

(解説)

# マイクロチャネルリアクタ (Stacked Multi-Channel Reactor: SMCR<sup>®</sup>) のバルクケミカルへの展開

## Microchannel Reactor (Stacked Multi-Channel Reactor: SMCR<sup>®</sup>) for Bulk Chemical Industry



野一色公二<sup>\*1</sup> (工博)  
Dr. Koji NOISHIKI



三輪泰健<sup>\*1</sup>  
Yasutake MIWA



松岡 亮<sup>\*2</sup>  
Akira MATSUOKA

The Microchannel Reactor (MCR) has a high thermal performance and rapid mass transfer due to the small channel size where the reaction takes place; the channel size is smaller than that of the conventional mixer type reactor. However, the application of MCR is limited to such fields as medicine and the like, which are high value applications of many types and small productive capacity, due to the limitation on the flow capacity of MCR. We have therefore developed the stacked multi-channel reactor (SMCR<sup>®</sup>) to handle mass production and make it applicable to/in the bulk chemical industry. This report explains the technology of MCR, the features and the construction of SMCR and the work done to develop it for commercialization.

まえがき = 攪拌 (かくはん) 槽などの従来の反応場に比べ、流路径を小さくすることによって高い伝熱性能と物質移動速度が得られるマイクロチャネルリアクタ (Microchannel Reactor, 以下MCRという) が注目されている。しかし、装置の処理量の制限などから、医薬品などの高付加価値で多品種少量生産用途にしか適用されてこなかった。

そこで当社は、大容量処理が可能な積層型多流路反応器 (Stacked Multi-Channel Reactor, 以下SMCR<sup>®</sup>注) という) を開発することにより、このMCR技術のバルクケミカル用途への展開を行っている。

本稿では、MCR技術およびSMCRの構造とその特徴を紹介するとともに、SMCRを用いた商業化までの開発の流れを紹介する。

### 1. MCRとは

#### 1.1 MCRの特徴

攪拌槽などの従来の反応場に比べ、図1のように流路

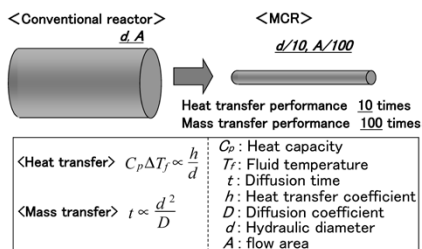


図1 既存の反応場とマイクロチャネルの比較

Fig. 1 Comparison between conventional reactor and microchannel reactor

脚注) SMCRは当社の登録商標である。

径を小さくすることによって高い伝熱性能と物質移動速度が得られることが多数報告されている<sup>1), 2)</sup>。

また、微細な流路内では壁面の効果を受けやすく、相対的に重力の効果を受けにくいいため、これまでの機器や配管内で見られてきた重質と軽質、あるいは気体と液体の分離が生じにくい。その結果、流体の物性や流速により、図2に示すような種々の流動状態をとる。例えば、水と油のような不溶性の2流体では、流速の比較的遅い領域ではスラグ流、流速の速い領域では2層流となる。スラグ流の流動状態の写真およびイメージ図を図3に示す。壁面の材質がステンレス鋼やガラスの場合、親水性であるため水が壁面に滞留し油が水に内包されるように流動する。このため、2層流に比べスラグ流の方が流体間の接触界面積が大きくなる場合がある。また壁面の効果による内部循環流が発生することも確認されており<sup>3), 4)</sup>、スラグ流を選択的に使用することでより高い物質移動性能が得られ、MCRのさらなる高性能化が期待できる。

