

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5089008号
(P5089008)

(45) 発行日 平成24年12月5日(2012.12.5)

(24) 登録日 平成24年9月21日(2012.9.21)

(51) Int.Cl.	F I	
B01J 8/06 (2006.01)	B01J 8/06	
C07B 61/00 (2006.01)	C07B 61/00	C
F28F 1/40 (2006.01)	F28F 1/40	G
F28F 13/08 (2006.01)	F28F 13/08	
F28F 13/12 (2006.01)	F28F 13/12	C

請求項の数 10 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2002-530192 (P2002-530192)	(73) 特許権者	590002105
(86) (22) 出願日	平成13年9月25日(2001.9.25)		シエル・インターナショナル・リサーチ・
(65) 公表番号	特表2004-509738 (P2004-509738A)		マートスハツペイ・ペー・ヴェー
(43) 公表日	平成16年4月2日(2004.4.2)		オランダ国、ザ・ハーグ・2596・ハー
(86) 国際出願番号	PCT/EP2001/011138		・エル、カレル・ファン・ビュランドトラ
(87) 国際公開番号	W02002/026370	(74) 代理人	100062007
(87) 国際公開日	平成14年4月4日(2002.4.4)		弁理士 川口 義雄
審査請求日	平成20年8月5日(2008.8.5)	(74) 代理人	100105131
(31) 優先権主張番号	00203362.9		弁理士 井上 満
(32) 優先日	平成12年9月26日(2000.9.26)	(74) 代理人	100113332
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		弁理士 一入 章夫
		(74) 代理人	100114188
			弁理士 小野 誠

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 反応管におけるロッド状インサート

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

多管状反応システム内で流体反応混合物を触媒反応させて流体生成物を形成するプロセスであって、固体微粒子触媒塊を含み且つ熱交換流体によって取り囲まれる少なくとも1つの反応管を通じて反応混合物を案内するとともに、反応管の上流部分が反応混合物の前加熱専用であり、および/または、反応管の下流側部分が生成物の後冷却専用であるプロセスにおいて、反応管の前記上流側部分および/または下流側部分は、熱交換するロッド状のインサートを有し、このインサートは、反応管の全長の1から20%の長さを有していることを特徴とする、プロセス。

【請求項 2】

反応混合物がエチレンおよび酸素から成り、生成物がエチレンオキシドから成ることを特徴とする、請求項 1 に記載のプロセス。

【請求項 3】

インサートは、反応管の全長の1から5%の長さを有していることを特徴とする、請求項 1 または 2 に記載のプロセス。

【請求項 4】

インサートの熱伝達率は、内側の管表面積に基づいて、800から4000 Wm⁻² K⁻¹の範囲であり、インサートによって占められる管の部位に沿う圧力降下は、空の管の寸法および表面速度に基づき、10000から50000の範囲のレイノルズ数で、0.05から20 kPa m⁻¹の範囲であることを特徴とする、請求項 1 から 3 のいずれか一

項に記載のプロセス。

【請求項 5】

少なくとも 1 つのインサートは、コアを有する円筒形状を成しており、コアの断面の外側表面積は、反応管の断面の内側表面積の 20 から 90 % の範囲であり、インサートは、リング、バー、螺旋、またはこれらの組合せ等の 1 または複数の表面突起を備え、突起と反応管の内面とが十分に接触することにより、インサートが反応管の内側の所定位置に固定されることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 6】

少なくとも 1 つのインサートが長尺なコアを備え、このコアの断面の外側表面積は、反応管の断面の内側表面積の 20 から 90 % の範囲であり、コアは、ワイヤメッシュ、ブラシ用剛毛、長手方向に位置決めされた平らな又は波形のプレート、任意の形状および方向のフィンまたは翼、あるいは、これらの組み合わせといった表面突起を備え、突起と反応管の内面とが十分に接触することにより、インサートが反応管の内側の所定位置に固定されることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7】

各突起の表面積および / または厚さは、コアの外周に向かって大きくなっていることを特徴とする、請求項 6 に記載のプロセス。

【請求項 8】

インサートは、その外面を拡張することができる調整手段を有し、これにより、反応管内に取り付けた後、表面突起が反応管の内面と接触し或いは近接するようになることを特徴とする、請求項 5 から 7 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 9】

少なくとも 1 つのインサートは、コアが無いロッド状のワイヤメッシュの形態を成し、反応管内に嵌合することを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 10】

