

明 細 書

発明の名称：

多管式反応器ならびに多管式反応器の設計および製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、多管式反応器ならびに多管式反応器の設計およびその製造方法に関する。さらに詳しくは、円筒状のシェルと、このシェル内に配置される複数の反応管と、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板とを含む多管式反応器ならびにかかる多管式反応器の設計およびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 円筒状のシェル内に、このシェルの中心軸に対して平行となるように、複数本の直管状の反応管（直径数ｃｍ程度）が収容された多管式反応器（いわゆる、シェル・アンド・チューブ型の反応器）では、例えば、反応管に触媒を充填しておき、この反応管に原料ガスを供給して、この反応管内において、原料ガスを一方向に流通させながら、原料ガスを反応させることによって、目的とする物質（以下、「目的物質」または「目的生成物」と呼ぶ場合もある）の生成が行われる。

かかる反応管内における原料ガスの反応では、目的物質を効率よく生成する上で、反応温度が非常に重要である。そして、多管式反応器では、例えば、亜硝酸ナトリウムや硝酸カリウム等の溶融塩（HTS：Heat Transfer Salt）を熱媒体として用い、この熱媒体をシェルの内側（詳しくは、シェルと、その内部に配置した反応管との間）に供給充填して、この熱媒体をシェル内に流通させることによって、適切な反応温度となるように反応管の温度を調整している。例えば、発熱反応では、反応時に発生した反応熱を熱媒体によって除熱し、吸熱反応では、反応に必要な熱を熱媒体から反応管に供給して原料ガスを加熱することによって、適切な反応温度となるように反応管の温度を調整している。

[0003] 熱媒体による除熱や加熱を効率よく行う上では、熱媒体と、多数の反応管

とを効率よく接触させることが求められる。そのため、従来では、熱媒体と、反応管との接触効率を高めるために、反応管の配列を調整したり、多管式反応器のシェル内に邪魔板（又はバッフル）を設けて、熱媒体の流れを調整したりして、熱媒体と、反応管との接触効率を向上させて、熱媒体による反応管の除熱や加熱の効率を高くすることが行われている（例えば、非特許文献1）。

[0004] しかるに、多管式反応器に設けられる反応管の数は、多い場合には、数千本～数万本であり、しかも多数の反応管同士が数mm程度の間隔で配設され得る。そのため、反応管の配列を調整したり、多管式反応器のシェル内に邪魔板を設けたりしても、全ての反応管について、熱媒体と反応管との接触状況を良くすることは、極めて困難である。従って、熱媒体によって除熱や加熱を効率よく行うことができない反応管が存在することになる。そして、かかる除熱効率が悪い反応管が存在する場合、その反応管では、反応熱の蓄積などによって非常に高温の部分（ホットスポット）が形成される可能性がある。また、加熱不足により非常に温度の低い部分（コールドスポット）が形成される可能性もある。かかるホットスポットやコールドスポットが形成されると、原料ガスの反応が適切に行われにくくなり、目的物質の製造効率が低下するという問題が生じ得るため、ホットスポットやコールドスポットが形成されないように多管式反応器を制御する必要がある。

[0005] かかるホットスポットやコールドスポットの形成を抑制する技術として、例えば、反応管内の触媒温度を測定して、ホットスポット部が形成され得る位置を把握する技術などが開示されている（特許文献1）。

[0006] 特許文献1には、固定床多管式反応器において、複数本の反応管からなる反応管群を設け、この反応管群のすべて、もしくはその一部の反応管に触媒温度測定器を設けて、触媒温度を測定する技術が開示されている。そして、反応管群に設けられた触媒温度測定器によってホットスポット部の有無を監視し、その測定結果に基づいて反応を制御することで、気相接触酸化反応を安定的に、かつ高効率に操業できる旨の記載がある（特許文献1の明細書の

5 頁 4 3 ～ 4 6 行参照)。

[0007] また、特許文献 1 には、反応管数が多い場合には、固定床多管式反応器内で、熱媒体のフローパターンの違いが大きくなりやすく、フローパターンが異なると反応管の伝熱状態が変化するという問題が提示されている。そして、触媒温度測定器が設けられた反応管群を、反応管の外側を流れる熱媒体のフローパターンが異なる部分に配置すれば、固定床多管式反応器内の温度をより詳細に把握することができる旨の記載もある（特許文献 1 の明細書の 5 頁 2 3 ～ 3 8 行参照）。

[0008] しかるに、特許文献 1 には、上述したように、熱媒体のフローパターンが異なる部分に触媒温度測定器が設けられた反応管群を配置することにより、固定床多管式反応器内の温度をより詳細に把握することができる旨が記載されているものの、フローパターンとホットスポット部が形成され得る位置との関係に関しては、具体的な記載は全くない。

[0009] また、特許文献 1 では、特許文献 1 の図 5 のフローパターンから判断すると、邪魔板として、欠円形の邪魔板（例えば、D - c u t、半円形の邪魔板など）を採用した固定床多管式反応器を前提として記載または説明されている（非特許文献 1 の 4 0 5 頁参照）。

しかし、欠円形の邪魔板は小型の多管式反応器（反応管の本数が 1 万本未満）であれば採用することができるが、大型の多管式反応器（反応管の本数が 1 万本以上）に採用した場合には、シェル内を流れる熱媒体の流動抵抗が大きくなってしまう。そのため、大型の多管式反応器では、欠円形の邪魔板を使用することは少なく、環状形邪魔板（すなわち、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板）が採用される場合が多いが、かかる大型の多管式反応器内での反応を適切に制御する上では、どのような位置において、反応管の温度測定をすればよいのかについて、特許文献 1 の技術からは推測することは困難である。

先行技術文献

特許文献

[0010] 特許文献1：国際公開WO 2005／005037号

非特許文献

[0011] 非特許文献1：尾花英明著、「熱交換器設計ハンドブック（増訂版）」、工学図書株式会社、昭和61年5月25日、pp402-407

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] 本発明は、上記の事情に鑑みて、発熱や吸熱反応を伴う物質の製造の際に、ホットスポットやコールドスポットが形成されることを防ぐように、適切に反応を制御することができる多管式反応器の提供ならびにこのような多管式反応器の設計およびその製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] （多管式反応器）

[1]

円筒状のシェルと、該シェル内に配置される複数の反応管と、ディスクアンドドーナツ型の邪魔板とを含む多管式反応器であって、

該複数の反応管が、三角配置となるように配列されており、

該複数の反応管のうちの1つまたはそれ以上は、温度計が設けられている測温反応管であり、

該シェルの中心軸と直交する該反応器の断面において、該測温反応管の中心軸と該シェルの中心軸とを結ぶ直線（以下、「基準直線」と呼ぶ場合もある）と、該測温反応管の中心軸と該測温反応管に隣接する少なくとも1つの隣接反応管の中心軸とを結ぶ直線（以下、「連結直線」と呼ぶ場合もある）とが、0～15度の角度をなしている

ことを特徴とする多管式反応器（以下、「第1発明」と呼ぶ場合もある）。

[2]

気固不均一反応に用いられる固定床多管式反応器であることを特徴とする、上記[1]に記載の多管式反応器（以下、「第2発明」と呼ぶ場合もある

）。

[3]

プロピレン、イソブチレン、*t*-ブチルアルコールまたはそれらの2種以上の混合物を、気相において分子状酸素を含有するガスにより酸化して、（メタ）アクロレイン及び／又は（メタ）アクリル酸を製造することを特徴とする、上記[2]に記載の多管式反応器（以下、「第3発明」と呼ぶ場合もある）。

[4]

前記シェルの内径が3 m以上であることを特徴とする、上記[1]～[3]のいずれか1項に記載の多管式反応器（以下、「第4発明」と呼ぶ場合もある）。

[5]

