

175570

P. 5.309

U.S. Serial No 636.487.

175570

REPLAZA LA COPIA  
POR DEFECTO DEL ORIGINAL



2 NOV. 1946

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

PATENTE DE INVENCION

en

ESPAÑA

por VEINTE años

a nombre de STANDARD OIL DEVELOPMENT COMPANY, entidad nortea-  
mericana, establecida en Elizabeth, Nueva Jersey, ESTADOS UNI-  
DOS DE AMERICA, por:

"UN PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION DE HIDRO-  
CARBUROS POR SINTESIS".

El presente invento se refiere a un per-  
feccionamiento en los métodos de realizar la unión catalíti-  
ca de óxidos de carbono e hidrógeno para producir hidrocarburo-  
ros de más de dos átomos de carbono y derivados oxigenados  
de los mismos y, más especialmente, el invento se refiere al



17557U

2 NOV. 1946

método de dirigir la reacción con catalizadores en forma fluidificada y a estos mismos catalizadores. El invento se comprenderá plenamente a base de la descripción siguiente y del dibujo anejo.

5 El dibujo es una vista semi-diagramática en alzado en corte que muestra un aparato para la reducción de monóxido de carbono con hidrógeno, en el cual el catalizador se emplea en forma fluidificada.

10 Desde hace unos pocos años se ha dedicado mucha atención hacia un método perfeccionado para llevar a cabo reacciones químicas en la fase gaseosa con catalizadores en forma fluidificada, expresión con la que se quiere decir que un catalizador finamente dividido es dispersado por toda la masa gaseosa de reacción para formar una suspensión densa que  
15 fluye a través del aparato lo mismo que un líquido, mostrando cargas tanto dinámicas como estáticas. Tal sistema ha sido aplicado con pleno éxito en gran escala al "cracking" de aceites hidrocarbonados así como a otras reacciones.

20 Es de gran importancia mantener el catalizador en el reactor en buen estado de fluidificación puesto que ello asegura la uniformidad de la temperatura y de la presión así como condiciones constantes que conducen a un rendimiento y eficiencia mejorados en el funcionamiento.

25 Al intentar aplicar el sistema a la síntesis de hidrocarburos y derivados oxigenados por la reducción de óxidos de carbono con hidrógeno, se ha comprobado que se originan ciertas dificultades inesperadas que parecen ser peculiares de esta reacción particular, especialmente al hacer el intento en gran escala, es decir, en tamaños comerciales y



1946

175570

considerablemente mayores que los empleados ordinariamente en el laboratorio.

Para ilustrar los tipos de dificultades que se han hallado, puede mencionarse que la distribución de tamaños de las partículas de catalizador ha resultado ser de gran importancia, cuando parece tenerle mucho menor en otras reacciones. En ciertos experimentos cuidadosamente controlados, un catalizador de síntesis adecuado se fluidificó debidamente en un gas de síntesis a la temperatura ambiente, es decir, por debajo de la adecuada para la reacción. Cuando la fluidificación se llevó a cabo de modo satisfactorio, la temperatura del gas alimentado se incrementó gradualmente para alcanzar la escala de reacción y para provocar la síntesis de hidrocarburos y derivados oxigenados. Sin embargo, cuando se llegó a la temperatura de reacción, la fluidificación resultó en extremo pobre, con retardos y sacudidas. En otros experimentos se vió que el hidrógeno sólo o el CO solo podían emplearse para fluidificar el catalizador incluso a las temperaturas normales de reacción, pero, al añadir el otro reactivo, CO o hidrógeno, según el caso, la fluidificación se detenía súbitamente o se empobrecía en extremo en la zona de la reacción. Finalmente, se comprobó que en estas reacciones particulares, el proceso era mucho más sensible que en otras cualesquiera que se habían estudiado previamente y que era una peculiaridad de la reacción, no de los materiales que se fluidificaban. Las razones y la explicación física de esto no se han aclarado todavía. Se halló que la distribución de tamaños del catalizador era de gran importancia y en esto se distinguía muy marcadamente de los resultados en el "cres-



1946

175570

king" obtenidos, de hidrocarburos y en otras reacciones. Finalmente se comprobó que podía asegurarse la buena fluidificación en condiciones estables a través de toda la escala de temperaturas de funcionamiento mediante la selección del debido equilibrio del tamaño y de las cantidades de las partículas de catalizador presentes en el reactor, y el presente invento tiene como objeto la definición de la escala apropiada de la distribución de tamaños para el funcionamiento satisfactorio de las reacciones de síntesis con partículas fluidificadas finamente divididas.

