

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7531485号
(P7531485)

(45)発行日 令和6年8月9日(2024.8.9)

(24)登録日 令和6年8月1日(2024.8.1)

| | |
|-------------------------|-----------------|
| (51)国際特許分類 | F I |
| B 0 1 J 14/00 (2006.01) | B 0 1 J 14/00 Z |
| B 0 1 J 19/24 (2006.01) | B 0 1 J 19/24 Z |

請求項の数 9 (全11頁)

| | | | |
|-------------------|-----------------------------|----------|--|
| (21)出願番号 | 特願2021-519308(P2021-519308) | (73)特許権者 | 000227087 日曹エンジニアリング株式会社 東京都千代田区神田神保町1丁目6番1号 |
| (86)(22)出願日 | 令和2年4月9日(2020.4.9) | (74)代理人 | 100109508 弁理士 菊間 忠之 |
| (86)国際出願番号 | PCT/JP2020/015994 | (72)発明者 | 梶田 理 東京都千代田区神田神保町一丁目6番1号 日曹エンジニアリング株式会社内 |
| (87)国際公開番号 | WO2020/230491 | 審査官 | 中村 泰三 |
| (87)国際公開日 | 令和2年11月19日(2020.11.19) | | |
| 審査請求日 | 令和5年1月13日(2023.1.13) | | |
| (31)優先権主張番号 | 特願2019-92518(P2019-92518) | | |
| (32)優先日 | 令和1年5月16日(2019.5.16) | | |
| (33)優先権主張国・地域又は機関 | 日本国(JP) | | |

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 小流量フロー反応に適した化学反応システム及び装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

内径が1 μm以上1000mm未満である往流路と内径が1 μm以上1000mm未満であり且つ容積式ポンプおよび脈動減衰ダンパの設置された復流路とからなり、復流路の出口に往流路の入口が繋がりと往流路の出口に復流路の入口が繋がって成るループ管型容器に、少なくとも2種の液体を合わせてなる均一系若しくは不均一系の液を、往流路の入口に接続されている供給流路を経て、連続的に供給し、

供給された液を、往流路の入口から往流路の出口に向かって、復流路の入口から復流路の出口に向かって、且つ往流路の入口から往流路の出口までの範囲において乱流となる流量にて、復流路に設置された容積式ポンプを用いて、流して、循環させ、且つ

循環させた液を、ループ管型容器から、往流路の出口に接続されており且つ背圧調整器の設置された排出流路を経て、マスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すことを含む、

少なくとも2種の液体を接触させる方法。

【請求項2】

内径が1 μm以上1000mm未満である往流路と内径が1 μm以上1000mm未満であり且つ容積式ポンプおよび脈動減衰ダンパの設置された復流路とからなり、復流路の出口に往流路の入口が繋がりと往流路の出口に復流路の入口が繋がって成るループ管型容器に、少なくとも2種の液体を合わせてなる均一系若しくは不均一系の液を、往流路の入口に接続されている供給流路を経て、0.01~500cm³/分の流量にて、連続的

に供給し、

供給された液を、往流路の入口から往流路の出口に向かって、復流路の入口から復流路の出口に向かって、且つ往流路の入口から往流路の出口までの範囲において $R_e \times A / D_H$ で算出される流量 ($m^3 / 秒$) にて、復流路に設置された容積式ポンプを用いて、流して、循環させ、且つ

循環させた液を、ループ管型容器から、往流路の出口に接続されており且つ背圧調整器の設置された排出流路を経て、マスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すことを含み、

R_e が、1000以上であり、

($m^2 / 秒$) が、循環させる液体の動粘性係数であり、

A (m^2) が、往流路の入口から往流路の出口までにおける往流路の断面の面積であり、
 D_H (m) が、 $4 \times A / P$ で算出される長さであり、且つ

P (m) が、往流路の入口から往流路の出口までにおける往流路の断面の周長である、少なくとも2種の液体を接触させる方法。

【請求項3】

供給流路および排出流路は、内径が $1 \mu m$ 以上 $1000 mm$ 未満である、請求項1または2に記載の方法。

【請求項4】

少なくとも2種の液体を合わせてなる液が不均一系であり、

少なくとも2種の液体の接触によって化学反応および/または液液抽出を行う、請求項1、2または3に記載の方法。

【請求項5】

内径が $1 \mu m$ 以上 $1000 mm$ 未満の往流路と内径が $1 \mu m$ 以上 $1000 mm$ 未満であり且つ容積式ポンプおよび脈動減衰ダンパの設置された復流路とからなり、復流路の出口に往流路の入口が繋がりと且つ往流路の出口に復流路の入口が繋がって成るループ管型容器、供給流路、および

