

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4146941号

(P4146941)

(45) 発行日 平成20年9月10日(2008.9.10)

(24) 登録日 平成20年6月27日(2008.6.27)

(51) Int.Cl.		F I	
C 1 O G 45/02	(2006.01)	C 1 O G 45/02	
B O 1 J 8/02	(2006.01)	B O 1 J 8/02	Z
B O 1 J 23/88	(2006.01)	B O 1 J 23/88	M
B O 1 J 29/068	(2006.01)	B O 1 J 29/068	M

請求項の数 8 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願平10-288809	(73) 特許権者	390023630
(22) 出願日	平成10年9月25日(1998.9.25)		エクソンモービル リサーチ アンド エンジニアリング カンパニー
(65) 公開番号	特開平11-193386		EXXON RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY
(43) 公開日	平成11年7月21日(1999.7.21)		アメリカ合衆国, ニュージャージー州 08801-0900, アナンデイル, ルート 22 イースト, 1545, ピー. オー. ボックス 900
審査請求日	平成17年8月12日(2005.8.12)		
(31) 優先権主張番号	939, 021	(74) 代理人	100106596
(32) 優先日	平成9年9月26日(1997.9.26)		弁理士 河備 健二
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(72) 発明者	エドワード エス. エリス
			アメリカ合衆国, ニュージャージー州 07920, バスキング リッジ, ランキン アベニュー 39
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 気-液接触帯においてアンモニアと硫化水素を除くための中間段階を伴う向流反応器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも一つの向流する反応帯において、触媒の存在下で、液状の石油または化学薬品の流れを水素を含有する処理ガスと反応させる反応器であって、次の(a)~(g)を含むことを特徴とする反応器。

(a) 第一の向流する反応帯が触媒床を含み、かつ該第一の向流する反応帯の上流部に接して第一の非反応帯、および該第一の向流する反応帯の下流部に少なくとも第二の非反応帯を設けてなる第一の向流する反応帯を取り囲む連続壁。

(b) 該非反応帯域内に付設され、開放構造の固形物質からなる接触手段を含む気-液接触帯。

(c) 該第一の反応帯の非反応帯の上部に付設され、該液流の未反応部分を該反応器に導入するための液体導入手段。

(d) 該第一の反応帯の下部に付設され、処理ガスの未反応部分を該反応器に導入するためのガス導入手段。

(e) 該第一の反応帯の下部に付設され、該液流の反応部分を該反応器から排出するための液体排出手段。

(f) 該第一の反応帯の非反応帯の上部に付設され、該処理ガスの反応部分を該反応器から排出するためのガス排出手段。

(g) 該第一の反応帯に付設され、処理ガスの少なくとも一部に該第一の反応帯域を迂回させるためのガス迂回手段。

10

20

【請求項 2】

該反応器は、少なくとも二つの向流する反応帯を有することを特徴とする請求項 1 に記載の反応器。

【請求項 3】

実質的にすべての処理ガスは、少なくとも一つの反応帯を迂回させられることを特徴とする請求項 2 に記載の反応器。

【請求項 4】

該開放構造の固形物質は、ラッシヒリング (Rasching Rings)、インタロックサドル (Intalox Saddles)、ポールリング (Pall Rings)、ベルルサドル (Berl Saddles)、シクロヘリックススパイラルリング (Cyclohelix Spiral Rings)、レッシングリング (Lessing Rings) およびクロスパーティションリング (Cross-partition Rings) からなる群から選ばれることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の反応器。

10

【請求項 5】

該ガス迂回手段は、管 (tubes) であることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の反応器。

【請求項 6】

少なくとも一つの蒸気流路手段が、少なくとも一つの向流する反応帯の外部に付設されてなることを特徴とする請求項 2 に記載の反応器。

20

【請求項 7】

少なくとも一つの反応帯の外部に付設されてなる少なくとも一つの該蒸気流路手段は、該蒸気流路手段を通る蒸気流量を調節する手段を含むことを特徴とする請求項 6 に記載の反応器。

