

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2017-524769

(P2017-524769A)

(43) 公表日 平成29年8月31日(2017.8.31)

| (51) Int.Cl.               | F I        | テーマコード (参考) |
|----------------------------|------------|-------------|
| <b>CO8F 2/01</b> (2006.01) | CO8F 2/01  | 4G070       |
| CO8F 20/10 (2006.01)       | CO8F 20/10 | 4J011       |
| BO1J 8/24 (2006.01)        | BO1J 8/24  | 4J100       |

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 22 頁)

(21) 出願番号 特願2016-575116 (P2016-575116)  
 (86) (22) 出願日 平成27年6月23日 (2015. 6. 23)  
 (85) 翻訳文提出日 平成29年2月22日 (2017. 2. 22)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2015/064026  
 (87) 国際公開番号 W02015/197571  
 (87) 国際公開日 平成27年12月30日 (2015. 12. 30)  
 (31) 優先権主張番号 14173483.0  
 (32) 優先日 平成26年6月23日 (2014. 6. 23)  
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 508020155  
 ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア  
 BASF SE  
 ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン (番地なし)  
 D-67056 Ludwigshafen, Germany  
 (74) 代理人 100114890  
 弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト  
 (74) 代理人 100098501  
 弁理士 森田 拓  
 (74) 代理人 100116403  
 弁理士 前川 純一

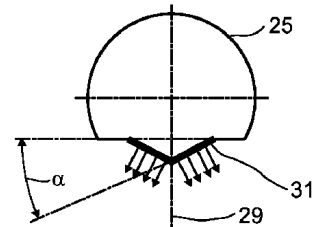
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 モノマー溶液の液滴を反応器中に導入するための装置

(57) 【要約】

本発明は、ポリ(メタ)アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を液滴重合用の反応器(1)中に導入するための、少なくとも1つのチャンネル(25)又は滴下ヘッドを含んでなる装置であって、ここで、チャンネル(25)又は滴下ヘッドは、その下側が滴下プレート(26)で閉ざされており、ここで、滴下プレート(26)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入されるときに通過する穿孔を有し、かつ滴下プレート(26)は、軸対称の滴下プレート(26)又は環状に若しくは環状セグメントとして構成された滴下プレートの場合には滴下プレート(26)の中心線上にはない又は円形の滴下プレートの場合には滴下プレートの中心上にはない穿孔(35)が、モノマー溶液が穿孔(35)を通過して垂直線に対するある角度で反応器(1)中に導入されるように位置合わせされて構成されており、ここで、軸対称の滴下プレート(26)が半径方向に位置合わせされている場合には、穿孔(35)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が反応器(1)の軸方向に向かって減少するように位置合わせされており、かつ滴

FIG.7



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

ポリ(メタ)アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を液滴重合用の反応器(1)中に導入するための、少なくとも1つのチャンネル(25)又は滴下ヘッドを含んだ装置であって、ここで、チャンネル(25)又は滴下ヘッドは、その下側が滴下プレート(26)で閉ざされており、ここで、滴下プレート(26)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入されるときに通過する穿孔を有し、かつ滴下プレート(26)は、軸対称の滴下プレート(26)又は環状に若しくは環状セグメントとして構成された滴下プレートの場合には滴下プレート(26)の中心線上にはない又は円形の滴下プレートの場合には滴下プレート(26)の中心上にはない穿孔(35)が、モノマー溶液が穿孔(35)を  
10  
通って垂直線に対するある角度で反応器(1)中に導入されるように位置合わせされて構成されており、ここで、軸対称の滴下プレート(26)が半径方向に位置合わせされている場合には、穿孔(35)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が反応器(1)の軸方向に向かって減少するように位置合わせされており、かつ滴下プレート(26)が互いに平行に配置されている場合又は滴下プレートが同心円状に配置されている場合には、該穿孔は、それぞれ中心線と平行な線上に又は中心の周りに同心円状に延びる線上に、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が一定となるように位置合わせされている、前記装置。

**【請求項 2】**

少なくとも2つの互いに平行に配置された滴下プレート(26)をそれぞれ有する少なくとも2つの分散器装置が、多角形のピッチが生じるように互いにある角度で配置されていることを特徴とする、請求項1に記載の装置。  
20

**【請求項 3】**

滴下プレート(26)が半径方向に配置されている場合、チャンネルが少なくとも2つの滴下プレートで閉ざされていることによって、モノマー溶液が反応器中に導入される減少角度が得られ、かつモノマー溶液が反応器(1)中に滴下される角度は、滴下プレート(26)におけるどの穿孔列でも一定であり、ここで、反応器(1)の真ん中付近に配置された滴下プレート(26)の角度は、さらに外側に配置されている滴下プレート(26)の角度より小さいことを特徴とする、請求項1に記載の装置。

**【請求項 4】**

モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が $0^{\circ}$ ~ $30^{\circ}$ の範囲にある、請求項1から3までのいずれか1項に記載の装置。  
30

**【請求項 5】**

滴下プレート(26)が半径方向に配置されている場合、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度は、滴下プレート(26)において反応器(1)の中心から外側に向かって増大する、請求項1、3又は4に記載の装置。

**【請求項 6】**

モノマー溶液が少なくとも半径方向エッジの穿孔から出てくる角度は、以下で定義される範囲：

## 【数 1】

$$0.25m \leq r \leq 10m$$

$$0.0001m \leq d_p \leq 0.0015m$$

$$3 \frac{m}{s} \leq v \leq 30 \frac{m}{s}$$

$$3 \leq N_{LR} \leq 18$$

の適用範囲で、

$$\frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) - 6.296 \leq \alpha \leq \frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) + 4.704$$

10

にあり、式中、 $r$  は穿孔の半径位置 (メートル) であり、 $N_{LR}$  はチャンネルの数であり、 $d_p$  は平均液滴径 (メートル) であり、かつ  $v$  は液滴流出速度 (メートル/秒) であることを特徴とする、請求項 5 に記載の装置。

## 【請求項 7】

滴下プレート (26) が軸対称に又は環として若しくは環セクションとして構成されている場合には、チャンネル (25) の軸に平行に延びる中心線に沿って穿孔が、又は円形の滴下プレートの場合には、中心上に穿孔が、これらの穿孔を通して導入されるモノマー溶液が垂直下向きに滴るように位置合わせされていることを特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の装置。

20

## 【請求項 8】

滴下プレート (26) が、その中心線に沿って角度を付けられたプロファイル、中心線に対して対称に繰り返し角度を付けられたプロファイル又は円形セグメントの形態のプロファイルを有することを特徴とする、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 9】

滴下プレート (26) が半径方向に、平行に又は環状に配置されている場合、それぞれ 1 つ以上の滴下プレート (26) を有する複数のチャンネル (25) が含まれていることを特徴とする、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項に記載の装置。

30

## 【請求項 10】

滴下プレート (26) の最も外側の穿孔 (35) から滴下プレート (26) のエッジまでの間隔が最大 200 mm であることを特徴とする、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 11】

前記穿孔が、25 ~ 500  $\mu$ m の範囲の直径を有することを特徴とする、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 12】

