(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
2025年6月5日(05.06.2025)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2025/115498 A1

(51) 国際特許分類:
C07C 1/12 (2006.01) *C07C 11/04* (2006.01)
C07C 1/04 (2006.01) *C07C 11/06* (2006.01)
C07C 9/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/038631

(22) 国際出願日： 2024年10月30日(30.10.2024)

(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 2023-199655 2023年11月27日(27.11.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社ＩＨＩ (IHI CORPORATION) [JP/JP]; 〒1358710 東京都江東区豊洲三丁目１番１号 (JP).

(72) 発明者: 成相 健太郎 (NARIAI, Kentaro); 〒1358710 東京都江東区豊洲三丁目１番１号 株式会社ＩＨＩ内 (JP). 澤 公博 (SAWA, Kimihiro); 〒1358710 東京都江東区豊洲三丁目１番１号 株式会社ＩＨＩ内 (JP). 野々村 敦 (NONOMURA, Atsushi); 〒1358710 東京都江東区豊洲三丁目１番１号 株式会社ＩＨＩ内 (JP). 鎌田 博之 (KAMATA, Hiroyuki); 〒1358710 東京都江東区豊洲三丁目１番１号 株式会社ＩＨＩ内 (JP).

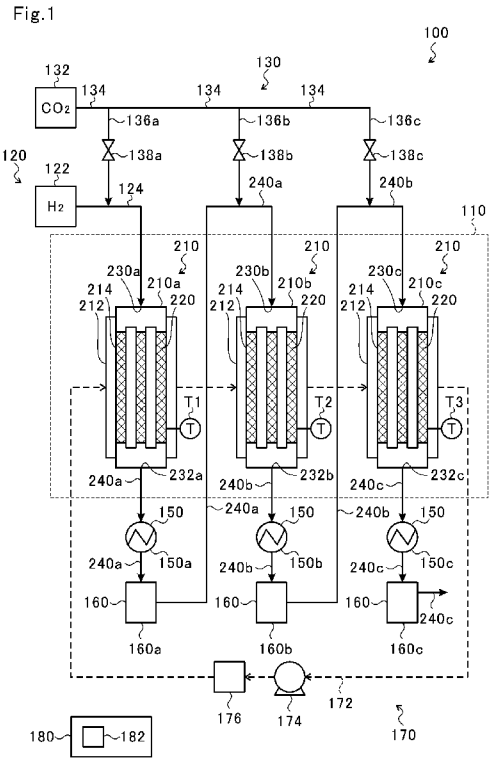
(74) 代理人: 弁理士法人 青海国際特許事務所 (AOMI PATENT); 〒1010052 東京都千代田区神田小川町１－８－８ (JP).

(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,

(54) **Title:** HYDROCARBON PRODUCTION DEVICE

(54) 発明の名称： 炭化水素製造装置

Fig.1



(57) **Abstract:** The hydrocarbon production device 100 comprises: a reaction device 110 which has an inlet 230a, an outlet 232c, and one or a plurality of supply ports 230b, 230c provided between the inlet 230a and the outlet 232c, and in which a catalyst 220 for promoting an exothermic reaction between hydrogen and carbon dioxide is housed; a first hydrogen supply part 120 for supplying hydrogen into the reaction device 110 through the inlet 230a of the reaction device 110; and a carbon dioxide supply part 130 for supplying carbon dioxide into the reaction device 110 through the inlet 230a and supply ports 230b, 230c of the reaction device 110.

(57) 要約：炭化水素製造装置１００は、入口２３０ａと、出口２３２ｃと、入口２３０ａと出口２３２ｃとの間に設けられた１または複数の供給口２３０ｂ、２３０ｃとを有し、水素と二酸化炭素との発熱反応を促進する触媒２２０が収容された反応装置１１０と、反応装置１１０の入口２３０ａを通じて反応装置１１０内に水素を供給する第１水素供給部１２０と、反応装置１１０の入口２３０ａおよび供給口２３０ｂ、２３０ｃを通じて反応装置１１０内に二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部１３０と、を備える。

WO 2025/115498 A1

［続葉有］

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, 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:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明　細　書

発明の名称 ： 炭化水素製造装置

技術分野

[0001]　本開示は、炭化水素製造装置に関する。本出願は２０２３年１１月２７日に提出された日本特許出願第２０２３－１９９６５５号に基づく優先権の利益を主張するものであり、その内容は本出願に援用される。

背景技術

[0002]　火力発電所、製鉄所、ボイラー等のプラントにおいて、石炭、重油、超重質油等の化石燃料が燃焼されている。このため、化石燃料の燃焼によって生じる、二酸化炭素および一酸化炭素のうちのいずれか一方または両方を含む排気ガスがプラントから大気へ排出される。二酸化炭素および一酸化炭素は、地球温暖化の要因とされているため、大気から二酸化炭素および一酸化炭素のうちのいずれか一方または両方を回収する技術が開発されている。

[0003]　また、回収した二酸化炭素を有効利用する技術として、例えば、特許文献１には、メタネーション反応を促進する触媒が収容された反応装置に二酸化炭素および水素を供給し、反応装置において二酸化炭素と水素とを反応させてメタンを製造する技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０２１－１１６２９４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005]　ところで、メタネーション反応等の、二酸化炭素および一酸化炭素のうちのいずれか一方または両方と水素との合成反応は、発熱反応である。このため、上記特許文献１のように、二酸化炭素と水素との合成反応を、触媒を用いて促進させる技術では、合成反応の反応熱により反応装置内の温度が上昇しすぎてしまい、触媒が劣化するおそれがある。

[0006] 本開示は、このような課題に鑑み、反応装置内を適切な温度とすることが可能な炭化水素製造装置を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0007] 上記課題を解決するために、本開示の一態様に係る炭化水素製造装置は、入口と、出口と、入口と出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素と二酸化炭素との発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、反応装置の入口を通じて反応装置内に水素を供給する第１水素供給部と、反応装置の入口および供給口を通じて反応装置内に二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部と、を備える。

[0008] また、上記炭化水素製造装置は、二酸化炭素供給部によって供給される二酸化炭素の流量を制御する流量制御部を備えてもよい。

[0009] また、流量制御部は、反応装置に収容された触媒の温度に基づいて、二酸化炭素の流量を制御してもよい。

[0010] また、入口と、入口との距離が最短である供給口との間の距離は、出口と、出口との距離が最短である供給口との間の距離よりも短くてもよい。

[0011] また、反応装置は、供給口を２つ以上有し、入口と、入口との距離が最短である供給口との間の距離は、隣り合う供給口の間の距離よりも短く、出口と、出口との距離が最短である供給口との間の距離は、隣り合う供給口の間の距離よりも長くてもよい。

[0012] また、反応装置は、供給口を３つ以上有し、隣り合う供給口の間の距離は、入口側から出口側に向かうに従って長くなってもよい。

[0013] また、反応装置は、直列に接続された複数の反応器を含み、入口は、最前段の反応器に設けられ、出口は、最後段の反応器に設けられてもよい。

[0014] また、上記炭化水素製造装置は、複数の反応器のうちの少なくともいずれか１の反応器の排出口から排出されたガスを冷却する冷却器を備えてもよい。

[0015] また、上記炭化水素製造装置は、反応装置の供給口を通じて反応装置内に水素を供給する第２水素供給部を備えてもよい。

[0016] 上記課題を解決するために、本開示の一態様に係る他の炭化水素製造装置は、入口と、出口と、入口と出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素と一酸化炭素との発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、反応装置の入口を通じて反応装置内に水素を供給する第１水素供給部と、反応装置の入口および供給口を通じて反応装置内に一酸化炭素を供給する一酸化炭素供給部と、を備える。

[0017] 上記課題を解決するために、本開示の一態様に係る他の炭化水素製造装置は、入口と、出口と、入口と出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素、一酸化炭素、および、二酸化炭素の発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、反応装置の入口を通じて反応装置内に水素を供給する第１水素供給部と、反応装置の入口および供給口を通じて反応装置内に一酸化炭素を供給する一酸化炭素供給部と、反応装置の入口および供給口を通じて反応装置内に二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部と、を備える。

発明の効果

[0018] 本開示によれば、反応装置内を適切な温度とすることが可能となる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]図１は、第１の実施形態に係る炭化水素製造装置を説明する図である。

[図2]図２は、第２の実施形態に係る炭化水素製造装置を説明する図である。

[図3]図３は、変形例に係る炭化水素製造装置を説明する図である。

[図4]図４は、比較例のシミュレーション結果を示すグラフである。

[図5]図５は、実施例における第１反応器のシミュレーション結果を示すグラフである。

[図6]図６は、実施例における第２反応器のシミュレーション結果を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0020] 以下に添付図面を参照しながら、本開示の実施形態について詳細に説明する。実施形態に示す寸法、材料、その他具体的な数値等は、理解を容易とす

るための例示にすぎず、特に断る場合を除き、本開示を限定するものではない。なお、本明細書および図面において、実質的に同一の機能、構成を有する要素については、同一の符号を付することにより重複説明を省略する。また本開示に直接関係のない要素は図示を省略する。

