

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5595401号  
(P5595401)

(45) 発行日 平成26年9月24日(2014.9.24)

(24) 登録日 平成26年8月15日(2014.8.15)

(51) Int.Cl.	F 1
B 01 J 23/745	(2006.01)
B 01 J 37/08	(2006.01)
C 07 C 1/04	(2006.01)
C 10 J 3/00	(2006.01)
	B 01 J 23/74      3 O 1 M
	B 01 J 37/08
	C 07 C 1/04
	C 10 J 3/00      Z

請求項の数 10 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2011-526467 (P2011-526467)
(86) (22) 出願日	平成21年9月2日(2009.9.2)
(65) 公表番号	特表2012-501840 (P2012-501840A)
(43) 公表日	平成24年1月26日(2012.1.26)
(86) 国際出願番号	PCT/EP2009/061343
(87) 国際公開番号	W02010/028995
(87) 国際公開日	平成22年3月18日(2010.3.18)
審査請求日	平成24年8月29日(2012.8.29)
(31) 優先権主張番号	08164085.6
(32) 優先日	平成20年9月10日(2008.9.10)
(33) 優先権主張国	欧洲特許庁(EP)

(73) 特許権者	508020155 ビーエースエフ ソシエタス・ヨーロピ ア B A S F S E ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフ エン (番地なし) D - 6 7 0 5 6 L u d w i g s h a f e n, G e r m a n y
(74) 代理人	100099483 弁理士 久野 琢也
(74) 代理人	100061815 弁理士 矢野 敏雄
(74) 代理人	100112793 弁理士 高橋 佳大

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】カルボニル鉄粉及び炭化水素を製造するための一体化された方法

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

以下の(a)~(c)の工程:

(a) 装置Aにおいて純粋なカルボニル鉄粉(CEP)を純粋な鉄ペンタカルボニル(EP C)の分解によって製造する工程;

(b) 装置Bにおいて合成ガスを製造する工程; および

(c) 装置Cにおいて炭化水素を製造する工程;

を含み、前記(a)~(c)の工程を一酸化炭素(CO)と鉄について物質循環が生まれるように一体化させた、純粋なカルボニル鉄粉(CEP)および炭化水素を製造するための一体化された方法であって、

前記EP Cの分解に際して放出される一酸化炭素(CO)を、鉄からのさらなるCEPの製造のために装置Aにおいて使用するか、装置Bに合成ガスの製造のために供給するか又は装置Cに合成ガスからの炭化水素の製造のために供給し、

装置Aにおいて製造された前記CEPを触媒として、装置Cにおいて装置Bから得られた合成ガスからの炭化水素の製造のために使用し、

装置Cにおいて発生する、消費された触媒を、装置AにおけるCEPを製造するための付加的な鉄源として使用し、且つ

装置AにおいてEP Cの分解後に得られるCEPを、触媒としての使用前に水素で処理し、使用される水素が、合成ガスを製造するための装置Bから生じることを特徴とする、前記方法。

10

20

**【請求項 2】**

水素による C E P の処理を、300 ~ 600 の範囲の温度にて行うことを特徴とする、請求項 1 記載の方法。

**【請求項 3】**

装置 A において C E P を製造するために使用される鉄を、前もって水素で処理することを特徴とする、請求項 1 又は 2 記載の方法。

**【請求項 4】**

水素による鉄の処理を、300 ~ 1000 の範囲の温度にて行うことを特徴とする、請求項 3 記載の方法。

**【請求項 5】**

使用される水素が、合成ガスを製造するための装置 Bから生じることを特徴とする、請求項 3 又は 4 記載の方法。

10

**【請求項 6】**

装置 A においてさらなる E P C を製造するために付加的に必要とされる C O が、合成ガスを製造するための装置 Bから生じることを特徴とする、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項記載の方法。

**【請求項 7】**

装置 C において炭化水素として C 2 ~ C 4 - オレフィンを製造することを特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の方法。

**【請求項 8】**

装置 B において合成ガスを石炭ガス化によって製造することを特徴とする、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項記載の方法。

20

**【請求項 9】**

装置 A において純粋な C E P を製造するために使用される E P C を、前もって蒸留によって精製することを特徴とする、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項記載の方法。