各インサートは、反応状態で腐食に耐える金属または合金によって形成されていることを特徴とする、請求項 1 から 9 のいずれか一項に記載のプロセス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

(発明の分野)

本発明は、流体反応混合物を多管状反応システム内で触媒反応するためのプロセスおよび関連する装置・システムに関する。

【0002】

(発明の背景)

触媒によって促進される反応プロセスは、一酸化炭素の接触（触媒による）水素化（Fischer-Tropsch プロセス）による炭化水素の合成及びそれらの酸化誘導において、また、アルケンのエポキシ化において使用される。そのような反応は、一般に、多くの発熱を伴う。これらの反応は、一般に、垂直なシェル - 管交換型の反応装置内で行なわれる。この反応装置は多数の反応管を備えており、各反応管は、固体微粒子触媒を収容しており、熱交換流体によって取り囲まれている。

【0003】

一般に、エチレンの気相と酸素を含むガス分子とを触媒酸化することにより、エチレンオキシド（エチレン酸化物）を生成することができる。エチレン酸化に使用されるシェル - 管（管状の）反応装置は、数千本の反応管を有している。各反応管は、長さが 6 から 15 m であり、内径が 20 から 50 mm である。エチレン酸化用固体微粒子触媒は、一般に、不活性キャリア材料に支持された銀を基盤としており、この銀に対して促進剤および相互促進剤（co-promoter）が添加されてもよい。銀および 1 または複数のアルカリ金属 K、Rb、Cs を含む支持されたエチレン酸化触媒は、US - A 3, 962, 136 および US - A 4, 010, 115 に開示されている。銀、レニウム、少なくとも 1 つ

10

20

30

40

50

の更なる金属、随意的にレニウム相互促進剤を含む支持されたエチレン酸化触媒は、EP - B 0 2 6 6 0 1 5 に開示されている。熱交換流体は、炭化水素または炭化水素の混合物、あるいは、水であっても良い。

【0004】

エチレン酸化反応は、150 から350 の広い範囲の温度で行なわれる。反応装置のデザイン、触媒組成、供給組成、更なる反応状態により、任意の与えられた反応装置内で狭い反応温度範囲を維持しなければならない。工程は、反応管の上流部分に流入する供給ガスを必要な反応温度まで前加熱し、反応中に過度の熱を除去し、反応廃水を冷却することを含んでいる。

【0005】

反応前加熱および反応後冷却の効率を高めるため、エチレン酸化反応管の上流部分および/または下流部分には、従来、微粒子材料（充填剤とも呼ばれる）が充填されている。このような微粒子材料は、使用される微粒子触媒と同じであってもなくても良い。前者の場合（同じである場合）、不活性体として高価な触媒が使用される。US - A 5, 292, 904では、エチレンオキシドを生成するため、多管状反応装置の上流側の前加熱領域および下流側の冷却領域において、充填材料として不活性粒子を使用することが開示されている。US - A 4, 061, 659は、多管状反応装置内でエチレンオキシドを生成するプロセスに関するものである。このプロセスにより、表面積が $0.1 \text{ m}^2 / \text{g}$ 以下の不活性な耐火性微粒子材料によって反応管の下流部分が満たされる。

【0006】

日本特許公報JP 2000 - 169463 - Aは、不活性材料としてステンレス鋼充填剤を使用することを提案している。この場合の主な利点は、ステンレス鋼が副生成物を殆ど形成しないという点である。なお、例えば、Wakao & Kaguchi、Heat transfer in packed bed; Gordon & Breach, 1982を参照されるとよいが、微粒子で満たされた管において、充填材料の熱伝導率は、乱流状態で熱伝達に殆ど影響を与えないことはよく知られている。したがって、（ステンレス）鋼を加えても、シリカ等の伝導率が低い材料と比較して、熱伝達の著しい向上は期待できない。

【0007】

反応管の上流部分および/または下流部分で不活性粒子を使用すると、触媒粒子よりも安価で且つ耐用年数が長いという利点が得られる。一方、これらを排出された触媒から分離するのは煩雑である。

【0008】

したがって、様々な種類のインサートを反応管の上流部分および/または下流部分で使用する必要がある。これらのインサートは、供給ガスの前加熱や後冷却を促進することにおいて周知の微粒子充填材料と少なくとも同じ程度に有効であるべきである。特に、これらのインサートの熱伝達率は高くなければならず、また、インサートによって引き起こされるガス圧降下は小さくなければならない。また、インサートは、安価で且つ触媒粒子から容易に分離できなければならない。

