

【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3部門第2区分
 【発行日】平成22年5月6日(2010.5.6)

【公表番号】特表2002-518466(P2002-518466A)
 【公表日】平成14年6月25日(2002.6.25)
 【出願番号】特願2000-555850(P2000-555850)
 【国際特許分類】

C 0 7 D 307/60 (2006.01)

【F I】

C 0 7 D 307/60 A
 C 0 7 D 307/60 F

【誤訳訂正書】

【提出日】平成22年3月15日(2010.3.15)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】特許請求の範囲

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 n - ブタンを、気相で、調節剤を用いまたは用いないリン・バナジウム混合酸化物触媒の存在下で、300 から550 の温度で、分子酸素または分子酸素含有ガスで酸化させることによって無水マレイン酸を生成する方法において、

a) 酸素とブタンと二酸化炭素とリサイクル排気ガスからなる反応混合物であってかつ反応混合物中の酸素濃度が5%から16容量%であり、反応混合物中のブタン濃度が2%から20容量%であり、反応混合物中の二酸化炭素濃度が60%容量以下であって一酸化炭素とのモル比が少なくとも1.5であるように調節されている反応混合物を用意し、

b) 前記反応混合物を、入口圧力が2.03から6.03バールで稼動する酸化反応炉へ供給し、該反応炉内で、前記触媒によってブタンを1パスあたり穏やかな変換率で反応させ、高い選択性と高い生産性で無水マレイン酸を生成させ、

c) 酸素と未変換ブタンと有機副生物と二酸化炭素と一酸化炭素と水蒸気と不活性ガスと生成した無水マレイン酸とからなる反応ガスを冷却し、

d) 無水マレイン酸を溶媒に吸収させて回収し、但し、この吸収を1.21から4.5バールの範囲の出口圧力の条件で行い、

e) 無水マレイン酸を除去後、リサイクル排気ガスを、存在するブタン以外の有機物の全てを除去するために水でスクラッピングし、

f) 水でのスクラッピング後、リサイクル排気ガスを圧縮して反応圧力とし、

g) 不活性ガスおよび二酸化炭素の蓄積を避けるために、圧縮された排気ガスの一部をパージし、

h) リサイクル排気ガスのパージガス流を上記d)で使用した溶媒で洗浄して前記パージガス流内に含まれるブタンの大部分を吸収によって除去し、吸収されたブタンを引き続いて無水マレイン酸吸収装置内で脱離させ、無水マレイン酸を除去した後のリサイクル排気ガス内に回収し、

i) 圧縮されたリサイクル排気ガスに、新鮮なブタンと二酸化炭素濃縮流と酸素または酸素濃縮空気を追加し、上記a)に示した反応混合物を形成する、ことを特徴とする、無水マレイン酸を生成する方法。

【請求項2】二酸化炭素濃縮流として、

I) リサイクル排気ガスのパージ流から選択的吸収および脱離によって得られる二酸化炭素、

II) リサイクル排気ガスのパージ流から膜によって選択的に分離することによって得られる二酸化炭素濃縮流、

III) リサイクル排気ガスのパージ流の一酸化炭素を選択的に酸化して二酸化炭素とすることによって得られる二酸化炭素濃縮流、

IV) 外部供給源からの二酸化炭素、

V) 上に述べた供給源の組み合わせによって得られる二酸化炭素、

から成る二酸化炭素源のいずれか一つを使用する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】前記酸化反応炉が、固定床式反応炉または流動床式反応炉からなる群から選ばれる、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 4】前記酸化反応炉における触媒反応が、370 から 449 の反応温度で行われる、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】前記反応温度が、400 である、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】前記反応混合物が、前記酸化反応炉の入口へ、2.03 から 6.03 パールの入口圧力で供給される、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 7】前記酸化反応炉の入口圧力が、3.0 から 4.5 パールである、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】前記酸化反応炉に供給される反応混合物中の酸素濃度が、8 から 14 容量% である、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】前記酸化反応炉に供給される反応混合物中の二酸化炭素の一酸化炭素に対するモル比が、1.5 から 10.0 である、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】前記酸化反応炉に供給される反応混合物中のブタン濃度が、3 から 8 容量% である、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】前記酸化反応炉における触媒反応が、1000 から 4000 / 時の空間速度で行われる、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】前記空間速度は、2000 から 3000 / 時である、請求項 11 に記載の方法。

【請求項 13】前記触媒の活性を制御するために、前記反応混合物へ、揮発性のリン化合物を添加する、請求項 1、2 および 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】前記反応混合物中のリン濃度が、1 から 20 容量 ppm の間である、請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】前記触媒が、調節剤を用いまたは用いないリン・バナジウム混合酸化物触媒である、請求項 1、2、3、11、12、13、および 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】工程 d) および h) で使用される溶媒は、フタル酸のジエステルから選ばれる、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 17】前記フタル酸のジエステルは、フタル酸ジブチルおよびフタル酸ジオクチルからなる群から選ばれる、請求項 16 に記載の方法。

【請求項 18】請求項 2 の I) において、二酸化炭素は、二酸化炭素回収装置内での選択的吸収および離脱によってリサイクル排気ガスのパージ流から回収される、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 19】二酸化炭素回収装置は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、アミン、スルフィノール、レクチソール、またはプリソールの方法を用いる、請求項 18 に記載の方法。

【請求項 20】請求項 2 の III) において、二酸化炭素濃縮流が、リサイクル排気ガスのパージ流中に含まれる一酸化炭素の二酸化炭素への選択的酸化によって生成される、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 21】選択的酸化において、酸素の二酸化炭素に対するモル比が 0.5 から 3.0 である気体中で一酸化炭素を選択的に酸化して二酸化炭素とすることのできる触媒を使用する、請求項 20 に記載の方法。