Refiriéndonos al dibujo, el número 1 denota una vasija de reacción que generalmente tiene la forma de un cilindro vertical con una base cónica 2. En la parte inferior del cilindro va situada una rejilla o tamiz 3, de modo que se efectúe una buena distribución del gas, indicándose de un modo general con 4, en la porción superior del cilindro, un separador de polvo. Con preferencia, el separador es del tipo que opera basándose en principios centrifugos y el polvo así separado separado es devuelto a la masa fluidificada mediante el tubo 5, al paso que la mezcla de gas y vapor es extraída por el tubo 6 hacia un condensador-lavador 7, alimentado con agua mediante un tubo 8. El gas, del cual han sido eliminados los productos líquidos y los vestigios finales de catalizador, es retirado por un tubo 9 y el líquido es separado en el recipiente 10, retirándose agua en el fondo por 11 y producto hidrocarbonado por el tubo 12.

Se comprenderá que dentro del reactor 1 las partículas de catalizador son distribuidas a través de los ga-



ses de reacción en forma de una suspensión densa, que compren-  
de una fase más densa debajo y una fase más ligera arriba, las  
cuales están separadas por una capa o nivel intermedios, indi-  
cados de modo general en 13. Dentro de la fase más densa van  
5 situados unos tubos refrigeradores 14, pero se comprenderá que  
los mismos pueden disponerse de cualquier modo preferido y no  
necesariamente como se ha representado.

Dentro de este reactor la suspensión esté en movi-  
miento vigoroso que asegure la eficaz utilización del catali-  
zador y el exacto control de la temperatura desde la parte  
10 superior a la inferior.

La alimentación gaseosa compuesta de la mezcla, con  
preferencia, de dos partes de hidrógeno por una de CO, es su-  
ministrada por el tubo 15 pasando por un calentador 16 que  
15 se emplea hasta que el aparato ha sido llevado a la tempera-  
tura de reacción. A continuación el gas o el menos una parte  
de él se dirige preferentemente en torno del calentador media-  
nte un tubo 16. Se comprenderá que la misma reacción produce  
normalmente calor suficiente para mantenerse por sí misma y,  
20 de hecho, es preciso el enfriamiento mediante los tubos 14.

A intervalos, una porción del catalizador puede re-  
tirarse por un tubo 17, como se indica, y el catalizador pue-  
de ser separado del gas portador y regenerado o vuelto a tra-  
tar como se desee. Por el tubo 18 puede suministrarse catali-  
zador nuevo, con preferencia en un gas portador, que puede ser  
25 una parte del gas de alimentación.

En el aparato para llevar a cabo la reacción pueden  
introducirse variaciones considerables pero, en general, el  
representado en el dibujo es adecuado. En cualquier caso, de-



1946

3570

5 be consistir en una vasija de reacción vertical alargada provista de medios refrigeradores, alimentada por el fondo con los gases reactivos. El catalizador, con preferencia, es separado del gas dentro del cilindro de reacción, de modo que la masa del mismo se mantenga siempre dentro del reactor y se retiren los productos en forma de vapor. Después de la separación del producto líquido del gas, éste puede llevarse de nuevo a la cámara de reacción, usualmente después de una regulación adecuada de su composición.

