

プロセス強化 (Process Intensification (PI)) とは、「革新的な装置・処理技術・プロセス開発法による化学・生化学の製造・処理技術の著しい改善」などと定義され、国際会議等でも頻繁に講演会が実施されている。本誌においては、2008年4月「プロセス強化の将来展望～地球環境課題 (環境・エネルギー課題) に立ち向かう～」が特集された。本特集では、プロセス強化の総論に始まり、近年のICTなどの技術進歩を踏まえ、最新の「プロセス強化」の進展、および今後の展望について、蒸留、膜分離、反応、マイクロデバイス、ICT関連に絞った記事について特集する。

(編集担当：長津雄一郎，久次米正博，日出間るり)†

プロセス強化の研究動向

外輪 健一郎

1. プロセス強化

プロセス強化を厳密に定義することは難しい。プロセス強化が登場した当初は、コスト効果をともなう大幅な装置の小型化という意味合いであったようであるが、近年では、エネルギー効率向上、廃棄物削減、安全性向上などといった効果を達成できる技術であってもプロセス強化の一環として捉えられている。これは環境問題や資源循環が一層重要になっている時代を反映した流れでもあろう。プロセス強化のレビュー論文^{1,2)}でもプロセス強化が研究者によって異なって定義されていることが指摘されている。

統一的定義が存在しないことを承知の上で、敢えて一言でプロセス強化を説明すると、革新的技術によって装置や化学プロセスの大幅な性能向上を実現することだと言えるだろう。ここで性能向上に関しては、小型化、エネルギー効率向上、コスト削減、廃棄物削減、安全性向上といった多様な観点が挙げられる。

一方で、そのツールとなる革新的技術とは、いわゆる従

来の化学工学における単位操作とは異なる斬新な技術を指している。化学工学は化学物質を工業的に生産するための工学として誕生した。その根幹となる重要な概念の1つは単位操作の体系である。原料から製品を生産するためには多種多様な変化を起こさせねばならないし、その変化の過程は製品ごとに異なる。しかし、いかような物質の生産であっても、その製造プロセスは単位操作として整理される共通的な数種の操作を組み合わせで表現できる。これらの単位操作の理論解析を進め、装置の設計法、運転法を高度化していくことが化学工学における研究の重要な役割の1つであった。しかし、いわゆる旧来の単位操作に分類できない装置が考案され、産業において有効に活用される事例が登場している。膜型反応器、反応蒸留、マイクロリアクタなどはその典型例である。これらが示すことは従来の単位操作を組み合わせで構築されるプロセスは必ずしも最適な設計となっているわけではなく、存分に改善の余地があることを示している。

プロセス強化における1つの成功事例と言われているのがEastman Chemicalによる酢酸メチル合成プロセス^{3,4)}である。このプロセスはメタノールと酢酸を原料としており、平衡によって反応率が制限されるため、通常は反応、蒸留、抽出などといった多数の単位操作が必要である。Agredaらは、このプロセスにおける各種の現象や化学的



Overview of the Research Activities on Process Intensification
Ken-ichiro SOTOWA (正会員)
1997年 英国Leeds大学化学工学科博士課程修了
現在 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 教授
連絡先：〒615-8510 京都市西京区京都大学桂
E-mail sotowa@cheme.kyoto-u.ac.jp

2019年9月2日受理

† Nagatsu, Y. 平成29, 30年度化工誌編集委員 (12号特集主査)
東京農工大学大学院工学研究院
Kujime, M. 令和元, 2年度化工誌編集委員 (12号特集主査)
三菱ケミカル(株)生産技術部
Hidema, R. 同上 神戸大学大学院工学研究科

性質を精査し、複数の機能を有する1つの反応蒸留塔に統合することに成功している。このような装置は、単位操作のための装置を配管でつなげてプロセスを構築するという考え方で発想することができない。

