



**República Federativa do Brasil**  
Ministério da Indústria, Comércio Exterior  
e Serviços  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

**(11) PI 0809545-0 B1**

**(22) Data do Depósito: 31/03/2008**

**(45) Data de Concessão: 21/11/2017**



---

**(54) Título:** "PROCESSOS PARA CARREGAR UMA SEÇÃO LONGITUDINAL DE UM TUBO DE CATALISADOR COM UMA SEÇÃO DE LEITO DE CATALISADOR FIXO UNIFORME, E PARA OXIDAÇÃO EM FASE GASOSA PARCIAL HETEROGENEAMENTE CATALISADA DE UM COMPOSTO ORGÂNICO EM UM REATOR DE FEIXES DE TUBO,E, REATOR DE FEIXES DE TUBO"

**(51) Int.Cl.:** B01J 35/02; B01J 35/08; B01J 8/06; B01J 23/887; B01J 27/198; C07C 51/25; B01J 23/28; B01J 23/50; B01J 23/888; C07C 45/35; C07C 51/265

**(30) Prioridade Unionista:** 10/04/2007 DE 102007017080.9, 10/04/2007 US 60/910,908

**(73) Titular(es):** BASF SE

**(72) Inventor(es):** MARTIN DIETERLE; KLAUS JOACHIM MÜLLER-ENGEL

“PROCESSOS PARA CARREGAR UMA SEÇÃO LONGITUDINAL DE UM TUBO DE CATALISADOR COM UMA SEÇÃO DE LEITO DE CATALISADOR FIXO UNIFORME, E PARA OXIDAÇÃO EM FASE GASOSA PARCIAL HETEROGENEAMENTE CATALISADA DE UM COMPOSTO ORGÂNICO EM UM REATOR DE FEIXES DE TUBO, E, REATOR DE FEIXES DE TUBO”

#### DESCRIÇÃO

[1] A presente invenção diz respeito a um processo para carregar uma seção longitudinal de um tubo de catalisador com uma seção de leito de catalisador fixo uniforme cuja massa ativa é pelo menos um óxido de múltiplos elementos que compreende:

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e, adicionalmente, P e/ou Sb,

ou cuja massa ativa compreende prata elementar ou um corpo suporte oxídico, e que consiste de um único (preferivelmente intrinsecamente homogeneizado) tipo  $S^i$  ou de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade de tipos  $S^i$  mutuamente distinguíveis de corpos catalisadores geométricos conformados ou de corpos catalisadores geométricos conformados e corpos inertes geométricos conformados, em que a média das dimensões mais longas  $L_S^i$  dos corpos de geométricos conformados de um tipo  $S^i$  tem um valor  $D_S^i$ .

[2] É do conhecimento comum realizar oxidações de fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada através do leito de catalisador fixo disposto nos tubos usualmente verticais (os assim chamados tubos catalisadores) dos reatores de feixes de tubo (reatores que têm um feixe de tubos catalisadores presentes em um vaso de reação).

[3] Neste documento, uma oxidação completa de um composto orgânico com oxigênio molecular é entendida significar que o composto

orgânico seja convertido sob a ação reativa do oxigênio molecular, de tal modo que todo o carbono presente no composto orgânico seja convertido em óxidos de carbono, e todo o hidrogênio presente no composto orgânico, em óxidos de hidrogênio. Todas as diferentes reações exotérmicas de um composto orgânico sob a ação reativa do oxigênio molecular, são aqui resumidas como oxidações parciais de um composto orgânico.

[4] Em particular, neste documento, as oxidações parciais serão entendidas como significando aquelas reações exotérmicas de compostos orgânicos sob a ação reativa do oxigênio molecular em que os compostos orgânicos a serem parcialmente oxidados, após a reação ter terminado, compreendem pelo menos um átomo de oxigênio a mais na forma quimicamente ligada do que antes da oxidação parcial ter sido realizada.

[5] Os reatores de feixes de tubo requeridos para as oxidações de fase gasosa parciais heterogeneamente catalisadas, acima mencionadas, são da mesma forma conhecidos (conforme, por exemplo, as DE-A 44 31 949, EP-A 700 714).

[6] Nestas reações, a mistura gasosa da reação é conduzida através do leito de catalisador fixo disposto nos tubos catalisadores do reator de feixes de tubo, e os reagentes são convertidos através da superfície catalisadora durante o tempo de permanência dos reagentes.

[7] A temperatura de reação nos tubos catalisadores é controlada, *inter alia*, pela condução de um portador de calor fluido (um meio de troca de calor) ao redor dos tubos catalisadores do feixe de tubos que são acomodados em um vaso, de modo a remover energia do sistema de reação. O portador de calor e a mistura gasosa de reação podem ser conduzidos ou em co-corrente ou em contra-corrente através do reator de feixes de tubo.

[8] Além da possibilidade de conduzir o meio de troca de calor de uma maneira simples, essencialmente de forma imediata longitudinalmente aos tubos catalisadores, esta condução longitudinal podendo também ser

realizada simplesmente através do vaso de reação inteiro, e um fluxo transversal podendo ser sobreposto a este fluxo longitudinal dentro do vaso de reação em virtude de um arranjo, sucessivo ao longo dos tubos catalisadores, de discos de deflexão que deixem passagem livre através das seções, de modo a resultar em um perfil de fluxo serpenteante do meio de troca de calor na seção longitudinal através do feixe de tubos (conforme, por exemplo, as DE-A 44 31 949, EP-A 700 714, DE-C 28 30 765, DE-A 22 01 528, DE-A 22 31 557 e DE-A 23 10 517).

[9] Se necessário, portadores de calor, espacial e essencialmente separador, podem ser conduzidos ao redor dos tubos catalisadores ao longo das diferentes seções do tubo.

[10] A seção do tubo através do qual o portador de calor particular se estende, tipicamente representa uma zona de reação única. Uma variante de tais reatores de feixes de tubo de múltiplas zonas usados com preferência, é o reator de feixes de tubo de duas zonas, como descrito, por exemplo, pelos documentos DE-C 28 30 765, DE-C 25 13 405, US 3.147.084, DE-A 22 01 528, EP-A 383224 e DE-A 29 03 582.

[11] Meios de troca de calor adequados são, por exemplo, as fusões de sais tais como o nitrato de potássio, o nitrito de potássio, o nitrito de sódio e/ou o nitrato de sódio, metais de baixo ponto de fusão tais como o sódio, o mercúrio e ligas de diferentes metais, líquidos iônicos (nos quais pelo menos um dos íons opostamente carregados compreende pelo menos um átomo de carbono), mas também líquidos convencionais, por exemplo água ou solventes orgânicos de elevado ponto de ebulição (por exemplo, misturas de Diphyl® e ftalato de dimetila).

[12] Tipicamente, os tubos catalisadores são fabricados de aço ferrítico ou de aço inoxidável, e têm uma espessura de parede de poucos milímetros, por exemplo de 1 a 3 mm. Seu diâmetro interno é usualmente de uns poucos centímetros, por exemplo de 10 a 50 mm, frequentemente de 20 a

30 mm. O comprimento dos tubos se estende normalmente a uns poucos metros (um comprimento típico de tubo de catalisador situa-se na faixa de 1 a 8 m, frequentemente de 2 a 6 m, em muitos casos de 2 a 4 m). Apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, o número de tubos catalisadores (tubos em funcionamento) acomodados no vaso se estende a pelo menos 1000, frequentemente a pelo menos 3000 ou 5000, e em muitos casos a pelo menos 10000. Frequentemente, o número de tubos catalisadores acomodados no vaso de reação é de 15000 a 30000 ou de 40000 a 50000. Os reatores de feixes de tubo tendo vários tubos catalisadores acima de 50000 são usualmente exceção. Dentro do vaso, os tubos catalisadores são normalmente dispostos em distribuição essencialmente homogênea, a distribuição apropriadamente sendo selecionada de tal modo que a distância dos eixos internos centrais dos tubos catalisadores mutuamente adjacentes (os assim chamados afastamento dos tubos catalisadores) é de 25 a 55 mm, frequentemente de 35 a 45 mm (conforme, por exemplo, a EP-A468 290).

[13] Normalmente, em cada caso, pelo menos alguns dos tubos catalisadores (tubos de produção) de um reator de feixes de tubo, apropriadamente de uma sua totalidade de um ponto de vista de aplicação, são fabricados homogeneamente dentro do escopo dos dispositivos de fabricação. Em outras palavras, seu diâmetro interno, sua espessura de parede e seu comprimento de tubos, são idênticos dentro de tolerâncias restritas (conforme WO 03/059857).

[14] O perfil de exigências acima mencionado também se aplica com frequência ao enchimento de tais tubos catalisadores homogeneamente fabricados com corpos catalisadores conformados (conforme, por exemplo, a WO 03/057653), de modo a garantir uma operação ótima e substancialmente livre de rompimento do reator de feixes de tubo. Especialmente para uma produção e seletividade ótimas das reações realizadas no reator de feixes de tubo, é essencial que, preferivelmente, todos os tubos de trabalho da reação

sejam enchidos, isto é, carregados, de uma maneira substancialmente uniforme com o leito de catalisador fixo.

[15] Os tubos de produção são tipicamente distintos dos tubos térmicos, como descrito, por exemplo, na EP-A 873 783. Enquanto os tubos de produção são aqueles tubos catalisadores nos quais a reação química a ser realizada é desempenhada no sentido real, os tubos térmicos servem principalmente à finalidade de monitorar e de controlar a temperatura de reação nos tubos catalisadores. Com esta finalidade, os tubos térmicos normalmente compreendem, além do leito de catalisador fixo, um termo-reservatório conduzido centralmente ao longo do tubo térmico e dotado de um sensor de temperatura. Em geral, o número de tubos térmicos em um reator de feixes de tubo é muitíssimo menor do que o número de tubos de produção. Normalmente, o número de tubos térmicos é  $\leq 20$ .