[0021] ［第１の実施形態：炭化水素製造装置１００］

図１は、第１の実施形態に係る炭化水素製造装置１００を説明する図である。図１に示すように、第１の実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、反応装置１１０と、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３と、水素供給部１２０と、二酸化炭素供給部１３０と、冷却器１５０と、気液分離器１６０と、温度調整部１７０と、中央制御部１８０とを含む。図１において、実線の矢印は、水素（ガス）、二酸化炭素（ガス）、炭化水素（ガス）、および、水（ガスおよび液体）の流れを示す。また、図１において、破線の矢印は、熱媒体の流れを示す。

[0022] 反応装置１１０では、水素と二酸化炭素の合成反応が行われ、炭化水素が製造される。水素と二酸化炭素の合成反応は、発熱反応である。水素と二酸化炭素の合成反応は、例えば、下記式（１）～式（４）に示される反応である。

$4H_2 + CO_2 \rightarrow CH_4 + 2H_2O$ …式（１）

$6H_2 + 2CO_2 \rightarrow C_2H_4 + 4H_2O$ …式（２）

$9H_2 + 3CO_2 \rightarrow C_3H_6 + 6H_2O$ …式（３）

$mH_2 + nCO_2 \rightarrow$ 炭化水素$+ 2nH_2O$ …式（４）

上記式（１）に示される反応によりメタンが製造される。上記式（２）に示される反応によりエチレンが製造される。上記式（３）に示される反応によりプロピレンが製造される。上記式（４）に示されるＦＴ（Fischer-Tropsch）合成反応により炭化水素が製造される。本実施形態では、反応装置１１０において上記式（１）に示される反応が行われ、メタンが製造される場合を例に挙げる。

[0023] 反応装置１１０は、水素および二酸化炭素の入口２３０ａと、反応後のガ

スの出口２３２ｃと、入口２３０ａと出口２３２ｃとの間に設けられた１または複数の二酸化炭素の供給口２３０ｂ、２３０ｃとを有する。また、反応装置１１０には、触媒２２０が収容される。反応装置１１０には、触媒２２０の層（触媒層）が形成される。触媒２２０は、水素と二酸化炭素との発熱反応を促進する触媒である。触媒２２０は、例えば、式（１）に示す反応を促進する触媒である。図１において、触媒２２０をクロスハッチングで示す。

[0024] 本実施形態において、反応装置１１０は、例えば、直列に接続された複数の反応器２１０を含む。反応装置１１０が直列に接続された複数の反応器２１０で構成されることにより、二酸化炭素の供給口２３０ｂ、２３０ｃを容易に形成することができる。反応器２１０は、例えば、多管式・熱交換型の反応器である。反応器２１０は、熱媒容器２１２と、複数の反応管２１４とを有する。熱媒容器２１２には、後述する温度調整部１７０によって熱媒体が供給される。

[0025] 複数の反応管２１４は、熱媒容器２１２内に設けられる。反応管２１４には、触媒２２０が収容される。反応管２１４には、触媒２２０の層（触媒層）が形成される。反応管２１４内の温度（触媒層の温度）は、熱媒容器２１２を通過する熱媒体、および、反応管２１４内で進行する発熱反応によって生じる熱により、例えば、２００℃以上５５０℃以下となる。

[0026] 本実施形態において、反応装置１１０は、例えば、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃの３つの反応器２１０からなる。第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃは、この順に直列に接続される。

[0027] 最前段の第１反応器２１０ａには、入口２３０ａと排出口２３２ａとが設けられる。入口２３０ａは、第１反応器２１０ａの複数の反応管２１４の一方側に連通する。排出口２３２ａは、第１反応器２１０ａの複数の反応管２１４の他方側に連通する。第１反応器２１０ａの入口２３０ａには、後述する水素供給部１２０および二酸化炭素供給部１３０が接続される。第１反応

器２１０ａの排出口２３２ａには、配管２４０ａを介して、第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂが接続される。

[0028] 第２反応器２１０ｂには、供給口２３０ｂと排出口２３２ｂとが設けられる。供給口２３０ｂは、第２反応器２１０ｂの複数の反応管２１４の一方側に連通する。排出口２３２ｂは、第２反応器２１０ｂの複数の反応管２１４の他方側に連通する。第２反応器２１０ｂの排出口２３２ｂには、配管２４０ｂを介して、最後段の第３反応器２１０ｃの供給口２３０ｃが接続される。

[0029] 第３反応器２１０ｃには、供給口２３０ｃと出口２３２ｃとが設けられる。供給口２３０ｃは、第３反応器２１０ｃの複数の反応管２１４の一方側に連通する。出口２３２ｃは、第３反応器２１０ｃの複数の反応管２１４の他方側に連通する。第３反応器２１０ｃの出口２３２ｃには、配管２４０ｃが接続される。反応装置１１０において製造された、炭化水素を９０％以上含む生成ガスは、配管２４０ｃを通じて外部に排出される。

[0030] なお、本実施形態において、例えば、反応器２１０の反応管２１４の長さは、最前段から最後段に向かう従って長くなる。例えば、反応管２１４の長さは、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃの順に長くなってもよい。つまり、反応装置１１０において、入口２３０ａと、入口２３０ａとの距離が最短である供給口２３０ｂとの間の距離は、供給口２３０ｂと供給口２３０ｃとの間の距離よりも短くてもよい。また、反応装置１１０において、出口２３２ｃと、出口２３２ｃとの距離が最短である供給口２３０ｃとの間の距離は、供給口２３０ｂと供給口２３０ｃの間の距離よりも長くてもよい。

[0031] 温度センサＴ１は、第１反応器２１０ａの反応管２１４内に収容された触媒２２０（触媒層）の温度を検知する。温度センサＴ２は、第２反応器２１０ｂの反応管２１４内に収容された触媒２２０（触媒層）の温度を検知する。温度センサＴ３は、第３反応器２１０ｃの反応管２１４内に収容された触媒２２０（触媒層）の温度を検知する。

[0032] 水素供給部１２０（第１水素供給部）は、反応装置１１０の第１反応器２１０ａの入口２３０ａを通じて、第１反応器２１０ａ内に水素を供給する。

[0033] 水素供給部１２０は、例えば、ブロワ１２２と、原料ガス供給管１２４とを含む。ブロワ１２２の吸入側は、水素の供給源に接続される。ブロワ１２２の吐出側は、原料ガス供給管１２４に接続される。原料ガス供給管１２４は、ブロワ１２２の吐出側と、反応装置１１０の第１反応器２１０ａの入口２３０ａとを接続する。

[0034] 二酸化炭素供給部１３０は、反応装置１１０の第１反応器２１０ａの入口２３０ａ、第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂ、および、第３反応器２１０ｃの供給口２３０ｂを通じて、第１反応器２１０ａ内、第２反応器２１０ｂ内、および、第３反応器２１０ｃ内に二酸化炭素を供給する。

[0035] 二酸化炭素供給部１３０は、例えば、ブロワ１３２と、二酸化炭素供給管１３４と、分岐管１３６ａ、１３６ｂ、１３６ｃと、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃとを含む。ブロワ１３２の吸入側は、二酸化炭素の供給源に接続される。ブロワ１３２の吐出側は、二酸化炭素供給管１３４に接続される。

[0036] 分岐管１３６ａは、二酸化炭素供給管１３４と原料ガス供給管１２４とを接続する。ブロワ１３２から吐出された二酸化炭素は、二酸化炭素供給管１３４、分岐管１３６ａ、原料ガス供給管１２４、反応装置１１０の第１反応器２１０ａの入口２３０ａを通じて、第１反応器２１０ａに供給される。

[0037] 分岐管１３６ｂは、二酸化炭素供給管１３４と配管２４０ａとを接続する。ブロワ１３２から吐出された二酸化炭素は、二酸化炭素供給管１３４、分岐管１３６ｂ、配管２４０ａ、反応装置１１０の第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂを通じて、第２反応器２１０ｂに供給される。

[0038] 分岐管１３６ｃは、二酸化炭素供給管１３４と配管２４０ｂとを接続する。ブロワ１３２から吐出された二酸化炭素は、二酸化炭素供給管１３４、分岐管１３６ｃ、配管２４０ｂ、反応装置１１０の第３反応器２１０ｃの供給口２３０ｃを通じて、第３反応器２１０ｃに供給される。

[0039] 流量調整弁１３８ａは、分岐管１３６ａに設けられる。流量調整弁１３８ａは、分岐管１３６ａに形成される流路の開度を調整する。流量調整弁１３８ｂは、分岐管１３６ｂに設けられる。流量調整弁１３８ｂは、分岐管１３６ｂに形成される流路の開度を調整する。流量調整弁１３８ｃは、分岐管１３６ｃに設けられる。流量調整弁１３８ｃは、分岐管１３６ｃに形成される流路の開度を調整する。流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃは、後述する流量制御部１８２によって開度が調整される。流量制御部１８２による開度調整処理については後に詳述する。

[0040] 冷却器１５０は、複数の反応器２１０のうちの少なくともいずれか１の反応器２１０の排出口２３２ａ、２３２ｂから排出されたガスを冷却する。冷却器１５０は、例えば、熱交換器である。本実施形態において、炭化水素製造装置１００は、例えば、３つの冷却器１５０ａ、１５０ｂ、１５０ｃを有する。