10 Con el fin de comprender más plenamente el funcionamiento del presente procedimiento, debe hacerse observar que la velocidad ascendente del gas en el espacio del reactor se ajusta de modo que se mantenga la distribución de las partículas de catalizador a través del gas en una suspensión densa. La velocidad es, preferiblemente, del orden de 6 a 15 30.5 cm. por segundo, medida en la sección transversal total de la vasija, aunque pueda ser tan alta como de 3.05 metros por segundo y usualmente estará comprendida entre 15 y 152 cm. por segundo. Cuando la presión se eleva, por ejemplo sobre 10 atmósferas, se emplean velocidades un tanto menores. 20 Esta velocidad ascendente es suficiente para mantener el catalizador en suspensión. Hay un resbalamiento considerable también entre el catalizador y el gas, es decir, que las partículas de catalizador suben considerablemente más despacio que el gas en que están suspendidas. La temperatura de la 25 reacción depende de otros factores, principalmente del catalizador, pero está comprendida entre unos 177-357°C. Con catalizadores cuyo elemento activo es el hierro, la tempera-

BUENA REPRODUCCION  
POR EFECTO DEL ORIGINAL



1946

175570

tura preferida es de 288 a 344°C, al paso que con cobalto se prefiere un campo inferior de temperatura, desde unos 191 a unos 246°C. Con el catalizador de hierro es preferible emplear una presión de 10 a 30 atmósferas, cuando ha de reforzarse la producción de hidrocarburos, e incluso pueden emplearse presiones superiores si se desea aumentar el rendimiento de derivados oxigenados a expensas de los hidrocarburos. Con catalizadores que contengan cobalto, puede convenientemente emplearse la presión atmosférica, aunque es preferible trabajar de 5 a 15 atmósferas.

Con respecto a la distribución de tamaños del catalizador se ha comprobado que el funcionamiento satisfactorio, en el cual la fluidificación es buena y puede mantenerse con estabilidad, solo existe en una escala relativamente restringida. Esto no quiere decir que fuera de estas condiciones no pueda mantenerse el funcionamiento en absoluto, pero tal funcionamiento no es suave y queda sometido a períodos erráticos en los cuales el catalizador parece acelerarse hacia arriba a través del aparato y grandes burbujas o canales de gas pasan a través de la densa mezcla de catalizador sin un contacto adecuado con la misma. La descripción del catalizador es como sigue, entendiéndose que una diversión moderada uniforme de los tamaños del catalizador es mejor que una escala extremadamente restringida, por una parte, y una diversión extremadamente amplia, por otra. Todo el catalizador está finamente dividido, a pesar de que una de las porciones se designa como superior a 80 micras, conteniendo partículas tan pequeñas como de 5 micras y menos. Las partículas mayores superiores a 80 micras serán predomi-



1946

175570

nantemente menores de 40 mallas y no contendrán partículas mayores de unas 4 mallas.

<u>Diámetro del catalizador</u>	<u>Porcentaje</u>	<u>Preferido</u>
0 a 20 micras	Menos de 25%	5 a 25%
5 20 a 80 "	30 a 85%	30 a 85%
Superior a 80 micras, pero caracterizado todavía como finamente dividido.	Menos de 45%	5 a 35%

El catalizador puede producirse de muchos modos, primeramente, por ejemplo, moliendo grandes terrones del material catalítico a aproximadamente el tamaño apropiado y regulando luego dentro de los límites antes mencionados por la adición de partículas finas o gruesas, según se requiera. Por flotación en aire o por otros medios mecánicos pueden llevarse a cabo separaciones aproximadas de catalizador molido y estas fracciones aproximadas pueden mezclarse para dar la distribución deseada.

Pueden hacerse catalizadores de forma substancialmente esférica formando un sol del material catalítico o portador, dispersándolo en gotitas en un gas inerte o un líquido no miscible, por ejemplo, por emulsificación, y manteniéndolo en este estado hasta que el sol se haya convertido en un gel. Se comprenderá que las partículas del sol son llevadas a la forma esférica bajo la influencia de la tensión interfacial. Si los portadores usados son tales como gel de sílice, geles mezclados, etc., pueden impregnarse con los elementos catalíticos.

Los catalizadores según la descripción que antecede-



1946

175570

de pueden fluidificarse con facilidad en condiciones estables que no están sometidos a retardos o choques erráticos súbitos y el proceso de la síntesis de los hidrocarburos puede llevarse a cabo con suavidad y eficacia. La pérdida de catalizador no es excesiva; los rendimientos en producto líquido son mayores que los obtenidos durante la fluidificación no satisfactoria, seguramente a causa de la mejor distribución del catalizador a través de todo el gas y por el control más eficaz de la temperatura.

