

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 993 736**

51 Int. Cl.:

B01J 19/00 (2006.01)

B01J 19/24 (2006.01)

F28D 21/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **15.07.2016 PCT/EP2016/066869**

87 Fecha y número de publicación internacional: **26.01.2017 WO17013003**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **15.07.2016 E 16745425 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **28.08.2024 EP 3325142**

54 Título: **Reactor de microestructura para llevar a cabo reacciones exotérmicas, heterogéneamente catalizadas con enfriamiento por evaporación eficiente**

30 Prioridad:
17.07.2015 DE 102015111614

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
08.01.2025

73 Titular/es:
**KARLSRUHER INSTITUT FÜR TECHNOLOGIE
(100.00%)
Kaiserstraße 12
76131 Karlsruhe, DE**

72 Inventor/es:
**PFEIFER, PETER;
PIERMARTINI, PAOLO y
WENKA, ACHIM**

74 Agente/Representante:
LINAGE GONZÁLEZ, Rafael

ES 2 993 736 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Reactor de microestructura para llevar a cabo reacciones exotérmicas, heterogéneamente catalizadas con enfriamiento por evaporación eficiente

5

La presente invención se refiere a un reactor de microestructura para llevar a cabo reacciones catalíticas exotérmicas.

10

Los reactores de microestructura ya se han realizado en distintas realizaciones y ya se utilizan comercialmente en ingeniería de microprocesos para determinadas aplicaciones. El diseño se realiza teniendo en cuenta las condiciones límite microtécnicas. Un reactor de microestructura comprende al menos, pero no exclusivamente, una zona de reacción con al menos una entrada y al menos una salida. En las zonas de reacción tienen lugar reacciones controladas, utilizándose un catalizador en al menos una zona de reacción. También es posible una realización sin catalizador. En principio, las zonas de reacción pueden diseñarse como cavidades de mezcla o de paso con fusión de fluidos y/o ramificaciones.

15

20

Habitualmente se distingue entre los procedimientos simples de corriente cruzada y los de contracorriente o corriente continua. En muchos casos existe una proporción de corriente cruzada. El uso de refrigerantes que no experimentan un cambio de fase da lugar a una capacidad desigual de enfriamiento de los distintos canales de reacción dentro de una placa del sistema global. El número de canales de reacción cubiertos es diferente para cada canal de refrigeración. La subida de la temperatura provoca una temperatura más elevada en el canal de refrigeración subyacente. Debido al aumento exponencial de la velocidad de reacción de la reacción química con la temperatura en el canal de reacción respectivo, esto conduce a una discrepancia adicional entre la capacidad de enfriamiento del refrigerante y el poder de la reacción para generar calor. Además, la viscosidad de los fluidos cambia, lo que a su vez conduce a una distribución desigual de los medios en los canales individuales y en la placa de refrigeración, así como en la placa de reacción, lo que también es indeseable. En este contexto, la distribución desigual del medio de reacción supone un reto, ya que esto significa automáticamente un tiempo de permanencia diferente.

25

30

En el caso del enfriamiento por evaporación, la situación es aún más complicada. Al igual que con el uso de refrigerantes monofásicos, el calor que debe disiparse cambia a lo largo del canal de reacción. En el caso de una disposición de corriente cruzada que se presenta al menos parcialmente, esto significa un grado de evaporación diferente. Esto no es deseable en términos de utilización del vapor generado para otros subsistemas en un proceso global para aumentar la eficiencia de toda la cadena de proceso. Esta distribución uniforme adicionalmente tiene un efecto negativo en la eficiencia total de vapor del refrigerante que puede alcanzarse. El vapor se genera inicialmente en las zonas donde la reacción es más rápida. El aumento de la velocidad del refrigerante que se produce allí conduce a una disminución del caudal del canal de refrigeración específico debido a la comunicación con respecto a la presión en el sistema global y por lo tanto intensifica el efecto del grado de evaporación diferente del refrigerante entre los canales de una placa. También dificulta el control de la temperatura de la reacción. Los canales de reacción cubiertos con vapor puro ya no pueden enfriarse lo suficiente, ya que el flujo másico y la capacidad calorífica específica del vapor son significativamente menores.

