

パルスコラムの抽出性能

Extraction Performance of a Pulse Column

葛岡 常雄* 人見 男胤*

Tsuneo Kuzuoka

Otane Hitomi

後藤 圭司* 橋本 尚人**

Keiji Gotō

Naoto Hashimoto

内 容 梗 概

パルスコラムは抽出性能が良いので諸外国の原子燃料再処理工場においてすでに実用化されている。本実験はモデル物質によりすぐれた抽出塔としての設計条件を見出すため行ったものの一部であるが、分離部分構造の改造により抽出性能を向上し、また特性速度なる因数により実験結果を整理することにより、パルス設計条件と抽出性能との関連を見出すことができた。

1. 緒 言

溶媒抽出法による原子燃料再処理装置の研究の一つとして、その主体であるパルスコラム (Pulse column) をとりあげた。パルスコラムは液々抽出に当り、液に一定の脈動を与えてその抽出効果を高めたもので、同じ性能を発揮するにも塔高を低くすることができるので、厳重なしゃへいを必要とする再処理プラント用装置としての使用に適している。パルスコラムについては諸外国においても多くの研究がなされているが、これらを確認するとともに、まだ検討不十分である塔特性と設計条件との関係を求めるため本実験を行った。

2. 試料および実験装置

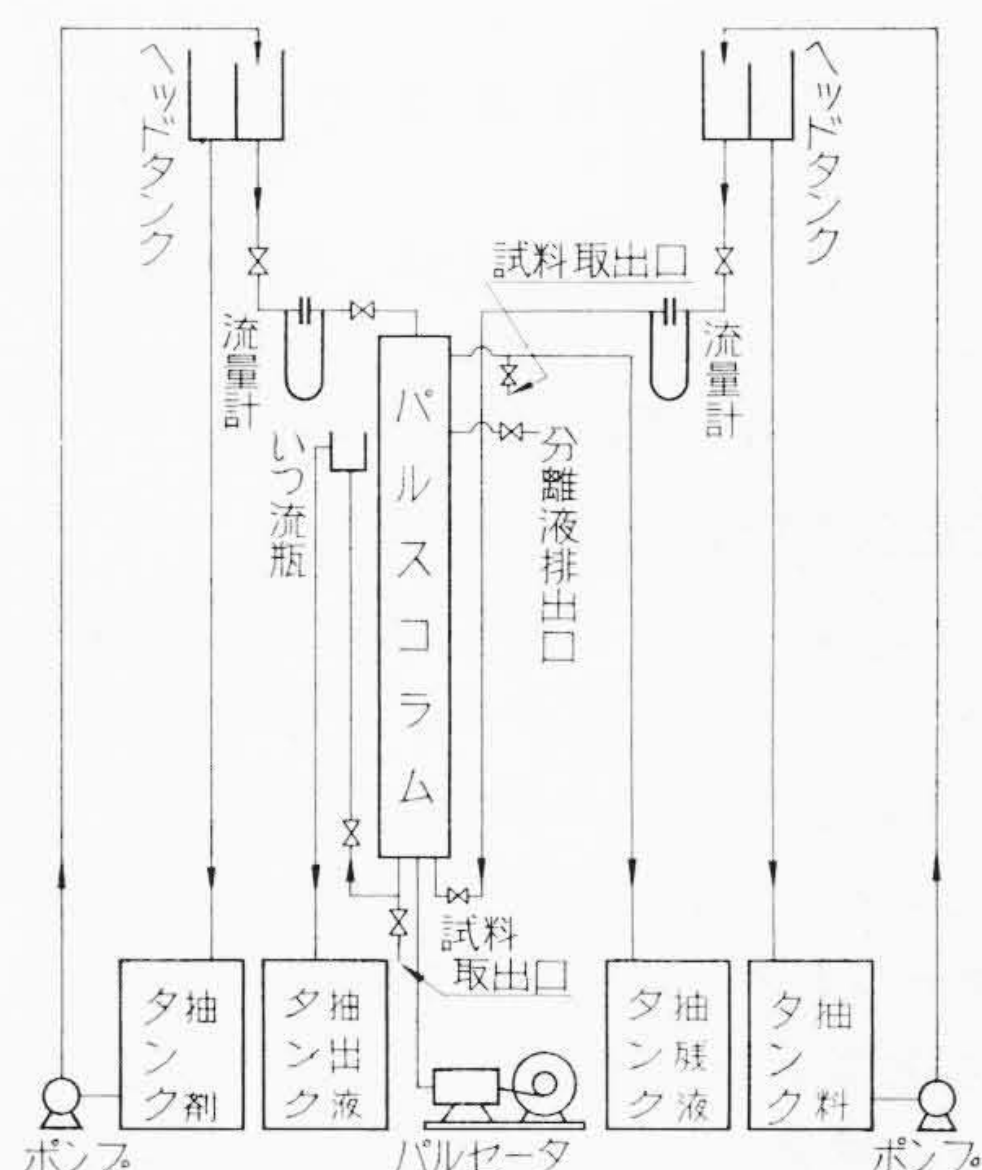
物質系として水～酢酸～ヘキソン (メチルイソブチルケトン) 系を用いた。抽料は 15% 酢酸水溶液とし、くりかえし使用する場合は、前回の抽残液に水および酢酸を追加した。抽剤はくりかえし使用する場合は、前回の抽出液を逆抽出によって酢酸濃度が 1% 以下になるまで再生したものに、新しいものを補給して使用した。