プロセス強化の研究は欧州や日本で比較的活発に展開されてきたと感じられる。国内では化学工学誌において2008年4月に特集記事が組まれている。粒子流体部会やシステム情報シミュレーション部会を中心とする研究者が海外の研究者と連携して国際会議 IWPI (International Workshop on Process Intensification) を開催してきた。IWPIは特集号を *Journal of Chemical Engineering of Japan* において出版している。海外においても、2000年に *Chemical Engineering and Processing – Process Intensification* と題したジャーナルが発刊した。*Chemical Engineering & Technology* 誌では2012年に、*Computers & Chemical Engineering* 誌では2017年に Process Intensification の特集が組まれている。米国では、2018年に米国化学工学会が Department of Energy の支援を受けて RAPID (Rapid Advancement in Process Intensification Deployment) Institute を設立し、機器のモジュール化を通じたプロセス強化技術の実現を目指した取り組みを展開している。また会誌 *Chemical Engineering Progress* では2018年3月号に特集記事が掲載されたのに続き、2019年3月号にも特集が生まれ、RAPID の取組をアピールしている。以上の他にも書籍^{5,6)} やレビュー論文も多く発表されており、研究者や企業から寄せられている期待の大きさが感じられる。

2. プロセス強化研究の分類

プロセス強化の研究は多岐に及ぶのでそれらを整理する際には多様な観点が考えられるが、筆者は大きく3つの種類に分類できると考えている。その1つはいわゆる単位操作を従来は考えられていなかった手法で強化するというものである。ここでは特に熱移動、物質移動の速度を大幅に改善するという、いわば現象レベルの強化である。

代表例として回転による遠心力を使って気液接触を強化させる HiGee と呼ばれる技術が挙げられる^{7,8)}。HiGee では充填物を高速回転させることで数100 G の遠心力を生じさせる。このような条件では液が薄膜化して流動するため、物質移動および熱移動が高速化し、装置全体をコンパクト化することができる。例えば蒸留に応用すると気液接触を強化できるので HETP (Height equivalent to a theoretical plate, 理論段高さ) を小さくすることができる。装置の構成を工夫すれば液液接触にも応用できる。ガス吸収、放散、蒸留など多岐に応用が検討され、それぞれ小型化に成功している⁷⁾。

マイクロミキサも代表的な事例である。ミキサ、すなわち混合装置は極めて基本的な装置である。マイクロミキサ

は1 mm 程度の微細な空間の中で流体を接触させて混合をおこなう装置である。微細な流路では流れが層流になるため通常であれば混合には不利であるが、流動状態を制御することによって局所的な流れの乱れを生じさせ、ミリ秒オーダーでの流体混合が可能となる。通常の混合装置である攪拌槽では混合が完了するまでに数分のオーダーが必要であるのに対し、混合がミリ秒で完了することの意義は大きい。寿命の短い活性中間体を発生させておき、適切なタイミングで試薬を導入して反応させるといった操作が実現できるようになる。これはマイクロリアクタ技術が発展する上で極めて重要な役割を果たしてきている。

上記2件は単位操作の性能向上を流体制御によって実現したものであるが、ほかにも新しい外力を取り入れることで単位操作を強化する研究もある。例えば、マイクロ流路を利用した光反応技術はその1つである^{9,10)}。光反応そのものは旧来から知られていたものであるが、マイクロ流路を活用することで効率が向上し、反応の制御が容易になる。溶媒中を光が浸透する距離が限定されているため、マイクロ流路で液の光路長を短くすることで照射する光を効率的に利用できるためである。またマイクロ流路を溶液が流動しているため、光の照射場から反応生成物を迅速に取り除くことができ、望まない副反応を抑制できたり、再現性が向上したりといった効果もある。キャビテーションの利用も注目されている。キャビテーションの発生方法は、超音波照射と流れによる負圧領域形成の2通りがある。Suryawanshi らは吸着法によるチオフェン類からの深度脱硫において、超音波照射によるキャビテーションを生じさせることによって硫黄除去率の向上が可能であることを示している¹¹⁾。このほかにもマイクロ液を外力として利用するプロセス強化技術も注目されている¹²⁾。

