【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】令和4年5月17日(2022.5.17)

【国際公開番号】WO2019/199571
【公表番号】特表2021-520989(P2021-520989A)
【公表日】令和3年8月26日(2021.8.26)
【出願番号】特願2020-555320(P2020-555320)
【国際特許分類】
Ｂ０１Ｄ 3/26(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 19/32(2006.01)
【ＦＩ】
Ｂ０１Ｄ 3/26 Ａ
Ｂ０１Ｊ 19/32

【誤訳訂正書】
【提出日】令和4年5月9日(2022.5.9)
【誤訳訂正１】
【訂正対象書類名】明細書
【訂正対象項目名】全文
【訂正方法】変更
【訂正の内容】
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本明細書の実施形態は、概して、反応触媒及び蒸留用の物質移動表面という２つの機能を発揮できる蒸留構造体に関する。より具体的には、本明細書の実施形態は、固体粒子状触媒を含んでいてもよい固定蒸留構造体に関する。本明細書で提供される蒸留用規則充填物は、接触反応用の触媒と蒸留用の物質移動表面領域とを提供するという２つの機能を発揮できる。
【背景技術】
【０００２】
触媒蒸留は、蒸留及び接触反応プロセスを組み合わせて、溶液中で混合物を選択的に分離する反応蒸留の一分野である。触媒蒸留の主な機能は、ガソリンの精製等、接触有機反応の収率を最大化することである。また、触媒蒸留で使用される触媒は各種物質で構成されており、様々な物体に充填される。例えば、上記各種物質は反応性が高くてもよく、反応速度を顕著に加速できることで効果的な触媒となる。典型的には、触媒が充填される形状によって幾何学的配置が形成されることで、反応物質と触媒とが接触して生成物を形成する蒸留塔の領域（すなわち触媒床）に間隔が設けられる。この間隔は、触媒が確実に塔内に広がるようにするためのものである。触媒蒸留塔内では、液体反応物質が触媒されると同時に加熱される。その結果、生成物がすぐに気化し始めて初期の溶液から分離される。反応物質を同時に触媒及び加熱することで、新たに形成された生成物が急速に沸騰して系外へ放出される。
【０００３】
反応と反応物質からの生成物の分離とを同時に行うことがしばらくの間実施され、その利点も認識されていた。同時に行う反応及び蒸留の採用例は、特許文献１、特許文献２、特許文献３、特許文献４、特許文献５、及び特許文献６（エーテル化）；特許文献７（二量体化）；特許文献８（水和）；特許文献９（解離）；特許文献１０及び特許文献１１（芳香族アルキル化）；並びにＣａｔａｌｙｔｉｃ Ｄｉｓｔｉｌｌａｔｉｏｎ Ｔｅｃｈｎｏｌｏｇｉｅｓ及び／又はＬｕｍｍｕｓ Ｔｅｃｈｎｏｌｏｇｙに付与された別の最近の

特許に開示されている。これらの教示全体が参照により本願に援用される。
【０００４】
いくつかの異なる触媒蒸留構造体が提案されている。例えば、ワイヤーデミスターが巻かれた布ベルトのポケット内に粒子状触媒を収容することで触媒蒸留構造体を形成する特許文献１２及び特許文献１３や、触媒部材を形成する波形要素及びテープを有する充填物を開示している特許文献１４を参照されたい（これらの教示全体が参照により本願に援用される）。特許文献１５及び特許文献１６に開示されているように、触媒を収容するように高効率充填物の改変が行われている。これらの教示全体が参照により本願に援用される。
【０００５】
特許文献１６には、少なくとも２つの略垂直な二重格子と、該格子に設置された複数の略水平な菱形管であって、該管の間に流体路を形成する菱形管とで構成された剛性骨格を有する触媒構造体が開示されている。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００６】
【特許文献１】米国特許第４，２３２，１７７号明細書
【特許文献２】米国特許第４，３０７，２５４号明細書
【特許文献３】米国特許第４，３３６，４０７号明細書
【特許文献４】米国特許第４，５０４，６８７号明細書
【特許文献５】米国特許第４，９１８，２４３号明細書
【特許文献６】米国特許第４，９７８，８０７号明細書
【特許文献７】米国特許第４，２４２，５３０号明細書
【特許文献８】米国特許第４，９８２，０２２号明細書
【特許文献９】米国特許第４，４４７，６６８号明細書
【特許文献１０】米国特許第４，９５０，８３４号明細書
【特許文献１１】米国特許第５，０１９，６６９号明細書
【特許文献１２】米国特許第４，３０２，３５６号明細書
【特許文献１３】米国特許第４，４４３，５５９号明細書
【特許文献１４】米国特許第４，７３１，２２９号明細書
【特許文献１５】米国特許第５，０７３，２３６号明細書
【特許文献１６】米国特許第５，７３０，８４３号明細書
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００７】
本概要は、以下の詳細な説明で更に記載されるいくつかの概念を紹介するものである。本概要は、請求項に記載した主題の重要な又は本質的な特徴を特定することを意図しておらず、また請求項に記載した主題の範囲を限定する一助として使用されることも意図していない。
【課題を解決するための手段】
【０００８】
一態様において、本明細書に開示した実施形態は、少なくとも２つの格子を有する剛性骨格と共に、上記格子に設置された複数の水平流体透過管であって、該複数の水平流体透過管の間に複数の流体路を形成する複数の水平流体透過管を有していてもよい触媒蒸留構造体に関する。加えて、各水平流体透過管は、６辺多角形の外形を有していてもよい。また、上記触媒蒸留構造体は、上記複数の水平流体透過管のうち垂直方向に整列した各管を接続する複数の垂直プレート又はワイヤーを有していてもよい。更に、上記複数の垂直プレート又はワイヤーは、１つの垂直方向整列管の角から、隣接する垂直方向整列管の角へと接続している。
【０００９】
一態様において、本明細書に開示した実施形態は、反応と、反応物質からの生成物の分離

