(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5159765号
(P5159765)

(45)発行日　平成25年3月13日(2013.3.13)　(24)登録日　平成24年12月21日(2012.12.21)

(51)Int.Cl.　　F I
C07C 5/27 (2006.01)　C07C 5/27
C07C 7/00 (2006.01)　C07C 7/00
C07C 15/08 (2006.01)　C07C 15/08

請求項の数 10　(全 18 頁)

(21)出願番号　特願2009-507707 (P2009-507707)
(86)(22)出願日　平成19年4月10日 (2007.4.10)
(65)公表番号　特表2009-535332 (P2009-535332A)
(43)公表日　平成21年10月1日 (2009.10.1)
(86)国際出願番号　PCT/US2007/008829
(87)国際公開番号　WO2007/127049
(87)国際公開日　平成19年11月8日 (2007.11.8)
審査請求日　平成20年12月9日 (2008.12.9)
(31)優先権主張番号　60/794,864
(32)優先日　平成18年4月25日 (2006.4.25)
(33)優先権主張国　米国 (US)

前置審査

(73)特許権者　599134676
エクソンモービル・ケミカル・パテンツ・インク
アメリカ合衆国、テキサス州　７７０７９、ヒューストン、ケーティ・フリーウェイ　１３５０１
(74)代理人　100071010
弁理士　山崎　行造
(72)発明者　オウ、ジョン・ディーイ
アメリカ合衆国、テキサス州　７７０５９、ヒューストン、ベイ・グリーン・コート　１５４１５

最終頁に続く

(54)【発明の名称】パラキシレンの生成方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
高濃度パラキシレンを含む生成物の生成方法であって、
（ａ）Ｃ$_8$炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度Ｃ$_8$炭化水素ストリームを生成する工程、
（ｂ）高濃度Ｃ$_8$炭化水素ストリームの少なくとも第一部分を分離し、第一高濃度パラキシレンストリーム及び第一低濃度パラキシレンストリームを生成する工程、
（ｃ）前記第一低濃度パラキシレンストリームの少なくとも一部を異性化し、第一低濃度パラキシレンストリームより高いパラキシレン濃度を有する第一異性化ストリームを生成する工程、
（ｄ）前記高濃度Ｃ$_8$炭化水素ストリームの第二部分及び／又は第一異性化ストリームの少なくとも一部を分離し、第二高濃度パラキシレンストリーム及び第二低濃度パラキシレンストリームを生成する工程、
（ｅ）前記第二低濃度パラキシレンストリームの少なくとも一部を異性化し、第二低濃度パラキシレンストリームより高いパラキシレン濃度を有する第二異性化ストリームを生成する工程、
（ｆ）少なくとも１の前記第一高濃度パラキシレンストリーム及び第二高濃度パラキシレンストリームの少なくとも一部を高濃度パラキシレンを含む生成物として回収する工程、及び
（ｇ）少なくとも１の前記第一異性化ストリーム、第二異性化ストリーム、第一高濃度パ

ラキシレンストリーム、及び第二高濃度パラキシレンストリームの少なくとも一部を（ａ）の分離工程に供給する工程
を含み、
（ｂ）及び（ｄ）の分離工程、並びに（ｃ）及び（ｅ）の異性化工程は、各々別個の分離装置及び別個の異性化装置で行われる、前記方法。
【請求項２】
高濃度パラキシレンストリームの生成方法であって、
（ａ）C_8炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度C_8炭化水素ストリームを生成する工程、
（ｂ）前記高濃度C_8炭化水素ストリームの少なくとも一部を分離し、前記高濃度パラキシレンストリーム及び第一ストリームを生成する工程、
（ｃ）前記第一ストリームの少なくとも一部を異性化し、第一ストリームより高いパラキシレン濃度を有する第二ストリームを生成する工程、
（ｄ）前記第二ストリームの少なくとも一部を分離し、第三ストリーム及び第四ストリームを生成する工程であり、前記第三ストリームは第二ストリームより高いパラキシレン濃度を有し、前記第四ストリームは第二ストリームより低いパラキシレン濃度を有する工程、
（ｅ）前記（ｃ）の異性化工程から分離された別の異性化工程で前記第四ストリームの少なくとも一部を異性化し、前記第四ストリームより高いパラキシレン濃度を有する第五ストリームを生成する工程、及び
（ｆ）前記第三ストリームの少なくとも一部及び／又は前記第五ストリームの少なくとも一部を前記（ａ）の分離工程に供給する工程
を含み、
（ｂ）及び（ｄ）の分離工程、並びに（ｃ）及び（ｅ）の異性化工程は、各々別個の分離装置及び別個の異性化装置で行われる、前記方法。
【請求項３】
前記第五ストリームの少なくとも一部及び／又は前記第三ストリームの少なくとも一部を工程（ｄ）へ再循環することをさらに含む、請求項２に記載の方法。
【請求項４】
前記第四ストリームの少なくとも一部を工程（ｃ）へ再循環することをさらに含む、請求項２又は請求項３に記載の方法。
【請求項５】
前記第二ストリームを分画し、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分を生成し、前記第二部分を前記（ｄ）の分離工程に供給する工程をさらに含む、請求項２から請求項４のいずれか１項に記載の方法。
【請求項６】
高濃度パラキシレンを含む生成物の生成方法であって、
（ａ）C_8炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度C_8炭化水素ストリームを生成する工程、
（ｂ）前記高濃度C_8炭化水素ストリームの少なくとも一部を分離し、第一ストリーム及び第二ストリームを生成する工程であり、前記第一ストリームは高濃度C_8炭化水素ストリームより高いパラキシレン濃度を有し、前記第二ストリームは高濃度C_8炭化水素ストリームより低いパラキシレン濃度を有する工程、
（ｃ）前記第二ストリームの少なくとも一部を異性化し、第二ストリームより高いパラキシレン濃度を有する第三ストリームを生成する工程、
（ｄ）前記第一ストリームの少なくとも一部及び／又は前記第三ストリームの少なくとも一部を分離し、前記高濃度パラキシレンストリーム及び第四ストリームを生成する工程、
（ｅ）前記第四ストリームの少なくとも一部を異性化し、前記第四ストリームより高いパラキシレン濃度を有する第五ストリームを生成する工程、及び
（ｆ）前記第五ストリームの少なくとも一部を前記（ａ）の分離工程に供給する工程

を含み、
（ｂ）及び（ｄ）の分離工程、並びに（ｃ）及び（ｅ）の異性化工程は、各々別個の分離装置及び別個の異性化装置で行われる、前記方法。
【請求項７】
前記第二ストリームの少なくとも一部を工程（ｅ）へ再循環することをさらに含む、請求項６に記載の方法。
【請求項８】
前記第一ストリームの少なくとも一部及び／又は前記第三ストリームの少なくとも一部を工程（ｂ）へ再循環することをさらに含む、請求項６又は請求項７に記載の方法。
【請求項９】
前記第三ストリームの少なくとも一部を工程（ａ）へ再循環することをさらに含む、請求項６から請求項８のいずれか１項に記載の方法。
【請求項１０】
前記第五ストリームを分画し、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分を生成し、前記第二部分を前記（ａ）の分離工程に供給する工程をさらに含む、請求項６から請求項９のいずれか１項に記載の方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本願発明は、パラキシレンの生成方法に関する。
【０００２】
発明の背景
エチルベンゼン（ＥＢ）、パラキシレン（ＰＸ）、オルトキシレン（ＯＸ）及びメタキシレン（ＭＸ）は、化学プラント及び石油精製所からのC_8芳香族生成物ストリームにしばしば同時に存在する。C_8化合物について、ＥＢは、スチレンの生成に重要な原料物質であるが、様々な理由のため、スチレン生成で用いられるＥＢ原料の大部分は、C_8芳香族ストリームからの回収よりも、エチレンを伴うベンゼンのアルキル化により生成される。その３つのキシレン異性体について、ＰＸは、最大の市場を有し、ポリ（テレフタル酸エチレン）、ポリ（テレフタル酸プロピレン）、及びポリ（テレフタル酸ブテン）等の多様なポリマーの生成に使われるテレフタル酸及びテレフタル酸エステルの製造に主として用いられる。ＯＸ及びＭＸは、無水フタル酸及びイソフタル酸等の生成物の作成に用いられる溶媒及び原料物質として有益である一方で、ＯＸ及びＭＸ、及びそれらのダウンストリーム誘導体の市場需要は、ＰＸよりも極めて小さい。
【０００３】
ＰＸの他の異性体と比較してより高いＰＸの需要を考慮し、C_8芳香族物質のいずれか任意の供給源を基にしたＰＸ生成の生産性を最大にすることに大きな商業的関心がある。ここで、このＰＸ生成の最大生産性の達成を目的とした２つの主要な技術的試みがある。第一に、４個のC_8芳香族化合物、特にその３つのキシレン異性体は、通常、所定のプラント又は精製所でC_8芳香族ストリームの生成における熱力学により決定される濃度で使用される。結果としてＰＸ生成は、追加の処理工程で、ＰＸ量の増加及び／又はＰＸ回収効率の改善が施されない限り、多くても、C_8芳香族ストリームの初期に存在する量に制限される。第二に、C_8芳香族は、それらが同様の化学的構造及び物理学的特性、並びに同一の分子量を有するため、分離が困難である。
【０００４】
C_8芳香族ストリームにおけるＰＸ濃度の増加には、様々な方法を適用できることが知られている。それらの方法は通常、分離工程及びキシレン異性化工程間においてストリームの再循環を行うことを含む。前記分離工程では、少なくともＰＸの一部が回収され、低濃度ＰＸストリームを生成し、前記キシレン異性化工程では、低濃度ＰＸストリームのＰＸ含有量が通常、モレキュラーシーブ触媒との接触により平衡濃度へ戻される。しかしながら、これらの方法の商業的実用性は、上述した異なるC_8異性体の化学的及び物理学的

