

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年12月19日(19.12.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/257435 A1

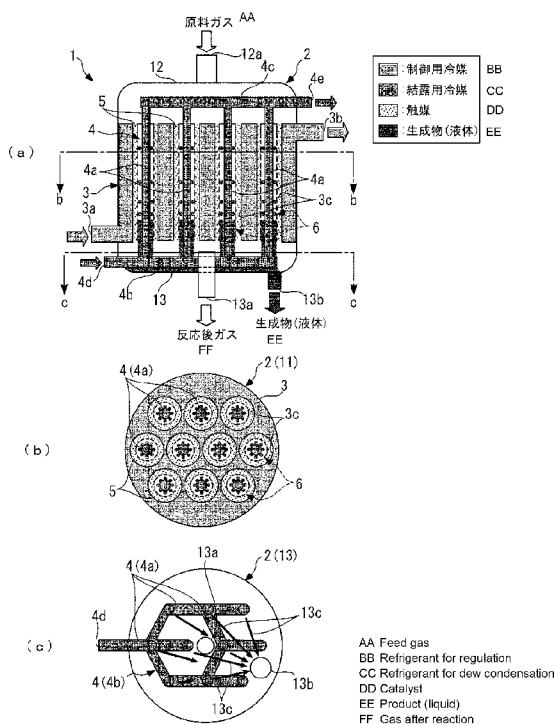
- (51) 国際特許分類:
B01J 8/02 (2006.01) C07C 29/152 (2006.01)
C07B 61/00 (2006.01) C07C 31/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/012456
- (22) 国際出願日: 2024年3月27日(27.03.2024)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2023-097620 2023年6月14日(14.06.2023) JP
- (71) 出願人: 本田技研工業株式会社 (HONDA MOTOR CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1078556 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 隅 英明 (SUMI Hideaki); 〒3510193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 高岡 亮一, 外 (TAKAOKA Ryoichi et al.); 〒1710021 東京都豊島区西池袋5-

4-7 池袋トーセイビル5階 高岡 1
P 特許事務所 Tokyo (JP).

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS,

(54) Title: REACTOR

(54) 発明の名称: 反応器



(57) Abstract: Provided is a reactor from which a product can be efficiently collected and with which an improvement in conversion can be attained. A reactor 1 is for yielding a predetermined product from a predetermined feed gas introduced thereinto, through an exothermic reaction caused by the catalysis of a predetermined catalyst 5. The reactor 1 comprises: a casing 2 which has a feed-gas inlet 12a through which the feed gas is introduced and a product discharge opening 13b for discharging the yielded product and has the catalyst 5 packed inside; a refrigerant pipe 3 for regulation placed inside the casing 2 so that a refrigerant for regulation flows therethrough in order to regulate the reaction temperature inside the casing 2; refrigerant pipes 4 for dew condensation arranged inside the casing 2 so that a refrigerant for dew condensation flows therethrough in order to condense the product on the outer peripheral surfaces of vertical pipes 4a; and product guide paths 13c arranged inside the casing 2 to guide the product condensed on the outer peripheral surfaces of the vertical pipes 4a to the product discharge opening 13b.

[続葉有]



IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT,
RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 国際調査報告（条約第21条(3)）
- 補正された請求の範囲及び説明書（条約第19条(1)）

(57) 要約：生成物を効率良く回収できるとともに、反応率を向上させることができる反応器を提供する。所定の原料ガスが導入され、所定の触媒5による触媒作用によって発熱反応を生じさせながら、所定の生成物を生成するための反応器1であって、原料ガスが導入される原料ガス導入口12a、及び生成された生成物を搬出するための生成物搬出口13bを有し、内部に触媒5が充填されたケーシング2と、ケーシング2内において制御用冷媒が流れるように配置され、ケーシング2内の反応温度を制御するための制御用冷媒管3と、ケーシング2内において結露用冷媒が流れるように配置され、生成物を縦管部4aの外周面に結露させるための結露用冷媒管4と、ケーシング2内に設けられ、縦管部4aの外周面に結露した生成物を、生成物搬出口13bに案内する生成物案内経路13cと、を備えている。

明 細 書

発明の名称： 反応器

技術分野

[0001] 本発明は、所定の原料ガスが導入され、所定の触媒による触媒作用によって発熱反応を生じさせながら、所定の生成物を生成するための反応器に関する。

背景技術

[0002] 近年、地球環境上の悪影響を軽減するために、自動車の排ガス規制が一段と進んでいる。とりわけ、内燃機関の排ガスに含まれる二酸化炭素は地球温暖化の一因であると言われており、二酸化炭素排出量の削減が求められている。

[0003] 上記のような二酸化炭素を有効活用するために、所定の触媒が充填された反応器に、水素及び二酸化炭素を含む原料ガスを導入し、反応器内で炭化水素を生成する反応装置が、特許文献 1 に記載されている。

[0004] この反応装置では、反応器の上流側に、上記の原料ガスから一酸化炭素を生成する第 1 触媒部が配置され、反応器の下流側に、生成された一酸化炭素と水素を用いて炭化水素を生成する第 2 触媒部が配置されている。上記の反応器において、上流側の第 1 触媒部では逆シフト反応が生じる一方、下流側の第 2 触媒部では F T (フィッシャー・トロプシュ：F i s c h e r - T r o p s c h) 反応が生じる。この F T 反応は、発熱反応であり、特に、第 2 触媒部の上流部分に発熱が集中することで、第 2 触媒部における温度の偏りが大きくなってしまう。そのような温度の偏りを低減するために、第 2 触媒部の上流部分に不活性触媒が混合されており、それにより、上記の反応装置では、第 2 触媒部全体における温度差を抑制することで、第 2 触媒部における反応の安定化を図っている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献 1：特開 2 0 2 2 - 1 0 2 7 0 4 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記の反応器内では、反応が進み、生成物の濃度が高くなると、反応の進み具合が低下してしまう。特に、反応が平衡状態になると、その反応自体が進まなくなる。その結果、上記の反応器では、生成物の回収効率や反応率が低下するおそれがある。

