

(技術資料)

# 大容量処理に適したフロー合成用SMCR™ (積層型多流路反応器)

市橋伸理\*・大園知宏・松岡 亮

## Large Capacity Reactor, Stacked Multi-Channel Reactor (SMCR™) for Flow Chemistry

Nobumasa ICHIHASHI・Tomohiro OZONO・Akira MATSUOKA

### 要旨

従来の攪拌槽型反応器に代わるフロー（連続）合成反応器であり、大容量処理が可能なマイクロチャンネルリアクタであるSMCR™(Stacked Multi-Channel Reactor)を開発した。開発後の取組として、金属製SMCRのラインナップに加えて、用途拡大を目指し、高い耐食性を持つセラミック製SMCR™を開発し、熱衝撃に対する検証試験も実施した。さらに機器の供給のみでなく、SMCR™の商業化への促進を目的として、基礎試験やベンチ試験を積極的に受託して実施している。ベンチ試験では、当社内に設置したベンチ試験装置で検証試験を行い、SMCR™ユニットの有用性を検証している。

### Abstract

The stacked multi-channel reactor (SMCR™) is a (continuous) flow chemical reactor that replaces the conventional stirred bed reactors and has been developed as a reactor capable of large-capacity processing. As an effort after the development, an SMCR™ made of metal has been added to the lineup and, furthermore, a ceramic SMCR™ with high corrosion resistance has been developed to expand the applications, for which verification tests have been conducted against thermal shock. Moreover, basic tests and bench scale testing equipment have been actively commissioned and implemented with the aim of promoting the commercialization of SMCR™ in addition to equipment supply. As for bench scale testing, a bench scale testing apparatus installed in Kobe Steel performs verification tests to verify the usefulness of SMCR™ units.

### キーワード

フロー合成、連続生産、マイクロチャンネルリアクタ、セラミック製SMCR、耐食性、熱衝撃試験、ベンチ試験装置、SMCRユニット、循環式SMCRシステム

まえがき = 異なる二つの流体を直径1mm程度の微細流路に流すだけで効率的に反応させる。これがマイクロチャンネルリアクタの原理である。国内外の化学品製造プロセスにおいて、高効率化、品質の安定、安全性の向上の観点で、微細な空間で物理化学的な処理を行うマイクロチャンネルリアクタによるフロー合成（連続合成）が注目されている<sup>1),2)</sup>。これまでは研究室レベルでの検討や医薬品分野など、少量で高付加価値製品への適用検討が主体であった。しかし最近では、ファインケミカルやバルクケミカルなど、大容量処理が求められる用途への検討が本格的に行われている。

当社では、フロー合成向けに大容量処理が可能なマイクロチャンネルリアクタとして積層型多流路反応器(Stacked Multi-Channel Reactor, 以下SMCR™<sup>注1)</sup>)を開発し、商業生産プラントへの適用を目指している。本稿では、SMCR™の基本的な構造や特徴、商業生産への適用に向けた当社の取り組みと今後の展望について述べる。

## 1. SMCR™の特徴と適用用途

### 1.1 SMCR™の基本的構造と特徴

マイクロチャンネルリアクタは一般的にサブミリ～数ミ

リの微小な流路を有し、流体が機器の内部で合流する構造となっている。この微小な流路が反応場となり、高い伝熱性能や物質移動速度が得られる<sup>3)</sup>ことがマイクロチャンネルリアクタの最大の特徴である。従来の攪拌（かくはん）槽型反応器とマイクロチャンネルリアクタとの比較を図1に示す。マイクロチャンネルリアクタは一般的に流路1本での処理量が小さいため、複数の流路を並べる、「ナンバリングアップ」という手法を用いて処理量を増加させる。

SMCR™は当社独自開発の製品である。本機器は「ケミカルエッチング」と「拡散接合」を用いて流路を多流路化し、ナンバリングアップすることによって容易に大容量化できる。図2に流路の基本構造を示す。ケミカルエッチングで1枚の金属プレート上に複数流路を形成し、積層した複数のプレートを拡散接合によって強固に接合する。こうした構造により10,000本以上の流路を有する反応器も製作できる。SMCR™内部の流路の数と長さは、反応条件に従って自由に設計が可能である。また、一部のプレートを熱媒体流路に使用することによって反応温度を調整することも可能である。