35

40

45

Además, el área y el volumen generalmente necesarios para la reacción catalítica (> 90 % de todos los casos) son significativamente mayores que la superficie del canal necesaria para eliminar el calor de reacción. Esto significa que el plano con canales de refrigeración suele estar muy sobredimensionado. En otras palabras, el coeficiente de transmisión térmica posible es superior al necesario, según el punto de vista. Además, la corriente térmica calculable por cada par de placas formado por la reacción y el enfriamiento es superior a la entalpía de reacción que debe transferirse. Este hecho puede intensificar adicionalmente el efecto de la evaporación localmente desigual transversal a la fila de canales de reacción. Esto se debe a que la evaporación del refrigerante puede producirse antes y completarse prematuramente. En casos extremos, el proceso de evaporación puede tener lugar antes de los canales de enfriamiento propiamente dichos y la distribución del refrigerante en la dirección longitudinal de los canales de reacción puede verse obstaculizada. Como los canales de reacción suelen estar alineados verticalmente, esto significa implícitamente que la distribución a los canales de refrigeración también es vertical y está influida por la gravedad. En última instancia, esto puede impedir el acceso a determinadas zonas debido a la formación de burbujas delante de los canales de refrigeración.

50

55

60

En el estado de la técnica existen varios enfoques de solución para resolver los problemas descritos. Por ejemplo, el documento WO 002004017008 describe el flujo de corriente durante los cambios de fase en microcanales. El documento WO 002004037418 describe el diseño de corriente cruzada con relleno de catalizador, en donde el catalizador se gradúa para controlar la producción de calor. Por el documento WO 002005044442 se conoce la posibilidad de distribución en estructuras de canal influyendo en la presión. El proceso de síntesis Fischer-Tropsch con cocatalizadores en microrreactores (> 25 % de carga de cobalto) se describe en el documento WO 002005075606. El documento también se refiere a la posibilidad de utilizar distintos números de canales a lo largo de la zona de reacción para enfriar la reacción. La posibilidad de escalonamiento de la temperatura con diferentes refrigerantes se conoce a su vez por el documento WO 002005082519. El contenido del documento WO 002005065387 es la posibilidad fundamental de utilizar una zona de reacción para la evaporación. Las medidas

65

necesarias para evitar una deformación excesiva en el diseño en forma de ranura de los microcanales mediante el refuerzo de las paredes laterales se describen en el documento WO 002011075746. Por el documento WO 002012054455 y WO 2011134630 se representa la distribución del gas de reacción en el refrigerante con una disposición de corriente cruzada parcial, la dosificación parcial de reactivos y el intercambio de calor en general.

5 Por último, el documento US 6994829 describe el uso de pequeños canales (tortuosos) para la evaporación combinada con el recalentamiento posterior en canales rectos más grandes. El acoplamiento de dos reacciones se conoce por los documentos US 7014835 y DE 10044526. Por el documento DE 102005022958 se deduce la utilización de la estructura de columna para reacciones multifásicas con alimentación de reactivos. Una representación de la realización secuencial de las reacciones catalíticas con enfriamiento intermedio está disponible en el documento DE 10201210344.

10 Ninguno de estos documentos describe la medida necesaria para la distribución eficaz de refrigerante en disposiciones a modo de corriente cruzada, que debe evaporarse completamente pero no necesariamente recalentarse. Se utiliza la dosificación parcial para las reacciones y se proponen lechos de catalizador graduados/zonas de refrigeración para un mejor enfriamiento.

15 El documento EP 1123734 A2 divulga un reactor de microestructura para la realización de una reacción entre dos reactantes que comprende una pluralidad de placas dispuestas por estratos para conducir y distribuir los reactantes y los medios caloportadores.

20 Por lo tanto, la presente invención tiene por objetivo solucionar los problemas descritos. En particular, persiste el reto de lograr una temperatura uniforme en todo el reactor mediante estructuras de distribución paralelas.

