

明 細 書

発明の名称： 化学反応装置および化学反応方法

技術分野

[0001] 本発明は、原料ガスから生成物を得るための化学反応を、触媒を用いて気相で進行させる化学反応装置及び化学反応方法に関する。

背景技術

[0002] 特許文献1には、原料ガスの主成分よりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を行うための化学反応装置が開示されている。当該化学反応装置は、装置内において生成物を凝縮させ、反応容器内から回収することで、化学平衡を生成物側にシフトさせ反応を進める、いわゆる内部凝縮型反応装置である。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開番号WO2021/060145 A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 特許文献1に記載のような反応装置を用いた反応方法において、熱効率を向上させることが所望されている。

[0005] 本発明の一態様は、内部凝縮型反応装置を用いた反応の熱効率を向上させることを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記の課題を解決するために、本発明の一態様に係る化学反応装置は、原料ガスよりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置であって、前記原料ガスが供給され、前記反応を促進する触媒が充填された触媒層と、前記触媒層と空間を隔てて配置され、前記空間側の表面の温度が前記反応によって生じる反応ガスの露点以下の温度に維持される第1熱交換部と、

前記触媒層と前記空間との間に位置し、前記反応ガスが通過する開口を有する区分壁と、前記空間内に位置し、前記開口を介して前記触媒層から前記空間に流入する前記反応ガスの流路を構成する流路構成部と、を備え、前記流路構成部は、前記流路において、前記触媒層から前記第1熱交換部に向かう前記反応ガスと、前記第1熱交換部から前記触媒層に向かう前記反応ガスとの間の熱交換を可能にするバッフルを有している。

発明の効果

[0007] 本発明の一態様によれば、内部凝縮型反応装置を用いた反応の熱効率を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]実施形態1に係る反応装置を、底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。

[図2]図1における領域R1の拡大図である。

[図3]図2におけるI-I線矢視断面図である。

[図4]上記反応装置の変形例の部分拡大図である。

[図5]図4におけるV-V線矢視断面図である。

[図6]上記反応装置の変形例の要部断面図である。

[図7]実施形態2に係る反応装置を底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。

[図8]図7における領域R2の拡大図である。

[図9]実施形態3に係る反応装置を底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。

[図10]図9における領域R3の拡大図である。

[図11]実施例1のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概略図である。

[図12]実施例2のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概略図である。

[図13]比較例のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概

略図である。

発明を実施するための形態

[0009] 〔実施形態１〕

（反応装置１００の構成）

以下、本発明の一実施形態について、詳細に説明する。図１は実施形態１に係る反応装置１００（化学反応装置）を、底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。図２は、図１における領域Ｒ１の拡大図である。図３は、図２におけるⅠⅠⅠ－ⅠⅠⅠ線矢視断面図である。当該断面図は、断面における端面の構造のみを示す端面図である。なお、図面中のＸ軸、Ｙ軸、およびＺ軸は、それぞれの図面における３次元空間における方向を規定している。本明細書中において、Ｚ軸は反応装置１００の設置面に垂直な方向である。

[0010] 反応装置１００は、原料ガス３１の主成分よりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置である。

[0011] 反応装置１００では、生成物を凝縮させ、反応容器内から回収することで、化学平衡を生成物側にシフトさせ、反応を進めることが可能となる。反応装置１００は、当該反応が発熱反応である化学反応を行う装置として好適に利用できる。特に反応装置１００は、原料ガス３１に酸化炭素および水素を含み、前記生成物にメタノールを含む、下記式（１）～（３）に示す化学反応を行う装置として好適に利用できる。

[0012] $\text{CO} + 2\text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{OH} \cdots (1)$

$\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \cdots (2)$

$\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CO} + \text{H}_2\text{O} \cdots (3)$

上記反応式中の記号「 $\rightleftharpoons$ 」は、この反応が平衡反応であることを示している。上記式（１）～（３）におけるメタノール合成反応は、発熱反応である。

[0013] その他、ジメチルエーテルまたはアンモニアを生成物として生じる反応を

行うために反応装置１００を用いることもできる。

- [0014] 図１および図２に示すように、反応装置１００は、反応容器１を備えている。反応容器１は、胴体部分が円筒形状を有しており、例えば耐圧性を有するステンレス製の金属製の容器である。反応装置１００は、反応容器１の中心に位置する円柱状の触媒層３と、触媒層３と空間７を隔てて配置される第１熱交換部５２と、触媒層３と空間７の間に位置する区分壁６０と、空間７内に位置する流路構成部７０と、を備えている。
- [0015] 区分壁６０は、触媒層３における反応により生成した反応ガス３２が通過する開口６１を有している。流路構成部７０は、空間７内に、開口６１を介して触媒層３から空間７に流入する反応ガス３２の流路を構成するものである。
- [0016] 反応装置１００の構成を詳細に説明する前に、まず、反応装置１００における反応の流れについて説明する。本実施形態では、触媒層３内で起こる反応が発熱反応であるとして説明する。
- [0017] 原料ガス３１は、触媒層３の上部に設けられた原料ガス入口３５から供給され、触媒層３に充填されている触媒３０と接触することにより反応が進行する。原料ガス３１が供給される方向は、Ｚ軸負方向である。反応により生成した反応ガス３２は、区分壁６０の開口６１を介して空間７に進む。図２では、反応ガス３２の進行方向を矢印で示している。空間７に流入した反応ガス３２は、流路構成部７０によって構成される流路に沿って進行する。当該流路において、第１熱交換部５２によって露点以下に冷却された反応ガス３２に含まれる生成物の少なくとも一部が凝縮される。凝縮し、液化した生成物は、凝縮液回収口４６を介して、凝縮液４１として回収される。
- [0018] 触媒層３側から空間７に流入する反応ガス３２には、未反応の原料ガスも含まれる。しかしながら、未反応の原料ガスに含まれる主成分は、第１熱交換部５２では凝縮されない。未反応の原料ガスと、生成物の少なくとも一部が凝縮した残りの反応ガス３２は、流路構成部７０によって構成される流路に沿って進行することにより、再び触媒層３に戻る。

- [0019] 触媒層 3 で反応しなかった原料ガスを含む反応ガス 3 2 は、反応ガス回収口 3 6 から回収される。
- [0020] 反応装置 1 0 0 の各部について、詳細な構成を以下に説明する。
- [0021] 触媒層 3 には、反応を促進する触媒 3 0 が充填されている。触媒層 3 は、原料ガス 3 1 が供給されることにより、原料ガス 3 1 と触媒 3 0 とが接触し、反応が進行する領域である。触媒 3 0 として、例えば、銅および酸化亜鉛を主成分とする触媒を用いることができる。触媒層 3 の上流、かつ、触媒層 3 と反応容器 1 との間には、任意の充填物（図示せず）が充填されていてもよい。また、触媒層 3 の底部には、触媒 3 0 を支持するために、例えば多孔部材からなる支持板（図示せず）を備えていてもよい。
- [0022] 区分壁 6 0 は、触媒層 3 と、空間 7 とを区分する壁である。区分壁 6 0 は、反応容器 1 と同心円の円筒形状を有しており、例えば、炭素鋼製、S U S 3 0 4 などのステンレス製であってよい。区分壁 6 0 は、反応ガスが通過する開口 6 1 を有している。開口 6 1 の形状は、特に限定されないが、円形または矩形であってよい。区分壁 6 0 は、例えば、区分壁 6 0 の任意の高さ位置における周囲に沿って、複数の開口 6 1 を有していてもよい。
- [0023] 触媒 3 0 に対して、開口 6 1 の開口径（開口幅）が大きい場合には、開口 6 1 に、触媒 3 0 は通過せず、反応ガス 3 2 は通過可能な多孔質部材などが配されていてもよい。これにより、触媒 3 0 が空間 7 に流入する可能性を低減することができる。
- [0024] 第 1 熱交換部 5 2 は、第 1 熱交換部 5 2 における空間 7 側の表面温度が、反応ガス 3 2 の露点以下の温度に維持される熱交換器である。第 1 熱交換部 5 2 は、反応ガス 3 2 と、第 1 熱交換部 5 2 内を通過する第 1 熱媒 5 1 との熱交換により、反応ガス 3 2 を冷却する。第 1 熱交換部 5 2 は、第 1 熱交換壁 5 0 と、第 1 熱交換壁 5 0 の空間 7 側とは反対側に位置する第 1 熱媒領域 5 と、を含む。第 1 熱交換壁 5 0 は、反応容器 1 と同心円の円筒形状を有しており、流体が通過できない部材によって構成されている。第 1 熱交換壁 5 0 は、例えば、炭素鋼製、S U S 3 0 4 などのステンレス製であってよい。