10 Ejemplo I.

El aparato empleado en el presente ejemplo era muy similar al ilustrado arriba. La vasija de reacción era de unos 38 cm. de diámetro y unos 12 metros de altura. El enfriamiento se realizó mediante 8 tubos verticales de refrigeración unidos en la parte superior y en el fondo mediante piezas de unión anulares, teniendo cada tubo unos 9 metros de largo y 5 cm. de diámetro, colocados en la parte inferior de la vasija de reacción y alimentados con el fluido refrigerante.

Las diversas operaciones descritas en lo que sigue fueron llevadas a cabo en el reactor con 90 a 450 Kgs. de catalizador que contenía cobalto sobre un portador inerte a la presión atmosférica o hasta de 1.40 Kgs. manométricos. La temperatura osciló en diferentes porciones de los ensayos de unos 193 a unos 210°C. El gas de síntesis estaba compuesto de unos dos volúmenes de hidrógeno por uno de CO y contenía algo de CO<sub>2</sub> y a veces estaba diluido con hidrógeno adicional. Las mediciones de la temperatura se tomaron a diversos nive-



4.5570

1946

les del reactor y también se colocaron manómetros a lo largo del reactor e niveles diferentes. Por la lectura de los manómetros, pudo determinarse con facilidad la altura de la capa densa de catalizador así como la cantidad total de catalizador en el reactor. El ensayo total ocupó diversas semanas de funcionamiento y está dividido en varias períodos en los cuales se emplearon catalizadores de diferentes clasificaciones bajo condiciones diversas haciéndose distintas tentativas para obtener una buena fluidificación. Se comprobó que cuando se usaba hidrógeno solo, el tamaño del catalizador no tenía importancia o solo tenía poca y el funcionamiento podía realizarse incluso a la temperatura de la reacción, pero cuando se añadieron CO o gas de síntesis, llegó un momento en que la fluidificación resultaba en extremo pobre. En estos ensayos una medida del grado de éxito de la operación particular fue la cantidad de gas de síntesis ( $2 H_2 + 1 CO$ ) que pudo emplearse, obteniéndose todavía una buena fluidificación. Un ensayo totalmente satisfactorio desde el punto de vista de la fluidificación sería por consiguiente una operación en la cual se empleara en condiciones suaves de funcionamiento, gas puro de síntesis, es decir, 2 volúmenes de hidrógeno por un volumen de CO. Ensayos deficientes fueron aquellos en que hubo de añadirse una gran cantidad de hidrógeno extraño al gas de síntesis con el fin de obtener una buena fluidificación, si ésta podía conseguirse. Se consideraban cuidadosamente diferentes secciones de los ensayos:

A. La operación empezó con hidrógeno solo y 180 Kgs de catalizador en el reactor que se mantuvo a  $177^{\circ}C$  y a unos 1.12 Kgs. por cm. cuadrado. La velocidad fue de unos 7cm/seg.



1946

175570

y cuando el funcionamiento se estabilizó, la fluidificación era buena como quedaba indicado por la uniformidad de la temperatura dentro del reactor. Las presiones manométricas en cada punto fueron estables durante el período. La distribución de los tamaños del catalizador en este momento era:

0	-	20	μ.	21.3%
20	-	40	"	5.8
40	-	80	"	9.7
80	+		"	63.2

10            B. Después de una hora de operación tranquila en las condiciones arriba descritas, se añadió gas de síntesis a la corriente, en la medida de 60% aproximadamente. La velocidad era ahora de unos 16 cm/seg., ascendiendo la temperatura a 208°C, indicando que la reacción había comenzado

15            haciéndose evidente inmediatamente una fluidificación muy pobre por una caída inmediata en la  $\Delta p$  en el reactor (diferencia entre las lecturas manométricas correspondientes a las partes superior e inferior) y una rápida oscilación del nivel hacia arriba y hacia abajo de 2.43 a 2.90 metros, al paso que en

20            el funcionamiento tranquilo en las condiciones del período "A", el nivel permaneció virtualmente constante a 3.35 metros. La temperatura durante la marcha fraccionada previa no había variado más de 3° en total, pero en las condiciones actuales se comprobaron variaciones amplias y repetidas de 31°C como máximo.

