



República Federativa do Brasil
Ministério da Economia
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(11) PI 0907815-0 B1



(22) Data do Depósito: 12/02/2009

(45) Data de Concessão: 06/04/2021

(54) Título: REATOR PARA A PRODUÇÃO DE METANOL, E MÉTODO DE PRODUZIR METANOL EM UM REATOR

(51) Int.Cl.: B01J 8/02; B01J 8/06.

(30) Prioridade Unionista: 25/02/2008 DK PA2008 00260; 25/02/2008 DK PA2008 00261.

(73) Titular(es): HALDOR TOPSOE A/S.

(72) Inventor(es): MAX THORHAUGE.

(86) Pedido PCT: PCT EP2009000972 de 12/02/2009

(87) Publicação PCT: WO 2009/106231 de 03/09/2009

(85) Data do Início da Fase Nacional: 17/08/2010

(57) Resumo: REATOR PARA A PRODUÇÃO DE METANOL, E MÉTODO DE PRODUZIR METANOL EM UM REATOR. Projeto aperfeiçoado de um reator catalítico para a produção de metanol em condições de equilíbrio em que o metanol, à medida que ele é formado, é separado da fase gasosa para a fase líquida dentro do reator, sem reduzir a atividade catalítica do catalisador de metanol. Isto é obtido por ajuste do ponto de ebulição de um agente de resfriamento líquido estando em contato indireto com as partículas de catalisador e provendo uma relação específica de volume de leito de catalisador para área de superfície de resfriamento. Assim, a condensação de metanol, à medida que ele é formado na fase gasosa, ocorre na superfície de resfriamento disposta distribuída uniformemente dentro do reator e dentro de uma região muito limitada do leito de catalisador.

“REATOR PARA A PRODUÇÃO DE METANOL, E MÉTODO DE
PRODUZIR METANOL EM UM REATOR”

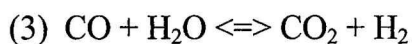
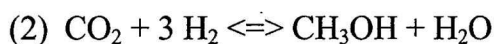
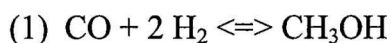
CAMPO DA INVENÇÃO

A presente invenção refere-se à produção industrial de metanol
5 por conversão de um gás de síntese contendo hidrogênio, monóxido de carbono
e dióxido de carbono na presença de um catalisador de síntese de metanol.

A invenção refere-se em particular a um reator permitindo uma
condição de equilíbrio da reação de metanol melhorada e, assim, uma
recirculação de gás de síntese reduzida ou eliminada por separação *in situ* de
10 metanol à medida que ele é formado a partir do gás de síntese.

ANTECEDENTES DA INVENÇÃO

A preparação de metanol é baseada nas seguintes três reações de
equilíbrio:



Devido ao equilíbrio somente uma fração do gás de síntese é
convertida em metanol e a parte restante do gás de síntese precisa ser reciclada.
A separação *in situ* de metanol a partir de gás de síntese é descrita na patente US
20 No. 4.731.387. Em um reator de fluxo de gotejamento de sólido gasoso o
metanol é removido por um material de absorção e assim a condição de
equilíbrio melhora. Após ter passado o reator, o metanol é dessorvido do
material de absorção e o material de absorção é reciclado para a entrada do
reator. Os inconvenientes deste sistema estão na complexidade do sistema, que
25 resulta em dificuldades operacionais e um custo de investimento maior.

Outro modo de superar as limitações de equilíbrio é descrito na
patente US No. 5.262.443, onde o reator catalítico é operado a uma temperatura
e pressão onde uma parte do metanol produzido condensa no leito catalítico. Ao

aplicar a invenção, é possível reduzir ou eliminar o reciclo oneroso do gás de síntese. Existem, no entanto, dois inconvenientes ao operar deste modo.

A fim de operar abaixo do ponto de orvalho do gás, a temperatura do catalisador precisa ser reduzida abaixo do nível ótimo de temperatura para a reação catalítica. A menor temperatura resulta em uma menor atividade, o que aumenta o volume de catalisador necessário e o custo do reator.

O segundo problema envolve a condensação de metanol no catalisador poroso. O gás de síntese precisa difundir dentro do catalisador através do sistema de poros para iniciar a reação catalítica. Se os poros estão cheios com metanol, a taxa de difusão e a atividade catalítica são severamente reduzidas.

Estes dois problemas reduzem a atividade do catalisador em várias vezes comparada com a atividade obtida com o processo de síntese de metanol convencional. Como uma consequência da atividade reduzida, o reator de condensação precisa ser aumentado em tamanho resultando em reatores mais caros do que os reatores convencionais com reciclo de gás de síntese.

SUMÁRIO DA INVENÇÃO

A presente invenção provê, em geral, um projeto melhorado de um reator e método catalítico para a produção de metanol em condições de equilíbrio, pelo que o metanol, à medida que é formado, é separado da fase gasosa na fase líquida dentro do reator sem reduzir a atividade catalítica do catalisador de metanol. Isto é obtido por ajuste do ponto de ebulição ou temperatura de um agente de resfriamento líquido estando em contato indireto com as partículas de catalisador e provendo uma razão específica de volume de leito de catalisador para área de superfície de resfriamento. Assim, a condensação de metanol à medida que ele é formado na fase gasosa ocorre na superfície de resfriamento sendo disposta distribuída uniformemente dentro do reator.

Mais particularmente, a invenção é um reator para a produção de metanol de acordo com as reivindicações 1 a 3.

Uma forma de realização específica do reator é definida na reivindicação 4.

5 A invenção, além disso, provê um método para produção de metanol de acordo com as reivindicações 5 a 7.

As formas de realização específicas da invenção serão evidentes a partir da descrição detalhada da invenção.

DESCRIÇÃO DETALHADA DA INVENÇÃO

10 Em geral, o tipo de reator para uso na invenção é de menor importância. A temperatura ou ponto de ebulição requeridos do agente de resfriamento líquido será igual para qualquer um dos tipos de reator e o volume de catalisador para área de superfície de resfriamento será idêntico após correção para a geometria diferente.

15 A “temperatura” do agente de resfriamento líquido é a temperatura média, definida como a temperatura do agente de resfriamento após ter recebido metade do calor transferido total. Para reatores de elevação de vapor, a temperatura média será próxima da temperatura do ponto de borbulhamento do agente de resfriamento líquido.

20 Os reatores de metanol mais utilizáveis são tipos de elevação de vapor de reator. Os três principais tipos de reator de metanol de elevação de vapor são:

Reator tipo 1, onde gás de síntese entra no topo do leito catalítico e o leito de catalisador é indiretamente circundado pelo agente de resfriamento líquido e o gás de síntese e metanol líquido condensado se movimentam
25 concorrentemente descendentemente. Um exemplo de tal reator é mostrado nos desenhos na Figura 8.

Reator tipo 2, onde gás de síntese entra no topo do leito catalítico

e o agente de resfriamento líquido é indiretamente circundado pelo leito de catalisador, e o gás de síntese e líquido condensado se movimentam concorrentemente descendentemente. Exemplo de tal reator é visto na figura 9.

Reator tipo 3, onde gás de síntese entra perpendicular ao eixo do reator cilíndrico e o agente de resfriamento líquido é indiretamente circundado pelo leito de catalisador e o gás de síntese e metanol líquido condensado passam em um modo radial através do reator. Exemplo de tal reator é visto na figura 11.

O termo "indiretamente circundado" mencionado aqui acima e no seguinte refere-se ao princípio comumente conhecido de troca de calor indireta, em que um agente de resfriamento ou de aquecimento está em contato térmico indireto com outro fluido sendo separado do agente de resfriamento / aquecimento por uma superfície de transferência de calor, na forma de, por exemplo, uma parede de um tubo ou uma placa de um trocador de calor.

A fim de obter que a condensação de metanol, à medida que ele é formado no leito de catalisador, ocorra substancialmente em uma superfície de resfriamento de acordo com a invenção, duas medidas contraditórias precisam ser atendidas:

1. Tendo uma temperatura suficientemente alta no leito de catalisador, o fluxo térmico precisa ser pequeno. Isto pode ser obtido diminuindo a área de resfriamento ou aumentando a temperatura do agente de resfriamento.

2. Uma temperatura suficientemente elevada requer uma produção de calor elevada ou uma taxa de reação elevada. Se o gás de síntese de metanol está em um equilíbrio termodinâmico com metanol, a reação catalítica irá chegar a um estado parado, e assim a produção de calor irá desaparecer. Assim, é necessário assegurar que o metanol produzido seja transportado para a superfície de resfriamento em uma taxa elevada. Isto pode ser obtido por aumento da área de resfriamento ou diminuição da temperatura do agente de

resfriamento líquido.

