



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

(21) PI 0812716-6 A2



(22) Data do Depósito: 12/06/2008

(43) Data da Publicação Nacional: 18/12/2008

(54) **Título:** PROCESSOS PARA CARREGAR UM REATOR COM UM LEITO DE CATALISADOR FIXO, E PARA REMOVER PELO MENOS PARCIALMENTE FRAGMENTOS QUE SE FORMARAM NA PREPARAÇÃO DE CORPOS CONFORMADOS DE CATALISADOR, E, USO DO RESÍDUO DA PENEIRA

(51) **Int. Cl.:** B01J 37/00; B07B 1/46.

(30) **Prioridade Unionista:** 15/06/2007 DE 10 2007 028 332.8; 15/06/2007 US 60/944208.

(71) **Depositante(es):** BASF SE.

(72) **Inventor(es):** ANDREAS RAICHLE; HOLGER BORCHERT; KLAUS JOACHIM MÜLLER-ENGEL; HAGEN WILMER; CORNELIA DOBNER; ULRICH CREMER.

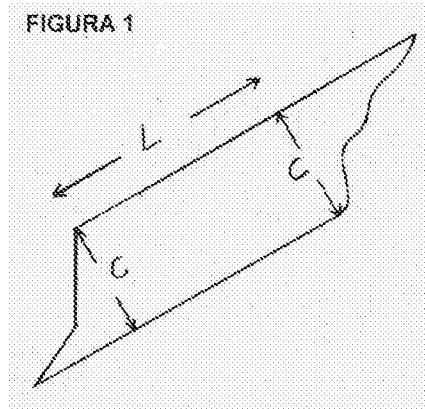
(86) **Pedido PCT:** PCT EP2008057341 de 12/06/2008

(87) **Publicação PCT:** WO 2008/152079 de 18/12/2008

(85) **Data da Fase Nacional:** 11/12/2009

(57) **Resumo:** PROCESSOS PARA CARREGAR UM REATOR COM UM LEITO DE CATALISADOR FIXO, E PARA REMOVER PELO MENOS PARCIALMENTE FRAGMENTOS QUE SE FORMARAM NA PREPARAÇÃO DE CORPOS CONFORMADOS DE CATALISADOR, E, USO DO RESÍDUO DA PENEIRA Processo para carregamento de um reator com um leito de catalisador fixo que contém pelo menos corpos anulares de catalisador K, em que, antes do carregamento, é realizada a separação, por peneiramento, dos fragmentos que surgem durante a produção dos corpos conformados de catalisador.

FIGURA 1



“PROCESSOS PARA CARREGAR UM REATOR COM UM LEITO DE CATALISADOR FIXO, E PARA REMOVER PELO MENOS PARCIALMENTE FRAGMENTOS QUE SE FORMARAM NA PREPARAÇÃO DE CORPOS CONFORMADOS DE CATALISADOR, E, USO DO RESÍDUO DA PENEIRA”

### Descrição

A presente invenção refere-se a um processo para carregar um reator com um leito de catalisador fixo que contém pelo menos um corpo de catalisador K cuja forma geométrica é a de um anel tendo diâmetro externo E, diâmetro interno I e altura H com  $E \geq H$ , no qual, antes do carregamento, fragmentos formados na preparação dos corpos conformados de catalisador K são removidos, pelo menos parcialmente, como material que passa pela peneira em um processo de peneiramento, do restante dos corpos conformados de catalisador K, que é usado para carregar o leito de catalisador fixo, sendo o peneiramento executado por meio de uma peneira que tem orifícios cujo contorno contínuo abrange em cada caso pelo menos duas seções retilíneas que são opostas entre si em distância C ao longo de pelo menos um comprimento L, como dois lados paralelos de um retângulo com dimensões de lados L e C, com a condição que qualquer paralela ao lado do retângulo teórico de comprimento C que passe por um ponto P do contorno do orifício da peneira não tenha outro ponto situado no contorno cuja distância ao ponto P seja maior que C.

Processos para efetuar reações em fase gasosa catalisadas heterogeneamente em um leito de catalisador fixo colocado em um reator são tão bem conhecidos como os reatores adequados para eles. Em princípio, os reatores são trocadores de calor indiretos em que uma parede divisória separa a câmara de reação da câmara de transferência de calor. Na câmara de reação é normalmente colocado o leito de catalisador fixo através do qual a mistura gasosa de reação é conduzida. Os reagentes são convertidos durante o seu

tempo de residência sobre a superfície do catalisador. Um fluido de troca de calor é tipicamente conduzido através da câmara de transferência de calor, que tem a função de suprir o calor de reação requerido através da parede divisória (por exemplo no caso de reações endotérmicas em fase gasosa catalisadas heterogeneamente) ou de remover o calor de reação liberado na reação (por exemplo no caso de reações exotérmicas em fase gasosa catalisadas heterogeneamente). Fluidos de troca de calor úteis incluem gases e líquidos. Exemplos de tais reatores são reatores de feixe de tubos (cf., por exemplo, DE-A 4 431 949, DE-A 2 903 582, EP-A 700 714, DE-C 2 830 765) e reatores de termoplacas (cf., por exemplo, DE-A 102 004 017 151, DE-A 102 004 017 150, DE-A 10 361 515) ou reatores com placas de troca de calor de acordo com DE-A 10 031 347.

Em reatores de feixe de tubos, o leito de catalisador fixo é geralmente disposto nos tubos de reação e o meio de troca de calor é conduzido dentro do espaço que circunda os tubos de reação. Nos reatores de termoplacas, o meio de troca de calor é conduzido através de termoplacas especialmente projetadas e o leito de catalisador fixo é disposto nas câmaras de reação limitadas pelas termoplacas.

Naturalmente reações em fase gasosa catalisadas heterogeneamente podem também ser efetuadas em reatores isolados termicamente do ambiente externo ("reatores adiabáticos") (cf., por exemplo, DE-A 10 2006 029 790 e DE-A 10 2006 017 623).

Procura-se sempre nas reações em fase gasosa catalisadas heterogeneamente, minimizar a energia necessária para mover o gás de reação. Como uma medida para atingir este objetivo, é dada preferência ao uso de corpos anulares de catalisador para formar o leito de catalisador fixo, pois eles proporcionam uma perda de pressão particularmente baixa na passagem do gás de reação através do leito de catalisador fixo (cf., por exemplo, WO 2005/03039). Uma vantagem adicional de corpos anulares de

catalisador normalmente consiste em redução de vias de difusão, disto resultando em muitos casos em um rendimento melhorado do produto visado.

Uma desvantagem de catalisadores anulares é, entretanto, a de ter uma sensibilidade a fratura comparativamente elevada. No curso de sua  
5 preparação, existe, portanto, normalmente, sempre certa formação de corpos catalisadores conformados fraturados (anéis de catalisador fraturados ou esmagados), e em vista disto os corpos anulares de catalisador são geralmente produzidos em mistura com fragmentos de tais corpos conformados de catalisador (ou são obtidos como tal mistura). Especificamente, tais  
10 fragmentos podem apresentar uma ampla variedade de diferentes geometrias e tamanhos de partícula (graus de finura). Quando um leito de catalisador fixo é formado usando as misturas mencionadas, o resultado obtido é um leito de catalisador fixo no qual as cavidades que são normalmente formadas no leito no caso de uso de corpos anulares de catalisador intactos podem ser cheias  
15 (bloqueadas) com tais fragmentos.

Tais leitos fixos de catalisador tendo uma alta densidade de empacotamento causam naturalmente uma alta perda de pressão quando são atravessados pelo gás de reação.

US-B 7 147 011 recomenda, como um remédio para o  
20 problema descrito acima, um processo para carregar um reator com um leito de catalisador fixo que contém corpos anulares de catalisador, no qual, antes do carregamento, fragmentos formados na preparação dos corpos anulares de catalisador são removidos completamente como material que passa pela peneira, em um processo de peneiramento, do restante dos corpos anulares de  
25 catalisador, que só então é usado para carregar o leito de catalisador fixo.

US-B 7147011 recomenda, no caso de corpos anulares de catalisador com um diâmetro externo  $E$  e uma altura  $H$ , com  $E > H$ , o uso de peneiras cujos orifícios têm um comprimento  $L$  e uma largura de malha  $C$  que satisfazem as relações  $E > C > H$  e  $L \geq C$ , mas US-A 7147011 deixa em

aberto o que os termos "largura de malha C" e "comprimento L" devem significar no caso de um orifício de peneira de qualquer forma desejada. US-B 7147011 indica apenas que C e L são os comprimentos dos lados do retângulo no caso de orifícios de peneiras retangulares.

5                   Uma desvantagem do procedimento recomendado em US-B 7147011 é, entretanto que o que permanece como retido em peneira ("retido") é formado essencialmente por corpos anulares de catalisador não danificados, enquanto que o material que passa pela peneira ("peneirado") contém não apenas partículas de fragmentos finos, mas também fragmentos  
10                   comparativamente grosseiros e possivelmente anéis de catalisador não danificados. Em outras palavras o objetivo de US-B 7 147 011 é a remoção de todos os fragmentos de catalisador.

                  Como resultado, a proporção em massa representada pelo material que passa através da peneira no procedimento recomendado em US-  
15                   B 7147011 é comparativamente grande, o que é desvantajoso em vista da carência de recursos materiais e custos crescentes de matérias primas, pois o material que passa através da peneira normalmente tem de ser descartado ou reprocessado de maneira comparativamente complicada. Isto fica ainda mais  
20                   claro com a consideração que fragmentos de catalisador comparativamente grosseiros contribuem para aumentar a perda de carga em grau comparativamente pequeno ao passo que fragmentos de catalisador finamente divididos contribuem para isso em grau superior ao proporcional. A correção desta afirmação fica particularmente aparente quando é levado em conta que o  
25                   leito de catalisador fixo, na maioria dos casos, consiste não apenas de corpos conformados cataliticamente ativos, mas, geralmente, de misturas contendo tanto corpos conformados cataliticamente ativos como corpos conformados inertes de diluição. "Inerte" significa aqui, geralmente, que, quando a mistura gasosa de reação é conduzida em condições de reação através de uma carga consistindo apenas de corpos conformados de diluição no reator (i.e. por um

leito fixo correspondente consistindo apenas de corpos conformados inertes), a conversão dos reagentes, com um único passe do gás de reação através do leito fixo, é  $\leq 5$  mol %, usualmente  $\leq 2$  mol %. Tais corpos conformados inertes de diluição têm adicionalmente, tipicamente, uma elevada resistência à  
5 fratura e podem normalmente ser obtidos comercialmente livres de fragmentos.

O problema tratado pela presente invenção foi, portanto, o de prover um processo para carregar um reator com um leito de catalisador fixo que contém, pelo menos, corpos conformados e catalisador K cuja forma  
10 geométrica é a de um anel com diâmetro externo E, diâmetro interno I e comprimento (altura) H com a condição  $E \geq H$ . O processo consiste em, antes do carregamento, remover primariamente os fragmentos finamente divididos (até poeira de catalisador), como material passante através da peneira, do restante do material contendo corpos conformados de catalisador K, por um  
15 processo de peneiramento, e então, usar o material retido na peneira para carregar o leito de catalisador fixo.

Como solução para este problema, a presente invenção provê um processo para carregar um reator com um leito de catalisador fixo que contém pelo menos um corpo conformado de catalisador K cuja forma  
20 geométrica é a de um anel com diâmetro externo E, diâmetro interno I e altura H com  $E \geq H$ , no qual, antes do carregamento, fragmentos (de catalisador) (por exemplo, fragmentos (de catalisador) formados no tratamento térmico de corpos anulares verdes na preparação de catalisadores anulares multielementares não suportados K) formados na preparação dos corpos  
25 conformados de catalisador K são removidos, pelo menos parcialmente, como material que passa pela peneira, em um processo de peneiramento, do restante dos corpos conformados de catalisador K, que é usado para carregar o leito de catalisador fixo. Neste processo o peneiramento é executado por meio de uma peneira que tem orifícios cujo contorno contínuo abrange em cada caso pelo

menos duas seções retilíneas que são opostas entre si em distância  $C$  ao longo de pelo menos um comprimento  $L$ , como dois lados paralelos de um retângulo com dimensões de lados  $L$  e  $C$ , com a condição que qualquer paralela ao lado do retângulo teórico de comprimento  $C$  que passe por um ponto  $P$  do contorno do orifício da peneira não tenha outro ponto situado no contorno cuja distância ao ponto  $P$  seja maior que  $C$ , sendo que no processo de peneiramento, as relações I,

$$L > E \geq H > C \geq (E-I)/2 \quad (I),$$

são satisfeitas.

10 Preferivelmente de acordo com a invenção, no processo de acordo com a invenção, as relações II,

$$L > E \geq H > C \geq H/2 \geq (E-I)/2 \quad (II),$$

são satisfeitas.

15 Ainda mais preferivelmente de acordo com a invenção, no processo de acordo com a invenção, as relações III,

$$L > E \geq H > 0,9H \geq C \geq H/2 \geq (E-I)/2 \quad (III),$$

são satisfeitas.

Ainda melhor, no processo de acordo com a invenção, as relações IV,

$$20 \quad L > E \geq H > 0,9H > C > H/2 \geq (E-I)/2 \quad (IV),$$

são satisfeitas.

Em casos particularmente favoráveis de acordo com a invenção, no processo de acordo com a invenção, as relações V,

$$L > E \geq H > 0,86H \geq C > H/2 \geq (E-I)/2 \quad (V),$$

25 são satisfeitas.

Naturalmente, o processo de acordo com a invenção pode também ser executado quando uma das seguintes relações é satisfeita:

$$(VI): \quad L > E \geq H > 0,9 H \geq C \geq (E-I)/2;$$

ou

$$(VII): \quad L > E \geq H > 0,9 H > C \geq (E-I)/2;$$

ou

$$(VIII): \quad L > E \geq H > 0,86 H \geq C \geq (E-I)/2;$$

ou

$$5 \quad (IX): \quad L > E \geq H > 0,86 H > C \geq (E-I)/2.$$

Muito particularmente vantajosamente,  $L$ , tanto nas relações I como no caso das relações II, III, IV e V e VI, VII, VIII e IX é  $\geq 1,5E$ , melhor  $\geq 2E$  e ainda melhor  $\geq 2,5E$ .

10 Em geral, no processo de acordo com a invenção, tanto nas relações I como no caso das relações II, III, IV e V e VI, VII, VIII e IX, entretanto,  $L$  é  $\leq 20E$ , em muitos casos  $L \leq 15E$ , frequentemente  $L \leq 10E$  e muito frequentemente  $L \leq 5E$ . Esta restrição de comprimento é, entretanto, causada mais por aspectos secundários, por exemplo, uma excelente estabilidade mecânica da peneira, do que pelo resultado desejado no

15 peneiramento.

Uma forma comparativamente geral de um possível orifício de peneira da invenção (ou contorno do mesmo) é mostrada como exemplo na figura 1.

20 No caso mais simples, um orifício de peneira da invenção (ou contorno do mesmo) pode ser um retângulo com comprimentos de lados  $L$  e  $C$ , como é mostrado, por exemplo, na figura 2.

Naturalmente, um orifício de peneira da invenção (ou contorno do mesmo) pode também ser um furo alongado, como é mostrado, como exemplo, na figura 3. A geometria de um furo alongado com o comprimento de borda  $L$  deriva da de um retângulo com comprimentos de lado  $L$  e  $C$  substituindo os lados de comprimento  $C$  em cada caso por uma semicircunferência de diâmetro  $C$  (largura do furo) dirigida para fora da área retangular. Naturalmente, outro possível orifício de peneira da invenção (ou contorno do mesmo) (ambas as expressões são usadas equivalentemente neste

25

documento)) é um paralelogramo, mostrado como exemplo na figura 4. Além desses, outro possível contorno de orifício de peneira da invenção é o que deriva de um contorno retangular pelo arredondamento de pelo menos alguns de seus cantos.

5                   Em princípio, uma peneira para ser usada de acordo com a invenção pode ter, por exemplo, uma pluralidade de diferentes tipos de orifícios de peneiras possíveis de acordo com a invenção. Vantajosamente de acordo com a invenção, uma peneira usada em um processo de acordo com a invenção terá, entretanto, não mais que três e geralmente não mais que dois  
10 diferentes tipos de orifícios de peneiras que satisfazem as exigências da invenção. Muito particularmente vantajosamente, entretanto, uma peneira a ser usada de acordo com a invenção terá apenas um tipo de orifícios de peneira da invenção.

                  Preferivelmente de acordo com a invenção, os orifícios de  
15 peneiras (ou contornos do mesmo) de uma peneira a ser usada de acordo com a invenção são ou apenas um tipo de retângulos da invenção ou apenas um tipo de furos alongados da invenção (cada um dos quais satisfaz uma das relações I, ou preferivelmente II, III, IV ou V ou VI, VII, VIII ou IX).

                  O termo "peneira" é usado neste documento como sinônimo  
20 do termo "tela de peneira". O termo "peneira" ou "tela de peneira" é usado neste documento no sentido da definição apresentada em EP-A 1 726 358 coluna 5 linhas 48 a 57.

                  Em outras palavras, a tela de peneira pode, por exemplo, ser  
25 configurada como uma grade ou grelha, como uma chapa perfurada ou com fendas (i.e. como uma chapa com orifícios de peneira puncionados, cortados a laser, cortados a água ou fresados) ou como uma tela tecida feita de arames redondos ou perfilados. Em princípio, para o processo de acordo com a invenção, variantes úteis de tela de peneira são também as variantes de tela de peneira detalhadas em Aufbereitungs-Technik-No. 11/1960, p. 457 a 473 ou

em Chem.-Ing.-Techn. 56 (1984) No. 12, páginas 897 a 907. Será apreciado que é também possível usar, para o processo de acordo com a invenção, todas as telas de peneira detalhadas em "Sieben und Siebmaschinen, (Peneiras e equipamentos de peneiramento) Wiley-VCH GmbH & Co. KGaA, Paul Schmidt et al (2003)".