[0007] 本発明は、以上のような課題を解決するためになされたものであり、生成物を効率良く回収できるとともに、反応率を向上させることができる反応器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

[0008] 上記の目的を達成するために、請求項 1 に係る発明は、所定の原料ガスが導入され、所定の触媒 5 による触媒作用によって発熱反応を生じさせながら、所定の生成物を生成するための反応器 1 であって、原料ガスが導入される原料ガス導入口 1 2 a、及び生成された生成物を搬出するための生成物搬出口 1 3 b を有し、内部に触媒が充填されたケーシング 2 と、ケーシング内において所定の第 1 冷媒（本実施形態における（以下、本項において同じ）制御用冷媒）が流れるように配置され、ケーシング内の反応温度を制御するための第 1 冷媒流路（制御用冷媒管 3）と、ケーシング内において所定の第 2 冷媒（結露用冷媒）が流れるように配置され、生成物を外周面に結露させるための第 2 冷媒流路（結露用冷媒管 4）と、ケーシング内に設けられ、第 2 冷媒流路の外周面に結露した生成物を、生成物搬出口に案内する生成物案内経路 1 3 c と、を備えていることを特徴とする。

[0009] この構成によれば、反応器のケーシングに所定の触媒が充填されるとともに、そのケーシング内には、反応温度を制御するための第 1 冷媒流路、生成物を外周面に結露させるための第 2 冷媒流路、及び結露した生成物を生成物搬出口に案内する生成物案内経路が設けられている。所定の原料ガスが原料ガス導入口を介してケーシング内に導入されると、触媒による触媒作用によって発熱反応が生じるとともに、第 1 冷媒流路に第 1 冷媒が流れることで反応温度が制

御されながら、所定の生成物が生成される。またこの場合、第2冷媒流路に第2冷媒が流れることで、第2冷媒流路の外周面に、生成物が結露する。すなわち、生成された気体状の生成物が凝縮し、その液体状の生成物が第2冷媒流路の外周面に付着した状態となる。そして、結露した生成物は、生成物案内経路を介して、ケーシングの生成物搬出口に案内され、外部に搬出される。

[0010] 上記のように、反応器のケーシング内における反応によって生成される気体状の生成物を、第2冷媒流路の外周面に結露させることで、液体状に状態変化させることにより、生成物を効率良く回収することができる。加えて、ケーシング内における気体状の生成物の濃度を低下させることができることで、ケーシング内で行われる反応の進行度合を高い状態に維持することができ、それにより、従来の反応器に比べて、反応率を向上させることができる。

[0011] 請求項2に係る発明は、請求項1に記載の反応器において、第2冷媒は、第1冷媒よりも温度が低く設定されていることを特徴とする。

[0012] この構成によれば、第1冷媒によって、ケーシング内の反応温度を制御しながら反応を促進する一方、第1冷媒よりも温度が低い第2冷媒によって、気体状の生成物を凝縮させ、第2冷媒流路の外周面に結露させる。このように、上記構成によれば、ケーシング内における反応の促進及び生成物の結露の両立を図ることができる。

[0013] 請求項3に係る発明は、請求項1に記載の反応器において、ケーシングは、上下方向に延びる筒状に形成された本体部11と、この本体部の上端部を閉塞しかつ原料ガス導入口が設けられた上壁部12と、本体部の下端部を閉塞しかつ生成物搬出口が設けられた下壁部13と、を有し、第2冷媒流路は、本体部内において上下方向に延び、第2冷媒が流れる複数の縦流路部（縦管部4a）を有し、第1冷媒流路は、複数の縦流路部の各々の外周面との間に所定間隔を隔てた状態で、各縦流路部を囲うように構成された複数の触媒保持部3cを有し、各触媒保持部の外周部に第1冷媒が流れるように構成されており、触媒は、各縦流路部と各触媒保持部との間に充填されていることを特徴とする。

- [0014] この構成によれば、ケーシングが上下方向に延びる筒状に形成された本体部を有しており、その本体部の上端部及び下端部が、上壁部及び下壁部によってそれぞれ閉塞されている。また、第2冷媒流路は、ケーシングの本体部において上下方向に延び、第2冷媒が流れる複数の縦流路部を有している。さらに、第1冷媒流路は、第2冷媒流路の複数の縦流路部をそれぞれ囲うように構成された複数の触媒保持部を有しており、各触媒保持部の外周部に第1冷媒が流れるように構成されている。そして、触媒が、各縦流路部と各触媒保持部との間に充填されている。第1冷媒流路の各触媒保持部の外周部に第1冷媒が流れることにより、縦流路部と触媒保持部と間に充填された触媒を通る原料ガスの反応温度を、適切に制御することができる。加えて、第2冷媒流路の各縦流路部に第2冷媒が流れることにより、触媒保持部内で生成された気体状の生成物を、各縦流路部の外周面に容易に結露させることができる。
- [0015] 請求項4に係る発明は、請求項3に記載の反応器において、各触媒保持部には、縦流路部に沿って延びかつ縦流路部の外周面との間に所定の隙間を存した状態で、触媒保持部内の触媒と縦流路部との間を仕切る筒状に形成され、気体の通過を許容するとともに触媒が縦流路部に接するのを防止するための縦流路部カバー（縦管部カバー6）が設けられていることを特徴とする。
- [0016] この構成によれば、各触媒保持部には、縦流路部に沿って延びかつその外周面との間に所定の隙間を存した状態で、触媒と縦流路部との間を仕切る筒状の縦流路部カバーが設けられている。この縦流路部カバーは、気体の通過を許容するとともに、触媒保持部内の触媒が縦流路部に接するのを防止するように構成されている。これにより、縦流路部の外周面に結露した液体状の生成物を、触媒側に漏出させることなく、縦流路部の外周面に沿って落下させ、効率良く回収することができる。
- [0017] 請求項5に係る発明は、請求項4に記載の反応器において、縦流路部カバーは、所定の径を有する多数の貫通孔が形成されたパンチングプレートで構成されていることを特徴とする。

