

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5571573号  
(P5571573)

(45) 発行日 平成26年8月13日(2014.8.13)

(24) 登録日 平成26年7月4日(2014.7.4)

(51) Int.Cl.		F I	
<b>C 1 O G 2/00</b>	<b>(2006.01)</b>	C 1 O G 2/00	
<b>B O 1 J 8/02</b>	<b>(2006.01)</b>	B O 1 J 8/02	C
<b>B O 1 J 19/24</b>	<b>(2006.01)</b>	B O 1 J 8/02	E
		B O 1 J 19/24	A

請求項の数 12 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2010-540174 (P2010-540174)	(73) 特許権者	506313567
(86) (22) 出願日	平成20年9月24日(2008.9.24)		コンパクトジーティーエル リミテッド
(65) 公表番号	特表2011-508043 (P2011-508043A)		イギリス ティーエス10 4アールエフ
(43) 公表日	平成23年3月10日(2011.3.10)		レッドカー クリーブランド ウィルトン
(86) 国際出願番号	PCT/GB2008/050855		ン センター ウィルトン センター ア
(87) 国際公開番号	W02009/081175		ネックス
(87) 国際公開日	平成21年7月2日(2009.7.2)	(74) 代理人	100092093
審査請求日	平成23年9月15日(2011.9.15)		弁理士 辻居 幸一
(31) 優先権主張番号	0725140.8	(74) 代理人	100082005
(32) 優先日	平成19年12月24日(2007.12.24)		弁理士 熊倉 禎男
(33) 優先権主張国	英国 (GB)	(74) 代理人	100088694
			弁理士 弟子丸 健
		(74) 代理人	100103609
			弁理士 井野 砂里

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 触媒反応器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

フィッシャー・トロプシュ合成のための反応器モジュール(50)であって、全体として長方形の反応器ブロック(10, 110)を有し、前記反応器ブロックは、前記ブロック(10, 110)内に交互に配置されていて、それぞれ第1及び第2の流体を運搬する多数本の第1及び第2の流れチャンネル(15; 17, 117)を画定するプレート(12)の積み重ね体を有し、前記第1の流体は、フィッシャー・トロプシュ合成を受けるガス混合物であり、前記第2の流体は、冷却用流体であり、前記第1の流れチャンネル(17, 117)は、前記反応器ブロック(10, 110)の上面と下面との間で全体として鉛直方向に延び、前記第2の流れチャンネル(15)は、前記第1の流れチャンネル(17, 117)の方向に全体として平行な方向に延び、したがって、全体として鉛直方向に延びると共に、水平に延びるディストリビューターチャンバ(26)を介して前記反応器ブロック(10, 110)の1つ又は2つ以上の側面のところに設けられた入口及び出口ポート(28, 30)と連通し、前記第2の流れチャンネル(15)は、波形シート(14)によって互いに間隔を置いて設けられた平べったいプレート(12)の間に構成され、各第1の流れチャンネル(17, 117)は、金属基体を有する取り外し可能な気体透過性触媒構造体(20, 120)を収容している、反応器モジュール。

【請求項2】

前記ガス混合物は、前記第1の流れチャンネル(17, 117)を通過して下向きの方に流れるよう供給される、請求項1記載の反応器モジュール。

## 【請求項 3】

前記第 1 の流れチャンネル ( 1 7 , 1 1 7 ) の各々は、前記プレート ( 1 2 ) に平行な平面で測定して 2 0 0 mm 以下の幅を有する、請求項 1 又は 2 記載の反応器モジュール。

## 【請求項 4】

前記第 1 の流れチャンネル ( 1 7 ) は、プレート ( 1 2 ) 及び互いに間隔を置いた支持体 ( 1 8 ) により画定されている、請求項 1 ~ 3 のうちいずれか一に記載の反応器モジュール。

## 【請求項 5】

前記第 1 の流れチャンネル ( 1 1 7 ) は、平べったいプレート ( 1 2 ) 及び隆起付きプレート ( 1 1 9 ) により画定されている、請求項 1 ~ 3 のうちいずれか一に記載の反応器モジュール。

10

## 【請求項 6】

前記隆起付きプレート ( 1 1 9 ) は、スプライン加工部を備えている、請求項 5 記載の反応器モジュール。

## 【請求項 7】

長鎖炭化水素を得るよう天然ガスを処理するプラントであって、請求項 1 ~ 6 のうちいずれか一に記載のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュール ( 5 0 ) を多数備え、前記反応器モジュールを通る合成ガスの流れは、互いに平行であり、したがって、使用中の前記反応器モジュール ( 5 0 ) の個数を変化させることにより天然ガス流量の変化に対応することができるようになっている、プラント。

20

## 【請求項 8】

各反応器モジュール ( 5 0 ) は、遮断弁 ( 5 9 ) を経てシャットダウンガスの供給源 ( 5 8 ) に連結されている、請求項 7 記載のプラント。

## 【請求項 9】

多数のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュール ( 5 0 ) は、交換可能であり且つ容易に置換可能であるように処理量及び外部連結方式が互いに実質的に同等である、請求項 7 又は 8 記載のプラント。

