

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード(参考)		
C 0 7 C	5/03	(2006.01)	C 0 7 C	5/03		4 H 0 0 6		
C 0 7 C	9/06	(2006.01)	C 0 7 C	9/06		4 H 0 3 9		
C 0 7 C	9/08	(2006.01)	C 0 7 C	9/08				
C 0 7 B	61/00	(2006.01)	C 0 7 B	61/00	3 0 0			

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全21頁)

(21)出願番号 特願2012-244817(P2012-244817)  
 (22)出願日 平成24年11月6日(2012.11.6)

(71)出願人 000195661  
 住友精化株式会社  
 兵庫県加古郡播磨町宮西3 4 6 番地の1  
 (74)代理人 100075557  
 弁理士 西教 圭一郎  
 (72)発明者 桑名 晃裕  
 兵庫県加古郡播磨町宮西3 4 6 番地の1  
 住友精化株式会社内  
 (72)発明者 畑 啓之  
 兵庫県加古郡播磨町宮西3 4 6 番地の1  
 住友精化株式会社内

Fターム(参考) 4H006 AA02 AA04 AC11 AD18 BA25  
 BA55 BD10 BD41 BD51 BD53  
 BD84 BE20  
 4H039 CA12 CB10

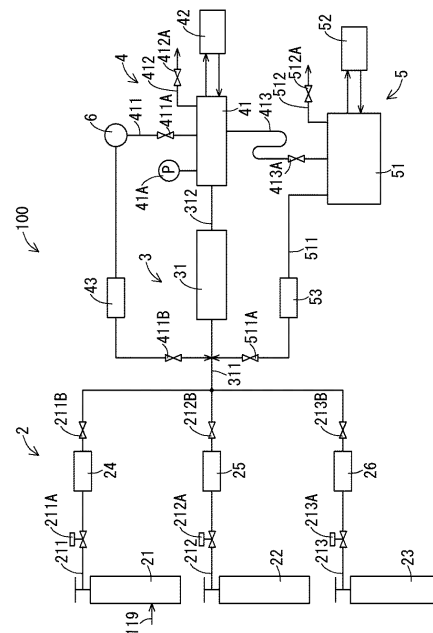
(54) 【発明の名称】パラフィンの製造方法およびパラフィン製造装置

(57) 【要約】

【課題】 オレフィンからパラフィンを生成する水添反応において、反応温度の上昇を抑制することができ、その結果、水添反応時にオレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制して、高純度のパラフィンを生成することができるパラフィンの製造方法、およびパラフィン製造装置を提供する。

【解決手段】 パラフィン製造装置(100)は、導出部(2)と水添反応部(3)とを備える。導出部(2)は、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ導出して、水添反応部(3)の反応器(31)に供給する。水添反応部(3)の反応器(31)内では、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する。

【選択図】 図2B



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

原料オレフィン、原料水素およびパラフィン反応器に供給する供給工程と、  
前記反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する水添反応工程と、を含むことを特徴とするパラフィンの製造方法。

**【請求項 2】**

前記水添反応工程において水添反応が行われた後の前記反応器内に存在するパラフィンを含む反応物を、分縮器に供給する反応物供給工程と、

前記分縮器において、反応物中のパラフィンの一部が液化するように該反応物を分縮することによって液相成分と気相成分とに分離して、液相成分および気相成分をそれぞれ分縮器から導出する分縮工程と、

前記分縮器から導出された気相成分を再利用原料およびパラフィンとして前記反応器に供給するリサイクル供給工程と、

前記分縮器から導出された液相成分をパラフィンの精製物として回収する回収工程と、をさらに含むことを特徴とする請求項 1 に記載のパラフィンの製造方法。

**【請求項 3】**

前記供給工程の前工程として、前記原料オレフィンの元となる原料元オレフィンを、銀イオンを含む分離体と接触させることによって、原料元オレフィンから不純物を分離してオレフィンの精製物を得るオレフィン精製工程を含み、

前記供給工程では、前記オレフィン精製工程で得られたオレフィンの精製物を、原料オレフィンとして前記反応器に供給することを特徴とする請求項 1 または 2 に記載のパラフィンの製造方法。

**【請求項 4】**

前記原料オレフィンが、炭素数 2 または 3 のオレフィンであることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 つに記載のパラフィンの製造方法。

**【請求項 5】**

原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ貯留する貯留部と、

前記貯留部から原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ導出する導出部と、

前記導出部によって前記貯留部から導出された原料オレフィン、原料水素およびパラフィンが供給される反応器を有し、該反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する水添反応部と、を備えることを特徴とするパラフィン製造装置。

**【請求項 6】**

前記反応器において水添反応が行われた後の該反応器内に存在するパラフィンを含む反応物を分縮する分縮部であって、

反応物中のパラフィンの一部が液化するように該反応物を分縮することによって液相成分と気相成分とに分離する分縮器と、

前記分縮器において分離された気相成分を該分縮器から導出する気相成分導出部と、

前記分縮器において分離された液相成分を該分縮器から導出する液相成分導出部と、を有する分縮部と、

前記気相成分導出部によって前記分縮器から導出された気相成分を再利用原料およびパラフィンとして前記反応器に供給するリサイクル供給部と、

前記液相成分導出部によって前記分縮器から導出された液相成分をパラフィンの精製物として回収する回収部と、をさらに備えることを特徴とする請求項 5 に記載のパラフィン製造装置。

**【請求項 7】**

前記導出部の前段に設けられるオレフィン精製部であって、前記原料オレフィンの元となる原料元オレフィンを、銀イオンを含む分離体と接触させることによって、原料元オレ

10

20

30

40

50

フィンから不純物を分離してオレフィンの精製物を得るオレフィン精製部をさらに備え、前記導出部は、前記オレフィン精製部で得られたオレフィンの精製物を、原料オレフィンとして前記貯留部から導出することを特徴とする請求項 5 または 6 に記載のパラフィン製造装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、エタンおよびプロパンなどのパラフィンの製造方法およびパラフィン製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

低級パラフィンの一例であるプロパンは、次世代パワーデバイス材料である SiC の原料用途など、半導体電子材料分野で利用され、水素希釈のプロパンガス、およびプロパンの純ガスで用いられる。かかる用途については、プロパンはより高純度であることが要求される。

【0003】

高純度プロパンの原料として用いるプロパンを主成分とする原料ガスには、不純物として例えば、エタン、プロピレン、イソブタン、ノルマルブタンが高濃度含まれている。この原料ガスからプロパンを精製する方法としては、たとえば、蒸留、膜分離、吸着分離、吸収分離などの方法が挙げられる。たとえば、特許文献 1 には、プロピレンとプロパンとを蒸留法によって分離することが記載されている。

【0004】

特許文献 1 に記載の技術のように、蒸留法によって、たとえばプロピレンとプロパンとを分離する場合、それらの沸点が近い（沸点差 4.9 ）、その分離に多段階で蒸留を繰り返す必要がある。したがって、大規模な設備と精密な蒸留条件の設定が必要であり、実用化するうえで多大な障壁となっている。炭素数が同一のオレフィンとパラフィンとを、蒸留法によって分離する場合についても同様の問題が生じる。

【0005】

このような問題を解決する方法として、特許文献 2 には、液体状のオレフィンと水素とを接触させて水添反応させることによって、パラフィンを生成する方法が記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献 1】特開 2002 - 356448 号公報

【特許文献 2】米国特許第 3509226 号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

特許文献 2 に記載されるパラフィンの製造方法では、水添反応によってオレフィンからパラフィンを生成するので、蒸留のような煩雑な操作を行うことなく、効率よくパラフィンを製造することができる。

【0008】

しかしながら、特許文献 2 に記載されるパラフィンの製造方法では、オレフィンからパラフィンを生成する水添反応において、反応温度が 200 を超える温度にまで上昇してしまう場合がある。このような場合には、水添反応時にオレフィンまたはパラフィンの分解が発生し、その結果、高純度のパラフィンを生成することができないという問題がある。

【0009】

本発明の目的は、オレフィンからパラフィンを生成する水添反応において、反応温度の

10

20

30

40

50

上昇を抑制することができ、その結果、水添反応時にオレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制して、高純度のパラフィンを生成することができるパラフィンの製造方法、およびパラフィン製造装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 1 0 】

本発明は、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンを反応器に供給する供給工程と

、  
前記反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する水添反応工程と、を含むことを特徴とするパラフィンの製造方法である。