Pela invenção, a atividade catalítica é mantida elevada ao se evitar a condensação através de ajuste da relação entre o volume do catalisador e a área de superfície de resfriamento, junto com uma temperatura específica do agente de resfriamento líquido, como descrito em detalhes abaixo.

A extensão do trajeto de transporte de metanol sendo produzido no leito de catalisador é ajustada a um comprimento em que a concentração de metanol no leito catalítico é apropriadamente baixa que o calor de reação aumenta a uma temperatura, onde ela compensa a quantidade de calor removida pela mesma extensão de transporte. Ao mesmo tempo assegura-se uma temperatura de superfície de resfriamento, em que a temperatura é suficientemente baixa que a condensação ocorre, e a temperatura do leito catalítico que é tão elevada que a condensação sobre o catalisador é evitada e uma taxa de reação elevada é mantida.

Este efeito é obtível a uma temperatura específica da superfície de resfriamento. O calor que precisa ser removido do reator é de tal magnitude que para qualquer razão prática ele pode ser somente removido por calor de evaporação ou por troca térmica com um agente de resfriamento líquido. A temperatura de superfície da área de resfriamento é próxima da temperatura do agente de resfriamento líquido.

A fim de evitar condensação de metanol no leito do catalisador, o calor de produção deve ser suficientemente elevado para compensar o calor removido na área de resfriamento por aumento da razão de volume de catalisador para área de superfície de resfriamento e a razão de volume de catalisador para área de superfície de resfriamento deve ser adequada para o transporte do vapor de metanol produzido para a superfície de resfriamento.

Prefere-se que o re-arrasto de metanol líquido seja substancialmente reduzido ou evitado. O re-arrasto de líquido pode ser evitado

por redução da resistência de fluxo do metanol bruto fluindo descendentemente sobre a superfície de resfriamento, por emprego, por exemplo, de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de mais do que 0,002m e/ou por meio de um estabilizador de película líquida, como mostrado nas Figuras 1-7.

5 O re-arrasto de metanol líquido no leito de catalisador pode ser também evitado introduzindo uma área de aquecimento no reator que mantém a temperatura do leito de catalisador acima do ponto de orvalho de metanol. A área de aquecimento também irá manter a temperatura do catalisador acima do ponto de orvalho em casos em que a produção de calor é insuficiente para
10 manter a temperatura do catalisador acima do ponto de orvalho. A área de aquecimento deve, como para a área de resfriamento, ser distribuída uniformemente dentro do leito de catalisador a fim de obter um gradiente de temperatura forçada no leito. Porque a produção de calor é maior no lado da entrada do gás de síntese do reator, como comparado com o lado de saída do reator, a área de aquecimento pode resfriar o leito de catalisador na região de
15 entrada do reator e apenas aquecer o leito de catalisador na região de saída do reator. É preferido introduzir o agente de resfriamento em uma direção de fluxo concorrente com o gás de síntese. Assim, a região de saída do reator pode ser reaquecida por excesso de calor da região de entrada. O agente de aquecimento para uso na área de aquecimento é de preferência água de alimentação de
20 caldeira, vapor ou uma mistura dos mesmos. A pressão do agente de aquecimento está de preferência entre cerca de 2,3 MPa e cerca de 6,4 MPa.

A vantagem principal do método e reator desta invenção é uma elevada conversão de gás de síntese de metanol no reator obtido pela remoção
25 contínua do metanol formado a partir da fase gasosa dentro da fase líquida sobre uma superfície de resfriamento através de condensação. Assim, o processo de metanol pode ser realizado em um modo de passagem única sem recirculação de gás de síntese não convertido.

Comparado com reatores de metanol com água em ebulição, uma vantagem da presente invenção é uma produção de vapor aumentada, porque o calor de condensação é utilizado no reator para a produção de vapor, enquanto o calor de condensação é tipicamente removido em um condensador subsequente de água de resfriamento. Se o calor de reação for removido por água de alimentação da caldeira de aquecimento, a água de alimentação da caldeira pode ser subsequentemente resfriada por destilação instantânea do vapor formado em um tambor externo de destilação instantânea.

Como no processo de metanol convencional, alguns subprodutos são formados, dentre estes estão acetona e metil etil cetona, que são difíceis de remover por destilação. Porque a reação de hidrogenação é muito rápida, as cetonas estarão em equilíbrio termodinâmico na temperatura dada no reator. As cetonas serão principalmente dissolvidas no metanol bruto condensado na superfície de resfriamento, onde o equilíbrio termodinâmico é mais favorável para a conversão das cetonas nos álcoois correspondentes. Isto resulta em um menor teor de cetona no metanol produzido comparado com um reator de metanol convencionalmente operado.

Os parâmetros de processo acima descritos e projeto do reator e dimensões podem ser calculados por meio das seguintes equações (Equação 1 – Equação 3) e valores pré-determinados de:

P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator.

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator.

$Y(x)$ [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do reator.
então

Equação 1:

$$H = E \cdot \exp(-3978 / (TBW[^\circ C] + 273) + 12,3) \cdot (1 + 3978 \cdot E \cdot (220 - TBW[^\circ C]) / ((TBW[^\circ C] + 273)^2)) / (D \cdot P^{9,87});$$

em que:

TBW é a temperatura média do agente de resfriamento, definida como a temperatura do líquido refrigerante após ter recebido metade do calor transferido total:

$$M = \frac{Y(\text{H}_2) - Y(\text{CO}_2)}{Y(\text{CO}) + Y(\text{CO}_2)};$$

(o módulo de gás de entrada)

$$A = 1,0 - Y(\text{CO}) - Y(\text{H}_2) - Y(\text{CO}_2) - Y(\text{CH}_3\text{OH}) - Y(\text{H}_2\text{O});$$

(a fração de inertes)

$$B = \frac{Y(\text{CO})}{Y(\text{CO}_2)};$$

10 (a razão de CO para CO₂)

se M for menor do que 2,0 então C = 1,0 de outra forma C = Exp(0,2*(M - 2,0));

(Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828)

$$D = (0,072 * \text{Ln}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * 0,478 + P/25,2);$$

15 Ln é o logaritmo natural com número de base 2,71828).

$$E = \text{Exp}((P - 13,2)/30,1);$$

Tendo calculado a temperatura média do agente de resfriamento líquido, a razão de volume de catalisador para área de superfície de resfriamento pode ser calculada pela Equação 2 usando o valor de projeto L, que tem um

20 número de entre 0,4 e 5:

$$\text{Equação 2: } V_{\text{CAT}}/A_{\text{COOL}} [\text{m}^3/\text{m}^2] = K * L * ((G * \text{DEQ}[\text{m}] * (220 - \text{TBW}))^{0,5})$$

em que:

se M for maior do que 2,0 então J = (Y(CO) + Y(CO₂)), de outra forma

$$J = \frac{Y(\text{H}_2) * (B + 1)}{(2 * B + 3)};$$

25 $G = \frac{MW - Y(\text{CH}_3\text{OH}) * 32 - 15,5 * J}{(1 - D) * 29 * J};$

K é a constante geométrica dependendo dos tipos de reator empregados 1-3, como descrito aqui acima:

Tipo de reator 1: K = 0,027; Tipo de reator 2: K = 0,045;

Tipo de reator 3: $K= 0,02$; e em que:

DEQ [m] é o diâmetro equivalente do grânulo do catalisador calculado como o diâmetro de uma esfera tendo o mesmo volume que a partícula de catalisador

$DEQ = (6*(\text{volume de partícula [m}^3\text{)}/3,14)^{0,33}$. Se mais do que um tamanho de

5 grânulo for empregado, um diâmetro equivalente médio de peso é calculado

$DEQ = (\sum w(i)*(DEQ(i)^3))^{0,33}$, em que $w(i)$ é a fração de peso de partículas com um diâmetro equivalente de $DEQ(i)[m]$;

VCAT [m³] é o volume aparente assentado do catalisador no reator; e

10 ACOOL [m²] é a área de transferência da superfície de resfriamento em que condensação de metanol ocorre:

Para tipo de reator 1, ACOOL é a área interna total dos tubos do catalisador. Se os tubos do catalisador tem aletas internas longitudinais, ACOOL é a área externa dos cilindros maiores encerrados pelos tubos com aletas.

15 Para tipos de reator 2 e 3, ACOOL é a área externa total dos tubos de resfriamento contendo o agente de resfriamento líquido com uma temperatura média de TBW. Se os tubos de catalisador têm aletas longitudinais, ACOOL é a área externa dos cilindros menores encerrando os tubos com aletas.

