

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 12 月 8 日 (08.12.2005)

PCT

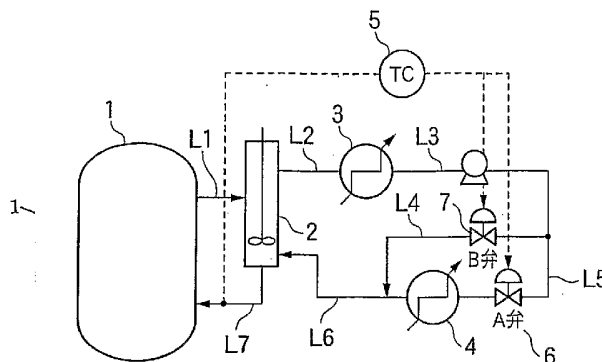
(10) 国際公開番号
WO 2005/115606 A1

- (51) 国際特許分類: B01J 8/06, C07C 51/25, 57/05 // C07B 61/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/018231
- (22) 国際出願日: 2004 年 12 月 1 日 (01.12.2004)
- (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2004-158036 2004 年 5 月 27 日 (27.05.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱化学株式会社 (MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION) [JP/JP]; 〒1080014 東京都港区芝五丁目 3 番 8 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 金丸 高志 (KANAMARU, Takashi) [JP/JP]; 〒5108530 三重県四日市市東邦町 1 番地 三菱化学株式会社内 Mie (JP). 矢田 修平 (YADA, Shuhei) [JP/JP]; 〒5108530 三重県四日市市東邦町 1 番地 三菱化学株式会社内 Mie (JP). 神野 公克 (JINNO, Kimikatsu) [JP/JP]; 〒5108530 三重県四日市市東邦町 1 番地 三菱化学株式会社内 Mie (JP).
- (74) 代理人: 小栗 昌平, 外 (OGURI, Shohei et al.); 〒1076013 東京都港区赤坂一丁目 1 番 3 2 号 アーク森ビル 13 階 栄光特許事務所 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,

/ 続葉有 /

(54) Title: REACTOR, REACTOR CONTROL SYSTEM, AND CATALYTIC GAS PHASE OXIDATION REACTION METHOD

(54) 発明の名称: 反応装置、反応装置制御システム、及び接触気相酸化反応方法



7 VALVE B
6 VALVE A

(57) Abstract: A multitubular reactor capable of properly performing reaction by suppressing and rapidly settling a variation in the temperature of a heat medium and its control system, particularly, properly applicable to a catalytic gas phase oxidation reaction in manufacturing (metha) acrylic acid. The reactor comprises a multitubular reactor vessel having a plurality of reaction tubes in a shell in which the heat medium flows and a heat medium cooling device installed on the outside of the reactor vessel. The reactor and its control method comprises a step for primarily cooling the heat medium taken out to the outside of the shell, a step for secondarily cooling a part of the primarily cooled heat medium, and a line for circulating, in the shell, the secondarily cooled heat medium and the heat medium primarily cooled but not secondarily cooled.

(57) 要約: 本発明の課題は、熱媒の温度変化を抑制でき、かつ温度の変動を速やかに整定できて、好適に反応を行い得る多管式反応装置、及びその制御システム、特に (メタ) アクリル酸等の製造の如き接触気相酸化反応に好適に適用できるそれらを提供すること

/ 続葉有 /

WO 2005/115606 A1



ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

- (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, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

とである。本発明は、熱媒が流通するシェル内に複数の反応管を有する多管式反応器と、その外部に熱媒冷却装置を有する反応装置であって、シェル外部に取り出された熱媒を1次冷却する工程、1次冷却された熱媒の一部を2次冷却する工程、及び2次冷却された熱媒と、1次冷却され、2次冷却されてない熱媒とを前記シェル内に循環させるラインを有する反応装置、及びその制御方法である。

明 細 書

反応装置、反応装置制御システム、及び接触気相酸化反応方法

<技術分野>

本発明は、熱媒の温度変化を抑制でき、かつ温度の変動を速やかに整定できて、好適に反応を行い得る多管式反応装置、及びその制御システムに関し、例えば、接触気相酸化法によりプロパン、プロピレンまたはイソブチレンから（メタ）アクリル酸等を製造する際、暴走反応または触媒の早期劣化を防止して、長期間にわたって安定的に高収率に製造することができる、接触気相酸化反応に好適に適用できる多管式反応装置、及びその制御システムに関する。

<背景技術>

従来から、プロパン、プロピレンまたはイソブチレンから（メタ）アクリル酸等を製造する場合など、接触気相酸化法による化合物の製造に当たり多管式反応装置が使用されている（例えば、特開 2 0 0 4 - 2 6 7 9 9 号公報参照）。通常、多管式反応器は、反応器のシェル内に、触媒が充填された複数の反応管と当該シェル内に導入された熱媒をシェル内全体へ行き渡らすために開口を有する複数の邪魔板とが内装された構造を有している。そして、シェル内を流れる熱媒の温度を検出して、この検出結果に基づいて当該シェル内の熱媒温度を均一に管理しながら多管式反応器の運転制御を行うのが一般的である。

熱媒温度を均一に管理する方法としては、熱媒の一部を反応器の外部に取り出し、特定の測定点、例えば熱媒循環ポンプ出口、の熱媒温度が一定となるよう冷却して反応器に戻す方法が一般に行なわれている。このとき、冷却負荷を一定とするならば、熱媒の外部循環流量を制御し、逆に外部循環流量を一定とするならば、熱媒の冷却負荷を制御する必要がある。