25 Este objetivo se resuelve mediante un reactor de microestructura para llevar a cabo una reacción exotérmica entre dos o más reactantes que se conducen en forma de fluidos sobre uno o más catalizador(es), de acuerdo con las reivindicaciones adjuntas 1 a 14.

30 De acuerdo con la invención, se trata por tanto de al menos una secuencia de apilamiento. En consecuencia, el reactor de microestructura puede presentar cualquier número de secuencias de apilamiento.

A este respecto las capas individuales pueden diseñarse en forma de placa o película.

Los espesores de las capas individuales pueden estar preferiblemente en los siguientes intervalos:

- 35 capa a) de 0,5 mm a 10 mm, preferentemente de 1 mm a 3 mm
 capa b) de 0,1 mm a 5 mm, preferentemente de 0,3 mm a 0,6 mm
 capa c) de 1 mm a 10 mm, preferentemente de 1 mm a 3 mm

40 De acuerdo con la invención, una o más capas pueden presentar estructuras en sus superficies. Las estructuras dispuestas en la capa a) se utilizan para el alojamiento de los catalizadores. Por lo tanto, estas estructuras pueden ser canales de reacción o las denominadas ranuras de reacción, que están llenas de partículas del material catalizador o recubiertas de catalizador. La altura de los canales de reacción puede estar comprendida entre 0,4 mm y 8 mm, preferentemente entre 0,8 mm y 1,5 mm.

45 De acuerdo con la invención, se utilizan preferentemente como catalizadores el cobalto, el hierro, el níquel, el rodio o el rutenio. También pueden utilizarse compuestos que contengan estos elementos. También son posibles combinaciones de uno o varios de los elementos mencionados. Los catalizadores mencionados también pueden utilizarse con otros catalizadores adecuados no mencionados que sean conocidos por el experto en la materia.

50 De acuerdo con la invención, los catalizadores se utilizan para llevar a cabo reacciones. En este sentido, de acuerdo con la invención, se trata de reacciones exotérmicas. Preferentemente, los fluidos que contienen o están compuestos por los reactantes se conducen a través de las superficies que contienen el catalizador. Puede tratarse en este sentido de fluidos gaseosos o líquidos que contienen o están compuestos por los reactantes en cuestión. Esto crea una zona de reacción por encima de los catalizadores en la que produce la conversión de los fluidos.

55 Los fluidos utilizados de acuerdo con la invención pueden ser, por ejemplo, gases de síntesis, hidrógeno/oxígeno e hidrocarburos como metanos, alquenos, etc. Se pueden combinar dos o más de los fluidos mencionados según sea necesario.

60 Un ejemplo de aplicación es la reacción Fischer-Tropsch. En esta, se utiliza una mezcla de monóxido de carbono y gas hidrógeno para formar a partir de gas de síntesis una pluralidad de líquidos compuestos principalmente por alcanos de longitud de cadena diferente que se convierten en combustibles sintéticos que contienen gasóleo o queroseno mediante etapas de procesamiento adecuadas. También pueden formarse, dado el caso, olefinas e isómeros durante la conversión. Los alcanos pueden estar presentes en forma líquida o gaseosa. La reacción en cuestión es altamente exotérmica y puede llevarse a cabo en el reactor de microestructura presente.