[0041] 冷却器１５０ａは、配管２４０ａに設けられる。冷却器１５０ａは、第１反応器２１０ａの排出口２３２ａから排出されたガスを冷却する。第１反応器２１０ａから排出されたガスには、水素、二酸化炭素、メタン、および、水（ガス）が含まれる。冷却器１５０ｂは、配管２４０ｂに設けられる。冷却器１５０ｂは、第２反応器２１０ｂの排出口２３２ｂから排出されたガスを冷却する。第２反応器２１０ｂから排出されたガスには、水素、二酸化炭素、メタン、および、水（ガス）が含まれる。冷却器１５０ｃは、配管２４０ｃに設けられる。冷却器１５０ｃは、第３反応器２１０ｃの出口２３２ｃから排出されたガスを冷却する。第３反応器２１０ｃから排出されたガスには、水素、二酸化炭素、メタン、および、水（ガス）が含まれる。

[0042] 気液分離器１６０は、冷却器１５０によって冷却されたガスおよび液体（液体の水）の混合物を気液分離する。本実施形態において、炭化水素製造装置１００は、例えば、３つの気液分離器１６０ａ、１６０ｂ、１６０ｃを有する。

[0043] 気液分離器１６０ａは、配管２４０ａに設けられる。気液分離器１６０ａ

は、冷却器１５０ａによって冷却されたガスおよび液体の水の混合物を気液分離する。気液分離器１６０ｂは、配管２４０ｂに設けられる。気液分離器１６０ｂは、冷却器１５０ｂによって冷却されたガスおよび液体の水の混合物を気液分離する。気液分離器１６０ｃは、配管２４０ｃに設けられる。気液分離器１６０ｃは、冷却器１５０ｃによって冷却されたガスおよび液体の水の混合物を気液分離する。

[0044] 温度調整部１７０は、反応装置１１０の反応器２１０の温度を所定の反応温度範囲に維持する。反応温度範囲は、水素と二酸化炭素の合成反応が効率よく進行する温度の範囲であり、触媒２２０の劣化を抑制可能な温度の範囲である。反応温度範囲は、例えば、２００℃以上５５０℃以下であり、好ましくは、３００℃以上５００℃以下である。

[0045] 温度調整部１７０は、例えば、第１反応器２１０ａの熱媒容器２１２、第２反応器２１０ｂの熱媒容器２１２、および、第３反応器２１０ｃの熱媒容器２１２に、所定の温度の熱媒体を循環させる。温度調整部１７０は、例えば、循環路１７２と、ポンプ１７４と、加熱冷却部１７６とを含む。循環路１７２は、熱媒体が循環する流路である。循環路１７２には、ポンプ１７４、加熱冷却部１７６、第１反応器２１０ａの熱媒容器２１２、第２反応器２１０ｂの熱媒容器２１２、第３反応器２１０ｃの熱媒容器２１２がこの順で設けられる。ポンプ１７４の吸入側は、第３反応器２１０ｃの熱媒容器２１２に接続される。ポンプ１７４の吐出側は、加熱冷却部１７６に接続される。ポンプ１７４が動作されると、熱媒体は、循環路１７２を循環する。加熱冷却部１７６は、熱媒体を加熱または冷却する。

[0046] 中央制御部１８０は、ＣＰＵ（中央処理装置）を含む半導体集積回路で構成される。中央制御部１８０は、ＲＯＭからＣＰＵを動作させるためのプログラムやパラメータ等を読み出す。中央制御部１８０は、ワークエリアとしてのＲＡＭや他の電子回路と協働して炭化水素製造装置１００全体を管理および制御する。

[0047] 本実施形態において、中央制御部１８０は、温度調整部１７０を制御して

、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃに熱媒体を循環させる。また、中央制御部１８０は、水素供給部１２０を制御して、所定量の水素を反応装置１１０に供給する。中央制御部１８０は、二酸化炭素供給部１３０を制御して、所定量の二酸化炭素を反応装置１１０に供給する。

[0048] また、中央制御部１８０は、例えば、流量制御部１８２として機能する。流量制御部１８２は、例えば、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３の検出値に基づいて、二酸化炭素供給部１３０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される二酸化炭素の流量を制御する。本実施形態において、流量制御部１８２は、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃそれぞれの開度を調整することにより、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれに供給される二酸化炭素の流量を制御する。

[0049] 本実施形態において、流量制御部１８２は、温度センサＴ１の検出値（第１反応器２１０ａの温度）、温度センサＴ２の検出値（第２反応器２１０ｂの温度）、および、温度センサＴ３の検出値（第３反応器２１０ｃの温度）すべてが、上記の反応温度範囲、例えば、２００℃以上５５０℃以下となるように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃそれぞれの開度を調整する。例えば、温度センサＴ１の検出値（第１反応器２１０ａの温度）が反応温度範囲よりも高い場合、流量制御部１８２は、流量調整弁１３８ａの開度を小さくする。また、例えば、温度センサＴ１の検出値（第１反応器２１０ａの温度）が反応温度範囲よりも低い場合、流量制御部１８２は、流量調整弁１３８ａの開度を大きくする。

[0050] 以上説明したように、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃと、第１反応器２１０ａに水素を供給する水素供給部１２０と、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃに二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部１３０とを備える。

[0051] 最前段の第１反応器２１０ａにのみ水素および二酸化炭素を供給する従来技術では、第１反応器２１０ａにおいて、発熱反応が急激に進行し、第１反応器２１０ａの温度が上昇しすぎてしまう。このため、従来技術では、第１反応器２１０ａの触媒２２０が熱によって劣化してしまうという問題がある。

[0052] これに対し、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、複数の反応器２１０それぞれに、二酸化炭素を分割して供給するため、第１反応器２１０ａにおいて発熱反応の急激な進行を抑制することができ、第１反応器２１０ａの温度が上昇しすぎてしまう事態を回避することが可能となる。これにより、炭化水素製造装置１００は、反応装置１１０内を適切な温度とすることができる。したがって、炭化水素製造装置１００は、反応装置１１０内の触媒２２０の熱による劣化を防止することが可能となる。

[0053] また、最前段の第１反応器２１０ａにのみ二酸化炭素を供給し、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃに、水素を分割して供給する比較技術とすることも考えられる。しかし、比較技術では、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００と比較して、第１反応器２１０ａに供給される二酸化炭素量が多くなる。そうすると、二酸化炭素によって、第１反応器２１０ａの触媒２２０が酸化劣化してしまうという問題がある。

[0054] これに対し、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、最前段の第１反応器２１０ａにのみ水素を供給し、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃに、二酸化炭素を分割して供給するため、比較技術よりも第１反応器２１０ａに供給される二酸化炭素量を少なくすることができる。また、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、比較技術よりも第１反応器２１０ａに供給される水素量を多くすることができる。これにより、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａの触媒２２０が酸化劣化してしまう事態を回避することが可能となる。

[0055] また、上記式（１）～式（４）に示すように、水素および二酸化炭素から炭化水素への合成反応において、水素のモル数（流量）は、二酸化炭素より

も多い量論比である。このため、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、相対的に流量の少ない二酸化炭素を分割して各反応器２１０に供給し、各反応器２１０に供給する二酸化炭素の流量を調整することにより、各反応器２１０の温度制御を容易に行うことができる。また、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、相対的に流量の多い水素全量を第１反応器２１０ａに供給するため、第１反応器２１０ａにおいて、反応に寄与しないガス量を比較技術よりも多くすることができる。これにより、本実施形態に係る炭化水素製造装置１００は、反応に寄与しないガスによる反応熱の上昇を、比較技術よりも抑制することが可能となる。

[0056] また、上記のように、流量制御部１８２は、反応装置１１０に収容された触媒２２０の温度に基づいて、二酸化炭素の流量を制御する。これにより、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａの温度、第２反応器２１０ｂの温度、および、第３反応器２１０ｃの温度すべてを反応温度範囲とすることができる。したがって、炭化水素製造装置１００は、起動時間の短縮、触媒２２０のさらなる熱劣化の防止、炭化水素の製造効率低下の防止を行うことができる。

[0057] 具体的に説明すると、炭化水素製造装置１００を起動する起動処理において、例えば、流量制御部１８２は、水素供給部１２０から第１反応器２１０ａに供給される水素と、二酸化炭素供給部１３０から第１反応器２１０ａに供給される二酸化炭素との量論比が上記式（１）を満たすように、流量調整弁１３８ａの開度を調整する。また、流量制御部１８２は、第１反応器２１０ａから第２反応器２１０ｂに供給される残りの水素と、二酸化炭素供給部１３０から第２反応器２１０ｂに供給される二酸化炭素との量論比が上記式（１）を満たすように、流量調整弁１３８ｂの開度を調整する。また、流量制御部１８２は、第２反応器２１０ｂから第３反応器２１０ｃに供給される残りの水素と、二酸化炭素供給部１３０から第３反応器２１０ｃに供給される二酸化炭素との量論比が上記式（１）を満たすように、流量調整弁１３８ｃの開度を調整する。

[0058] このように、流量制御部１８２が、起動処理において、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃそれぞれに対し、量論比となるように二酸化炭素を供給することにより、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃにおいて、上記式（１）に示す発熱反応を効率よく進行させることができる。したがって、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃを速やかに昇温させることができる。

[0059] 一方、第１反応器２１０ａにのみ二酸化炭素を供給する従来技術では、第２反応器２１０ｂおよび第３反応器２１０ｃにおいて、上記式（１）に示す発熱反応が、第１反応器２１０ａよりも進行せず、第１反応器２１０ａと比較して、第２反応器２１０ｂおよび第３反応器２１０ｃの昇温速度が低くなってしまう。このため、第１反応器２１０ａにのみ二酸化炭素を供給する従来技術では、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃの起動時間が長時間化するという問題がある。