第1熱媒領域5は、第1熱媒51が流通する領域である。本実施形態において、第1熱媒領域5は、第1熱交換壁50と、反応容器1との間に存在する領域である。

[0025] 第1熱交換壁50は、空間7側に冷却面53を有している。冷却面53が反応ガス32の露点以下の温度に維持されることにより、空間7内の反応ガス32が冷却される。これにより、冷却面53表面、および空間7内において、反応ガス32に含まれる生成物の少なくとも一部が凝縮する。

[0026] ここで、「反応ガス32の露点」とは、反応ガス32が触媒層3内に存在する温度、圧力において、気相での反応が化学平衡に達した状態で反応ガス32を冷却した際、凝縮が開始する温度を意味する。

[0027] 反応ガス32の露点は、気相組成と圧力を与えれば、気液平衡モデルを用いて適切な気液平衡計算を行うことにより、凝縮液組成と同時に求めることができる。圧力が1MPaを超える高圧の場合は、気液平衡モデルとして、例えばPeng-Robinson式、Redlich-Kwong-Soave式などの拡張された3次状態方程式を用いることができる。

[0028] 第1熱交換部52は、第1熱媒51を第1熱媒領域5に流通させることによって、冷却面53の温度を反応ガス32の露点以下に維持することができる。第1熱媒51としては、生成物がメタノールである場合、例えば-20℃～150℃の液体または沸騰液（例えば、水、メタノール水、エチレングリコール水、アンモニア、アンモニア水、ペンタンなどの炭化水素化合物、1,1,1,3,3-ペンタフルオロプロパンなどのフロン化合物）を利用することができる。

[0029] 流路構成部70は、空間7内に位置しており、触媒層3から流入した反応ガス32の流路を構成する。流路構成部70は、バッフル71を有している。バッフル71は、反応ガス32の流路を構成しつつ、触媒層3から第1熱交換部52に向かう反応ガス32と、第1熱交換部52から触媒層3に向かう反応ガス32との間の熱交換を可能にする。

[0030] 本実施形態において、バッフル71は、Z軸方向に延伸する円筒712と

、円筒 7 1 2 の内壁に接合される円盤 7 1 3 とを含む。円筒 7 1 2 の内径は、区分壁 6 0 の外径よりも大きく、円筒 7 1 2 の外径は、第 1 熱交換部 5 2（第 1 熱交換壁 5 0）の内径よりも小さい。円筒 7 1 2 の板厚は、区分壁 6 0 と、第 1 熱交換部 5 2 との距離の $1/15 \sim 1/1.2$ の範囲であってよい。

[0031] 円盤 7 1 3 は、ドーナツ形状を有する板状部材であり、円筒 7 1 2 の内壁と区分壁 6 0（または後述する第 1 仕切板 3 3）とを接続する。具体的には、円盤 7 1 3 の外縁（外側面）は円筒 7 1 2 と接続され、円盤 7 1 3 の内縁（内側面）は区分壁 6 0 における、任意の高さ位置に配される複数の開口 6 1 間に位置する部分と接合される。あるいは、円盤 7 1 3 の内縁は、後述する第 1 仕切板 3 3 と接合されてもよい。なお、開口 6 1 の直径（Z 軸方向の長さ）は、円盤 7 1 3 の厚みよりも大きい。

[0032] 円盤 7 1 3 が開口 6 1 間の区分壁 6 0 と接合されることにより、開口 6 1 は、円盤 7 1 3 によって分割される。開口 6 1 のうち、円盤 7 1 3 の上流側の部分は、反応ガス 3 2 が触媒層 3 から空間 7 へ流入する流入口として機能する。開口 6 1 のうち、円盤 7 1 3 の下流側の部分は、反応ガス 3 2 が空間 7 から触媒層 3 に向けて流出する流出口として機能する。流路構成部 7 0 は、上述の構成により、触媒層 3 から空間 7 へ流入した反応ガス 3 2 の流路を構成している。反応装置 1 0 0 が流路構成部 7 0 を有することにより、触媒層 3 から空間 7 へ流入した反応ガス 3 2 は、空間 7 において進行方向が複数回変化する。具体的には、流入口を介して触媒層 3 から空間 7 へ流入した反応ガス 3 2 は、区分壁 6 0、バッフル 7 1、およびバッフル 7 1 の上下に位置する第 2 仕切板 7 3（後述する）によって規定される流路に沿って、複数回進行方向を変えながら空間 7 内を進行する。

[0033] バッフル 7 1 は、熱伝導率の高い材料によって構成されている。例えば、バッフル 7 1 は、区分壁 6 0 よりも熱伝導率の高い材料を含んでいてもよい。より具体的には、バッフル 7 1 は、例えば、銅、アルミニウムおよびカーボンからなる群から選択される少なくとも 1 つの材料を含んでいてもよい。

熱伝導率の高い材料を用いることにより、バッフル71は、バッフル71を介した熱交換を可能にする。より具体的には、バッフル71は、空間7における反応ガス32の流路において、触媒層3から第1熱交換部52に向かう反応ガス32と、第1熱交換部52から触媒層3に向かう反応ガス32との間の熱交換を可能にする。換言すると、触媒層3内における反応の反応熱によって加熱された高温の反応ガス32と、第1熱交換部52によって冷却された低温の反応ガス32との間の熱交換を可能にする。

[0034] 当該熱交換により、触媒層3から空間7に流入した高温の反応ガス32は、低温の反応ガス32との熱交換によって冷却されて第1熱交換部52に向かう方向に進行する。つまり、高温の反応ガス32は、空間7に流入後、予冷され、第1熱交換部52に向かう方向に進行する。一方、第1熱交換部52によって冷却された低温の反応ガス32は、高温の反応ガスとの熱交換によって加熱され、触媒層3に向かう方向に進行する。つまり、低温の反応ガス32は、第1熱交換部52において冷却された後、予熱され、触媒層3へと戻る。空間7内において、当該熱交換が行われることにより、反応装置100の熱効率が向上する。

[0035] 流路構成部70は、バッフル71と第1熱交換部52との間に位置する断熱部材72を有していてもよい。例えば、図2に示すように、バッフル71における、第1熱交換部52と対向する面に、断熱部材72が配されていてもよい。断熱部材72には、ウール状、シート状あるいは塗料状のセラミック、セルローズファイバー、羊毛、炭化コルク、ポリスチレンフォーム、ウレタンフォーム、フェノールフォームなどの材料が用いられてもよい。これにより、バッフル71における第1熱交換部52からの熱の影響を低減することができ、バッフル71による熱交換の効率をさらに向上させることができる。

[0036] 流路構成部70は、Z軸に沿って複数配列されていてもよい。流路構成部70が複数配列される場合、流路構成部70間は、第2仕切板73によって区分される。第2仕切板73は、第2仕切板73の上面側を通過するガスと