前記シェル内に配置される複数の反応管の本数が、5 0 0 0本以上であることを特徴とする、上記[1]～[4]のいずれか1項に記載の多管式反応器（以下、「第5発明」と呼ぶ場合もある）。

[6]

前記反応管の外径（D）に対する、互いに隣接する2つの反応管の中心軸の間の距離（L）の比（ L/D ）が1.2～1.6であることを特徴とする、上記[1]～[5]のいずれか1項に記載の多管式反応器（以下、「第6発明」と呼ぶ場合もある）。

[7]

前記円筒状のシェル内を熱媒体が流れて該反応管と接触することを特徴とする、上記[1]～[6]のいずれか1項に記載の多管式反応器（以下、「第7発明」と呼ぶ場合もある）。

[8]

前記熱媒体と、前記反応管とが接触する部分の長さが1.3 m以上であることを特徴とする、上記[1]～[7]のいずれか1項に記載の多管式反応器（以下、「第8発明」と呼ぶ場合もある）。

[9]

前記円筒状のシェルの中心軸と直交する前記反応器の断面において、中心角が30°の扇形の領域に前記測温反応管が配置されていることを特徴とする、上記[1]～[8]のいずれか1項に記載の多管式反応器(以下、「第9発明」と呼ぶ場合もある)。

[0014] (多管式反応器の設計およびその製造方法)

[10]

円筒状のシェルト、該シェルの内に配置される複数の反応管と、デイスクープノードーナツ型の邪魔板とを含む多管式反応器の設計または製造方法であって、

該複数の反応管を三角配置となるように配列すること、および

該複数の反応管のうちの1つまたはそれ以上に温度計を設けて測温反応管を形成することを含む、

該シェルの中心軸と直交する該反応器の断面において、該測温反応管の中心軸と該シェルの中心軸とを結ぶ直線(基準直線)と、該測温反応管の中心軸と該測温反応管に隣接する少なくとも1つの隣接反応管の中心軸とを結ぶ直線(連結直線)とが、0～15度の角度をなしている

ことを特徴とする多管式反応器の設計または製造方法(以下、「第10発明」と呼ぶ場合もある)。

[11]

前記多管式反応器が、気固不均一反応に用いられる固定床多管式反応器であることを特徴とする、上記[10]に記載の設計または製造方法(以下、「第11発明」と呼ぶ場合もある)。

[12]

前記気固不均一反応において、プロピレン、イソブチレン、ターピチルアルコールまたはそれらの2種以上の混合物を、気相において分子状酸素を含む有するガスにより酸化して、(メタ)アクリロイン及び/又は(メタ)アクリル酸を製造することを特徴とする、上記[11]に記載の設計または製造

方法 (以下、「第 12 発明」と呼ぶ場合もある)。

[13]

前記シエルの内径が 3 m 以上であることを特徴とする、上記 [10] ～ [12] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 13 発明」と呼ぶ場合もある)。

[14]

前記シエル内に配置する複数の反応管の本数が、5000 本以上であることを特徴とする、上記 [10] ～ [13] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 14 発明」と呼ぶ場合もある)。

[15]

前記反応管の外径 (D) に対する、互いに隣接する 2 つの反応管の中心軸の間の距離 (L) の比 (L/D) が 1.2 ～ 1.6 となるように、前記複数の反応管を前記シエル内に配置することを特徴とする、上記 [10] ～ [14] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 15 発明」と呼ぶ場合もある)。

[16]

前記円筒状のシエル内を熱媒体が流れて該反応管と接触することを特徴とする、上記 [10] ～ [15] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 16 発明」と呼ぶ場合もある)。

[17]

前記熱媒体と、前記反応管とが接触する部分の長さが 1.3 m 以上であることを特徴とする、上記 [10] ～ [16] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 17 発明」と呼ぶ場合もある)。

[18]

前記円筒状のシエルの中心軸と直交する前記反応器の断面において、中心角が 30° の扇形の領域に前記測温反応管を配置することを特徴とする、上記 [10] ～ [17] のいずれか 1 項に記載の設計または製造方法 (以下、「第 18 発明」と呼ぶ場合もある)。

発明の効果

[0015] (多管式反応器)

第1発明によれば、本発明の多管式反応器には、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板が設けられているので、シェル内に熱媒体を供給すれば、シェル内には、その中心軸からシェルの外周に向かう熱媒体の流れや、シェルの外周からシェルの中心軸に向かう熱媒体の流れが形成され得る。しかし、基準直線と連結直線とが0～15度の角度をなす場合、これらの反応管では、熱媒体との接触効率の悪い状態となる。従って、これらの反応管では、熱媒体との間での熱伝達の悪い部分が形成される可能性が高く、本発明では、これらの反応管に温度計を設けて測温反応管とし、この測温反応管によって測定される温度データを利用することで、ホットスポットやコールドスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる。

第2発明によれば、気固不均一反応によって物質を製造する場合でも、ホットスポットやコールドスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる。

第3発明によれば、(メタ)アクロレイン及び／又は(メタ)アクリル酸が生成される反応は、発熱反応であるが、ホットスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる。

第4発明によれば、シェルの直径が大きくても、反応管で生じている反応を的確に把握でき、シェル内の状態を適切に制御することができる。

第5発明によれば、多数の反応管が設置されていても、少ない数の温度計でシェル内の状態を適切に判断することができる。すると、反応管に設置する温度計の数が少なくできるので、反応管の数が多くても、反応器の操業準備を短時間で行うことができる。しかも、温度計を多数設ける場合に比べて、多管式反応器の構造は複雑にはならない。

第6発明によれば、シェル内に熱媒体を供給した場合において、熱媒体の流動抵抗を抑えつつ、熱媒体と反応管との接触状態を向上させることができる。

第7発明によれば、熱媒体がシェル内を流れ、熱媒体と反応管とが接触して、熱媒体の流動状態や反応管との接触効率および熱伝導が向上し得る。

第8発明によれば、反応管で生じる反応を適切に制御することができるので、反応管が長くなっても、反応管の軸方向の位置による温度差を抑えることができる。

第9発明によれば、熱媒体の流れは、軸対称であり、シェルの中心軸の周りで、30度ごとに同じ流動状態が繰り返され得るので、シェル断面の30度の領域に測温反応管を設けることで、反応器全体の反応状態を把握することができ、適切にシェル内の状態を判断することができる。従って、第9発明によって、測温反応管の数をさらに少なくすることができる。

[0016] (多管式反応器の設計および製造方法)

第10発明によれば、本発明の多管式反応器には、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板を設けるので、シェル内に熱媒体を供給すれば、シェル内には、その中心軸からシェルの外周に向かう熱媒体の流れや、シェルの外周からシェルの中心軸に向かう熱媒体の流れが形成され得る。しかし、基準直線と連結直線とが0～15度の角度をなす場合、これらの反応管では、熱媒体との接触効率の悪い状態となる。従って、これらの反応管では、熱媒体との間での熱伝達の悪い部分が形成される可能性が高く、本発明では、これらの反応管に温度計を設けて測温反応管とし、この測温反応管によって測定される温度データを利用することで、ホットスポットやコールドスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる多管式反応器を設計および製造することができる。

第11発明によれば、気固不均一反応によって物質を製造する場合でも、ホットスポットやコールドスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる多管式反応器を設計および製造することができる。

第12発明によれば、(メタ)アクロレイン及び／又は(メタ)アクリル酸が生成される反応は、発熱反応であるが、ホットスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる多管式反応器を設計および

製造することができる。

第13発明によれば、シェルの直径が大きくても、反応管で生じている反応を的確に把握でき、シェル内の状態を適切に制御することができる多管式反応器を設計および製造することができる。

第14発明によれば、多数の反応管が設置されていても、少ない数の温度計でシェル内の状態を適切に判断することができる多管式反応器を設計および製造することができる。すると、反応管に設置する温度計の数が少なくできるので、反応管の数が多くても、反応器の操業準備を短時間で行うことができる。しかも、温度計を多数設ける場合に比べて、多管式反応器の構造は複雑にはならない。

