



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

(11) **PI0107557-8 B1**

(22) Data de Depósito: 10/01/2001

(45) Data da Concessão: 09/08/2011  
(RPI 2118)



\* B R P I 0 1 0 7 5 5 7 B 1 \*

(51) *Int.Cl.:*

B01J 8/02 2006.01

B01J 19/32 2006.01

B01J 8/06 2006.01

B01J 19/24 2006.01

B01J 35/04 2006.01

C01B 3/38 2006.01

---

(54) Título: **REATOR CATALÍTICO, MÉTODO PARA REALIZAR REAÇÕES QUÍMICAS ENTRE GASES E PROCESSAMENTO DE METANO.**

(30) Prioridade Unionista: 11/01/2000 GB 0000473.9, 20/03/2000 GB 0006620.9

(73) Titular(es): Accentus PLC, CompactGTL plc

(72) Inventor(es): Ian Frederick Zimmerman, Jason Andrew Maude, John William Stairmand, Michael Joseph Bowe

## **"REATOR CATALÍTICO, MÉTODO PARA REALIZAR REAÇÕES QUÍMICAS ENTRE GASES E PROCESSAMENTO DE METANO"**

### **Campo da Invenção**

A presente invenção trata de um reator catalítico, apropriado para uso na realização de reações em fase gasosa em pressões elevadas e, particularmente, mas não exclusivamente, para realizar reações endotérmicas. Além disso, a presente invenção trata de processo químico usando o referido reator catalítico.

### **Histórico da Invenção**

O uso de material catalítico suportado em um substrato de metal é bem conhecido. Por exemplo, a patente GB 1 490 977 descreve um catalisador compreendendo um substrato de liga ferrítica suportada em alumínio, revestido com uma camada de um óxido refratário tal como alumínio, titânio ou zircônio e, subsequentemente, com um metal catalítico do grupo da platina. Como descrito nas patentes GB 1 531 134 e GB 1 546 097, um corpo de catalisador pode compreender chapas substancialmente planas e chapas corrugadas deste material, dispostas alternadamente de modo a definir canais através de seu corpo, ou várias destas chapas são dispostas em uma pilha, ou duas destas chapas enroladas juntas para formar uma bobina. Nesses exemplos, tanto as chapas planas como as chapas corrugadas têm corrugações em pequena escala, superpostas sobre as mesmas para ajudar na formação do revestimento. Esses corpos de catalisador são descritos como sendo apropriados para uso no tratamento de gases de escapamento de veículos.

### **Descrição Resumida da Invenção**

De acordo com a presente invenção, provê-se um reator catalítico compreendendo uma pluralidade de chapas de metal dispostas para definir primeiros canais de fluxo de gás entre chapas adjacentes, meios para definir segundos canais de fluxo de gás em proximidade com os primeiros canais de fluxo de gás, dispostos de modo a assegurar bom contato térmico entre os gases nos primeiros e nos segundos canais de fluxo de gás, material catalítico em pelo menos algumas superfícies dentro de cada canal de fluxo, e coletores para suprir misturas de gás para os canais de fluxo de gás, os coletores sendo tais que diferentes misturas de gases podem ser supridas aos primeiros e segundos canais de fluxo de gás.

Os segundos canais de fluxo de gás são também definidos entre as placas de metal, os primeiros e segundos canais de fluxo de gás sendo definidos alternativamente entre cada placa sucessivamente.

O bom contato térmico entre gases em canais de fluxo adjacentes é melhorado intercalando uma folha de metal corrugada dentro de cada canal de fluxo de gás. Essa folha também pode atuar como uma barreira para o material catalítico. As chapas de metal adjacentes podem ser unidas umas as outras, por exemplo, por ligação por difusão. Para assegurar o requerido bom contato térmico, tanto os primeiros como os segundos canais de fluxo de gás têm, preferivelmente, menos que 5 mm de largura em pelo menos uma direção transversal à direção de fluxo de gás. Mais preferivelmente, tanto os primeiros como os segundos canais de fluxo de gás têm menos de 2 mm de largura em pelo menos uma tal direção.

A Figura 1, mais adiante comentada, mostra um projeto de reator análogo usando tubos concêntricos que são chapas de material corrugado cujas superfícies são revestidas com material catalítico. As chapas corrugadas não são estruturais, de modo que elas podem ser confeccionadas de uma fina folha de metal. Os tubos devem ser de paredes suficientemente grossas para suportar diferenças de pressão, de modo que as diferentes misturas de gases possam estar a diferentes pressões.

As chapas podem ser planas, com sulcos usinados através de suas superfícies para definir canais de fluxo de gás. O reator pode, assim, compreender uma pilha de tais chapas planas, os sulcos em chapas adjacentes seguindo diferentes trajetos. Os próprios sulcos podem ter, por exemplo, 20 mm de largura, cada sulco acomodando uma chapa corrugada ou folha de material revestido com material catalítico. Para assegurar que os canais de fluxo de gás sejam estanques a gás, as chapas ou placas são ligadas juntas.

Quando em uso do reator catalítico, a mistura de gases suprida a cada canal é diferente da mistura de gases suprida para os canais adjacentes, e as reações químicas correspondentes também são diferentes. Preferivelmente, uma das reações é endotérmica enquanto que a outra reação é exotérmica. Neste caso, o calor é transferido através da parede da chapa que separa os canais adjacentes, da reação exotérmica para a endotérmica.

Preferivelmente, as próprias chapas são também revestidas com

material catalítico apropriado.

Esse reator é particularmente apropriado para realizar reforma a vapor de metano (que é uma reação endotérmica, gerando hidrogênio e monóxido de carbono), e os canais alternados podem conter uma mistura de metano/ar de modo que a reação de oxidação exotérmica provê o calor necessário para a reação de reforma endotérmica. Para a reação de oxidação, podem ser usados vários diferentes catalisadores, por exemplo paládio ou platina em um suporte cerâmico; por exemplo platina sobre um suporte de alumina com lantânio estabilizado, ou paládio sobre zircônio. O catalisador preferido para a reação de oxidação é platina sobre alumina estabilizada. Para a reação de reforma, também vários diferentes catalisadores podem ser usados, por exemplo níquel, platina, paládio, rutênio ou ródio, que podem ser usados sobre revestimentos cerâmicos; o catalisador preferido para a reação de reforma é ródio ou platina/ródio sobre alumina. A reação de oxidação pode ser realizada em pressão substancialmente atmosférica, enquanto a reação de reforma é preferivelmente realizada em pressão elevada, por exemplo até 2 MPa (20 atmosferas), mais tipicamente 300 kPa ou 500 kPa.