25            Se observó que se perdía catalizador en cantidades excesivas de la parte de arriba del reactor. En una tentativa para mejorar la operación, se empleó un 100% de gas de síntesis, esto es, sin hidrógeno extraño, pero esto no proporcionó ninguna re-



2 1946

1 5570

jora y tampoco la dió un cambio en la velocidad hasta unos 22 cm./seg. Sin embargo, en este momento se introdujo de nuevo hidrógeno puro estableciéndose inmediatamente las condiciones de funcionamiento tranquilo encontradas durante el periodo "A". Algo de catalizador se perdió pero las condiciones resultaron inmediatamente uniformes y la fluidificación resultó otra vez en extremo buena. Se comprobó que se habían perdido unos 29.5 Kgs de catalizador. La velocidad se aumentó a 45 cm./sg. y las condiciones siguieron siendo buenas. Se elaboraron productos durante el periodo de síntesis, pero el rendimiento era bajo y pareció variar de vez en cuando.

C. Se conmutó inmediatamente a gas de síntesis 100% lo que por segunda vez produjo un desajuste inmediato de todas las condiciones con exactamente los mismos resultados que los mencionados anteriormente. En este momento se retiró una porción del catalizador, hallándose que tenía el análisis siguiente:

	0 - 20 "	13.4%
20	20 - 40 "	6.2
	40 - 80 "	12.7
	80 + "	67.7

D. En este momento la cantidad de catalizador que quedaba en el reactor era de unos 104 Kgs. de modo que se añadieron 227 Kgs. y el funcionamiento se volvió a iniciar con hidrógeno puro. La fluidificación era en extremo buena y las condiciones eran aproximadamente las mismas que en el periodo "A". Ahora se añadió lentamente gas de síntesis y



1946

5570

se aumentó la cantidad de modo que se comprobó que podía obtenerse un buen resultado con 42% de gas de síntesis y 58% de hidrógeno adicional. Se observará que en este caso el reactor estaba funcionando a solamente el 42% de su capacidad nominal. La continuación subsiguiente del mismo tipo de funcionamiento demostró que el porcentaje de gas de síntesis que podía ser tolerado declinaba lentamente e aproximadamente al 20% y un análisis del catalizador mostró lo siguiente:

	0	+	20	M	6.9%
10	20	-	40	"	13.8
	40	-	80	"	23.2
	80	+		"	56.1

Es evidente que las condiciones que se mantenían en este momento no eran satisfactorias y que la fluidificación resultaba progresivamente más pobre.

E. En este momento se añadió otro volumen de catalizador de tamaño considerablemente más pequeño que el empleado originariamente y el análisis mostró ahora:

	0	-	20	M	24.4%
20	20	-	40	"	18.1
	40	-	80	"	23.0
	80	+		"	34.5

F. Después de la adición del catalizador arriba mencionado al funcionamiento se suavizó inmediatamente sin ningún otro cambio en las condiciones de temperatura y presión, que permanecieron muy constantes. Se encontró que entonces era posible, con el catalizador mencionado, operar con gas de síntesis 100% y con una velocidad de unos 33 cm./seg. La temperatura



se había estabilizado a unos 218°C y prácticamente había  
 variación de punto a punto a través del reactor. La lectu-  
 ra de los manómetros se mantenía asimismo virtualmente cons-  
 tante. Durante este período el producto fue recogido de modo  
 5 continuo pero debido a la reducida actividad del catalizador  
 la conversión fue solamente de 36% aproximadamente. También  
 se observó que había una pequeña pérdida de catalizador duran-  
 te cualquier momento de este período y que al final del perio-  
 do la composición del catalizador era aproximadamente la mis-  
 10 ma que anteriormente. La unidad estaba funcionando a su capa-  
 cidad nominal, pero, como se ha mencionado, la conversión no  
 era tan alta como lo debía ser, a causa de la poca actividad  
 del catalizador. El funcionamiento era muy superior al de cual-  
 quier período anterior, es otras palabras, la unidad resultó  
 15 funcionar mecánicamente de un modo perfecto desde el punto de  
 vista de la fluidificación. Los períodos anteriores habían que-  
 dado marcados por la amplia y rápida variación de las fluctua-  
 ciones de temperatura y de presión, al paso que en el período  
 actual, el funcionamiento era en extremo tranquilo y muy sa-  
 20 tisfactorio.