類似性により複雑にされる分離工程の効率性、費用効率、速度に依存する。

【０００５】

分留は、化学的混合物中の異なる成分を分離する方法として一般的に用いられる。しかしながら、従来の分留技術を用いてＥＢ及びその異なるキシレン異性体を分離することは困難である。なぜなら、４個のＣ$_8$芳香族の沸点の差が、８℃以内と非常に狭い、すなわち約１３６℃から約１４４℃（以下の表１を参照）に収まるためである。特に、ＰＸ及びＥＢの沸点の差は約２℃で、ＰＸ及びＭＸの沸点の差はたったの約１℃である。結果として、広大な設備、有意なエネルギー消費、及び／又は実質的な再循環が、有効な分留によるＣ$_8$芳香族の分離に必要とされるだろう。

【表１】

表１

Ｃ$_8$化合物	沸点（℃）	凝固点（℃）
EB	136	-95
PX	138	13
MX	139	-48
OX	144	-25

【０００６】

分別結晶は、混合物の成分の分離に用いられる別の方法であり、成分の凝固点及び異なる温度での溶解による差異の利点が利用される。ＰＸは、比較的より高い凝固点を有するため、Ｃ$_8$芳香族ストリームから固体として分別結晶を用いて分離出来る。他の成分は低濃度ＰＸろ過液中で回収される。ＰＸからテレフタル酸及びテレフタル酸エステルの十分な転換に必要とされる重要な特性である高純度のＰＸは、このようなタイプの分別結晶により得ることが出来る。米国特許第４，１２０，９１１号より当該方法の開示が提供される。商業的に使用可能な分別結晶工程及び装置は、結晶化アイソファイニング（ｔｈｅ ｃｒｙｓｔａｌｌｉｚａｔｉｏｎ ｉｓｏｆｉｎｉｎｇ）工程、連続向流結晶化（ｔｈｅ ｃｏｎｔｉｎｕｏｕｓ ｃｏｕｎｔｅｒｃｕｒｒｅｎｔ ｃｒｙｓｔａｌｌｉｚａｔｉｏｎ）工程、直接CO_2結晶器、及びスクレイプド・ドラム（ｓｃｒａｐｅｄ ｄｒｕｍ）結晶器を含む。高い実用性、及びＰＸ及びＭＸ間の共融混合物の構成のために、ＰＸの回収に用いられる分別結晶を使用する際、出来る限り高い初期のＰＸ濃度を有する供給体を使用することが、通常、より好都合である。

【０００７】

別のキシレン分離方法では、ゼオライト等のモレキュラーシーブが使用され、Ｃ$_8$芳香族供給体ストリームからパラキシレンを選択的に吸着し、低濃度ＰＸ流出物を形成する。吸着されたＰＸは次に、加熱、ＰＸの部分的な圧力低下又は剥離（ｓｔｒｉｐｐｉｎｇ）等の多様な方法を用いて脱離されることが出来る（一般の米国特許第３，７０６，８１２号、第３，７３２，３２５号及び第４，８８６，９２９号を参照にされたい）。多くの化学プラント又は精製所で用いられる２つの商業的に使用可能な工程は、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）及びＥＬＵＸＹＬ（ＴＭ）工程である。両工程は、ＰＸを吸着させるためモレキュラーシーブを用いる。吸着工程に基づいた当該モレキュラーシーブにおいて、分別結晶工程からの一般的な６５％未満のＰＸ量と比較してより多いＰＸ量、通常９０％強を所定の供給体にあるＰＸから回収することが出来る。

【０００８】
これらのＰＸの分離工程の多くにおいて、供給体ストリームで当初のＰＸ濃度が高ければ高いほど、より容易かつ、より効率的及びより経済的にＰＸの分離が行われる。従って、$Ｃ_{8}$芳香族化合物から成る炭化水素供給体ストリームをＰＸ回収装置に送る前に当該供給体ストリームでＰＸ濃度を増加させる高い経済的及び技術的な必要性がある。
【０００９】
従って、$Ｃ_{8}$芳香族化合物ストリームをＰＸ回収装置に送る前に当該供給体ストリーム中のＰＸ濃度を増加させる改善された工程が必要とされる。この高いＰＸ濃度によりさらに、利用が改善され及び／又はＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置、ＥＬＵＸＹＬ（ＴＭ）装置又は分別結晶器等のＰＸ分離設備で起こる障害が解消（ｄｅ－ｂｏｔｔｌｅｎｅｃｋｉｎｇ）されるだろう。
【００１０】
発明の概要
一形態において、本願は、高濃度ＰＸ生成物の生成方法について開示する。当該方法は、以下を含む：
（ａ）$Ｃ_{8}$炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリームを生成する工程；
（ｂ）高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリームの少なくとも第一部分を分離し、第一高濃度ＰＸストリーム及び第一低濃度ＰＸストリームを生成する工程；
（ｃ）前記第一低濃度ＰＸストリームの少なくとも一部を異性化し、第一低濃度ＰＸストリームより高いＰＸ濃度を有する第一異性化ストリームを生成する工程；
（ｄ）高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリームの第二部分及び／又は第一異性化ストリームの少なくとも一部を分離し、第二高濃度ＰＸストリーム及び第二低濃度ＰＸストリームを生成する工程；
（ｅ）前記第二低濃度ＰＸストリームの少なくとも一部を異性化し、第二低濃度ＰＸストリームより高いＰＸ濃度を有する第二異性化ストリームを生成する工程；
（ｆ）少なくとも１の前記第一高濃度ＰＸストリーム及び第二高濃度ＰＸストリームの少なくとも一部を高濃度ＰＸ生成物として回収する工程；及び
（ｇ）少なくとも１の前記第一異性化ストリーム、第二異性化ストリーム、第一高濃度ＰＸストリーム、及び第二高濃度ＰＸストリームの少なくとも一部を（ａ）の分離工程に供給する工程。
【００１１】
好ましくは、前記供給原料は、少なくとも$Ｃ_{8}$＋炭化水素を含み、（ａ）の分離工程を用いて高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリーム及び高濃度$Ｃ_{9}$＋炭化水素ストリームを生成する。
【００１２】
別の形態において、本願は、高濃度ＰＸストリームの生成方法について開示する。当該方法は以下を含む：
（ａ）$Ｃ_{8}$炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリームを生成する工程；
（ｂ）高濃度$Ｃ_{8}$炭化水素ストリームの少なくとも部分を分離し、高濃度ＰＸストリーム及び第一ストリームを生成する工程；
（ｃ）前記第一ストリームの少なくとも一部を異性化し、第一ストリームより高いＰＸ濃度を有する第二ストリームを生成する工程；
（ｄ）前記第二ストリームの少なくとも一部を分離し、第三ストリーム及び第四ストリームを生成する工程であり、前記第三ストリームは第二ストリームより高いＰＸ濃度を有し、前記第四ストリームは第二ストリームより低いＰＸ濃度を有する工程；
（ｅ）前記第四ストリームの少なくとも一部を異性化し、第四ストリームより高いＰＸ濃度を有する第五ストリームを生成する工程；及び
（ｆ）前記第三ストリームの少なくとも一部及び／又は第五ストリームの少なくとも一部を（ａ）の分離工程に供給する工程。

