

明 細 書

発明の名称： マイクロリアクタ

技術分野

[0001] 本発明は、微小な空間を反応場とするマイクロリアクタに関する。

背景技術

[0002] マイクロリアクタ (microreactor) は、反応場としての微小な空間を有し、分子同士の衝突頻度や熱の移動速度を高め、反応速度や収率を向上させた反応装置である。

[0003] マイクロリアクタは、例えば、小さな断面をもつ反応流路を備える。反応流路内には触媒が配されている。反応流路に反応対象となる流体が流通すると、当該流体の反応が促進する。マイクロリアクタは、さらに反応流路に並行して設けられ、当該反応流路と熱的に接触する媒体流路を備える。この媒体流路には熱媒体が流通する。従って、上記反応によって生じた熱は、媒体流路中の熱媒体を通じて回収される。

[0004] 特許文献 1 は、反応流路に接して設けられた媒体流路に冷却ガスを流通させ、反応流路を流通する改質ガスを効率よく冷却する技術を開示している。また、特許文献 1 の技術では、媒体流路における、反応流路の出口に対応する領域にのみ伝熱促進材を充填することで、反応流路の入口と出口の冷却効率を異ならせている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許第3900570号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 従来のマイクロリアクタでは、発熱反応時における反応流路の温度推移によっては、温度分布に偏りが生じ、温度対策を余儀なくされたり、マイクロリアクタの耐久性に影響を及ぼすことがあった。これは、発熱が低い部分に

隣接する媒体流路の部分では、熱媒体の吸熱能力に余力を残し、発熱が高い部分に隣接する媒体流路の部分では、熱媒体が熱を吸収しきれず過度に温度上昇が生じるためである。

[0007] また、吸熱反応においては、吸熱が低い部分に隣接する媒体流路の部分では、熱媒体の伝熱能力に余力を残し、吸熱が高い部分に隣接する媒体流路の部分では、熱媒体が伝熱しきれず吸熱反応を効率よく進行させることができないおそれがあった。

[0008] 本発明は、このような課題に鑑み、反応流路の発熱または吸熱を適切にバランスさせ、反応対象としての流体と熱媒体との熱交換の効率向上を図ることが可能なマイクロリアクタ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

[0009] 本発明の一態様はマイクロリアクタであって、反応対象としての流体を流通させる反応流路と、反応流路と並行して設けられ、反応流路中の前記流体と熱交換する熱媒体を流通させる媒体流路と、を備え、前記反応流路のうちの高活性領域に隣接する媒体流路の断面積は、前記反応流路のうちの低活性領域に隣接する媒体流路の断面積より小さく、前記高活性領域では前記流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に大きく、前記低活性領域では前記流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に小さいことを要旨とする。

[0010] 前記反応流路における前記高活性領域側から前記低活性領域側にかけて、媒体流路は、その断面積が漸増するように形成されていてもよい。

[0011] 前記反応流路の前記高活性領域に近い媒体流路の開口面積は、前記反応流路の前記低活性領域に近い媒体流路の開口面積より小さくてもよい。

[0012] 前記反応流路の前記高活性領域の断面積は、前記反応流路の前記低活性領域の断面積より大きくてもよい。

[0013] 前記反応流路は、前記高活性領域側から前記低活性領域側に向けて、その断面積が漸減するように形成されていてもよい。

[0014] 前記反応流路のうちの前記高活性領域に近い開口面積は、前記反応流路のうちの前記低活性領域に近い開口面積より大きくてもよい。

[0015] 前記反応流路は、その内壁のうちの少なくとも、前記高活性領域及び前記低活性領域に含まれる一部に配された触媒層を有してもよい。前記高活性領域の前記触媒層の厚みは、前記低活性領域の前記触媒層の厚みより大きくてもよい。

[0016] 前記媒体流路における熱媒体の流通方向は、前記反応流路における前記流体の流通方向と互いに対向していてもよい。

発明の効果

[0017] 本発明によれば、反応流路の発熱または吸熱を適切にバランスさせ、反応対象としての流体と熱媒体との熱交換の効率向上を図ることが可能なマイクロリアクタを提供できる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係るマイクロリアクタの概略的な構成を示した横断面図である。

