

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7698564号
(P7698564)

(45)発行日 令和7年6月25日(2025.6.25)

(24)登録日 令和7年6月17日(2025.6.17)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 7 C	67/36 (2006.01)	C 0 7 C	67/36
B 0 1 J	8/04 (2006.01)	B 0 1 J	8/04 3 1 1 Z
B 0 1 J	8/00 (2006.01)	B 0 1 J	8/00 A
B 0 1 J	8/02 (2006.01)	B 0 1 J	8/02 C
C 0 7 C	69/36 (2006.01)	C 0 7 C	69/36
請求項の数 9 外国語出願 (全11頁) 最終頁に続く			
(21)出願番号	特願2021-189967(P2021-189967)	(73)特許権者	000000206
(22)出願日	令和3年11月24日(2021.11.24)		U B E 株式会社
(65)公開番号	特開2022-85877(P2022-85877A)		山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9
(43)公開日	令和4年6月8日(2022.6.8)		6
審査請求日	令和6年7月19日(2024.7.19)	(73)特許権者	521513719
(31)優先権主張番号	202011364698.7		德 艾柯工程技 術 (上海)有限公
(32)優先日	令和2年11月27日(2020.11.27)		司
(33)優先権主張国・地域又は機関	中国(CN)		A T H C O E n g i n e e r i n g (
			S h a n g h a i) C o . , L t d .
			中華人民共和国上海市浦 東 新区鹿吉
			路 3 6 1、3 6 5 号 5 幢 一 楼 B 区
		(74)代理人	110001508
			弁理士法人 津国
		(72)発明者	森下 啓之
			山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

横型マルチノズルシェルを含み、前記シェル上に複数組の原料ガス出入り口及び伝熱側の出入り口が設けられ、前記シェル内に触媒層（3）が設けられ、亜硝酸メチルとCOの反応を起こしてシュウ酸ジメチル（DMO）を得る製造方法中に用いられる大型の横型マルチフロープレート式反応装置であって、前記触媒層は、少なくとも2段階のフローを含み、各フローが触媒を充填した複数のプレート式温度制御モジュール（2）で構成され、同じフロー段階の各前記プレート式温度制御モジュール（2）内に充填した触媒の高さが同じであることを特徴とする、大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項 2】

各段階フロー内における流体の流動方式は、順流方式又は逆流方式であることを特徴とする、請求項 1 に記載の大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項 3】

各段階フローは、軸方向に複数組の前記プレート式温度制御モジュール（2）を並列に接続することを特徴とする、請求項 1 に記載の大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項 4】

前記プレート式温度制御モジュール（2）は、数枚の同じ熱交換用波形ペアプレート（

１１）を含み、各前記熱交換用波形ペアプレート（１１）の底部に設けられた取り外し可能なグリッド上の隣り合う前記熱交換用波形ペアプレート（１１）の間に触媒を充填することを特徴とする、請求項１に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項５】

前記熱交換用波形ペアプレート（１１）は、横型熱交換ペアプレートであり、隣り合う前記熱交換用波形ペアプレート（１１）の間の距離が１０ｍｍ～１００ｍｍの範囲であることを特徴とする、請求項４に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項６】

前記横型マルチノズルシェルは、円筒体（５）を含み、両端に鏡板（４）及び複数組の原料ガス出入り口と伝熱側の出入り口が設けられ、前記伝熱側の出入り口の数又は断面積が少なくとも前記原料ガス出入り口の数又は断面積の２倍であり、各前記伝熱側の出入り口に少なくとも１個のスチームドラムが接続されることを特徴とする、請求項１に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項７】

前記横型マルチノズルシェルの片側の水平方向に少なくとも２個の等間隔かつ平行な原料ガス入口ａ（６）が配置され、その対向側に対応する生成物出口ａ（７）が配置され、

または、前記横型マルチノズルシェルの上方に少なくとも２個の等間隔かつ平行な原料ガス入口ｂ（８）が配置され、その底部に対応する生成物出口ｂ（９）が配置される、

ことを特徴とする、請求項６に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項８】

前記横型マルチノズルシェル内の軸方向に配置された少なくとも１枚の流れを仕切る垂直バッフル（１２）は、反応器を半径方向に少なくとも左右２つのフローに分割し、前記流れを仕切る垂直バッフル（１２）の上側が穿孔の無いバッフルであり、下側が均一に穿孔された穿孔板であり、穿孔の無い前記バッフルと前記穿孔板の比率は、１０～２：１で、前記穿孔板の穿孔率が１５％～６５％の範囲であり、１００％にすることもできることを特徴とする、請求項１に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【請求項９】