実験装置の概要を第 1 図に示す。塔径は比較的大きく 80mm である。

塔、ヘッドタンク、コック、流量計などはガラス製、多孔板、塔の上下両端のフランジ、ポンプなどは不銹鋼製、タンクは鋼板製のものにポリエチレンシートを敷き、また配管はポリエチレンおよびガラス製品を用いた。パルセータにはプランジャ形定量ポンプを用いた。

3. 実 験 方 法

一般の向流抽出の場合と同様に、重液を塔頂から、軽液を塔底から供給し、軽液は塔上側部の溢流管から、重液は塔底から取り出す。実験はすべて軽液を分散相、重



第 1 図 実 験 装 置

液を連続相とし、酢酸は水からヘキソンに抽出される。

3. 1 ホールドアップの測定

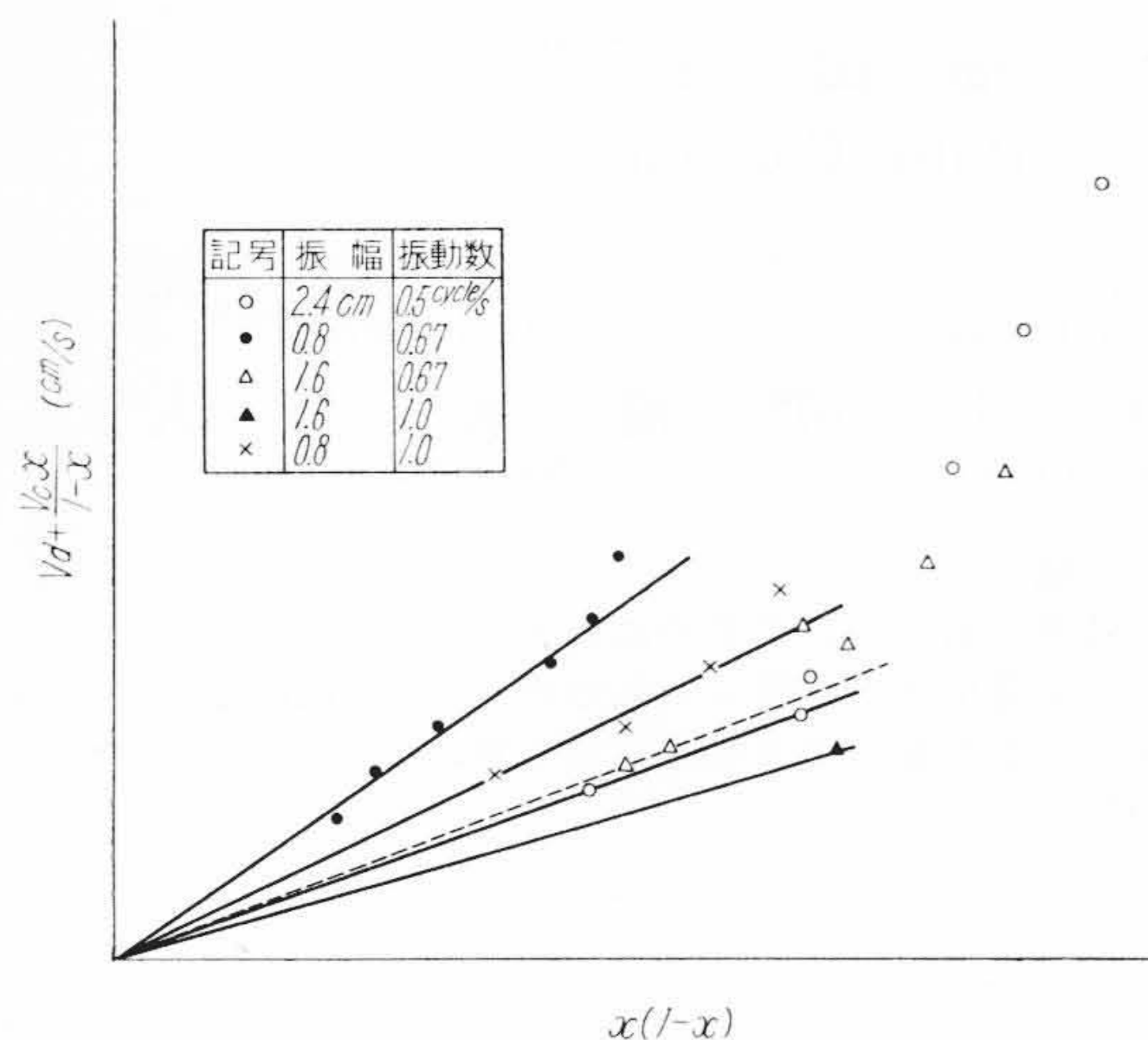
ホールドアップ (hold up) は次の方法により測定した。すなわちパルセータの振幅、振動数および抽料、抽剤の流量を一定とし、界面を所定の位置に定める。その後定常状態となるをまって、塔側部の分離液排出口のコックを開き、界面の上部に分離した抽出液をまったくぬきとると同時に、抽料、抽剤および抽残液の流れを止め、塔内に含まれているヘキシンの量を測定する。

