

42 2055



P.- 56.169
PL/EL 3112 FM

MEMORIA DESCRIPTIVA

Int. Cl.ª CO7C

para solicitar PATENTE DE INVENCION EN ESPAÑA por 20 años

a nombre de DEUTSCHE GOLD- UND SILBER-SCHNEIDANSTALT
VORMALS ROESSLER

entidad alemana

establecida en Weissfrauenstrasse 9, Frankfurt (Main),
República Federal Alemana

por: "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE FORMALDEHIDO"
(Clase Internacional CO7c)

14.1.74.

422055



La presente invención se refiere a un procedimiento para la preparación de formaldehído a partir de metanol y aire, en presencia de un catalizador oxidico en un lecho fluidizado.

5 El formaldehído se prepara industrialmente a partir de metanol y de aire en presencia de catalizadores de plata y recientemente también en presencia de catalizadores oxidicos. El procedimiento con catalizador oxidico se lleva a cabo a gran escala industrial en
10 reactores de haces tubulares. A causa del carácter exotermico de la formación de formaldehído, el diámetro de los tubos de reacción está limitado en interés de una evacuación suficiente del calor; por consiguiente, para instalaciones capaces de dar rendimiento tienen que instalarse un gran número de unidades de tubos de reacción.
15

Para evitar los inconvenientes antes mencionados del reactor de haces tubulares, se ha propuesto ya llevar a cabo la oxidación del metanol para formar formaldehído en una capa fluidizada (DAS 1 162 343).
20 Sin embargo, inconvenientes conocidos de la técnica de capa fluidizada son la formación de burbujas, que conduce a la descarga de proporciones de metanol no transformado, así como el retromezclado de gas en la parte superior del lecho fluidizado, que tiene como consecuencia una prolongación del tiempo de permanencia del for-
25

14.1.74.

422055



maldehido y su combustión posterior indeseable para formar monóxido de carbono. Para eliminar estos dos inconvenientes, en especial para evitar la formación de burbujas, ha sido propuesto recientemente el empleo en --
5 la capa fluidizada de elementos de inserción amortiguadores como lo hicieron por ejemplo T, Ishii y G.L. Osberg para la isomerización de ciclopropano en A.I. Ch. E.J. 11 (1965) 279 - 285.

10 Como ventaja especial de una capa fluidizada se considera en la bibliografía la distribución regular de temperaturas en el interior del lecho fluidizado. Sin embargo, se muestra que esta hipotética ventaja de la capa de lecho fluidizado, en la presente reacción de metanol con aire, favorece también la reacción, que
15 disminuye el rendimiento de formaldehido:



20 lo que no ocurre, por ejemplo, en un lecho fijo, en el que se forma por lo general un gradiente de temperaturas.

25 Se ha encontrado ahora que sorprendentemente se logran elevados grados de conversión de metanol y rendimientos de formaldehido muy buenos si en la capa fluidizada, influyendo sobre el movimiento libre de las partículas mediante elementos de inserción, se
14.1.74.

422055



regula un gradiente de temperatura definido, negativo respecto a la dirección de circulación de los componentes de la reacción a través del lecho fluidizado.

5 Según una forma de realización preferente del procedimiento según la invención, el gradiente de temperaturas se selecciona entre 0,1 y 2,0°C/cm, convenientemente de aproximadamente 1°C/cm de altura de capa fluidizada.

10 Como elementos de inserción, en el procedimiento según la invención se pueden colocar en el interior de la capa fluidizada y dispuestos perpendicularmente a la dirección de circulación, redes o platos perforados, espirales de alambre o capas de cuerpos de rebotamiento, tales como anillos o sillas de montar de Berl, secciones de tubos o cilindros y similares.

15 La regulación de un gradiente de temperaturas definido, además de lograrse un grado de transformación del metanol casi completo, produce un rendimiento de producción superior al de los procedimientos conocidos hasta ahora y una elevación de la duración del catalizador.

20 Como consecuencia de la regulación según la invención del gradiente de temperaturas, la reacción de la cantidad principal del metanol tiene lugar siempre en una zona relativamente corta a temperatura ele-

25
14.1.74.

422055



5 vada, mientras que las cantidades restantes reaccionan a temperaturas más bajas, a las cuales se reprimen ampliamente también las reacciones de descomposición del formaldehído, con la consecuencia de una mejora del rendimiento.

10 Una ventaja adicional del procedimiento según la invención consiste en que una variación de la velocidad de circulación, a igualdad de los demás parámetros, hace posible influir sobre el gradiente de temperaturas dentro de límites estrechos; una disminución de la velocidad de circulación provoca una elevación del gradiente de temperaturas y un aumento de la velocidad de circulación una reducción del gradiente de temperaturas.

15 El procedimiento según la invención se explica adicionalmente con ayuda de los siguientes ejemplos.

20 Los ensayos que constituyen la base de los ejemplos se llevaron a cabo en un reactor de 200 mm de diámetro, que había sido cargado con un catalizador de óxidos de hierro-molibdeno-titanio.

Ejemplos 1 a 5

25 El catalizador se empleó con un tamaño de granos entre 0,3 y 2 mm y en una cantidad de 8 kg. La cantidad de gas empleado fue de $14 \text{ N m}^3/\text{kg}$ de catali
14.1.74.

422055

21



zador.hora, con una concentración de metanol de 13,7% en volumen. La temperatura de entrada del gas fue de 180°C, y la temperatura máxima de la capa fluidizada fue de 420°C. ($^{\circ} \text{N m}^3 = \text{m}^3$ en condiciones normales).