## 【請求項 10】

前記プラントは、前記反応器モジュール ( 5 0 ) に供給される冷却剤の温度及び前記反応器モジュール ( 5 0 ) に供給される冷却剤の流量のうちの少なくとも一方を制御する手段を含む冷却剤温度制御手段 ( 4 4 ) を更に有する、請求項 7 ~ 9 のうちいずれか一に記載のプラント。

30

## 【請求項 11】

請求項 10 記載のプラントを用いてフィッシャー・トロプシュ合成を実施するプロセスであって、冷却剤の流量を前記反応器モジュールの通過時における前記冷却剤の温度の上昇が 1 0 K 以下であるように制御する、方法。

## 【請求項 12】

前記フィッシャー・トロプシュ反応器モジュール ( 5 0 ) から出た反応生成物を熱交換器 ( 4 6 ) に通して前記反応生成物が 2 0 ~ 9 0 の初期温度状態にある冷却剤と熱を交換するようにする、請求項 11 記載の方法。

40

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、天然ガスを長鎖炭化水素に変換する化学プロセスに用いるのに適した、特にフィッシャー・トロプシュ合成を実施するための触媒反応器及びこの化学プロセスを実施するためにかかる触媒反応器を有するプラントに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

国際公開第 0 1 / 5 1 1 9 4 号パンフレット及び国際公開第 0 3 / 0 4 8 0 3 4 号パンフレット ( 出願人 : Accentus plc ) に記載された方法では、メタンを蒸気と反応させて第

50

1の触媒反応器内で一酸化炭素及び水素を生じさせ、次に、結果的に得られたガス又は気体混合物を用いて第2の触媒反応器内でフィッシャー・トロプシュ合成を実施する。全体的な結果として、メタンを通常は周囲条件下においては液体である高い分子量の炭化水素に変換する。化学プロセスの2つの段階、蒸気/メタン改質とフィッシャー・トロプシュ合成では、互いに異なる触媒が必要であり、それぞれ、熱を反応ガスに送り又は熱を反応ガスから運ぶことが必要である。というのは、それぞれの反応は、吸熱反応及び発熱反応だからである。2つの互いに異なる段階のための反応器は、幾分異なる要件に適合しなければならず、即ち、フィッシャー・トロプシュ合成は、蒸気/メタン改質よりも圧力は高いが温度は低い状態で実施され、フィッシャー・トロプシュ反応器の伝熱チャンネル内では必要な冷却剤流体のみであり、これに対し、蒸気/メタン改質に必要な熱は、典型的には、触媒燃焼によって提供され、したがって、適当な触媒が必要である。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】国際公開第01/51194号パンフレット

【特許文献2】国際公開第03/048034号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

いずれの場合においても、反応器は、好ましくは、プレートのスタック（積み重ね体）として形成され、流れチャンネルがプレート相互間に構成され、互いに異なる流体の流れチャンネルがスタック内で交互に位置している。触媒が必要なチャンネル内においては、これは、好ましくは、触媒をセラミック被膜中に担持した波形金属担体又は基体の形態をしており、かかる波形構造体は、触媒が使用済みになると、チャンネルから取り外し可能である。しかしながら、2種類の流体相互間に大きな圧力差があると、これは、プレートを曲げる傾向があり、したがって、合成ガスが触媒構造体をバイパスする場合があると共に触媒構造体とプレートとの間の伝熱が妨げられ、触媒構造体を取り外し又は交換するのが困難な場合があり、さらに、プレートが圧力差に耐えるほど強固であるべき場合、プレートは厚くなくならず且つ（或いは）チャンネルは幅が狭くなり、又、反応器の全容積の一部としての流れ容積は、小さくなる傾向がある。

20

30

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明によれば、フィッシャー・トロプシュ合成のための反応器モジュールであって、全体として長方形の反応器ブロックを有し、反応器ブロックは、ブロック内に交互に配置されていて、それぞれ第1及び第2の流体を運搬する多数本の第1及び第2の流れチャンネルを画定するプレートのスタックを有し、第1の流体は、フィッシャー・トロプシュ合成を受けるガス混合物であり、第2の流体は、冷却用流体であり、第1の流れチャンネルは、反応器ブロックの上面と下面との間で全体として鉛直又は垂直方向に延び、第2の流れチャンネルは、第1の流れチャンネルの方向に全体として平行な方向に延びると共にディストリビューターチャンバを介して反応器ブロックの1つ又は2つ以上の側面のところに設けられた入口及び出口ポートと連通し、各第1の流れチャンネルは、金属基体を有する取り外し可能な気体透過性触媒構造体を収容していることを特徴とする反応器モジュールが提供される。