背圧調整器の設置された排出流路

を具備し、

供給流路は、往流路の入口に接続されており、少なくとも2種の液体を合わせてなる均一系若しくは不均一系の液を、ループ管型容器に、 $0.01 \sim 500 cm^3 / 分$ の流量にて、連続的に供給するためのものであり、

容積式ポンプは、供給された液を、往流路の入口から往流路の出口に向かって、復流路の入口から復流路の出口に向かって、且つ往流路の入口から往流路の出口までの範囲において $R_e \times A / D_H$ で算出される流量 ($m^3 / 秒$) にて流して循環させるためのものであり、

排出流路は、往流路の出口に接続されており、循環させた液をループ管型容器からマスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すためのものであり、

R_e が、1000以上であり、

($m^2 / 秒$) が、循環させる液体の動粘性係数であり、

A (m^2) が、往流路の入口から往流路の出口までにおける往流路の断面の面積であり、
 D_H (m) が、 $4 \times A / P$ で算出され、且つ

P (m) が、往流路の入口から往流路の出口までにおける往流路の断面の周長である、少なくとも2種の液体を接触させるための装置。

【請求項6】

供給流路および排出流路は、内径が $1 \mu m$ 以上 $1000 mm$ 未満である、請求項5に記載の装置。

【請求項7】

少なくとも2種の液体を合わせて、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を得るための調液器をさらに具備する、請求項5または6に記載の装置。

【請求項8】

10

20

30

40

50

供給流路、往流路および/または復流路は、液を攪拌する装置を有する、請求項 5 ~ 7 のいずれかひとつに記載の装置。

【請求項 9】

液を攪拌する装置が静止型混合装置である、請求項 5 ~ 8 のいずれかひとつに記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、小流量のフローにおける、化学反応、液液抽出などに適した、少なくとも 2 種の液を接触させるための方法および装置に関する。

10

【背景技術】

【0002】

マイクロ若しくはミリ化学プロセスは、多品種少量生産に適した化学プロセスである。特に、医薬品や医薬品中間体の製造や、研究室規模での有機化合物の合成等に用いられる。マイクロ若しくはミリ化学プロセスは、マイクロサイズ若しくはミリサイズのリアクター、マイクロサイズ若しくはミリサイズの分離装置（マイクロサイズ若しくはミリサイズの蒸留塔、マイクロサイズ若しくはミリサイズの抽出装置等）、マイクロサイズ若しくはミリサイズのミキサーやマイクロサイズ若しくはミリサイズのポンプ等から構成される。マイクロ若しくはミリ化学プロセスに用いられる装置の特徴としては、（1）チャンネル内（細管内や平板上に作った細い溝部分内）の流体（気体、液体）の流れが層流であること、（2）流体の単位体積あたりの表面積が大きいこと、が挙げられる。流れが層流であると、非相溶性の 2 種液体や高粘度の 2 種液体などにおいて、液液接触が十分に行われな

20

【0003】

一方で、ループ式反応器が種々知られている。例えば、特許文献 1 は、ループ式の液循環型反応器に二塩化エタン等の塩素化炭化水素を主成分とする液体反応媒質を入れ、その中にエチレンと塩素を導入して反応させ、液体反応媒質を循環させながら二塩化エタンを製造する方法において、液循環流路の液量調節弁を設け、液循環流速を 50 ~ 150 cm / 秒の範囲において制御することを特徴とする二塩化エタンの製造方法を開示している。

【0004】

特許文献 2 は、固定化酵素を充填した固定床反応装置と、該固定床反応装置で得られた反応生産物を低比重生産物と高比重生産物の二相に分離する二相分離槽と、該二相分離槽の低比重生産物相の一部を該固定床反応装置に返送する配管と、該固定床反応装置で得られた反応生産物を二相分離槽に供給する配管と、該二相分離槽に低比重基質及び高比重基質を供給する各配管と、該二相分離槽から低比重生産物及び高比重生産物を排出する各配管を備えていることを特徴とするループ式二相系固定化酵素リアクターを開示している。