#### 1.2 既存のMCRの課題

MCRは、別名「“マイクロ”リアクター」と呼ばれる

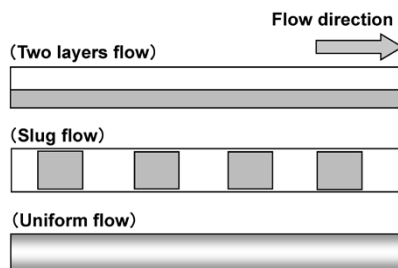


図2 微細流路内の流動状態の例

Fig. 2 Example of flow pattern in microchannel

\*1 機械事業部門 開発センター 商品開発部 \*2 技術開発本部 機械研究所

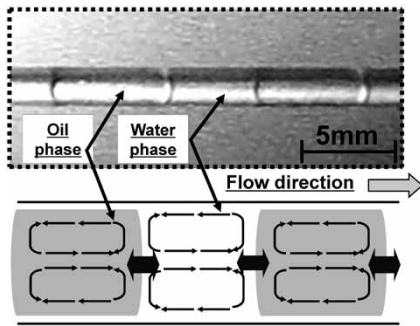


図3 微細流路内のスラグ流  
Fig. 3 Slug flow in microchannel

ように、流路のサイズが微細であるのみならず、装置・機器サイズが小形とのイメージが定着している。このため例えば、年間数kgから数百kgまでの医薬品のような高付加価値・小ロット製品の製造への適用がほとんどで、年間数千~数万トンのような大容量処理を要求される一般工業化学などには採用されていない。

この理由としては、流路加工などの装置製作費用が高く小形の装置しか製作できないこと、および単一機器での多流路化（以下、ナンバリングアップという）方法が難しく大容量用途には適さないことなどが考えられる。

このように、MCRには従来になかった高性能な反応器としての可能性があるが、それを工業化する“装置”がないことが大きな課題と考えられる。そこで当社は、大容量処理が可能なMCRの開発を行うこととした。

## 2. SMCRの機器構造

### 2.1 積層型熱交換器の基盤技術

伝熱性能に優れるアルミ合金を用いた高性能な熱交換器の一種であるアルミ製ろう付プレートフィン熱交換器（Brazed Aluminum Plate-Fin Heat Exchanger, 以下ALEX<sup>®</sup>注）という）は、空気を深冷分離して酸素や窒素を生産する設備用の熱交換器として開発された。多流体を一度に熱交換できるため、近年、天然ガス処理やエチレンの深冷分離用などの機器として化学プラントにも広く使用されている。

ALEXは、図4に示すように熱交換を行うろう付されたコア本体、および流体をコア内に導くためのヘッダやノズルからなる。ALEXはこの積層構造の特徴を生かし、層内のフィンの置き方や組合せを工夫することによって気体、液体のみならず2相流（気液混相）を均一分配できるとともに、複数の流体を同時に熱交換することができる。

用途にもよるが、単位体積あたりの伝熱面積が $1,000\text{m}^2/\text{m}^3$ 以上と従来の多管式熱交換器に比べ約5倍以上大きいため、機器のコンパクト化が可能である。またALEXは、複数のコア本体を溶接接合してヘッダとノズルを共通化することによって一つの熱交換器とするか、または、複数のALEXを配管で結合することにより、任意の流量を処理でき、大容量処理に用いることができる。

脚注) ALEXは当社の登録商標である。

### 2.2 大容量SMCRへ適用可能な技術

ALEXは熱交換器として広く使用されており、基盤技術として以下の技術がある。

- (1) 接合、流路加工などの製造技術
- (2) 性能計算に用いる伝熱設計、圧力損失計算技術
- (3) 気液分配構造を利用した均一分配、混合技術
- (4) 流体をコアごとに均等に分配するコア間の偏流対策技術
- (5) 流体を各層に均等に分配する積層間の偏流対策技術

これらの技術はこれまでALEXで得られた設計技術やノウハウであり、大容量SMCRにも活用できる。

### 2.3 SMCRの基本構造

MCRの流路の基本構造としては一般的に、図5上図に示すようにチューブを組合せたY字およびT字形状が多用されている。しかし、この構造のままでは大容量化のためのナンバリングアップの際、流体の供給方法などから流路の配置に制限がある。積層方向のナンバリングアップは容易であるが、幅方向に複数の流体を効率良く配置するのは難しく、大容量MCRには適さない。そこで、既存のALEXの構造を参考に、図5下図に示すようにプレートの両面に流路を加工し、流路を3次元配置し