65 La secuencia de apilamiento de acuerdo con la invención contiene como capa b) zonas de refrigeración. Esto

- significa que dos o más zonas de refrigeración están dispuestas en esta capa. El calor generado en la superficie de reacción es absorbido por estas zonas de refrigeración. Las zonas individuales tienen las mismas propiedades de enfriamiento o presentan la misma capacidad de enfriamiento entre sí. Esto garantiza un enfriamiento uniforme de toda la zona de reacción. De acuerdo con la invención, cada zona a lo largo de un canal de suministro específico y/o la estructura de distribución se suministra con casi la misma cantidad de refrigerante a casi la misma temperatura.
- Las zonas de refrigeración pueden tener distintas estructuras. Es esencial que los canales para el refrigerante calentado o transferido a la forma de vapor sean curvos, es decir, que tengan al menos una curvatura. Por ello se logra que la fuerza del peso influya poco en el flujo y evita que se expulsen gotas de líquido. En las zonas de refrigeración, el refrigerante discurre en forma de anillo y/o de onda (capa (2)) y se descarga de nuevo a través de la estructura de distribución (capa (3)).
- El refrigerante utilizado de acuerdo con la invención es preferentemente líquido. En el caso más sencillo, es el agua. También pueden utilizarse otros refrigerantes. Algunos ejemplos son amoníaco, butano, glicol, los clorofluorocarbonos y propano. También pueden utilizarse todos los demás refrigerantes conocidos por el experto en la materia. También pueden utilizarse dos o más de los refrigerantes mencionados en combinaciones de compuestos.
- De acuerdo con la invención, se proporciona una estructura de distribución para el suministro de refrigerante. A través de esta estructura tiene lugar la alimentación separada del refrigerante a cada una de las zonas. La distribución uniforme del refrigerante a las respectivas zonas se consigue gracias a que la pérdida de presión a través de cada zona de enfriamiento es esencialmente mayor que la pérdida de presión en los canales de la estructura de distribución.
- De acuerdo con la invención, las zonas de refrigeración individuales están provistos de líneas para la entrada y salida del refrigerante. Cada zona de refrigeración individual tiene una entrada y una salida para el refrigerante.
- De acuerdo con la invención, las líneas de suministro para el refrigerante están diseñados para descender en diámetro hidráulico en la dirección de flujo del refrigerante. Por el contrario, los canales de descarga están colocados de manera ascendente en diámetro hidráulico en la dirección del flujo del refrigerante. Preferentemente, los canales de descarga son de 2 a 20 veces mayores que los canales de suministro. Para aplicaciones sin presión, también se puede considerar un diámetro hasta 100 veces mayor. El diámetro hidráulico de los canales de suministro está comprendido preferentemente entre 500 μm y 5 mm, particularmente preferente entre 700 μm y 2 mm. Básicamente, el diámetro hidráulico depende de la longitud total y del número de distribuciones de refrigerante. El diámetro hidráulico aumenta con el número de distribuciones.
- El suministro y la descarga del refrigerante se encuentran, por tanto, dentro de una capa, es decir, en un plano idéntico. El enfriamiento, dado el caso, la evaporación del refrigerante tienen lugar en otra capa (plano). Como resultado, las corrientes térmicas entre la capa de reacción (capa 1) y las zonas de refrigeración en una capa separada (2) están desacopladas de la temperatura de entrada del refrigerante.
- Al llevar a cabo las reacciones exotérmicas de acuerdo con la invención, el enfriamiento se consigue mediante las zonas de refrigeración. El suministro separado del refrigerante a las zonas de refrigeración individuales a lo largo del recorrido de reacción produce un enfriamiento uniforme distribuido por toda la longitud de la reacción. El refrigerante calentado se descarga de nuevo individualmente desde cada zona de refrigeración. En el marco de la invención puede producirse preferentemente una evaporación del refrigerante, que se descarga de nuevo a través de las líneas de descarga. Es decir, de acuerdo con la invención se consigue una distribución uniforme del refrigerante fresco y una descarga de vapor calentado mediante la reacción exotérmica a lo largo de todo el recorrido de la reacción. En este sentido, las líneas para la descarga del vapor de las zonas de refrigeración están dispuestas a la máxima distancia de las estructuras de distribución que guían el refrigerante, es decir, entre las líneas de alimentación y de evacuación del refrigerante, es decir, entre las líneas de alimentación que conducen el refrigerante más frío a las zonas de refrigeración y las líneas de descarga que eliminan el refrigerante calentado, dado el caso vapor, de la secuencia de apilamiento / reactor. Así se evita la conducción de calor entre estas secciones.
- Al desacoplar las corrientes térmicas entre la capa de reacción (capa 1) y las zonas de refrigeración de la capa 2 de la temperatura de entrada del refrigerante, se garantiza la uniformidad de la temperatura en la zona de reacción a pesar de un refrigerante que entra a una temperatura significativamente inferior a la temperatura de ebullición en una superficie de las distintas capas de hasta un tamaño de varios metros cuadrados, dado el caso. El uso de una combinación de dos capas, una para el enfriamiento mediante zonas de refrigeración y otra para la estructura de distribución del refrigerante, evita el recalentamiento del reactor y garantiza una distribución uniforme de la temperatura, esencialmente una isoterma.
- La estructura de distribución presenta una disposición paralela (disposición en paralelo) de varias, preferentemente disposición simétrica de las líneas para suministrar y descargar el refrigerante. Esto provoca un flujo de corriente