[16] Exemplos de oxidações parciais heterogeneamente catalisadas dos compostos orgânicos incluem a conversão de propeno em acroleína e/ou ácido acrílico (conforme, por exemplo, a DE-A 23 51 151), a conversão do terc-butanol, do isobuteno, do isobutano, do isobutiraldeído ou do éter metílico do terc-butanol em metacroleína e/ou ácido metacrílico (conforme, por exemplo, as DE-A 25 26 238, EP-A 92 097, EP-A 58 927, DE-A 41 32 263, DE-A 41 32 684 e DE-A 40 22 212), a conversão da acroleína em ácido acrílico, a conversão da metacroleína em ácido metacrílico (conforme, por exemplo, a DE-A 25 26 238), a conversão do o-xileno ou do naftaleno em anidrido ftálico (conforme, por exemplo, a EP-A 522 871), e a conversão do butadieno em anidrido maleico (conforme, por exemplo, a DE-A 21 06 796 e a DE-A 16-24-921), a conversão do n-butano em anidrido maleico (conforme, por exemplo, as GB-A 1 464 198 e GB-A 1 291 354), a conversão de indanos em, por exemplo, antraquinona (conforme, por exemplo, a DE-A 20 25 430), a conversão de etileno em óxido de etileno ou de propileno em óxido de propileno (conforme, por exemplo, as DE-B 12 54 137, DE-A 21 59 346, EP-

A 372 972, WO 89/0710, DE-A 43 11 608), a conversão de propileno e/ou acroleína em acrilonitrila (conforme, por exemplo, a DE-A 23 51 151), a conversão de isobuteno e/ou metacroleína em metacrilonitrila (isto é, a expressão “oxidação parcial” neste documento deve também a amoxidação parcial, isto é, uma oxidação parcial na presença de amônia), a desidrogenação oxidativa de hidrocarbonetos (conforme, por exemplo, a DE-A 23 51 151), a conversão de propano em acrilonitrila ou em acroleína e/ou ácido acrílico (conforme, por exemplo, a DE-A 101 31 297, EP-A 1 09 0684, EP-A 608 838, DE-A 100 46 672, EP-A 529 853, WO 01/96270 e DE-A 100 28 582), etc.

[17] As massas ativas dos catalisadores a serem usados para o desempenho das oxidações de fase gasosa parcial heterogeneamente catalisadas exotérmicas dos compostos orgânicos são geralmente, pelo menos, um óxido de múltiplos elementos, que compreende

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e adicionalmente P e/ou Sb,

ou sistemas que compreendam prata elementar em um suporte oxídico.

[18] Estas massas ativas são moldadas em corpos conformados de uma ampla variedade de diferentes geometrias (nos assim chamados corpos catalisadores geométricos conformados), de modo a estabelecer o leito de catalisador fixo nos tubos dos reatores de feixes de tubo (para carregar os tubos catalisadores com o leito de catalisador fixo). Por exemplo, tais corpos geométricos conformados úteis incluem esferas, tabletes, extrusados, anéis, espirais, pirâmides, cilindros, prismas, cubóides, cubos etc.

[19] No caso mais simples, o corpo geométrico conformado pode consistir apenas da composição cataliticamente ativa que pode, se apropriado, ser diluída com material inerte. Tais corpos catalisadores geométricos

conformados são tipicamente referidos como catalisadores não suportados.

[20] No caso de catalisadores não suportados, a conformação pode ser efetuada, por exemplo, pela compactação da composição em pó cataliticamente ativa (por exemplo, uma massa ativa pulverulenta de óxido de múltiplos elementos) na geometria catalisadora desejada (por exemplo, por tabletagem, sinterização ou extrusão). É possível adicionar auxiliares de conformação. Alternativamente, uma composição precursora pulverulenta pode ser compactada até a geometria catalisadora desejada e o corpo geométrico conformado resultante pode ser convertido por tratamento térmico (se apropriado, em uma atmosfera contendo oxigênio molecular) no corpo de óxido de múltiplos elementos conformado cataliticamente ativo (conforme, por exemplo, a US 2005/0263926).

[21] Observar-se-á que a conformação pode também ser efetuada pelo revestimento de um corpo geométrico conformado composto de material cataliticamente inativo (de material inerte) com massa ativa (também referido, daqui por diante, como “corpo de suporte conformado” ou, em resumo, como “corpo de suporte”). Alternativamente, é também possível revestir com a composição precursora e efetuar a conversão do catalisador ativo por tratamento térmico subsequente (se apropriado em uma atmosfera contendo oxigênio molecular). O revestimento pode ser efetutado da maneira mais simples, por exemplo, pelo umedecimento da superfície de um corpo de suporte inerte por meio de um aglutinante líquido e, subsequentemente, aderindo-se a massa ativa pulverulenta ou a composição precursora pulverulenta sobre a superfície umedecida. Os catalisadores obteníveis desta maneira são referidos como catalisadores revestidos.

[22] Os corpos de suporte inertes adequados para muitas oxidações de fase gasosa parcial heterogeneamente catalisadas são óxidos de alumínio porosos ou não porosos, óxido de silício, dióxido de tório, óxido de zircônio, carboneto de silício ou silicatos tais como o silicato de magnésio ou o silicato

de alumínio (por exemplo a esteatita C220 da CeramTec), mas também metais, por exemplo o ácido inoxidável ou o alumínio (conforme, por exemplo, a US 2006/0205978).

[23] Ao invés de se revestir os corpos de suporte inertes (inerte, geralmente, significa que, quando a mistura de gases de reação seja conduzida através de um tubo de catalisador carregado apenas com corpos de suporte inertes sob as condições de reação, a conversão dos reagentes é  $\leq 5\%$  molares, usualmente  $\leq 2\%$  molares) com a massa ativa pulverulenta ou com a composição precursora pulverulenta, o corpo de suporte pode, em muitos casos, também ser impregnado com uma solução da substância cataliticamente ativa ou com uma solução de uma substância precursora, e o solvente pode, subsequentemente, ser volatilizado e, se apropriado, uma redução química e/ou um tratamento térmico (se apropriado em uma atmosfera contendo oxigênio molecular) podem seguir-se. Os corpos catalisadores geométricos catalisados que resultam desta maneira, são tipicamente referidos como catalisadores suportados ou impregnados.

[24] A dimensão mais longa L de tais corpos catalisadores geométricos conformados (como é bem geralmente o caso para os corpos geométricos conformados neste documento) é entendida significar a linha direta mais longa possível conectando dois pontos sobre a superfície do corpo catalisador conformado. É (também nos corpos inertes geométricos conformados) usualmente de 1 a 20 mm, frequentemente de 2 a 15 mm e, em muitos casos, de 3 ou 4 a 10 ou a 8 ou a 6 mm. No caso de anéis, a espessura da parede é adicional e tipicamente de 0,5 a 6 mm, frequentemente de 1 a 4 ou a 3 ou a 2 mm.

[25] O leito de catalisador fixo não consiste de um leito de um tipo único de corpos catalisadores geométricos conformados que sejam uniformes ao longo do tubo de catalisador individual em todas as oxidações de fase gasosa parciais heterogeneamente catalisadas sobre o leito de catalisador fixo

presente nos tubos dos reatores de feixes de tubo. Ao invés disso, o leito de catalisador fixo pode também consistir de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade (isto é, pelo menos dois) de tipos  $S^i$  mutuamente distintos de corpos catalisadores geométricos conformados ou de corpos catalisadores e corpos inertes geométricos conformados através do comprimento total do tubo de catalisador (isto é, uma tal mistura pode consistir de pelo menos dois tipos mutuamente distinguíveis de corpos catalisadores geométricos conformados, ou de um único tipo de corpos catalisadores geométricos conformados e de um único tipo de corpos inertes geométricos conformados, ou pelo menos dois tipos de corpos catalisadores geométricos conformados mutuamente distinguíveis e de um único tipo de corpos inertes geométricos conformados, ou de pelo menos dois tipos de corpos catalisadores geométricos conformados mutuamente distinguíveis e pelo menos dois tipos de corpos inertes geométricos conformados mutuamente distinguíveis). Possíveis aspectos distinguíveis dos tipos  $S^i$  mutuamente diferentes são o tipo de geometria, o tipo da massa ativa, o tipo do material de suporte, etc. Materiais úteis para os corpos inertes geométricos conformados incluem os mesmos materiais como já foram recomendados para os corpos de suporte geométricos conformados inertes no catalisador revestido e, essencialmente, não interferem no transcorrer da oxidação parcial de fase gasosa. Em princípio, todos os corpos de suporte conformados inertes são também úteis como corpos inertes conformados geométricos para diluir corpos catalisadores conformados geométricos em um leito de catalisador fixo. Uma tal diluição possibilita a atividade específica do volume de um leito de catalisador fixo a ser ajustada especificamente à exigência da oxidação em fase gasosa parcial particular heterogeneamente catalisada.

[26] A sentença “mistura homogeneizada” significa que medidas foram tomadas de modo a misturar-se os tipos mutuamente diferentes de corpos geométricos conformados (ou as diferentes dimensões mais longas

dentro de um tipo) homoganeamente um com o outro. De modo ideal, a mistura homogênea ao longo da seção longitudinal inteira alcança a média estatística, também com respeito ao tipo individual particular.