[図2]図2(a)及び図2(b)は、反応流路における発熱反応を説明するための図である。

[図3]図3(a)及び図3(b)は、反応流路における吸熱反応を説明するための図である。

[図4]図4は、本発明の第2の実施形態に係るマイクロリアクタの概略的な構成を示した横断面図である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下に添付図面を参照しながら、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。かかる実施形態に示す寸法、材料、その他具体的な数値等は、発明の理解を容易とするための例示にすぎず、特に断る場合を除き、本発明を限定するものではない。なお、本明細書及び図面において、実質的に同一の機能、構成を有する要素については、同一の符号を付することにより重複説明を省略し、また本発明に直接関係のない要素は図示を省略する。

[0020] (第1の実施形態：マイクロリアクタ100)

マイクロリアクタ100は、反応場としてのマイクロチャンネル流路を有

する。マイクロチャンネル流路は、微細加工により形成された複数の管（筒）によって構成されている。そのため、管の中を流通する流体の反応速度や反応収率を向上させることができる。また、対流や拡散様を任意に構成することで迅速混合や能動的に濃度分布をつけること等が可能になるため、反応条件の厳密な制御が可能である。

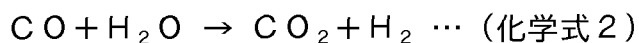
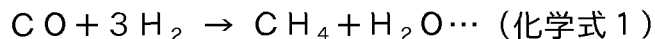
[0021] 図1は、マイクロリアクタ100の概略的な構成を示した横断面図である。マイクロリアクタ100は、反応流路110と、媒体流路120とを含む。反応流路110は、矩形の断面を有する微小な管（筒）であり、図1中の実線の矢印で示す方向に反応対象としての流体（気体又は液体、以下単に流体と称する）を流通させる。本実施形態における反応流路110は、幅および高さの少なくとも1辺が1mm以下の矩形の断面を有する。なお、この値は反応流路110の形状及び寸法を限定するものではない。反応流路110と同様に、媒体流路120も、矩形の断面を有する微小な管（筒）である。媒体流路120は、図1中の破線の矢印で示す方向に熱媒体を流通させる。本実施形態における媒体流路120は、幅および高さの少なくとも1辺が1mm以下の矩形の断面を有する。なお、この値は媒体流路120の形状及び寸法を限定するものではない。反応流路110と媒体流路120とは、流通する流体と熱媒体との熱交換を可能にするため、熱伝壁130を介して並行に設けられている。ただし、反応流体の流通方向と熱媒体の流通方向とは互いに対向している。このように反応流路110と媒体流路120とを並行に配置することで、流体の発熱反応に伴う熱を熱媒体で迅速に吸収させたり、熱媒体から迅速に伝熱させて流体の吸熱反応を促進したりすることができる。

[0022] また、反応流路110は、その内壁の少なくとも一部、望ましくは、内壁全てに配される触媒層112を有する。触媒層112は、流体の反応を促進する。触媒層112が内壁の一部に形成される場合、その一部には、反応流路110の高活性領域と低活性領域が含まれる。ここで、高活性領域は流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に大きい部分（領域）であり、低活性

領域は流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に小さい部分（領域）を指す。触媒層 112 の厚さは、反応流路 110 の熱伝壁距離が例えば $200\mu\text{m}$ ～ 6mm （触媒層 112 を除く）程度であった場合に、 $50\mu\text{m}$ 以上となる。以下、発熱反応と吸熱反応に分けて本実施形態の作用を説明する。

[0023] 図 2 は、反応流路 110 における発熱反応を説明するための説明図である。図 2（a）は、隣接する反応流路 110 と媒体流路 120 との組み合わせを示し、図 2（b）は各流路の温度勾配を示す。

[0024] 図 2（a）を参照すると、流体は、反応流路 110 内を流通しつつ触媒層 112 に接触して発熱反応を起こす。発熱反応としては、例えば、下記の化学式 1 や化学式 2 の反応が挙げられる。



また、化学式 1 の発熱反応には、触媒層 112 に Ni を担持した Al_2O_3 や Ru を担持した Al_2O_3 等の触媒が用いられる。化学式 2 の発熱反応には、触媒層 112 に Cu-Zn 系の触媒や Fe-Cr 系の触媒等が用いられる。