40

【0006】

好ましくは、各第1流れチャンネルは、プレートに平行な平面で測定して約200mm以下の幅を有し、好ましくは、幅は、100mm以下である。好ましくは、第1の流れチャンネルは、プレート及び互いに間隔を置いた支持体により画定される。間隔を置いた支持体は、例えばバー、プレートに切断形成された溝相互間のフィン若しくはランド又は隆起付き又はスプライン加工プレートにより構成されたフィンの形態をしているのが良い。

【0007】

50

フィッシャー・トロプシュ反応は、代表的には、約200～約250の温度で実施され、したがって、反応器モジュールについて広範な材料を選択することができる。例えば、反応器モジュールは、アルミニウム合金、ステンレス鋼、高ニッケル合金又は合金鋼で作られるのが良い。

#### 【0008】

好ましくは、触媒構造体のための金属基体は、加熱時に酸化アルミニウムの密着性表面被膜を形成する合金鋼、例えばアルミニウム含有フェライト鋼、例えば15%クロム、4%アルミニウム及び0.3%イットリウムを含む鉄（例えば、Fecralloy（商標））である。この金属を酸素を含む気体（例えば、空気）中で加熱すると、この金属は、合金をそれ以上の酸化及び腐食から保護するアルミナの密着性酸化物被膜を形成する。触媒支持体をもたらしようアルミナのセラミック被膜で被覆した場合、これは、この表面上の酸化物被膜に結合すると思われる。基体は、ワイヤメッシュ又はフェルトシートであって良いが、好ましい基体は、例えば厚さ100µm未満の薄い金属箔であり、基体は、波形又はひだ付きであって良く、また、ディンプル付きであってよく、孔あきであってても良い。触媒物質を有するかかる触媒構造体を第1の流れチャンネル内に挿入するのが良い。触媒構造体の金属基体は、機械的強度をもたらし、熱伝達を促進すると共に触媒表面積を広くする。触媒構造体は、モジュール内のチャンネルから取り出し可能であり、したがって、触媒が使用済み状態になった場合、触媒構造体を交換することができるようになっている。第1の流れチャンネル及びかくして触媒構造体も又、好ましくは、プレートに平行な平面内において4mm～100mmの幅のものであり、好ましくは、流れ方向に対して横方向となる一寸法方向に少なくとも8mmだけ延びる。良好な熱伝達を得るために、第1の流れチャンネルは、好ましくは、プレートに垂直な方向において深さが15mm以下、より好ましくは10mm以下である。

#### 【0009】

反応器ブロックを形成するプレートのスタックは、例えば、拡散接合法、ろう付け法、又は熱間静水圧プレス法によって互いに結合される。

#### 【0010】

好ましくは、ガス混合物を供給してこれが第1の流れチャンネルを流れて下方に流れるようにする。好ましい実施形態では、供給手段、例えばヘッダを流れてガス混合物を反応器ブロックの全面に供給し、第1の流れチャンネルは、反応器ブロックの上面に沿って（供給手段内において）開放状態にある。これにより、供給手段を反応器ブロックからいったん取り外すと、触媒インサートの取り外し及び交換が容易になるようにする。さらに、ヘッダは、好ましくは、フィッシャー・トロプシュ合成を受けた流体を流出させるよう反応器ブロックの下面のところに設けられると共にヘッダは、好ましくは、反応器ブロックの1つ又は2つ以上の側面に設けられた入口及び出口ポートと連通した状態で冷却剤のために設けられる。また、ガス又は気体の流れが第1の流れチャンネル全体を横切って実質的に一様であるべきであり、したがって空間速度が各フィッシャー・トロプシュチャンネル内で同一であるようにすることが望ましい。

#### 【0011】

冷却剤が第1の流れチャンネル内での流れに全体として平行な方向に流れるようにすることにより、反応器ブロックの互いに反対側の側部相互間における冷却剤中の温度変化を最小限に抑えることが容易である。冷却剤の流れは、第1の流れチャンネル内の流れに対して並流であってても良く、或いは向流であってても良い。

#### 【0012】

冷却剤チャンネル（即ち、第2の流れチャンネル）は、スタック中の隣り合うプレート相互間に画定され、プレートは、互いに平行な流れチャンネルを形成するよう隆起付きシートによって互いに間隔を置いて設けられるのが良い。隆起付きシートは、例えば、ジグザグであり、湾曲しており又はスプライン加工された波形部を有するのが良い。好ましくは、隆起付きシートは、プレートの端までは延びず、プレートの端部分相互間の空間は、ディストリビューターチャンバを構成する。かくして、冷却剤は、ディストリビューターチャン

10

20

30

40

50

バに流入して全体として水平な方向に流れ、次に流れチャンネルを下方に鉛直又は垂直に流れ、次に全体として水平の流れ方向に戻ってディストリビューターチャンバの他端部から流出する。これらディストリビューターチャンバ内には、冷却剤が水平面から鉛直面に差し向けられ、次に水平面に戻る際の冷却剤の分布の一様性を促進するための手段、例えばバッフル又はフィンが設けられるのが良い。