20 Se os trocadores de calor de placa térmica forem empregados, ACOOL é a área externa total do retângulo menor encerrando as placas de troca de calor.

25 Se o re-arrasto de líquido no leito do catalisador ocorre, ou se a geração do calor de reação é muito baixa para manter o catalisador acima do ponto de orvalho do metanol, prefere-se introduzir uma segunda área de aquecimento AREHEAT [m²] nos tipos de reator 2 e 3, como definido previamente. Esta segunda área de aquecimento irá assegurar que a temperatura do catalisador é mantida acima do ponto de névoa de metanol. O agente de aquecimento usado na área de aquecimento pode ser a água de alimentação da caldeira, vapor ou uma mistura dos mesmos com um ponto de ebulição de entre

220°C e 280°C para o meio líquido ou um ponto de orvalho deve estar entre 220°C e 280°C para vapor.

DESCRIÇÃO DETALHADA DAS FIGURAS

Figuras 1A e 1B mostram equipamento interno de malha de arame para uso na invenção. Um meio de resfriamento líquido 1 está no exterior de um tubo de aço 2. Tubo de resfriamento é em sua parede interna provido com uma malha de arame cilíndrica 3 (detalhe A) espaçada afastada da parede. O tubo 2 suporta um leito fixo de catalisador 4. Uma película de condensado 5 de metanol sendo produzida dentro do leito 4 na fase gasosa condensa como uma película sobre a parede interna do tubo e flui descendentemente entre a parede interna e a gaze de arame. A disposição pode ser invertida em tal modo que um agente de resfriamento está dentro do tubo e o cilindro de gaze de arame fora do tubo e o leito de catalisador fora do cilindro de gaze de arame.

Figura 2 mostra equipamento interno em espiral de aço para uso na invenção. Um agente de resfriamento líquido 1 está no lado externo de um tubo de aço 2. A espiral de aço 3 é disposta dentro do tubo 2 suportando um leito fixo de catalisador 4. A película de condensado de metanol 5 está fluindo descendentemente sobre o lado inferior da espiral.

Figura 3 mostra equipamento interno de hélice de aço para uso na invenção. Um agente de resfriamento líquido 1 flui fora de um tubo de aço 2. Uma hélice de aço 3 é disposta dentro de um leito fixo de catalisador 4. Uma película de condensado de metanol 5 flui descendentemente sobre o tubo de parede interna 2 e é forçada para a parede 2 pela força centrífuga criada através da rotação forçada de um gás de síntese passando em direção axial através do tubo 2. Tubo 2 pode ser equipado com duas hélices 3, cada espiral deslocada em 180° uma de cada outra.

Figuras 4A e 4B mostram equipamento interno de fibra porosa para uso na invenção. Um agente de resfriamento líquido circunda um tubo de

resfriamento 2 sendo equipado com um cilindro de fibra tecida 3 ou um cilindro de esteira de fibra ligada cerâmica sobre a parede interna do tubo 2. Um leito fixo de catalisador 4 é disposto dentro do tubo 2. Uma película de condensado de metanol 5 flui descendentemente dentro do equipamento interno de fibra porosa. A disposição pode ser revertida de tal modo que o agente de resfriamento está dentro do tubo 2 e equipamento 3 está fora do tubo e o leito de catalisador 4 fora do equipamento 3.

Figura 5 é uma vista em seção transversal de um tubo de catalisador com aletas internas 2 para uso na invenção. Um agente de resfriamento líquido 1 está fora do tubo de aço com aletas longitudinais externas 2, onde o número de aletas internas preferivelmente é maior do que $3,14$ multiplicado com o diâmetro de tubo interno nominal dividido com o diâmetro equivalente do grânulo de catalisador. As aletas internas irão criar um vazio entre a parede de aço e o leito de catalisador permitindo ao condensado de metanol fluir descendentemente com menos resistência. Um leito fixo de catalisador 3 é disposto dentro do tubo e uma película de condensado de metanol 4 flui descendentemente entre a parede de tubo interno e o leito de catalisador 4.

Figura 6 é uma vista em seção transversal de um tubo de resfriamento com aletas externas para uso na invenção. Um agente de resfriamento líquido 1 está fora do tubo de aço com aletas longitudinais 2, onde o número de aletas externas preferivelmente é maior do que $3,14$ multiplicado com o diâmetro de tubo externo nominal dividido com o diâmetro equivalente do grânulo de catalisador. As aletas externas irão criar um vazio entre a parede de aço e o leito de catalisador permitindo à película de condensado de metanol 4 fluir sobre a parede do tubo interno com menos resistência.

Figura 7 é um trocador de calor de placa corrugada para uso como uma área de resfriamento de acordo com a invenção. Um agente de resfriamento líquido 1 é introduzido através da entrada 1a, que deixa o trocador

de calor em forma gasosa 2 através da saída 2a. Um leito fixo de catalisador 3 circunda o trocador de placa. O trocador de calor é provido com uma superfície corrugada sinoidal 4 que provê um vazio entre as partículas de catalisador e a superfície do trocador de calor permitindo ao metanol condensado 5 fluir sobre a superfície com menos resistência. O comprimento de onda da corrugação sinoidal é menor do que o diâmetro equivalente do catalisador.

Figura 8 mostra uma vista longitudinal de um reator de metanol multi-tubular de acordo com uma forma de realização específica da invenção. O reator é provido em seu envoltório de pressão 14 com uma entrada de gás de síntese 1, uma câmara de acesso 2, uma entrada 4 para um agente de resfriamento líquido, uma saída 5 uma mistura de líquido-vapor do meio de resfriamento, uma saída 9 para o gás de síntese não convertido e metanol bruto líquido e um dispositivo de líquido 12. Na parte de topo 3 do reator, uma folha de tubo superior 6, parte de topo 3, pode ser opcionalmente parcialmente cheia com um catalisador. Na região de fundo do reator, uma folha de tubo inferior 7, um leito de suporte de esferas inertes 8 e uma grade de suporte perfurada 11 que suporta o leito inerte. Uma pluralidade de tubos 13 é cheia com catalisador de metanol, estes tubos podendo, cada, suportar um equipamento estabilizante de líquido, como descrito acima. Os tubos são dispostos em um passo triangular. Metanol sendo formado dentro dos tubos condensa sobre a parede interna dos tubos sendo resfriados pelo agente de resfriamento e flui descendentemente para a saída 9.

Figura 9 é uma vista longitudinal do reator de metanol com um leito catalítico 8 e um trocador de calor tubular 11 disposto dentro do leito de catalisador de acordo com uma forma de realização específica da invenção. Gás de síntese de metanol é introduzido através da entrada 1 e passado através do leito de catalisador 8. O agente de resfriamento líquido é introduzido via um distribuidor de entrada 4 dentro do trocador de calor tubular 11 e retirado na

forma de uma mistura vapor-líquido através do distribuidor de saída 5. No fundo do reator a grade de suporte perfurada 6 suporta um leito de suporte 9 de esferas inertes. A parte principal dos catalisadores está situada entre trocador de calor 11 consistindo de uma pluralidade de tubos, tubos com um estabilizador de película de líquido sobre a superfície externa, tubos longitudinais com aletas ou placas de troca de calor corrugadas. Metanol à medida que ele é formado dentro do leito de catalisador é condensado sobre a superfície do trocador de calor 11 e é retirado na fase líquida através da saída 10.

Figura 10 é uma vista longitudinal do reator de metanol sendo provido com um leito fixo de catalisador de metanol 8, de acordo com uma forma de realização específica da invenção. Dentro do leito 8 é montada uma superfície de resfriamento na forma de um trocador de calor tubular 11 e uma superfície de aquecimento na forma de um trocador de calor tubular 15. No fundo do reator, uma grade de suporte perfurada 6 suporta um leito de suporte 9 de esferas inertes. O gás de síntese metanol é introduzido dentro do leito 8 via entrada 1. Um agente de aquecimento é introduzido em trocador de calor 15 via o distribuidor de entrada 13 e retirado através do distribuidor de saída 14. Um agente de resfriamento líquido é introduzido no trocador de calor 11 via um distribuidor de entrada 4 e é retirado através do distribuidor de saída 5. Metanol sendo formado no leito 8 condensa sobre a superfície de resfriamento do trocador de calor 11 e é retirado do reator na fase líquida através da saída 10. A superfície de resfriamento do trocador de calor 11 consiste ou de uma pluralidade de tubos, ou tubos com um estabilizador de película de líquido sobre a superfície externa, tubos longitudinais com aletas ou placas de troca de calor corrugadas em que o metanol bruto condensa. Trocador de calor 15 mantém a temperatura do leito de catalisador acima do ponto de orvalho do metanol formado e consiste ou de uma pluralidade de tubos ou placas de troca de calor.