【００１３】
加えて、前記方法は、第五ストリームの一部及び／又は第三ストリームの一部を（ｄ）工程へ再循環することを含み得る。さらに、前記方法は、第四ストリームの一部を（ｃ）工程へ再循環することを含み得る。
【００１４】
１つの実施形態において、前記方法はさらに、前記第二ストリームを分画し、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分の生成、当該第二部分を（ａ）の分離工程に供給することを含む。
【００１５】
好ましくは、（ｂ）の分離工程は、少なくとも１の選択的吸着、選択的結晶化、選択的抽出、及び選択的膜分離を含み、（ｄ）の分離工程は、少なくとも１の選択的吸着、選択的結晶化、選択的抽出、及び選択的膜分離を含む。
【００１６】
さらに別の形態において、本願は、高濃度ＰＸストリームの生成方法について開示する。該方法は以下を含む：
（ａ）C_8炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度C_8炭化水素ストリームを生成する工程；
（ｂ）前記高濃度C_8炭化水素ストリームの少なくとも一部を分離し、第一ストリーム及び第二ストリームを生成する工程であり、前記第一ストリームは高濃度C_8炭化水素ストリームより高いＰＸ濃度を有し、前記第二ストリームは高濃度C_8炭化水素ストリームより低いＰＸ濃度を有する工程；
（ｃ）前記第二ストリームの少なくとも一部を異性化し、第二ストリームより高いＰＸ濃度を有する第三ストリームを生成する工程、
（ｄ）前記第一ストリームの少なくとも一部及び／又は前記第三ストリームの少なくとも一部を分離し、前記高濃度ＰＸストリーム及び第四ストリームを生成する工程、
（ｅ）前記第四ストリームの少なくとも一部を異性化し、前記第四ストリームより高いＰＸ濃度を有する第五ストリームを生成する工程、及び
（ｆ）前記第五ストリームの少なくとも一部を前記（ａ）の分離工程に供給する工程。
【００１７】
加えて、前記方法は、第二ストリームの少なくとも一部を（ｅ）工程へ再循環することを含み得る。さらに、前記方法は、第一ストリームの少なくとも一部及び／又は第三ストリームの少なくとも一部を（ｂ）工程へ再循環することを含み得る。
【００１８】
１つの実施形態において、前記方法はさらに、前記第五ストリームを分画し、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分の生成、前記第二部分を（ａ）の分離工程に供給することを含む。
【００１９】
別の実施形態において、前記第三ストリームの少なくとも一部は（ａ）の分離工程に供給される。
【００２０】
当該方法において、高濃度ＰＸストリームは通常、少なくとも５０重量％のＰＸ、一般的に少なくとも９０重量％のＰＸを含む。
【００２１】
別の実施形態において、本願は、高濃度ＰＸ生成物の生成方法について開示し、当該工程は以下を含む：
（ａ）C_8炭化水素を含む供給原料を分離し、高濃度C_8炭化水素ストリームを生成する工程；
（ｂ）高濃度C_8炭化水素ストリームの第一部分を分離し、第一高濃度ＰＸストリーム及び第一ストリームを生成する工程；
（ｃ）前記第一ストリームの少なくとも一部を異性化し、第一ストリームより高いＰＸ濃

度を有する第二ストリームを生成する工程；
（ｄ）高濃度Ｃ$_8$炭化水素ストリームの第二部分を分離し、第二高濃度ＰＸストリーム及び第三ストリームを生成する工程；
（ｅ）前記第三ストリームの少なくとも一部を異性化し、第三ストリームより高いＰＸ濃度を有する第四ストリームを生成する工程；
（ｆ）少なくとも１の前記第一高濃度ＰＸストリーム及び第二高濃度ＰＸストリームの少なくとも一部を高濃度ＰＸ生成物として回収する工程；及び
（ｇ）前記第二ストリームの少なくとも一部及び前記第四ストリームの少なくとも一部を（ａ）の分離工程に供給する工程。

【００２２】

好ましくは、（ｅ）の異性化工程の少なくとも一部は、液体層に影響される。

【００２３】

１つの実施形態において、（ｂ）の分離工程は、選択的吸着を含み、（ｄ）の分離工程は、分別結晶を含む。

【００２４】

発明の詳細な説明

全ての特許、特許出願、試験手順、優先権書類、論文、公知文献、マニュアル、及びその他の本明細書で引用される文献は、当該開示が本願と矛盾せず、またその矛盾が許可される全ての法制度下で参照によって完全に組み込まれる。

【００２５】

本明細書で数値下限及び数値上限が記載されている場合、任意の下限から任意の上限の組み合わせの範囲も考慮される。

【００２６】

本願発明の開示により具体化される可能な装置又は多様な工程の全てが本願に記載される実施形態により表されているわけではないことが当業者に理解される。加えて、設備及び装置の多くの部品及び所定の処理工程は、産業的、商業的又はさらに試験目的に必要とされ得る。そのような設備及び装置及び処理工程の例は、蒸留カラム、分画カラム、熱交換器、ポンプ、バルブ、圧力計、温度計、液体－気体分離器、供給体及び生成物乾燥機及び／又は処理装置、クレイ処理装置、供給体及び／又は生成物貯蔵設備、及び工程及び工程制御に用いる工程であるが、これらに限られない。本願に係る本質の理解に必要とされないそのような設備、装置及び工程は、図中に示されていない一方で、それらのいくつかは、本願開示に係る多様な側面の具体化のために度々言及される。設備のいくつかは、工程の条件に応じて当該方法中の異なる位置に置くことが出来ることも留意されたい。

【００２７】

本明細書で用いられる、「Ｃ$_8$＋炭化水素」の語は、分子につき８以上の炭素原子を有する炭化水素を意味する。Ｃ$_8$＋炭化水素の供給体及び／又は生成物は、供給体及び／又は生成物中で、１０重量％より多い、例えば２０重量％より多い、例えば４０重量％より多い、例えば５０重量％より多い、及びいくつかの場合において８０重量％より多い、Ｃ$_8$＋炭化水素を有する炭化水素供給体及び／又は生成物である。本明細書で用いられる、「Ｃ$_9$＋炭化水素」の語は、分子につき９以上の炭素原子を有する炭化水素を意味する。Ｃ$_9$＋炭化水素の供給体及び／又は生成物は、供給体及び／又は生成物中で、１０重量％より多い、例えば２０重量％より多い、例えば４０重量％より多い、例えば５０重量％より多い、及びいくつかの場合において８０重量％より多い、Ｃ$_9$＋炭化水素を有する炭化水素供給体及び／又は生成物である。本明細書で用いられる、「Ｃ$_7$－炭化水素」の語は、分子につき７以下の炭素原子を有する炭化水素を意味する。Ｃ$_7$－炭化水素の供給体及び／又は生成物は、供給体及び／又は生成物中で、１０重量％より多い、例えば２０重量％より多い、例えば４０重量％より多い、例えば５０重量％より多い、及びいくつかの場合において８０重量％より多い、Ｃ$_7$－炭化水素を有する炭化水素供給体及び／又は生成物である。本明細書で用いられる、「Ｃ$_8$炭化水素」の語は、ＰＸを含め、分子につき８の炭素原子を有する炭化水素を意味する。高濃度ＰＸ又は低濃度ＰＸストリーム及び／又