[0025] このとき、反応流路 110 における温度推移は、図 2（b）に実線で示すように、反応流路 110 の入口（開口部 110a）付近で最大となり、出口（開口部 110b）付近で最小となる。これは、反応流路 110 に流入してきたばかりの流体には未反応の物質が多く含まれるために反応頻度が高くなり、流体が反応流路 110 を流通するに連れて反応が進行し、反応流路 110 から流出するころには、ほとんどの物質が反応しきって反応頻度が低くなるからである。

[0026] したがって、反応頻度の高い反応流路 110 の入口付近で発熱が相対的に大きくなり、出口付近では相対的に小さくなる。このようにして生じた熱が図 2（a）の白抜き矢印に示したように媒体流路 120 に伝達される。なお、図中の白抜き矢印の幅は伝熱の大きさを示す。ただし、媒体流路 120 を単に流路断面が一定となるように形成してしまうと、反応流路 110 の反応熱が低い部分（すなわち低活性領域）に隣接する媒体流路 120 の部分では

、熱媒体の吸熱能力に余力を残してしまう。また、反応流路 110 の反応熱が高い部分（すなわち高活性領域）に隣接する媒体流路 120 の部分では、温度上昇を熱媒体が吸収しきれず、反応流路 110 において過度に温度上昇が生じてしまう。そこで、本実施形態では、反応流路 110 における温度推移に応じて、媒体流路 120 の吸熱の仕事推移を変化させ、熱のバランスをとる。

[0027] 具体的に説明すると、本実施形態にかかるマイクロリアクタ 100 では、反応流路 110 の高活性領域から反応流路 110 の低活性領域にかけて（開口部 110 a から開口部 110 b にかけて）、媒体流路 120 が、その断面積が漸増するように形成されている。すなわち、媒体流路 120 の流路は、熱媒体の入口（開口部 120 a）から出口（開口部 120 b）にかけて徐々に狭くなっている。

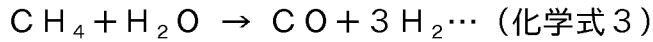
[0028] 媒体流路 120 が上記の形状を有するため、単位時間当たりの流量が同一の場合、媒体流路 120 内の熱媒体の流速は、開口部 120 a から開口部 120 b に向かうほど高まる。従って、反応流路 110 の高活性領域に対応する媒体流路 120 の部分では、伝熱容量の高い熱媒体と媒体流路 120 の内面との接触頻度（熱伝達率）が高まり、図 2（b）の破線で示すように、効率よく熱交換が為される。したがって、熱媒体が熱を吸収しきれず、マイクロリアクタ 100 が過度に温度上昇するのを防止できる。

[0029] 一方、反応流路 110 の低活性領域に対応する媒体流路 120 の断面は、反応流路 110 の高活性領域に対応する媒体流路 120 の断面より広い。従って、低活性領域に対応する媒体流路 120 の部分における熱媒体の流速は、高活性領域に対応する媒体流路 120 の部分における熱媒体の流速よりも相対的に低くなる。しかしながら、低活性領域部分に対応する媒体流路 120 の部分では、もともと熱媒体の吸熱能力に余力を残しており、さほどの吸熱を要さないので、流速が低くても問題にならない。

[0030] 図 3 は、反応流路 110 における吸熱反応を説明するための説明図である。図 3（a）は、隣接する反応流路 110 と媒体流路 120 との組み合わせ

を示し、図3（b）は各流路の温度勾配を示す。

[0031] 図3（a）を参照すると、流体は、反応流路110内を流通しつつ触媒層112に接触して吸熱反応を起こす。吸熱反応としては、例えば、下記の化学式3の反応が挙げられる。



また、化学式3の発熱反応には、触媒層112にNiを担持した Al_2O_3 やRuを担持した Al_2O_3 等の触媒が用いられる。

[0032] このとき、反応流路110における温度推移は、図3（b）に実線で示すように、流通方向に進むに連れて大きくなり、その温度勾配（単位移動距離における上昇温度）は、反応流路110の入口（開口部110a）付近で最大となり、出口（開口部110b）付近で最小となる。これは、発熱反応と同様に、反応流路110に流入してきたばかりの流体には未反応の物質が多く含まれるため反応頻度が高くなるのに対し、流体が反応流路110を流通するに連れて反応が進行し、反応流路110から流出するころには、ほとんどの物質が反応しきって反応頻度が低くなるからである。

