

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4607326号
(P4607326)

(45) 発行日 平成23年1月5日(2011.1.5)

(24) 登録日 平成22年10月15日(2010.10.15)

(51) Int.Cl.

F 1

C07C 2/88 (2006.01)
C07C 15/08 (2006.01)C07C 2/88
C07C 15/08

請求項の数 8 (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2000-574481 (P2000-574481)
 (86) (22) 出願日 平成11年9月27日 (1999.9.27)
 (65) 公表番号 特表2002-526513 (P2002-526513A)
 (43) 公表日 平成14年8月20日 (2002.8.20)
 (86) 國際出願番号 PCT/US1999/022414
 (87) 國際公開番号 WO2000/020360
 (87) 國際公開日 平成12年4月13日 (2000.4.13)
 審査請求日 平成18年9月22日 (2006.9.22)
 (31) 優先権主張番号 09/166,188
 (32) 優先日 平成10年10月5日 (1998.10.5)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 590001854
 エクソンモービル オイル コーポレイション
 アメリカ合衆国バージニア州22037フ
 エアファックス・ギャローズロード322
 5
 (74) 代理人 100071010
 弁理士 山崎 行造
 (74) 代理人 100107799
 弁理士 岡田 希子
 (74) 代理人 100114742
 弁理士 林 秀男

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】流動床芳香族物質アルキル化

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

芳香族反応体をアルキル化作用物質によりアルキル化し、アルキル化芳香族生成物を製造するためのプロセスであって、

- 芳香族反応体を第一の位置において反応器に導入し、同反応器は500乃至700 の温度及び300乃至500kg / m³の操作床密度を含む流動床反応領域を持ち、

- アルキル化作用物質を、前記第一の位置より下流の第二の位置において、及び前記第一の位置及び前記第二の位置より下流の1以上の更なる位置において流動床反応領域に直接導入することを含み、前記それらの更なる位置は、前記第一の位置から次第に離れた距離において提供され、

- 芳香族反応体とアルキル化作用物質の反応により製造された、アルキル化芳香族生成物を反応器から回収することを含む、前記プロセス。

【請求項 2】

アルキル化作用物質も前記第一の位置において又はその付近において流動床反応領域に導入する、請求項1に記載のプロセス。

【請求項 3】

付加的なアルキル化作用物質を芳香族反応体と共に供給原料流れにおいて導入する、請求項2に記載のプロセス。

【請求項 4】

10

20

アルキル化作用物質及び芳香族反応体を蒸気相中で保持する、請求項1に記載のプロセス。

【請求項5】

芳香族反応体にはトルエンが含まれ、アルキル化作用物質にはメタノールが含まれ、アルキル化芳香族生成物にはキシレンが含まれる、請求項1に記載のプロセス。

【請求項6】

請求項1のプロセスであって、

a) 前記流動床反応領域は、頂部、底部、及び頂部と底部の間に広がる中間部分を含み、芳香族反応体が導入される前記第一の位置は、流動床反応領域の底部部分又はそれに近い部分であり、少なくとも一つの前記アルキル化作用物質の流れが導入される第二の位置は前記流動床反応領域の中間部分にあり、10

b) 前記流動床反応領域は稠密床であり、そして複数のアルキル化作用物質の流れが、流動床反応領域の中間部分の複数の異なる軸方向の位置で流動床反応領域の中間部分に直接導入される、

前記プロセス。

【請求項7】

請求項1のプロセスであって、1気圧乃至1,000psig(100乃至7,000kPa)、反応器への総炭化水素供給についての毎時重量空間速度(“WHSV”)が、反応器中の総触媒に基づいて、芳香族反応体について0.2乃至1000、合わせたアルキル化作用物質段階流れについて0.01乃至100であることを含む、前記プロセス。20

【請求項8】

請求項7のプロセスであって、

a) 前記芳香族反応体にはトルエンが含まれ、アルキル化作用物質にはメタノールが含まれ、更にトルエンのモル数／メタノールのモル数(反応器装入における)は少なくとも0.2であり、

b) 前記プロセスは反応器への供給原料中のトルエン+メタノールに対する水素及び／又は水のモル比が0.01乃至10であるような添加された水素及び／又は添加された水の存在下で行われる、

