

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 381 472**

51 Int. Cl.:
C07C 2/76 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 96 Número de solicitud europea: **09749856 .2**
- 96 Fecha de presentación: **20.05.2009**
- 97 Número de publicación de la solicitud: **2291341**
- 97 Fecha de publicación de la solicitud: **09.03.2011**

54 Título: **Procedimiento para la fabricación de benceno, tolueno (y naftalina) a partir de C1-C4-alcanos bajo co-dosificación espacialmente separada de hidrógeno**

30 Prioridad:
21.05.2008 EP 08156624

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
28.05.2012

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
28.05.2012

73 Titular/es:
BASF SE
67056 Ludwigshafen, DE

72 Inventor/es:
KIEßLICH, Frank;
GRITSCH, Achim;
SCHNEIDER, Christian y
KOSTOVA, Albena

74 Agente/Representante:
Carvajal y Urquijo, Isabel

ES 2 381 472 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Procedimiento para la fabricación de benceno, tolueno (y naftalina) a partir de C₁-C₄-alcanos bajo co-dosificación espacialmente separada de hidrógeno

5 La presente invención se relaciona con un procedimiento para la deshidroaromatización no-oxidativa de una corriente de reactante conteniendo C₁-C₄-alifato, haciendo reaccionar la corriente de reactante en presencia de un catalizador, en una zona de reacción 1, para generar una corriente de producto P conteniendo hidrocarburos aromáticos y regenerar el catalizador de actividad reducida debido al coque depositado con una mezcla H conteniendo hidrógeno en una zona de reacción 2, transformándose al menos una parte del coque depositado en metano y alimentándose por lo menos una parte del metano producido a la zona de reacción 1.

10 Los hidrocarburos aromáticos como el benceno, tolueno, etilbenceno, estireno, xileno y naftalina representan productos intermedios significativos en la industria química, cuya demanda sigue aumentando. Se producen generalmente por reformado catalítico de la nafta, obtenida, por su parte, del petróleo. Recientes investigaciones demuestran que las reservas mundiales de petróleo son más limitadas que las reservas de gas natural. Por tanto, la fabricación de hidrocarburos aromáticos a partir de reactantes, que puedan obtenerse del gas natural, es una alternativa interesante y económica. El componente principal de gas natural es habitualmente metano.

15 Una posible ruta de reacción para la obtención de productos aromáticos a partir de productos alifáticos es la deshidroaromatización no-oxidativa (DHAM). La reacción se lleva un cabo en este contexto, en condiciones no-oxidativas, particularmente con expulsión de oxígeno. En la DHAM se efectúa una deshidrogenación y ciclización de los productos alifáticos para obtenerse los correspondientes productos aromáticos con liberación de hidrógeno.

20 Un gran problema para la aplicación industrial de la deshidroaromatización en condiciones no-oxidativas es la coquificación, ya que reduce la actividad del catalizador en relativamente menos tiempo, lo que conlleva cortos ciclos de producción y una alta necesidad de regeneración. Con frecuencia acompaña a la coquificación además una vida útil acortada del catalizador. Tampoco la regeneración de los catalizadores está libre de problemas, ya que para un procedimiento económico, por un lado, regularmente las actividades finales tienen que poder reproducirse y, por el otro, esto tiene que ser posible mediante un gran número de ciclos.

25 Los depósitos de coque actúan además desfavorablemente sobre el balance de materia y/o el rendimiento, ya que cada molécula deja de disponer del reactante, que se transforma en coque, para la deseada reacción para obtenerse productos aromáticos. Las selectividades hacia coque obtenidas hasta ahora en el estado actual de la técnica se encuentran en la mayoría de los casos a más del 20% relativo a los productos alifáticos transformados.

30 Otra dificultad en la ejecución industrial de la DHAM estriba en el aporte del calor de reacción preciso. La DHAM es una reacción endotérmica, que depende por tanto de un suministro externo de calor. Si la reacción se calienta indirectamente, se precisan grandes superficies de intercambio de calor, lo que resulta en procedimientos aparativa y económicamente costosos. Por otra parte se verifican en las superficies de intercambio de calor, debido a la mayor temperatura, reacciones secundarias no deseadas, por ejemplo, la coquificación.

35 La WO-A 03/000826 describe un procedimiento para la aromatización del metano, en el que se hace reaccionar el metano en una zona de reacción en presencia de un catalizador activo, desactivándose el catalizador. Una parte del catalizador desactivado se regenera en una zona de regeneración con un gas de regeneración, circulando el catalizador entre la zona de reacción y la zona de regeneración. Como gases de regeneración se pueden emplear oxígeno o aire, hidrógeno y vapor de agua. Los gases resultantes de la regeneración no se utilizan ulteriormente. El calor resultante de la regeneración se transforma en la zona de reacción mediante el propio catalizador u otros medios de intercambio de calor.

40 La US-A 2007/0249879 está relacionada con un procedimiento para la reacción del metano en hidrocarburos mayores incluyendo los productos aromáticos. El reactor usado consiste en al menos dos zonas de reacción conectadas en serie. El catalizador particulado presente se lleva de la primera a la segunda zona de reacción, la corriente conteniendo metano a la primera zona de reacción en dirección contraria a la segunda. En todas las zonas de reacción ocurre una reacción del metano para obtenerse producto. Partes del catalizador se pueden extraer para la regeneración y devolverse tras la misma. La regeneración se lleva un cabo por medio de un gas conteniendo oxígeno. El catalizador se activa eventualmente a continuación con un gas conteniendo hidrógeno. Para el aporte de calor al sistema de reacción puede extraerse una parte del catalizador y calentarse en una zona de calentamiento independiente con los gases de combustión procedentes de otra fuente de combustible. El catalizador calentado se recircula entonces a la zona de reacción.

50 En la US-UN 2007/0249880 se muestra un procedimiento para la reacción de metano para obtenerse hidrocarburos aromáticos en presencia de un catalizador, conduciéndose la zona de reacción con un perfil inverso de temperatura. También aquí puede regenerarse el catalizador tras la extracción y/o calentarse a temperaturas superiores a la

temperatura de reacción por medio de los gases de combustión y recircularse a continuación en cada caso a las zonas de reacción.