【請求項 22】一酸化炭素酸化触媒は、プラチナ、ルテニウム、ロジウム、プラチナ - ロ

ジウム、及びパラジウムからなる群から選択された1種以上の貴金属が担持された触媒である、請求項20または21に記載の方法。

【請求項23】工程h)のパージガス流からのブタンの吸収は、請求項2のI)に記された二酸化炭素の選択的吸収の後、請求項2のIII)に記された一酸化炭素の二酸化炭素への選択的酸化の後、または、請求項2のII)に記された膜による選択的分離の後に行われる、請求項1または2に記載の方法。

【請求項24】請求項2のII)において、二酸化炭素濃縮流は、リサイクル排気ガスのパージ流からの膜による選択的分離によって回収される、請求項2に記載の方法。

【請求項25】水が無水マレイン酸の回収用溶媒として使用され、及び/または、一連の作業が工程h)に記されたパージガスからのブタンの吸収を含まない、請求項1に記載の方法。

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0004

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0004】

変換率、選択性、および反応収量は、反応条件、主として供給物の組成、圧力、温度、および空間速度（これは、触媒の単位体積あたり一時間に供給されるガスの標準体積で測定される）に依存する。

変換率とは、反応炉に供給されたブタンのうち、生成物または副生物に変化した重量パーセントを意味する。

選択性とは、無水マレイン酸の量を変換したブタンのパーセント（w/w）であらわしたものを意味する。

選択性と変換率との積は、収量を決定するものであり、反応炉へ送られる全ブタンの重量パーセントであらわした無水マレイン酸の量を示す。

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0019

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0019】

本発明の方法は、以下の操作を特徴とするものである。

a) 酸素とブタンと二酸化炭素とリサイクル排気ガスからなる反応混合物を用意する。但し、反応混合物中の酸素濃度が5から16容量%、好ましくは8から14容量%であり、反応混合物中のブタン濃度が2から20容量%、好ましくは3から8容量%であり、反応混合物中の二酸化炭素濃度が60%容量以下であって一酸化炭素とのモル比が少なくとも1.5から1.0であるように調節する。

b) 反応混合物を、入口圧力が2.03から6.03バール、好ましくは3.0から4.5バールで稼動する酸化反応炉へ供給する。反応炉内では、適当なV.P.O.型の触媒によってブタンが1パスあたり穏やかな変換率で反応し、高い選択性と高い生産性で無水マレイン酸を生成する。

c) 酸素と、未変換ブタンと、有機副生物と、二酸化炭素と、一酸化炭素と、水蒸気と、不活性ガスと、生成された無水マレイン酸とからなる反応ガスを冷却する。

d) 吸収によって無水マレイン酸を、出口圧力が1.21から4.5バールの範囲で、溶媒、好ましくは有機溶媒内に回収する。

【誤訳訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0030

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0030】

リサイクルガス（線11）は、水スクラッパータ（12）へ送られ、そこで、水溶性有機化合物は、濃縮物の形で分離される（線13）。

いいは、リサイクルガスに溶けないため、スクラッピング後のガスに保持される。リサイクルガスは、圧縮器（15）へ送られる（線14）。

圧縮器から出たガスのほとんど(largest fraction)（線1）は、反応炉（5）へ再循環され、少量のみ（線16）が、パージされる。

パージガス（線16）は、吸収装置（17）へ送られ、無水マレイン酸を回収する吸収-ストリッピング装置（9）から吸収装置（17）へ送られる有機溶媒(lean organic solvent)（線18）の流れで洗浄される。

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0037

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0037】

図4に示す方法は、供給物として外部の供給源からの二酸化炭素を使用する点で図1、図2、図3に示すものと異なる。

すでに説明したように、有機溶媒(lean organic solvent)で洗浄する以外、処理は行わない。

ブタン吸収装置（17）から出たパージガス（線20）は、焼却炉へ送られる。

圧縮された排気ガス（線1）は、ブタン供給物（線2）と、酸素（線3）と、外部供給源（線17）からの二酸化炭素と混合され、無水マレイン酸反応炉（5）へ供給される混合物を形成する。

【誤訳訂正6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0038

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0038】

例A

添付の図1を参照して、本発明の方法は、通常、以下のように進行する。

4.5パールのリサイクルガス（線1）75356Kg/時は、二酸化炭素1300Kg/時（線22）と、純粋な酸素5832Kg/時（線2）と、ブタン2630Kg/時（線4）とに混合される。混合物全体（4）は、反応炉（5）への供給物となる。

供給物は、85118Kg/時で供給され、下記の構成を有する。

酸素 12.3容量%
 水蒸気 3.0容量%
 ブタン 5.6容量%
 一酸化炭素 24.0容量%
 二酸化炭素 55.1容量%
 不活性物質 微量

【誤訳訂正7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0041

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0041】

圧縮されたガスのうち比較的少量たる3411Kg/時は、ブタン吸収装置（17）へ

運ばれ（線 16）、そこで、無水マレイン酸を回収する吸収 - ストリッピング装置（9）から吸収装置（17）へ送られる溶媒(lean solvent)の流れ（線 18）で洗浄される。

パージガス中に存在する約 144 Kg / 時のブタンは、溶媒（19）中で回収される。ブタン吸収装置（17）からの排出気体、3291 Kg / 時は、二酸化炭素回収装置（21）へ流れる（線 20）。

二酸化炭素回収装置は、二酸化炭素 2236 Kg / 時を分離し、その中の 1300 Kg / 時は、反応炉供給物へ戻され（線 22）、残りの 936 Kg / 時は、不活性ガスとしてまたは他の用途で使用するために回収される（線 24）。

二酸化炭素回収装置から出たパージガス、1055 Kg / 時は、焼却炉へ運ばれる（線 23）。