[27] Em muitos casos, uma carga de tubo de catalisador (um enchimento de tubo de catalisador) com um leito de catalisador fixo, não obstante, também consiste de uma pluralidade de seções longitudinais mutuamente distinguíveis [seções de leito de catalisador fixas (longitudinais), seções de leito de catalisador] que são montadas uma em cima da outra (em sucessão). Cada seção longitudinal individual pode ser configurada homoganeamente através do seu comprimento como já foi explanado quanto a um tubo de catalisador uniformemente carregado através do seu comprimento total do tubo de catalisador. Na transição de uma seção de leito intrinsecamente homogênea para a seção seguinte de leito intrinsecamente homogêneo, a configuração (composição) do leito muda abruptamente. Assim, os leitos catalisadores fixos que tenham uma estrutura heterogênea se formam ao longo de um tubo de catalisador individual. Isto também é referido como um enchimento (ou leito) estruturado dos tubos catalisadores. No início (observado na direção do fluxo do gás de reação fluindo através do tubo de catalisador) e/ou na extremidade do tubo de catalisador, o leito de catalisador fixo é frequentemente concluído por um leito exclusivo de corpos inertes geométricos conformados.

[28] Exemplos de tais enchimentos estruturados dos tubos catalisadores são descritos, *inter alia*, nos documentos US 2006/0161019, EP-A 979 813, EP-A 090 744, EP-A 456 837, EP-A 1 106 598, US 5.198.581 e US 4.203.903.

[29] Em geral, o enchimento de um tubo de catalisador com um leito de catalisador fixo estruturado, é configurado de tal modo que a atividade específica do volume do leito de catalisador fixo aumenta na direção do fluxo do leito de catalisador fixo. A atividade específica do volume de uma

seção longitudinal intrinsecamente homogênea de uma carga de leito de catalisador fixo de um tubo de catalisador, é aumentada quando, com carga contínua do tubo de catalisador como na seção longitudinal correspondente do tubo de catalisador sob condições de reação de outra forma idênticas (isto é, composição idêntica da mistura gasosa das reações, carregamento idêntico da carga de leito de catalisador fixo com mistura do gás de reação e temperatura de entrada idêntica do portador de calor e condições de fluxo idênticas do portador de calor), resulta uma conversão do reagente aumentada (com base na passagem única da mistura do gás de reação através do tubo de catalisador).

[30] A carga de um leito de catalisador fixo catalisando uma etapa de reação com gás de reação ou com um componente gasoso de reação, é entendida como significando a quantidade de gás de reação ou do componente de gás de reação em litros padrão [= NI; o volume em litros que a quantidade correspondente do gás de reação ou do componente de gás de reação, deve absorver sob condições padrão, isto é, em 25 °C e 1 bar] que é conduzida através de um litro de leito de catalisador fixo por hora. As seções de leito material inerte puro não se acham incluídas.

[31] De acordo com os preceitos da técnica anterior, as dimensões geométricas de um tipo dos corpos catalisadores geométricos conformados ou de um tipo de corpos inertes geométricos conformados que são usados para carregar uma seção longitudinal de um tubo de catalisador com um leito de catalisador fixo homogêneo para uma oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada de um composto orgânico, deve ser substancialmente uniforme dentro do tipo particular (conforme a US 2006/0205978 e a WO 2005/113123).

[32] Entretanto, as pesquisas locais têm mostrado que uma inomogeneidade definida das dimensões acima mencionadas tem um efeito vantajoso sobre a seletividade da formação do produto alvo.

[33] Consequentemente, a presente invenção fornece um processo para carregar uma seção longitudinal de um tubo de catalisador com uma seção de leito de catalisador fixo uniforme cuja massa ativa seja pelo menos um óxido de múltiplos elementos que compreenda:

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e, adicionalmente, P e/ou Sb,

ou cuja massa ativa compreenda prata elementar ou um corpo suporte oxídico, e que consiste de um único (preferivelmente intrinsecamente homogeneizado, isto é, essencialmente distribuído aleatoriamente) tipo  $S^i$  ou de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade de tipos  $S^i$  mutuamente distinguíveis de corpos catalisadores geométricos conformados ou de corpos catalisadores de geométricos conformados e corpos inertes geométricos conformados, em que a média das dimensões mais longas  $L_S^i$  dos corpos geométricos conformados de um tipo  $S^i$  tem um valor  $D_S^i$ , em que pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a condição M de que

- de 40 a 70 % do número total de corpos geométricos conformados para  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i$ ,
- pelo menos 10 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão de  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i$ ,
- pelo menos 10 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i$ ,
- menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados

pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

[34] Preferivelmente, de acordo com a invenção, menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[35] Além disso, preferivelmente, de acordo com a invenção, menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[36] Muito particularmente preferível de acordo com a invenção, menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[37] Além disso, muito particularmente preferível, de acordo com a invenção, menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[38] Vantajosamente as condições supramencionadas (disposições) são satisfeitas para a maioria, e particularmente vantajoso para cada um dos diferentes tipos  $S^i$  dentro da seção de leito de catalisador fixo.

[39] De forma particularmente vantajosa, no processo de acordo com a invenção, pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados da seção de leito de catalisador fixo, a disposição  $M^*$  de que

- de 50 a 60 % (preferivelmente 55 %) do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i$ ,
- pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão de  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i$ ,
- pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i$ ,
- menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ , e
- menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$  é satisfeita.

[40] Preferivelmente, de acordo com a invenção, dentro da estrutura acima mencionada, menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[41] Além disso, dentro da estrutura acima mencionada, vantajosamente menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[42] Mais preferível, de acordo com a invenção, dentro da estrutura acima mencionada, menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[43] Além disso, dentro da estrutura acima mencionada, preferivelmente menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[44] Vantajosamente, as condições da estrutura acima mencionada (disposições) são satisfeitas para a maior parte e, particularmente vantajoso, para cada um dos diferentes tipos  $S^i$  dentro da seção de leito de catalisador fixo.

[45] Muito particularmente vantajoso, no processo de acordo com a invenção, pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados da seção de leito de catalisador fixo, a condição M'' de que de 50 a 60 % (preferivelmente 55 %) do número total de corpos

geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão de  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para

a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

[46] Preferivelmente, de acordo com a invenção, dentro da estrutura acima mencionada, menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[47] Além disso, dentro da estrutura acima mencionada, vantajosamente menos do que 3 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[48] O mais preferível, de acordo com a invenção, dentro da estrutura acima mencionada, menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[49] Além disso, dentro da estrutura acima mencionada, preferivelmente menos do que 1 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[50] Vantajosamente, cada uma das condições da estrutura acima mencionada (disposições) é satisfeita para a maior parte e, particularmente vantajoso, para cada um dos diferentes tipos  $S^i$  dentro da seção de leito de catalisador fixo.

[51] Além disso, para todas as estruturas detalhadas neste documento, é particularmente vantajoso quanto nenhum corpo geométrico

conformado pertencente a  $S^i$  tenha uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $0,94 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[52] Além disso, para todas as estruturas detalhadas neste documento, é particularmente vantajoso quando nenhum corpo geométrico conformado pertencente a  $S^i$  tenha uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual  $1,10 \cdot D_S^i > L_S^i$ .

[53] A média  $D_S^i$  das dimensões  $L_S^i$  mais longas dos corpos geométricos conformados de um tipo  $S^i$  é definida de tal modo que 50 % de todas as dimensões mais longas  $L_S^i$  dos corpos geométricos conformados de um tipo  $S^i$  sejam menores ou iguais a  $D_S^i$  (em que a média, a menos que de outra forma explicitamente estabelecido neste documento, é sempre formada com o uso dos corpos conformados particulares presentes em uma seção longitudinal homogeneamente carregada do tubo de catalisador).

[54] Em princípio, uma seção longitudinal uniformemente carregada do tubo de catalisador no processo em conformidade com a invenção pode estender-se através do comprimento inteiro do tubo de catalisador.

[55] Observar-se-á que o leito inteiro do catalisador fixo presente no tubo de catalisador pode também consistir de uma pluralidade de seções (seções longitudinais) de leito de catalisador fixo mutuamente distinguíveis (cada uma intrínseca e homogeneamente carregada). Neste caso, é vantajoso quando o processo de acordo com a invenção seja aplicado à maioria das diferentes seções de leito de catalisador fixo, e particularmente vantajoso quando ele é aplicado a cada uma delas.

[56] Quando o leito de catalisador fixo em um tubo de catalisador também tenha seções longitudinais que consistam exclusivamente de corpos inertes geométricos conformados, é vantajoso quando o procedimento da invenção seja também aplicado àquelas seções inertes (estas também satisfazem às disposições da invenção). Entretanto, a aplicação do

procedimento da invenção a tais seções inertes é menos relevante do que no caso das seções cataliticamente ativas (em cada caso, estas compreendem corpos catalisadores geométricos conformados cataliticamente ativos).

[57] As seções inertes podem ser usadas, por exemplo, dentro de um tubo de catalisador para separar seções cataliticamente ativas espacialmente umas das outras.

[58] No caso mais simples, que é preferido de um ponto de vista de aplicação, mutuamente diferente, porém, em cada caso, intrinsecamente homogêneo, as seções (especialmente as seções cataliticamente ativas) de leito de catalisador fixo (longitudinal) de um tubo de catalisador, podem diferir (pelo menos tanto quanto elas catalisem a mesma etapa de reação) apenas em virtude de um tipo único de corpos catalisadores geométricos conformados compreendendo a massa ativa que esteja sendo diluída com uma proporção diferente de um tipo único de corpos inertes geométricos conformados não contendo qualquer massa ativa [no caso mais simples, estes podem, como já estabelecido, ser corpos de suporte inertes (conformados); mas eles podem também ser corpos inertes conformados consistindo de metal (por exemplo, aço inoxidável)] (na forma homogeneizada). Vantajosamente, todas as seções de leito de catalisador fixo (longitudinal) de um tubo de catalisador carregado com um leito de catalisador fixo para uma oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada, diferem exclusivamente da maneira acima mencionada (neste caso, a seção longitudinal de leito de catalisador fixo carregada apenas com um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados e a seção longitudinal de leito de catalisador fixo carregada apenas com um tipo de corpos inertes geométricos conformados, formam os dois casos limites de diluição possíveis). Os leitos inertes puros podem também consistir de um tipo separado de corpos inertes conformados.