5 La WO-A 2006/011568 describe un procedimiento para la fabricación de hidrocarburos aromáticos e hidrógeno. Para esto se conduce una corriente gaseosa conteniendo metano y del 2 al 10% de hidrógeno a través de un catalizador para la deshidroaromatización. La alimentación del metano se interrumpe temporalmente. Conforme a los ejemplos especificados, tras 5 horas de reacción (alimentación de una mezcla metano/hidrógeno) se deposita la alimentación de metano durante dos horas, de forma que el catalizador se regenere en atmósfera de hidrógeno.

10 Además del procedimiento conocido en el estado actual de la técnica, existe la necesidad de otro procedimiento mejorado para la fabricación de productos aromáticos a partir de C₁-C₄-alifatos, que tengan un alto rendimiento en hidrocarburos aromáticos respecto a los C₁-C₄-alifatos utilizados, y precisen un menor abastecimiento externo de energía y menores superficies de intercambio de calor.

Este objeto se resuelve conforme a la invención con un procedimiento para la deshidroaromatización no-oxidativa de una corriente de reactante E conteniendo C₁-C₄-alifato, comprendiendo los pasos

15 I. Transformación de la corriente de reactante E en condiciones no-oxidativas en presencia de un catalizador en una zona de reacción 1 para generar una corriente de producto P conteniendo hidrocarburos aromáticos,

20 II. Regeneración del catalizador, cuya actividad se ha visto reducida debido al coque depositado del paso I con una corriente gaseosa H conteniendo hidrógeno en una zona de reacción 2, transformándose como mínimo una parte del coque depositado en metano y produciéndose una corriente gaseosa M conteniendo metano, caracterizado porque al menos una parte del metano originado en la zona de reacción 2 durante la regeneración se alimenta a la zona de reacción 1.

25 Durante la regeneración el catalizador desactivado con hidrógeno se produce a partir de los depósitos de coque en una reacción exotérmica metano. Este se alimenta, conforme a la invención, a la zona de reacción 1 y está, por consiguiente, de nuevo disponible como reactante. Esto conlleva un aumento del rendimiento total en productos aromáticos relativo a la cantidad utilizada de C₁-C₄-alifatos. Conforme a un modo de ejecución de la presente invención, la corriente gaseosa M resultante de la regeneración se recircula sin separación del hidrógeno a la zona de reacción 1, no siendo necesaria una costosa y más cara separación de ambos compuestos de muy bajo punto de ebullición hidrógeno y metano. La adición de hidrógeno a la corriente de reactante influye además de manera positiva en la tendencia a la coquificación del catalizador. Conforme a otro modo de ejecución de la presente invención, por lo menos una parte del hidrógeno contenido en la corriente gaseosa M se recircula, antes de la retroalimentación, a la zona de reacción 1. Este modo de ejecución posee la ventaja de que el contenido en hidrógeno en la zona de reacción 1 puede ajustarse independientemente de las condiciones en la zona de reacción 2, de las que depende la descomposición de la corriente gaseosa M.

35 Conforme a otro modo de ejecución de la presente invención, el calor producido durante la regeneración del catalizador se transforma directamente en la zona de reacción 1 mediante la retroalimentación del catalizador y del metano y/o de la corriente gaseosa M. De este modo una parte del calor de reacción necesario para la aromatización se produce en el propio sistema, lo que tiene como consecuencia una necesidad reducida de energía externa del sistema global.

40 “No-oxidativo” conforme a de la presente invención significa en relación con la DHAM, que la concentración de agentes oxidantes como oxígeno o nitrógeno en la corriente de reactante E es inferior al 5% en peso, preferentemente inferior al 1% en peso, de manera especialmente preferente inferior al 0,1% en peso. La mezcla está, de manera totalmente preferente, libre de oxígeno. Se prefiere de manera igualmente preferente, una concentración de agentes oxidantes en la mezcla E, que sea tan grande o pequeña como la concentración de agentes oxidantes en el origen, del que proceden los C₁-C₄-alifatos.

45 Respecto a la regeneración no-oxidativo significa, en el contexto de la presente invención, que los depósitos de coque procedentes de la DHAM se transforman en CO y/o CO₂ sobre el catalizador en su regeneración, no por medio de agentes oxidantes como aire o oxígeno. La concentración de agentes oxidantes en la mezcla H empleada para la regeneración en el paso II es particularmente inferior al 5%, preferentemente inferior al 1%, de manera especialmente preferente inferior al 0,1% en peso.

50 La concentración de metano en la corriente gaseosa H conteniendo hidrógeno empleada para la regeneración en el paso II asciende a como máximo al 70%, preferentemente al 50%, de manera especialmente preferente al 30% y de manera especialmente preferente al 15% en peso.