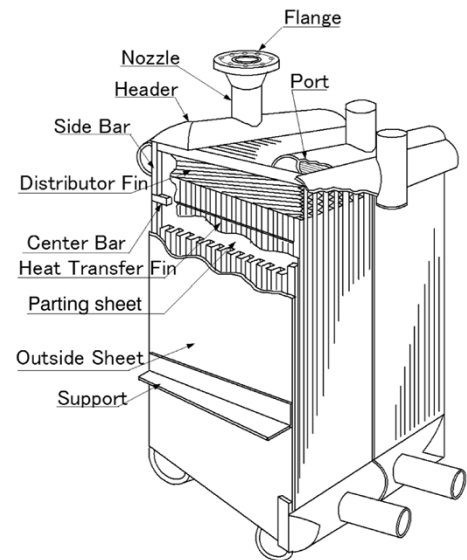


図4 ALEXの構造  
Fig. 4 Structure of ALEX

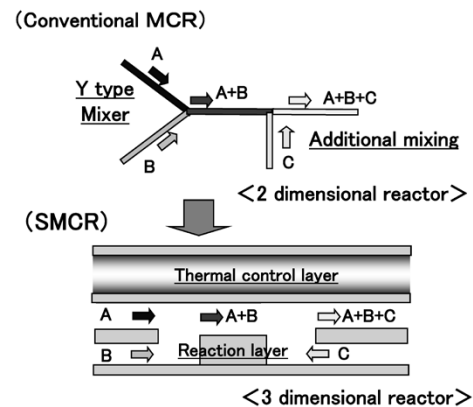


図5 2次元および3次元のマイクロチャネルリアクターの基本構造  
Fig. 5 Basic construction of two dimensional reactor and three dimensional reactor

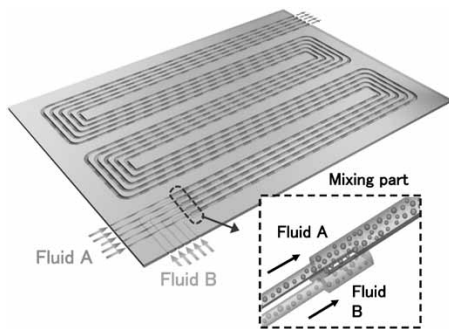


図6 SMCRの複数流路の基本構造  
Fig. 6 Basic construction of multi-channel SMCR

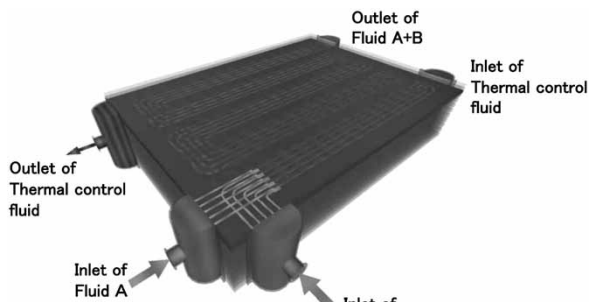


図7 SMCRの内部イメージ  
Fig. 7 Inside image of SMCR

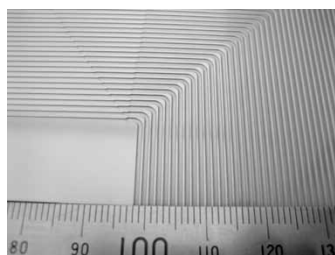


図8 エッチングにより形成した微細流路  
Fig. 8 Microchannel manufactured by chemical etching

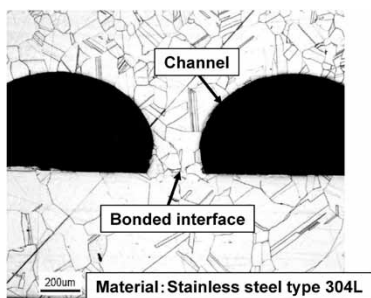


図9 流路および拡散接合部断面観察の一例  
Fig. 9 Cross-sectional observation of channels and bonded interface

た構造を採用した。

この構造を採用することにより、図6のようにプレート内に流路を密に配置して単位体積あたりの流路数を大幅に増加することができ、大容量の処理が可能となる。また、処理量が増えれば図7のようにプレートを複数積層することで流路数を増すことができる。すなわち、1機器あたりの流路本数は、1プレートあたりの流路本数×積層枚数で設計可能となる。

また、本操作時に温度調節が必要であれば、図5のように温調流路を重ねることで精密な温度調節も可能となる。各流路への流体供給は、図4のALEXで示したようなヘッド、ノズル構造を利用することで各プレートに流体を均一に分配することが可能となる(図7)。本構造を採用した大容量MCRをSMCRと呼んでいる。

SMCRの製作手順は、まずステンレス鋼などの金属プレートに化学エッチングなどにより図8のような流路パターンを形成する。その後、目的の流路本数となるように温調プレートと組合せて必要枚数を積層する。つづいて、真空加熱炉にて加熱・加圧することにより、拡散接合にて各プレートが接合されて流路が形成される。図9はステンレス鋼での拡散接合例である。流路の閉塞は認められず、また接合界面を越えて結晶粒の成長も行われており、母材と同等以上の接合強度が得られる。したがって耐圧性能は、流路サイズに基づいた強度計算で推算可能である。また、耐腐食性、耐熱性などの要求仕様によって様々な材質を採用でき、自由度のある設計・製造が可能である。