[59] Em princípio, dentro do contexto das afirmações acima, o único tipo de corpos diluentes conformados inertes (corpos inertes

conformados) pode ter ou a mesma geometria (o que é preferido) ou uma geometria diferente daquele tipo de corpos catalisadores conformados cataliticamente ativos.

[60] Quando uma seção única de leito de catalisador fixo da invenção consista de uma mistura (homogeneizada) de apenas um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados e apenas um tipo de corpos inertes geométricos conformados, é vantajoso, de acordo com a invenção (especialmente no caso das mesmas geometrias dos dois tipos de corpos conformados), quando a média  $D_{cat}$  das dimensões mais longas do apenas um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados, e a média  $D_{inerte}$  do apenas um tipo de corpos inertes geométricos conformados (formados sobre a seção de leito de catalisador fixo) sejam de tamanho similar. É vantajoso, de um ponto de vista de aplicação, quando  $0,90 \leq D_{cat}/D_{inerte} \leq 1,10$ . Muito particularmente vantajoso, de um ponto de vista de aplicação, quanto à relação das duas médias,  $0,95 \leq D_{cat}/D_{inerte} \leq 1,05$ . É melhor quando  $0,98 \leq D_{cat}/D_{inerte} \leq 1,02$  ou  $D_{cat}/D_{inerte} = 1$ . A relação  $D_{cat}/D_{inerte}$  será, daqui por diante, abreviada como V.

[61] Quando todas as seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo cataliticamente ativo de uma carga de leito de catalisador fixo de um tubo de catalisador, consistirem de diferentes graus (homogeneizados) de diluição (misturas) de um único tipo de corpos catalisadores geométricos conformados com um único tipo de corpos inertes geométricos conformados (pelo menos na medida em que eles catalisem a mesma etapa de reação), as relações acima mencionadas serão, apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, intrinsecamente satisfeitas em cada seção individual (longitudinal) de leito de catalisador fixo cataliticamente ativo tendo uma tal diluição (os dois tipos de corpos conformados preferivelmente têm a mesma geometria).

[62] De forma muito particularmente apropriada de um ponto de vista de aplicação (especialmente quando os dois tipos de corpos conformados

tenham a mesma geometria), a relação das médias se acha dentro de uma das faixas acima mencionadas quando a média seja formada através do leito de catalisador fixo cataliticamente ativo inteiro disposto dentro do tubo de catalisador [ou através de todas as seções (longitudinais) do leito de catalisador fixo que catalisam a mesma etapa de reação] (ainda melhor, a relação das médias se acha dentro de uma das faixas acima mencionadas quando os leitos inertes puros são também incluídos na formação das médias através do leito fixo inteiro presente no tubo de catalisador).

[63] Uma série de disposições de tais seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo tendo um grau diferente de diluição (formadas de apenas um tipo de corpos inertes geométricos conformados e apenas um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados) podem gerar, em cada caso adaptadas especificamente às exigências da oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada a ser realizada, ao longo de um tubo de catalisador, perfis de diluição (estruturas de diluição) de uma ampla variedade de diferentes tipos, os dois tipos de corpos conformados, vantajosamente de um ponto de vista de aplicação, tendo a mesma geometria. Em muitos casos, a estrutura de diluição é selecionada de tal modo que o grau de diluição decresce na direção do fluxo da mistura gasosa de reação (isto é, a massa ativa específica do volume aumenta na direção do fluxo; quando quer que a concentração do reagente seja elevada, a atividade específica do volume é baixa, e vice-versa). Se necessário, o perfil de diluição (a estruturação da atividade) pode, não obstante, ser selecionada de modo inverso ou de forma completamente diferente.

[64] Como já mencionado, preferivelmente todas as seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo cataliticamente ativo (em cada caso, eles compreendem corpos catalisadores geométricos conformados) de uma carga de leito de catalisador fixo de um tubo de catalisador (pelo menos na medida em que elas catalisem a mesma etapa de reação) consistem de

diferentes graus (homogeneizados) de diluição (misturas) de um único tipo de corpos catalisadores geométricos conformados com um único tipo de corpos inertes geométricos conformados (incluindo o “0” grau de diluição; uma tal seção (longitudinal) de leito de catalisador fixo cataliticamente ativo consiste exclusivamente desse um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados).

[65] Quando esse um tipo de corpos catalisadores geométricos conformados e esse um tipo de corpos inertes geométricos conformados, vantajosamente, além disso, tenham a mesma geometria e uma média combinada  $D_{cat}^{inerte}$  seja formada completamente (através do número total de G) de dimensões mais longas  $L_{cat}$  e  $L_{inerte}$  dos corpos catalisadores geométricos conformados e dos corpos inertes geométricos conformados que se acham presentes na totalidade destas seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo, é vantajoso, de acordo com a invenção, quando a condição  $M^G$  de que

de 40 a 70 % (preferivelmente 50 a 60) % do número total G de corpos catalisadores geométricos conformados e corpos inertes geométricos conformados tenha uma dimensão mais dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} \leq 1,02 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 (preferivelmente 15 ou 20) % do número total G tenha a dimensão mais longa  $L_{cat.inerte}$  para a qual

$$0,94 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} < 0,98 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 (preferivelmente 15 ou 20) % do número total G tenha uma dimensão mais longa  $L_{cat.inerte}$  para a qual

$$1,02 \cdot D_{cat}^{inerte} < L_{cat.inerte} \leq 1,10 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

menos do que 5 [preferivelmente menos do que 3 ou 1 (ou 0) %] do número total G tenha uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} > L_{\text{cat, inerte}}, \text{ e}$$

menos do que 5 [preferivelmente menos do que 3 ou 1 (ou 0 %)] do número total G tenha uma dimensão  $L_{\text{cat, inerte}}$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} < L_{\text{cat, inerte}}.$$

é satisfeita.

[66] Entretanto, é também sempre vantajoso quando a condição  $M^G$  seja satisfeita apenas dentro de uma seção (longitudinal) de leito de catalisador fixo homogêneo ou pelo menos formada sobre a maioria das seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo.

[67] Normalmente, dentro de um tubo de catalisador, aquelas seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo que catalisam a mesma etapa de reação, seguem-se umas às outras em sucessão na direção do fluxo do leito de catalisador fixo.

[68] Quando, dentro de um tubo de catalisador, mais do que uma etapa de reação (na maioria dos casos apenas uma etapa de reação é catalisada dentro de um tubo de catalisador) são catalisadas (por exemplo, primeiro a etapa de propileno em acroleína e, a jusante desta na direção do fluxo, a etapa de acroleína em ácido acrílico), o leito de catalisador fixo geralmente tem várias sequências de seção (longitudinal) de leito de catalisador fixo acima mencionadas correspondentes ao número de etapas de reação. Quando uma tal sequência de seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo começa ou termina com uma seção de leito fixo consistindo apenas de corpos inertes conformados, é favorável, de acordo com a invenção, quando estes corpos inertes conformados são do mesmo tipo daqueles usados na sequência de seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo de jusante ou de montante. Além disso, é vantajoso, de acordo com a invenção, quando a estrutura de relacionamento acima mencionada (as condições  $M^G$  acima mencionadas) é também satisfeita quando tais seções de leito fixo consistindo apenas de

corpos inertes conformados são incluídas.

[69] Para a produção de um tipo  $S^i$  de corpos catalisadores revestidos geométricos conformados (corpos catalisadores suportados e conformados) que satisfaçam o perfil de exigência da invenção, o ponto de partida será geralmente um tipo de corpos de suporte geométricos conformados que (observados como um tipo de corpos inertes geométricos conformados) já como tais satisfaçam o perfil de exigência da invenção, e estes serão revestidos (ou impregnados) uniformemente com massa ativa finamente dividida ou com composição precursora finamente dividida da massa ativa, por processos conhecidos da técnica anterior. Para este fim, por exemplo, o processo de revestimento descrito na US 2006/0205978 pode ser empregado. Alternativamente, o processo de revestimento da EP-A 714 700 pode ser empregado.

[70] De modo a se obter um tipo de corpos de suporte geométrico conformado que, com respeito a suas dimensões mais longas, satisfaçam ao perfil de exigência da invenção, é possível, de uma maneira simples, originar-se dos tipos de corpo de suporte geométrico conformado para os quais, entre a média de suas dimensões mais longas  $D_S^*$  e as dimensões mais longas  $L_S^*$  de acompanhamento, o relacionamento B

$$0,99 \cdot D_S^* \leq L_S^* \leq 1,01 \cdot D_S^* \quad (B)$$

seja satisfeito.

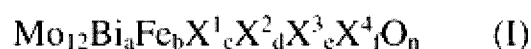
[71] Os tipos de corpos de suporte conformados que são diferentes uns dos outros na maneira requerida, podem então ser homogeneamente misturados uns com os outros (homogeneizados) nas relações quantitativas requeridas. De uma maneira correspondente, os tipos  $S^i$  dos corpos inertes geométricos conformados adequados de acordo com a invenção são obteníveis.

[72] Para a produção de um tipo  $S^i$  de corpos catalisadores não suportados geométricos conformados que satisfaça o perfil de exigência da

invenção, é possível proceder de uma maneira correspondente. Em outras palavras, por exemplo de acordo com o procedimento apresentado na U.S. 2005/0263926, tipos de corpos catalisadores não suportados conformados [ou tipos de corpos precursores catalisadores não suportados conformados que devam ainda ser calcinados (para serem termicamente tratados)] que satisfazem ao relacionamento B, são obtidos. A mistura apropriada (homogeneização) de tais tipos mutuamente diferentes subsequentemente permitem, de acordo com a invenção, tipos S<sup>1</sup> necessários a serem obtidos.