3. 2 HTU の測定

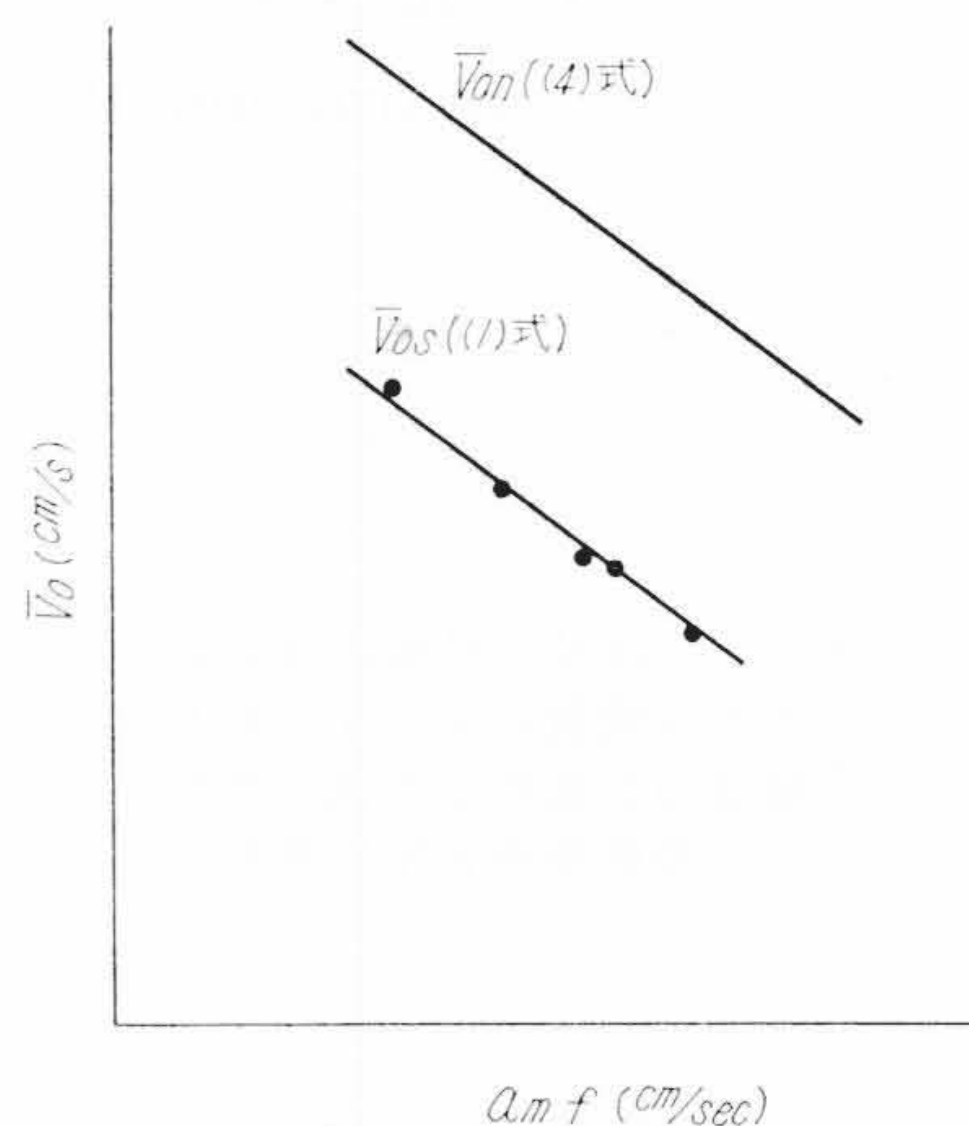
HTU は次の方法により求めた。すなわちパルセータの振幅、振動数および酢酸濃度既知の抽料、抽剤の流量を一定とし、界面を所定の位置に定める。その後定常状態となるをまって、抽出液と抽残液との酢酸濃度を苛性ソーダ水溶液により滴定して求めた。これら測定値とあらかじめ測定済みの水～酢酸～ヘキソン間の平衡曲線とにより、図積分法によって NTU を求め、ついで HTU を計算した。水とヘキソンとは常温において相互に約 2