しかし、上記のような接触気相酸化反応は一般に発熱の大きな反応であるため、外部循環量を変化させる場合において循環量が低下している状態で反応温度が上

昇した場合は、冷却が間に合わずに暴走反応を招いたり、ホットスポットの発生により触媒寿命を低下させたりする恐れがあるという問題がある。

また、冷却負荷を変化させる場合には、温度制御計器の指示により熱交換器の冷却水量が変化し、その変化が熱媒に伝わり、さらにその熱媒が熱媒循環ポンプに送り込まれ、測定点の温度が変化するという具合に、多くの段階を経て制御が行なわれるために制御の時間遅れが発生しやすく、設定温度を超えて実際の温度が変化する、いわゆるオーバーシュートが起きやすく安定しにくいという問題がある。

<発明の開示>

本発明の目的は、上記従来の問題を解決し得て、熱媒の温度変化を抑制でき、かつ温度の変動を速やかに整定できて、好適に反応を行い得る多管式反応装置、及びその制御システムを提供することにある。また、プロパン、プロピレンまたはイソブチレンから（メタ）アクリル酸等を製造する場合などの接触気相酸化反応に好適に適用できる多管式反応装置、及びその制御システムを提供することにある。

本発明は、上記目的を達成するために、次の反応装置、反応装置制御システム、及び接触気相酸化反応方法を提供する。

（１）シェルと、該シェル内に設けられて触媒が充填された複数の反応管とを有し、該シェル内を熱媒が流通する多管式反応器、及び該反応器の外部に熱媒の冷却装置を有する反応装置であって、前記シェルの外部に取り出された熱媒の少なくとも一部を１次冷却する工程、１次冷却された熱媒の一部を２次冷却する工程、及び２次冷却された熱媒と、１次冷却された熱媒の２次冷却に付されなかった残部とを前記シェル内に循環させるラインを有することを特徴とする反応装置。

（２）上記（１）に記載の反応装置において、シェル側熱媒温度及び触媒温度から選ばれた少なくとも１点の温度に基づいて、２次冷却された熱媒の流量と、１次冷却された熱媒の２次冷却に付されなかった残部の流量とを調節することにより、シェル内に循環させる熱媒の温度を調節することを特徴とする反応装置制

御システム。

(3) シェル内に循環させる熱媒の温度を調節するに際し、1次冷却された熱媒の少なくとも一部を2次冷却する工程に供するラインに設けられた流量制御弁と、2次冷却する工程に供することなくバイパスさせる1次冷却された熱媒のラインに設けられた流量制御弁とが逆方向に作動することを特徴とする上記(2)に記載の反応装置制御システム。

(4) 上記(1)に記載の反応装置を用い、該反応装置を上記(2)及び(3)に記載の反応装置制御システムによって温度を制御して接触気相酸化反応を行うことを特徴とする接触気相酸化反応方法。

(5) シェルと、該シェル内に設けられて触媒が充填された複数の反応管とを有し、該シェル内を熱媒が流通する多管式反応器、及び該反応器の外部に少なくとも一つの熱媒の冷却装置を有する反応装置を制御するシステムであって、前記シェルの外部に取り出された熱媒の少なくとも一部を熱媒の冷却装置に供するラインに設けられた流量制御弁と、熱媒の冷却装置に供することなくバイパスする熱媒のラインに設けられた流量制御弁を用いて、シェル内に循環させる熱媒の温度を調節することを特徴とする反応装置制御システム。

本発明の反応装置の要諦は、シェルの外部に取り出された熱媒を目安の温度まで一旦冷却し、該目安の温度まで冷却した熱媒の一部を(流量を小さくすることで温度制御を行ない易くして)更に冷却し、この目安の温度まで冷却した熱媒と、良好な温度制御のもとに更に冷却した熱媒とを混合することを特徴とすることであり、本反応装置を用いることによって熱媒の高精度の温度制御を行なうことができる。プロパン、プロピレンまたはイソブチレンからの(メタ)アクリル酸の製造などの際に求められる温度制御に必要な精度は一般に0.2～1℃であって、大量循環される熱媒の温度を一段の冷却にてこの精度で温度制御することはなかなか困難であるが、本発明の装置によってこの精度の制御が可能となる。

<図面の簡単な説明>

図1は、本発明の反応装置および熱媒の温度制御システムの一例であり、図2

は、本発明で好ましく行われる熱媒流量制御の概念図であり、図 3 は、一般的に行なわれるスプリット制御の概念図であり、図 4 は、実施例 1 における運転データ、図 5 は、実施例 2 における運転データ、図 6 は、実施例 3 における運転データ、図 7 は、実施例 4 における運転データである。

なお、図中の符号、1 はシェル、2 は循環ポンプ、3 と 4 は熱交換器、5 は温度制御計器 (TC)、6 は A 弁、7 は B 弁、L1 は導管、L2 は排出管、L3 は排出管、L4 は循環流路、L5 は循環流路、L6 は熱媒供給管、L7 は導管である。

<発明を実施するための最良の形態>

本発明を図 1 ～図 3 に基づいて詳細に説明するが、本発明の態様はこれらの図に記載の範囲に限定されるものではない。

図 1 は本発明の反応装置の 1 例である。図 1 において、1 は多管式反応器のシェルであって、当該シェル内には触媒が充填された複数の反応管（図示省略）が下部管板と上部管板の両者（図示省略）によって固定されて内装されている。シェルの上下端には反応の原料ガスの出入り口（図示省略）が設けられており、当該原料ガスは反応管内を上昇或いは下降の流れ方向で流通する。この原料ガスの流れ方向は特に限定されないが、上昇流がより好ましい。

また、シェル 1 には、熱媒を導入する導管 L7 が設けられており、循環ポンプ 2 によって昇圧された熱媒は導管 L7 よりシェル 1 内に導入される。シェル 1 内に導入された熱媒は、シェル 1 内に内装されている邪魔板によって流れ方向を転換しながら上昇し、この間に熱媒は反応管の外面と接触して反応熱を奪った後、シェル 1 に設けられた導管 L1 より循環ポンプ 2 に戻る。