**【請求項 10】**

装置 A において E P C の分解が、ガス状 E P C の熱分解であることを特徴とする、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項記載の方法。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】**

30

**【0001】****発明の詳細な説明**

本発明は、純粋な鉄ペントカルボニル (E P C) の分解による純粋なカルボニル鉄粉 (C E P) 及び合成ガスからの炭化水素を製造するための一体化された方法に関する。

**【0002】**

純粋な鉄ペントカルボニル (E P C) の分解による純粋なカルボニル鉄粉 (C E P) の製造は、例えば U lmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Iron Compounds, E. Wildermuth, H. Stark et al., published online: 15 June 2000, (Wiley - VCH - Verlag) から公知である。

40

**【0003】**

このために、鉄粒子が、高い圧力及び高い温度下で鉄ペントカルボニル (E P C, Fe (C O) 5 ) へと反応させられる。鉄に含まれる不純物は、有利にはカルボニルの段階で部分的に蒸留により除去され、そして高純度 E P C が得られる。この化合物は、後続の工程で行われる C E P を得るために E P C の分解用前駆体である。この工程で、E P C は、例えばダウンフロー型分解装置 (Fallzersetzer) 中で、高い温度下で C E P へと分解させられる。

**【0004】**

後接続された処理工程において、この主要な C E P は、フィッシャー・トロプシュ合成用触媒へと加工ができる。炭化水素、殊に低級オレフィンを合成ガスから製造

50

するための触媒のさらなる加工及び適性は、2007年7月20日付けEP07112853.2及び2008年5月27日付けEP08156965.9の特許出願（いずれもBASF AGもしくはSE）に記載されている。

#### 【0005】

炭化水素が一酸化炭素(CO)及び水素(H<sub>2</sub>)から、金属触媒、例えば鉄触媒又はコバルト触媒を用いて製造できることは公知である。

#### 【0006】

フィッシャー・トロプシュ合成用のさらなる鉄触媒は、WO2006/127261A、第2頁、段落[005]（沈殿触媒）及び同文献中の段落[006]（溶融触媒）に記載されている。10

#### 【0007】

鉄・フィッシャー・トロプシュ触媒の、もしくは一般的に沈殿触媒の製造に際しての主な欠点は、エネルギー及び労働集約的な製造と、たいていの場合、環境にとって有害な物質と分類されなければならない、発生する廃棄物にある。

#### 【0008】

本発明の基礎をなしている課題は、従来技術の欠点を避けながら、純粋なカルボニル鉄粉(CEP)及び炭化水素を製造するための改善された経済的な方法を見つけることであった。最初に述べた方法は、殊に、通常の触媒製造に際して発生する大きな物質量の廃棄生成物を回避すべきである。殊に塩負荷及び洗浄水は、煩雑な後処理を要し、また場合によってコスト集約的に廃棄処理されなければならない製造因子である。20

#### 【0009】

第二に述べた方法は、合成ガスからの短鎖炭化水素の入手を可能にすべきである。特別な一実施態様において、該方法は、有利にはC<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>-オレフィン(C<sub>2</sub>からC<sub>8</sub>までのオレフィン)、殊にC<sub>2</sub>～C<sub>4</sub>-オレフィン(C<sub>2</sub>からC<sub>4</sub>までのオレフィン)、とりわけエテン、プロパン及び1-ブテンを生ずるべきであり、同時に可能な限り少量のメタン、二酸化炭素、アルカン(例えばC<sub>2</sub>～C<sub>4</sub>-アルカン)及び高級炭化水素、つまり5個以上のC原子を有する炭化水素(C<sub>5</sub>+留分)が発生すべきである。

#### 【0010】

本発明により、なかでも以下のことが認められた：

一酸化炭素(CO)の物質循環を観察すると、EPCの製造及び引き続くCEPへの分解は、COのリサイクルが行われる循環プロセスとみなすことができる。代替的な製造法、例えば鉄化合物の沈殿、か焼及び金属鉄を得るために引き続く還元と比較して、カルボニル化合物を介した経路は、何よりもまず、いかなる廃棄物(例えば塩)及び廃水も発生しないために好ましい。30

#### 【0011】

好ましいのは、エネルギー及び物質循環が相互に、原料としての鉄もしくは鉄酸化物から出発してカルボニル鉄粉(CEP)の中間段階を介して、化学反応のための、特にフィッシャー・トロプシュ合成のための鉄基触媒(eisen-basierter Katalysator)が製造されるように結び合わされる、一体化された方法である。

