

(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
2023年11月23日(23.11.2023)



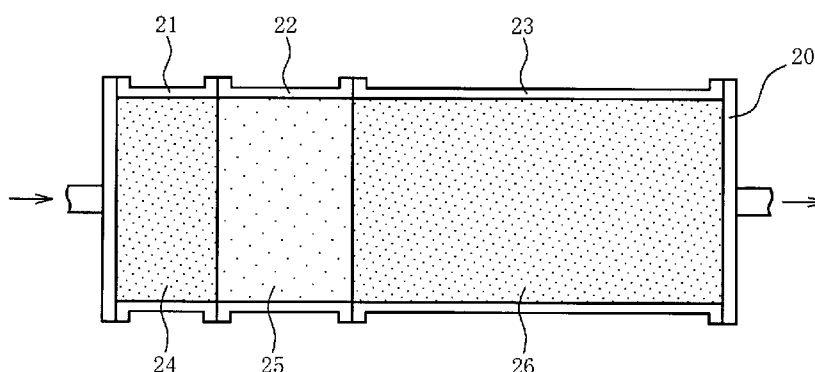
(10) 国際公開番号

WO 2023/223783 A1

- (51) 国際特許分類:
C07C 1/12 (2006.01) C07B 61/00 (2006.01) 宏(FUNAHASHI Yoshihiro); 〒4610005 愛知県
C07C 9/04 (2006.01) B01J 8/04 (2006.01) 名古屋市東区東桜一丁目1番1号 日本特
殊陶業株式会社内 Aichi (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/016259 (74) 代理人: 弁理士法人真明センチュリー(PATENT
FIRM SHINMEI CENTURY); 〒4400805 愛知
県豊橋市大手町9番地 あいおいニッセイ
同和損保豊橋ビル7F Aichi (JP).
- (22) 国際出願日: 2023年4月25日(25.04.2023)
- (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 2022-080745 2022年5月17日(17.05.2022) JP
- (71) 出願人: 日本特殊陶業株式会社(NITERRA CO.,
LTD.) [JP/JP]; 〒4610005 愛知県名古屋市東区
東桜一丁目1番1号 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 中村 洋介 (NAKAMURA Yosuke);
〒4610005 愛知県名古屋市東区東桜一丁目1
番1号 日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP).
薮花 優棋(YABUHANA Masaki); 〒4610005 愛
知県名古屋市東区東桜一丁目1番1号 日
本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 舟橋 佳
- (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, 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.

(54) Title: REACTION DEVICE

(54) 発明の名称: 反応装置



(57) **Abstract:** Provided is a reaction device wherein degradation of catalysts can be reduced and a reaction vessel can be made shorter. A reaction device (10) is a reaction device in which a chemical reaction occurs in conjunction with heat production, and comprises a reaction vessel (20) through which a source material gas flows from an inlet toward an outlet, and catalysts (24, 26) that are contained in the reaction vessel, wherein the reaction device includes a first section (21), a second section (22), and a third section (23), in order along the direction of flow of the source material gas. Among the first section, the second section, and the third section, the second section reduces the activation energy of the chemical reaction the least. Additionally, in the reaction device, the temperature increases in the first section, the temperature decreases in the second section, and the temperature increases in the third section.



WO 2023/223783 A1

(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))

(57) 要約: 触媒の劣化を低減できると共に反応容器を短くできる反応装置を提供する。反応装置(10)は、発熱を伴う化学反応が起こる反応装置であって、入口から出口に向かって原料ガスが流通する反応容器(20)と、反応容器が内包する触媒(24, 26)と、を備え、原料ガスの流れの方向に沿って順に、第1部(21)、第2部(22)、第3部(23)を含む。第1部、第2部、第3部のうち化学反応の活性化エネルギーを下げる度合いは、第2部が最も小さい。また反応装置は、第1部で温度が上昇し、第2部で温度が低下し、第3部で温度が上昇する。

明 細 書

発明の名称：反応装置

技術分野

[0001] 本発明は発熱を伴う化学反応が起こる反応装置に関する。

背景技術

[0002] 触媒を内包する反応容器を原料ガスが流通することにより発熱を伴う化学反応が起こる反応装置では、反応熱によって反応場の温度が上昇すると、シタリング等の触媒の劣化が生じ易くなる。触媒の劣化を低減するため、特許文献1に開示された先行技術では、互いに間隔をあけて並列に配置した反応容器に原料ガスを流通させた後、合流させ、反応容器の断面方向における温度分布のばらつきを低減し、触媒の過熱を防ぐ。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2018-114432号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 先行技術では、互いに間隔をあけて反応容器を並列に配置するので、反応容器が配置された範囲に対して反応容器の体積が小さくなる。反応容器が配置された範囲につり合う反応容器の体積を確保すると、反応容器の全長が大きくなるという問題点がある。

[0005] 本発明はこの問題点を解決するためになされたものであり、触媒の劣化を低減できると共に反応容器を短くできる反応装置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

[0006] この目的を達成するための本発明の第1の態様は、発熱を伴う化学反応が起こる反応装置であって、入口から出口に向かって原料ガスが流通する反応容器と、反応容器が内包する触媒と、を備え、原料ガスの流れの方向に沿っ

て順に、第1部、第2部、第3部を含み、第1部、第2部、第3部のうち化学反応の活性化エネルギーを下げる度合いは、第2部が最も小さい。

[0007] 第2の態様は、発熱を伴う化学反応が起こる反応装置であって、入口から出口に向かって原料ガスが流通する反応容器と、反応容器が内包する触媒と、を備え、原料ガスの流れの方向に沿って、順に、第1部、第2部、第3部を含み、第1部で温度が上昇し、第2部で温度が低下し、第3部で温度が上昇する。