、下面側を通過するガスとの間の熱交換を可能にする。

[0037] 第2仕切板73は、ドーナツ形状を有する板状部材である。第2仕切板73の内縁（内側面）は、区分壁60に接合される。第2仕切板73の外側面と、第1熱交換部52との間には、反応ガスが冷却され、凝縮して生じた液化した生成物が通過し得る隙間または孔が形成されている。第2仕切板73は、高い熱伝導率を有している。第2仕切板73は、バッフル71と同じ材料によって構成されていてもよい。例えば、第2仕切板73は、銅、アルミニウムおよびカーボンからなる群から選択される少なくとも1つの材料を含んでいてもよい。

[0038] 熱伝導率の高い材料を用いることにより、第2仕切板73は、第2仕切板73を介した熱交換を可能にする。より具体的には、第2仕切板73は、触媒層3内における反応の反応熱によって加熱された高温の反応ガス32と、第1熱交換部52によって冷却された低温の反応ガス32との間の熱交換を可能にする。高温の反応ガス32と、低温の反応ガス32とは、第2仕切板73を挟んで反対方向に流れている。第2仕切板73は、流路構成部70を構成する一部であるともいえる。

[0039] 反応装置100が、第2仕切板73によって区分される複数の流路構成部70を有することにより、空間7内における高温の反応ガス32と低温の反応ガス32との熱交換が増加するため、熱効率がより向上する。

[0040] また、触媒層3は、触媒層3を複数の層に分割する第1仕切板33を備えていてもよい。第1仕切板33は、図2に示すように、触媒層3内に、原料ガス31が供給される方向と直交する主面を有する、円形の板状部材であってよい。第1仕切板33は、バッフル71の円盤713と同じ高さに位置していてもよい。また、第1仕切板33の外縁（外側面）は、バッフル71の円盤713の内側面と接合されていてもよい。第1仕切板33は、図2に示すように、区分壁60の開口61を分断するように位置する。換言すると、開口61は、第1仕切板33の上流側および下流側に位置している。

[0041] あるいは、触媒層3が第1仕切板33を備えている場合、区分壁60は、

開口 6 1 として、第 1 仕切板 3 3 を挟んで上流側の流入開口と、下流側の流出開口とを別々に有していてもよい。流入開口は、第 1 仕切板 3 3 の上面から、バッフル 7 1 の上端までの高さ位置に位置する。流出開口は、第 1 仕切板 3 3 の下面から、バッフル 7 1 の下端までの高さ位置に位置する。第 1 仕切板 3 3 は、反応ガス 3 2 の通過が困難な材質で構成されていてもよい。第 1 仕切板 3 3 は、例えば、炭素鋼製、S U S 3 0 4 などのステンレス製であってよい。

[0042] 触媒層 3 が第 1 仕切板 3 3 を備えることにより、反応ガス 3 2 が開口 6 1 を介して空間 7 に効率よく導かれる。換言すると、第 1 仕切板 3 3 は、反応ガス 3 2 が、流路構成部 7 0 によって構成される流路に流入することを補助し得る。触媒層 3 は、流路構成部 7 0 の数に応じて、複数の第 1 仕切板 3 3 を備えていてもよい。

[0043] (反応装置 1 0 0 を用いた化学反応方法)

上述の反応装置 1 0 0 を用いて、本発明に係る化学反応方法を以下のように実施する。

[0044] まず、触媒層 3 に原料ガス 3 1 を供給する（供給工程）。供給した原料ガス 3 1 と触媒層 3 の触媒 3 0 とを接触させることにより反応を進行させる。これにより、触媒層 3 内において反応ガス 3 2 を生じさせる。触媒層 3 内で生じた反応ガス 3 2 の少なくとも一部は、区分壁 6 0 の開口 6 1 を介して空間 7 内に流入する。

[0045] 触媒層 3 から、流路構成部 7 0 によって構成される空間 7 の流路に流入した反応ガス 3 2 を、第 1 熱交換部 5 2 の冷却面 5 3 に到達する前に、バッフル 7 1 を介した熱交換により、予冷する（予冷工程）。

[0046] 予冷した反応ガス 3 2 を、第 1 熱交換部 5 2 の冷却面 5 3 において冷却することにより、凝縮された生成物と、残りの反応ガス 3 2 とに分離する（分離工程）。

[0047] 分離された残りの反応ガス 3 2 を、触媒層 3 に戻す前に、バッフル 7 1 を介した熱交換により予熱する（予熱工程）。予熱した反応ガス 3 2 を、開口

61を介して触媒層3に再度供給する（再供給工程）。

[0048] 上述のように、本発明に係る化学反応方法は、冷却面53において凝縮可能な温度に冷却される前に反応ガス32の温度を低下させる予冷工程と、触媒層3における反応前に反応ガス32の温度を上昇させる予熱工程と、を含む。これにより、反応装置100を用いた反応全体の熱効率を向上させることができる。

[0049] （流路構成部の変形例）

図4は、流路構成部70Xを備える反応装置100Xを底面に垂直な平面で切断したときの断面の、部分拡大図である。図5は、図4におけるV-V線矢視断面図である。流路構成部70Xは、バッフル71Xを有している。バッフル71Xは、Z軸方向に延伸し、内径の異なる3つの円筒712XA・712XB・712XCを有している。3つの円筒712XA・712XB・712XCの内径の大きさは、この順に大きくなっている。また、バッフル71Xは、2つの円盤713Xおよび714Xを有している。流路構成部70の代わりに流路構成部70Xを有している点以外については、反応装置100と反応装置100Xは同様の構成を有している。

[0050] 円筒712XAの内側から、円筒712XCの外側までの距離は、区分壁60と、第1熱交換部52との距離の $1/15 \sim 1/1.2$ の範囲であってよい。また、円筒712XA・712XB・712XCそれぞれの板厚は、第1熱交換部52との距離の $1/60 \sim 1/4.5$ の範囲であってよい。円盤713Xおよび714Xの板厚は、特に規定しないが、円筒712XA・712XB・712XCそれぞれの板厚と同様の厚さであってもよい。

[0051] 円盤713Xの内縁（内側面）は区分壁60における、任意の高さ位置に配される複数の開口61間に位置する部分と接合される。あるいは、円盤713Xの内縁は、第1仕切板33と接合されてもよい。

[0052] 円盤713Xの外側端部は、円筒712XAの下端と接合されている。円筒712XAの上端は、円盤714Xの内側端部と接合されている。円盤714Xの外側端部は、円筒712XCの上端と接合されている。円筒712

X Aおよび円筒7 1 2 X Cの上端は、ほぼ同じ高さに位置している。円筒7 1 2 X Bの上端は、円筒7 1 2 X Aおよび円筒7 1 2 X Cの上端よりも低い位置にある。円筒7 1 2 X Bの下端は、第2仕切板7 3の上面と接合されている。

[0053] 流路構成部7 0 Xは、上述の構成により、触媒層3から空間7へ流入した反応ガス3 2の流路を構成している。バッフル7 1 Xは、空間7における反応ガス3 2の流路において、各円筒7 1 2 X A・7 1 2 X B・7 1 2 X Cを介して逆方向に流れる反応ガス3 2同士の間での熱交換を可能にする。

[0054] 当該熱交換により、触媒層3から空間7に流入した高温の反応ガス3 2は、熱交換によって冷却されつつ第1熱交換部5 2に向かう方向に進行する。つまり、高温の反応ガス3 2は、空間7に流入後、予冷され、第1熱交換部5 2に向かう方向に進行する。一方、第1熱交換部5 2によって冷却された低温の反応ガス3 2は、熱交換によって加熱されつつ、触媒層3に向かう方向に進行する。つまり、低温の反応ガス3 2は、第1熱交換部5 2において冷却された後、予熱され、触媒層3へと戻る。空間7内において、当該熱交換が行われることにより、反応装置1 0 0の熱効率が向上する。