【0013】

上述したように、かかるフィッシャー・トロプシュ反応器は、長鎖炭化水素を生成するためのプラントの一部をなすのが良く、プラントは、合成ガスを形成する手段及び合成ガスに対してフィッシャー・トロプシュ合成を実施して長鎖炭化水素を生じさせる手段を有する。合成ガスは、天然ガスで作られるのが良い。このプロセスを例えば随伴ガスを処理するために1つ又は2つ以上の油井に連結された油生産施設で実施するのが良い。しかしながら、随伴ガスの流量は、油生産施設の稼働寿命を通じて大幅に変化することが見込まれ、したがって、随伴ガスの流量の変化又は変動に対応できるようにすることが望ましい。これは、長鎖炭化水素を得よう天然ガスを処理するプラントであって、上述のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュールを多数備え、反応器モジュールを通る合成ガスの流れは、互いに平行であり、したがって、使用中の反応器モジュールの個数を変化させることにより天然ガス流量の変化に対応することができるようになっていたことを特徴とするプラントを用いることによって達成できる。それ故、フィッシャー・トロプシュ合成を実施する手段中の反応条件、例えば空間速度を随伴ガスの流量の大幅な変化にもかかわらず、比較的狭い範囲内に保持するのが良い。好ましくは、多数のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュールは、交換可能であり且つ容易に置換可能であるように処理量、公称生成物変換方式及び外部連結方式が互いに実質的に同等である。確かに、これら反応器は、好ましくは、同一の反応器である。この互換性は、1つの反応器を定期的に又は欠陥を是正するために点検整備する必要がある場合、反応器を容易に取り外して交換することができるということを意味している。好ましくは、次の点検整備を別の場所で行い、したがって、油生産施設に触媒取り扱い施設を設ける必要がないようになっている。

【0014】

特に、本発明との関連において、各フィッシャー・トロプシュ合成反応器を容易に使用中止し、容易にプラントから切り離し、同様に容易に交換し、そして使用状態に戻すようにすることが望ましい。

【0015】

次に、添付の図面を参照して本発明を更に具体的に説明するが、これは例示に過ぎない。

【図面の簡単な説明】

【0016】

【図1a】フィッシャー・トロプシュ合成に適した反応器ブロックの一部の断面図である。

【図1b】フィッシャー・トロプシュ合成に適した別の反応器ブロックの一部の断面図である。

【図2】図1aの反応器ブロックを有する反応器モジュールの断面図である。

【図3】本発明のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュールを有するプロセスプラントの一部の流れ図である。

【発明を実施するための形態】

【0017】

本発明は、天然ガス(主としてメタン)を長鎖炭化水素の変換する化学プロセスに適している。このプロセスの第1段階では、合成ガスを生成することであり、好ましくは、蒸気改質、即ち、次のタイプの反応を伴う。

【0018】

〔化1〕



10

20

30

40

50

この反応は、吸熱反応であり、第1のガス流れチャンネル内のロジウム又は白金/ロジウム触媒によって触媒できる。この反応を生じさせるのに必要な熱は、燃料ガス、例えばメタン又は別の短鎖炭化水素（例えばエタン、プロパン、ブタン）、一酸化炭素、水素若しくはかかるガスの混合物の燃焼によって提供でき、この燃焼は、発熱反応であり、隣りの第2のガス流れチャンネル内のパラジウム/白金触媒により触媒できる。変形例として、周知のプロセスである部分酸化プロセス又は自熱プロセスにより合成ガスを生成することができ、これらは、組成が互いに僅かに異なる合成ガスを生じさせる。

【0019】

次に合成ガス混合物を用いてフィッシャー・トロプシュ合成を行って長鎖炭化水素を発生させる。即ち、次の通りである。

【0020】

〔化2〕



この反応は、発熱反応であり、触媒、例えば鉄、コバルト又は溶融マグネタイト存在下において高い温度、代表的には190 ~ 280 で且つ高い圧力、代表的には1.8 MPa ~ 2.8 MPa（絶対値）で起こる。フィッシャー・トロプシュ合成に好ましい触媒は、約10% ~ 40%コバルト（アルミナと比較した重量で）が添加されると共にコバルトの重量の10%未満の促進剤、例えばルテニウム、白金又はガドリニウム及び塩基度促進剤、例えば酸化ランタンが添加された比表面積が140 ~ 230 m<sup>2</sup>/gのガンマ-アルミナの被膜から成る。好ましい反応条件は、温度が215 ~ 235 であり、圧力が2.1 MPaから最高2.7 MPaまでであり、例えば、2.6 MPaである。