【請求項 8】

少なくとも一つの該蒸気流路手段は、二つ以上の連続する反応帯を迂回することを特徴とする請求項 2 に記載の反応器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、水素含有ガスなどの処理ガスの流れに対し液流が向流する液状の石油または化学薬品の流れを反応させるための反応器に関する。該反応器は、少なくとも一つの垂直に配置された反応帯を含み、各反応帯は少なくとも一つの触媒床を含んでいる。この反応器中において、各反応帯は蒸気迂回手段を含んでもよく、各反応帯の直前には非反応帯が配置される。各非反応帯には、液流からアンモニアや硫化水素のような気体状副生成物を除去するための気-液接触帯が配されている。

30

【0002】

【従来の技術】

石油精製および化学業界においては、より進んだ触媒と処理技術が常に求められている。そのような技術の一つである水素処理法が、より進んだヘテロ原子の除去、芳香族の飽和および沸点の低下に対するますます増大する需要に応じて用いられるようになってきている。この要求を満たすために、さらに活性度の高い触媒と改善された反応容器の設計が必要とされている。向流反応器は、並流反応器より優れた点を有しているため、この要求を満たすのに有用であり得る。向流水素処理法は既知であるが、その商業的な利用は極めて限定されている。米国特許第3,147,210号に、高沸点芳香族炭化水素の水素処理-水素化のための二段階処理法であるところの、一つの向流法が開示されている。原料は先ず最初に、好ましくは水素流に対して並流で接触水素処理を受ける。それから、水素リッチガス流に対して向流で硫黄感応貴金属水素化触媒上で水素化される。ジェット燃料が二段階水素化の前に水素添加脱硫法を受けるという点で異なるが、米国特許第3,767,562号および3,775,291号にはジェット燃料生産のための類似の製法が開示されている。米国特許第5,183,

40

50

556号にも、ディーゼル燃料油流におけるハイドロファイニング-水素添加芳香族に関する二段階並流-向流法が開示されている。

【0003】

米国特許第5,449,501号には触媒蒸留用に設計された装置が開示されている。一つの容器である同蒸留装置には、触媒床の上下に配置された分留部間の蒸気連通のための蒸気流路が設けられている。容器内の実質的にすべての蒸気が蒸気流路を上昇し、そして蒸気と液体間の望ましい接触が分留部内で起きる。

【0004】

向流水素処理の概念が知られてからある程度の期間が経過しているが、従来の向流反応容器は触媒床のフラッディングを起こしやすいので、商業運転における向流反応容器の使用は避けられてきた。すなわち、比較的高い速度で上昇する処理ガスが液体の流下を妨ぎ、液体は触媒床を通過できない。フラッディングは望ましくないが、触媒床がフラッディング状態に近付くにつれて、反応液による触媒接触が増進する。しかしながら、フラッディング始点近くでの運転においては、圧力や温度および液体やガス流量の変動による影響が大きくなる。その結果、フラッディングが起き、そして定常運転を回復するために装置が停止することもある。このような状況は連続的な商業運転にとって許容し難いものである。

【0005】

同時係属中の米国特許出願08/855,699号と08/885,788号において反応容器が開示されている。いずれの発明も「向流反応器」と題されて1997年6月30日に出願されており、そしていずれも本発明の中で参照されている。これら2件の同時係属中の出願において、従来の向流反応容器よりもフラッディングが起きにくい向流反応器が開示されている。これらの発明の特徴は、一つ又は複数の触媒床を通る、上昇する処理ガスの一部分を選択的に迂回させる蒸気流路を新しく使用することにある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

迂回管 (bypass tubes) が向流反応器を大いに改善する一方で、更なる改善、特に向流反応器の反応床を通過する液体流量を高める改善が当業界で求められている。フラッディングが起きにくい、あるいはフラッディングが起きた場合に停止することなく容易に回復できる、改善された向流反応器の設計も求められている。