[0060] これに対し、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃを速やかに昇温させることができるため、従来技術と比較して、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃの起動時間を短縮することが可能となる。また、炭化水素製造装置１００は、第２反応器２１０ｂおよび第３反応器２１０ｃを加熱する起動用の加熱機構が不要となり、装置全体のコストを削減することが可能となる。

[0061] また、炭化水素製造装置１００を通常運転する通常運転処理において、例えば、流量制御部１８２は、水素供給部１２０から第１反応器２１０ａに供給される水素と、二酸化炭素供給部１３０から第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃに供給される二酸化炭素の合計との量論比が上記式（１）を満たすように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃの開度を調整する。また、例えば、流量制御部１８２は、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃの順で、二酸化炭素の供給

量が多くなるように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃの開度を調整する。

[0062] 例えば、流量制御部１８２は、二酸化炭素供給部１３０から第１反応器２１０ａに供給される二酸化炭素が、二酸化炭素供給部１３０から第２反応器２１０ｂに供給される二酸化炭素よりも少なくなるように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂの開度を調整する。また、例えば、流量制御部１８２は、二酸化炭素供給部１３０から第２反応器２１０ｂに供給される二酸化炭素が、二酸化炭素供給部１３０から第３反応器２１０ｃに供給される二酸化炭素よりも少なくなるように、流量調整弁１３８ｂ、１３８ｃの開度を調整する。

[0063] これにより、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂには、量論比より少ない二酸化炭素が供給される。したがって、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂにおいて、上記式（１）に示す合成反応の急激な進行を防止することができる。上記のように、式（１）に示す合成反応は発熱反応であるため、式（１）に示す合成反応の急激な進行を防止することにより、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂにおいて温度が上昇しすぎてしまう事態を回避することが可能となる。したがって、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂにおいて触媒２２０が熱で劣化してしまう事態を回避することができる。また、炭化水素製造装置１００は、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂを冷却するため専用の冷却機構が不要となり、装置全体のコストを削減することが可能となる。

[0064] また、水素の供給源が、太陽光発電等の再生可能エネルギーによって水の電気分解を行う水電解装置である場合、水素供給部１２０による水素の供給量が変動することがある。この場合、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃのうちのいずれか１または複数の反応器２１０が、反応温度範囲未満となってしまうおそれがある。また、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃを循環する熱媒体の温度が急激に変動したり、熱媒体が偏流したりする場合がある。こ

の場合も、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃのうちのいずれか１または複数の反応器２１０が、反応温度範囲未満となってしまうおそれがある。

[0065] そこで、水素の供給量が変動したり、熱媒体が不具合を起こしたりする負荷変動処理において、例えば、流量制御部１８２は、触媒２２０の温度が反応温度範囲未満となった反応器２１０への二酸化炭素の供給量を増加させるように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃの開度を調整する。これにより、炭化水素製造装置１００は、触媒２２０の温度が反応温度範囲未満となった反応器２１０の温度を上昇させることができる。したがって、炭化水素製造装置１００は、温度低下による炭化水素の製造効率の低下を防止することが可能となる。

[0066] また、上記のように、反応装置１１０において、入口２３０ａと、入口２３０ａとの距離が最短である供給口２３０ｂとの間の距離は、供給口２３０ｂと供給口２３０ｃとの間の距離よりも短くてもよい。すなわち、反応装置１１０において、供給口２３０ｂと供給口２３０ｃとの間の距離は、入口２３０ａと、入口２３０ａとの距離が最短である供給口２３０ｂとの間の距離よりも長くてもよい。つまり、第２反応器２１０ｂの反応管２１４の長さは、第１反応器２１０ａよりも長くてもよい。これにより、第２反応器２１０ｂにおけるガスの滞留時間を第１反応器２１０ａよりも長くすることができる。したがって、第２反応器２１０ｂにおける二酸化炭素の転化率を向上させることが可能となる。なお、二酸化炭素の転化率とは、二酸化炭素が炭化水素に転化する割合である。

[0067] また、上記のように、反応装置１１０において、出口２３２ｃと、出口２３２ｃとの距離が最短である供給口２３０ｃとの間の距離は、供給口２３０ｂと供給口２３０ｃの間の距離よりも長くてもよい。つまり、第３反応器２１０ｃの反応管２１４の長さは、第２反応器２１０ｂよりも長くてもよい。これにより、第３反応器２１０ｃにおけるガスの滞留時間を第２反応器２１０ｂよりも長くすることができる。したがって、第３反応器２１０ｃにおけ

る二酸化炭素の転化率を向上させることが可能となる。

[0068] また、上記のように、炭化水素製造装置１００は、冷却器１５０を備える。上記の式（１）～式（４）の合成反応は、発熱反応であるため、低温の方が高温よりも反応が進行しやすい（二酸化炭素の転化率が高くなる）。したがって、炭化水素製造装置１００は、冷却器１５０を備えることにより、第２反応器２１０ｂおよび第３反応器２１０ｃにおいて、上記の式（１）～式（４）の合成反応の進行をさらに促進させることが可能となる。

[0069] また、上記のように、炭化水素製造装置１００は、気液分離器１６０を備える。上記の式（１）～式（４）の合成反応では、水が生成される。このため、平衡の関係から、生成ガスから水を除去することにより、二酸化炭素の転化率を高くすることができる。したがって、炭化水素製造装置１００は、気液分離器１６０を備えることにより、第２反応器２１０ｂおよび第３反応器２１０ｃにおいて、上記の式（１）～式（４）の合成反応の進行をさらに促進させることが可能となる。

[0070] ［第２の実施形態：炭化水素製造装置３００］

図２は、第２の実施形態に係る炭化水素製造装置３００を説明する図である。図２に示すように、第２の実施形態に係る炭化水素製造装置３００は、反応装置１１０と、水素供給部１２０と、二酸化炭素供給部１３０と、水素供給部３４０と、冷却器１５０と、気液分離器１６０と、温度調整部１７０と、中央制御部３８０とを含む。図２において、実線の矢印は、水素（ガス）、二酸化炭素（ガス）、炭化水素（ガス）、および、水（ガスおよび液体）の流れを示す。また、図２において、破線の矢印は、熱媒体の流れを示す。なお、上記炭化水素製造装置３００と実質的に等しい構成要素については、同一の符号を付して説明を省略する。

[0071] 水素供給部３４０（第２水素供給部）は、反応装置１１０の供給口２３０ｂ、２３０ｃを通じて反応装置１１０内に水素を供給する。つまり、水素供給部３４０は、第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂを通じて、第２反応器２１０ｂ内に水素を供給し、第３反応器２１０ｃの供給口２３０ｂを通じて

、第３反応器２１０ｃ内に水素を供給する。

[0072] 水素供給部３４０は、例えば、ブロワ３４２と、水素供給管３４４と、分岐管３４６ｂ、３４６ｃと、流量調整弁３４８ｂ、３４８ｃとを含む。ブロワ３４２の吸入側は、水素の供給源に接続される。ブロワ３４２の吐出側は、水素供給管３４４に接続される。

[0073] 分岐管３４６ｂは、水素供給管３４４と配管２４０ａとを接続する。ブロワ３４２から吐出された水素は、水素供給管３４４、分岐管３４６ｂ、配管２４０ａ、反応装置１１０の第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂを通じて、第２反応器２１０ｂに供給される。

[0074] 分岐管３４６ｃは、水素供給管３４４と配管２４０ｂとを接続する。ブロワ３４２から吐出された水素は、水素供給管３４４、分岐管３４６ｃ、配管２４０ｂ、反応装置１１０の第３反応器２１０ｃの供給口２３０ｃを通じて、第３反応器２１０ｃに供給される。

[0075] 流量調整弁３４８ｂは、分岐管３４６ｂに設けられる。流量調整弁３４８ｂは、分岐管３４６ｂに形成される流路の開度を調整する。流量調整弁３４８ｃは、分岐管３４６ｃに設けられる。流量調整弁３４８ｃは、分岐管３４６ｃに形成される流路の開度を調整する。流量調整弁３４８ｂ、３４８ｃは、後述する流量制御部３８２によって開度が調整される。

[0076] 中央制御部３８０は、ＣＰＵ（中央処理装置）を含む半導体集積回路で構成される。中央制御部３８０は、ＲＯＭからＣＰＵを動作させるためのプログラムやパラメータ等を読み出す。中央制御部３８０は、ワークエリアとしてのＲＡＭや他の電子回路と協働して炭化水素製造装置３００全体を管理および制御する。

[0077] 本実施形態において、中央制御部３８０は、上記第１の実施形態と同様に、温度調整部１７０を制御して、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃに熱媒体を循環させる。また、中央制御部３８０は、水素供給部１２０を制御して、所定量の水素を反応装置１１０に供給する。中央制御部３８０は、二酸化炭素供給部１３０を制御して、所定量の二酸化

炭素を反応装置１１０に供給する。

[0078] また、中央制御部３８０は、例えば、流量制御部３８２として機能する。流量制御部３８２は、例えば、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３の検出値に基づいて、二酸化炭素供給部１３０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される二酸化炭素の流量、および、水素供給部３４０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される水素の流量を制御する。本実施形態において、流量制御部３８２は、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃ、３４８ｂ、３４８ｃそれぞれの開度を調整することにより、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれに供給される、二酸化炭素の流量および水素の流量を制御する。