- 5 Conforme a la invención, la corriente de reactante E contiene al menos un producto alifático con de 1 a 4 átomos de carbono. A estos productos alifáticos pertenecen, por ejemplo: metano, etano, propano, n-butano, i-butano, eteno, propeno, 1- y 2-buteno, isobuteno. En un modo de ejecución de la invención, la corriente de reactante E contiene como mínimo un 50% molar, preferentemente al menos un 60% molar, de manera especialmente preferente por lo menos un 70% molar, al menos un 80% molar, particularmente como mínimo un 90% molar de C₁-C₄-alifatos.
- De entre los productos alifáticos se utilizan de manera especialmente preferente los alcanos saturados. La corriente de reactante E contiene entonces preferentemente al menos un 50%, preferentemente por lo menos el 60%, de manera especialmente preferente al menos el 70%, de manera extraordinariamente preferente como mínimo un 80% molar, particularmente al menos el 90% molar de alcanos con de 1 a 4 átomos de carbono.
- 10 De entre los alcanos se prefieren el metano y etano, particularmente metano. Conforme a este modo de ejecución de la presente invención, la corriente de reactante E contiene preferentemente por lo menos un 50% molar, preferentemente al menos un 60%, de manera especialmente preferente como mínimo un 70%, de manera extraordinariamente preferente al menos un 80%, particularmente por lo menos el 90% molar de metano.
- 15 Como fuente de C₁-C₄-alifatos se emplea preferentemente gas natural. La composición típica del gas natural aparece del siguiente modo: del 75 al 99% molar de metano, del 0,01 al 15% molar de etano, del 0,01 al 10% molar de propano, hasta un 6% molar de butano, hasta un 30% molar de dióxido de carbono, hasta un 30% molar de sulfuro de hidrógeno, hasta un 15% molar de nitrógeno y hasta un 5% molar de helio. El gas natural puede antes del empleo en el procedimiento conforme a la invención por métodos conocidos por los expertos purificarse y enriquecerse. A la purificación pertenece por ejemplo, la separación del sulfuro de hidrógeno o dióxido de carbono existentes, si fuera necesario, en el gas natural y otros compuestos no deseados en el siguiente procedimiento.
- 20 Los C₁-C₄-alifatos contenidos en la corriente de reactante E pueden proceder también de otras fuentes, por ejemplo, en el refinado del petróleo originarse. Los C₁-C₄-alifatos pueden haberse fabricado también de manera regenerativa (por ejemplo, biogás) o sintética (por ejemplo, síntesis de Fischer-Tropsch).
- 25 Si como fuente de C₁-C₄-alifatos se usa biogás, la corriente de reactante E puede contener adicionalmente incluso amoníaco, trazas de alcoholes menores y otras mezclas típicas para el biogás.
- En otro modo de ejecución del procedimiento conforme a la invención, como corriente de reactante E puede utilizarse GLP (gas líquido de petróleo). Conforme a otro modo de ejecución del procedimiento conforme a la invención, como corriente de reactante E puede emplearse GNL (gas natural licuado).
- 30 A la corriente de reactante E pueden añadirse adicionalmente hidrógeno, vapor de agua, monóxido de carbono, dióxido de carbono, nitrógeno así como uno o varios gases nobles. La corriente de reactante E contiene preferentemente hidrógeno, preferentemente del 0,1 al 10%, especialmente del 0,1 al 5% en volumen de hidrógeno. Conforme a un modo de ejecución especialmente preferente de la presente invención se añade a la corriente de reactante la corriente gaseosa M originada durante la regeneración, que contiene metano e hidrógeno no consumido durante la regeneración.
- 35 En el paso I del procedimiento conforme a la invención tiene lugar la reacción de la corriente de reactante E en condiciones no-oxidativas en presencia de un catalizador en una zona de reacción 1 para generar una corriente de producto P conteniendo hidrocarburos aromáticos. Esta reacción es una deshidroaromatización, es decir, que los C₁-C₄-alifatos contenidos en la corriente de reactante E reaccionan con deshidrogenación y ciclización para obtenerse los correspondientes productos aromáticos, liberándose hidrógeno. Conforme a la invención la DHAM se verifica en presencia de catalizadores apropiados. En general, en el paso I del procedimiento conforme a la invención se pueden utilizar todos los catalizadores, que catalicen la DHAM. Los catalizadores de la DHAM contienen habitualmente un soporte poroso y al menos un metal aplicado sobre aquél. El soporte contiene habitualmente un compuesto inorgánico cristalino o amorfo.
- 40
- 45 Conforme a la invención, el catalizador contiene preferentemente como mínimo un silicato metálico como soporte. Como soporte se emplean preferentemente silicatos de aluminio y de manera totalmente preferente zeolitas. Las zeolitas son silicatos de aluminio, que en su fabricación se obtienen habitualmente en forma sódica. En la forma sódica se equilibra mediante iones de Na la carga negativa excedente existente en la red cristalina, mediante el intercambio de los átomos de Si de valencia 4 por átomos de Al de valencia 3. En vez de sodio en solitario, la zeolita puede contener para la compensación de la carga también otros iones alcalinos y/o alcalino-térreos. Conforme a la invención, la al menos una zeolita contenida en los catalizadores tiene preferentemente una estructura, seleccionada entre los tipos de estructura Pentasil y MWW y de manera especialmente preferente entre los tipos de estructura MFI, MEL. Las estructuras mixtas se seleccionan entre MFI y MEL y MWW. De manera totalmente preferente se emplea una zeolita del tipo ZSM-5 ó MCM-22. Las designaciones de los tipos de estructura de las zeolitas corresponden a las descripciones en W. M. Meier, D. H. Olson y Ch. Baerlocher, "Atlas de tipos de Estructura de las Zeolitas", Elsevier, 3ª Edición, Ámsterdam 2001. La síntesis de las zeolitas es conocida para los expertos y puede
- 55

efectuarse, por ejemplo, partiendo de aluminato alcalino, silicato alcalino y SiO_2 amorfo en condiciones hidrotermales. En este contexto, puede controlarse el tipo de sistemas de canales formados en las zeolitas a través de las moléculas orgánicas de templado, de la temperatura y otros parámetros experimentales.

Las zeolitas pueden contener, además de Al, otros elementos como Ga, B, Fe ó En.

- 5 Las zeolitas utilizadas preferentemente como soporte se emplean preferentemente en la forma hidrogenada, en la que pueden obtenerse también las zeolitas comercialmente.

10 Durante el paso de la forma sódica a la forma hidrogenada se sustituyen los iones alcalinos y/o alcalino-térreos contenidos en las zeolitas por protones. Un procedimiento habitual y preferente conforme a la presente invención para transformar los catalizadores a la forma hidrogenada es un en dos etapas proceso, en el que los iones alcalinos y/o alcalino-térreos se sustituyen primero por iones amonio. Durante el calentamiento de la zeolita de aproximadamente 400 a 500°C, se desintegra el ión amonio en amoniaco volátil y en el protón que queda en las zeolitas.

15 A tal efecto se trata la zeolita con una mezcla conteniendo NH_4 . Como componente conteniendo NH_4 de la mezcla conteniendo NH_4 se emplea una sal de amonio, seleccionada del grupo formado por: cloruro de amonio, carbonato de amonio, hidrogenocarbonato de amonio, nitrato amónico, fosfato amónico, acetato amónico, hidrogenofosfato amónico, dihidrogenofosfato amónico, sulfato amónico y hidrogenosulfato amónico. Como componente conteniendo NH_4 se utiliza preferentemente nitrato amónico.

20 El tratamiento de la zeolita con la mezcla conteniendo NH_4 se lleva un cabo por los métodos conocidos apropiados para la sustitución del amonio de las zeolitas. A tal efecto cuenta por ejemplo, el impregnado, inmersión o rociado de la zeolita con una disolución de sal de amonio, usándose la disolución generalmente en exceso. Como disolvente se utilizan preferentemente agua y alcoholes. La mezcla contiene habitualmente del 1 al 20% en peso del componente conteniendo NH_4 utilizado. El tratamiento con la mezcla conteniendo NH_4 se efectúa habitualmente a lo largo de un período de tiempo de varias horas y a altas temperaturas. Tras la actuación de la mezcla conteniendo NH_4 sobre las zeolitas, puede eliminarse la mezcla excedente y lavar la zeolita. A continuación se seca la zeolita a de 40 a 150 °C durante varias horas, habitualmente de 4 a 20 horas. Allí concluye la calcinación de la zeolita a temperaturas de 300 a 700 °C, preferentemente de 350 a 650 °C y de manera especialmente preferente de 500 a 600 °C. La duración de la calcinación asciende habitualmente a de 2 a 24 horas, preferentemente de 3 a 10 horas, especialmente de 4 a 6 horas.