[73] A totalidade do estabelecido neste documento se aplica especialmente quando, tanto os tipos de corpos catalisadores geométricos conformados quanto os tipos de corpos inertes geométricos conformados, sejam anéis (ou esferas).

[74] Isto é especialmente verdadeiro quando a massa ativa de tais anéis catalisadores seja um óxido de múltiplos elementos da fórmula geral I



em que:

X<sup>1</sup> = níquel e/ou cobalto,

X<sup>2</sup> = tálio, um metal alcalino e/ou um metal alcalino-terroso,

X<sup>3</sup> = zinco, fósforo, arsênico, boro, antimônio, estanho, cério, chumbo, vanádio, cromo e/ou tungstênio,

X<sup>4</sup> = silício, alumínio, titânio e/ou zircônio,

a = 0,2 a 5,

b = 0,01 a 5,

c = 0 a 10,

d = 0 a 2,

e = 0 a 8,

f = 0 a 10, e

n = um número que é determinado pela valência e frequência dos elementos em I diferentes de oxigênio.

(observar-se-á que os óxidos I de múltiplos elementos acima mencionados podem ser usados como a massa ativa para todos os outros tipos possíveis de corpos catalisadores geométricos conformados).

[75] As descrições da preparação dos anéis catalisadores não suportados correspondentes e dos anéis catalisadores revestidos (ou esferas, em cada caso) podem ser encontradas, por exemplo, na WO 02/30569, na WO 2005/030393, na Descrição de Pesquisa RD 2005-497012, na DE-A 10 2007 005 602 e na DE-A 10 2007 004 961. Nos documentos acima mencionados, aqueles catalisadores anulares (e em geral catalisadores com um óxido I de múltiplos elementos como a massa ativa), cuja massa ativa seja um óxido I de múltiplos elementos, são recomendados, especialmente para uma oxidação parcial heterogeneamente catalisada de propileno em acroleína ou acroleína e ácido acrílico, e também de isobuteno em metacroleína. As geometrias dos anéis recomendadas nos documentos acima mencionados devem ser entendidas, no contexto da presente invenção, como geometria média dos anéis de um tipo de corpos catalisadores anulares conformados. Em outras palavras, a média do diâmetro interno dos anéis, a média do diâmetro externo dos anéis e a média do comprimento dos anéis de um tipo  $S^i$  de corpo catalisador conformado anular a ser usado de acordo com a invenção, podem ter as dimensões especificadas em cada caso nos documentos acima mencionados.

[76] O diâmetro externo destas geometrias médias dos anéis pode ser, por exemplo, de 2 a 10 mm, ou de 2 a 8 mm, ou de 4 a 8 mm (o mesmo se aplica no caso da geometria das esferas).

[77] O comprimento destas geometrias médias dos anéis pode, da mesma forma, ser, por exemplo, de 2 a 10 mm, ou de 2 a 8 mm, ou de 4 a 8 mm. A média da espessura da parede de tais geometrias dos anéis é apropriadamente, em geral, de 1 a 3 mm.

[78] A média da dimensão particular dos anéis [isto é também real

no caso de todas as geometrias dos anéis referidas neste documento ou de outras geometrias dos anéis (por exemplo, a geometria das esferas) de um tipo  $S^i$  de corpos catalisadores conformados em relação à média de uma dimensão específica da geometria particular e dos valores individuais desta dimensão da qual sua média é formada] pode estar na mesma relação relativa aos valores individuais correspondentes desta dimensão da qual ela é formada como  $L_S^i$  a  $D_S^i$  de acordo com a presente invenção.

[79] Quando seja feita referência neste documento às mesmas geometrias de diferentes tipos de corpos geométricos conformados, o que se denota é que os diferentes tipos de corpos geométricos conformados têm essencialmente a mesma geometria média. Em outras palavras, as médias das dimensões individuais mutuamente correspondentes das geometrias dos corpos conformados diferem, com base na média aritmética das duas médias, em menos do que 10 %, preferivelmente em menos do que 5 %. As dimensões individuais de uma geometria média podem, em princípio, ter os valores recomendados na técnica anterior para a dimensão correspondente de uma geometria individual.

[80] Uma geometria média dos anéis particularmente preferida para os corpos catalisadores não suportados conformados de óxido de múltiplos metais (I) é, por exemplo, o diâmetro externo E da geometria de 5 mm x 3 mm de comprimento L x 2 mm de diâmetro I interno (a qual já foi recomendada como a geometria individual preferida na técnica anterior).

[81] Outras geometrias médias E x L x I dos anéis catalisadores não suportados do óxido (I) de múltiplos metais favoráveis são as geometrias de 5 mm x 2 mm x 2 mm, ou 5 mm x 3 mm x 3 mm, ou 5,5 mm x 3 mm x 3,5 mm, ou 6 mm x 3 mm x 4 mm, ou 6,5 mm x 3 mm x 4,5 mm, ou 7 mm x 3 mm x 5 mm, ou 7 mm x 7 mm x 3 mm, ou 7 mm x 7 mm x 4 mm.

[82] Todas estas geometrias médias de anéis catalisadores não suportados de óxido (I) de múltiplos metais são adequadas, por exemplo,

tanto para a oxidação parcial catalítica do propileno em acroleína na fase gasosa, quanto para a oxidação parcial catalítica do isobuteno ou do terc-butanol, ou do éter metílico do terc-butanol em metacroleína na fase gasosa.

[83] Com respeito às massas ativas da estequiometria da fórmula geral I, o coeficiente estequiométrico  $b$  é preferivelmente de 2 a 4, o coeficiente estequiométrico  $c$  é preferivelmente de 3 a 10, o coeficiente estequiométrico  $d$  é preferivelmente de 0,02 a 2, o coeficiente estequiométrico  $e$  é preferivelmente de 0 a 5 e o coeficiente estequiométrico  $f$  é vantajosamente de 0,5 ou de 1 a 10. Mais preferivelmente, os coeficientes estequiométricos acima mencionados simultaneamente se situam dentro das faixas preferidas mencionadas.

[84] Além disso,  $X^1$  é preferivelmente cobalto,  $X^2$  é preferivelmente K, Cs e/ou Sr, mais preferível K,  $X^3$  é preferivelmente tungstênio, zinco e/ou fósforo, e  $X^4$  é preferivelmente Si. Mais preferivelmente, as variáveis  $X^1$  a  $X^4$  têm simultaneamente as definições acima mencionadas.

[85] As declarações feitas com respeito às geometrias médias dos corpos catalisadores conformados se aplicam correspondentemente aos corpos inertes conformados. Os corpos inertes conformados são produzidos preferivelmente de esteatita C 220 da CeramTec.

[86] Os corpos catalisadores anulares (esféricos) conformados são, apropriadamente, de um ponto de vista da aplicação, diluídos com corpos inertes anulares conformados (esféricos) de modo a que se realize uma estruturação de atividade da carga catalisadora no tubo de catalisador. Os corpos inertes anulares conformados preferivelmente têm a mesma geometria média dos anéis que os corpos catalisadores anulares conformados (esta declaração também se aplica no caso da geometria de esferas).

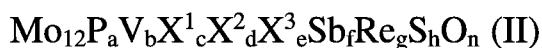
[87] Quanto a uma oxidação em fase gasosa heterogeneamente catalisada parcial para preparar acroleína ou metacroleína, a carga

catalisadora no tubo de catalisador com os corpos anulares conformados acima descritos é, de preferência, ou uniformemente configurada com apenas um tipo S<sup>i</sup> da invenção dos anéis catalisadores não suportados para o comprimento inteiro do tubo de catalisador, ou estruturada como segue.

[88] Posicionada na entrada do tubo de catalisador (na direção do fluxo da mistura gasosa de reação), para um comprimento de 10 a 60 %, preferivelmente de 10 a 50 %, mais preferível de 20 a 40 %, e o mais preferível de 25 a 35 % (isto é, por exemplo, para um comprimento de 0,70 a 1,50 m, preferivelmente de 0,90 a 1,20 m), em cada caso do comprimento total da carga catalisadora cataliticamente ativa no tubo de catalisador, achase uma mistura homogeneizada de apenas um tipo S<sup>i</sup> dos catalisadores não suportados anulares acima mencionados e apenas um tipo S<sup>i</sup> de corpos inertes conformados anulares (ambos os tipos de corpos conformados têm preferivelmente a mesma geometria de anel), a proporção em peso dos corpos diluentes conformados (as densidades de massa dos corpos catalisadores conformados e dos corpos diluentes conformados diferem apenas levemente) sendo normalmente de 5 a 40 % em peso, ou de 10 a 40 % em peso, ou de 20 a 40 % em peso, ou de 25 a 35 % em peso. A jusante desta primeira seção de carga acha-se então vantajosamente disposto, até o final do comprimento da carga catalisadora (isto é, por exemplo, para um comprimento de 1,00 a 3,00 m ou de 1,00 a 2,70 m, preferivelmente de 1,40 a 3,00 m ou de 2,00 a 3,00 m), ou um leito de apenas um tipo S<sup>i</sup> de catalisadores não suportados anulares diluídos apenas em uma extensão menor (do que na primeira seção) com o apenas um tipo S<sup>i</sup> dos corpos inertes anulares conformados, ou, o mais preferível, um leito exclusivo (não diluído) do mesmo apenas um tipo S<sup>i</sup> do catalisador não suportado anular. Naturalmente, é também possível selecionar uma diluição uniforme através do comprimento inteiro do tubo de catalisador. O leito de catalisador fixo será configurado de uma forma correspondente quando as geometrias forem esféricas.