Será apreciado que os materiais dos quais os reatores são feitos sejam submetidos a uma atmosfera severamente corrosiva em uso, por exemplo, a temperatura pode ser tão elevada como 900 °C, apesar de ser mais tipicamente em torno de 750 °C. O reator pode ser feito de um metal, como um aço ferrítico suportado em alumínio, particularmente do tipo conhecido como Fecralloy (marca registrada) que é ferro com até 20% de cromo, 0,5 - 12% alumínio, e 0,1 - 3 % de ítrio. Por exemplo, pode compreender ferro com 15% de cromo, 4% de alumínio, e 0,3% de ítrio. Quando esse metal é aquecido em ar, ele forma um revestimento de óxido aderente de alumínio, que protege a liga contra outra oxidação. Quando este metal é usado como um substrato catalítico, e é revestido com uma camada cerâmica sobre a qual um material catalítico é incorporado, acredita-se que a camada de óxido de alumina sobre o metal se liga com o revestimento de óxido, assegurando a aderência do material catalítico ao substrato de metal.

### **Breve Descrição dos Desenhos**

A invenção será agora adicionalmente e mais particularmente descrita, apenas a título de exemplo, e com referência aos desenhos anexos, nos quais:

- A Figura 1 mostra uma vista em seção longitudinal de um reator catalítico, o qual não está dentro do escopo da presente invenção;
- A Figura 2 mostra uma vista em seção transversal do reator da Figura 1;
- A Figura 3 mostra um diagrama de fluxo de um processo químico que pode ser realizado com o reator das Figuras 1 e 2;
- A Figura 4 mostra uma vista seccional das chapas empilhadas formando o reator catalítico da presente invenção;
- A Figura 5 mostra uma vista em planta de uma chapa usada para formar um reator catalítico alternativo; e
- A Figura 6 mostra uma vista em planta de uma chapa usada para formar outro reator catalítico alternativo.

### **Descrição Detalhada da Invenção**

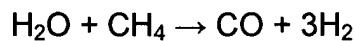
Com referência à Figura 1, um reator catalítico (10), que não está dentro do escopo da presente invenção, consiste em vários tubos de pressão, concêntricos, abrigados (12), de aço Fecralloy, cada de espessura de parede 0,5 mm (somente quatro são mostrados na figura, mas o número de tubos (12) pode, na prática, ser, digamos, quinze ou dezesseis). O tudo mais interno (12) contém um elemento aquecedor elétrico (14). Como mostrado na Figura 2, os canais anulares (15) entre os tubos (12) têm neles dispostas folhas (16) de aço Fecralloy corrugado, cujas corrugações são tipicamente de 2,0 mm de altura (pico a pico) com um passo de 2,0 mm.

Quando todos os tubos (12) e folhas corrugadas (16) são montados, as superfícies dos primeiro, terceiro, quinto, etc. canais anulares (15a) são revestidas com um sol de zircônio, e as superfícies dos segundo, quarto, sexto, etc., canais anulares (15b) são revestidas com um sol de alumínio. Isto pode ser realizado por bloqueio temporário da extremidade de um conjunto de canais anulares, por exemplo com cera, e imergindo o conjunto no sol apropriado. O conjunto é secado lentamente e então sinterizado, por exemplo em um forno a ar, elevado a temperatura a, por exemplo, 1.100 °C, durante um período de quatro horas e, então, mantendo nesta temperatura por mais quatro horas. Após resfriamento do conjunto revestido, materiais catalisadores são então introduzidos, por exemplo, na forma de um sal do material apropriado; paládio é introduzido sobre o revestimento de zircônio nos canais (15a) e ródio é introduzido no revestimento de alumínio nos canais (15b) neste exemplo. Os metais catalisadores são então formados por tratamento

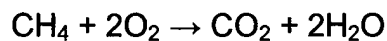
térmico para decompor (ou reduzir) o sal.

Tampas terminais anulares (18) são então soldadas a laser sobre as extremidades de cada canal anular (15), cada tampa terminal (18) se comunicando com um duto de entrada ou saída (20). O diâmetro externo do reator resultante (10) tem 50 mm e um comprimento de 500 mm.

O reator (10) é particularmente apropriado para realizar a reforma a vapor de metano, isto é, a reação:



Essa reação é endotérmica, sendo catalisada pelo catalisador de ródio nos canais (15b). O calor requerido para causar essa reação pode ser provido por combustão de metano, isto é:



que é uma reação exotérmica e é catalisada pelo catalisador paládio nos canais (15a). O calor gerado por esta reação de combustão é conduzido através das paredes dos tubos (12) nos canais adjacentes (15b). Assim, em uso, o reator (10) é inicialmente aquecido usando o elemento aquecedor elétrico (14). Uma mistura de metano e ar é, então, suprida para todos os canais (15a) em pressão aproximadamente atmosférica, onde sofre uma combustão catalítica. Uma mistura de vapor e metano é suprida para os canais alternados (15b), onde ocorre a reação de reforma a vapor/metano; a mistura de metano e vapor está preferivelmente em pressão elevada, uma vez que ela aumenta a taxa de fluxo de massa e, assim, permite que seja tratada uma maior quantidade de gás metano. Por exemplo, estes canais (15b) podem estar em uma pressão de 1 MPa.

A mistura de gases produzida pela reforma a vapor de metano pode ser então usada para realizar a síntese Fischer-Tropsch, isto é:



que é uma reação exotérmica, ocorrendo em temperatura elevada, por exemplo 320 °C, e uma pressão elevada (por exemplo 1,8 - 2,2 MPa) na

presença de um catalisador como ferro, cobalto ou magnetita fundida, que é um promotor de potássio. A natureza exata dos compostos orgânicos formados pela reação depende da temperatura, da pressão e do catalisador, assim como a relação de monóxido de carbono para hidrogênio. O calor desprendido por esta reação de síntese pode ser usado para prover, pelo menos, parte do calor requerido pela reação de reforma a vapor de metano, por exemplo um fluido de transferência de calor, como hélio, pode ser usado para transferir o calor de um reator em que a síntese Fischer-Tropsch está ocorrendo, o calor sendo usado para pré-aquecer pelo menos uma das correntes dos gases supridos para o reator (10).

Com referência agora à Figura 3, o processo químico global é mostrado como um fluxograma. A maior parte dos fluidos estão em uma pressão elevada de 10 bars (1 MPa). O gás de alimentação (24) consiste primariamente, de metano, com uma pequena porcentagem (digamos 10%) de etano e propano a 10 bars. Ele é passado através de um trocador térmico (25), de modo que está a cerca de 400 °C, e é então suprido, via um misturador de vórtice fluído (26) para um primeiro reator catalítico (28); no misturador (26), o gás de alimentação é misturado com uma corrente de vapor que está também em cerca de 400 °C e 10 bars, estas correntes entrando no misturador (26) através de entradas tangenciais e seguindo um trajeto em espiral para uma saída axial, se tornam completamente misturadas. A primeira parte do reator (28) é um pré-reformador (29) com um catalisador de metanação de níquel a 400 °C, em que os alcanos superiores reagem com o vapor para formar metano (e monóxido de carbono). A segunda parte do reator (28) é um reformador (30) com um catalisador de platina/ródio, em que o metano e vapor reagem para formar monóxido de carbono e hidrogênio. Essa reação pode ser realizada a 800 °C, o calor sendo provido por combustão de metanol sobre um catalisador de paládio (ou platina). Os gases quentes do reformador (30) são então resfriados bruscamente por passagem através de um trocador de calor (31) para prover o vapor quente que é suprido para o misturador de vórtice (26) e então através do trocador térmico (25), em que eles perdem calor para o gás de alimentação.