Grades ou grelhas e telas tecidas (ambas asseguram produções específicas de peneiramento particularmente altas em  $\text{kg/m}^{3\text{h}}$  com alta eficácia) são adequadas especialmente no caso de telas de peneira tendo apenas um tipo de orifício retangular da invenção. Uma ilustração exemplificativa de uma tela tecida de peneiramento é mostrada na figura 5 deste documento.

Uma ilustração exemplificativa de uma grade ou grelha é mostrada na figura 6 deste documento.

Quaisquer orifícios de peneiras da invenção (ou contornos de orifícios de peneiras) podem ser realizados de maneira simples em chapas perfuradas ou com fendas. Entretanto, chapas perfuradas ou com fendas vantajosas de acordo com a invenção são especialmente aquelas que têm apenas um tipo de orifício de peneira (ou contorno do mesmo) retangular ou um orifício de peneira (ou contorno do mesmo) com forma de um furo alongado.

O que é particularmente vantajoso em chapas perfuradas ou com fendas é que o arranjo relativo de orifícios de peneiras da invenção é possível virtualmente de qualquer maneira. Quando a chapa com fendas tem apenas um tipo de orifício de peneira retangular ou um orifício de peneira tendo a forma de um furo alongado, arranjos relativos úteis para os mesmos em uma chapa com fendas para os processo de acordo com a invenção são, especialmente, o arranjo de furos deslocados mutuamente de acordo com a figura 7, o arranjo de furos deslocados com superposição de acordo com a figura 8 (que é muito particularmente preferido de acordo com a invenção

(por razões de estabilidade entre outras)), o arranjo em linhas retas de acordo com a figuras 9 e 10, ou o arranjo em espinha de peixe de acordo com a figura 11. Uma razão adicional para a vantagem de chapas com fendas é que elas podem ser limpas com maior facilidade no caso de mudança de produtos e são menos sujeitas a obstrução dos furos por aderência de partículas. Elas têm também, geralmente, maior estabilidade mecânica.

De outro modo, telas perfuradas de peneiramento (e telas de peneiramento com fendas) adequada de acordo com a invenção podem ser configuradas como descrito em DIN 24041.

Espressuras típicas de chapas de telas perfuradas de peneiramento (ou telas de peneiramento com fendas) usáveis de acordo com a invenção são de 1 a 5 mm, preferivelmente de 1 a 3 mm, mais preferivelmente de 1 a 2 mm.

A área aberta da peneira F (a soma das áreas de todos os orifícios presentes na tela de peneira de chapa com fendas) de telas de peneira de chapa com fendas favoráveis de acordo com a invenção será, com base na área total da tela de peneira com chapa fendida, tipicamente de 10 a 60%, Preferivelmente de 20 a 50% e mais preferivelmente de 30 a 50%.

Uma chapa com furos alongados adequada de acordo com a invenção (uma tela de peneiramento com furos alongados adequada de acordo com a invenção) com furos alongados mutuamente deslocados de acordo com a figura 7 pode, por exemplo, ter as seguintes variantes de configuração:

Largura de furo C (mm)	Comprimento L (mm)	Distância a (mm)	Distância b (mm)	d (mm)	F (%)
1,0	19	3,0	5,0	1,5	19,8
1,6	18,4	2,4	5,0	1,0	31,4
2,0	18	10	4,5	1,25	13,3
2,5	17,5	3,5	5,0	1,0	32,4
4,0	6,0	7,0	4,0	2,0	23,7
5,0	20,0	4,0	5,0	2,0	45
5,0	15,0	3,0	5,0	2,0	47
5,0	15,0	4,0	5,0	2,0	42
8,0	17,0	8,0	11	2,0	32
10,0	22,0	6,0	8,0	2,0	47

Materiais úteis são especialmente aço (por exemplo, materiais DIN 1.4541 ou 1.4571 e aço S185 (DIN 1.0035) de acordo com DIN EN 10025 ou DIN EN 10088-1).

5 Uma peneira com furos alongados, adequada de acordo com a invenção, com furos alongados deslocados com superposição de acordo com a figura, 8 pode, por exemplo, ter as seguintes variantes de configuração:

Largura de furo C (mm)	Comprimento L (mm)	Distância a (mm)	Distância b (mm)	d (mm)	F (%)
1,0	9	2,0	4,0	1	24
2,0	10,5	3,0	5,5	1	27
2,0	18,0	3,0	5,0	1	31
4,0	18,0	3,0	5,0	1	44
8,0	17,0	8,0	11	1	32

Um material útil é especialmente aço (por exemplo, material DIN 1.4541 ou 1.4571).

10 No caso de corpos anulares de catalisador K de geometria  $E \times I \times H = 5 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , telas de peneiramento adequadas para um processo de acordo com a invenção são, por exemplo, especialmente telas com furos alongados do tipo descrito acima (especialmente com um arranjo de furos deslocados com superposição) com  $C = 1,8 \text{ mm}$  e  $L = 18,2 \text{ mm}$ , ou com  $C = 2,5 \text{ mm}$  e  $L = 17,5 \text{ mm}$ .

15 No caso de corpos anulares de catalisador K de geometria  $E \times I \times H = 7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 6,9 \text{ mm}$ , telas de peneiramento adequadas para um processo de acordo com a invenção são, por exemplo, especialmente telas com furos alongados do tipo descrito acima (especialmente com um arranjo de furos deslocados com superposição) com  $C = 6 \text{ mm}$  e  $L = 14 \text{ mm}$  ou com  
20  $C = 4 \text{ mm}$  e  $L = 16 \text{ mm}$ , ou com  $C = 6,2 \text{ mm}$  e  $L = 17,8 \text{ mm}$ .

No caso de corpos anulares de catalisador de geometria  $E \times I \times H = 6,6 \text{ mm} \times 3,7 \text{ mm} \times 4,2 \text{ mm}$ , telas de peneiramento adequadas para um processo de acordo com a invenção são especialmente telas tecidas de acordo com a figura 5 com  $C = 3,5 \text{ mm}$  e  $L = 20 \text{ mm}$ . A espessura do fio  
25 usado para fabricar a tela de peneiramento é vantajosamente 1 mm. O

material usado é preferivelmente aço. Materiais adequados são especialmente os tipos DIN 1.4541 e 1.4571. É também possível neste caso usar uma das telas de furos alongados já mencionadas com, por exemplo,  $C = 2,5$  mm e  $L = 17,5$  mm.

5 Na prática do processo de acordo com a invenção para carga de um reator com um leito de catalisador fixo, o material em peneiramento que consiste de corpos conformados de catalisador K e de fragmentos (de catalisador), é transportado através da tela de peneiramento da invenção, vantajosamente de acordo com a invenção, paralelamente ao comprimento L dos orifícios de peneira da invenção. De modo correspondente o material a ser peneirado é também aplicado sobre a peneira (sobre a tela de peneiramento) com esta direção de aplicação.

10 Quando a tela de peneiramento usada de acordo com a invenção é uma chapa perfurada com furos puncionados, a rebarba de puncionamento é geralmente removida e o contorno dos furos é arredondado adequadamente do ponto de vista da aplicação. Ao longo da espessura da tela de peneiramento a seção transversal do orifício da peneira é normalmente essencialmente constante (i.e. o orifício geralmente tem uma seção de passagem constante). Quando a rebarba de puncionamento não é removida, ela normalmente aponta na direção da passagem pela peneira.

20 Em princípio, o material que está sendo peneirado pode ser transportado através da peneira no processo de acordo com a invenção por meio de um movimento vibratório circular, elíptico e/ou linear da tela da peneira. Para este fim, para um processo de acordo com a invenção, é possível em princípio usar todos os equipamentos de peneiramento recomendados, por exemplo, em Chem.-Ing.-Tech. 56 (1984) No. 12, p. 897 a 907, e também em Sieben und Siebmaschinen, Grundlagen und Anwendung [Peneiras e Equipamentos de Peneiramento, Fundamentos e Uso], Wiley VCH, Paul Schmidt (2003).

O grupo de equipamentos de peneiramento melhor adequado para a execução de um processo de acordo com a invenção é o de peneiras planas em que o material sendo peneirado escorrega como uma camada com movimento linear ou circular sobre a tela de peneiramento. O peso intrínseco e o atrito contra a peneira ocasionam o cisalhamento da camada de material que está sendo peneirada. Uma característica vantajosa é que a retromisturação que usualmente tem efeito adverso é muito baixa.

O movimento vibratório da superfície da peneira no caso de peneiras planas é efetuado no plano da tela de peneiramento. O movimento vibratório pode ter um perfil linear (vai e vem) ou circular (no primeiro caso, é feita referência a uma peneira vibratória plana linear). Neste caso ele pode estar direcionado na direção do transporte do material ou transversal a ela. Aceleração assimétrica, no caso de movimento vibratório linear na direção do transporte, pode causar o transporte longitudinal do material que está sendo peneirado mesmo no caso de uma peneira horizontal.

A vibração circular oferece a vantagem de manter constantemente uma aceleração ótima. É também possível empregar uma combinação de vibradores lineares e circulares no processo de acordo com a invenção.

Em vibradores circulares, o movimento horizontal circulante é frequentemente gerado por meio de um motor com engrenagem. Em vibradores lineares, toda a caixa da peneira (na qual a tela de peneiramento é normalmente muito geralmente montada) é submetida a vibração linear por massas contrarrotativas não balanceadas. Vibradores lineares podem ser empregados com telas de peneiramento tanto horizontais como inclinadas. No caso de uma tela de peneira inclinada, o material em peneiramento, por uma inclinação adequada do plano de vibração em relação ao da tela de peneiramento, seguindo uma trajetória parabólica, é lançado para cima e simultaneamente para frente. Os ângulos de inclinação podem, por exemplo,

ser de  $-3^{\circ}$  a  $25^{\circ}$ . Ângulos de  $3^{\circ}$  a  $4^{\circ}$  são preferidos de acordo com a invenção. É dada preferência particular de acordo com a invenção a, por exemplo, peneiras vibratórias lineares de Rhewurm GmbH em Remscheid, Alemanha.

5 Peneiras retangulares são preferidas em relação a peneiras redondas para a operação de peneiras planas da invenção. Neste caso, telas de peneira retangulares são montadas em caixas de peneira igualmente retangulares. Pode ser efetuado um fracionamento em uma passagem com um arranjo em série de telas de peneira diferentes (tendo orifícios de peneiras diferentes) na direção de transporte do material em peneiramento.

10 Por exemplo, um peneiramento da invenção, no qual o retido na peneira (retido) é o produto desejado, pode ter a forma de uma peneira retangular apropriada, seguida diretamente por peneira adicional na qual quaisquer corpos conformados presentes no material retido na primeira peneira cujo tamanho exceda o dos corpos anulares de catalisador são  
15 removidos como material retido na segunda peneira do material passante que forma o produto desejado no peneiramento.

Em vez de um arranjo em série de telas de peneiras, é também possível empregar um arranjo de uma peneira sobre a outra, para o processo de acordo com a invenção. Neste caso, os corpos conformados cujo tamanho  
20 excede o dos corpos anulares de catalisador serão normalmente removidos como resíduo de peneiramento pela peneira do topo. Os fragmentos a serem removidos de acordo com a invenção passarão até em baixo.

Em outras palavras o peneiramento da invenção é efetuado com auxílio das peneiras inferiores.

25 No caso de um arranjo de telas de peneira dispostas uma sobre a outra, é dada preferência ao uso de peneiras redondas. O movimento vibratório é preferivelmente configurado de modo que o retido na peneira é em cada caso encaminhado para a periferia da peneira redonda e lá descarregado.

A fim de manter os orifícios de peneiras desobstruídos durante um peneiramento da invenção, especialmente quando a tela de peneiramento é feita de um aço com módulo de elasticidade comparativamente baixo o método de impacto de bolas de borracha é usado vantajosamente de acordo com a invenção (cf. figura 12 em Chem.-Ing.-Tech. 56 (1984) No. 12, página 902). Neste método, bolas de borracha cujo diâmetro  $D$  é pelo menos  $2 C$ , preferivelmente pelo menos  $3 C$ , mais preferivelmente pelo menos  $4 C$  ou  $5 C$  (normalmente, o diâmetro da bola de borracha não excederá  $15 C$ , usualmente mesmo  $10 C$ ), são colocadas em uma subpeneira localizada a uma distância  $Z$  de tipicamente cerca de  $1,2 D$  a  $1,5 D$  abaixo da peneira (da tela de peneiramento). Mesmo no caso de equipamentos de peneiramento planos, as bolas de borracha pulam durante a operação de peneiramento (durante o peneiramento) de baixo contra a tela de peneiramento e a limpam localmente. Sua elasticidade é tal que elas essencialmente não causam qualquer fratura adicional do material em peneiramento. A subpeneira é usualmente uma chapa perfurada com orifícios preferivelmente quadrados cujo comprimento de lado é tipicamente pelo menos  $A$ , frequentemente pelo menos  $1,5 A$ , mas normalmente não maior que  $0,8 D$ , usualmente não maior que  $2/3 D$ . Em cada caso os orifícios da subpeneira são dimensionados de modo que o material que passa através da peneira possa passar através dela. Apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, telas de peneira (como planos de teto) e subpeneiras (como "planos de piso") podem ser configuradas com seção idêntica e ser suplementadas por quatro paredes laterais de altura  $Z$  para formar um inserto paralelepípedo que, de maneira simples, pode ser inserido na caixa da peneira (a altura da caixa geralmente excede a do inserto inserido em cerca de 10 cm) do equipamento de peneiramento. Por exemplo, tal inserto paralelepípedo pode ter um comprimento de 500 mm (preferivelmente em direção paralela ao comprimento  $L$  dos furos alongados de uma peneira com furos alongados, por exemplo, a peneira com furos

alongados citada como exemplo neste documento) e uma largura de 250 mm. A separação Z entre o topo e a base pode, por exemplo, ser de 15 a 30 mm. Quando é de 25 mm, o diâmetro das bolas de borracha é vantajosamente 20 mm. Apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, tal inserto geralmente contém cerca de 20 bolas de borracha. Alternativamente ao impacto com bolas de borracha, a limpeza da peneira durante a operação de peneiramento pode ser efetuada continuamente por escovas planas ou de rolos dispostas acima ou abaixo da tela de peneiramento. As variantes de peneiramento acima descritas podem também ser vistas em Schüttgut Vol. 9 (2003) No. 4, p. 272/273. Os equipamentos de peneiramento de vibração livre recomendados neste documento são particularmente vantajosos de acordo com a invenção. Na seleção da amplitude e da frequência da vibração foi verificado que amplitude curta e frequência alta são úteis para o processo de acordo com a invenção.

15 O processo de acordo com a invenção é adequado, entre outros casos, no caso de corpos anulares de catalisador K cuja composição ativa é de pelo menos um óxido multielementar (frequentemente um óxido multimetálico) que contém

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

e também no caso de corpos conformados de catalisador K que contém como composição ativa, prata elementar sobre um suporte oxidado (todos os corpos anulares de catalisador K acima mencionados serão referidos neste documento também como corpos anulares de catalisador K\*).

25 Os catalisadores são adequados especialmente para oxidações parciais em fase gasosa catalisadas heterogeneamente em um leito de catalisador fixo, em particular no caso de sua realização em um reator de feixe de tubos.

Neste documento, uma oxidação plena de um composto orgânico com oxigênio molecular significa que o composto orgânico é convertido sob a ação reativa de oxigênio molecular de modo que todo o carbono presente no composto orgânico é convertido a óxidos de carbono e todo o hidrogênio presente no composto orgânico é convertido a óxidos de hidrogênio. Todas as conversões exotérmicas diferentes das mesmas de um composto orgânico sob a ação reativa de oxigênio molecular são sumarizadas aqui como oxidações parciais de um composto orgânico.

Em particular, neste documento, oxidações parciais serão entendidas como designação das conversões exotérmicas de composto orgânicos sob a ação reativa de oxigênio molecular, nas quais o composto orgânico a ser oxidado parcialmente, após o final da conversão, contém pelo menos um átomo de oxigênio a mais em forma de combinação química do que antes da realização da oxidação parcial.