10

【 0 0 1 1 】

また本発明のパラフィンの製造方法は、前記水添反応工程において水添反応が行われた後の前記反応器内に存在するパラフィンを含む反応物を、分縮器に供給する反応物供給工程と、

前記分縮器において、反応物中のパラフィンの一部が液化するように該反応物を分縮することによって液相成分と気相成分とに分離して、液相成分および気相成分をそれぞれ分縮器から導出する分縮工程と、

前記分縮器から導出された気相成分を再利用原料およびパラフィンとして前記反応器に供給するリサイクル供給工程と、

前記分縮器から導出された液相成分をパラフィンの精製物として回収する回収工程と、  
をさらに含むことを特徴とする。

20

【 0 0 1 2 】

また本発明のパラフィンの製造方法は、前記供給工程の前工程として、前記原料オレフィンの元となる原料元オレフィンを、銀イオンを含む分離体と接触させることによって、原料元オレフィンから不純物を分離してオレフィンの精製物を得るオレフィン精製工程を含み、

前記供給工程では、前記オレフィン精製工程で得られたオレフィンの精製物を、原料オレフィンとして前記反応器に供給することを特徴とする。

【 0 0 1 3 】

また本発明のパラフィンの製造方法では、前記原料オレフィンが、炭素数 2 または 3 の  
オレフィンであることを特徴とする。

30

【 0 0 1 4 】

また本発明は、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ貯留する貯留部と、

前記貯留部から原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ導出する導出部と、

前記導出部によって前記貯留部から導出された原料オレフィン、原料水素およびパラフィンが供給される反応器を有し、該反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する水添反応部と、を備えることを特徴とするパラフィン製造装置である。

40

【 0 0 1 5 】

また本発明のパラフィン製造装置は、前記反応器において水添反応が行われた後の該反応器内に存在するパラフィンを含む反応物を分縮する分縮部であって、

反応物中のパラフィンの一部が液化するように該反応物を分縮することによって液相成分と気相成分とに分離する分縮器と、

前記分縮器において分離された気相成分を該分縮器から導出する気相成分導出部と、

前記分縮器において分離された液相成分を該分縮器から導出する液相成分導出部と、  
を有する分縮部と、

前記気相成分導出部によって前記分縮器から導出された気相成分を再利用原料およびパラフィンとして前記反応器に供給するリサイクル供給部と、

50

前記液相成分導出部によって前記分縮器から導出された液相成分をパラフィンの精製物として回収する回収部と、をさらに備えることを特徴とする。

【 0 0 1 6 】

また本発明のパラフィン製造装置は、前記導出部の前段に設けられるオレフィン精製部であって、前記原料オレフィンの元となる原料元オレフィンを、銀イオンを含む分離体と接触させることによって、原料元オレフィンから不純物を分離してオレフィンの精製物を得るオレフィン精製部をさらに備え、

前記導出部は、前記オレフィン精製部で得られたオレフィンの精製物を、原料オレフィンとして前記貯留部から導出することを特徴とする。

【 発 明 の 効 果 】

10

【 0 0 1 7 】

本発明によれば、パラフィンの製造方法は、供給工程と水添反応工程とを含む。供給工程では、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンを反応器に供給する。そして、水添反応工程では、反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する。

【 0 0 1 8 】

本発明のパラフィンの製造方法では、反応器内における原料オレフィンからパラフィンを生成する水添反応が、反応開始時からパラフィンの存在下で行われるので、パラフィンが有する顕熱により反応温度の上昇を抑制することができる。その結果、反応器内における水添反応時にオレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制することができ、高純度のパラフィンを生成することができる。

20

【 0 0 1 9 】

また本発明によれば、パラフィン製造装置は、貯留部と、導出部と、水添反応部とを備える。貯留部は、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ貯留する。導出部は、貯留部から原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ導出する。そして、水添反応部は、導出部によって貯留部から導出された原料オレフィン、原料水素およびパラフィンが供給される反応器を有し、該反応器内において、パラフィンが存在した状態で、触媒の存在下で原料オレフィンと原料水素とを接触させて水添反応させることによってパラフィンを生成する。

【 0 0 2 0 】

30

本発明のパラフィン製造装置では、反応器内における原料オレフィンからパラフィンを生成する水添反応が、反応開始時からパラフィンの存在下で行われるので、パラフィンが有する顕熱により反応温度の上昇を抑制することができる。その結果、反応器内における水添反応時にオレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制することができ、高純度のパラフィンを生成することができる。

【 図 面 の 簡 単 な 説 明 】

【 0 0 2 1 】

【 図 1 】 本発明の一実施形態に係るパラフィンの製造方法の工程を示す工程図である。

【 図 2 A 】 本発明の第1実施形態に係るパラフィン製造装置100の構成を示す図である。

40

【 図 2 B 】 本発明の第1実施形態に係るパラフィン製造装置100の構成を示す図である。

【 図 3 】 本発明の第2実施形態に係るパラフィン製造装置200の構成を示す図である。

【 発 明 を 実 施 す る た め の 形 態 】

【 0 0 2 2 】

図1は、本発明の一実施形態に係るパラフィンの製造方法の工程を示す工程図である。本実施形態のパラフィンの製造方法は、図1に示すオレフィン精製工程s1と、原料供給工程s2と、水添反応工程s3と、反応物供給工程s4と、分縮工程s5と、リサイクル供給工程s6と、回収工程s7とを含む。図2A、2Bは、本発明の第1実施形態に係るパラフィン製造装置100の構成を示す図である。本実施形態のパラフィン製造装置10

50

0 は、エチレンおよびプロピレンなどのオレフィン還元して、エタンおよびプロパンなどのパラフィン製造するための装置である。

【 0 0 2 3 】

パラフィン製造装置 100 は、オレフィン精製部 1 と、導出部 2 と、水添反応部 3 と、分縮部 4 と、回収部 5 と、リサイクル供給部である気相成分送出ポンプ 6 とを備える。このパラフィン製造装置 100 は、本発明に係るパラフィンの製造方法を実現し、オレフィン精製部 1 がオレフィン精製工程 s 1 を実行し、導出部 2 が原料供給工程 s 2 を実行し、水添反応部 3 が水添反応工程 s 3 および反応物供給工程 s 4 を実行し、分縮部 4 が分縮工程 s 5 を実行し、気相成分送出ポンプ 6 がリサイクル供給工程 s 6 を実行し、回収部 5 が回収工程 s 7 を実行する。

10

【 0 0 2 4 】

オレフィン精製部 1 は、後述の水添反応部 3 における水添反応時に用いられる原料オレフィンの元となる原料元オレフィン（以下、「粗オレフィン」という）を、銀イオンを含む分離体と接触させることによって、粗オレフィンから不純物を分離してオレフィンの精製物を得る。前記分離体としては、銀イオンがドープされた分離膜、銀イオンが担持された吸着剤、および銀イオンを含有する吸収液を挙げることができる。以下では、分離体として銀イオンを含有する吸収液を用いた場合を例として説明する。

【 0 0 2 5 】

図 2 A に示すように、オレフィン精製部 1 は、粗オレフィンシリンダ 11、吸収塔 13、放散塔 14、第 1 ミスト除去器 15、第 2 ミスト除去器 16、および脱水塔 18 を含んで構成される。

20

【 0 0 2 6 】

粗オレフィンシリンダ 11 は、オレフィンを主成分として含有する粗オレフィンが気体として充填されたシリンダであり、高圧条件下で粗オレフィンガスが封入されている。粗オレフィンガス中の主成分であるオレフィンとしては、エチレン、プロピレン、シクロプロペン、1-ブテン、2-ブテン、イソブテンなどが挙げられるが、常温（25℃）で気体状のオレフィンであれば特に限定されるものではない。

【 0 0 2 7 】

本発明は、前記のオレフィンのうち、炭素数 2 または 3 のオレフィン（エチレン、プロピレンなど）を主成分として含有する粗オレフィンを用いた場合に特に効果的である。炭素数 2 または 3 のオレフィンを主成分として含有する粗オレフィンを用いた場合、本実施形態のパラフィン製造装置 100 は、炭素数 2 または 3 のパラフィン（エタン、プロパン）を製造することになる。

30

【 0 0 2 8 】

粗オレフィンシリンダ 11 から導出された粗オレフィンガスは、吸収塔 13 に連続的に導入される。粗オレフィンシリンダ 11 と吸収塔 13 との間には、流量調整器 12 が設けられた粗オレフィンガス導入管 111 が接続されている。粗オレフィンシリンダ 11 から導出された粗オレフィンガスは、流量調整器 12 で所定の流量に制御されて粗オレフィンガス導入管 111 内を流過して、吸収塔 13 に導入される。吸収塔 13 に導入される粗オレフィンガスの流量は、たとえば、吸収塔 13 の塔断面積  $1 \text{ m}^2$  あたり  $1 \sim 100 \text{ L/s}$  である。