A corrente de monóxido de carbono e hidrogênio é então suprida para um terceiro reator (32) em que o monóxido de carbono e hidrogênio reagem, sofrendo síntese Fischer-Tropsch para formar uma parafina ou

composto similar. Essa reação é exotérmica, preferivelmente ocorrendo em cerca de 350 °C, e o calor é usado para pré-aquecer o vapor suprido ao trocador de calor (31), usando um fluido de troca de calor como hélio, circulado entre os canais de troca de calor no reator (32) e o gerador de vapor (33).

5 Durante esta síntese, o volume dos gases diminui, de modo que esse processo também é realizado e pressão elevada de 10 bars. Os gases resultantes são então passados em um condensador (34) em que eles trocam calor com água inicialmente a 25 °C. Os alcanos superiores (digamos C<sub>5</sub> e acima) condensam como um líquido, como ocorre com água, essa mistura de líquidos sendo  
10 passada para um separador por gravidade (35); os alcanos superiores separados podem ser então removidos como o produto desejado, enquanto a água é retornada via os trocadores de calor (33 e 31) para o misturador (26). Quaisquer alcanos inferiores ou metano, e hidrogênio restante, passam através do condensador (34) e são então supridos para um condensador refrigerado  
15 (36) em que os gases e vapores são resfriados a cerca de 5 °C. Os gases remanescentes, consistindo primariamente de hidrogênio, dióxido de carbono, metano e etano, são passados através de uma válvula de ventilação (37) que alivia a pressão para uma abertura (38). Os vapores condensados, consistindo primariamente de propano, butano e água, são passados para um separador  
20 por gravidade (39), do qual a água é combinada com a água reciclada do separador (35), enquanto os alcanos são reciclados para a entrada do reator Fischer-Tropsch (32).

A temperatura para as quais os vapores são abaixados no primeiro condensador (34) determina os pesos moleculares dos alcanos que  
25 são condensados, e assim emerge como o produto. Assim, por mudança da temperatura da água suprida para o condensador (34), as características do produto podem ser modificadas. O esquema de reação acima se baseia na relação de vapor/metano estando próxima da exigência estequiométrica para o reformador (30), o catalisador de ródio sendo particularmente resistente a  
30 coqueificação; isto tem o benefício de que quantidades negligenciáveis de dióxido de carbono são formadas no reformador (30), de modo que é desnecessário ainda tratar os gases (usando a reação de troca reversa de água/gás) para converter dióxido de carbono de volta ao monóxido de carbono. Será apreciado que se o gás de alimentação consistir apenas de metano, então  
35 o pré-reformador (29) pode ser dispensado.



Quando usado desse modo, o resultado global dos processos é que metano é convertido em hidrocarbonetos de maior peso molecular que são tipicamente líquidos em pressões e temperaturas ambientes. Os processos podem ser usados em um poço de óleo ou gás para converter gás natural em um hidrocarboneto líquido que é mais fácil de se transportar.

Será apreciado que o reator (10) das Figuras 1 e 2 pode ser usado para realizar vários processos químicos, e que o catalisador dentro de cada canal (15) deve ser apropriado para o processo correspondente.

Com referência agora à figura 4, um reator (40) segundo a presente invenção compreende uma pilha de chapas (42), cada uma de aço Fecralloy, neste caso, as chapas tendo 200 mm<sup>2</sup> e 3 mm de espessura (na figura somente são mostradas, em secção, partes das duas chapas). Os sulcos (44) de largura de 8 mm e profundidade de 2,5 mm se estendem através de toda a largura de cada chapa (42) paralela a um lado, separadas por espaços cheios (45) de largura de 3 mm, os sulcos (44) sendo usinados. Uma folha veículo (46) de aço Fecralloy de 50 µm de espessura, revestida com um revestimento cerâmico e contendo um material catalisador e corrugações de 2,5 mm de altura, está localizada em cada um desses sulcos (44). Uma pilha dessas chapas (42), com as folhas de catalisador (46), é montada, a orientação dos sulcos (44) diferindo em 90° em chapas sucessivas (42), sendo coberta com uma chapa de topo plana de aço Fecralloy; a pilha é então unida em conjunto por difusão, por aquecimento da pilha a uma temperatura na faixa de 600 °C a 1200 °C em uma atmosfera inerte. A pilha de chapas pode ser provida com coletores, nesse estágio ou subseqüentemente. Assim, os canais de fluxo de gás são definidos pelos sulcos (44), um conjunto de canais se estendendo, digamos, da direita para a esquerda na pilha, e o outro conjunto de canais (em chapas alternadas (42)) se estendendo da frente para a parte de trás da pilha.

Deve ser entendido que o tipo de cerâmica depositada sobre as folhas corrugadas (46) nos canais de fluxo de gás pode ser diferente em chapas sucessivas (42) na pilha, e que os materiais de catalisador também podem ser diferentes. Por exemplo (como com o reator (10) das Figuras 1 e 2), a cerâmica pode compreender alumina em um dos canais de fluxo de gás e zircônio nos outros canais de fluxo de gás.

Preferivelmente, após ligação por difusão, a pilha de chapas (42) é então mantida em cerca de 900 °C enquanto passando uma corrente de gás

oxidante através de todos os sulcos (44) definindo os canais de fluxo de gás. Isto promove a formação de uma camada de óxido rica em alumínio sobre as superfícies dos canais. Após essa etapa de oxidação, a pilha é resfriada em temperatura ambiente, e uma suspensão aquosa de sol de zircônio ou de alumínio é bombeada através dos sulcos (44) e então deixada drenar (assim deixando um revestimento de sol sobre as paredes dos canais); a viscosidade da suspensão de sol pode ser ajustada ou por mudança de seu pH ou por concentração, e a remoção de excesso de sol pode se basear em drenagem sob gravidade, ou pode requerer bombeamento, dependendo da viscosidade. A pilha é então sinterizada em uma atmosfera oxidante a uma temperatura de, por exemplo, aproximadamente 800 °C, de modo que as partículas de sol de alumina sinterizam sobre a camada de óxido na superfície do aço Fecralloy, assim formando uma camada cerâmica de catalisador - veículo. Esta camada tem desejavelmente uma espessura na faixa de 10 - 50 µm, e as etapas de revestimento com o sol apropriado e então sinterizações podem ser repetidas, se necessário, para obter a desejada espessura. Finalmente, uma solução de um sal de metal catalítico apropriado é bombeada através dos canais (44), e a pilha é então secada e termicamente tratada em uma atmosfera redutora (ou oxidante) para produzir a forma desejada de metal catalisador disperso na camada cerâmica de veículo dentro dos canais de fluxo de gás (44).