* 日立製作所日立研究所

** 日立製作所笠戸工場



第2図 特性速度の決定



第3図 パルス速度と特性速度との関係

パーセント溶解するが、計算上はこれを無視した。

4. 実験結果と検討

4.1 分離部の構造と抽出特性

抽出塔の運転に当ってはその抽出性能の良いことが必要であるのはいうまでもないが、両相の分離が完全であることも重要で、パルスコラムのように液がエマルジョン化しやすい場合は特に注意すべきことである。

4.2 ホールドアップと特性速度

振幅と振動数との種々の条件下における連続相および分散相の塔内流速とホールドアップとの関係を測定し、これにより特性速度を求める。特性速度とは連続相の流速を0とし、分散相の流速を無限に0に近づけた場合の液滴平均速度に相当するものである。

ホールドアップ分率 x と特性速度 $\bar{V}_0$ との関係について、ガイラー (Gayler) 氏ら⁽¹⁾ は次式を提示している。すなわち

$$\frac{V_d}{x} + \frac{V_c}{1-x} = \bar{V}_0(1-x) \quad \dots\dots\dots (1)$$

(1)式から $\bar{V}_0$ の値を求めるため、 $V_d + V_c x / (1-x)$ と $x(1-x)$ との値を各測定値につき計算しその結果を図示すると 第2図 のようになる。図によれば横座標 $x(1-x)$ が小さい範囲では各計算値は原点を通る直線にのるが、大きくなるにしたがって次第にのらなくなる。

$x(1-x)$ が大きくなるにしたがって各計算値が原点を通る直線にのらなくなる原因については次のように考えられる。すなわち $x(1-x)$ は $x=0$ および 1 において0となり 0.5 において最大値を有するが、筆者らの実験は x が 0.5 以下で、 x が大きくなるにしたがって $x(1-x)$ も大きくなる範囲内にある。この範囲内で塔内の単位容積を考えると、振幅および振動数が一定であるから x が

大きいほど両相間の物質移動が大きいので、その比重差は小さくなる。したがって特性速度 $\bar{V}_0$ は x とともに大きくなり、次第に原点を通る直線にのらなくなるものと考えられる。ソルントン (Thornton) 氏⁽²⁾ も $x(1-x)$ が大きくなるにしたがって直線からはずれることを報告している。