2番目の方向性は複数の単位操作を組み合わせてプロセス強化を達成するというものである。第一の方向は現象レベルでの強化であったが、これはプロセス合成レベルでの強化であると言えよう。冒頭で紹介した Eastman Chemical の酢酸メチル合成プロセスはその代表例である。このプロセスの主要な技術は反応蒸留および反応抽出であり、反応と分離の最適なハイブリッド化によって開発された。反応と分離を組み合わせた新規な操作としては反応抽出や膜型反応器も挙げられる。

蒸留と蒸留を組み合わせることで分離プロセスの強化を達成できる。本特集でも取り上げられる内部熱交換型蒸留装置は、いわば蒸留塔の濃縮部と回収部を最適に組み合わせることで省エネルギー化を達成する技術と言える。また、1つの連続蒸留塔で3成分の分離をおこなうことができる Dividing Wall Column も組み合わせによるプロセス強化の例である¹³⁾。

第3の方向は、ダイナミクスの活用である。プロセス強化に限らず連続操作をおこなう化学装置の研究では定常状態における性能に着目する場合が多い。しかしダイナミクスを活用すると装置や現象の非線形性によって性能が一層向上する場合がある。例えば周期的に状態を変化させると、性能の時間平均が、定常状態での値より高くなる可能性がある。圧力スイング吸着 (PSA, Pressure Swing Adsorption) や擬似移動層はダイナミクスを考慮して実現される分離プロセスである。反応の分野では、触媒層に流す流体の方向を周期的に逆転させる Reverse flow reactor (periodic flow reversal) という操作法としても知られている¹⁴⁾。発熱反応であっても触媒層に流入する原料の温度が低く触媒温度が低下してしまうような場合には、入口から次第に温度が低下していき最終的に反応が停止する。このとき触媒層全体の温度が低下する前に導入方向を逆にすると、もともと出口であった高温の部分から原料を導入することになるので反応が止まることはない。流動方向を定期的に切り替えれば、触媒層の内部に温度が高い部分が形成されるようになり、反応速度を維持・向上できる。既に希薄VOCの燃焼除去プロセス等において、この手法を用いた商業プロセスが稼働している¹⁵⁾。

反応器の温度や濃度などを周期操作する研究もおこなわれている。特に不均一触媒を活用した反応の場合には、反応器内部の温度、濃度を変化させると触媒表面上の化学種の吸着量が変化する。生成物をいち早く脱着させ、反応原料と触媒の吸着を促すように条件を変化させれば、反応を効率良く進行できると考えられる¹⁶⁾。杉山らは温度周期操作を採用することによってプロパン部分酸化反応の収率を向上することに成功している¹⁷⁾。

3. 新しい化学工学誕生への期待

化学工学の初学者に対して、フラスコを単に大型化するだけでは産業利用できないという説明をすることがある。フラスコを大型化すると伝熱の比表面積や流動特性が変わるから、必要な混合性能を実現できるように、パッフルを付けたり、回転数を最適化したり、インペラを選定したりしなければならないという事実の説明を通じて、化学工学の意義を理解してもらうためである。きわめてわかりやすい説明であるが、大量処理のためにフラスコを大型化することを念頭に置いている限り、完成したプロセス機器の動作原理はフラスコと同じとなる。化学工学の装置研究ではフラスコだけではなく、蒸留、抽出、晶析、ろ過といった各種単位操作の装置についても同様に、実験器具を大きくしても性能を落とさないような、あるいは化学実験室での操作をそのままの単位で大規模におこなえるような技術を

開発してきたと捉えることができる。

単位操作の枠組みが約100年前の登場以来大きく変化していないと言われる。単位操作が極めて素晴らしい合理性を有しているためであるが、一方で実験室でのガラスを使った操作のイメージから抜け出したアイデアが登場しなかったためでもある。

プロセス強化という技術は2つの重要なポイントを示している。1つは、旧来の化学装置を革新することにより混合、攪拌といった移動現象を一層強化できるということである。さらに旧来の単位操作を組み合わせて構築される化学プロセスは真に最適ではない、ということも重要である。これらの事実は、現在の化学工学の体系に大きな疑問を投げかけている。