[0055] 流路構成部7 0 Xは、バッフル7 1 Xと第1熱交換部5 2との間に位置する断熱部材7 2を有していてもよい。例えば、図4に示すように、バッフル7 1 Xの円筒7 1 2 X Cの外面に断熱部材7 2が配されていてもよい。あるいは、断熱部材7 2は、流路構成部7 0 Xにおける流路の一部と、第1熱交換部5 2との間に位置していてもよい。例えば、バッフル7 1 Xの円筒7 1 2 X Bの外面に断熱部材7 2が配されていてもよい。当該構成により、バッフル7 1 Xにおける第1熱交換部5 2からの熱の影響を低減することができ、バッフル7 1 Xによる熱交換の効率をさらに向上させることができる。

[0056] 図6は、反応装置1 0 0 Xの変形例である反応装置1 0 0 X 1の要部断面図である。反応装置1 0 0 X 1は、流路構成部7 0 X 1を備えている。流路構成部7 0 X 1は、バッフル7 1 X 1を備えている。バッフル7 1 X 1は、円筒7 1 2 X Bと円筒7 1 2 X Cとの間に、円筒7 1 2 X B 1を備えている。

点が図4に示すバッフル71Xと異なっている。円筒712XB1の下端は、円筒712XBと同様、第2仕切板73の上面と接合されている。円筒712XBと、円筒712XB1との間の空間は、閉空間となっており、ガスが滞留する構成となっている。この円筒712XB、円筒712XB1および該2つの筒間の空間による構造は、断熱構造として機能する。

[0057] バッフル71X1において、触媒層3から空間7に流入した高温の反応ガス32は、円筒712XAを介した熱交換によって冷却されつつ第1熱交換部52に向かう方向に進行する。一方、第1熱交換部52によって冷却された低温の反応ガス32は、円筒712XAを介した熱交換によって加熱されつつ、触媒層3に向かう方向に進行する。

[0058] つまり、バッフル71X1は、熱交換部として、触媒層3から第1熱交換部52に向かう反応ガス32と、第1熱交換部52から触媒層3に向かう反応ガス32との間の熱交換を可能にする円筒712XAを備えている。また、バッフル71X1は、円筒712XB、円筒712XB1および該2つの筒間の空間によって構成される断熱構造を有している。当該構成により、追加の断熱部材を設けることなく、熱交換部における第1熱交換部52からの熱の影響を低減しつつ、熱交換を行うことができる。

[0059] [実施形態2]

本発明の他の実施形態について、以下に説明する。なお、説明の便宜上、上記実施形態にて説明した部材と同じ機能を有する部材については、同じ符号を付記し、その説明を繰り返さない。

[0060] 図7は、実施形態2に係る反応装置100Bを底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。図8は、図7における領域R2の拡大図である。反応装置100Bの基本的な原理は、反応装置100の当該原理と同じである。反応装置100Bでは、反応容器1Bの内部に反応管10Bを複数備えている。また、各反応管10Bが備える触媒層3Bの中心部に、第2熱交換部22Bを備えている。

[0061] 反応容器1Bの内部に設けられる反応管10Bの数は、特に限定されず、

1つ以上であればよい。反応の効率を考慮すると、反応管10Bの数は、複数であることが好ましい。複数の反応管10Bの上側には、各反応管10Bに供給される原料ガス31が充填する原料ガス供給部37Bが形成されている。複数の反応管10Bの下側には、反応管10Bの内部で凝縮した液体を貯留するための凝縮液貯留部47B（液体貯留部）が形成されている。凝縮液貯留部47Bの下側には、触媒層3Bを通過したガスを貯留するガス回収部48Bが形成されている。ガス回収部48Bの下側には、後述する第2熱交換部22Bから排出された第2熱媒21を貯留する第2熱媒回収部28Bが形成されている。さらにその下側には、第2熱交換部22Bに供給される第2熱媒21を貯留する第2熱媒供給部27Bが形成されている。前記各部は、金属板、例えば、炭素鋼製、SUS304などのステンレス製の板で反応容器1Bの内部空間を区切ることによって形成されている。

[0062] 反応管10Bは、外側から順に、外筒50Bと、外筒50Bの内側壁面と空間7Bを隔てて配置される区分壁60Bと、区分壁60Bの内側壁面に接する筒状の触媒層3Bと、触媒層3Bの内部に設けられた第2熱交換部22Bとを備える。

[0063] 触媒層3Bは、反応を促進する触媒30が充填されており、原料ガス31が供給されることにより、原料ガス31と触媒30とが接触し、反応が進行する領域である。触媒層3Bには、反応に適切な触媒30が充填されている。反応管10Bの上端は、触媒層3Bの上端以外の範囲が金属製のキャップによって覆われており、ガスの流通が不可能なように形成されている。触媒層3Bの上端には開口部38Bが形成されており、開口部38Bを通して、原料ガス31が触媒層3Bに供給される。触媒層3Bの下端には、開口部39Bが形成されている。開口部39Bには、例えば、金属メッシュを用いて構成される支持部材が設けられており、当該支持部材は、触媒30の落下を防ぐ役割を果たしている。触媒層3Bに位置する第1仕切板33については、実施形態1に記載したとおりであってよい。

[0064] 第1熱交換部52Bは、空間7B側の表面の温度が反応ガス32の露点以

下の温度に維持される熱交換器である。第1熱交換部52Bは、触媒層3Bと空間7Bを隔てて配置されている。第1熱交換部52Bは、反応容器1Bの内側壁面の一部と、外筒50Bの外側壁面と、金属板11B・12Bとによって構成されている。第1熱交換部52Bの内部には、複数の反応管10Bに共通の第1熱媒領域5Bが形成されている。第1熱媒領域5Bには、第1熱媒51が流通される。外筒50Bは、空間7B側に冷却面53Bを有している。

[0065] 反応容器1Bの側壁には、第1熱媒51を第1熱媒領域5Bに供給するための第1熱媒供給口55Bおよび第1熱媒51を第1熱媒領域5Bから排出するための第1熱媒回収口56Bが形成されている。第1熱交換部52Bは、第1熱媒51を第1熱媒領域5Bに流通させることによって、外筒50Bを反応ガス32の露点以下の温度に維持することができる。

[0066] 第2熱交換部22Bは、触媒層3B側の表面の温度が反応ガス32の露点よりも高い温度に維持される熱交換器である。より具体的には、図7および図8に示すように、第2熱交換部22Bは、第2熱交換壁20Bと内管29Bとを備えている。第2熱交換壁20Bと内管29Bとの間には、第2熱媒領域2Bが形成されている。第2熱媒領域2Bは、第2熱媒21が流通する領域である。実施形態2において、第2熱交換部22Bは、触媒層3Bの内側に位置している。

[0067] 第2熱交換壁20Bの温度は、触媒層3B全体が反応ガス32の露点より高い温度に維持されるような温度であることがより好ましい。第2熱媒21としては、生成物がメタノールである場合、例えば、220～265℃の高圧ボイラ水（例えば、2.2MPaG～5.0MPaGの飽和水）、溶融金属塩（例えば、亜硝酸ナトリウムと硝酸カリウムの混合物）、熱媒油を利用することができる。なお、本明細書において、「A～B」とは、A以上B以下であることを示している。