脚注1) SMCRは当社の登録商標である。

\* 機械事業部門 産業機械事業部 機器本部 技術部

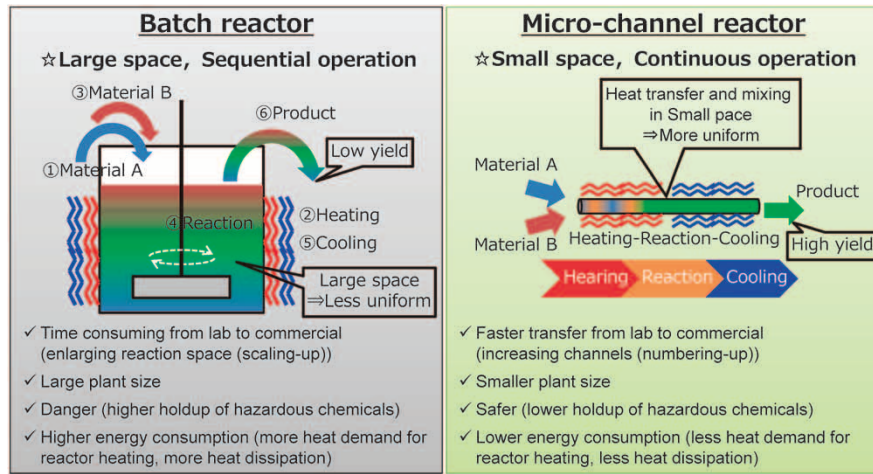


図1 攪拌槽型反応器とマイクロチャネルリアクターの比較  
Fig.1 Comparison between batch reactor and micro-channel reactor

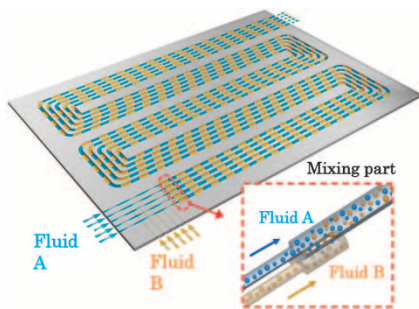


図2 SMCR<sup>TM</sup>の複数流路の基本構造  
Fig.2 Basic construction of multi channel of SMCR<sup>TM</sup>

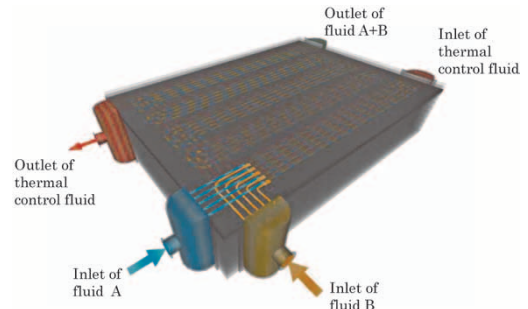


図3 SMCR<sup>TM</sup>の全体および内部イメージ  
Fig.3 Overall and inside image of SMCR<sup>TM</sup>

このような特徴を有するSMCR<sup>TM</sup>は、さまざまな反応用途の大容量化や連続処理化、装置のコンパクト化を同時に達成できる反応器であることから、商業化に向けての高いニーズがある。SMCR<sup>TM</sup>の全体および内部イメージを図3に示す。

## 1.2 SMCR<sup>TM</sup>の適用用途

SMCR<sup>TM</sup>の主な適用用途としては、化学品製造プロセスの各单位操作における「合成」および「抽出」が中心になると考えられる。各種有機合成やポリマー合成などは合成時の反応速度が速く反応熱が大きいいため、従来の攪拌槽を使用した合成は温度制御が難しい。このような合成に対してSMCR<sup>TM</sup>を用いることによって緻密な温度制御が可能となり、製品の品質安定やプロセスの高効率化が期待できる。

いっぽう抽出用途では、微細な流路を用いることによって接触面積が増大し、目的物質の抽出効率を向上させることができる。また、SMCR<sup>TM</sup>の流路内部で積極的な