とを同時に実施するための蒸留塔反応器であって、垂直配置容器と、上記垂直配置容器に配置された１つ以上の触媒蒸留構造体とを有していてもよい蒸留塔反応器に関する。加えて、上記触媒蒸留構造体は、少なくとも２つの格子を有する剛性骨格と共に、上記格子に設置された複数の水平流体透過管であって、該複数の水平流体透過管の間に複数の流体路を形成する複数の水平流体透過管を有していてもよい。各水平流体透過管は、６辺多角形の外形を有していてもよい。また、上記触媒蒸留構造体は、上記複数の水平流体透過管のうち垂直方向に整列した各管を接続する複数の垂直プレート又はワイヤーを有していてもよい。更に、上記複数の垂直プレート又はワイヤーは、１つの垂直方向整列管の角から、隣接する垂直方向整列管の角へと接続している。

【００１０】

蒸留塔内で流体の移動度をより大きくできるという点で、本明細書中の実施形態は有利である。本明細書中のいくつかの実施形態に係る触媒蒸留構造体は、従来技術で開示された構造体よりも良好な蒸留特性を提供できるという点が更に有利である。以下の説明及び添付の特許請求の範囲から、別の態様及び利点が明らかになるであろう。

【図面の簡単な説明】

【００１１】

【図１】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ａ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｂ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｃ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｄ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｅ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｆ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｇ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図２Ｈ】本開示の１つ以上の実施形態に係る触媒を含む要素及び空間的関係を表す充填構造体の断面模式図である。

【図３】図１の空間的関係で表される充填構造体のアイソメトリック図である。

【図４】本開示の１つ以上の実施形態に係る充填構造体用の剛性骨格のアイソメトリック図である。

【図５】本開示の１つ以上の実施形態に係る蒸留塔反応器に配置された充填構造体の模式図である。

【発明を実施するための形態】

【００１２】

添付の図面を参照して、以下で本開示の実施形態を詳述する。一貫性を保つために、各種図面で類似の要素を類似の参照番号で表している場合がある。また、以下の詳細な説明においては、請求項に記載した主題をより十分に理解させる目的で多くの具体的詳細を記載している。しかしながら、当業者には明らかなように、これらの具体的詳細がなくても記載した実施形態を実施可能である。他の例では、説明が不必要に複雑化するのを避けるために、周知の特徴を詳細には記載していない。

【００１３】

一態様において、本明細書に開示した実施形態は、触媒蒸留用の規則充填物に関する。本明細書中、「連結された」又は「～に連結された」又は「接続された」又は「～に接続さ

れた」という語は、直接的又は間接的な接続のいずれかを確立することを示している場合があり、明示されない限り、いずれにも限定されない。可能な限り、図面において類似又は同一の参照番号を使用して共通の又は同じ要素を特定している。図面は必ずしも一定の縮尺ではなく、図面中の特定の特徴及び特定の図は、明確化する目的で縮尺を誇張して表している場合がある。

【００１４】

本明細書の実施形態に係る触媒蒸留構造体は、格子に配置された複数の水平流体透過管を有する装置であり、垂直方向に隣接する管の間に液体輸送接続部（ワイヤー等）を有していてもよく、所定のレイアウトで配置された複数の格子内の管は、フレーム又はフレームハウジング（すなわち剛性骨格）内に収容してもよい。フレーム内の水平流体透過管の配置及び形状によって、触媒蒸留構造体の触媒充填量、分離能、及び水力学的能力の１つ以上を向上させつつ、複雑さ及び設計を顕著に低減できる。水平流体透過管は格子全体に設置されて、触媒蒸留構造体において流体用の流路を導き、形成する。本明細書中、流体とは液体、気体、及び／又はその混合物を意味する場合がある。加えて、プレートを用いて、フレーム内で垂直方向に整列した各水平流体透過管を接続してもよい。更に、プレートで接続された垂直方向整列管は、プレートで接続された第２の垂直方向整列管群とずれて隣接していてもよい第１群を含んでいてもよい。