30

【0005】

特許文献 3 は、ループ式反応器内で二相の液状反応混合物において少なくとも 1 種のアルデヒドを触媒によりアルドール縮合するための方法であって、前記反応器は、反応帯域と、そのすぐ上方に存在する沈静帯域とを有し、前記反応帯域において、触媒を含有する連続的な水相に分散されたアルデヒド含有相が生じ、前記反応帯域からの二相の反応混合物の流れを、前記沈静帯域に上昇させ、かつ一体化し、前記沈静帯域の上部領域において、連続的な有機相が形成される、前記方法を開示している。

40

【0006】

特許文献 4 は、連続的方法の為には混合手段を備えた流動用管または混合の為の高速回転ポンプを備えたループ型反応器が適しており、抽出処理も同じ装置で実施することができることを教えている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

50

【文献】特開昭 6 1 - 2 7 号公報

【文献】特開平 8 - 2 4 6 2 4 号公報

【文献】特表 2 0 1 6 - 5 0 3 4 3 2 号公報

【文献】特開平 6 - 1 2 8 1 8 9 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の目的の一つは、小流量のフローにおける、化学反応、液液抽出などに適した、少なくとも2種の液を接触させるための方法および装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記の目的を達成するために検討した結果、以下の態様を包含する本発明を見出した。

【0010】

〔1〕 少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を、供給流路を経て、内径がマイクロサイズまたはミリサイズの循環流路を有するループ管型容器に、連続的に供給し、

供給された液を、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までの範囲において乱流となる流量にて、循環流路を循環させ、且つ

循環させた液を、ループ管型容器から、排出流路を経て、マスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すことを含む、

少なくとも2種の液を接触させる方法。

【0011】

〔2〕 少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を、供給流路を経て、内径がマイクロサイズまたはミリサイズの循環流路を有するループ管型容器に、 $0.01 \sim 500 \text{ cm}^3 / \text{分}$ の流量にて、連続的に供給し、

供給された液を、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までの範囲において $Re \times A / D_H$ で算出される流量 ($\text{m}^3 / \text{秒}$) にて、循環流路を循環させ、

循環させた液を、ループ管型容器から、排出流路を経て、マスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すことを含む、

Re が、1000以上であり、

($\text{m}^2 / \text{秒}$) が、循環させる液の動粘性係数であり、

A (m^2) が、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までにおける循環流路の断面の面積であり、

D_H (m) が、 $4 \times A / P$ で算出される長さであり、且つ

P (m) が、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までにおける循環流路の断面の周長である、

少なくとも2種の液を接触させる方法。

【0012】

〔3〕 供給流路および排出流路は、内径がマイクロサイズまたはミリサイズである、〔1〕または〔2〕に記載の方法。

〔4〕 少なくとも2種の液を合わせて、均一系若しくは不均一系の液を得ることをさらに含む、〔1〕、〔2〕または〔3〕に記載の方法。

【0013】

〔5〕 内径がマイクロサイズまたはミリサイズの循環流路を有するループ管型容器、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を、ループ管型反応器に、 $0.01 \sim 500 \text{ cm}^3 / \text{分}$ の流量にて、連続的に供給するための、循環流路に接続された供給流路、

供給された液を、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までにおいて、 $Re \times A / D_H$ で算出される流量 ($\text{m}^3 / \text{秒}$) にて、循環流路に流して循

10

20

30

40

50

環させるための容積式ポンプ、および

循環させた液をループ管型容器からマスバランスを満たす流量にて連続的に抜き出すための、循環流路に接続された排出流路、

を具備し、

R_e が、1000以上であり、

($m^2 / 秒$) が、循環させる液の動粘性係数であり、

$A (m^2)$ が、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までにおける循環流路の断面の面積であり、

$D_H (m)$ が、 $4 \times A / P$ で算出され、且つ

$P (m)$ が、供給流路と循環流路との接続部から排出流路と循環流路との接続部までにおける循環流路の断面の周長である、

少なくとも2種の液を接触させるための装置。

【0014】

〔6〕 供給流路および排出流路は、内径がマイクロサイズまたはミリサイズである、〔5〕に記載の装置。

〔7〕 少なくとも2種の原料液を合わせて、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を得るための調液器をさらに具備する、〔5〕または〔6〕に記載の装置。

〔8〕 供給流路は、液を攪拌する機構を有する、〔5〕～〔7〕のいずれかひとつに記載の装置。

〔9〕 循環流路は、液を攪拌する機構を有する、〔5〕～〔8〕のいずれかひとつに記載の装置。

【発明の効果】

【0015】

本発明によると、小流量のフローにおいても液液接触を効率的に行うことができるので、化学反応や液液抽出などに適する。本発明によると、滞留時間を任意に設定できるので、反応速度が遅い化学反応等においても、高い反応率を実現できる。本発明の装置は、コンパクト、安全性に優れる。