[0033] したがって、反応頻度の高い反応流路110の入口付近では、吸熱のため相対的に多くの伝熱量を要し、出口付近では伝熱量が相対的に少なくて済む。このようにして熱媒体の熱が図3（a）の白抜き矢印に示したように反応流路110に伝達される。なお、図中の白抜き矢印の幅は伝熱の大きさを示す。また、ここでも、反応流路110における温度推移に応じて、媒体流路120の伝熱の仕事推移を変化させ、熱のバランスをとる。

[0034] 吸熱反応においても、発熱反応と同様に、反応流路110における吸熱が相対的に大きい方から小さい方にかけて（開口部110aから開口部110bにかけて）、媒体流路120は、その断面積が漸増するように形成されている。換言すれば、反応流路110の高活性領域側から反応流路110の低活性領域側にかけて、媒体流路120は、その断面積が漸増するように形成されている。すなわち、媒体流路120の流路は、熱媒体の入口（開口部120a）から出口（開口部120b）にかけて徐々に狭くなっている。

[0035] 媒体流路120が上記の形状を有するため、単位時間当たりの流量が同一の場合、媒体流路120内の熱媒体の流速は、開口部120aから開口部120bに向かうほど高まる。従って、反応流路110の高活性領域に対応する媒体流路120の部分では、熱媒体と媒体流路120の内面との接触頻度（熱伝達率）が高まり、図3（b）の破線で示すように、効率よく熱交換が為される。すなわち、この部分では熱を吸収された熱媒体が速やかに移動し、新たな熱媒体が流入するので、熱媒体が熱を放出しすぎて（奪われすぎて）、マイクロリアクタ100の温度が局所的に過度に低下するのを防止できる。

[0036] 上記の実施形態では、媒体流路120は、その断面積が漸増するように形成されている。しかしながら、断面積の変化は漸増に限られない。すなわち、反応流路110の高活性領域に隣接する媒体流路120の断面積を、反応流路110の低活性領域に隣接する媒体流路120の断面積より小さくしてもよい。換言すれば、反応流路110の低活性領域に対応する媒体流路120を狭くするだけで、本実施形態の目的を達成することができる。

[0037] 図2や図3に示すように、上記の条件から結果的に、高活性領域に近い（高活性領域側の）媒体流路120の開口部120bの開口面積（出口面積）が、低活性領域に近い（低活性領域側の）媒体流路120の開口部120aの開口面積（入口面積）より小さくなる。

[0038] （第2の実施形態：マイクロリアクタ200）

上述した第1の実施形態では、媒体流路120について、流通方向に対し断面積の大きさを異ならせた。第2の実施形態では、媒体流路120のみならず、反応流路110についても流通方向に対し断面積の大きさを異ならせている。

[0039] 図4は、マイクロリアクタ200の概略的な構成を示した横断面図である。マイクロリアクタ200は、第1の実施形態におけるマイクロリアクタ100と同様に、反応流路110と媒体流路120とを含む。反応流路110と媒体流路120とは、流通する流体と熱媒体との熱交換を可能にするため

、熱伝壁 130 を介して並行に設けられている。ただし、第 1 の実施形態と異なり、反応流路 110 は、発熱または吸熱が相対的に大きい方から小さい方にかけて（開口部 110a から開口部 110b にかけて）、その断面積が漸減するように形成されている。換言すると、反応流路 110 は、高活性領域側から低活性領域側にかけて、その断面積が漸減するように形成されている。

[0040] 反応流路 110 が上記の形状を有するので、反応流路 110 の高活性領域における触媒層 112 の厚みを、低活性領域の触媒層 112 の厚みより大きくすることができる。また、流体の流速を高めなくとも、反応をより促進させることが可能となる。

[0041] なお、反応流路 110 の内壁に触媒層 112 を配し、反応流路 110 の中心軸には触媒層 112 のない貫通路を設けているが、触媒を反応流路 110 に充填することもできる。この場合も、高活性領域において、触媒の絶対量を高めることができるので、反応をより促進させることができる。

[0042] また、上記の実施形態では、反応流路 110 の断面積が漸減するように形成されている。しかしながら、断面積の変化は漸減に限られない。すなわち、反応流路 110 の高活性領域の断面積を、反応流路 110 の低活性領域の断面積より大きくしてもよい。換言すれば、反応流路 110 の発熱や吸熱が大きい部分を広くするだけで、本実施形態の目的を達成することができる。