は生成物を除くＣ$_8$炭化水素の供給体及び／又は生成物は、供給体及び／又は生成物中で、１０重量％より多い、例えば２０重量％より多い、例えば４０重量％より多い、例えば５０重量％より多い、及びいくつかの場合において８０重量％より多い、Ｃ$_8$炭化水素を有する炭化水素供給体及び／又は生成物である。本明細書で用いられる「Ｃ$_8$芳香族炭化水素」の語は、分子当たり、すなわちキシレン及び／又はＥＢの分子当たり、８の炭素原子を有する芳香族炭化水素を意味する。高濃度ＰＸ又は低濃度ＰＸストリーム及び／又は生成物を除くＣ$_8$芳香族炭化水素の供給体及び／又は生成物は、供給体及び／又は生成物中で、１０重量％より多い、例えば２０重量％より多い、例えば４０重量％より多い、例えば５０重量％より多い、及びいくつかの場合において８０重量％より多い、Ｃ$_8$芳香族炭化水素を有する炭化水素供給体及び／又は生成物である。

【００２８】

「低濃度ＰＸ」の語は、所定の装置ストリームにあるＰＸ濃度が、同じ装置への供給体ストリーム中の濃度と比べて、より低下されていることを意味する。これは、ＰＸが、当該装置へのキシレン含有供給体ストリームから完全に除去又は回収されなければならないことを意味するわけではない。「高濃度ＰＸ」の語は、所定の装置ストリームにあるＰＸ濃度が、同じ装置への供給体ストリーム中の濃度と比べて増加されていることを意味する。これは、ＰＸ濃度が１００％でなければならないことを意味するわけではない。

【００２９】

供給原料

本願発明の工程に使用される供給原料は、改質物ストリーム、水素化分解法生成物ストリーム、キシレン又はＥＢ反応生成物ストリーム、芳香族アルキル化生成物ストリーム、芳香族不均化ストリーム、芳香族トランスアルキル化ストリーム、及び／又はサイクラー（Ｃｙｃｌａｒ（ＴＭ））工程ストリーム等のＣ$_8$芳香族炭化水素を含むいずれをもＣ$_8$＋炭化水素供給原料とすることが出来る。供給原料は、さらに異性化工程及び／又は多様な分離工程からの再循環ストリームを含むことが出来る。前記Ｃ$_8$＋炭化水素供給原料は、ＭＸ、ＯＸ、及び／又はＥＢと共に、ＰＸを含む。キシレン及びＥＢに加えて、当該Ｃ$_8$＋炭化水素の供給原料は、他の芳香族の所定量又はさらに非芳香族化合物の所定量も含むことが出来る。このような芳香族化合物の例は、ベンゼン、トルエン、及びメシチレン、プソイドクメン等のＣ$_9$＋芳香族である。供給体ストリームのこれらのタイプは、「石油精製方法のハンドブック（Ｈａｎｄｂｏｏｋ ｏｆ Ｐｅｔｒｏｌｅｕｍ Ｒｅｆｉｎｉｎｇ Ｐｒｏｃｅｓｓｅｓ）」、Ｒｏｂｅｒｔ Ａ．Ｍｅｙｅｒｓ編集、マクグロー・ヒル出版会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第二版で開示され、その全ての関連事項は、参照により本明細書に組み込まれる。

【００３０】

方法の記載

本願に係る方法は、Ｃ$_8$＋炭化水素の供給原料からＣ$_9$＋炭化水素を移す役割を果たす冒頭の分離工程を含む。分子量、沸点及び他の物理学的及び化学的特性の相違から、前記Ｃ$_9$＋炭化水素の化合物、芳香族又は非芳香族は、比較的容易にキシレン及びＥＢから分離されることが出来る。従って、一般的に第一分離工程は分留を含み、結晶化、吸着、反応性分離、膜分離、抽出、又はそれらのいずれかの組み合わせ等の他の分離方法も用いられることが出来る。これらの分離方法は、「ペリーの化学技術者のためのハンドブック（Ｐｅｒｒｙ’ｓ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｅｎｇｉｎｅｅｒｓ’ Ｈａｎｄｂｏｏｋ）」、Ｒ．Ｈ．Ｐｅｒｒｙ、Ｄ．Ｗ．Ｇｒｅｅｎ及びＪ．Ｏ．Ｍａｌｏｎｅｙ編集、マクグロー・ヒル出版会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第六版、１９８４年、及び「石油精製方法のハンドブック（Ｈａｎｄｂｏｏｋ ｏｆ Ｐｅｔｒｏｌｅｕｍ Ｒｅｆｉｎｉｎｇ Ｐｒｏｃｅｓｓｅｓ）」、Ｒｏｂｅｒｔ Ａ．Ｍｅｙｅｒｓ編集、マクグロー・ヒル・ブック会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第二版で開示され、その全ての関連事項は、参照により本明細書に組み込まれる。

【００３１】

Ｃ$_9$＋炭化水素の回収後、本願発明に係る方法は、結果として得られたＣ$_8$炭化水素ス

トリームから高濃度ＰＸ生成物ストリームを回収する少なくとも１の分離工程を含む。１つの実施形態において、高濃度ＰＸ生成物ストリームは、高濃度ＰＸ生成物ストリームの全量に対して、少なくとも５０重量％のＰＸ、好ましくは少なくとも６０重量％のＰＸ、より好ましくは少なくとも７０重量％のＰＸ、さらに好ましくは少なくとも８０重量％のＰＸ、さらに好ましくは少なくとも９０重量％のＰＸ、及び最も好ましくは少なくとも９５重量％のＰＸを含む。高濃度ＰＸ生成物ストリームを回収する分離工程は、少なくとも１の結晶化装置、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置又はＥＬＵＸＹＬ（ＴＭ）装置等の吸着装置、反応性分離装置、膜分離装置、抽出装置、蒸留装置、分画装置、又はそれらのいずれかの組み合わせを含むＰＸ回収装置で行われる。分離装置のこれらのタイプ及びそれらの設計は、「ペリーの化学技術者のためのハンドブック（Ｐｅｒｒｙ’ｓ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｅｎｇｉｎｅｅｒｓ’ Ｈａｎｄｂｏｏｋ）」、Ｒ．Ｈ．Ｐｅｒｒｙ、Ｄ．Ｗ．Ｇｒｅｅｎ及びＪ．Ｏ．Ｍａｌｏｎｅｙ編集、マクグロー・ヒル・ブック会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第六版、１９８４年、及び「石油精製方法のハンドブック（Ｈａｎｄｂｏｏｋ ｏｆ Ｐｅｔｒｏｌｅｕｍ Ｒｅｆｉｎｉｎｇ Ｐｒｏｃｅｓｓｅｓ）」、Ｒｏｂｅｒｔ Ａ．Ｍｅｙｅｒｓ編集、マクグロー・ヒル・ブック会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第二版で開示され、その全ての関連事項は、参照により本明細書に組み込まれる。

【００３２】

さらに本願に係る方法で使用される分離工程は、C_8炭化水素供給体ストリームを高濃度ＰＸ流出物ストリーム及び低濃度ＰＸストリームに分離する役割を果たす。これらの分離工程は、少なくとも１の結晶化装置、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置又はＥＬＵＸＹＬ（ＴＭ）装置等の吸着装置、反応性分離装置、膜分離装置、抽出装置、蒸留装置、分画装置、又はそれらのいずれかの組み合わせを含む分離装置で行われる。これらのタイプの分離装置及びそれらの設計は、「ペリーの化学技術者のためのハンドブック（Ｐｅｒｒｙ’ｓ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｅｎｇｉｎｅｅｒｓ’ Ｈａｎｄｂｏｏｋ）」、Ｒ．Ｈ．Ｐｅｒｒｙ、Ｄ．Ｗ．Ｇｒｅｅｎ及びＪ．Ｏ．Ｍａｌｏｎｅｙ編集、マクグロー・ヒル・ブック会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第六版、１９８４年、及び「石油精製方法のハンドブック（Ｈａｎｄｂｏｏｋ ｏｆ Ｐｅｔｒｏｌｅｕｍ Ｒｅｆｉｎｉｎｇ Ｐｒｏｃｅｓｓｅｓ）」、Ｒｏｂｅｒｔ Ａ．Ｍｅｙｅｒｓ編集、マクグロー・ヒル・ブック会社（ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ Ｂｏｏｋ Ｃｏｍｐａｎｙ）、第二版で開示され、その全ての関連事項は、参照により本明細書に組み込まれる。