Figura 11 é uma vista em seção de um reator de metanol de fluxo

radial de acordo com uma forma de realização específica da invenção. O gás de síntese de metanol é introduzido no reator via entrada 1. O gás de síntese é passado através do leito de catalisador 14 na direção radial a partir da periferia do reator através de um cilindro perfurado cilíndrico 7 que suporta o leito de catalisador e permite que o gás de síntese de entrada passe para um tubo central 6 sendo perfurado quando em contato com o catalisador para permitir que o gás de síntese residual e o metanol bruto líquido sendo formados sejam retirados através da saída 13. Uma superfície de resfriamento na forma de um trocador de calor 9 consistindo de uma pluralidade de tubos, tubos com um estabilizador de película de líquido sobre a superfície externa, tubos longitudinais com aletas ou placas de troca de calor corrugadas é disposta dentro do leito de catalisador 14. Um agente de resfriamento líquido é introduzido no trocador de calor através da entrada 4 e retirado através da saída 5. O agente de resfriamento é distribuído para o trocador de calor por meio de um distribuidor circular 10 e coletado na saída do trocador de calor por um distribuidor de saída 11.

Figura 12 mostra um diagrama de fluxo de processo para a preparação de metanol de acordo com a invenção. Gás de síntese de metanol 1 é comprimido no compressor de gás de síntese e passado para um reator de água em ebulição multi-tubular convencional 5, como tipicamente empregado na indústria hoje em dia. O efluente do reator 5 contendo metanol e gás de síntese não convertido é passado para um separador 9 e separado em uma corrente rica em gás de síntese 10 e uma corrente rica em metanol 17. Corrente 10 é introduzida no reator de metanol 11 sendo projetado de acordo com a invenção. Um agente de resfriamento com um ponto de ebulição entre 60°C e 170°C é introduzido no reator 11 via entrada 13 e retirado da saída 12. Um agente de aquecimento é introduzido através da entrada 18 e retirado através da saída 19. O efluente do reator 11 contendo metanol líquido e gás de síntese não convertido é passado para um separador 15 e separado em uma corrente de gás

de síntese 16 e uma corrente de metanol líquido 20, que é combinada com a corrente de metanol do reator 9 em linha 17.

EXEMPLO

O projeto do reator e as condições de processo para um método e reator do tipo acima discutido 1, de acordo com uma forma de realização da invenção, são determinados por meio das seguintes equações com base em valores pré-determinados de:

$P = 12,55$ pressão do reator na entrada do gás de síntese;

$MW = 18,89$ kg/kmol peso molecular de gás de síntese na entrada do reator;

Composição de gás de síntese na entrada do reator:

$Y(\text{CH}_3\text{OH})=0,255$; $Y(\text{H}_2)=0,438$; $Y(\text{CO})=0,148$; $Y(\text{CO}_2)=0,075$;

$Y(\text{H}_2\text{O})=0,006$;

$DEQ = 0,006\text{m}$ o diâmetro equivalente das partículas de catalisador.

Tipo de reator 1.

Com valores de projeto pré-determinados de $H=1,0$ e $L=1,1$, o seguinte projeto de reator com uma condensação ótima de metanol dentro do reator pode ser determinado:

$M = 1,63$

$A = 0,078$

$B = 1,97$

$C = 1$

$D = 0,2656$

$E = 0,9788$

$TBW = 125^\circ\text{C}$ a $H=1$ através da Equação 1 acima descrita,

$J = 0,187$

$G = 1,9589$

$K = 0,027$ para tipo de reator 1

$VCAT/ACOOOL = 0,03081$ m (igual ao diâmetro de tubo interno de $0,1233\text{m}$).

REIVINDICAÇÕES

1. Reator para a produção de metanol, caracterizado pelo fato de compreender, dentro de um envoltório comum, uma pluralidade de tubos de catalisador com partículas de catalisador assentadas no lado de tubo dos tubos do catalisador para conversão de um gás de síntese compreendendo hidrogênio, monóxido de carbono e dióxido de carbono cada em uma quantidade para prover um valor de módulo de entrada M e contendo uma fração de inertes A, e um agente de resfriamento líquido sob pressão no lado de envoltório dos tubos do catalisador tendo uma temperatura de ponto de ebulição (TBW) resultando em um valor H de entre 0,5 e 1,8 de acordo com equação 1, e uma relação de volume aparente das partículas de catalisador assentadas para superfície dos tubos do catalisador (VCAT/ACOOOL) tendo um valor L de entre 0,4 e 5 de acordo com equação 2, e em que

equação 1: $H = E * \text{Exp}(-3978 / (TBW[^\circ\text{C}] + 273) + 12,3) * (1 + 3978 * E * (220 - TBW[^\circ\text{C}]) / ((TBW[^\circ\text{C}] + 273)^2)) / (D * P * 9,87);$

equação 2: $VCAT/ACOOOL [m^3/m^2] = K * L * ((G * DEQ[m] * (220 - TBW))^{0,5});$

em que:

$$M = (Y(H_2) - Y(CO_2)) / (Y(CO) + Y(CO_2));$$

$$A = 1,0 - Y(CO) - Y(H_2) - Y(CO_2) - Y(CH_3OH) - Y(H_2O);$$

$$B = Y(CO) / Y(CO_2);$$

$$C = 1,0 \text{ se } M \text{ for menor do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$C = \text{Exp}(-0,2 * (M - 2,0));$$

$$D = (0,072 * \text{Ln}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * (0,478 + P / 25,2);$$

$$E = \text{Exp}((P - 13,2) / 30,1);$$

$$K = 0,027 \text{ (constante geométrica);}$$

$$G = (MW - Y(CH_3OH) * 32 - 15,5 * J) / ((1 - D) * 29 * J);$$

$$J = (Y(CO) + Y(CO_2)) \text{ se } M \text{ for maior do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$J = Y(H_2) * (B + 1) / (2 * B + 3);$$

$DEQ_1 = (6 \cdot (\text{volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol} [m^3]/3,14))^{0,33}$ com partículas do catalisador do mesmo tamanho e com partículas do catalisador de tamanho diferente:

$DEQ_2 = (\sum w(i) \cdot DEQ(i)^3)^{0,33}$, em que $w(i)$ é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de $DEQ(i)[m]$; e

P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

$Y(x)$ [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do reator;

LN é o logaritmo natural com número de base 2,71828; e

Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828.

2. Reator para a produção de metanol, caracterizado pelo fato de compreender, dentro de um envoltório comum, um leito de catalisador suportando uma carga de catalisador para conversão de um gás de síntese em metanol, o gás de síntese compreende hidrogênio, monóxido de carbono e dióxido de carbono cada em uma quantidade para prover um valor de módulo de entrada M e contém uma fração de inertes A , e dentro da carga do catalisador uma unidade de troca de calor, a unidade de troca de calor consiste de uma pluralidade de tubos ou tubos com aletas ou uma pluralidade de trocadores de calor de placa sendo uniformemente distribuídos na carga do catalisador e formando uma superfície de resfriamento, a unidade de troca de calor é resfriada por um agente de resfriamento líquido pressurizado, em que a temperatura de ponto de ebulição do agente de resfriamento líquido tendo uma temperatura de ponto de ebulição (TBW) resultando em um valor H entre 0,5 e 1,8 calculado por meio de equação 1, e em que a razão de volume aparente da carga do catalisador para superfície da unidade de troca de calor

(VCAT/ACOOOL) é ajustada para resultar em um valor L de entre 0,4 e 5 calculado por meio de equação 2 e em que

equação 1: $H = E * \text{Exp}(-3978 / (TBW[^\circ\text{C}] + 273) + 12,3) * (1 + 3978 *$

$$E * (220 - TBW[^\circ\text{C}]) / ((TBW[^\circ\text{C}] + 273)^2) / (D * P * 9,87);$$

5 equação 2: $VCAT/ACOOOL [m^3/m^2] = K * L * ((G * DEQ[m] * (220 - TBW))^{0,5});$

em que:

$$M = (Y(H_2) - Y(CO_2)) / (Y(CO) + Y(CO_2));$$

$$A = 1,0 - Y(CO) - Y(H_2) - Y(CO_2) - Y(CH_3OH) - Y(H_2O);$$

10 B é $Y(CO) / Y(CO_2);$

$$C = 1,0 \text{ se } M \text{ for menor do que } 2,0; \text{ de outra forma}$$

$$C = \text{Exp}(-0,2 * (M - 2,0));$$

$$D = (0,072 * \text{Ln}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * (0,478 + P / 25,2);$$

$$E = \text{Exp}((P - 13,2) / 30,1);$$

15 K = 0,045 (constante geométrica);

$$G = (MW - Y(CH_3OH) * 32 - 15,5 * J) / ((1 - D) * 29 * J);$$

$$J = (Y(CO) + Y(CO_2)) \text{ se } M \text{ for maior do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$J = Y(H_2) * (B + 1) / (2 * B + 3);$$

20 $DEQ_1 = (6 * (\text{volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol} [m^3] / 3,14)^{0,33})$ com partículas do catalisador do mesmo tamanho, e com partículas do catalisador de tamanho diferente;

$DEQ_2 = (\sum w(i) * DEQ(i)^3)^{0,33}$, em que $w(i)$ é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de $DEQ(i)[m]$; e

P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

25 MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

Y(x) [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do reator;

LN é o logaritmo natural com número de base 2,71828; e

Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828.