【0009】

化学反応装置ではないが、熱交換技術においては、種々の多少複雑な形状を有するコヒーレントなインサートを使用することが知られている。このようなインサートは、一般に、インサートを通じて流れる流体、主に液体の乱流を最大にするように形成されている。実際に、これらのインサートは、しばしば、乱流子（turbulators）または乱流インサート（turbulence inserts）と呼ばれる。

【0010】

複雑な形状を成すインサートの一例がEP - B 0 0 6 1 1 5 4 に開示されている。容器内に配置されたインサートが開示されていてインサートは長尺なコアを備えている。コアは、長手方向に沿って角のあるように配置された複数のループを有していて、各ループの一部は、概念上の包囲面に近接しており、これにより、コアから前記一部分の中央へと横

10

20

30

40

50

方向に延びる直線(L)が、コアに沿う様々な長手方向位置に配置される。そして、各ループの各線(L)がコアに対して鋭角を成していることを特徴としている。コアは、共に擦られた2つの長尺な部材を備え、前記各ループの一部が共に擦られた部材間に保持されていることが好ましい。

【0011】

US - A5, 454, 429には、強制的に流す熱交換器が開示されている。この熱交換器は、外側熱サイクルの一部としてのハウジングと、ハウジングの長手方向軸に対して平行に取り付けられた内側熱サイクルの一部としての少なくとも1つの管とを備えて、前記各管は、ゆるく挿入される柔軟なロッドを備えている。このロッドは、軸方向および管の径方向に自由に移動して回転することができる。ロッドの柔軟性およびその自由な移動性は、必須の特徴であると記載されている。これは、結果として生じる振動によって、管の内側の乱流が促進されるためである。この開示内容に係るロッドは比較的薄く、管の内径とロッドの外径との間の好ましい割合は、1.4から2.5である。ロッドは、管の全長を占めている。

10

【0012】

この技術および検索した更なる技術は、特に反応物質がガス状である場合、また更に詳しくは、反応物質が一酸化炭素/水素またはエチレン/酸素反応混合物を含んでいる場合に、化学多管状反応装置内での反応物質の前加熱を促進するいかなるタイプの(微粒子に対するものとしての)コヒーレントなインサートの使用についても言及していない。

20

【0013】

(発明の概要)

ここで、固体触媒粒子を更に含む多管状反応装置の上流側および/または下流側で反応ガスの前加熱および/または後冷却を促進するという使用目的においては、不活性材料から成り且つ反応管の長さの1から20%、好ましくは1から5%の長さを有する基本的にロッド状のインサートが、同じ長さを占める多数の充填粒子と少なくとも同じ程度に効果的であり、また、安価であるとともに、挿入および除去が容易であるという更なる利点を有することが分かった。そのようなインサートを使用することにより、加熱/冷却効率を更に高めて前加熱および/または後冷却を促進すると、必要に応じて触媒反応管の加熱領域および/または後冷却領域を短くできるという更なる利点が得られる。

30

【0014】

したがって、本発明は、多管状反応システム内で流体反応混合物を触媒反応させて流体生成物を形成するプロセスであって、固体微粒子触媒の所定の塊を含み且つ熱交換流体によって取り囲まれる少なくとも1つの反応管を通じて反応混合物を案内するとともに、反応管の上流部分が反応混合物の前加熱専用であり、および/または、反応管の下流側部分が生成物の後冷却専用であるプロセスにおいて、各反応管の前記上流側部分および/または下流側部分は、熱交換する基本的にロッド状のインサートを有し、このインサートは、反応管の全長の1から20%の長さ、好ましくは1から5%の長さを有していることを特徴とするプロセスを含む。

【0015】

特に、反応混合物は一酸化炭素および水素を含み、生成物は炭化水素および/またはその酸化物を含むかあるいは、反応混合物はアルキレンおよび酸素を含み、生成物はアルキレン酸化物を含む。また、特に、反応混合物はエチレンおよび酸素を含み、生成物はエチレンオキシド(エチレン酸化物)を含む。

40

【0016】

以下、先に簡単に要約した本発明について、その実施形態を参照しながら説明する。これらの実施形態は添付図面に図示されている。しかしながら、添付図面は、本発明の幾つかの実施形態だけを示しており、したがって、本発明の範囲を限定するものではなく、本発明は他の等しく有効な実施形態も含み得るものである。