- [0018] この構成によれば、パンチングプレートの各貫通孔を、触媒が通過不能な径を有するように形成することにより、触媒保持部において生成された気体状の生成物が、触媒側から縦流路部側に移動可能な縦流路部カバーを、容易に得ることができる。
- [0019] 請求項 6 に係る発明は、請求項 3 から 5 のいずれかに記載の反応器において、ケーシングは、下壁部に、反応後のガスを排出するための反応後ガス排出口 13a をさらに有しており、生成物搬出口は、ケーシングの下壁部において径方向にずれ、反応後ガス排出口と異なる所定位置に設けられていることを特徴とする。
- [0020] この構成によれば、ケーシングの下壁部に、反応後ガス排出口が設けられているので、ケーシング内に残存する反応後ガスは、反応後ガス排出口を介して外部に円滑に排出される。また、ケーシングの下壁部には、径方向にずれ、反応後ガス排出口と異なる所定位置に、生成物搬出口が設けられているので、液体状の生成物は、反応後ガスと混ざることなく、生成物搬出口を介して外部に円滑に搬出される。

図面の簡単な説明

- [0021] [図1]本発明の一実施形態による反応器を示す断面図であり、(a)は反応器の縦断面図、(b)、(c)、(d)及び(e)はそれぞれ、(a)に示す反応器を、b-b線、c-c線、d-d線及びe-e線に沿って切断したときの横断面図である。
- [図2]反応器における反応動作を説明するための図であり、(a)は反応器の縦断面図、(b)及び(c)はそれぞれ、(a)に示す反応器を、b-b線及びc-c線に沿って切断したときの横断面図である。
- [図3]反応器内の触媒保持部におけるガスの流れ及び生成物の結露を説明するための図であり、(a)は反応器の縦断面図、(b)は(a)の一点鎖線で囲んだ縦管部及びその周囲の拡大図、(c)、(d)及び(e)はそれぞれ、(b)に示す拡大図を、c-c線、d-d線及びe-e線に沿って切断したときの横断面図である。

発明を実施するための形態

- [0022] 以下、図面を参照しながら、本発明の好ましい実施形態を詳細に説明する。図1(a)は、本発明の一実施形態による反応器の縦断面図であり、図1(b)、(c)、(d)及び(e)はそれぞれ、(a)に示す反応器を、b-b線、c-c線、d-d線、及びe-e線に沿って切断したときの横断面図である。
- [0023] この反応器1は、例えば、所定の原料ガス（例えば H_2 （水素）と CO （一酸化炭素）又は CO_2 （二酸化炭素）の混合ガス）が導入され、内部で発熱反応を生じさせながら、所定の生成物（例えば炭化水素やアルコール等の有用化合物）を生成するためのものである。
- [0024] 図1に示すように、反応器1は、上下方向に延びるケーシング2と、このケーシング2内の反応温度を制御するための冷媒（第1冷媒）（以下、「制御用冷媒」という）が流れる制御用冷媒管3（第1冷媒流路）と、反応によって生成された生成物を結露させるための冷媒（第2冷媒）（以下、「結露用冷媒」という）が流れる結露用冷媒管4（第2冷媒流路）と、ケーシング2内に充填されたペレット状の触媒5とを備えている。
- [0025] ケーシング2は、上下方向に所定長さ延びる筒状（本実施形態では円筒状）に形成された本体部11と、この本体部11の上端部を閉塞しかつ原料ガス導入口12aが設けられた上壁部12と、本体部11の下端部を閉塞しかつ反応後ガス排出口13a及び生成物搬出口13bが設けられた下壁部13とを有している。
- [0026] 上記の原料ガス導入口12a及び反応後ガス排出口13aはそれぞれ、上壁部12及び下壁部13の中心部に設けられている。また、生成物搬出口13bは、下壁部13の中心から径方向にずれ、反応後ガス排出口13aと異なる所定位置に設けられている。なお、反応後ガス排出口13aは、結露した液体の生成物が排出されるのを防止するために、上端部が結露用冷媒管4の後述する下横管部4bよりも高い位置まで突出し、上方に開放するように構成されている。

- [0027] 制御用冷媒管 3 は、ケーシング 2 内に組み付けられ、制御用冷媒の流入口 3 a がケーシング 2 の下部に設けられる一方、流出口 3 b がケーシング 2 の上部に設けられている。なお、これらの流入口 3 a 及び流出口 3 b については、反応器 1 の使用方法や条件、反応条件などによって、上下の位置関係を入れ替えることも可能である。また、制御用冷媒管 3 は、各々が上下方向に所定長さ延びかつ定の径を有する貫通孔から成る複数（本実施形態では 10 個）の触媒保持部 3 c を囲うように構成されている。
- [0028] 結露用冷媒管 4 は、制御用冷媒管 3 の上述した触媒保持部 3 c 内を貫通し、上下方向に延びるように配置された複数（本実施形態では 10 本）の縦管部 4 a（縦流路部）と、各縦管部 4 a の下端部同士を連通し、水平に延びる下横管部 4 b と、各縦管部 4 a の上端部同士を連通し、水平に延びる上横管部 4 c とを有している。下横管部 4 b には、結露用冷媒の流入口 4 d が設けられる一方、上横管部 4 c には、結露用冷媒の流出口 4 e が設けられている。なお、これらの流入口 4 d 及び流出口 4 e については、反応器 1 の使用方法や条件、反応条件などによって、上下の位置関係を入れ替えることも可能である。
- [0029] また、上記結露用冷媒管 4 の各縦管部 4 a にはいずれも、その外周を覆うように、上下方向に延びる縦管部カバー 6 が設けられている。この縦管部カバー 6 は、所定の径を有する多数の貫通孔が形成されたパンチングプレートから成り、縦管部 4 a の外径よりも若干大きな内径、及び制御用冷媒管 3 の触媒保持部 3 c の径よりも小さな外径を有する円筒状に形成されている。縦管部カバー 6 の各貫通孔は、気体の通過を許容するとともに、触媒 5 のペレットが通過不可能なサイズで構成されている。
- [0030] 触媒 5 は、原料ガス及び生成物に応じ、その生成物を生成する際の反応を促進する材料（例えば Fe（鉄）、Zr（ジルコニウム）、Ga（ガリウム）及び／又は Na（ナトリウム）など）が採用されている。また、前述したように、触媒 5 は、各々が所定サイズを有するペレット状に成形されている。そして、この触媒 5 は、反応器 1 のケーシング 2 内において、制御用冷媒管 3 の各触媒保持部 3 c に充填されている。具体的には、各触媒保持部 3 c において、