前記プロセス。

【発明の詳細な説明】

30

【0001】

本発明は、流動床反応器を用いる芳香族物質をアルキル化するための改良された方法に関する。

【0002】

本発明による方法は、いずれかの適する芳香族物質アルキル化のために用いることができるが、特に、トルエン及びメタノールからキシレン(好ましくはp-キシレン)を製造するために良好に適している。本発明がこの操作において用いられるとき、トルエン変換、メタノール選択性及びp-キシレンへの選択性における重大な改良が認められる。本発明は又、例えば、エチルベンゼン、クメン、ジエチルベンゼン、ジイソプロピルベンゼン、p-エチルトルエン、p-シメン及びブソイドクメンを含む他のアルキル芳香族物質の製造において並びに自動車ガソリン中のベンゼン低減のために用いることができる。40

【0003】

芳香族物質アルキル化は、多くの有用な化学的生成物を製造するための重要な操作である。例えば、トルエンをメタノールでアルキル化することにより製造されることができるp-キシレンは、合成ポリエステル繊維、フィルム又は樹脂の製造における重要な中間体であるテレフタル酸を製造するために重要な出発物質を構成する。それらのポリエステル物質は、織物、カーペット及び衣類のような多くの実際的なよく知られた用途を有する。ベンゼンをエチレンでアルキル化することにより製造することができるエチルベンゼンは、主にスチレン製造のための前駆体として用いられる。スチレン類及びポリエステル類は、食品工業に関する包装及び使い捨て供給製品(serviceware)、録音カセット及び録画カセ50

ット(visual cassettes)、医療及び歯科成形品並びに合成プラスチック、ゴム及び発泡体を含む多くの用途及び製品のためによく知られている。

【0004】

多くの一般の消費者製品及び工業製品を製造するための出発物質及び中間体としてアルキル化芳香族生成物が重要であるために、アルキル化芳香族物質の効率的な生産及び使用は非常に重要である。又、トルエン及びベンゼンのようなほとんどの芳香族出発物質は、油及び気体生成中に得られる。従って、それらの芳香族物質の効率的なアルキル化は、廃棄物をなくし、貴重な天然資源を保護するために極めて重要である。

【0005】

トルエンアルキル化のための従来のアプローチには、反応器の上流でトルエンとメタノールを混合すること、及び次にその混合物と一緒に反応器の底部に供給することが含まれる。その反応器には、1つ以上の固定床にアルキル化触媒が含まれ、この触媒は、トルエンとメタノールとの間のアルキル化反応を促進し、キシレンを製造する。このアプローチは成功裡に用いられたが、その収率及び反応体利用特徴は改良の余地を残している。

10

【0006】

種々の反応操作における収率を改良するための努力において、種々の固定床法において作用物質の段階的注入が用いられてきた。例えば、米国特許第4,377,718号及び第4,761,513号には、固定床間の異なる段階でアルキル化作用物質を供給するトルエンアルキル化法が記載されている。同様に、米国特許第3,751,504号には、固定床触媒反応器を用いてエチルベンゼンを製造するための、複数の注入口を用いる類似の操作が開示されている。米国特許第5,120,890号には、軽ガソリン流れ中のベンゼン及びトルエン含量を低減させるための方法において別個の固定床への複数の反応体注入位置が開示されている。

20

【0007】

それらの固定床法において、触媒装入をいくつかの異なり独立した領域に容易に分離させることができる。使用中に、1つの領域からの生成物は、付加的なアルキル化作用物質と混合され、この混合物は次の領域に供給される。それらの別個の独立した領域を与える1つの方法には、付加的な1つ又は複数の作用物質が隣接した領域の間に注入され、別個の反応器容器に各領域を置くことを含む。この操作は、別個の反応器容器及びこの種類の装置を運転させるための関連するハードウェアを与えることにおいてかなりの費用がかかるという欠点を有する。

30

【0008】

又、固定床反応器は、生成物選択性における発熱量の潜在的に負の影響のために、発熱反応のためには不利である。固定床を用いる反応器安定性の懸念は又、触媒床当りの温度上昇が限定されることも必要である。このことは、反応の熱に適応するための多数の床が必要となる。同様に、吸熱反応は、低減された反応速度及び過剰の触媒要求量をもたらす。