[0079] 本実施形態において、流量制御部３８２は、温度センサＴ１の検出値（第１反応器２１０ａの温度）、温度センサＴ２の検出値（第２反応器２１０ｂの温度）、および、温度センサＴ３の検出値（第３反応器２１０ｃの温度）すべてが、反応温度範囲となるように、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃ、３４８ｂ、３４８ｃそれぞれの開度を調整する。

[0080] 以上説明したように、本実施形態に係る炭化水素製造装置３００は、二酸化炭素供給部１３０に加えて、水素供給部３４０を備え、流量制御部３８２が、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３の検出値に基づいて、二酸化炭素供給部１３０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される二酸化炭素の流量、および、水素供給部３４０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される水素の流量を制御する。

[0081] これにより、本実施形態に係る炭化水素製造装置３００は、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、および、第３反応器２１０ｃの温度をより高精度に制御することが可能となる。

[0082] ［変形例：炭化水素製造装置４００］

上記第１の実施形態において、反応装置１１０が複数の反応器２１０を備

える場合を例に挙げた。しかし、反応装置１１０は、１の反応器のみを備えてもよい。

[0083] 図３は、変形例に係る炭化水素製造装置４００を説明する図である。図３に示すように、変形例に係る炭化水素製造装置４００は、反応装置４１０と、水素供給部１２０と、二酸化炭素供給部１３０と、冷却器１５０と、気液分離器１６０と、温度調整部１７０と、中央制御部１８０とを含む。図３において、実線の矢印は、水素（ガス）、二酸化炭素（ガス）、炭化水素（ガス）、および、水（ガスおよび液体）の流れを示す。なお、上記炭化水素製造装置１００と実質的に等しい構成要素については、同一の符号を付して説明を省略する。

[0084] 本実施形態において、反応装置４１０は、１つの反応器４２０と、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３とを含む。

[0085] 反応器４２０は、例えば、断熱反応器である。反応器４２０には、入口２３０ａと、供給口２３０ｂ、２３０ｂと、出口２３２ｃとがこの順で設けられる。また、上記第１の実施形態と同様に、反応器４２０には、触媒２２０が収容される。

[0086] 変形例において、温度センサＴ１は、反応器４２０における入口２３０ａと供給口２３０ｂとの間に収容された触媒層の温度を検知する。温度センサＴ２は、反応器４２０における供給口２３０ｂと供給口２３０ｃとの間に収容された触媒層の温度を検知する。温度センサＴ３は、反応器４２０における供給口２３０ｃと出口２３２ｃとの間に収容された触媒層の温度を検知する。

[0087] 変形例に係る炭化水素製造装置４００においても、入口２３０ａ、および、供給口２３０ｂ、２３０ｃそれぞれに、二酸化炭素を分割して供給するため、反応器４２０において発熱反応の急激な進行を抑制することができ、反応器４２０において温度が上昇しすぎてしまう事態を回避することが可能となる。これにより、炭化水素製造装置４００は、反応装置４１０内を適切な温度とすることができる。したがって、炭化水素製造装置４００は、反応装

置４１０内の触媒２２０の熱による劣化を防止することが可能となる。

[0088] ［実施例］

実施例として、第１反応器２１０ａおよび第２反応器２１０ｂを備える反応装置１１０を用いてメタンを製造した場合の、触媒層の温度および二酸化炭素の転化率をシミュレーションした。実施例では、第１反応器２１０ａの入口２３０ａから水素および二酸化炭素を供給し、第２反応器２１０ｂの供給口２３０ｂから二酸化炭素を供給するとした。また、実施例では、入口２３０ａから供給される水素（モル）：入口２３０ａおよび供給口２３０ｂから供給される二酸化炭素の合計（モル）が４：１である場合についてシミュレーションした。なお、入口２３０ａから供給される二酸化炭素：供給口２３０ｂから供給される二酸化炭素が３０：７０である場合についてシミュレーションした。

[0089] 比較例として、供給口を備えず、入口２３０ａおよび出口２３２ｃのみを備える１つの反応器を用いてメタンを製造した場合の、触媒層の温度および二酸化炭素の転化率をシミュレーションした。比較例では、入口２３０ａから水素および二酸化炭素を供給するとした。また、比較例では、水素（モル）：二酸化炭素（モル）が４：１である場合についてシミュレーションした。

[0090] 図４は、比較例のシミュレーション結果を示すグラフである。図５は、実施例における第１反応器２１０ａのシミュレーション結果を示すグラフである。図６は、実施例における第２反応器２１０ｂのシミュレーション結果を示すグラフである。なお、図４～図６において、左側の縦軸は、温度［℃］を示し、右側の縦軸は、二酸化炭素の転化率を示す。また、図４～図６において、実線は、触媒層の温度を示し、破線は、二酸化炭素の転化率を示す。

[0091] 図４に示すように、比較例では、触媒層の温度が７００℃程度まで上昇することが確認された。このため、比較例では、触媒層が熱で劣化してしまうことが分かった。

[0092] 一方、図５に示すように、実施例では、第１反応器２１０ａにおいて、触

媒層の温度が４３０℃程度までしか上昇しないことが確認された。また、図６に示すように、実施例では、第２反応器２１０ｂにおいて、触媒層の温度が４８０℃程度までしか上昇しないことが確認された。このため、実施例では、触媒層の熱による劣化を抑制できることが分かった。

[0093] また、図６に示すように、実施例では、第２反応器２１０ｂにおける二酸化炭素の転化率が、比較例と同程度であることが確認された。これにより、実施例では、触媒層の熱による劣化を抑制しつつ、効率よく二酸化炭素をメタンに転化できることが分かった。

[0094] 以上、添付図面を参照しながら実施形態について説明したが、本開示は上記実施形態に限定されないことは言うまでもない。当業者であれば、特許請求の範囲に記載された範疇において、各種の変更例または修正例に想到し得ることは明らかであり、それらについても当然に本開示の技術的範囲に属するものと了解される。

[0095] 例えば、上記第１、第２の実施形態において、炭化水素製造装置１００、３００が、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３を備え、流量制御部１８２、３８２が温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３の検出値に基づいて、二酸化炭素供給部１３０によって、第１反応器２１０ａ、第２反応器２１０ｂ、第３反応器２１０ｃそれぞれ供給される二酸化炭素の流量を制御する場合を例に挙げた。しかし、炭化水素製造装置１００、３００は、温度センサＴ１、Ｔ２、Ｔ３を備えずともよい。この場合、炭化水素製造装置１００、３００の不図示のメモリは、シミュレーション等によって予め設定された、第１反応器２１０ａへの二酸化炭素の供給量と第１反応器２１０ａの触媒層の温度との関係を示す情報、第２反応器２１０ｂへの二酸化炭素の供給量と第２反応器２１０ｂの触媒層の温度との関係を示す情報、第３反応器２１０ｃへの二酸化炭素の供給量と第３反応器２１０ｃの触媒層の温度との関係を示す情報を記憶しておく。そして、流量制御部１８２、３８２は、メモリに保持された、第１反応器２１０ａへの二酸化炭素の供給量と第１反応器２１０ａの触媒層の温度との関係を示す情報を参照し、第１反応器２１０ａの触媒層が反応温度範囲と

なるように、流量調整弁１３８ａの開度を調整する。同様に、流量制御部１８２、３８２は、メモリに保持された、第２反応器２１０ｂへの二酸化炭素の供給量と第２反応器２１０ｂの触媒層の温度との関係を示す情報を参照し、第２反応器２１０ｂの触媒層が反応温度範囲となるように、流量調整弁１３８ｂの開度を調整する。また、流量制御部１８２、３８２は、メモリに保持された、第３反応器２１０ｃへの二酸化炭素の供給量と第３反応器２１０ｃの触媒層の温度との関係を示す情報を参照し、第３反応器２１０ｃの触媒層が反応温度範囲となるように、流量調整弁１３８ｃの開度を調整する。

[0096] また、流量制御部１８２、３８２は、配管２４０ｃから排出された生成ガスに含まれる炭化水素の濃度に基づいて、二酸化炭素供給部１３０によって供給される二酸化炭素の流量を制御してもよい。つまり、流量制御部１８２、３８２は、配管２４０ｃから排出された生成ガスに含まれる炭化水素の濃度に基づいて、流量調整弁１３８ａ、１３８ｂ、１３８ｃの開度を調整してもよい。これにより、反応装置１１０内を適切な温度とすることができる。

[0097] また、流量制御部１８２、３８２は、二酸化炭素の流量を制御して、反応装置１１０に収容された触媒層の温度を制御してもよい。

[0098] また、上記第１、第２の実施形態において、炭化水素製造装置１００、３００の反応装置１１０が、２つの供給口２３０ｂ、２３０ｃを有する場合を例に挙げた。しかし、反応装置１１０は、１つの供給口を有していてもよいし、３つ以上の供給口を有していてもよい。また、反応装置１１０が、供給口を１つ有する場合、入口と、入口との距離が最短である供給口との間の距離は、出口と、出口との距離が最短である供給口との間の距離よりも短くてもよい。また、反応装置１１０が、供給口を３つ以上有する場合、隣り合う供給口の間の距離は、入口２３０ａ側から出口２３２ｃ側に向かうに従って長くなってもよい。例えば、後段に向かうに従って、反応管２１４の長さを長くしてもよい。これにより、入口２３０ａから出口に２３２ｃに向かうに従って、ガスの滞留時間を長くすることができ、二酸化炭素の転化率を向上させることが可能となる。