30 En un modo de ejecución preferente de la presente invención, se emplean como soporte zeolitas, tratadas de nuevo con una mezcla conteniendo NH_4 y secadas a continuación. El nuevo tratamiento de las zeolitas con la mezcla conteniendo NH_4 se lleva un cabo conforme a la anterior descripción.

35 Las zeolitas comercializadas en la forma hidrogenada han recorrido ya habitualmente una primera sustitución del amonio por tratamiento con una mezcla conteniendo NH_4 con posterior secado y calcinación. En consecuencia, las zeolitas comercializadas conformes a la invención, presentes en la forma hidrogenada, se pueden emplear como soporte a), aunque preferentemente se someten a un nuevo tratamiento con una mezcla conteniendo NH_4 y, si fuera necesario, se calcinan.

40 El catalizador de la DHAM contiene habitualmente - por lo menos un metal. El metal se selecciona habitualmente entre los grupos 3 a 12 de la tabla periódica de los elementos (IUPAC). El catalizador de la DHAM contiene conforme a la invención preferentemente al menos un elemento seleccionado entre los metales de transición de los grupos principales 6 a 11. El catalizador de la DHAM contiene de manera especialmente preferente Mo, W, Mn, Tc, Re, Fe, Ru, Os, Co, Rh, Ir, Ni, Pd, Pt, Cu, Ag, Au. El catalizador de la DHAM contiene particularmente como mínimo un elemento seleccionado del grupo constituido por: Mo, W, Re, Fe, Ru, Os, Co, Rh, Ir, Ni, Pd, Pt, Cu. El catalizador de la DHAM contiene de manera totalmente preferente al menos un elemento seleccionado del grupo de Mo, W y Re.

45 El catalizador de la DHAM contiene conforme a la invención asimismo preferentemente por lo menos un metal como componente activo y al menos otro metal como provisión. El componente activo se selecciona conforme a la invención entre Mo, W, Re, Ru, Os, Rh, Ir, Pd y Pt. La provisión se selecciona conforme a la invención del grupo formado por: Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, V, Zn, Zr y Ga, preferentemente del grupo: Fe, Co, Ni, Cu. Conforme a la invención, el catalizador de la DHAM puede contener más de un metal como componente activo y más de un metal como provisión. Estos se seleccionan en cada caso entre los metales indicados para el componente activo y la provisión.

50 Como mínimo un metal se aplica conforme a la invención sobre el soporte por vía química húmeda o por vía química seca.

Por la vía química húmeda, los metales se aplican en forma de disoluciones acuosas, orgánicas u orgánicas, de sus sales o complejos mediante impregnación del soporte con la correspondiente disolución. Como disolvente puede servir también CO₂ supercrítico. La impregnación puede realizarse por el método de la humedad incipiente, en el que el volumen poroso del soporte se rellena con aproximadamente el mismo volumen de disolución de impregnación y -si fuera necesario, tras un envejecimiento- se seca el soporte. Se puede trabajar también con un exceso de disolución, siendo el volumen de esta disolución mayor que el volumen poroso del soporte. En este contexto, el soporte se mezcla con la disolución de impregnación y se agita durante un rato suficientemente largo. Es Además posible, rociar el soporte con una disolución del correspondiente compuesto metálico. También son posibles otros métodos de fabricación conocidos por los expertos como: precipitación de compuestos metálicos sobre el soporte, pulverizado de una disolución conteniendo un compuesto metálico, impregnación salina, etc. Tras la aplicación de, al menos, un metal sobre el soporte se seca el catalizador aproximadamente de 80 a 130°C habitualmente de 4 a 20 horas al vacío o en ambiente.

Conforme a la invención el, por lo menos un, metal puede también aplicarse por vías químicas secas, por ejemplo, mientras que los carbonilos metálicos gaseosos a mayores temperaturas como Mo(CO)₆, W (CO)₆ y Re₂(CO)₁₀ se aíslan de la fase gaseosa sobre el soporte. La separación del compuesto carbonilo metálico se efectúa en combinación con la calcinación del soporte. Conforme a la invención, el catalizador contiene del 0,1 al 20% en peso, preferentemente del 0,2 al 15% en peso, de manera especialmente preferente del 0,5 al 10% en peso, en cada caso relativo al peso total del catalizador del, al menos un, metal. El catalizador puede contener sólo un metal o una mezcla de dos, tres o más metales. Los elementos pueden aplicarse por vía química húmeda en conjunto en una disolución o en diversas disoluciones sucesivas con pasos de secado entre las aplicaciones individuales. Los elementos pueden aplicarse también de forma mixta, es decir una parte por vía química húmeda y otra parte por vía química seca. Entre las aplicaciones de los compuestos metálicos puede calcinarse, en la medida necesaria, conforme a la descripción anterior.

Conforme a la invención el catalizador puede contener como mínimo un metal del grupo: de los componentes activos en cooperación con por lo menos un metal seleccionado del grupo de la provisión. En este caso, la concentración de componente activo es del 0,1 al 20% en peso, preferentemente del 0,2 al 15% en peso, de manera especialmente preferente del 0,5 al 10% en peso, en cada caso relativo al peso total del catalizador.

La provisión se encuentra en este caso en el catalizador conforme a la invención en una concentración de al menos un 0,1% en peso, preferentemente de como mínimo un 0,2% en peso, de manera totalmente preferente por lo menos un 0,5% en peso, relativo al peso total del catalizador.

Conforme a otro modo de ejecución preferente de la presente invención, el catalizador se mezcla con un aglutinante. Como aglutinante sirven los aglutinantes habituales conocidos por los expertos como los aglutinantes conteniendo óxido de aluminio- y/o de Si. Se prefieren especialmente además los aglutinantes conteniendo S-; particularmente tetraalcoxisilanos, polisiloxanos y soles coloidales de SiO₂.