【００３３】

本願発明に係る方法も、少なくとも２つの異性化工程を含み、それぞれの工程において、C_8芳香族化合物を含む供給体ストリームは異性化され、異性化流出物が生成される。各異性化工程への供給体ストリームは、異性化条件下で別の相互交換可能なC_8芳香族化合物に対する平衡濃度より低い濃度のＰＸを含む。各触媒異性化工程は、ＰＸ濃度をその平衡レベルの近くまで増加させる役割を果たす。当該異性化工程は、供給体ストリームにあるＥＢの一部又は全てをベンゼン及び軽量の炭化水素（すなわち、分子につき６未満の炭素を有する炭化水素）に転換する役割も果たす。或いは、当該異性化工程は、供給体ストリームにあるＥＢの一部又は全てをキシレンに転換する役割も果たす。

【００３４】

各異性化工程に用いられ、所望の反応を生じる多くの触媒又は触媒の組み合わせがある。一般的に２つのキシレン異性化触媒のタイプがある。１つの異性化触媒は、反応条件下で４個のＥＢも含めた異なるC_8芳香族化合物を、熱力学で決定される濃度にして、多かれ少なかれ平衡に保たせることが出来る。これは所定の供給体でC_8芳香族からＰＸの最大限の構成を可能にする。これらの触媒のタイプの例は、それぞれの工程で用いられるＩＦＰ／Ｅｎｇｅｌｈａｒｄ Ｏｃｔａｆｉｎｉｎｇ（ＴＭ）及びＯｃｔａｆｉｎｉｎｇＩＩ（ＴＭ）触媒を含む。キシレン異性化触媒の他のタイプは、キシレン異性化に加えて、一般的に水素存在下でＥＢ転換を生じる。上述したように、この触媒のタイプは、ＥＢを除去し、ベンゼン及びエタンを副生成物として生成する。これは、所定のプラントにある

他の設備と同様に、多様な生成物の供給と需要に依存したＥＢの所望の処理となり得る。実施例は、モービル高温異性化（Ｍｏｂｉｌ Ｈｉｇｈ Ｔｅｍｐｅｒａｔｕｒｅ Ｉｓｏｍｅｒｉｚａｔｉｏｎ、ＭＨＴＩ（ＴＭ））触媒、モービル高活性異性化触媒（Ｍｏｂｉｌ Ｈｉｇｈ Ａｃｔｉｖｉｔｙ Ｉｓｏｍｅｒｉｚａｔｉｏｎ ｃａｔａｌｙｓｔｓ、ＭＨＡＩ（ＴＭ））及びＵＯＰ ＩＳＯＭＡＲ（ＴＭ） Ｉ－１００触媒を含む。

【００３５】

多くの適した異性化反応器が本願発明の開示に用いられることが出来る。いくつかの非限定的な実施例が米国特許第４，８９９，０１１号及び第４，２３６，９９６号で開示される。

【００３６】

本願発明の開示において、キシレン異性化反応は、液体層、蒸気（気体）層、超臨界層中、又はそれらの組み合わせで行われることが出来る。異性化反応条件及び異性化される芳香族供給体ストリームの特定の組成物の選択は、キシレン異性化反応器で芳香族供給体ストリームの物理学的状態を決定する。

【００３７】

図１には、従来のパラキシレン分離及び異性化回路が示され、C_8＋芳香族炭化水素を含む供給体は、ライン１を経て、通常蒸留カラムである分離装置５に送られる。供給体でのC_8芳香族炭化水素の大部分は、装置５で分離され、ライン１０を経て回収される。一方で、供給体中のC_9＋炭化水素の大部分は、ライン４０を経て塔底ストリームとして回収され、後の工程で用いられる。ライン１０を経て回収されるC_8芳香族炭化水素ストリームは、ＰＸ回収装置１５に供給され、当該装置でストリーム中のＰＸの一部が、ライン２０を経て回収される。ＰＸ回収装置１５からの低濃度ＰＸ流出物は、ライン２５を経て回収され、異性化装置３０に供給される。異性化装置３０は通常、異性化触媒（例えば、酸性ゼオライト）が取り込まれた反応器又は容器である。また当該装置は、低濃度ＰＸストリームから、低濃度ＰＸストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する異性化ストリームへの十分な転換に適した異性化条件で行われる。前記異性化ストリームは、異性化装置３０から回収され、ライン３５を経て分離装置５へ再循環される。

【００３８】

本願発明に係る方法の１つの実施形態について開示する図２において、C_8＋芳香族炭化水素を含む供給原料は、ライン１０１を経て第一分離装置１０５に送られる。第一分離装置１０５は、C_8＋芳香族炭化水素を含む供給原料からC_8芳香族炭化水素を分離可能な任意の装置とすることができ、当該装置は通常、蒸留カラムである。供給原料でのC_8芳香族炭化水素の大部分は、装置１０５を用いて分離され、ライン１１０を経て回収される。一方、供給体でのC_9＋炭化水素の大部分は、ライン１４０を経て塔底ストリームとして回収され、後の工程で用いられる。ライン１１０を経て回収されるC_8芳香族炭化水素ストリームの少なくとも一部は、ＰＸ回収装置１１５に供給され、当該装置で、供給体のＰＸの一部は、ライン１２０を経て高濃度ＰＸストリームとして回収され、第一ストリーム（低濃度ＰＸストリーム）は、ライン１２５を経て回収される。

【００３９】

ＰＸ回収装置１１５からライン１２５を経て回収される第一ストリームの少なくとも一部は、第一異性化装置１３０に供給される。当該第一異性化装置１３０は通常、異性化触媒（例えば、酸性ゼオライト）が取り込まれた反応器である。また当該装置は、第一ストリームから、第一ストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する第二ストリームへの十分な転換に適した異性化条件下で行われる。第二ストリームは、第一異性化装置１３０から回収され、それらの少なくとも一部は、ライン１３６を経て第二分離装置１３７へ供給される。当該第二分離装置１３７で供給された第二ストリームは、第二ストリームより高いＰＸ濃度を有する第三ストリーム、及び第二ストリームより低いＰＸ濃度を有する第四ストリームへ分離される。

【００４０】

第四ストリームは、第二分離装置１３７からライン１３８を経て回収され、それらの少

なくとも一部は、第二異性化装置１３９に供給される。第二異性化装置１３９は通常、異性化触媒（例えば、酸性ゼオライト）が取り込まれた反応器又は容器である。また当該装置は、第四ストリームから、第四ストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する第五ストリームへの十分な転換に適した異性化条件下で行われる。第五ストリームは、第二異性化装置１３９からライン１４２を経て回収され、第二分離装置１３７からライン１４１を経て回収される第三ストリームと、結合される。第五ストリームの少なくとも一部及び／又は第三ストリームの少なくとも一部は、ライン１３５を経て第一分離装置１０５へ同時に供給される。

【００４１】

図２の工程の変形（表示なし）において、ライン１４２における第五ストリームの一部及び／又はライン１４１における第三ストリームの一部は、第二分離装置１３７へ再循環されることが出来る。さらに、当該工程は、ライン１３８における第四ストリームの少なくとも一部を第一異性化装置１３０へ再循環する工程を含むことが出来る。

【００４２】

図２の工程の変形（表示なし）において、第一異性化装置１３０からライン１３６を経て回収される第二ストリームは、第二分離装置１３７へ供給される前に分留装置に供給される。当該分留装置は第二ストリームを、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分に分離する。前記高濃度C_7－炭化水素の第一部分は、後の工程のために回収され、前記高濃度C_8＋炭化水素の第二部分は、第二分離装置１３７に供給される。

【００４３】

本願発明に係る方法の別の実施形態について開示する図３において、C_8＋芳香族炭化水素を含む供給原料は、ライン２０１を経て第一分離装置２０５へ送られる。第一分離装置２０５は、C_8芳香族炭化水素及びC_9＋芳香族炭化水素を含む供給原料からC_8芳香族炭化水素を分離可能な任意の装置とすることができ、また通常は蒸留カラムである。供給原料でのC_8芳香族炭化水素の大部分は、装置２０５を用いて分離され、ライン２０６を経て回収される。一方、供給体のC_9＋炭化水素の大部分は、ライン２４０を経て塔底ストリームとして回収され、後の工程で用いられる。ライン２０６を経て回収されるC_8芳香族炭化水素ストリームの少なくとも一部は、第二分離装置２０７に供給される。当該装置は、C_8芳香族炭化水素を含む供給原料からＰＸを分離し又は高濃度にすることが可能な任意の装置とすることが出来る。