前記穿孔が、1 から 100 mm の範囲で互いに間隔を置くことを特徴とする、請求項 1 から 11 までのいずれか 1 項に記載の装置。

40

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、液滴重合用の反応器中にポリ (メタ) アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を導入するための、少なくとも 1 つのチャンネル又は滴下ヘッド (Vertropferkopf) を含んでなる装置に関し、ここで、該チャンネル又は該滴下ヘッドは、その下側が滴下プレート (Vertropferplatte) で閉ざされており、ここで、該滴下プレートは、モノマー溶液が反応器中に導入されるときに通過する穿孔を有する。

## 【0002】

ポリ (メタ) アクリレートは、特に吸水性ポリマーとして用いられ、これらは、例えば

50

、おむつ、タンポン、生理用ナプキン及び他の衛生用品の製造に際して、又は農園芸における保水剤としても使用される。

【0003】

吸水性ポリマーの特性は、架橋度により調節することができる。架橋度の上昇とともにゲル強度が上昇して、吸収容量が低下する。すなわち、加圧下吸収の上昇とともに遠心分離保持容量が減少し、ここで、架橋度が非常に高い場合には、加圧下吸収が再び減少する。

【0004】

使用特性、例えば、おむつにおける通液性及び加圧下吸収を改善するために、一般的に、吸水性ポリマー粒子は後架橋される。それによって、粒子表面における架橋度のみが上昇するため、加圧下吸収と遠心保持容量との関係を少なくとも部分的に切り離すことができる。この後架橋は、水性ゲル相で実施されることができる。しかし、一般的には、粉碎及び篩分されたポリマー粒子は、後架橋剤で表面被覆され、熱的に後架橋され、そして乾燥される。このために適した架橋剤が、親水性ポリマーのカルボキシレート基と共有結合を形成することができる少なくとも2つの基を含有する化合物である。

10

【0005】

吸水性ポリマー粒子を製造するために様々な方法が知られている。例えば、ポリ(メタ)アクリレートの製造のために用いられるモノマーと場合により添加剤を混合混練機に添加してよく、該混練機中でモノマーが反応してポリマーとなる。混合混練機中での混練棒を備えた回転シャフトによって、形成されるポリマーは碎片へと引き裂かれる。混練機から取り出されたポリマーは乾燥され、粉碎され、そして更なる処理に送られる。代替的な変法では、モノマーは、更なる添加剤を含有していてもよいモノマー溶液の形態で液滴重合用の反応器中に導入される。モノマー溶液を反応器中に導入すると、該モノマー溶液は分割して液滴になる。液滴形成のメカニズムは、乱流若しくは層流での噴流分割か、さもないければ液滴化であってもよい。ここで、液滴形成のメカニズムは、モノマー溶液の流入条件及び物質特性に依存する。液滴は、反応器中で下向きに落下し、その際にモノマーが反応してポリマーとなる。反応器の下部領域には流動層があり、この層に、反応によって液滴から形成されるポリマー粒子が落下する。それから該流動層で更なる反応が行われる。対応する方法が、例えば国際公開第2006/079631(A)号(WO-A 2006/079631)、国際公開第2008/086976(A)号(WO-A 2008/086976)、国際公開第2007/031441(A)号(WO-A 2007/031441)、国際公開第2008/040715(A)号(WO-A 2008/040715)、国際公開第2010/003855(A)号(WO-A 2010/003855)及び国際公開第2011/026876(A)号(WO-A 2011/026876)に記載されている。

20

30

【0006】

モノマー溶液が液滴に分割して、反応器中でポリマーを形成しながら下向きに落下する噴霧乾燥の原理に従って実施されるすべてのプロセスにおける欠点は、液滴の衝突時に粒子が合体してしまうことや、反応器の壁に衝突する粒子が付着してしまうこと、そのため堆積物の望ましくない形成が生じてしまうことである。

40

【0007】

それゆえ、本発明の課題は、個々の液滴の合体を実質的に回避して、そのうえ液滴を反応器横断面にわたって可能な限り均一に分散させる、液滴重合用の反応器中にポリ(メタ)アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を導入するための装置を提供することである。

【0008】

この課題は、ポリ(メタ)アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を液滴重合用の反応器中に導入するための、少なくとも1つのチャンネル又は滴下ヘッドを含んでなる装置であって、ここで、該チャンネル又は該滴下ヘッドは、その下側が滴下プレートで閉ざされており、ここで、該滴下プレートは、モノマー溶液が反応器中に導入されるときに

50

通過する穿孔を有し、かつ滴下プレートは、軸対称の滴下プレート又は環状に若しくは環状セグメントとして構成された滴下プレートの場合には滴下プレートの中心線上にはない又は円形の滴下プレートの場合には滴下プレートの中心上にはない穿孔が、モノマー溶液が該穿孔を通して垂直線に対するある角度で該反応器中に導入されるように位置合わせされて構成されており、ここで、軸対称の滴下プレートが半径方向に位置合わせされている場合には、該穿孔は、モノマー溶液が反応器中に導入される角度が該反応器の軸方向に向かって減少するように位置合わせされており、かつ滴下プレートが互いに平行に配置されている場合又は滴下プレートが同心円状に配置されている場合には、該穿孔は、それぞれ中心線と平行な線上に又は中心の周りに同心円状に延びる線上に、モノマー溶液が反応器中に導入される角度が一定となるように位置合わせされている装置によって解決される。

10

**【0009】**

滴下プレートにおける穿孔の本発明による配置によって、反応器中で個々の液滴間の十分大きな間隔が得られることから、これらは合体せず、そのうえ、すべての液滴が十分にガスで取り囲まれて、モノマー溶液をポリ(メタ)アクリレートへと反応させることが可能になる。加えて、反応器の横断面全体を利用することができる。液滴を導入するための本発明による装置の更なる1つの利点は、装置によって覆われた横断面積が可能な限り小さいことから、十分にガスが装置の周りを流れることが可能なことである。加えて、装置の個々の部分は、モノマー溶液を導入するための装置がガスの流れに及ぼす影響を最小限にするために可能な限り小さい幅で構成されることができる。

**【0010】**

本発明の第1の実施形態では、モノマー溶液は、滴下ヘッドにより反応器中に導入され、ここで、滴下ヘッドの下側は、モノマー溶液が導入される回転対称に形成された滴下プレートで閉ざされている。滴下ヘッドを終端する滴下プレートは、好ましくは、滴下プレートの中心の周りに環状に配置されたモノマー溶液を添加するための穿孔を有する。穿孔は、外側の穿孔を通して添加されたモノマー溶液がある角度で穿孔から出てくるように位置合わせされることで、液滴は中心から半径方向に向く速度成分を有する。これにより、滴下ヘッドの横断面を、反応器の直径よりずっと小さく構成することが可能である。さらに、それぞれ類似の構成を有する複数の滴下ヘッドを設けることも可能である。