反応熱を吸収した熱媒の一部は、循環ポンプ 2 の上部に設けられた排出管 L2 より取り出され、熱交換器 3 によって冷却（1 次冷却）された後、必要に応じた任意の割合で後記 A 弁 6 及び B 弁 7 の作動に応じて、循環流路 L4 と L5 とに分割され、循環流路 L5 に分割されたものをさらに熱交換器 4 で冷却する。かくして、温度の異なる 2 つの熱媒流（1 次冷却されたのみの高温熱媒流と、1 次冷却及び 2 次冷却された低温熱媒流）となし、その 2 つの熱媒流を混合して再び熱媒供給

管 L6 より循環ポンプ 2 に吸入されてシェル 1 内に導入される。

温度の異なる 2 つの熱媒流の流量は、温度制御計器 (TC) 5 の指示を受けて動作する A 弁 6 (低温熱媒制御弁) および B 弁 7 (高温熱媒制御弁) で制御される。このとき A 弁 6 と B 弁 7 は逆方向に動作するようにすることが好ましい。すなわち、図 2 に図示する温度制御計器 (TC) 5 と A 弁 6 と B 弁 7 との制御系 (左側の図) と出力対弁開度関係図 (右側の図) において、出力対弁開度関係図が示すように、A 弁 6 と B 弁 7 の開閉動作は TC の制御出力に対して逆方向に動作するようにすることが好ましい。そうするとき、より具体的にいえば、測定温度 (PV) が設定温度 (SV) より高くなった場合は制御出力 (MV) を下げて PV を SV に合わせる動作を行うこととし、この MV の変化に合わせて冷却負荷を大きくするために A 弁 6 を開く方向に動かしながら B 弁 7 を閉じる方向に動かすよう設定する。制御弁の動作は MV に同調するようにするため、MV が 0 % の時は A 弁 6 が全開で、B 弁 7 が全閉となり、MV が 100 % の時は逆に B 弁 7 が全開で、A 弁 6 が全閉となる。かくして、シェル 1 から取り出した熱媒を、高温と低温の 2 種類の流れになし、それらの混合比率を連続的に変化させることにより、熱媒循環量を変化させることなく反応温度を精度よく制御することが本発明の特徴である。

一つの制御出力で複数 (通常は 2 つ) の制御弁を駆動すること自体は既知であるが、その際一般的に行なわれるのは、スプリット制御と呼ばれるものである (図 3 参照)。この制御方法には、2 種類の方法があり、その一つは V 特性制御 (図 3 (a) 参照; 逆特性の弁を組み合わせる) であり、他の一つは平行特性制御 (図 3 (b) 参照; 同一特性の弁を組み合わせる) である。

本発明は、上記のように、高温と低温という逆の性質を有する 2 種類の流体の流量を制御して温度を制御しようとするものであり、このような場合には一般的に図 3 (a) の V 特性制御が行なわれる。しかしながら、この制御法では、本発明が対象としている接触気相酸化反応は発熱の大きな反応であるため、制御出力が 50 % 近辺において熱媒循環量が低下している状態で反応温度が上昇した場合は、冷却が間に合わずに暴走反応を招いたり、ホットスポットの発生により触媒

寿命を低下させたりする恐れがある。

上記一般的制御方法に対して、図 2 に示す本発明の制御方法では、熱媒循環量が増減しないので反応温度の変化にも迅速に追従でき、制御のオーバーシュートもなく反応器温度の整定が早いという特徴がある。

本発明で用いられる制御計器は反応温度を安定に保つことを目的とするので、入力値は反応器温度である。しかし、反応器温度は、原料ガスや熱媒の流速、触媒の充填状態の違い、あるいは測定点の位置により異なるため、多くの場合は特定の測定点を代表として制御する。反応器の温度測定位置としては、シェル側の熱媒中あるいは反応管内の触媒充填層のいずれか、あるいは両方が選ばれる。シェル側熱媒の温度としては、循環ポンプ 2 の出口 L7 あるいは入口 L1 とするのが一般的であるが、さらにシェル内や循環経路 L2～L6 の温度を参照することも有効である。また、反応管内の触媒充填層の温度を測定する場合は、単一の測定点とするよりも複数の反応管の温度を測定する方がよく、反応管の管軸方向の温度分布が測定できるよう測定位置（反応管入口からの距離）も変えて測定する方が好ましい。

温度の測定点が 1 点の場合は、通常の P I D 制御計器によるフィードバック制御で A 弁および B 弁の開度を制御し、反応器温度を安定させる。フィードバック制御で反応温度の安定化が困難な場合は、測定した温度とともに原料流量と空気温度などを考慮したフィードフォワード制御を行なうことが好ましい。このとき、上述したように複数の測定点の温度を入力して演算を行って制御出力を求めることがさらに好ましい。

本発明で流量を制御するために使用する弁は、グローブ弁やバタフライ弁など、閉止状態から開放状態までの間で連続的に通過流量を変え得るものならばいずれも支障なく使用することができる。

また、熱媒としては、多管式反応装置における熱媒として周知のものから必要に応じて適宜選択して使用することができるが、無機塩類の混合物であるナイターやフェニルエーテル系有機液体などのような制御弁が作動不良を起こし易い高温熱媒体を用いる場合に好適に本発明の反応装置制御システムを適用することが

できる。

ナイターの組成を例示すると、53 重量%の KNO_3 (硝酸カリウム) , 40 重量%の NaNO_2 (亜硝酸ナトリウム) 及び 7 重量%の NaNO_3 (硝酸ナトリウム) である。これとは別の重量組成にすると混合物の融点が変わる。ナイターの組成及びその許容範囲は、それが使用される温度条件に依存する。

KNO_3 (硝酸カリウム) , NaNO_2 (亜硝酸ナトリウム) 及び NaNO_3 (硝酸ナトリウム) には、各々純度 95 重量%以上の工業製品を用いることが好ましい。純度が 95 重量%未満であると、混合物として設計された融点からのズレが大きくなる傾向がある。