[0068] 第2熱交換部22Bは、第2熱媒21を第2熱媒領域2Bに流通させることによって、第2熱交換壁20Bを反応ガス32の露点より高い温度に維持

することができる。触媒層 3 内で起こる反応が発熱反応の場合、第 2 熱媒 2 1 は、反応によって生じる反応熱を冷却するための熱媒として作用する。触媒層 3 B 内で起こる反応が吸熱反応の場合、第 2 熱媒 2 1 は、触媒層 3 B に熱を加えるための熱媒として作用する。これにより、第 2 熱媒 2 1 は、触媒層 3 B の温度を反応ガス 3 2 の露点以上に維持することができ、触媒層 3 B 内において反応ガス 3 2 が凝縮する可能性を低減することができる。

[0069] 第 2 熱交換部 2 2 B は、2 重管構造を有しており、内管 2 9 B の先端は、第 2 熱媒供給部 2 7 B の流入口 2 4 B 1 に接続されている。第 2 熱媒供給部 2 7 B 内の第 2 熱媒 2 1 は、内管 2 9 B を通して第 2 熱交換部 2 2 B 内に供給される。一方、内管 2 9 B の外側壁面と第 2 熱交換部 2 2 B の内側壁面との間の流路は、第 2 熱媒回収部 2 8 B の内部に連通している。内管 2 9 B 内を通過した第 2 熱媒 2 1 は、前記流路を通過し、第 2 熱媒回収部 2 8 B の上側壁面に形成された流出口 2 4 B 0 を通して、第 2 熱媒回収部 2 8 B に排出される。

[0070] 区分壁 6 0 B は、触媒層 3 B と空間 7 B との間に位置し、反応ガス 3 2 が通過する開口 6 1 を有している。空間 7 B に位置する流路構成部 7 0 および第 2 仕切板 7 3 の構成は、実施形態 1 に記載したとおりであってよい。

[0071] 空間 7 B は、区分壁 6 0 B と外筒 5 0 B との間に形成された空間である。本実施形態では、空間 7 B の鉛直下側に凝縮液貯留部 4 7 B が設けられている。また、凝縮液流通管 4 2 B（延長管）が、凝縮液貯留部 4 7 B の内部に、外筒 5 0 B を鉛直下側に延長するよう設けられている。凝縮液流通管 4 2 B の下端は、凝縮液貯留部 4 7 B に貯留された凝縮液 4 1 内に浸漬するように位置決めされている。凝縮液流通管 4 2 B は、空間 7 B と連続する空間（第 2 空間）6 B を凝縮液貯留部 4 7 B の内部に形成する。

[0072] 空間 7 B 内で凝縮した液体（凝縮液 4 1）は、凝縮液流通管 4 2 B 内側の空間 6 B を通り、凝縮液貯留部 4 7 B に貯留される。凝縮液貯留部 4 7 B に貯留された凝縮液 4 1 は、凝縮液回収口 4 6 B を通して回収される。ここで、凝縮液回収口 4 6 B から反応ガス 3 2 が回収されないように、凝縮液回収

口46Bからの流体の排出制御が行われる。

[0073] 触媒層3Bの鉛直下側には、触媒層3Bを通過したガスが流入するガス回収部48B（ガス貯留部）が設けられている。ガス回収部48Bは、未凝縮ガス回収口36B（排気部）を備えている。

[0074] このように、凝縮液貯留部47Bとガス回収部48Bとは、別々の空間を形成している。凝縮液貯留部47Bは、気体に関しては閉空間を形成しているため、空間7Bを下降した原料ガス31は、行き場を失い、触媒層3Bへ逆戻りすることになる。そのため、原料ガス31が空間7Bを通過してそのまま外部に排出される可能性を低減できる。

[0075] 第2熱交換部22Bは、ガス回収部48Bを貫いており、第2熱交換部22Bの内管29Bの下端は、第2熱媒供給部27Bの内部空間に対して開口している。内管29Bの外側壁面と第2熱交換壁20Bの内側壁面との間の流路は、第2熱媒回収部28Bの内部に連通している。第2熱媒供給部27Bから出て内管29B内の上端に達した第2熱媒21は、前記流路を通過し、第2熱媒回収部28Bの上側壁面に形成された流出口24BOを通して、第2熱媒回収部28Bに排出される。

[0076] 実施形態2に係る反応装置100Bは、原料ガス31よりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置である。反応装置100Bは、原料ガス31が供給され、前記反応を促進する触媒30が充填された触媒層3Bと、触媒層3Bと空間7Bを隔てて配置され、空間7B側の表面の温度が前記反応によって生じる反応ガス32の露点以下の温度に維持される第1熱交換部52Bと、触媒層3Bと空間7Bとの間に位置し、反応ガス32が通過する開口61を有する区分壁60Bと、空間7B内に位置し、開口61を介して触媒層3Bから空間7Bに流入する反応ガス32の流路を構成する流路構成部70と、を備える。流路構成部70は、前記流路において、触媒層3Bから第1熱交換部52Bに向かう反応ガス32と、第1熱交換部52Bから触媒層3Bに向かう反応ガス32との間の熱交換を可能にするバッフル

71を有している。

[0077] 当該構成により、反応装置100Bを用いた反応の熱効率を向上させることができる。

[0078] 〔実施形態3〕

図9は、実施形態3に係る反応装置100Aを底面に垂直な平面で切断したときの断面図である。図10は、図9における領域R3の拡大図である。図9に示されるように、反応装置100Aは、反応容器1Aの内部に複数の反応管10Aを備えている。反応装置100Aでは、空間7Aが、触媒層3Aよりも内側に位置している点が実施形態1および実施形態2と異なる。

[0079] 複数の反応管10Aの上側には、各反応管10Aに供給される原料ガス31が充填する原料ガス供給部37Aが形成されている。複数の反応管10Aの下側には、反応管10Aの内部で凝縮した液体および、触媒層3Aを通過したガスを貯留する貯留部48Aが形成されている。貯留部48Aの下側には、後述する第1熱交換部52Aから排出された第1熱媒51を貯留する第1熱媒回収部58Aが形成されている。さらにその下側には、第1熱交換部52Aに供給される第1熱媒51を貯留する第1熱媒供給部57Aが形成されている。前記各部は、金属板、例えば、炭素鋼製、SUS304などのステンレス製の板で反応容器1Aの内部空間を区切ることによって形成されている。

[0080] 反応管10Aは、当該反応管10Aの上部に位置する金属板11Aおよび反応管10A下部に位置する金属板12Aに対して開口しており、反応管10Aの外筒20Aと、金属板11A・12Aとは溶接により接合されている。

[0081] 図9および図10に示されるように、反応管10Aは、外側から順に、外筒20Aと、外筒20Aの内側壁面に接する筒状の触媒層3Aと、触媒層3Aの内側に設けられる区分壁60Aと、第1熱交換部52Aとを備えている。第1熱交換部52Aは、区分壁60Aと空間7A（第1空間）を隔てて配置されている。区分壁60Aは、触媒層3Aと空間7Aとの間に位置し、反

応ガス 3 2 が通過する開口 6 1 を有している。

[0082] 触媒層 3 A は、実施形態 2 において上述した触媒層 3 B と同様の構成を有している。

[0083] 第 1 熱交換部 5 2 A は、空間 7 A 側の表面の温度が反応ガス 3 2 の露点以下の温度に維持される熱交換器である。第 1 熱交換部 5 2 A は、触媒層 3 A と空間 7 A を隔てて配置されており、空間 7 A 側に、冷却面 5 3 A を有する。

[0084] 図 9 および図 1 0 に示すように、第 1 熱交換部 5 2 A は、第 1 熱交換壁 5 0 A と内管 5 9 A とを備えている。第 1 熱交換壁 5 0 A と内管 5 9 A との間には、第 1 熱媒領域 5 A が形成されている。第 1 熱媒領域 5 A は、第 1 熱媒 5 1 が流通する領域である。