40

【 0 0 2 9 】

吸収塔 13 は、中空の内部空間を有する密閉容器であり、その内部空間には銀イオン含有溶液からなる吸収液が貯留されている。この吸収液は、たとえば、所定の濃度に調製された硝酸銀水溶液である。粗オレフィンガス導入管 111 の一端部は、吸収塔 13 の下部において吸収液中で開放している。粗オレフィンシリンダ 11 から導出されて粗オレフィンガス導入管 111 内を吸収塔 13 に向けて流れる粗オレフィンガスは、粗オレフィンガス導入管 111 の前記一端部から吸収液中に流れ込む。このようにして、粗オレフィンガスが、銀イオンを含有する吸収液と接触することになる。吸収液と接触した粗オレフィンガスは、吸収液に吸収される。粗オレフィンガス中の主成分であるオレフィンの吸収液に

50

対する溶解度は、粗オレフィンガス中の不純物（たとえばパラフィン）の吸収液に対する溶解度に比べて相当に大きいので、オレフィンが優先的に吸収液に吸収される。

【 0 0 3 0 】

吸収塔 1 3 内の吸収液（たとえば硝酸銀水溶液）については、濃度が高いほうが単位体積・単位時間あたりのオレフィンの吸収量が多くなるので好ましい。実用上の観点から、オレフィンがプロピレンの場合、硝酸銀水溶液の濃度は、例えば 1 ~ 6 mol / L の範囲とされ、より好ましくは 3 ~ 5 mol / L とされる。硝酸銀水溶液の温度については、低温であるほうがオレフィンの吸収量が多くなるので有利であり、たとえば 0 ~ 60 の範囲とされ、より好ましくは 0 ~ 40 とされる。吸収塔 1 3 の内部圧力については、一定範囲では高圧であるほうがオレフィンの吸収量が多くなるので好ましい。実用上の観点から、吸収塔 1 3 の内部圧力は、たとえば 0 . 1 ~ 0 . 8 MP a（ゲージ圧：以下「（ G ）」と表記する）とされる。

10

【 0 0 3 1 】

また、吸収塔 1 3 には、第 1 吸収液導出管 1 1 2 と第 1 ガス導出管 1 1 4 とが接続されている。第 1 吸収液導出管 1 1 2 は、その一端部が吸収塔 1 3 の下部において吸収液中で開放しており、吸収塔 1 3 内の吸収液（粗オレフィンガスが吸収された吸収液、以下「粗オレフィンガス吸収液」という）を塔外へ導出するための配管である。この第 1 吸収液導出管 1 1 2 は、その他端部が吸収液導入管 1 1 3 と接続されている。吸収塔 1 3 から導出されて第 1 吸収液導出管 1 1 2 内を流れる粗オレフィンガス吸収液は、流量制御弁 1 1 2 A によって所定の流量に調整されて、吸収液導入管 1 1 3 を介して後述する放散塔 1 4 に

20

【 0 0 3 2 】

第 1 ガス導出管 1 1 4 は、吸収塔 1 3 の上部に接続されており、吸収塔 1 3 内に貯留される吸収液に吸収されなかったガス（非吸収ガス）を塔外へ導出するための配管である。この第 1 ガス導出管 1 1 4 は、その一端部が吸収塔 1 3 の上部に接続され、他端部が後述する第 1 ミスト除去器 1 5 に接続されている。吸収塔 1 3 から導出されて第 1 ガス導出管 1 1 4 内を流れる非吸収ガスは、第 1 ミスト除去器 1 5 に導入される。

【 0 0 3 3 】

上記のように構成される吸収塔 1 3 としては、たとえば、公知の気泡塔、充填塔、濡れ壁塔、スプレー塔、スクラバー、棚段塔などを採用することができる。また、吸収塔 1 3 には、吸収塔 1 3 内に貯留される吸収液を所望の温度に維持するための温度調整装置が取り付けられている。この温度調整装置は、たとえば、気体または液体からなる温調媒体を、吸収塔 1 3 の周囲に設けられたジャケットに通流させる。

30

【 0 0 3 4 】

吸収塔 1 3 から導出された粗オレフィンガス吸収液は、吸収塔 1 3 の内部圧力と放散塔 1 4 の内部圧力との圧力差によって、吸収液導入管 1 1 3 を介して放散塔 1 4 に導入される。なお、前記圧力差が小さい場合には、ポンプを用いて粗オレフィンガス吸収液を移送するようにしてもよい。放散塔 1 4 に導入される粗オレフィンガス吸収液の流量は、流量制御弁 1 1 2 A によって調整され、たとえば、放散塔 1 4 の塔断面積 1 m<sup>2</sup> あたり 0 . 1 ~ 1 0 L / s e c である。

40

【 0 0 3 5 】

放散塔 1 4 は、中空の内部空間を有する密閉容器であり、その内部空間には所定量の粗オレフィンガス吸収液を収容可能である。この放散塔 1 4 は、その内部空間に収容された粗オレフィンガス吸収液に含まれるガス成分を放散させる。当該ガス成分を効率よく放散させる観点から、放散塔 1 4 の内部温度は吸収塔 1 3 に比べて高くされていることが好ましく、内部圧力は吸収塔 1 3 に比べて低くされていることが好ましい。放散塔 1 4 内の粗オレフィンガス吸収液の温度は、オレフィンがプロピレンの場合、たとえば 1 0 ~ 7 0 が好ましく、2 0 ~ 7 0 がより好ましい。放散塔 1 4 の内部圧力は、オレフィンがプロピレンの場合、たとえば - 0 . 0 9 ~ 0 . 3 MP a（G）が好ましく、0 ~ 0 . 3 MP a（G）がより好ましい。

50

## 【 0 0 3 6 】

また、放散塔 1 4 には、第 2 ガス導出管 1 1 5 と第 2 吸収液導出管 1 1 6 とが接続されている。第 2 ガス導出管 1 1 5 は、放散塔 1 4 の上部に接続されており、粗オレフィンガス吸収液から放散されたガス成分（以下、「放散ガス」という）を塔外へ導出するための配管である。この第 2 ガス導出管 1 1 5 は、その一端部が放散塔 1 4 の上部に接続され、他端部が後述する第 2 ミスト除去器 1 6 に接続されている。放散塔 1 4 から導出されて第 2 ガス導出管 1 1 5 内を流れる放散ガスは、第 2 ミスト除去器 1 6 に導入される。

## 【 0 0 3 7 】

第 2 吸収液導出管 1 1 6 は、その一端部が放散塔 1 4 の下部において粗オレフィンガス吸収液中で開放しており、放散塔 1 4 内の粗オレフィンガス吸収液（ガス成分が放散された吸収液、以下「ガス成分放散吸収液」という）を塔外へ導出するための配管である。この第 2 吸収液導出管 1 1 6 は、その他端部がポンプ 1 7 を介して吸収塔 1 3 の第 1 ガス導出管 1 1 4 の中間部分に接続されている。放散塔 1 4 から導出されて第 2 吸収液導出管 1 1 6 内を流れるガス成分放散吸収液は、ポンプ 1 7 によって送液されて、第 1 ガス導出管 1 1 4 を介して吸収塔 1 3 内に戻される。

## 【 0 0 3 8 】

上記のように構成される放散塔 1 4 としては、粗オレフィンガス吸収液が液分散させられる構成のものが好適であり、たとえば、公知の充填塔、スプレー塔などを採用することができる。また、放散塔 1 4 には、放散塔 1 4 内に収容される粗オレフィンガス吸収液を所望の温度に維持するための温度調整装置が取り付けられている。

## 【 0 0 3 9 】

吸収塔 1 3 から導出されて第 1 ガス導出管 1 1 4 内を流れる非吸収ガスは、第 1 ミスト除去器 1 5 に導入される。第 1 ミスト除去器 1 5 は、吸収塔 1 3 から導出される非吸収ガスに含まれるミストを分離する。第 1 ミスト除去器 1 5 には、当該第 1 ミスト除去器 1 5 を通過したガスを装置外部に導くためのガス排出管 1 1 7 が接続されている。ガス排出管 1 1 7 には、第 1 圧力計 1 1 7 A および第 1 背圧弁 1 1 7 B が設けられている。第 1 背圧弁 1 1 7 B は、吸収塔 1 3 の内部が所定の圧力となるように開度が制御される。