【００１５】

従来の触媒蒸留構造体は、典型的には、従来の触媒蒸留構造体の水力学的能力を強化するために低触媒充填量の管を有する。従来の触媒蒸留構造体では、広範囲の溶接部によって触媒充填用の面積が小さくなり、且つ多数の流体透過管を必要とするような広範囲のレイアウト及び配置の流体透過管を用いる場合がある。いくつかの例において、流体透過管は、従来の触媒蒸留構造体内を移動する流体用の乱流路を形成しており、複雑に曲がったり方向が変化したりするものがある。このような従来の触媒蒸留構造体は、部品、部材、及び溶接部の数が多いことから、重量が大きくなり、且つ製造コストも高くなり得る。従って、当業者には明らかである通り、本開示における１つ以上の実施形態を採用することで、このような課題を解決すると共に、従来の触媒蒸留構造体に対して別の利点を得ることができる。

【００１６】

特許文献１６の菱形構造とは対照的に、本明細書の実施形態に係る触媒蒸留構造体は、より優れた液体及び／又は蒸気流特性を容易に得られるような形状及び構造を有する。本明細書に開示した触媒蒸留構造体は、垂直プレートを含む触媒構造体を有する。各垂直プレートは、複数の水平流体透過管を有する。各流体透過管の間の垂直接続部によって、垂直方向に隣接する水平管の間の液体輸送が容易になり、それにより、濡れた状態で各水平管内に触媒を保持又は配置する液体の流れが得られる。

【００１７】

垂直プレートは、それぞれ間隔を空けて隣接していてもよく、その場合、管が垂直方向にずれることで、プレート及び蛇行蒸気路（隣接するプレート間の開放空間）が効率的に充填された格子が得られる。垂直方向に隣接する各流体透過管の間の垂直接続部は、中実接続部であってもよく、管を相互接続する複数のワイヤー又はファイバーであってもよい。単一のプレートの管間の垂直接続部は、管底部から液体を自由落下させるものではなく、垂直方向に隣接する管間の流体連通を容易にするような材料で形成されるべきである。液滴が自由落下すると、飛沫同伴が発生したり、構造体の性能属性が低下したりし得るからである。

【００１８】

管の構成は、管内に収容された触媒粒子へと液体流が誘導されるようなものであってもよい。いくつかの実施形態において、輸送液体がプレートを横断して下っていくため、触媒の濡れがすぐに起こる。他の実施形態において、管の外部形状によって触媒の濡れを向上させたり変化させたりすることができる。更に他の実施形態において、輸送液体及び輸送蒸気が高度に充填された格子を経由することで、管の形状によって、上述した従来技術の

菱形管と比較して水力学的能力の向上、触媒充填量の向上、及び構造体の性能の全体的向上が可能となることが見出だされた。

【００１９】

１つ以上の実施形態において、本開示の規則充填物は、各垂直プレートに沿って設置された六角形状管を有していてもよく、該プレートは並んで組み合わせられて新たな規則充填物を形成している。六角形状管を用いた場合、従来の触媒蒸留構造体と比較して、水平流体透過管により多くの触媒を収容して、水力学的能力を損なうことなく触媒充填量を向上させることができる。これは一部には、水平流体透過管が６辺多角形の外形を有すると共に、垂直方向に整列した水平流体透過管をプレートが接続していることによるものである。得られる構造体では、触媒蒸留構造体用の隣接する水平流体透過管間の移行がスムーズになる。

【００２０】

加えて、触媒蒸留構造体は、ある形状に曲げるのが容易であり（例えば、平坦なメッシュシートで作製された水平流体透過管）、従って、溶接を全く又は最小限にしか必要とせず、管理許容差を緩和し、製造性を向上できる（すなわち、製造コスト及び製造時間の削減）部材を有していてもよい。更に、触媒蒸留構造体用の規則充填物は、必要とする水平流体透過管の数を少なくできる。触媒蒸留構造体用の規則充填物全体で、製品工学、透過管製造に係るリスクを最小化し、組立て時間の削減、ハードウェアコストの削減、重量及び覆いの削減を行うことができる。加えて、触媒蒸留構造体の規則充填物は、よりスムーズな流路、向上した触媒充填量、より良好な分離能、及び高い水力学的能力に加えて、プレートで接続された６辺多角形状の水平流体透過管の幾何学的形状を変化させる柔軟性も有することができる。更に、本開示の実施形態によれば、触媒蒸留構造体は、反応と反応物質からの生成物の分離とを同時に実施するために管及び溶接部の追加を必要とせず、垂直配置容器等の蒸留塔反応器や類似の構造体へ直接接続することができ、このため、このような触媒蒸留システムのコストを削減し、性能を向上できる。

【００２１】

図１～図３を参照すると、本明細書の実施形態は、いかにして触媒蒸留構造体に対して複数の水平流体透過管２が配置されるかという点に関してある空間的関係を有する充填構造体１を含む。いくつかの実施形態において、複数の水平流体透過管２は、充填構造体１において垂直方向に整列していてもよい。また、垂直方向整列管２を複数のプレート又はワイヤー３で接続することで、垂直方向に隣接するプレート間の流体連通を容易にできることも想定される。加えて、上記構造体は、上記垂直方向整列管２の隣接する行を複数有している。更に、複数の水平流体透過管２の空間的関係によって、蛇行流路４が形成される。触媒蒸留構造体の流路、触媒充填量、分離能、及び水力学的能力は、触媒蒸留構造体における管の空間的関係により決定できる。