【0021】

次に図1aを参照すると、フィッシャー・トロプシュ反応器モジュール50（図2参照）に用いられるのに適した反応器ブロック10が示されており、反応器ブロック10は、断面で且つ一部分だけが示されている。反応器ブロック10は、フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル17と交互に位置した冷却用流体のためのチャンネル15を構成するよう互いに間隔を置いて設けられた厚さ1mmの平べったいプレート12のスタック（積み重ね体）から成る。冷却剤チャンネル15は、頂部が平らなこの歯波形部の状態に形作られた厚さ0.75mmのシート14により構成されている。波形部の高さ（代表的には、1 ~ 4mm）は、この例では2mmであり、これに応じて、厚い中実縁部ストリップ16が側部に沿って設けられ、波形部の波長は、12mmである（かかる構成については以下に詳細に説明する）。フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル17は、高さ5mmのものであり（代表的には2mm ~ 10mm）、80mmの間隔を置いて設けられた断面が正方形又は長方形であり、高さが5mmのバー18によって構成され、したがって、真っ直ぐな貫通チャンネルが構成されている。フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル17の各々の中には、触媒材料のための支持体として働くセラミック被膜が施された厚さ50µm（代表的には、厚さが20 ~ 150µm）の波形箔20が設けられている（2つのかかる箔20しか示されていない）。反応器ブロック10は、チャンネル15, 17を構成するコンポーネントを積み重ね、次に例えばろう付け又は拡散接合法によりこれらを互いに結合することによって作られるのが良い。次に、反応器ブロック10を90

【0022】

次に図1bを参照すると、フィッシャー・トロプシュ反応器モジュールに用いられるのに適した別の反応器ブロック110が示されており、反応器ブロック110は、断面で且つ一部分だけが示されている。多くの点において、反応器ブロック110は、反応器ブロック10に似ており、同一のコンポーネントは、同一の参照符号で示されている。反応器ブロック110は、フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル117と交互に位置した冷却用流体のためのチャンネル115を構成するよう互いに間隔を置いて設けられた厚さ1mmの平べったいプレート112のスタックから成る。冷却剤チャンネル115は、加うる

に、中実縁部ストリップ16を備えている上述の頂部が平らなこの歯波形部の状態に形作られた厚さ0.75mmのシート14により構成されている。フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル117は、中実縁部バー18によって密封されており、加うるに、高さが4mm~12mm、好ましくは5mmのスプライン加工部の状態に形作られた厚さ1.0mmのシート119によって構成されている。好ましい例では、結果的に得られたチャンネル117は、幅10mm、高さ5mmのものであり、スタックを一方の面から反対側の面まで真っ直ぐに貫通して延びている。反応器ブロック10内のチャンネル15, 17の場合と同様、反応器ブロック110内のチャンネル15, 117は、互いに平行に延びている。フィッシャー・トロプシュ合成のためのチャンネル117の各々の中には、触媒材料のための支持体として働くセラミック被膜が施された厚さ20~150 $\mu$ m、好ましくは50 $\mu$ mの薄い波形箔120が設けられている(かかる箔20は3枚しか示されていない)。反応器ブロック110は、チャンネル15, 117を構成するコンポーネントを積み重ね、次に例えばろう付けによりこれらを互いに結合することによって作られるのが良い。次に、反応器ブロック110を90回転させてチャンネル15, 117が直立すると共に触媒担持箔120がチャンネル117内に挿入されるようにする。

#### 【0023】

反応器ブロック10, 110の両方の中には、触媒インサート20又は120がチャンネル17又は117の高さの単一の波形箔として示されているが、これとは異なり、波形箔及び実質的に平べったい箔のスタックから成っていても良い。図1bに示されている反応器ブロック110内において、チャンネル117は、プレート12の平面に平行なこれらの最も大きな横方向寸法を有する。図示していない別の構成例では、チャンネルは、プレート12の平面に垂直なこれらの最も大きな横方向寸法を有しても良い。いずれの場合においても、チャンネルの幅は、好ましくは約4~20mmである。各プレート12は、例えば、1.3m $\times$ 1.3m又は1.2m $\times$ 0.8mのものであるのが良く、その結果、チャンネル17又は117は、それぞれ、長さが1.3m又は0.8mである。好ましくは、チャンネル17又は117は、長さが1.5m以下であり、好ましくは少なくとも0.3mである。