その内周面と、結露用冷媒管 4 の縦管部 4 a を囲う縦管部カバー 6 との間に充填されている。なお、図 1 (a) に示すように、ケーシング 2 内の制御用冷媒管 3 の上側及び下側は、触媒 5 が充填されない中空状のスペースになっている。これにより、制御用冷媒管 3 内を流れる制御用冷媒によって、各触媒保持部 3 c 内の反応温度を良好に制御できるとともに、原料ガス導入口 1 2 a から導入された原料ガスを各触媒保持部 3 c に良好に流すことができる。

[0031] 次に、図 2 を参照しながら、上記のように構成された反応器 1 における一反応例について説明する。本反応例では、 H_2 と CO_2 の混合ガスである原料ガスを、反応器 1 内に導入し、発熱反応であるダイレクト F T 反応を生じさせることにより、炭化水素を生成するものである。

[0032] 図 2 (a) に示すように、原料ガスを、上部の原料ガス導入口 1 2 a を介して、反応器 1 に導入する。この場合、反応器 1 内を加圧するとともに、制御用冷媒管 3 には、所定温度（例えば $200 \sim 300^{\circ}C$ ）の制御用冷媒を、下部の流入口 3 a から上部の流出口 3 b に向かって、すなわち反応器 1 の下から上に向かって流す。これにより、反応器 1 内では、所定圧（例えば $3 MPa$ ）及び所定温度（例えば $380^{\circ}C$ ）で、ダイレクト F T 反応が生じ、所定の炭化水素（例えばオクタン）及び水が気体の状態で生成される。なお、制御用冷媒管 3 内を流れる制御用冷媒は、流出口 3 b から外部に流出した後、図示しない冷却装置によって冷却され、流入口 3 a に再度、流入するように循環する。

[0033] またこの場合、結露用冷媒管 4 には、制御用冷媒よりも温度が低い所定温度（ $200^{\circ}C$ 以下）の結露用冷媒を、下部の流入口 4 d から上部の流出口 4 e に向かって流す。具体的には、流入口 4 d に流入した結露用冷媒は、結露用冷媒管 4 の下横管部 4 b、10 本の縦管部 4 a、及び上横管部 4 c を順に通って、流出口 4 e から流出する。なお、結露用冷媒管 4 内を流れる結露用冷媒は、流出口 4 e から外部に流出した後、図示しない冷却装置によって冷却され、流入口 4 d に再度、流入するように循環する。

[0034] 図 3 (a) 及び (b) は、反応器 1 内の触媒保持部 3 c においてダイレクト F T 反応が生じている際のガス及び生成物の流れ、並びに生成物の結露の状態

を示している。同図（b）に示すように、各縦管部4 aの外周を覆うように設けられた縦管部カバー6では、その上端部6 aは、パンチングプレートによる貫通孔が形成されない構造になっている。すなわち、縦管部カバー6の上端部6 aは、対応する縦管部4 aが貫通した天板部6 bと、この天板部6 bの周縁部から連なり、下方に所定長さ延びる上端円筒部6 cとを有している。また、縦管部カバー6は、上記の上端円筒部6 cの下端周縁部に連なり、制御用冷媒管3の下端付近まで比較的長く延びる円筒状のカバー本体部6 dを有しており、このカバー本体部6 dに、パンチングプレートによる多数の貫通孔が形成されている。そして、縦管部カバー6の上述した上端円筒部6 c及びカバー本体部6 dと、それらの内方に位置する縦管部4 aとの間には、横断面が円環状の結露スペース7が画成されている。

[0035] 前述したように、原料ガスが反応器1内に導入されると、その原料ガスは、図3（b）において下向き矢印で示すように、触媒保持部3 c内に充填された触媒5に接触しながら下方に流れる。この場合、触媒保持部3 c内において生成された気体状の炭化水素及び水は、図3（b）において縦管部4 aに向かう傾斜矢印で示すように、縦管部カバー6のカバー本体部6 dにおける多数の貫通孔を通過し、結露スペース7を通過して、縦管部4 a側に移動する。

[0036] なお、縦管部カバー6の上端部6 aには、パンチングプレートによる貫通孔が設けられていないため、触媒保持部3 cに上方から流入する原料ガスが、結露スペース7に直接流入したり、触媒5にほとんど接することなく結露スペース7に流入したりするのを防止することができる。

[0037] そして、結露用冷媒管4に結露用冷媒が流れることにより、縦管部4 a側に移動した気体状の炭化水素及び水は、凝縮し、縦管部4 aの外周面に結露する。なお、以下の説明では、上記の結露した炭化水素及び水を特に区別しない場合は、両者を併せて、生成物というものとする。

[0038] 各縦管部4 aの外周面に結露した液体状の生成物は、自重によって、縦管部4 aの外周面を伝って落下する。そして、図2（c）において、下壁部1 3上の生成物案内経路1 3 cの矢印で示すように、液体状の生成物が生成物搬出

口 1 3 b に案内され、外部に搬出される。なお、上記の生成物案内経路 1 3 c は、管状のものではなく、下壁部 1 3 の上面が、生成物搬出口 1 3 b に向かって前下がりに傾斜するように形成されたものである。したがって、下壁部 1 3 の上面に落下した液体状の生成物は、生成物搬出口 1 3 b に向かって自動的に流れ、その生成物搬出口 1 3 b を介して搬出される。