en una alternancia periódica entre contracorriente y corriente continua entre las líneas de alimentación y de evacuación- pero en corriente transversal al flujo de corriente de los reactantes - sin tener en cuenta el flujo de corriente en la capa de las zonas de refrigeración. También por ello se logra una distancia máxima entre las líneas de alimentación y evacuación del refrigerante como se ha descrito anteriormente.

5

I. Lista de referencias:

1. Capa a)
2. Capa b)
3. Capa c)
4. Agua
5. Vapor
6. Zona de refrigeración
7. Suministro de refrigerantes
8. Capa no estructurada
9. Descarga de vapor
10. Línea de alimentación a distintas zonas de refrigeración
11. Guía longitudinal del medio de reacción
12. Dirección transversal del refrigerante
13. Medio de reacción
14. Entrada separada de refrigerante

II. Visión general a través de las figuras

10

La **figura 1** muestra en detalle la disposición de las capas.

La **figura 2** muestra las zonas de refrigeración con las líneas de alimentación y descarga.

La **figura 3** muestra el suministro y descarga del refrigerante en representación espacial.

La **Figura 4** la guía del medio de reacción y del refrigerante.

15

Las figuras muestran las capas individuales, incluida la capa no estructurada 8, es decir, la capa a) designada con el número 1, la capa b) marcada con el número 2 y la capa c) marcada con el número 3. Debajo de la capa 1 están dispuestas la capa 2 y la estructura de distribución 3 debajo. En otras palabras, la capa 2 con las zonas de refrigeración 6 está situada entre la capa 1 y la estructura de distribución 3. Por encima y por debajo de esta secuencia de apilamiento se unen otras secuencias de apilamiento que están colocadas a modo de imagen invertida de la secuencia de apilamiento descrita. En este sentido a través de la línea 7 el refrigerante se guía a través de la línea 10 hacia las zonas de refrigeración 6. Allí, el refrigerante se calienta como resultado de la reacción exotérmica que se produce bajo la influencia de los catalizadores de la capa 1. El refrigerante calentado, que se presenta por regla general en forma de vapor, por ejemplo agua 4, se descarga a través de la línea 5. El vapor generado regularmente se descarga finalmente a través de la línea 9. Esto evita la formación de un gradiente de temperatura, que suele ser la consecuencia en la reacción exotérmica en la que el refrigerante se guía a lo largo del recorrido de reacción. En estos diseños según el estado de la técnica, el refrigerante se calienta gradualmente y, en casos extremos, puede igualarse con la temperatura de reacción.

20

25

30

La alimentación del refrigerante, por ejemplo agua 4, puede tener lugar en la línea de suministro 7 por separado a través de la entrada 14. Desde allí, a través de la línea 10 tiene lugar la alimentación del refrigerante a las distintas zonas de refrigeración 6. En este sentido, el refrigerante se guía en la línea 7 en una dirección transversal 12 a la dirección del flujo volumétrico del reactante 13. Esto significa que el reactante 13 se guía en dirección longitudinal 11 hacia el refrigerante, por ejemplo, agua 4.