Exemplos de tais oxidações parciais de composto orgânicos catalisadas heterogeneamente incluem a conversão de metanol a formaldeído (cf., por exemplo, CH-A 449600, CH-A 38828), a conversão de propeno a acroleína e/ou ácido acrílico (cf., por exemplo, DE-A 23 51 151), a conversão de t-butanol, isobuteno, isobutano, isobutiraldeído ou o éter metílico de t-butanol a metacroleína e/ou ácido metacrílico (cf., por exemplo, DE-A 25 26 238, EP-A 092 097, EP-A 058 927, DE-A 41 32 263, DE-A 41 32 684 e DE-A 40 22 212), a conversão de acroleína a ácido acrílico, a conversão de metacroleína a ácido metacrílico (cf., por exemplo, DE-A 25 26 238), a conversão de o-xileno ou naftaleno a anidrido ftálico (cf., por exemplo, EP-A 522 871) e a conversão de butadieno a anidrido maléico (cf., por exemplo, DE-A 21 06 796 e DE-A 16 24 921), a conversão de C<sub>4</sub> hidrocarbonetos (especialmente 1-buteno, 2-buteno, butadieno e/ou n-butano) a anidrido maléico (cf., por exemplo, GB-A 1 464 198 e GB-A 1 291 354), a conversão de indanos a antraquinonas (cf., por exemplo, DE-A 20 25 430), a conversão

de etileno a óxido de etileno (cf., por exemplo, EP-A 352 849, EP-A 352 850, EP-A 532 325, US-A 5 155 242 e US-A 5 262 551) ou de propileno a óxido de propileno (cf., por exemplo, DE-B 12 54 137, DE-A 21 59 346, EP-A 372 972, WO 89/07101, DE-A 43 11 608), a conversão de propileno e/ou acroleína a acrilonitrila (cf., por exemplo, DE-A 23 51 151), a conversão de isobuteno e/ou metacroleína a metacrilonitrila (i.e., neste documento, o termo "oxidação parcial" incluirá também amoxidação parcial, i.e. a oxidação parcial na presença de amônia), a desidrogenação oxidativa de hidrocarbonetos (cf., por exemplo, DE-A 23 51 151), a conversão de propano a acrilonitrila ou a acroleína e/ou ácido acrílico (cf., por exemplo, DE-A 101 31 297, EP-A 1 090 684, EP-A 608 838, DE-A 100 46 672, EP-A 529 853, WO 01/96270 e DE-A 100 28 582), etc.

No caso mais simples, o corpo conformado anular de catalisador K pode consistir apenas de composição cataliticamente ativa que pode, se conveniente, ser diluída com material inerte (incorporado, por exemplo, para aumento de resistência) (se conveniente, é também adicionado um adjuvante de conformação como, grafita). Tais corpos catalisadores de forma geométrica anular são tipicamente designados como catalisadores anulares não-suportados. Para tais corpos anulares de catalisador K, o processo de acordo com a invenção tem maior significado.

No caso de catalisadores anulares não suportados, dependentes da composição ativa, a conformação pode ser efetuada compactando uma composição cataliticamente ativa em pó (por exemplo, um óxido multielementar pulverulento) até a geometria anular do catalisador, por exemplo (dependendo da composição ativa), por formação de comprimidos, sinterização ou extrusão. É possível adicionar adjuvantes de conformação. Alternativamente, dependendo da composição ativa desejada, é possível compactar uma composição pulverulenta precursora até a geometria anular do catalisador e converter os corpos conformados anulares resultantes por

tratamento térmico (se conveniente em uma atmosfera contendo oxigênio molecular) em corpos conformados de óxido multielementar cataliticamente ativo (cf., por exemplo, US 2005/0263926 e WO 2005/030393, e também EP-A 1 243 331).

5                    Naturalmente a conformação pode também ser efetuada revestindo um corpo de forma geométrica anular, composto de material cataliticamente inativo ou material inerte (designado a seguir como "corpo conformado de suporte anular " ou resumidamente "corpo conformado de suporte") com composição ativa. Alternativamente, é também possível fazer o  
10                    revestimento com uma composição precursora e efetuar a conversão para obter o catalisador anular ativo por tratamento térmico subsequente (se conveniente em uma atmosfera contendo oxigênio molecular). O revestimento pode ser efetuado da maneira mais simples, por exemplo, umedecendo a superfície do corpo inerte anular de suporte com um ligante líquido e  
15                    promovendo a adesão de uma composição ativa pulverulenta ou composição pulverulenta precursora sobre esta superfície umedecida. Os catalisadores anulares obtidos desta maneira são designados como catalisadores anulares revestidos. Corpos inertes conformados anulares adequados para muitas  
20                    oxidações parciais em fase gasosa catalisadas heterogeneamente consistem de materiais porosos ou não-porosos de óxido de alumínio, óxido de silício, dióxido de tório, óxido de zircônio, carboneto de silício ou silicatos, como silicato de magnésio ou silicato de alumínio (por exemplo, esteatita C 220, de Ceram Tec), ou também de metais, por exemplo, aço inoxidável ou alumínio (cf., por exemplo, US 2006/0205978).

25                    Em vez de revestimento dos corpos inertes anulares de suporte com composição ativa pulverulenta ou com composição pulverulenta de precursor, os corpos anulares de suporte podem também em muitos casos ser impregnados com uma solução (solução molecular e/ou coloidal) de substância cataliticamente ativa ou com uma solução de uma substância

precursora, e então o solvente pode ser volatilizado, o que pode ser seguido, se conveniente, por redução química e/ou tratamento térmico (se conveniente em uma atmosfera contendo oxigênio molecular). Os corpos anulares de catalisador K resultantes são designados tipicamente como catalisadores impregnados.

Independentemente do modo de preparação empregado em cada caso individual os corpos anulares de catalisador K são sempre obtidos com certo grau de mistura com corpos anulares de catalisador K fragmentados, o que sugere o emprego do processo de acordo com a invenção.

O diâmetro externo E dos corpos anulares de catalisador K para uso de acordo com a invenção será geralmente de 2 a 10 mm, frequentemente de 4 a 8 mm e muitas vezes de 5 a 7 mm.

O comprimento (altura) H dos corpos anulares de catalisador K para uso de acordo com a invenção pode variar de 2 a 10 mm, frequentemente de 4 a 8 mm, ou de 5 a 7 mm.

De acordo com a invenção, a relação H/E deve necessariamente ser  $\leq 1$ . Em muitos casos, H/E é de 0,3 a 1, usualmente de 0,5 a 1 e frequentemente de 0,6 a 1.

A espessura de parede  $((E-I)/2)$  dos corpos conformados de catalisador K da invenção fica vantajosamente entre 1 e 3 mm, usualmente entre 1 e 2 mm, muitas vezes entre 1,5 e 2 mm ou de 1 a 1,5 mm.

Adicionalmente, é favorável que corpos anulares de catalisador K tenham relação I/E de 0,3 a 0,7, preferivelmente de 0,4 a 0,6.

Em outras palavras os processos de acordo com a invenção podem ser empregados em particular no caso de corpos anulares de catalisador K com  $E =$  de 2 a 10 mm,  $H/E =$  de 0,03 a 1 e  $I/E =$  de 0,3 a 0,7.

Tudo o que foi mencionado é especialmente verdadeiro quando os corpos anulares de catalisador K são corpos anulares de catalisador

K\*.

Corpos anulares de catalisador K\* incluem, inter alia, os corpos anulares de catalisador K cuja composição ativa é um óxido multielementar de fórmula geral I



com

X<sup>1</sup>=níquel e/ou cobalto,

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

10 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,

15 d=0 a 2,

e=0 a 8,

f=0 a 10, e

n=número determinado pela valência e frequência dos elementos de I diferentes de oxigênio.

20 Descrições da preparação de anéis de catalisador não suportado e anéis de catalisador revestidos podem ser encontradas, por exemplo, em US 2005/0263926, em WO 02/30569, em WO 2005/030393, em Research Disclosure RD 2005/497012, em DE-A 10 2007 005 602 e em DE-A 10 2007 004 961. Nos documentos citados, tais catalisadores anulares são  
25 recomendados especialmente para oxidação parcial catalisada heterogeneamente de propileno a acroleína ou acroleína e ácido acrílico, e de isobuteno a metacroleína.

Em relação à geometria de anel a ser usada, o que foi já indicado como geralmente válido neste documento é aplicável. Uma

geometria de anel para corpos conformados de catalisador não suportado de óxido multimetálico (I) que é particularmente relevante para o processo de acordo com a invenção é, por exemplo, a geometria  $E \times I \times H = 5 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ . Outras geometrias de anel  $E \times I \times H$  favoráveis para catalisador não suportado de óxido multimetálico (I) são as geometrias  $5 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ , ou  $5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , ou  $5,5 \text{ mm} \times 3,5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , ou  $6 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , ou  $6,5 \text{ mm} \times 4,5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , ou  $7 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , ou  $7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ , ou  $7 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ .

Com relação às composições ativas da estequiometria de 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 1 a 10. Mais preferivelmente, os coeficientes estequiométricos acima mencionados estão simultaneamente dentro das faixas preferidas acima mencionadas.

Além disso,  $X^1$  é preferivelmente cobalto,  $X^2$  é preferivelmente K, Cs e/ou Sr, mais preferivelmente K,  $X^3$  é preferivelmente tungstênio, zinco e/ou fósforo e  $X^4$  é preferivelmente Si. Mais preferivelmente, as variáveis  $X^1$  a  $X^4$  são simultaneamente as definidas acima.

Todas as afirmações feitas neste documento se aplicam especialmente com relação ao desempenho da reação parcial em fase gasosa catalisada heterogeneamente em um reator de feixe de tubos. Reactores de feixe de tubos adequados de maneira favorável para o desempenho de oxidações parciais em fase gasosa heterogeneamente catalisadas são suficientemente bem conhecidos da arte anterior (cf., por exemplo, DE-A 44 31 949, EP-A 700 714).

Nestas reações, como já mencionado, a mistura gasosa de reação é normalmente conduzida através do leito de catalisador fixo disposto

nos tubos de catalisador (tubos de reação) do reator de feixe de tubos, e os reagentes são convertidos durante o seu tempo de residência sobre a superfície do catalisador.

5 A temperatura de reação nos tubos de catalisador é controlada, inter alia, conduzindo um portador térmico fluido (um meio de troca de calor) ao redor dos tubos de catalisador do feixe de tubos que são acomodados em um vaso para remover energia do sistema de reação. Portador térmico e mistura gasosa de reação podem ser conduzidos através do reator de feixe de tubos em cocorrente ou em contracorrente.

10 Além da possibilidade de conduzir o meio de troca de calor de maneira simples, essencialmente imediatamente longitudinalmente aos tubos de catalisador, esta condução longitudinal pode também ser realizada meramente sobre o vaso de reação inteiro e o fluxo transversal pode ser superposto neste fluxo longitudinal dentro do vaso de reação através de um  
15 arranjo, em sucessão ao longo dos tubos de catalisador, de discos defletores que deixam seções transversais de passagem livre, resultando em um perfil de fluxo sinuoso do meio de troca de calor através do feixe de tubos em seção longitudinal (cf., por exemplo, 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).

20 Se necessário, portadores térmicos essencialmente espacialmente separados podem ser conduzidos ao redor dos tubos de catalisador ao longo de diferentes seções de tubos.

A seção de tubo sobre a qual o portador térmico particular se estende, representa tipicamente uma única zona de reação. Uma variante  
25 desses reatores de feixe de tubos de zonas múltiplas usada com preferência é o reator de feixe de tubos 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.

Meios de troca térmica adequados são, por exemplo, fusões de

sais, como nitrato de potássio, nitrito de potássio, nitrito de sódio e/ou nitrato de sódio, metais de baixo ponto de fusão como sódio, mercúrio e ligas de diferentes metais, líquidos iônicos (em que pelo menos um dos íons de cargas opostas inclui pelo menos um átomo de carbono), mas também líquidos convencionais, por exemplo, água ou solventes orgânicos de alto ponto de ebulição (por exemplo misturas de Diphyl<sup>®</sup> e dimetil ftalato).

Tipicamente, os tubos de catalisador são fabricados de aço ferrítico ou de aço inoxidável e frequentemente possuem uma espessura de parede de poucos mm, por exemplo, de 1 a 3 mm. Seu diâmetro interno é usualmente de poucos cm, por exemplo, de 10 a 50 mm, frequentemente de 20 a 30 mm. O comprimento de tubo normalmente alcança poucos metros (um comprimento de tubo de catalisador típico fica na faixa de 1 a 8 m, frequentemente de 2 a 6 m, em muitos casos de 2 a 4 m). Apropriadamente, do ponto de vista de aplicação, o número de tubos de catalisador (tubos de trabalho) acomodados no vaso é de pelo menos 1000, frequentemente de pelo menos 3000 ou 5000 e em muitos casos de pelo menos 10 000. Frequentemente, o número de tubos de catalisador acomodados no vaso de reação é de 15 000 a 30 000 ou 40 000 ou 50 000. Reatores de feixe de tubos tendo um número de tubos de catalisador acima de 50 000 são, usualmente, a exceção. No interior do vaso, os tubos de catalisador são, normalmente, arranjados essencialmente em distribuição homogênea, a distribuição sendo apropriadamente selecionada de modo que a distância dos eixos internos centrais dos tubos de catalisador imediatamente adjacentes (o assim chamado passo do tubo de catalisador) é de 25 a 55 mm, frequentemente de 35 a 45 mm (cf., por exemplo, EP-A 468 290).

Normalmente, em cada caso, pelo menos alguns dos tubos de catalisador (tubos de trabalho) de um reator de feixe de tubos, apropriadamente do ponto de vista de aplicação do conjunto, são fabricados de maneira uniforme dentro da capacidade dos meios de fabricação. Em

outras palavras, seu diâmetro interno, sua espessura de parede e seu comprimento de tubo são idênticos dentro de limites estreitos de tolerância. WO 03/059857).

5 O perfil de exigências acima mencionado frequentemente também se refere ao enchimento desses tubos de catalisador uniformemente fabricados com corpos conformados de catalisador (cf., por exemplo, WO 03/057653), para assegurar operação ótima e substancialmente sem problemas do reator de feixe de tubos. Especialmente para uma seletividade e rendimento ótimos das reações realizadas no reator de feixe de tubos, é  
10 essencial que preferivelmente todos os tubos de trabalho do reator sejam cheios, i.e. carregados, com o leito de catalisador fixo de uma maneira muito uniforme. Especialmente contra este plano de fundo, particular importância advém da presente invenção.

Tubos de trabalho são tipicamente distinguidos de tubos  
15 térmicos como descrito, por exemplo, pela EP-A 873 783. Enquanto os tubos de trabalho são aqueles tubos de catalisador no qual a reação química a ser realizada é executada no sentido real, os tubos térmicos servem à finalidade primária de monitorar e de controlar a temperatura de reação nos tubos de catalisador. Para esta finalidade, os tubos térmicos, normalmente além do  
20 leito de catalisador fixo, incluem um termopozo que é conduzido ao longo do centro do tubo térmico e é carregado meramente com um sensor de temperatura. Em geral, o número de tubos térmicos em um reator de feixe de tubos é muito menor do que o número de tubos de trabalho. Normalmente, o número de tubos térmicos é  $\leq 20$ . Como o termopozo presente nos tubos  
25 térmicos influencia a densidade de empacotamento do leito de catalisador fixo, o leito de catalisador fixo do tubo térmico é, se apropriado, configurado apropriadamente para o objetivo do processo de acordo com a invenção usando material que passa pela peneira (para este assunto, ver, por exemplo, EP-A 873 783 e EP-A 1 270 065).

O leito de catalisador fixo não consiste de um leito com um único tipo de corpos catalisadores anulares de forma geométrica que é uniforme ao longo do tubo individual de catalisador em todas as oxidações parciais em fase gasosa, heterogeneamente catalisadas sobre o leito de catalisador fixo disposto nos tubos de reatores de feixe de tubos. Em vez disso, o leito de catalisador fixo, sobre o comprimento total do tubo de catalisador, pode também consistir de uma mistura homogeneizada de vários (i.e. pelo menos dois) tipos mutuamente distinguíveis  $S^i$  de corpos catalisadores de forma geométrica ou de corpos catalisadores de forma geométrica e corpos inertes de forma geométrica (i.e. essa mistura pode consistir de pelo menos dois tipos de corpos catalisadores de forma geométrica mutuamente distinguíveis, ou de um único tipo de corpos catalisadores de forma geométrica e de um único tipo de corpos inertes de forma geométrica, ou de pelo menos dois tipos de corpos catalisadores de forma geométrica mutuamente distintos e de um único tipo de corpos inertes de forma geométrica, ou de pelo menos dois tipos de corpos catalisadores de forma geométrica mutuamente distintos e pelo menos dois tipos de corpos inertes de forma geométrica mutuamente distinguíveis). Entre esses diferentes tipos  $S^i$ , é possível se apropriado que um único tipo de corpos anulares de catalisador  $K$  da invenção esteja presente. Características de distinção possíveis dos diferentes tipos de  $S^i$  são o tipo de geometria, o tipo de composição ativa, o tipo de material suporte, etc. Materiais úteis para os corpos inertes de forma geométrica incluem os mesmos materiais já recomendados para os corpos suporte inertes de forma geométrica para os catalisadores revestidos e essencialmente não interferem no curso da oxidação parcial em fase gasosa. Em princípio, todos os corpos suporte inertes conformados são também úteis como corpos inertes de forma geométrica para diluição de corpos catalisadores de forma geométrica em um leito de catalisador fixo. Essa diluição permite que a atividade volume-específica de

um leito de catalisador fixo seja ajustada especificamente à exigência da oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada particular.

Corpos inertes de forma geométrica e corpos catalisadores de forma geométrica em uma mistura homogeneizada correspondente à citada acima preferivelmente possuem a mesma geometria ou pelo menos uma geometria similar.