20

**【0011】**

第2の実施形態では、モノマー溶液を導入するための装置は、少なくとも1つの環状チャネルを有する。この場合、チャネルの下側には、環状の滴下プレート又はその代わりに複数の滴下プレート(これらはそれぞれ環セクションの形態で構成されている)が備わっている。この場合、滴下プレートにおける穿孔は、真ん中にある穿孔が、好ましくは滴下プレートの環状に延びる中心線上に、モノマー溶液が反応器の軸と平行に下向きに穿孔から出てくるように位置合わせされた形で配置されている。滴下プレートのエッジで、穿孔は、液体が反応器の軸に対してある角度で出てくるように位置合わせされている。該穿孔のこの配置により、液滴を反応器の横断面全体にわたって分散させることが可能である。反応器の直径が大きい場合、共通した中心の周りに同心円状に配置されている複数の環状チャネルを設けることが可能である。ここで、液体が出てくる角度と環状チャネル間の間隔は、好ましくは、互いに並んで配置されたチャネルから出てくる液滴が接触せず、かつ軌道が交差しないように選択される。

30

40

**【0012】**

第3の実施形態では、モノマー溶液を導入するための装置は、互いに平行に延びる複数のチャネルを含む。この場合、滴下プレートは、好ましくは矩形に形成されており、かつ該矩形の長辺に対して平行に延びる中心線上に沿った穿孔は、好ましくは、モノマー溶液が反応器の軸に平行に垂直下向きに滴るよう位置合わせされており、かつ中心線上にはない穿孔は、液体が反応器の軸に対してある角度で出てくるように位置合わせされている。この場合、該角度を同じ大きさに保つこと、又は滴下プレートのエッジに向かって角度が増大するように穿孔を仕上げるのが可能である。

**【0013】**

50

第4の有利な実施形態では、モノマー溶液を導入するための装置は、それぞれ半径方向に位置合わせされている複数のチャンネルを含む。これによって、星形のチャンネル配置が生まれ、ここで、該チャンネルの長さは異なっていてよい。異なるチャンネル長さで該チャンネルが半径方向に配置されている場合に有利なのは、チャンネルが外側から反応器の真ん中の方向に向かって異なる長さで突出するときである。その際、好ましいのは、真ん中まで突出する2つのチャンネル間に1つ以上の短めのチャンネルが位置決めされている配置であり、ここで、チャンネルの長さは、反応器の真ん中まで突出する第一のチャンネルから、反応器の真ん中まで突出する2つのチャンネル間の中心線まで減少し、かつ反応器の真ん中まで突出する2つのチャンネル間の中心線から、反応器の真ん中まで突出する第2のチャンネルに向かって再び増大するように配置されている。チャンネルが半径方向に配置されている場合、滴下プレート10の中心線に沿って延びる穿孔は、モノマー溶液がこれらの穿孔を通して鉛直方向下向きに滴り、かつモノマー溶液が、中心線上にはない穿孔から反応器の軸に対してある角度で出てくるように位置合わせされており、ここで、この場合も、中心線上にはないすべての穿孔の角度を同じ大きさに保つこと、又は滴下プレートのエッジに向かって角度が増大するように穿孔を仕上げることも可能である。本発明によれば、チャンネルが半径方向に配置されている場合、モノマー溶液が添加される角度は、反応器の軸に向かって減少する。これによって、モノマー溶液は、軸からさらに隔たった穿孔を通してより大きな角度で導入されることから、形成する液滴はチャンネルからさらに離れて飛び出し、そうして反応器の横断面にわたる均一な液滴分散が得られる。

#### 【0014】

通常、モノマー溶液は、液体噴流の形態で、滴下装置の穿孔から出て、それから反応器中で分割して液滴になる。液体噴流の分割は、一方では、単位時間当たりに穿孔を通して出てくる液体の量に依存し、他方では、反応器を流れるガスの速度と量に依存する。さらに、モノマー溶液の物質特性と穿孔の形状は、噴流分割の種類に影響を及ぼす。本発明の範囲内では、液滴分割を、液滴化又は滴下とも呼ぶ。

#### 【0015】

反応器中で均一なガス速度を得ることができるよう、及び装置の周りを流れるガスの著しい加速及び渦動が生じないように、モノマー溶液の滴下装置に十分にガスを流通させるために、滴下装置によって覆われた反応器中での面積の、最も外側の穿孔を結ぶ線によって取り囲まれた面積に対する比率は50%未満であり、有利には3~30%の範囲にある場合にさらに有利である。

#### 【0016】

チャンネルから出てくる液滴がチャンネルの周りを流れるガスと可能な限り素早く接触するように、チャンネルが可能な限り小さい幅を有している場合にさらに有利である。その際、チャンネルの幅は、好ましくは25~500mmの範囲にあり、さらに有利には100~400mmの範囲にあり、特に150~350mmの範囲にある。

#### 【0017】

さらに、最も外側の穿孔を結ぶ線によって形成された面積に対する穿孔の数は、 $1\text{ m}^2$ 当たり100~1000個の穿孔の範囲、有利には $1\text{ m}^2$ 当たり150~800個の穿孔の範囲、特に $1\text{ m}^2$ 当たり200~500個の穿孔の範囲にある場合に有利である。これによって、穿孔で形成された液滴が互いに十分大きな間隔を有すること、そのうえ反応器を流れるガスと十分に接触し得ることが保証される。

#### 【0018】

モノマー溶液を導入するための装置が平行に延びるチャンネルを含む場合に有利なのは、それぞれ少なくとも2つの互いに平行に配置された滴下プレートを有する少なくとも2つの分散器装置(Verteileranordnungen)が、多角形のピッチが生じるように相対する角度で配置されている場合である。ここで、分散器装置とは、それぞれ互いに平行に位置合わせされたチャンネルを意味する。分散器装置のチャンネルが $90^\circ$ の角度で互いに配置されている場合は矩形のピッチが生じ、 $60^\circ$ の角度の場合は三角形のピッチが生じる。 $90^\circ$ 又は $60^\circ$ の個々の分散器配置のチャンネル間の角度のほか、他の任意の角度、例えば45

10

20

30

40

50

°も可能である。しかしながら、一般的に、他の角度では、交差するチャンネルから様々な多角形が形成されることになる。有利には、チャンネルは、交差するチャンネルによって三角形のピッチ又は矩形のピッチが生じるように配置されており、ここで、平行に延びるチャンネル間の間隔は、可能な限り等しいことから、三角形のピッチの場合は、交差する分散器配置のチャンネルから正三角形が形成され、矩形のピッチの場合は正方形が形成される。

【0019】

滴下プレートが半径方向の配置を有する実施形態では、例えば、チャンネルが少なくとも2つの滴下プレートで閉ざされていることによって、モノマー溶液が反応器中に導入される減少角度が得られ、モノマー溶液が反応器中に滴下される角度は、滴下プレートにおけるどの穿孔列についても一定であり、ここで、反応器の真ん中付近に配置された滴下プレートの角度は、さらに外側に配置されている滴下プレートの角度より小さい。

10

【0020】

星形配置の場合の個々のチャンネルの数  $N_{RL}$  は、チャンネルが配置されている位置での反応器の周囲長  $U$  に依存する。有利には、チャンネルの数は、以下で定義される範囲にある：