本発明では、多管式反応器自体は、シェルと、該シェル内に設けられて触媒が充填された複数の反応管とを有し、該シェル内を熱媒が流通する構成のものであれば、周知の多管式反応器を適宜用いることができる。

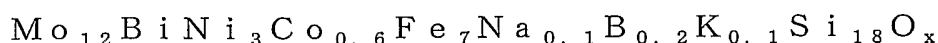
また、本発明は、適用する反応を制限するものではないが、既述のように、プロパン、プロピレンまたはイソブチレンからの (メタ) アクリル酸の製造などのように発熱の大きな接触気相酸化反応に好適である。

<実施例>

以下、実験例により更に具体的に本発明を説明するが、本発明は以下の実験例に限定されるものではない。

実施例 1

下記組成式の複合化合物を触媒として用いた。



(組成式中の添数字は構成元素の組成 (原子比) であり酸素の組成 x は各金属の酸化状態によって定まる値である)。

上記組成式の複合化合物を特開昭 63-54942 号公報に従って製造し、粉末状態の触媒を得た。当該触媒粉を外径 5 mm ϕ 、内径 2 mm ϕ 、高さ 4 mm のリング状に成型した。

また、長さ 3,500 mm、内径 25.4 mm ϕ のステンレス製反応管 10,

000本と、内径4,500mmφのシェルとを有する多管式反応器を用いた。この反応器のシェル側には、開口比18%の円板形とドーナツ型の邪魔板が等間隔、交互に設置されている。

各反応管に前記の触媒を1.5L充填し、反応器下部よりゲージ圧75kPaでプロピレン濃度9容量%、分子状酸素14.5容量%、水9容量%、窒素67.5容量%の原料ガスを供給した。

熱媒の温度調節を図1に基づいて行った。熱媒としては前記組成の硝酸塩類混合物の熔融塩ナイターを用いた。熱媒は、循環ポンプ2により循環され、シェル1の出口と入口の温度差が4℃になるように循環流量を調節した。反応の温度を制御するPID温度制御計器(TC)5の入力信号は、循環ポンプ2の出口配管L7に設置した温度検出器(図示せず)から取った。

熱媒の温度を一定に維持するため、熱媒の一部を排出管L2から拔出し、熱交換器3で冷却した。熱交換器3の出口ラインL3は、熱媒をさらに熱交換器4で冷却するラインL5と熱交換器4をバイパスするラインL4に分岐し、ラインL4とL5に流量を制御する弁が設置されている。熱媒はこれらのラインL4とL5を任意の割合で通過しながら、L5を通過する熱媒は熱交換器4でさらに冷却し、その後合流してL6から循環ポンプ出口に戻した。

A弁6とB弁7は、図2に示したようにTCの出力に対して逆方向に動作するようにした。

また、本実施例では、TCの入力信号とともに原料フィード量と空気温度を同時に測定し、これらの入力値をもとにTCの制御出力MVを演算するフィードフォワード制御を行なった。

上述の条件でプロセスの整定のために24時間にわたり運転を継続した後、運転ロードを20分かけて2.4%増やした。熱媒の温度(PV)はほとんど変動しなかった。この時のTCの応答を図4に示した。なお、図4～7において、運転ロードは、原料フィード量の上限值に対する実施時のフィード量の割合(%)で示した。

実施例2

原料フィード量と空気温度による補正を弱くした（影響の強さの重み付けの重みを小さくした）以外、実施例 1 と同様に実施した。熱媒温度測定値によるフィードバック制御主体で運転した。運転ロードを変化させたことに加えてその 30 分後に反応温度調整のため S V を 0.5℃上げたので、P V に約 1℃の変動が生じたが、200 分以内で収束し、S V 変更への追従性も良好であった。この時の T C の応答を図 5 に示した。

実施例 3

原料フィード量と空気温度による補正をせず、T C に入力した熱媒温度測定値によるフィードバック制御のみとした以外、実施例 1 と同様に実施した。運転ロードを変化させた 30 分後に反応温度調整のため S V を 0.5℃上げたので、P V に約 1.3℃の変動が生じたが、約 100 分で収束し、S V 変更への追従性も良好であった。この時の T C の応答を図 6 に示した。

実施例 4

T C の出力で B 弁のみを制御し、A 弁の開度を 50%に固定とした以外、実施例 1 と同様に実施した。T C は熱媒温度測定値によるフィードバック制御のみで運転した。運転ロードを変化させた際に S V は変更しなかったが、P V に約 3℃の変動が生じ、収束に約 400 分を要した。この時の T C の応答を図 7 に示した。A 弁の開度制御がなされていないので実施例 1 ～ 3 に比べて制御安定性は劣るが、それでも本実施態様の温度制御方法により温度の安定制御が可能となったことが判る。

本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2004 年 5 月 27 日出願の日本特許出願（特願 2004-158036）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

<産業上の利用可能性>

本発明によれば、熱媒の温度変化を抑制でき、かつ温度の変動を速やかに整定できて、好適に反応を行い得る多管式反応装置、及びその制御システムが提供される。例えば、接触気相酸化法によるプロパン、プロピレンまたはイソブチレンからの（メタ）アクリル酸の製造に、本発明の多管式反応装置、及びその制御システムを適用すれば、原料供給量を変更するといった条件変更の場合にも熱媒の温度変化を抑え、かつ温度の変動を速やかに整定できるので、暴走反応または触媒の早期劣化を防止して、長期間にわたって安定的に高収率に製造することができる。