【００４４】

第二分離装置２０７は、ライン２０６で回収されたC_8芳香族炭化水素ストリームの一部をC_8芳香族炭化水素ストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する第一ストリーム、C_8芳香族炭化水素ストリームのＰＸ濃度より低いＰＸ濃度を有する第二ストリームに分離する。第二ストリームは、第一分離装置２０７から、ライン２０８を経て回収され、それらの少なくとも一部は、第一異性化装置２０９に供給される。第一異性化装置２０９は通常、異性化触媒（例えば、酸性ゼオライト）が取り込まれた反応器である。また当該装置は、第二ストリームから、第二ストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する第三ストリームへの十分な転換に適した異性化条件で行われる。第三ストリームは、第一異性化装置２０９から、ライン２１２を経て回収され、第二分離装置２０７からライン２１１を経て回収される第一ストリームと結合される。

【００４５】

第三ストリームの少なくとも一部及び／又は第一ストリームの少なくとも一部は、ライン２１０を経てＰＸ回収装置２１５へ同時に供給される。結合ストリームでＰＸの一部は、ライン２２０を経て、高濃度ＰＸストリームとして回収され、第四ストリーム（低濃度ＰＸストリーム）は、ライン２２５を経て回収される。第四ストリームの少なくとも一部は、ライン２２５を経て第二異性化装置２３０に供給される。第二異性化装置２３０は通常、異性化触媒（例えば、酸性ゼオライト）が取り込まれた反応器である。また当該装置は、第四ストリームから、第四ストリームのＰＸ濃度より高いＰＸ濃度を有する第五スト

リームへの十分な転換に適した異性化条件下で行われる。第五ストリームは、第二異性化装置２３０から回収され、それらの少なくとも一部は、ライン２３５を経て第一分離装置２０５に供給される。

【００４６】

図３の工程の変形（表示なし）において、ライン２０８における第二ストリームの一部は、第二分離装置２３０に供給されることが出来る。加えて、ライン２１１における第一ストリームの一部及び／又はライン２１２における第三ストリームの一部は、第二分離装置２０７へ再循環されることが出来る。

【００４７】

さらに図３の工程の変形（表示なし）において、ライン２１２における第三ストリームの一部は、第一分離装置２０５に供給されることが出来る。

【００４８】

またさらに図３の工程の変形（表示なし）において、第二異性化装置２３０からライン２３５を経て回収される第五ストリームは、第一分離装置２０７へ供給される前に分留装置に供給される。当該分留装置は、第五ストリームを、高濃度C_7－炭化水素の第一部分及び高濃度C_8＋炭化水素の第二部分に分離する。前記高濃度C_7－炭化水素の第一部分は、後の工程で回収され、前記高濃度C_8＋炭化水素の第二部分は、第二分離装置２０７に供給される。

【００４９】

図４において、単一パラキシレン分離及び異性化回路で選択的吸着及び分別結晶装置が一体にされたキシレンの周知生成工程がさらに示される。特に当該工程は、第一分離装置３０１を含む。当該第一分離装置３０１は、１以上の蒸留カラムとすることができ、また、ライン３０２からC_8＋芳香族炭化水素の供給体ストリームを受け、供給体を塔頂気体ストリーム及び塔底液体ストリームに分離する。当該塔底液体ストリームは、主にC_9＋芳香族炭化水素といくつかのオルトキシレン（ＯＸ）で構成され、さらに第一分離装置３０１からライン３０３を通り回収され、後の工程に用いられる。塔頂ストリームは、主にC_8芳香族炭化水素（通常約５０％のメタキシレン（ＭＸ）、約２０％のＰＸ、約１５％のＯＸ、及び約１５％のＥＢ）で構成され、第一分離装置３０１からライン３０４を通り除去されＰＸの回収装置に送られる。

【００５０】

図４で示された工程におけるＰＸの回収は、分別結晶装置３０８及び選択的吸着装置３０９の両方により影響される。従って、第一分離装置３０１からライン３０４を通って回収されるC_8芳香族炭化水素の一部は、ライン３０６を用いて分別結晶装置３０８へ供給される。当該分別結晶装置３０８で、第一高濃度ＰＸ生成物ストリームは、ライン３１０を通り回収され、低濃度ＰＸラフィネートストリームは、ライン３１１を経て回収される。第一分離装置３０１からライン３０４を通り回収されたC_8芳香族炭化水素の残余は、分別結晶装置３０８からの低濃度ＰＸラフィネートストリームと結合され、ライン３１２を用いて選択的吸着装置３０９に供給される。当該選択的吸着装置３０９で、第二高濃度ＰＸ生成物ストリームは、ライン３１３を通り回収され、さらに低濃度ＰＸストリームは、ライン３１４を経て回収される。さらに低濃度ＰＸストリームは、ライン３１４を用いてキシレン異性化装置３１５へ供給され、当該低濃度ＰＸストリームは、当該低濃度ＰＸストリームより高いＰＸ濃度を有する異性化ストリームに転換される。前記異性化ストリームは、キシレン異性化装置３１５からライン３１６を用いて回収され、スプリッター（ｓｐｌｉｔｔｅｒ）３０１に再循環されるためライン３０２に供給される。

【００５１】

図５において、図４の周知技術の変形が示される。そこでは本願発明に係る方法が、パラキシレン分離及び異性化回路のＰＸ生産性の増加に用いられている。図４及び５において類似の参照数値等が、類似の成分等を図解するために用いられる。特に実施例５の工程は、分別結晶装置３０８からライン３１１を経て回収される低濃度ＰＸラフィネートストリームの処理に用いられる第二キシレン異性化装置３１７を使用する。従って、図４で示

される周知工程の問題は、結晶器ラフィネートストリームでＰＸ濃度が低いことである。これにより、各経路で選択的吸着装置３０９は、ライン３１２を通して供給されるＰＸのみを回収出来るため、当該装置３０９の生産性を減少させる。第二キシレン異性化装置３１６における処理の目的は、低濃度ＰＸラフィネートストリームのＰＸ濃度を１０－１２％から２０－２４％の平衡レベルへ持って行くことである。

【００５２】

図５で示される工程において、低濃度ＰＸラフィネートストリームより高いＰＸ濃度を有する第二キシレン異性化装置３１７からの流出物ストリームは、ライン３１８を通して回収され、第一分離装置３０１に供給される。この方法において、選択的吸着装置３０９への供給体の全体的なＰＸ含有量は増加されることが出来る。また、第二キシレン異性化装置３１７からの一部又は全ての流出物ストリームは、選択的吸着装置３０９に直接供給され得ることが理解される。当該供給は、必要に応じて、第二キシレン異性化装置３１７で生成されたC_9＋炭化水素の不純物及び／又はC_7－炭化水素の不純物を除去する分画後に行われる。

【００５３】

図５に示された工程の１つの実際的な実施形態において、第二キシレン異性化装置３１６は、以下の利点を有することから、液体層異性化技術を使用する。（１）より一般的な気体層、高温異性化技術と異なり、液体層異性化は水素再循環を必要とせず、簡素化及び費用の面で利点がある。（２）より適切な反応条件下で好ましくない副作用の程度が低いことから、キシレン損失が低い（＜１．０％）利点がある。

【００５４】

液体異性化生成物が、主に平衡状態のキシレンを含み、C_9＋化合物を含む程度が低いことから、適切なトレイポジションで第二キシレン異性化装置３１７から第一分離装置３０１に直接流出物ストリームを送り、C_8化合物及びC_9＋化合物の分離に影響を与えることが可能である。