【数1】

$$\frac{U}{4.0m} \leq N_{RL} \leq \frac{U}{1.2m}$$

、特に

20

$$\frac{U}{3.6m} \leq N_{RL} \leq \frac{U}{1.8m}.$$

【0021】

ここで、周囲長  $U$  はメートル単位で用いられ、「 $m$ 」はメートルを意味する。

【0022】

多角形のピッチが生じるようにチャンネルが配置されている場合、様々な分散器配置のそれぞれ平行に延びるチャンネルを、異なる基準面で反応器中に導入することが好ましく、そうすることで、これらのチャンネルは交差こそするものの、同じ高さでは交わらなくなる。

30

【0023】

モノマー溶液が反応器中に導入される角度は、好ましくは、 $0^\circ \sim 30^\circ$  の範囲、さらに有利には  $0.1^\circ \sim 20^\circ$  の範囲、特に  $0.2^\circ \sim 15^\circ$  の範囲にある。ここで、液滴の軌道が2つの隣接するチャンネルを抜けて交差しないように、角度は、モノマー溶液が反応器中に導入される速度と、2つのチャンネル間の間隔の大きさに依存する。

【0024】

滴下プレートが一定の角度を有しており、かつチャンネルの個々の滴下プレートの角度が異なる実施形態のほかにも、滴下プレートが半径方向に配置されている場合、モノマー溶液が反応器中に導入される角度が、滴下プレートにおいて反応器の中心から外側に向かって増大することも可能であり、かつ有利である。滴下プレートのこの構成によって、反応器の横断面にわたった更なる均一な液滴分散が得られる。

40

【0025】

チャンネルが半径方向に配置されている有利な実施形態では、モノマー溶液が少なくとも半径方向エッジの穿孔から出てくる角度は、以下で定義される範囲にある：

## 【数 2】

$$0.25m \leq r \leq 10m$$

$$0.0001m \leq d_p \leq 0.0015m$$

$$3 \frac{m}{s} \leq v \leq 30 \frac{m}{s}$$

$$3 \leq N_{LR} \leq 18$$

の適用範囲で、

$$\frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) - 6.296 \leq \alpha \leq \frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) + 4.704,$$

10

有利には

$$\frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) - 4.296 \leq \alpha \leq \frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) + 2.704$$

20

特に有利には

$$\frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) - 2.296 \leq \alpha \leq \frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) + 1.704.$$

## 【0026】

式中、 $r$  は穿孔の半径位置（メートル）であり、 $N_{LR}$  はチャンネルの数であり、 $d_p$  は平均液滴径（メートル）であり、かつ  $v$  は液滴流出速度（メートル/秒）である。穿孔の角度は、度の単位で求められる。値がゼロより小さい場合、計算された値の代わりに角度に  $0^\circ$  の値が使用されるべきである。

30

## 【0027】

反応器の軸に対する液滴の流出角を、数値シミュレーション計算によってさらに最適化することができる。流出角を一定に変化させる以外に、代わりに液滴の流出角を段階的に変化させることも可能である。このために、その場合、各段階の真ん中の角度は、上記の定義に従って規定されることが好ましい。段階的な変化は、例えば、滴下プレートの角度が一定ではあるものの、反応器の軸付近にある滴下プレートの角度が、軸とはさらに隔たった滴下プレートの角度とは異なる複数の滴下プレートをもつ前述の変法によってもたらされる。

40

## 【0028】

軸対称に構成された滴下プレートの場合、又は環若しくは環セクションとして構成された滴下プレートの場合には、チャンネルの軸と平行に延びる中心線に沿って穿孔が、又は円形の滴下プレートの場合には、中心上に穿孔が設けられている場合、これらは、好ましくは、該穿孔を通して導入されるモノマー溶液が垂直下向きに滴るように位置合わせされている。

## 【0029】

モノマー溶液が垂直線に対してある角度で反応器中に導入されるように穿孔を位置合わせするために、該穿孔をそれぞれ所望の角度で滴下プレートに導入することが可能である。しかしながら、該穿孔をすべて滴下プレートに対して垂直に導入し、該滴下プレートを

50

、これらが、その中心線に沿って角度を付けられたプロファイル、中心線に対して対称に繰り返し角度を付けられたプロファイル又は円形セグメントの形態のプロファイルを有するように形成することが有利である。角度を付けられた又は円形セグメントの形態で構成された滴下プレートのプロファイルによって、滴下プレートに導入された穿孔は、反応器の垂直線に対してある角度で延びることから、モノマー溶液は、穿孔が有している角度で反応器中に導入される。

#### 【0030】

プロファイルが中心線に沿って角度を付けられている場合、好ましくは反応器中で垂直線に対して対称に位置合わせされている2つの傾斜した領域が生まれることで、モノマー溶液は、滴下プレートから液滴を形成しながら対称に流出する。繰り返し角度を付けられたプロファイルの場合も、形成されるプロファイルは、滴下プレートの中心線上を通過して延びる対称な垂直面に対して対称形をしている。繰り返し角度を付けられたプロファイルは、例えば、水平な中間領域と、側方で傾斜された2つの領域を有している。複数の傾斜された領域を各々の面で設けることも可能であり、ここで、傾斜した領域の角度は、滴下プレートのエッジに向かって増大する。これによって、滴下プレートのエッジで、中心線上に近い穿孔より大きい角度を有する穿孔がもたされ、そのため外側の穿孔を抜けるモノマー溶液はチャンネルからさらに離れて飛び出すことになる。これも、液滴が垂直下向きに落下するモノマー溶液を導入するための装置の下方まで、反応器の横断面にわたる液滴分散の更なる均一化を保證する。

10

#### 【0031】

十分に多数の液滴を生成することができ、そのうえ液滴が反応器の横断面全体にわたって分散されるように、滴下プレートが半径方向に、平行に又は環状に配置されている場合、それぞれが1つ以上の滴下プレートを有する複数のチャンネルが含まれる。特に、反応器直径が大きく、それに応じてチャンネルが長い場合、製造上の理由から、複数の比較的小さい滴下プレートで各チャンネルを閉ざすことが望ましい。これは特に、変更する必要が生じた場合には、チャンネルの個々の滴下プレートを交換することができ、取扱いがよりし易くなるという利点も有する。特に、多角形ピッチでチャンネルが配置されている場合、モノマー溶液が高い方の位置にあるチャンネルから低い方の位置にあるチャンネルに滴ることを回避するために、そのつど最大でチャンネルの2つの交差点間の距離の長さに対応する個々の滴下プレートが用いられる。異なる長さのチャンネルを有する半径方向配置の場合、長さに応じて、異なる数の滴下プレートを設けて、すべての滴下プレートを等しく構成することが可能である。

20

30

#### 【0032】

簡単な変更、例えば滴下プレートの洗浄のために、それらを着脱可能に、例えばネジ結合によってチャンネル又は滴下ヘッドと接続することが有利である。あまり好ましくはないが、例えば溶接、はんだ付け又は接着によって、滴下プレートをチャンネル又は滴下ヘッドと形状結合させることも可能である。さらに、チャンネルと滴下プレート又は滴下ヘッドと滴下プレートを一体に構成することも可能であり、この場合、チャンネル又は滴下ヘッドの基部が滴下プレートを形成する。