### 3. 商業化に向けた開発の流れ

SMCRにおいても従来機器と同様に図10に示す流れで開発を実施する。しかし、MCRの特徴であるナンバリングアップの思想を当社SMCRへ適用することによって開発の期間を短縮することができる。

ラボ試験における例として、各種流路および形状(半円形流路、円形流路)を用い、抽出原料としてドデカンにフェノール0.1wt%を溶解させた液を、抽剤として水を用いてフェノールの抽出を行った。図11に示すように、物質の移動速度を表す物質移動容量係数 $Ka$ は、流路相当径(=4倍の流路断面積/濡れ辺長さ)で整理した場合、相関関係があることが確認できた<sup>5)</sup>。

これにより、大学や企業の研究機関で得られたラボ試

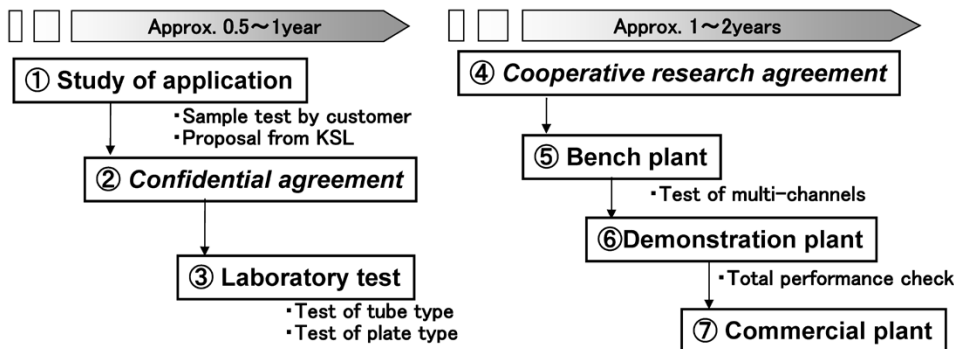


図10 商業化までの開発の流れ  
Fig.10 Flow of development work for commercialization



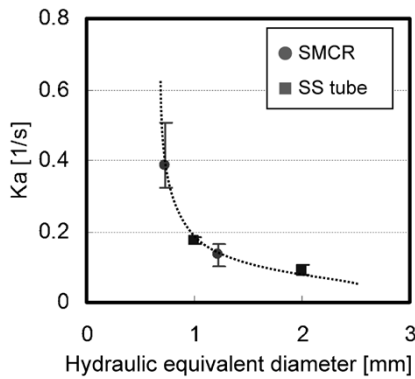


図11  $K_a$ と流路相当直径の関係

Fig.11 Relationship between  $K_a$  and hydraulic equivalent diameter

験のデータをそのままSMCRへ適用することが可能であることから、重複する試験を最小限にすることができ、SMCRによる開発試験期間を短くすることができる。

またベンチ試験においては、SMCRの商業化で必要とされる機器形状・プレートサイズおよび積層枚数を決定した上で、図6のように実機相当のプレートサイズにおいて、偏流の影響が確認できる積層数3段程度でテストを実施すれば、商業化時の性能が予測可能である。商業化時の課題としては、大形化に伴う各段プレートへの流体の均一分散があるが、ALEXではこれまで100段以上の積層構造で流路への流体の均一分散を行ってきた実績があり、この設計技術を活用すれば実用上偏流の問題は生じないと考える。したがって、攪拌槽タイプの反応器などで課題とされてきたスケールアップでの性能低下リスクが低減可能であり、SMCRではベンチ試験とデモプラントを兼ねた検証で商業化の判断ができると考える。

このように、SMCRは伝熱性能や物質移動速度に優れるだけでなく、開発投資・期間を低減することが可能である。

## 4. SMCRの適用事例

### 4.1 抽出用途への適用検討

各種化学製品の製造工程には、原料中の目的物質または目的外物質を、抽剤を用いて除去する抽出工程がある。例えば、抽剤をリサイクルする場合には、攪拌槽において製品を含む原料を抽剤で抽出後、製品と抽剤を比重差で分離し、その後、原料と抽剤を蒸留操作などで分離・回収する一連の工程となる。この場合、抽出を行う攪拌槽の処理能力に合わせて抽剤回収塔の処理能力が決定される。

