

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第2部門第1区分

【発行日】平成27年9月10日(2015.9.10)

【公表番号】特表2014-529485(P2014-529485A)

【公表日】平成26年11月13日(2014.11.13)

【年通号数】公開・登録公報2014-062

【出願番号】特願2014-523309(P2014-523309)

【国際特許分類】

B 0 1 J	38/14	(2006.01)
B 0 1 J	38/16	(2006.01)
C 1 0 G	27/04	(2006.01)
C 0 7 C	11/08	(2006.01)
C 0 7 C	5/333	(2006.01)
C 0 7 B	61/00	(2006.01)

【F I】

B 0 1 J	38/14	
B 0 1 J	38/16	
C 1 0 G	27/04	
C 0 7 C	11/08	
C 0 7 C	5/333	
C 0 7 B	61/00	3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成27年7月22日(2015.7.22)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

円柱または角柱の形態の反応器(1)内での、モノリス(4)として形成されている不均一触媒上で反応ガス混合物を得る、酸素含有ガス流(3)を用いた炭化水素含有ガス流(2)の自熱式気相脱水素化、および触媒の再生のための方法であって、

・ 反応器(1)の内部空間が、反応器(1)の長さ方向に配置された環状の円柱型または角柱型の気密性ハウジングGによって、内部領域Aと外部領域Bとに分割されており、

・ 内部領域Aは、1つまたは複数の相前後して配置された触媒活性ゾーン(5)を有し、そこで、重なり合って、並んで、および相前後して積み重なったモノリス(4)からの充填材がそれぞれ備えられ、且つ、各々の触媒活性ゾーン(5)の前に、それぞれ固定された内部構造物を有する混合ゾーン(6)が備えられており、

- ・ 外部領域Bは、内部領域Aに対して同軸に配置されており、且つ
- ・ 反応器の端部で、ハウジングGに続けて熱交換器(12)が備えられており、
- ・ 脱水素化されるべき炭化水素含有ガス流(2)のための1つまたは複数の供給ライン(7)を有し、各々の供給ライン(9)は1つまたは複数の分岐チャンバー(10)を備え、且つ
- ・ 自熱式気相脱水素化の反応ガス混合物用の排出ライン(11)を有し、

・ 外部領域 B は、自熱式気相脱水素化の反応条件下で不活性であるガスに曝されており、且つ、

・ 脱水素化されるべき炭化水素含有ガス流 (2) は、供給ライン (7) を介して熱交換器 (12) に導入され、熱交換器 (12) において、向流での反応ガス混合物によって、間接的な熱交換によって加熱され、さらに、反応器の、熱交換器 (12) とは反対の端部にみちびかれ、そこで向きを変えられ、整流器 (8) を介して内部領域 A に導入され、且つ、混合ゾーン (6) 内で、酸素含有ガス流 (3) と混合され、そこで、反応器 (1) の内部領域 A において自熱式気相脱水素化が行われる、前記方法において、

・ 反応器が、自熱式気相脱水素化の製造モードと再生モードとで交互に稼働され、

・ 自熱式気相脱水素化の製造モードは、流れの方向において最後に配置された触媒活性ゾーン (5) からの流出後、且つ熱交換器 (12) への流入前の反応ガス混合物の温度上昇が、

・ 単独の触媒活性ゾーン (5) を使用する場合は、前記単独の触媒活性ゾーン (5) からの流出後、且つ熱交換器 (12) への流入前の反応ガス混合物の温度上昇が、少なくとも 15 分の時間にわたって線形的に上昇するようになる時点を基準として、または、

・ 2つまたはそれより多くの相前後して配置される触媒活性ゾーン (5) を使用する場合は、各々の触媒活性ゾーン (5) からの流出の際の反応ガス混合物の温度上昇が、直前の触媒活性ゾーン (5) からの流出の際の温度上昇に対して急激に上昇するようになる時点を基準として、

5 K を超えないところまで続けられ、それから、

・ 再生ガスの合計質量に対して少なくとも 10 質量 % の酸素を含有する不活性な再生ガスを供給しながら、反応器が再生モードに切り替えられることを特徴とする前記方法。

#### 【請求項 2】

最後の触媒活性ゾーン (5) からの流出の際、且つ熱交換器 (12) への流入前の反応ガス混合物の温度上昇が、請求項 1 に定義される時点を基準として、4 K を超えると同時に、自熱式気相脱水素化の製造モードが終了され、且つ反応器 (1) が再生モードに切り替えられることを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

#### 【請求項 3】

最後の触媒活性ゾーン (5) からの流出の際、且つ熱交換器 (12) への流入前の反応ガス混合物の温度上昇が、請求項 1 に定義される時点を基準として、3 K を超えると同時に、自熱式気相脱水素化の製造モードが終了され、且つ反応器 (1) が再生モードに切り替えられることを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

#### 【請求項 4】

それぞれ製造モードおよび再生モードを含む各稼働サイクルにおいて、合計の稼働時間の最大 15 % を再生モードに割り当てる特徴とする、請求項 1 から 3 までのいずれか 1 項に記載の方法。

#### 【請求項 5】

それぞれ製造モードおよび再生モードを含む各稼働サイクルにおいて、合計の稼働時間の最大 10 %、好ましくは最大 5 % を再生モードに割り当てる特徴とする、請求項 4 に記載の方法。

#### 【請求項 6】

脱水素化されるべき炭化水素含有ガス流 (2) が、2つまたはそれより多くの位置で熱交換器 (12) に、好ましくはより多い物質流を有する主流として、且つ、主流に対してより少ない物質流を有する 1つまたは複数の副流として導入されることを特徴とする、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項に記載の方法。

#### 【請求項 7】

熱交換器 (12) に追加して、脱水素化されるべき炭化水素含有ガス流 (2) のための 1つまたは複数の追加的な加熱装置が備えられている特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の方法。

**【請求項 8】**

内部領域 A において、2つまたはそれより多くの触媒活性ゾーン(5)は、重なり合って、並んで、および相前後して積み重なったモノリス(4)からの充填材がそれぞれ備えられており、

- 同一の触媒活性ゾーン(5)の内部のモノリス(4)が、好ましくはそれぞれ異なる触媒活性を有して構成されており、および／または

- 2つまたはそれより多くの触媒活性ゾーン(5)が、それぞれ異なる触媒活性を有して構成されている

ことを特徴とする、請求項1から7までのいずれか1項に記載の方法。

**【請求項 9】**

ハウジングGが角柱として形成されていること、および角柱として形成されたハウジングGの側壁が、触媒活性ゾーン(5)の充填材全部または充填材の個々のモノリス(4)を交換できるように、個々に取り外せるように構成されていることを特徴とする、請求項1から8までのいずれか1項に記載の方法。

**【請求項 10】**

排出ライン(11)から反応器(1)の外へ流出する反応ガス混合物のために、好ましくは反応ガス混合物の凝縮後且つ後処理装置へ反応ガス混合物を回送する前に、貯蔵容器が備えられていることを特徴とする、請求項1から9までのいずれか1項に記載の方法。

**【請求項 11】**

自熱式気相脱水素化が、プロパンの、ブタンの、イソブタンの、ブテンの、またはエチルベンゼンの脱水素化であることを特徴とする、請求項1から10までのいずれか1項に記載の方法。