A expressão "mistura homogeneizada" significa que foram tomadas medidas para misturar os diferentes tipos de corpos de formas geométricas (ou as diferentes dimensões longitudinais dentro de um único tipo) homogeneamente uns com os outros. No caso ideal, a mistura homogênea ao longo de toda a seção longitudinal atinge a média estatística, também em relação ao tipo particular individual

Em muitos casos, uma carga de tubo de catalisador (um enchimento de tubo de catalisador) com um leito de catalisador fixo, entretanto, também consiste de várias seções longitudinais mutuamente distinguíveis instaladas ao longo uma da outra (em sucessão) (seções (longitudinais) de leito de catalisador fixo, seções de leito de catalisador). Neste caso, cada seção longitudinal individual pode ser configurada uniformemente ao longo de seu comprimento, como já foi detalhado para um tubo de catalisador carregado uniformemente ao longo de seu comprimento total. Na transição de uma seção de leito intrinsecamente homogênea para a próxima seção de leito intrinsecamente homogênea, a configuração (composição) do leito muda abruptamente. Ao longo de um tubo de catalisador, isto dá lugar a leitos fixos de catalisador que possuem uma estrutura heterogênea. Também é feita referência a um enchimento (ou leito) estruturado dos tubos de catalisador. No início (visto na direção do fluxo do gás de reação fluindo através do tubo de catalisador) e/ou no final do tubo de catalisador, o leito de catalisador fixo é frequentemente concluído por um único leito de corpos inertes de forma geométrica.

Exemplos desses enchimentos estruturados de tubos de catalisador são descritos, entre outros, 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.

5           Em geral, o enchimento de um tubo de catalisador com um leito de catalisador fixo estruturado será configurado de modo que a atividade volume-específica do leito de catalisador fixo aumente na direção do fluxo do leito de catalisador fixo. A atividade volume-específica de uma seção longitudinal intrinsecamente homogênea de uma carga de leito de catalisador  
10       fixo de um tubo de catalisador é então aumentada quando, com carregamento contínuo do tubo de catalisador como na seção longitudinal correspondente do tubo de catalisador, em condições, quanto ao mais, idênticas de reação (i.e. composição idêntica da mistura gasosa de reação, carga idêntica do leito de catalisador fixo com mistura gasosa de reação e temperatura de entrada  
15       idêntica do portador térmico e condições de fluxo idênticas do portador térmico), resulta uma conversão aumentada de reagente (com base em uma passagem única da mistura gasosa de reação através do tubo de catalisador).

          Entende-se que o carregamento de um leito de catalisador fixo que catalisa a etapa de reação com gás de reação ou com um componente de  
20       gás de reação signifique o montante de gás de reação ou de componente de gás de reação em litros padrão (l (STP); o volume em litros que o montante de gás de reação ou componente de gás de reação correspondente absorveria em condições padrão, i.e. a 25°C e 1 bar) que é conduzido através de um litro de leito de catalisador fixo por hora. Seções de leito de material inerte puro não  
25       estão incluídas.

          Para a preparação de corpos de catalisador K de óxido multielementar, conformados, não suportados, o procedimento será, como já indicado, vantajosamente, bem usualmente, o de conformar uma mistura finamente dividida de compostos precursores, que geralmente inclui grafite

como um auxiliar de conformação adicionado finamente dividido, na geometria anular desejada para o corpo conformado de catalisador K e tratar os corpos precursores de catalisador anulares resultantes (eles são também referidos bastante usualmente como “corpos verdes anulares”) em temperatura elevada para obter o material de peneiramento que é composto de corpos anulares de catalisador K e de fragmentos de corpos conformados de catalisador K (cuja composição ativa é o óxido multielementar desejado) e que deve ser tratado de acordo com a invenção.

Especificamente, o procedimento pode, por exemplo, ser como descrito nos documentos WO 2005/030393, DE-A 102007005606, DE-A 102007004961, EP-A 467144, EP-A 1060792, DE-A 19855913, WO 01/68245, EP-A 1060792, Research Disclosure RD 2005-497012, WO 03/078310, DE-A 102005035978, DE-A 102005037678, WO 03/78059, WO 03/078310, DE-A 19922113, WO 02/24620, WO 02/062737 e US-A 2005/0131253. O processo de acordo com a invenção é recomendado também no caso de resistência à compressão lateral dos corpos verdes anulares  $\leq 20$  N.

Vantajosamente, os corpos verdes anulares também serão submetidos ao processo de peneiramento de acordo com a invenção. Será apreciado que os corpos verdes anulares podem, entretanto, também ser submetidos a um processo de peneiramento de acordo com US-A 7147011 ou EP-A 1726358. O resíduo de peneiramento que permanece é bem livre de fragmentos de corpos verdes anulares e é subsequentemente tratado termicamente para obtenção de corpos de catalisador K anulares, de óxido multielementar, não suportados. Em uma maneira muito particularmente vantajosa, esse tratamento térmico será realizado em um calcinador de correia, descrito por meio de exemplo pela WO 02/24620 e WO 03/078310.

Apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, uma zona de resfriamento é disposta no final do calcinador de correia, na qual o material calcinado é resfriado a uma temperatura apropriada de um ponto de vista de

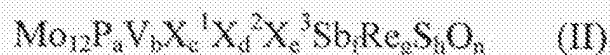
aplicação para o peneiramento da invenção (por exemplo de 40 a 100°C, usualmente de 60 a 80°C). A correia transportadora do calcinador de correia alimenta o material calcinado resfriado vantajosamente através de uma mangueira plástica macia (termicamente estável) (por exemplo de PVC (espessura de parede: tipicamente 3 mm)) como um elemento de junção e, seguindo a gravidade, continuamente para o plano de peneiramento da máquina de peneiramento usada (preferivelmente uma máquina planar de peneiramento ou uma máquina planar vibratória de peneiramento). A altura de queda pode, por exemplo, ser de 30 a 100 cm, frequentemente de 40 a 70 cm. Para evitar a formação de corpos anulares de catalisador K fraturados adicionais desta altura de queda, a mangueira de conexão é vantajosamente configurada em forma de zig-zag, como mostrado na figura 12. Tipicamente, o diâmetro interno dessa mangueira de conexão, baseada em uma corrente de produção de 30 kg/h a 70 kg/h de corpos anulares de catalisador K por hora, é de cerca de 20 cm. O peneiramento pode ser realizado, desta forma, ligado ao tratamento térmico, sem emenda, de maneira contínua, como este. O peneiramento em si é vantajosamente realizado em presença de ar (especialmente no caso de todos os catalisadores de óxidos multielementar listados por meio de exemplo neste documento). O tempo de residência do material que está sendo peneirado na máquina de peneiramento é tipicamente de 0,05 a 0,6 h, frequentemente de 0,1 a 0,3 h. No caso de catalisadores ou composições ativas altamente higroscópicos ou sensíveis a oxigênio ou, o peneiramento pode também ser efetuado com exclusão de umidade e/ou oxigênio (por exemplo em atmosfera de N<sub>2</sub>). Da máquina de peneiramento, os corpos anulares de catalisador K são geralmente alimentados diretamente a um vaso fechável de maneira estanque, no qual são armazenados. Deste vaso (por exemplo, uma cuba revestida com polipropileno), eles podem, então, ser retirados, por exemplo, para fins de enchimento estruturado de tubos de reação (tubos de catalisador) segundo o ensinamento de DE-A

102004023249. No caminho entre a cuba de estocagem ao empacotamento recomendado em DE-A 102004023249, é vantajosamente possível de novo realizar um peneiramento da invenção. Quando o tratamento térmico dos corpos verdes anulares no calcinador de correia não é realizado em atmosfera de ar, mas em vez disso, por exemplo, em N<sub>2</sub> e/ou H<sub>2</sub>O, o calcinador de correia e a máquina de peneiramento são, apropriadamente de um ponto de vista de aplicação, separados por um alimentador em estrela que evita que quantidades excessivamente grandes de N<sub>2</sub> e/ou H<sub>2</sub>O do calcinador de correia sejam descarregados na rota do material de calcinação (material de peneiramento) para o peneiramento da invenção.

Uma máquina de peneiramento adequada para o peneiramento da invenção é, com particular vantagem, um vibrador livre do tipo E. A. 36-3 da Engelsmann AG, DE-67059 Ludwigshafen (área de peneiramento: aprox. 0,375 m<sup>2</sup>, inclinação da peneira: 3 – 4°, material DIN 1.4541, três insertos de peneira arrançados em série na direção de transporte (os dois primeiros são insertos de peneira de material peneirado idênticos, o terceiro inserto de peneira pretende remover material retido de em cada caso 500 mm x 250 mm x 25 mm com 20 bolas de borracha em cada caso (diâmetro: 20 mm, tipo: 2610-2-60 como auxiliares de peneiramento)).

Seguindo as recomendações deste pedido, as placas de peneira utilizadas são direcionadas para a geometria do material de peneiramento (dos corpos anulares de catalisador K).

Os procedimentos da invenção descritos são, naturalmente também adequados quando a composição ativa dos corpos anulares de catalisador é um óxido multielementar de fórmula geral II



com

X<sup>1</sup> = potássio, rubídio e/ou césio,

X<sup>2</sup> = 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,

5 d = 0 a ou 0,01 a 2,

e = 0 a 2,

f = 0 a ou 0,01 a 2,

g = 0 a 1,

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

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

Esses corpos anulares de catalisador são vantajosamente adequados especialmente para uma oxidação parcial em fase gasosa catalisada heterogeneamente de metacroleína a ácido metacrílico. Geometrias de anel  
15 possíveis incluem todas as mencionadas em geral neste documento.

Corpos de catalisador K anulares não suportados compostos de óxidos de multielementares II são preferivelmente obteníveis, por exemplo, pelo procedimento descrito na EP-A 467 144.

20 Uma geometria de anel preferida é aquela com E x I x H = 7 mm x 3 mm x 6,9 mm (ver também DE-A 102007005602). Quanto ao mais, podem ser empregadas as condições de processo de oxidação parcial descritas em EP-A 467 144 e DE-A 102007005602.

O processo de acordo com a invenção é também adequado para corpos anulares de catalisador K cuja composição ativa é uma  
25 composição ativa de óxido multielementar de fórmula geral III



no qual as variáveis são, cada uma, como definido abaixo:

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

$X^2 = K, Na, Rb, Cs$  e/ou  $Tl$ ,

$b = 0,9$  a  $1,5$ ,

$c = 0$  a  $0,1$ ,

$d = 0$  a  $0,1$ ,

5  $e = 0$  a  $0,1$  e

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

Esses catalisadores são adequados especialmente para a oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada de  
10 hidrocarbonetos tendo pelo menos quatro átomos de carbono (especialmente n-butano, n-butenos e/ou benzeno) a anidrido maléico. Geometrias de anel possíveis incluem todos aqueles mencionados em geral neste documento.

Vantajosamente, estes corpos anulares de catalisador são também catalisadores anulares não suportados, obteníveis, por exemplo, de  
15 acordo com WO 03/078310, WO 01/68245, DE-A 102005035978 e DE-A 102007005602.

Geometrias de anel favoráveis são, por exemplo,  $E \times I \times H = 6,6 \text{ mm} \times 3,7 \text{ mm} \times 4,2 \text{ mm}$  ou  $5 \text{ mm} \times 2,5 \text{ mm} \times 3,2 \text{ mm}$ .

Quanto ao mais, as condições de processo de oxidação parcial  
20 recomendadas em WO 03/078310, WO 01/68245, DE-A 102005035978 e DE-A 102007005602 podem ser empregadas.

O procedimento da invenção é também vantajosamente adequado para corpos anulares de catalisador K cuja composição ativa é uma composição de óxido multielementar de fórmula geral IV

25  $Mo_{12}V_aX_b^1X_c^2X_d^3X_e^4X_f^5X_g^6O_n$  (IV)

com

$X^1 = W, Nb, Ta, Cr$  e/ou  $Ce$ ,

$X^2 = Cu, Ni, Co, Fe, Mn$  e/ou  $Zn$ ,

$X^3 = Sb$  e/ou  $Bi$ ,

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

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

$X^6$  =Si, Al, Ti e/ou Zr,

a =1 a 6,

5 b = 0,2 a 4,

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

d =0 a 40,

e =0 a 2,

f =0 a 4,

10 g =0 a 40, e

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

Eles são adequados, em particular, para uma oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada de acroleína a ácido acrílico.

15 Geometrias de anel possíveis incluem todas as mencionadas em geral neste documento. Os corpos anulares de catalisador K da invenção são vantajosamente catalisadores revestidos obteníveis, por exemplo, de acordo com DE-A 102004025445, DE-A 10350822, DE-A 102007010422, US 2006/0205978 e EP-A 714700, e a arte anterior citada nestes documentos.

20 A espessura do revestimento de composição ativa pode ser de 10 a 1000  $\mu\text{m}$ , preferivelmente de 50 a 500  $\mu\text{m}$  e mais preferivelmente de 150 a 250  $\mu\text{m}$ . Espessuras de revestimento favoráveis são aquelas das modalidades de exemplo de EP-A 714700. O documento acima mencionado também descreve as condições de oxidação parcial por meio de exemplo. Uma geometria de  
25 anel preferida é aquela com  $E \times I \times H = 7 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ .

Um óxido multielementar contendo V e Ti (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 a anidrido ftálico.

É dada preferência ao uso dos óxidos multielementar acima mencionados como catalisadores anulares revestidos. Exemplos de geometrias de anel incluem as geometrias de anel  $E \times I \times H = 8 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ , ou  $8 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ , ou  $8 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$  e  $7 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ .

5           Corpos anulares de catalisador cuja composição ativa inclui prata elementar em um corpo suporte oxidico são adequados (em particular como catalisadores suportados) especialmente para uma oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada de etileno a óxido de etileno (cf. EP-A 496470). Corpos suporte conformados úteis são, em particular aqueles que  
10           consistem em uma extensão de pelo menos 80% em peso de óxido de alumínio (por exemplo,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ).

Catalisadores suportados que compreendem prata elementar em sua composição ativa aplicada a um corpo suporte oxidico e que são adequados para uma oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente  
15           catalisada de etileno a óxido de etileno são, no entanto, também os catalisadores anulares suportados de EP-A 619 142, EP-A 624 398, EP-A 804 289 e EP-A 937 498. Para todos os catalisadores suportados acima mencionados, o processo de acordo com a invenção é adequado.

20           Geometrias de anel adequadas  $E \times I \times H$  incluem as geometrias de anel  $8,5 \text{ mm} \times 3,2 \text{ mm} \times 8,5 \text{ mm}$ , e  $8,5 \text{ mm} \times 3,4 \text{ mm} \times 8,5 \text{ mm}$  e  $8 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$  ou  $7,7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ .

Geralmente, o processo de acordo com a invenção é favorável também no caso de corpos anulares de catalisador K (especialmente no caso de catalisadores de óxidos multielementar não suportados) cuja resistência à  
25           compressão lateral é  $s \leq 20 \text{ N}$  (geralmente  $\geq 1 \text{ N}$ ). Frequentemente, a resistência à compressão lateral acima mencionada é  $\geq 5 \text{ N}$  e  $\leq 15 \text{ N}$ .

Neste documento, a resistência à compressão lateral significa a resistência à compressão quando o corpo anular de catalisador K (ou o corpo verde anular ou corpos anulares de precursores de catalisador) é (são)

comprimido(s) em ângulos retos com a casca cilíndrica (i.e. paralelamente à área do orifício do anel).

Todas as resistências à compressão lateral neste documento se referem a uma determinação por meio de uma máquina de teste de materiais Z 2.5/TS 15 da Zwick GmbH & Co (D-89079 Ulm). Esta máquina de teste de  
5 materiais é projetada para tensão quasistática tendo um perfil de ímpeto-único (estacionário, dinâmico ou variável. É adequada para testes de tração, de compressão e de flexão.

O transdutor de força KAF-TC instalado da A.S.T. (D-01307  
10 Dresden) com o número de fabricação 03-2038 é calibrado de acordo com DIN EN ISO 7500-1 e foi utilizável para a faixa de medições de 1-500 N (incerteza de medição relativa:  $\pm 0,2\%$ ).

Medições de resistências à compressão lateral são preferivelmente realizadas com os seguintes parâmetros :

15 Força inicial = 0,5 N.

Velocidade da força inicial = 10 mm/min.

Velocidade de teste = 1,6 mm/min.

No teste, a matriz superior foi inicialmente abaixada vagarosamente até quase a superfície da casca cilíndrica do corpo anular. A  
20 matriz superior foi então parada para subseqüentemente ser abaixada na velocidade significativamente menor de teste com a força inicial mínima requerida para abaixamento adicional. A força inicial na qual o corpo anular apresenta formação de trincas é a força de compressão lateral (SCS).

#### Exemplos e exemplos comparativos

25 L. Como descrito na Divulgação de Pesquisa (Research Disclosure - RD 2005-497012 no Exemplo L, B), VVK3, corpos conformados anulares não suportados do tipo óxido multielementar de geometria  $E \times I \times H = 5 \text{ mm} \times 2 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$  com a estequiometria de elementos  $\text{Mo}_{12}\text{Bi}_1\text{W}_2\text{Co}_{5,5}\text{Fe}_{2,94}\text{Si}_{1,59}\text{K}_{0,08}\text{O}_x$  foram preparados. Os corpos verdes foram

tratados termicamente como especificado em RD 2005-497012 em um calcinador de correia de acordo com DE-A 10048957. Após o material calcinado ter sido resfriado a uma temperatura de 60°C em uma zona de resfriamento integrada ao calcinador de correia, ele foi alimentado continuamente através da mangueira de PVC em uma configuração em zig-zag de acordo com a Figura 12 (as referências numéricas na Figura 12 são ângulos ou mm) a uma máquina de peneiramento vibratória planar “Vibrador livre do tipo E.A. 36-3 da Engelsmann AG, DE-67059 Ludwigshafen (área de peneiramento: aprox. 0,375 m<sup>2</sup>; inclinação da peneira: 3-4°, material DIN 1.4541, três insertos de peneira arranjados em sucessão na direção do transporte (os dois primeiros eram insertos de peneira de material peneirado idênticos; o terceiro inserto de peneira realizava a remoção de material retido) de em cada caso 500 mm x 250 mm x 25 mm com em cada caso 20 bolas de borracha (diâmetro: 20 mm, tipo: 2610-2-60 como auxiliares de peneiramento))”, e submetido a um peneiramento contínuo em alta frequência (aprox. 15 Hz) peneiramento com uma pequena amplitude (aprox. 15 mm).