Ejemplo II.

Durante los ensayos anteriores se había terminado  
 que el tamaño del catalizador era una de las características  
 más importantes del funcionamiento de modo que en el presen-  
 25 te ensayo se empleó un nuevo y activo catalizador en la si-  
 guiente escala de distribución:

0	-	20	M	13.9%
20	-	40	"	39.9

MALA REPRODUCCION  
FOR DEFECTO DEL ORIGINAL



15570

40 - 80 M 37.4  
80 + " 8.8

5 Durante este ensayo la temperatura se mantuvo a, aproximadamente 204°C, por medio de una camisa de refrigeración en lugar de los tubos usados en el reactor del Ejemplo I, con poca o ninguna variación de punto a punto en el reactor y se alimentó con 100% del gas de síntesis. Como antes, este gas comprendió 2 volúmenes de hidrógeno, uno de CO y una pequeña cantidad de CO<sub>2</sub>. La presión era de 0.70  
10 Kgs./cm<sup>2</sup> y la velocidad en el reactor se varió de cuando en cuando desde 16.7 a 21.3 cm/seg., pero sin ningún efecto importante en la reacción. Durante el período se tomaron continuamente mediciones sobre el reactor y se obtuvieron los siguientes rendimientos:

15 Conversion de CO 86%  
Rendimiento en c.c. por metro cúbico de gas. 162  
Selectividad a (C<sub>1</sub> e C<sub>3</sub>) 32%  
Selectividad a C<sub>4</sub> + (Líquido) 54%

20 De lo que antecede se verá que no sólo el reactor operaba suavemente, sino que la conversión era alta, el rendimiento bueno y la selectividad suficiente. El ensayo continuó durante unas 67 horas y en todo el período hubo poca pérdida de catalizador. En la 59ª hora se tomó una muestra  
25 de catalizador y se comprobó, era como sigue:

0 - 20 M 13.5%  
20 - 40 " 38.8



175570

40	-	80	M	38.0
80	+		"	9.7

Esta distribución del catalizador es virtualmente la misma que aquella con la cual se comenzó el ensayo.

### Ejemplo III.

El aparato descrito en el Ejemplo II se hizo funcionar con un catalizador de hierro que tenía las características siguientes:

0	-	20	micras	27.8%
20	-	40	"	24.2
40	-	80	"	27.6
80	+		"	20.4

Después de 120 horas de reducción con hidrógeno substancialmente puro, se empleó gas de síntesis. Durante la operación de síntesis se emplearon temperaturas de unos 315°C y presiones de aproximadamente 21 Kgs./cm<sup>2</sup>. La velocidad general del gas era de unos 15 cm. por segundo, siendo bueno el funcionamiento. Después de 119 horas de operación de síntesis, el catalizador fué retirado y el análisis mostró:

0	-	20	micras	8.5%
20	-	40	"	28.5
40	-	80	"	40.0
80	+		"	23.0

La altura de la capa de catalizador oscilaba entre los 6 y los 7.60 metros y la temperatura del cataliza-



1946

17557U

5 dor a través de toda esta longitud varió solamente en 6°C. Las lecturas de los manómetros eran tranquilas e indicaban el verdadero peso de catalizador en el reactor que era de unos 516 Kgs. El coeficiente de transmisión de calor, que es una medida de la fluidificación, era de 66 Kcal/m<sup>2</sup>°C.h.

10 Cuando se ensayó en el mismo aparato un catalizador de hierro más grueso, este coeficiente de transferencia de calor en condiciones, por lo demás comparables, fué solamente de 51 Kcal/m<sup>2</sup> °C.h. Además, las temperaturas variaron de punto a punto de la capa del catalizador, en tanto como 12°C. Este catalizador de tipo más grueso tenía los siguientes tamaños de partículas:

	0	-	20 micras	2.5%
	20	-	40 "	17.8
15	40	-	80 "	27.8
	80	+	"	51.9

Este análisis fué hecho después de 82 horas de la operación de síntesis. Estos datos indican así que este catalizador más grueso era notablemente inferior.