## 【 0 0 4 0 】

放散塔 1 4 から導出されて第 2 ガス導出管 1 1 5 内を流過する放散ガスは、第 2 ミスト除去器 1 6 に導入される。第 2 ミスト除去器 1 6 に導入される放散ガスは、吸収塔 1 3 において粗オレフィンガス中のオレフィンが優先的に吸収された粗オレフィンガス吸収液から放散したものであるため、粗オレフィンガスよりもオレフィン濃度が高まっている。第 2 ミスト除去器 1 6 は、放散塔 1 4 から導出される放散ガスに含まれるミストを分離する。第 2 ミスト除去器 1 6 には、当該第 2 ミスト除去器 1 6 を通過したガスを脱水塔 1 8 に導くための第 3 ガス導出管 1 1 8 が接続されている。第 3 ガス導出管 1 1 8 には、第 2 圧力計 1 1 8 A および第 2 背圧弁 1 1 8 B が設けられている。第 2 背圧弁 1 1 8 B は、放散塔 1 4 の内部が所定の圧力となるように開度が制御される。

## 【 0 0 4 1 】

脱水塔 1 8 は、第 2 ミスト除去器 1 6 から導出された、放散ガスからミストが除去されたガス（粗オレフィンガスよりもオレフィン濃度が高濃度化されたガス、以下「高濃度オレフィンガス」という）に含まれる水分を除去する。脱水塔 1 8 には、水分を吸着する吸着剤が充填されている。このような吸着剤としては、シリカゲル、アルミナ、およびゼオライトなどを挙げることができ、ゼオライトとしては、モレキュラーシーブ 3 A、モレキュラーシーブ 4 A、およびモレキュラーシーブ 1 3 Xなどを挙げることができる。脱水塔 1 8 において水分が吸着除去された高濃度オレフィンガスは、後述する原料オレフィンシリンドラ 2 1 に供給されるものであり、粗オレフィンガスに含有されていた不純物が低濃度化され、かつオレフィンが高濃度化された高純度オレフィンとなる。このような高純度オレフィンは、脱水塔 1 8 に接続される精製オレフィン導出管 1 1 9 を介して原料オレフィンシリンドラ 2 1 に導入される。

## 【 0 0 4 2 】



以上のような、粗オレフィンシリンダ 1 1、吸収塔 1 3、放散塔 1 4、第 1 ミスト除去器 1 5、第 2 ミスト除去器 1 6、および脱水塔 1 8 を含んで構成されるオレフィン精製部 1 によれば、吸収塔 1 3 内では、粗オレフィンシリンダ 1 1 から粗オレフィンガス導入管 1 1 1 を介して粗オレフィンガスが導入されると、当該粗オレフィンガスが吸収液と接触し、順次吸収液に吸収される。吸収液に対するオレフィンの溶解度が、粗オレフィンガス中の不純物の溶解度に比べて相当に大きいので、粗オレフィンガス中の主成分であるオレフィンが優先的に吸収液に吸収される。そのため、吹き込まれた粗オレフィンガスが吸収液中を吸収されながら上昇するにつれて、当該ガス中においてはオレフィン濃度が低下する一方、不純物濃度は上昇する。

【 0 0 4 3 】

その一方、吸収塔 1 3 内の吸収液については、吸収塔 1 3 内で粗オレフィンガスを吸収した吸収液（粗オレフィンガス吸収液）が、吸収塔 1 3 の下部から第 1 吸収液導出管 1 1 2 を介して所定流量で吸収塔 1 3 外へ流出しつつ、放散塔 1 4 内でガス成分を放散した吸収液（ガス成分放散吸収液）が、ポンプ 1 7 によって送液されて、第 1 ガス導出管 1 1 4 を介して吸収塔 1 3 の上部から吸収塔 1 3 内に戻される。これによって、吸収塔 1 3 内の吸収液においては、下向きの流れが生じている。したがって、粗オレフィンガス導入管 1 1 1 から吸収塔 1 3 内に導入された粗オレフィンガスは、吸収塔 1 3 内で下向きに流れる吸収液と向流接触し、当該接触により吸収液に吸収されなかった非吸収ガスが吸収塔 1 3 の上部空間へ吹き抜ける。当該非吸収ガスは、第 1 ガス導出管 1 1 4 を介して第 1 ミスト除去器 1 5 に送られ、液体成分が分離除去された上で、ガス排出管 1 1 7 を介して系外へオフガスとして排出される。一方、第 1 ミスト除去器 1 5 によって分離された液体成分は、液滴となって第 1 ガス導出管 1 1 4 を通じて落下し、吸収塔 1 3 内に戻される。

【 0 0 4 4 】

このようにして、吸収塔 1 3 では、連続的に供給される粗オレフィンガスが吸収液と接触することにより当該粗オレフィンガス中のオレフィンが優先的に吸収液に吸収される一方、非吸収ガスが塔外へ排出される。

【 0 0 4 5 】

放散塔 1 4 内では、吸収塔 1 3 から導出された粗オレフィンガス吸収液中のガス成分が放散される。粗オレフィンガス吸収液から放散された放散ガスは、第 2 ガス導出管 1 1 5 を介して第 2 ミスト除去器 1 6 に送られ、液成分が除去された上で、第 3 ガス導出管 1 1 8 を介して脱水塔 1 8 に送られて水分が吸着除去されて、高純度オレフィンとして原料オレフィンシリンダ 2 1 に供給される。

【 0 0 4 6 】

放散塔 1 4 内において、ガス成分が放散した吸収液は、第 2 吸収液導出管 1 1 6 を通じてポンプ 1 7 によって第 1 ガス導出管 1 1 4 へと送出され、その後、吸収塔 1 3 内に落下する。このとき、ポンプ 1 7 によって送出される吸収液の流量は、吸収塔 1 3 から放散塔 1 4 へ流入する吸収液の流量と同程度とされている。これにより、吸収塔 1 3 内の吸収液と放散塔 1 4 内の吸収液とは、相互にバランスがとられて循環する。

【 0 0 4 7 】

このようにして、放散塔 1 4 では、所定流量で流入し続ける吸収液のガス成分が放散するとともに放散ガスが塔外に導出されて、脱水塔 1 8 を介して高純度オレフィンとして原料オレフィンシリンダ 2 1 に供給されることになる。

【 0 0 4 8 】

たとえば、粗オレフィンシリンダ 1 1 から導出される粗オレフィンガスが、プロピレンを主成分とする工業用ガスである場合、その粗オレフィンガスには、主な不純物としてプロパン、微量不純物として酸素、窒素、二酸化炭素、エタン、ブタンなどが含まれている。このような、プロピレンを主成分とする粗オレフィンガスを、オレフィン精製部 1 で精製すると飽和炭化水素が除去される。

【 0 0 4 9 】

すなわち、粗オレフィンシリンダ 1 1 から導出される粗オレフィンガスを、オレフィン

10

20

30

40

50

精製部 1 で精製することなく、水添反応部 3 に直接導入して水添反応を行った場合には、粗オレフィンガス中に含まれる不純物、エタン、ブタンなどの飽和炭化水素がそのまま残り、高純度のプロパンを生成することができない。

**【 0 0 5 0 】**

これに対して、本実施形態のパラフィン製造装置 1 0 0 では、オレフィン精製部 1 によって精製された高純度の原料オレフィンを、水添反応部 3 で水添反応させる。オレフィン精製部 1 によって精製された高純度の原料オレフィン（オレフィンがプロピレンの場合）の不純物濃度は、たとえば、後述の実施例のように、プロパンが 5 0 0 0 p p m から 1 0 0 p p m 以下になる。

**【 0 0 5 1 】**

本実施形態では、上記のような、不純物濃度が極めて低い高純度の原料オレフィンを、水添反応部 3 で水添反応させるので、高純度のパラフィンを生成することができる。

**【 0 0 5 2 】**

導出部 2 は、オレフィン精製部 1 において精製された高純度の原料オレフィン、原料水素およびパラフィンを、後述の水添反応部 3 に向けて導出する部分である。図 2 B に示すように、導出部 2 は、貯留部として機能する原料オレフィンシリンダ 2 1、パラフィンシリンダ 2 2、および原料水素シリンダ 2 3 から、原料オレフィン、原料水素およびパラフィンをそれぞれ導出するように構成されている。