流体混合を行っていないため、抽出後の相分離性能が従来の攪拌槽に比べて格段に改善する。こうしたメリットを生かせる用途として、反応後の不純物や触媒の除去、レアメタルの回収などへの展開が期待される。

## 2. SMCR<sup>TM</sup>の商業化に向けて

SMCR<sup>TM</sup>の商業生産に向けた主な開発ステップを図4に示す。基本的には従来の化学プロセスの開発と同様に、まずラボでの基礎試験を行って反応条件を最適化する。その後、複数の流路を有するSMCR<sup>TM</sup>を用いてベンチ試験を実施し、基礎試験との差異を確認する。最後に、商業生産と同様の機能を有したプラントを用いたパイロット試験によって性能や運転制御面を確認して商業生産に移行するという流れになる。先にも述べたようにSMCR<sup>TM</sup>を用いる場合、ナンバリングアップという手法を用いて処理量を増やし、商業化に進むことができる。このため、基礎試験で得た反応条件をそのまま商業生産

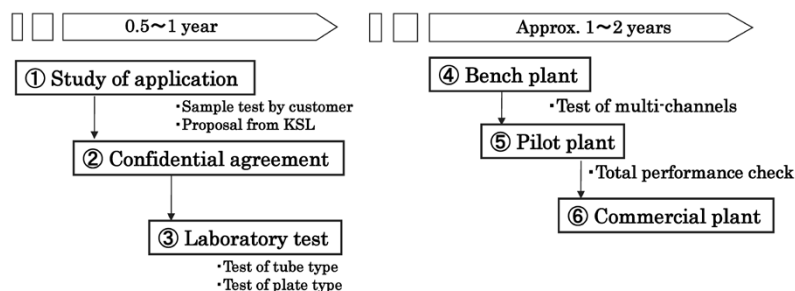


図4 商業化までの開発の流れ  
Fig.4 Development work flow for commercialization

にも用いることができることから化学プロセス開発時のリスクが低減し、開発の低コスト化・期間短縮が期待できる。

SMCR™を並列あるいは直列に配置することによって理論的に大容量化の上限はなく、構造面では商業化に十分な機能を有している。いっぽう、腐食性の高い用途に用いる場合、エッチングや拡散接合が可能な金属は使用できない。このため、用途を拡大するためには材質面の問題をクリアする必要がある。

そこで当社は、SMCR™の商業生産をさらに促進するための取り組みとして、「セラミック SMCR™の開発」を進めてきた。さらに、商業化に向けてプロセス（ソフト）面の充実を図るため「基礎検討ステージおよびベンチステージでの受託試験」を行ってきた。取り組みの内容およびその成果を次章以降にて紹介する。

### 3. セラミック SMCR™の開発

SMCR™は当初、ステンレス鋼をメインとした金属製の機器のラインアップのみであった。しかし、酸・アルカリを多用するプロセスなど耐食性が要求される用途や、医薬・半導体・食品業界など金属イオンの溶出が許容されない用途など、金属製の機器では対応できない用途が多くある。そういった用途への適用拡大を目的とし、セラミック SMCR™の開発を行った。

#### 3.1 セラミック SMCR™の特徴

セラミックは一般的に高い耐食性を有し、また高温での強度が高いという特徴を持つ。いっぽうで脆性（ぜいせい）破壊を起こしやすい材料であり、急加熱・急冷却などを伴う運転時には注意が必要となる。当社では構造解析により SMCR™の構造を最適化し、耐熱衝撃性に優れるセラミック SMCR™を開発した。具体的には、図5に示すとおり、本体のセラミックコアから分離した金属または樹脂製のフランジ部から流体の供給・抜き出しを行う構造とした。セラミック SMCR™は以下のような特徴を有している。

- ①流体供給の不連続な形状部をセラミック本体になくして直線流路のみにした。これにより、応力集中の緩和が図られ、高い耐熱衝撃性を有する構造である（図6参照）。
- ②セラミックコア内部に流路を最大限配置し、流路がなく温度変化がしにくいセラミックの部分をも最小化