Com relação ao reator (10), o reator formado com as chapas (42) deve ser apropriado para realizar a reforma a vapor do metano, por exemplo, usando um catalisador de ródio. O calor requerido para causar esta reação pode ser provido por combustão de metano, que pode ser catalisado por um catalisador de paládio. Uma vez que as chapas (42) formando a pilha são ligadas juntas, os canais de fluxo de gás são estanques a gás (além da comunicação com os coletores em cada extremidade), e as pressões nos canais de fluxo de gás alternados também podem ser diferentes, como mencionado com relação ao reator (10).

Será apreciado que os benefícios dessas passagens estreitas de fluxo de gás incluem o fato dos comprimentos do trajeto de difusão serem curtos, e que as taxas de transferência de calor e massa são aumentadas porque se tem um menor efeito da camada de limite. Assim, a taxa de reação química, que requer difusão da espécie de reação em contato com as superfícies catalíticas, é aumentada, e também a taxa de transferência de calor

entre a reação exotérmica e a reação endotérmica é também aumentada. Consequentemente, esses reatores catalíticos podem prover uma alta densidade da potência.

Como descrito acima, os revestimentos cerâmicos podem ser depositados de um material na forma de um sol, isto é, uma dispersão contendo partículas com um tamanho de partícula entre 1 nm e 1  $\mu$ m. Para um sol particular, como sol de alumínio, o modo em que o sol é preparado determina o tamanho da partícula. Alguns sóis de alumínio têm partículas individuais como as partículas de sol primárias (assim chamadas não agregadas), enquanto alguns sóis de alumínio têm partículas de sol que são agregados de partículas menores. Em geral, o tipo agregado de sol irá dar um revestimento cerâmico mais poroso do que um sol não agregado. Assim, por seleção do tipo de sol usado, ou por misturação de várias quantidades de diferentes tipos de sol, a porosidade do revestimento cerâmico pode ser controlada. A atividade catalítica do revestimento cerâmico pode ser controlada por ajuste da porosidade da cerâmica e a carga do material catalítico. Quando fabricando um reator catalítico para realizar uma reação muito exotérmica, pode ser desejável ajustar a atividade catalítica ao longo do trajeto de fluxo, por exemplo para prover, inicialmente, uma baixa atividade catalítica, e uma maior atividade catalítica ainda ao longo do trajeto de fluxo, de modo a evitar a formação de pontos quentes. Isto pode ser, por exemplo, apropriado no caso de reatores para realizar sínteses Fischer-Tropsch. Quando usando um sol de zircônio para formar um revestimento cerâmico de zircônio, considerações similares se aplicam; e além disso, pode ser desejável incluir cátions, como ítrio, de modo a formar zircônio estabilizado, particularmente onde o revestimento cerâmico pode alcançar altas temperaturas durante a operação, uma vez que o zircônio estabilizado dá uma área superficial estável.

Com referência novamente à Figura 4, será notado que os canais de fluxo de gás (44) podem variar em largura e profundidade ao longo de seu comprimento, de modo a variar as condições de fluxo de fluido, os coeficientes de transferência de massa e calor, de modo a controlar as reações químicas em diferentes locais dentro do reator (40). Isto é particularmente aplicável em um reator para síntese Fischer-Tropsch, em que o volume de gás diminui, como por afunilamento apropriado dos canais (44), a velocidade do gás pode ser mantida à medida que prossegue a reação. Além disso, o passo ou padrão

de folhas corrugadas (46) pode variar ao longo de um canal de reator (44) para ajustar a atividade catalítica e, assim, prover o controle sobre as temperaturas ou taxas de reação em diferentes pontos no reator (40). As folhas corrugadas (46) também podem ser conformadas, por exemplo, com perfurações, para

5

Com referência agora à Figura 5, um reator alternativo (70) compreende uma pilha de chapas de aço Fecralloy (71), cada chapa sendo geralmente retangular, com 125 mm de comprimento e 82 mm de largura e 2 mm de espessura. Ao longo da porção central de cada chapa (71), sete sulcos retangulares paralelos (72) são usinados, cada um com profundidade de 0,75 mm, com um sulco de coletor (74) da mesma profundidade em cada extremidade, o sulco do coletor (74) se estendendo para uma borda lateral da chapa (71). Na superfície de topo da chapa (71), mostrada na referida Figura 5, o sulco do coletor (74) no fundo se estende para a borda à direita da chapa (71), enquanto que, na extremidade de topo, se estende para a borda à esquerda da chapa (71). Os sulcos na superfície oposta da chapa (71) são idênticos, mas os coletores (indicados em linhas interrompidas) se estendem para lados opostos da chapa (71). Chapas sucessivas (71) têm seus sulcos dos coletores (74) dispostos em imagem de espelho, de modo que sulcos adjacentes (74) se estendem para o mesmo lado da pilha. Dentro de cada sulco retangular (72) são dispostas três folhas corrugadas de Fecralloy (76 a, b e c), cada com 50  $\mu$ m de espessura e com corrugações de 1,8 mm de altura, mas diferindo no passo ou comprimento de onda de suas corrugações. Para assegurar alinhamento preciso das chapas (71) durante a montagem, furos (75) são providos em cada extremidade em que os pinos estão localizados. A pilha de chapas (71) e folhas (76) é montada e comprimida durante a ligação por difusão, de modo que as folhas são comprimidas em 1,5 mm em altura. As câmaras de pressão de fluxo de gás (78) são então submetidas a brasagem sobre a pilha em cada canto, cada câmara (78) se comunicando com um conjunto de sulcos dos coletores (74).

10

15

20

25

30

Com referência agora à Figura 6, um reator alternativo (80) tem algumas similaridades com o reator (70) ao compreender uma pilha de chapas de aço Fecralloy (81), cada chapa sendo geralmente retangular, com 125 mm de comprimento e 90 mm de largura e 2 mm de espessura. Ao longo da porção central de cada chapa (81), sete sulcos retangulares paralelos (82) são