[0099] また、上記第１、第２の実施形態において、炭化水素製造装置１００、３００が冷却器１５０ａ、１５０ｂ、１５０ｃを備える場合を例に挙げた。しかし、炭化水素製造装置１００、３００は、冷却器１５０ａ、１５０ｂ、１５０ｃのうちの少なくとも１つの冷却器１５０を備えていればよい。また、炭化水素製造装置１００、３００は、冷却器１５０を備えずともよい。

[0100] 同様に、上記第１、第２の実施形態において、炭化水素製造装置１００、３００が気液分離器１６０ａ、１６０ｂ、１６０ｃを備える場合を例に挙げた。しかし、炭化水素製造装置１００、３００は、気液分離器１６０ａ、１６０ｂ、１６０ｃのうちの少なくとも１つの気液分離器１６０を備えていればよい。また、炭化水素製造装置１００、３００は、気液分離器１６０を備えずともよい。

[0101] また、上記第１、第２の実施形態において、反応器２１０が多管式・熱交換型の反応器である場合を例に挙げた。しかし、反応器２１０は、断熱反応器であってもよい。また、上記変形例において、反応器４２０が断熱反応器である場合を例に挙げた。しかし、反応器４２０は、多管式・熱交換型の反応器であってもよい。

[0102] また、上記第１、第２の実施形態において、反応装置１１０に供給するガスを二酸化炭素から一酸化炭素に置き換えてもよい。触媒による発熱反応において、一酸化炭素は、二酸化炭素よりも水素との反応性が良く、起動処理において反応装置１１０の昇温を速やかに行うことができる。したがって、反応装置１１０に供給するガスを二酸化炭素から一酸化炭素に置き換えることにより、起動時間をさらに短縮することができる。

[0103] また、上記第１、第２の実施形態において、水素および二酸化炭素に加えて一酸化炭素を反応装置１１０に供給してもよい。上記のように、触媒による発熱反応において、一酸化炭素は、二酸化炭素よりも水素との反応性が良く、起動処理において反応装置１１０の昇温を速やかに行うことができる。このため、起動処理において、一酸化炭素を主に反応装置１１０に供給し、反応装置１１０の昇温後に二酸化炭素を供給することで、二酸化炭素を安定

して継続的に反応させることが可能となる。

[0104] さらに、上記の複数の反応器２１０それぞれに対し、水素に加えて、二酸化炭素および一酸化炭素の組み合わせが異なるガス（二酸化炭素のみ、一酸化炭素のみ、二酸化炭素と一酸化炭素との混合ガス）を供給してもよい。この場合、それぞれの反応器２１０の昇温状態などに応じて、所望の昇温速度を得ることが可能であり、効率的な反応器２１０の運用が可能となる。

[0105] なお、反応装置１１０に水素および一酸化炭素を供給する場合、反応装置１１０では、水素と一酸化炭素の合成反応が行われ、炭化水素が製造される。水素と一酸化炭素の合成反応は、発熱反応である。水素と一酸化炭素の合成反応は、例えば、下記式（５）～式（８）に示される反応である。

$3H_2 + CO \rightarrow CH_4 + H_2O$ …式（５）

$4H_2 + 2CO \rightarrow C_2H_4 + 2H_2O$ …式（６）

$6H_2 + 3CO \rightarrow C_3H_6 + 3H_2O$ …式（７）

$mH_2 + nCO \rightarrow$ 炭化水素 $+ nH_2O$ …式（８）

[0106] 本開示は、例えば、持続可能な開発目標（ＳＤＧｓ）の目標７「手ごろで信頼でき、持続可能かつ近代的なエネルギーへのアクセスを確保する」、および、目標１３「気候変動とその影響に立ち向かうため、緊急対策を取る」に貢献することができる。

符号の説明

[0107] １００：炭化水素製造装置　１１０：反応装置　１２０：水素供給部　１３０：二酸化炭素供給部　１５０：冷却器　１５０ａ：冷却器　１５０ｂ：冷却器　１８２：流量制御部　２１０：反応器　２１０ａ：第１反応器　２１０ｂ：第２反応器　２１０ｃ：第３反応器　２２０：触媒　２３０ａ：入口　２３０ｂ：供給口　２３０ｃ：供給口　２３２ａ：排出口　２３２ｂ：排出口　２３２ｃ：出口　３００：炭化水素製造装置　３４０：水素供給部　３８２：流量制御部　４００：炭化水素製造装置　４１０：反応装置　４２０：反応器

請求の範囲

[請求項1] 入口と、出口と、前記入口と前記出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素と二酸化炭素との発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、

前記反応装置の前記入口を通じて前記反応装置内に前記水素を供給する第１水素供給部と、

前記反応装置の前記入口および前記供給口を通じて前記反応装置内に前記二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部と、

を備える、炭化水素製造装置。

[請求項2] 前記二酸化炭素供給部によって供給される前記二酸化炭素の流量を制御する流量制御部を備える、請求項１に記載の炭化水素製造装置。

[請求項3] 前記流量制御部は、前記反応装置に収容された前記触媒の温度に基づいて、前記二酸化炭素の流量を制御する、請求項２に記載の炭化水素製造装置。

[請求項4] 前記入口と、前記入口との距離が最短である前記供給口との間の距離は、前記出口と、前記出口との距離が最短である前記供給口との間の距離よりも短い、請求項１または２に記載の炭化水素製造装置。

[請求項5] 前記反応装置は、前記供給口を２つ以上有し、

前記入口と、前記入口との距離が最短である前記供給口との間の距離は、隣り合う前記供給口の間の距離よりも短く、

前記出口と、前記出口との距離が最短である前記供給口との間の距離は、隣り合う前記供給口の間の距離よりも長い、請求項４に記載の炭化水素製造装置。

[請求項6] 前記反応装置は、前記供給口を３つ以上有し、

隣り合う前記供給口の間の距離は、前記入口側から前記出口側に向かうに従って長くなる、請求項５に記載の炭化水素製造装置。

[請求項7] 前記反応装置は、直列に接続された複数の反応器を含み、

前記入口は、最前段の前記反応器に設けられ、

前記出口は、最後段の前記反応器に設けられる、請求項１または２に記載の炭化水素製造装置。

[請求項8] 前記複数の反応器のうちの少なくともいずれか１の前記反応器の排出口から排出されたガスを冷却する冷却器を備える、請求項７に記載の炭化水素製造装置。

[請求項9] 前記反応装置の前記供給口を通じて前記反応装置内に前記水素を供給する第２水素供給部を備える、請求項１または２に記載の炭化水素製造装置。

[請求項10] 入口と、出口と、前記入口と前記出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素と一酸化炭素との発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、

前記反応装置の前記入口を通じて前記反応装置内に前記水素を供給する第１水素供給部と、

前記反応装置の前記入口および前記供給口を通じて前記反応装置内に前記一酸化炭素を供給する一酸化炭素供給部と、

を備える、炭化水素製造装置。

[請求項11] 入口と、出口と、前記入口と前記出口との間に設けられた１または複数の供給口とを有し、水素、一酸化炭素、および、二酸化炭素の発熱反応を促進する触媒が収容された反応装置と、