【0009】

芳香族反応体を高変換及び高選択性でアルキル化するための、例えば、トルエンとメタノールとの間のアルキル化反応からp-キシレンを製造するための、方法を提供することが本発明の目的である。

【0010】

40

従って、本発明は、

芳香族反応体(例えばトルエン)を流動床反応領域における第一の位置において流動床反応領域に導入すること、

アルキル化作用物質(例えばメタノール)を前記第一の位置より下流の第二の位置において流動床反応領域に導入すること、及び

芳香族反応体とアルキル化作用物質の反応により製造された、アルキル化芳香族生成物を流動床反応領域から回収すること

を含む、芳香族反応体をアルキル化し、アルキル化芳香族生成物を製造する(例えば、トルエンをメチル化してキシレンを製造する)方法に関する。

【0011】

50

アルキル化作用物質は前記第二の位置において流動床反応領域に導入される他に、アルキル化作用物質は又、第一の位置においても流動床反応領域に導入され得る。この付加的なアルキル化作用物質は、芳香族反応体との共通流れにおいて導入され得るか又は流動床反応領域に別個に供給され得る。

【0012】

本発明による方法の1つの好ましい態様には、前記第一の位置及び前記第二の位置より下流の1つ以上の更なる位置において流動床反応領域にアルキル化作用物質を直接導入することが含まれる。それらの更なる位置は、好ましくは、前記第一の位置から次第に離れた距離において提供される。又、アルキル化作用物質は反応器容器の軸方向に対して垂直な又は実質的に垂直な平面における複数の異なる位置において(すなわち、その導入の各段階において複数の位置において)導入され得る。

10

【0013】

トルエンのメチル化のような芳香族物質アルキル化反応の間に、芳香族反応体は、アルキル化作用物質と反応して望ましいアルキル化芳香族生成物を生成する。トルエンメチル化において、下記の望ましい反応が起こる：



しかし、多くの競合する副反応も起こる。例えば、メタノールは、それ自体と反応し得て、オレフィン類を生成する。メタノールの費用は、キシレン生成に係る費用の重要な部分であるので、それらの望ましくない副反応を最小に又はなくすことが重要である。トルエンのメチル化中に起こり得る他の望ましくない副反応は、トルエンの過アルキル化を伴い、 C_9 + 芳香族物質を生成する。

20

【0014】

反応工程中に大過剰のトルエンを用いることにより、トルエンメチル化中のそのような望ましくない副反応は低減され得る。過剰のトルエンを用いることにより、1つのメタノール分子が1つのトルエン分子と反応し、キシレンを製造する機会が増加し、2以上のメタノール分子は1つのトルエン分子と又はそれら自体と反応する機会を低減させる。従って、過剰のトルエンを用いることにより、反応を行っている間の「メタノール利用度」を増大させることにより、反応中のメタノールの効率的な使用がもたらされる。メタノール利用度は、キシレン

30

製造するためのメタノール選択性の尺度であり、

【式1】

$$\frac{\text{生成されたキシレンのモル数} \times 100}{\text{消費されたメタノールのモル数}} = \text{メタノール利用度\%}$$

消費されたメタノールのモル数

と定義される。

【0015】

高トルエン変換及び高メタノール利用度を与えるキシレン生成操作は、効率的で望ましい方法でキシレンを製造する。好ましくは、生成物キシレンは、 p -異性体に富んでおり、高 p -キシレン選択性を示し、

40

【式2】

$$\frac{\text{p-キシレンの質量} \times 100}{\text{o-キシレンの質量} + \text{p-キシレンの質量} + \text{m-キシレンの質量}} = p\text{-キシレン選択性\%}$$

と定義される。

【0016】

本発明は、流動床反応器における芳香族物質のアルキル化中、例えば、キシレンを製造するためのトルエンアルキル化中の変換、アルキル化作用物質の利用度及び選択性を改良するための新規な方法に関する。本方法は、芳香族反応体(例えばトルエン)が導入される

50

位置より反応器装置において下流である1つ以上の位置において流動床反応器装置にアルキル化作用物質(例えば、メタノール)を導入することにより、すなわち、「段階的方法」において、これらの改良された結果を提供する。下流のいずれの数の「段階」、例えば2乃至4の下流段階、もアルキル化作用物質を導入するために用いられる。