3. Reator para a produção de metanol, caracterizado pelo fato de compreender, dentro de um envoltório comum, um leito de catalisador contendo partículas de catalisador para conversão de um gás de síntese em metanol, o gás de síntese compreende hidrogênio, monóxido de carbono e dióxido de carbono em uma quantidade para prover um valor de módulo de entrada M e contém uma fração de inertes A, meios para prover uma direção de fluxo do gás de síntese perpendicular ao eixo do envoltório do reator, uma unidade de troca de calor sendo disposta dentro do leito de catalisador, a unidade de troca de calor consiste de uma pluralidade de tubos, tubos com aletas ou uma pluralidade de trocadores de calor de placa sendo uniformemente distribuídos dentro do leito de catalisador formando uma superfície de resfriamento, em que a unidade de troca de calor é resfriada por um agente de resfriamento líquido pressurizado tendo uma temperatura de ponto de ebulição (TWB) resultando em um valor H entre 0,5 e 1,8 calculado por meio de equação 1, e em que a razão de volume aparente das partículas de catalisador para superfície de uma unidade de troca de calor (VCAT/ACOOOL) é ajustada para resultar em um valor L de entre 0,4 e 15 calculado por meio de equação 2 e em que

equação 1: $H = E \cdot \text{Exp}(-3978 / (TBW[^\circ\text{C}] + 273) + 12,3) \cdot (1 + 3978 \cdot$

$E \cdot (220 - TBW[^\circ\text{C}]) / ((TBW[^\circ\text{C}] + 273)^2) / (D \cdot P \cdot 9,87);$

equação 2: $VCAT/ACOOOL[m^3/m^2] = K \cdot L \cdot ((G \cdot DEQ[m] \cdot (220 - TBW))^{0,5});$

em que:

25 $M = (Y(H_2) - Y(CO_2)) / (Y(CO) + Y(CO_2));$

$A = 1,0 - Y(CO) - Y(H_2) - Y(CO_2) - Y(CH_3OH) - Y(H_2O);$

$B = Y(CO) / Y(CO_2);$

$C = 1,0$ se M for menor do que 2,0; de outra forma

$$C = \text{Exp}(-0,2*(M - 2,0));$$

$$D = (0,072*\text{Ln}(B)+0,244)*C*(1,125-2,5*A) * (0,478+ P/25,2);$$

$$E = \text{Exp}((P-13,2)/30,1);$$

$$K = 0,020 \text{ (constante geométrica);}$$

$$5 \quad G = (MW-Y (\text{CH}_3\text{OH})*32-15,5*J)/ ((1-D)*29*J);$$

$$J = (Y (\text{CO}) + Y (\text{CO}_2)) \text{ se } M \text{ for maior do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$J = Y (\text{H}_2)*(B+1)/ (2*B+3);$$

DEQ₁ = (6*(volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol [m³]/3,14)^{0,33} com partículas do catalisador do mesmo tamanho e com partículas do catalisador de tamanho diferente;

10

DEQ₂ = (∑w(i)*(DEQ(i)³))^{0,33}, em que w(i) é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de DEQ(i)[m]; e

P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

15

Y(x) [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do reator;

LN é o logaritmo natural com número de base 2,71828; e

Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828.

20

4. Reator para a produção de metanol de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, caracterizado pelo fato de compreender, dentro do envoltório comum, meios de aquecimento adaptados para indiretamente manter a temperatura das partículas de catalisador acima do ponto de orvalho de metanol com um agente de aquecimento, o meio de aquecimento tem uma superfície de modo que a relação da superfície do meio de aquecimento para o meio de resfriamento está entre 0,3 e 3,0.

25

5. Método de produzir metanol em um reator de acordo com a

reivindicação 1 ou 4, caracterizado pelo fato de compreender a etapa de converter um gás de síntese de metanol em um reator compreendendo, dentro de um envoltório comum, uma pluralidade de tubos de catalisador com partículas de catalisador assentadas no lado de tubo dos tubos do catalisador em uma relação de volume aparente das partículas de catalisador assentadas para superfície dos tubos do catalisador (VCAT/ACOOOL) tendo um valor L de entre 0,4 e 5 de acordo com equação 2, o gás de síntese compreende hidrogênio, monóxido de carbono e dióxido de carbono cada em uma quantidade para prover um módulo de entrada com um valor M e contendo uma fração de inertes A e reagir o gás de síntese na presença de um agente de resfriamento líquido sob pressão estando no lado de envoltório dos tubos do catalisador, em que o agente de resfriamento líquido é ajustado a uma temperatura de ponto de ebulição (TWB) resultando em um valor H entre 0,5 e 1,8 de acordo com equação 1 e em que

$$\text{equação 1: } H = E * \text{Exp}(-3978 / (TBW[^\circ\text{C}] + 273) + 12,3) * (1 + 3978 * E * (220 - TBW[^\circ\text{C}]) / ((TBW[^\circ\text{C}] + 273)^2)) / (D * P * 9,87);$$

$$\text{equação 2: } VCAT/ACOOOL \text{ [m}^3/\text{m}^2] = K * L * ((G * DEQ[\text{m}] * (220 - TBW))^{0,5});$$

em que:

$$M = (Y(\text{H}_2) - Y(\text{CO}_2)) / (Y(\text{CO}) + Y(\text{CO}_2));$$

$$A = 1,0 - Y(\text{CO}) - Y(\text{H}_2) - Y(\text{CO}_2) - Y(\text{CH}_3\text{OH}) - Y(\text{H}_2\text{O});$$

$$B = Y(\text{CO}) / Y(\text{CO}_2);$$

$$C = 1,0 \text{ se } M \text{ for menor do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$C = \text{Exp}(-0,2 * (M - 2,0));$$

$$D = (0,072 * \text{Ln}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * (0,478 + P / 25,2);$$

$$E = \text{Exp}((P - 13,2) / 30,1);$$

$$K = 0,027 \text{ (constante geométrica);}$$

$$G = (MW - Y(\text{CH}_3\text{OH}) * 32 - 15,5 * J) / ((1 - D) * 29 * J);$$

$$J = (Y(\text{CO}) + Y(\text{CO}_2)) \text{ se } M \text{ for maior do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$J = Y(H_2) \cdot (B+1) / (2 \cdot B+3);$$

DEQ₁ = (6*(volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol [m³]/3,14)^{0,33} com partículas do catalisador do mesmo tamanho e com partículas do catalisador de tamanho diferente:

$$5 \quad DEQ_2 = (\sum w(i) \cdot DEQ(i)^3)^{0,33}, \text{ em que } w(i) \text{ é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de } DEQ(i)[m]; \text{ e}$$

P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

10 Y(x) [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do reator;

LN é o logaritmo natural com número de base 2,71828; e

Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828.