20 Este solicitud que corresponde a la presentada en los ESTADOS UNIDOS DE AMERICA el 21 de Diciembre de 1945, bajo el número 636.487, se otorga a los beneficios del artículo 51 del vigésimo Estatuto de Propiedad Industrial.

175570

- o - N O T A - o -

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta Patente de Invención en España por VEINTE años, son los siguientes:

- 5            1ª.- Un procedimiento para la obtención por síntesis de hidrocarburos partiendo de monóxido de carbono e hidrógeno, que comprende hacer pasar una mezcla de dichos gases hacia arriba a través de una zona de reacción que contiene un cuerpo de sólido finamente dividido capaz de catalizar  
10 dicha reacción, estando dicho sólido presente en dicho cuerpo en forma de partículas de varios tamaños que oscilan hacia arriba desde unas 5 micras, siendo las mayores de dichas partículas menores que un tamaño aproximado de 4 mallas, y pasando la mayor parte de dichas partículas a través de un tamiz de 40 mallas, mantener la velocidad de los gases que pasan hacia arriba a través de dicho cuerpo en un valor situado  
15 de entre 6 cm. y 3 cm. aproximadamente por segundo adecuado para mantener dicho cuerpo en un estado de gran turbulencia y en fase densa, siendo la densidad y turbulencia de dicha mezcla suficientes para mantener una temperatura substancialmente uniforme a través de toda la zona de reacción, mantener condiciones adecuadas de temperatura y presión para la síntesis en dicha zona de reacción y recuperar productos de la parte  
20



1948

4,5570

superior de la zona de reacción mencionada.

5 2º.- Un procedimiento para la obtención de hidrocarburos por síntesis a partir de monóxido de carbono e hidrógeno, que comprende hacer pasar una mezcla de dichos gases en relación adecuada hacia arriba a través de una zona de reacción que contiene un cuerpo de sólido finamente dividido capaz de catalizar dicha reacción, estando presente dicho sólido finamente dividido en forma de partículas de tamaños diversos que oscilan hacia arriba desde unas 5 micras, 10 no siendo las mayores de dichas partículas substancialmente mayores de 4 mallas y pasando la parte principal de dichas partículas a través de 40 mallas, mantener la velocidad de los gases que pasan hacia arriba a través de dicho cuerpo entre aproximadamente 6 cm. y 3 m. por segundo, adecuada para 15 mantener dicho cuerpo en estado de alta turbulencia en fase densa para garantizar así una temperatura substancialmente uniforme a través de toda la zona de reacción, hacer pasar un medio refrigerante en permutación indirecta de calor con el sólido de dicha mezcla densa y turbulenta dentro de dicha 20 zona para substraer calor de la misma y mantener dicha zona a la temperatura de síntesis deseada y recuperar productos del extremo superior de dicha zona.

25 3º.- El procedimiento de obtener hidrocarburos por síntesis a partir de monóxido de carbono e hidrógeno, que comprende hacer pasar una mezcla adecuada de dichos gases hacia arriba a través de una zona de reacción ensancheda que contiene un cuerpo de sólido finamente dividido capaz de catalizar dicha reacción, estando presente dicho sólido



• 25 1946

975570

lido en forma de partículas de tamaños diversos que oscilan  
hacia arriba desde unas 5 micras, no siendo substancialmente  
mayores de 4 mallas las más grandes de dichas partículas y  
pasando a través de un tamiz de 40 mallas la parte princi-  
5 pal de dichas partículas, mantener la velocidad de los gases  
que pasan hacia arriba a través de dicho cuerpo entre unos  
6 cm. y 3 m. por segundo, adecuada para mantener las particu-  
las de dicho cuerpo en un estado de alta turbulencia en fase  
densa, siendo la densidad y turbulencia de dicha mezcla sufi-  
10 cientes para asegurar una temperatura substancialmente unifor-  
me a través de toda la zona de reacción, mantener condiciones  
adecuadas de temperatura y presión para la síntesis en dicha  
zona de reacción, extraer productos de reacción que contienen  
catalizador arrastrado de dicho cuerpo, separar el polvo de  
15 dichos productos de reacción y devolver el polvo así separado  
a dicho cuerpo denso y turbulento.