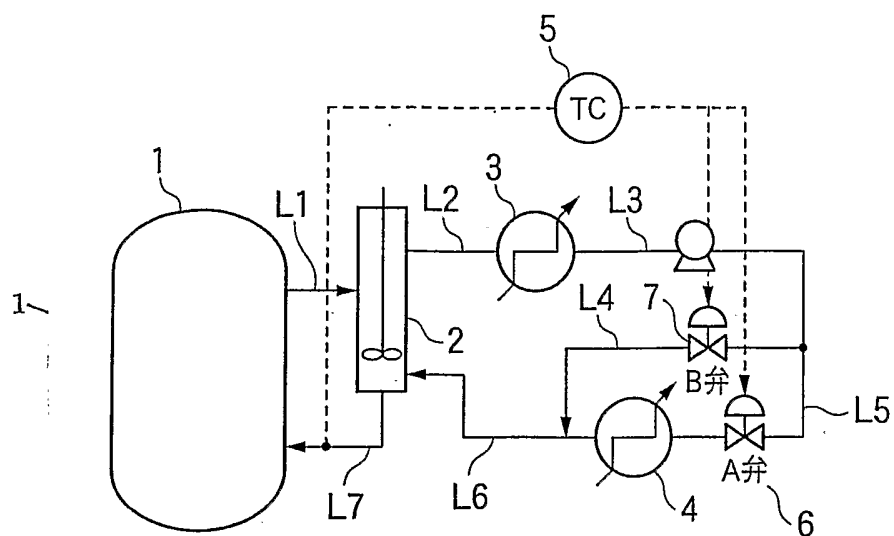
プロパン、プロピレンまたはイソブチレンからの（メタ）アクリル酸の製造などの際に求められる温度制御に必要な精度は一般に $0.2 \sim 1^{\circ}\text{C}$ であって、大量循環される熱媒の温度を一段の冷却にてこの精度で温度制御することはなかなか困難であるが、シェルの外部に取り出された熱媒を目安の温度まで一旦冷却し、該目安の温度まで冷却した熱媒の一部を更に冷却し、この目安の温度まで冷却した熱媒と、良好な温度制御のもとに更に冷却した熱媒とを混合する本発明の反応装置を用いることによって熱媒の高精度の温度制御を行なうことができる。

請 求 の 範 囲

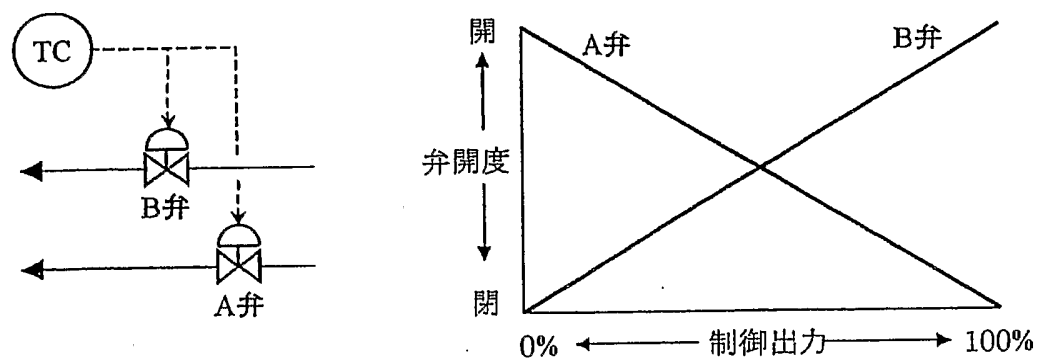
1. シェルと、該シェル内に設けられて触媒が充填された複数の反応管とを有し、該シェル内を熱媒が流通する多管式反応器、及び該反応器の外部に熱媒の冷却装置を有する反応装置であって、前記シェルの外部に取り出された熱媒の少なくとも一部を1次冷却する工程、1次冷却された熱媒の一部を2次冷却する工程、及び2次冷却された熱媒と、1次冷却された熱媒の2次冷却に付されなかった残部とを前記シェル内に循環させるラインを有することを特徴とする反応装置。
2. 請求の範囲第1項記載の反応装置において、シェル側熱媒温度及び触媒温度から選ばれた少なくとも1点の温度に基づいて、2次冷却された熱媒の流量と、1次冷却された熱媒の2次冷却に付されなかった残部の流量とを調節することにより、シェル内に循環させる熱媒の温度を調節することを特徴とする反応装置制御システム。
3. シェル内に循環させる熱媒の温度を調節するに際し、1次冷却された熱媒の少なくとも一部を2次冷却する工程に供するラインに設けられた流量制御弁と、2次冷却する工程に供することなくバイパスさせる1次冷却された熱媒のラインに設けられた流量制御弁とが逆方向に作動することを特徴とする請求の範囲第2項に記載の反応装置制御システム。
4. 請求の範囲第1項に記載の反応装置を用い、該反応装置を請求項2及び3に記載の反応装置制御システムによって温度を制御して接触気相酸化反応を行うことを特徴とする接触気相酸化反応方法。
5. シェルと、該シェル内に設けられて触媒が充填された複数の反応管とを有し、該シェル内を熱媒が流通する多管式反応器、及び該反応器の外部に少なくとも一つの熱媒の冷却装置を有する反応装置を制御するシステムであって、前記シェルの外部に取り出された熱媒の少なくとも一部を熱媒の冷却装置に供するラインに設けられた流量制御弁と、

熱媒の冷却装置に供することなくバイパスさせる熱媒のラインに設けられた流量制御弁を用いて、シェル内に循環させる熱媒の温度を調節することを特徴とする反応装置制御システム。