前記横型マルチノズルシェル内の半径方向に配置されたガス分散用水平バッフル（１３）は、反応器を軸方向に少なくとも上下２つのフローに分割し、前記ガス分散用水平バッフル（１３）が均一に穿孔され、穿孔率が３０％～７０％の範囲であり、１００％にすることもできることを特徴とする、請求項１に記載の大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、ＤＭＯ反応装置に関し、特に、大規模ＤＭＯ反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置に関する。

【背景技術】

【０００２】

現在中国国内のエチレングリコールプロジェクトは、急速に発展し、主に炭素合成経路中のシュウ酸ジメチルの触媒水素化でエチレングリコールを製造することに重きを置く。このため、シュウ酸ジメチルをエチレングリコール調製の主要原料とし、その調製も非常に重要な研究分野である。反応温度が予想温度より低い場合、ＤＭＯシュウ酸ジメチルが触媒の表面で凝縮してしまう。凝縮液は触媒の細孔を満たし、触媒の活性を低下させる可能性があり、同時に反応物である亜硝酸メチル（ＭＮ）は、自己分解性を持っているため、反応装置において、高温条件下でのＭＮの急速な分解反応を避けるため、温度を一定範

10

20

30

40

50

囲内に制御するよう注意しなければならない。したがって、この反応にとって、反応器の触媒層の温度分布を制御することが特に重要である。

【 0 0 0 3 】

下流の製品であるエチレングリコールの需要の増加に伴い、石炭由来のエチレングリコールプロジェクトの生産能力はそれに応じて拡大され、製造コスト及び運転エネルギー消費を考慮すると、石炭由来エチレングリコールの各プロセスの反応器のスケールアップが不可欠である。現在、ほとんどのDMO合成反応器は、多管式等温反応器であり、その生産能力の規模が主に5～20万トンDMO/年の範囲であり、反応装置のスケールアップの傾向に多くの制限がある。1つ目は、多管式等温反応器の直径の増加により、管板のコストが大幅に増加し、反応装置の建設に多額の投資が発生する。2つ目は、カルボニル化反応システムの運転圧力が低いため、カルボニル化ガス循環機が石炭由来エチレングリコールの主なエネルギー消費装置になり、多管式等温反応器の高さの増加は、触媒層の圧力降下の増大につながり、ガス循環機の運転エネルギー消費が大幅に増加し、反応器のスケールアップを著しく制限する。3つ目は、多管式等温反応器の管径の増加は触媒層の温度分布の不均一につながり、熱交換管の中心で過温度現象が発生しやすく、運転の安全性に影響を及ぼす。4つ目は、多管式等温反応器の直径の増加により、冷却水側の不均一に流れるという現象が顕著に増加し、触媒層温度の不均一性を悪化させる。5つ目は、多管式等温反応器の直径が道路輸送の限界を超え、製造現場で設備の加工と溶接を実施しなくてはならないため、反応器の製造難易度が増える。したがって、多管式等温反応器は、反応装置のスケールアップ（生産能力が20～40万トンDMO/年）の設計要件を満たすことができず、現在中国の化学工業における「大規模、低エネルギー消費、高効率、低汚染」の発展傾向に合っていない。

10

20

【 0 0 0 4 】

従来の固定床横型反応器は、ほとんどが断熱型反応器であり、特許文献1に触媒層に伝熱装置がなく、反応器の入口と出口の熱交換器を介して予め昇温、降温する横型反応器が開示されている。ただし、DMO反応は発熱速度が速く、発熱量が大きいため、この種の反応器では反応の熱交換要件を満たすことができない。従来の固定床横型反応器は、圧力降下と投資をさまざまな程度に減らすことができるが、それでも触媒の充填・取り出しが困難及び反応器内のガス分布が不均一であるという問題が存在する。特に急速な発熱反応について、触媒層は、効率的な伝熱デバイスによって反応熱を除去する必要がある、同時に反応器内部の複雑な構造を配慮する必要がある、既存の横型反応器では満たすことができない。