第15発明によれば、シェル内に熱媒体を供給した場合において、熱媒体の流動抵抗を抑えつつ、熱媒体と反応管との接触状態を向上させることができる多管式反応器を設計および製造することができる。

第16発明によれば、熱媒体がシェル内を流れ、熱媒体と反応管とが接触して、熱媒体の流動状態や反応管との接触効率および熱伝導が向上し得る多管式反応器を設計および製造することができる。

第17発明によれば、反応管で生じる反応を適切に制御することができるので、反応管が長くなっても、反応管の軸方向の位置による温度差を抑えることができる多管式反応器を設計および製造することができる。

第18発明によれば、熱媒体の流れは、軸対称であり、シェルの中心軸の周りで、30度ごとに同じ流動状態が繰り返され得るので、シェル断面の30度の領域に測温反応管を設けることで、反応器全体の反応状態を把握することができ、適切にシェル内の状態を判断することができる多管式反応器を設計および製造することができる。従って、第18発明によって、測温反応管の数をさらに少なくすることができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の多管式反応器において、測温反応管を設定する方法の概略説明図である。

[図2]本発明の多管式反応器の概略説明図である。

[図3]本発明の多管式反応器のシェル内に配置される反応管の概略説明図であって、(A)は、通常の反応管の概略説明図であり、(B)は、測温反応管の概略説明図である。

[図4]実施例の数値シミュレーションを行ったモデルの概略説明図である。

[図5]実施例の数値シミュレーションの結果を示した図である。

[図6]実施例の数値シミュレーションの結果を示した図である。

[図7]実施例の数値シミュレーションの結果を示した表および図である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の多管式反応器の一実施形態を添付の図面を参照しながら詳しく説明する。なお、本発明の多管式反応器は、添付の図面に示される実施形態に限定されるものではない。

本発明の多管式反応器は、円筒状のシェル内に配置した複数の反応管内で、原料、好ましくは流体の原料、より好ましくは気体の原料を反応させて、目的物質を製造することのできる多管式反応器、好ましくは固定床多管式反応器であって、反応管にホットスポットやコールドスポットが形成されることを防ぐことができるようにしたことを特徴としている。

なお、ホットスポットとは、原料から目的物質が製造される際の反応が発熱反応である場合において、反応管の他の部分に比べて温度が高い部分を意味している。

また、コールドスポットとは、原料から目的物質が製造される際の反応が吸熱反応である場合において、反応管の他の部分に比べて温度が低い部分を意味している。

[0019] 以下では、本発明の多管式反応器が、例えば、気固不均一反応によって、目的物質を製造することのできる固定床多管式反応器である場合の代表的な例を挙げて説明する。

[0020] また、本発明の多管式反応器において製造され得る目的物質としては、例えば、(メタ)アクロレイン(又は(メタ)アクリルアルデヒド)及び/又

は（メタ）アクリル酸を挙げることができる。例えば、本発明の多管式反応器の反応管に、プロピレン、イソブチレン、*t*-ブチルアルコールまたはそれらの2種以上の混合物を、好ましくは気体の状態で供給し、その気相において、分子状酸素を含有するガスにより酸化すれば、（メタ）アクロレイン及び／又は（メタ）アクリル酸を製造することができる。

[0021] 詳しくは、プロピレンを酸化させてアクロレイン（又はアクリルアルデヒド）を形成し、さらに酸化させてアクリル酸を形成することができる。また、イソブチレンを酸化させてメタクロレイン（又はメタクリルアルデヒド）を形成し、さらに酸化させてメタクリル酸を形成することができる。また、*t*-ブチルアルコールを酸化させて、イソブチレンを経由して、メタクロレインを形成し、さらに酸化させてメタクリル酸を形成することができる。

この場合、（メタ）アクロレイン及び／又は（メタ）アクリル酸は、反応管内における上記原料（好ましくは原料ガス）の反応によって生成され、その際には、熱が発生し得るが、本発明の多管式反応器であれば、ホットスポットができないようにシェル内の状態を適切に制御することができる。

なお、本発明では、プロピレン、イソブチレン、*t*-ブチルアルコールまたはそれらの2種以上の混合物などの反応物質、ならびに分子状酸素を含有するガスなどの反応に関与し得る物質を総称して、「原料」、または気体の場合には「原料ガス」と呼ぶ場合がある。

[0022] また、本発明の多管式反応器において行われ得る反応は、発熱反応だけではなく、メタンの水蒸気改質（ $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3\text{H}_2$ ）などの吸熱反応等も行いうることができるが、本発明で行われ得る反応は、特にこれらに限定されるものではない。

[0023] 本発明の多管式反応器の特徴を説明する前に、まず、図2を参照しながら、本発明の多管式反応器の基本構造について簡単に説明する。

なお、図2では、本発明の多管式反応器の構造を理解しやすくするために、便宜上、実際の多管式反応器に比べて反応管の本数は大幅に少なく記載している。また、各部の相対的な大きさも実際の多管式反応器とは異なる寸法

となっている。

[0024] 図2に示す本発明の多管式反応器1は、円筒状のシェル2内に複数本の反応管10が設けられた反応器であって、シェル2内を流れる熱媒体（以下、「HTM (Heat Transfer Medium)」と略記する場合もある）の流れを制御することのできる邪魔板として、1つまたはそれ以上のディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板5が設けられたものである。

[0025] 具体的には、図2に示すように、多管式反応器1は、中空な円筒状のシェル2を備えており、このシェル2内には複数本の反応管10が収容されている。例えば、シェル2内には、5000本以上、好ましくは5000本～100000本、より好ましくは10000本～60000本の反応管10が収容され得る。

シェル2を構成する材料に特に制限はなく、例えば、ステンレス、炭素鋼、ニッケルなどの材料で構成されていてよい。

[0026] 図3に示すように、このシェル2内に配置される複数本の反応管10は、例えば、ステンレス、炭素鋼、ニッケルなどの材料で構成されていてよい。かかる複数本の反応管10は、いずれも、直管状の円管であり、その中心軸（すなわち、反応管の長手方向に対して垂直方向の断面の幾何学上の中心から、この断面に対して垂直方向に延びる軸線）がシェル2の中心軸（すなわち、円筒状シェルの長手方向に対して垂直方向の断面の形状の幾何学上の中心（例えば、円の中心）から、この断面に対して垂直方向に延びる軸線）と平行となるように配設され得る。しかも、この複数本の反応管10のうち、少なくとも1つの反応管10には温度計20が設けられており、この温度計20によって反応管10の内部の温度を測定することができ、シェル2内の状態を判断することができる（図3（B）参照）。

[0027] なお、図2および図3に示すように、本発明では、内部に温度計20を設けた反応管10を「測温反応管（10m）」とも称する。反応管10の内部の温度を測定することができれば、特に反応系中の温度を測定することができれば、反応管10内において温度計20を配置する位置に特に制限はない

。なお、本発明では、反応管 10 および測温反応管 10m を総称して、単に反応管または反応管 10 と呼ぶ場合もある。また、図 3 に示すように、反応管 10 内には、必要に応じて、目的の反応に適した触媒 C が所定の量で充填されていてもよい。例えば、原料ガス（以下、「BRG」と記載する場合もある）が、触媒の介在がなくても、反応して目的の物質が生成され得る場合には、反応管 10 内には触媒 C は存在していても、存在していなくてもよい。また、反応管 10 内に触媒 C が存在する場合には、その使用量に特に制限はなく、原料の種類および量、その目的の反応および目的の生成物に応じて、適宜決定すればよい。