【００５５】

実施例

以下のシミュレーション実施例は、次の条件に基づき行われた：

（ａ）異性化装置により、ＰＸ、ＭＸ、及びＯＸはそれらの熱力学的平衡状態に異性化される；

（ｂ）キシレン（ＥＢを除外する）の平衡ＰＸ濃度は、２５％である；

（ｃ）異性化装置により、全てのＥＢは、ベンゼン、トルエン、キシレン、又は他の炭化水素に転換される；

（ｄ）ＰＸ回収装置により、供給体中のＰＸの１００％が回収される；及び

（ｅ）第一分離装置は蒸留カラムであり、結合供給体中の全てのキシレンが回収される。

【００５６】

実際の製造プラントで、異性化装置によりＰＸ、ＭＸ、及びＯＸは１００％未満の熱力学平衡状態の濃度に異性化され得ることが当業者に理解される。キシレン（ＥＢを除外する）の平衡ＰＸ濃度は通常、２５％未満であることも当業者に理解される。異性化装置により、１００％未満のＥＢが、他の炭化水素に転換され得ることも当業者に理解される。実際の製造プラントで、ＰＸ回収装置により、供給体中のＰＸの１００％未満が回収され得ることも当業者に理解される。しかしながら簡素化を考慮して、１００％のキシレン平衡、１００％のＥＢ転換、１００％のＰＸ回収、及び２５％のＰＸ平衡濃度が以下の実施例で前提とされる。

【００５７】

比較例１

図１で従来のＰＸの生成方法の簡略化された概略図が示される。（ライン１を経た）C_8＋芳香族供給原料中のキシレン１ユニットを、キシレン３ユニットを有する（ライン３５を経た）再循環ストリームと結合させ、分離装置５（蒸留カラム）へ送る。C_9＋炭化水素の大部分を、結合供給体から蒸留カラム５を用いて分離した後、塔底ストリームとし

てライン４０を経て回収し、後の工程で用いる。蒸留カラム５からの塔頂ストリームは、供給体中でＣ$_8$芳香族炭化水素（キシレン及びＥＢ）の大部分を含み、４ユニットの全キシレンを有する。当該全キシレンの２５％（１ユニット）は、ＰＸである。塔頂ストリームを、ライン１０を経て回収し、ライン１０を経てＰＸ回収装置１５に供給する。この実施例で用いられるＰＸ回収装置は、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置である。塔頂ストリームのＰＸ１ユニットを、ライン２０を経て、高濃度ＰＸストリームの全量に対し、約９９．６から９９．９重量％のＰＸ濃度を有する高濃度ＰＸストリームとして回収する。低濃度ＰＸストリームを、回収装置１５からライン２５を経て回収し、異性化装置３０に供給する。この実施例において、異性化装置を用いてＭＸ及びＯＸを、ＰＸに異性化し、ＥＢを、主にベンゼン及び他の炭化水素に転換する。キシレン約３ユニット及び（全キシレンに対して）約２５重量％のＰＸ濃度を有する異性化ストリームを、異性化装置３０から回収し、ライン３５を経て分離装置５に再循環する。

【００５８】

実施例１

本願開示に係る１つの実施形態の簡略化された概略図（図２）が示される。Ｃ$_8$＋芳香族供給原料でキシレン１ユニットを、キシレン２ユニットを有する再循環ストリームと結合させ、ライン１を経て第一分離装置１０５（蒸留カラム）に送る。Ｃ$_9$＋炭化水素の大部分を、結合供給体から蒸留カラム１０５を用いて分離した後、ライン１４０を経て塔底ストリームとして回収し、後の工程で用いる。蒸留カラム１０５の塔頂ストリームは、供給体中のＣ$_8$芳香族炭化水素（キシレン及びＥＢ）の大部分を含み、全キシレン３ユニットを有する。当該全キシレンの約３３．３％は、ＰＸである。塔頂ストリームを、ライン１１０を経て回収し、ＰＸ回収装置１１５に供給する。この実施例において前記ＰＸ回収装置１１５は、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置である。塔頂ストリームのＰＸ１ユニットを、ライン１２０を経て、高濃度ＰＸストリームの全量に対し約９９．６から９９．９重量％のＰＸ濃度を有する高濃度ＰＸストリームとして回収する。低濃度ＰＸストリームを、装置１１５からライン１２５を経て回収し、第一異性化装置１３０に供給する。この実施例でＭＸ及びＯＸを、第一異性化装置を用いてＰＸに異性化し；ＥＢから主にベンゼン及び他の炭化水素に転換する。キシレン約２ユニット及び（全キシレンに対して）約２５重量％のＰＸ濃度を有する第一異性化装置１３０からの異性化ストリームを、異性化装置１３０から回収する。

【００５９】

第一異性化装置１３０からの異性化ストリームを、ライン１３６を経て第二分離装置１３７に供給し、第一異性化装置１３０からの異性化ストリームより高いＰＸ濃度を有するストリーム及び第一異性化装置１３０からの異性化ストリームより低いＰＸ濃度を有するストリームに分離する。第一異性化装置１３０からの異性化ストリームより低いＰＸ濃度を有するストリームを、第二分離装置１３７からライン１３８を経て回収し、第二異性化装置１３９に供給する。第二異性化装置１３９からの生成物ストリームを、ライン１４２を経て回収し、第一異性化装置１３０からの異性化ストリームより高いＰＸ濃度を有するストリームと結合させ、ライン１３５を経て回収される結合生成物を形成する。第二異性化装置１３９及び第二分離装置１３７を操作し、（ライン１３５の）結合生成物が全キシレンに対して約３７％のＰＸ濃度を有するようにする。当該結合生成物を、ライン１３５を経て再び分離装置１０５に再循環する。

【００６０】

実施例１の再循環ストリーム（ライン１３５を経て結合生成物）対（ライン１０１を経た）供給体ストリームの割合は、２：１であり、比較例１の再循環割合である３：１に比較して低下しており、キシレン回路の障害を解消することが見られる。

【００６１】

実施例２

本願開示に係る１つの実施形態の簡略化された概略図（図３）に示されるように、ライン２０１を経て供給されるＣ$_8$＋芳香族供給原料中のキシレン１ユニットを、ライン２３

５を経て供給されるキシレン２ユニットを有する再循環ストリームと結合させ、第一分離装置２０５（蒸留カラム）に送る。供給体中のＣ$_9$＋炭化水素の大部分を、蒸留カラム２０５で分離した後、ライン２４０を経て塔底ストリームとして回収し、後の工程で用いる。蒸留カラムからの塔頂ストリームは、供給体中のＣ$_8$芳香族炭化水素（キシレン及びＥＢ）の大部分を含み、全キシレン３ユニットを有する。塔頂ストリームを、蒸留カラムからライン２０６を経て回収し、第二分離装置２０７に供給する。当該第二分離装置２０７では、塔頂ストリームを、ライン２１１を流れる塔頂ストリームより高いＰＸ濃度を有するストリーム及びライン２０８を流れる塔頂ストリームより低いＰＸ濃度を有するストリームに分離する。ライン２０８におけるより低いＰＸ濃度ストリームを、第一異性化装置２０９に供給し、異性化させ、ライン２１１からのより高いＰＸ濃度ストリームと結合された流出物ストリームを生成する。第一異性化装置２０９及び第二分離装置２０７を操作し、結合生成物が全キシレンに対して約３３．３％のＰＸ濃度を有する（ライン２１０の）ようにする。

【００６２】

ライン２１０における結合生成物を、ＰＸ回収装置２１５に供給する。この実施例で前記ＰＸ回収装置２１５は、ＰＡＲＥＸ（ＴＭ）装置である。塔頂ストリームのＰＸ１ユニットを、ライン２２０を経て、高濃度ＰＸストリームの全量に対し、約９９．６から９９．９重量％のＰＸ濃度を有する高濃度ＰＸストリームとして回収する。低濃度ＰＸストリームは、ＰＸ回収装置２１５からライン２２５を経て、第二異性化装置２３０に入る。この実施例において、第二異性化装置を用いてＭＸ及びＯＸを、ＰＸに異性化し、ＥＢを、主にベンゼン及び他の炭化水素に転換する。第二異性化装置２３０からの異性化ストリームは、キシレン約２ユニット及び（全キシレンに対して）約２５重量％のＰＸ濃度を有し、ライン２３５を経て再び分離装置２０５に再循環する。

【００６３】

実施例１の（ライン２３５を経た）再循環ストリーム対（ライン２０１を経た）供給体ストリームの割合は、２：１であり、比較例１の再循環割合である３：１から低下し、キシレン回路の障害を解消することが見られる。