REIVINDICACIONES

- 5 1. Reactor de microestructura para llevar a cabo una reacción exotérmica entre dos o más reactantes que se conducen en forma de fluidos a través de uno o más catalizadores, que comprende al menos una secuencia de apilamiento de
- a) al menos una capa (1) que presenta uno o más catalizadores para llevar a cabo al menos una reacción exotérmica,
 - 10 b) al menos una capa (2) dividida en dos o más zonas de refrigeración (6), en donde los canales para el refrigerante calentado o transferido en forma de vapor son curvos y en donde hay una entrada y una salida para el refrigerante en cada zona de refrigeración individual,
 - c) al menos una capa (3) que presenta estructuras de distribución para la alimentación separada del refrigerante a las zonas individuales,
- 15 - con líneas para distribuir el refrigerante,
 - con conexiones para el suministro de refrigerante a las líneas de la estructura de distribución y para la conexión con las zonas de refrigeración,
 - conexiones para descargar el refrigerante calentado desde las zonas de refrigeración y
 - 20 - líneas y conexiones para descargar el refrigerante calentado de la secuencia de apilamiento.
2. Reactor de microestructura según la reivindicación 1, caracterizado por que presenta varias secuencias de apilamiento.
- 25 3. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que las capas individuales tienen forma de placa o de película.
4. Reactor de microestructura según la reivindicación 3, caracterizado porque las capas individuales presentan los siguientes espesores:
- 30 capa a) de 0,5 mm a 10 mm,
 - capa b) de 0,1 mm a 5 mm,
 - capa c) de 1 mm a 10 mm.
5. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que una o más capas presentan estructuras en su superficie.
- 35 6. Reactor de microestructura según la reivindicación 5, caracterizado por que los catalizadores se rellenan en las estructuras.
- 40 7. Reactor de microestructura según la reivindicación 6, caracterizado por que las estructuras son canales de reacción o ranuras de reacción que están llenas de partículas.
8. Reactor de microestructura según la reivindicación 7, caracterizado por que los canales de reacción o ranuras de reacción presentan una altura de 0,4 mm a 8 mm.
- 45 9. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que las líneas del suministro que guía el refrigerante están dispuestas dentro de las estructuras de distribución a una distancia máxima de las líneas para la descarga del refrigerante de las zonas de refrigeración.
- 50 10. Reactor de microestructura según la reivindicación 9, caracterizado por que las líneas de suministro para el refrigerante son descendentes en diámetro hidráulico en la dirección de flujo del refrigerante.
11. Reactor de microestructura según la reivindicación 10, caracterizado por que las líneas de descarga para el vapor son ascendentes en diámetro hidráulico en la dirección de flujo del refrigerante.
- 55 12. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que cada zona de refrigeración presenta un suministro y una descarga individuales del refrigerante en la estructura de distribución.
13. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que los catalizadores son catalizadores de cobalto, hierro, níquel, rodio o rutenio o contienen tales elementos.
- 60 14. Reactor de microestructura según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado por que el suministro y descarga del refrigerante en la estructura de distribución están dispuestos en corriente cruzada para el flujo de los reactantes.