[0085] 第 1 熱交換部 5 2 A は、2 重管構造を有しており、内管 5 9 A の先端は、第 1 熱媒供給部 5 7 A の流入口 5 4 A I に接続されている。第 1 熱媒供給部 5 7 A 内の第 1 熱媒 5 1 は、内管 5 9 A を通して第 1 熱交換部 5 2 A 内に供給される。一方、内管 5 9 A の外側壁面と第 1 熱交換壁 5 0 A の内側壁面との間の流路は、第 1 熱媒回収部 5 8 A の内部に連通している。第 1 熱媒供給部 5 7 A から出て内管 5 9 A 内の上端に達した第 1 熱媒 5 1 は、前記流路を通過し、第 1 熱媒回収部 5 8 A の上側壁面に形成された流出口 5 4 A O を通して、第 1 熱媒回収部 5 8 A に排出される。

[0086] 第 1 熱交換壁 5 0 A は、流体が通過できない部材からなり、第 1 熱交換壁 5 0 A の空間 7 A 側の面は、第 1 熱交換面（冷却面）として作用する。第 1 熱交換部 5 2 A は、第 1 熱媒 5 1 を第 1 熱媒領域 5 A に流通させることによって、第 1 熱交換壁 5 0 A の温度を反応ガス 3 2 の露点以下に維持することができる。

[0087] 第 2 熱交換部 2 2 A は、触媒層 3 A 側の表面の温度が反応ガス 3 2 の露点よりも高い温度に維持される熱交換器である。第 2 熱交換部 2 2 A は、反応容器 1 A の内側壁面の一部と、外筒 2 0 A の外側壁面と、金属板 1 1 A ・ 1 2 A とによって構成されている。第 2 熱交換部 2 2 A の内部には、複数の反

応管 10A に共通の第 2 熱媒領域 2A が形成されている。第 2 熱媒領域 2A には、第 2 熱媒 21 が流通される。外筒 20A は、流体が通過できない部材からなり、外筒 20A の触媒層 3A 側の面は、第 2 熱交換面として作用する。

[0088] 反応容器 1A の側壁には、第 2 熱媒 21 を第 2 熱媒領域 2A に供給するための第 2 熱媒供給口 25A および第 2 熱媒 21 を第 2 熱媒領域 2A から排出するための第 2 熱媒回収口 26A が形成されている。第 2 熱交換部 22A は、第 2 熱媒 21 を第 2 熱媒領域 2A に流通させることによって、外筒 20A を反応ガス 32 の露点より高い温度に維持することができる。

[0089] 区分壁 60A は、触媒層 3A と空間 7A との間に位置し、反応ガス 32 が通過する開口 61 を有している。流路構成部 70A は、空間 7 内に位置しており、バッフル 71A を有している。

[0090] 本実施形態において、バッフル 71A は、Z 軸方向に延伸する円筒 712A と、円筒 712A の外壁に接合される円盤 713A とを含む。円筒 712A の内径は、第 1 熱交換部 52A (第 1 熱交換壁 50A) の外径よりも大きく、円筒 712A の外径は、区分壁 60A の内径よりも小さい。円筒 712A の板厚は、区分壁 60A と、第 1 熱交換部 52A との距離の $1/15 \sim 1/1.2$ の範囲であってよい。

[0091] 円盤 713A は、ドーナツ形状を有する板状部材であり、円筒 712A の外壁と区分壁 60A (または後述する第 1 仕切板 33) とを接続する。具体的には、円盤 713A の内縁 (内側面) は円筒 712A と接続され、円盤 713A の外縁 (外側面) は区分壁 60A における、任意の高さ位置に配される複数の開口 61 間に位置する部分と接合される。あるいは、円盤 713A の外縁は、第 1 仕切板 33 と接合されてもよい。バッフル 71A の材質は実施形態 1 のバッフル 71 と同様である。バッフル 71A は、触媒層 3A 内における反応の反応熱によって加熱された高温の反応ガス 32 と、第 1 熱交換部 52A によって冷却された低温の反応ガス 32 との間の熱交換を可能にする。

- [0092] 流路構成部 70A は、バッフル 71A と第 1 熱交換部 52A との間に位置する断熱部材 72A を有していてもよい。例えば、図 10 に示すように、バッフル 71A における、第 1 熱交換部 52A と対向する面に、断熱部材 72A が配されていてもよい。空間 7A に位置する流路構成部 70A および第 2 仕切板 73 の構成は、実施形態 1 に記載したとおりであってよい。
- [0093] 空間 7A は、区分壁 60A と第 1 熱交換壁 50A との間に形成された空間である。本実施形態では、空間 7A の鉛直下側に凝縮液流通管（連通管）42A が設けられている。凝縮液流通管 42A は、空間 7A を鉛直下側に延長するように構成され、液体の透過できない部材を用いて構成される。より詳細には、凝縮液流通管 42A は、空間 7A と連続する空間 6A を第 1 熱交換部 52A の表面との間に形成する。
- [0094] 反応管 10A の下側には、空間 7A 内で生じた凝縮液 41 および、触媒層 3A を通過したガスを、空間 7A の鉛直下側で貯留する貯留部 48A が形成されている。凝縮液流通管 42A は、貯留部 48A の内部に設けられており、凝縮液流通管 42A の下端は、貯留部 48A の底部（凝縮液貯留部 47A と称する）に貯留された凝縮液 41 内に浸漬するように位置決めされている。
- [0095] また、貯留部 48A の内部における上側の空間（ガス回収領域 49A と称する）には、触媒層 3A を通過した、未凝縮ガス 32A が貯留される。未凝縮ガス 32A は、反応ガス 32 が凝縮することなく触媒層 3A を通過し、ガス回収領域 49A（貯留部 48A）を経て凝縮液貯留部（液体貯留部）47A と接触した後に排出されるガスである。貯留部 48A は、ガス回収領域 49A に貯留された、未凝縮ガス 32A を排気する未凝縮ガス回収口 36A（排気部）を備えている。未凝縮ガス回収口 36A は、凝縮液流通管 42A の下端よりも鉛直上側の位置に設けられている。
- [0096] 空間 7A 内で凝縮された生成物である凝縮液 41 は、凝縮液流通管 42A の内部を通り、凝縮液貯留部 47A に排出される。凝縮液貯留部 47A の凝縮液 41 は、貯留部 48A の底部付近に設けられた凝縮液回収口 46A を通

して回収される。ここで、凝縮液回収口 4 6 A から反応ガス 3 2 が回収されないように、凝縮液回収口 4 6 A からの流体の排出制御が行われる。

[0097] 実施形態 3 に係る反応装置 1 0 0 A は、原料ガス 3 1 よりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置である。反応装置 1 0 0 A は、原料ガス 3 1 が供給され、前記反応を促進する触媒 3 0 が充填された触媒層 3 A と、触媒層 3 A と空間 7 A を隔てて配置され、空間 7 A 側の表面の温度が前記反応によって生じる反応ガス 3 2 の露点以下の温度に維持される第 1 熱交換部 5 2 A と、触媒層 3 A と空間 7 A との間に位置し、反応ガス 3 2 が通過する開口 6 1 を有する区分壁 6 0 A と、空間 7 A 内に位置し、開口 6 1 を介して触媒層 3 A から空間 7 A に流入する反応ガス 3 2 の流路を構成する流路構成部 7 0 A と、を備える。流路構成部 7 0 A は、前記流路において、触媒層 3 A から第 1 熱交換部 5 2 A に向かう反応ガス 3 2 と、第 1 熱交換部 5 2 A から触媒層 3 A に向かう反応ガス 3 2 との間の熱交換を可能にするバッフル 7 1 A を有している。