【0017】

(発明の詳細な説明)

50

図1は、内部にインサートが配置された反応装置の典型的な概略断面図である。反応装置10は、1または複数の反応管20を収容するシェル12を備えている。シェル内には第1のチューブプレート(管板)14が同心的に配置されており、このチューブプレート14は、管20に連結されて、管のための側方支持体を形成している。同様に、反応管20の他の部分には、第2のチューブプレート16が連結されており、管のための側方支持体を形成している。反応装置10には、1または複数の入口部、例えば入口部22, 24が形成されており、反応物質を反応装置内に流入させる。反応装置10には、1または複数の出口部、例えば1つの出口部26が形成されており、この出口部によって反応生成物を反応装置から排出することができる。温度制御入口部28および温度制御出口部30によりそれぞれ、冷却/加熱流体を反応装置10に対して流出入させることができる。

10

【0018】

反応装置10は、加熱領域32と、反応領域34と、冷却領域36とに分割することができる。これらの領域および入口部/出口部の順序、大きさ、有無は、反応が吸熱か発熱かに応じて、また、反応速度、流量、他の要因に応じて、変えることができる。触媒は一般に、反応領域34の反応管20内に配置される。

【0019】

1または複数の反応管20内、一般には全ての反応管20内に、1または複数のインサート38が配置されている。単一反応装置においては、インサートを混合して使用することもできるが、経済的および実用的な理由から、単一反応装置においては、全てのインサートを同一にすることが望ましい場合もある。

20

【0020】

幾つかの実施形態においては、例えば図1に示されるように、反応管20の上流部に一組のインサート38を配置するとともに、反応管の下流部にもう一組のインサート40を配置することができる。

【0021】

また、特定の管状の反応装置、例えばエチレンおよび酸素をエチレンオキシドに変換する触媒変性で使用される管状の反応装置においては、本発明によって提案されるインサートの効果的な用法により、ある大きさのインサートを反応管20の上流部に設け、異なる大きさのインサートを下流部に設けることができる。そのような場合、上流側のインサート38は、下流側のインサート40よりも長さを短くすることが適切であり、下流側のインサートの長さの約半分であると大変適切である。例えば、上流側のインサート38は、反応管の全長の1%から10%の長さ、あるいは、1%から5%の長さを有していても良く、下流側のインサート40は、2%から20%の長さ、あるいは、2%から10%の長さを有していても良い。

30

【0022】

本発明に係るインサートの内側の熱伝達率は、空の管(void tube)の寸法および空塔速度に基づいて、10000から50000の範囲のレイノルズ数で測定する場合には、反応管の内側の表面積に基づいて、800から4000 $W m^{-2} K^{-1}$ (ワット/ m^2 /ケルビン温度)であることが適切である。

【0023】

本発明に係るインサート38、40によって占められる反応管20の部位に沿う圧力降下は、同様に空の管の寸法および空塔速度に基づいて、10000から50000の範囲のレイノルズ数で測定する場合には、1m当たり50から20000 Paであることが適切である。

40

【0024】

図2は、典型的なインサートの概略的な長手方向断面図である。反応管20内に1つのインサート50を配置することができる。本発明に係るインサートは、様々な形状を成すことができる。図2に示されるインサート50は、略円筒状のコア51を有することができる。インサート50は、中空で且つ少なくとも1つの端部52で閉じられていることが好ましく、両端52、54で閉じられていることが更に好ましい。

50

【0025】

コア51の断面の外寸法「a」は、コア51の断面の外側表面積を規定している。反応管の内面58の断面寸法「A」は、インサート50が配置される反応管の部位の断面の内側表面積を規定している。一般に、コア51の断面の外側表面積は、反応管20の断面の内側表面積の約20%から90%であっても良い。

【0026】

インサート50は、インサートの長さに沿って周方向または長手方向に延びる、リング、バー、螺旋、他の形状の突起、または、これらの組合せといった1または複数の表面突起56を備えていても良い。一般に、突起は、反応管20の内面58と接触するとともに、反応管の内側の所定位置にインサートを固定する。

10

【0027】

図3は、インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。図2と同様に、表面突起56を有するインサート50を反応管20内に配置することができる。インサート50は円錐形状を有していても良い。この円錐体は、中空であることが好ましく、一端54が閉じられている。インサート50は、上流側テーパ部53を有していても良い。また、インサートは、下流側テーパ部(図示せず)を有していても良い。