【0007】

すなわち、本発明により、少なくとも一つの向流する反応帯において、触媒の存在下で、液状の石油または化学薬品の流れを水素を含有する処理ガスと反応させる反応器であって、次の(a)～(g)を含むことを特徴とする反応器が提供される。

(a) 第一の向流する反応帯が触媒床を含み、かつ該第一の向流する反応帯の上流部に接して第一の非反応帯、および該第一の向流する反応帯の下流部に少なくとも第二の非反応帯を設けてなる第一の向流する反応帯を取り囲む連続壁。

(b) 該非反応帯域内に付設され、開放構造の固形物質からなる接触手段を含む気-液接触帯。

(c) 該第一の反応帯の非反応帯の上部に付設され、該液流の未反応部分を該反応器に導入するための液体導入手段。

(d) 該第一の反応帯の下部に付設され、処理ガスの未反応部分を該反応器に導入するためのガス導入手段。

(e) 該第一の反応帯の下部に付設され、該液流の反応部分を該反応器から排出するための液体排出手段。

(f) 該第一の反応帯の非反応帯の上部に付設され、該処理ガスの反応部分を該反応器から排出するためのガス排出手段。

(g) 該第一の反応帯に付設され、処理ガスの少なくとも一部に該第一の反応帯域を迂回させるためのガス迂回手段。

【0008】

本発明は上記したとおりの反応器に係るものであるが、その好ましい態様として、次のものが包含される。

(1) 上記の反応器は、少なくとも二つの向流する反応帯を有することを特徴とする上記の反応器。

(2) 実質的にすべての処理ガスは、少なくとも一つの反応帯を迂回させられることを特徴とする(1)記載の反応器。

(3) 上記の開放構造の固形物質は、ラッシヒリング(Rasching Rings)、インタロックスサドル(Intalox Saddles)、ポールリング(Pall Rings)、ベルルサドル(Berl Saddles)、シクロヘリックススパイラルリング(Cyclohelix Spiral Rings)、レッシングリング(Lessing Rings)およびクロスパーティションリング(Cross-partition Rings)からなる群から選ばれることを特徴とする上記のいずれかに記載の反応器。

10

(4) 上記したガス迂回手段は、管(tubes)であることを特徴とする上記のいずれかに記載の反応器。

(5) 少なくとも一つの蒸気流路手段が、少なくとも一つの向流する反応帯の外部に付設されてなることを特徴とする(1)記載の反応器。

(6) 少なくとも一つの反応帯の外部に付設されてなる少なくとも一つの該蒸気流路手段は、該蒸気流路手段を通る蒸気流量を調節する手段を含むことを特徴とする(5)記載の反応器。

20

(7) 少なくとも一つの該蒸気流路手段は、二つ以上の連続する反応帯を迂回することを特徴とする(1)記載の反応器。

【0009】

【発明の実施の形態】

本発明の反応器は、水素含有処理ガスのようなガスを液体原料の流れに向流させることが有益であるところのあらゆる石油または薬品の処理における使用に適している。瞬間反応容器(instant reaction vessels)の非制限的例には、低沸点生成物への重油の水素転換、留出油沸点範囲の原料の水素化分解、硫黄や窒素や酸素などのヘテロ原子を除去するための様々な石油原料の水素化処理、芳香族の水素化、ワックス特にフィッシャー-トロプシュ法ワックスの水素異性化および/または接触脱蠟が含まれる。本発明の反応器は、その中で炭化水素原料が水素処理され水素化されるところのものであることが好ましく、より具体的に言えばヘテロ原子が除去される時、そして原料の芳香族留分の少なくとも一部が水素化される時のものが好ましい。