**【 0 0 5 3 】**

原料オレフィンシリンダ 2 1 は、オレフィン精製部 1 の脱水塔 1 8 から導出されて精製オレフィン導出管 1 1 9 内を流れて供給された高純度の原料オレフィンが気体として充填されたシリンダであり、高圧条件下で原料オレフィンガスが封入されている。

**【 0 0 5 4 】**

原料オレフィンシリンダ 2 1 には、流量調整器 2 4、第 1 減圧弁 2 1 1 A および第 1 開閉弁 2 1 1 B が設けられた原料オレフィン導出管 2 1 1 が接続されている。第 1 開閉弁 2 1 1 B は、原料オレフィン導出管 2 1 1 の流路を開閉または閉鎖する弁である。第 1 開閉弁 2 1 1 B が開放された状態で、原料オレフィンシリンダ 2 1 から導出された原料オレフィンガスは、第 1 減圧弁 2 1 1 A で所定の圧力にされ、さらに流量調整器 2 4 で所定の流量に制御されて原料オレフィン導出管 2 1 1 内を流れて、混合配管 3 1 1 を介して水添反応部 3 に導入される。水添反応部 3 に導入される原料オレフィンは、空間速度 S V が、1 0 0 ~ 1 0 0 0 0 / h になるように調整されることが好ましく、1 0 ~ 1 0 0 0 / h に調整されることがより好ましく、1 0 ~ 5 0 0 / h に調整されることが特に好ましい。

**【 0 0 5 5 】**

パラフィンシリンダ 2 2 は、パラフィンが気体または液化ガスとして充填されたシリンダであり、高圧条件下でパラフィンガスが封入されている。パラフィンシリンダ 2 2 に充填されるパラフィンは、水添反応部 3 に導入される原料オレフィンの炭素数と同じ炭素数を有するパラフィンであり、たとえば、水添反応部 3 に導入される原料オレフィンが炭素数 3 のプロピレンの場合には、パラフィンシリンダ 2 2 に充填されるパラフィンは、炭素数 3 のプロパンである。

**【 0 0 5 6 】**

パラフィンシリンダ 2 2 には、流量調整器 2 5、第 2 減圧弁 2 1 2 A および第 2 開閉弁 2 1 2 B が設けられたパラフィン導出管 2 1 2 が接続されている。第 2 開閉弁 2 1 2 B は、パラフィン導出管 2 1 2 の流路を開閉または閉鎖する弁である。第 2 開閉弁 2 1 2 B が開放された状態で、パラフィンシリンダ 2 2 から導出されたパラフィンガスは、第 2 減圧弁 2 1 2 A で所定の圧力にされ、さらに流量調整器 2 5 で所定の流量に制御されてパラフィン導出管 2 1 2 内を流れて、混合配管 3 1 1 を介して水添反応部 3 に導入される。水添反応部 3 に導入されるパラフィンは、空間速度 S V が、1 0 0 ~ 1 0 0 0 0 / h になるように調整されることが好ましく、1 0 ~ 1 0 0 0 / h に調整されることがより好ましく、1 0 ~ 5 0 0 / h に調整されることが特に好ましい。

**【 0 0 5 7 】**



レフィンをパラフィンに変質させる水添が十分に行われぬおそれがある。原料オレフィンに対する原料水素のモル比が大きすぎる場合、生成されるパラフィン中に未反応の水素ガスが多く残り過ぎてしまう。

**【 0 0 6 6 】**

また、反応器 3 1 内において、原料オレフィンとパラフィンとのモル比は、原料オレフィン / パラフィン = 1 / 5 ~ 1 / 3 0 であることが好ましく、1 / 1 0 ~ 1 / 2 5 であることがより好ましい。原料オレフィンに対するパラフィンのモル比が小さすぎる場合、反応器 3 1 内での水添反応に伴う発熱を抑制する効果が十分ではない。原料オレフィンに対するパラフィンのモル比が大きすぎる場合、原料オレフィンの水添反応により生成されるパラフィンの生成量が少なく成り過ぎてしまう。

10

**【 0 0 6 7 】**

また、反応器 3 1 内の温度は、0 ~ 2 0 0 であることが好ましく、5 0 ~ 1 5 0 であることが特に好ましい。温度が低すぎる場合、触媒を用いる水添反応が進みにくくなる。また、温度が高すぎる場合、オレフィンの分解が起こるおそれがある。

**【 0 0 6 8 】**

本実施形態のパラフィン製造装置 1 0 0 では、反応器 3 1 内における原料オレフィンからパラフィンを生成する水添反応が、パラフィンの存在下で行われるので、パラフィンが持つ顕熱により反応温度の上昇を抑えることができる。

**【 0 0 6 9 】**

たとえば、反応器 3 1 内において、原料オレフィンとしてのプロピレンをパラジウム触媒の存在下で水添反応させてプロパンを生成する場合、プロピレンと水素ガスとのモル比が、プロピレン / 水素 = 1 / 1 . 1 で瞬時に反応が起こったときには、反応温度が約 9 0 0 となる。さらに、反応温度が高温になると、パラジウム触媒表面では、プロピレンまたはプロパンの分解が起こり、反応物中にメタンおよびエタンが数 v o l % 生成される。

20

**【 0 0 7 0 】**

これに対して、プロピレンをパラジウム触媒の存在下で水添反応させるときに、水添反応開始時からパラフィンとしてプロパンを反応系に共存させると、具体的には、プロピレン / 水素 / プロパン = 1 / 1 . 1 / 2 5 のモル比でプロピレン、水素およびプロパンが共存した状態で水添反応を開始させると、反応温度を 7 5 に抑えることができる。このように、反応温度の上昇を抑えることができるので、プロピレンまたはプロパンの分解が発生するのを抑制することができ、反応物中におけるメタン、エタンの濃度を各々 5 p p m 以下に抑えることができる。

30

**【 0 0 7 1 】**

また、反応器 3 1 内の圧力は、0 . 0 ~ 2 . 0 M P a ( G ) であることが好ましい。たとえば、反応器 3 1 内において原料オレフィンとしてのプロピレンを水添反応させてプロパンを生成する場合、反応器 3 1 内の圧力は、0 . 0 5 ~ 0 . 7 M P a ( G ) であることが好ましい。水添反応は、一般的に高圧条件下で促進される傾向であるが、圧力が低すぎる場合には、反応熱が多く発生し反応温度を安定させるための障害となる。また、圧力が高すぎる場合、原料オレフィンやパラフィンが気化せずに液体状で反応器 3 1 内に収容される可能性があるので好ましくない。

40

**【 0 0 7 2 】**

反応器 3 1 において水添反応が行われた後の該反応器 3 1 内に存在するパラフィンを含む気体状の反応物は、反応物導出部として機能する反応物導出管 3 1 2 を流れて分縮部 4 に導入される。

**【 0 0 7 3 】**

分縮部 4 は、分縮器 4 1 と、気相成分導出部として機能する気相成分導出管 4 1 1 と、液相成分導出部として機能する液相成分導出管 4 1 3 とを有する。

**【 0 0 7 4 】**

分縮器 4 1 は、反応物導出管 3 1 2 を流れて分縮器 4 1 内に供給される気体状の反応物を分縮する。具体的には、分縮器 4 1 は、反応物中のパラフィンの一部が液化するように

50

該反応物を分縮することによって液相成分と気相成分とに分離する。

【 0 0 7 5 】

分縮器 4 1 としては多管式熱交換器、二重管式熱交換器、グラスライニング製熱交換器、コイル式熱交換器、螺旋型熱交換器、プレート式熱交換器、トロンボーン型熱交換器、不浸透黒鉛製熱交換器などを用いることができる。

【 0 0 7 6 】

分縮器 4 1 の材質としては、鑄鉄、S U S 3 0 4、S U S 3 1 6、S U S 3 1 6 L など  
を好適に用いることができる。また、ガラス、耐熱ガラスや石英ガラスなどのガラス材質  
も好適に使用することができ、これらの材質を金属表面にコーティングした材料、たとえ  
ばグラスライニング材も分縮器 4 1 に利用可能である。

10

【 0 0 7 7 】

また、分縮器 4 1 における設定条件は、反応物中のパラフィンの一部が液化する条件で  
あれば特に限定されるものではないけれども、分縮温度を - 3 5 ~ 1 5 程度に設定す  
ることが好ましい。分縮温度が - 3 5 未満である場合には、低温にするための特殊な寒  
剤が必要となり、それを冷やすためのエネルギーコストが増加する結果となるために好ま  
しくない。また、分縮温度が 1 5 を超える場合には、気相成分の圧力が高くなり耐圧の  
設備を要するので好ましくない。なお、分縮器 4 1 内における分縮温度は、冷媒循環器 4  
2 を用いて所定温度に保持される。

