

液流動異常発生濃度プロファイルへの影響

— 再処理ウラン逆抽出工程でのオーバーフロー流及び
エントレインメントの発生 —

(研 究 報 告)

1999 年 1 月

核燃料サイクル開発機構
東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33

核燃料サイクル開発機構 東海事業所

運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Information Section

Administration Division Tokai Works

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-33 Muramatsu, Naka-gun, Ibaraki 319-1194,

Japan.

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

1999

液流動異常発生濃度プロファイルへの影響 -再処理ウラン逆抽出工程でのオーバーフロー流及びエントレインメントの発生- (研究報告)

上田 吉徳*, 藤川 克巳**, 塩浦 隆夫***

要旨

目的：多段溶媒抽出工程に用いる抽出装置は運転条件が設計条件に対して過負荷になると、エントレインメントやオーバーフロー流等の液流動異常が発生する。これらは工程内の濃度分布に影響を与えるので、従来抽出装置は、適用する運転条件範囲ではこれらの事象が発生しないように設計されてきた。しかし、避けるべき事象の本質は液流動異常の発生自体ではなく、それらによる工程内の濃度分布の変化が製品スペックの逸脱を誘発することである。そこで、エントレインメント及びオーバーフロー流発生が誘発する工程内の濃度分布の変化を解析し、抽出装置及び工程の設計や運転方法の合理化に反映する。

方法：旧再開部EDSにて開発したオブジェクト型抽出工程計算コード[EASY]を用い、ウラン逆抽出工程を対象に、工程内部全段にて有機相、水相、及び両相でエントレインメント及びオーバーフロー流が発生した場合の工程内の濃度分布の変化を解析した。そして、それらの発生がない場合における有機相及び水相供給流量の制御精度に起因する工程内の濃度分布への影響と比較した。

結果：エントレインメント及びオーバーフロー流発生は有機相出口ウラン濃度の上昇を招くが、10%程度までの発生の影響は、定格運転中に通常想定される運転条件変動に起因する影響よりも1桁程度小さい。この関係は広範囲のフローシート条件下で認められた。

結論：抽出工程フローシート設計においては、運転条件変動の工程内の濃度分布への影響をあらかじめ考慮して段数を決める。従って以上の結果より、運転対応や装置設計において、エントレインメント及びオーバーフロー流発生の制限をある程度許容できる可能性が示された。以上を実際の設計に反映するためには、発生したエントレインメント及びオーバーフロー流の成分が通常の場合と同様の平衡関係を保っている領域を、実験的に確かめることが最大の課題となる。

*先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ **原子力システム株式会社
***先進リサイクル研究開発部 プラントシステム設計グループ

目次

1.はじめに	1
2.抽出工程の一般的説明	2
3.従来の設計の考え方	3
3.1.フローシートの設計	3
3.2.抽出装置の設計	3
4.エントレインメント及びオーバーフロー流の発生	4
4.1.エントレインメントの発生	4
4.2.オーバーフロー流の発生	4
5.解析方法	5
5.1.正常な流動状態の場合	5
5.2.エントレインメントが発生した場合	6
6.エントレインメント発生の場合	8
6.1.解析条件	8
6.2.解析結果及び考察	8
6.2.1.濃度プロファイルの変化	8
6.2.2.抽出装置仕様との関係	10
6.2.3.広範囲なフローシート条件下での挙動3.1.1.モデル	11
7.オーバーフロー流発生の場合	12
7.1.オーバーフロー流発生の解釈	12
7.2.濃度プロファイルの変化	12
7.3.オーバーフロー流発生仕様の考え方	12
7.4.その他	12
8.装置仕様、運転方法の合理化	14
8.1.装置仕様の合理化	14
8.2.運転方法の合理化	14
8.3.設計負担の軽減	15
8.4.他の抽出系への適用	15

9.おわりに	16
10.参考文献	17
Appendix-1：今回使用したモデルについて	34

図表目次

図1 抽出工程の概要(逆抽出操作の例)	18
図2 エントレインメントの発生	19
図3 オーバーフロー流の発生	20
図4-1 正常な液流動状態の場合(2段、1成分の例)	21
図4-2 エントレインメント発生の場合(2段、1成分の例)	22
図5 計算条件(エントレインメント発生の影響)	23
図6 エントレインメント発生及び供給流量制御精度による有機相ウラン濃度プロファイルへの影響	24
図7-1 エントレインメント発生に対する仕様緩和の考え方(その1)	25
図7-2 エントレインメント発生に対する仕様緩和の考え方(その2)	26
図8 エントレインメント発生が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響	27
図9 エントレインメント発生仕様緩和に伴う抽出装置の合理化	28
図10-1エントレインメント発生及び供給流量変化が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響(その1)	29
図10-2エントレインメント発生及び供給流量変化が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響(その2)	30
図11 オーバーフロー流及びエントレインメント発生挙動の比較	31
図12 装置仕様合理化例	32
表1 エントレインメントの発生の計算条件	33

1.はじめに

多段溶媒抽出工程に用いる抽出装置は、従来、装置の運転条件範囲ではエントレインメントやオーバーフロー流の発生をなくするように設計されている。これは、運転条件が装置の設計条件に対して過負荷になると、これらの事象が発生して工程内の濃度分布(以下、濃度プロファイルという。)に影響を与えるので、そのような要因を根本的に排除するためである。そして、このようなエントレインメントやオーバーフロー流の発生に対する設計時の制限は、装置サイズの増大、コスト増加、また、抽出工程や関連設備、建屋規模の増加等を招き、抽出装置の設計負荷も大きくする。