Conforme a la invención, tras la adición del aglutinante se lleva un cabo un paso de conformado, en el que la masa de catalizador se procesa según los procedimientos conocidos por los expertos para obtenerse cuerpos moldeados. Como procedimientos conformadores han de citarse además por ejemplo, la difusión de una suspensión conteniendo el soporte a) y/o la masa de catalizador, secado por atomizado, tableteado, prensado en estado húmedo o seco y extrusión. También se pueden combinar dos o más de estos procedimientos. Para el conformado se pueden emplear auxiliares como los formadores de poro y agentes de empastado o también otros aditivos conocidos por los expertos. Posibles agentes de empastado son aquellos compuestos, que conlleven la mejora de las propiedades de mezclado, de modelado y de fluencia. Estos son preferentemente, en el contexto de la presente invención, polímeros orgánicos, particularmente hidrófilos, como por ejemplo: celulosa, derivados de la celulosa como la metilcelulosa, almidones como el almidón de la patata, engrudos para empapelar, acrilatos, poliácridatos, polimetacrilatos, alcoholes polivinil, polivinilpirrolidonas, poliisobutilenos, politetrahidrofuranos, éteres poliglicólicos, compuestos de ácido graso, emulsiones cerosas, agua o mezclas de dos o más de estos compuestos. Como formadores de poro han de citarse, en el contexto de la presente invención, por ejemplo: compuestos dispersables, suspendibles o emulsionables en agua o mezclas acuosas de disolventes como óxido de polialquileno, poliestireno, poliácridato, polimetacrilato, poliolefinas, poliamidas, poliésteres, hidratos de carbono, celulosa, derivados de la celulosa como por ejemplo, metilcelulosa, fibras naturales del azúcar, pulpa, grafito o mezclas de dos o más de estos compuestos. Los formadores de poro y/o agentes de empastado se extraen de los cuerpos moldeados obtenidos tras el conformado preferentemente mediante al menos un paso apropiado de secado y/o calcinación. Las condiciones necesarias para ello se pueden seleccionar de manera análoga a los parámetros descritos anteriormente para la calcinación y son conocidas para el experto.

Para el empleo como catalizadores de capa fluidizada, los cuerpos moldeados de catalizador se fabrican particularmente mediante secado por atomizado.

- La geometría de los catalizadores obtenibles conforme a la invención puede ser, por ejemplo, esférica (hueca o maciza), cilíndrica (hueca o maciza), anular, en forma de sillar, de estrella, de panal o de pastilla. Se emplean además los extrudados, por ejemplo, en forma de cordón, trilóbulo, tetralóbulo, estrella o cilindro hueco. La masa de catalizador a conformar puede además extrusionarse y calcinarse y los extrudados así obtenidos romperse y procesarse para obtenerse cortes o polvo. Los cortes pueden separarse en diversas fracciones de tamizado.
- Conforme a un modo de ejecución preferente de la invención, el catalizador se emplea como cuerpo moldeado o corte.
- Conforme a otro modo de ejecución preferente, el catalizador se emplea como polvo. El polvo de catalizador puede contener además aglutinante, aunque también estar libre del mismo.
- 10 Cuando el catalizador conforme a la invención contenga un aglutinante, éste se encontrará en una concentración del 5 al 80, preferentemente del 10 al 50% en peso, de manera especialmente preferente del 10 al 30% en peso, relativo al peso total del catalizador.
- Puede resultar ventajoso activar el catalizador utilizado para la deshidroaromatización de los C₁-C₄-alifatos antes de la propia reacción.
- 15 Esta activación puede realizarse con un C₁-C₄-alcano, como por ejemplo, etano, propano, butano o una mezcla de ellos, preferentemente con butano. La activación se efectúa a una temperatura de 250 a 850°C, preferentemente de 350 a 650°C, y a una presión de 0,5 a 5 bar, preferentemente de 0,5 a 2 bar. La GHSV (Gas Hourly Space Velocity= velocidad espacial del gas por hora) durante la activación se encuentra habitualmente a de 100 a 4000 h⁻¹, preferentemente a de 500 a 2000 h⁻¹.
- 20 Sin embargo, también es posible llevar a cabo una activación, en la que la corriente de reactante E contenga ya per se el C₁-C₄-alcano, o una mezcla de ellos, o se le añada el C₁-C₄-alcano, o una mezcla de ellos a la corriente de reactante E. La activación se efectúa a una temperatura de 250 a 650°C, preferentemente a de 350 a 550°C, y una presión de 0,5 a 5 bar, preferentemente a de 0,5 a 2 bar.
- En otra forma de ejecución es también posible añadir, adicionalmente al C₁-C₄-alcano incluso hidrógeno.
- 25 Conforme a un modo de ejecución preferente de la presente invención, el catalizador se activa con una corriente gaseosa conteniendo H₂, que puede contener adicionalmente gases inertes como N₂, He, Ne y Ar.
- Conforme a la invención, la deshidroaromatización de los C₁-C₄-alifatos se efectúa en presencia de un catalizador a temperaturas de 400 a 1000 °C, preferentemente de 500 a 900°C, de manera especialmente preferente de 600 a 800°C, particularmente de 700 a 800 °C, a una presión de 0.5 a 100 bar, preferentemente a de 1 a 30 bar, de manera especialmente preferente de 1 a 10 bar, particularmente de 1 a 5 bar. Conforme a la presente invención, la reacción se efectúa a una GHSV (Gas Hourly Space Velocity) de 100 a 10 000 h⁻¹, de 200 a 3000 h⁻¹ preferentemente.
- 30 Tanto la deshidroaromatización de los C₁-C₄-alifatos conforme al paso I como también la regeneración con hidrógeno del catalizador desactivado por los depósitos de coque conforme al paso II pueden efectuarse fundamentalmente en todos los tipos de reactor conocidos del estado actual de la técnica. Una forma de reactor apropiada son los reactores de lecho fijo, de corriente radial, tubulares o multitubulares. El catalizador se encuentra en estos como lecho fijo, en un tubo de reacción o en un haz de tubos de reacción. Así mismo, los catalizadores se pueden emplear como capa fluidizada, lecho migratorio o lecho fluidizado en los correspondientes tipos de reactor apropiados y el procedimiento conforme a la invención efectuarse con los catalizadores así presentes.
- 35 Conforme a la invención, el catalizador puede emplearse sin diluir o mezclado con material inerte. Como material inerte puede servir cualquier material, que permanezca inerte, es decir que no reaccione, en las condiciones de reacción imperantes en las zonas de reacción. Como material inerte resulta especialmente apropiado el soporte no dotado, empleado para el catalizador, aunque también zeolitas inertes, óxido de aluminio, dióxido de silicio, etc. El tamaño de partícula del material inerte se encuentra en el rango del tamaño de partícula del catalizador. El material inerte sirve conforme a la invención principalmente como vehículo térmico favorable en costes, para introducir energía calorífica de la zona de reacción 2 o, si fuera necesario, tras la exclusión y el calentamiento, a la zona de reacción 1.
- 40 Conforme a la presente invención, el catalizador se encuentra preferentemente sin diluir o mezclado con material inerte en la zona de reacción 1, en la zona de reacción 2 o en ambas zonas de reacción como lecho fijo, lecho migratorio o lecho fluidizado. El catalizador y/o la mezcla de catalizador y material inerte se encuentra en la zona de
- 45
- 50

reacción 1, en la zona de reacción 2 o en ambas zonas de reacción, de manera especialmente preferente como capa fluidizada