30

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 0 5 】

【 文献 】 中国実用新案公告第207102556号明細書

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 6 】

本発明は、従来技術における上述の問題点の克服を意図しており、熱伝達係数が高い大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置を提供することを目的とする。

40

【 0 0 0 7 】

DMO合成装置の生産能力拡大における多管式等温反応器の様々な制限に着目し、本発明のマルチフロープレート式反応装置は、同じサイズで熱伝達係数が高く、触媒の充填率が大きく、生産能力拡大を実現できる。本発明の横型マルチフロープレート式反応器は、熱伝達係数が高く、必要な熱交換面積が小さく、高価な管板を必要とせず、反応装置の製造コストを削減するのに有利である。比較的小さい触媒層圧力損失及びシステムの運転圧力降下は、ガス循環機のエネルギー消費及び生産の運転コストを削減することに有利である。水側の温度と流量を段階的に調整し、各段階の触媒層温度の均一性を制御し、DMO

50

収率と運転の安全性を向上させることができる。反応器の直径は触媒充填量によって制限されず、道路輸送の要件を満たし、反応器全体の輸送を容易にし、製造の難易度を低下する。さらに、この反応器全体は、独立したモジュール化の設計を採用し、モジュールの特性は横型ペアプレートの設計パラメーターによって決定される。複数セットの横型ペアプレートが独立したモジュールを形成し、複数セットのモジュールが直列及び並列に接続されて、大型の反応器として統合する。多管式等温反応器のスケールアップ効果と比較して、この反応器の各モジュールの伝熱性能は偏差なしで均一であり、工業スケールアップのリスクが大幅に軽減される。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明では、上記目的を達成するために、次の技術的手段を講じた。

横型マルチノズルシェルを含み、前記シェル上に複数組の原料ガス出入り口及び伝熱側の出入り口が設けられ、前記シェル内に触媒層(3)が設けられる大規模DMO反応に用いられる横型マルチフロープレート式反応装置であって、前記触媒層は、少なくとも2段階のフローを含み、各フローが触媒を充填した複数のプレート式温度制御モジュール(2)で構成され、同じフロー段階の各プレート式温度制御モジュール(2)内に充填した触媒の高さが同じであることを特徴とする。

【0009】

各段階フロー内における流体の流動方式は、順流方式又は逆流方式であり、各段階フローが軸方向に複数組の同じモジュールを並列に接続することで、反応器の生産能力拡大を満たし、反応器の直径の増加により道路輸送が制限されることを避ける。

【0010】

各段階フローは、軸方向に複数組のプレート式温度制御モジュール(2)を並列に接続する。

【0011】

前記プレート式温度制御モジュール(2)は、数枚の同じ熱交換用波形ペアプレート(11)を含み、各熱交換用波形ペアプレート(11)の底部に設けられた取り外し可能なグリッド上の隣り合う熱交換用波形ペアプレート(11)の間に触媒を充填する。前記プレート式温度制御モジュールユニットは、数枚の同じ熱交換用波形ペアプレート(11)を一定距離隔てて、4枚の厚板を最外部の熱交換用波形ペアプレートに各々溶接し、周囲を全周溶接し封止し、流体の流動のための上下開口部のみを残しておく。

【0012】

カルボニル化反応の特徴によれば、前記熱交換用波形ペアプレート(11)は、横型熱交換ペアプレート(11)であり、隣り合う熱交換用波形ペアプレートの間の距離が10mm~100mmの範囲である。

【0013】

前記横型マルチノズルシェルは、直径3~6メートル、長さ8メートル以上の円筒体(5)を含み、両端に鏡板(4)及び複数組の原料ガス出入り口と伝熱側の出入り口が設けられ、前記伝熱側の出入り口の数又は断面積が少なくとも原料ガス出入り口の数又は断面積の2倍であり、各伝熱側の出入り口に少なくとも1個のスチームドラムが接続され、伝熱側の各ブランチに緊急用ベント弁が配置されている。