15 6. Método de produzir metanol em um reator de acordo com a reivindicação 2 ou 4, caracterizado pelo fato de compreender a etapa de converter um gás de síntese de metanol em um reator compreendendo, dentro de um envoltório comum, um leito de catalisador suportando uma carga de catalisador para conversão de um gás de síntese em metanol e uma unidade de

20 troca de calor dentro da carga do catalisador, a unidade de troca de calor consiste de uma pluralidade de tubos ou tubos com aletas ou uma pluralidade de trocadores de calor de placa sendo uniformemente distribuídos na carga do catalisador e formando uma superfície de resfriamento, a unidade de troca de calor é resfriada por um agente de resfriamento líquido pressurizado, o gás de

25 síntese compreende hidrogênio, monóxido de carbono e dióxido de carbono cada em uma quantidade para prover um valor de módulo de entrada M e contém uma fração de inertes A, em que a temperatura do ponto de ebulição do agente de resfriamento líquido é ajustada a uma temperatura (TBW) resultando

em um valor H de entre 0,5 e 1,8 calculado por meio de equação 1, e em que a razão de volume aparente da carga do catalisador para superfície da unidade de troca de calor (VCAT/ACOOOL) é ajustada para resultar em um valor L de entre 0,4 e 5 calculado por meio de equação 2 e em que

5 equação 1: $H = E * \text{Exp}(-3978 / (TBW[^\circ C] + 273) + 12,3) * (1 + 3978 * E * (220 - TBW[^\circ C]) / ((TBW[^\circ C] + 273)^2)) / (D * P * 9,87);$

equação 2: $VCAT/ACOOOL [m^3/m^2] = K * L * ((G * DEQ[m] * (220 - TBW))^{0,5});$

em que:

$M = (Y(H_2) - Y(CO_2)) / (Y(CO) + Y(CO_2));$

10 $A = 1,0 - Y(CO) - Y(H_2) - Y(CO_2) - Y(CH_3OH) - Y(H_2O);$

$B = Y(CO) / Y(CO_2);$

$C = 1,0$ se M for menor do que 2,0; de outra forma

$C = \text{Exp}(-0,2 * (M - 2,0));$

$D = (0,072 * \text{Ln}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * (0,478 + P / 25,2);$

15 $E = \text{Exp}((P - 13,2) / 30,1);$

$K = 0,045$ (constante geométrica);

$G = (MW - Y(CH_3OH) * 32 - 15,5 * J) / ((1 - D) * 29 * J);$

$J = (Y(CO) + Y(CO_2))$ se M for maior do que 2,0, de outra forma

$J = Y(H_2) * (B + 1) / (2 * B + 3);$

20 $DEQ_1 = (6 * (\text{volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol} [m^3] / 3,14)^{0,33})$ com partículas do catalisador do mesmo tamanho e com partículas do catalisador de tamanho diferente;

$DEQ_2 = (\sum w(i) * DEQ(i)^3)^{0,33}$, em que w(i) é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de DEQ(i)[m]; e

25 P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

$Y(x)$ [fração molar] é a concentração de cada componente na entrada do

$$M = (Y(H_2) - Y(CO_2)) / (Y(CO) + Y(CO_2));$$

$$A = 1,0 - Y(CO) - Y(H_2) - Y(CO_2) - Y(CH_3OH) - Y(H_2O);$$

$$B = Y(CO) / Y(CO_2);$$

$$C = 1,0 \text{ se } M \text{ for menor do que } 2,0; \text{ de outra forma}$$

$$5 \quad C = \text{Exp}(-0,2 * (M - 2,0));$$

$$D = (0,072 * \text{LN}(B) + 0,244) * C * (1,125 - 2,5 * A) * (0,478 + P/25,2);$$

$$E = \text{Exp}((P - 13,2) / 30,1);$$

$$K = 0,02 \text{ (constante geométrica);}$$

$$G = (MW - Y(CH_3OH) * 32 - 15,5 * J) / ((1 - D) * 29 * J);$$

$$10 \quad J = (Y(CO) + Y(CO_2)) \text{ se } M \text{ for maior do que } 2,0, \text{ de outra forma}$$

$$J = Y(H_2) * (B + 1) / (2 * B + 3);$$

$DEQ_1 = (6 * (\text{volume de uma partícula do catalisador de síntese de metanol} [m^3] / 3,14))^{0,33}$ com partículas do catalisador do mesmo tamanho e com partículas do catalisador de tamanho diferente;

$$15 \quad DEQ_2 = (\sum w(i) * (DEQ(i)^3))^{0,33}, \text{ em que } w(i) \text{ é a fração de peso de partículas de catalisador com um diâmetro equivalente de } DEQ(i) [m]; \text{ e}$$

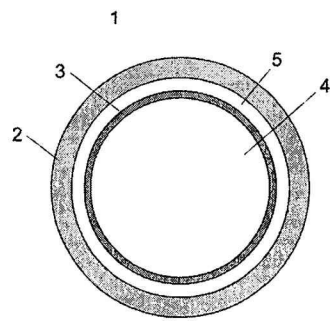
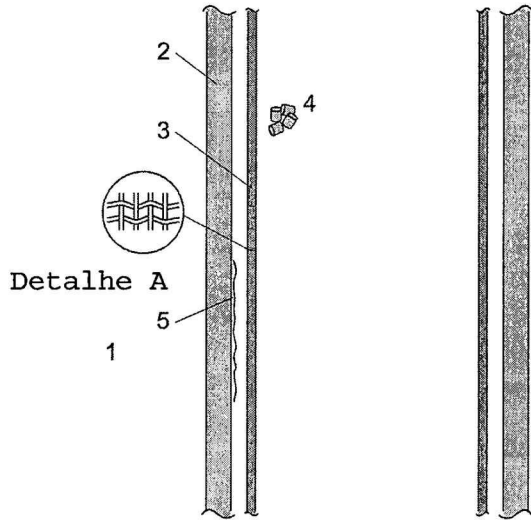
P [MPa] é a pressão absoluta do gás de síntese na entrada do reator;

MW [kg/kmol] é o peso molecular médio do gás de síntese na entrada do reator;

$$20 \quad Y(x) \text{ [fração molar]} \text{ é a concentração de cada componente na entrada do reator;}$$

LN é o logaritmo natural com número de base 2,71828; e

Exp é o antilogaritmo natural ou a função exponencial com número de base 2,71828.