5 Los C₁-C₄-alifatos se hacen reaccionar conforme a la invención con liberación de H₂ para obtenerse productos aromáticos. La corriente de producto P contiene, por tanto, como mínimo un hidrocarburo aromático seleccionado del grupo formado por: benceno, tolueno, etilbenceno, estireno, xileno y naftalina. De manera especialmente preferente contiene benceno y tolueno. La corriente de producto contiene además C₁-C₄-alifatos no transformados, hidrógeno originado y los gases inertes contenidos en la corriente de reactante E como N₂, He, Ne, Ar. A la corriente de reactante E se le añaden sustancias como H₂ así como las impurezas ya existentes en E.

10 La regeneración conforme a la etapa II en la zona de reacción 2 se realiza a temperaturas de 600 °C a 1000 °C y de manera especialmente preferente de 700 °C a 900 °C y presiones de 1 a 30 bar, preferentemente de 1 a 15 bar y de manera especialmente preferente de 1 a 10 bar.

15 Conforme a un modo de ejecución preferente de la presente invención, la temperatura a la entrada en la zona de reacción 2 se encuentra por encima de la temperatura a la entrada en la zona de reacción 1. La temperatura de entrada a la zona de reacción 2 se encuentra preferentemente a por lo menos 50°C, preferentemente al menos 75°C, de manera especialmente preferente como mínimo 100°C, por encima de la temperatura de entrada a la zona de reacción 1.

20 Conforme a la invención, el catalizador usado para la DHAM en el paso I se regenera regularmente con el hidrógeno contenido en la corriente gaseosa H en el paso II. Además, por lo menos una parte del coque depositado en metano se transforma. Se produce una corriente gaseosa M conteniendo metano, que comprenda, además del metano originado, hidrógeno no transformado, así como sustancias ya contenidas en la mezcla H. Conforme a la invención, al menos una parte del metano originado durante la regeneración se alimenta a la zona de reacción 1. El metano puede alimentarse a la zona de reacción 1 tras la separación de la corriente gaseosa M. preferentemente se alimenta a la zona de reacción 1 como mínimo un 50% del metano originado en la zona de reacción 2, de manera especialmente preferente por lo menos un 70%, particularmente al menos un 90% del metano originado en la zona de reacción 2. De manera muy especialmente preferente se alimenta a la zona de reacción 1 todo el metano originado durante la regeneración.

30 Conforme a un modo de ejecución preferente de la presente invención, como mínimo una parte de la corriente gaseosa M conteniendo metano originada durante la regeneración se alimenta a la zona de reacción 1. La corriente gaseosa M puede alimentarse, sin separación previa de uno o varios componentes, a la zona de reacción 1. También se puede separar uno o varios componentes antes de la retroalimentación de la corriente gaseosa M. De este modo puede ajustarse selectivamente la relación CH₄/H₂ a la entrada a la zona de reacción 1. Preferentemente se separa, antes de la retroalimentación de por lo menos una parte de la corriente gaseosa M, al menos una parte del hidrógeno no transformado allí contenido.

35 El metano y/o la corriente gaseosa M conteniendo metano originado(a) en la etapa II puede alimentarse directamente a la zona de reacción 1 o alimentarse a la corriente de reactante E mediante la adición del metano y/o de la corriente gaseosa M.

40 Las zonas de reacción 1 y 2 son dos zonas de reacción, que se hallan espacialmente separadas en un reactor o espacialmente separadas en diferentes reactores. Las zonas de reacción 1 y 2 se definen además mediante las reacciones que en ellas transcurren. En la zona de reacción 1 tiene lugar la reacción de los C₁-C₄-alifatos contenidos en la corriente de reactante E para obtenerse hidrocarburos aromáticos, en la zona de reacción 2 la transformación en metano del coque depositado sobre el catalizador desactivado con ayuda del hidrógeno contenido en la corriente gaseosa H.

45 Las zonas de reacción 1 y 2 se pueden transformar una en otra en cada caso mediante variación de las corrientes de gas. Conforme a un modo de ejecución preferente de la presente invención, la zona de reacción 1 se transforma en la zona de reacción 2 mediante la reducción de la corriente de reactante E y la alimentación de la corriente gaseosa H. La "reducción" de la corriente de reactante E significa, que la corriente de reactante E asciende como máximo al 10% en volumen en la zona de reacción de los gases alimentados, preferentemente como máximo al 5%, y de manera especialmente preferente como máximo al 1%. Se prefiere particularmente la conclusión total de la alimentación de la corriente de reactante E.

50 Conforme a un modo de ejecución preferente de la invención, la zona de reacción 2 se transforma en la zona de reacción 1 mediante reducción de la corriente gaseosa H y alimentación de la corriente de reactante E. La reducción de la corriente gaseosa H significa que la corriente gaseosa H contenga como máximo el 10% en volumen de los gases alimentados a la zona de reacción 2, preferentemente como máximo el 5% en volumen y de manera especialmente preferente como máximo el 1% en volumen, relativo a al volumen total de la alimentación de gas. De manera especialmente preferente se concluye completamente la alimentación de la corriente gaseosa H.

En otro modo de ejecución, la corriente de reactante E no contiene ningún hidrógeno, después puede también estrangularse sólo la alimentación de la corriente gaseosa H durante la transformación de la zona de reacción 2 en la zona de reacción 1, de forma que se ajuste un contenido en hidrógeno en la zona de reacción 1 que afecte positivamente a la coquificación.