【0014】

前記横型マルチノズルシェルの片側の水平方向に少なくとも2個の等間隔かつ平行な原料ガス入口a(6)が配置され、その対向側に対応する生成物出口a(7)が配置され、原料ガスは、反応器右上の原料ガス入口a(6)から流入し、U字形フローを經由し、さらに反応器左上の生成物出口a(7)から流出させることができる。

又は、前記横型マルチノズルシェルの上方に少なくとも2個の等間隔かつ平行な原料ガス入口b(8)が配置され、その底部に対応する生成物出口b(9)が配置され、原料ガスは、反応器上側の原料ガス入口b(8)から流入し、少なくとも2段階の異なる触媒層を經由して反応器下側生成物出口b(9)から流出させることができる。

10

20

30

40

50

【 0 0 1 5 】

前記横型マルチノズルシェル内の軸方向に配置された少なくとも1枚の流れを仕切る垂直バッフル(12)は、反応器を半径方向に少なくとも左右2つのフローに分割し、前記流れを仕切る垂直バッフル(12)の上側が穿孔の無いバッフルであり、下側が均一に穿孔された穿孔板であり、穿孔の無いバッフルと穿孔板の比率は、10～2:1で、穿孔板の穿孔率が15%～65%の範囲であり、100%にすることもできる。

【 0 0 1 6 】

前記横型マルチノズルシェル内の半径方向に配置されたガス分散用水平バッフル(13)は、反応器を軸方向に少なくとも上下2つのフローに分割し、前記ガス分散用水平バッフル(13)が均一に穿孔され、穿孔率が30%～70%の範囲であり、100%にすることもできる。

10

【 0 0 1 7 】

触媒層は、少なくとも2段階のフローで構成され、前記2段階以上のフローが少なくとも2セットの異なるプレート式温度制御モジュールで構成される。同じ段階のフロー内にあるプレート式温度制御モジュールセットの各パラメーターは、一致し、触媒充填の高さがいずれも同じである。原料ガス入口に近く、同じフロー段階にあるプレート式温度制御モジュール(2)のペアプレートの間隔D1は、10mm～60mmの範囲であり、より好ましくは15mm～45mmの範囲であり、触媒充填の高さh1が1.5m～4.3mの範囲であり、原料ガス出口に近く、同じフロー段階にあるプレート式温度制御モジュール(2)のペアプレートの間隔D2は、20mm～100mmの範囲であり、より好ましくは20mm～60mm範囲であり、触媒充填の高さh2が0.3m～4.0mの範囲である。ここで、D1<D2、h1>h2となる。

20

【 0 0 1 8 】

DMO合成反応は、激しい発熱反応であり、その反応物である亜硝酸メチル(MN)が高温条件下で急速な分解反応を起こすため、反応温度が急激に上昇し、熱暴走反応による爆発現象が発生し、生産の安全性に著しく影響を与える。DMO反応速度は、温度及び反応物の濃度に依存する。反応器の入口部は反応物濃度が高く、反応性が良好であり、反応器の出口側ほど反応物濃度が低く、反応性が低下するため、触媒層前半の反応量が高く、触媒層後半に比べてより高い除熱能力を必要とする。したがって、触媒層前半では、高い熱伝導効率を確保する条件下で、MN分解を抑えて収率をアップする必要がある。

30

同時に、生成物であるDMOの沸点は、他の成分の沸点よりも高くなり、反応器の温度がその下限よりも低い場合、触媒の表面にDMOの凝縮が生じ、その凝縮液が触媒の細孔に浸透して、触媒の活性が低下する可能性がある。したがって、反応工程全体において、反応温度の精密な制御が特に重要であり、反応工程全体は、好ましくは50～200の範囲、より好ましくは80～150の範囲の温度で行われる。反応圧力は、大気圧以上が好ましいが、10kg/cm²G(約1MPaG)以下、より好ましくは5kg/cm²G(約0.5MPaG)以下である。さらに、この反応の特徴によれば、触媒層前半では、反応器の伝熱能力を高め、高温条件下でのMNの急速な分解反応を避けるため、温度を一定の範囲内に制御する必要がある。触媒層後半では、反応器の伝熱能力を弱め、反応出口温度を80以上に制御する必要がある。