【００２２】

図１を参照すると、図１は、複数の水平流体透過管２がある空間的関係を有する充填構造体１の正面模式図である。１２本の水平流体透過管２が図示されているが、これは単に例示を目的としたものであり、任意の数の水平流体透過管を使用できることを当業者なら理解するであろう。隣接する垂直方向に整列した水平流体透過管は、複数のプレート又はワイヤー３で接続されて、距離ｈだけ互いに離れている。更に、複数の水平流体透過管２が６辺多角形の外形を有するよう形成されることも想定される。例えば、６辺多角形は、六角形の４つの角で第１の角度ベータ（β）を有し、六角形の２つの角で第２の角度アルファ（α）を有する六角形であってもよい。第２の角度アルファ（α）は、六角形の最底部の角及び最上部の角にあってもよく、その場合、複数のプレート又はワイヤー３は、複数の水平流体透過管２の第２の角度アルファ（α）の角で接続される。更に、第１の角度ベータ（β）は第２の角度アルファ（α）より大きくてもよいことも想定される。例えば、第１の角度ベータ（β）の値は１３０°であってもよく、第２の角度アルファ（α）の値は１００°であってもよい。その場合、内角（β，α）の和は７２０°となる。具体的な数値を記載したが、角度（β，α）の値は単に例示を目的としたものであり、角度（β，

α）の値は、本開示の範囲から逸脱しない任意の値であってもよい。加えて、六角形は長さの異なる辺を有していてもよい。いくつかの実施形態において、六角形は、第１の長さ（ａ）の４辺と第２の長さ（ｔ）の２辺とを有していてもよい。また、第１の長さ（ａ）は第２の長さ（ｔ）より長くてもよい。第２の角度アルファ（α）は、第１の長さの辺のうちの２辺で形成される角にあってもよい。第１の角度ベータ（β）は、第１の長さの辺のうちの１辺と第２の長さの辺のうちの１辺とで形成される角にあってもよい。加えて、第２の長さ（ｔ）の２辺は、複数のプレート又はワイヤー３と平行であってもよい。更に、複数の水平流体透過管２の外形はＸ軸及びＹ軸に沿って対称であってもよいことも想定される。

【００２３】

更に図１を参照すると、水平流体透過管２は、垂直方向に隣接する行（Ａ～Ｅ）となるように整列していてもよい。例えば、垂直方向に隣接する行（Ａ～Ｅ）は、第１群（行Ａ、Ｃ、及びＥ）と第２群（行Ｂ及びＤ）とに分けられる。第１群（行Ａ、Ｃ、及びＥ）は、対応する行内で垂直方向に整列する複数の水平流体透過管２ａ、２ｃ、２ｅを有しており、行Ａ、Ｃ、及びＥは、水平流体透過管２ａ、２ｃ、２ｅが第１群（行Ａ、Ｃ、及びＥ）内で一方の行から他方の行へと水平方向に整列するように整列していてもよい。加えて、第２群（行Ｂ及びＤ）は、対応する行内で垂直方向に整列する複数の水平流体透過管２ｂ、２ｄを有しており、行Ｂ及びＤは、水平流体透過管２ｂ、２ｄが第１群（行Ｂ及びＤ）内で一方の行から他方の行へと水平方向に整列するように整列していてもよい。図１では５行あり、行内に２つ又は３つの水平流体透過管が存在しているが、いかに充填構造体１は２つ又は３つの水平流体透過管を有する５行に限定されず、行の数及び行内の水平流体透過管の数はそれぞれ任意の数であってもよいことを当業者なら理解するであろう。

【００２４】

更に図１で示した通り、充填構造体１は、隣接する行（Ａ、Ｃ、ＥとＢ、Ｄ）の水平流体透過管２ａ～２ｅがずれて、各列の管の一部が重なり合うが接触はしないように空間的に配置されている。重なり合うことで、流体用の蛇行流路４が得られ、それにより流体が構造体の管と接触する機会が増える。上述の通り、隣接する垂直方向に整列した水平流体透過管は、各行（Ａ～Ｅ）内で距離ｈだけ互いに離れるように複数のプレート又はワイヤー３で接続されている。加えて、隣接する垂直方向に整列した水平流体透過管（２ａ～２ｅ）の１つの行（Ａ～Ｅ）にある複数のプレート又はワイヤー３は、隣接する垂直方向に整列した水平流体透過管（２ａ～２ｅ）の隣接する行（Ａ～Ｅ）の複数のプレート又はワイヤー３から距離ｄだけ間隔を空けている。隣接する垂直方向に整列した水平流体透過管（２ａ～２ｅ）の全ての行（Ａ～Ｅ）間で同じ蛇行流路４となるように、距離ｄは行（Ａ～Ｅ）間で複数のプレート又はワイヤー３全てについて一定であってもよい。いかにして水平流体透過管２の幾何学的形状又は寸法、及び複数のプレート又はワイヤー３の高さｈによって流路４の幅が操作されるかを当業者なら理解するであろう。