#### 【0012】

それに応じて、装置Aにおいて純粋なカルボニル鉄粉(CEP)を純粋な鉄ペンタカルボニル(EPC)の分解によって製造し、EPCの分解に際して放出される一酸化炭素(CO)を、鉄からのさらなるCEPの製造のために装置Aにおいて使用するか又は連結された装置Bに合成ガスの製造のために供給するか又は連結された装置Cに合成ガスからの炭化水素の製造のために供給し、且つ装置Aにおいて製造されたCEPを触媒又は触媒成分として、連結された装置Cにおいて装置Bからの合成ガスからの炭化水素の製造のために使用する、一体化された方法が見出された。40

#### 【0013】

装置Aにおける純粋なCEPの製造法に関して：

EPCの分解は、有利にはガス状EPCの熱分解である。50

## 【0014】

有利には、EPCの分解後に得られたCEPは、そのさらなる使用前に水素で処理される。

## 【0015】

水素によるCEPの処理は、有利には300～600 の範囲の温度にて行われる。

## 【0016】

この処理によって、炭素、窒素及びそれに酸素のCEP中での残留物含有量が低下させられる (DE528463C1、1927)。使用される水素は、有利には合成ガスを製造するための連結された装置Bから生じる。

## 【0017】

CEPの製造のために使用される鉄は、有利には前もって水素で処理される。

10

## 【0018】

水素による鉄のこの処理は、有利には300～1000 の範囲の温度にて行われる。

## 【0019】

この処理によって、殊に鉄の酸素含有量が下げられる。

## 【0020】

使用される水素は、有利には合成ガスを製造するための連結された装置Bから生じる。

## 【0021】

純粋なCEPの製造のために用いられるEPCは、有利には前もって蒸留によって精製される。

20

## 【0022】

この蒸留によって、不純物、例えば遷移金属、殊にNi及びCrが、それらのカルボニル化合物の形で除去される。

## 【0023】

さらなるEPCの製造のために付加的に必要とされるCOは、有利には合成ガスを製造するための連結された装置Bから生じる。

## 【0024】

方法に従って装置Aにおいて製造された純粋なカルボニル鉄粉(CEP)は、有利には下記の特性を有する：

該CEPは、その直径が有利には 1～50 μm の範囲にある球状一次粒子から成る。  
該一次粒子は凝集していてよい。

30

## 【0025】

一酸化炭素と水素(つまり合成ガス)の反応によって炭化水素を製造するための装置B及びCでの方法について：

必要とされる合成ガスは、有利には装置Bで一般的に公知の方法に従って(例えばWeissermel et al., Industrial Organic Chemistry, Wiley-VCH, Weinheim, 2003, pages 15 to 24に記載される通り)、例えば石炭又はメタンと水蒸気の反応によって又はメタンの部分酸化によって製造される。合成ガスを製造するための主要なエネルギーキャリアとして、石炭及び天然ガスの他にバイオマスも適している。

40

## 【0026】

好ましくは、合成ガスは、水素に対する一酸化炭素のモル比を3：1～1：3の範囲で有する。特に有利には、装置Cでは、水素に対する一酸化炭素の混合モル比を2：1～1：2の範囲で有する合成ガスが使用される。

## 【0027】

本発明による一体化された方法の特別な一実施形態において、合成ガスは二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)を含有する。CO<sub>2</sub>の含有率は、有利には1～50質量%の範囲にある。

## 【0028】

特別な一実施態様において、装置Bでは、合成ガスが石炭ガス化によって製造される。かかる方法は、例えばNexant Inc. / Chem Systems PERP 03

50

/ 0 4 - S 4 - D e v e l o p e m e n t s i n S y n g a s T e c h n o l o g y , 2 0 0 5 , p a g e s 1 0 / 1 1 及び 5 8 - 6 3 にも記載されている。

**【 0 0 2 9 】**

石炭ガス化によって製造可能な合成ガスは、水素に対する一酸化炭素のモル比を 2 . 3 6 ~ 0 . 4 の範囲で、とりわけ 2 ~ 0 . 6 の範囲で、殊に 1 . 5 ~ 0 . 8 の範囲で有する。