[0008] 第3の態様は、第1又は第2の態様において、第2部は、触媒活性のない不活性体、又は、第1部および第3部に含まれる触媒の触媒活性よりも触媒活性が低い低活性触媒を含む。

[0009] 第4の態様は、第1から第3の態様のいずれかにおいて、第1部は、第3部に含まれる触媒の触媒活性よりも触媒活性が低い触媒を含む。

[0010] 第5の態様は、第1から第4の態様のいずれかにおいて、流れの方向における第1部の厚さは、流れの方向における第3部の厚さよりも小さい。

[0011] 第6の態様は、第1から第5の態様のいずれかにおいて、化学反応は、水素および二酸化炭素を含む原料ガスからメタンを合成する反応である。

発明の効果

[0012] 反応装置は触媒を内包する反応容器を含み、原料ガスの流れの方向に沿って順に、第1部、第2部、第3部を含む。第1部、第2部、第3部のうち化学反応の活性化エネルギーを下げる度合いは、第2部が最も小さいので、第2部の発熱は、第1部および第3部の発熱に比べて小さい。第1部で上昇した温度が第2部で低下するので、反応容器が短くても触媒の温度が過剰に上がらないようにできる。その結果、触媒の劣化を低減できる。

[0013] 反応装置は触媒を内包する反応容器を含み、原料ガスの流れの方向に沿って順に、第1部、第2部、第3部を含む。第1部で温度が上昇し、第2部で温度が低下し、第3部で温度が上昇する。反応容器が短くても触媒の温度が過剰に上がらないようにできるので、触媒の劣化を低減できる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]第1実施の形態における反応装置のブロック図である。

[図2]反応容器の断面図である。

[図3]反応装置の各部と温度との関係を示す図である。

[図4]第2実施の形態における反応装置の断面図である。

[図5]第3実施の形態における反応装置の断面図である。

[図6]第4実施の形態における反応装置の断面図である。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明の好ましい実施の形態について添付図面を参照して説明する。図1は第1実施の形態における反応装置10のブロック図である。反応装置10は原料ガスが流通する反応容器20を備えている。反応容器20は、2つの配管11, 14がつながる合流配管17が接続されている。配管11は第1の原料ガスが供給される配管であり、上流から下流へ順に調節弁12、逆止弁13が配置されている。配管14は第2の原料ガスが供給される配管であり、上流から下流へ順に調節弁15、逆止弁16が配置されている。合流配管17には仕切弁18が配置されている。第1及び第2の原料ガスは、それぞれ調節弁12, 15を経て最適な混合比に設定され、2つの原料ガスが混ざった混合ガス（原料ガス）は、仕切弁18を経て反応容器20に供給される。

[0016] 本実施形態では、第1の原料ガスが水素、第2の原料ガスが二酸化炭素である場合を説明する。反応容器20は適度な圧力に設定されると共にヒーター27によって加熱され、 $\text{CO}_2 + 4\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4 + 2\text{H}_2\text{O}$ の化学反応式で表されるメタン製造（メタネーション）を行う。生成物は反応容器20の下流に接続された凝縮器28により氷温に冷却され、メタンを含むガスと水とに分離される。メタンを含むガスは、原料ガスの水素と二酸化炭素とを含み得る。

[0017] メタネーションは反応装置10で起こる化学反応の一例であり、これに限られるものではない。原料ガス、反応条件および触媒（後述する）を適宜選択することにより、例えば以下の化学反応を反応装置10で起こすことがで

きる。

[0018] メタンの部分酸化による合成ガス製造： $2\text{CH}_4 + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{CO} + 4\text{H}_2$

メタノール合成： $\text{CO} + 2\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OH}$

メタノール合成： $\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$

フィッシャー・トロプシュ合成： $\text{CO} + 2\text{H}_2 \rightarrow -(\text{CH}_2)- + \text{H}_2\text{O}$

- (CH₂) - は直鎖炭化水素を意味する

ジメチルエーテル合成： $2\text{CO} + 4\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{OCH}_3 + \text{H}_2\text{O}$

[0019] 図2は反応装置10の断面図である。図2に示す矢印は、反応容器20を原料ガスが流通する方向を示す（図4から図6においても同じ）。反応容器20は触媒24、26及び低活性触媒25を内包する。反応装置10は、原料ガスの流れの方向に沿って（上流から下流に向かって）、順に第1部21、第2部22、第3部23を含む。第1部21及び第3部23はそれぞれ触媒24、26を含む。第2部22は、触媒24、26の触媒活性よりも触媒活性が低い低活性触媒25を含む。触媒24、26及び低活性触媒25は、化学反応の活性化エネルギーを下げ、化学反応を進行させやすくする。触媒活性が低いとは、化学反応の活性化エネルギーを下げる度合いが小さいことをいう。

[0020] 本実施形態では、第1部21、第2部22及び第3部23は、触媒24、低活性触媒25及び触媒26がそれぞれ配置された、内径が同一の管のフランジをボルト等で締め付けることにより互いに結合されている。しかし、これに限られるものではない。単一の管に触媒24、低活性触媒25及び触媒26を順に充填して、第1部21、第2部22及び第3部23を設けることは当然可能である。

[0021] 触媒24、26及び低活性触媒25は、各種の化学反応に適した触媒が制限なく用いられる。触媒24、26及び低活性触媒25は、担体に粒子が担持された粉末、ペレット又は多孔質構造体が例示される。担体は、アルミナ、シリカ、マグネシア、チタニア、ジルコニア、ニオブア、シリカ・アルミナ、ゼオライト、リン酸カルシウムの1種以上を含む酸化物の粉末、ペレッ