【0016】

本願において、均一系の液は、水とメタノール、水とアセトンなどのように、相溶性が相互に高い、少なくとも2種の液体の混合液である。本願において、不均一系の液は、水と油、水とトルエンなどのように、非相溶性が相互に高い、少なくとも2種の液体の液液混相の液またはエマルジョン（乳濁液）である。不均一系の液は、一方の液体が連続相を成し、他方の液体が分散相を成すことが多い。

【0017】

内径がマイクロサイズまたはミリサイズの流路において、分散相のサイズが大きい不均一系の液は、二つの液相が交互に流れることがある。このような流れをスラグフローまたはプラグフロー（栓流）と呼ぶ。スラグフローの状態になると、二つの液相の相互接触頻度が低くなることがある。本発明の方法および装置は、均一系の液はもちろん、不均一系の液にも適用できる。本願においてマイクロサイズまたはミリサイズとは、当技術分野において通常の知識を有する者において一般に呼ばれているサイズのことを言い、例えば、 $1 \mu m$ 以上 $1000 mm$ 未満のサイズ、好ましくは $10 \mu m$ 以上 $100 mm$ 以下のサイズ、より好ましくは $100 \mu m$ 以上 $50 mm$ 以下のサイズ、さらに好ましくは $0.3 mm$ 以上 $10 mm$ 以下のサイズ、よりさらに好ましくは $0.5 mm$ 以上 $5 mm$ 以下のことをいう。

【図面の簡単な説明】

【0018】

【図1】本発明の装置の一例を示す概念図である。

【図2】本発明の装置の別の一例を示す概念図である。

【図3】本発明の装置の別の一例を示す概念図である。

【図4】本発明の装置の別の一例を示す概念図である。

【図5】例1～3で使用した実験装置を示す概念図である。

10

20

30

40

50

【図6】例4で使用した実験装置を示す概念図である。

【発明を実施するための形態】

【0019】

図面を参照しながら、本発明を説明する。

本発明の装置は、供給流路1と、ループ管型容器と、排出流路5とを有する。

【0020】

供給流路1は、少なくとも2種の液をそれぞれ貯留する容器からループ管型容器（以下、ループ管型反応器ということがある）までの部分である。供給流路1の内径は、特に制限されないが、マイクロサイズまたはミリサイズであることが好ましい。

供給流路1には、必要に応じて、ポンプ、吸着装置、脱水装置、脱気装置、フィルタ（濾布など）、攪拌装置、調液器、温度調節器、冷却器、加熱器などを設けてもよい。攪拌装置としては、静止型混合装置（スタティックミキサとも呼ばれる。）が好ましく用いられる。

図1に示す装置においては、第一液が流量 Q_1 で第一貯留容器（図示せず）から供給され、第二液が流量 Q_2 で第二貯留容器（図示せず）から供給され、両液が合流部10で合わさり、流量 Q_F で接続部2にて循環流路 $3_{out}, 3_{ret}$ に流入している。合流部10および接続部2には、2液の混合を促進するために、市販の攪拌装置（例えば日曹エンジニアリング「ミリリアクター」等が挙げられる）を用いてもよいし、エジェクタ等の装置を設けてもよい。なお、エジェクタとは、高圧流体の力を利用し低圧の流体（液体や気体）を吸込んで、中圧にて排出することができる装置のことを言う。混合に伴って体積変化が生じない場合には、流量 Q_F は流量 Q_1 と流量 Q_2 との合計である。調液器は、少なくとも2種の原料液を合わせて、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を得るためのものである。少なくとも2種の原料液を合わせて、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を得るための調液器は、チーズなどによって形成できる単なる合流部10であっても良いし、マイクロリアクター又はミリリアクターの様な混合器であっても良いし、容器と攪拌機構を具備する乳化器、分散器などであってもよい。