[0039] なお、ケーシング 2 内に残存する反応後ガスは、ケーシング 2 の下壁部 1 3 に設けられた反応後ガス排出口 1 3 a を介して、外部に排出される。

[0040] 以上詳述したように、本実施形態の反応器 1 によれば、原料ガスが原料ガス導入口 1 2 a を介してケーシング 2 内に導入されると、触媒 5 による触媒作用及び制御用冷媒による反応温度制御によって、ダイレクト F T 反応による発熱反応が生じ、気体状の生成物（炭化水素及び水）が生成される。またこの場合、結露用冷媒管 4 に結露用冷媒が流れることで、生成された気体状の生成物が凝縮し、その液体状の生成物が、結露用冷媒管 4 の縦管部 4 a の外周面に結露する。そして、結露した生成物は、生成物案内経路 1 3 c を介して、生成物搬出口 1 3 b に案内され、外部に搬出される。

[0041] 上記のように、反応器 1 のケーシング 2 内におけるダイレクト F T 反応によって生成された気体状の生成物を、結露用冷媒管 4 の縦管部 4 a の外周面に結露させることで、液体状に状態変化させることにより、生成物を効率良く回収することができる。加えて、ケーシング 2 内における気体状の生成物の濃度を低下させることができることで、ケーシング 2 内で行われるダイレクト F T 反応の進行度合を高い状態に維持することができ、それにより、従来の反応器に比べて、反応率を向上させることができる。

[0042] また、反応器 1 では、制御用冷媒によって、ケーシング 2 内の反応温度を制御しながらダイレクト F T 反応を促進する一方、制御用冷媒よりも温度が低い結露用冷媒によって、気体状の生成物を凝縮させ、結露用冷媒管 4 の縦管部 4 a の外周面に結露させる。このように、上記構成によれば、ケーシング 2 内におけるダイレクト F T 反応の促進及び生成物の結露の両立を図ることができる。

- [0043] さらに、反応器 1 では、各触媒保持部 3 c を挿通する縦管部 4 a に、パンチングプレートから成る縦管部カバー 6 が縦管部 4 a の外周面を覆うように設けられているので、縦管部 4 a の外周面に結露した液体状の生成物を、触媒 5 側に漏出させることなく、縦管部 4 a の外周面に沿って落下させ、効率良く回収することができる。
- [0044] また、ケーシング 2 の下壁部 1 3 には、その中心部に、反応後ガス排出口 1 3 a が設けられるとともに、中心部から径方向にずれ、反応後ガス排出口 1 3 a と異なる所定位置に生成物搬出口 1 3 b が設けられている。これにより、ケーシング 2 内に残存する反応後ガスを、反応後ガス排出口 1 3 a を介して、外部に円滑に排出できるとともに、液体状の生成物を、反応後ガスと混ぜることなく、生成物搬出口 1 3 b を介して、外部に円滑に搬出することができる。
- [0045] なお、本発明は、説明した上記実施形態に限定されることなく、種々の態様で実施することができる。例えば、実施形態では、反応器 1 によって、 H_2 及び CO_2 を含む原料ガスから炭化水素を生成するダイレクト F T 反応を実行した場合について説明したが、本発明の反応器はこれに限定されるものではなく、反応器 1 のケーシング 2 内で発熱反応を生じるとともに、原料ガスが常温の反応圧で液体成分を含まず、かつ生成物が常温の反応圧で液体成分を多く含む反応において適用することが可能である。例えば、 H_2 及び CO_2 を含む原料ガスから CH_3OH (メタノール) を生成するメタノール合成反応にも、反応器 1 を適用することが可能である。
- [0046] また、実施形態では、反応器 1 において、制御用冷媒管 3 の触媒保持部 3 c、及び結露用冷媒管 4 の縦管部 4 a を、それぞれ 10 個設けたが、これらの数は特に限定されるものではなく、反応器のサイズや形状などに応じて、1 個あるいは 10 個以外の複数個にすることも可能である。
- [0047] さらに、実施形態で示した反応器 1 のケーシング 2、制御用冷媒管 3、結露用冷媒管 4、触媒 5 及び縦管部カバー 6 の細部の構成などは、あくまで例示であり、本発明の趣旨の範囲内で適宜、変更することができる。

符号の説明

- [0048]
- 1 反応器
 - 2 ケーシング
 - 3 制御用冷媒管（第1冷媒流路）
 - 3 a 流入口
 - 3 b 流出口
 - 3 c 触媒保持部
 - 4 結露用冷媒管（第2冷媒流路）
 - 4 a 縦管部（縦流路部）
 - 4 b 下横管部
 - 4 c 上横管部
 - 4 d 流入口
 - 4 e 流出口
 - 5 触媒
 - 6 縦管部カバー（縦流路部カバー）
 - 6 a 縦管部カバーの上端部
 - 6 b 天板部
 - 6 c 上端円筒部
 - 6 d カバー本体部
 - 7 結露スペース
 - 1 1 ケーシングの本体部
 - 1 2 ケーシングの上壁部
 - 1 2 a 原料ガス導入口
 - 1 3 ケーシングの下壁部
 - 1 3 a 反応後ガス排出口
 - 1 3 b 生成物搬出口
 - 1 3 c 生成物案内経路

請求の範囲

- [請求項1] 所定の原料ガスが導入され、所定の触媒による触媒作用によって発熱反応を生じさせながら、所定の生成物を生成するための反応器であって、
- 前記原料ガスが導入される原料ガス導入口、及び生成された前記生成物を搬出するための生成物搬出口を有し、内部に前記触媒が充填されたケーシングと、
- 前記ケーシング内において所定の第1冷媒が流れるように配置され、前記ケーシング内の反応温度を制御するための第1冷媒流路と、
- 前記ケーシング内において所定の第2冷媒が流れるように配置され、前記生成物を外周面に結露させるための第2冷媒流路と、
- 前記ケーシング内に設けられ、前記第2冷媒流路の外周面に結露した生成物を、前記生成物搬出口に案内する生成物案内経路と、
- を備えていることを特徴とする反応器。
- [請求項2] 前記第2冷媒は、前記第1冷媒よりも温度が低く設定されていることを特徴とする請求項1に記載の反応器。
- [請求項3] 前記ケーシングは、上下方向に延びる筒状に形成された本体部と、この本体部の上端部を閉塞しかつ前記原料ガス導入口が設けられた上壁部と、前記本体部の下端部を閉塞しかつ前記生成物搬出口が設けられた下壁部と、を有し、
- 前記第2冷媒流路は、前記本体部内において上下方向に延び、前記第2冷媒が流れる複数の縦流路部を有し、
- 前記第1冷媒流路は、前記複数の縦流路部の各々の外周面との間に所定間隔を隔てた状態で、当該各縦流路部を囲うように構成された複数の触媒保持部を有し、当該各触媒保持部の外周部に前記第1冷媒が流れるように構成されており、