【００６４】

実施例１及び２の構成により、再循環／供給体の割合を２に減らすことが出来る。キシレン回路において当初の許容量をキシレン４ユニットとし、またその許容量が完全に使用されるとすると、供給体の１．３３ユニット及び再循環の２．６６ユニットは、再循環対供給体の割合が２であることになり、また当初の許容量であるＰＸ回収装置への供給体４ユニットが完全にＰＸ回収装置に到達することになる。比較例で示されるような従来のＰＸプラントにおける供給体の１ユニットと比べ、全部でＰＸの１．３３ユニットがＰＸ回収装置から回収され、ＰＸ生産能力において３３％の増加（１．０から１．３３）を得られることが実証される。

【００６５】

比較例２

図４で示される周知工程のシミュレーションにおいて、ライン３０２を経て供給されるＣ$_8$＋芳香族供給原料におけるキシレン１．２ユニットを、ライン３１６を経て来るキシレン供給体４．３ユニットを有する再循環ストリーム供給体と結合させ、また全キシレン供給体を５．５ユニットの第一分離装置３０１へ送る。当該第一分離装置３０１の塔頂ストリーム２．４ユニットを、選択的吸着装置３０９へ送り、３．１ユニットを、ライン３０６を経て分別結晶装置３０８へ送る。分別結晶装置３０８は、１０－１２％のＰＸ及び大部分の他のキシレン異性体を含む低濃度ＰＸラフィネート２．７ユニットを残し、ライン３０６において凝縮された液体から高純度ＰＸ（＞９９．５％）０．４ユニットを分離する。

【００６６】

分別結晶装置３０８からの低濃度ＰＸラフィネート２．７ユニットを、濃縮器３０５からの濃縮された液体の残りの２．４ユニットと結合させ、選択的吸着装置３０９へ５．１

ユニットの全供給体を送る。低濃度ＰＸラフィネートはたったの１０－１２％のＰＸを有することから、通常約１５－１８％のＰＸ濃度を有する混合物が選択的吸着装置３０９へ送られる混合物となる。この実施例における選択的吸着装置３０９はＰＡＲＥＸ装置であり、高純度ＰＸ（＞９９．５％）０．８ユニット及び後に用いられる低濃度ＰＸラフィネートストリーム４．３ユニットを生成する。当該後の低濃度ＰＸラフィネートストリームを、キシレン異性化装置３１５に供給し、スプリッター３０１に再循環される２４－２５％のＰＸ濃度を含むキシレン４．３ユニットを生産する。

【００６７】

実施例３

図５で示される工程のシミュレーションにおいて、第一分離装置３０１へ供給される全キシレン供給体は、ライン３０２を経たＣ$_8$＋芳香族供給原料のキシレン１．４ユニット、及びライン３１６を経た再循環ストリーム供給体のキシレン４．１ユニットから成る５．５ユニットが残される。第一分離装置３０１からの塔頂ストリームは、キシレン５．５ユニットから成る。比較例２の場合において、塔頂ストリーム３．１ユニットを、分別結晶装置３０８へ送り、そこで低濃度ＰＸラフィネート２．７ユニットを残し、高純度ＰＸ（＞９９．５％）０．４ユニットを回収する。一方で、実施例３において、低濃度ＰＸラフィネートを、液体層異性化反応器３１７へ供給し、ラフィネートのＰＸ濃度を約２３重量％に増加する。結果として得られる異性化ラフィネート２．７ユニットを、第一分離装置３０１に再循環する。従って、ライン３０４における塔頂ストリームは、全８．２ユニット（５．５ユニット＋２．７ユニット）を有し、そのうちの５．１ユニットはライン３１２を経てＰＡＲＥＸ装置３０９に供給される。この場合においてＰＡＲＥＸ装置への供給体のＰＸ濃度は、（比較例２の１５－１８重量％と比較して）２０－２４重量％であり、２５％のＰＡＲＥＸ生産性が効果的にＰＸを０．８ユニットから１．０ユニットに増加させる。結果として、ライン３１４におけるＰＡＲＥＸラフィネートストリームは、４．３ユニットから４．１ユニットに減少され、再循環量が減ることでエネルギーが節約される。未使用の供給体は、１．２ユニットから１．４ユニットに増加され、新たな許容量に合致する。一方で、第一分離装置３０１（５．５ユニット）、結晶器（３．１ユニット）、及びＰＡＲＥＸ装置（５．１ユニット）に送られる分子の全量は、全て変化しない。従って、本提案の技術により、新しい設備の最小量で全回路の障害が解消される。

【００６８】

本願発明が開示され、所定の実施形態の参照により具体化される一方で、必ずしも本明細書で具体化されていない当該発明の多様化が存在することを当業者は理解するだろう。そしてこの理由から、本願発明に係る真の範囲は、添付される請求項の参照のみをもって決定されるべきである。

【図面の簡単な説明】

【００６９】

【図１】図１は、従来のキシレン分離及び異性化回路の概略図である。

【図２】図２は、本願開示に係る第一の実施形態に従ったパラキシレンの生成方法の概略図である。

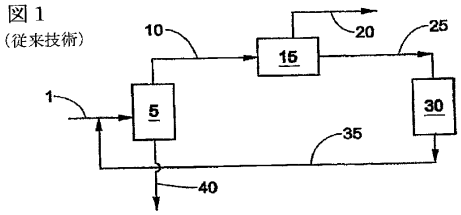
【図３】図３は、本願開示に係る第二の実施形態に従ったパラキシレンの生成方法の概略図である。

【図４】図４は、別個の従来のキシレン分離及び異性化回路の概略図である。

【図５】図５は、本願開示に係る第三の実施形態に従ったパラキシレンの生成方法の概略図である。

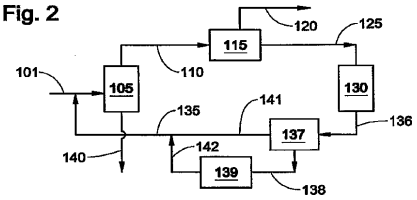
【図１】

図１
（従来技術）



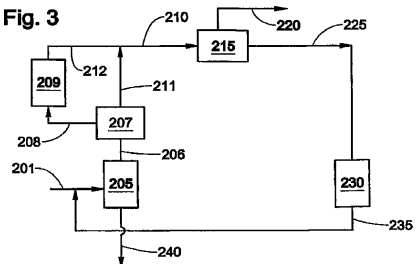
【図２】

Fig. 2



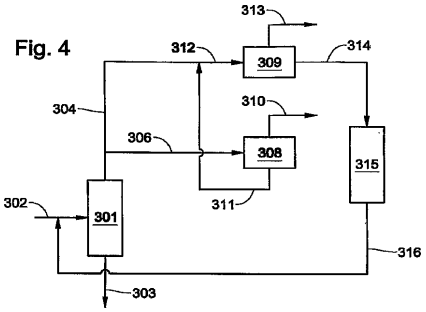
【図３】

Fig. 3



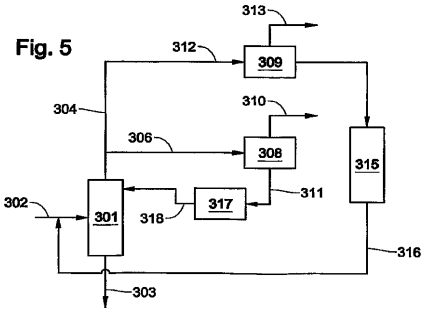
【図４】

Fig. 4



【図５】

Fig. 5



フロントページの続き

(72)発明者　ヘルムク、ハロルド・ダブリュ・ジュニア
アメリカ合衆国、テキサス州　７７３３９、キングウッド、フォーン・クリーク　３８０７
(72)発明者　ポーター、ジョン・アール
アメリカ合衆国、テキサス州　７７０６２、ヒューストン、ポプラー・スプリングス・レイン　１５５１５

審査官　安田　周史

(56)参考文献　特開平０８－１４３４８４（ＪＰ，Ａ）
特開２００２－３０２４６１（ＪＰ，Ａ）
特表２００２－５２３３８５（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
C07C　5/27
C07C　7/00
C07C　15/08