[0098] 当該構成により、反応装置 1 0 0 A を用いた反応の熱効率を向上させることができる。

[0099] 〔まとめ〕

(1) 本開示の態様 1 に係る化学反応装置は、原料ガスよりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置であって、前記原料ガスが供給され、前記反応を促進する触媒が充填された触媒層と、前記触媒層と空間を隔てて配置され、前記空間側の表面の温度が前記反応によって生じる反応ガスの露点以下の温度に維持される第 1 熱交換部と、前記触媒層と前記空間との間に位置し、前記反応ガスが通過する開口を有する区分壁と、前記空間内に位置し、前記開口を介して前記触媒層から前記空間に流入する前記反応ガスの流路を構成する流路構成部と、を備え、前記流路構成部は、前記流路において、前記触媒層から前記第 1 熱交換部に向かう前記反応ガスと、前記第

1 熱交換部から前記触媒層に向かう前記反応ガスとの間の熱交換を可能にするバッフルを有している。

[0100] 上記構成によれば、空間内において触媒層から第1熱交換部に向かう反応ガスと、第1熱交換部から触媒層に向かう反応ガスとの間の熱交換が行われるため、熱効率を向上させることができる。

[0101] (2) 本開示の態様2に係る化学反応装置は、上記態様1において、前記バッフルと前記第1熱交換部との間に位置する断熱部材を有している。

[0102] 上記構成によれば、バッフルにおける第1熱交換部からの熱の影響を低減することができるため、バッフルによる熱交換の効率をさらに向上させ、熱効率を向上させることができる。

[0103] (3) 本開示の態様3に係る化学反応装置は、上記態様1または2において、前記触媒層内に、前記原料ガスが供給される方向と直交する主面を有し、前記触媒層を複数の層に分割する第1仕切板を備えており、前記開口は、前記第1仕切板の上流側および下流側に位置している。

[0104] 上記構成によれば、触媒層が第1仕切板を備えていることにより、反応ガスが開口を介して空間に効率よく導かれ、空間内での熱交換の効率を向上させることができる。

[0105] (4) 本開示の態様4に係る化学反応装置は、上記態様1から3のいずれか1つにおいて、前記原料ガスが供給される方向に沿って、複数の流路構成部が配列されており、流路構成部間を区分する第2仕切板は、前記第2仕切板の一方の面側を通過するガスと、他方の面側を通過するガスとの間の熱交換を可能にする。

[0106] 上記構成によれば、空間内における高温の反応ガスと低温の反応ガスとの熱交換が増加するため、熱効率がより向上する。

[0107] (5) 本開示の態様5に係る化学反応装置は、上記態様1から4のいずれか1つにおいて、前記バッフルは、前記区分壁よりも熱伝導率の高い材料を含む。

[0108] 上記構成によれば、触媒層から第1熱交換部に向かう反応ガスと、第1熱

交換部から触媒層に向かう反応ガスとの間の熱交換を可能にする。

[0109] (6) 本開示の態様6に係る化学反応装置は、上記態様1から4のいずれか1つにおいて、前記バッフルは、銅、アルミニウムおよびカーボンからなる群から選択される少なくとも1つの材料を含む。

[0110] 上記構成によれば、バッフルに熱伝導率の高い材料を用いることにより、触媒層から第1熱交換部に向かう反応ガスと、第1熱交換部から触媒層に向かう反応ガスとの間の熱交換の効率が向上する。

[0111] (7) 本開示の態様7に係る化学反応装置は、上記態様1から6のいずれか1つにおいて、前記区分壁とは、前記触媒を挟んで反対側に位置し、前記触媒と接する側の表面の温度が前記反応ガスの露点よりも高い温度に維持される第2熱交換部を備える。

[0112] 上記構成により、触媒層内において反応ガスが凝縮する可能性を低減することができる。

[0113] (8) 本開示の態様8に係る化学反応方法は、上記態様1から7のいずれか1つに記載の化学反応装置を使用する化学反応方法であって、前記触媒層に前記原料ガスを供給する供給工程と、前記開口を介して前記触媒層から前記流路に流入した前記反応ガスを、前記バッフルを介した熱交換によって予冷する予冷工程と、前記予冷された反応ガスを前記第1熱交換部の表面で冷却することにより、凝縮された生成物と、残りの反応ガスとに分離する分離工程と、前記残りの反応ガスを、前記バッフルを介した熱交換によって予熱する予熱工程と、前記予熱された残りの反応ガスを前記触媒層に供給する再供給工程と、を含む。

[0114] 当該化学反応方法により、内部凝縮型反応装置を用いた、原料ガスよりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応の熱効率を向上させることができる。

[0115] (9) 本開示の態様9に係る化学反応方法は、上記態様8における反応が発熱反応である。

[0116] 当該化学反応方法により、内部凝縮型反応装置を用いた、原料ガスよりも

沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される発熱反応の熱効率を向上させることができる。

[0117] (10) 本開示の態様10に係る化学反応方法は、上記態様8において、前記原料ガスが酸化炭素および水素を含み、前記生成物がメタノールである。

[0118] 当該化学反応方法により、内部凝縮型反応装置を用いた、メタノール合成反応の熱効率を向上させることができる。

[0119] [実証試験]

[シミュレーションによる実証試験]

以下に、本発明の範囲内の構成を有する実施例1および実施例2、ならびに本発明の範囲外の構成を有する比較例について、シミュレーションにより取得した結果について説明する。下記シミュレーションでは、計算負荷を低減するため、混合ガス間の化学反応が起こらないモデルとした。また同様に計算負荷を低減するため、凝縮などの相変化が起こらないモデルとした。図11は実施例1のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概略図である。図12は実施例2のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概略図である。図13は比較例のシミュレーションのために用いたモデル装置の構成を示す概略図である。

[0120] (実施例1)

本シミュレーションでは、実施形態1の反応装置100における反応器内流動状態および反応器内温度分布について検証するために、図11に示す構成を有するモデルを用いてシミュレーションを実施した。

[0121] シミュレーションは、流体解析ソフトウェア(ANSYS Fluent 2021R2)を使用して行い、乱流モデルにはSST $k-\omega$ モデルを採用し、解析手法としてSIMPLE法を用いた。当該モデルの詳細についてはソフトウェアマニュアル等に記載の通りである。

[0122] 計算条件は以下の通りである。

・図11において、触媒層3Sの上面を入口として、CO₂ガス1.454g

/s、 H_2 ガス0.197 g/s、 N_2 ガス0.257 g/sからなる混合ガス1.908 g/sを下方向に流す。混合ガスの反応器入り口温度は220℃とする。

・混合ガスの物性は、流体解析ソフトウェアに登録されている物性データベースを使用した。

・触媒層3 Sの密度は1250 kg/m³、比熱は470 J/kg/K、熱伝導度は0.8 W/m/Kとする。

・触媒層3 Sの圧力損失は8070000/m²とする。

・触媒層3 Sには128 kW/m³の発熱を均一に付与する。

・冷却面53 Sの温度は70℃とする。

・区分壁60 Sの材質はSUS304L、密度は7930 kg/m³、比熱は500 J/kg/K、熱伝導度は17.2 W/m/Kとする。

・バッフル71 Sの材質はアルミニウム、密度は2729 kg/m³、比熱は871 J/kg/K、熱伝導度は202.4 W/m/Kとする。

・バッフル71 Sの、冷却面53 S側は断熱とする（断熱部材72 Sが位置している）。・反応器出口の圧力を5 MPa Gとする。

・本シミュレーションでは、計算負荷を低減するため、混合ガス間の化学反応が起こらないモデルとした。また同様に計算負荷を低減するため、凝縮などの相変化が起こらないモデルとした。

[0123] （実施例2）

本シミュレーションでは、実施形態1における反応装置100X1（図6）における反応器内流動状態および反応器内温度分布について検証するために、図12に示す構成を有するモデルを用いてシミュレーションを実施した。シミュレーションに用いたソフト、モデルについては実施例1と同等である。