【0028】

インサートの形状を変更しても良く、インサートの形状が本発明の目的に適する任意の幾何学的形状であっても良いと理解される。

【0029】

図4は、インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。図示のインサート50は、反応管20内に配置されて、反応管の内面58と接触している。インサート50は長尺なコア51を有していても良い。一例として、コア51の断面の外側表面積は、反応管の断面の内側表面積の約20%から90%、例えば約20%から80%であっても良い。

20

【0030】

コア51は、例えばワイヤメッシュ、ブラシ用剛毛、長手方向に位置決めされた平らなまたは波形のプレート、任意の形状および方向のフィン(羽根)または翼、あるいは、これらの組み合わせといった、1または複数の表面突起56を備えていても良い。一般に、少なくとも幾つかの突起は、反応管20の内面58と接触するとともに、反応管の内側の所定位置にインサートを固定する。幾つかの実施形態において、各突起56の表面積および/または厚さは、突起56の外周62から突起56の基部64およびコア51の外周に向って大きくなっていても良い。

30

【0031】

図5は、反応容器20内に配置されたインサート56の典型的な端面図である。少なくとも幾つかの実施形態においては、全ての各突起を反応管20に接触させる必要はなく、1または複数の突起が十分に接触するだけで、使用中にインサートを所定位置に固定できると理解される。例えば、延出した突起56aが反応管20と接触し、他の突起56bが反応管と接触していなくても良い。

【0032】

図6から図8は、インサートの他の実施形態の概略的な断面図である。図6は、インサートの1または複数の拡張可能な突起が引き込み位置にある状態を示す概略的な長手方向断面図である。図7は、拡張可能な突起が拡張位置にある状態を示す概略的な長手方向断面図である。図8は、図6のインサートおよび反応管の概略的な端断面図である。図6から図8を互いに並行して説明する。

40

【0033】

インサート50を反応管20内に配置するためには、インサートが反応管内で位置決めされるまで、対応する突起56を反応管の内面58と接触させないことが有益である。図1から図5に示されるように、反応管20がいったん所定の位置にくると1または複数の突起56が反応管20の内面58に接触することを促進するために、インサート50を所定

50

の位置で一度調整して突起を反応管の内面に対して或は内面へと付勢することができる非常に有用な実施形態がある。当業者であれば明らかとなり、ここに含まれる本発明の説明によって、螺合、スリップ係合、カム、傾斜面、ガスおよび液圧活性化、その他の方法を含むがこれらに限定されない、突起の拡張のための多くの方法およびシステムを使用することができる。

【0034】

例えば、これに限定されないが、インサート50は、一端に捺じれ部72を有する並進可能な部材70を備えていても良い。捺じれ部72は、突起56の傾斜面74と係合することができる。インサート50がいったん所定の位置に配置されると捺じれ部72は回転して、突起56が反応管20内で拡張し、突起は、反応管の内面58と接触し、あるいは、反応管の内面に更に近接する。図示しないが、突起と共に、あるいは、突起の代わりに、インサート自体またはそのコアを拡張させることにより、同様の結果を達成する、すなわち、インサートの少なくとも幾つかの部材を反応管20に向けて拡張させるようにしても良いことが理解できる。

10

【0035】

図9は、インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。図10は、図9のインサートおよび反応管の概略的な端断面図であり、図9と並行して説明する。

【0036】

反応管20内にインサート56が配置されてもよい。インサート56は、ロッド状でコアが無い形状、多数のワイヤメッシュの形態を成していても良い。インサート56は、管の内面に隣接する外周面をぴったり寸法付けることができ、反応管にぴったりと嵌合するようにできる。例えば、ワイヤメッシュは、縦部材56および横部材82を有していても良い。インサート56は、反応管20内に嵌合する適当な形状および寸法に形成されても良い。

20

【0037】

特定の形状や構成にかかわらず、各インサートは、反応段階で熱を十分に伝え且つ腐食し難い金属または合金、例えば炭素鋼やステンレス鋼によって形成されることが好ましい。金属/合金の選択は、反応管内で行なわれる反応に応じて変更されても良い。

【0038】

(インサートを使用する典型的なプロセス)