【 0 0 7 8 】

また、分縮器 4 1 内の圧力は、0 . 0 5 ~ 0 . 3 M P a ( G ) であることが好ましい。 20  
この分縮器 4 1 内の圧力は、第 3 圧力計 4 1 A により監視される。

【 0 0 7 9 】

分縮器 4 1 における分縮操作により、気体状の反応物中のパラフィンの一部が分縮によ  
り液化して液相成分となり、液化されなかった部分は気体のまま残存して気相成分とな  
る。分縮器 4 1 には、気相成分導出管 4 1 1、気相成分排出管 4 1 2 および液相成分導出管  
4 1 3 が接続されている。

【 0 0 8 0 】

気相成分導出管 4 1 1 は、一端部が分縮器 4 1 に接続され、他端部が混合配管 3 1 1 に  
接続された配管である。気相成分導出管 4 1 1 には、一端部と他端部との間に、リサイク  
ル供給部として機能する気相成分送出ポンプ 6 が接続されている。また、気相成分導出管 30  
4 1 1 には、流量調整器 4 3、第 4 開閉弁 4 1 1 A および第 5 開閉弁 4 1 1 B が設けられ  
ており、気相成分導出管 4 1 1 において、気相成分送出ポンプ 6 と分縮器 4 1 との間に第  
4 開閉弁 4 1 1 A が設けられ、気相成分送出ポンプ 6 と混合配管 3 1 1 との間に流量調整  
器 4 3 および第 5 開閉弁 4 1 1 B が設けられている。

【 0 0 8 1 】

分縮器 4 1 によって分離された気相成分には、反応物中に含有されていた一部のパラフ  
イン、水素およびオレフィンなどが含まれている。気相成分送出ポンプ 6 は、分縮器 4 1  
から導出されて気相成分導出管 4 1 1 内を流れる気相成分を再利用原料およびパラフィン  
として反応器 3 1 に向けて移送し、該再利用原料およびパラフィンを反応器 3 1 に供給す  
る。

40

【 0 0 8 2 】

気相成分送出ポンプ 6 としては、往復式ポンプ、回転式ポンプなどを挙げることができ  
る。なお、分縮器 4 1 から導出された気相成分を再利用原料およびパラフィンとして反応  
器 3 1 に供給するためのリサイクル供給部としては、ポンプ式の気相成分送出ポンプ 6 に  
限定されるものではなく、たとえば、ターボブロワ、容積ブロワ、遠心ファン、斜流ファ  
ン、軸流ファン、レシプロ圧縮機（往復圧縮機）、スクリーユ圧縮機、ダイヤフラム圧縮  
機、遠心式圧縮機などの送風機を用いることもできる。

【 0 0 8 3 】

分縮器 4 1 から導出された気相成分（再利用原料およびパラフィン）は、第 4 開閉弁 4  
1 1 A および第 5 開閉弁 4 1 1 B が開放された状態で、流量調整器 4 3 によって流量が調 50

整されて、気相成分導出管 4 1 1 および混合配管 3 1 1 を流れて反応器 3 1 に導入される。このようにして反応器 3 1 に導入された再利用原料およびパラフィン、反応器 3 1 内における水添反応に用いられる。したがって、原料オレフィンシリンダ 2 1 から導出されて反応器 3 1 に供給される原料オレフィンの量、パラフィンシリンダ 2 2 から導出されて反応器 3 1 に供給されるパラフィンの量、原料水素シリンダ 2 3 から導出されて反応器 3 1 に供給される水素の量は、反応器 3 1 に導入される再利用原料およびパラフィン中に含まれるオレフィン、パラフィンおよび水素の量に応じて調整される。

**【 0 0 8 4 】**

気相成分排出管 4 1 2 は、一端部が分縮器 4 1 に接続され、他端部が外部空間に開放した配管である。この気相成分排出管 4 1 2 には、気相成分排出管 4 1 2 の流路を開放または閉鎖する第 6 開閉弁 4 1 2 A が設けられている。気相成分導出管 4 1 1 に設けられた第 4 開閉弁 4 1 1 A が閉鎖された状態で、第 6 開閉弁 4 1 2 A が開放されることによって、分縮器 4 1 の気相成分が気相成分排出管 4 1 2 内を流れて、装置外部に排出されることになる。

10

**【 0 0 8 5 】**

液相成分導出管 4 1 3 は、一端部が分縮器 4 1 に接続され、他端部が回収部 5 の回収容器 5 1 に接続された配管である。この液相成分導出管 4 1 3 には、液相成分導出管 4 1 3 の流路を開放または閉鎖する第 7 開閉弁 4 1 3 A が設けられている。

**【 0 0 8 6 】**

分縮器 4 1 によって分離された液相成分は、精製されたパラフィンである。第 7 開閉弁 4 1 3 A が開放されることによって、分縮器 4 1 の液相成分であるパラフィンの精製物が液相成分導出管 4 1 3 内を流れて、分縮器 4 1 から回収容器 5 1 に向けて導出されることになる。

20

**【 0 0 8 7 】**

回収部 5 は、回収容器 5 1 を有する。回収容器 5 1 は、分縮器 4 1 から導出されて液相成分導出管 4 1 3 内を流れる、分縮器 4 1 の液相成分を、液体状のパラフィンの精製物（以下、「精製パラフィン」という）として回収し、その精製パラフィンを貯留するための容器である。回収容器 5 1 は、その内部温度が、冷媒循環器 5 2 を用いて所定温度に保持される。

**【 0 0 8 8 】**

また、回収容器 5 1 は、回収容器 5 1 の上部に気相が形成されるように、液体状の精製パラフィンを貯留する。回収容器 5 1 の気相側の上部には、回収気相成分導出管 5 1 1 と回収気相成分排出管 5 1 2 とが接続されている。

30

**【 0 0 8 9 】**

回収気相成分導出管 5 1 1 は、一端部が回収容器 5 1 に接続され、他端部が混合配管 3 1 1 に接続された配管である。回収気相成分導出管 5 1 1 には、回収気相成分導出管 5 1 1 の流路を開放または閉鎖する第 8 開閉弁 5 1 1 A と、流量調整器 5 3 とが設けられている。

**【 0 0 9 0 】**

回収容器 5 1 に貯留される液体状の精製パラフィンには、低沸点物質の水素などが含まれている場合がある。このような、精製パラフィンに含まれる水素などの低沸点物質は、冷媒循環器 5 2 により所定温度に保持される回収容器 5 1 内において、気相に濃縮される。

40

**【 0 0 9 1 】**

回収気相成分導出管 5 1 1 に設けられる第 8 開閉弁 5 1 1 A が開放されることによって、回収容器 5 1 の上部に形成された気相成分は、流量調整器 5 3 で流量が調整されながら、回収気相成分導出管 5 1 1 内を流れて、混合配管 3 1 1 を介して反応器 3 1 に供給される。このようにして反応器 3 1 に導入される、回収容器 5 1 の気相成分は、反応器 3 1 内における水添反応に用いられる。

**【 0 0 9 2 】**

50

回収気相成分排出管 5 1 2 は、一端部が回収容器 5 1 に接続され、他端部が外部空間に開放した配管である。この回収気相成分排出管 5 1 2 には、回収気相成分排出管 5 1 2 の流路を開放または閉鎖する第 9 開閉弁 5 1 2 A が設けられている。回収気相成分導出管 5 1 1 に設けられた第 8 開閉弁 5 1 1 A が閉鎖された状態で、第 9 開閉弁 5 1 2 A が開放されることによって、回収容器 5 1 の気相成分が回収気相成分排出管 5 1 2 内を流れて、装置外部に排出されることになる。

【 0 0 9 3 】

以上のように、本実施形態のパラフィン製造装置 1 0 0 では、オレフィン精製部 1 によって精製された高純度のオレフィンを、反応器 3 1 でパラフィンおよび触媒存在下で水素と接触させて水添反応を行うことによって、高純度のパラフィンを得ることができる。

10

【 0 0 9 4 】

また、反応器 3 1 における水添反応は、パラフィンシリンダ 2 2 から導出されて反応器 3 1 に供給されたパラフィンの存在下で行われるので、反応温度の上昇を抑制することができ、その結果、オレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制することができる。

【 0 0 9 5 】

また、反応器 3 1 における水添反応により得られた反応物は、分縮器 4 1 により液相成分と気相成分とに分離され、その液相成分を精製パラフィンとして回収容器 5 1 にて回収するので、高純度の精製パラフィンを得ることができる。