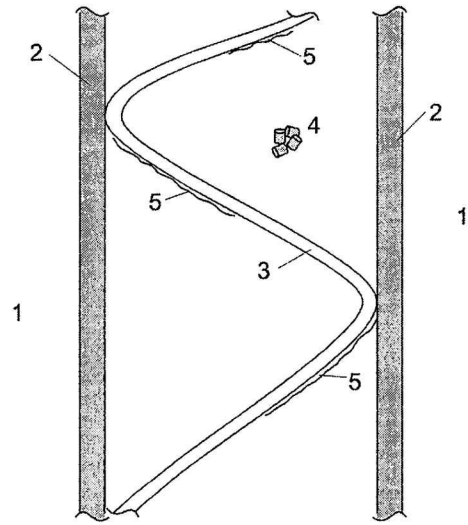


Fig. 2

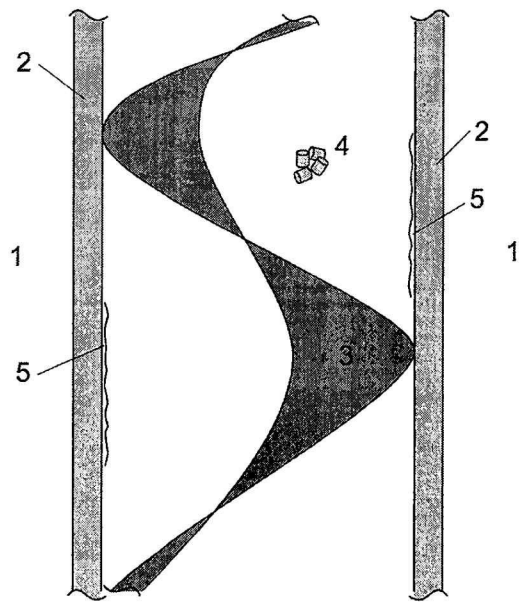


Fig. 3

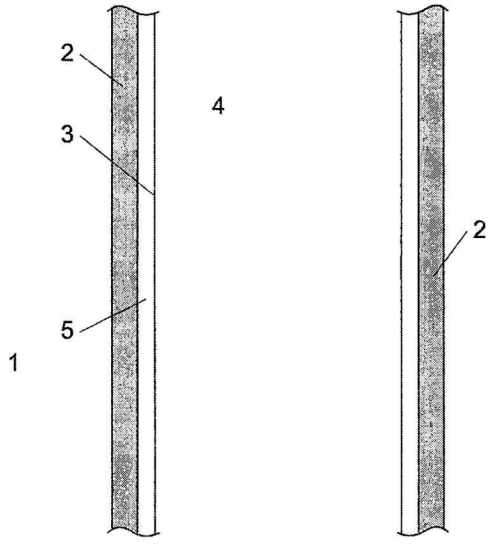


Fig. 4a

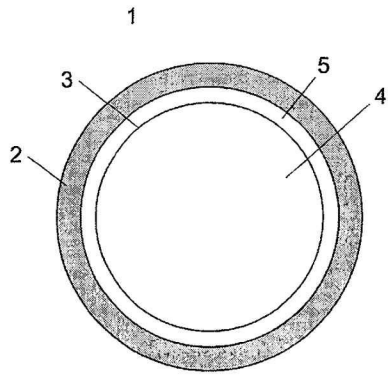


Fig. 4b

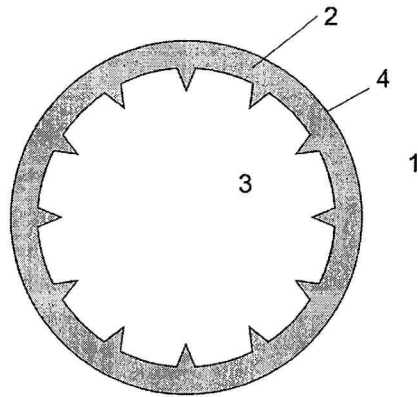


Fig. 5

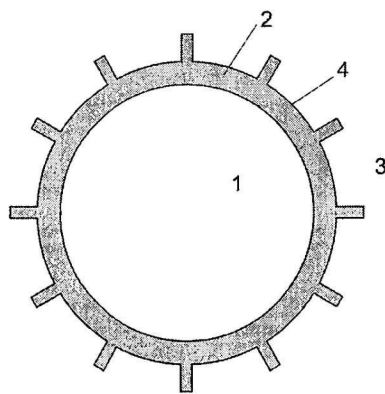


Fig. 6