本発明に係るプロセスの典型的な工程は、エチレンのエポキシ化である。エチレンおよび酸素分子から気相のエチレンオキシドを触媒生成するプロセスは、使用される酸素源により、純粋な酸素を使用するプロセスと、空気を使用するプロセスとに大きく分けられる。しかし、熱伝達要件に関する違いは重要ではなく、本発明は両方のケースに適用できる。

30

【0039】

エチレンの酸化で純酸素または空気のいずれが使用されようとも、両方の場合における反応ガス混合物は、エチレンおよび酸素の他に、例えば二酸化炭素、窒素、アルゴン、メタン、エタン等の過剰の希釈剤と、例えば塩化エチル、塩化ビニル、ジクロロエタン等の少量のハロゲン化物反応調整剤とを含んでいる。例えば、反応ガスは、エチレンの1から40%、酸素の3から12%、エタンの0から3%の量だけ、0.3から50ppmのクロロ炭化水素調整剤およびバランス用のアルゴンおよび/またはメタンを含んでいても良い。

40

【0040】

入口反応ガス圧は、大気圧から4000kPaの範囲であり、1000から3000kPaであることが好ましい。本発明に係るインサートによって、このインサートが占める反応管の長さによって実質的な圧力降下が生じないことが重要である。圧力降下は、入口圧の約2%を下回ることが好ましい。

【0041】

反応(触媒)温度は、150から350の範囲であり、220から300であることが好ましい。反応ガス混合物の容積時間当たり空間速度(VHSV)は、1000から1

50

0000 h⁻¹ (充填触媒 (packed catalyst) の m³ / m³ h) の範囲であり、2000 から 8000 h⁻¹ (充填触媒の m³ / m³ h) であることが好ましく、標準的な温度・圧力状態で測定される。VHSV は、一般に、h⁻¹ (時間分の 1)、m³ / m³ h、ガスの容積 (m³) / 反応体の容積 (m³) (例えば充填触媒の容積)・時間、または同様の体積・時間あたりの体積の単位で表わされる。O₂ 変換レベルは 10 から 60%、EO 生成 (作業率) 30 から 400 kg / m³ 触媒 / hr である。

【0042】

反応管を取り囲む熱交換流体として炭化水素が使用される場合、その圧力は、一般に、100 から 1500 kPa であり、200 から 800 kPa であることが好ましく、200 から 600 kPa であることが更に好ましい。熱交換流体が水である場合、その圧力は 1500 から 8000 kPa である。反応管から出る時の熱交換流体の温度は、一般に、200 から 350 であり、220 から 300 であることが好ましい。

10

【0043】

以下、本発明の非限定的な実施形態を説明する。

【0044】

例 1 および例 2 においては、本発明に係るインサートの 2 つの実施形態が与えられている。

【0045】

例 3 から例 5 においては、管状の反応装置を通じて流れる (ガス) 流体の熱交換作用、圧力降下、乱流のそれぞれの効果に関して、理論上且つ計算して確かめられた性能が以下に基づいて測定された。

20

45 W m⁻¹ K⁻¹ という特定の伝導率を有する炭素鋼から成る例 1 および例 2 に係るインサート。

35 cm 塊の微粒子触媒材料、すなわち、銀が含浸された アルミニウムリング (外径 8.40 mm、内径 2.97 mm、高さ 8.55 mm)。
空の管。

【0046】

(例 1 - インサート)

図 11 はインサートの概略的な端断面図である。インサート 50 は、突起 56 としての 32 個の曲がったフィンを備えた構成とし、各フィンを中心のコア 51 すなわち環体の周囲に溶接した。コアは、中空の円筒体であり、一端または両端が閉じられるとともに、25 mm の外径を有している。フィン材料の厚さは 1 mm であり、曲がった各フィンの全高は 8.1 mm である。構造は、外径が 38.5 mm であり、長さが 35 cm である。

30

【0047】

(例 2 - インサート)

図 12 はインサートの概略的な端断面図である。インサート 50 は、1 mm のステンレス鋼プレートによって突起 56 が形成された構成を含む。すなわち、プレートが波形状を成しており、その波の長さは 5 mm であり、波の高さは 6.75 mm であり、コア 51 の周囲で曲げられているのは例 1 と同様である。構造の外径は 38.5 mm であり、長さは 35 cm である。

40

【0048】

(例 3 - 熱交換)