**【 0 0 3 0 】**

装置 C における炭化水素を製造するための方法で発生する、消費された触媒は、有利には上記したような水素による処理後に、有利には装置 A におけるカルボニル鉄粉 ( C E P ) を製造するための付加的な鉄源として使用される。

10

**【 0 0 3 1 】**

特に好ましいのは、本発明により、合成ガスを製造するための装置 B をくるめた C O リサイクルプロセス、及び装置 C からの消費された触媒の装置 A への返送による鉄循環に結び合わせることを組み合わせた、炭化水素を製造するための連結された装置 C で触媒又は触媒成分として使用される、装置 A における C E P の製造である。

**【 図面の簡単な説明 】**

**【 0 0 3 2 】**

**【 図 1 】** 本発明による一体化された方法の有利な実施態様の概略を表す図

**【 図 2 】** 有利には使用される球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉の S E M 写真を示す図

20

**【 図 3 】** 有利には使用される球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉の S E M 写真を示す図

**【 図 4 】** 有利には使用される球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉の S E M 写真を示す図

**【 発明を実施するための形態 】**

**【 0 0 3 3 】**

本発明による一体化された方法（組み合わせ）の有利な実施形態は図 1 において概略が表されている。

**【 0 0 3 4 】**

図 1 における個々の工程が、次の通り - "消費された触媒（鉄含有）" から出発して - 有利な実施形態として表されることができる：

1 ) 鉄酸化物が、鉄 ( F e ) 又は鉄酸化物（後者は、そのつど装置 C からの消費された触媒から生じる）と混合され、且つ還元される。還元水素は合成ガス装置 B から生じる。消費されなかった水素は、合成ガス装置 B に供給し戻されるか又は炭化水素を製造するためのフィッシャー・トロプシュ装置 C に直接的に供給される。

30

**【 0 0 3 5 】**

2 ) 発生する金属鉄は、装置 A において合成ガス装置 B からの C O と E P C へと反応させられる。

**【 0 0 3 6 】**

3 ) 該 E P C は、装置 A において C E P へと分解させられ、且つ放出される C O は、合成ガス装置 B 、フィッシャー・トロプシュ装置 C 又は再び装置 A における E P C 合成に供給される。最後に述べた代替案は、直接的な C O リサイクルに相当する。

**【 0 0 3 7 】**

40

4 ) 装置 A からの C E P は、後続工程において鉄 - フィッシャー - トロプシュ触媒に加工され、且つ炭化水素を合成するためのフィッシャー - トロプシュ装置 C で使用される。付加的に、該 C E P は外で市場に出されることができる。

**【 0 0 3 8 】**

5 ) 装置 C からの取り除かれた触媒は、金属鉄の合成（工程 1 ）の "触媒循環" によって E P C 製造に再び供給される。

**【 0 0 3 9 】**

本発明により個々の処理工程をつなぎ合わせることに基づき、有利には、使用される一酸化炭素についてのみならず鉄についても、ほぼ一つにまとまった物質循環が生まれる。そのようにして生ずる組み合わせは、従って環境及び資源に優しい鉄基触媒の製造を可能

50

にする。

**【0040】**

合成ガスの反応によって炭化水素を製造するための装置Cでの方法に関する詳細：C E Pを含有する不均一触媒の存在における一酸化炭素と水素の反応によって炭化水素、有利にはオレフィンを製造するための装置Cにおける方法では、有利には球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉（C E P）が使用される。

**【0041】**

カルボニル鉄粉中の球状一次粒子の割合は、有利には>90質量%、とりわけ>95質量%、極めて有利には>98質量%である。

**【0042】**

該球状一次粒子は、有利には0.01~250μmの範囲の、とりわけ0.1~200μmの範囲の、極めて有利には0.5~150μmの範囲の、ずっと有利には0.7~100μmの範囲の、ずっと有利には1~70μmの範囲の、特に有利には1.5~50μmの範囲の直径を有する。