ト又は多孔質構造体が例示される。多孔質構造体は原料ガスが通過できる通気性を有する。また、粉末およびペレットの間の空隙を原料ガスが通過する。

[0022] 担体に担持される粒子は、Fe, Co, Ni, Cu, Ru, Rh, Pd, Ag, Ir, Pt, Auの1種以上を含む金属が例示される。触媒は、担体および粒子の材料および粒子径が同じであれば、触媒活性は担体が担持する粒子の表面積に比例するので、触媒24, 26に比べ、担体が担持する粒子の表面積を小さくすることにより低活性触媒25が得られる。

[0023] また、触媒活性を有しない不活性粒子を触媒24, 26に混合し、一定量中に含まれる触媒24, 26の量を少なくすることにより低活性触媒25が得られる。不活性粒子は、アルミナ、シリカ、マグネシア、チタニア、ジルコニア、ニオブア、シリカ・アルミナ、ゼオライト、リン酸カルシウムの1種以上を含む酸化物の粉末またはペレットが例示される。

[0024] 水素と二酸化炭素とが混ざった原料ガスを反応容器20に流通すると、原料ガスは順に第1部21、第2部22、第3部23を通過し、メタンと水を生成する化学反応が進行する。

[0025] 図3は反応装置10の各部と温度との関係を示す図である。図3の実施例は、第1部21、第2部22及び第3部23の反応場（触媒の集合）の断面の重心に、原料ガスが流れる方向に沿って複数の熱電対を配置して各熱電対が検知した温度を記録した結果である。比較例は、反応装置10を第1部21、第2部22及び第3部23に分けないで、第1部21の触媒24を反応容器20の全体に配置して同様に温度を記録した結果である。

[0026] 図3に示すように実施例は、第1部21で温度が上昇し、第2部22で温度が低下し、第3部23で温度が上昇する。第2部22は、低活性触媒25の触媒活性が触媒24の触媒活性より低く、活性化エネルギーを下げる度合いが第1部21よりも小さいため、反応速度が第1部21よりも小さくなり温度が低下する。第3部23は、触媒26の触媒活性が低活性触媒25の触媒活性より高く、活性化エネルギーを下げる度合いが第2部22よりも大き

いため、反応速度が第2部22よりも大きくなり反応熱により温度が上昇する。しかし、第3部23には反応の生成物であるメタン及び水蒸気が存在するため、第3部23の反応熱はそれほど大きくなる。また、第3部23と第1部21との間に第2部22が介在するので、第3部23の熱は第1部21に伝わりにくく、第1部21の温度はそれほど高くなる。

[0027] 一方、比較例は、原料ガスからメタンと水を生成する化学反応（発熱反応）により、反応場の最高到達温度が、実施例に比べて高くなる。実施例によれば、比較例に比べ、化学反応に伴って上昇する触媒24、26及び低活性触媒25の温度を低減できるので、触媒の劣化を低減できる。また、先行技術のように反応容器を互いに間隔をあけて並列に配置する必要がないので、反応容器20の体積を確保しつつ反応容器20の全長を小さくできる。

[0028] 図2に戻って説明する。第1部21の触媒24の触媒活性は、第3部23の触媒26の触媒活性と同じ、又は、第3部23の触媒26の触媒活性より低い。原料ガスの流れの方向における第1部21の厚さは、原料ガスの流れの方向における第3部23の厚さよりも小さい。従って第1部21の触媒24の触媒活性が第3部23の触媒26の触媒活性と同じであっても、第1部21の厚さが第3部23の厚さよりも大きい場合に比べ、反応熱による第1部21の温度を低減できる。よって触媒24の劣化を低減できる。触媒活性が同じ触媒を第1部21及び第3部23に配置すれば、触媒活性が異なる2種類の触媒24、26を準備しなくても済むようにできる。

[0029] 原料ガスの流れの方向における第2部22の厚さは、原料ガスの流れの方向における第3部23の厚さよりも小さい。よって第2部22の厚さが第3部23の厚さよりも大きい場合に比べ、反応容器20の全長を小さくできる。

[0030] 原料ガスの流れの方向における第2部22の厚さは、原料ガスの流れの方向における第1部21の厚さよりも大きい。よって第1部21と第3部23との間に配置された低活性触媒25による断熱性を確保できる。

[0031] 図4を参照して第2実施の形態における反応装置30を説明する。第1実

施形態では第2部22に低活性触媒25が配置される場合について説明した。これに対し第2実施形態では、触媒活性のない不活性体35が第2部32に配置される場合について説明する。第1実施形態において説明した部分と同一の部分については、同一の符号を付して以下の説明を省略する。図4は第2実施の形態における反応装置30の断面図である。

[0032] 反応装置30は、原料ガスの流れの方向に沿って、順に第1部31、第2部32、第3部33を含む。反応容器20は触媒34、36及び不活性体35を内包する。第1部31及び第3部33はそれぞれ触媒34、36を含む。触媒34、36は化学反応の活性化エネルギーを下げ、化学反応を進行させやすくする。第2部32は触媒活性のない不活性体35を含む。触媒活性がないとは、不活性体35に化学反応の活性化エネルギーを下げる機能がないことをいう。

[0033] 不活性体35は、アルミナ、シリカ、マグネシア、チタニア、ジルコニア、ニオブア、シリカ・アルミナ、ゼオライト、リン酸カルシウムの1種以上を含む酸化物の粉末、ペレット又は多孔質構造体が例示される。多孔質構造体は原料ガスが通過できる通気性を有する。また、粉末およびペレットの間の空隙を原料ガスが通過する。