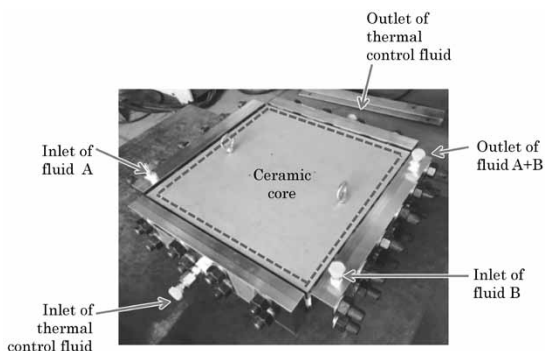


図5 セラミック SMCR™の外観  
Fig.5 Ceramic SMCR™

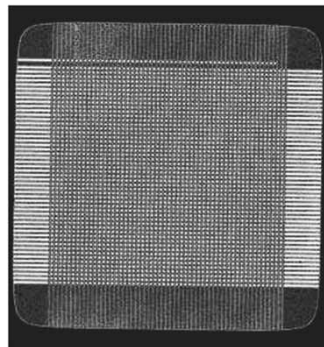


図6 セラミック SMCR™の流路内部構造  
Fig.6 Channel flow pattern of ceramic SMCR™

表1 セラミック SMCR™の仕様  
Table 1 Specification of ceramic SMCR™

Size (mm)	465 × 505 × 185
Weight (kg)	75
Channel specification	Size: 2 (mm) rectangle Length: 36 (m) Number: 1 Channel
Material (core)	Alumina (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
Material (flange)	Hastelloy/ PEEK / PPS
Design temperature (° C)	180
Design pressure (MPa)	2
Internal volume (ml)	max. 144

した。これによって、セラミックコアと温度が異なる流体供給時の機器の温度分布の均一化を図り、熱応力の発生を最小化できる。

#### 3.2 熱負荷試験の実施

つぎに、熱衝撃性を検証するため、3.1節にて説明した構造を有して表1に示す仕様のセラミック SMCR™を製作して熱負荷試験を実施した。すなわち、スタートアップ時の温度調整用流路に供給する流体の温度と機器表面温度との許容温度差を明確にすることにより、実際の運転環境にて使用できる機器かどうかを検証した。機器を安全に使用するための機器と流体間の許容温度差として、蒸気や液体窒素を用いた熱衝撃試験および解析結果から65℃に設定した。機器の立ち上げにおいて、機器と流体間の温度差が65℃を超えることが想定される場合には、機器の予熱を段階的に行って流体との温度差を管理することによって対応が可能となる。

今後、実運転データを蓄積することによってさらに許容値の精度を高め、商業生産用機器として用途を拡大する。

### 4. 受託試験の実施

SMCR™の開発当初は、SMCR™に適用する反応条件を顧客にて最適化し、その反応条件に沿って SMCR™を設計するというステップでの商業化を目指していた。しかし、顧客で実験設備を準備することや実験条件を決定することが困難で問題となっていた。そこで、直近の当社の取り組みとして、基礎試験およびベンチ試験段階

における各種試験を当社が積極的に受託している。これは、当社の研究所に基礎試験装置およびベンチ試験装置を有していることによる。基礎試験やベンチ試験の実施に加えて、試験結果に基づく商業生産用SMCR™の仕様検討、および経済性評価までを一貫して実施することで商業化の促進が期待される。

#### 4.1 ベンチ試験装置

ベンチ試験装置は2018年より当社総合技術研究所内に設置している。ベンチ試験装置の外観写真を図7に示す。ベンチ試験装置はSMCR™の運転に必要な機器・計装類（タンク、ポンプ、各種センサ類、セトラ、熱媒／冷媒供給ユニット、など）を有しており、SMCR™は反応条件や処理量に応じておのおの取り付けが可能な構造となっている。ベンチ試験装置の主な設置・使用目的は大きく以下の3点である。

- ① SMCR™を組み込んだベンチ試験の実施による商業運転のための運転・制御面での知見を獲得する。
- ② SMCR™を用いたベンチ試験により基礎試験と商業生産の間の補完的なデータを取得する。
- ③ フロー合成用のユニット設備のショールームとして使用し、対外的なPRを行う。