**【0043】**

該球状一次粒子の鉄含有率は、そのつど場合によって存在する助触媒抜きに計算して、有利には>97質量%、とりわけ99質量%、殊に99.5質量%である。

**【0044】**

有利なのは、細孔のない球状一次粒子である。

**【0045】**

有利なカルボニル鉄粉は、とりわけ、球状一次粒子の他に、いかなる糸状一次粒子も含有せず、殊に、D E 2 9 1 9 9 2 1 A 1 及び "F a c h b e r i c h t e f u e r O b e r f l a e c h e n t e c h n i k" , J u l i / A u g u s t 1 9 7 0 , p a g e s 1 4 5 ~ 1 5 0 において開示される鉄ホイスカーアルミニウムを含有しないという点で優れている。

**【0046】**

図2~4は、有利には使用される球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉のSEM写真を示す。

**【0047】**

方法において使用可能な球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉は、例えば"Carbo nyl e i s e n p u l v e r C N"の名称でB A S F A Gもしくは現在はB A S F S E , D - 6 7 0 5 6 L u d w i g s h a f e n から入手され得る。

**【0048】**

殊に球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉は、とりわけ蒸留によって前もって精製されたガス状鉄ペンタカルボニル（E P C、F e [ C O ]<sub>5</sub>）の熱分解によって得られる。

**【0049】**

球状一次粒子は、部分的に、例えば25~95質量%が凝集していてよい。

**【0050】**

有利には、そのようにして得られた生成物は水素による還元によって後処理される。

**【0051】**

各種添加剤抜きでもすでに、カルボニル鉄粉は好ましい触媒活性を示す。

**【0052】**

カルボニル鉄粉は、触媒活性を上昇させるために1つの助触媒又は複数の助触媒でドープされていてよい。

**【0053】**

フィッシャー・トロプシュ合成用の鉄触媒における助触媒は、例えばM. J a n a r d a n a r a o , I n d . Eng . Chem . Res . 1 9 9 0 , 2 9 , p a g e s 1 7 3 5 t o 1 7 5 3 、又はC. D. F r o h n i n g e t . a l . i n "Chemie rohstoffe aus Kohle" , 1 9 7 7 , p a g e s 2 1 9 t o 2 9 9 において記載されている。適した助触媒として、触媒は、元素のバナジウム、銅、ニッケル、コバルト、マンガン、クロム、亜鉛、銀、金、カリウム、カルシウム、ナトリウム、リ

10

20

30

40

50

チウム、セシウム、白金、パラジウム、ルテニウム、硫黄、塩素の1つ以上を、そのつど元素の形で又はイオンの形で含有してよい。

#### 【0054】

カルボニル鉄粉のドープ量は、全体で（すなわち、複数の助触媒の場合の合計）、そのつど鉄に対して、有利には0.01～30質量%、特に有利には0.01～20質量%、極めて有利には0.1～15質量%、例えば0.2～10質量%、とりわけ0.3～8質量%である。方法の特別な一実施態様において、カルボニル鉄粉は、助触媒としてのカリウムイオン及び／又はナトリウムイオンでドープされている。

#### 【0055】

特に有利には、カルボニル鉄粉は、一実施態様において、全体で（そのつど鉄に対して）カリウムイオン及び／又はナトリウムイオン0.01～10質量%、有利には0.1～5質量%の範囲でドープされている。

#### 【0056】

上述の助触媒の施与は、例えばカルボニル鉄粉を上述の金属の塩水溶液、好ましくは炭酸塩、塩化物、硝酸塩又は酸化物で含浸させることによって行われることができる。

#### 【0057】

さらに、助触媒として作用する元素は、相応するガス状カルボニル化合物、例えば銅カルボニル、コバルトカルボニル又はニッケルカルボニルの熱分解によって、カルボニル鉄粉製造の間に施与されることができる。

#### 【0058】

カルボニル鉄粉は、触媒のさらなる一実施態様において、担体材料に施与されることができる。有利な担体材料は、 $TiO_2$ 、 $SiO_2$ 、 $Al_2O_3$ 、ゼオライト、炭素(C)である。

#### 【0059】

炭化水素、殊にオレフィンを製造するための方法では、場合によってドープされた及び場合によって担持されたカルボニル鉄粉はペレットの形で使用されることがある。

#### 【0060】

ペレットは、当業者に公知の方法によって得られる。ペレットの有利な形態は、タブレット及びリングである。

#### 【0061】

ペレットは、方法でのその使用前に、例えばミリングによって再び粉碎されることもできる。

#### 【0062】

触媒は、方法でのその使用前に、水素及び／又は一酸化炭素による処理によって、高められた温度にて、殊に300℃を上回る温度にて、より合成活性の状態に移行されることがある。この付加的な活性化は、しかしながら、どうしても必要というわけではない。