[0034] 水素と二酸化炭素とが混ざった原料ガスを反応容器20に流通すると、原料ガスは順に第1部31、第2部32、第3部33を通過し、メタンと水を生成する化学反応が進行する。第2部32は、不活性体35に触媒活性がなく、活性化エネルギーを下げる度合いが第1部31よりも小さいため、反応速度が第1部31よりも小さくなり温度が低下する。第3部33は、触媒36により、活性化エネルギーを下げる度合いが第2部32よりも大きいため、反応速度が第2部32よりも大きくなり反応熱により温度が上昇する。しかし、第3部33にはメタン及び水蒸気が存在するため、第3部33の反応熱はそれほど大きくなる。また、第3部33と第1部31との間に第2部32が介在するので、第3部33の熱は第1部31に伝わりにくく、第1部31の温度はそれほど高くなる。従って触媒34、36の劣化を低減

できる。

[0035] 第1部31の触媒34の触媒活性は、第3部33の触媒36の触媒活性と同じ、又は、第3部33の触媒36の触媒活性より低い。原料ガスの流れの方向における第1部31の厚さは、原料ガスの流れの方向における第3部33の厚さよりも小さい。原料ガスの流れの方向における第2部32の厚さは、原料ガスの流れの方向における第3部33の厚さよりも小さい。

[0036] 原料ガスの流れの方向における第2部32の厚さは、原料ガスの流れの方向における第1部31の厚さよりも小さい。よって第2部32の厚さが第1部31の厚さよりも大きい場合に比べ、反応容器20の全長を小さくできる。

[0037] 図5を参照して第3実施の形態における反応装置40を説明する。第1実施形態および第2実施形態では、第1部21、31の厚さが第3部23、33の厚さよりも小さい場合について説明した。これに対し第3実施形態では、第1部41の厚さと第3部43の厚さとが同じ場合について説明する。第1実施形態において説明した部分と同一の部分については、同一の符号を付して以下の説明を省略する。図5は第3実施の形態における反応装置40の断面図である。

[0038] 反応装置40は、原料ガスの流れの方向に沿って、順に第1部41、第2部42、第3部43を含む。反応容器20は触媒44、46及び低活性触媒45を内包する。第1部41及び第3部43はそれぞれ触媒44、46を含む。触媒44の触媒活性は、触媒46の触媒活性よりも低い。第2部42は、触媒44、46の触媒活性よりも触媒活性が低い低活性触媒45を含む。

[0039] 水素と二酸化炭素とが混ざった原料ガスを反応容器20に流通すると、原料ガスは順に第1部41、第2部42、第3部43を通過し、メタンと水を生成する化学反応が進行する。第2部42は、低活性触媒45の触媒活性が触媒44の触媒活性より低く、活性化エネルギーを下げる度合いが第1部41よりも小さいため、反応速度が第1部41よりも小さくなり温度が低下する。第3部43は、触媒46により、活性化エネルギーを下げる度合いが第

2部4 2よりも大きいため、反応速度が第2部4 2よりも大きくなり反応熱により温度が上昇する。しかし、第3部4 3にはメタン及び水蒸気が存在するため、第3部4 3の反応熱はそれほど大きくなる。また、第3部4 3と第1部4 1との間に第2部4 2が介在するので、第3部4 3の熱は第1部4 1に伝わりにくく、第1部4 1の温度はそれほど高くなる。従って触媒4 4、4 6及び低活性触媒4 6の劣化を低減できる。

[0040] 原料ガスの流れの方向における第1部4 1の厚さは第3部4 3の厚さと同じだが、第1部4 1の触媒4 4の触媒活性は、第3部4 3の触媒4 6の触媒活性より低いので、第1部4 1における反応熱が過大にならないようにできる。

[0041] 図6を参照して第4実施の形態における反応装置5 0を説明する。第1実施形態から第3実施形態では、第2部2 2、3 2、4 2に低活性触媒2 5、4 5又は不活性体3 5が配置される場合について説明した。これに対し第4実施形態では、第2部5 2に配管5 5が設けられる場合について説明する。第1実施形態において説明した部分と同一の部分については、同一の符号を付して以下の説明を省略する。図6は第4実施の形態における反応装置5 0の断面図である。

[0042] 反応装置5 0は、原料ガスの流れの方向に沿って、順に第1部5 1、第2部5 2、第3部5 3を含む。第1部5 1及び第3部5 3はそれぞれ触媒5 4、5 7を含む。第2部5 2は、第1部5 1と第3部5 3とを接続する配管5 5と、配管5 5に配置された凝縮器5 6と、を含む。第1部5 1及び第3部5 3は、適度な圧力に設定されると共にヒーター（図示せず）によって加熱される。凝縮器5 6の周辺にヒーターは配置されていない。

[0043] 水素と二酸化炭素とが混ざった原料ガスを第1部5 1に供給すると、原料ガスは順に第1部5 1、第2部5 2、第3部5 3を通過し、メタンと水を生成する化学反応が進行する。第2部5 2は、触媒が配置されておらず、活性化エネルギーを下げる度合いが第1部5 1よりも小さいため、反応速度が第1部5 1よりも小さくなり温度が低下する。第3部5 3は、触媒5 7により

、活性化エネルギーを下げる度合いが第2部52よりも大きいため、反応速度が第2部52よりも大きくなり反応熱により温度が上昇する。しかし、第3部53にはメタンが存在するため、第3部53の反応熱はそれほど大きくならない。また、第3部53と第1部51との間に第2部52が介在するので、第3部53の熱は第1部51に伝わりにくく、第1部51の温度はそれほど高くない。従って触媒54、57の劣化を低減できる。

[0044] 特に配管55に凝縮器56が配置されており、凝縮器56の周辺にヒーターは配置されていないので、第1実施形態から第3実施形態の第2部22、32、42に比べ、第2部52を冷やすことができる。