【 0 0 9 6 】

さらにまた、パラフィン製造装置 1 0 0 は、分縮器 4 1 の気相成分、および回収容器 5 1 の気相成分が、反応器 3 1 に導入されるように構成されているので、各気相成分に含まれるオレフィン、パラフィンおよび水素を水添反応時の原料として再利用することができる。

20

【 0 0 9 7 】

図 3 は、本発明の第 2 実施形態に係るパラフィン製造装置 2 0 0 の構成を示す図である。本実施形態のパラフィン製造装置 2 0 0 は、前述のパラフィン製造装置 1 0 0 に類似し、対応する部分については同一の参照符号を付して説明を省略する。パラフィン製造装置 2 0 0 は、リサイクル供給部の構成が、前述のパラフィン製造装置 1 0 0 と異なる。パラフィン製造装置 1 0 0 がリサイクル供給部として気相成分送出ポンプ 6 を備えているのに対して、パラフィン製造装置 2 0 0 は、リサイクル供給部としてガスエジェクタ 2 0 1 を備えている。このパラフィン製造装置 2 0 0 は、パラフィン製造装置 1 0 0 と同様にオレフィン精製部 1 を備えるけれども、図 3 ではオレフィン精製部 1 を省略している。

30

【 0 0 9 8 】

ガスエジェクタ 2 0 1 は、混合配管 3 1 1 において、導出部 2 と反応器 3 1 との間に設けられる。さらに、このガスエジェクタ 2 0 1 には、気相成分導出管 4 1 1 の分縮器 4 1 に接続される側とは反対側の他端部が接続されている。

【 0 0 9 9 】

ガスエジェクタ 2 0 1 は、分縮器 4 1 から導出されて気相成分導出管 4 1 1 内を流れる、分縮器 4 1 の気相成分を、反応器 3 1 に供給する。ガスエジェクタ 2 0 1 は、噴射気体流を駆動源とする、機械的駆動部を有さない真空ポンプであり、一般的に市販されているものを用いることができる。このような、機械的駆動部を有さないガスエジェクタ 2 0 1 を、リサイクル供給部として用いることによって、不純物汚染が低減された再利用原料およびパラフィンを、反応器 3 1 に導入することができる。

40

【 実施例 】

【 0 1 0 0 】

以下に、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明は、かかる実施例のみに限定されるものではない。

【 0 1 0 1 】

( 実施例 1 )

50





スのモル比は、プロピレン / 水素 / プロパン = 2 / 3 / 10 ( = 1 / 1.5 / 5 ) であった。反応器における水添反応条件としては、内部圧力を 0.3 MPa ( G ) とした。

【 0 1 0 8 】

< 結果 >

反応器における水添反応時の反応温度は 200 であった。また、水添反応後に反応器から導出された反応物はプロパンを主成分とするガスであった。この反応物に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、プロピレン濃度が 2 v o l p p m であり、メタン濃度が 4 v o l p p m であり、エタン濃度が 6 v o l p p m であった。

【 0 1 0 9 】

( 実施例 3 )

< 高純度エチレンの製造 >

エチレン ( 住友精化株式会社製、PURE グレード、純度 99.9% ) を、吸収液として硝酸銀水溶液を用いた図 2 A に示すオレフィン精製部に供給して精製した。吸収塔には、3 mol / L の硝酸銀水溶液を 237 mL ( 吸収液の液面高さ 100 mm ) 貯留させ、放散塔には、同濃度の硝酸銀水溶液を 355 mL ( 吸収液の液面高さ 150 mm ) 貯留させた。

【 0 1 1 0 】

吸収塔における条件としては、内部圧力を 0.5 MPa ( G ) とし、内部温度を 25 とした。放散塔における条件としては、内部圧力を 0.1 MPa ( G ) とし、内部温度を 40 とした。吸収塔および放散塔に貯留された硝酸銀水溶液は、流量が 25 mL / min となるように循環させた。放散塔では、放散ガス ( 精製エチレンガス ) が 760 mL / min で導出され、回収率は 95.0 モル % で、純度は 99.99 モル % であった。また、吸収塔では、非吸収ガスが 40 mL / min で排出され、排出率は 5.0 モル % であった。

【 0 1 1 1 】

このようにして得られた精製された高純度のエチレンを、反応器に供給する原料エチレンとして用いた。

【 0 1 1 2 】

< エタンの生成 >

反応器として、ステンレス製の円筒管 ( 内径 12.4 mm × 高さ 100 mm ) を用いた。反応器には、Pd ( 0.5 重量 % ) / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒 ( N 1 1 8 2 A Z、日揮触媒化成製 ) を 10 mL 充填した。この反応器に、前述のようにして精製された原料エチレンガス ( 純度 99.99 モル % ) を流量 40 mL / min ( N T P ) で供給し、原料水素ガス ( 純度 99.9999 モル % ) を流量 60 mL / min ( N T P ) で供給し、エタンガス ( 住友精化株式会社製、純度 99.9 モル % 以上 ) を流量 200 mL / min ( N T P ) で供給した。反応器内における各ガスのモル比は、エチレン / 水素 / エタン = 2 / 3 / 10 ( = 1 / 1.5 / 5 ) であった。反応器における水添反応条件としては、内部圧力を 0.3 MPa ( G ) とした。

【 0 1 1 3 】

< 結果 >

反応器における水添反応時の反応温度は 100 であった。また、水添反応後に反応器から導出された反応物はエタンを主成分とするガスであった。この反応物に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、エチレン濃度が 1 v o l p p m 以下であり、メタンは検出されなかった。

【 0 1 1 4 】

( 実施例 4 )

< 高純度プロピレンの製造 >

実施例 1 と同様にして、精製された高純度のプロピレンを得て、この高純度のプロピレンを反応器に供給する原料プロピレンとして用いた。

10

20

30

40

50

## 【 0 1 1 5 】

## &lt; プロパンの生成 &gt;

反応器内におけるプロピレン、水素およびプロパンの各ガスのモル比を、プロピレン / 水素 / プロパン = 1 / 1 . 1 / 1 0 としたこと以外は実施例 1 と同様にして、プロパンを主成分とする反応物を得た。

## 【 0 1 1 6 】

## &lt; 結果 &gt;

反応器における水添反応時の反応温度は 1 0 0 であった。また、水添反応後に反応器から導出された反応物はプロパンを主成分とするガスであった。この反応物に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、プロピレン濃度が 1 v o l p p m 以下であり、メタン濃度が 4 v o l p p m であり、エタン濃度が 3 v o l p p m であった。

10

## 【 0 1 1 7 】

## ( 実施例 5 )

## &lt; 高純度プロピレンの製造 &gt;

実施例 1 と同様にして、精製された高純度のプロピレンを得て、この高純度のプロピレンを反応器に供給する原料プロピレンとして用いた。

## 【 0 1 1 8 】

## &lt; プロパンの生成 &gt;

反応器内におけるプロピレン、水素およびプロパンの各ガスのモル比を、プロピレン / 水素 / プロパン = 1 / 1 . 3 / 1 0 としたこと以外は実施例 1 と同様にして、プロパンを主成分とする反応物を得た。

20

## 【 0 1 1 9 】

## &lt; 結果 &gt;

反応器における水添反応時の反応温度は 1 0 0 であった。また、水添反応後に反応器から導出された反応物はプロパンを主成分とするガスであった。この反応物に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、プロピレン濃度が 1 v o l p p m 以下であり、メタンおよびエタン濃度がそれぞれ 1 v o l p p m 以下であった。

## 【 0 1 2 0 】

## ( 実施例 6 )

## &lt; 高純度プロピレンの製造 &gt;

実施例 1 と同様にして、精製された高純度のプロピレンを得て、この高純度のプロピレンを反応器に供給する原料プロピレンとして用いた。

30

## 【 0 1 2 1 】

## &lt; プロパンの生成 &gt;

反応器として、ステンレス製の円筒管 ( 内径 1 2 . 4 m m × 高さ 1 0 0 m m ) を用いた。反応器には、P d ( 0 . 5 重量 % ) / A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 触媒 ( N 1 1 8 2 A Z 、日揮触媒化成製 ) を 1 0 m L 充填した。この反応器に、前述のようにして精製された原料プロピレンガス ( 純度 9 9 . 9 9 モル % ) を流量 4 0 m L / m i n ( N T P ) で供給し、原料水素ガス ( 純度 9 9 . 9 9 9 9 モル % ) を流量 6 0 m L / m i n ( N T P ) で供給し、プロパンガス ( 純度 9 9 . 9 9 9 9 モル % ) を流量 4 0 0 m L / m i n ( N T P ) で供給した。反応器内における各ガスのモル比は、プロピレン / 水素 / プロパン = 2 / 3 / 2 0 ( = 1 / 1 . 5 / 1 0 ) であった。反応器における水添反応条件としては、内部圧力を 0 . 3 M P a ( G ) とした。