【００２５】

いくつかの実施形態において、複数の水平流体透過管（２ａ～２ｅ）のうち任意の数の管が触媒３０を含んでもよく、他の管（２ａ～２ｅ）は空であってもよい。いくつかの場合において、複数の水平流体透過管（２ａ～２ｅ）は全て触媒３０を有していても空であってもよい。加えて、複数の水平流体透過管（２ａ～２ｅ）のうちいくつかが触媒３０を含むか空であると同時に、複数の水平流体透過管（２ａ～２ｅ）の任意の数の管が不活性物質（図示せず）又はこれらの組み合わせを含んでいてもよい。不活性物質は、化学反応の活性化エネルギーの低減にほとんど又は全く関与しない粒子であることが当該分野で知られている。

【００２６】

１つ以上の実施形態において、充填構造体１の最狭窄部における蒸気及び液体流用のわずかな開放領域が、水平流体透過管（２ａ～２ｅ）と蛇行流路４との寸法によって与えられる。例えば、所定のプレート間距離ｄに対して最も高い触媒密度では、蛇行流路４の幅ｗは略一定であってもよい。更に、より低い触媒密度が望ましい場合、垂直方向に整列した

水平流体透過管（２ａ～２ｅ）の間隔を大きくする（すなわち、複数のプレート又はワイヤー３の高さｈを大きくする）ことも想定される。その結果、複数のプレート又はワイヤー３から距離ｄだけ離れたままでありながら、複数の水平流体透過管（２ａ～２ｅ）が互いに更に離れるように、蛇行流路４の幅ｗが変化する。あるいは、不活性充填物又は空の管によって触媒密度を低下させてもよい。従って、充填構造体１において構造構成と管充填量とを組み合わせることで、多様な流体の接触に高度に順応できる接触手段が提供される。

【００２７】

図１に示した通り、いかにして充填構造体１が、良好な液体－触媒接触を維持するのに必要な触媒蒸留構造体への水力学的負荷を最小化し、蒸気－液体交換が起こる前の液体と触媒との接触時間を非常に短くできるかを当業者なら理解するであろう。良好な液体－触媒接触を維持すること、及び蒸気－液体交換が起こる前の液体と触媒との接触時間を非常に短くできることによって、フラッドポイント未満の水力学的負荷範囲にわたって、且つ幅広い運転条件（例えば還流比）にわたって触媒をより効率的に活用できる。加えて、平衡制限系に対する駆動力を大きくするために、充填構造体１の理論段相当高さ（ＨＥＴＰ）は低くてもよい。

【００２８】

触媒蒸留用途では、液相と蒸気相の両方が存在することになる。いくつかの実施形態において、液体は複数の水平流体透過管２と接触して膜を形成する。加えて、液体は、複数の水平流体透過管２の触媒３０又は他の充填材に吸着することで、複数の水平流体透過管２へある程度吸収される。充填構造体１は蒸留構造体として機能するが、複数の水平流体透過管２に粒子状物質が存在することや、それに対する液体の毛細管引力によって、従来の方法とは異なる環境が得られる。従来の方法では、液体や気体は、経路を通じて最も抵抗の少ない経路をたどる。しかしながら、塔の液体の一部が管で取り扱われると、抵抗の少ない開放経路では競争が少なくなり、従って、従来の方法で予想されるよりも背圧が低くなる。

【００２９】

図１に対して、図２Ａ～図２Ｈを参照すると、図２Ａ～図２Ｈは充填構造体１内の別の空間的関係及び管の別の幾何学的形状を表す。具体的には、図２Ａ～図２Ｈは、充填構造体１内で流体用の蛇行流路４を形成する複数の水平流体透過管２の別の幾何学的形状及び空間的関係の概要を示す。図２Ａでは、複数の水平流体透過管２は５辺多角形（すなわち五角形）の外形を有するよう形成されている。例えば、管２は、プレート又はワイヤー３と直交する上面１７、プレート又はワイヤー３と平行な２つの側面１８、及び２つの傾斜面１９を有し、２つの傾斜面１９が点２０を形成するものであってもよい。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の上面１７から垂直方向に隣接する管の点２０へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３０】

図２Ｂでは、複数の水平流体透過管２は円筒の外形を有するよう形成されている。例えば、管２は、プレート又はワイヤー３と平行な２つの側面２１と、該２つの側面２１に挟まれて接続された２つの曲面２２とを有していてもよい。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の曲面２２から垂直方向に隣接する管の曲面２２へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３１】

図２Ｃでは、複数の水平流体透過管２は丸い多角形の外形を有するよう形成されている。例えば、丸い多角形は円、楕円、又は長円であってもよい。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の接点から垂直方向に隣接する管の接点へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３２】

図２Ｄでは、複数の水平流体透過管２は４辺多角形（すなわち正方形又は菱形）の外形を有するよう形成されている。図２Ｄの空間的関係としては、特許文献１６に記載されたも

のが例示できるが、これに限定されない。この文献の教示全体が参照により本願に援用される。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の上部の角２３から垂直方向に隣接する管の底部の角２４へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３３】

図２Ｅでは、複数の水平流体透過管２はパイ型の外形を有するよう形成されている。例えば、管２は、１つの円形面２５と２つの線形面２６とを有していてもよい。２つの線形面２６はそれぞれ、１つの円形面２５に接続された第１端２７と、互いに接続されて第１端２７の下で点２８を形成する第２端とを有する。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の円形面２５から垂直方向に隣接する管の点２８へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３４】