30

【0010】

向流処理において、一般的に、反応帯を構成する触媒床を通して上昇する処理ガスは液体の流下を妨げる。液体とガスの低速度域においては、上昇ガスによる妨げはフラディングを生じさせるのに十分ではなく、反応容器内の液体は触媒床を通して流下できる。しかしながら、上昇ガス流量または流下液体流量が大き過ぎる場合は、液体は触媒床を通して流下しきれない。この現象が「フラディング」と呼ばれている。触媒床内の液体の停滞が進み、そして液体が触媒床の上面に溜まり始めるであろう。任意の触媒床においてフラディングを引き起こす上昇ガス流量値は、流下する液体の流量や物性によって決定される。同様に、任意の触媒床においてフラディングを引き起こす流下液体流量値は、上昇するガスの流量や物性によって決定される。

40

【0011】

触媒床を迂回する上昇処理ガスの割合は、触媒床を通しての蒸気圧の低下が進むにつれて高まる。こうして、蒸気流路を備えた反応器は上昇蒸気に対する一種の自己調節型調整器として機能し、それによって反応容器の流体力学的運転窓口(operating window)が拡大される。更なるこの範囲の拡大が、流量調整手段を備えた一つ又は複数の外部蒸気流路を含めることによって達成される。このようなシステムは、触媒床圧力低下の制御とそれによる触媒接触効率の制御を可能ならしめる手段を提供する。内部蒸気流路と外部蒸気流路

50

が備えられる場合、外部蒸気流路が制御手段、好ましくはいわゆる「平衡」バイパスのための弁、によって制御可能であることが好ましい。この弁は勿論、触媒床内の圧力低下の変化に応じて送出される信号に応答して適切な開度に開閉するよう、自動的に制御され得る。すなわち、平衡バイパスは、望むだけフラッシングに近い状態で反応容器の運転を続けるために用いられるであろう。特定の触媒床を迂回した処理ガスは、他の触媒床を通過し、そして望ましい水素処理反応に寄与し、軽いあるいは気化した反応生成物を運び去り、硫化水素、水および/またはアンモニアなどの毒物を触媒から取り除くであろう。ガスの迂回は、1997年6月30日出願の同時係属米国特許出願08/885,788号に記載の発明を用いて、自己調整されてもよいであろう。

【0012】

このように蒸気流路は運転範囲を拡大し、そして反応容器のフラッシング点の近くで運転する機会を提供する。こうして、より安定した、より効率的な反応容器の運転が可能になる。更に、液体と蒸気の流量と温度における通常の変動に応答しつつ、反応容器が安全かつ連続的に運転できる。許容できる全流量の範囲がそれによって拡大される。フラッシング点近くでの運転においては、流下する液体によって触媒粒子がよく潤されるので、比較的効率的な接触が得られる。蒸気流路がない場合、従来の向流反応容器は、運転の継続性を維持するために、より低い効率で運転する必要がある。

【0013】

本明細書の中で異なる定義がなされていない限り、「下流」と「上流」という用語は、一般的に下方に流れるところの、液体の流れとの関連におけるものである。

【0014】

上述のごとく、本発明の反応容器は、反応の活性あるいは選択性を有意に低下させることなく、下流（液体の流れに関し）の気-液接触帯からの、実質的にすべての処理ガスが反応帯の触媒床を迂回できるよう、蒸気迂回手段を提供する。この場合、実質的にすべての処理ガスに少なくとも反応帯の一つを迂回させることができるよう、触媒床内の水素要求を満たすだけの十分な溶存水素を含む、好ましい原料を用いることができる。このことによって、他の向流反応器と比べて、反応帯を通過するいっそう大きな液体流量が可能になる。これは、各反応帯の直前と直後に気-液接触帯を設けることによって達成される。気-液接触帯は適当な気-液接触物質を含んでおり、流下する供給原料の流れからアンモニアや硫化水素などの望ましくない反応生成物を除去する作用を大いに高め、他方では水素のような溶存処理ガス成分で液体を望ましい状態に飽和させる。

【0015】

開放構造充填物質の主な機能は流下する液体からの硫化水素とアンモニアの除去の促進である、ということが理解されなければならない。開放構造充填物質は概してほとんど又は全く触媒活性を有しないが、同じ触媒活性が同開放構造物質に付与され得ると言うことが理解されなければならない。言い換えれば、接触帯にもまた触媒活性を有する物質を用いてもよい。

