° C et ayant un grand pouvoir antidétonant, 10 kg d'huile moyenne (200 à 400 ° C), 1 kg de cire de paraffine à l'état solide, 6 kg d'alcools, principalement d'alcool éthylique, qui sont contenus dans l'eau qui se forme.

Exemple 2:

A travers une enceinte de catalyse ayant une capacité de 1 m³ et remplie d'un catalyseur au fer, faire passer sous une pression de 15 atm. et transformer par jour 7000 m³ (mesurés sous la pression normale) d'un mélange composé de 2 parties de monoxyde de carbone et de 3 parties en volume d'hydrogène. On réglera à 320 ° C la température à l'entrée et l'on permettra une élévation de température de 10 ° C pendant la transformation. A cet effet, on choisira une quantité de gaz de circulation environ 100 fois supérieure à la quantité de gaz neuf et l'on abaissera presque à 320 ° C la température du gaz de cycle en le faisant passer à travers une chaudière à vapeur à haute pression. Une durée de séjour du gaz, mesuré en volume

sous la pression régnant dans la chambre de catalyse, d'environ $\frac{3}{4}$ de seconde à chaque passage à travers celle-ci est nécessaire, le calcul de la durée de séjour étant basé sur la supposition que la chambre de réaction est vide. Si la chambre de catalyse a, par exemple, une hauteur de 50 cm, une vitesse d'écoulement du gaz de 65 cm par seconde est nécessaire pour réaliser ladite durée de séjour. Le gaz restitué a la composition volumétrique suivante:

- 5 % de CO,
- 35 % d'H₂,
- 27 % de CO₂,
- 13 % de vapeur d'eau,
- 17 % d'hydrocarbures en gaz et vapeurs,
- 3 % d'N₂.

Du gaz de circulation, on soutirera un poids égal à celui du gaz neuf introduit. On transforme ainsi en gros 70 % du gaz neuf et il se forme par jour et par mètre cube de chambre de catalyse, environ une tonne d'hydrocarbures liquides, gazeux et solides en outre d'une petite quantité de composés organiques oxygénés. La composition des produits est analogue à celle qu'on obtient suivant l'exemple 1. L'énergie employée pour la circulation des gaz n'est qu'une fraction de celle qu'exige la compression du gaz neuf.

La quantité de produits susceptibles d'être obtenue par unité de temps au moyen d'une quantité donnée de catalyseur en opérant avec du gaz de cycle, diffère à peine de celle qu'on peut obtenir en traitant un mélange gazeux non dilué dans les conditions propres à cet effet, bien que ce gaz de cycle, comme le montre l'analyse ci-dessus, ne renferme que très peu de monoxyde de carbone.

REVENDEICATION:

Procédé pour la synthèse d'hydrocarbures dont la molécule contient plus d'un atome de carbone, par transformation du monoxyde de carbone au moyen d'hydrogène, selon lequel on ramène dans l'enceinte de réaction des gaz qui ont déjà subi la réaction, après les avoir refroidis seulement de manière à établir la température convenable à l'entrée dans l'en-

ceinte de réaction, le volume des gaz ainsi réintroduits par unité de temps étant au moins 20 fois supérieur à celui du gaz neuf introduit pendant cette unité de temps, tandis qu'on dérive une partie des gaz issus de l'enceinte de réaction et que l'on en retire des produits de réaction.

SOUS-REVENDEICATIONS:

- 1 Procédé suivant la revendication, caractérisé par le fait que l'abaissement de la température des gaz issus de l'enceinte de réaction dans la mesure voulue pour assurer le réglage de la température, s'effectue avant le prélèvement de la portion de ces gaz dont on retire des produits de réaction.
- 2 Procédé suivant la revendication, caractérisé par le fait que les gaz à restituer à l'enceinte de réaction sont refroidis sensiblement à la température régnant à l'entrée dans ladite enceinte.
- 3 Procédé suivant la revendication, caractérisé par le fait que les constituants gazeux qui subsistent après l'élimination des produits de réaction sont aussi réintroduits dans l'enceinte de réaction.
- 4 Procédé suivant la revendication et la sous-revendication 3, caractérisé par le fait que lesdits constituants sont épurés par lavage avant leur réintroduction.
- 5 Procédé suivant la revendication, caractérisé par le fait qu'on opère en employant au moins deux réseaux cycliques branchés à la suite l'un de l'autre.
- 6 Procédé suivant la revendication, caractérisé par le fait qu'on règle la vitesse d'écoulement des gaz en réaction de manière qu'elle corresponde à une durée de séjour de 0,1 à 5 secondes à chaque passage à travers une enceinte de réaction appartenant à un cycle déterminé.

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

Mandataires: E. BLUM & Co., Zurich.

FIG. 4.

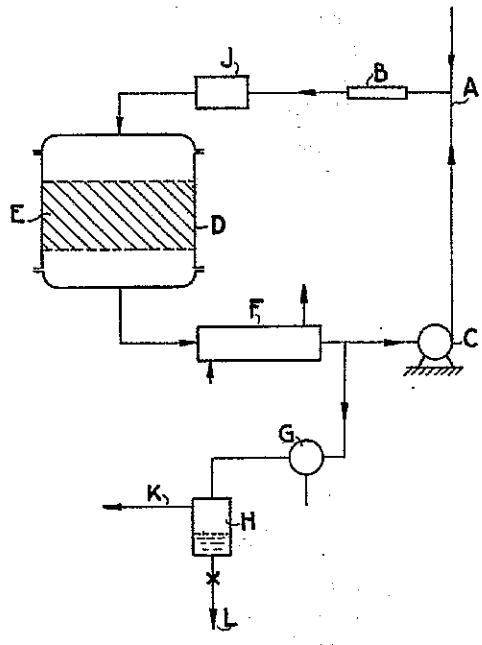


FIG. 2

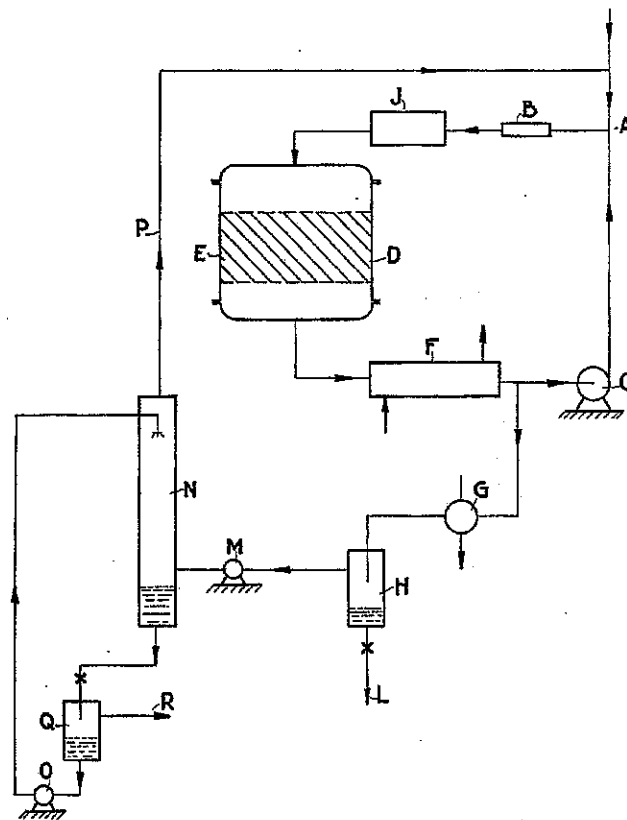


FIG. 3.