#### 【0033】

滴下プレートの最も外側の穿孔から滴下プレートのエッジまでの間隔は、好ましくは最大200mm、有利には最大100mm、特に最大50mmである。これによって、チャンネルを十分に狭く構成することができ、その結果、妨げられるガスの流れはわずかなものとなり、そのうえ滴下プレートの長さは、もはや簡単に扱うことができなくなるほど長くはならない。

40

#### 【0034】

十分に多数の液滴を生成するために、滴下プレートの穿孔が複数の穿孔列において配置されている場合に有利である。この場合、1つの穿孔列における個々の穿孔の間隔と、隣接する穿孔列の間隔とが実質的に同じ大きさであるときに特に有利である。1つの穿孔列における穿孔同士と穿孔列同士の適切な間隔は、1~100mmの範囲、有利には2~5

50

0 mmの範囲、3 ~ 20 mmの範囲にある。穿孔が穿孔列に配置されていない場合でも、穿孔の間隔は、好ましくはこれらの範囲にある。

【0035】

吸水性ポリマーのために適した大きさの液滴を得るために、滴下プレート内での穿孔が25 ~ 500  $\mu\text{m}$ の範囲の直径を有する場合にさらに有利である。

【0036】

本発明の実施例を図に示し、以下の記載において詳細に説明する。

【図面の簡単な説明】

【0037】

【図1】液滴重合のための反応器の縦断面を示す図

10

【図2】半径方向に延びる異なる長さの滴下チャネルの配置を示す図

【図3】星形に配置された滴下チャネルの配置を示す図

【図4】矩形のピッチでの滴下チャネルの配置を示す図

【図5】三角形のピッチでの滴下チャネルの配置を示す図

【図6】第1の実施形態での滴下チャネルの横断面を示す図

【図7】第2の実施形態での滴下チャネルの横断面を示す図

【図8】第3の実施形態での滴下チャネルの横断面を示す図

【図9】滴下プレートの上面図を示す図

【0038】

図1は、ポリ(メタ)アクリレート粒子の製造のために好ましくは用いられる、液滴重合のための反応器の縦断面を示す。

20

【0039】

液滴重合用の反応器1は、滴下装置5を収容する反応器頂部3、重合反応が行われる中間領域7及び反応が完了する流動層11を有する下部領域9を含む。

【0040】

ポリ(メタ)アクリレートを製造するための重合反応を実施するために、滴下装置5にモノマー供給口12を介してモノマー溶液を供給する。滴下装置5が複数のチャネルを有している場合には、専用のモノマーフィード12を介して各チャネルにモノマー溶液を供給することが有利である。モノマー溶液は、図1には示されていない穿孔を通して滴下装置5から出て、液滴に分割して、反応器中で下向きに落下する。滴下装置5の上方のガス用の第1の添加口13を介して、ガス、例えば窒素又は空気を反応器1中に導入する。その際、ガス流は、滴下装置5の穿孔から出てくるモノマー溶液が分割して個々の液滴になるのを補助する。さらに、ガス流は、個々の液滴が接触して、より大きな液滴へと合体し難しくさせる。

30

【0041】

一方では、反応器の円筒状中間領域7を可能な限り短く構成し、そのうえ液滴が反応器1の壁に衝突するのを回避するために、反応器頂部3は、図示しているように、円錐状に形成されていることが好ましく、ここで、滴下装置5は、円筒状領域の上方の円錐状の反応器頂部3の中にある。しかしながら、その代わりに、反応器を反応器頂部3でも円筒状に中間領域7の直径を持たせて構成することも可能である。しかしながら、反応器頂部3を円錐状に構成することが有利である。滴下装置5の位置は、モノマー溶液が供給される最も外側の穿孔と反応器の壁との間で、液滴が壁に衝突するのを防ぐために、まだ十分に大きな距離があるように選択される。このために、距離は、少なくとも50 ~ 1500 mmの範囲、有利には100 ~ 1250 mmの範囲、特に200 ~ 750 mmの範囲にあるべきである。反応器の壁に対してそれより大きな距離をとることも当然可能である。しかしながら、これは、距離が大きくなるにつれて反応器横断面の利用もそれだけ不十分になるという欠点を有する。

40

【0042】

下部領域9は流動層11で終わり、この層11に、落下中にモノマー液滴から形成されたポリマー粒子が落下する。流動層では、更なる反応が行われて所望の生成物が得られる

50

。本発明によれば、モノマー溶液が滴下される最も外側の穿孔は、垂直下向きに落下する液滴が流動層 11 に落下するように位置決めされる。これは、例えば、流動層の水力直径が、滴下装置 5 の最も外側の穿孔を結ぶ線で取り囲まれた面積の水力直径と少なくとも同じ大きさであることによって実現されることができ、ここで、流動層の横断面積と最も外側の穿孔を結ぶ線が成す面積とは同じ形状を有し、両面積の中心は、垂直面上の投影図では互いに同じ位置にある。流動層 11 の位置に対する最も外側の穿孔の最も外側の位置は、図 1 に破線 15 を使って示してある。

【0043】

さらに、液滴が中間領域 7 でも反応器の壁に衝突するのを回避するために、液滴化装置とガス回収口との間の真ん中の高さでの水力直径は、流動層の水力直径より少なくとも 10% 大きい。

10

【0044】

その際、反応器 1 は、任意のあらゆる横断面形状を有してよい。しかしながら、反応器 1 の横断面は円形であることが好ましい。この場合、水力直径は、反応器 1 の直径に相当する。

【0045】

流動層 11 の上方での反応器 1 の直径は、ここに示す実施形態では、反応器 1 が下部領域 9 で下から上に向かって円錐状に拡大しているように増大する。これは、反応器 1 中で形成された、壁に衝突するポリマー粒子が、壁を伝って下向きに流動層 11 に滑り落ちることができるという利点を有する。さらに、ケーキングを回避するために、ここには示されていない、反応器の壁を振動させることができるタッパーを設けてよく、それによって、付着するポリマー粒子が剥がれて流動層 11 に滑り落ちる。

20

【0046】

流動層 11 の運転用にガスを供給するために、流動層 11 の下方には、ガスを流動層 11 に吹き込むガス分散器 17 が存在している。

【0047】

反応器 1 にはガスが上下から導入されるため、反応器 1 のガスを適切な位置で取り出す必要がある。このために、少なくとも 1 つのガス回収口 19 が、一定の横断面を有する中間領域 7 から、円錐状に下から上に向かって拡大する下部領域 9 への移行部に配置される。この場合、円筒形の中間領域 7 の壁は、上に向かって円錐状に拡大する下側領域 9 に突出し、ここで、この位置での円錐状の下側領域 9 の直径は、中間領域 7 の直径より大きい。これによって、中間領域 7 の壁の周りを囲む環状空間 21 が形成され、ここにガスが流れ込み、該環状空間 21 に接続された少なくとも 1 つのガス回収口 19 を通して取り出すことができる。