5 La transformación de la zona de reacción 1 en la zona de reacción 2 y la transformación de la zona de reacción 2 en la zona de reacción 1 se efectúan de manera especialmente preferente de manera alternante mutuamente acoplada, de forma que una zona de reacción se encuentre presente a intervalos de tiempo alternantes como zona de reacción 1, en la que se verifica la DHAM, y como zona de reacción 2, en la que como mínimo una parte del coque depositado se transforma con ayuda de hidrógeno en metano. La otra zona de reacción existe a tal efecto en cada caso de modo temporalmente alternante como zona de reacción 2 y como zona de reacción 1. Conforme a la
10 invención una zona de reacción existe durante de 1 a 50 horas como zona de reacción 1 (deshidroaromatización) y de 1 a 50 horas como zona de reacción 2 (regeneración).

Conforme a la invención, puede existir más de una zona de reacción 1 y más de una zona de reacción 2; en cada caso sólo tiene que haber por lo menos una zona de reacción 1 y al menos una zona de reacción 2. También
15 pueden existir zonas de reacción, que se hallen en la fase de transformación de la zona de reacción 1 en la zona de reacción 2. Además pueden existir zonas de reacción, en las que el catalizador se regenere por otros métodos, por ejemplo, con oxígeno o vapor de agua, necesitándose posiblemente un paso de recarbidización. Conforme a la invención sólo hay preferentemente zonas de reacción 1 y zonas de reacción 2.

Para la regeneración del catalizador desactivado por los depósitos de coque del paso I, éste se regenera conforme a la invención regularmente con hidrógeno en la zona de reacción 2. Conforme a un modo de ejecución de la
20 invención, el catalizador se transforma a tal efecto de la zona de reacción 1 a la zona de reacción 2 y allí se regenera con la ayuda de la corriente gaseosa H conteniendo hidrógeno. Entonces se recircula de nuevo el catalizador regenerado a la zona de reacción 1. Conforme a otro modo de ejecución de la invención, la zona de reacción 1 se transforma, tal y como se ha descrito anteriormente, por reducción de la alimentación de la corriente
25 de reactante E y alimentación de la corriente gaseosa H a la zona de reacción 2. El catalizador desactivado se regenera y la zona de reacción 2 se transforma a continuación de nuevo, tal y como se ha descrito anteriormente, en la zona de reacción 1.

Conforme a un modo de ejecución especialmente preferente de la presente invención, las zonas de reacción 1 y 2 se encuentran en un reactor espacialmente separadas. El reactor contiene el catalizador o una mezcla de
30 catalizador y material inerte en forma de partículas y opera como lecho fluidizado estacionario. Se trata de además de una capa fluidizada burbujeante o turbulenta, provista un dispositivo apropiado para la retención del catalizador y, si fuera necesario, del material inerte. Las partículas de catalizador o de mezcla de catalizador y material inerte son además lo suficientemente fluidas como para recorrer periódicamente las diferentes zonas espaciales del reactor. La alimentación de la corriente de reactante E se lleva un cabo además por encima de la alimentación de la corriente
35 gaseosa H. Este modo de ejecución se representa esquemáticamente en la Figura 1. En la zona de la alimentación de la corriente gaseosa H se halla la zona de reacción 2, en la que se verifica conforme a la invención la reacción de los depósitos de coque para obtenerse metano conforme al paso II del presente procedimiento. La corriente gaseosa M además resultante sube hacia arriba en la zona de reacción 1, en la que se hacen reaccionar los C₁-C₄-alifatos contenidos en la corriente de reactante E para obtenerse productos aromáticos. Las partículas de catalizador y/o de
40 mezcla de catalizador y material inerte se desplazan de la zona de reacción 2 a la zona de reacción 1 y se desplazan por el contrario, por tanto, entre la zona de reacción 1 y la zona de reacción 2.

Conforme a un modo de ejecución preferente de la presente invención, como mínimo una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II se alimenta a la zona de reacción 2 de la zona de reacción 1,
45 para contribuir al menos parcialmente a la cobertura de la energía necesaria en el paso I para la DHAM. La alimentación de calor puede además realizarse directa o indirectamente. El calor se alimenta preferentemente de forma directa. A tal efecto se alimenta preferentemente por lo menos una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II directamente a la zona de reacción 2 mediante traslado de al menos una parte del catalizador regenerado de la zona de reacción 2 a la zona de reacción 1. El catalizador regenerado sirve como soporte térmico. Conforme a otro modo de ejecución preferente se alimenta como mínimo una parte del calor
50 generado durante la regeneración del catalizador en el paso II a la zona de reacción 2 directamente mediante la corriente gaseosa M de la zona de reacción 2 a la zona de reacción 1.

De manera especialmente preferente se alimenta por lo menos una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II a la zona de reacción 2 directamente mediante traslado de al menos una parte del catalizador regenerado y como mínimo de una parte de la corriente gaseosa M de la zona de reacción 2 a la zona de
55 reacción 1.

En el modo de ejecución preferente de la invención antes descrito y representado esquemáticamente en la Figura 1, en el que ambas zonas de reacción están en un reactor, que opera como lecho fluidizado no vaciable, se alimenta a

la zona de reacción 1 el calor resultante durante la regeneración en la zona de reacción 2 en el paso II mediante la corriente gaseosa M así como mediante las partículas de catalizador fluidizadas en movimiento.

5 En la transformación de la zona de reacción 1 en la zona de reacción 2 y viceversa, el catalizador se encuentra preferentemente como lecho fijo o como capa fluidizada estacionaria. La parte que opera como zona de reacción 1 se enfría debido a la DHAM endotérmica. Tras la transformación en la zona de reacción 2 se calienta esta zona de reacción mediante la transformación exotérmica de los depósitos de coque en metano. Cuando esta zona de reacción se transforma entonces de nuevo en la zona de reacción 1, al menos una parte del calor originado en la reacción de los depósitos de coque para obtenerse metano se transforma mediante el catalizador calentado en la zona de reacción 1.

10 Conforme a otro modo de ejecución preferente de la presente invención, puede alimentarse una parte de la energía necesaria en la zona de reacción 1 en el paso I del presente procedimiento mediante calentamiento del catalizador y, si fuera necesario, del material inerte indirectamente, por ejemplo, mediante un haz de intercambiadores de calor en la zona de reacción 1.

15 Conforme a otro modo de ejecución preferente de la presente invención, se alimenta una parte de la energía necesaria en la zona de reacción 1 en el paso I del presente procedimiento mediante

i) Extracción de por lo menos una parte del catalizador presente en la zona de reacción 1 ó 2 y, si fuera necesario, del material inerte de la zona de reacción 1 ó 2,

ii) calentamiento del catalizador empleado y si fuera necesario, del material inerte a una temperatura superior a la temperatura en la zona de reacción 1 y

20 iii) recirculación del catalizador calentado y, si fuera necesario, del material inerte a la zona de reacción 1.