【0021】

ループ管型反応器は循環流路を有するものである。循環流路は、供給流路1と接続される部位である接続部2から始まり、排出流路5と接続される部位である接続部4を経て、再び接続部2に戻る、ループ型の流路である。なお、本願においては、説明を簡略にするために、接続部2から接続部4までの範囲を往流路 3_{out} と呼び、接続部4から接続部2までの範囲を復流路 3_{ret} と呼び、ループ型の流路全体を循環流路と呼ぶ。循環流路は、少なくとも往流路 3_{out} の内径がマイクロサイズまたはミリサイズであることが好ましく、往流路 3_{out} および復流路 3_{ret} の内径がいずれもマイクロサイズまたはミリサイズであることがより好ましい。

【0022】

循環流路には、必要に応じて、ポンプ、フィルタ（濾布など）、攪拌装置、冷却器、加熱器、温度調節器などを設けてもよい。ポンプは、復流路 3_{ret} に設けることが好ましい。ポンプPは、正確な流量で液を流すことができる点で容積式ポンプが好ましい。容積式ポンプとしては、ピストンポンプ、プランジャーポンプ、ダイヤフラムポンプなどの往復ポンプ、歯車ポンプ、ベーンポンプ、ねじポンプなどの回転ポンプを挙げることができる。これらのうち、微小流量にも対応できる点でプランジャーポンプが好ましい。図3に示すように、攪拌装置としてインラインミキサ6を往流路 3_{out} に設けることが好ましい。攪拌装置としては、静止型混合装置が好ましく用いられる。接続部2には、供給流路1からの液と復流路 3_{ret} からの液との混合を促進するために、図2に示すように、エジェクタ8などの装置を設けてもよいし、市販の混合器（例えば日曹エンジニアリング社製「ミリリアクター」等が挙げられる）を設けてもよい。

【0023】

また、充填物9を、循環流路内に、好ましくは往流路 3_{out} 内に、詰めることができる（図4参照）。充填物によって、混合を促進することができる。充填物は、化学反応に寄与

10

20

30

40

50

しないものであってもよいし、化学反応に寄与するものであってもよい。化学反応に寄与するものとしては、触媒、吸着剤などを挙げることができる。充填物の形状は、特に限定されず、例えば、粒状、針状、板状などを挙げることができる。図1に示す装置においては、往流路3_{out}における液の流量 Q_R は、化学反応などによる体積変化 V がある場合、供給流路1からの液の流量 Q_F と、復流路3_{ret}からの液の流量 Q_C と、 V との合計である。

【0024】

排出流路5は、接続部4から始まり、本発明装置の系外までの流路である。排出流路5には、必要に応じて、ポンプ、気液分離器、液液分離器、解乳化器、フィルタ（濾布）、攪拌装置、温度調節器、冷却器、加熱器、ダンパ、背圧調整器などを設けてもよい。排出流路5の内径は、特に制限されないが、マイクロサイズまたはミリサイズであることが好ましい。図1に示す装置においては、排出流路5における液の流量 Q_E は、往流路3_{out}における液の流量 Q_R から、復流路3_{ret}における液の流量 Q_C を差し引いたものである。ダンパ12は、往復ポンプによって発生する脈動を抑えるために、適宜、用いることができる。

10

【0025】

図1に示す装置においては、循環流路、供給流路1および排出流路5は、おおむね真直ぐな流路であるが、コイル状、ジグザグ状の流路であってもよい。

【0026】

本発明の方法は、少なくとも2種の液からなる均一系若しくは不均一系の液を、供給流路1を経て、内径がマイクロサイズまたはミリサイズの循環流路を有するループ管型容器に、連続的に供給し、供給された液を、供給流路1と循環流路との接続部2から排出流路5と循環流路3との接続部4までの範囲（往流路3_{out}）において乱流となる流量にて、循環流路を循環させ、且つ循環させた液を、ループ管型容器から、排出流路5を経て、マスバランスを満たす流量にて、連続的に抜き出すことを含む。

20

【0027】

本発明の一つの実施態様において、供給流路1における液の流量 Q_F は、貯留容器から供給される少なくとも2種の液の供給量によって決まるが、その流れの状態は、層流であってもよいし、乱流であってもよい。なお、層流とは、流体が規則正しく運動している流れを言い、断面円形の直管においては、流体の流線が常に管軸と平行となる流れを言う。

本発明の一つの実施態様において、往流路3_{out}における液の流量 Q_R は、往流路3_{out}における液の流れが乱流となる範囲である。乱流とは、流体の速度や圧力などが不規則に変動する流れをいう。乱流となる流量とすることによって、液液接触が促される。