[0028] 触媒 C は、使用する原料、目的の反応、目的の生成物に応じて、適宜決定すればよく、例えば、気固不均一反応において、例えば、プロピレン、イソブチレン、*t*-ブチルアルコールまたはそれらの 2 種以上の混合物を、気相において分子状酸素を含有するガスにより酸化して、（メタ）アクロレイン及び／又は（メタ）アクリル酸を製造する場合には、触媒として、固体の状態で、モリブテン金属系触媒などを使用することができる。

[0029] また、メタンの水蒸気改質の場合には、触媒として、ニッケル金属系触媒、ルテニウム金属系触媒などを使用することができる。

なお、本発明で使用するのことができる触媒は、上記のものに限定されることはない。

[0030] また、本発明において、「気固不均一反応」とは、気相と固相との不均一反応を意味し、より具体的には、気相として、上述のプロピレン、イソブチレン、*t*-ブチルアルコールまたはそれらの 2 種以上の混合物および分子状酸素を含有するガスなどの原料ガスが、反応管内に充填された触媒（固相）と接触して反応することを意味する。なお、本発明では、反応管内に充填された触媒、あるいは触媒が充填された反応管を「固定床」と称する。

[0031] シェル 2 内に配置される複数本の反応管 10 は、図 2 に示すように、一対の保持プレート 3a, 3b によって、その両端が保持され得る。この一対の保持プレート 3a, 3b は、シェル 2 内の空間を 3 つの空間 2a と、2b と

、2 c とに、気密かつ液密に、分割し得る。そして、一对の保持プレート 3 a, 3 b は、シェル 2 の中心軸方向において、反応管 1 0 のそれぞれが開口両端部にてそれぞれ空間 2 a および空間 2 c に独立して連通し得るような位置に設けることができる。また、反応管 1 0 の開口端部は、保持プレート 3 a, 3 b から、それぞれ独立して、空間 2 a, 2 c の側に突出していてもよく、また、保持プレート 3 a, 3 b の内部に存在していてもよい。また、反応管 1 0 の開口端部は、保持プレート 3 a, 3 b と、空間 2 b の側でそれぞれ面一であってもよく、あるいは、保持プレート 3 a, 3 b を通して、空間 2 a, 2 c の側で、保持プレート 3 a, 3 b とそれぞれ面一であってもよい。なお、保持プレート 3 a, 3 b は、図 2 に示す通り、複数の反応管 1 0 を通すための孔を有し得る。

[0032] 図 2 に示すように、シェル 2 には、さらに、空間 2 a と外部とを連通する供給口 1 a と、空間 2 c と外部とを連通する排出口 1 c とが設けられ得る。供給口 1 a は、空間 2 a に対して、例えば、原料ガス (B R G) を供給するために設けられており、排出口 1 c は、反応管 1 0 内において原料ガス (B R G) の反応によって生成された目的物質 (以下、「A R G」と記載する場合もある) を排出するために設けられ得る。つまり、供給口 1 a から供給され得る原料ガス (B R G) が、反応管 1 0 および 1 0 m を通り、反応管 1 0 および 1 0 m 内で生成された目的物質 (A R G) が、排出口 1 c から排出され得るようになっている。

[0033] また、シェル 2 には、図 2 に示すように、空間 2 b 内に亜硝酸ナトリウムや硝酸カリウム等の溶融塩 (H T S) などの熱媒体 (H T M) を供給する熱媒体供給口 2 e と、熱媒体供給口 2 e から供給された熱媒体 (H T M) を空間 2 b 内から排出する熱媒体排出口 2 d とが設けられていてもよい。熱媒体供給口 2 e は、空間 2 b と空間 2 c とを分割する保持プレート 3 b の側に、好ましくは保持プレート 3 b の近傍に、より好ましくは保持プレート 3 b に近接または隣接して、すなわち空間 2 b のシェル 2 の側壁の底部に設けられ得るものである。また、熱媒体排出口 2 d は、空間 2 a と空間 2 b とを分割

する保持プレート 3 a の側、好ましくは保持プレート 3 a の近傍に、より好ましくは保持プレート 3 a に近接または隣接して、すなわち空間 2 b のシェル 2 の側壁の頂部に設けられ得るものである。つまり、熱媒体供給口 2 e と熱媒体排出口 2 d は、熱媒体供給口 2 e から熱媒体 (H T M) を空間 2 b 内に供給すると、熱媒体 (H T M) によって空間 2 b 内が充填され得、かつ反応管 1 0 の軸方向に沿って、保持プレート 3 b の側から保持プレート 3 a の側へと流れ、熱媒体排出口 2 d から熱媒体 (H T M) が排出されるように配設され得る。

[0034] そして、シェル 2 の空間 2 b 内には、1 つまたはそれ以上のディスクアンドーナツ型の邪魔板 5 (以下、「邪魔板 5」または単に「邪魔板」と略記する場合もある) が設けられている。邪魔板 5 は、従来公知のディスクアンドーナツ型の邪魔板を特に制限なく使用することができ、例えば、図示するように、2 種類またはそれ以上の異なる形状の邪魔板を組み合わせ使用してもよい。

より詳細には、図 2 に示すように、ディスクアンドーナツ型の邪魔板 5 として、例えば、中央部に 1 つの貫通孔を有する環状形 (いわゆるドーナツ状) の邪魔板 5 a (以下、「邪魔板 5 a」と略記する場合もある) と、この邪魔板 5 a の中央部に設けた貫通孔の直径よりも大きい寸法の直径を有する円盤形の邪魔板 5 b (以下、「邪魔板 5 b」と略記する場合もある) とを組み合わせ使用する。このとき、かかる反応器は、ディスクアンドーナツ型の反応器と称される場合もある。

[0035] なお、邪魔板 5 a およびその貫通孔ならびに邪魔板 5 b は、その中心軸 (邪魔板の平面に平行な断面の幾何学上の中心 (通常は円の中心) から、邪魔板の平面に対して垂直方向に延びる軸線) がシェル 2 の中心軸と同軸上に位置し得るように設けることができ、邪魔板 5 a と 5 b の両者が、シェル 2 の中心軸方向に沿って、交互に並んで設けられ得る。なお、このように複数の邪魔板を設ける場合、その間隔に特に制限はない。

[0036] 邪魔板 5 a は、その中央部に設けた貫通孔を通して熱媒体 (H T M) が通

過することのできるものである。また、邪魔板 5 a の外径は、シェル 2 の内径とほぼ同じであるか、またはそれよりも小さいものである。なお、邪魔板 5 a の中央部に設けられた貫通孔は、熱媒体（H T M）が通過することができれば、その寸法に特に制限はない。

[0037] また、邪魔板 5 b は、邪魔板 5 a の貫通孔の直径よりも大きな寸法の直径を有するものであり、熱媒体（H T M）は邪魔板 5 b の外周部を通過することができる。従って、邪魔板 5 b は、シェル 2 の内径よりも寸法の小さい直径（すなわち外径）を有する。なお、邪魔板 5 b の直径は、その外周部を熱媒体（H T M）が通過することができれば、その寸法に特に制限はない。

[0038] 邪魔板 5 a の貫通孔の直径と、邪魔板 5 b の直径との比（邪魔板 5 a の貫通孔の直径：邪魔板 5 b の直径）には特に制限はないが、例えば 1：1、1～1：20、好ましくは 1：2～1：3 である。

[0039] なお、シェル 2 内において、複数の反応管 10 は、邪魔板 5 a および 5 b などの邪魔板に設けられた反応管の外径とほぼ同じかそれよりも大きな寸法の孔を通して配置され得る。また、邪魔板 5 a を配置する場合には、邪魔板 5 a の中央部の貫通孔内には、反応管 10 は配設しない。つまり、シェル 2 内において、複数の反応管 10 は、邪魔板 5 a の中央部の貫通孔を通して配置され得るものではなく、全て、邪魔板 5 a の中央部の貫通孔以外の位置に設けた反応管用の孔を通して配置され得る。