疑問という言葉は否定的に聞こえるかもしれないが、筆者はプロセス強化というキーワードで、化学工学の研究者がまさに取り組みすべき大きな興味深い研究テーマが登場し、注目を集めていると考えている。各種装置の移動現象を強化できる余地があるのは、大型装置の多くがガラス器具を大きくする大方針に沿って発想されてきたためであろう。所望の輸送現象を生じさせるのに必要なポイントを整理して装置を設計しなおすことで新しい化学装置を多く創造できることをプロセス強化の研究結果が示している。プロセス設計において旧来の単位操作から脱却することの利点は、Eastman Chemicalなどの事例で示されている通りである。

さて、2000年頃にマイクロリアクタが登場したが、これはプロセス強化にとって重要な出来事であったと思う。マイクロリアクタは、微細な管路を利用して反応を生じさせる流通式の化学装置である^{18,19)}。実験室レベルでは多くの応用がおこなわれており、また産業での応用事例もある。マイクロリアクタが特異な性質を発揮するのは当然ながら管路が微細であるためであり、これによって伝熱や混合速度を向上できている。微細な管路を利用しているので条件を整えれば混合を迅速におこなうことが可能であり、また微細管路は大きな比表面積を有するため迅速な温度変化を達成することも可能である。

筆者は、マイクロリアクタは反応器という旧来の1つの単位操作を担う装置でありながら、必ず複数の部分で構成されている点に注目している²⁰⁾。マイクロリアクタは一般に、原料を混合するマイクロミキサの部分、混合後の反応流体を所望の温度に保持して流通させるマイクロ熱交換器の部分から構成されている。攪拌槽型反応器では1つの装置で攪拌と伝熱をおこなって反応を生じさせているが、マイクロリアクタでは反応装置を混合と熱交換というより基本的な操作に分割しており、それぞれの操作に適した形状の装置を活用する構成となっている。見方を変えてみる

と、反応器をミキサと熱交換器に分解したからこそ、高性能ミキサと高性能熱交換器を活用した強化が達成できたと捉えることができる。このような視点に基づくと旧来の各種単位操作はさらに基本的な操作に分解することができる。ここで基本的な操作とは、混合、気液接触、熱交換、気液分離、液液分離などである。筆者らはこの考えに基づき、蒸留装置を気液接触、平衡操作、気液分離の繰り返しであると捉え、新規な装置を提案することに成功している²⁰⁾。

さて化学プロセス全体もまた基本的な操作の繰り返しである。これらの組み合わせによってプロセスを設計することは容易ではないが、そのような設計手法が構築されると化学プロセスの構成およびその設計法が革新できる。このような観点でのフローシート合成技術の開発研究としては、高瀬、長谷部らの研究²¹⁾らの研究がある。彼らは蒸留システム設計問題を気液平衡状態にあるトレイのスーパーストラクチャとして捉え、蒸留システムを自動的に導出する手法を提案している。またHasanらのグループでは、反応や伝熱といった基本的な現象のネットワークを最適化することによってプロセスを導出する手法を提案している^{22, 23)}。単位操作という枠組みにとらわれないプロセス設計手法が近いうちに登場する可能性がある。

ダイナミクスの利用については、産業応用でのハードルが高いかも知れない。プロセスを非定常的に操作すると、安全性や運転期間を通じた安定性が課題になると考えられる。しかし、PSAやSMB (Simulated moving bed, 疑似移動床)、Reverse flow reactorの分野ではプロセスのモデル化と操作法の精緻な検討を通じて非定常操作を実現した実績がある。工夫次第で、周期操作をおこなう化学装置を導入し、安定に運転することは可能である。この分野の技術開発にも注目したい。

4. 今後の発展と化学工学

プロセス強化は次第に裾野を広げている。近年は晶析²⁴⁾や、固体ハンドリング²⁵⁾、医薬プロセス²⁶⁾などの分野にもキーワードとして浸透し始めている。近年はマイクロリアクタやフロー合成に関する関心の高まりとともに、フロー