5 En la tabla I se recopilan los valores de grado de transformación, rendimiento, productividad del catalizador y formación de óxido de carbono en función de la magnitud del gradiente negativo de temperaturas, para los ensayos llevados a cabo con diferentes gradien
10 tes de temperaturas en el lecho fluidizado, producidos por medio de diversos elementos de inserción.

Ejemplos 6 y 7

15 En cada caso se emplearon 15 kg de catali zador, con un tamaño de granos de 0,3 a 1,5 mm. La tempe ratura de entrada del gas y la temperatura de la capa fluidizada se eligieron con valores de 150°C y 400°C respectivamente, algo más bajas que los Ejemplos 1 a 5. La cantidad de gas empleado fue de $7 \text{ N m}^3/\text{kg}$ de cataliza
20 dor.hora, con 18,8% en volumen de metanol. En el Ejem plo 6 se utilizó el lecho fluidizado sin elemen tos de inser ción, con un gradiente de temperaturas nulo, en el Ejem plo 7 con 50 redes con una anchura de mallas de 5 mm a una distancia entre ellas de 3 cm. En el presente caso
24 el gradiente de temperaturas fue de 0,6°C/cm.

14.1.74.

422055

24



Ejemplo 8

5 La cantidad de catalizador fue de 10 kg, con un tamaño de granos de 0,3 a 2 mm, gas empleado 10 N m³/kg de catalizador.hora con 14,2% en volumen de metanol, temperatura de entrada 130°C, temperatura de la capa fluidizada 405°C con un gradiente negativo de temperaturas de 1,0°C/cm, que se produjo por empleo de 25 l de anillos Pall en el espacio de reacción.

10 Los resultados de los ensayos correspondientes a los Ejemplos 6 a 8 están contenidos en la tabla II.

14.1.74.

14.1.74.

TABLA I

Ejem- plo nº	Gradiente de temperaturas °C/cm	Elementos de inserción	Conversión de metanol % en moles	Rendimiento de conver- sión % en moles	Producción de pro- ducción % en moles	Productividad del catalizador kg H ₂ CO/kg. h	Oxido de carbono moles %
1	0	ninguno	92,6	90,1	83,4	2,14	9,2
2	0,2	10 redes distancia: 10 cm entre cada uno	96,5	93,5	90,3	2,32	6,2
3	1,0	5 redes distancia: 6 cm entre cada uno 20 redes distancia: 3 cm entre cada uno	98,8	94,8	93,7	2,40	5,1
4	1,15	31 redes distancia: 3 cm entre cada uno	99,1	95,0	94,1	2,42	5,0
5	1,8	50 redes distancia: 2 cm entre cada uno	99,5	93,5	93,0	2,38	6,5

1
∞
1

422055

24



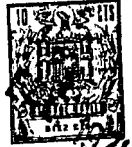
14.1.74.

TABLA II

Ejem- plo no	Gradiente de tempera turas 90/cm	Elementos de inserción	Conversión de metanol % en moles	Rendimiento de conversión % en moles	Producción de produc ción % en moles	Productividad del catalizador kg H ₂ O/kg.h	Oxido de carbono % en mo- les
6	0	ninguno	95,6	91,2	87,2	1,54	8,4
7	0,6	50 redes distancia: 3 cm entre cada uno	99,1	95,4	94,5	1,67	4,6
8	1,0	Anillos Pall 25 l	99,3	95,3	94,6	1,80	4,7

422055

24



422055²⁴



5 Los resultados de las tablas I y II muestran, en la comparación entre los Ejemplos 1 y 6 por una parte y de los Ejemplos 2 a 7 y 8 de otra, que la generación según la invención de un gradiente de temperaturas en la capa fluidizada ejerce una influencia positiva sobre todos los parámetros, que son decisivos para el éxito técnico y económico del procedimiento, y por consiguiente conduce a una mejora considerable.

10 La presente solicitud que corresponde a la presentada en la República Federal Alemana, el 1 de Febrero de 1973, bajo el Nº P 23 04 762.3, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

REIVINDICACIONES

15 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

18 1a.- Procedimiento para la preparación de
14.1.74.



422055

24



14.1.74

5 formaldehído por reacción de metanol con oxígeno en una capa fluidizada sobre un catalizador oxidico, caracterizado porque, por disposición de elementos de inserción en la capa fluidizada, se regula en ésta un gradiente negativo de temperaturas en la dirección de la circulación de gas.

2^a.- Procedimiento según la reivindicación 1^a, caracterizado porque el gradiente de temperaturas es de 0,1 a 2,0°C/cm de altura de la capa fluidizada.

10 3^a.- Procedimiento según las reivindicaciones 1^a y 2^a, caracterizado porque en la capa fluidizada se disponen como elementos de inserción redes, platos perforados, espirales de alambre o capas de cuerpos de rebotamiento.

15 4^a.- Procedimiento según las reivindicaciones 1^a a 3^a, caracterizado porque la capa fluidizada se forma a base de un catalizador de óxidos de hierro-molibdeno-titanio.

20 5^a.- Procedimiento para la preparación de formaldehído.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

14.1.74.

422055²⁴



1974

Esta Memoria consta de doce hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, 24 ENE. 1974

P. A. Alberto de Lizaburo
Por Poder

14.1.74.

G.D.S.