35

usinados, cada com 4 mm de largura e 0,75 mm de profundidade, e em uma separação de 5 mm, com um sulco de coletor (84) da mesma profundidade em cada extremidade, o sulco do coletor (84) se estendendo para uma abertura do coletor (83) próxima de uma borda lateral da chapa (81). Na superfície de topo da chapa (81), mostrada na referida Figura 6, o fluxo de gás passa, assim, da abertura (83) no fundo à esquerda para a abertura (83) no topo à direita. Os sulcos na superfície oposta da chapa (81) são idênticos, mas os coletores (indicados em linhas interrompidas) se estendem das aberturas dos coletores (87) próximas aos lados opostos da chapa (81). Chapas sucessivas (81) têm seus sulcos de coletores (84) em disposições em imagem de espelho, de modo que sulcos adjacentes (84) se comunicam com os mesmos pares de aberturas de coletores (83 ou 87). Dentro de cada sulco retangular (82) estão três folhas corrugadas de Fecralloy (86 a, b e c), cada com 50 µm de espessura e com suas corrugações de 1,8 mm de altura, mas diferindo no passo ou comprimento de onda de suas corrugações. Para assegurar o alinhamento preciso das chapas (81) durante a montagem, furos (85) são providos em cada extremidade em que estão localizados pinos. A pilha de chapas (81) e folhas (86) é montada e comprimida durante a ligação por difusão, de modo que as folhas são comprimidas a 1,5 mm na altura. As conexões de câmaras de pressão de fluxo de gás são, então, feitas com as aberturas (83 e 87) no topo da pilha, sendo fechadas no fundo da pilha. Não somente o reator (80) difere do reator (70) ao ter coletores integrais definidos pelas aberturas (83 e 87) (em vez das câmaras de pressão (78)), mas, além disso, sete fendas (88) através das chapas grossas (81) são definidas em cada patamar entre os sulcos retangulares (82), cada fenda (82) tendo 1 mm de largura e 6 mm de comprimento. Após montagem da pilha, essas fendas (88) provêem um trajeto de fluxo para uma terceira corrente de gás, por exemplo, para o pré-aquecimento da corrente de gás.

## **REIVINDICAÇÕES**

1. REATOR CATALÍTICO (40, 70, 80), caracterizado pelo fato de compreender uma pilha compreendendo uma pluralidade de chapas finas de metal (42, 71, 81), a pilha sendo ligada e definindo uma pluralidade de primeiros canais de fluxo (44, 72, 82) lado-a-lado entre chapas adjacentes e uma pluralidade de segundos canais de fluxo (44, 72, 82) lado-a-lado entre chapas adjacentes, de modo que os primeiros canais de fluxo e os segundos canais de fluxo podem transportar fluidos diferentes, e de modo que se tenha um bom contato térmico entre os fluidos nos primeiros e nos segundos canais de fluxo, sendo que a pilha provê uma estrutura de modo que os fluidos nos primeiros e nos segundos canais de fluxo possam diferir em pressão; sendo ainda que existe uma folha de metal corrugado não estrutural suporte de catalisador (46, 76, 86) em tais canais de fluxo nos quais ocorre uma reação, a dita folha de metal corrugado suportando o catalisador para a referida reação.

2. REATOR CATALÍTICO, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que as folhas de metal corrugadas (46, 76, 86) são revestidas com uma camada de material cerâmico.

3. REATOR CATALÍTICO (40, 70, 80), caracterizado pelo fato de compreender uma pilha compreendendo uma pluralidade de chapas finas de metal (42, 71, 81), a pilha sendo ligada e definindo uma pluralidade de primeiros canais de fluxo (44, 72, 82) lado-a-lado entre chapas adjacentes e uma pluralidade de segundos canais de fluxo (44, 72, 82) lado-a-lado entre chapas adjacentes, de modo que se tenha um bom contato térmico entre os fluidos nos primeiros e segundos canais de fluxo e de modo que diferentes fluidos podem ser supridos aos primeiros e segundos canais de fluxo; cada canal de fluxo sendo estanque ao fluido ao longo de seu comprimento; e em que são dispostos substratos de metal não estrutural suporte de catalisador (46, 76, 86) que permitem o fluxo transpassante do fluido nestes canais em que ocorre uma reação; o substrato de metal suportando o catalisador para a referida reação, e o substrato de metal compreendendo um aço ferrítico contendo alumínio.

4. REATOR CATALÍTICO, de acordo com a reivindicação 3, caracterizado pelo fato do substrato de metal (46, 76, 86) compreender uma folha de metal corrugado.

5. REATOR CATALÍTICO (40, 70, 80) compreendendo uma pluralidade de chapas de metal (42, 71, 81) dispostas para definir primeiros canais de fluxo de gás (44, 72, 82) entre chapas adjacentes, meios para definir segundos canais de fluxo de gás (44, 72, 82) em proximidade com os primeiros

canais de fluxo de gás, dispostos de modo a assegurar um bom contato térmico entre os gases nos primeiros e segundos canais de fluxo de gás, material catalítico em pelo menos algumas superfícies dentro de cada canal de fluxo, e coletores (74, 84) para suprir misturas de gás para os canais de fluxo de gás, os coletores sendo dispostos de modo a suprir diferentes misturas de gás para os primeiros e os segundos canais de fluxo de gás, as chapas de metal sendo substancialmente planas e os canais de fluxo de gás sendo definidos por sulcos (44, 72, 82) nos mesmos, de modo que os gases nos primeiros e segundos canais de fluxo de gás podem diferir em pressão por várias atmosferas, e as porções da chapa (45) entre os sulcos (44, 72, 82) estando em contato com a chapa de metal (42, 71, 81) adjacente e, assim, provendo contato térmico, sendo as chapas de metal ligadas juntas como uma pilha, de tal forma que cada canal de fluxo de fluido é comprimido ao longo do seu comprimento caracterizado por compreender folhas corrugadas (46, 76, 86) providas nos canais de fluxo de gás, ditas folhas sendo de um aço ferrítico contendo alumínio que forma um revestimento de óxido aderente de alumínio quando aquecido no ar, e tendo o material catalítico sobre suas superfícies.

6. REATOR CATALÍTICO, de acordo com a reivindicação 5, caracterizado pelo fato do material catalítico compreender uma camada de material cerâmico.

7. REATOR CATALÍTICO, de acordo com as reivindicações 1, 2, 4, 5 ou 6, caracterizado pelo fato das folhas de metal corrugadas (46, 76, 86) são comprimidas dentro dos canais de fluxo (44, 72, 82).

8. REATOR CATALÍTICO, de acordo com as reivindicações 1 ou 2 ou qualquer uma das reivindicações 4 a 7, caracterizado pelo fato das corrugações (76a, 76b, 76c, 86a, 86b, 86c) possuindo diferentes passos, comprimentos de onda e padrões, são providas em sucessivas posições ao longo do canal de fluxo.

9. REATOR CATALÍTICO, de acordo com as reivindicações 1 ou 2 ou qualquer uma das reivindicações 4 a 8, caracterizado pelo fato de que as folhas corrugadas são moldadas para promoverem a mistura do fluido dentro do canal de fluxo.

10. REATOR CATALÍTICO, de acordo com qualquer das reivindicações precedentes, caracterizado pelo fato de que pelo menos alguns dos canais de fluxo de gás variam em largura ou profundidade ao longo do seu comprimento.

11. REATOR CATALÍTICO, de acordo com as reivindicações 3 ou 4, caracterizado pelo fato de que o substrato de metal é revestido por uma camada de material cerâmico.

5 12. REATOR CATALÍTICO, de acordo com a reivindicação 2 ou qualquer uma das reivindicações 5 a 11, caracterizado pelo fato de que a camada de cerâmica é de espessura entre 10 e 50 microns.

13. REATOR CATALÍTICO, de acordo com a reivindicação 2 ou qualquer uma das reivindicações 5 a 12, caracterizado pelo fato de que o material cerâmico compreende alumina.