40

【 0 0 1 9 】

したがって、反応結果及び安全性を考慮すると、反応器の触媒層の温度分布を厳密に制御しなければならないため、異なる熱交換能力を持つプレート式温度制御モジュールを内蔵し、並列・直列接続構造の配置を通じてマルチフローの内部構造を形成し、反応温度を多段化制御する多段マルチフロー反応器を発明した。DMO合成反応の触媒層前半では発熱が激しいため、高い熱交換能力が必要で、触媒層後半では温度の均一性を制御して収率をアップする特性について、異なるプレート間隔の少なくとも2つのフローを設計し、前段階のフローのプレート間隔が比較的小さく、熱交換能力を高め、後段階フローのプレート間隔が比較的大きく、反応温度を安定するように制御し、出口温度が低くなりすぎるのを防ぐ。

50

【 0 0 2 0 】

また、石炭由来エチレングリコールプロジェクトの生産能力が徐々に拡大するにつれ、DMO合成反応では、触媒層の抵抗力を可能な限り低減し、触媒層の圧力降下を減少し、循環ガス圧縮機の電力を減らして運転エネルギー消費の節約が要求される。横型反応器の触媒層の高さが低く、プレート式モジュラーデザインの組み合わせにより、生産能力を拡大する時にやはり低い圧力降下を確保でき、かつ触媒の充填は、より簡単で均一性が保たれ、各チャネルの供給ガスと触媒の接触時間を0.2～10秒に制御させ、反応の安全性を確保し、省エネ・排出量削減を実現する。

【 0 0 2 1 】

横型多段階温度制御プレート式反応器は、複数のユニットモジュールをつなぎ合わせて形成され、複数組の伝熱側の出入り口と緊急用ベント弁と協働し、各ユニットモジュールのスチームドラム（温度・流量）を個別に調整することができる。触媒層の温度制御は、より便利であり、したがって安全で安定な生産を実現するのにより役立つ。

10

【発明の効果】

【 0 0 2 2 】

従来技術と比較して、本発明は、次の利点を有する。

1. 横型多段階温度制御プレート式反応器の内部温度制御プレートユニットは、モジュール構造で構成され、生産能力の要求に応じて軸方向に複数組のモジュールを並列することで、反応器の直径を大きくせず、道路輸送の制限範囲内とする。したがって、横型反応器の各構成要素は、工場で加工や組立を終えることができ、管板製造の要求がなく、製造精度を向上させるだけでなく、製造コストも削減する。

20

【 0 0 2 3 】

2. 横型多段階温度制御プレート式反応器の触媒層の高さは、生産能力の拡大の影響を受けず、例えば20万トン/年のDMOの生産能力を一定の空間速度の運転条件下に制御すると、横型反応器の触媒層の圧力降下はわずか25kPaになり、多管式反応器の170kPaよりはるかに低い。空間速度が増加しても、横型反応器はわずか35kPaであり、その多段階フローの触媒層全高が5mを超えず、触媒層の圧力降下が顕著に減少し、15kPa～50kPaの範囲に制御することができる。したがって、横型反応器は、システム運転の圧力降下を大幅に減少し、圧縮機の電力を大幅に減らすことで、運転コストを節約する。

30

【 0 0 2 4 】

3. 横型多段階温度制御プレート式反応器のマルチフロー及びモジュラーデザインは、各フロー及びモジュールの冷却水流量と温度を個別に調整するのに役立ち、触媒層の温度制御の利便性及び精度を顕著に向上し、同時に多段階フローの制御により、全体的な反応温度が均一になり、明らかなホットスポット部がなく、触媒層温度の調整、熱暴走回避及びDMO収率のアップに役立つ。

【 0 0 2 5 】

4. 横型多段階温度制御プレート式反応器は、優れた熱伝導性、均一な冷却水側の流動分布及び触媒充填の便利・均一性及びモジュラーデザインを備え、各チャネルの触媒層の温度分布を均一にさせ、局所高温部がないため、横型多段階温度制御プレート式反応器はDMO収率のアップにさらに役立ち、より優れた生産の安全・安定性を有する。