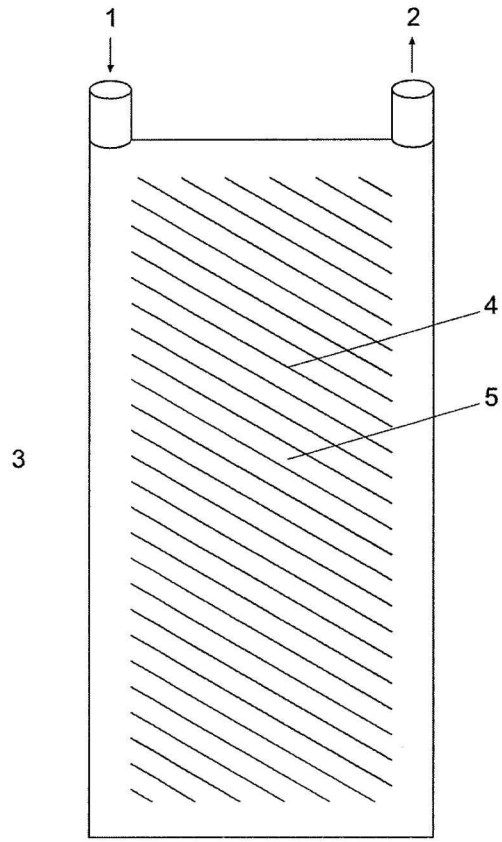


Fig. 7

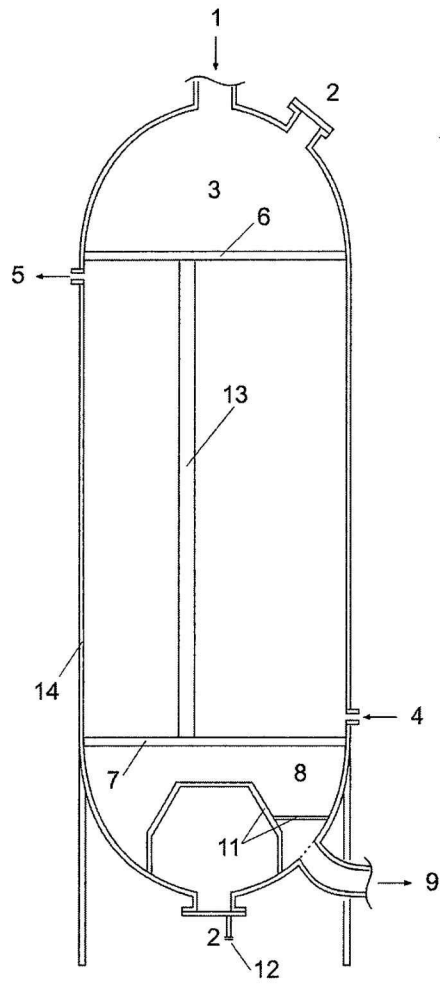


Fig. 8

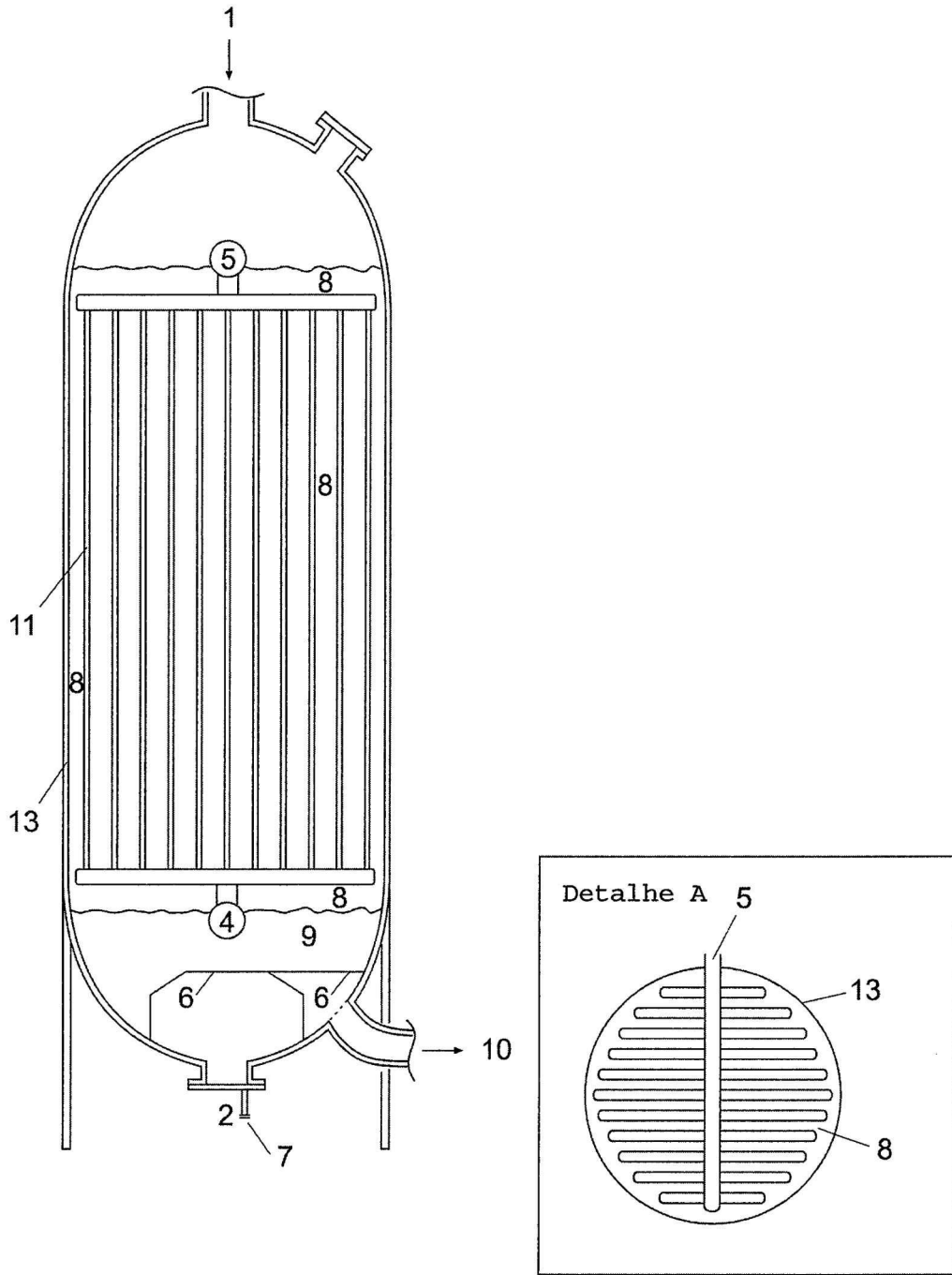


Fig.9

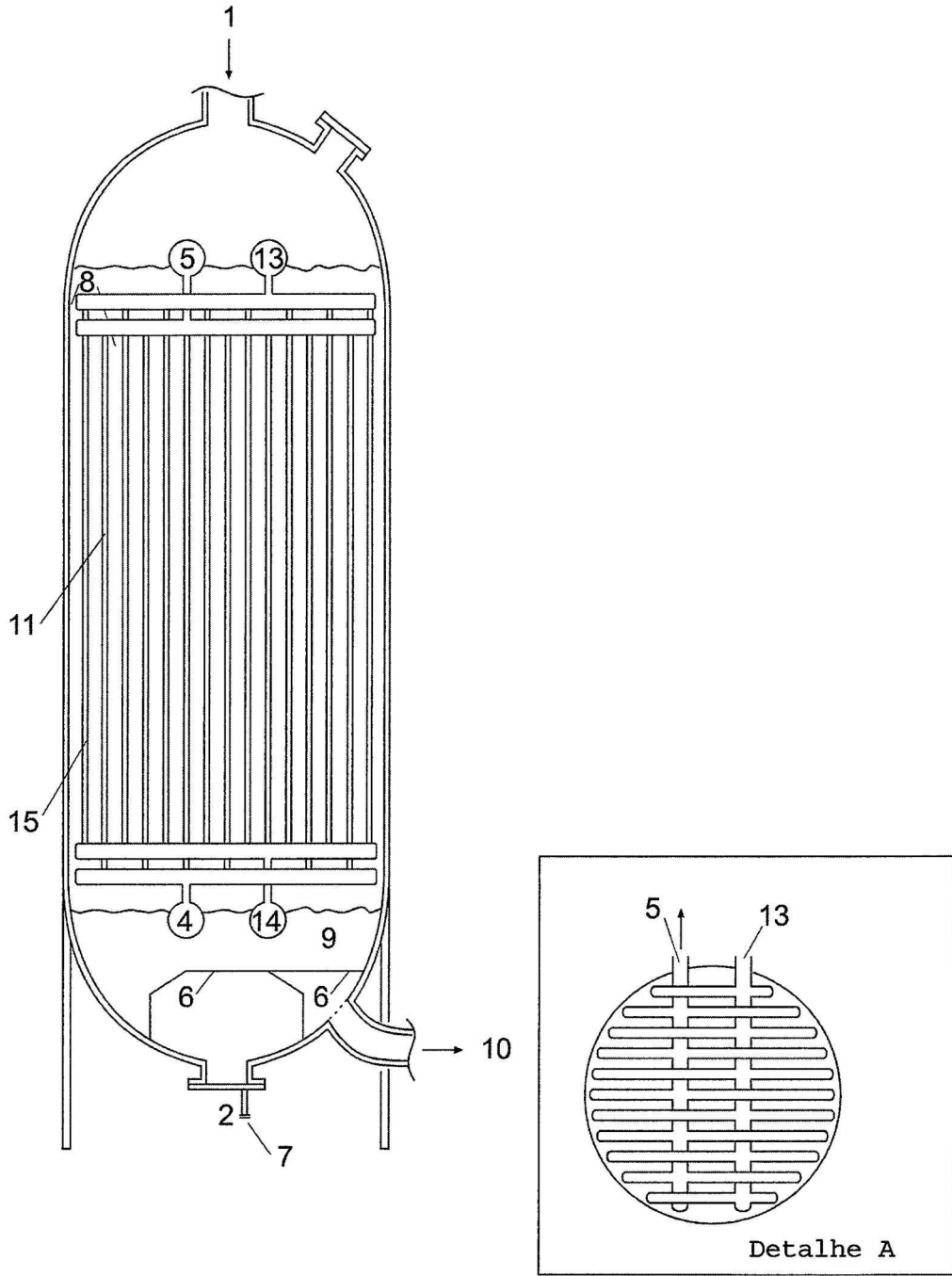


Fig.10

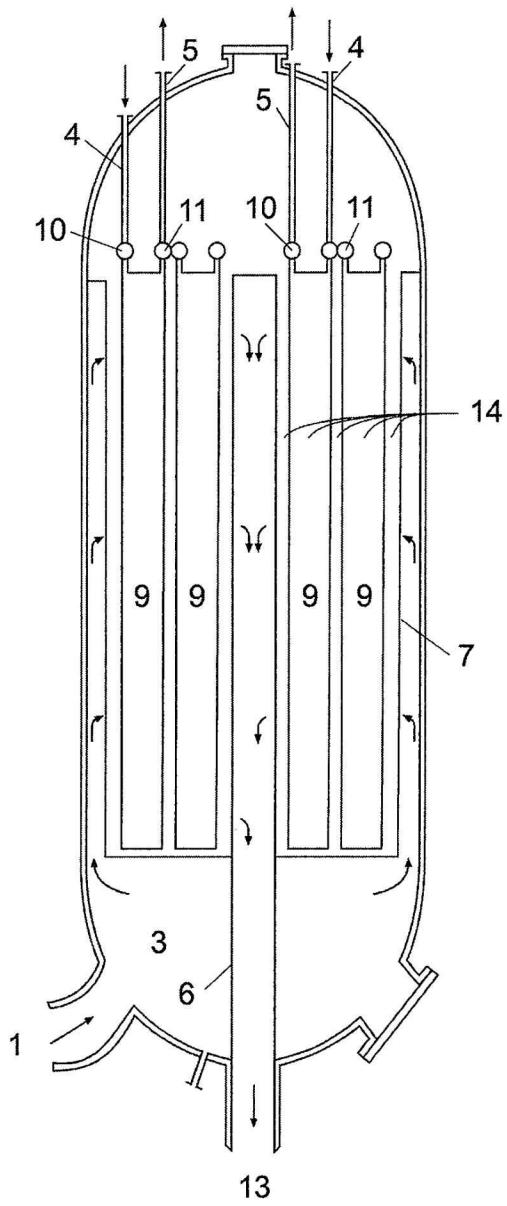


Fig.11

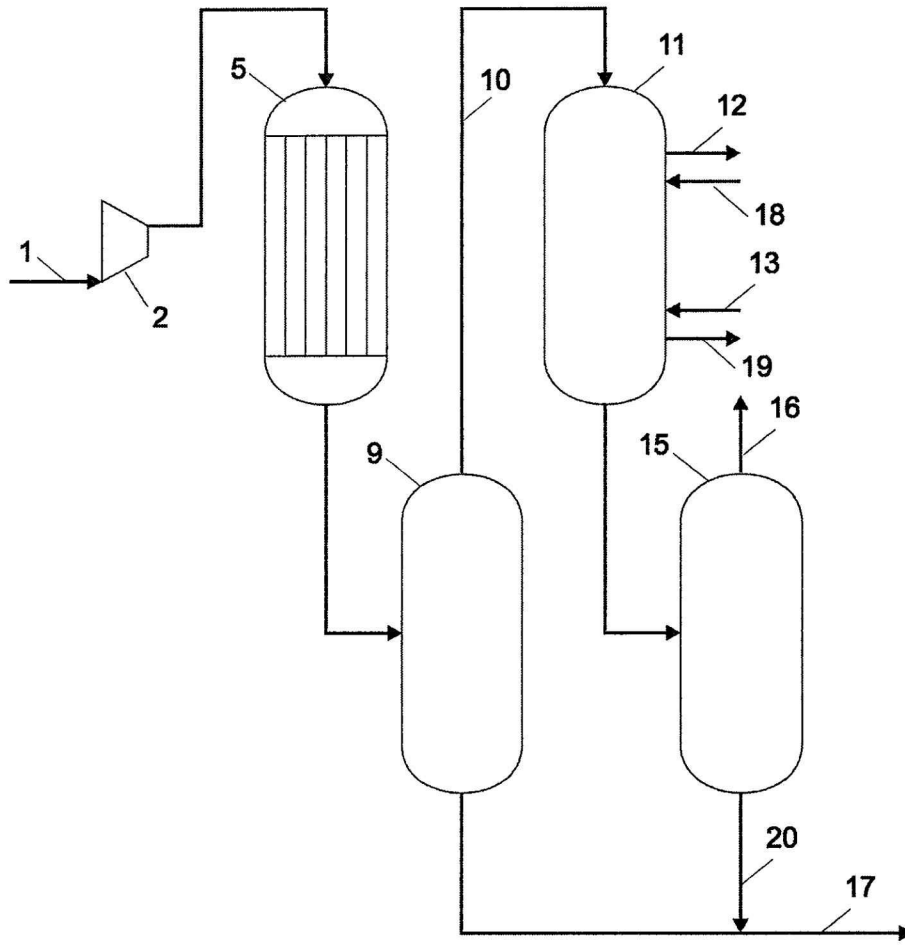


Fig.12