[0040] また、本発明において使用することのできる邪魔板は、上記の邪魔板 5 a、5 b に限定されるものではない。また、邪魔板の種類、組み合わせ、形状、配置に特に制限はなく、使用する原料、目的の反応、目的の生成物に応じて、適宜決定すればよい。

[0041] また、本発明において、シェル 2 内に配置する邪魔板 5 の数にも特に制限はなく、使用する原料、目的の反応、目的の生成物に応じて、適宜決定すればよい。例えば 1～50 枚、好ましくは 2～10 枚、より好ましくは 3～6 枚である。

[0042] 本発明において使用する邪魔板の厚みにも特に制限はなく、使用する原料

、目的の反応、目的の生成物に応じて、適宜決定すればよいが、例えば0.1～5 mm、好ましくは0.5～3 mm、より好ましくは1～2 mmである。

[0043] 本発明において使用する邪魔板の材質にも特に制限はなく、使用する原料、目的の反応、目的の生成物に応じて、適宜決定すればよい。例えば、ステンレス、炭素鋼、ニッケルなどの材料で構成される邪魔板を使用することができる。

また、本発明において使用する邪魔板のシェル2への設置方法にも特に制限はなく、従来公知の設置方法を適宜使用して邪魔板を設置すればよい。

[0044] 本発明の多管式反応器は、このような構造を有し得るので、シェル2の空間2b内を流れ得る熱媒体（HTM）は、例えば、邪魔板5aおよび／または5bを含む1つまたはそれ以上の邪魔板5を通過するときに、シェル2の中心軸と交差する（又は直交するもしくはシェル2の中心軸を横切る）方向に、熱媒体の流れる方向が変化し得る。

具体的には、図2に示すように、下方に位置する邪魔板5aの中央部に設けた貫通孔を通過した熱媒体（HTM）は、この邪魔板5aの上方に位置する邪魔板5bの外周端部とシェル2の内壁面との間を通過するために、シェル2の中心軸からシェル2の内壁面へと、半径方向の外側に向かう流れが発生し得る。

同様に、図2に示すように、下方に位置する邪魔板5bの外周端部とシェル2の内壁面との間を通過した熱媒体（HTM）は、この邪魔板5bの上方に位置する邪魔板5aの中央に設けた貫通孔を通過するために、シェル2の内壁面から、中心軸へと、シェル2の半径方向の内側に向かう流れが発生し得る。

したがって、例えば、図2に示すように、邪魔板5a、5bを含む複数の邪魔板5を設けることによって、反応管10に対して、その中心軸と交差する（又は直交するもしくは中心軸を横切る）方向（望ましくは反応管の長手方向に対して垂直の方向）から、熱媒体（HTM）を反応管10と接触させ

ることができるので、熱媒体（H T M）が反応管 1 0 の軸方向に沿って流れている場合に比べて、反応管 1 0 と熱媒体（H T M）との接触効率をさらに向上させることができ、両者間での熱交換効率を向上させることができる。

なお、本発明の多管式反応器 1 では、図 2 に示すように、保持プレート 3 b の側に邪魔板 5 b を配置し、さらに保持プレート 3 a の側にも邪魔板 5 b を配置して、熱媒体（H T M）の熱媒体供給口 2 e から熱媒体排出口 2 d への流れを制御してもよく、このとき、熱媒体（H T M）の内部空間 2 b への流れおよび拡散の効率は良くなり、さらに、保持プレート 3 a、3 b の側にそれぞれ設けた 2 つの邪魔板 5 b の間に、複数の邪魔板 5 a と 5 b とを交互に設けることによって、反応管 1 0 と熱媒体（H T M）との接触効率はさらに向上する。

[0045] 本発明の多管式反応器 1 は、例えば、以上のような構造を有し得るので、供給口 1 a から、例えば、原料ガス（B R G）をシェル 2 の空間 2 a に供給すれば、原料ガス（B R G）を各反応管 1 0 の内部に供給することができ、反応管 1 0 の内部を空間 2 c に向かって、原料ガス（B R G）を一方向に流通させることができる。そして、反応管 1 0 の内部で原料ガス（B R G）を、必要に応じて触媒と接触させて、反応させることによって、目的物質を生成することができ、そして、空間 2 c を通して、生成された目的物質（A R G）を排出口 1 c から外部に排出することができる。

また、シェル 2 の空間 2 b の内部に、熱媒体供給口 2 e から、熱媒体（H T M）を供給することによって、反応管 1 0 と熱媒体（H T M）とを効率よく接触させることができるので、原料ガス（B R G）の反応の際に発生する熱を熱媒体（H T M）によって除熱したり、原料ガス（B R G）に対して、熱媒体（H T M）から、反応に必要な熱量を与えたりすることができる。

しかも、本発明では、空間 2 b の内部に 1 つまたはそれ以上の邪魔板 5 を設けているので、熱媒体（H T M）を反応管 1 0 と効率良く接触させることができ、なおかつ熱媒体（H T M）による除熱や加熱をさらに効率よく行うことができる。

[0046] なお、反応管 10 は、直管状であればよく、必ずしもその断面が円形である円管に限られない。例えば、三角形断面や矩形断面の管でもよい。また、反応管 10 の寸法（断面の寸法や直径、長手軸方向の長さなど）に特に制限はなく、原料、目的の反応および目的の生成物に応じて、適宜設定すればよい。

[0047] （複数本の反応管 10 の配列）

上述の実施形態で具体的に説明したように、本発明の多管式反応器 1 では、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板 5 を設けることによって、シェル 2 の内部、特にシェル 2 の空間 2 b の内部において、熱媒体（H T M）が、シェル 2 の半径方向の外側および／または内側に向かって、所望の速度成分を有するように流れ得る。

そして、かかる流れを有し得る熱媒体（H T M）と、複数本の反応管 10 との接触効率を向上せしめ、熱交換効率を向上させるためには、本発明の多管式反応器 1 では、シェル 2 内に配置される複数の反応管 10 は、熱媒体（H T M）の流れに対して、その断面が三角配置となるように配設されている。

本発明において、「三角配置」とは、シェル 2 の横断面（シェル 2 の中心軸と直交する本発明の多管式反応器 1 の断面）において、図 4 に示すようなパターンを有する配列である。図 4 に示すパターンでは、3 つの隣接する反応管を 1 つのユニットとし、各ユニットにおいて、3 つの反応管のそれぞれの中心軸が、仮想的な正三角形の頂点に位置することを特徴とする。

また、本発明において、反応管のピッチ（すなわち、互いに隣接する反応管の中心軸間の距離）には、特に制限はなく、例えば反応管外径の 1.1 倍～1.5 倍、好ましくは反応管外径の 1.2 倍～1.3 倍である。

なお、本発明で使用する反応管の配置には、「三角配置錯列」などの配列も含まれる。

[0048] このように、シェル 2 内に複数本の反応管 10 を三角配置で配列した場合には、シェル 2 の中心軸周りに回転対称となるように複数本の反応管 10 が

配列され得る。このため、例えば、熱媒体（H T M）がシェル 2 の中心軸から半径方向に沿って外側または内側に流れる場合、つまり、本発明の多管式反応器 1 のように邪魔板 5 を設けた場合には、シェル 2 の周方向では、熱媒体（H T M）はほぼ同じ流動状態になると推察され得る。

[0049] しかし、本発明者らは、多管式反応器 1 のシェル 2 内に複数本の反応管 10 を三角配置とし、かつディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板 5 を設けた場合であっても、シェル 2 の周方向において、熱媒体（H T M）の流動状態が異なっており、そのために個々の反応管 10 で伝熱能力が異なっていることを把握した。