#### 4.2 ベンチ試験装置の検証試験

設置したベンチ試験装置およびそれに組み込んだSMCR™の有用性を確認するため、ベンチ試験装置を用

いた検証試験を行った。本試験では抽出操作を対象とし、模擬抽出物質としてフェノールを溶解させたドデカンとフェノール抽出剤である水をSMCR™内で液液接触させ、フェノールを水側へ抽出した。単流路での抽出試験から得られたデータを基に、標準型のSMCR™に適用した場合の性能を推定し、推定した抽出率が得られるかを試験により確認した。本試験のフロー図を図8に、組み込んだ標準型SMCR™の外観を図9に示す。

標準型のSMCR™は半径1mmの半円流路を24本有している。本抽出操作では多段（3段）の抽出操作としており、フェノールを0.1 wt%溶解させたドデカンを1段目から3段目まで順次圧送し、抽剤である水はフレッシュな水を各段に供給するシステムとしている。各段のSMCR™の下流の分相タンクにはレベルセンサが取り付けられており、タンク内におけるフェノールドデカン溶液と水の界面位置を計測する。界面位置を一定に保つように水相の抜出量を制御し、ドデカンを後段のSMCR™へ圧送する方式を採用することでポンプの数を増やすことなくシンプルな運転を可能にしている。

ベンチ試験結果を図10～図13に示す<sup>4)</sup>。図10は各SMCR™の後段に取り付けられた分相タンクでのドデカンと水の界面高さの時間的推移を示している。この図からは、各段の分相タンクのドデカンと水の界面高さを一定に保つことができていることが確認できる。また