30

【0048】

流動層 11 のさらに反応したポリマー粒子は、流動層の領域での生成物回収口 23 を介して回収する。

【0049】

図 2 には、半径方向に延びる異なる長さの液滴化器チャネルの配置を示している。

【0050】

40

第 1 の実施形態では、滴下装置は、半径方向に延びるチャネル 25 を有する。この場合、一部のチャネル 25 は、反応器 1 の真ん中に突き出ている。更なる部分のチャネル 24 は、反応器 1 にそこまでの長さで突き出たおらず、そのため、特に反応器の外側領域（この領域では、反応器 1 の真ん中まで突き出る形で半径方向に延びるチャネル 25 同士の間隔が大きい）において、モノマー溶液を反応器 1 に導入することができる更なるチャネル 24 が設けられている。これにより、反応器の横断面全体にわたる液滴のより均一な分散が可能になる。

【0051】

チャネル 25 の相応の星形配置を図 3 に示している。チャネルの更なる可能な配置を図 4 と図 5 が示す。しかしながら、これらの配置では、水平線に対して角度 による配置を

50

実現することは困難であるため、この場合、チャンネル 25 は好ましくは水平に延びる。図 4 は、チャンネルの交点 27 がそれぞれ矩形、好ましくは正方形を形成するように、個々のチャンネル 25 がそれぞれ互いに 90° の角度で配置された矩形のピッチ配置を示す。

【0052】

図 5 は、三角形のピッチ配置を示す。この場合、チャンネル 25 は、チャンネル 25 の交点 27 がそれぞれ正三角形を形成するように、それぞれ互いに 60° の角度で配置される。しかしながら、これはほかに、それぞれ平行に延びるチャンネルが常に同じ大きさの間隔を有することを前提としている。

【0053】

ここに示す実施形態の代わりに、該チャンネルを、平行に配置されたチャンネル間の間隔が変化するように又は平行に配置されたチャンネル間の間隔はそれぞれ同じ大きさであるものの、平行に配置された別方向に延びるチャンネル間の間隔は異なるように配置することも当然可能である。そのうえ、チャンネルを任意の他の角度で互いに配置することも可能である。

10

【0054】

しかしながら、特に円形の反応器横断面の場合には、図 3 に示す星形配置が有利である。しかしながら、この場合、チャンネルの数は、反応器の周囲長に応じて変化してもよい。加えて、チャンネルを異なる長さで、これらが反応器 1 に異なる長さで突き出るように構成することも可能である。しかしながら、この場合、常に回転対称の配置が有利である。

【0055】

モノマー溶液の供給のためのチャンネルをその下側で閉ざし、かつモノマー溶液が反応器中に滴下される穿孔が形成された滴下プレート 26 の位置は、ドット領域によって図 3 ~ 図 5 に示している。

20

【0056】

本発明によれば、チャンネル 24、25 の数は、チャンネル 24、25 又は滴下ヘッドによって覆われた反応器中での面積の、最も外側の穿孔に沿った線の周囲長によって画定された面積に対する比率が 50% 未満となるように選択される。これによって、十分にガスがチャンネル 24、25 を通って流れることができ、ガスと、チャンネル 24、25 を抜ける液滴との十分な接触が実現されることが保証される。

【0057】

図 6、7 及び 8 は、異なる実施形態でのチャンネル 25 の横断面を示す。

30

【0058】

反応器横断面にわたって均一な液滴分散を得るためには、少なくともチャンネルに外側の穿孔で形成される液滴が、垂直線、すなわち反応器軸に対してある角度で出てくる場合に有利である。このために、例えば、図 6 に示すように、穿孔が形成されているチャンネルの領域を円形セグメントの形態に構成することが可能である。これによって、モノマー溶液が反応器軸線 29 に対して出てくる角度は、チャンネルの真ん中から外側に向かって増大する。

【0059】

その代わりに、図 7 に示すように、穿孔が形成されているチャンネル基部を水平線に対してある角度で位置合わせすることも可能であり、ここで、チャンネル基部 31 に対して垂直な穿孔の場合、液滴が反応器軸に対して出てくる角度は、水平線に対するチャンネル基部の角度に相当する。また、チャンネル基部 31 の角度を付けられた領域に加えて、中間の基部領域 33 が水平に延びた構成も可能である。

40

【0060】

穿孔を簡単に洗浄することができるように、穿孔が滴下プレートに形成されており、該滴下プレートが、チャンネル 25 の基部で相応して構成されたオリフィスに位置決めされる場合に有利である。そのとき、滴下プレートは、洗浄のために取り外すことができ、きれいな滴下プレートと交換することができる。この場合、滴下プレートは、好ましくは、図 6 ~ 図 8 に示すようなチャンネル 25 の基部プロファイルを実現できるように、円形セグメ

50

ントの形態で又は角度を付けて構成される。

【0061】

特にチャンネルが星形に配置されている場合には、モノマー溶液が出てくる角度が反応器の真ん中から外側に向かって増大する場合にさらに有利である。

【0062】

ここに示す円形横断面のほかに、チャンネル25を他の任意の横断面で構成することも可能である。特に滴下プレートを用いる場合には、チャンネル25を矩形の横断面で形成することがとりわけ有利である。この場合、チャンネルは、取り外し可能な蓋で上端が閉じられていてもよく、かつ滴下プレートは、蓋を取り外した後に簡単に取り出して交換することができる。

10

【0063】

図9は、滴下プレートの上面図を示す。

【0064】

滴下プレート26は、モノマー溶液が反応器中に滴化される多数の穿孔35を有する。その際、モノマー溶液は、穿孔35を通して流れ、滴下プレート26を抜けた後に分割して液滴になる。その際、液滴は、滴下プレート26を抜けた直後に生成される。

【0065】

本発明によれば、滴下プレート26の面積に対する滴下プレートの穿孔の数は、滴下プレート26の最も外側の穿孔35に沿った線の周囲長によって画定された面積に対する穿孔の数が、 $1\text{ m}^2$ 当たり1000～15000個の穿孔の範囲、有利には $1\text{ m}^2$ 当たり2000～12000個の穿孔の範囲、特に $1\text{ m}^2$ 当たり4000～10000個の穿孔の範囲にあるように選択される。ここでは、反応器1における滴下装置5のすべての滴下プレートを考慮に入れている。穿孔35の相応した数によって、反応器を経済的に操作し得るのに十分な量の液滴が生成され、他方では、液滴の数は、個々の液滴が衝突し合体するほど大きくあってはならない。それゆえ、液滴の数は、各々の液滴が、他の液滴との衝突を実質的に回避することができる十分に大きなガス体積によって取り囲まれるように選択しなければならない。反応器がさらに経済的に運転されるべき場合、液滴の衝突と個々の液滴の合体を完全に回避することはできない。しかしながら、滴下プレート26の最も外側の穿孔35に沿った線の周囲長さによって画定された面積に対する滴下プレートの穿孔35の数が上述の範囲内にある場合には、実質的な回避が達成される。

20

30

【0066】

製造上の観点から、モノマー添加のための穿孔35が、ここに示すように、平行して互いに隣り合う穿孔列37に配置されている場合に有利である。液滴の衝突を実質的に回避するために、1つの穿孔列における穿孔同士と穿孔列同士の適切な間隔は、1～100mmの範囲、有利には2～50mmの範囲、特に3～20mmの範囲にある。