[89] Por outro lado, a oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada do propileno em acroleína ou do isobuteno em metacroleína pode ser realizada em um reator de feixe de tubos tendo uma ou mais zonas de temperatura, como descrito na técnica anterior (conforme, por exemplo, as WO 2005/03093, DE-A 10 2007 005 602 e DE-A 10 2004 025 445, e na técnica anterior citada nestes documentos).

[90] Massas ativas úteis para os corpos catalisadores geométricos conformados de uma carga de tubo de catalisador da invenção também inclui óxidos de múltiplos elementos da fórmula geral II



em que

$X^1 =$  potássio, rubídio e/ou césio,

$X^2 =$  cobre e/ou prata,

$X^3 =$  cério, boro, zircônio, manganês e/ou bismuto,

$a = 0,5$  a  $3$ ,

$b = 0,01$  a  $3$ ,

$c = 0,2$  a  $3$ ,

$d = 0,01$  a  $2$ ,

$e = 0$  a  $2$ ,

$f = 0,01$  a  $2$ ,

$g = 0$  a  $1$ ,

$h = 0,001$  a  $0,5$ , e

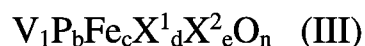
$n =$  um número que é determinado pela valência e frequência dos elementos em II, outros que não o oxigênio.

[91] Tais corpos catalisadores geométricos conformados são adequados com vantagem especialmente para uma oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada da metacroleína em ácido metacrílico.

[92] Os corpos catalisadores conformados acima mencionados são preferivelmente da mesma forma catalisadores não suportados anulares,

conforme obteníveis, por exemplo, pelo procedimento descrito na EP-A 467 144. Geometrias médias de anéis úteis são, em particular, as geometrias individuais recomendadas na EP-A 467 144 e aquelas recomendadas com respeito aos óxidos I de múltiplos elementos neste documento. Uma geometria média de anéis preferida é aquela em que  $E \times L \times I = 7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$  (conforme também a DE-A 10 2007 005 602).

[93] Uma diluição estruturada com corpos inertes anulares conformados pode ser efetuada, por exemplo, como descrito para o caso da oxidação parcial heterogeneamente catalisada do propileno em acroleína. De outra forma, as condições do processo de oxidação parcial descritas na EP-A 467 144 e na DE-A 10 2007 005 602, podem ser empregadas. Quanto à oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada dos hidrocarbonetos tendo pelo menos quatro átomos de carbono (especialmente n-butano, n-butenos e/ou benzeno) em anidrido maleico, as massas ativas úteis de óxido de múltiplos elementos para corpos catalisadores geométricos conformados a serem usados de acordo com a invenção, são vantajosamente aquelas da fórmula geral II,



na qual cada variável é definida como segue:

$X^1 = \text{Mo, Bi, Co, Ni, Si, Zn, Hf, Zr, Ti, Cr, Mn, Cu, B, Sn}$   
e/ou Nb,

$X^2 = \text{K, Na, Rb, Cs e/ou Ti,}$

$b = 0,9 \text{ a } 1,5,$

$c = 0 \text{ a } 0,1,$

$d = 0 \text{ a } 0,1,$

$e = 0 \text{ a } 0,1, e$

$n = \text{um número que é determinado pela valência e frequência dos elementos em III, outros que não o oxigênio.}$

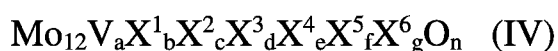
[94] Vantajosamente, estes corpos catalisadores conformados são

da mesma forma catalisadores não suportados anulares, obteníveis, por exemplo, de acordo com as WO 03/078310, WO 01/68245, DE-A 10 2005 035 978 e DE-A 10 2007 005 602. Geometrias de anéis médias úteis são, em particular, as geometrias individuais recomendadas nos documentos acima mencionados, e as geometrias individuais recomendadas com respeito aos óxidos I de múltiplos elementos neste documento. Uma geometria de anéis média preferida é aquela em que  $E \times L \times I = 5 \text{ mm} \times 3,2 \text{ mm} \times 2,5 \text{ mm}$  (ver também a DE-A 10 2007 005 602).

[95] Uma diluição estruturada com corpos inertes conformados anulares pode ser efetuada, por exemplo, como descrito para o caso da oxidação parcial heterogeneamente catalisada do propileno em acroleína.

[96] Por outro lado, as condições do processo de oxidação parcial recomendadas nas WO 03/078 310, WO 01/68245, DE-A 10 2005 035 978 e DE-A 10 2007 005 602 podem ser aplicadas.

[97] Quanto à oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada da acroleína em ácido acrílico, as massas ativas úteis de óxido de múltiplos elementos para os corpos catalisadores geométricos conformados a serem usados de acordo com a invenção, são vantajosamente aquelas da fórmula geral IV



em que as variáveis são definidas como segue:

$X^1 = \text{W, Nb, Ta, Cr e/ou Ce,}$

$X^2 = \text{Cu, Ni, Co, Fe, Mn e/ou Zn,}$

$X^3 = \text{Sb e/ou Bi,}$

$X^4 = \text{um ou mais metais alcalinos (Li, Na, K, Rb, Cs) e/ou H,}$

$X^5 = \text{um ou mais metais alcalino-terrosos (Mg, Ca, Sr, Ba),}$

$X^6 = \text{Si, Al, Ti e/ou Zr,}$

$a = 1 \text{ a } 6,$

$b = 0,2 \text{ a } 4,$

c = 0 a 18, preferivelmente 0,5 a 18,

d = 0 a 40,

e = 0 a 2,

f = 0 a 4,

g = 0 a 40, e

n = um número que é determinado pela valência e pela frequência dos elementos em IV, outros que não o oxigênio.

[98] Vantajosamente, estes corpos catalisadores conformados são catalisadores revestidos anulares ou esféricos, obteníveis, por exemplo, de acordo com as DE-A 10 2004 025 445, DE-A 10 350 822, DE-A 10 2007 010 422, US 2006/0205978 e EP-A 714 700, e a técnica anterior citada nestes documentos.

[99] Geometrias de anéis médias ou geometria de esferas médias úteis são, em particular, as geometrias individuais recomendadas nos documentos acima mencionados. Uma geometria de anéis média preferida é aquela em que  $E \times L \times I = 7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$  para os corpos de suporte conformados anulares precursores.

[100] A espessura do revestimento da massa ativa pode ser de 10 a 1000  $\mu\text{m}$ , preferivelmente de 50 a 500  $\mu\text{m}$ , e mais preferível de 150 a 250  $\mu\text{m}$ . Espessuras de revestimentos favoráveis são aquelas das formas de realização exemplares da EP-A 714 700.

[101] Quanto a uma oxidação em fase gasosa heterogeneamente catalisada, parcial, da acroleína em ácido acrílico, a carga catalisadora no tubo de catalisador é preferivelmente ou configurada de forma uniforme com apenas um tipo  $S^i$  da invenção dos anéis catalisadores revestidos através do comprimento inteiro do tubo de catalisador, ou estruturada como segue.

[102] Posicionada na entrada do tubo de catalisador (na direção do fluxo da mistura gasosa de reação), para um comprimento de 10 a 60 %, preferivelmente de 10 a 50 %, mais preferível de 20 a 40 %, e o mais

preferível de 25 a 35 % (isto é, por exemplo, para um comprimento de 0,70 a 1,50 m, preferivelmente de 0,90 a 1,20 m), em cada caso do comprimento total da carga catalisadora cataliticamente ativa no tubo de catalisador, é uma mistura homogeneizada composta de apenas um tipo S<sup>i</sup> dos catalisadores revestidos anulares acima mencionados e apenas um tipo S<sup>i</sup> dos corpos inertes conformados anulares (ambos os tipos de corpos conformados têm a mesma geometria de anel), a proporção em peso dos corpos diluentes conformados (as densidades de massa dos corpos catalisadores conformados e dos corpos diluentes conformados geralmente diferem apenas levemente) sendo normalmente de 5 a 40 % em peso, ou de 10 a 40 % em peso, ou de 20 a 40 % em peso, ou de 25 a 35 % em peso. A jusante desta primeira seção de carga é então vantajosamente disposta, até o final do comprimento da carga catalisadora (isto é, por exemplo, quanto a um comprimento de 2,00 a 3,00 m, preferivelmente de 2,50 a 3,0 m), ou um leito de apenas um tipo S<sup>i</sup> dos catalisadores não suportados anulares diluídos apenas até uma extensão menor (do que na primeira seção) com o apenas um tipo S<sup>i</sup> dos corpos inertes conformados anulares, ou, o mais preferível, um leito exclusivo (não diluído) (não diluído) do mesmo apenas um tipo S<sup>i</sup> do catalisador revestido anular. O leito de catalisador fixo será configurado de uma maneira correspondente quando a geometria catalisadora revestida for esférica.

[103] De outra forma, a oxidação em fase gasosa heterogeneamente catalisada da acroleína em ácido acrílico poderá ser realizada em um reator de feixes de tubo tendo uma ou mais zonas de temperatura como descrito na técnica anterior (conforme, por exemplo, as DE-A 10 2004 025 445, DE-A 10 350 822, DE-A 10 2007 010 422, US 2006/0205978 e EP-A 714 700, e a técnica anterior citada nestes documentos).

[104] Um óxido de múltiplos elementos compreendendo V e Sb (especialmente um de acordo com os documentos US-A 6.528.683 ou US-A 6.586.361 ou US-A 6.362.345) é adequado especialmente para uma oxidação

parcial heterogeneamente catalisada de o-xileno e/ou naftaleno em anidrido ftálico.