図２Ｆでは、複数の水平流体透過管２はハート型の外形を有するよう形成されている。例えば、管２は、対称又は対称になる２つの曲面２９を有し、該２つの曲面２９が上点３１と底点３２とで接続してハート型を形成するものであってもよい。更に、より角張ったハートを形成するように２つの曲面２９が実際には線形であってもよいことも想定される。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の上点３１から垂直方向に隣接する管の底点３２へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３５】

図２Ｇでは、複数の水平流体透過管２は矢又は槍の外形を有するよう形成されている。例えば、管２は、下向き矢（図２Ｇに図示）又は上向き矢（図示せず）であってもよい。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管の先端から垂直方向に隣接する管の内角３４へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。

【００３６】

図２Ｈでは、複数の水平流体透過管２は、涙滴に似た形の外形を有するよう形成されている。例えば、涙滴は全体的に円形であるが、１つの接点がコーナーノード３５である。加えて、プレート又はワイヤー３は、１つの管のコーナーノード３５から垂直方向に隣接する管の接点へと垂直方向整列管２を接続していてもよい。更に、図１～図２Ｈを参照すると、複数の水平流体透過管２の外形は、それぞれの充填構造体１内の全ての管２についてただ１つの外形に限定されないことも想定される。いかにして図１～図２Ｈに記載した外形を相互に組み合わせて、本開示の範囲を逸脱することなく異なる外形を有する複数の管を含む充填構造体とすることができるかを当業者なら理解するであろう。

【００３７】

いくつかの実施形態において、図１～図２Ｈを参照すると、１つ以上の管２を取り除いて開放空間（図示せず）を残してもよい。開放空間によって横断経路の接続が可能であり、少なくとも気体用の蛇行経路（間隙経路等）が得られる。気体の流れは上向きのキャレット（上向きに流れる気体等）で表す。加えて、液体は、下向きのキャレット（下向きに流れる液体等）で表す通り、管２及びその材料の上及び中を流れることができる。キャレットの量は単に例示を目的としたものであり、液体及び気体流路は、本開示から逸脱することなくキャレット外を流れることもできる。更に、液体はプレート又はワイヤー３上及び中を流れることができる。管２が粒子状の触媒材料３０を含んでいてもよいことから、粒子状触媒材料を含む各管２の端部は、クリンプ、端部キャップの挿入、又は溶接等により封止されていてもよいことが更に想定される。加えて、管２のいくつかは、粒子状材料を全く含まなくてもよく、及び／又は不活性粒子状材料を含んでいてもよい。例えば、空隙充填物は密度がより低く、膨大な開放空間及び表面によって優れた蒸留特性が得られるものであってもよい。不活性要素は、触媒粒子状材料と同じ大きさであるか、あるいはそれより小さい又は大きくてもよい不活性粒子状材料で満たされた充填物である。いくつかの場合において、不活性要素によって、触媒要素と同じ水力学的特性を全て得ることができるが、反応蒸留とも呼ばれる触媒蒸留においては可逆反応であることが多い接触反応を低減させ得る。反応蒸留としては、例えば特許文献１１に記載されたものが例示できるが、これに限定されない。この文献の教示全体が参照により本願に援用される。従って、反応

性要素は希釈するが蒸留要素は保持することによって、触媒蒸留の分離面を高度なものにすることが可能である。言い換えれば、所定の充填構造体において触媒要素間に不活性要素を分散させることで、分別分離が強調される。一方、複数の触媒充填構造体を有する塔を含む系（図５参照）全体としては、反応の力が保持される。

【００３８】

図３を参照すると、図１に示した充填構造体１の複数の水平流体透過管２がアイソメトリック図として示されているが、充填構造体１を設置できる剛性骨格（図４参照）は示されていない。図３には、図１に記載した外形を有する複数の水平流体透過管２が示されているが、該外形は図１～図２Ｈに記載したいずれの外形であってもよい（単純化のみを目的として、図２Ａ～図２Ｈはアイソメトリック図として図示せず）。複数の水平流体透過管２はそれぞれ、上記管２の第１端６に開口部５を有していてもよい。更に、上記管２が、第１端６の反対側にある第２端（図示せず）に第２開口部（図示せず）を有していてもよいことも想定される。加えて、上記管２は、水平面Ｐにおいて一定の長さで水平に延在している。また、図３で示す通り、複数のプレート又はワイヤー３も、複数の水平流体透過管２と一致して水平面Ｐにおいて水平に延在していてもよい。更に、複数の水平流体透過管２は、（図１に記載の通り）隣接する行として示されており、隣接する行内で垂直方向に整列し、複数のプレート又はワイヤー３で接続されている。いくつかの実施形態において、隣接する行は、（図１に記載の通り）距離ｄで並んで整列していてもよい。図３では２０個の隣接する行を示しているが、本開示は２０個の垂直方向整列行に限定されず、１個以上の垂直方向整列行を有していればよい。更に、水平流体透過管２が、金網材料、各種透過性材料、又はこれらの組み合わせから選択される材料群で作製されていてもよいことも想定される。更に、金網材料は、金属、カーボンファイバー、プラスチック、ガラス、又は複合材料から選択できる。更に、水平流体透過管２は、一部のみが金網で作製され、別の部分は非透過性材料で作製されたものであってもよいことも想定される。加えて、複数のプレート又はワイヤー３も、金網材料、各種透過性材料、又は非透過性材料で作製されていてもよい。