【0016】

本発明は、図1と図2に示されている二つの反応容器を説明することによって、より良く理解できる。配流手段（flow distributor means）や熱電対や伝熱装置などの、反応容器内の雑多な構成要素は、簡略化のために図に示されていない。図1には反応器1が示されている。この反応器1は、一般的に、少なくとも一つの反応帯R1を取り囲む連続壁2から構成されている。また、反応帯R1は液状供給原料と処理ガス間の望ましい反応を起こすのに適した一つの触媒床4を有している。図1の反応器にはR1、R2、R3の三つの反応帯が連続的に配されているが、以下に述べるように、反応帯の数は反応の個々のニーズ次第である。各反応帯には触媒床が含まれており、そして各反応帯の直前には非反応帯NR1、NR2、NR3が配されている。各非反応帯には、有効な気-液接触手段を有する気-液接触帯CZ1、CZ2、CZ3が含まれている。本明細書の中で用いられる「有効な気-液接触手段」とは、約90重量%以上、好ましくは約95重量%以上の捕集ガスを液流から取り除くのに十分な気-液接触を可能にする有効表面積を持つ固形物質を意味する。気-液接触帯の中で用いることができ

10

20

30

40

50

る好ましい固形物質とは、開放構造物質である。除去されるガスは一般的にアンモニアや硫化水素のような望ましくない反応生成物であり、これらは供給原料の流れが反応帯の中で反応させられる間に生成される。「開放構造」という用語は、液体の流下が有意に妨げられないよう、固形物質の間あるいは中に十分な空間があるということを意味する。勿論、除去のための十分な表面積が確保され、そして液体の流量が実質的に低下しないよう、開放構造物質の正確な量とサイズが調整されなければならない。本発明の反応器で使用するに適した気-液接触構造物の非制限的例には、ラッシヒリング、インタロックサドル、ポールリング、ベルルサドル、サイクロヘリックススパイラルリング、レッシングリングおよびクロスパティションリングのような従来の充填物形状に加えて金属とセラミックのトレイが含まれる。やはりトレイを含むこれらの開放構造物質は、気-液接触のための十分な表面積を提供し、そして流下液流から望ましい量のガスを除去する。一つの好ましい実施態様においては、流下する液流が、上流の気-液接触帯においてガスを除去された後になお、望ましい水素処理反応を起こさせるに十分な溶存水素を含有しているであろう。すなわち、反応帯での水素消費量が、流入してくる液体に溶存している量より少ない反応である。こうして、実質的にすべての処理ガスに反応帯の少なくとも一つを迂回させることができる。液体中の溶存水素が反応のために水素要求を満たすのに不十分な場合は、すべての処理ガスに反応帯を迂回させなくてもよい。

【0017】

液体導入手段6が、反応器1の上端部近くに配置されており、処理されるべき原料などの供給液を反応器1に流入させる。ガス導入手段8が、反応器1の底近くに配されており、処理ガスを反応器1に流入させる。液体排出手段10が、反応器1の底近くに配されており、反応後の液流を反応生成物として流出させる。同様に、ガス排出手段12が反応器1の上端部近くに設けられており、処理ガスを反応器1から流出させる。

【0018】

図1に示されているように、処理ガスに少なくとも一つの反応帯を迂回させるように、十分なサイズのガス迂回手段14が各反応帯を貫通して配置されている。一つの好ましい実施態様においては、ガス迂回手段が一つ又は複数のガス迂回管から成っている。各ガス迂回管は、二つの分離された非反応帯の間で処理ガスを連通させている。