As placas das peneiras utilizadas eram peneiras de chapa com fendas, com orifícios retangulares (ou contornos deles) em filas deslocadas análogas à Figura 8. O resíduo de peneira dos primeiros dois insertos de peneira na direção do transporte, que tinha sido separado do material retido, foi subsequentemente usado em cada caso para encher um tubo de reação (diâmetro interno 25 mm, comprimento 2,7 m). 2511 l (STP)/h de N<sub>2</sub> escoado através do tubo de reação carregado (o tubo de reação era aberto na direção do fluxo contra 1.017 bar a 20,5°C) e a perda de carga  $\Delta p$  (mbar) que resultou em cada caso foi determinada. A carga do tubo de reação consistiu, na direção do fluxo, em cada caso, primeiro para um comprimento de 1,0 m de uma mistura homogeneizada de 30% em peso de anéis de esteatita não danificados da mesma geometria e 70% em peso de material que passou através da peneira na remoção do material retido, e depois, para um comprimento de

1,7 m, somente do material acima mencionado que passou através da peneira. A espessura da chapa da peneira era de 1 mm.

O tempo de residência do material de peneiramento em um dos insertos da peneira foi, em média de cerca de 10 minutos.

5 A Tabela 1 abaixo mostra os resultados obtidos em função dos parâmetros C e L do orifício de peneira dos dois insertos de peneira de material peneirado de acordo com a Figura 2.

10 O quociente  $m_U/m_{tot}$  fornece a proporção em peso da fração subdimensionada removida no peneiramento em % em peso e baseada no montante total de material de peneiramento introduzido. E representa o exemplo da invenção; C representa exemplo comparativo. Além disso, a Tabela 1 inclui o resultado no caso de produto de calcinação não peneirado para o carregamento do tubo de reação.

Tabela 1

	C (mm)	L (mm)	$m_U/m_{tot}$ (% em peso)	$\Delta p$ (mbar)
E1	1,8	20	0,53	258
C1 (E > C > H e L = C)	4,5	4,5	1,05	267
C2 (E > C > H e L > C)	4,5	6,0	25,9	245
C3 (C < (E-1/2))	1,0	20	0,28	289
C4 (não peneirado)	-	-	0	301

15 E1 obteve o segundo melhor resultado para  $\Delta p$  com  $m_U/m_{tot}$  comparativamente baixo.

No caso do inserto de peneira usado para material retido, C era 6 mm e L era 14 mm.

20 Uma análise detalhada dos resultados encontrados deu lugar às seguintes premissas com referência às Figuras 13 a 16.

A Figura 13 mostra um diagrama esquemático de um corpo anular conformado de catalisador não danificado.

As Figuras 14 e 15 mostram diagramas esquemáticos de linhas de fratura que ocorrem com elevada frequência na preparação dos corpos

anulares de catalisador, e também de fragmentos 1 e 2, e 3 e 4, que resultam no caso de fratura.

A Figura 16 mostra um diagrama esquemático de um orifício de peneira (ou de seu contorno) a partir do topo.

5 Em E1, no peneiramento de partículas finas, os fragmentos finos 2 e 4 fizeram parte do material passando através da peneira e os fragmentos grossos 1 e 3 ficaram no resíduo da peneira.

10 Em C1, no peneiramento de partículas finas, os fragmentos 1 e 2 fizeram parte do material passando através da peneira e os fragmentos 3 e 4 ficaram no resíduo da peneira.

Em C2, no peneiramento de partículas finas, os fragmentos 2 e 4 e também 1 e 3 e até os anéis inteiros fizeram parte do material passando através da peneira.

15 No caso de um aumento no tempo de residência do material de peneiramento nos insertos de peneira de partículas finas, a proporção de anéis inteiros no material passando através da peneira aumentou significativamente.

Em C3, no peneiramento de partículas finas, além do pó, essencialmente somente os fragmentos 4 estavam no material passando através da peneira, mas os fragmentos 1, 2 e 3 ficaram no resíduo da peneira.

20 O exemplo de trabalho E1 pode ser realizado de uma maneira completamente correspondente quando as peneiras de chapa com fendas com orifícios de peneira retangulares dos insertos de peneira são substituídos por aqueles com orifícios alongados de acordo com a Figura 8.

25 Neste caso, os dois insertos de peneira de material peneirado podem ter a seguinte configuração da peneira de chapa com fendas:

$C = 1,8 \text{ mm}$ ;  $L = 18,8 \text{ mm}$ ;  $a = 3,4 \text{ mm}$ ;  $b = 3 \text{ mm}$ ;  $d = 1 \text{ mm}$ ;  
 $F = 23,4\%$ .

O inserto de peneira de material retido pode ter a seguinte configuração de peneira de chapa com fendas:

$C = 5,7 \text{ mm}$ ;  $L = 14 \text{ mm}$ ;  $a = 5,9 \text{ mm}$ ;  $b = 5,4 \text{ mm}$ ;  $d = 1 \text{ mm}$ ;  
 $F = 38,7\%$ .

Tanto no caso dos insertos de peneira de material peneirado, quanto no caso do inserto de peneira de material retido, o material DIN (aço) 1.4541 é o material preferido. Como alternativa, material DIN 1.4571 é também adequado.

A subpeneira é fabricada do mesmo material e tem orifícios de peneira quadrados de  $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$  em uma configuração de peneira de chapa com fendas ( $d = 1 \text{ mm}$ ) com larguras de ponte de  $2,9 \text{ mm}$  em todos os lados de um orifício de peneira.

A Figura 17 mostra uma seção desse inserto de peneira de material peneirado a partir do topo.

A Figura 18 mostra uma seção desse inserto de peneira de material retido a partir do topo.

II. Como descrito na Divulgação de Pesquisa (Research Disclosure - RD) 2005-497012 do Exemplo III., A, corpos anulares não suportados tipo óxido multielementar de geometria foram preparados, exceto pela geometria que foi de  $E \times I \times H = 7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 6,9 \text{ mm}$ . A estequiometria de elementos foi  $\text{Mo}_{12}\text{P}_{1,5}\text{V}_{0,6}\text{CS}_{1,0}\text{Cu}_{0,5}\text{Sb}_1\text{S}_{0,03}\text{O}_x$ . Como especificado em RD 2005-497012, os corpos verdes foram tratados termicamente em um calcinador de correia de acordo com DE-A 10048957.

Após o material calcinado ter sido resfriado a uma temperatura de  $60^\circ\text{C}$  em uma zona de resfriamento integrada ao calcinador de correia, ele foi, como em I., alimentado ao peneiramento descrito em I. A Tabela 2 abaixo mostra os resultados obtidos em função dos parâmetros C e L de orifício de peneira dos dois insertos de material peneirado de acordo com a Figura 2. O tubo de reação tendo um diâmetro interno de  $25 \text{ mm}$  e um comprimento de  $3,99 \text{ m}$  era sempre carregado somente com o material que passava através da peneira na remoção de material retido. A perda de carga foi determinada

como em I., exceto pelo uso de uma corrente de nitrogênio de somente 1996 NI/h.

Tabela 2

	C (mm)	L (mm)	$m_{12}/m_{tot}$ (% em peso)	$\Delta p$ (mbar)
E2	6,0	20	17,6	95
E3	4,0	20	12,3	99
C5 (E > C > H e L = C)	6,95	6,95	19,8	102
C6 (E > C > H e L > C)	6,95	13	38,7	92
C7 (C < (E-1/2))	1,5	20	10,3	113
C8 (não peneirado)	-	-	0	119

5 E2 e E3 alcançaram o segundo e terceiro melhor resultado respectivamente para  $\Delta p$  com  $m_{12}/m_{tot}$  comparativamente baixo. As razões para estes resultados correspondem àquelas dos resultados em I.

O exemplo de trabalho E2 pode ser realizado de uma maneira completamente correspondente quando as peneiras de chapa com fendas com orifícios de peneira retangulares dos insertos de peneira são substituídos por aqueles com orifícios alongados de acordo com a Figura 8.

Os dois insertos de peneira de material peneirado podem ter a seguinte configuração da peneira de chapa com fendas:

$C = 5,7$  mm;  $L = 14,0$  mm;  $a = 6,2$  mm;  $b = 5,4$  mm;  $d = 1$  mm;  $F = 38,7\%$ .

15 O inserto de peneira de material retido pode ter a seguinte configuração de peneira de chapa com fendas:

$C = 8,8$  mm;  $L = 16$  mm;  $a = 5,3$  mm;  $b = 5,1$  mm;  $d = 1$  mm;  $F = 49,3\%$ .

20 Tanto no caso dos insertos de peneira de material peneirado, quanto no caso do inserto de peneira de material retido, o material DIN (aço) 1.4541 é o material preferido. Como alternativa, material DIN 1.4571 é também adequado.

25 A subpeneira é fabricada do mesmo material e tem orifícios de peneira quadrados de 10 mm x 10 mm em uma configuração de peneira de chapa com fendas ( $d = 1$  mm) com larguras de ponte de 2,9 mm em todos os

lados de um orifício de peneira.

A Figura 19 mostra uma seção desse inserto de peneira de material peneirado a partir do topo.

5 A Figura 20 mostra uma seção desse inserto de peneira de material retido.

10 III. Como descrito no Exemplo 1 de WO 03/078310, um corpo de catalisador anular não suportado foi preparado com a composição ativa de óxido multielementar contendo vanádio, fósforo, ferro e oxigênio correspondente àquela mencionada acima no Exemplo 1, mas com a geometria de anel  $E \times I \times L = 6,6 \text{ mm} \times 3,7 \text{ mm} \times 4,2 \text{ mm}$ .

Após o material calcinado ter sido resfriado a uma temperatura de  $60^\circ\text{C}$  em uma zona de resfriamento integrada ao calcinador de correia, ele foi, como em I., alimentado ao peneiramento descrito em I. O calcinador de correia e a máquina de peneiramento foram separados por meio de um alimentador em estrela, que evitava que quantidades excessivas de  $\text{H}_2\text{O}/\text{N}_2$  fossem descarregados pelo calcinador de correia na rota do material de calcinamento para o peneiramento. A Tabela 3 abaixo mostra os resultados obtidos em função dos parâmetros C e L de orifício de peneira dos insertos de material peneirado de acordo com a Figura 2. O tubo de reação tendo um diâmetro interno de 21 mm e um comprimento de 6,00 m era sempre carregado somente com o material que passava através da peneira na remoção de material retido. A perda de carga foi determinada como em I., mas por meio de uma corrente de ar de 4142 l (STP)/h.

15

20

Tabela 3

	C (mm)	L (mm)	$m_U/m_{tot}$ (% em peso)	$\Delta p$ (mbar)
E4	3,5	20	0,66	544
C9 (E > C > H e L = C)	6,0	6,0	1,5	561
C10 (E > C > H e L > C)	6,0	12	31,4	522
C11 (C < (E-I)/2)	1,0	20	0,45	581
C12 (não peneirado)	-	-	0	634

25

E4 obteve o segundo melhor resultado para  $\Delta p$  com  $m_U/m_{tot}$

comparativamente baixo. As razões para estes resultados correspondem àquelas para os resultados em I.

O Exemplo de trabalho E4 pode ser realizado de uma maneira completamente correspondente quando as peneiras de chapa com fendas com orifícios de peneira retangulares dos insertos de peneira são substituídos por aqueles com orifícios alongados de acordo com a Figura 8.

Os dois insertos de peneira de material peneirado podem ter a seguinte configuração da peneira de chapa com fendas:

$C = 3,3 \text{ mm}; L = 16,3 \text{ mm}; a = 4,1 \text{ mm}; b = 5,6 \text{ mm}; d = 1 \text{ mm}; F = 32,3\%$ .

O inserto de peneira de material retido pode ter a seguinte configuração da peneira de chapa com fendas:

$C = 9,7 \text{ mm}; L = 16,3 \text{ mm}; a = 4,1 \text{ mm}; b = 5,6 \text{ mm}; d = 1 \text{ mm}, F = 42,0\%$ .

Tanto no caso dos insertos de peneira de material peneirado, quanto no caso do inserto de peneira de material retido, o material DIN (aço) 1.4541 é o material preferido. Como alternativa, material DIN 1.4571 é também adequado.

A subpeneira é fabricada do mesmo material e tem orifícios de peneira quadrados de 10 mm x 10 mm em uma configuração de peneira de chapa com fendas ( $d = 1 \text{ mm}$ ) com larguras de ponte de 2,9 mm em todos os lados de um orifício de peneira.

A Figura 21 mostra esse inserto de peneira de material peneirado a partir do topo.

A Figura 22 mostra uma seção desse inserto de peneira de material retido.

Quando o corpo de catalisador anular não suportado descrito no Exemplo 1 de WO 03/078310 é preparado com a geometria de anel  $E \times I \times H = 5,5 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ , seguindo o ensinamento da arte anterior, um

tecido de peneira de acordo com a Figura 5 mas com orifícios de peneira quadrados, será usado. Para os insertos de peneira de material peneirado, o orifício de peneira quadrado pode, por exemplo, ser de 4 mm x 4 mm (em uma espessura do fio metálico tecido de 0,95 mm). 360 orifícios de peneiras estão, então, presentes em uma área total de 100 cm<sup>2</sup>. Para o inserto de peneira de material retido, o orifício de peneira quadrado pode, por exemplo, ser de 5,9 mm x 5,9 mm (em uma espessura do fio metálico tecido de 1,0 mm). 182 orifícios de peneiras estão, então, presentes em uma área total de 100 cm<sup>2</sup>. O fio metálico tecido pode ser fabricado de material DIN 1.4541 ou de material DIN 1.4571. A subpeneira pode sempre ser fabricada do mesmo material que uma peneira de chapa com fendas com orifícios quadrados de 10 mm x 10 mm (d = 1 mm) e uma largura de ponte de 2,9 mm em todos os lados de um orifício de peneira. A Figura 23 mostra esse inserto de material peneirado de acordo com o ensinamento da arte anterior a partir do topo. A Figura 24 mostra uma seção da peneira correspondente. A Figura 25 mostra uma seção desse inserto de peneira de material retido de acordo com o ensinamento da arte anterior, a partir do topo.

Entretanto, esse procedimento está associado com as desvantagens descritas neste documento.

Em outras palavras, é dada preferência neste caso a empregar peneiras com orifícios de peneira da invenção (por exemplo com orifícios retangulares ou alongados correspondentes), por exemplo aqueles de E1, Tabela 1 deste documento.

O Pedido de Patente US provisório No. 60/944208, protocolado em 15-06-07, é incorporado no presente pedido de patente por referência de literatura. Com relação aos ensinamentos acima mencionados, numerosas alterações e desvios da presente invenção são possíveis. Pode, portanto, ser assumido que a invenção, dentro do escopo das reivindicações anexas, pode ser realizada diferentemente da maneira aqui especificamente descrita.

## REIVINDICAÇÕES

1. Processo para carregar um reator com um leito de catalisador fixo que contém pelo menos um corpo de catalisador K conformado cuja forma geométrica é a de um anel tendo diâmetro externo E, diâmetro interno I e altura H com  $E \geq H$ , no qual, antes do carregamento, fragmentos formados na preparação dos corpos conformados de catalisador K são removidos, pelo menos parcialmente, como material que passa pela peneira de um resíduo de peneira compreendendo um corpo de catalisador K conformado por um processo de peneiramento, e então o resíduo de peneira é usado para carregar o leito de catalisador fixo, e o processo para peneiramento é executado por meio de uma peneira que tem orifícios de peneira cujo contorno contínuo abrange em cada caso pelo menos duas seções retilíneas que são opostas entre si em uma distância C ao longo de pelo menos um comprimento L, como dois lados paralelos de um retângulo com dimensões de lados L e C, com a condição de que cada linha passe por um ponto P do contorno no contorno de um orifício da peneira e paralela ao lado do retângulo teórico com comprimento lateral C que não tenha outro ponto situado no contorno cuja distância do ponto de contorno  $P > C$ ,

20 caracterizado pelo fato de que, no processo para peneiramento, as relações I,

$$L > E \geq H > C \geq (E-I)/2 \quad (I),$$

são satisfeitas.

2. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que no processo de peneiramento, as relações II,

25  $L > E \geq H > C \geq H/2 \geq (E-I)/2 \quad (II),$

são satisfeitas.

3. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que no processo de peneiramento, as relações VI,

$$L > E \geq H > 0,9H \geq C \geq (E-I)/2 \quad (VI),$$

são satisfeitas.

4. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que no processo de peneiramento, as relações III,

$$L > E \geq H > 0,9H > C \geq H/2 \geq (E-I)/2 \quad (\text{III}),$$

são satisfeitas.

5. Processo de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que no processo de peneiramento, as relações V,

$$L > E \geq H > 0,86H \geq C \geq H/2 \geq (E-I)/2 \quad (\text{V}),$$

são satisfeitas.

6. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 5, caracterizado pelo fato de que  $L \geq 1,5 \cdot E$ .

7. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 5, caracterizado pelo fato de que  $L \geq 2 \cdot E$ .

8. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 5, caracterizado pelo fato de que  $L \geq 2,5 \cdot E$ .

9. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 8, caracterizado pelo fato de que  $L \leq 20 \cdot E$ .

10. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 9, caracterizado pelo fato de que o contorno contínuo dos orifícios da peneira forma um retângulo com os comprimentos laterais L e C.

11. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 9, caracterizado pelo fato de que o contorno contínuo dos orifícios da peneira forma um furo alongado que possui o comprimento da borda L e a largura do furo C.

12. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 11, caracterizado pelo fato de que a peneira usada é uma chapa com fendas.

13. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 12, caracterizado pelo fato de que o peneiramento é realizado com uma peneira plana.

14. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 13, caracterizado pelo fato de que o peneiramento é realizado com uma peneira vibratória plana linear.

5 14, caracterizado pelo fato de que o reator é um reator de feixe de tubos cujos tubos são carregados com o leito de catalisador fixo.

16. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 15, caracterizado pelo fato de que  $E$  é de 2 a 10 mm e  $(E-I)/2$  é de 1 a 3 mm.

10 16, caracterizado pelo fato de que os corpos conformados de catalisador K são catalisadores tipo óxido multielementar não suportados.

18. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 a 17, caracterizado pelo fato de que é seguido por um processo de oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisado de um composto orgânico, no reator carregado com o leito de catalisador fixo.

19. Processo de acordo com a reivindicação 18, caracterizado pelo fato de que a oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada é uma oxidação parcial em fase gasosa heterogeneamente catalisada de etileno, de etano, de metanol, de propileno, de propano, de acroleína, de metacroleína, de 1-buteno, de 2-buteno, de isobuteno, de isobutano, de n-butano, de butadieno ou de o-xileno.

20. Processo de acordo com quaisquer das reivindicações 1 to 19, caracterizado pelo fato de que a resistência à compressão lateral dos corpos conformados de catalisador K é de até 20 N.

25 21. Processo para remover pelo menos parcialmente fragmentos que se formaram na preparação de corpos conformados de catalisador K cuja forma geométrica é a de um anel tendo diâmetro externo  $E$ , diâmetro interno  $I$  e altura  $H$  com a condição de  $E \geq H$ , de uma mistura de corpos anulares de catalisador K com estes fragmentos, como material que

passa pela peneira em um processo de peneiramento desta mistura com o auxílio de uma peneira que tem orifícios de peneira cujo contorno contínuo abrange em cada caso pelo menos duas seções retilíneas que são opostas entre si em uma distância  $C$  ao longo de pelo menos um comprimento  $L$ , como dois

5 lados paralelos de um retângulo com dimensões de lados  $L$  e  $C$ , com a condição de que cada linha  $L$  e  $C$ , com a condição de que cada linha que passa através de um ponto de contorno  $P$  no contorno de um orifício de peneira e paralela ao lado do retângulo teórico de comprimento  $C$  que não tenha outro ponto situado no contorno cuja distância ao ponto  $P > C$ ,

10 caracterizado pelo fato de que, no processo de peneiramento, as relações I,

$$L > E \geq H > C \geq (E-I)/2 \quad (I),$$

são satisfeitas.

22. Uso do resíduo da peneira obtido em um processo como

15 definido na reivindicação 21, caracterizado pelo fato de ser para carregamento de um reator com um leito de catalisador fixo.