【符号の説明】

【0067】

- 1 反応器
- 3 反応器頂部
- 5 滴下装置
- 7 中間領域
- 9 下部領域
- 11 流動層
- 12 モノマー供給口
- 13 ガス用の添加口
- 15 流動層11に対して最も外側の穿孔の位置
- 17 ガス分散器
- 19 ガス回収口
- 21 環状室
- 23 生成物回収口

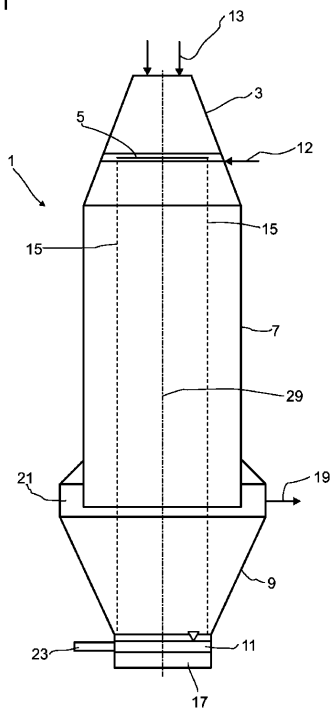
40

50

- 2 4 チャンネル
- 2 5 チャンネル
- 2 6 滴下プレート
- 2 7 交点
- 2 9 反応器軸
- 3 1 チャンネル基部
- 3 3 中間の基部領域
- 3 5 モノマー添加のための穿孔
- 3 7 穿孔列

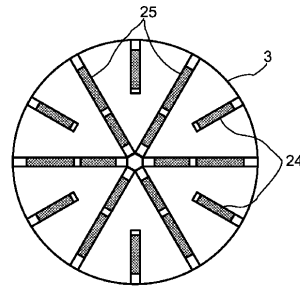
【 図 1 】

FIG.1



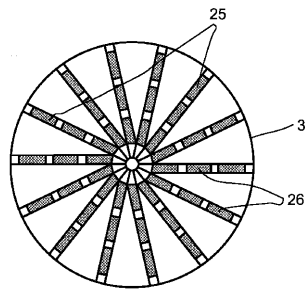
【 図 2 】

FIG.2



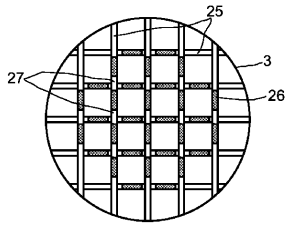
【 図 3 】

FIG.3



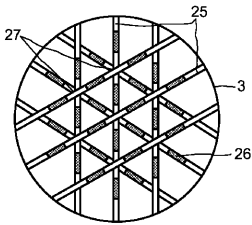
【 図 4 】

FIG.4



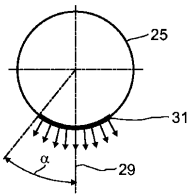
【 図 5 】

FIG.5



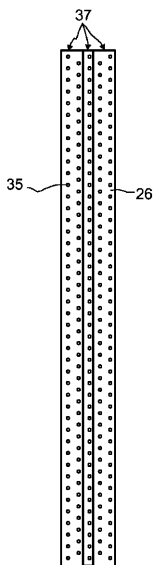
【 図 6 】

FIG.6



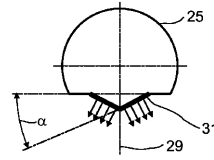
【 図 9 】

FIG.9



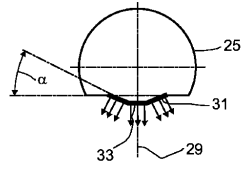
【 図 7 】

FIG.7



【 図 8 】

FIG.8



## 【手続補正書】

【提出日】平成28年6月22日(2016.6.22)

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

ポリ(メタ)アクリレートを製造するためのモノマー溶液の液滴を液滴重合用の反応器(1)中に導入するための、少なくとも1つのチャンネル(25)又は滴下ヘッドを含んでなる装置であって、ここで、チャンネル(25)又は滴下ヘッドは、その下側が滴下プレート(26)で閉ざされており、ここで、滴下プレート(26)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入されるときに通過する穿孔を有し、かつ滴下プレート(26)は、軸対称の滴下プレート(26)又は環状に若しくは環状セグメントとして構成された滴下プレートの場合には滴下プレート(26)の中心線上にはない又は円形の滴下プレートの場合には滴下プレート(26)の中心上にはない穿孔(35)が、モノマー溶液が穿孔(35)を通過して垂直線に対する0°~30°の範囲の角度で反応器(1)中に導入されるように位置合わせされて構成されており、ここで、軸対称の滴下プレート(26)が半径方向に位置合わせされている場合には、穿孔(35)は、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が反応器(1)の軸方向に向かって減少するように位置合わせされており、かつ滴下プレート(26)が互いに平行に配置されている場合又は滴下プレートが同心円状に配置されている場合には、該穿孔は、それぞれ中心線と平行な線上に又は中心の周りに同心円状に延びる線上に、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が一定であり、かつ0°~30°の範囲となるように位置合わせされている、前記装置。

## 【請求項2】

少なくとも2つの互いに平行に配置された滴下プレート(26)をそれぞれ有する少なくとも2つの分散器装置が、多角形のピッチが生じるように互いにある角度で配置されていることを特徴とする、請求項1に記載の装置。

## 【請求項3】

滴下プレート(26)が半径方向に配置されている場合、チャンネルが少なくとも2つの滴下プレートで閉ざされていることによって、モノマー溶液が反応器中に導入される減少角度が得られ、かつモノマー溶液が反応器(1)中に滴下される角度は、滴下プレート(26)におけるどの穿孔列でも一定であり、ここで、反応器(1)の真ん中付近に配置された滴下プレート(26)の角度は、さらに外側に配置されている滴下プレート(26)の角度より小さいことを特徴とする、請求項1に記載の装置。

## 【請求項4】

滴下プレート(26)が半径方向に配置されている場合、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度は、滴下プレート(26)において反応器(1)の中心から外側に向かって増大する、請求項1又は3に記載の装置。

## 【請求項5】

モノマー溶液が少なくとも半径方向エッジの穿孔から出てくる角度は、以下で定義される範囲：

## 【数 1】

$$0.25m \leq r \leq 10m$$

$$0.0001m \leq d_p \leq 0.0015m$$

$$3 \frac{m}{s} \leq v \leq 30 \frac{m}{s}$$

$$3 \leq N_{LR} \leq 18$$

の適用範囲で、

$$\frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) - 6.296 \leq \alpha \leq \frac{r}{N_{LR} \cdot d_p \cdot v^{0.578}} \cdot (0.00697 \cdot r + 0.0332) + 4.704$$

にあり、式中、 $r$  は穿孔の半径位置（メートル）であり、 $N_{LR}$  はチャンネルの数であり、 $d_p$  は平均液滴径（メートル）であり、かつ  $v$  は液滴流出速度（メートル/秒）であることを特徴とする、請求項 4 に記載の装置。

## 【請求項 6】

滴下プレート（26）が軸対称に又は環として若しくは環セクションとして構成されている場合には、チャンネル（25）の軸に平行に延びる中心線に沿って穿孔が、又は円形の滴下プレートの場合には、中心上に穿孔が、これらの穿孔を通して導入されるモノマー溶液が垂直下向きに滴るように位置合わせされていることを特徴とする、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 7】