第1図

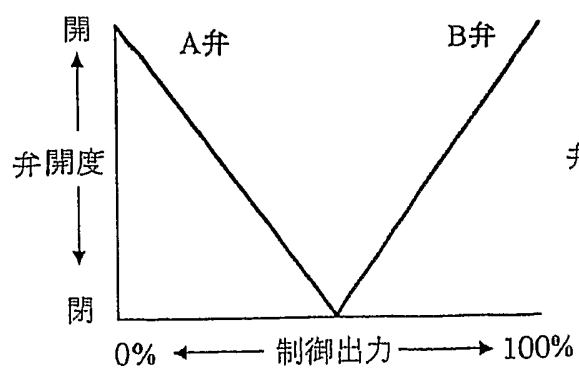


第2図

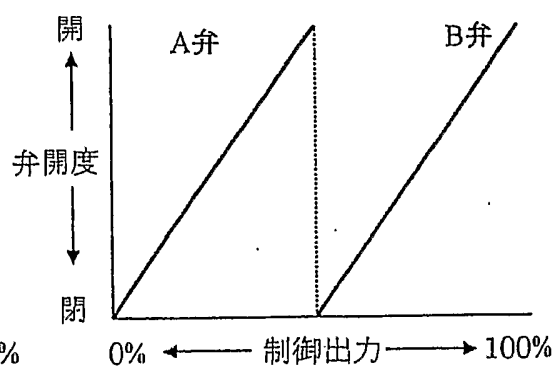


第3図

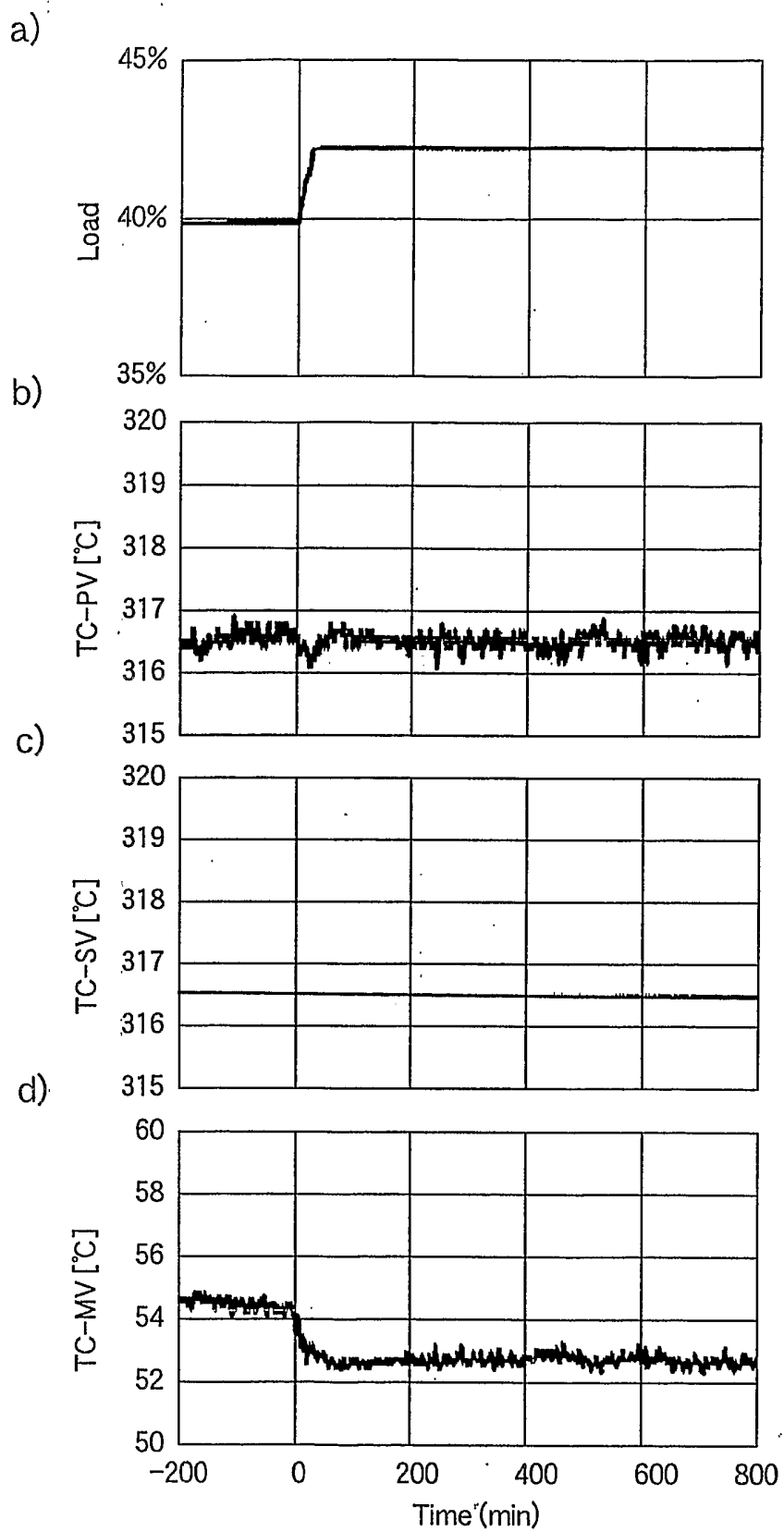
(a) V特性制御



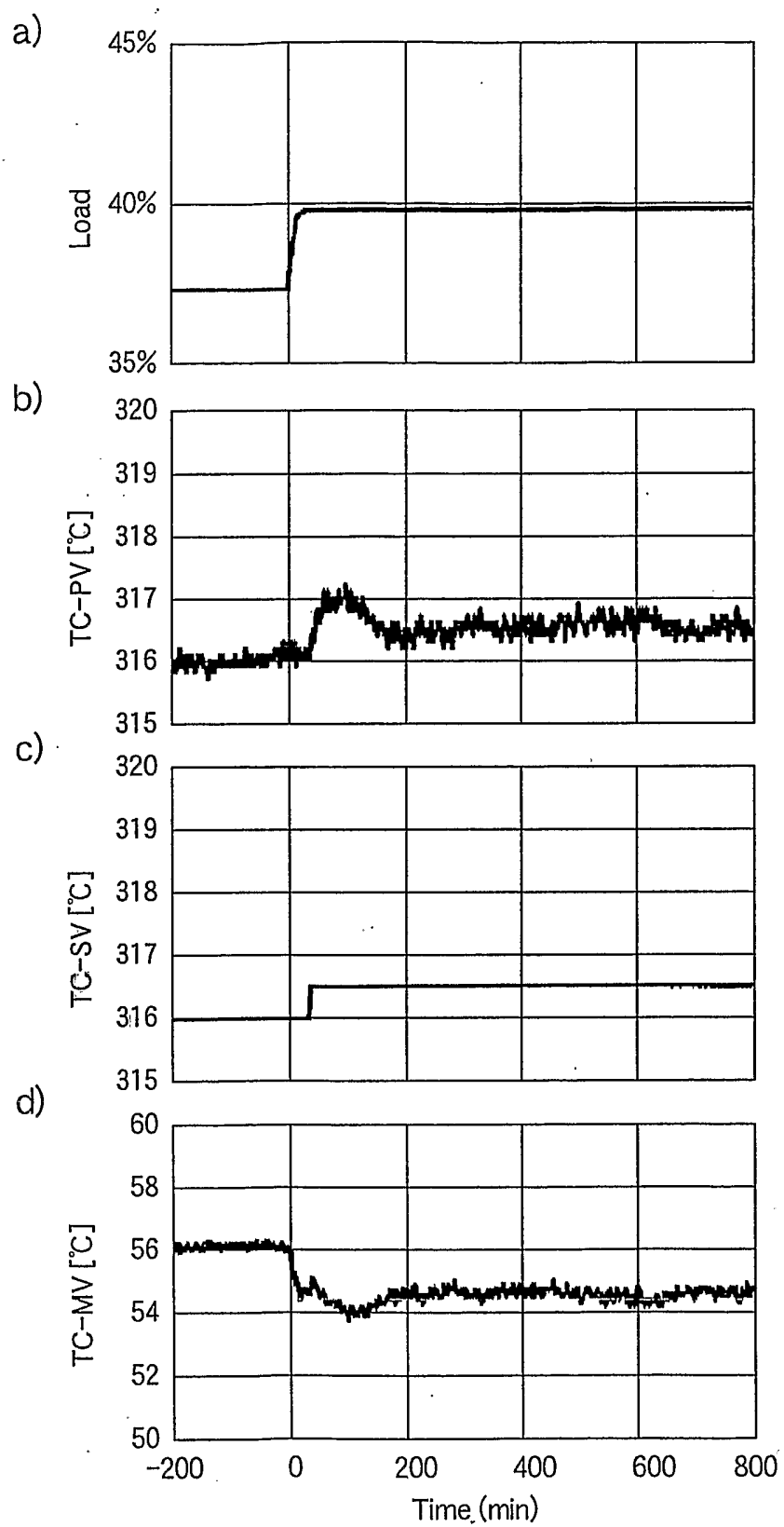
(b) 平行特性制御



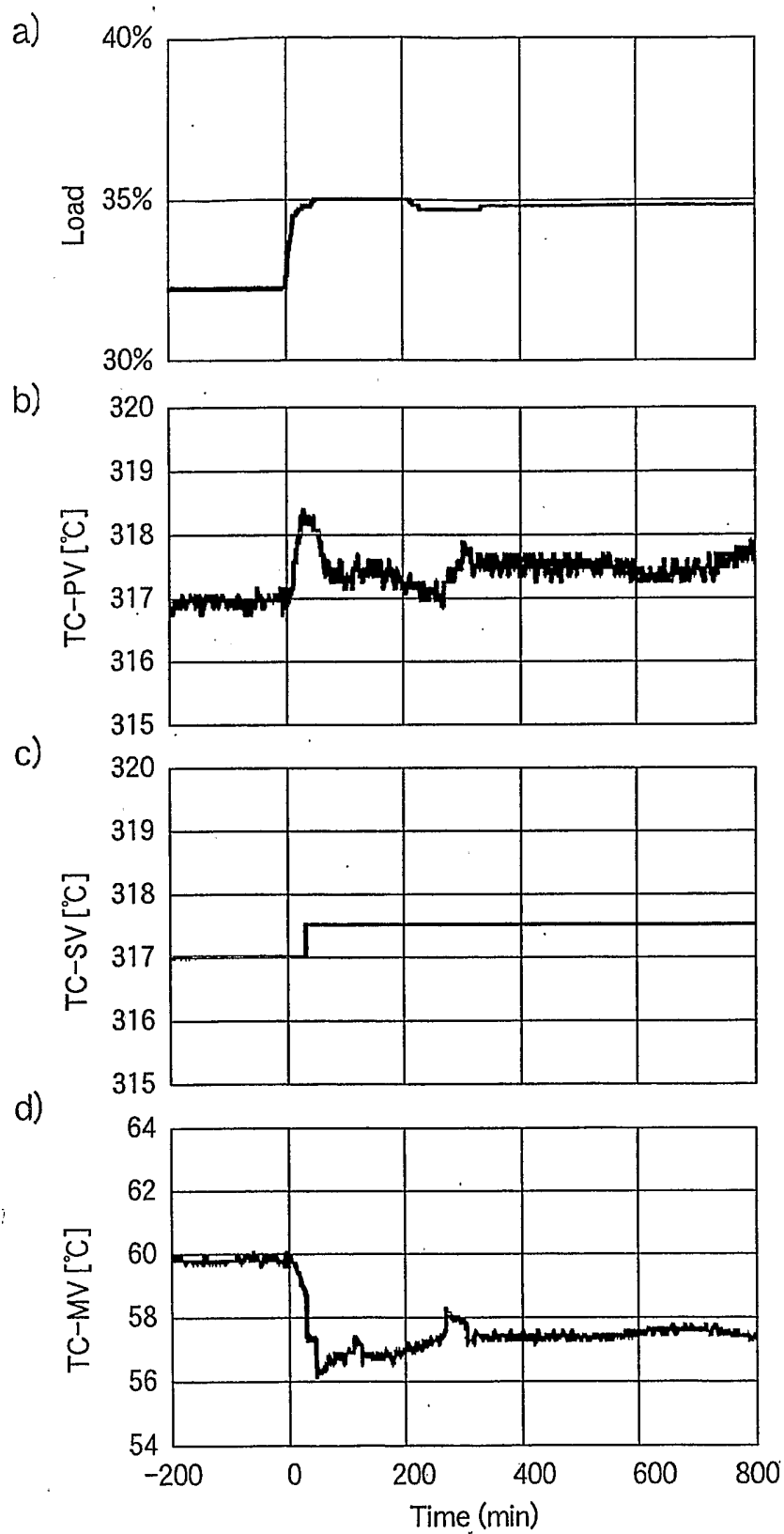
第 4 図



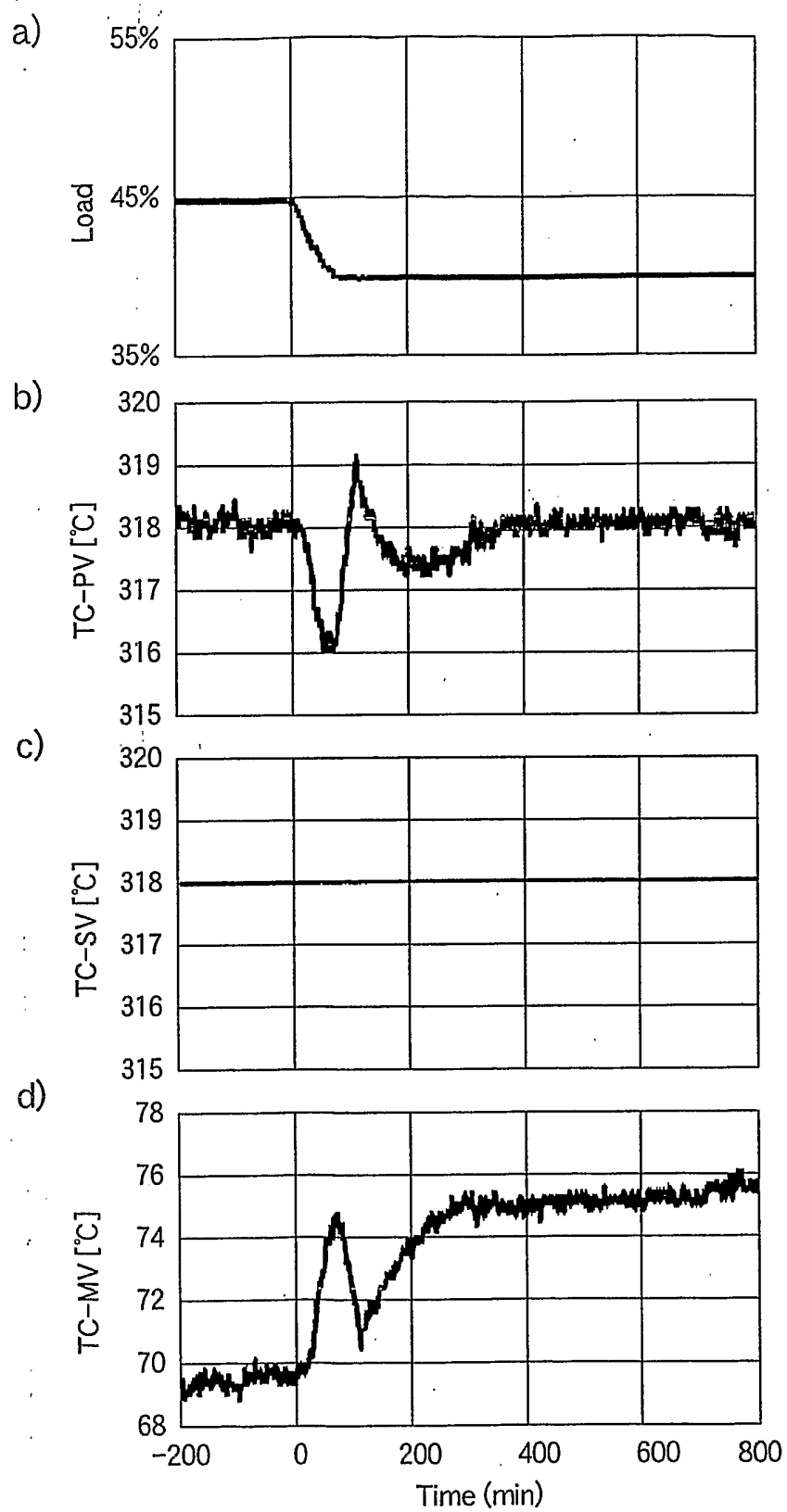
第 5 図



第 6 図



第7図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018231

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B01J8/06, C07C51/25, 57/05//C07B61/00

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)

Int.Cl.⁷ B01J8/00-46, C07C51/25, 57/05//C07B61/00

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

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

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

WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 54-21966 A (Nippon Shokubai Kagaku Kogyo Co., Ltd.), 19 February, 1979 (19.02.79), & GB 2001257 A	1-5
A	JP 2001-280774 A (Toshiba Corp.), 10 October, 2001 (10.10.01), (Family: none)	1-5

☐ 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

"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
22 June, 2005 (22.06.05)Date of mailing of the international search report
12 July, 2005 (12.07.05)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B01J8/06, C07C51/25, 57/05 // C07B61/00

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))

Int.Cl.⁷ B01J8/00-46, C07C51/25, 57/05 // C07B61/00

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	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005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)

WPI(DIALOG)

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 請求の範囲の番号
A	J P 54-21966 A (日本触媒化学工業株式会社) 1979.02.19 & GB 2001257 A	1-5
A	J P 2001-280774 A (株式会社東芝) 2001.10.10 (ファミリーなし)	1-5

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

「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矛盾するものではなく、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

22.06.2005

国際調査報告の発送日

12.7.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

豊永 茂弘

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

4D

8418