FIGURA 1

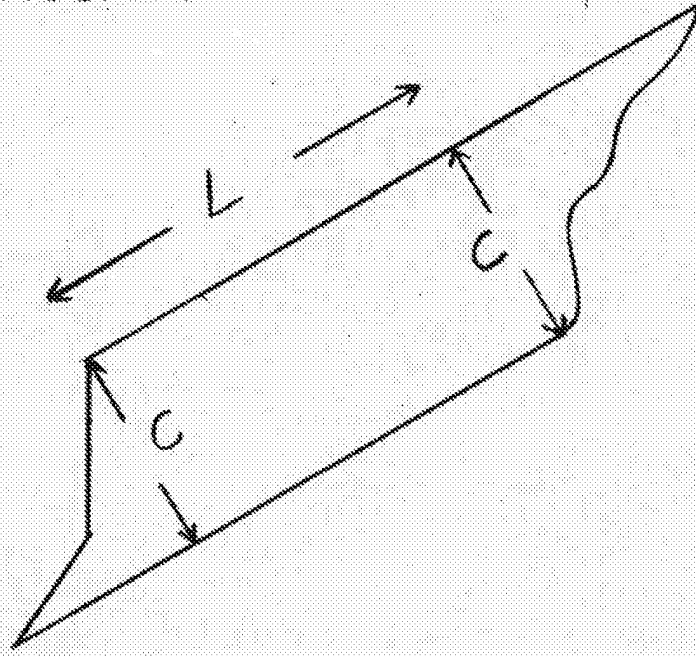


FIGURA 2

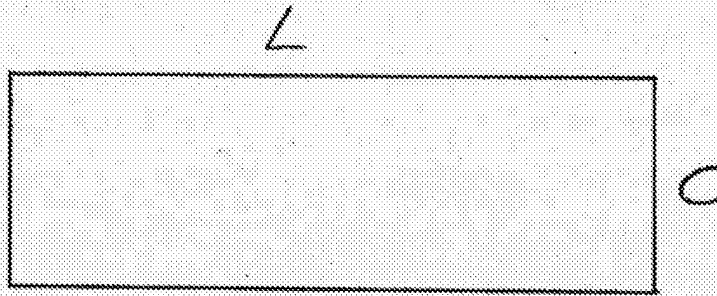


FIGURA 3

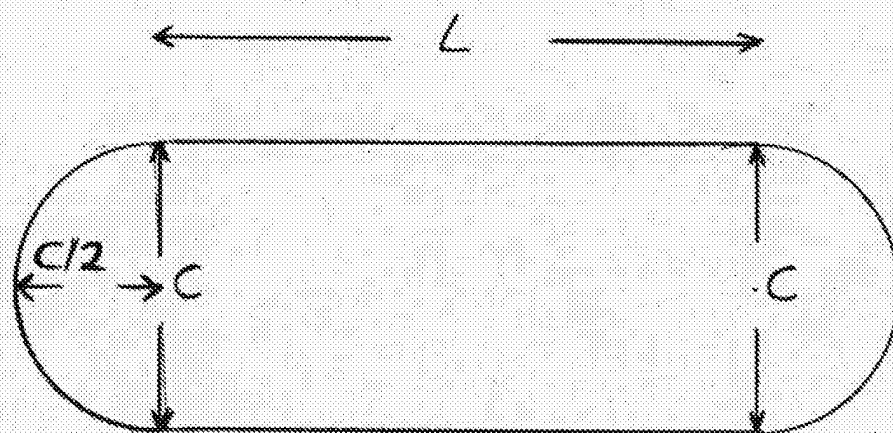


FIGURA 4

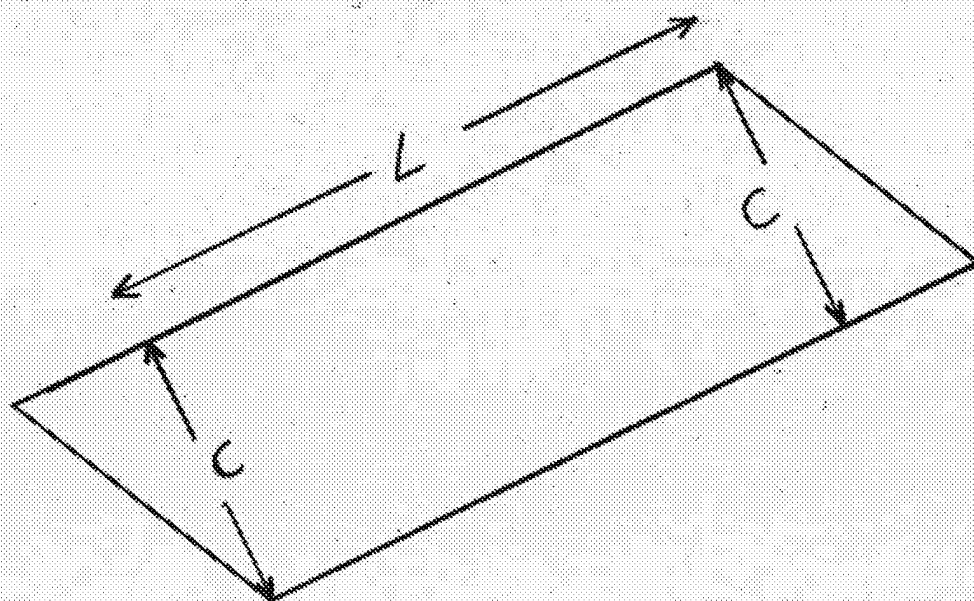


FIGURA 5

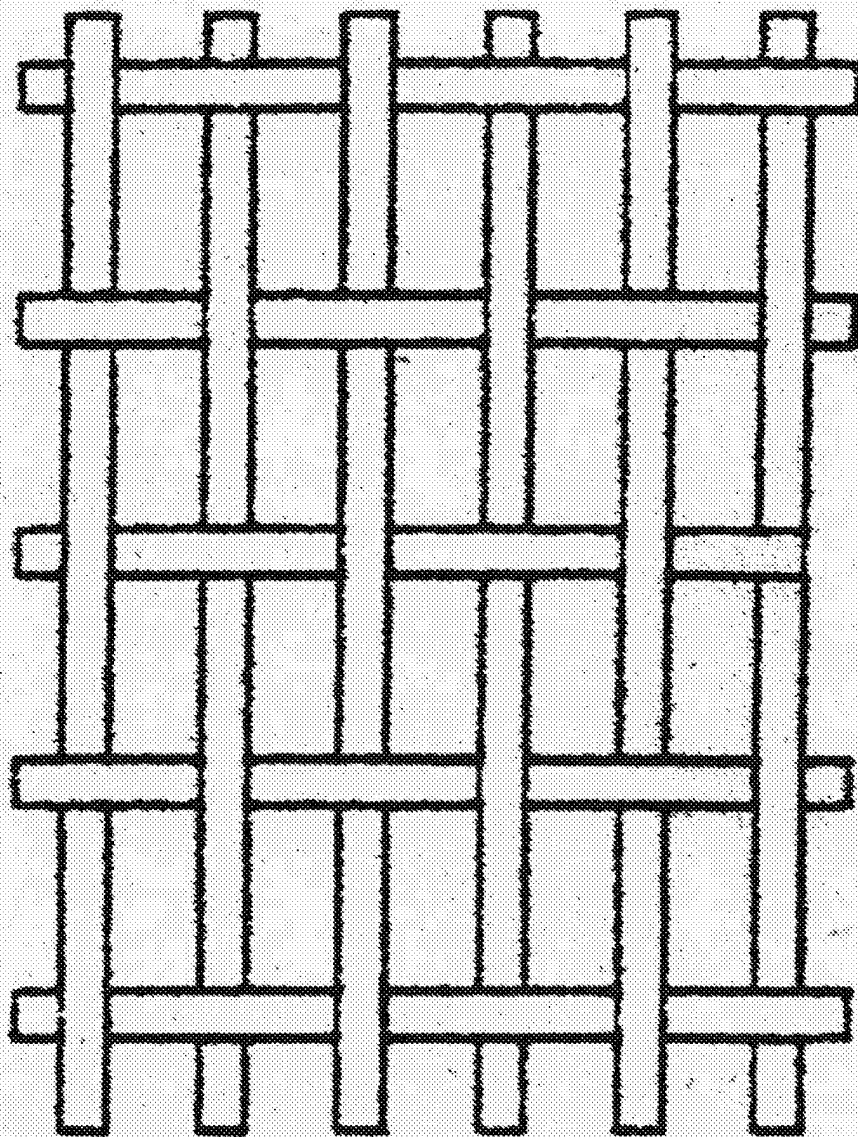


FIGURA 6

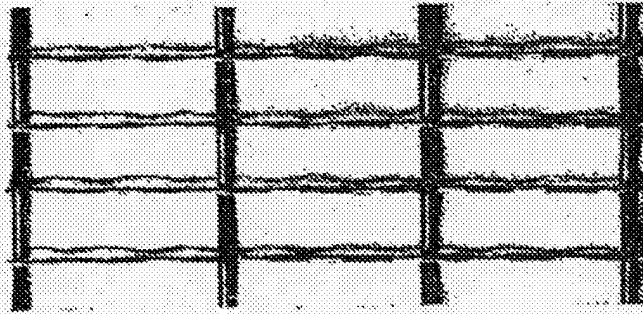


FIGURA 7

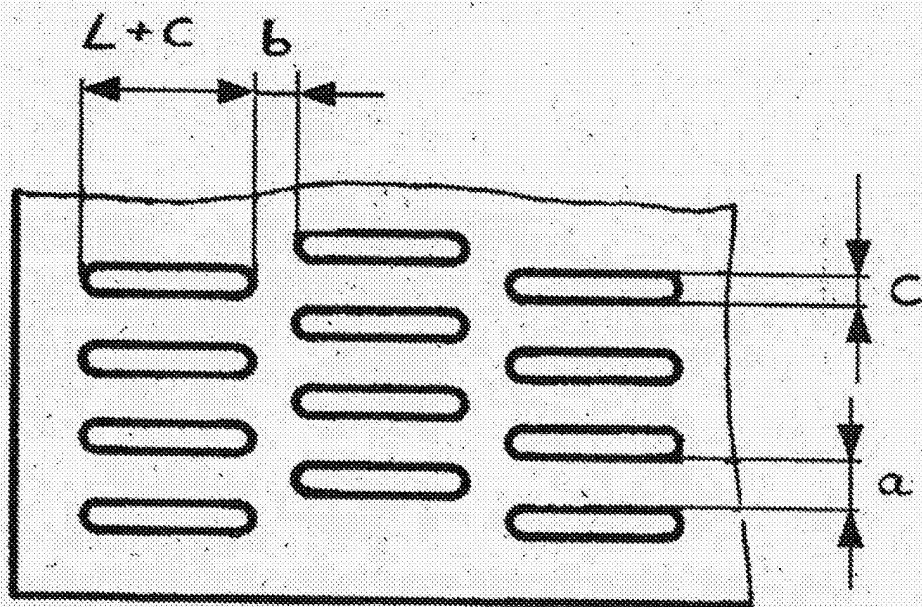


FIGURA 8

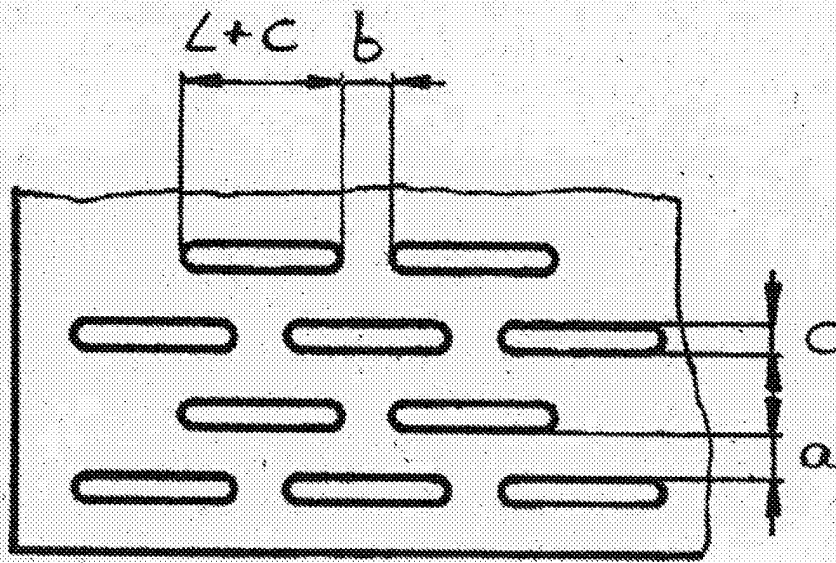


FIGURA 9

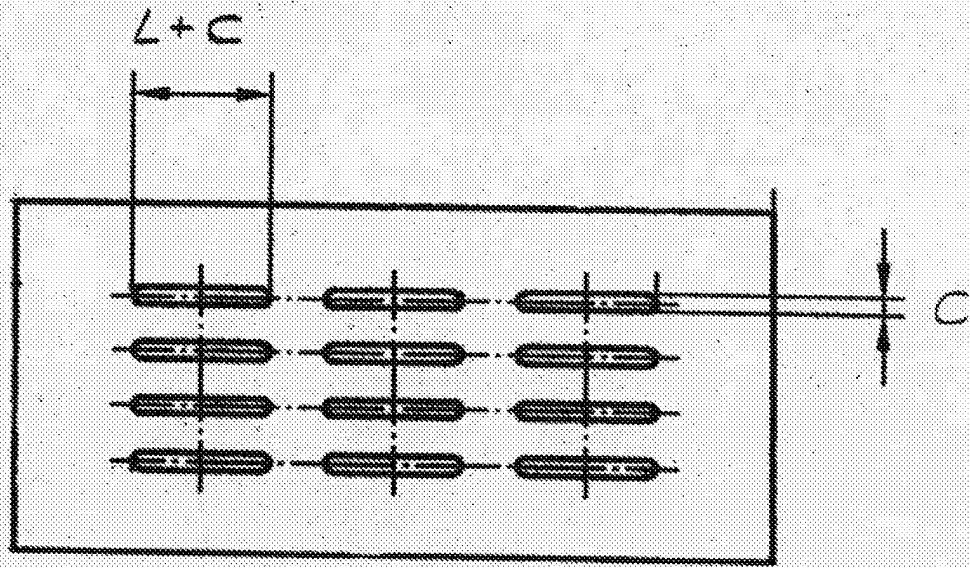


FIGURA 10

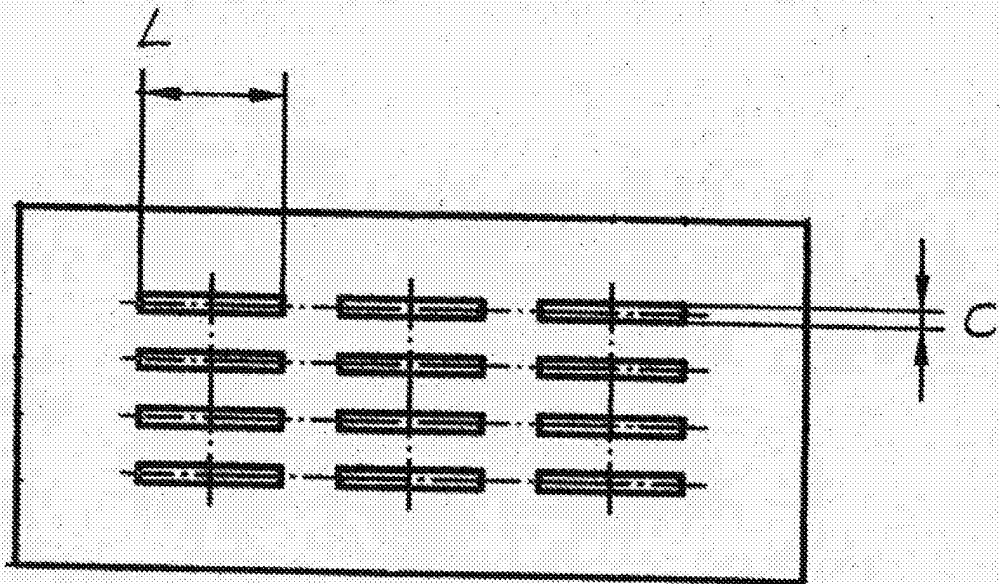


FIGURA 11

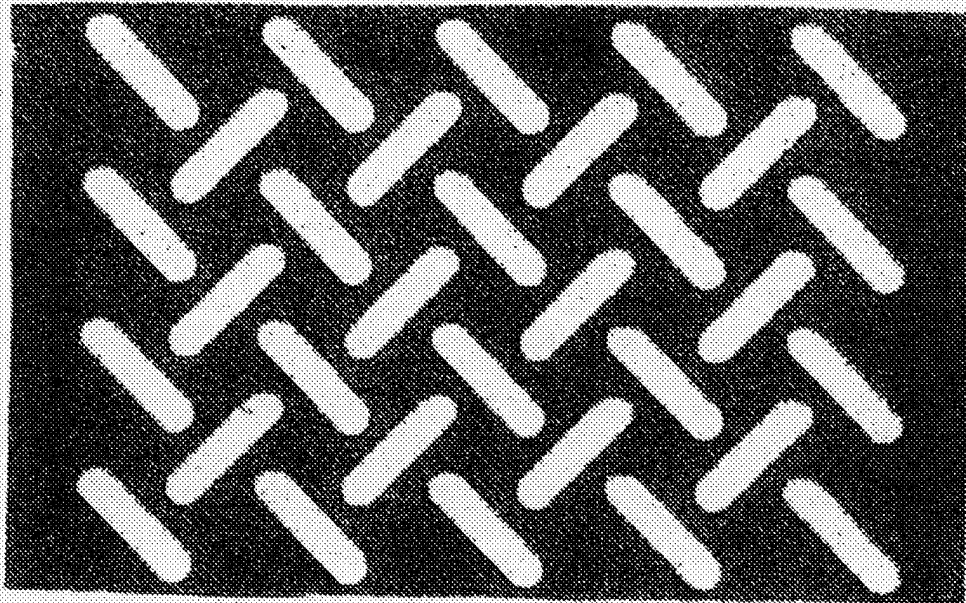


FIGURA 12

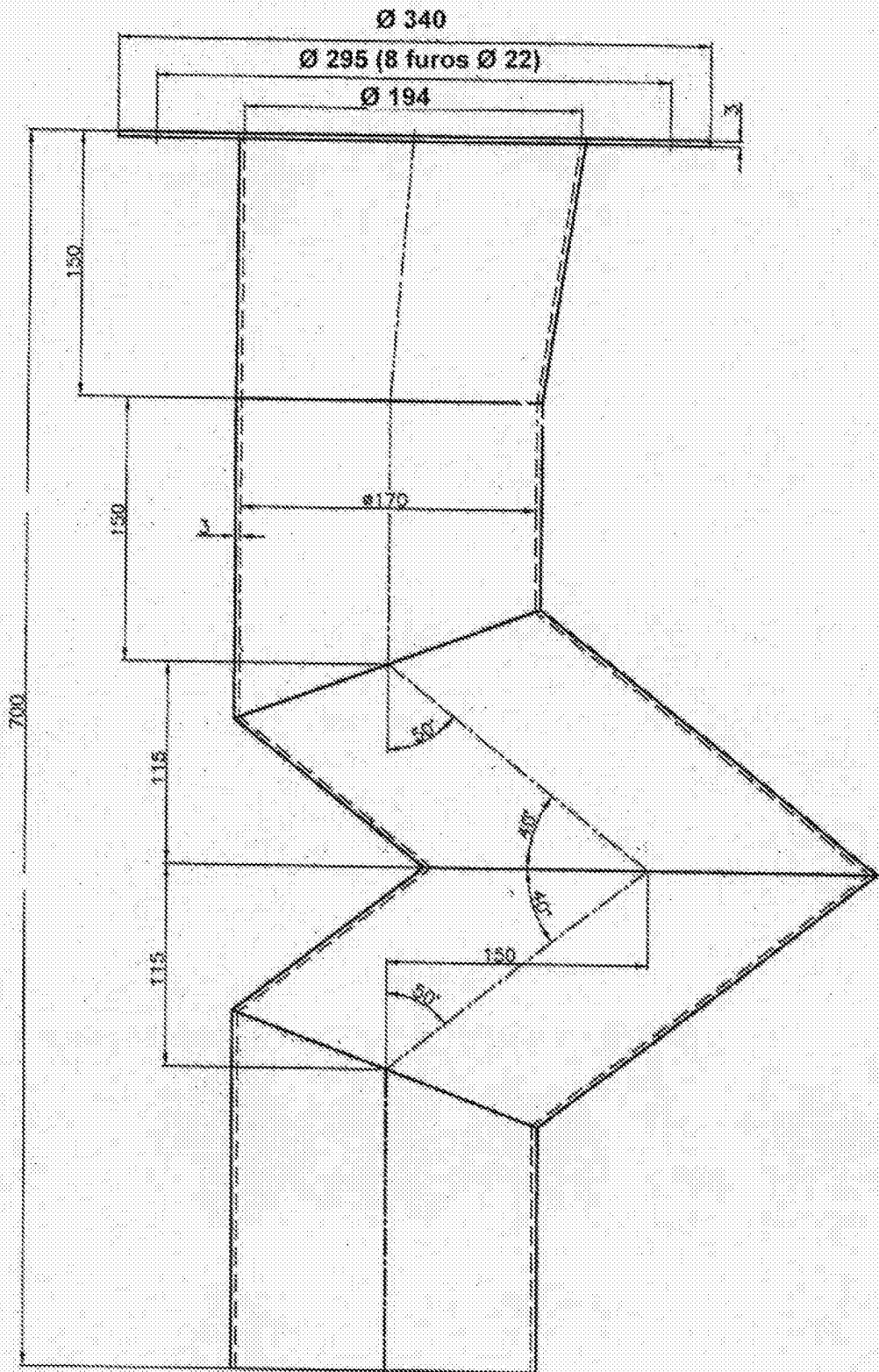


FIGURA 13

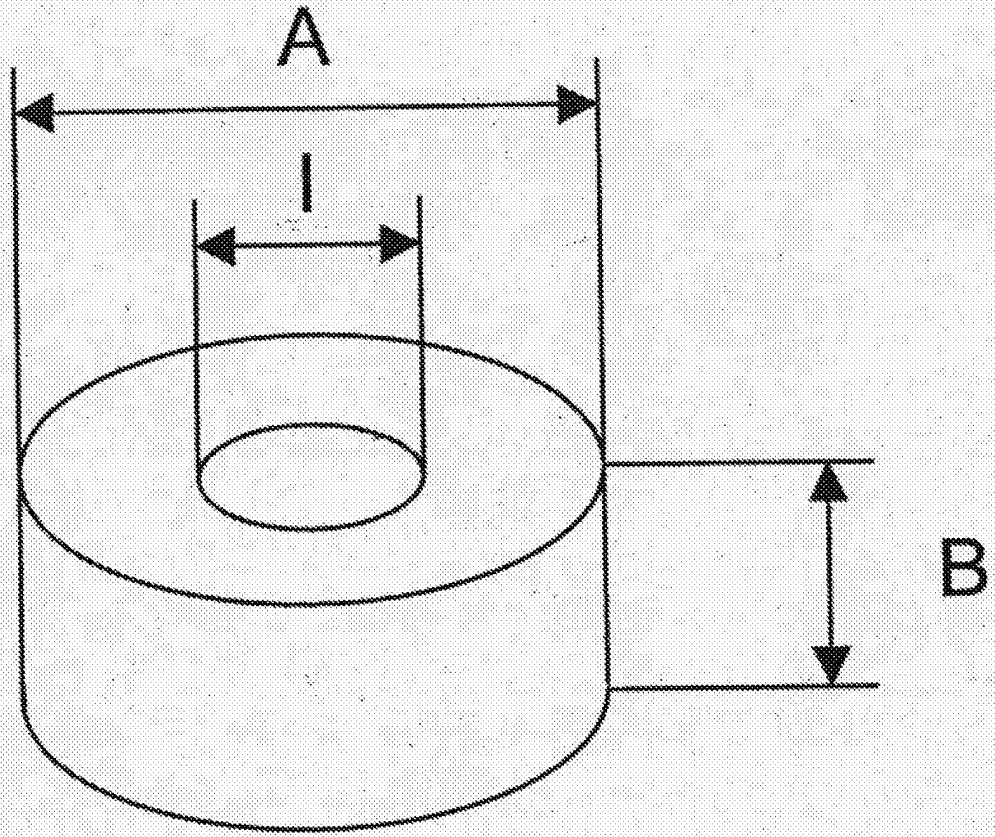


FIGURA 14

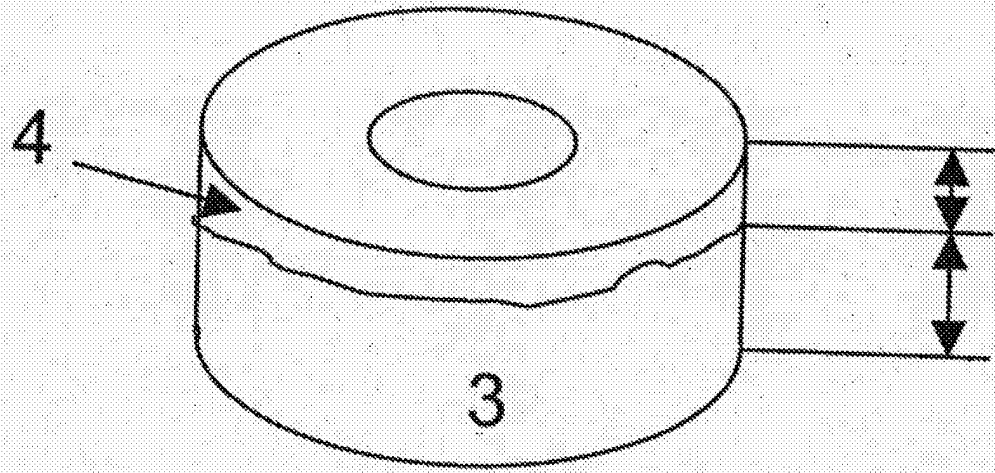


FIGURA 15

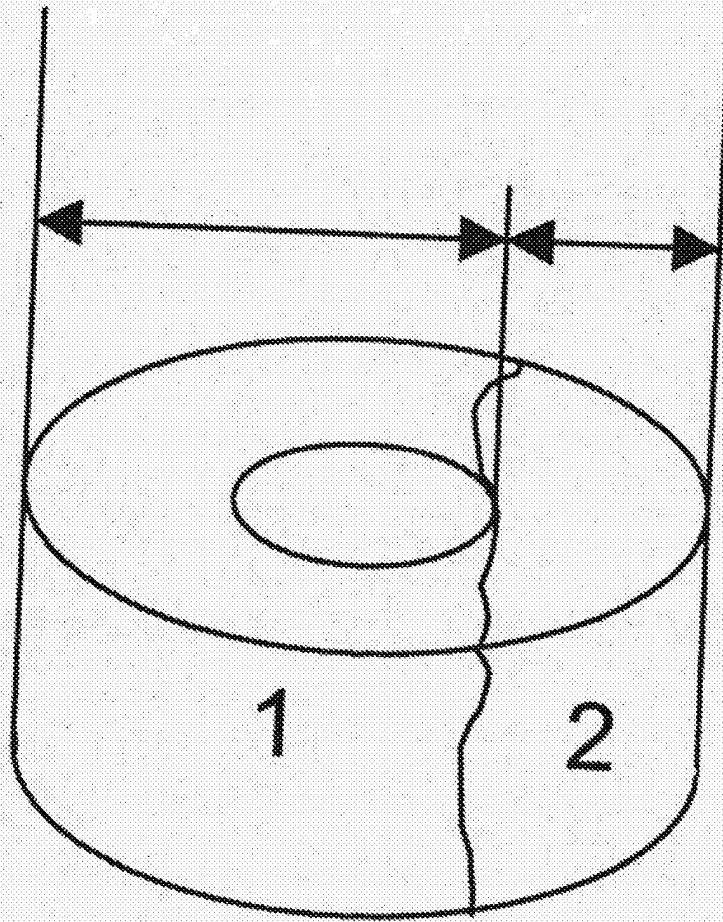


FIGURA 16

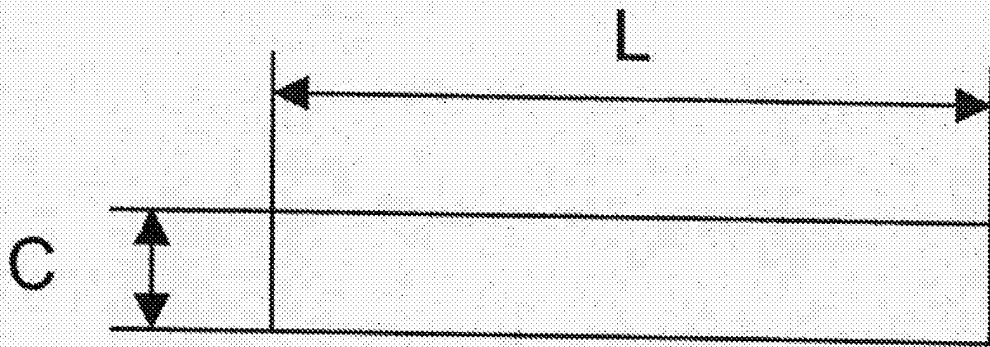
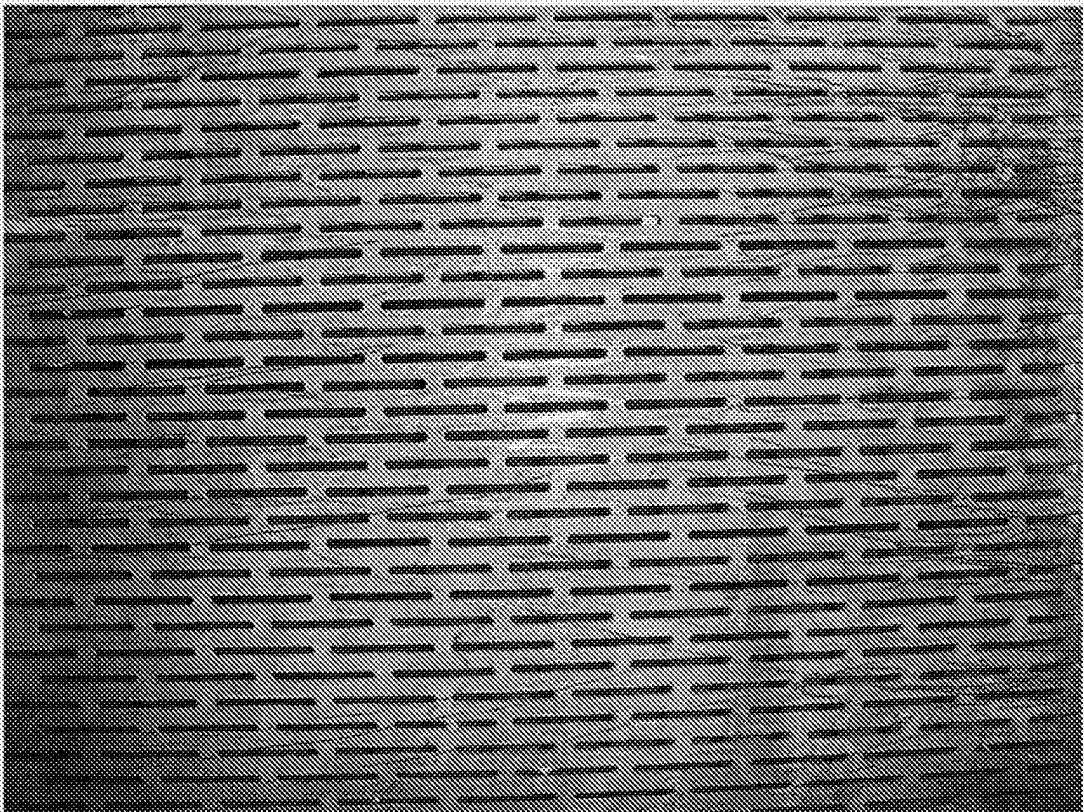