[0050] そして、シェル 2 の周方向において、熱媒体（H T M）の流動状態が異なることに基づいて、本発明の多管式反応器 1 では、反応管 10 の内部での反応状態を判断するための温度計 20 を、比較的伝熱の悪い位置に設置することを特徴としている。このため、かかる温度計 20 によって測定され得る温度データを利用すれば、ホットスポットやコールドスポットができないように、シェル 2 の内部の状態を適切に制御することができる。

[0051] 以下、温度計 20 を配設する位置、つまり、温度計 20 を配設する反応管（以下、「測温反応管（10 m）」という）について、詳しく説明する。

[0052] 本発明において、図 1 にて詳しく示されるように、測温反応管は、以下のよう

まず、シェル 2 の中心軸と直交する多管式反応器 1 の断面において、ある任意の 1 つの反応管 10 a の中心軸（反応管 10 a の長手方向に対して垂直方向の断面の幾何学上の中心（図示では円の中心）から、かかる断面に対して垂直方向に延びる軸線）と、シェル 2 の中心軸（シェル 2 の長手方向に対して垂直方向の断面の幾何学上の中心（通常は円の中心）から、かかる断面に対して垂直方向に延びる軸線であって、以下「S C」と略記するもの）とを結ぶ直線を設定する。以下、この直線を「基準直線（B L）」と称する。

また、かかる断面において、反応管 10 a の中心軸と、この反応管 10 a に隣接する少なくとも 1 つの反応管（以下、「隣接反応管」と称する）（1

0 b ~ 1 0 g) の各中心軸 (各反応管の長手方向に対して垂直方向の断面の幾何学上の中心 (図示する例では円の中心) から、かかる断面に対して垂直方向に延びる軸線) とを結ぶ直線を設定する。以下、この直線を「連結直線 (C L b ~ C L g)」と称する。なお、本発明では、説明の便宜上、図 1 の反応管 1 0 a に隣接する反応管を「隣接反応管」と呼ぶが、反応管 1 0 a と隣接反応管とは直接的に物理的に接することはなく、また、本発明において、シエル 2 内に配置される複数の反応管 1 0 同士も直接的に物理的に接することはない。

そして、図 1 に示す通り、基準直線 B L と、各連結直線 C L b ~ C L g とのなす角をそれぞれ $\theta b \sim \theta g$ とする。以下、この角 ($\theta b \sim \theta g$) を「隣接角 ($\theta b \sim \theta g$)」と称する。なお、本発明では、隣接角 ($\theta b \sim \theta g$) とがなす角の角度は、便宜上、基準直線 B L と、各連結直線 (C L b ~ C L g) とがなす角の角度を $0 \sim 90^\circ$ の範囲で示す (すなわち、基準直線 B L と連結直線 C L とが形成する角の角度は、形成され得る角のうち最も小さい角 (すなわち鋭角) の角度を測定して、隣接角の角度とする)。

[0053] ただし、図 1 に示すように、シエル 2 の中心軸 (S C) を通る直線 L A を任意に一本設定すると、この直線 L A と、基準直線 B L とがなす角 θa の角度が変化すれば、隣接角 ($\theta b \sim \theta g$) の角度もそれぞれ変化し得る。つまり、反応管 1 0 a の位置によって、隣接角 ($\theta b \sim \theta g$) の取りうる角度も変化し得る。

[0054] 従って、本発明の多管式反応器 1 では、隣接角 ($\theta b \sim \theta g$) の角度のうち、 $0 \sim 15$ 度となる隣接反応管を少なくとも 1 つ伴う反応管 1 0 a に温度計 2 0 を配設して、測温反応管としている。つまり、基準直線 B L と、各連結直線 (C L b ~ C L g) とがなす角 ($\theta b \sim \theta g$) の角度が $0 \sim 15$ 度 () となる隣接反応管を少なくとも 1 つ有する反応管を測温反応管として温度計を設けている。従って、図 1 の実施形態では、隣接角 ($\theta b \sim \theta g$) の角度のうち、少なくとも 1 つが $0 \sim 15$ 度となる場合、反応管 1 0 a に温度計を設け、反応管 1 0 a を測温反応管 1 0 m とすることができる。

[0055] なお、本発明では、上記の隣接角の条件を満たす反応管の少なくとも１つに温度計を設けて測温反応管とすればよく、その全てに温度計を設ける必要はない。

[0056] かかる測温反応管１０ｍの位置では、少なくとも１つの隣接角の角度が０～１５度となるため、測温反応管１０ｍと、熱媒体（ＨＴＭ）との接触効率が悪い状態となる。つまり、本発明では、シェル２内に配置する複数の反応管１０のうち、熱媒体（ＨＴＭ）との間での熱伝達の悪い部分が形成され得る可能性の高い反応管１０を選択して測温反応管１０ｍとしている。

例えば、隣接角の角度が０度となる隣接反応管を有する測温反応管１０ｍの周囲では、基準直線ＢＬ上にこの隣接反応管が存在することになる。従って、この隣接反応管と、測温反応管１０ｍとの間には、熱媒体（ＨＴＭ）の半径方向の流れが非常に弱くなる部分（淀み）が形成され得る。逆に、他の隣接反応管（特に、隣接角が１５度を超える隣接反応管、好ましくは隣接角が２０度を超える隣接反応管）と、測温反応管１０ｍの間では、熱媒体（ＨＴＭ）の半径方向の流れが整流され得、熱媒体（ＨＴＭ）の半径方向に流れる速度が速くなり得る。

[0057] このように、測温反応管１０ｍの周囲には、隣接角の角度が０～１５度の隣接反応管が存在するので、熱媒体（ＨＴＭ）との間での熱伝達の効率が悪くなり、熱媒体（ＨＴＭ）による除熱や加熱を十分に行うことができなくなる。従って、ホットスポットやコールドスポットができやすくなる。このため、かかる測温反応管１０ｍにおいて測定され得る温度データを利用して、測温反応管１０ｍの温度が適切な温度となるように熱媒体（ＨＴＭ）の流量等を制御すれば、ホットスポットやコールドスポットができないようにすることができる。つまり、本発明では、ホットスポットやコールドスポットが発生しやすい測温反応管１０ｍにおいて、ホットスポットやコールドスポットの発生を抑制することができるので、測温反応管１０ｍ以外の他の反応管においても、ホットスポットやコールドスポットの発生を十分に抑制することができる。

したがって、伝熱能力の不均一性を考慮せずに温度測定を行う場合と比べて、本発明では、ホットスポットやコールドスポットの発生の危険性を過剰に見積もって制御する必要が無いので、シェル2の空間2bの内部の状態を適切に制御することができる。

[0058] また、本発明の多管式反応器1では、少なくとも1つの邪魔板5を設けているので、上述の通り、シェル2の空間2bの内部における熱媒体（HTM）の流れは軸対称になっていることから、測温反応管10mの数を少なくしても、適切にシェル2内の状態を判断することができる。

つまり、シェル2の長手軸方向の中心軸と直交する多管式反応器1の断面では、シェル2の中心軸の周りに、30°ごとに同じ流動状態が繰り返され得る状態になっているので、この断面の任意の30°の領域において温度状況が把握できれば、多管式反応器1の全体の反応状態をほぼ把握することが可能となる。

[0059] そして、本発明の方法によって、任意の30°の領域にのみ測温反応管10mを少なくとも1つ設定すればよいので、測温反応管10mの数を少なくすることができる。

従って、従来のように断面全体に測温反応管10mを設ける場合と比べて、多管式反応器1の機器構造を簡素化することができ、なおかつメンテナンス工数も削減することができ、しかも、安全な運転管理が可能となる。

[0060] （反応管10の数）

多管式反応器では、シェル内に設けられ得る反応管の数は、装置によって大きく異なるが、例えば5000本以上、特に1万本以上の反応管を有する多管式反応器では、上記のごとき方法で決定された反応管10に温度計20を設置して測温反応管10mを形成することが好ましい。