内径が 38.5 mm で長さが約 35 cm の反応管が使用され、これは一般的に市販されている反応管の全長の約 3% である。反応管には、リング状の粒子と共に、あるいは、空隙を残して、例 1 および例 2 のインサート (これらの各インサートの長さも一般に市販されている反応管の全長の約 3% である) が充填される。そして、反応管が 250 まで加熱される。1 m s⁻¹ の空塔速度、2000 kPa、150 で、メタン (50%)、エチレン (40%)、酸素 (10%) から成るガス混合物が反応管内に導入される。

【0049】

安定した熱伝達状態にあり、インサートの表面での熱伝達係数が一定で、インサートの材

50

料が均質であり、熱生成が無く、反応管の壁とインサートとの間に熱伝導抵抗が無く、流体において径方向の温度勾配が無いと仮定すると、例1および例2のインサートが充填される反応管の内側の熱伝達、および、空の管の内側の熱伝達は、V. Gnielinski「Chem. - Ing. - Techn.» (1989), 160/61の熱伝達関係に従って決定される。また、同じ仮定の下で、リング状の微粒子(充填塊(「packed bed」))が充填される反応管の内側の熱伝達は、P. C. Borman等のChem. Engng. Commun.の第114巻、17から47頁に従って決定される。

【0050】

図13は、例3によって測定された結果を示すグラフである。この結果は、空の管のための反応管の入口からの距離、触媒リングの充填塊を有する管、例1および例2に記載された典型的なインサートを有する管に応じて計算して確認された流体温度を示している。x軸は、反応管の入口からの距離をmで示している。y軸は、反応管の長手方向に沿う熱伝達を表すべく、流体の摂氏温度を示している。

10

【0051】

空の管に関する一番下側の曲線4は、熱伝達の割合が最も小さい。反応装置にわたる温度の増大は約10である。すなわち、150の開始温度から約7%増えている。次に高い曲線3は、充填塊を使用しており、熱伝達の割合が約50である。すなわち、約33%増大している。次に高い曲線1は、例1にしたがって構成されたインサートを使用しており、約80の温度を上昇させ、すなわち、約53%の温度上昇は、より高い熱伝達能力を示している。最後の曲線2は、例2にしたがって構成されたインサートを使用しており、約85の温度を上昇させ、すなわち、約57%の温度上昇は、最も高い熱伝達能力を示している。

20

【0052】

(例4 - 圧力降下)

例3で特定した同じ実験条件が維持される。例1および例2のインサートが充填された反応管に関し、また、空の管に関して、Karman-Nikuradzeにしたがって1メートル長毎に計算された圧力降下が測定される。これについては、J. Nikuradze, VDI-Vorschungsheft (1950) 361を参照のこと。リング形状の微粒子が充填される管における圧力降下は、S. Ergun, Chem. Eng. Prog., 48, 89, 1952にしたがって測定される。

30

【0053】

このように測定された圧力降下は、以下の通りである。

空の管の場合：5 Pa/m

リング形状の微粒子の場合：18000 Pa/m

例1のインサートの場合：870 Pa/m

例2のインサートの場合：485 Pa/m

【0054】

(例5 - 乱流)

例3で特定した同じ実験条件が維持される。1 m/sの空塔流体速度で反応管の内側の乱流を計算した。これは、以下のように、レイノルズ数で表される。

40

空の管の場合：30516

リング形状の微粒子の場合：9720

例1のインサートの場合：10681

例2のインサートの場合：5148

【0055】

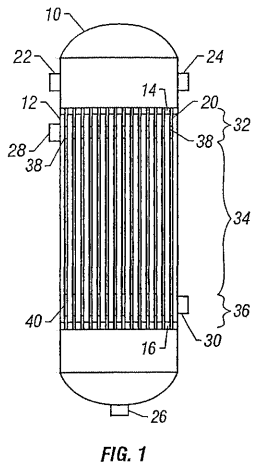
これらの結果から、高い流体速度が使用される条件下では、インサートによって反応管の内側の乱流が増えずに減ることは明らかである。特に、ここでは、本発明に係る2つのインサートに関して例3で見出される熱伝達の増大が(リング形状の微粒子と比較して)、乱流の増大によるものではないことが分かる。