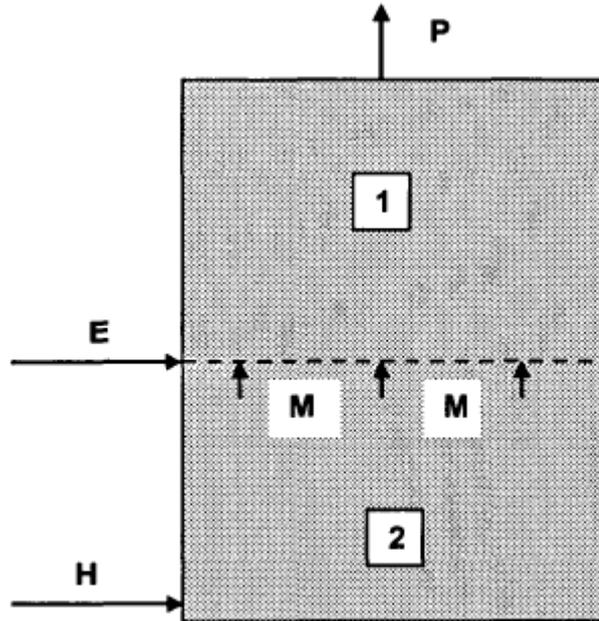
25 El catalizador empleado se calienta además a una temperatura, que se encuentre al menos 50°C, preferentemente como mínimo 100°C y de manera especialmente preferente por lo menos 150°C por encima de la temperatura en la zona de reacción 1. El calentamiento del catalizador empleado puede realizarse directa o indirectamente. El catalizador empleado directamente se precalienta preferentemente, por ejemplo, haciendo pasar los gases de combustión a través del catalizador. Alternativamente puede calentarse con los gases de combustión un gas inerte, que caliente entonces el catalizador en contacto directo.

REINVINDICACIONES

1. Procedimiento para la deshidroaromatización no-oxidativa de una corriente de reactante E conteniendo C₁-C₄-alifato, comprendiendo los pasos
- 5 I. Transformación de la corriente de reactante E en condiciones no-oxidativas, en presencia de un catalizador, en una zona de reacción 1, para obtenerse una corriente de producto P conteniendo hidrocarburos aromáticos,
- II Regeneración del catalizador de actividad reducida debido al coque depositado del paso I con una corriente gaseosa H conteniendo hidrógeno en una zona de reacción 2, transformándose al menos una parte del coque depositado en metano y originándose una corriente gaseosa M conteniendo metano,
- 10 **caracterizado porque** como mínimo una parte del metano originado en la zona de reacción 2 durante la regeneración se alimenta a la zona de reacción 1.
2. Procedimiento acorde a la Reivindicación 1, **caracterizado porque** por lo menos una parte de la corriente gaseosa M originada durante la regeneración se alimenta a la zona de reacción 1.
3. Procedimiento acorde a la Reivindicación 1 ó 2 **caracterizado porque** al menos una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II en la zona de reacción 2 se alimenta a la zona de reacción 1.
- 15 4. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 3, **caracterizado porque** el catalizador se utiliza mezclado con un material inerte.
5. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 4, **caracterizado porque** como mínimo una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II en la zona de reacción 2 se alimenta directamente, mediante traslado de por lo menos una parte del catalizador regenerado de la zona de reacción 2, a la zona de reacción 1.
- 20 6. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 5, **caracterizado porque** al menos una parte del calor generado durante la regeneración del catalizador en el paso II en la zona de reacción 2 se alimenta directamente mediante la corriente gaseosa M de la zona de reacción 2 a la zona de reacción 1.
7. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 6, **caracterizado porque** como mínimo una parte del calor necesario en el paso I mediante
- 25 i) Ejecución de por lo menos una parte del catalizador de la zona de reacción 1 ó 2 situado en la zona de reacción 1 ó 2,
- ii) calentamiento del catalizador empleado a una temperatura superior a la temperatura en la zona de reacción 1 y
- iii) recirculación del catalizador calentado a la zona de reacción 1.
- 30 8. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 7, **caracterizado porque** la temperatura a la entrada en la zona de reacción 2 se encuentra por encima de la temperatura a la entrada en la zona de reacción 1.
9. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 8, **caracterizado porque** las zonas de reacción 1 y 2 se hallan espacialmente separadas en un reactor.
- 35 10. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 8, **caracterizado porque** las zonas de reacción 1 y 2 se hallan espacialmente separadas en diferentes reactores.
11. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 10, **caracterizado porque** la zona de reacción 1 se transforma a intervalos de tiempo, mediante reducción de la corriente de reactante E y alimentación de la corriente gaseosa H, en la zona de reacción 2.
- 40 12. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 11 **caracterizado porque** la zona de reacción 2 se transforma a intervalos de tiempo, mediante reducción de la corriente gaseosa H y alimentación de la corriente de reactante E, en la zona de reacción 1.

13. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 12, **caracterizado porque** el catalizador se encuentra en la zona de reacción 1, en la zona de reacción 2 ó en ambas zonas de reacción, como capa fluidizada.
14. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 13, **caracterizado porque** la corriente de reactante E contiene al menos un 50% molar de C₁-C₄-alifatos.
- 5 15. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 14, **caracterizado porque** la corriente de reactante E contiene del 0,1 al 10% en volumen de hidrógeno.
16. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 15, **caracterizado porque** la corriente gaseosa H contiene como mínimo un 50% en volumen de hidrógeno.
- 10 17. Procedimiento según al menos una de las Reivindicaciones 1 a 16, **caracterizado porque** el catalizador contiene por lo menos un silicato de aluminio y al menos un metal seleccionado del grupo formado por: Mo, W, Mn y Re.
18. Procedimiento acorde a la Reivindicación 17, **caracterizado porque** el catalizador contiene como mínimo otro metal seleccionado del grupo formado por: Cr, Mn, V, Zn, Zr, Ga, Cu, Ni, Co y Fe.

FIGURA 1



- 1: zona de reacción 1 (DHAM)
- 2: zona de reacción 2 (regeneración)
- E: corriente de reactante conteniendo C₁-C₄-alifatos
- H: corriente gaseosa conteniendo hidrógeno
- M: corriente gaseosa conteniendo metano
- P: corriente de producto conteniendo hidrocarburos aromáticos

5

10