#### 【0063】

炭化水素、殊にオレフィンを製造するための方法は、有利には200～500℃、とりわけ300～400℃の範囲の温度にて実施される。

#### 【0064】

絶対圧は、有利には1～100bar、とりわけ5～50barの範囲にある。

#### 【0065】

GHSV(Gas Hourly Space Velocity)は、有利には100～10000、特に有利には300～5000(触媒の体積割合及び時間当たりの供給流の体積割合(1/l·h))の範囲にある。

#### 【0066】

本発明による方法を実施するための有利な反応器は以下のものである：

流動床反応器、固定床反応器、懸濁反応器。

#### 【0067】

流動床反応器及び懸濁反応器中では、触媒は、有利には粉末形で使用される。粉末は、

10

20

30

40

50

カルボニル鉄粉の一次粒子であってよく、しかし、それらの凝集塊であってもよい。

**【0068】**

粉末は、前もって製造されたペレットのミリングによって得られることもできる。

**【0069】**

固定床反応器中では、触媒は成形体として、有利にはペレットの形で使用される。

**【0070】**

フィッシャー・トロプシュ合成のためのかかる反応器の使用は、例えば C . D . F r o h l i n g e t a l . i n "C h e m i e r o h s t o f f e a u s K o h l e " , 1 9 7 7 , p a g e s 2 1 9 t o 2 9 9 、又は B . H . D a v i s , T o p i c s i n C a t a l y s i s , 2 0 0 5 , 3 2 ( 3 - 4 ) , p a g e s 1 4 3 t o 1 6 8 10 において記載されている。

**【0071】**

有利には、装置 C において、炭化水素として C 2 ~ C 8 - オレフィン、殊に C 2 ~ C 4 - オレフィン、その中でもとりわけエテン、プロパン及び 1 - プテンが製造される。

**【0072】**

殊にオレフィンを製造するための方法は、オレフィンを含有する生成物混合物を、有利には少なくとも 30 %、例えば 30 % ~ 45 % の範囲での C 2 ~ C 4 範囲における、オレフィン炭素選択率、殊に - オレフィン炭素選択率で生ずる。選択率の計算に際して、形成される二酸化炭素は考慮に入れられない（すなわち、CO<sub>2</sub>を除く）。

**【0073】**

特別な一実施形態において、オレフィンを含有する生成物混合物が、少なくとも 30 % の C 2 ~ C 4 範囲のオレフィン炭素選択率で得られ、その際、この少なくとも 30 % のさらに少なくとも 90 % がエテン、プロパン、1 - プテンに割り当てられる。選択率の計算に際して、形成される二酸化炭素は考慮に入れられない（すなわち、CO<sub>2</sub>を除く）。

**【0074】**

特に有利な一実施形態において、オレフィンを含有する生成物混合物が、少なくとも 40 % の、例えば 40 ~ 45 % の範囲での C 2 ~ C 4 範囲のオレフィン炭素選択率で得られ、その際、この少なくとも 40 % のさらに少なくとも 90 % がエテン、プロパン、1 - プテンに割り当てられる。選択率の計算に際して、形成される二酸化炭素は考慮に入れられない（すなわち、CO<sub>2</sub>を除く）。

**【0075】**

得られたオレフィンは、例えばポリオレフィン、エポキシ、オキソ生成物、アクリロニトリル、アクロレイン、スチレンを製造するための方法において使用される。Weiss ermeil e t a l . , Industrial Organic Chemistry , Wiley - VCH , Weinheim , 2 0 0 3 , pages 1 4 5 t o 1 9 2 及び 2 6 7 t o 3 1 2 を参照されたい。

**【0076】**

図 1 :