[105] Neste caso, preferência é dada ao uso dos óxidos de múltiplos elementos acima mencionados como catalisadores revestidos anulares ou como esféricos. Corpos de suporte úteis são, em particular, aqueles que consistem, em uma extensão de pelo menos 80 % em peso, de dióxido de titânio. Geometrias médias de anéis exemplares incluem as geometrias de anéis  $E \times L \times I = 8 \text{ mm} \times 6 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ , ou  $8 \text{ mm} \times 6 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ , ou  $8 \text{ mm} \times 6 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$  e  $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$ .

[106] Corpos catalisadores conformados cuja massa ativa compreenda prata elementar sobre um corpo de suporte oxídico, são adequados (em particular como catalisadores suportados) especialmente para uma oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada de etileno em óxido de etileno (conforme a EP-A 496470).

[107] Neste caso, a geometria dos corpos catalisadores conformados pode da mesma forma ser esférica ou anular. Corpos suporte conformados são, em particular, aqueles que consistem até uma extensão de pelo menos 80 % em peso do óxido de alumínio (por exemplo,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ).

[108] Geometrias de esfera médias exemplares aqui incluem os diâmetros das esferas de 4 mm, 5 mm e 7 mm.

[109] De forma bem geral, nos processos descritos para a oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada, um leito de corpo inerte conformado puro, cujo comprimento, com base no comprimento total do leito de catalisador fixo, dentro do tubo de catalisador, é de aproximadamente 1 ou 5 a 20 %, pode introduzir o leito de catalisador fixo na direção do fluxo do gás de reação. Ele é normalmente utilizado como uma zona de aquecimento para a mistura do gás de reação.

[110] Geralmente, é vantajoso no processo de acordo com a invenção quando a  $D_S^i$  média da dimensão  $L_S^i$  mais longa de um tipo  $S^i$  usado

no tubo de catalisador para carga, uma seção de leito de catalisador fixo tem a seguinte relação em relação ao diâmetro interno R do tubo de catalisador:  $R/D_s^i = 1,5$  a 5, preferivelmente de 2 a 4, e mais preferível de 3 a 3,5.

[111] Além disso, é vantajoso para o processo de acordo com a invenção, quando a média aritmética  $M_s^i$  das dimensões mais longas  $L_s^i$ , que constituem a base dos desvios médios  $D_s^i$  dos  $D_s^i$  em não mais do que 10 %, preferivelmente não mais do que 5 % (com  $D_s^i$  como a base de referência). Todas as declarações neste documento aplicam-se em especial quando os corpos catalisadores geométricos conformados e os corpos inertes geométricos conformados sejam anéis. Os tubos catalisadores podem de outra forma, em geral, ser enchidos como descrito na WO 2006/094 766 e na WO 2005/113 123 e na JP-A 2004 195 279.

[112] Todas as declarações feitas neste documento também se aplicam especialmente aos catalisadores revestidos tendo uma massa ativa de óxido de múltiplos elementos compreendendo Mo e V dos documentos EP-A 1 254 707, EP-A 1 254 710, EP-A 1 254 709 WO 2004/035528, DE-A 102 48 584, DE-A 102 54 278, DE-A 102 54 279, WO 02/06199 e WO 02/051539, e às oxidações parciais catalisadas por estes catalisadores revestidos, de propano em acroleína e/ou ácido acrílico, e de isobutano em metacroleína e/ou ácido metacrílico.

[113] Além disso, todas as declarações feitas neste documento também se aplicam especialmente aos catalisadores revestidos tendo uma massa ativa de óxido de múltiplos elementos compreendendo Mo e V da DE-A 10 2007 010 422, e às oxidações parciais catalisadas por estes catalisadores revestidos (especialmente de acroleína em ácido acrílico).

[114] A presente invenção assim compreende especialmente as seguintes formas de realização:

[115] 1. Um processo para carregar uma seção longitudinal de um tubo de catalisador com uma seção de leito de catalisador fixo uniforme, cuja

massa ativa é pelo menos um óxido de múltiplos elementos que compreende:

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e, adicionalmente, P e/ou Sb,

ou cuja massa ativa compreenda prata elementar ou um corpo de suporte oxídico, e que consista de um único tipo  $S^i$  ou de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade de tipos  $S^i$  mutuamente distinguíveis de corpos catalisadores geométricos conformados, ou de corpos catalisadores geométricos conformados e corpos inertes geométricos conformados, em que a média das dimensões mais longas  $L_S^i$  dos corpos geométricos conformados de um tipo  $S^i$  tem um valor  $D_S^i$ , em que, pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a condição M de que

de 40 a 70 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm a dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 10 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 10 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa

para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

[116] 2. Um processo de acordo com a forma de realização 1, em que, pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a condição  $M^*$  de que

de 50 a 60 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$ , tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  tem uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

[117] 3. Um processo de acordo com a forma de realização 1, em que, pelo menos dentro de um tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a

condição  $M^{**}$  de que

de 50 a 60 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$ , têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

[118] 4. Processo de acordo com qualquer das formas de realização 1 a 3, em que a seção de leito de catalisador fixo consiste de apenas um único tipo  $S^i$  de corpos catalisadores de conformação anular ou esférica.

[119] 5. Processo de acordo com a forma de realização 1, em que a seção de leito de catalisador conformada consiste de uma mistura homogeneizada do apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares e apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares, em que

tanto o apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares quanto o apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares satisfazem à condição M.

[120] 6. Processo de acordo com a forma de realização 2, em que a seção de leito de catalisador conformada consiste de uma mistura homogeneizada do apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares e apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares, em que tanto o apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares quanto o apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares satisfazem à condição M\*.

[121] 7. Processo de acordo com a forma de realização 3, em que a seção de leito de catalisador conformada consiste de uma mistura homogeneizada do apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares e apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares, em que tanto o apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares quanto o apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares satisfazem à condição M\*\*.

[122] 8. Um processo para carregar um tubo de catalisador com um leito de catalisador fixo que consiste de uma pluralidade de seções de leitos catalisadores fixos cataliticamente ativos sucessivos e mutuamente diferentes, cada um dos quais sendo intrinsecamente homogêneo, e em que a massa ativa de todas as seções de leito de catalisador fixo compreendem pelo menos um óxido de múltiplos elementos, que compreende:

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e, adicionalmente, P e/ou Sb,

ou cuja massa ativa compreende prata elementar ou um corpo suporte oxídico, e a seção de leito de catalisador fixo individual consiste de um único tipo S<sup>i</sup> ou de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade de

tipos  $S^i$  mutuamente distinguíveis dos corpos catalisadores geométricos conformados e dos corpos inertes geométricos conformados, em que, em cada seção de leito de catalisador fixo individual, todos os tipos  $S^i$  dos corpos geométricos conformados nela presentes, em cada caso, satisfaçam à condição M de acordo com a forma de realização 1, ou a condição  $M^*$  de acordo com a forma de realização 2, ou a condição  $M^{**}$  de acordo com a forma de realização 3.

[123] 9. Processo de acordo com a forma de realização 8, em que todos os corpos geométricos conformados são anéis ou esferas.

[124] 10. Processo de acordo com a forma de realização 9, em que todos os corpos geométricos conformados têm a mesma geometria de anel ou a mesma geometria de esfera.

[125] 11. Processo de acordo com a forma de realização 10, em que o meio combinado  $D_{cat}^{inerte}$ , formado através do número total G de todas as dimensões mais longas  $L_{cat}$  dos corpos catalisadores geométricos conformados e de todas as dimensões mais longas  $L_{inerte}$  dos corpos inertes geométricos conformados, e as dimensões  $L_{inerte}$  e  $L_{cat}$  (isto é,  $L_{cat.inerte}$ ), satisfaz à condição  $M^{G*}$  de que

de 40 a 70 % do número total G tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} \leq 1,02 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 % do número total G tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,94 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} < 0,98 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 % do número total G tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$1,02 \cdot D_{cat}^{inerte} < L_{cat.inerte} \leq 1,10 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

menos do que 5 % do número total G tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,94 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} > L_{\text{cat,inerte}}, e$$

menos do que 5 % do número total G tem uma dimensão  $L_{\text{cat.inerte}}$  mais longa para a qual

$$1,10 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} < L_{\text{cat,inerte}}$$

é satisfeita.

[126] 12. Um processo de acordo com a forma de realização 11, em que o leito de catalisador fixo inteiro compreende apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares e apenas um tipo de corpos inertes conformados anulares ou apenas um tipo de corpos catalisadores conformados esféricos e apenas um tipo de corpos inertes conformados esféricos.

[127] 13. Processo de acordo com qualquer uma das formas de realização de 5 a 7, em que os corpos catalisadores conformados e os corpos inertes conformados não são anulares, porém esféricos.

[128] 14. Reator de feixes de tubo compreendendo pelo menos um tubo de catalisador que tenha sido carregado por um processo de acordo com qualquer das formas de realização 1 a 13.

[129] 15. Um processo para oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada de um composto orgânico em um reator de feixes de tubo, em que o reator de feixes de tubo é um reator de feixes de tubo de acordo com a forma de realização 14.

[130] 16. Um processo de acordo com a forma de realização 15, em que a oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada é aquela do propileno em acroleína e/ou aquela da acroleína em ácido acrílico.

[131] 17. Um processo para preparar compostos orgânicos (por exemplo, todos aqueles mencionados neste documento, por exemplo, acroleína, ácido acrílico, ácido metacrílico, anidrido maleico, óxido de etileno e anidrido ftálico), o qual compreende um processo de acordo com qualquer das formas de realização 1 a 12.

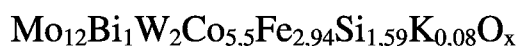
[132] Por outro lado, todos os dados neste documento, a menos que

de outra forma explicitamente estabelecido, baseiam-se em uma temperatura de 25 °C e em uma pressão de 1 atmosfera.

