



DIC. 1931

124983

H.V.

MEMORIA DESCRIPTIVA

para una patente de invención por veinte años, por " Un procedimiento para mejorar el rendimiento en productos líquidos de la hidrogenación del carbón " a favor de D. José Manuel PERTIERRA y PERTIERRA, residente en Oviedo, calle de Argüelles, núm. 25 - 2º.-

=====

La presente invención se refiere a los procedimientos para la obtención de combustibles líquidos partiendo de combustibles sólidos.

En el verano de 1913 el Doctor F. Bergius, halló que una hu-
lla, es decir que un compuesto de carbono e hidrogeno con un deter-
minado quantum de oxigeno, puede transformarse en aceite al elimi-
nar esta cantidad de oxigeno por reacción con el hidrogeno gaseoso
y molecular, aumentando la proporción de este elemento llevado so-
bre aquel combustible sólido a altas presiones y temperaturas en-
tre 450 - 480 °. El carbón pulverizado o su mezcla mecánica con un
aceite, se somete a este proceso, descrito en la patente alemana



DIC. 1931

2.- 124983

número 301.251 de 9 de agosto de 1913.

En los ensayos que hemos realizado con carbones españoles, según el método Bergius de hidrogenación, calentábamos estos combustibles a las temperaturas ya citadas y con hidrogeno a las presiones iniciales y máximas de 100 y 260 atmósferas respectivamente. En estas experiencias, los rendimientos alcanzados varían entre 34 y 58 % de carbón transformado en aceite. Las cantidades de carbón convertidas en gases, son muy escasas. Queda por tanto una gran cantidad de carbón no convertido en aceite. Esta fracción del carbón que en la mayor parte de los casos alcanza a la mitad del combustible sometido a ensayo, contiene todas las cenizas del carbón que aparecen concentradas en ella y para su utilización se han hecho varias indicaciones.

Hemos perseguido en nuestros ensayos el fin de transformar la mayor parte o la totalidad del carbón en aceites, sin dejar residuos en gran cantidad de difícil utilización o aplicación, por constituir esto una gran dificultad para la realización industrial del método Bergius, de obtención de aceites de combustibles sólidos por hidrogenación. En los ensayos realizados para el logro de la presente invención, fué preciso aplicarse a un largo estudio del comportamiento de los carbones españoles y a la investigación acerca del mecanismo de la reacción entre el hidrogeno y los carbonos a elevadas presiones y temperaturas. El carbón se introducía según las especificaciones del Doctor Bergius, en el aparato para su reacción con el hidrogeno, en estado de polvo o formando una pasta con alquitran o aceites minerales.

Ahora bien, la reacción entre el gas hidrogeno y los granos mas o menos finos de carbón tiene lugar en la superficie de separación de ambas fases sólida y gaseosa. En este caso tambien se incluye la reacción del hidrógeno disuelto por la pasta de carbón y alquitran, y los granos de carbón en ella mantenidos mecanicamente



DIC. 1931

3.- 124983

en suspensión mediante la agitación de esta masa, gracias al movimiento giratorio que tienen los autoclaves o al desplazamiento de la pasta de carbón y aceite mediante bombas de circulación en las instalaciones continuas de hidrogenación.

5 Partiendo de la idea básica de que la velocidad de las reacciones químicas, entre sólidos y gases en función directa de la superficie expuesta por el sólido, hemos pensado en la posibilidad de favorecer la hidrogenación del carbón y mejorar los rendimientos aumentando la superficie de los granos del carbón.

10 Para aumentar la superficie de un cuerpo sólido solo queda el recurso de su división y subdivisión, al eliminar en el caso que estudiamos la consideración de las formas geométricas y sus variaciones de las relaciones entre superficie y masa. Los granos del carbón al ser reducidos en su tamaño, aumentan el valor de la
15 suma de superficies parciales y con esto la facilidad de su reacción con el hidrogeno en el método Bergius, y por tanto el rendimiento en productos líquidos aceitosos. Esta reducción de tamaño que proponemos incluye la pulverización de la materia hasta los
20 tamaños coloidales que serán adoptados por las grandes moléculas orgánicas de complicado enlace de átomos de carbono e hidrogeno que constituyen el carbón.

Para el logro de estos fines de la dispersión coloidal del carbón hemos realizado numerosos ensayos, sometiendo los combustibles sólidos a la acción dispersante que los disolventes orgánicos
25 poseen sobre ellos cuando elevamos la energía cinética de sus moléculas mediante la acción del calor.

En el tratamiento de las hullas y lignitos con disolventes tales como la anilina, la piridina y la quinoleína en recipientes que permiten alcanzar temperaturas elevadas del orden desde 150 á
30 300° sin que estos se transformen en vapor, los carbones sufren la acción de los líquidos disolventes a temperaturas inferiores a las



1931

124983

4.-

criticas de estos menores que las temperaturas iniciales de descom-
posición activa de aquellos. Los rendimientos alcanzados en canti-
dades disueltas coloidalmente, varían con las condiciones de traba-
jo y la naturaleza de los carbones, siendo de 72 % para una hulla
5 de cok.

Para nuestra idea de mejorar el rendimiento de la hidrogena-
ción del carbón por reducción del tamaño de los granos de éste, se
dispone en la técnica aun de otro medio. El problema de la fabrica-
ción de sistemas finamente dispersos o de soluciones coloidales ha
10 sido objeto de numeroso procesos y disposiciones. La realización
de la dispersión mecánica en molinos por varios inventores, permi-
te obtener soluciones coloidales de carbón en aceite u otros lí-
quidos en las cuales, dicha pulverización mecánica lleva el carbón
a un estado micelar cuyas partículas ultramicroscópicas poseen di-
15 mensiones hasta de 100 milimicras como valor mínimo.