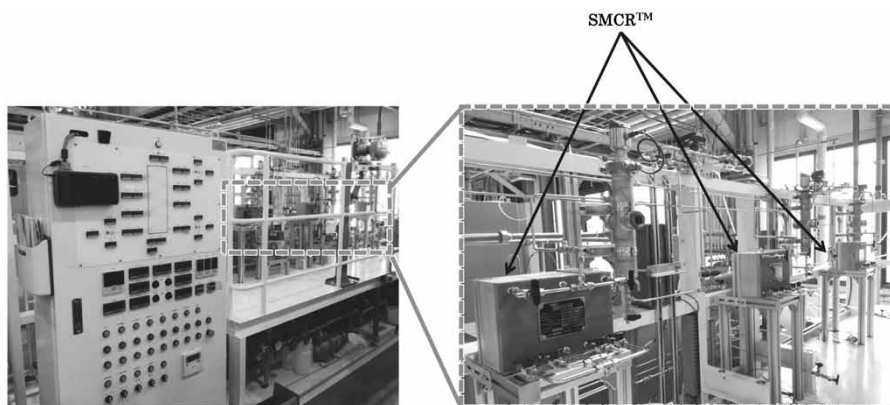


図7 ベンチ試験装置の外観  
Fig.7 Bench stage unit

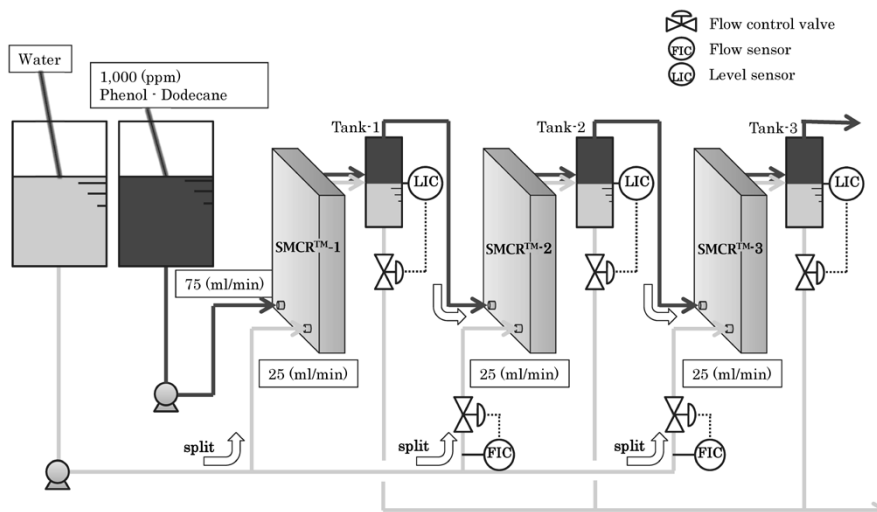


図8 SMCR™を組み込んだベンチ試験装置のフロー図  
Fig.8 Flow diagram of SMCR™ bench unit



図9 標準型SMCR™の外観  
Fig.9 Standard SMCR™

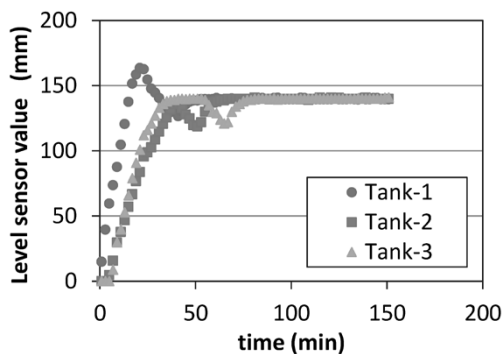


図10 各段における界面レベルの時間経過  
Fig.10 Interface level of each stage

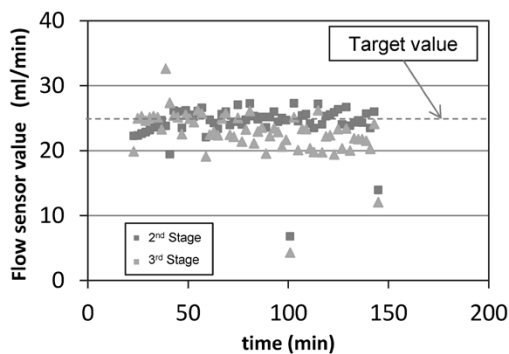


図11 各段の水相の流量  
Fig.11 Flow rate of water phase of each stage

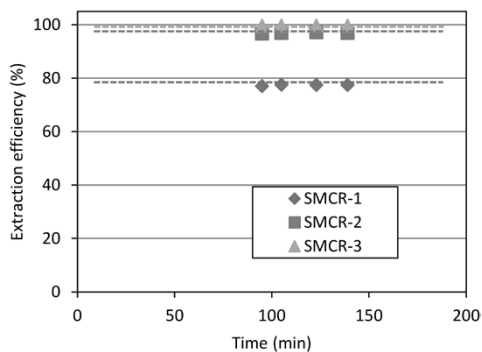


図12 抽出率の時間経過  
Fig.12 Results of extraction efficiency

図11は、各段への水の供給量の時間的推移を示しており、2段目および3段目への水の分配についても、ややばらつきはあるもののおおむね設定値付近で安定して制御できることが確認できる。

図12は、各段におけるドデカン中のフェノールの水

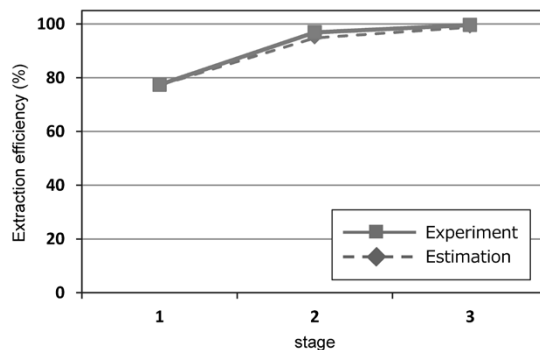


図13 抽出率の時間経過  
Fig.13 Results of extraction efficiency

側への抽出率を示す。なお、フェノールの抽出率 $E$ は初期のドデカン中フェノール濃度 $C_0$ と、 $n$ 段目の分相タンク出口におけるドデカン中フェノール濃度 $C_n$ とを用いて式(1)で表される。

$$E = \frac{C_0 - C_n}{C_0} \dots\dots\dots (1)$$

図12より各段の抽出率は時間の経過によらず一定で安定して抽出を行えていることを確認した。

また、各段におけるフェノール抽出率の実験値と推算値を示したのが図13である。各段におけるフェノール抽出率の推算値は、ビーカースケールでのバッチ式抽出試験により得られた平衡状態における水側とドデカン側とのフェノール濃度の関係(抽出等温線)から計算した平衡抽出率である。図13より、バッチ式抽出試験により得た平衡状態におけるフェノール抽出データに基づく推算結果とベンチ試験結果とはほぼ一致し、バッチ式抽出試験結果を用いてSMCR™抽出システムの設計が可能であることを確認した。