FIGURA 17



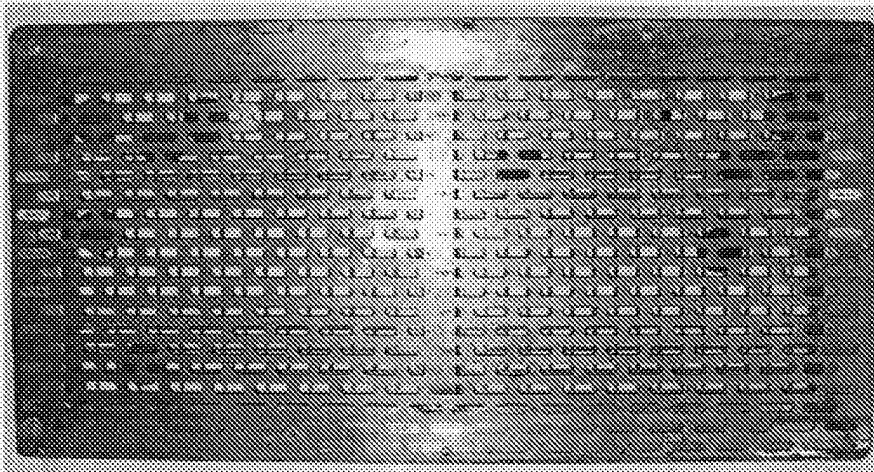


FIGURA 19

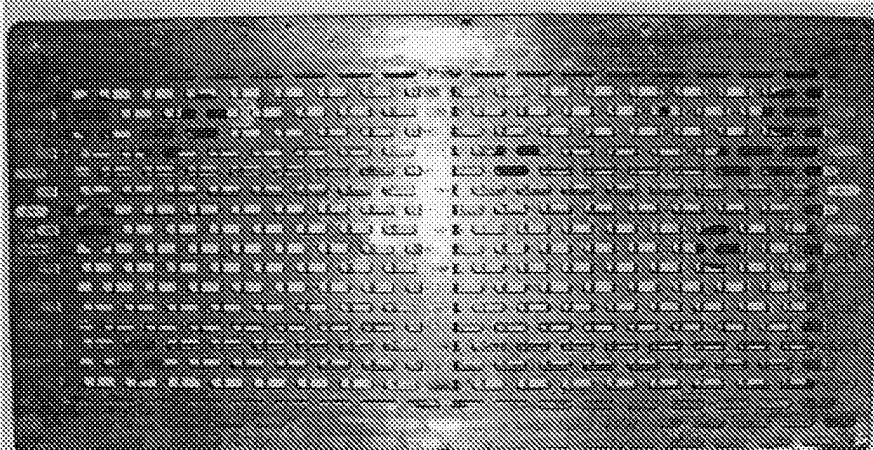


FIGURA 18

FIGURA 20

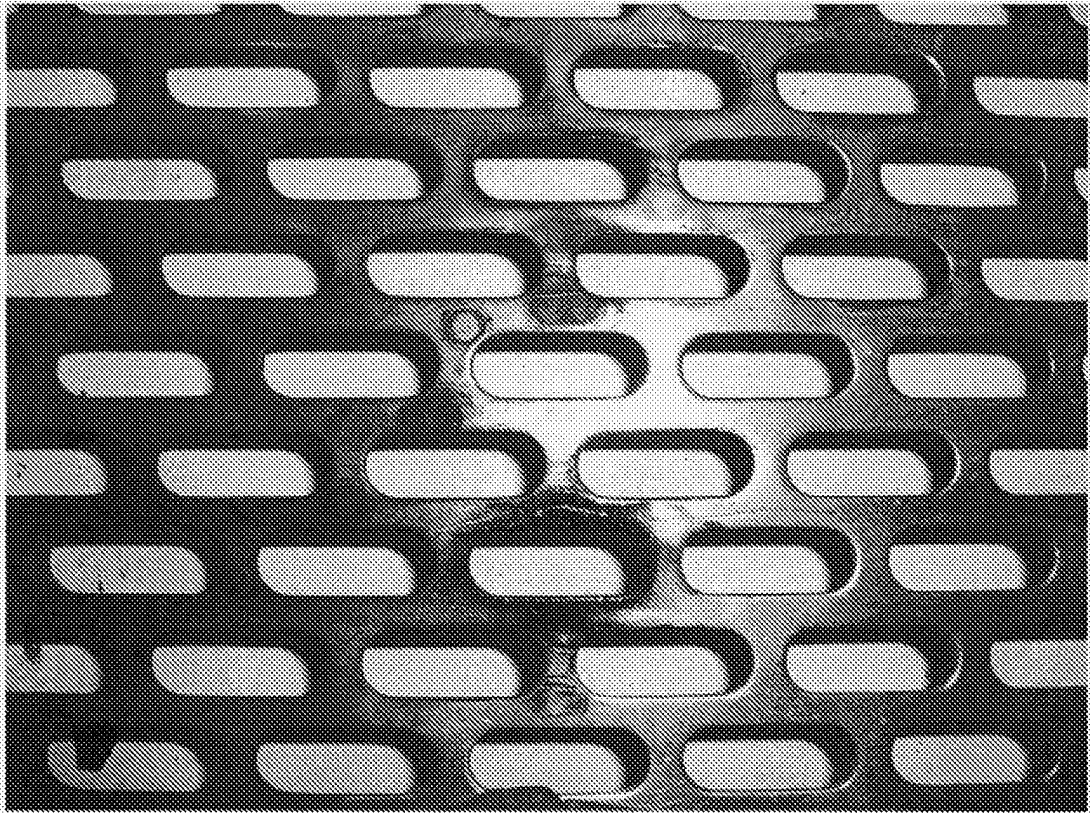


FIGURA 21

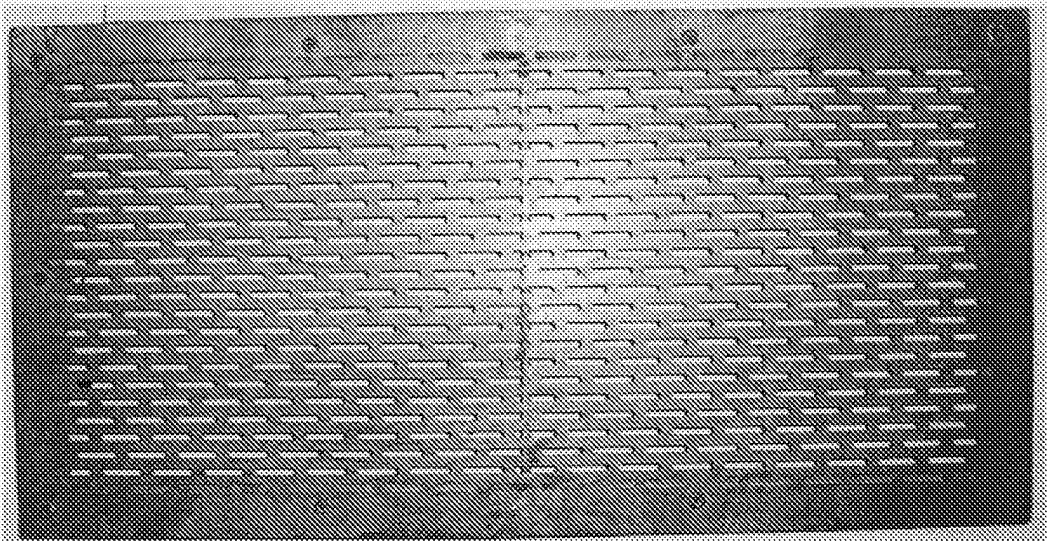


FIGURA 22

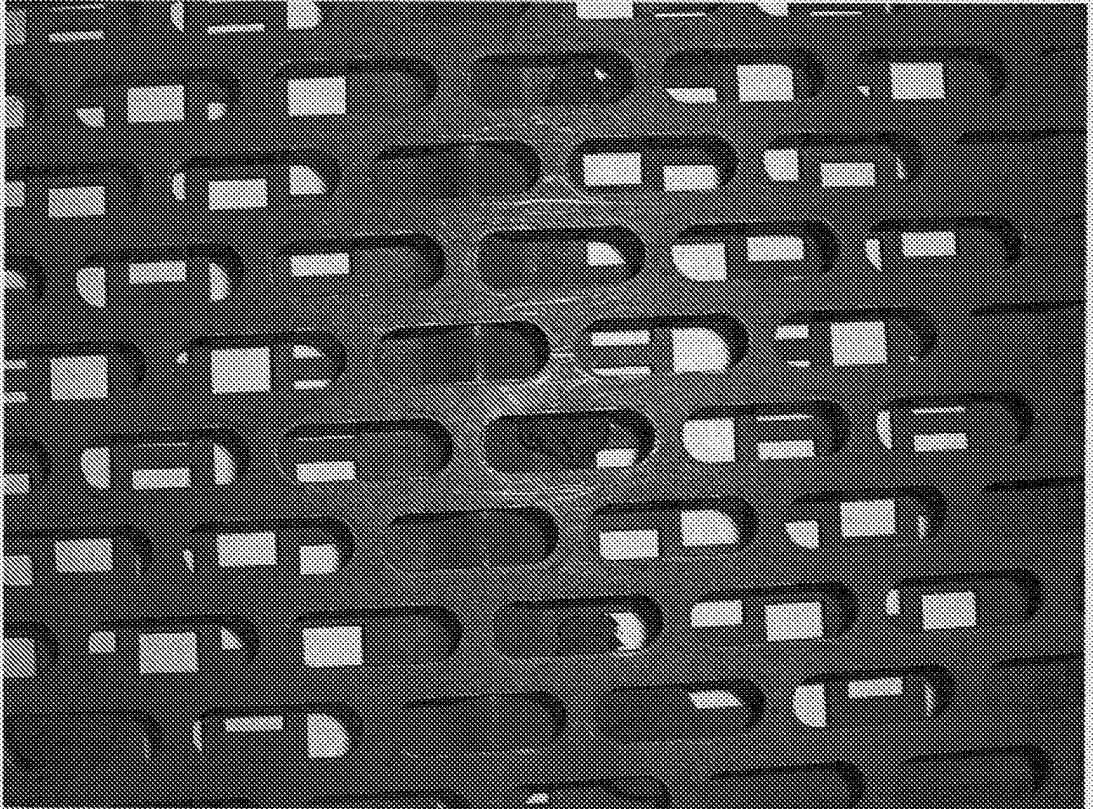


FIGURA 23

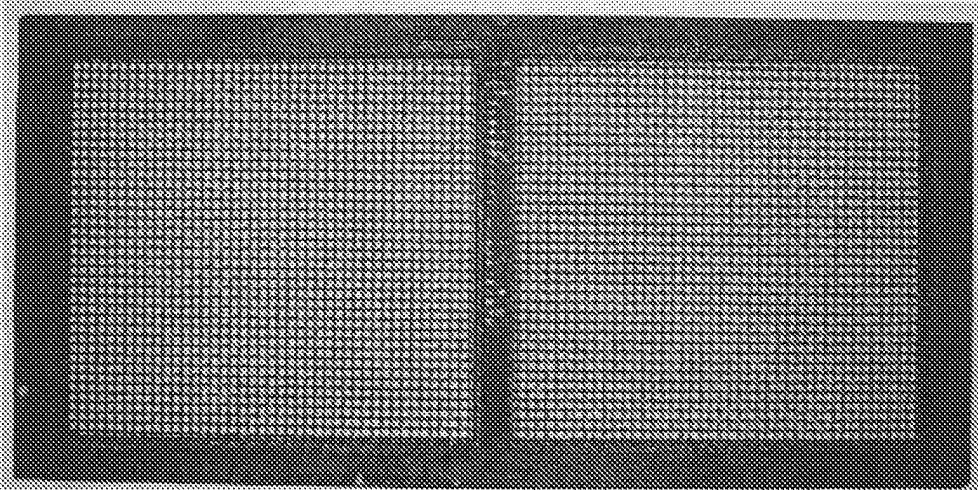


FIGURA 23

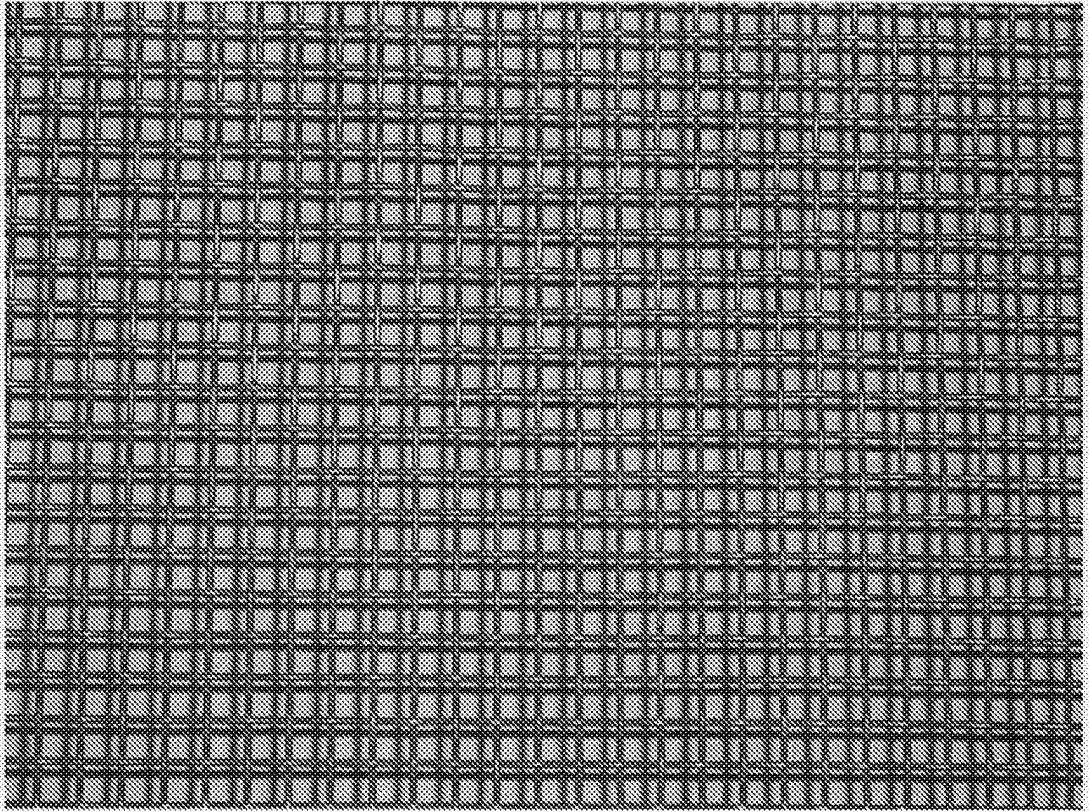
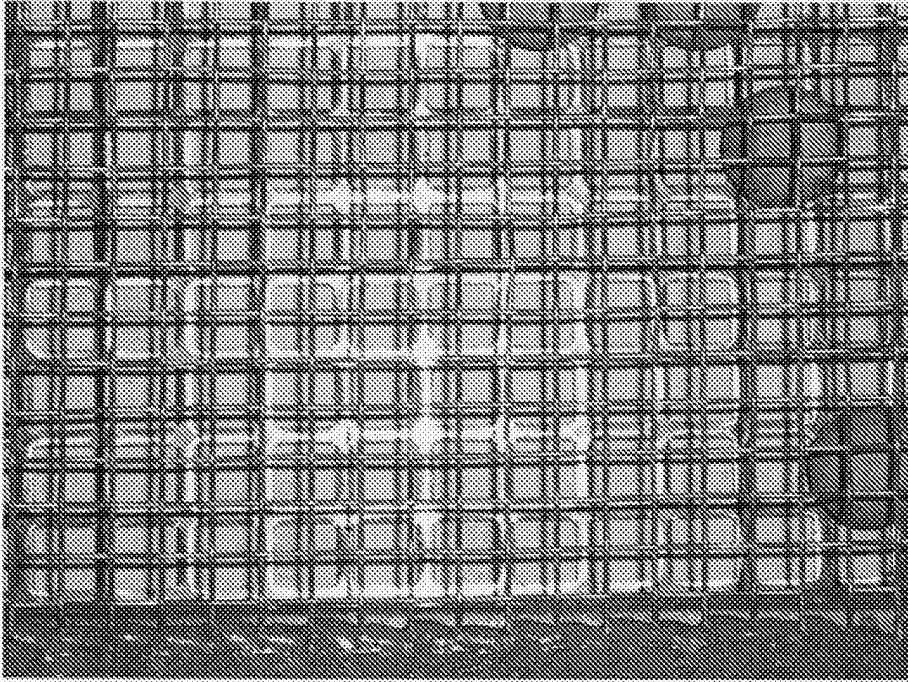


FIGURA 24



RESUMO

“PROCESSOS PARA CARREGAR UM REATOR COM UM LEITO DE CATALISADOR FIXO, E PARA REMOVER PELO MENOS PARCIALMENTE FRAGMENTOS QUE SE FORMARAM NA PREPARAÇÃO DE CORPOS CONFORMADOS DE CATALISADOR, E, USO DO RESÍDUO DA PENEIRA”

Processo para carregamento de um reator com um leito de catalisador fixo que contém pelo menos corpos anulares de catalisador K, em que, antes do carregamento, é realizada a separação, por peneiramento, dos fragmentos que surgem durante a produção dos corpos conformados de catalisador.