Algunos de los ensayos que hemos realizado para comprobar ex-
perimentalmente el mejoramiento de la hidrogenación del carbón
después de haber sometido este a una pulverización, bien sea mecá-
nica mediante los molinos coloidales o por calefacción con disol-
20 ventos durante un tiempo mas o menos prolongado y a temperaturas
superiores a la de ebullición de estos solventes, han permitido
comprobar aquel hecho y una teoría acerca del mecanismo de la hi-
drogenación del carbón y su transformación en aceites y gasoli-
na. Según esta teoría el alquitran primario producido al calentar
25 el carbón en el aparato de hidrogenación y en atmósferas de hidro-
geno a altas presiones disgregaría parte del carbón que adoptará
el estado coloidal debido al gran peso molecular de dichas micelas
coloidales o de las complejas moléculas orgánicas que constitu-
yen el carbono. La hidrogenación del carbón queda facilitada por
este cambio de estado que ha sufrido el carbón a consecuencia del



D.C. 1931

124983

5.-

5 cual tiene lugar un aumento considerable de la superficie que los granos de carbón exponen a la acción del hidrogeno. Este hecho ha sido comprobado tambien experimentalmente, calentando polvo de una hulla de cok con las fracciones del alquitran que se obtiene calentando los carbones a bajas temperatura (550°), se han obtenido asi soluciones coloidales de carbón entre los límites de 5 a 33 % de carbón dispersado. La hidrogenación a elevadas presiones de estas soluciones coloidales de carbón ha suministrado la prueba de los beneficios alcanzados al dispersar el carbón para favorecer su hidrogenación.

Estos hechos no tienen ninguna conexión con los reivindicados en la patente inglesa 332343 de 25 de mayo de 1929, para la emulsión de carbones en aceites minerales.

15 Un ejemplo de la eficacia de la pulverización coloidal del carbón como medio para mejorar el rendimiento en aceites en la hidrogenación por cualquiera de los métodos indicados es el siguiente:

20 Un carbón de cok de una mina asturiana, muy rico en el constituyente macroscópico " vitreoso " y pobre en cenizas fue dispersado en el alquitran primario mecanicamente, mediante un molino coloidal. Para mejorar el rendimiento en aceites, se aumentó la superficie de las micelas coloidales por calefacción de la dispersión coloidal del carbón obtenida mecánicamente, consiguiendose así una disminución de su tamaño. El calentamiento se realizó a la temperatura de ebullición del aceite y con reirigerante al reflujo. Esta solución de carbón suministra al ser hidrogenado a la presión inicial de 100 atmósferas, presión máxima de 242 atmósferas y final de 74 atmósferas a la temperatura de 460°, un rendimiento en aceites y en carbón no transformado, que corresponden a la conversión de 89,4 % del carbón puro en aceites, mientras que en la hidrogenación del mismo carbón a iguales condiciones de temperatura y



12. 1931

124983

6.-

presión, pero sin dispersar coloidalmente. Según los procesos que indicamos, se transforma el 54,2 % del carbón en aceite. Examinado científicamente el fenómeno, se ha comprobado que el aumento de superficie ha sido la causa del notable mejoramiento alcanzado en el rendimiento de aceite -de 54,2 á 89,4 % - comprobando así experimentalmente nuestra teoría e invención.

N O P A.-

Descrito suficientemente el presente invento lo que se declara como de novedad e invención propia, son las siguientes reivindicaciones:

1.- Un procedimiento para mejorar el rendimiento de productos líquidos de la hidrogenación del carbón, realizada a elevadas presiones y temperaturas, caracterizado esencialmente por el aumento de la superficie del carbón tratado para mejorar los rendimientos que se obtienen de aceites desde este combustible sólido.

2.- Un procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por la aplicación de soluciones coloidales de carbón para la transformación de este combustible en aceite por hidrogenación a elevadas presiones y temperaturas.

3.- Un procedimiento según las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado por el calentamiento en tubos cerrados del carbón con piridina, anilina y quinoleína.

4.- Un procedimiento según las reivindicaciones anteriores, caracterizado por la aplicación de soluciones coloidales de carbón en aceites del alquitran obtenidas mecánicamente en los molinos coloidales, a la hidrogenación a elevadas presiones y temperaturas, para mejorar los rendimientos de aceites obtenidos de aquel combustible sólido por el hecho del aumento de la superficie del car-



D.C. 1931

124983

7.-

bón.

5.- Un procedimiento según las reivindicaciones 1 á 4, caracterizado por la aplicación de soluciones coloidales de carbón en aceites del alquitran primario obtenidas por calefacción en tubos cerrados o en recipientes con refrigerantes a reflujo.

6.- Un procedimiento según las reivindicaciones 1 á 5 caracterizado por preparar la pasta de carbón y aceite de modo que el carbón sea finamente pulverizado hasta los tamaños coloidales comprendidos en 0,1 micra, y 1 milimicra.

10 7.- Un procedimiento para mejorar el rendimiento en productos líquidos de la hidrogenación del carbón.- Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva.

Consta esta memoria de siete páginas foliadas y escritas por una sola cara.

Madrid, 9 de diciembre de 1931.

Leocadio López y López

P.P.=