【００３９】

図１～図３の水平透過管２は、管の断面形状が特定の方向から図示されている。例えば、図２Ｈの涙滴形状は、涙滴の角度がついた端部が上向きに、涙滴の曲線部が下向きに図示されている。本明細書中の実施形態では、開示した管形状を逆にしたものも考慮される。例えば、管は、涙滴の角度がついた端部が下向き、涙滴の曲線部が上向きの涙滴形状であってもよい。

【００４０】

更に、図１～図３の充填構造体は垂直方向で図示されているが、本明細書では、充填構造体が垂直に対してある角度をなして配置されてもよいことが考慮される。言い換えれば、構造体の方向が、上向きだが垂直に対して傾斜している蒸気経路４となるものであってもよく、プレート又はワイヤー３は、下向きだが垂直に対して傾斜している液体経路を管２間に提供してもよい。加えて、蒸留塔内の充填構造体の連続した垂直断面は、それぞれ反対の角度に向くことで、塔内で蒸気及び液体輸送用のジグザグパターンとなっていてもよい。

【００４１】

１つ以上の実施形態において、図４は、（図１～図３に記載した）充填構造体１を設置又は付加できる剛性骨格７を示している。剛性骨格７は、１本以上の支持ロッド９で隔てられている少なくとも２つの格子８Ａ、８Ｂを有していてもよい。加えて、支持ロッド９はそれぞれ、溶接、クリンプ、メカニカルファスナー、又は連結等によって両格子８Ａ、８Ｂへ固定されるか又は着脱可能に取り付けられる。支持ロッド９は、（図３と同じ）水平面Ｐにおいて一定の長さで水平に延在している。更に、格子８Ａ、８Ｂを互いに固定する際には、更にネジ付きロッド及びナット又はボルト（図示せず）を使用してもよいことも想定される。更に、格子８Ａ、８Ｂは複数の開口部１０を有していてもよい。いくつかの実施形態において、支持ロッド９は複数の開口部１０に付加されていてもよい。図４の得

られる構造体は、本発明の少なくとも１つの別の構造体及び１００～２００ポンドの負荷を支持する強固で能力の高いフレームである。剛性骨格７は、金属、カーボンファイバー、プラスチック、複合材料、又は各種耐荷重材料から選択される材料で作製できる。

【００４２】

上述の通り、充填構造体（１）は剛性骨格７に設置又は付加できる。複数の水平流体透過管（２）は格子８Ａ、８Ｂに設置できる。例えば、上記管（２）の第１端（６）を溶接、クリンプ、又は連結して第１の格子８Ａに固定するか又は着脱可能に取り付けることができ、加えて、上記管（２）の第２端を溶接、クリンプ、又は連結して第２の格子８Ｂに固定するか又は着脱可能に取り付けることができる。加えて、支持ロッド９と管（２）とは、格子８Ａ、８Ｂから等しく間隔を空けるよう同様な長さであってもよい。また、複数のプレート（３）も溶接、クリンプ、又は連結して格子８、８Ｂに固定するか又は着脱可能に取り付けることができる。更に、管（２）の開口部が格子８Ａ、８Ｂの開口部１０と一列に整列するように管（２）が剛性骨格７に配置されてもよいことも想定される。いくつかの実施形態において、格子８Ａ、８Ｂが支持ロッド９によって互いに固定されると、管（２）が開口部１０にしっかりと保持され結合するように、開口部１０は管（２）の幾何学的形状と略同じ大きさ及び構成である。

【００４３】

図５を参照すると、１つ以上の実施形態において、図５は、蒸留塔反応器１２に配置された１つ以上の触媒蒸留構造体１１を示す。触媒蒸留構造体１１は、図１～図４に記載の複数の水平流体透過管（２）を有する充填構造体（１）及び剛性骨格（７）を有していてもよい。加えて、触媒蒸留構造体１１は、当該分野で知られている溶接、クリンプ、接着剤、又はメカニカルファスナーによって蒸留塔反応器１２へ固定されても又は着脱可能に取り付けられてもよい。加えて、触媒蒸留構造体１１は、任意の効率的な方法で蒸留塔反応器１２に支持されていてもよい。例えば、触媒蒸留構造体１１は、ラシヒリング等の不活性蒸留充填物（図示せず）によって支持及び分離されていてもよい。更に図５に示す通り、蒸留塔反応器１２は、フローライン（矢印で図示）を介して蒸留塔反応器１２に取り付けられた１つ以上のリボイラー１３、コンデンサー１４、及び供給タンク１５を有していてもよい。いくつかの実施形態において、リボイラー１３は、フローラインを介して取り付けられたセパレーター１６を１つ以上有していてもよい。

