

(19) OFICIUL DE STAT  
PENTRU INVENȚII ȘI MĂRCI  
București

ROMANIA



(11) Nr. brevet: **107644 B1**

(51) Int.Cl.<sup>5</sup> C 07 C 1/04//  
B 01 J 23/74

(12)

## BREVET DE INVENTIE

Hotărârea de acordare a brevetului de invenție poate fi revocată  
în termen de 6 luni de la data publicării

(21) Nr. cerere: **144844**

(22) Data de depozit: **18.04.90**

(30) Prioritate:

(41) Data publicării cererii:  
BOPI nr.

(42) Data publicării hotărârii de acordare a brevetului:  
**30.12.93** BOPI nr. **12/93**

(45) Data publicării brevetului:  
BOPI nr.

(61) Perfecționare la brevet:  
Nr. **107645**

(62) Divizată din cererea:  
Nr.

(86) Cerere internațională PCT:  
Nr.

(87) Publicare internațională:  
Nr.

(56) Documente din stadiul tehnicii:  
**US 4139550**

(71) Solicitant: Institutul de Energetică Chimică și Biochimică, București, RO

(73) Titular: S.C. "Zecasiu" S.A., București, RO

(72) Inventatori: Udrea Ion, Ouu Petre, Udrea Mariana, Pop Grigore, Căpăț Constantin, Musca Gavril, RO

### (54) Procedeu pentru obținerea de hidrocarburi lichide, pornind de la gazul de sinteză

(57) **Rezumat:** Prezenta invenție se referă la un procedeu pentru obținerea de hidrocarburi lichide, cu conținut ridicat de arome pornind de la gazul de sinteză și prezintă o perfecționare a invenției principale cu descrierea **RO 107645**. Procedul constă în trecerea compuşilor oxigenați, rezultați ca

produși secundari la prima etapă de conversi a gazului de sinteză pe catalizatori feritici, fără separarea completă de apă, în cea de a doua etapă de transformare în arome, pe catalizatori de tip ZSM-5.

Revendicări: 1

RO 107644 B1



Prezenta invenție se referă la un procedeu pentru obținerea de hidrocarburi lichide, cu conținut ridicat de arome, pornind de la conversia gazului de sinteză și este o invenție de perfecționare a invenției principale cu descrierea RO 107645.

Procedeul conform invenției principale se referă la obținerea hidrocarburilor lichide aciclice prin conversia gazului de sinteză pe catalizatori de Fe/Cu/K bentonită, și transformarea ulterioară a produsului hidrocarbonat rezultat, în totalitate sau separat pe fracții, în arome, utilizând catalizatori de tip HZSM-5.

Prin hidrogenarea monoxidului de carbon pe catalizatori de fier menționați, conform invenției principale, în afară de hidrocarburi rezultă și o fază apoasă, conținând până la 26% în greutate compuși oxigenați, constituiți, în principal, din metanol (14...21% din amestecul organic oxigenat), etanol (24...54%), restul (până la 100%) fiind reprezentat de alcooli C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub>, aldehide și alți compuși cu oxigen, care, în tehnologiile actuale, sunt trimise la faza de distilare, în scopul separării componentelor individuali, ceea ce necesită un consum mare de energie, datorită concentrației lor scăzute în soluție apoasă, cât și a formării unui azeotrop cu apa.

Procedeul conform prezentei invenții de perfecționare înlătură acest dezavantaj prin aceea că, compușii oxigenați, rezultați ca produși secundari din prima etapă, sunt trecuți, fără separarea completă de apă, în cea de a doua etapă, unde se realizează transformarea în arome pe catalizatori de tip HZSM-5, în condiții cunoscute.

Procedeul, conform invenției, prezintă următoarele avantaje:

- valorificarea superioară a gazului de sinteză prin obținerea unui produs hidrocarbonat lichid, cu conținut ridicat

de arome, rezultat prin conversia compușilor oxigenați, care constituie produși secundari în procesul de sinteză a hidrocarburilor pe catalizatori feritici;

- mărirea eficienței procesului de sinteză a hidrocarburilor prin aceea că, prin aplicarea procedurii propus, se evită separarea compușilor oxigenați individuali, care ar necesita un consum de energie.