前記触媒は、前記各縦流路部と前記各触媒保持部との間に充填されていることを特徴とする請求項 1 に記載の反応器。

[請求項4] 前記各触媒保持部には、前記縦流路部に沿って延びかつ当該縦流路部の外周面との間に所定の隙間を存した状態で、前記触媒保持部内の前記触媒と前記縦流路部との間を仕切る筒状に形成され、気体の通過を許容するとともに前記触媒が前記縦流路部に接するのを防止するための縦流路部カバーが設けられていることを特徴とする請求項 3 に記載の反応器。

[請求項5] 前記縦流路部カバーは、所定の径を有する多数の貫通孔が形成されたパンチングプレートで構成されていることを特徴とする請求項 4 に記載の反応器。

[請求項6] 前記ケーシングは、前記下壁部に、反応後のガスを排出するための反応後ガス排出口をさらに有しており、

前記生成物搬出口は、前記ケーシングの前記下壁部において径方向にずれ、前記反応後ガス排出口と異なる所定位置に設けられていることを特徴とする請求項 3 から 5 のいずれかに記載の反応器。

補正された請求の範囲（条約第19条）**2024年10月11日（ 11.10.2024 ） 国際事務局受理**

- [請求項1] [補正後] 所定の原料ガスが導入され、所定の触媒による触媒作用によって発熱反応を生じさせながら、所定の生成物を生成するための反応器であって、
- 前記原料ガスが導入される原料ガス導入口、及び生成された前記生成物を搬出するための生成物搬出口を有し、内部に前記触媒が充填されたケーシングと、
- 前記ケーシング内において所定の第1冷媒が流れるように配置され、前記ケーシング内の反応温度を制御するための第1冷媒流路と、
- 前記ケーシング内において所定の第2冷媒が流れるように配置され、前記生成物を外周面に結露させるための第2冷媒流路と、
- 前記ケーシング内に設けられ、前記第2冷媒流路の外周面に結露した生成物を、前記生成物搬出口に案内する生成物案内経路と、
- を備え、
- 前記ケーシングは、上下方向に延びる筒状に形成された本体部と、この本体部の上端部を閉塞しかつ前記原料ガス導入口が設けられた上壁部と、前記本体部の下端部を閉塞しかつ前記生成物搬出口が設けられた下壁部と、を有し、
- 前記第2冷媒流路は、前記本体部内において上下方向に延び、前記第2冷媒が流れる複数の縦流路部と、当該各縦流路部の下端部同士を連通し、水平に延びる下横流路部と、前記各縦流路部の上端部同士を連通し、水平に延びる上横流路部と、を有し、
- 前記第1冷媒流路は、前記複数の縦流路部の各々の外周面との間に所定間隔を隔てた状態で、当該各縦流路部を囲うように構成された複数の触媒保持部を有し、当該各触媒保持部の外周部に前記第1冷媒が流れるように構成されており、

前記触媒は、前記各縦流路部と前記各触媒保持部との間に充填されており、

前記下横流路部及び前記上横流路部の一方には、前記第2冷媒が流入する流入口が設けられ、前記下横流路部及び前記上横流路部の他方には、前記第2冷媒が流出する流出口が設けられており、

前記流入口及び前記流出口は、上下の位置関係が入れ替え可能に構成されていることを特徴とする反応器。

[請求項2] 前記第2冷媒は、前記第1冷媒よりも温度が低く設定されていることを特徴とする請求項1に記載の反応器。

[請求項3] [削除]

[請求項4] [補正後] 前記各触媒保持部には、前記縦流路部に沿って延びかつ当該縦流路部の外周面との間に所定の隙間を存した状態で、前記触媒保持部内の前記触媒と前記縦流路部との間を仕切る筒状に形成され、気体の通過を許容するとともに前記触媒が前記縦流路部に接するのを防止するための縦流路部カバーが設けられていることを特徴とする請求項1に記載の反応器。

[請求項5] 前記縦流路部カバーは、所定の径を有する多数の貫通孔が形成されたパンチングプレートで構成されていることを特徴とする請求項4に記載の反応器。

[請求項6] [補正後] 前記ケーシングは、前記下壁部に、反応後のガスを排出するための反応後ガス排出口をさらに有しており、

前記生成物搬出口は、前記ケーシングの前記下壁部において径方向にずれ、前記反応後ガス排出口と異なる所定位置に設けられていることを特徴とする請求項1から5のいずれかに記載の反応器。