【0019】

図2には本発明の反応容器のもう一つの実施態様が示されている。図2の反応器は、次の点を除いて、図1の反応器に類似している。すなわち、(a) 新鮮な処理ガスの一部が各反応帯の前のG1、G2およびG3の箇所に導入され、そして(b) すべての処理ガスが、一つの気-液接触帯を通過した後に、ガス迂回管16,18を通過して、二つ以上の反応帯、非反応帯および下流(処理ガスの流れに関し)の気-液接触帯を迂回して、反応器から流出する。図2の反応器のその他すべての特徴は、図1の反応器のそれらと同じであり、従って示される必要がない。

【0020】

本発明の実施において用いられる反応容器は所望の反応に適した温度と圧力において操作される。例えば、一般的な水素処理温度は、約50 psig ~ 約3,000 psig、好ましくは50 ~ 2,500 psigの圧力において約40 ~ 約450 の範囲である。図1について説明すると、液体原料は液体導入手段6を経由して反応器に入り、気-液接触帯CZ1を通過して下方へ進み、そこで任意の溶解ガスの少なくとも一部が原料から分離され、任意の未反応処理ガスと下流の反応帯からのガス状反応生成物とともにガス排出手段12を経由して反応器から流出する。原料の流れは、それから反応帯R1の触媒床を通り、そこで触媒表面の溶存水素と反応する。反応を起こした液流と任意の気相反応生成物は、下方の非反応帯NR2に送られ、非反応帯NR2は気-液接触帯CZ2中の上流に流れる処理ガスと接触する。上流に流れる処理ガスの流れの一部となる分離されたガスの少なくとも一部分は、ガス迂回手段14を経由して反応帯R1の触媒との接触を回避しながら、上流に流れ、非反応帯NR1に流入する。非反応帯NR1において、分離ガスの少なくとも一部分は、上流での処理から生じる望ましくないあらゆるガスが取り除かれたところの、気-液接触帯CZ1中の順流する新鮮な原料の流れと接触

10

20

30

40

50

する。前述のとおり、望ましくないガスと処理ガスは、次にガス排出手段12において反応器から流出する。この流れの形式は反応した供給原料の流れが下流の反応帯と非反応帯に流れて行くにしたがい繰り返される。

【0021】

本発明の実施において用いられる蒸気迂回管は、反応器の動作条件に耐えられるいかなる材料で構成されてもよい。適当な材料には、ステンレスや炭素鋼のような金属や、セラミック材料、および炭素繊維材料などの高性能複合材が含まれる。好ましいものは、円型横断面を有する管状流路である。各管は完全に垂直に設置される必要はない。つまり、それらは傾斜していても、曲がっていても、あるいは渦巻き状であっても構わない。流路は、一つの非反応帯から他の非反応帯へ迂回させたい蒸気の量と比率により、いかなる適当なサイズであってもよいことが理解されるべきである。さらに、一本または複数の迂回管は、上流床からの液体が流路に流れ込むのを防ぐための平坦で実質的に水平に設置される阻流板などの部材をその上部に有してもよい。また、実質的にすべての処理ガスが任意の反応帯を迂回するのを可能にするために、一本以上の迂回管をその任意の反応帯を経由して張り渡してもよい。複数の迂回管が用いられるときは、それらは反応器の垂直軸と同心円状に位置するのが好ましい。一本または複数の蒸気迂回管は、反応帯の外側に引き回すことができる。例えば、一つまたは複数の非反応帯が任意の一つまたは複数の他の非反応帯と連通するように、管配置が反応容器の外側で行われてもよい。蒸気迂回管は、一つの非反応帯から他の非反応帯へ送られる蒸気の一部を調整する流量調整手段を含んでもよい。もし蒸気迂回管が反応容器の外側にある場合は、流量調整手段は単なる流量調整弁であることが好ましい。