30

【0028】

本発明の好ましい実施態様において、供給流路における液の流量 Q_F は、通常、 $0.01 \sim 500 \text{ cm}^3 / \text{分}$ 、より好ましくは $0.1 \sim 100 \text{ cm}^3 / \text{分}$ 、さらに好ましくは $1 \sim 50 \text{ cm}^3 / \text{分}$ に設定する。また、本発明の好ましい実施態様において、往流路3_{out}における液の流量 Q_R は、 $R_e \times A / D_H$ で算出される流量（ $\text{m}^3 / \text{秒}$ ）に設定する。

なお、 R_e は、 1000 以上、好ましくは 1300 以上、より好ましくは 1800 以上であり、

$(\text{m}^2 / \text{秒})$ は、循環させる液の動粘性係数であり、

40

$A (\text{m}^2)$ は、供給流路1と循環流路3との接続部2から排出流路5と循環流路3との接続部4までにおける循環流路の断面の面積であり、

$D_H (\text{m})$ は、 $4 \times A / P$ で算出される長さであり、且つ

$P (\text{m})$ は、供給流路1と循環流路3との接続部2から排出流路5と循環流路3との接続部4までにおける循環流路の断面の周長である。

【0029】

なお、排出流路5における液の流量 Q_E は、マスバランスを満たす流量である。また、ループ管型反応器における平均滞留時間は、循環流路の容量を流量 Q_F または Q_E で除算することによって得られる値である。 R_e は、化学工学の分野においてレイノルズ数と呼ばれる無次元数であり、 $R_e = (D_H \times Q_R) / (\text{ } \times A)$ で定義される値である。レイノルズ

50

ズ数が大きいほど、流れが乱流になる傾向がある。

【0030】

次に、本発明の効果を実験例によって示す。

(例1)

図5に示す実験装置を用いて液液接触の実験を行った。

1/8インチチューブ(外径3.18mm、内径2.17mm)からなる螺旋径が200mmである螺旋形状の往流路 3_{out} と、1/8インチチューブからなる復流路 3_{ret} とで、構成された、容量20mlの循環流路を用意した。

復流路 3_{ret} には、循環用ポンプ3B(日本精密科学(株)製ダブルプランジャーポンプ、NP-HX-200、最大吐出圧力10MPa)、および脈動減衰ダンパ12(1/2インチ-PFAチューブ(内径9mm))を取り付けた。往流路 3_{out} の入口と復流路 3_{ret} の出口との接続部2に供給流路1を接続した。往流路 3_{out} の出口と復流路 3_{ret} の入口との接続部4に排出流路5を接続した。排出流路5には、図示しないが、背圧調整器(窒素ガス加圧、不活性ガスシール圧制御自動弁)を取り付けた。

10

【0031】

92ppmの安息香酸のトルエン溶液1Aおよび80ppmの4-メトキシフェノールナトリウム塩の水溶液1Bを、それぞれ、5.0ml/分にて、無脈流プランジャーポンプ(日本精密科学(株)製、NP-KX-500、最大吐出圧力35MPa)を用いて、供給流路1を経て、循環流路に、連続的に供給した。往流路 3_{out} を通過した液の一部を10ml/分にて、排出流路5を経て、連続的に排出した。循環流路における平均滞留時間は約2分であった。循環用ポンプを用いて、往流路 3_{out} を通過した液の残部を50.0ml/分にて復流路 3_{ret} を経て往流路 3_{out} の入口に連続的に供給した。往流路 3_{out} におけるレイノルズ数は670であった。なお、レイノルズ数は、式： $Re = \rho \times u \times D \div \mu$ で算出した。ここで、 ρ は流体密度、 u は管内の流体線速度、 D は配管内径、 μ は流体粘度である。

20

【0032】

トルエンは水に約0.5g/L(25)溶解するようである。水はトルエンに対して僅かに溶解するようである。安息香酸は、トルエン溶液中において、大部分が2分子会合体として存在し、わずかに非会合安息香酸分子を含むようである。安息香酸は水に3.4g/L溶解し、水溶液中において、大部分が非会合安息香酸分子として存在し、わずかにイオン解離するものを含むようである。4-メトキシフェノールは水に約40g/L(25)で溶解するようである。

30

【0033】

水溶液中の4-メトキシフェノールナトリウム塩とトルエン溶液中の安息香酸とが接触すると、以下のような化学反応を生じ、4-メトキシフェノールと安息香酸ナトリウム塩が生成する。