【0017】

より特定すると、芳香族反応体が導入される位置より下流にある位置において、アルキル化作用物質が流動触媒床に直接導入される。このアルキル化作用物質は好ましくは、芳香族反応体を含む上流の蒸気と予備混合せずに、触媒床に直接注入される。アルキル化作用物質は流動触媒床に直接注入される。先きに記載のように、トルエンメチル化の間にメタノール自己反応についての潜在能力を考慮すると、メタノール利用度及びキシレン収率に悪影響を及ぼさずに本発明の方法においてメタノールの直接導入が適切に機能していることは驚くべきことである。100乃至600kg / m³の、好ましくは300乃至500kg / m³の操作床密度を有する乱流副輸送流動床(turbulent sub-transport fluid beds)のような用いられる流動床は比較的稠密であり、それらの稠密の床の使用により触媒濃度、及びメタノール注入の領域におけるメタノール濃度が増加するので、このことは、特に、本発明による方法において驚くべきことである。しかし、後に示されるように、この直接のメタノール注入操作により、改良されたトルエン変換度及びメタノール利用度を有して効率的にキシレンを製造する。

【0018】

不都合なメタノール自己反応の機会をさらに低減させるために、任意に、アルキル化作用物質は、触媒の存在は別として、少なくとも一部の上流の反応器蒸気及び／又は新しい芳香族供給原料と予備混合され得る。次にその混合物を、アルキル化触媒を含有する流動床の中間部分における位置において流動床に導入する。上流の反応器蒸気は、未反応の芳香族物質及びアルキル化作用物質及びいくらかのアルキル化芳香族生成物を含み得る。この選択肢は都合の悪いメタノール／メタノール副反応の機会を低減させるが、費用及び反応器複雑性を増大させる。

【0019】

本発明の方法は、トルエン及びメタノールからキシレンを生成することを主に意図しているが、他の芳香族物質のアルキル化反応、例えば、ジエチルベンゼンを生成するためのベンゼンのエチル化、クメンを生成するためのベンゼンのプロピル化、ジエチルベンゼンを生成するためのエチルベンゼンのエチル化、ジイソプロピルベンゼンを生成するためのクメンのプロピル化、p - エチルトルエンを生成するためのトルエンのエチル化、p - シメンを製造するためのトルエンのプロピル化、及びブソイドクメン[1,2,4-トリメチルベンゼン]を生成するためのキシレンのメチル化、並びに自動車ガソリン中のベンゼン含量の低減をもたらすために用いられ得る。

【0020】

本発明を、本発明の1つの態様による方法を行うための流動床反応器装置の概略図である添付した図を参照にしてより特定して記載する。

【0021】

図面を参照すると、流動床反応領域14を含む反応器容器12を含む流動床反応器装置10が示されている。反応領域14には、頂部16、底部18及び、頂部16と底部18の間に広がった中間部分20が含まれる。

【0022】

本技術分野で公知のように、流動床反応領域14は、反応器操作の間、反応器容器12を気体流れが上部へと通過するので、一般的に気体流れにより沈まないでいる(「流動化された」)ある容量の小サイズの粒体を含有する。サイクロン22のような従来の装置が、気体から連行された触媒の主要な分離及び回収をさせるために、固体物質を流動床に戻すために、種々の反応体及び触媒を混合し接触させるために必要な気体のいくらか又はすべてを回収するために、かつ、適する操作条件下で流動床14を維持するために用いられる得る。この気体流れにより、反応体は、反応領域内及び／又は反応領域中を通過し、小さい粒体は

、アルキル化条件下で反応体間の豊富な接触を可能にする大きな表面積を与える。

【 0 0 2 3 】

好ましくは、流動床14は、アルキル化反応を促進する触媒を含有し、実際に、望ましい場合、流動床14の全体の容量は触媒粒体を構成しえる。本発明から逸脱することなく、いずれの適するアルキル化触媒も用いられ得る。例えば、PCT出願公開W098 / 14415号に記載されたZSM-5ゼオライトアルキル化触媒は本発明の方法によるトルエンのメチル化における使用のために適している。