10 14. REATOR CATALÍTICO, apropriado para realizar a reforma a vapor de metano, o reator sendo um reator catalítico como definido na reivindicação 2 ou qualquer uma das reivindicações 5 a 13, caracterizado pelo fato de que, nos primeiros canais de fluxo, o material cerâmico compreende zircônia com um catalisador para uma reação de combustão, enquanto que,  
15 nos segundos canais de fluxo, o material cerâmico compreende alumina com um catalisador para a reação de reforma.

15 15. REATOR CATALÍTICO, de acordo com qualquer das reivindicações precedentes, caracterizado pelo fato de que os primeiros canais de fluxo compreendem um catalisador para reação de combustão, o catalisador  
20 para reação de combustão compreendendo paládio ou platina sobre o material cerâmico.

25 16. REATOR CATALÍTICO (40), de acordo com qualquer das reivindicações precedentes, caracterizado pelo fato de que as direções de fluxo nos primeiros e nos segundos canais de fluxo (44) estão em direções transversais.

17. REATOR CATALÍTICO (70, 80), de acordo com qualquer das reivindicações 1 a 15, caracterizado pelo fato de que as direções de fluxo nos primeiros e nos segundos canais de fluxo (72, 82) estão em direções paralelas.

30 18. REATOR CATALÍTICO (70), de acordo com a reivindicação 17, caracterizado pelo fato de que as chapas de metal (71) são retangulares, e o reator compreender pelo menos um par de câmaras (78) fixadas aos lados opostos da pilha e adjacentes às extremidades opostas da pilha, cada câmara (78) comunicando-se com um conjunto de canais de fluxo (72) via respectivos  
35 canais coletores (74), também definidos entre as chapas adjacentes da pilha, o par de câmaras (78) permitindo que o fluido seja suprido para, e retirado de, um conjunto de canais de fluxo (72).



19. REATOR CATALÍTICO, de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes, caracterizado pelo fato de que nos canais de fluxo para uma reação exotérmica a atividade catalítica é ajustada ao longo do trajeto de fluxo de modo a prover uma atividade catalítica inicialmente baixa, e uma alta atividade catalítica adicional ao longo do trajeto de fluxo.

20. MÉTODO DE REALIZAR REAÇÕES QUÍMICAS ENTRE GASES, caracterizado pelo fato de ser realizado em um reator catalítico (40, 70, 80) conforme definido nas reivindicações precedentes, onde uma mistura de gases suprida para os primeiros canais de fluxo de gás é diferente da mistura de gases suprida para os segundos canais de fluxo de gás, cada mistura de gases sofrendo uma reação, sendo uma das reações endotérmica, enquanto a outra reação é exotérmica, de modo que o calor seja transferido entre os canais adjacentes.

21. MÉTODO, de acordo com a reivindicação 20, caracterizado pelo fato de que a reação endotérmica é reforma a vapor de metano.

22. MÉTODO, de acordo com a reivindicação 21, caracterizado pelo fato de que a reação de reforma é realizada em pressão elevada entre 200 kPa e 2 MPa.

23. PROCESSO PARA CONVERTER METANO EM HIDROCARBONETOS DE MAIOR PESO MOLECULAR, caracterizado pelo fato de compreender submeter o metano à reforma a vapor em um reator (28, 30) contendo um catalisador para reforma a vapor, em que o calor requerido para a reação é provido por combustão ocorrendo em um canal adjacente no reator (28, 30); submetendo a mistura de gás resultante à síntese Fischer-Tropsch em uma pressão elevada em um reator (32) contendo um catalisador para a reação de síntese Fischer-Tropsch; condensar (34) componentes líquidos da mistura de fluido resultante da síntese Fischer-Tropsch e dela separar (35) o hidrocarboneto líquido; sendo que pelo menos um dos referidos reatores (30, 32) compreende um reator catalítico (40, 70, 80) como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 19.

24. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 23, caracterizado pelo fato de ser realizada em um poço de óleo ou gás para converter gás natural em um hidrocarboneto líquido.

25. PROCESSO, de acordo com a reivindicação 23 ou 24, caracterizado pelo fato de também compreender a transferência do calor (33) desprendido durante a síntese de Fischer-Tropsch para pré aquecer um gás suprido para o primeiro reator catalítico (28, 30).

26. PROCESSO, de acordo com qualquer das reivindicações 23 a 25, caracterizado pelo fato de também compreender a transferência de calor (31) da mistura de gases resultante da reforma a vapor de metano para pré-aquecer um gás suprido para o primeiro reator catalítico (28, 30).

27. PROCESSO, de acordo com qualquer das reivindicações 23 a 26, caracterizado pelo fato de também compreender extrair (39) hidrocarbonetos de cadeia curta da mistura de fluido resultante da síntese Fischer-Tropsch e recircular estes hidrocarbonetos de cadeia curta para o segundo reator catalítico (32) para sofrer, novamente, síntese Fischer-Tropsch.

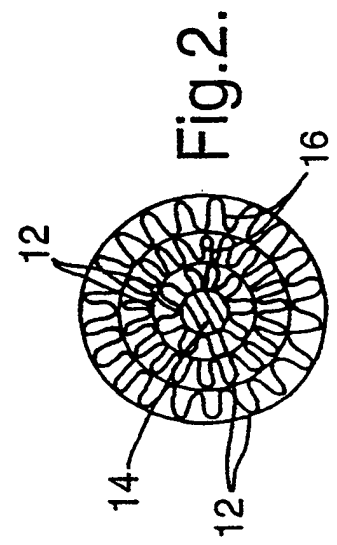
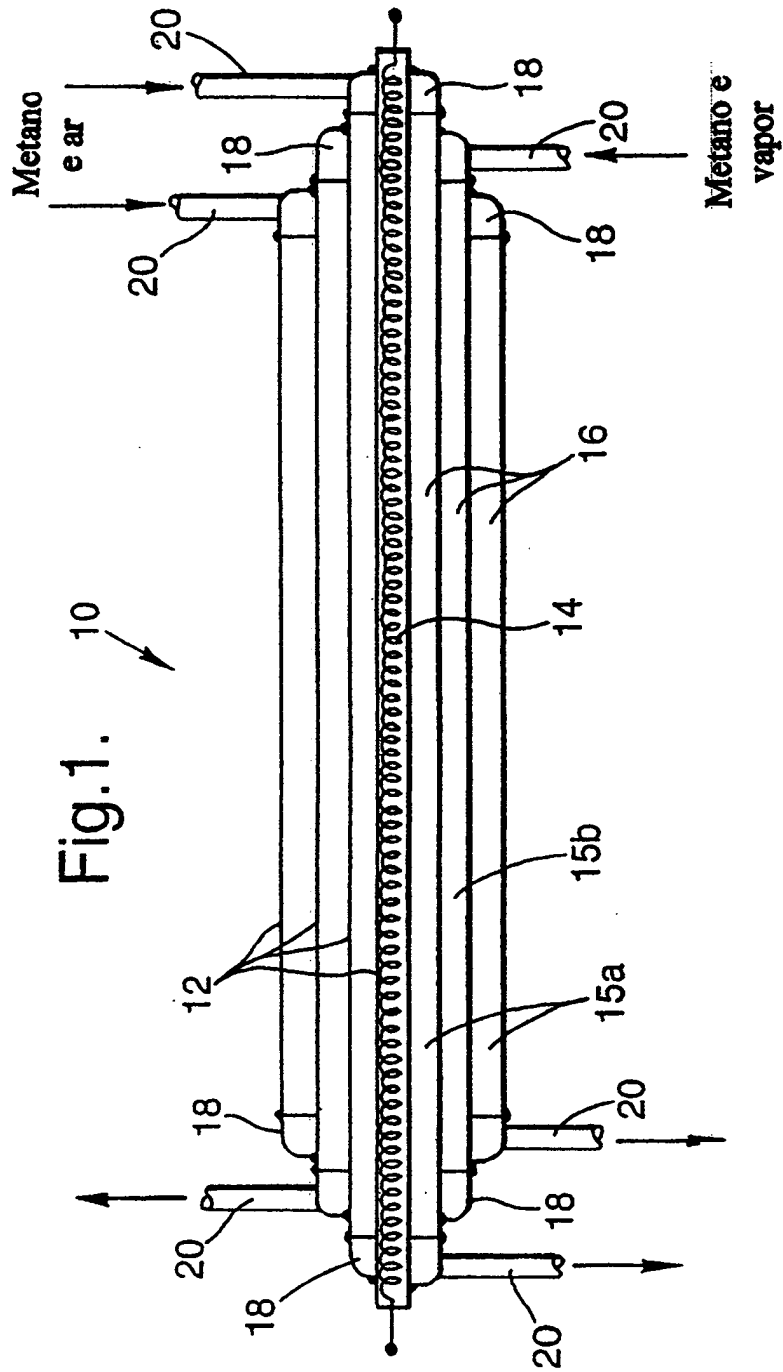