[0045] 第1部51の触媒54の触媒活性は、第3部53の触媒57の触媒活性と同じ、又は、第3部53の触媒57の触媒活性より低い。原料ガスの流れの方向における第1部51の厚さは、原料ガスの流れの方向における第3部53の厚さよりも小さい。従って第1部51の触媒54の触媒活性が第3部53の触媒57の触媒活性と同じであっても、第1部51の厚さが第3部53の厚さよりも大きい場合に比べ、反応熱による第1部51の温度を低減できる。よって触媒54の劣化を低減できる。

[0046] 第2部52の配管55に配置された凝縮器56によって、第1部51における反応の生成物は氷温に冷却され、水が分離される。第2部52を通過して第3部53に供給される水蒸気を低減できるので、第3部53における反応速度を大きくできる。

[0047] 以上、実施の形態に基づき本発明を説明したが、本発明は上記実施形態に何ら限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲内で種々の改良変形が可能であることは容易に推察できるものである。

[0048] 実施形態では、第1部21、31、41、第2部22、32、42及び第3部23、33、43の内径が同一の場合について説明したが、必ずしもこれに限られるものではない。第1部21、31、41、第2部22、32、42及び第3部23、33、43の内径を異ならせることは当然可能である。

[0049] 第4実施形態では、第2部52に設けられた凝縮器56の周辺にヒーターが配置されていない場合について説明したが、必ずしもこれに限られるものではない。凝縮器56の冷却能力が大きい場合には、ヒーターによる第2部52の温度上昇を低減できるので、凝縮器56の周辺にヒーターを配置して良い。

[0050] 第4実施形態では、第2部52が凝縮器56を含む場合について説明したが、必ずしもこれに限られるものではない。凝縮器56を省くことは当然可能である。第1部51と第3部53とを配管55で接続することにより、第1部51や第3部53における反応速度に比べて第2部52における反応速度を小さくできるからである。

[0051] 第4実施形態では、第2部52に設けられた配管55に凝縮器56が配置される場合について説明したが、必ずしもこれに限られるものではない。凝縮器56に代えて、触媒54、57よりも触媒活性が低い低活性触媒や触媒活性のない不活性体を配管55に配置することは当然可能である。

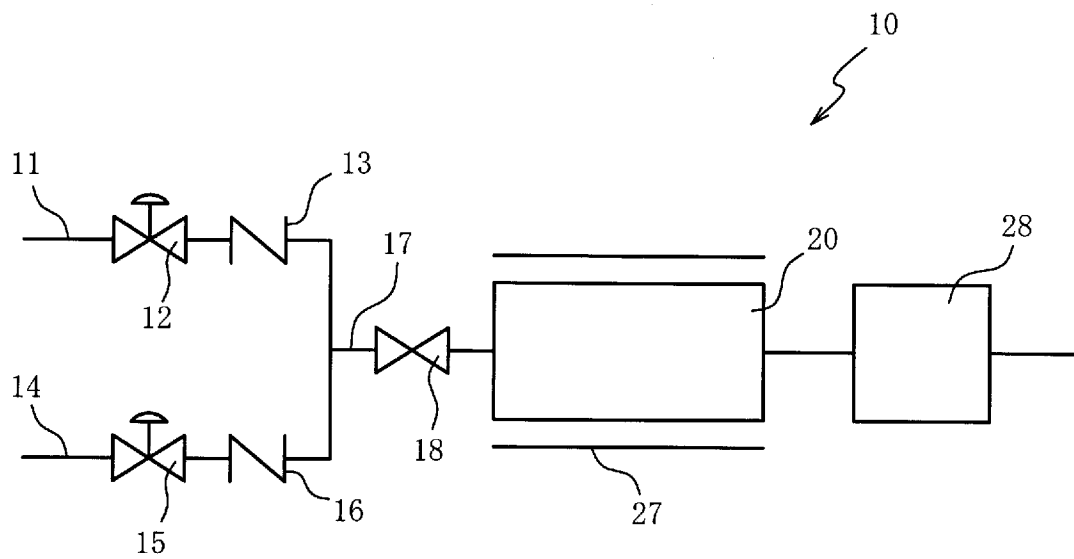
符号の説明

- [0052] 10, 30, 40, 50 反応装置
20 反応容器
21, 31, 41, 51 第1部
22, 32, 42, 52 第2部
23, 33, 43, 53 第3部
24, 26, 34, 36, 44, 46, 54, 57 触媒
25, 45 低活性触媒
35 不活性体