【 0 0 2 4 】

反応を進行させるために、種々の反応体を流動床反応領域14に導入しなくてはならない。本発明の方法及び装置では特定の位置は臨界的ではないが、示された態様において芳香族反応体(例えばこの装置におけるトルエン)は、流動床反応領域14の底部部分18において導入される。この反応体は、本技術分野で公知の従来の装置[例えば、インジェクターノズル、多孔格子(perforated grids)、管格子等]を含む、いずれかの適する導入装置24を用いて導入され得る。芳香族反応体は、流動床反応領域14における1つ以上の位置において導入され得るが、好ましくは、それらの位置は、底部部分18においてまたはその付近に与えられる。好ましくは、芳香族反応体は気体形態で導入され、反応領域14を流動形態に維持するために必要な気体流れの少なくとも一部を与える。

10

【 0 0 2 5 】

アルキル化作用物質は、芳香族反応体が導入される位置(導入装置24により)より下流である、その軸方向に沿って1つ以上の位置において流動床反応領域14に直接導入される。示された反応装置には、異なる「段階」でアルキル化作用物質を導入するための4つの下流の軸方向導入装置、26a、26b、26c及び26dが含まれる。これらの装置26a、26b、26c及び26dは、適する方法においてアルキル化作用物質を導入するように配置され得る。たとえば、各装置26a、26b、26c及び26dは、容器周辺部近くにアルキル化作用物質を導入するために反応器容器12の周辺部近くに位置する1つの及び好ましくは1つより多いインジェクターノズルを含み得る。他の代替装置として、図1に示されたように、各装置26a、26b、26c及び26dは、流動床反応領域14の内部における複数の位置においてアルキル化作用物質を導入するために、マニホールド又は管格子集成装置28a、28b、28c及び28dを含み得る。好ましくは、各軸方向段階には、その段階内での複数の位置においてアルキル化作用物質を導入するために適する装置を含む。メタノールの種々の複数の位置におけるこの段階的導入はメタノール利用度、トルエン変換度及び望ましいキシレン生成物への選択性を増大させる。

20

【 0 0 2 6 】

本発明の他の好ましい面には、初期の芳香族反応体が導入される位置において又はその位置付近において付加的なアルキル化作用物質を導入することを含む。図1は、この付加的なアルキル化作用物質を導入するための反応器容器12の底部における導入装置30を示している。望ましい場合、この付加的なアルキル化作用物質及び芳香族反応体は、それらの物質を共通の供給原料流れ中に導入するように、流動床反応領域14の底部18に導入する前に一緒に混合し得る。代替的方法として、それらの物質を別個に流動床反応領域14に導入し、それらの導入の後に一緒に接触させるか又は、それらの物質を、流動床反応領域14に両方同時に導入するノズル又は他の装置において最初に一緒に混合し得る。本発明から逸脱せずに導入のためにいずれの適する混合装置及び方法も用いられ得る。

30

【 0 0 2 7 】

必要な場合、反応体又は作用物質が触媒床に入るまで機械的装置によりこれらの物質の集結性を確保するような条件下で(すなわち、反応体及び作用物質の望ましくない副反応、変換及び/又は分解を防ぐために)、種々の作用物質及び反応体を導入するための装置24、26、28及び30が維持され得る。このことは、導入装置における物質の滞留時間を制限することによるか又は導入装置を作用物質及び反応体を安定条件下で維持する温度に冷却することによるようないずれかの適する方法において行われ得る。

40

【 0 0 2 8 】

50

反応器容器12及び反応体導入速度は、望ましいアルキル化芳香族生成物を製造するために芳香族反応体とアルキル化作用物質との間の化学的反応を支持するのに適する条件下で維持される。この反応生成物は好ましくは気体形態で製造され得て、凝縮、続いての従来の蒸留及び回収装置を用いて炭化水素液体の分別によるような適する方法で反応器出口流れ40から集められ回収され得る。さらに、生成物の精製は、例えば、結晶化又は固体吸着によるいずれかの適する方法で行われ得る。