5000本以上の非常に多数の反応管10が設置されている場合には、シェル2の胴径（および内径）が大きくなるため、シェル2における熱媒体（HTM）の流量が不均一になる場合がある。そして、反応管10の温度が不均一になり、反応管10の間での温度差も大きくなり得る。すると、シェル

2内の状態を把握するには、反応管10の間での温度が不均一になっている状況を把握する必要があり、そのためには、多数の温度計20の設置が必要になる。しかし、そうすると、多管式反応器1の機器構造が複雑になり、設備費が高くなる上、メンテナンス工数が多くなり、メンテナンスの負担も増大する。

そこで、本発明の方法によって、温度計20を設置すれば、設置する温度計20の本数が少なくても、反応管10の間で温度が不均一になっている状態を正確に把握および発見することができる。

[0061] (測温反応管10mの数)

本発明の多管式反応器1において、測温反応管10mを設ける数（つまり、温度計20を設置する反応管10の数）は、少ないほうが望ましく、全ての反応管10の数の3%以下が好ましく、1%以下がより好ましい。例えば、反応管10の本数が1万本程度であれば、測温反応管10mは、最低10本程度あれば、十分にシェル2内の状態を把握して制御することが可能となる。

そして、理想的な状態、すなわち、多管式反応器1に製作誤差がなく、熱媒体（HTM）の流量が一定であり、各反応管10の触媒充填量、充填密度、ガス流通量が均一な場合には、シェル2の長手方向に対して垂直方向の多管式反応器の断面における30°の領域で、最もホットスポットやコールドスポットが形成されやすい反応管10（すなわち、基準直線BLと、連結直線CLとがなす角の角度が0～15度となる隣接反応管を有する反応管10）に温度計20を設けておけば、この領域では、測温反応管10mを1本としても多管式反応器1の操業を適切に制御することも可能である。

[0062] また、反応管10の長さは種々あるが、シェル2内に供給される熱媒体（HTM）と反応管とが接触する部分の長さ（L1）は、1.3m以上となっていることが好ましい。熱媒体（HTM）と反応管とが接触している部分の長さL1（1.3m以上）をかかるとすれば（図2参照のこと。なお、図2の実施形態では、L1は、シェル2の空間2bの高さ（長さ）に相当す

るものである。)、多管式反応器 1 に充填する触媒の総量を同じ量とした場合でも、胴径を小さくすることができ、熱媒体 (H T M) の流れの不均一さ、つまり、反応管 10 の間の温度の不均一さを小さくすることができる。さらに、測温反応管 10 m で測定される温度に基づいて、反応管または熱媒体の温度を制御することで、反応管 10 で生じる反応 (つまり、多管式反応器 1 の操業) を適切に制御することができる。

[0063] (シェル 2 について)

多管式反応器では、シェルの大きさも装置によって大きく異なるが、例えば、5000 本以上の反応管を有する多管式反応器では、そのシェルの内径は 3 m 以上となり、1 万本以上の反応管を有する多管式反応器では、そのシェルの内径は、通常は 4 m 以上となる。なお、ここでシェル内に配置され得る反応管の外径は、通常 1 ~ 5 c m、好ましくは通常 2 ~ 3 c m である。

しかし、上記のごとき方法によって決定され得る反応管に温度計 20 を設置して測温反応管 10 m とすれば、本発明の多管式反応器 1 のシェル 2 の内径が大きくても (3 m 以上であっても)、反応管 10 で生じ得る反応の条件などを的確に把握することができ、シェル 2 内の状態を適切に制御することができる。

[0064] また、多管式反応器においては、シェル内に設けられ得る反応管の数やシェルの大きさが装置によって大きく異なるため、上述の三角配置として配列した場合であっても、反応管同士の距離が異なり、熱媒体が反応管の間を流れる際の半径方向の流動抵抗も相違する場合がある。さらに、反応管において、熱媒体と接触する部分の長さが増加すれば、熱媒体が反応管の間を流れる際のシェルの中心軸に向かう方向または半径方向の外側へと向かう方向での流動抵抗も相違する場合がある。特に、反応管の本数が多くなれば、その流動抵抗は増加する傾向にある。このように流動抵抗が増加すると、熱媒体 (H T M) を所定の量で流すためには、能力の大きなポンプが必要となり、設備費が向上する。

しかし、本発明では、任意の反応管の直径 (D) に対する、この反応管の

中心軸と、この反応管に隣接する少なくとも1つの反応管の中心軸との間の距離(L)の比(L/D)を、1.2~1.6とすることによって、熱媒体(HTM)の流動抵抗を抑えつつ、熱媒体(HTM)と反応管との接触状態を向上させることができる。

実施例

[0065] 本発明の実施例では、複数の反応管が上記の三角配置となるように配設された多管式反応器において、熱媒体の流動状況を数値シミュレーションによって確認した。

この数値シミュレーションでは、例えば、図2に示されるように、円筒状のシェル内にディスクアンドードーナツ型の邪魔板5、特に環状形の邪魔板5aを設ける場合において、反応器内に発生し得る半径方向への流れを確認するために、多管式反応器の断面での熱媒体の流動状況を確認した。

なお、複数の反応管を三角配置に配列する場合には、反応器の円筒状のシェルの中心軸に対して軸対称の流れが形成され得るので、この数値シミュレーションでは、図4に示すように、多管式反応器の全断面ではなく、全断面の1/6の領域のみ(つまり、60°の領域)で行なった。

[0066] この数値シミュレーションに用いた多管式反応器のモデルは、以下の通りであった。

(多管式反応器)

シェルの内径(直径)φ1: 4970mm

熱媒体流入口(邪魔板5aの中央部に設けた貫通孔)の直径φ2: 750mm

反応管の外径: 27.3mm

反応管の配列: 三角配置

反応管のピッチ(隣接する2つの反応管の中心軸間の距離): 34.6mm

[0067] (計算条件)

計算は、アンシス・ジャパン株式会社が提供している汎用流体解析ソフト

である「FLUENT Ver. 6. 3. 26」により行った。計算条件は、以下のとおりであった。

熱媒体：密度 1853 kg/m^3 、粘度 $0.00316 \text{ Pa} \cdot \text{s}$

乱流モデル： RNG $k-\varepsilon$

熱媒体の流量と反応管数の比（流量／反応管数）： $0.3 \text{ m}^3/\text{本}$

[0068] また、流動状態の違いが熱伝導に与える影響を確認するために、反応管の管外境膜伝熱係数も確認した。

計算は、上記計算と同様に、アンシス・ジャパン株式会社が提供している汎用流体解析ソフトである「FLUENT Ver. 6. 3. 26」により行った。

なお、管外境膜伝熱係数は、最外列から2列目の反応管において確認した（図7（B）参照）。その理由は、最外列の反応管は、熱媒体の流動状態が他の位置の反応管とは大きく異なるためである。

[0069] 図5および図6に数値シミュレーションの結果を示す。

なお、以下では、「基準直線BLと、連結直線CLのなす角の角度がA度（°）となる隣接反応管がある測温反応管」を、簡単に、「A度の測温反応管」という。

[0070] 図5（A）に示すように、「0度の測温反応管」の周囲では、反応管の間に熱媒体の流れが非常に弱い部分（淀み）が形成されていることが確認できる。また、その一方で、反応管の間に熱媒体の流れが整流され、熱媒体の流れる速度が速くなっている部分が存在することも確認できる。このように、「0度の測温反応管」の周囲では、淀みと熱媒体の速度が速い部分という極端な流れ場が生じており、反応管と熱媒体との接触効率が低いことが確認できる。

また、図5（B）に示すように、「10度の測温反応管」の周囲では、反応管に衝突する流れが発生し、衝突後に分岐する熱媒体の流れが若干ではあるが形成されているものの、反応管の間には淀みが存在しており、反応管と熱媒体との接触効率は依然として低いことが確認できる。