滴下プレート（26）が、その中心線に沿って角度を付けられたプロファイル、中心線に対して対称に繰り返し角度を付けられたプロファイル又は円形セグメントの形態のプロファイルを有することを特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 8】

滴下プレート（26）が半径方向に、平行に又は環状に配置されている場合、それぞれ 1 つ以上の滴下プレート（26）を有する複数のチャンネル（25）が含まれていることを特徴とする、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 9】

滴下プレート（26）の最も外側の穿孔（35）から滴下プレート（26）のエッジまでの距離が最大 200 mm であることを特徴とする、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 10】

前記穿孔が、25 ~ 500  $\mu$ m の範囲の直径を有することを特徴とする、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【請求項 11】

前記穿孔が、1 から 100 mm の範囲で互いに距離を置くことを特徴とする、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載の装置。

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

|   |
|---|
| International application No<br>PCT/EP2015/064026 |
|---|

| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>INV. B01J19/26<br>ADD.  |   |  |
|---|---|--|
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC   |   |  |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>B01J  |   |  |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched   |   |  |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)<br>EPO-Internal, WPI Data  |   |  |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>   |   |  |
| Category*   | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No.                              |
| X   | US 2011/059329 A1 (DOBRAWA RAINER [DE] ET AL) 10 March 2011 (2011-03-10) cited in the application paragraph [0244]; figure 6<br>----- | 1-12   |
| A   | DE 10 2005 044035 A1 (BASF AG [DE]) 15 March 2007 (2007-03-15) the whole document<br>-----  | 1-12   |
| <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 :<br>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date<br>"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)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed<br>"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<br>"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<br>"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<br>"&" document member of the same patent family |   |  |
| Date of the actual completion of the international search   |   | Date of mailing of the international search report |
| 10 August 2015  |   | 17/08/2015   |
| Name and mailing address of the ISA/<br>European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2<br>NL - 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040,<br>Fax: (+31-70) 340-3016  |   | Authorized officer                                 |
|   |   | Lux, Rudolf  |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/064026

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s)  | Publication date   |
|--|------------------|--|--|
| US 2011059329 A1                       | 10-03-2011       | CN 102597010 A<br>EP 2473536 A1<br>JP 5738295 B2<br>JP 2013503927 A<br>KR 20120059607 A<br>RU 2012112869 A<br>US 2011059329 A1<br>US 2013281594 A1<br>WO 2011026876 A1 | 18-07-2012<br>11-07-2012<br>24-06-2015<br>04-02-2013<br>08-06-2012<br>10-10-2013<br>10-03-2011<br>24-10-2013<br>10-03-2011 |
| DE 102005044035 A1                     | 15-03-2007       | CN 101262936 A<br>DE 102005044035 A1<br>EP 1926551 A2<br>JP 5175195 B2<br>JP 2009507975 A<br>US 2008242817 A1<br>WO 2007031441 A2                                      | 10-09-2008<br>15-03-2007<br>04-06-2008<br>03-04-2013<br>26-02-2009<br>02-10-2008<br>22-03-2007                             |

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/064026

| <b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b><br>INV. B01J19/26<br>ADD.  |   |   |
|---|---|---|
| Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC   |   |   |
| <b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b><br>Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)<br>B01J   |   |   |
| Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen   |   |   |
| Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)<br>EPO-Internal, WPI Data   |   |   |
| <b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>  |   |   |
| Kategorie*  | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  | Betr. Anspruch Nr.  |
| X   | US 2011/059329 A1 (DOBRAWA RAINER [DE] ET AL) 10. März 2011 (2011-03-10)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Absatz [0244]; Abbildung 6<br>----- | 1-12  |
| A   | DE 10 2005 044035 A1 (BASF AG [DE])<br>15. März 2007 (2007-03-15)<br>das ganze Dokument<br>-----  | 1-12  |
| <input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie   |   |   |
| * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :<br>*A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist<br>*E* frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist<br>*L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)<br>*O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht<br>*P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist<br>*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist<br>*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden<br>*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist<br>*Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |   |   |
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche<br>10. August 2015  |   | Absendedatum des internationalen Recherchenberichts<br>17/08/2015 |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde<br>Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2<br>NL - 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040,<br>Fax: (+31-70) 340-3016  |   | Bevollmächtigter Bediensteter<br>Lux, Rudolf                      |

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/064026

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie | Datum der<br>Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| US 2011059329 A1                                   | 10-03-2011                    | CN 102597010 A                    | 18-07-2012                    |
|  |                               | EP 2473536 A1                     | 11-07-2012                    |
|  |                               | JP 5738295 B2                     | 24-06-2015                    |
|  |                               | JP 2013503927 A                   | 04-02-2013                    |
|  |                               | KR 20120059607 A                  | 08-06-2012                    |
|  |                               | RU 2012112869 A                   | 10-10-2013                    |
|  |                               | US 2011059329 A1                  | 10-03-2011                    |
|  |                               | US 2013281594 A1                  | 24-10-2013                    |
|  |                               | WO 2011026876 A1                  | 10-03-2011                    |
|  |                               | -----                             | -----                         |
| DE 102005044035 A1                                 | 15-03-2007                    | CN 101262936 A                    | 10-09-2008                    |
|  |                               | DE 102005044035 A1                | 15-03-2007                    |
|  |                               | EP 1926551 A2                     | 04-06-2008                    |
|  |                               | JP 5175195 B2                     | 03-04-2013                    |
|  |                               | JP 2009507975 A                   | 26-02-2009                    |
|  |                               | US 2008242817 A1                  | 02-10-2008                    |
|  |                               | WO 2007031441 A2                  | 22-03-2007                    |
| -----  | -----                         | -----                             | -----                         |

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(74) 代理人 100135633

弁理士 二宮 浩康

(74) 代理人 100162880

弁理士 上島 類

(72) 発明者 アンドレアス ダイス

ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン ハーフェンシュトラッセ 101

(72) 発明者 ローベアト バイアー

ドイツ連邦共和国 ズィンスハイム シュタインスフアターシュトラッセ 4

(72) 発明者 ルドルフ シュリヴァ

ドイツ連邦共和国 アルツェナウ アム アプフェルグラーベン 22

(72) 発明者 ユルゲン フライベルク

ドイツ連邦共和国 ランパートハイム プファフェンヴィーゼ 10

(72) 発明者 カール イェー . ポッセミールス

ベルギー国 スヒルデ ファザンテンラーン 13

(72) 発明者 マルコ クリュウガー

ドイツ連邦共和国 マンハイム ファルケンシュタインヴェーク 37

Fターム(参考) 4G070 AA01 AB06 BB32 CA07 CB17 CC20 DA16

4J011 AA05 BA08 BB03 BB12 DB13 DB15

4J100 AL00P CA01 EA05 FA47 JA19

## 【要約の続き】

下プレート(26)が互いに平行に配置されている場合又は滴下プレートが同心円状に配置されている場合には、該穿孔は、それぞれ中心線と平行な線上に又は中心の周りに同心円状に延びる線上に、モノマー溶液が反応器(1)中に導入される角度が一定となるように位置合わせされている前記装置に関する。