40

【 0 0 2 6 】

5. 本発明の装置は、「安定、省エネ、安全、高効率」などの特性を有し、現在化学工学生産のスケールアップ発展傾向に合うことで、石炭由来エチレングリコール分野において最も潜在能力を有する反応器の1つである。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 2 7 】

【図1】本発明の横型マルチフロープレート式反応装置の全体構造を示す模式図である。

【図2】本発明の横型マルチフロープレート式反応装置の第1の構造形態を示す模式図である。

50

【図 3】本発明の横型マルチフロープレート式反応装置の第 2 の構造形態を示す模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0028】

以下、具体的実施例を参照しつつ本発明を詳細に説明する。下記の実施例は、当業者が本発明をさらに理解するのを助けるが、本発明をいかなる形態にも限定しない。当業者であれば本発明の技術思想を逸脱しない範囲で、多様な変更及び修正が可能であることが指摘されるべきである。

【0029】

本発明の横型マルチフロー温度制御プレート式反応器は、ニーズに応じて反応器を様々な形態で配置することができる。

【0030】

第 1 の形態

図 1、図 2 を参照すると、亜硝酸メチルと CO の反応を起こしてシュウ酸ジメチル (DMO) を得る製造方法中の大規模カルボニル化反応に用いられる横型マルチフロー温度制御プレート式反応器は、横型マルチノズルシェルを含み、シェルが横置き of 横型シェルであり、両端に鏡板 4 が設けられ、円筒体 5 を含み、シェル直径が 3 ~ 4.5 メートルである。シェル内部は、少なくとも 2 段階以上の熱交換能力が異なる多段フローを含み、筒体右側の水平方向に少なくとも 2 個の等間隔かつ平行な原料ガス入口 a 6 が配置され、その左側に対応する生成物出口 a 7 が配置され、シェル内の軸方向に配置された少なくとも 1 枚の流れを仕切る垂直バッフル 1 2 が反応器を少なくとも左右 2 つのフロー (前記流れを仕切る垂直バッフル (1 2) の上側は、穿孔の無いバッフルであり、下側が均一に穿孔された穿孔板であり、穿孔の無いバッフルと穿孔板の比率は、10 ~ 2 : 1 で、穿孔板の穿孔率が 15 % ~ 65 % の範囲であり、100 % にすることもできる) に分割し、原料ガスの一酸化炭素と亜硝酸メチルは反応器右上の原料ガス入口 a 6 から右側の白金族金属触媒層に流れ込んで反応を起こし、さらに流れを仕切る垂直バッフル 1 2 を経由して左側の触媒層に入り、U 字形フローとなり、さらに反応器左上の生成物出口 a 7 から流出して生成物を得る。右側フロー内には、2 ~ 20 個の並列に接続されたプレート式温度制御モジュール 2 を含み、各プレート式温度制御モジュール 2 は数枚の同じ熱交換用波形ペアプレート 1 1 を 15 mm ~ 45 mm 離間して配置しており、左側フロー内は、2 ~ 20 個のプレート式温度制御モジュール 2 を含み、その中の熱交換用波形ペアプレート 1 1 が 20 mm ~ 80 mm 離間して配置され、触媒を熱交換用波形ペアプレート間に充填し、熱交換用波形ペアプレート 1 1 上に循環水出入り口が設けられ、ペアプレート内部の循環水により熱量を除去し、反応原料ガスがペアプレートの触媒上で反応を起こす。循環水出入り口は、伝熱側の出入り口 (図 2 内の伝熱側入口 10、伝熱側出口 10') であり、循環水出入り口が少なくとも 1 つのスチームドラムに接続され、伝熱側の各ブランチに緊急用ベント弁が配置されて反応温度を調節し、反応を安全に進められるよう確保する。