このような抽出ユニットにおいてSMCRを適用すると、以下のような効果が期待される。

- (1) 抽出時間の低減
- (2) 抽出工程機器サイズの低減
- (3) 抽剤の使用量削減による原単位改善
- (4) 多段抽出が必要な場合、連続処理が可能

そこで、SMCRを用いた抽出試験を実施し、SMCRの抽出用途への適用の可能性を確認した。

### 4.2 実験内容および結果

SMCRの試験体は、エッチングにより形成した半円形

の微小流路を有するステンレス製のプレートを別のプレートで両側から挟んで製作した。また多流路化、すなわち大容量化による各流体の偏流の影響による性能低下の有無を確認するため、試験体の流路数は、1本×1段の1本流路、5本×1段の5本流路、5本×5段の25本流路の3種類とし、図12に示すベンチ試験装置を用いて抽出実験を行った。

実験では、抽出原料としてドデカンにフェノール0.1wt%を溶解させた液を、抽剤として水を用い、フェノールの抽出を行った。

抽出原料および抽剤の体積比を1とし、各液をポンプを用いて所定の流量（流路あたり合計1~10ml/min）で試験体に供給し、回収液を有機相と水相に分離した。分離した有機相中のフェノール濃度を吸光光度法を用いて分析し、フェノールの抽出率を求めた。

攪拌抽出試験では、200mlビーカーに抽出原料および抽剤を各100ml入れ、抽剤相をマグネチックスターを用いて所定の回転数で攪拌した。所定の時間間隔で抽出原料中のフェノール濃度を分析し抽出率を求めた。実験結果を図13に示す。縦軸に平衡抽出率比（=抽出率（%）/平衡抽出率（%））、横軸に滞留時間を示す。

攪拌抽出試験では、攪拌子の回転数が速くなるにつれて抽出に要する時間が短くなるが、回転数が400rpmより速い場合は抽出原料が抽剤中に分散した状態になり、分離が困難であった。平衡抽出に達するまでの時間は、攪拌抽出試験では約100分程度必要であったのに対し、SMCRでは0.1~1分程度と約1/100に短縮された。また、SMCR試験体から流出した液は直ちに抽出原料と抽

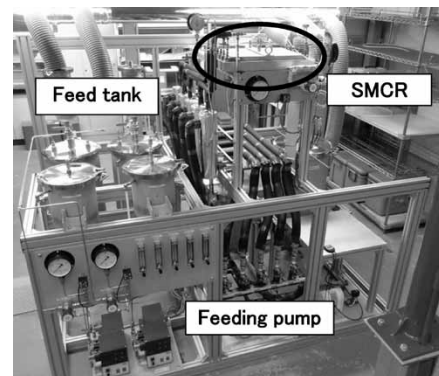


図12 抽出用SMCRベンチ試験装置

Fig.12 Bench test unit of SMCR for extraction use

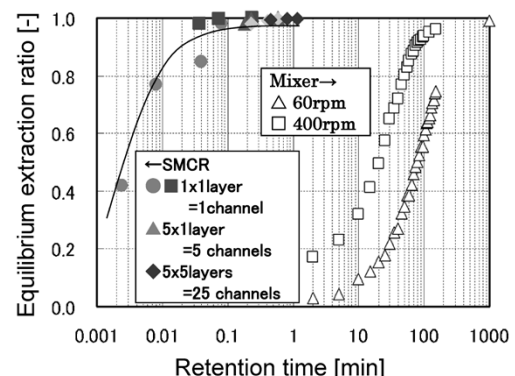


図13 抽出試験結果(SMCR vs. 攪拌)

Fig.13 Test results for extraction use (SMCR vs. Mixer)

剤の2相に分離した。これは、図5の混合部では積極的な混合を行わず、油層と水層でスラグ流や2層流を形成させて分離性を保っているためである。この実験の結果からSMCRを抽出に用いた場合、以下の利点があることが確認された。

- (1) 攪拌抽出に比べ滞留時間が1/100に短縮できる。
- (2) 抽出後の分液性に優れる。
- (3) 流路本数および段数の影響は認められず、溶液の分配性に優れる。