40

## 【 0 1 2 2 】

さらに、水添反応後に反応器から導出された反応物を分縮器 ( 伝熱面積 1 3 0 c m <sup>2</sup> 、 S U S 3 0 4 製 ) に供給した。この分縮器 ( 温度 : - 2 5 、圧力 : 0 . 1 M P a ( G ) ) において、反応物中のプロパンの一部が液化するように反応物を分縮した。分縮器における液相成分をプロパンの精製物として回収容器にて回収し、この回収容器で液体状のプ

50

ロパン ( 4 L ) を貯留した。また、リサイクル供給部としてダイヤフラム式ポンプを用いて、分縮器における気相成分を再利用原料およびプロパンとして反応器に供給した。なお、分縮器の稼働条件として、分縮器の入口流量 ( 反応器から導出された反応物の供給流量 ) に対する分縮器の出口流量 ( 気相成分として反応器に向けて導出された再利用原料およびプロパンの導出流量 ) の百分率 ( コンデンサーカット率 ) を、2 % に設定した。

## 【 0 1 2 3 】

## &lt; 結果 &gt;

反応器における水添反応時の反応温度は 1 0 0 であった。また、パラフィン製造装置の稼働を 6 時間継続し、その 6 時間後に、液体状のプロパンが貯留された回収容器の上部に形成された気相成分に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、プロピレン濃度が 1 v o l p p m 以下であり、メタン濃度が 2 v o l p p m であり、エタン濃度が 1 v o l p p m 以下であった。

10

## 【 0 1 2 4 】

また、回収容器内に液体状のプロパンが貯留された状態で、回収気相成分排出管に設けられた第 9 開閉弁を開放させて、回収容器の上部に形成された気相成分の一部を装置外部に排出させた。その後、第 9 開閉弁を閉鎖し、回収容器の上部に形成された気相成分に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、メタン濃度が 1 v o l p p m 以下となった。

## 【 0 1 2 5 】

## ( 実施例 7 )

## &lt; 高純度プロピレンの製造 &gt;

実施例 1 と同様にして、精製された高純度のプロピレンを得て、この高純度のプロピレンを反応器に供給する原料プロピレンとして用いた。

20

## 【 0 1 2 6 】

## &lt; プロパンの生成 &gt;

リサイクル供給部としてダイヤフラム式ポンプに代えて、ガスエジェクタ ( 9 1 - 0 7 u、中島銅工社製 ) を用いたこと以外は実施例 6 と同様にして、液体状のプロパンを回収容器に回収した。

## 【 0 1 2 7 】

## &lt; 結果 &gt;

反応器における水添反応時の反応温度は 1 0 0 であった。また、パラフィン製造装置の稼働を 6 時間継続し、その 6 時間後に、液体状のプロパンが貯留された回収容器の上部に形成された気相成分に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、プロピレン濃度が 1 v o l p p m 以下であり、メタン濃度が 2 v o l p p m であり、エタン濃度が 1 v o l p p m 以下であった。

30

## 【 0 1 2 8 】

また、回収容器内に液体状のプロパンが貯留された状態で、回収気相成分排出管に設けられた第 9 開閉弁を開放させて、回収容器の上部に形成された気相成分の一部を装置外部に排出させた。その後、第 9 開閉弁を閉鎖し、回収容器の上部に形成された気相成分に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー ( F I D ) により分析したところ、メタン濃度が 1 v o l p p m 以下となった。

40

## 【 0 1 2 9 】

## ( 比較例 1 )

## &lt; 高純度プロピレンの製造 &gt;

実施例 1 と同様にして、精製された高純度のプロピレンを得て、この高純度のプロピレンを反応器に供給する原料プロピレンとして用いた。

## 【 0 1 3 0 】

## &lt; プロパンの生成 &gt;

反応器として、ステンレス製の円筒管 ( 内径 1 2 . 4 m m × 高さ 1 0 0 m m ) を用いた。反応器には、P d ( 0 . 5 重量 % ) / A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 触媒 ( N 1 1 8 2 A Z、日揮触媒化成

50

製)を10mL充填した。この反応器に、前述のようにして精製された原料プロピレンガス(純度99.99モル%)を流量40mL/min(NTP)で供給し、原料水素ガス(純度99.9999モル%)を流量60mL/min(NTP)で供給した。比較例1では、水添反応でプロパンガスの供給は行わなかった。反応器内における各ガスのモル比は、プロピレン/水素=2/3(=1/1.5)であった。反応器における水添反応条件としては、内部圧力を0.3MPa(G)とした。

【0131】

<結果>

反応器における水添反応時の反応温度は350度であり、反応温度の上昇を抑制することができなかつた。また、水添反応後に反応器から導出された反応物はプロパンを主成分とするガスであった。この反応物に含まれる不純物の濃度をガスクロマトグラフィー(FID)により分析したところ、メタン濃度が800volppmであり、エタン濃度が600volppmであった。なお、プロピレン濃度は、検出ピークがプロパンと重なってしまったため、測定不能であった。

10

【0132】

実施例1~7および比較例1の評価結果から明らかなように、反応器における水添反応が、反応開始時からパラフィンの存在下で行われることによって、反応温度の上昇を抑制することができ、その結果、オレフィンまたはパラフィンの分解が発生するのを抑制し、高純度のパラフィンを得ることができる。

【符号の説明】

20

【0133】

1 オレフィン精製部

2 導出部

3 水添反応部

4 分縮部

5 回収部

6 気相成分送出ポンプ

31 反応器

41 分縮器

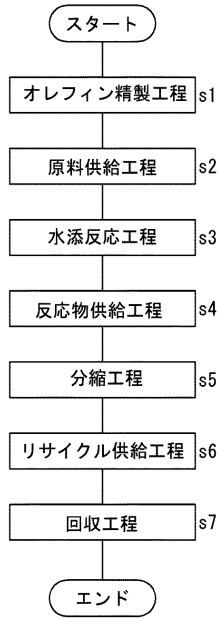
51 回収容器

100, 200 パラフィン製造装置

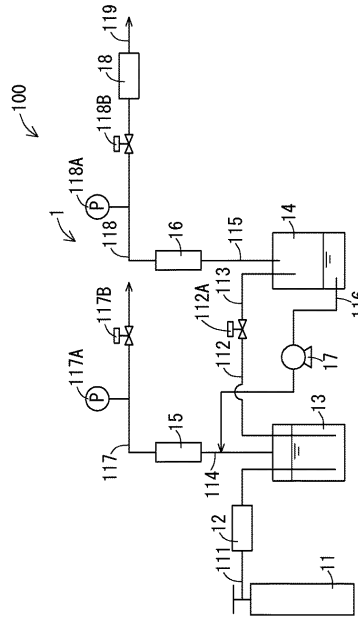
201 ガスエジェクタ

30

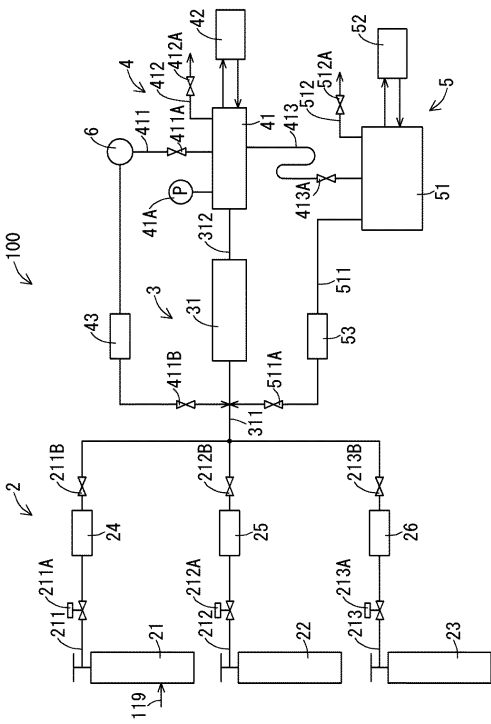
【 図 1 】



【 図 2 A 】



【 図 2 B 】



【 図 3 】