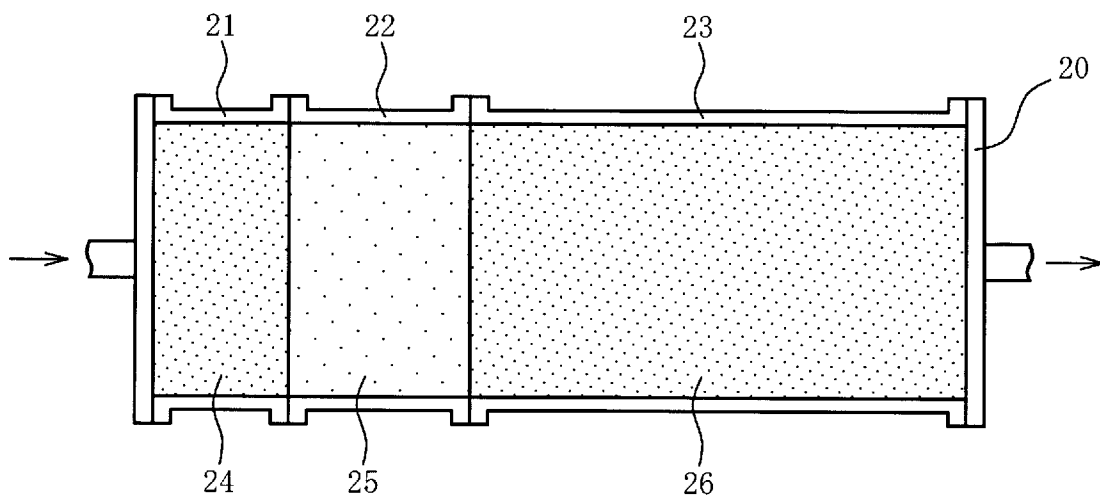
請求の範囲

- [請求項1] 入口から出口に向かって原料ガスが流通する反応容器と、前記反応容器が内包する触媒と、を備え、発熱を伴う化学反応が起こる反応装置であって、
- 前記原料ガスの流れの方向に沿って、順に、第1部、第2部、第3部を含み、
- 前記第1部、前記第2部、前記第3部のうち前記化学反応の活性化エネルギーを下げる度合いは、前記第2部が最も小さい反応装置。
- [請求項2] 入口から出口に向かって原料ガスが流通する反応容器と、前記反応容器が内包する触媒と、を備え、発熱を伴う化学反応が起こる反応装置であって、
- 前記原料ガスの流れの方向に沿って、順に、第1部、第2部、第3部を含み、
- 前記第1部で温度が上昇し、前記第2部で温度が低下し、前記第3部で温度が上昇する反応装置。
- [請求項3] 前記第2部は、触媒活性のない不活性体、又は、前記第1部および前記第3部に含まれる触媒の触媒活性よりも触媒活性が低い低活性触媒を含む請求項1記載の反応装置。
- [請求項4] 前記第1部は、前記第3部に含まれる触媒の触媒活性よりも触媒活性が低い触媒を含む請求項1又は3に記載の反応装置。
- [請求項5] 前記流れの方向における前記第1部の厚さは、前記流れの方向における前記第3部の厚さよりも小さい請求項1又は3に記載の反応装置。
- [請求項6] 前記化学反応は、水素および二酸化炭素を含む前記原料ガスからメタンを合成する反応である請求項1又は2に記載の反応装置。

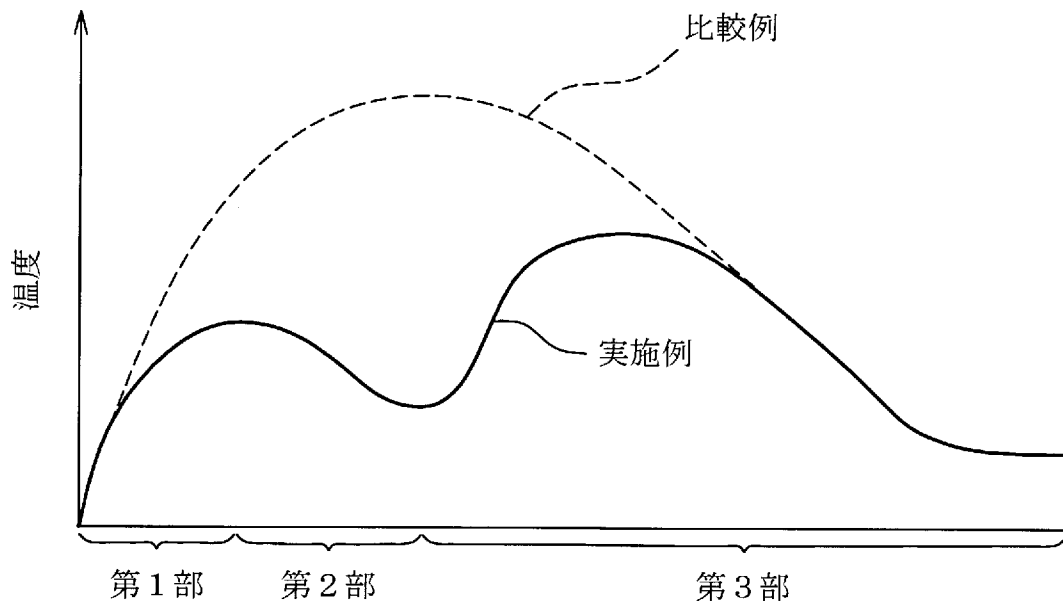
[図1]