【 0 0 2 9 】

未反応の供給原料は、流動床反応領域14に再循環され得る。望ましい場合は、再循環メタノール及びトルエンを完全に精製することがなし得るが、一般的には必要でない。

【 0 0 3 0 】

適する反応条件、特に、p-キシレンを製造するためのトルエンのメタノールでのメチル化のための適する反応条件には下記の範囲が含まれる：

- (a) 温度 - 500乃至700 、好ましくは500乃至600 、
- (b) 圧力 - 1気圧乃至1,000psig(100乃至7,000kPa)、好ましくは10乃至200psig、
- (c) トルエンのモル数 / メタノールのモル数(反応器装入における) - 少なくとも0.2、好ましくは0.2乃至20、並びに
- (d) 1つ又は複数の反応器への総炭化水素供給原料についての毎時重量空間速度(“W H S V”) - 1つ又は複数の反応器中の総触媒に基づいて、芳香族反応体について0.2乃至1,000、好ましくは0.5乃至500、合わせたアルキル化作用物質段階流れについて0.01乃至100 。

【 0 0 3 1 】

蒸気相又は気相において、好ましくは、反応器への供給原料中のトルエン + メタノールに対する水素及び / 又は水のモル比が0.01乃至10であるような添加された水素及び / 又は添加された水の存在下で本方法は行われる。当業者は、日常的な実験を用いて、変換、収率及び選択性を最適にするために種々の反応パラメーター及び条件を調整することができる。

【 0 0 3 2 】

実施例1

本実施例のために、トルエン及びメタノールからキシレンを製造するために図1に示したのと類似の流動床パイロットプラントを用いた。反応器容器12は直径10.2cm(4インチ)で高さ8.2m (27フィート)であった。メタノールを段階的様式で導入し、下記の表に示された種々の段階間で分配される。段階1(反応器の底部に位置した)において、流動床への導入の前にメタノールをトルエン供給原料と予備混合した。続く下流段階の各々におけるメタノール導入には、トルエンとの予備混合を含まなかつた。これらの後の段階においては、メタノールは、流動床に直接注入された。

【 0 0 3 3 】

用いた流動床触媒は、4重量%の燐及び10重量%の450 / 1 の、シリカ-アルミナ及びクレーを含む結合剤中 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ZSM-5ゼオライトを含有した。触媒を使用前に、14.7psi分圧、1,000 において45分間、蒸気を当てた。1.4g / ccの粒子密度及び20乃至300 μ の粒度を有した。

【 0 0 3 4 】

下記の条件下でパイロットプラントを実施する場合、下記の性能試験結果が得られた。

【 0 0 3 5 】

【表1】

10

20

30

40

表 1

段階の数	1	2	3	4
条件				
反応器頂部圧力(psig)	21	21	22	22
反応器温度(° F)	1105	1095	1104	1108
炭化水素WHSV(時間 ⁻¹)	1.9	1.6	1.6	1.6
メタノール総WHSV(時間 ⁻¹)	0.3	0.2	0.2	0.2
段階1(底部)へのメタノール%	100	50	33	35
段階2へのメタノール%	0	50	33	26
段階3へのメタノール%	0	0	33	26
段階4へのメタノール%	0	0	0	13
段階2高度(フィート)	—	10.8	3.8	3.8
段階3高度(フィート)	—	—	10.8	10.8
段階4高度(フィート)	—	—	—	18.0
メタノールに対するトルエンの総モル比	2.0	2.0	2.0	2.0
炭化水素に対する水の比	0.5	0.5	0.5	0.5
反応器入口速度(ft/秒)	2.8	2.2	2.0	2.0
反応器出口速度(ft/秒)	3.2	3.1	3.0	3.0
平均反応器床密度(lb/ft ³)	23	25	25	25
性能				
メタノール変換度(%)	88.7	91.9	91.9	92.9
トルエン変換度(%)	21.7	26.4	27.4	28.2
トルエンに基づくキシレン収率(重量%)	24.7	30.2	30.9	31.9
p-キシレン選択性(%)	89.9	89.9	89.7	89.3
メタノール利用度(%)	48.4	57.0	58.2	59.3