#### 【0024】

次に図2を参照すると、反応器ブロック10を備えた反応器モジュール50が縦断面で示されており、反応器ブロック10は、部分的に破断状態で示されている。上述したように、反応器ブロック10は、流れチャンネル15, 17を構成するよう互いに隔てられた平べったいプレート12のスタックから成る。フィッシャー・トロプシュ合成反応のためのチャンネル17は、触媒担持波形箔20を収容しており、反応器ブロック10を貫通して(頂部から底部まで)真っ直ぐに延びており、頂面は、開かれており、チャンネル17は、底面のところでヘッダ24と連通している。反応生成物は、ダクト25を通過してヘッダ24から流出する。冷却剤チャンネル15のために、平べったいプレート12は、プレート12の周囲が縁部ストリップ16によって間隔保持されると共に中央部分も又波形シート14によって間隔保持されている。各波形シート14の各端部を越えたところに、縁部ストリップ16によって一方の側部の隙間から間隔を置いた状態で包囲された端部26が設けられており、その結果、端部26は、それぞれのヘッダ28又は30と連通するようになっており、これら端部は、反応器ブロック10の長さによって延びてその側部が直径方向反対側のコーナー部、即ち、図示の左上及び右下の近くに取り付けられている。冷却用流体は、ヘッダ28に供給されてヘッダ30を通過して抜き出され、端部26は、冷却剤をヘッダ28又は30と冷却剤用チャンネル15との間に分配する。冷却剤は、ダクト32からヘッダ28に供給されてダクト34によってヘッダ30から取り出され、その結果、流れは、フィッシャー・トロプシュチャンネル17内の流れに対して全体として並流状態になっている。平べったいプレート12、縁部ストリップ16、バー18及び波形シート14は、アルミニウム合金、例えば3003等級(約1.2%マンガン及び0.1%銅を含むアルミニウム)のものであるのが良い。

#### 【0025】

合成ガスは、ヘッダ40を通過して反応器ブロック10の頂面に供給される。ただし、理解されるように、他の供給手段を反応器ブロック10に用いることができる。合成ガスは、パイプ42を通過してヘッダ40に供給される。

【0026】

反応器モジュール50の使用にあたり、冷却剤を冷却剤温度が反応器50の通過の際にあらかじめ定められた量、例えば10Kだけ増大するような流量で供給されるのが良く、冷却剤がフィッシャー・トロプシュチャンネル17に対して並流状態で流れるようにすること（分配端部26内の冷却剤の流れとは別に）は、反応器ブロック10の冷却チャンネルを通る任意の水平面内における任意の2つの箇所相互間の温度差を最小限に抑えるのに役立つ。

10

【0027】

一例を挙げると、反応器ブロック10は、全長が1mを超える場合があり、例えば8mであり、その断面積は、プレート12のうちの1枚の断面積である。反応器ブロック10を備えた反応器モジュール50は、重量が25トン以下であるのが良く、その結果、これを従来型貨物取り扱機器により取り扱うことができるようになっている。反応器モジュールは、約32m<sup>3</sup>/日（200バレル/日）の長鎖炭化水素を生産するのに十分な能力を備えているのが良い。

【0028】

フィッシャー・トロプシュ反応器モジュール50は、長鎖炭化水素を得るために天然ガスを処理するプラントの一部をなすのが良く、このプラントは、メタンから合成ガスを生成する手段及び合成ガスにフィッシャー・トロプシュ合成を施して長鎖炭化水素を生じさせる手段を有している。このプロセスを例えば随伴ガスを処理するために1つ又は2つ以上の油井に連結された油生産施設で実施するのが良い。しかしながら、随伴ガスの流量は、油生産施設の稼働寿命を通じて大幅に変化することが見込まれ、したがって、随伴ガスの流量の変化又は変動に対応できるようにすることが望ましい。これは、次に参照する図3に示されているようなプラントを用いることによって達成でき、このプラントは、上述したような多数の同一のフィッシャー・トロプシュ反応器モジュール50（4つしか示されていない）を備え、各反応器モジュールは、反応器ブロック10を有し、反応器モジュールを通る合成ガスの流れは、互いに平行であり、したがって、使用中の反応器モジュール50の個数を変化させることによりガス流量の変化に対応することができるようになっている。それ故、フィッシャー・トロプシュ合成反応条件、例えば空間速度を随伴ガスの流量の大幅な変化にもかかわらず、比較的狭い範囲内に保持することができる。例えば、プラントが150m<sup>3</sup>/日の長鎖炭化水素を生産することが必要な場合、このプラントは、各々が上述した寸法の5つの同一の反応器モジュール50を利用するのが良く、その結果、各反応器モジュール50は、32m<sup>3</sup>/日の能力を有するようになる。

20

30

【0029】

合成ガスは適当な圧力（例えば、2.6MPa）で供給ダクト60を通過して提供され、かかる随伴ガスは、この供給ダクトを通過して各反応器モジュール50の入口パイプ42に供給される。冷却用流体を冷却剤チャンネルを通過して循環させると共に温度制御システム44（概略的に示されている）を経て再循環させ、冷却剤のための入口32と出口34との間の温度差が例えば10K以下になるようにすると共に反応器50の平均温度が一定のままであるようにする。各反応器モジュール50がそれ自体の温度制御システム44を備えた状態で示されているが、実際には、モジュール50の全てについて又はモジュール50の群について単一の温度制御システムが設けられるが、反応器モジュール50が個々に交換されるべき場合、各モジュール50は、新鮮な触媒と老化した触媒との間の活性度の変化に対応するよう専用の制御装置を有するのが良い。

40

【0030】

フィッシャー・トロプシュ反応器の性能（例えば、COのパーセント変換率）は、反応温度で決まることが知られている。しかしながら、例えば上述したような反応器では、反応器チャンネルに沿う最高10Kの温度差は、それほど影響を及ぼさないことが判明してお