50

【図面の簡単な説明】

- 【図 1】 内部にインサートが配置された反応装置の典型的な概略断面図である。
- 【図 2】 1つの典型的なインサートの概略的な長手方向断面図である。
- 【図 3】 インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。
- 【図 4】 インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。
- 【図 5】 反応管内に配置されたインサートの典型的な端面図である。
- 【図 6】 引き込み位置にあるインサートの1または複数の拡張可能な突起の概略的な長手方向断面図である。
- 【図 7】 拡張位置にある拡張可能な突起の概略的な長手方向断面図である。
- 【図 8】 図 6 のインサートおよび反応管の概略的な端面図である。
- 【図 9】 インサートの他の実施形態の概略的な長手方向断面図である。
- 【図 10】 インサートの概略的な端断面図である。
- 【図 11】 インサートの概略的な端断面図である。
- 【図 12】 インサートの概略的な端断面図である。
- 【図 13】 典型的な結果を示すグラフである。

【図 1】



【図 3】

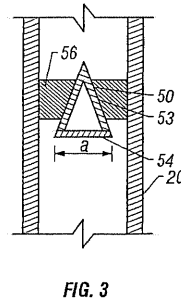


FIG. 3

【図 4】

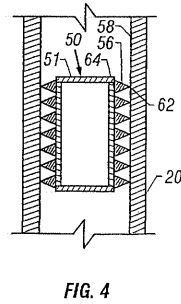


FIG. 4

【図 2】

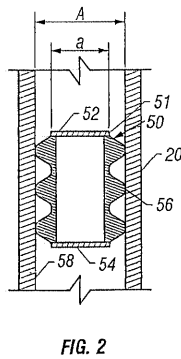


FIG. 2

【図 5】

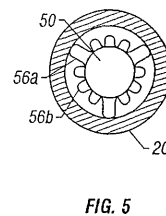


FIG. 5

【 図 6 】

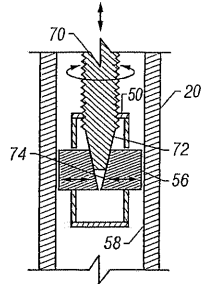


FIG. 6

【 図 7 】

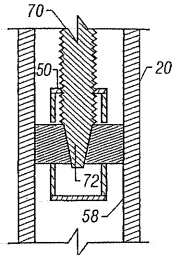


FIG. 7

【 図 8 】

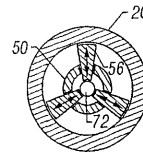


FIG. 8

【 図 9 】

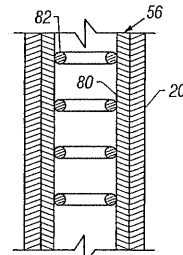


FIG. 9

【 図 10 】

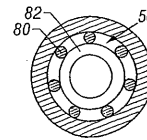


FIG. 10

【 図 11 】

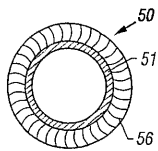


FIG. 11

【 図 12 】

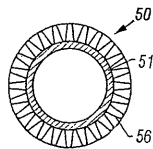


FIG. 12

【 図 13 】

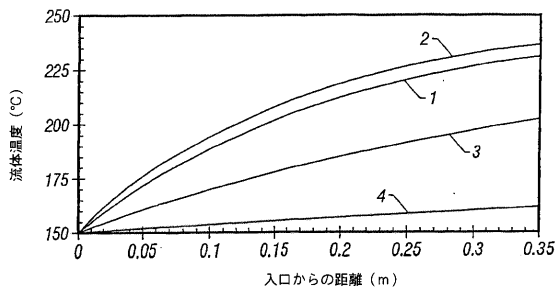


FIG. 13

フロントページの続き

(74)代理人 100103920

弁理士 大崎 勝真

(72)発明者 テー・ラー, アレント・ヤン

オランダ国、ザ・ハーグ・2514・アー・ベー、コーニンギネフラハト・23

(72)発明者 スラパツク, マシアス・ヨゼフ・パウル

オランダ国、アムステルダム・1031・セー・エム、バトハイスウエヒ・3

(72)発明者 ボス, アロアイシウス・ニコラス・レーネ

オランダ国、アムステルダム・1031・セー・エム、バトハイスウエヒ・3

審査官 松本 瞳

(56)参考文献 特開昭60-158294(JP,A)

実開平02-037740(JP,U)

特開昭59-003003(JP,A)

実開昭62-170138(JP,U)

特開昭54-032408(JP,A)

特開昭62-186934(JP,A)

特開平06-287003(JP,A)

特開平08-067502(JP,A)

特開昭58-112044(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B01J 8/00-8/46

10/00-12/02

14/00-19/32

C07B 31/00-63/04

C07C 1/00-409/44

F28F 1/40,13/08,13/12