他方ソルントン氏⁽³⁾ は抽質を含まない物質系において、特性速度 $\bar{V}_0$ に関する次元解析を用いた実験式として次式を提示している。すなわち

$$\left(\frac{\bar{V}_0 \mu_c}{\gamma} \right) = 0.60 \left(\frac{\phi_r \mu_c^5 g_c}{\rho_c \gamma^4} \right)^{-0.24} \left(\frac{d_0 \rho_c \gamma}{\mu_c^2} \right)^{0.90} \left(\frac{\mu_c g}{\Delta \rho \gamma^3} \right)^{1.01} \left(\frac{\Delta \rho}{\rho_c} \right)^{1.80} \left(\frac{\mu_d}{\mu_c} \right)^{0.30} \quad \dots\dots\dots (2)$$

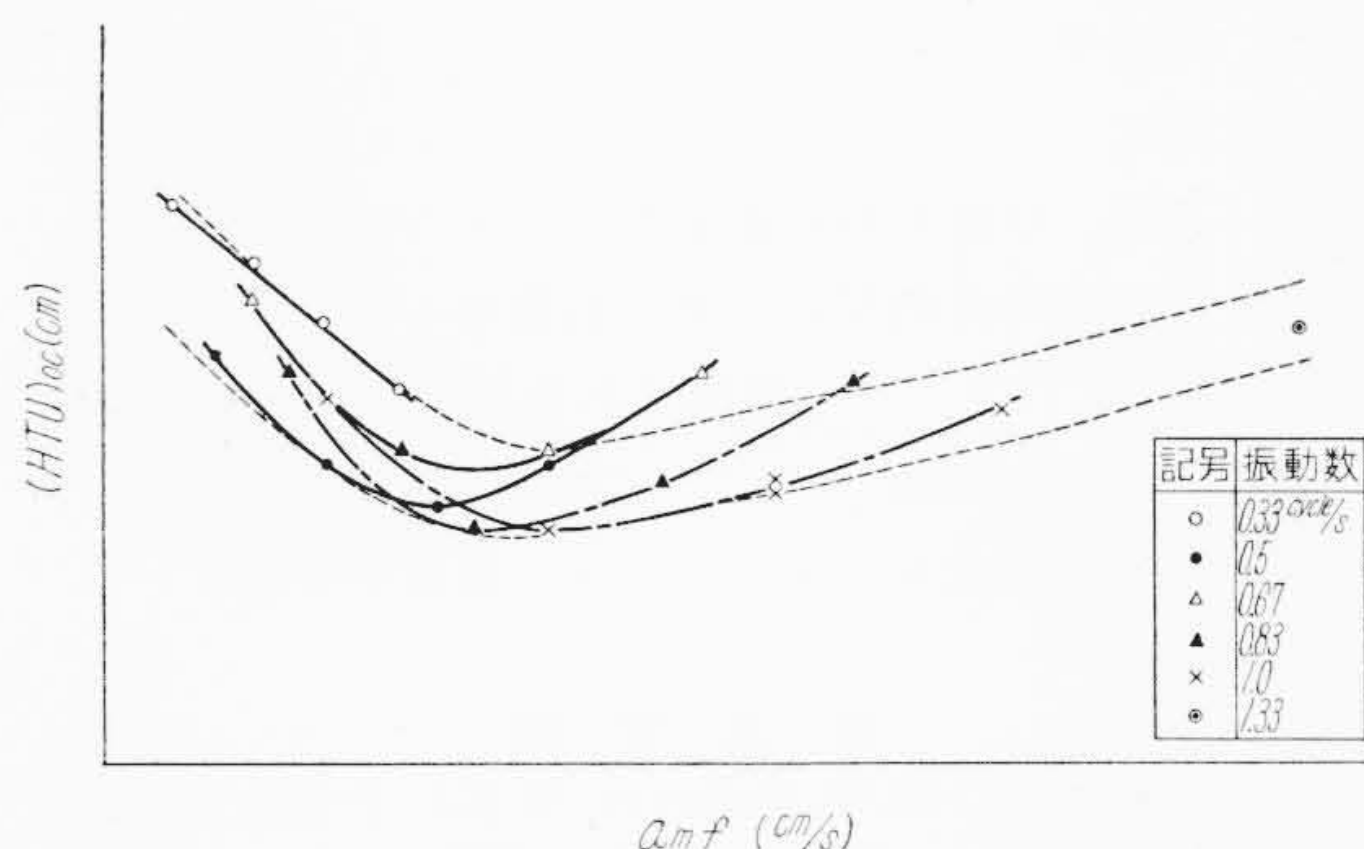
$$\phi_f = \frac{\pi^2 N (1-\varepsilon^2)}{2 g_c \varepsilon^2 C_0^2 L} (a_m f)^3 \quad \dots\dots\dots (3)$$