【００４４】

図５では蒸留塔反応器１２に１つの触媒蒸留構造体１１しか示されていないが、いかに本開示はただ１つの触媒蒸留構造体１１に限定されず、本開示の範囲を逸脱することなく追加の触媒蒸留構造体を有していてもよいことを当業者なら理解するであろう。加えて、複数の触媒蒸留構造体１１は同じ又は異なる充填構造体（図１～図２Ｈに記載の構成）を有していてもよい。更に、蒸留塔反応器１２の様々な高さに２つ以上の触媒蒸留構造体１１が配置されていてもよいことも理解されるであろう。いくつかの実施形態において、これらの複数の触媒蒸留構造体１１は、蒸留塔反応器１２において垂直方向及び横方向に配置されていてもよい。更に、供給タンク１５から蒸留塔反応器１２へのフローラインは、蒸留塔反応器１２の触媒蒸留構造体１１より上に図示されているが、本開示はこのような配置に限定されず、該フローラインは触媒蒸留構造体１１の上でも、その下でも、その位置でも、その間でもよい。いかにして蒸留塔反応器１２が他の蒸留塔反応器へ取り付けられるかを当業者なら理解するであろう。更に、触媒蒸留の動的性質及び上述した蒸留特性の向上を考慮すると、蒸留塔反応器１２に含まれる一定量の触媒の希釈は取るに足らないものとなり得ることも想定される。いくつかの場合において、金網に充填される触媒の体積はその膨潤に対する反応に依存する。

【００４５】

図１及び図３について上述した通り、図３は六角形状管を有する構造体の３Ｄ模式図であり、図１は該構造体の断面模式図である。六角形状管は、流体（液体及び／又は気体）を透過する材料、優先的には金網で作製されている。六角形状管の全て又は少なくとも一部は、触媒材料を収容することで、規則充填物での触媒反応を促進できる。一方、収容され

た触媒表面と共に六角形状管表面を含む垂直プレートの全ての表面によって、蒸留プロセスのための蒸気相－液相間の相互作用及び物質移動を促進することができる。図面に示した通り、垂直プレートは互いに並んで積み重なるよう組み合わせられることで、接触することなくずれている隣接するプレートの六角形状管によって流体用の経路（図１に示す４）が形成される。各六角形状管は、通常、触媒を収容するのに使用されるが、必ずしも全ての管が触媒を含む必要はない。各六角形状管の寸法は通常同じであり、その形状は垂直方向及び水平方向という２つの軸に沿って対称である。また、各辺（ａ及びｔ等）の長さ及び各角度（α及びβ等）を調整して六角形状管の大きさを操作することで、規則充填物の触媒充填量を制御できる。六角形状管の大きさに加えて、各プレートに沿った所定の高さあたりの六角形状管の数、各プレートに沿った隣接する管間の接続ラインの長さ（ｈ）、及び隣接するプレート間の距離（ｄ）を調整して流路（４）の幅を操作することができ、それにより、規則充填物の流体力学的性能又は水力学的能力に影響を与えたり、制御したりできる。特許文献１６で報告された規則充填物と比較して、本明細書中の実施形態は、以下の利点の１つ以上を有する。

・各六角形状管は菱形管よりも多くの触媒を収容できるので、水力学的能力又は流体力学的性能を損なうことなく、所定の体積の規則充填物に対する触媒充填量を向上できる。

・六角形状管では、隣接する辺間の移行が菱形管よりもスムーズである。これは、六角形状管は平坦なメッシュシートから比較的容易に曲げられるため、このような規則充填物の製造プロセスを容易にできることを意味する。また、流体が触媒蒸留プロセス中に流路に沿って移動する際にはるかにスムーズな移行となるため、規則充填物の水力学的能力が向上する。

・本明細書中の六角形管は、特許文献１６の菱形管と比較して、単位体積あたりの充填質量を増加させることができる。いくつかの実施形態において、単位体積あたりの充填質量の増加率は１０％～５０％の範囲となる。また、顕著な流体力学的影響を及ぼさずに充填量（単位体積あたりの質量）の増加を達成できる。

・規則充填物は費用対効果を高くできるため、同じ性能を達成しつつも必要とされ得るプレート及び溶接部が少なくなる。

・この新規な規則充填物の設計は柔軟性を有しているため、触媒充填量、分離能、及び水力学的能力の点で六角形状管の寸法及び各プレートに沿った六角形状管の配置を変化させることで所望の触媒蒸留性能を達成できる。

・本開示の六角形デザインにおいて、辺の長さａ及びｔ並びに角度β及びαを調整することで六角形状管の大きさを操作できる。

【００４６】

要約すると、本明細書中の実施形態は、反応又は触媒蒸留プロセスに特に有用である新規な規則充填物に関する。しかしながら、この新規な構造体は、一般に、触媒材料の存在下、液体－液体、気体－液体、又は気体－気体の並流又は向流に使用できる。

【００４７】

本開示は限られた数の実施形態に関して記載したが、本明細書に記載した開示の範囲を逸脱することのない他の実施形態を考案できることを、本開示の恩恵を受ける当業者なら理解するであろう。従って、本開示の範囲は、添付の特許請求の範囲のみによって限定されるべきである。