Fig. 1

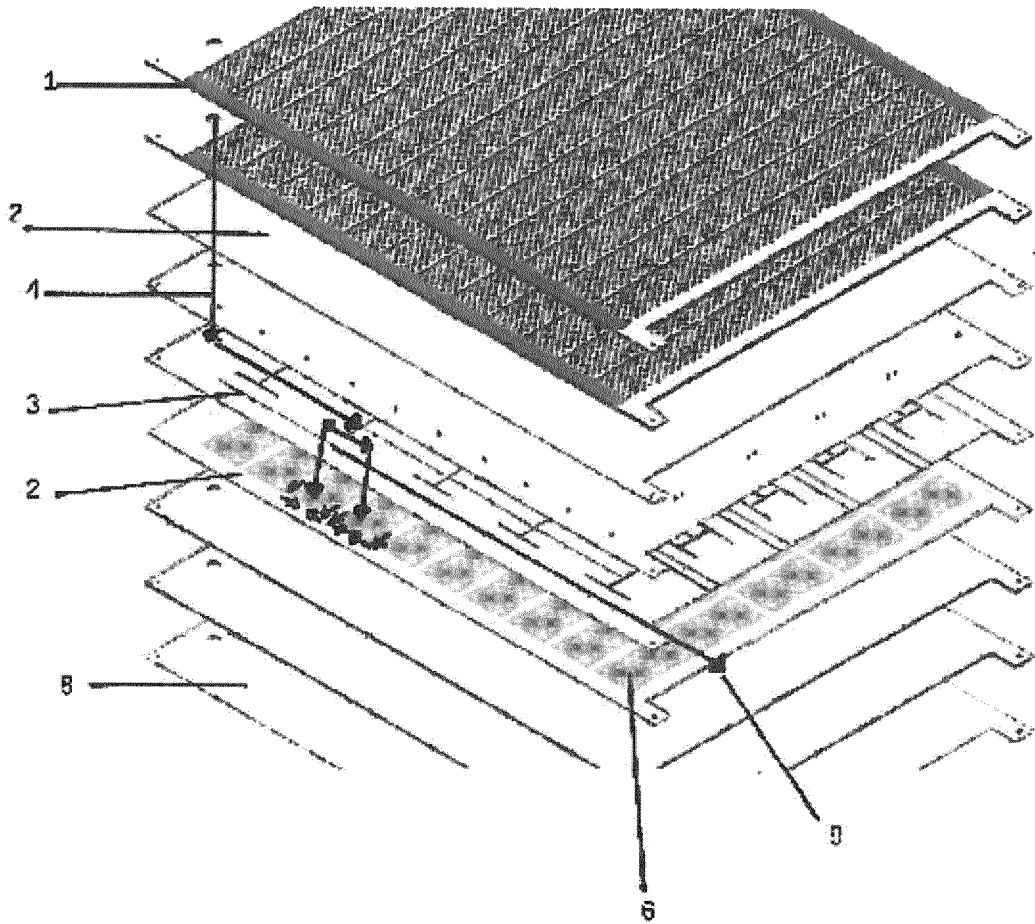


Fig. 2

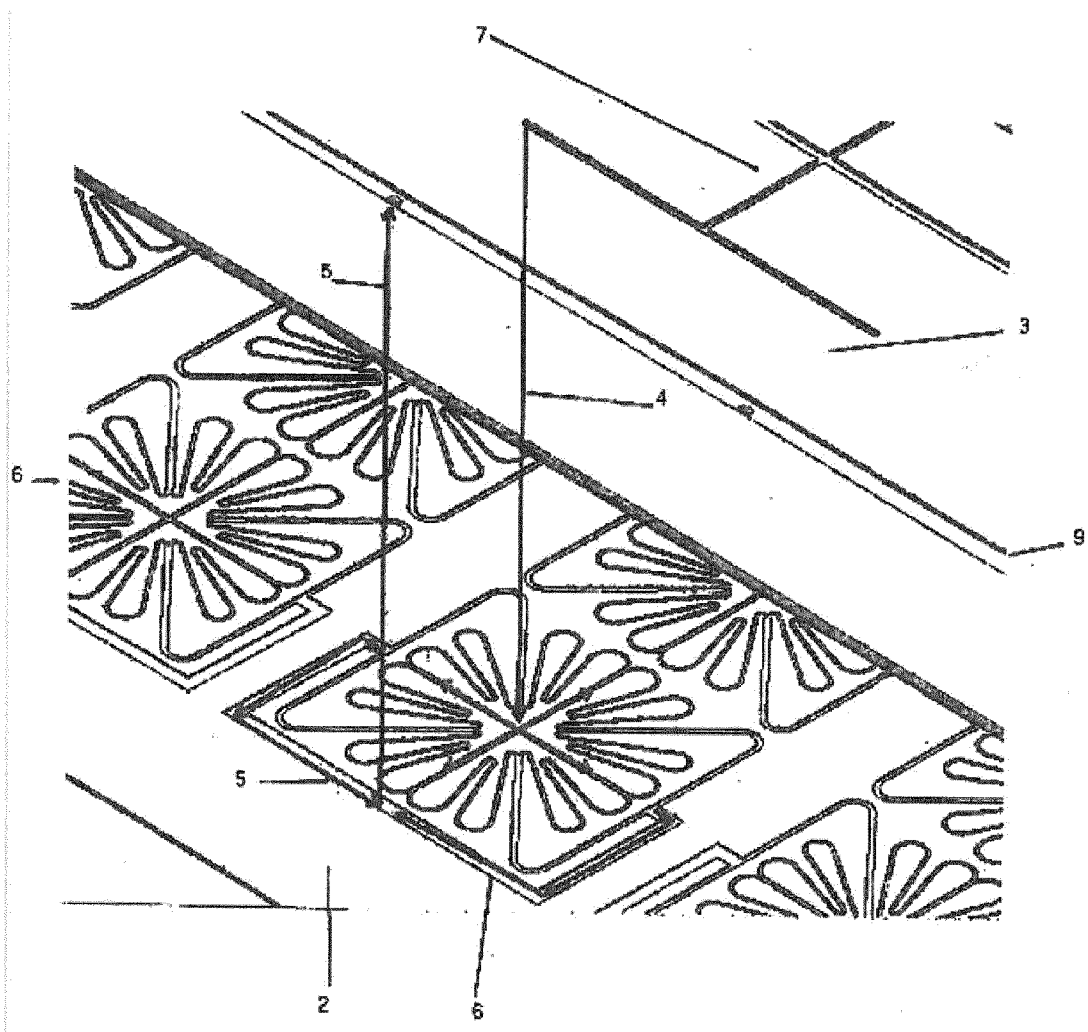