10

20

【0022】

この図2において示されるように、蒸气流路が二つ以上の触媒床あるいは反応帯を迂回することは本発明の範囲に属する。さらに、蒸气流路は固い壁の管のような中空構造である必要はないが、それらは不活性ボールや触媒粒子、あるいはその両方などの充填物質を含んでもよい。もし触媒粒子が、蒸气流路の中の充填物質の少なくとも一部を構成していれば、それらは気相反応体とさらに反応するために用いることができる。充填物質および/または蒸气流路中の触媒粒子は、反応帯の触媒床における触媒粒子とは異なるサイズでも構わない。そのような充填物質は、前記管のバイパス特性の改善を助ける場合もある。一つあるいは複数の並流反応器が一つあるいは複数の向流反応帯の上流に配置されることもまた本発明の範囲に属する。並流/向流帯は、別々の容器内にあっても同一容器内にあってもよい。すべての向流帯が同一容器中にあることが好ましい。

30

【0023】

本発明の実施により処理される原料は硫黄や窒素などの望ましくないヘテロ原子を含む可能性が高い。そのような場合、一つあるいは複数の並流反応帯が第一向流反応帯の上流にあることがしばしば好ましいであろう。つまり、上流の並流反応帯は、そこから水素含有処理ガスと原料供給の流れの両方が適切な水素化処理触媒の固定床を通して下方へ流れるようなものであることが好ましい。ここで用いられる「水素化処理」という用語は、硫黄や芳香族の水素添加を伴う窒素などのヘテロ原子の除去において主に活性である触媒の存在下で、水素含有処理ガスが使用される工程について用いられる。「水素処理」という用語は、水素化処理を含むが、また水素添加、水素添加分解、および水素異性化に対して主として活性である工程をも含む。本発明の目的のための開環、特にナフテン環もまた「水素処理」という用語に含めることができる。本発明において使用するために適切な水素化処理触媒は、任意の従来の水素化処理触媒であり、高表面積保持体、好ましくはアルミナ上で、好ましくは鉄、コバルトおよびニッケル、より好ましくはコバルトおよび/またはニッケル、そして最も好ましくはコバルトである少なくとも一つの第8族金属と、好ましくはモリブデンとタングステン、より好ましくはモリブデンである少なくとも一つの第6族金属より構成されるものを含む。他の適切な水素化処理触媒には、ゼオライト触媒、および貴金属パラジウムとプラチナから選択されるところの貴金属触媒が含まれる。一種類以上の水素化処理触媒を同一の反応容器内で用いることは本発明の範囲に属する。存在

40

50

する第8族金属の量の範囲は一般的に約2~20重量%、好ましくは約4~12%である。存在する第6族金属の量の範囲は一般的に約5~50重量%、好ましくは約10~40重量%、そしてより好ましくは約20%~30重量%であろう。すべての金属重量%は支持されている。「支持されている」とはパーセントが支持体の重量に基づいているということである。たとえば、もし支持体の重量が100gであるとすれば、20重量%の第8族金属とは、20gの第8族金属が支持されていることを意味する。一般的な水素化処理温度は、約50 psig~約3,000 psig、好ましくは約50 psig~2,500 psigの圧力において約100~約400 の範囲である。もし原料が比較的低レベルのヘテロ原子を含んでいれば、並流水素化処理工程は排除され、原料は直接的に芳香族の飽和、水素化分解、および/または開環反応帯へ送られる。

10

【0024】

水素処理の目的で、「水素含有処理ガス」という用語は、意図された反応のための少なくとも有効な量の水素を含む処理ガス流を意味する。反応容器に導かれる処理ガス流は、好ましくは、少なくとも約50容量%、より好ましくは少なくとも約75容量%の水素を含む。水素含有処理ガスは水素の含有量が豊富なメイクアップガス (make-up hydrogen-rich gas)、好ましくは水素ガスであることが好適である。