[0124] 計算条件は以下の通りである。

・図12において触媒層3 Sの上面を入口として、 CO_2 ガス4.17 g/s、 H_2 ガス0.57 g/s、 N_2 ガス0.44 g/sからなる混合ガス5.18

g/sを下方向に流す。混合ガスの反応器入り口温度は200℃とする。

- ・混合ガスの物性は、流体解析ソフトウェアに登録されている物性データベースを使用した。
- ・触媒層3Sの密度は1250 kg/m³、比熱は470 J/kg/K、熱伝導度は0.8 W/m/Kとする。
- ・触媒層3Sの圧力損失は8070000/m²とする。
- ・触媒層3Sには128 kW/m³の発熱を均一に付与する。
- ・冷却面53Sの温度は70℃とする。
- ・区分壁60Sおよびバッフル71Sの材質はSUS304L、密度は7930 kg/m³、比熱は500 J/kg/K、熱伝導度は17.2 W/m/Kとする。
- ・バッフル71Sは、熱交換部としての円筒712SAと、円筒712SB、円筒712SB1および該2つの筒間の空間によって構成される断熱構造と、を備えている。
- ・反応器出口の圧力を5 MPa Gとする。

[0125] (比較例)

本シミュレーションでは、本発明の範囲外の装置を用いたときの反応器内流動状態および反応器内温度分布について検証するために、図13に示す構成を有するモデルを用いてシミュレーションを実施した。図13に示すモデルは、触媒層3Sと空間7Sとの間に区分壁を有していない（開口率100%）。また、当該モデルは、バッフル71Sを有していない。シミュレーションに用いたソフト、モデルについては実施例1と同等である。

[0126] 計算条件は以下の通りである。

- ・図13において触媒層3Sの上面を入口として、CO₂ガス1.454 g/s、H₂ガス0.197 g/s、N₂ガス0.257 g/sからなる混合ガス1.908 g/sを下方向に流す。混合ガスの反応器入り口温度は220℃とする。
- ・混合ガスの物性は、流体解析ソフトウェアに登録されている物性データベース

ースを使用した。

・触媒層 3 S の密度は $1\,250\text{ kg/m}^3$ 、比熱は $4\,70\text{ J/kg/K}$ 、熱伝導度は 0.8 W/m/K とする。

・触媒層 3 S の圧力損失は $8\,070\,000\,000\text{ /m}^2$ とする。

・触媒層 3 S には $1\,28\text{ kW/m}^3$ の発熱を均一に付与する。

・冷却面 5 3 S の温度は 70°C とする。

・反応器出口の圧力を 5 MPaG とする。

[0127] 上記実施例 1、実施例 2 および比較例のシミュレーションの結果を下記表 1 および表 2 に示す。

[0128] 下記表において、（熱損失率 [－]）＝（冷却面から出ていく熱量 [W]）／（「反応器に流入するガスの熱量 [W]」＋「触媒層の発熱量 [W]」）とする。

[表1]

	反応器入口温度 [°C]	反応器出口温度 [°C]	入口出口温度差 [K]
実施例 1	220	206.9	13.1
実施例 2	200	186.8	13.2
比較例	220	101	119

[0129] [表2]

	反応器に流入する ガスの熱量 [W]	触媒層の 発熱量 [W]	冷却面から 出ていく熱量 [W]	反応器から流出する ガスの熱量 [W]	熱損失率 [－]
実施例 1	872	492	552	808	0.4
実施例 2	2190	723	1124	1786	0.39
比較例	1028	492	1132	376	0.74

表 2 に示すように、実施例 1 の熱損失率は 0.4、実施例 2 の熱損失率は 0.39 であった。一方比較例の熱損失率は 0.74 であった。これらの結果から、本発明の範囲内の実施例は、比較例と比較して熱効率を向上させることができることが実証された。

[0130] [付記事項]

本発明は上述した各実施形態に限定されるものではなく、請求項に示した範囲で種々の変更が可能であり、異なる実施形態にそれぞれ開示された技術的手段を適宜組み合わせて得られる実施形態についても本発明の技術的範囲に含まれる。

符号の説明

- [0131] 100、100A、100B、100X、100X1・・・反応装置
3、3A、3B・・・触媒層
7、7A、7B・・・空間
52、52A、52B・・・第1熱交換部
22A、22B・・・第2熱交換部
31・・・原料ガス
32・・・反応ガス
33・・・第1仕切板
60、60A、60B・・・区分壁
61・・・開口
70、70X、70X1・・・流路構成部
71、71X、71X1・・・バッフル
72、72S・・・断熱部材
73・・・第2仕切板

請求の範囲

- [請求項1] 原料ガスよりも沸点の高い成分を生成物に含み、気相での反応の進行が原料－生成物間の化学平衡により制約される反応を進行させる化学反応装置であって、
- 前記原料ガスが供給され、前記反応を促進する触媒が充填された触媒層と、
- 前記触媒層と空間を隔てて配置され、前記空間側の表面の温度が前記反応によって生じる反応ガスの露点以下の温度に維持される第1熱交換部と、
- 前記触媒層と前記空間との間に位置し、前記反応ガスが通過する開口を有する区分壁と、
- 前記空間内に位置し、前記開口を介して前記触媒層から前記空間に流入する前記反応ガスの流路を構成する流路構成部と、を備え、
- 前記流路構成部は、
- 前記流路において、前記触媒層から前記第1熱交換部に向かう前記反応ガスと、前記第1熱交換部から前記触媒層に向かう前記反応ガスとの間の熱交換を可能にするバッフルを有している、化学反応装置。
- [請求項2] 前記バッフルと前記第1熱交換部との間に位置する断熱部材とを有している、請求項1に記載の化学反応装置。
- [請求項3] 前記触媒層内に、前記原料ガスが供給される方向と直交する主面を有し、前記触媒層を複数の層に分割する第1仕切板を備えており、
- 前記開口は、前記第1仕切板の上流側および下流側に位置している、請求項1または2に記載の化学反応装置。
- [請求項4] 前記原料ガスが供給される方向に沿って、複数の流路構成部が配列されており、
- 流路構成部間を区分する第2仕切板は、前記第2仕切板の一方の面側を通過するガスと、他方の面側を通過するガスとの間の熱交換を可

能にする、請求項 1 または 2 に記載の化学反応装置。

[請求項5] 前記バッフルは、前記区分壁よりも熱伝導率の高い材料を含む、請求項 1 または 2 に記載の化学反応装置。

[請求項6] 前記バッフルは、銅、アルミニウムおよびカーボンからなる群から選択される少なくとも 1 つの材料を含む、請求項 1 または 2 に記載の化学反応装置。

[請求項7] 前記区分壁とは、前記触媒を挟んで反対側に位置し、前記触媒と接する側の表面の温度が前記反応ガスの露点よりも高い温度に維持される第 2 熱交換部を備える、請求項 1 または 2 に記載の化学反応装置。

[請求項8] 請求項 1 または 2 に記載の化学反応装置を使用する化学反応方法であって、

前記触媒層に前記原料ガスを供給する供給工程と、

前記開口を介して前記触媒層から前記流路に流入した前記反応ガスを、前記バッフルを介した熱交換によって予冷する予冷工程と、

前記予冷された反応ガスを前記第 1 熱交換部の表面で冷却することにより、凝縮された生成物と、残りの反応ガスとに分離する分離工程と、

前記残りの反応ガスを、前記バッフルを介した熱交換によって予熱する予熱工程と、

前記予熱された残りの反応ガスを前記触媒層に供給する再供給工程と、を含む、化学反応方法。

[請求項9] 前記反応は発熱反応である、請求項 8 に記載の化学反応方法。

[請求項10] 前記原料ガスが酸化炭素および水素を含み、
前記生成物がメタノールである、請求項 8 に記載の化学反応方法。