【0031】

第 2 の形態

図 1、図 3 を参照すると、大規模カルボニル化反応に用いられる別の横型マルチフロー温度制御プレート式反応器は、横型マルチノズルシェルを含み、シェルが横置き of 横型シェルであり、両端に鏡板 4 が設けられ、円筒体 5 を含み、シェル直径が 4 ~ 6 メートルである。シェル内部は、少なくとも 2 段階以上の熱交換能力が異なる多段フローを含み、筒体上側の水平方向に少なくとも 2 個の等間隔かつ平行な原料ガス入口 8 が配置され、その底部に対応する生成物出口 9 が配置され、反応器シェル内の半径方向に配置されたガス分散用水平バッフル 1 3 は、反応器を軸方向に少なくとも上下 2 つのフロー (前記ガス分散用水平バッフル 1 3 が均一に穿孔され、穿孔率が 30 % ~ 70 % の範囲であり、100 % の範囲とすることもできる) に分割し、原料ガスの一酸化炭素と亜硝酸メチルは反応器上方の入口 8 から白金族金属触媒層に流れ込んで反応を起こし、さらにガス分散用水平バッフル 1 3 を経由して下側の触媒層に入り、最後に生成物出口 9 から流出する。上側フロー内

10

20

30

40

50

には、2～20個のプレート式温度制御モジュール2を含み、各プレート式温度制御モジュール2は数枚の同じ熱交換用波形ペアプレート11を10mm～40mm離間して配置しており、下側フロー内は、2～20個のプレート式温度制御モジュール2を含み、熱交換用波形ペアプレート11が15mm～60mm離間して配置され、触媒を熱交換用波形ペアプレート間に充填し、熱交換用波形ペアプレート内部の循環水により熱量を除去する。循環水出入り口は、伝熱側の出入り口（図3内の伝熱側入口10、伝熱側出口10'）であり、少なくとも1つのスチームドラムに接続され、伝熱側の各ブランチに緊急用ベント弁が配置されて反応温度を調節し、反応を安全に進められるよう確保する。

【0032】

循環水の出入り口（10，10'）の順序を変更することにより、フローを順流方式又は逆流方式に制御できる。ここで、各段階フローの触媒充填の高さは、同じであり、各段階フローが軸方向に複数組の同じモジュールを並列することで、反応器の生産能力拡大を満たし、反応器の直径の増加により道路輸送が制限されることを避ける。

【実施例1】

【0033】

大規模亜硝酸アルキルエステルカルボニル化反応では、第1の形態の横型マルチフロー式温度制御プレート式反応器を用い、反応器の内径が4mである。反応器の上方で、ガス圧縮機（図示せず）により、COと再生塔からのガス（亜硝酸メチル）を混合した後の混合ガス（体積濃度1～35%の一酸化炭素、体積濃度3～15%の亜硝酸メチルを含有し、同時に窒素または二酸化炭素ガスなどの非反応性ガス、少量の一酸化窒素とアルキルアルコール蒸気も含む）を予熱器（図示せず）に輸送し加熱後触媒層に供給し、反応器の温度制御プレートを介して全体的な反応温度を80～150℃に制御し、一酸化炭素と亜硝酸メチルを反応させる。横型反応器の2段階フロー触媒層の全高は、4.5mであり、触媒が均一に充填され、反応器の運転が安定し、同じ運転条件下の多管式反応器と比較して、触媒層の圧力降下がより小さく、わずか45kPaであり、熱伝達効果は顕著であり、横型マルチフロー式温度制御プレート式反応器の熱交換係数は多管式反応器の1.5～2倍になり、同じホットスポット温度条件下で、DMO収率が15～20%程度向上する。

【実施例2】

【0034】

大規模亜硝酸アルキルエステルカルボニル化反応では、実施例1と同じ反応条件で、第2の形態の横型マルチフロー式温度制御プレート式反応器を用い、反応器内径が4.8mであり、全体的な反応温度を80～150℃の範囲に制御して反応し、横型反応器の2段階フロー触媒層の全高は、2.5mであり、反応器の運転が安定し、同じ運転条件下の多管式反応器と比較して、触媒層の圧力降下が顕著に減少し、わずか25kPaであり、循環圧縮機の消費電力を大幅に節約し、システムの運転エネルギー消費を低下する。熱伝達効果は顕著であり、触媒層の温度分布は均一で、同じホットスポット温度条件下で多管式反応器と比較して、DMO収率が5～10%向上する。

【0035】

上記実施例における反応器は、大規模なDMO反応に用いられ、性能を下表に示される。

10

20

30

40

50

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	従来の多管反応器	従来の横型反応器
熱交換係数	1.5~2	1.5~2	1	/
DMO収率	1.15~1.2	1.05~1.1	1	該当なし
圧力降下(kPa) a)	45	25	100	/