この式に筆者らが実験に使用した装置や物質系における各数値を代入し整理すれば次式となる。すなわち

$$\bar{V}_0 = \alpha (a_m f)^{-\beta} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ただし単位は cm/s であらわされる。

(4)式から種々のパルス速度 $a_m f$ について特性速度 $\bar{V}_0$ を求め、これを図に示すと 第3図 のように log-log 目盛で直線がえられる。またこの図に前に(1)式よりえられた $\bar{V}_0$ とその際の $a_m f$ との関係を描くと、(4)式の値より小さな値となるがほぼ平行な直線がえられた。(2)(3)式においてとりあげられていない因数は塔径であるが、ソルントン氏⁽³⁾はこの式をみちびくに当って単位容積における特性速度を考え、種々の塔径の場合を総合して検討しており、これら両式は塔径に無関係となっているので、第3図における両直線の差は抽質の存否によると考えて良い。



第4図 パルス速度(振幅)×(振動数)と $(HTU)_{oc}$ との関係

以上により溶質を含んでいる場合の特性速度 $\bar{V}_{os}$ は溶質を含まない場合の(4)式から求めた値 $\bar{V}_{on}$ を適当に補正することによってもえられる。第3図から筆者らの実験範囲内ではこの値は約0.30となりすなわち次式をうる。

$$\bar{V}_{os} \approx 0.30 \bar{V}_{on} \quad (5)$$

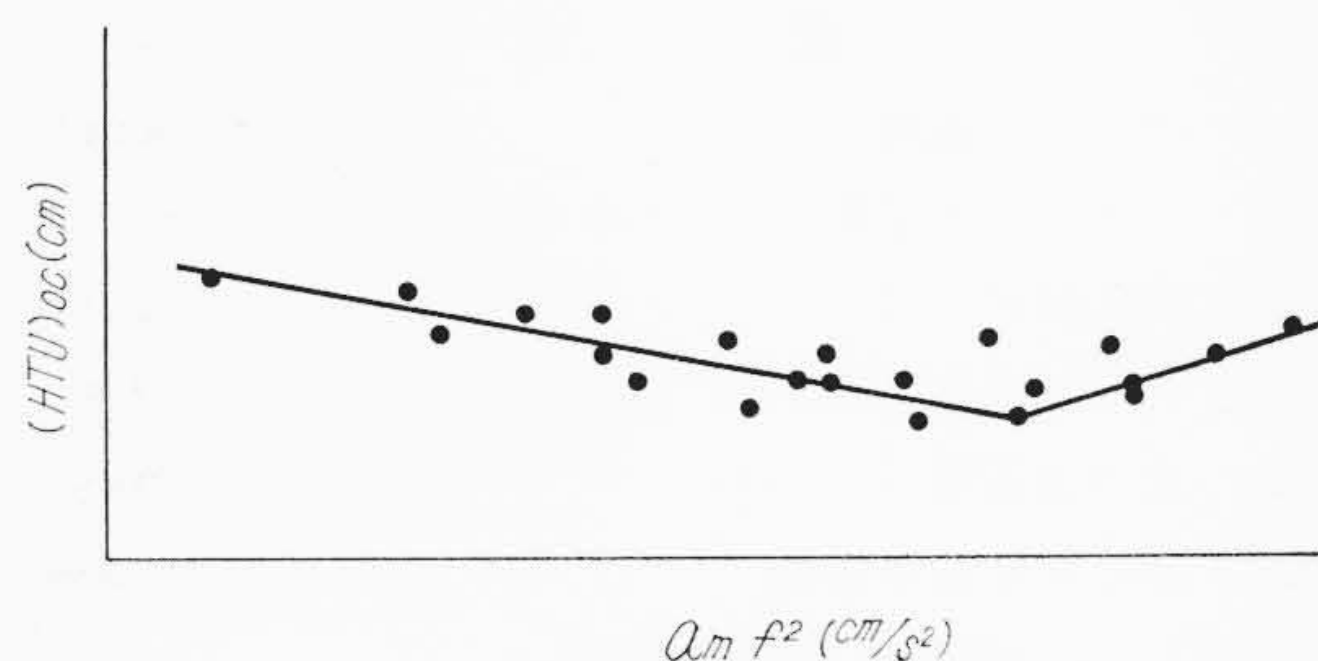
そしてここにえられる $\bar{V}_{os}$ は(1)式の計算値で抽質を含む場合の値であるが、なおかつ(2)(3)式よりの $\bar{V}_{on}$ と同様にパルス速度、装置および物質系の物理特性を含めたものとして取り扱うことができる。