4º.- Un procedimiento según se reivindica en el  
punto 3º, en el cual un agente de refrigeración se hace pa-  
sar en relación de permutación térmica indirecta con los só-  
20 lidos de dicha mezcla densa y turbulenta dentro de la zona  
de reacción para substrer calor de la misma y mantener di-  
cha zona a la temperatura deseada.

5º.- En un procedimiento para producir materiales  
orgánicos líquidos por reacción de óxidos de carbono con hi-  
25 drógeno, en el cual un catalizador finamente dividido es man-  
tenido en una zona vertical de reacción en forma fluidifica-  
da y es mecánicamente separado del producto vaporoso, las ope-  
raciones de emplear un catalizador caracterizado por la si-  
guiente distribución de frecuencia de tamaños:



B. 1947

5570

<u>Diámetro en micras</u>	<u>Porcentaje</u>
0 a 20	Menos del 25 %
20 a 80	30 a 85 %
80 +	Menos del 45 %

5

6<sup>a</sup> - En un procedimiento para producir materiales orgánicos líquidos por reacción de monóxido de carbono e hidrógeno, en el cual un catalizador finamente dividido es mantenido en una forma fluidificada estable dentro de una zona vertical de reacción y a continuación el catalizador es separado mecánicamente de los productos vaporosos, las operaciones de emplear un catalizador de la siguiente distribución de frecuencia de tamaños:

10

<u>Diámetro en micras</u>	<u>Porcentaje</u>
0 a 20	Menos del 25 %
20 a 80	30 a 85 %
80 +	Menos del 45 %

15

y mantener un flujo ascendente de gas a través del reactor dentro de la escala de unos 6 cm. a unos 45 cm. por segundo.

20

7<sup>a</sup> - Un procedimiento según se reivindica en el punto 2<sup>a</sup>., en el cual la zona de reacción se mantiene a una temperatura de 177 a 344° C.

25

8<sup>a</sup> - Un procedimiento según se reivindica en el punto 2<sup>a</sup>., en el cual la zona de reacción se mantiene a presión super-atmosférica.

9<sup>a</sup> - El procedimiento virtualmente como se ha descrito y representado.

10<sup>a</sup> - Un procedimiento para la obtención de hidro-



1947

75570

carburos por síntesis.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representada en el dibujo que se acompaña y con los fines que se han especificado.

5

Esta Memoria consta de veintidos hojas escritas por una sola cara.

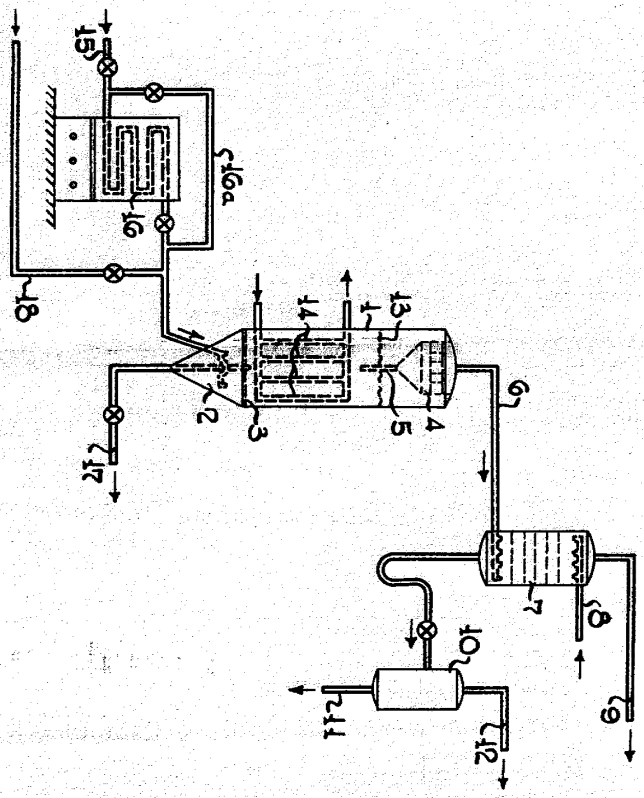
Madrid,

P. A.  
1 FEB. 1947  
Alberto de Eizabun

Ch/



NOV 20 1940



*Handwritten signature or initials.*



NOV 20 1940

STANDARD OIL COMPANY