[0043] 図 4 に示すように、上記の条件から結果的に、高活性領域に近い（高活性領域側の）開口部 110a の開口面積（入口面積）が、低活性領域に近い（低活性領域側の）開口部 110b の開口面積（出口面積）より大きくなる。

[0044] 本実施形態では、上述したように、媒体流路 120 における熱媒体の流通方向と、反応流路 110 における流体の流通方向とが互いに対向している。したがって、反応流路 110 の断面積が大きい部分と媒体流路 120 の断面積が小さい部分に対応し、反応流路 110 の断面積が小さい部分と媒体流路 120 の断面積が大きい部分に対応する。これにより、図 4 に示すように、配置的なバランスがとれ、各流路を平行に設けることができる。そのため、

かかるマイクロリアクタ 200 の設置や、流路開口と他の装置との接続にも有利である。

[0045] 以上説明したように、本実施形態によれば、反応流路の発熱または吸熱を適切にバランスさせ、反応対象としての流体と熱媒体との熱交換の効率向上を図ることが可能となる。

[0046] 以上、添付図面を参照しながら本発明の実施形態について説明したが、本発明はかかる実施形態に限定されない。当業者であれば、請求の範囲に記載された範疇において、各種の変更例または修正例に想到し得ることは明らかであり、それらについても当然に本発明の技術的範囲に属するものと了解される。

[0047] 例えば、上述した実施形態においては、各流路の断面積を漸増させたり、漸減させる例を挙げて説明したが、断面積の推移は連続していなくてもよい。反応流路 110 のうち、反応による発熱または吸熱が相対的に大きい部分に、媒体流路 120 の断面積が相対的に小さい部分に対応し、反応による発熱または吸熱が相対的に小さい部分に、媒体流路 120 の断面積が相対的に大きい部分に対応しさえすればよい。

産業上の利用可能性

[0048] 本発明は、反応場としての微小な空間を有するマイクロリアクタに利用することができる。

請求の範囲

- [請求項1] 反応対象としての流体を流通させる反応流路と、
前記反応流路と並行して設けられ、前記反応流路中の前記流体と熱交換する熱媒体を流通させる媒体流路と、
を備え、
前記反応流路のうちの高活性領域に隣接する前記媒体流路の断面積は、前記反応流路のうちの低活性領域に隣接する前記媒体流路の断面積より小さく、
前記高活性領域では前記流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に大きく、
前記低活性領域では前記流体の反応に伴う発熱または吸熱が相対的に小さいことを特徴とするマイクロリアクタ。
- [請求項2] 前記反応流路における前記高活性領域側から前記低活性領域側にかけて、前記媒体流路は、その断面積が漸増するように形成されていることを特徴とする請求項1に記載のマイクロリアクタ。
- [請求項3] 前記反応流路の前記高活性領域に近い前記媒体流路の開口面積は、前記反応流路の前記低活性領域に近い前記媒体流路の開口面積より小さいことを特徴とする請求項1または2に記載のマイクロリアクタ。
- [請求項4] 前記反応流路の前記高活性領域の断面積は、前記反応流路の前記低活性領域の断面積より大きいことを特徴とする請求項1から3のいずれか1項に記載のマイクロリアクタ。
- [請求項5] 前記反応流路は、前記高活性領域側から前記低活性領域側にかけて、その断面積が漸減するように形成されていることを特徴とする請求項4に記載のマイクロリアクタ。
- [請求項6] 前記反応流路のうちの前記高活性領域に近い開口面積は、前記反応流路のうちの前記低活性領域に近い開口面積より大きいことを特徴とする請求項4または5に記載のマイクロリアクタ。
- [請求項7] 前記反応流路は、その内壁のうちの少なくとも、前記高活性領域及

び前記低活性領域に含まれる一部に配された触媒層を有し、前記高活性領域の前記触媒層の厚みは、前記低活性領域の前記触媒層の厚みより大きいことを特徴とする請求項4から6のいずれか1項に記載のマイクロリアクタ。

[請求項8] 前記媒体流路における前記熱媒体の流通方向は、前記反応流路における前記流体の流通方向と互いに対向していることを特徴とする請求項1から7のいずれか1項に記載のマイクロリアクタ。