【0025】

本発明で使用される反応容器における液相は、一般に供給原料の高沸点成分である。気相は、一般的には、水素含有ガスと、ヘテロ原子不純物、そして新鮮な原料中の気化した低沸点成分、および水素処理反応の軽質製品の混合物である。もし気相排出物がさらに水素処理を必要とするのであれば、それは付加的な水素処理触媒を含む気相反応帯に送ることが可能であり、さらなる反応のために適切な水素処理条件に委ねられる。すべての反応帯は非反応帯によって分離された同じ容器内にあるか、あるいは別々の容器内であってもよいと理解されるべきである。後者の場合の非反応帯は、一つの容器から別の容器へと導く気-液接触物質を含む移送管であってもよい。すでに十分に低レベルのヘテロ原子を含む原料が直接的に芳香族の飽和および/または分解のために向流水素化処理反応帯へ送られることも本発明の範囲に属する。もし前処理工程がヘテロ原子のレベルを下げるために行われるならば、蒸気と液体を分離し、排出液を向流反応容器の上部に導くことができる。前処理段階からの蒸気は別個に処理されても本発明の反応容器からの気相生成物と化合させてもよい。もしヘテロ原子と芳香族種をいっそう減少させることが望まれるか回収システムに直接送られるならば、気相生成物には、さらに気相水素処理を加えてもよい。

20

30

【0026】

【発明の効果】

前述のように、接触帯における液と処理ガスの向流接触は排出流からの硫化水素とアンモニアなどの溶解ガス不純物を除去し、それにより水素分圧と触媒性能の両方を改善する。結果として得られる最終液体生成物は元の原料よりも実質的に低レベルのヘテロ原子を含むであろう。この液体生成物流は下流の水素処理あるいは転換工程に送られてもよい。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、反応器が三つの反応帯を有する、本発明の一実施態様を示している。上昇蒸気の一部が反応帯を迂回でき、そして各反応帯の上流にある気-液接触帯の中で流下する液体に接触できるよう、各反応帯には蒸気迂回管が設けられている。

40

【図2】図2には本発明の反応器のもう一つの実施態様が示されている。この反応器においては、処理ガスと液流からのガス状不純物が反応器のガス出口へ直接送られる。また、それぞれの気-液接触帯の下流(液体の流れに関し)に導入される新鮮な処理ガスも図示されている。

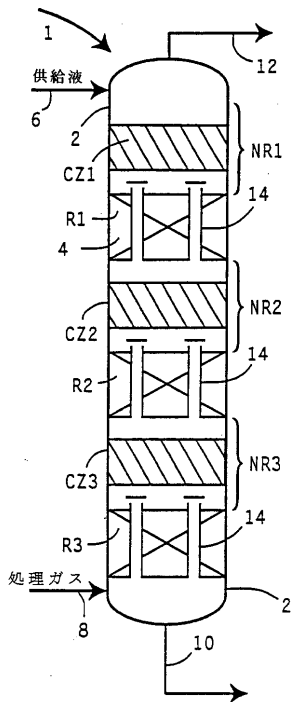
【符号の説明】

- 1 反応器
- 2 連続壁
- 4 触媒床
- 6 液体導入手段

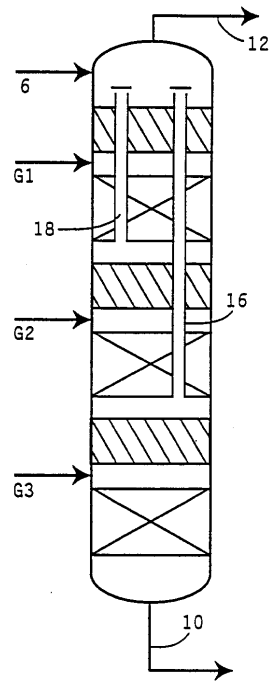
50

- 8 ガス導入手段
- 10 液体排出手段
- 12 ガス排出手段
- 14 ガス迂回手段
- 16, 18 ガス迂回管

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 ラメッシュ ガプタ

アメリカ合衆国, ニュージャージー州 07922, バークレイ ハイツ, ローレンス ドライブ
57

審査官 山田 泰之

(56)参考文献 特開昭58-109591(JP, A)

特開昭57-127404(JP, A)

米国特許第03425810(US, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C10G 45/02

B01J 8/02

B01J 23/88

B01J 29/068