Fig.3.

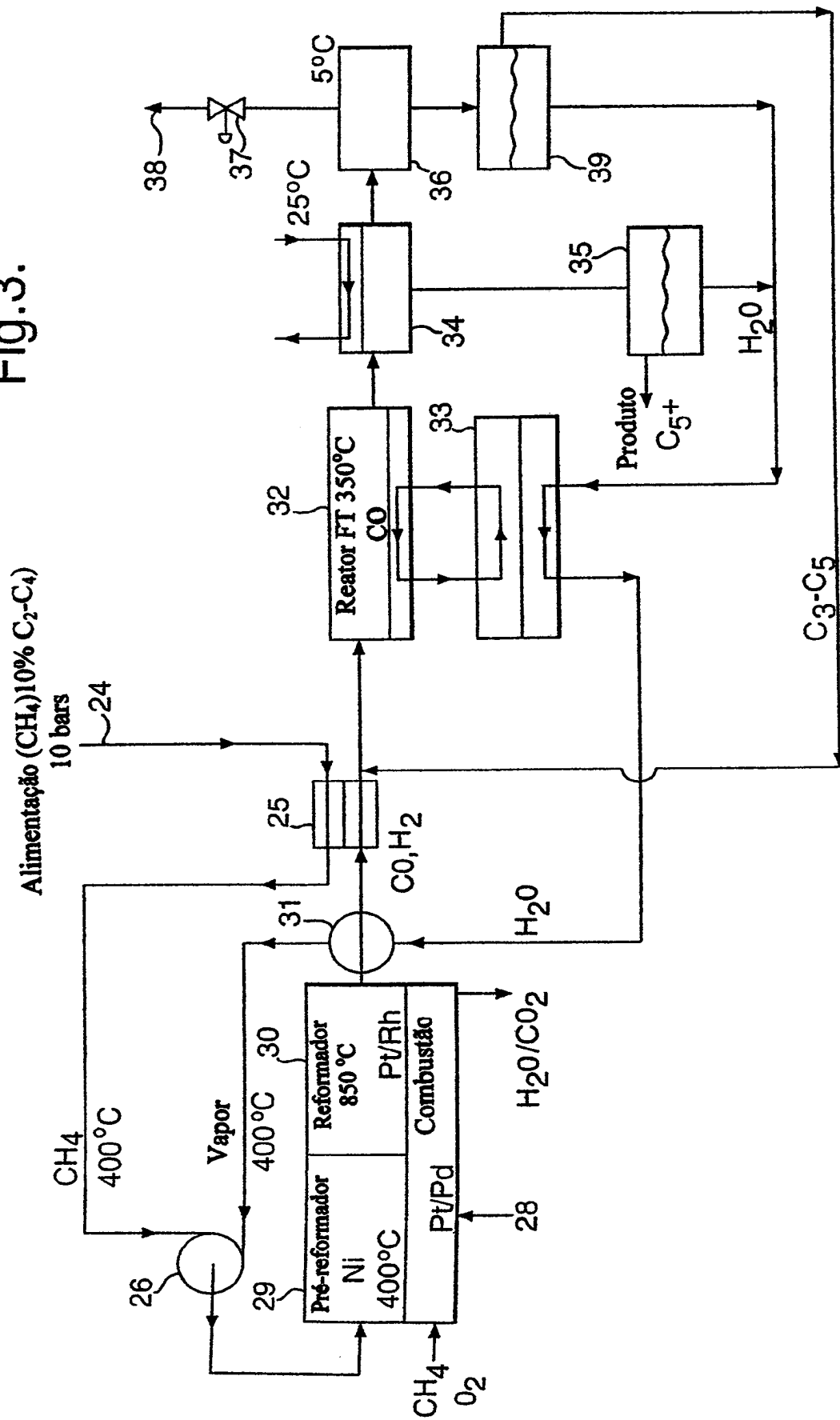
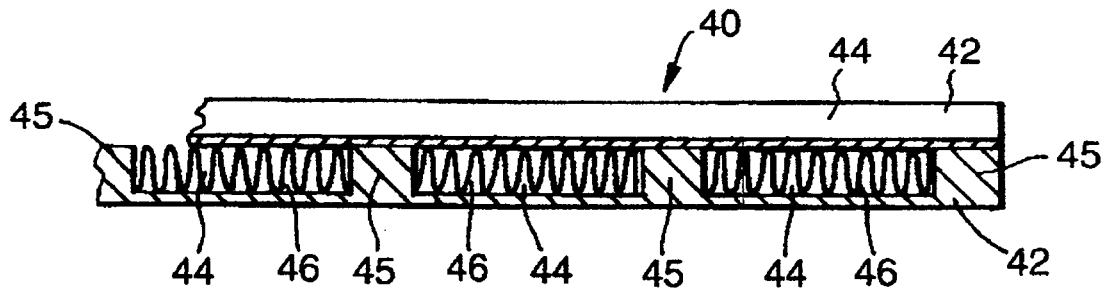
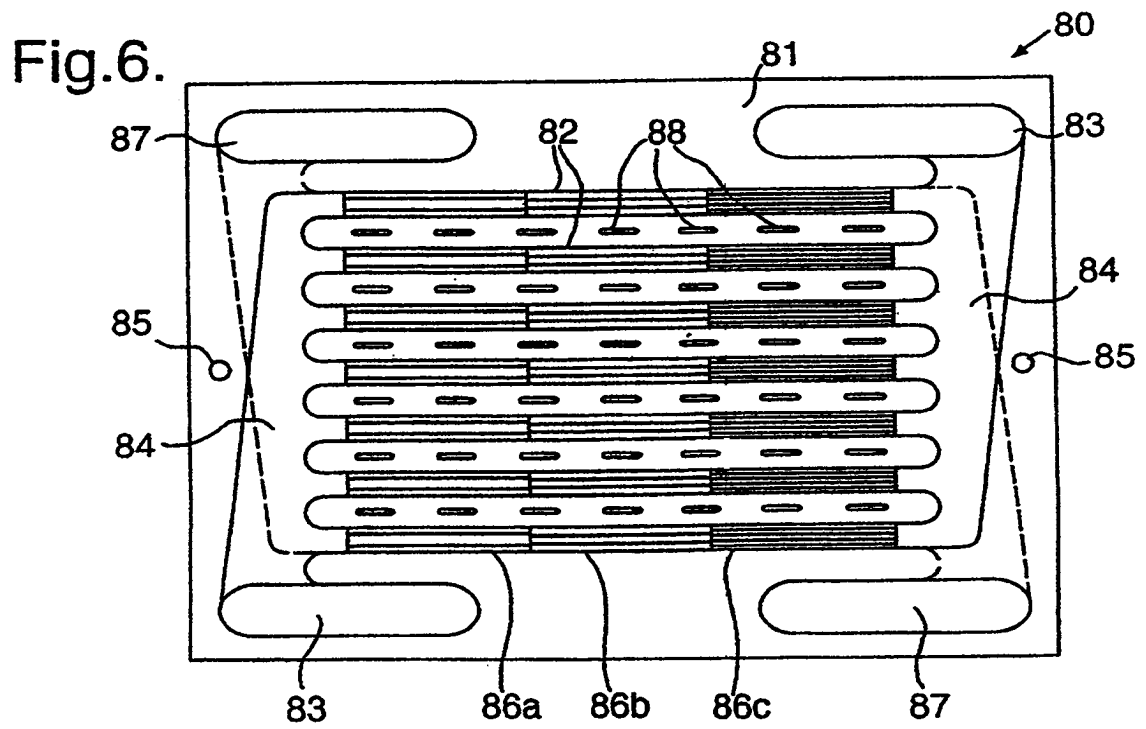
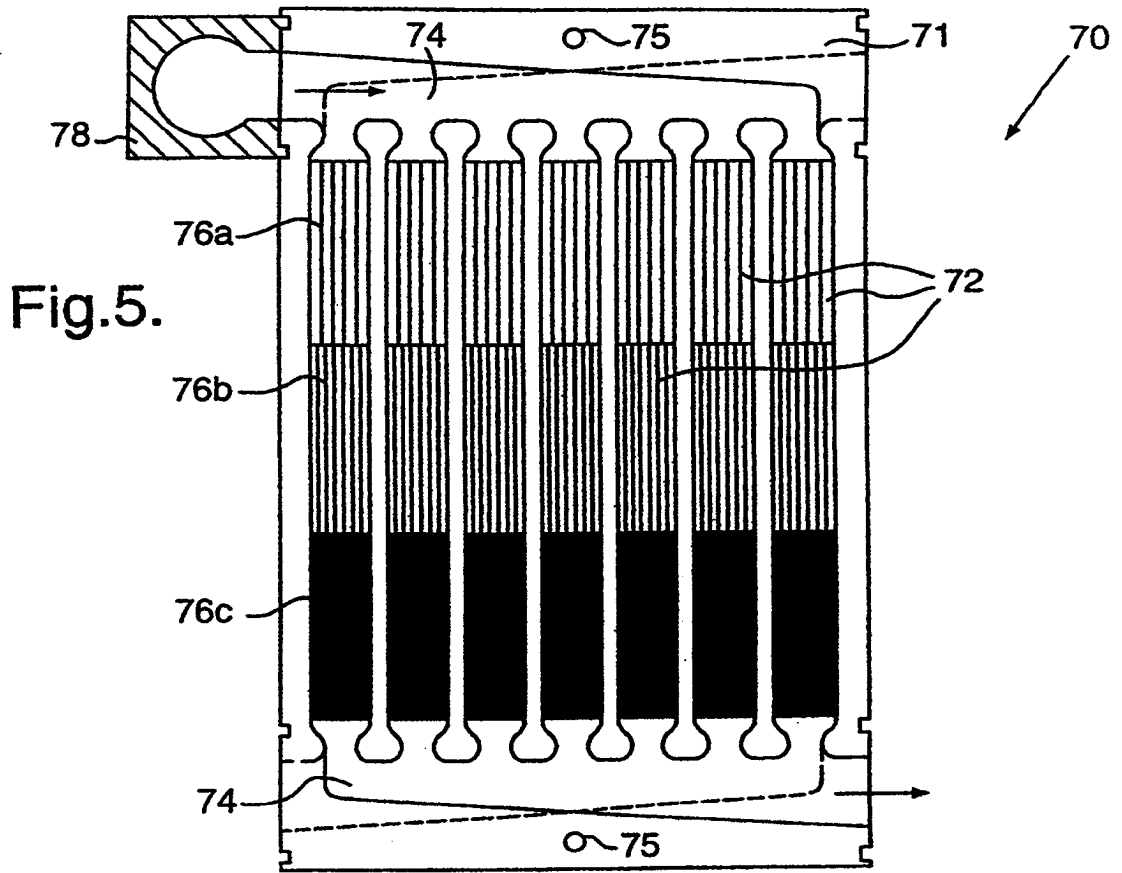


Fig.4.





**RESUMO****"REATOR CATALÍTICO, MÉTODO PARA REALIZAR REAÇÕES QUÍMICAS ENTRE GASES E PROCESSAMENTO DE METANO"**

5 A presente invenção trata de um reator catalítico, apropriado para uso na realização de reações em fase gasosa em pressões elevadas e, particularmente, mas não exclusivamente, para realizar reações endotérmicas. Além disso, a presente invenção trata de processo químico usando o referido reator catalítico.

10 O reator catalítico segundo a presente invenção compreende basicamente uma pilha de chapas (42), possuindo sulcos (44) que se estendem através de toda sua largura paralela a um lado, separadas por espaços cheios (45). Uma folha de veículo (46) contendo um material catalisador é provida em cada um dos sulcos (44). O reator pode ser usado em uma planta compacta para realizar a reforma a vapor de metano, obtendo o  
15 calor necessário pela combustão catalítica de metanol, e também para síntese Fischer-Tropsch.