50



り、即ち、反応器の性能は、平均温度によって決まる。それ故、温度制御システム 44 は、平均冷却剤温度が所定の変換率を達成するような値を有するようにするための制御回路を有し、平均温度は、この設定値からの差が 2 K を超えてはならず、好ましくは、1 K を超えない。この制御は、反応器モジュール 50 に供給される冷却剤の温度を制御することによって達成され、平均温度の微調整は、流量を調節することによって得られる。というのは、プロセス側での入口と出口との間の温度差が冷却剤側の対応の温度差に直接関連しているからである。それと同時に、冷却剤流量も又、流入冷却剤と流出冷却剤の温度差があらかじめ定められた限度を超えないようにするよう制御され、この限度は、10 K 以下、例えば 7 K 又は 5 K であるのが良い。

**【0031】**

反応生成物を含む流体混合物は、ダクト 25 を通ってフィッシャー・トロプシュ反応器モジュール 50 から出て、水蒸気及び長鎖炭化水素を凝縮させる熱交換器 46 の通過によって冷却される。すると、これは、分離器 48 によって水、液体炭化水素 C<sub>5</sub>+ 及び残りのテールガス (tail gas) 64 に分離される。交換器 46 に用いられる冷却剤は、水であるのが良く、又、熱交換器表面のワキシング (waxing) が生じないようにするために周囲温度、例えば約 20 若しくは 30、又は好ましくはこれよりも幾分高い温度、例えば 60 ~ 80 の状態であるのが良い。

**【0032】**

反応器モジュール 50 と熱交換器 46 と分離器 48 の組み合わせは、合成組立体 66 と呼ばれる場合がある。或る場合においては、分離器 48 からのテールガス 64 を次に第 2 の合成組立体 66 中に送り込んで残りの水素及び一酸化炭素を追加の長鎖炭化水素 C<sub>5</sub>+ に変換する。一般に、プラントは、複数のステージでフィッシャー・トロプシュ合成を実施するよう複数個のかかる合成組立体 66 から成るのが良い。ステージの数は、各ステージでフィッシャー・トロプシュ合成を受ける合成ガスの比率で決まる。

**【0033】**

このプラントにおける各モジュール 50 は、プラントの残部の稼働を妨げないで、個々の反応器モジュール 50 に対する合成ガスの流入と流出を遮断することができるよう遮断弁 55 又は対をなす遮断弁 55 を備えている。弁 56 は又、冷却剤を遮断することができる。それ故、随伴ガスの流量が変化した場合、それに応じて使用中の反応器モジュール 50 の数を変化させることによりフィッシャー・トロプシュ合成を実施するプラントの能力を調節することができる。フィッシャー・トロプシュ反応器モジュール 50 のうちの 1 つを稼働停止させることが必要になった場合、遮断弁 55 を両方共閉じるが、それと同時に、反応器モジュール 50 をシャットダウンガス供給源 58 からのフィッシャー・トロプシュチャンネル動作圧力 (この例では 2.6 MPa) の状態にあるシャットダウンガスでフラッシングして残りの合成ガスを除去する。シャットダウンガス供給源 58 は、遮断弁 59 (これは、常態では閉じられている) を介して各反応器モジュール 50 に連結されるが、1 つの反応器モジュールへの連結具だけが示されている。フラッシングにより合成ガスを除去した後、反応器モジュール 50 をこれ又遮断弁 59 を閉鎖することによりこの動作圧力状態で閉鎖する。これにより、触媒は、劣化しないようになる。シャットダウンガスは、触媒反応には関与しないガスであり、それにより、反応器内におけるそれ以上の触媒活性が実質的に阻止される。適当なガスの例としては、純メタン、脱硫天然ガス及び窒素が挙げられる。

**【0034】**

また、この手順により、使用されていない間、例えば、反応器モジュール 50 を改修して例えば使用済み触媒を交換することが必要な場合、個々の反応器モジュール 50 を取り出して交換することができる。理解されるように、プラントから取り出され、次に減圧されたかかかる反応器モジュール 50 は、ヘッド 40 を反応器ブロック 10 から切り離すことにより容易に分解することができる。次に、触媒担持箔 20 をチャンネル 17 の開放端部を通して取り出すのが良い。

**【0035】**

10

20

30

40

50

理解されるように、上述の反応器ブロック10及び反応器モジュール50は、例示として挙げられているに過ぎず、これらは、本発明の範囲内に含まれる限り多くの仕方で改造できる。例えば、プレートは、異なる寸法形状のものであって良く、流れチャンネル15, 17(又は117)は、上述した断面形状とは異なる断面形状を有して良く、例えば、波形シート14は、スプライン加工波形部を有しても良い。触媒構造体が単一の波形箔20又は120として示されているが、これとは異なり、触媒構造体は、例えば、2枚の波形箔の間に平べったい箔を挟んで構成した組立体又は3枚の波形箔の間に2枚の平べったい箔を挟んで構成した組立体であっても良い。さらに、触媒構造体は、チャンネル17又は117の全長にわたって延びても良く或いは例えば冷却剤チャンネル15に隣接して位置したチャンネルの部分に沿って延びるに過ぎないものであって良い。