#### 4.3 SMCRによる商業化検討について

多くの抽出用途では、目的の抽出濃度に達するまで複数回の抽出を必要とする場合がある。このとき、これまでの抽出装置では、図14に示すように攪拌槽が分液槽の役目を兼ね、抽出後に分液を行うことで複数回の抽出をバッチ式に処理していた。また抽出用途によっては、抽出操作自体は数分で終了するが分液に数時間必要な場合もあり、目的の抽出率を得るために多くの作業と時間が必要であった。

これに対してSMCRを多段の抽出に用いる場合、図15のように複数の抽出ユニットを積層して一体化すること

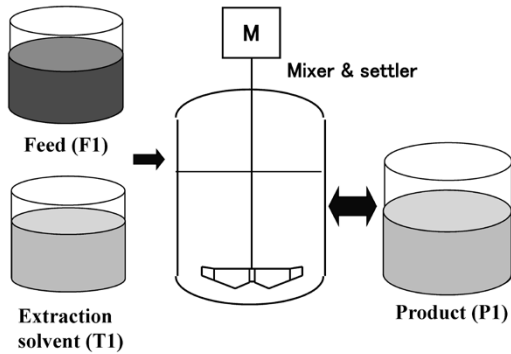


図14 攪拌槽を用いた従来の抽出ユニット  
Fig.14 Conventional extraction unit using mixer

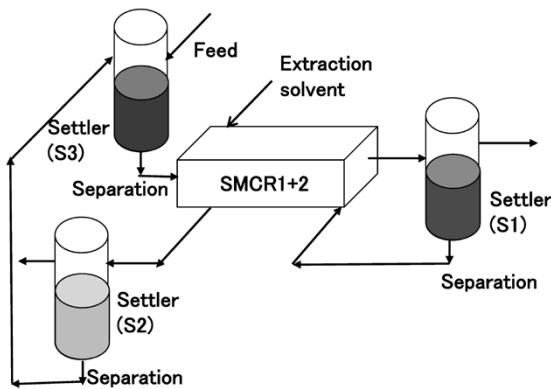


図15 SMCRを用いた多段抽出ユニット  
Fig.15 Multi-stage extraction unit using SMCR

が可能である。さらに、抽出後の分液性に優れるため、セトラで迅速に分離された原料を連続してSMCRへ供給することによって連続処理が可能である。

これにより、従来のバッチ式で必要であった分液に要する時間や、溶液の排出あるいは導入にかかる切替操作などが不要となるため、SMCRでは効率良く抽出を行うことができる。したがって、SMCRによる商業化においては、従来のバッチ式と同等の時間で処理を行う場合では、単位時間あたりの処理量を減らして機器サイズを最小とするか、あるいはバッチ式よりも短時間で効率良く処理を行うことによってさらなる大容量処理を狙うかの選択肢がある。

今後、他の抽出用途での試験を継続し抽出性能データの蓄積を行うとともに、既存の抽出ユニットとの設備費及び運転費用を含めた経済性比較を実施し、商業化を推進していく。

むすび=MCRは、高い伝熱性能および高い物質移動速度などの特徴を有することから工業化の検討がされている。しかし、一般的には装置が小形で高価であるため、高付加価値用途であるか、あるいは、迅速な反応のためほとんど滞留時間を必要とせず、結果として小形機器が採用される場合に限られてきた。

しかし、本稿で紹介したSMCRにおいては、MCRの伝熱促進、物質移動促進の機能を維持しつつ大容量化が可能であり、これまでの高付加価値用途のみならず、比較的長い滞留時間を必要とする抽出、反応などのバルクケミカル用途への適用も可能となる。

また、SMCRにおいて達成される高い伝熱性能、高収率などを機器のコンパクト化だけに適用するのではなく、連続処理の利点を生かし、従来バッチ式処理で必要であった段取り時間までも活用して生産効率を向上させることや、プロセス条件（運転圧力、温度など）の緩和に適用することで省エネルギーや抽剤、溶剤などの低減を実現するなどの多面的な効果が期待できる。

#### 参考文献

- 1) 吉田潤一. マイクロリアクターの開発と応用. シーエムシー出版, 2003, p.4.
- 2) G. S. Calabrese. AIChE J. 2011, Vol.57, No.4, p.828.
- 3) A. Ghaini et al. Chemical Engineering Science. 2011, Vol.66, p.1168-1178.
- 4) H. Kinoshita et al. Lab Chip, 2007, Vol.7, p.338-346.
- 5) 松岡 亮ほか. 半円形断面微小流路における液液抽出性能. 化学工学会秋季大会研究発表講演要旨 第44年秋季大会. 2012, I305.