### 5. SMCR™の今後の展望

SMCR™の機器供給および直近の基礎・ベンチ試験の実施などの取り組みにおいて、SMCR™の商業化の早期達成を目標としており、さらに中・長期的なビジョンとしてSMCR™の標準ユニット化を行っていく。すなわち、現行では用途ごと・顧客ごとに基礎試験の結果に基づいた商業生産用SMCR™をオーダーメイドにて仕様検討を行っている。これを、SMCR™に加えてポンプ、タンク、および計装類を含んだユニットを標準ユニットとし、処理量に応じて数種類ラインナップすることによって低コスト化の実現を考えている。

いっぽうで、反応条件の異なるプロセスに標準ユニットを適用するためには、図14に示すような循環式システムを標準ユニットとして構築することを想定している。これは、例えば多段抽出に用いる場合、SMCR™内である一定時間抽出された原料と抽剤を再びそれぞれのタンクに戻す。この操作を一定時間繰り返した後、新しい抽剤に入れ替えて再度SMCR™内で抽出操作を行うというコンセプトである。この操作方法により、任意の抽出時間・抽出回数に対してユニットの仕様を変更する必要がなく、またユニットの構成をシンプルにすることができる。こうした標準ユニットについて今後、実用化

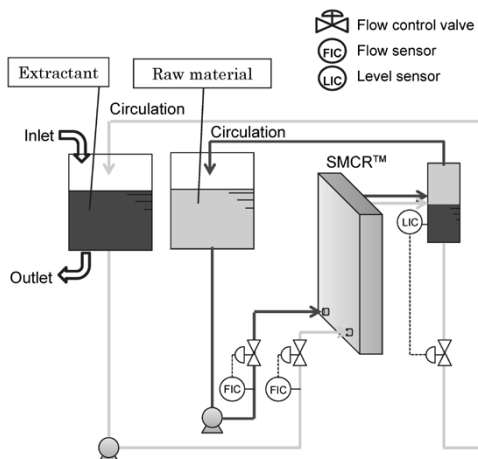


図 14 循環式システムの概要  
Fig.14 Concept of circulation unit

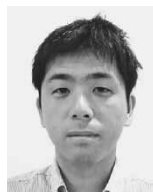
を目指した詳細仕様の検討や実証試験を行い、早期の製品化を目指す。

むすび = 本稿では SMCR™ の特徴に加え、当社の直近の取り組みや今後の展望について紹介した。化学プロセスにおいては近年の環境問題への取り組みや、高生産効率化ニーズの高まりなどから、バッチ処理からフロー合成生産へ進むことが予想されている。しかしながら、プロセスの変換には解決しなければならない課題が多くある。そこで当社は、セラミック SMCR™ などの機器の開発から基礎試験やベンチ試験の実施を通じて、顧客のフロー化の採用を促進する活動を行ってきた。そうしたなかで実際に商業化を意識した具体的な検討に進むケースが増えている。このため、早期の商業生産を達成し、

さらに標準的なユニットの供給を通じてフロー合成の初期検討を迅速化することにより、フロー合成生産への転換に貢献したいと考えている。

参考文献

- 1) マイクロリアクタテクノロジー. 株式会社エス・ティー・エス, 2005, p.1-10.
- 2) M. N. Kashid et al. Chem. Eng. Sci., 2011, Vol.66, p.3876-3897.
- 3) 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.
- 4) 松岡 亮ほか. Bench-scale demonstration of multi-stage continuous process with large capacity microchannel reactor (SMCR™). 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (APCChE 2019).



市橋伸理

機械事業部門 産業機械事業部  
機器本部 技術部



大園知宏

機械事業部門 開発センター  
技術開発部



松岡 亮

技術開発本部  
機械研究所