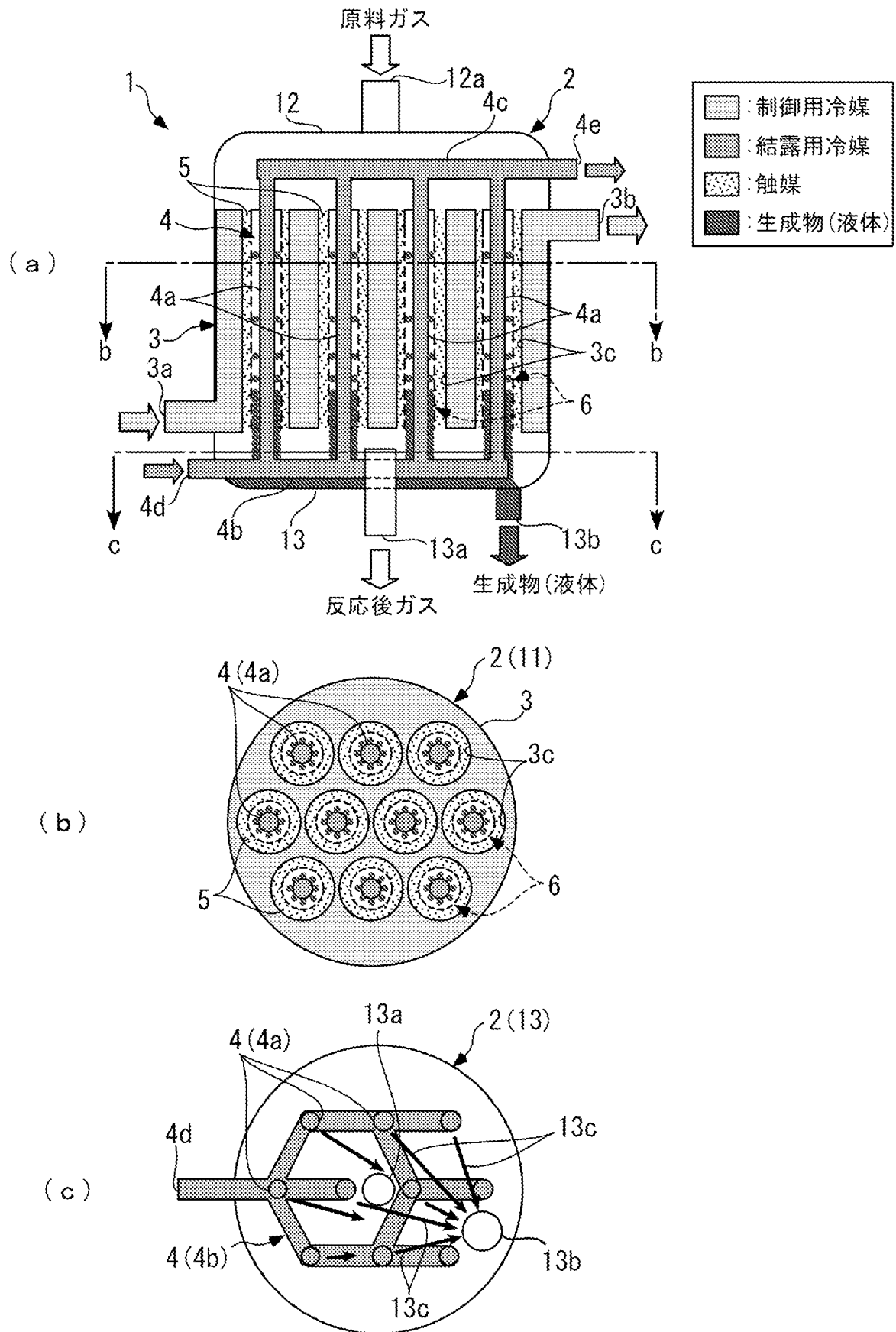
条約第19条（1）に基づく説明書

請求項 1、4 及び 6 を補正するとともに、請求項 3 を削除します。

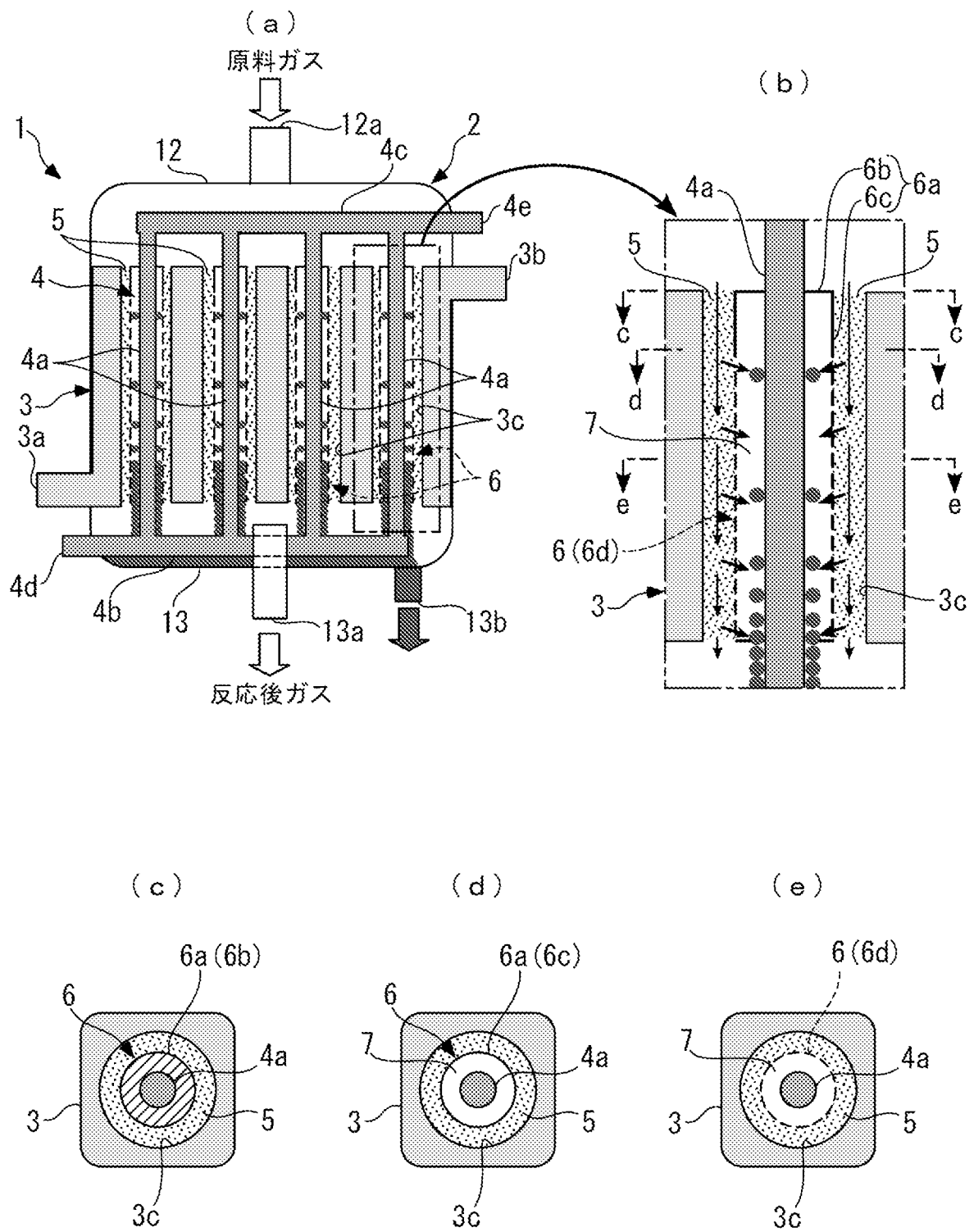
補正後の請求項 1 は、出願時の請求項 1 に出願時の請求項 3 を追加するとともに、出願時の明細書の段落 [0028] の記載に基づくものです。