[0071] 一方、図6 (A) に示すように、「20度の測温反応管」の周囲では、反

応管に衝突した後に分岐する熱媒体の流れが形成されており、反応管の間に、淀みはほとんど見られず、反応管と熱媒体との接触効率が大幅に改善されていることが確認できる。

そして、図6 (B) に示すように、「30度の測温反応管」の周囲では、反応管に衝突する流れが生じており、しかも、反応管に衝突した後、熱媒体の流れは均等に分かれ、かつ反応管に沿った流れが形成されている。つまり、「30度の測温反応管」の周囲では、効果的に反応管と熱媒体とを接触させることができていることが確認できる。

[0072] また、管外境膜伝熱係数を確認したところ、図7 (A) の表に示すように、「0度の測温反応管」から「15度の測温反応管」では、特に「5度の測温反応管」および「10度の測温反応管」では、管外境膜伝熱係数が明らかに低下して改善率が100%未満となる場合があり、そして接触角が15度を超えると、例えば「20度の測温反応管」、「25度の測温反応管」および「30度の測温反応管」では、管外境膜伝熱係数が顕著に向上して、改善率が明らかに100%を超えることが確認できた。

従って、この数値シミュレーションでは、接触効率の低い「0度の測温反応管」から「15度の測温反応管」に設置された温度計によって測定された温度データを利用すれば、ホットスポットやコールドスポットがでないようにシエル内の状態を適切に制御することができる。

[0073] また、上述のとおり、図7 (A) に示すように、角度の変化に伴って、管外境膜伝熱係数が変化し、0度の測温反応管から30度の測温反応管になるにしたがって、特に接触角が15度を超えると、管外境膜伝熱係数が顕著に改善されていることが確認できる。つまり、上述した熱媒体の流動状態の改善によって、反応管と熱媒体との間の熱伝達状況が改善されていることが確認できた。

[0074] 以上のごとく、反応管が三角配置となるように配設された多管式反応器内では、シエルの周方向において、熱媒体の流動状況が変化し、反応管と熱媒

体との接触効率が変化することが確認できた。

しかも、上記の数値シミュレーションの結果から、「１０度の測温反応管」から「２０度の測温反応管」の間で、特に１５度の角度を境にして、反応管と熱媒体との接触効率が大幅に改善され得ることが確認された（図７（Ａ）の表）。

そして、反応管と熱媒体との接触効率が改善されることによって、反応管と熱媒体との間の熱伝達状況が改善され得ることが確認できた。

なお、本願は、２０１２年４月４日に日本国で出願された特願第２０１２－０８５１５８号を基礎としてその優先権を主張するものであり、その内容はすべて本明細書中に参照することにより援用される。

産業上の利用可能性

[0075] 本発明の多管式反応器は、発熱や吸熱反応を伴う物質を製造する装置として適している。

符号の説明

[0076]	1	多管式反応器
	2	シェル
	5	ディスクアンドードーナツ型の邪魔板
	10	反応管
	10m	測温反応管
	20	温度計
	BL	基準直線（測温反応管の中心軸と、シェルの中心軸とを結ぶ直線）
	CL	連結直線（測温反応管の中心軸と、その測温反応管に隣接する少なくとも１つの隣接反応管の中心軸とを結ぶ直線）
	HTM	熱媒体

請求の範囲

- [請求項1] 円筒状のシェルと、該シェル内に配置される複数の反応管と、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板とを含む多管式反応器であって、
該複数の反応管が、三角配置となるように配列されており、
該複数の反応管のうちの1つまたはそれ以上は、温度計が設けられている測温反応管であり、
該シェルの中心軸と直交する該反応器の断面において、該測温反応管の中心軸と該シェルの中心軸とを結ぶ直線と、該測温反応管の中心軸と該測温反応管に隣接する少なくとも1つの隣接反応管の中心軸とを結ぶ直線とが、 $0 \sim 15$ 度の角度をなしている
ことを特徴とする多管式反応器。
- [請求項2] 気固不均一反応に用いられる固定床多管式反応器であることを特徴とする、請求項1に記載の多管式反応器。
- [請求項3] プロピレン、イソブチレン、 t -ブチルアルコールまたはそれらの2種以上の混合物を、気相において分子状酸素を含有するガスにより酸化して、(メタ)アクロレイン及び／又は(メタ)アクリル酸を製造することを特徴とする、請求項2に記載の多管式反応器。
- [請求項4] 前記シェルの内径が3 m以上であることを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の多管式反応器。
- [請求項5] 前記シェル内に配置される複数の反応管の本数が、5000本以上であることを特徴とする、請求項1～4のいずれか1項に記載の多管式反応器。
- [請求項6] 前記反応管の外径(D)に対する、互いに隣接する2つの反応管の中心軸の間の距離(L)の比(L/D)が $1.2 \sim 1.6$ であることを特徴とする、請求項1～5のいずれか1項に記載の多管式反応器。
- [請求項7] 前記円筒状のシェル内を熱媒体が流れて該反応管と接触することを特徴とする、請求項1～6のいずれか1項に記載の多管式反応器。
- [請求項8] 前記熱媒体と、前記反応管とが接触する部分の長さが 1.3 m以上

であることを特徴とする、請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の多管式反応器。

[請求項9] 前記円筒状のシェルの中心軸と直交する前記反応器の断面において、中心角が 30° の扇形の領域に前記測温反応管が配置されていることを特徴とする、請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の多管式反応器。

[請求項10] 円筒状のシェルと、該シェル内に配置される複数の反応管と、ディスク-アンド-ドーナツ型の邪魔板とを含む多管式反応器の製造方法であって、

該複数の反応管を三角配置となるように配列すること、および
該複数の反応管のうちの 1 つまたはそれ以上に温度計を設けて測温反応管を形成することを包含し、

該シェルの中心軸と直交する該反応器の断面において、該測温反応管の中心軸と該シェルの中心軸とを結ぶ直線と、該測温反応管の中心軸と該測温反応管に隣接する少なくとも 1 つの隣接反応管の中心軸とを結ぶ直線とが、 $0 \sim 15$ 度の角度をなしていることを特徴とする多管式反応器の製造方法。

[請求項11] 前記多管式反応器が、気固不均一反応に用いられる固定床多管式反応器であることを特徴とする、請求項 10 に記載の製造方法。

[請求項12] 前記気固不均一反応において、プロピレン、イソブチレン、t-ブチルアルコールまたはそれらの 2 種以上の混合物を、気相において分子状酸素を含有するガスにより酸化して、(メタ)アクロレイン及び／又は(メタ)アクリル酸を製造することを特徴とする、請求項 11 に記載の製造方法。

[請求項13] 前記シェルの内径が 3 m 以上であることを特徴とする、請求項 10 ～ 12 のいずれか 1 項に記載の製造方法。

[請求項14] 前記シェル内に配置する複数の反応管の本数が、5000 本以上であることを特徴とする、請求項 10 ～ 13 のいずれか 1 項に記載の製

造方法。

- [請求項15] 前記反応管の外径（D）に対する、互いに隣接する2つの反応管の中心軸の間の距離（L）の比（ L/D ）が1.2～1.6となるように、前記複数の反応管を前記シェル内に配置することを特徴とする、請求項10～14のいずれか1項に記載の製造方法。
- [請求項16] 前記円筒状のシェル内を熱媒体が流れて該反応管と接触することを特徴とする、請求項10～15のいずれか1項に記載の製造方法。
- [請求項17] 前記熱媒体と、前記反応管とが接触する部分の長さが1.3 m以上であることを特徴とする、請求項10～16のいずれか1項に記載の製造方法。
- [請求項18] 前記円筒状のシェルの中心軸と直交する前記反応器の断面において、中心角が 30° の扇形の領域に前記測温反応管を配置することを特徴とする、請求項10～17のいずれか1項に記載の製造方法。