Exemplo e exemplos comparativos

Exemplo comparativo 1

[133] Como o catalisador não suportado BVK 3 na WO 2005/030 393, usando TIMREX T 44 da Timcal AG (Bodio, Suíça) como grafita auxiliar, um tipo de catalisadores não suportados anulares de estequiometria (sem levar em conta a grafita ainda presente)



foi preparada.

[134] A geometria média dos catalisadores não suportados anulares foi  $E \times L \times I = 5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ .

[135] Entre a média de sua dimensão  $D_s^i$  mais longa (5,83 mm) e as dimensões  $L_s^i$  mais longas individuais, a seguinte condição foi satisfeita:

$$0,99 \cdot 5,83 \text{ mm} \leq L_s^i \leq 1,01 \cdot 5,83 \text{ mm}.$$

[136] Um tubo de catalisador (aço V2A; diâmetro externo de 21 mm, espessura da parede de 3 mm, diâmetro interno de 15 mm, comprimento de 100 cm) foi carregado com o uso de anéis de corpo inerte conformados de esteatita da mesma geometria média anular na direção do fluxo do gás de reação posterior, como segue:

[137] Seção 1: comprimento 30 cm, leito apenas dos anéis de corpo conformado inerte;

[138] Seção 2: comprimento 70 cm, leito apenas dos catalisadores não suportados anulares.

[139] O tubo de catalisador foi aquecido por meio de um banho de sal aspergido de nitrogênio.

[140] O tubo de catalisador foi carregado com uma carga de mistura gasosa (mistura de ar, propileno de graduação polimérica e nitrogênio) da seguinte composição:

5 % em volume de propileno,  
 10 % em volume de oxigênio molecular, e  
 como o remanescente até 100 % em volume, N<sub>2</sub>.

[141] A carga de propileno do leito de catalisador fixo foi selecionada em 50 NI/(l•h). A temperatura do banho de sal foi ajustada de tal modo que a conversão do propileno, com base em uma passagem única da mistura gasosa de reação através do tubo de catalisador, foi de 95 % molares.

[142] A seletividade do produto resultante da formação de valores da acroleína e ácido acrílico foi de 95,7 % molares.

#### Exemplo Comparativo 2

[143] O procedimento foi igual ao do Exemplo Comparativo 1. Para a seção de carga 2 do tubo de catalisador, entretanto, foi usada uma mistura homogeneizada dos catalisadores não suportados anulares das mesmas geometria média e massa ativa, exceto que os relacionamentos a seguir foram satisfeitos entre a média das dimensões mais longas e das dimensões individuais mais longas:

Para 80 % dos anéis:  $0,98 \cdot 5,83 \text{ mm} \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot 5,83 \text{ mm}$ .

Para 20 % dos anéis:  $1,02 \cdot 5,83 \text{ mm} < L_S^i \leq 1,10 \cdot 5,83 \text{ mm}$ .

[144] A seletividade do produto resultante de formação de valores da acroleína e ácido acrílico foi, sob condições de operação de outra forma idênticas, de 95,8 % molares.

#### Exemplo

[145] O procedimento foi igual ao do Exemplo Comparativo 1. Para a seção de carga 2 do tubo de catalisador, uma mistura homogeneizada dos catalisadores não suportados anulares da mesma geometria média e a massa ativa, foi usada, exceto que os seguintes relacionamentos foram satisfeitos entre a média das dimensões mais longas e as dimensões individuais mais longas:

Para 60 % dos anéis:  $0,98 \cdot 5,73 \text{ mm} \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot 5,73 \text{ mm}$ .

Para 20 % dos anéis:  $0,94 \cdot 5,73 \text{ mm} \leq L_s^i < 0,98 \cdot 5,73 \text{ mm}$ .

Para 20 % dos anéis:  $1,02 \cdot 5,73 \text{ mm} < L_s^i \leq 1,10 \cdot 5,73 \text{ mm}$ .

[146] A seletividade do produto resultante de formação de valores da acroleína e ácido acrílico foi, sob condições de operação de outra forma idênticas, de 96,2 % molares.

[147] O Pedido de Patente Provisória U.S. nº 60/910.908, depositado em 10 de abril de 2007, fica incorporado no presente pedido de patente como referência de literatura. Com respeito aos preceitos mencionados acima, numerosas mudanças e variações da presente invenção são possíveis.

[148] Pode-se, portanto, admitir que a invenção, dentro do escopo das reivindicações anexas, possa ser realizada diferentemente dos meios aqui especificamente descritos.

## REIVINDICAÇÕES

1. Processo para carregar uma seção longitudinal de um tubo de catalisador com uma seção de leito de catalisador fixo uniforme, cuja massa ativa é pelo menos um óxido de múltiplos elementos que compreende:

- a) os elementos Mo, Fe e Bi, ou
- b) os elementos Mo e V, ou
- c) o elemento V e, adicionalmente, P e/ou Sb,

ou cuja massa ativa compreende prata elementar ou um corpo suporte oxídico, e que consiste de um único tipo  $S^i$  ou de uma mistura homogeneizada de uma pluralidade de tipos  $S^i$  mutuamente distinguíveis de corpos catalisadores geométricos conformados ou de corpos catalisadores geométricos conformados e corpos inertes geométricos conformados, em que a média das dimensões mais longas  $L_{S^i}$  dos corpos de conformação geométrica de um tipo  $S^i$  tem um valor  $D_{S^i}$ , caracterizado pelo fato de, dentro do respectivo tipo  $S^i$  de corpos geométricos conformados, a condição M de que

- de 40 a 70 % do número total de corpos geométricos conformados para  $S^i$  têm uma dimensão  $L_{S^i}$  mais longa para a qual  $0,98 \cdot D_{S^i} \leq L_{S^i} \leq 1,02 \cdot D_{S^i}$ ,
- pelo menos 10 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão de  $L_{S^i}$  mais longa, para a qual  $0,94 \cdot D_{S^i} \leq L_{S^i} < 0,98 \cdot D_{S^i}$ ,
- pelo menos 10 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_{S^i}$  mais longa, para a qual  $1,02 \cdot D_{S^i} < L_{S^i} \leq 1,10 \cdot D_{S^i}$ ,
- menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_{S^i}$  mais longa, para

a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita, e a seção de leito de catalisador fixo consiste de apenas um único tipo de corpos catalisadores de conformação anular ou de uma mistura homogeneizada de apenas um tipo de corpos catalisadores conformados anulares e apenas de um tipo de corpos inertes conformados anulares.

2. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que, dentro do respectivo tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a condição  $M^*$  de que

de 50 a 60 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão de  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 15 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

3. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que, dentro do respectivo tipo  $S^i$  dos corpos geométricos conformados, a condição  $M^{**}$  de que

de 50 a 60 % do número total de corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$ , têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,98 \cdot D_S^i \leq L_S^i \leq 1,02 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i \leq L_S^i < 0,98 \cdot D_S^i,$$

pelo menos 20 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,02 \cdot D_S^i < L_S^i \leq 1,10 \cdot D_S^i,$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$0,94 \cdot D_S^i > L_S^i, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total dos corpos geométricos conformados pertencentes a  $S^i$  têm uma dimensão  $L_S^i$  mais longa, para a qual

$$1,10 \cdot D_S^i < L_S^i$$

é satisfeita.

4. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que a seção de leito catalisador fixo carregada no tubo de catalisador é uma seção de leito catalisador de uma pluralidade de seções de leitos catalisadores fixos cataliticamente ativos sucessivos e mutuamente diferentes das quais um leito catalisador fixo carregado no tubo de catalisador consiste, com a condição de que

- cada uma das outras seções de leito catalisador da pluralidade carregada no tubo de catalisador é também carregada por um processo como definido na reivindicação 1,

- todos os corpos geométricos conformados são anéis e possuem a mesma geometria de anel,

- o leito catalisador fixo todo compreende apenas um tipo de corpos catalisadores anulares conformados e apenas um tipo de corpos inertes anulares conformados,

- o meio combinado  $D_{cat}^{inerte}$ , formado através do número total  $G$  de todas as dimensões mais longas  $L_{cat}$  dos corpos catalisadores geométricos conformados e de todas as dimensões mais longas  $L_{inerte}$  dos corpos inertes geométricos conformados, e as dimensões mais longas  $L_{inerte}$  e  $L_{cat}$ , isto é,  $L_{cat.inerte}$ , satisfaz à condição  $M^{G*}$  de que

de 40 a 70 % do número total  $G$  tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,98 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} \leq 1,02 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 % do número total  $G$  tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$0,94 \cdot D_{cat}^{inerte} \leq L_{cat.inerte} < 0,98 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

pelo menos 10 % do número total  $G$  tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais longa para a qual

$$1,02 \cdot D_{cat}^{inerte} < L_{cat.inerte} \leq 1,10 \cdot D_{cat}^{inerte},$$

menos do que 5 % do número total  $G$  tem uma dimensão  $L_{cat.inerte}$  mais

longa para a qual

$$0,94 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} > L_{\text{cat,inerte}}, \text{ e}$$

menos do que 5 % do número total G tem uma dimensão  $L_{\text{cat.inerte}}$  mais

longa para a qual

$$1,10 \cdot D_{\text{cat}}^{\text{inerte}} < L_{\text{cat,inerte}}$$

é satisfeita.

5. Reator de feixes de tubo, caracterizado pelo fato de que compreende pelo menos um tubo de catalisador que tenha sido carregado por um processo como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 4.

6. Processo para oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada de um composto orgânico em um reator de feixes de tubo, caracterizado pelo fato de que o reator de feixes de tubo é um reator de feixes de tubo como definido na reivindicação 5.

7. Processo de acordo com a reivindicação 6, caracterizado pelo fato de que a oxidação em fase gasosa parcial heterogeneamente catalisada é aquela do propileno em acroleína e/ou aquela da acroleína em ácido acrílico.