前記反応装置の前記入口を通じて前記反応装置内に前記水素を供給する第１水素供給部と、

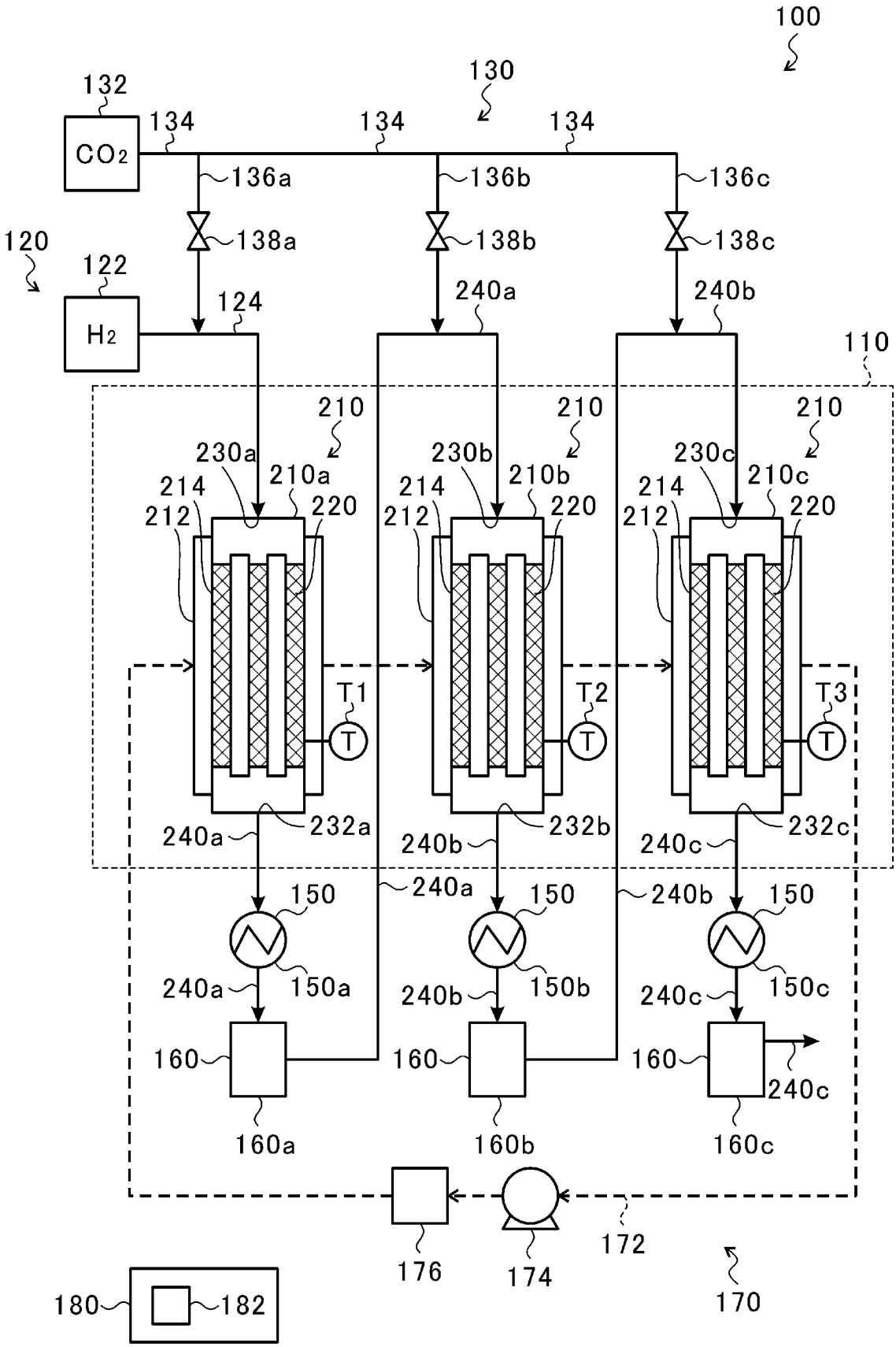
前記反応装置の前記入口および前記供給口を通じて前記反応装置内に前記一酸化炭素を供給する一酸化炭素供給部と、

前記反応装置の前記入口および前記供給口を通じて前記反応装置内に前記二酸化炭素を供給する二酸化炭素供給部と、

を備える、炭化水素製造装置。

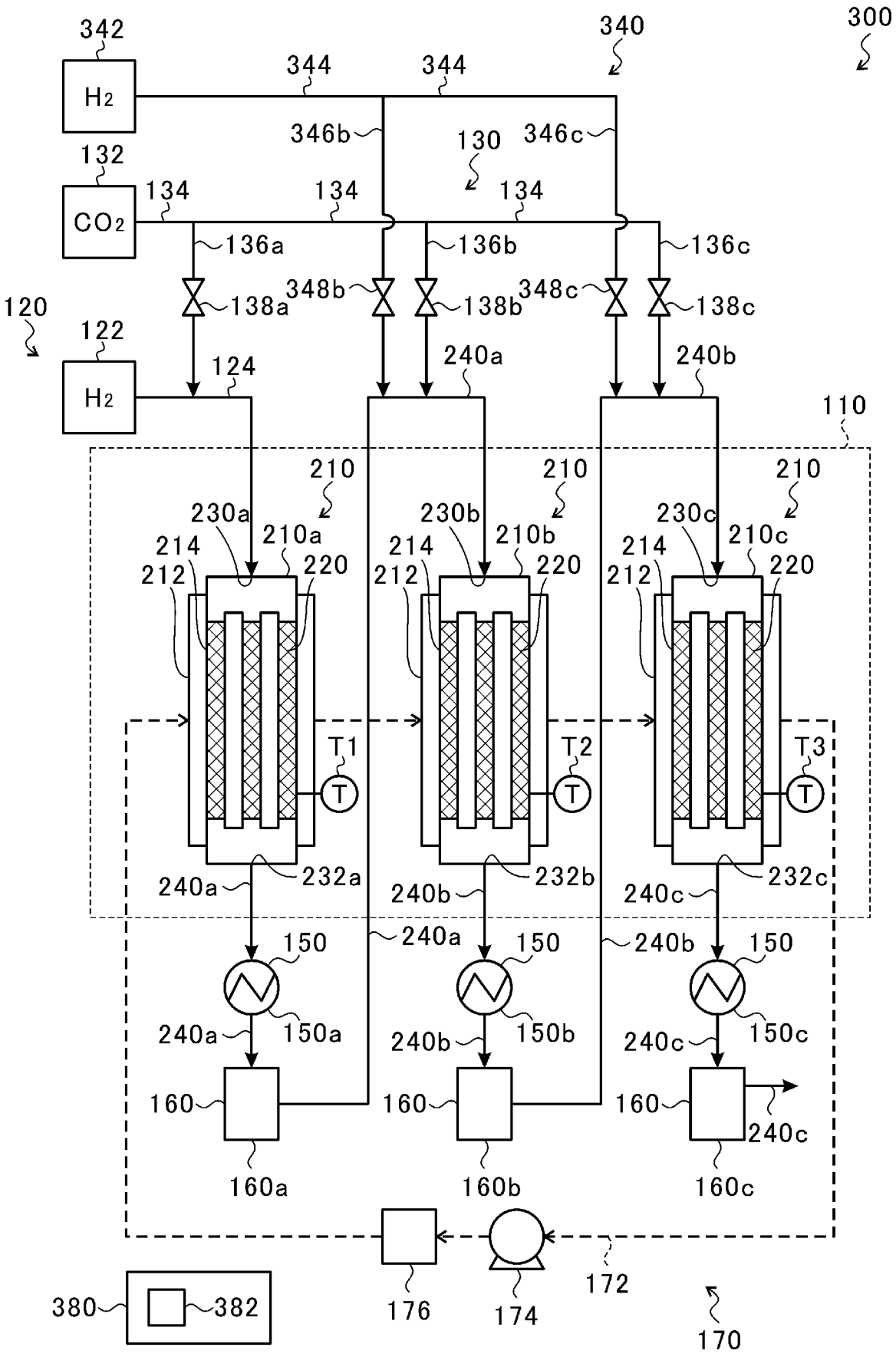
[図1]

Fig.1


100
130
132
134
134
134
CO2
136a
136b
136c
120
138a
138b
138c
122
124
240a
240b
H2
110
210
210
210
230a
230b
230c
210a
210b
210c
214
212
220
T1
T2
T3
T
232a
232b
232c
240a
240b
240c
150
150
150
240a
240b
240c
150a
150b
150c
160
160
160
240c
160a
160b
160c
176
174
172
170
180
182

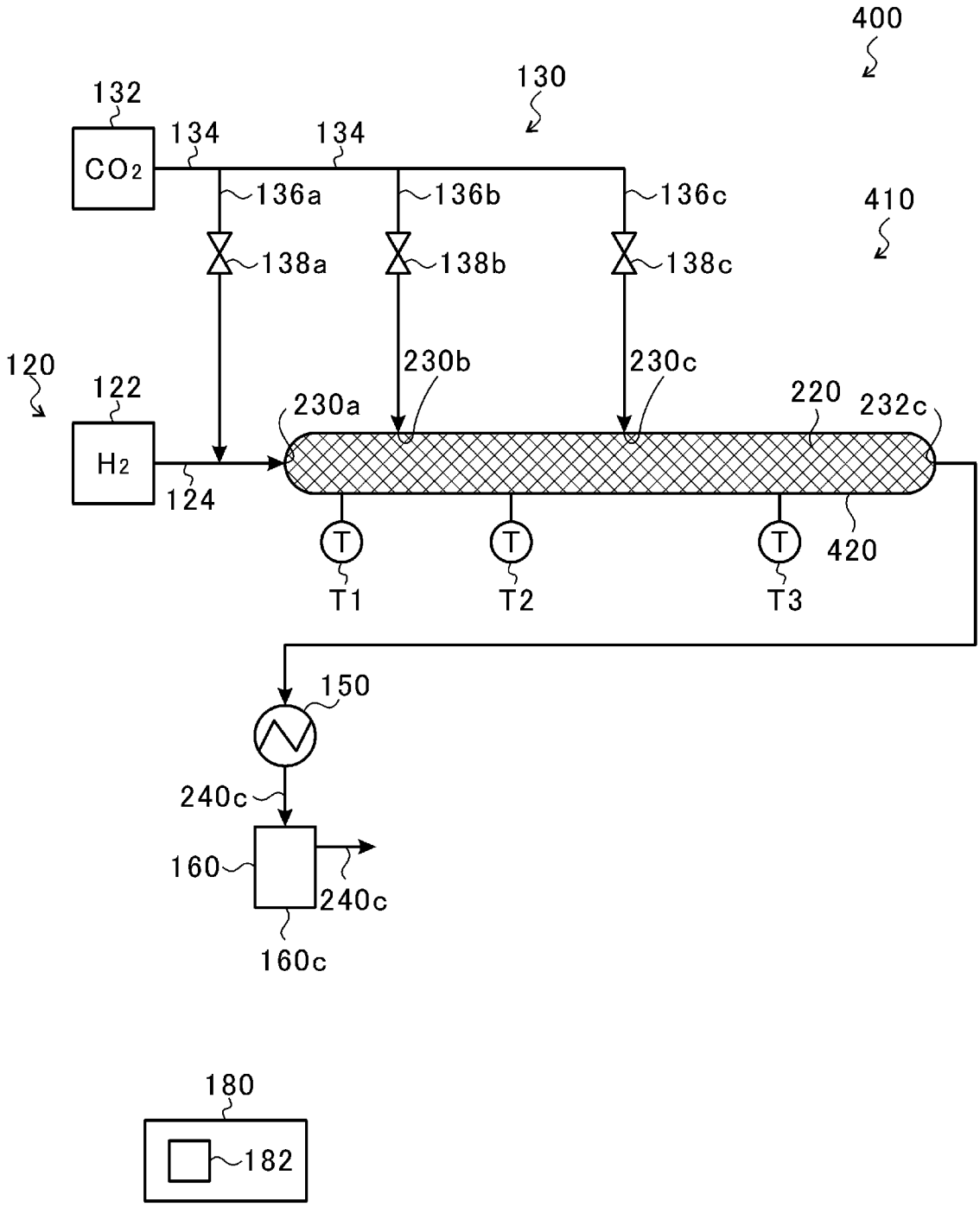
[図2]