10

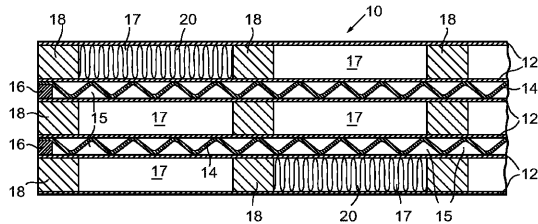
【0036】

長さが約1mを超える反応器ブロック10の場合、単一のヘッダ24に代えて、ブロック10の長さに沿って一連のヘッダ24を設けるかブロック10の長さに沿う幾つかの位置でダクト25をヘッダ24に連結するかのいずれかを行うことは好ましい場合がある。これらオプションは、合成ガスをヘッダ40、冷却剤流入ヘッダ28及び冷却剤流出ヘッダ30にも当てはまる。さらに、1つの冷却剤流入ヘッダ28と1つの冷却剤流出ヘッダ30を互に対角線方向反対側に設けるのではなく、これとは異なり、反応器ブロック10の頂部の隣りの各側部に1つずつ2つの冷却剤流入ヘッダ28を設けると共に反応器ブロック10の底部の隣りの各側部に1つずつ2つの冷却剤流出ヘッダ30を設けても良い。

20

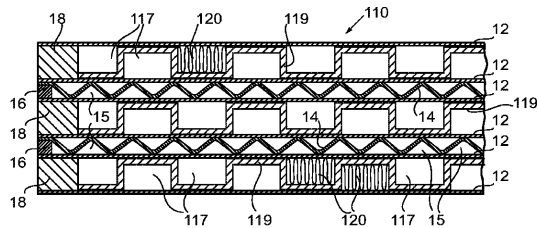
【図1a】

Fig.1a.



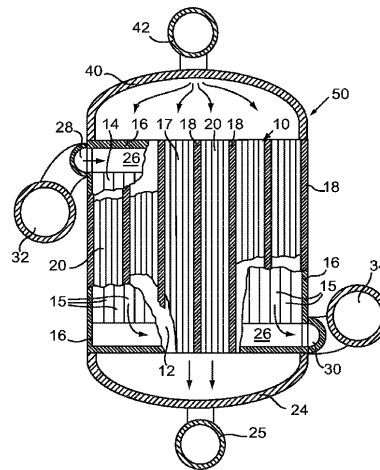
【図1b】

Fig.1b.

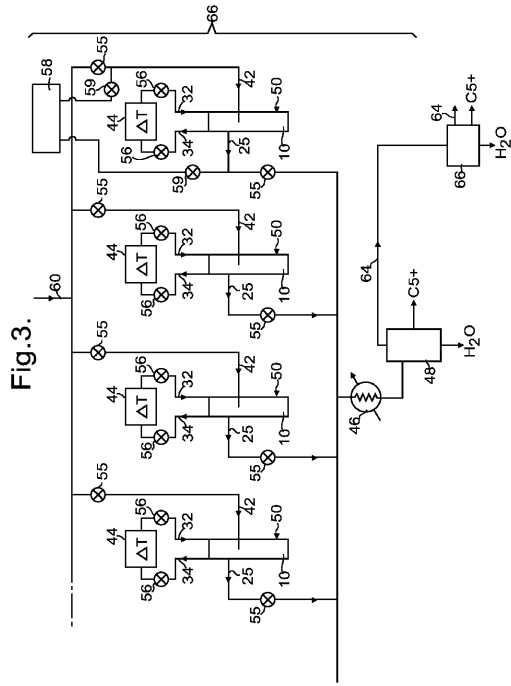


【図2】

Fig.2.



【 3 】



## フロントページの続き

(74)代理人 100095898

弁理士 松下 満

(74)代理人 100098475

弁理士 倉澤 伊知郎

(74)代理人 100128428

弁理士 田巻 文孝

(72)発明者 ボウ マイケル ジョセフ

イギリス ピーアール4 4ジェイジェイ ランカシャー プレストン ニュー ロングトン バ  
ルモラル ロード 17

(72)発明者 リー タフネル クライヴ デレク

イギリス オーエックス13 5エイディー オックスフォードシャー アービンドン サウスム  
ーア ノーウッド アベニュー 12エイ

審査官 澤村 茂実

(56)参考文献 国際公開第2006/079848(WO, A1)

特表2006-508234(JP, A)

特表2005-501692(JP, A)

特開昭54-011077(JP, A)

米国特許第03528783(US, A)

国際公開第2006/095204(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C10G 2/00

B01J 8/00-8/46, 10/00-12/02, 14/00-19/42 C10

G 2/00