Fig. 3

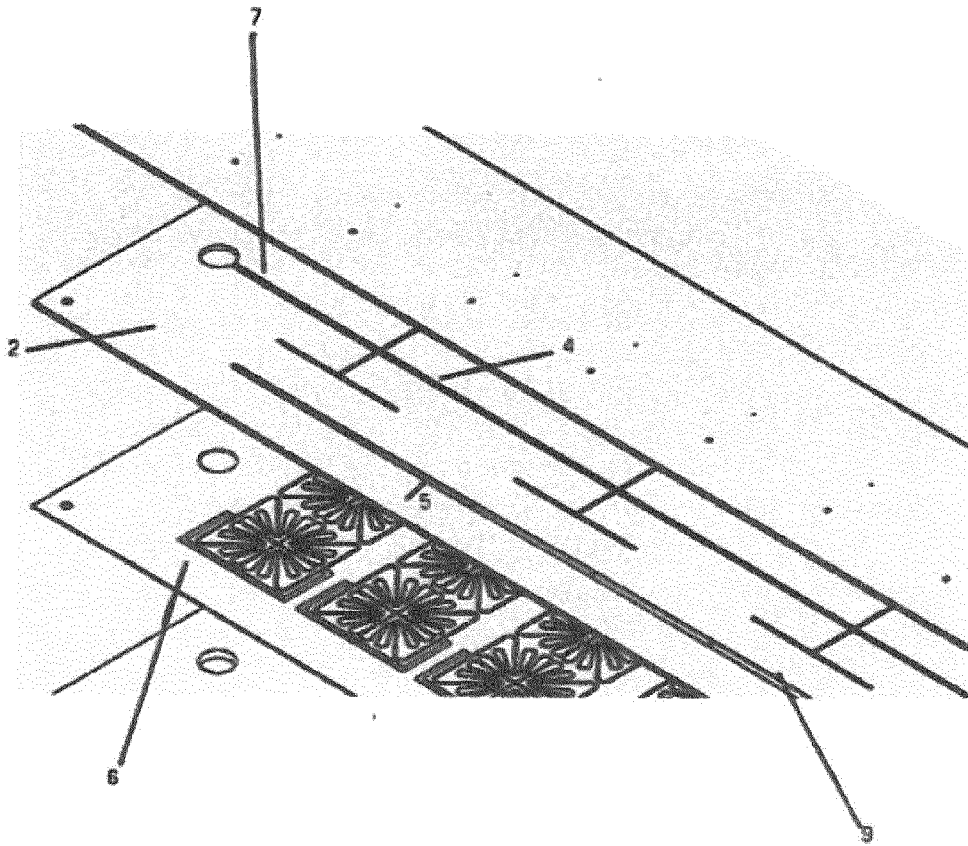


Fig. 4