În continuare, se prezintă exemple de realizare a procesului conform invenției.

Exemplele 1...4. Gazul de sinteză, cu un raport H<sub>2</sub>/CO de 1,47, este trecut peste un catalizator de compoziție 100 Fe/20 Cu/5 K pe suport de bentonită, la temperatura de 280°C, viteză volumară de 1160 h<sup>-1</sup>, presiunea de 10 atmosfere, reacția având loc într-un reactor în regim dinamic de 20 cmc. catalizator, activat, în prealabil, în curent de hidrogen, rezultând o fază organică, conținând hidrocarburi aciclice, cu un randament de 64,65 g/Nm<sup>3</sup> gaz de sinteză și o fază apoasă cu un randament de 43,1 g/Nm<sup>3</sup> gaz de sinteză, cu următoarea compoziție: 2,5% metanol, 7,5% etanol, 2,35% alcooli și aldehide C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub> și 0,65% alți compuși oxigenați. Soluția apoasă se supune distilării, realizându-se, în final, amestecuri compuși oxigenați -apă, astfel încât conținutul de apă să fie respectiv 5,10,20 și 50%, după care, fiecare amestec rezultat este trecut succesiv peste 10 cm catalizator HZSM-5, având un raport SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> de 55, la temperatura de 380°C, viteză volumară 1 h<sup>-1</sup>, presiune atmosferică. Conversia compușilor oxigenați este practic totală, iar compoziția produsului hidrocarbonat lichid pentru cele patru amestecuri este prezentată în tabelul 1. Reacțiile au fost efectuate într-o instalație de laborator, cu reactor în regim dinamic, iar analiza produșilor de reacție a fost efectuată cromatografic.

Distribuția hidrocarburilor din produsul lichid de reacție obținut, în cazul trecerii amestecurilor compuși oxigenați-apă peste catalizator tip HZSM-5, rezultate ca produși secundari din procesul de conversie a gazului de sinteză la hidrocarburi

| Exemplul nr.                                              | 1     | 2     | 3     | 4     |
|-----------------------------------------------------------|-------|-------|-------|-------|
| Conținutul de apă în compuşii oxigenați % gr.             | 5     | 10    | 20    | 50    |
| Distribuția hidrocarburilor din produsul condensat, % gr. |       |       |       |       |
| C <sub>5</sub> -C <sub>5</sub> nearomatice                | 1,47  | 7,28  | 12,14 | 13,11 |
| Ar-C <sub>6</sub>                                         | 1,88  | 6,15  | 6,79  | 6,66  |
| Ar-C <sub>7</sub>                                         | 39,32 | 37,26 | 33,22 | 27,12 |
| Ar-C <sub>8</sub>                                         | 39,66 | 32,82 | 29,69 | 35,33 |
| Ar-C <sub>9</sub>                                         | 10,54 | 9,54  | 8,58  | 12,35 |
| Ar-C <sub>10</sub> +                                      | 7,13  | 6,95  | 9,58  | 5,43  |

Din rezultatele prezentate în tabelul 1 rezultă procente ridicate de hidrocarburi aromatice pentru toate amestecurile utilizate drept reactant și deci nu este necesară separarea completă de apă a compuşilor oxigenați.

#### Revendicare

Procedeu pentru obținerea de hidrocarburi lichide, cu conținut ridicat de 5  
10  
aromate, pornind de la gazul de sinteză prin conversia gazului de sinteză, într-o

primă etapă, pe catalizatori de Fe/Cu/K, bentonită și transformarea în a doua etapă, în aromate, utilizând catalizatori de tip HZSM-5, conform invenției principale cu descrierea RO 107645, caracterizat prin aceea că, compuşii oxigenați, rezultați ca produși secundari, din prima etapă, sunt trecuți, fără separarea completă de apă, în cea de a doua etapă, unde se realizează transformarea în aromate pe catalizatori de tip HZSM-5, în condiții cunoscute.

Președintele comisiei de invenții: biolog Nicola Nicolin

Examinator: ing. Barbu Mara

Grupa 1235

Preț lei 1406