4-メトキシフェノールはトルエンに溶解しやすく、安息香酸ナトリウムは水に溶解しやすいので、生成した安息香酸ナトリウムの一部はトルエン相から水相に移動し、生成した4-メトキシフェノールの一部は水相からトルエン相に移動した。

【0034】

液液接触の開始から15分間経過したときに、排出流路を経て排出された水相およびトルエン相中の4-メトキシフェノールをガスクロマトグラムの内部標準法でそれぞれ定量した。反応率は74.5%、抽出率は48.9%であった。

40

【0035】

なお、

反応率は、式：反応率 = $(Q_b + Q_a) / (Q_{1B}) \times 100$ で算出した値である。

抽出率は、式：抽出率 = $(Q_a) / (Q_{1B}) \times 100$ で算出した値である。

Q_b = 排出された水相中の4-メトキシフェノールの質量流量

Q_a = 排出されたトルエン相中の4-メトキシフェノールの質量流量

Q_{1B} = 供給した水溶液1B中の4-メトキシフェノール換算の質量流量

50

【 0 0 3 6 】

(例 2)

循環用ポンプを用いて往流路 3_{out} の出口から復流路 3_{ret} を経て往流路 3_{out} の入口に供給する液の流量を 50.0 ml/分 から 100.0 ml/分 に変えた以外は、例 1 と同じ方法で液液接触を行った。往流路 3_{out} におけるレイノルズ数は 1240 、循環流路における平均滞留時間は約 2 分であった。反応率は 75.9% 、抽出率は 53.2% であった。

【 0 0 3 7 】

(例 3)

循環用ポンプを用いて往流路 3_{out} の出口から復流路 3_{ret} を経て往流路 3_{out} の入口に供給する液の流量を 50.0 ml/分 から 150.0 ml/分 に変えた以外は例 1 と同じ方法で液液接触を行った。往流路 3_{out} におけるレイノルズ数は 1800 、循環流路における平均滞留時間は約 2 分であった。反応率は 100.0% 、抽出率は 69.5% であった。

【 0 0 3 8 】

(例 4)

図 6 に示す実験装置を用いた。

1 / 8 インチチューブ (外径 3.18 mm 、内径 2.17 mm) からなる螺旋径が 200 mm である螺旋形状の容量 20 ml のワンパス流路 3_{pr} を用意した。

ワンパス流路 3_{pr} の入口に供給流路 1 を接続した。流路 3_{pr} の出口に排出流路 5 を接続した。排出流路には、図示しないが背圧調整器 (窒素ガス加圧、不活性ガスシール圧制御自動弁) を取り付けした。

【 0 0 3 9 】

92 ppm 安息香酸のトルエン溶液 1A および 80 ppm 4 - メトキシフェノールナトリウム塩の水溶液 1B を、それぞれ、 5.0 ml/分 にて、無脈流プランジャーポンプ (日本精密科学 (株) 製、NP - KX - 500、最大吐出圧力 35 MPa) を用いて、供給流路 1 を経て、ワンパス流路 3_{pr} に、連続的に供給した。ワンパス流路 3_{pr} を通過した液を 10 ml/分 にて、排出流路 5 を経て、連続的に排出した。ワンパス流路 3_{pr} におけるレイノルズ数は 110 、ワンパス流路 3_{pr} における平均滞留時間は約 2 分であった。反応率は 73.9% 、抽出率は 50.0% であった。

【 0 0 4 0 】

(例 5)

分液漏斗に、 92 ppm の安息香酸のトルエン溶液 75 ml と 80 ppm の 4 - メトキシフェノールナトリウム塩の水溶液 75 ml とを入れ、約 2 ~ 3 分間、振騰させた。その後、分液漏斗を静置した。反応率は 78.3% 、抽出率は 57.4% であった。

【 0 0 4 1 】

本発明の装置は、図面に示す実施形態に限られず、本発明の装置を構成する各部の形状、大きさ、色、材質を変更したもの、または本発明の装置に、周知または慣用の部品を追加したものも本発明の技術的範囲に包含される。

【 符号の説明 】

【 0 0 4 2 】

- 1 : 供給流路
- 2 : 供給流路と循環流路との接続部
- 3_{out} : 往流路
- 3_{ret} : 復流路
- 4 : 排出流路と循環流路との接続部
- 5 : 排出流路
- 6,7 : インラインミキサ
- 8 : エジェクタ
- 9 : 充填物
- 10 : 合流部
- P : 容積式ポンプ