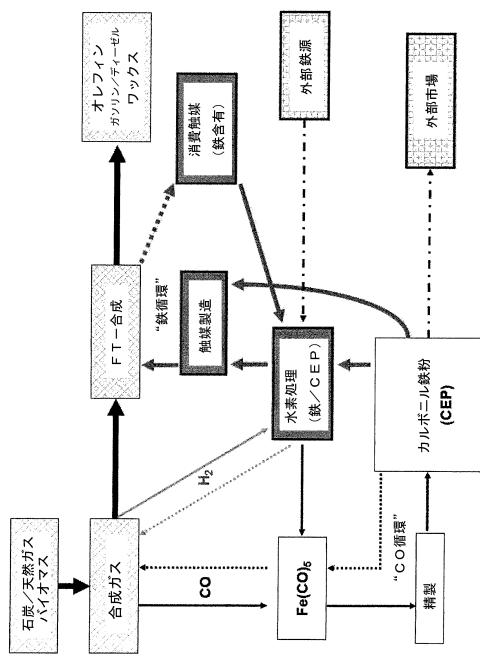
本発明による一体化された方法の有利な実施態様の概略図 [ 合成ガス装置 (B) 、フィッシャー・トロプシュ装置 (C) 、 C E P 装置 (A) を組み合わせたもの ] 。

**【0077】**

図 2 ~ 4 :

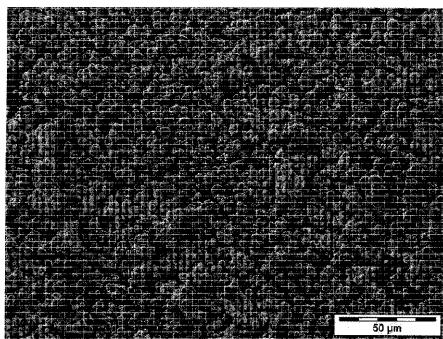
装置 C における、炭化水素、殊にオレフィンを製造するための方法で有利には使用される球状一次粒子を有するカルボニル鉄粉 (C E P) 。

【図1】



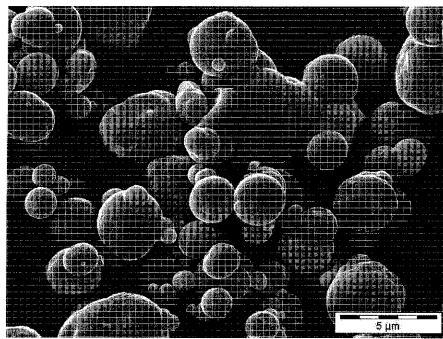
【図2】

Abbildung 2



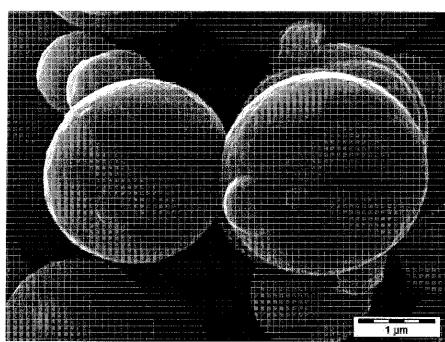
【図3】

Abbildung 3



【図4】

Abbildung 4



---

フロントページの続き

(74)代理人 100128679  
弁理士 星 公弘  
(74)代理人 100135633  
弁理士 二宮 浩康  
(74)代理人 100156812  
弁理士 篠 良一  
(74)代理人 100114890  
弁理士 アインゼル・フェリックス=ラインハルト  
(72)発明者 ヨヘン シュタイナー  
ドイツ連邦共和国 ベンスハイム メアカーヴァルトシュトラーセ 28  
(72)発明者 エッケハルト シュヴァーツ  
ドイツ連邦共和国 ノイシュタット ベアヴァートシュタインシュトラーセ 4  
(72)発明者 アンドレアス ケラー  
ドイツ連邦共和国 シュパイアー ハーゼンシュトラーセ 18  
(72)発明者 オットー ヴァツエンペアガー  
ドイツ連邦共和国 マンハイム ゼーダンシュトラーセ 15  
(72)発明者 ウルリヒ グレースレ  
ドイツ連邦共和国 ベール - イゲルハイム ネルケンシュトラーセ 8  
(72)発明者 マンフレート ユリウス  
ドイツ連邦共和国 リンブルガーホーフ アルベルト - アインシュタイン - アレー 13ア-

審査官 大城 公孝

(56)参考文献 特開昭56-025117(JP,A)  
米国特許出願公開第2008/0202123(US,A1)  
国際公開第2008/083600(WO,A1)  
特開昭59-102441(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
B01J 21/00 - 38/74