プロセスのモジュール化とプロセス強化の関係についての議論も始まっている²⁷⁾。モジュール化プロセスでは、あらかじめ用意されたモジュールを組み合わせて化学プロセスを構築し、物質生産をおこなう。モジュール内に設置する化学装置はコンパクトである必要があり、プロセス強化によって開発された装置が有用である。またどのようなモジュールを用意しておくべきか、それらを如何に組み合わせるべきかという問題についてはプロセス合成に関する研究が貢献できる。将来的には反応のデータベースを活用し、所望の製品を与えれば自動的に反応を選択してプロセスを構築するシステムの構築を目指すことも考えられる。その段階に至るには化学工学技術者だけではなく、ケミストをはじめとする異分野の研究者も参画した研究体制の構築が必要であろう。

プロセス強化は単なる装置開発、プロセス開発ではなく、化学工学の体系を変えるだけのポテンシャルを持っている。輸送現象に着目した装置の機能の再検討と再設計、単位操作から脱却したプロセス開発技術について化学工学技術者全体で考えることによって、新しい時代の化学工学体系が生み出されることに期待したい。

参考文献

- Holkar, C. R. *et al.* : *Ind. Chem. Eng. Res.*, **58**(15), 5797-5819 (2019)
- Tian, Y. *et al.* : *Chem. Eng. Process.*, **133**, 160-210 (2018)
- Agreda, V. H. *et al.* : *Chem. Eng. Progress*, **86**(2), 40-46 (1990)
- U. S. Patent 4 435 595 (1984)
- Segovia-Hernandez, J. G. and A. Bonilla-Petriciolet (eds.) : *Process Intensification in Chemical Engineering*, Springer, Switzerland (2016)
- 化学工学会監修：プロセス強化(PI)の技術，三恵社 (2017)
- Trent, D. L. in A. Stankiewicz and J. A. Moulijn (eds.) : *Re-Engineering the Chemical Processing Plant - Process Intensification*, Marcel Dekker, New York, USA, pp.33-67 (2004)
- Garcia, G. E. C. *et al.* : *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, **92**(6), 1136-1156 (2017)
- Oelgemoeller, M. : *Chem. Eng. Technol.*, **35**(7), 1144-1152 (2012)
- Heggo, D. *et al.* : *J. Chem. Eng. Jpn.*, **49**(2), 130-135 (2016)
- Suryawanshi, N. B. : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **58**, 7593-7606 (2019)
- Martin, A. and A. Navarrete : *Curr. Opin. Green Sustain. Chem.*, **11**, 70-75 (2018)
- Bhargava, M. and A. P. Sharma : *Chem. Eng. Progress*, **115**(3), 30-34 (2009)
- Zagoruko, A. N. : *Curr. Topics Catalysis*, **10**, 113-129 (2012)
- Bunimovich, G. and H. Sapoundjiev, in P. L. Silveston and R. R. Hudgins (eds.) : *Periodic Operation of Reactors*, Butterworth-Heineman, Oxford, UK (2013)
- Sotowa, K.-I. *et al.* : *Chem. Eng. Sci.*, **63**(10), 2690-2695 (2008)
- Sugiyama, S. *et al.* : *J. Chem. Eng. Jpn.*, **43**(7), 575-580 (2010)
- 前一廣監修：マイクロリアクター技術の最前線，シーエムシー出版 (2012)
- 草壁克己，外輪健一郎：マイクロリアクタ入門，米田出版 (2008)
- Sotowa, K.-I. *et al.* : *Comput.-Aided Chem. Eng.*, **44**, 2419-2494 (2018)
- Takase, H. and S. Hasebe : *J. Chem. Eng. Jpn.*, **48**(3), 222-229 (2015)
- Li, J., S. E. Demirel and M. M. F. Hasan : *AIChE J.*, **64**(8) 2082-3100 (2018)
- Demirel, S. E., J. Li and M. M. F. Hasan : *Curr. Opin. Chem. Eng.*, doi:10.1016/j.coche.2018.12.001
- Wang, J., F. Li and R. Lakerveld : *Chem. Eng. Process.*, **127**, 111-126 (2018)
- Wang, H. *et al.* : *Chem. Eng. Process.*, **118**, 78-107 (2017)
- Shallan, A. I. and C. Priest : *Chem. Eng. Process.*, **142**, 107559 (2019)
- Baldea, M. *et al.* : *AIChE J.*, **63**(10), 4262-4272 (2017)