補正後の請求項 4 及び 6 はいずれも、補正後の請求項 1 を引用するものです。

[図 2]



[図 3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/012456

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B01J 8/02**(2006.01)i; **C07B 61/00**(2006.01)i; **C07C 29/152**(2006.01)i; **C07C 31/04**(2006.01)i

FI: B01J8/02 E; C07C31/04; C07C29/152; C07B61/00 300

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01J8/02; C07B61/00; C07C29/152; C07C31/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024

Registered utility model specifications of Japan 1996-2024

Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2022/045326 A1 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) 03 March 2022 (2022-03-03) paragraphs [0019]-[0020], [0032], [0050]-[0069], [0077], [0084], fig. 3	1-6
X	WO 2021/060145 A1 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) 01 April 2021 (2021-04-01) fig. 2, 5	1-6
A	JP 2021-127304 A (SHIMANE UNIV) 02 September 2021 (2021-09-02) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2011-515334 A (HALDOR TOPSOE AS) 19 May 2011 (2011-05-19) fig. 8-10	1-6
A	US 2014/0377164 A1 (PHILLIPS 66 COMPANY) 25 December 2014 (2014-12-25) entire text, all drawings	1-6



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“D” document cited by the applicant in the international application

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 June 2024

Date of mailing of the international search report

25 June 2024

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2024/012456

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2022/045326	A1	03 March 2022	US 2023/0311092 A1 paragraphs [0029]-[0030], [0042], [0060]-[0085], [0092], [0095], fig. 3	
WO	2021/060145	A1	01 April 2021	US 2022/0363617 A1 fig. 2, 5 EP 4043424 A1 CN 114423515 A TW 202112712 A	
JP	2021-127304	A	02 September 2021	(Family: none)	
JP	2011-515334	A	19 May 2011	US 2010/0305222 A1 fig. 8-10 US 2012/0269697 A1 WO 2009/106232 A1 EP 2257366 A1 EP 2374533 A1 CA 2713874 A1 CN 101959585 A	
US	2014/0377164	A1	25 December 2014	US 2014/0374069 A1 US 2014/0374070 A1 US 2014/0377155 A1 US 2014/0377165 A1 US 2015/0376007 A1 US 2015/0376008 A1 WO 2014/204943 A1 WO 2014/204946 A1 WO 2014/204953 A1 WO 2014/204965 A1 WO 2014/204986 A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

B01J 8/02(2006.01)i; C07B 61/00(2006.01)i; C07C 29/152(2006.01)i; C07C 31/04(2006.01)i
FI: B01J8/02 E; C07C31/04; C07C29/152; C07B61/00 300

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

B01J8/02; C07B61/00; C07C29/152; C07C31/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報1922 - 1996年

日本国公開実用新案公報1971 - 2024年

日本国実用新案登録公報1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報1994 - 2024年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2022/045326 A1（住友化学株式会社）03.03.2022（2022 - 03 - 03） 段落[0019]-[0020], [0032], [0050]-[0069], [0077], [0084], 図3	1-6
X	WO 2021/060145 A1（住友化学株式会社）01.04.2021（2021 - 04 - 01） 図2, 5	1-6
A	JP 2021-127304 A（国立大学法人島根大学）02.09.2021（2021 - 09 - 02） 全文, 全図	1-6
A	JP 2011-515334 A（ハルドル・トブサー・アクチエゼルスカベット）19.05.2011 （2011 - 05 - 19） 図8-10	1-6
A	US 2014/0377164 A1（PHILLIPS 66 COMPANY）25.12.2014（2014 - 12 - 25） 全文, 全図	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
11.06.2024

国際調査報告の発送日
25.06.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

宮部 裕一 4Q 3840

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

様式 PCT/ISA/210（第2ページ）（2022年7月）

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/012456

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2022/045326	A1	03.03.2022	US	2023/0311092	A1	
				段落[0029]-[0030], [0042], [0060]-[0085], [0092], [0095], 図3			
WO	2021/060145	A1	01.04.2021	US	2022/0363617	A1	
				図2, 5			
				EP	4043424	A1	
				CN	114423515	A	
				TW	202112712	A	
JP	2021-127304	A	02.09.2021	(ファミリーなし)			
JP	2011-515334	A	19.05.2011	US	2010/0305222	A1	
				図8-10			
				US	2012/0269697	A1	
				WO	2009/106232	A1	
				EP	2257366	A1	
				EP	2374533	A1	
				CA	2713874	A1	
				CN	101959585	A	
US	2014/0377164	A1	25.12.2014	US	2014/0374069	A1	
				US	2014/0374070	A1	
				US	2014/0377155	A1	
				US	2014/0377165	A1	
				US	2015/0376007	A1	
				US	2015/0376008	A1	
				WO	2014/204943	A1	
				WO	2014/204946	A1	
				WO	2014/204953	A1	
				WO	2014/204965	A1	
				WO	2014/204986	A1	