4.3 パルスによる HTU の影響

パルスの振幅と振動数とによるホールドアップおよび HTU の変化をしらべた。パルスの振幅と振動数とを種々の形にして HTU の変化を示したものが第4,5図である。

第4図はコエン(Cohen)氏ら⁽⁴⁾にしたがってパルス速度 $a_m f$ についてまとめたものである。これによれば HTU はほぼ図中に示した点線内に入るものと考えられる。振動数が0.33 c/s (20 cpm)の場合にはいわゆるかくはん効果はほとんど認められず、パルスの振幅に比例して分散相の液滴の数が増加すると考えられるので、 HTU は振幅 a_m に反比例することになる。しかし0.5 c/s (30 cpm)以上になるとかくはん効果が良くなり、また多孔板により生ずる液滴の数が増加するので抽出における両相の接触面積が増大する。ところがパルスがあまり大きくなりすぎるとバックミクシング(back-mixing)を起し、両相の向流が満足に行われなくなるし、一度分散された液滴が凝集しにくくなるので新たにできる液滴の数が少なくなる。いいかえれば抽出性能は悪くなり HTU が増加する。

さらに第5図ではチャントリ(Chantry)氏ら⁽⁵⁾にしたがって $a_m f^2$ についてまとめたが、 HTU の最小値を与えるパルス条件は



第5図 パルス速度(振幅)×(振動数)²と $(HTU)_{oc}$ との関係

城塚氏ら⁽⁶⁾の結果と良く一致しており、したがって最高の抽出性能を発揮しうるパルス設計条件はその値を採用してさしつかえない。

さてソルントン氏⁽³⁾は HTU について次の実験式を提示している。すなわち

$$\frac{(HTU)_{oc}}{(\mu_c^2/g\rho_c^2)^{1/3}} = K \left(\frac{\mu_c g}{\bar{V}_0^3 (1-x)^3 \rho_c} \right)^{2m/3} \left(\frac{d\rho}{\rho_c} \right)^{2(m-1)/3} \left(\frac{V_d}{V_c} \right)^{0.50} \left(\frac{V_c^3 \rho_c}{g \mu_c x^3} \right)^{1/3} \quad (6)$$

この式で筆者らが実験に使用した物質系の物理特性を考えれば、流量が一定すなわち塔内流速が一定であるから次式をみちびくことができる。すなわち

$$x (HTU)_{oc} = K' [\bar{V}_0 (1-x)]^{-2m} \quad (7)$$

したがってホールドアップ分率 x 、特性速度 $\bar{V}_0$ と HTU との関係を求めれば m の値を知ることができる。

ソルントン氏⁽³⁾は水〜トルエンおよび水〜酢酸ブチルの二つの物質系につきアセトンの抽出実験(ただし抽出方向は水相→有機相)を行って、いずれの場合も $m=0.50$ をえており、筆者らも操作条件における K' および m を求めることができた。