10

20

30

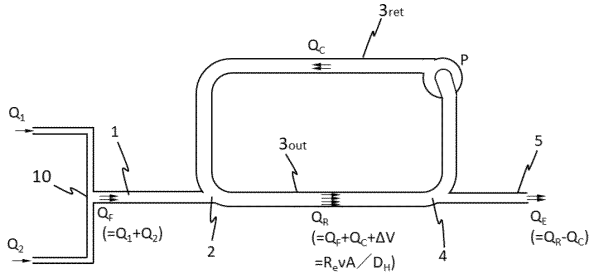
40

50

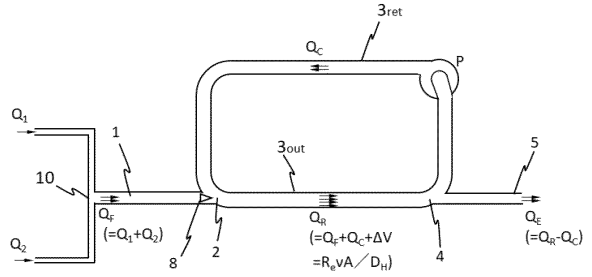
12：脈動減衰ダンパ
 3B：循環用ポンプ
 3_{pr}：ワンパス流路

【図面】

【図 1】

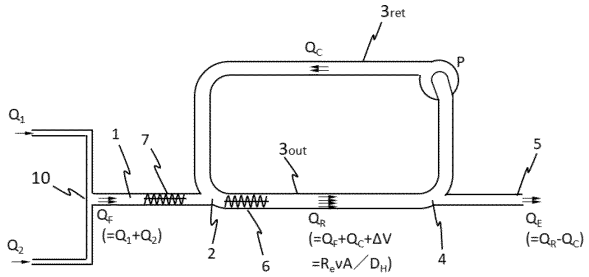


【図 2】

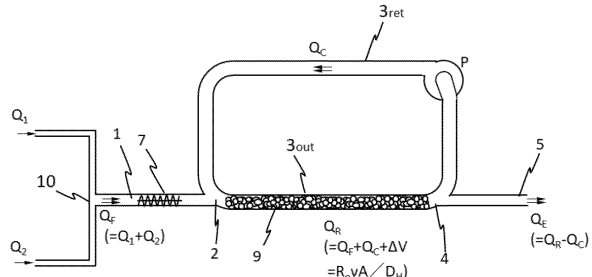


10

【図 3】

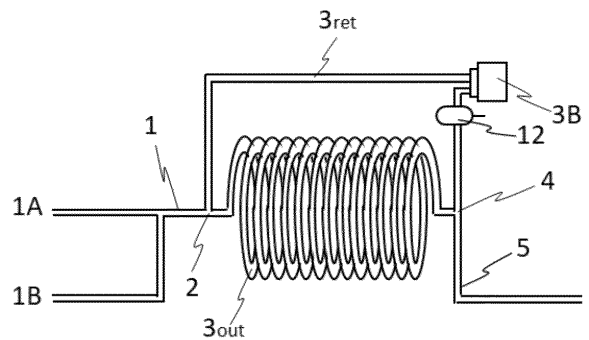


【図 4】

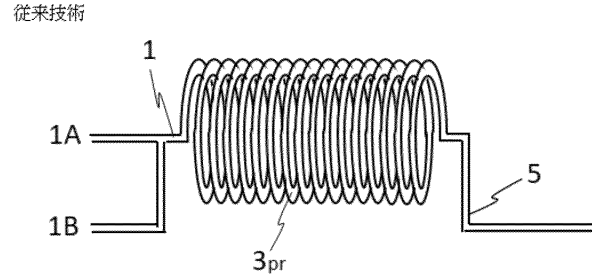


20

【図 5】



【図 6】



30

40

50

フロントページの続き

- (56)参考文献 米国特許出願公開第2015/0175720 (US, A1)
中国特許出願公開第101671417 (CN, A)
中国特許出願公開第103349958 (CN, A)
特表2003-509544 (JP, A)
米国特許第08648209 (US, B1)
特表2003-511526 (JP, A)
特表平10-508859 (JP, A)
国際公開第2007/105620 (WO, A1)
国際公開第2005/121308 (WO, A1)
特開平06-128189 (JP, A)
特開2011-001501 (JP, A)
国際公開第2010/119624 (WO, A1)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

B01J 14/00
B01J 19/09-32
C07B 61/00
C08F 2/00-60
B81B 1/00