【0036】

上記試料実験は、本発明による方法により改良された性能を示している。試料実験1は、芳香族反応体(トルエン)が導入される位置より下流でのアルキル化作用物質(メタノール)の導入は含まなかったので、本発明の範囲外であった。試料実験1では、100%のメタノールをトルエン供給原料とともに流動床の底部において導入した。試料実験2乃至4は、本発明の方法により行い、試料実験1よりも改良されたメタノール及びトルエンの変換度、改良されたキシレンの収率及び改良されたメタノール利用度を与えた。これらの改良されたすべての結果は、p-キシレン選択性においてあまり又は全く低減を有さずに達成された。

【0037】

実施例 1

本実施例は、アルキル化作用物質導入段階の数を増加することにより、トルエン変換度及びメタノール利用度についての本発明の性能を改良することができることを示している。後に記載した試料実験、本発明の方法による両実験を、実施例1において用いられたパイロットプラントにおいて行った。操作条件及び性能結果を表2に示す。

【0038】

【表2】

10

20

30

40

表 2

段階の数	2	4
条件		
反応器頂部圧力(psig)	20	20
反応器温度(° F)	1104	1102
炭化水素WHSV(時間 ⁻¹)	1.5	1.5
メタノール総WHSV(時間 ⁻¹)	0.2	0.2
段階 1(底部)へのメタノール%	49	27
段階 2へのメタノール%	51	24
段階 3へのメタノール%	0	24
段階 4へのメタノール%	0	25
段階 2 高度(フィート)	10.8	3.8
段階 3 高度(フィート)	—	10.8
段階 4 高度(フィート)	—	18.0
メタノールに対するトルエンの 総モル比	1.8	1.8
炭化水素に対する水の比	0.5	0.5
反応器入口速度(ft/秒)	2.1	1.9
反応器出口速度(ft/秒)	3.1	3.2
平均反応器床密度(lb/ft ³)	27	27
性能		
メタノール変換度(%)	99.3	97.9
トルエン変換度(%)	33.2	35.4
トルエンに基づくキシレン収率 (重量%)	37.3	38.7
p-キシレン選択性(%)	88.7	89.7
メタノール利用度(%)	58.8	61.8

10

20

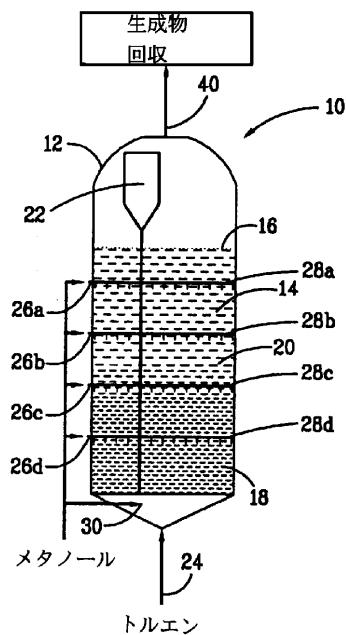
30

40

【0039】

本性能データーから明らかのように、本発明による両方法は、優れた結果を生んだ。しかし、2から4にメタノール導入段階数を増加すると、トルエン変換度及びメタノール利用度における増大が認められた。又4段階の導入法では、キシレン収率及びp - キシレン選択性における改良が示された。

【図1】



FIGURE

フロントページの続き

- (72)発明者 ジョンソン、デビッド・リー
アメリカ合衆国、ペンシルバニア州 19342、グレン・ミルズ、コンコード・ミーティング・
ロード 181
- (72)発明者 ティンガー、ロバート・ジェラード
アメリカ合衆国、ニュージャージー州 08328、マラガ、バレリ・コート 8
- (72)発明者 ウエア、ロバート・アダムス
アメリカ合衆国、ペンシルバニア州 19038、ウインドムア、ステントン・アベニュー 80
55
- (72)発明者 ユーチャック、サージェイ
アメリカ合衆国、ペンシルバニア州 19063、メディア、ティンバー・ジャンプ・レーン 2
11

審査官 前田 憲彦

- (56)参考文献 特表平03-504732 (JP, A)
特開平03-181424 (JP, A)
特表平06-508817 (JP, A)
特開昭58-035128 (JP, A)
特表平10-508825 (JP, A)
国際公開第96/020148 (WO, A1)
特開平10-298117 (JP, A)
特表平10-508342 (JP, A)
特開平01-068329 (JP, A)
特公昭49-024921 (JP, B1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

- C07C 2/00
C07C 15/00
CA/REGISTRY(STN)