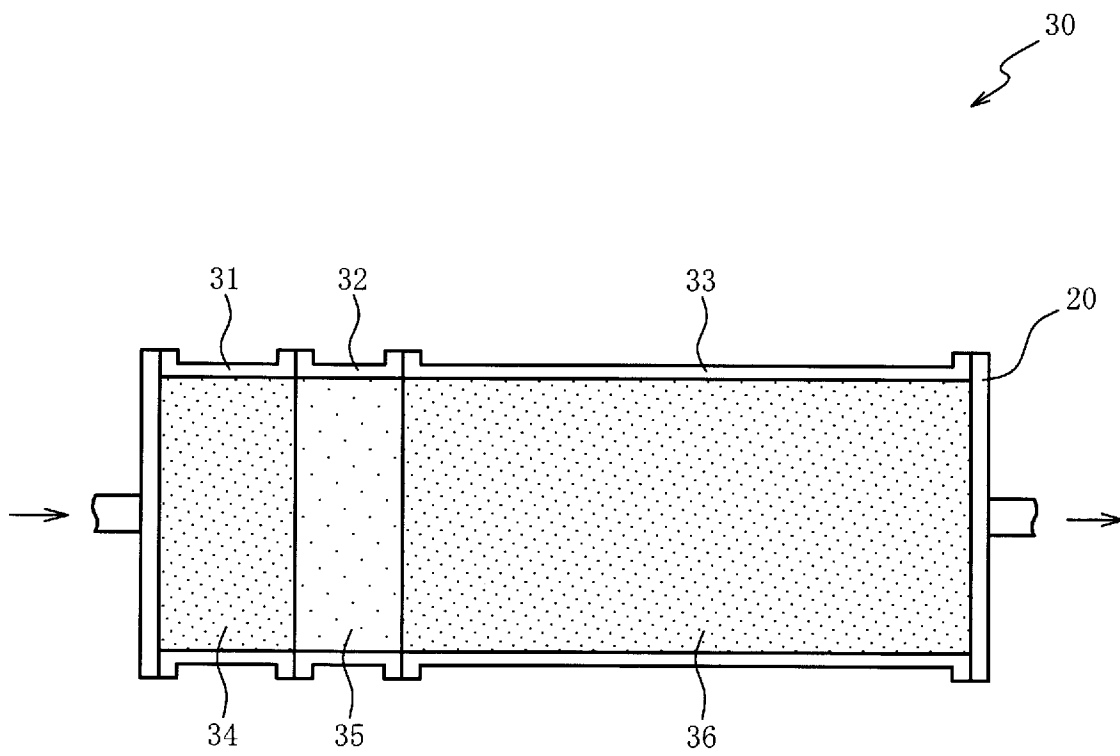
[図2]



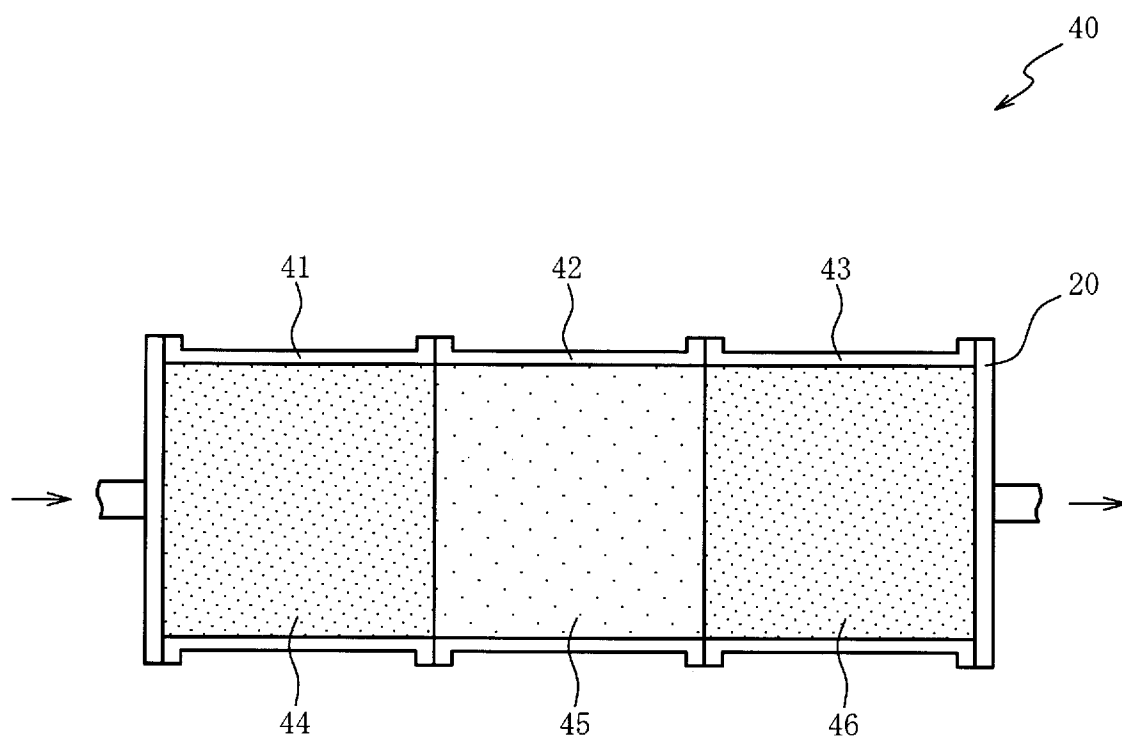
[図3]



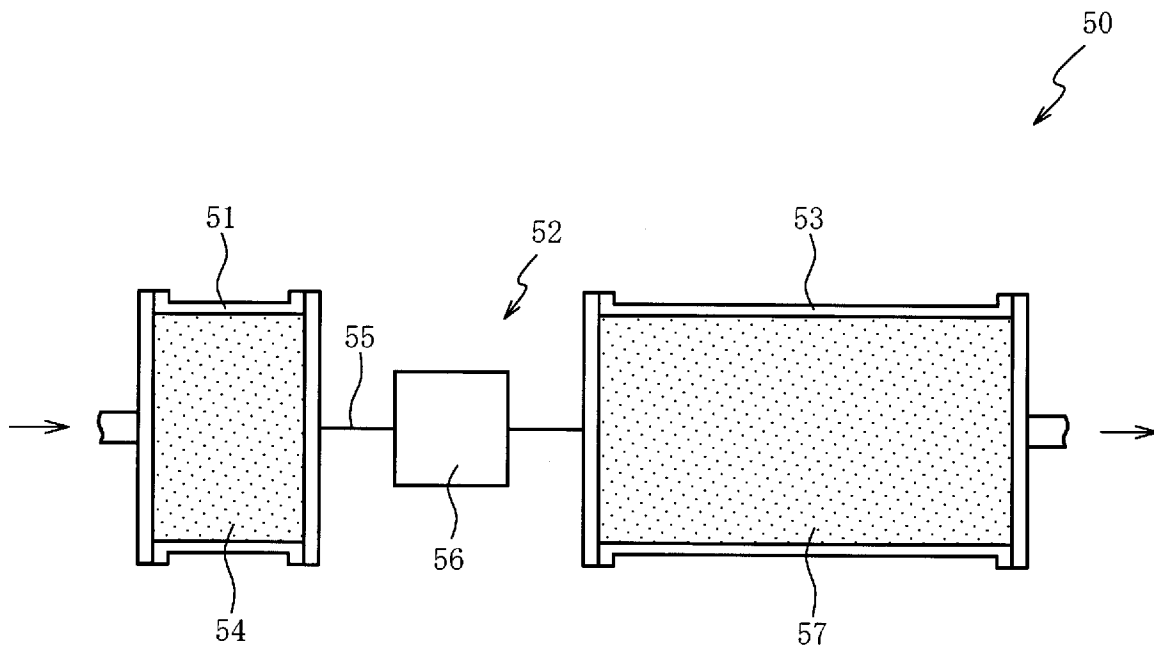
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/016259