5. 結 言

多孔板形パルスコラムの特性を種々検討の結果、本実験条件の範囲内で次のような点が明らかとなった。

(1) ソルントン氏⁽³⁾による溶質を含まない場合の特性速度 $\bar{V}_{on}$ と溶質を含む場合の特性速度 $\bar{V}_{os}$ との間の関係は

$$\bar{V}_{os} \approx 0.30 \bar{V}_{on}$$

となった。

(2) HTU とホールドアップ分率 x および特性速度 $\bar{V}_0$ との間には次の関係がある。

$$x (HTU)_{oc} = K' [\bar{V}_0 (1-x)]^{-2m}$$

終りに本研究にあたり終始ご指導ご激励を賜った当社の関係各位に厚くお礼申しあげる。

記 号		π 円周率	
a_m	パルスの振幅 [cm]	ρ	密度 [g/cm ³]
C_0	オリフィス定数(ここでは0.6)	$\Delta\rho$	連続, 分散両相の密度差 [g/cm ³]
d_0	多孔板の孔径 [cm]	ϕ_f	塔内で単位時間内に単位質量に 吸収される仕事 [g•cm/g•s]
f	パルスの振動数 [1/s]	添字 c	連続相
g	重力加速度 [cm/s ²]	d	分散相
g_c	重力単位換算係数 [g/cm/g•s ²]	n	抽質を含まない
$(HTU)_{oc}$	連続相基準 HTU [cm]	s	抽質を含む
K, K'	定数	参 考 文 献	
L	上下端の多孔板間の距離 [cm]	(1)	R. Gayler, N.W. Roberts, H.R.C. Pratt: Trans. Inst. Chem. Eng. 31, 57 (1953)
m	係数	(2)	J.D. Thornton: Chem. Eng. Prog. Symp. Series No. 13 39 (1954)
N	多孔板の枚数	(3)	J. D. Thornton: Trans-Inst. Chem. Eng. 35, 316 (1957)
V	流速 [cm/s]	(4)	R. M. Cohen, G. H. Beyer: Chem. Eng. Prog. 49, 279 (1953)
$\overline{V}_0$	特性速度 [cm/s]	(5)	W. A. Chantry, R. L. Von Berg, H. F. Wiegandt Ind. Eng. Chem. 47, 1,153 (1955)
x	ホールドアップ分率	(6)	城塚, 本田: 第2回原子力シンポジウム報文集 No.3 113 (1958)
α, β	係数		
γ	界面張力 [g/s ²]		
ε	多孔板の有効通過面積		
μ	粘度 [g/cm•s]		



特 許 と 新 案



最近登録された日立製作所の特許および実用新案

(その1)

種 別	登録番号	名 称	工 場 別	氏 名	登録年月日
特 許	253533	手 押 鉋 機 安 全 装 置	日立工場	橋 本 六 郎	34. 8. 10
"	253539	順 序 指 示 継 電 器	日立工場	高 品 博 藏	"
"	253545	直 切 制 限 開 閉 装 置	日立工場	高 松 井 政 藏	"
"	253543	移 動 階 段 の 手 す り 装 置	国分工場	楊 元 之	"
"	253546	交 流 電 気 機 関 車 用 主 変 圧 器	国分工場	神 峯 次 郎	"
"	253536	ダ イ ヤ グ ラ ム 指 示 装 置	亀有工場	前 川 愛 一	"
"	253547	鋼塊クレンにおける旋回縦軸の移動軸受装 置	亀有工場	大 谷 大	"
"	253535	軸 受 装 置	川崎工場	小 田 次 男	"
"	253544	継 電 器 限 時 装 置	多賀工場	大 谷 巖	"
"	253542	油 圧 操 作 装 置	亀戸工場	大 谷 渡 房 吉 夫	"
"	253534	自 動 位 相 調 整 方 式	戸塚工場	伊 藤 三 誠	"
"	253696	多数共同加入電話回線における割込防止方 式	戸塚工場	和 田 正 脩	"
"	253540	大 形 電 子 管 の 端 子 引 出 部	茂原工場	小 安 林 正 長	"
"	253538	原子顕微鏡などの電源電安定装置	中央研究所	安 落 合 俊 男	"
特 許	253537	接 触 変 流 機 監 視 装 置	日立研究所	田 島 喜 平 太 郎	34. 8. 11
				江 大 森 五 英 次 郎	"
				二 塚 木 久 夫	"
				杉 江 二 朗	34. 8. 10
				阿 部 善 右 門	"
				橋 本 英 明	"

(第24頁へ続く)