Fig.2


342
H2
344
344
340
300
346b
130
346c
132
CO2
134
134
134
136a
136b
136c
348b
348c
138a
138b
138c
120
122
H2
124
240a
240b
110
210
210
210
230a
230b
230c
210a
210b
210c
214
212
220
T1
T2
T3
T
232a
232b
232c
240a
240b
240c
150
150
150
240a
240b
240c
150a
150b
150c
160
160
160
240c
160a
160b
160c
176
174
172
170
380
382

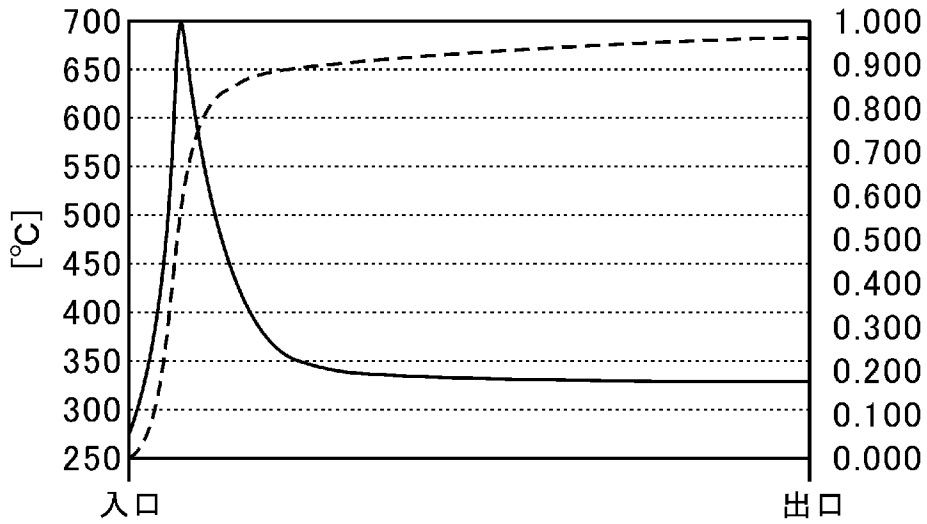
[図3]

Fig.3


400
130
132
134
134
CO2
136a
136b
136c
410
138a
138b
138c
120
122
230b
230c
220
232c
230a
H2
124
T
T1
T2
T3
420
150
240c
160
240c
160c
180
182

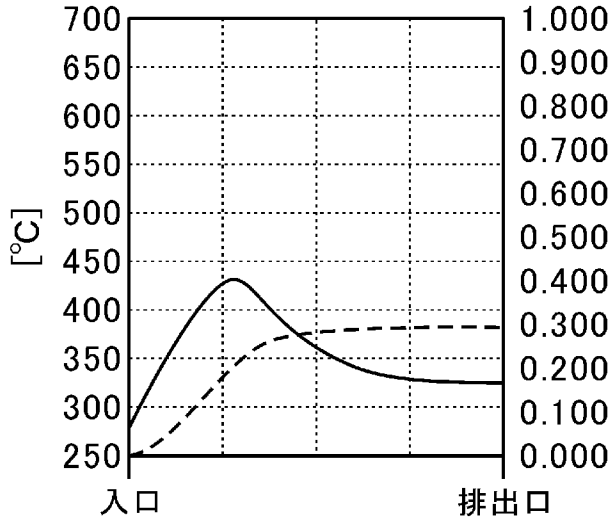
[図4]

Fig.4



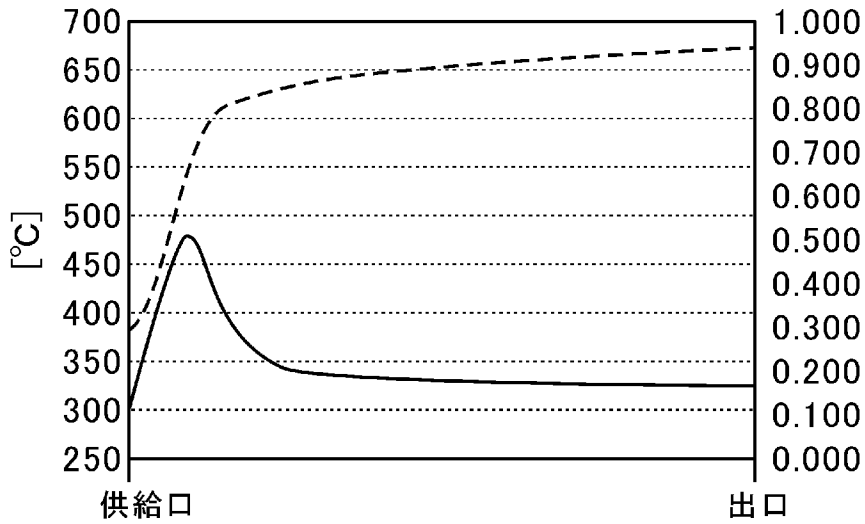
[図5]

Fig.5



[図6]

Fig.6



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/038631

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C 1/12(2006.01)i; ***C07C 1/04***(2006.01)i; ***C07C 9/04***(2006.01)i; ***C07C 11/04***(2006.01)i; ***C07C 11/06***(2006.01)i
FI: C07C1/12; C07C1/04; C07C9/04; C07C11/04; C07C11/06

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)

C07C1/12; C07C1/04; C07C9/04; C07C11/04; C07C11/06

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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2019-142808 A (KABUSHIKI KAISHA TOYOTA CHUO KENKYUSHO) 29 August 2019 (2019-08-29) claims (particularly claim 7), paragraphs [0018]-[0021], [0032]-[0034], [0044]-[0046], fig. 9	1-3, 7-9
Y		10, 11
A		4-6
Y	JP 2014-198789 A (OSAKA GAS CO., LTD.) 23 October 2014 (2014-10-23) claims	10
Y	JP 58-006303 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH GMBH) 13 January 1983 (1983-01-13) page 4, lower left column, line 1- bottom line	11
A	JP 2013-136538 A (HITACHI ZOSEN CORP.) 11 July 2013 (2013-07-11) entire text	1-11

☐ 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	Date of mailing of the international search report
20 November 2024	**03 December 2024**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/038631

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2019-142808 A	29 August 2019	(Family: none)	
JP 2014-198789 A	23 October 2014	(Family: none)	
JP 58-006303 A	13 January 1983	US 4431751 A column 3, line 62 - column 4, line 18 EP 0066258 A1	
JP 2013-136538 A	11 July 2013	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/038631

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C07C 1/12(2006.01)i; C07C 1/04(2006.01)i; C07C 9/04(2006.01)i; C07C 11/04(2006.01)i; C07C 11/06(2006.01)i
FI: C07C1/12; C07C1/04; C07C9/04; C07C11/04; C07C11/06

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））

C07C1/12; C07C1/04; C07C9/04; C07C11/04; C07C11/06

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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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	JP 2019-142808 A (株式会社豊田中央研究所) 29.08.2019 (2019-08-29) 特許請求の範囲(特に請求項7), [0018]-[0021], [0032]-[0034], [0044]-[0046], 図9	1-3,7-9
Y		10,11
A		4-6
Y	JP 2014-198789 A (大阪瓦斯株式会社) 23.10.2014 (2014-10-23) 特許請求の範囲	10
Y	JP 58-006303 A (ケルンフオルシユングスアンラーゲ・ユーリツヒ・ゲゼルシヤフト・ミト・ベシユレンクテル・ハフツング) 13.01.1983 (1983-01-13) 第4頁左下欄第1行目-最下行	11
A	JP 2013-136538 A (日立造船株式会社) 11.07.2013 (2013-07-11) 全文	1-11

☐ 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、一般的技術水準を示すもの
“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	国際調査報告の発送日
20.11.2024	03.12.2024

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）

一宮　里枝 4H 3441

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

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/JP2024/038631

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2019-142808 A	29.08.2019	（ファミリーなし）	
JP 2014-198789 A	23.10.2014	（ファミリーなし）	
JP 58-006303 A	13.01.1983	US 4431751 A 第3欄第62行目-第4欄第18行目 EP 0066258 A1	
JP 2013-136538 A	11.07.2013	（ファミリーなし）	