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C07C 1/12</i> (2006.01)i; <i>C07C 9/04</i> (2006.01)i; <i>C07B 61/00</i> (2006.01)i; <i>B01J 8/04</i> (2006.01)i FI: B01J8/04 311A; C07B61/00 300; C07C9/04; C07C1/12		
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; C07C9/04; C07B61/00; B01J8/04		
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 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
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	JP 3-57906 B2 (AMOCO CORP) 03 September 1991 (1991-09-03) claims, column 10, line 38 to column 11, line 6, column 20, lines 25-32, fig. 4	1-5
X	JP 2009-534184 A (BASF SE) 24 September 2009 (2009-09-24) claims, examples, fig. 2, 4	1-5
X	JP 2002-143675 A (KAWASAKI HEAVY IND LTD) 21 May 2002 (2002-05-21) paragraph [0030], fig. 9	1, 3, 5
X	JP 2015-124217 A (HITACHI LTD) 06 July 2015 (2015-07-06) claims, paragraphs [0035]-[0036], [0050]-[0053], examples, fig. 1-2	1-6
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 "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 03 July 2023		Date of mailing of the international search report 18 July 2023
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/JP2023/016259

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 3-57906 B2	03 September 1991	(Family: none)	
JP 2009-534184 A	24 September 2009	US 2009/0171101 A1 examples, claims, fig. 2, 4 EP 1852413 A1 TW 200800879 A	
JP 2002-143675 A	21 May 2002	(Family: none)	
JP 2015-124217 A	06 July 2015	(Family: none)	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C07C 1/12(2006.01)i; C07C 9/04(2006.01)i; C07B 61/00(2006.01)i; B01J 8/04(2006.01)i FI: B01J8/04 311A; C07B61/00 300; C07C9/04; C07C1/12</p>																	
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C07C1/12; C07C9/04; C07B61/00; B01J8/04</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2023年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年							
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																
日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年																
日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年																
日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年																
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 3-57906 B2 (アモコ・コーポレーション) 03.09.1991 (1991-09-03) 特許請求の範囲、第10欄第38行-第11欄第6行、第20欄第25-32 行、第4図</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2009-534184 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 24.09.2009 (2009-09-24) [特許請求の範囲]、[実施例]、第2、4図</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2002-143675 A (川崎重工業株式会社) 21.05.2002 (2002-05-21) [0030]、第9図</td> <td>1,3,5</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2015-124217 A (株式会社日立製作所) 06.07.2015 (2015-07-06) [特許請求の範囲]、[0035]-[0036]、[0050]-[0053]、実施 例、第1-2図</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			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 3-57906 B2 (アモコ・コーポレーション) 03.09.1991 (1991-09-03) 特許請求の範囲、第10欄第38行-第11欄第6行、第20欄第25-32 行、第4図	1-5	X	JP 2009-534184 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 24.09.2009 (2009-09-24) [特許請求の範囲]、[実施例]、第2、4図	1-5	X	JP 2002-143675 A (川崎重工業株式会社) 21.05.2002 (2002-05-21) [0030]、第9図	1,3,5	X	JP 2015-124217 A (株式会社日立製作所) 06.07.2015 (2015-07-06) [特許請求の範囲]、[0035]-[0036]、[0050]-[0053]、実施 例、第1-2図	1-6
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 3-57906 B2 (アモコ・コーポレーション) 03.09.1991 (1991-09-03) 特許請求の範囲、第10欄第38行-第11欄第6行、第20欄第25-32 行、第4図	1-5															
X	JP 2009-534184 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 24.09.2009 (2009-09-24) [特許請求の範囲]、[実施例]、第2、4図	1-5															
X	JP 2002-143675 A (川崎重工業株式会社) 21.05.2002 (2002-05-21) [0030]、第9図	1,3,5															
X	JP 2015-124217 A (株式会社日立製作所) 06.07.2015 (2015-07-06) [特許請求の範囲]、[0035]-[0036]、[0050]-[0053]、実施 例、第1-2図	1-6															
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																	
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>																	
<p>国際調査を完了した日</p> <p>03.07.2023</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>18.07.2023</p>																
<p>名称及びあて先</p> <p>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</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>中村 泰三 4Q 9040</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3468</p>																

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/JP2023/016259

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 3-57906 B2	03.09.1991	(ファミリーなし)	
JP 2009-534184 A	24.09.2009	US 2009/0171101 A1 EXAMPLES, Claims, Figures 2, 4 EP 1852413 A1 TW 200800879 A	
JP 2002-143675 A	21.05.2002	(ファミリーなし)	
JP 2015-124217 A	06.07.2015	(ファミリーなし)	