10

【0036】

DMO収率とは、1時間あたり1立方メートルあたりに生成されるDMO粗生成物の量を意味し、ここで、通常の管式反応器との比較結果に基づいて、熱交換係数とDMO収率は相対値である。

【0037】

上表から分かるように、実施例1に記載の反応器の熱伝達効果は顕著であり、熱交換係数は多管式反応器の1.5~2倍であり、DMO収率が15~20%程度向上する。実施例2における反応器の熱伝達効果は顕著であり、熱交換係数が多管式反応器の1.5~2倍であり、DMO収率が5~10%程度向上する。

20

【0038】

最後に、上記の好ましい実施例は、本発明の技術的手段を例示するためにのみ使用され、これらにより本発明が限定されるものではないことに留意されたい。本発明の技術的思想から逸脱しない限り様々な置換、変形及び変更が可能であることは当業者にとって明らかであり、当業者により置換、変形及び変更される場合も本発明の特許請求の範囲で限定される範囲に含まれる。

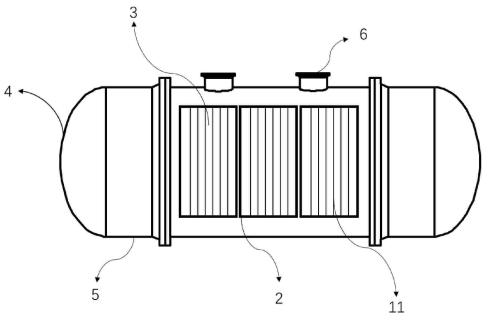
30

40

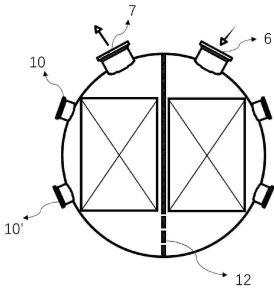
50

【図面】

【図 1】

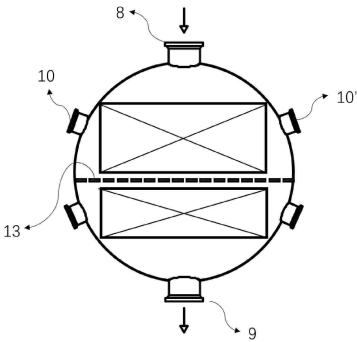


【図 2】



10

【図 3】



20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

B 0 1 J 23/42 (2006.01)

B 0 1 J 23/42 Z

B 0 1 J 35/56 (2024.01)

B 0 1 J 35/56 3 0 1 Z

6 宇部興産株式会社内

(72)発明者 余 聖 嬰

中華人民共和国上海市浦 東 新区鹿吉路 3 6 1、3 6 5 号 5 幢 一 楼 B 区

(72)発明者 瀧 元伸

山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 宇部興産株式会社内

(72)発明者 倪昊尹

中華人民共和国上海市浦 東 新区鹿吉路 3 6 1、3 6 5 号 5 幢 一 楼 B 区

(72)発明者 森野 浩司

山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 宇部興産株式会社内

(72)発明者 方晨辰

中華人民共和国上海市浦 東 新区鹿吉路 3 6 1、3 6 5 号 5 幢 一 楼 B 区

(72)発明者 松本 紘

山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 宇部興産株式会社内

(72)発明者 劉 英民

中華人民共和国上海市浦 東 新区鹿吉路 3 6 1、3 6 5 号 5 幢 一 楼 B 区

審査官 奥谷 暢子

(56)参考文献 特許第 5 8 3 5 4 2 0 (J P , B 2)

特開平 0 6 - 2 1 8 2 6 9 (J P , A)

特開 2 0 1 0 - 0 4 2 3 3 9 (J P , A)

特開 2 0 0 4 - 2 0 2 4 3 0 (J P , A)

中国実用新案第 2 0 2 8 7 6 7 7 2 (C N , U)

中国実用新案第 2 0 7 1 0 2 5 5 6 (C N , U)

(58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)

C 0 7 C

B 0 1 J