しかしながら、エントレインメントやオーバーフロー流については、発生する事象自体ではなく、それらによって濃度プロファイルが変化し[製品スペックを逸脱すること]が避けるべき事象の本質である。即ち、このような事象が発生しても、それらが引き起こす濃度プロファイルの変化が[スペックの逸脱を招かない]範囲の発生であれば、あるいは、それらの変化をキャンセルするようなフローシート設計とすれば、抽出装置のエントレインメントやオーバーフロー流の発生に対する制限を緩和するオプションもとれるはずである。また、運転中にこれらの事象が発生しても、工程停止を避ける運転方法が見いだせるはずである。

例えば、再処理用遠心抽出器のエントレインメント発生については、1950年代の開発当初から各国とも1%以下というレベルの制限で設計されているが[1]、その制限に対する定量的な解釈や説明を議論した論文は見当たらない。1%以下の発生であっても濃度プロファイルへの影響は生じるはずであり、1%を仕様の上限とする絶対的な根拠は見出し難い。従って、例えば1.5%あるいは2.0%以下の発生までを運転可能な領域とするようなオプション等、運転可能な領域の考え方をもっと幅広くできる可能性がある。そうすれば、装置設計ばかりでなく、運転方法についても非常に柔軟な対応がとれる。

以上は、装置としてはミキサセトラについても同様であり、また、事象としてはオーバーフロー流発生等他の液流動異常についても同様である。このような検討のためには、まずエントレインメントやオーバーフロー流の発生程度と濃度プロファイルに与える変化の影響を把握する必要があるが、従来、このような関係に着目した研究やその解析手段の開発については報告されていなかった。著者らは、このような解析が行える計算コードを開発してきており[2,3]、本報では以上のような観点から、運転中の対応方法や抽出装置及び工程の合理化に反映するため、同コードによって行ったエントレインメント及びオーバーフロー流が誘発する濃度プロファイル変化の解析結果について述べる。

2.抽出工程の一般的説明

抽出工程の概要と一般的な濃度プロファイル例を図1に示す。逆抽出操作(目的成分を有機相から水相に逆抽出する)の例である。逆抽出工程の目的は、有機相(溶媒)中から、目的成分を水相中に逆抽出して回収することであり、抽出装置を複数連結して溶媒と逆抽出試薬を向流接触させて、目的成分の濃度を有機相入口段から有機相出口段にかけて次第に減少させる。そして、有機相出口段からの有機相中の目的成分の濃度をスペック以下とするように、フローシート(段数や運転条件)を設計する。抽出操作の場合は逆に、目的成分を水相中から有機相中へ抽出する。

3.従来の設計の考え方

3.1.フローシートの設計

定格時の標準フローシート条件下では勿論であるが、給液機器や濃度調整の制御精度に伴う変動や、あらかじめ想定したある程度の運転条件の逸脱(供給流量の増減等)を許容できる(それらの発生下でも工程を停止せず運転を継続できる)ように、それらの変動も含めた範囲で目的成分濃度のスペックを維持できるよう設計する。即ち、運転条件(供給流量や試薬濃度)の制御精度や運転条件の想定変動範囲内でも目的成分濃度のスペックを維持できるように、工程の段数に余裕を持たせて設計する。

3.2.抽出装置の設計

以上のようなフローシートは、従来設計では、抽出装置の液流動や相分離は正常に行われていることを前提としたものである。従って用いる抽出装置は、工程の設計フローシートに対応する運転条件の範囲内では正常に相分離できるように設計しなければならない。即ち、想定する機器への供給流量、有機相/水相供給流量比、有機相/水相密度比の範囲で液流動や相分離が正常に行なえるように、抽出装置の主要なサイズや運転条件(遠心抽出器の場合、直径、回転数、分離長、分離せきの仕様等)を決定する。従ってこれらは、定格運転条件に対応したものよりも過剰となる。

工程のフローシートに対応する運転条件範囲で液流動や相分離が正常に行われるように抽出装置を設計するのは、運転条件が装置の設計条件に対して過負荷になると、装置内でエントレインメントやオーバーフロー流の発生等の液流動異常が発生し濃度プロファイルが変化するので、その要因を根本的に排除するためである。

4. エントレインメント及びオーバーフロー流の発生

ここでは、エントレインメント及びオーバーフロー流の発生事象について簡単に説明を加える。

4.1. エントレインメントの発生

遠心抽出器の場合を例にとり、図2を参照しながら説明する。

抽出装置への液供給流量の増加は、相分離部(ローター内)での液滞留時間を減少させ、相分離部ディスパージョン層の厚さを増加させる。また、有機相/水相供給流量比、有機相/水相密度比の変化も、ディスパージョン層の位置を変化させる。これらは、ディスパージョン層位置の分離ゾーンからの逸脱を招き、水相から有機相の一部が流出、有機相から水相の一部が流出、あるいは、その両方の事象が発生する。(これらをエントレインメントの発生という。) 装置が遠心抽出器の場合は、ローターの回転数が低下する場合も、遠心力低下によりディスパージョン層厚さが増加するので、その程度によっては同様に本事象が発生する。

4.2. オーバーフロー流の発生

図3を参照しながら説明する。

オーバーフローラインは、本来、遠心抽出器においてローターの回転が停止した際に、その段の液を逃がす目的で設けられるものである。[4] しかしながら、ローターの回転が停止に至らない場合でも、(オーバーフローラインを装備した遠心抽出器の場合)抽出装置への液供給流量の増加により混合部の液位が増加し、液位がオーバーフローライン設置位置を越える状況になると、混合部の液の一部がオーバーフローラインを経て隣接段へ直接流出する。ローターの回転数が低下する場合も混合部の液位が増加するので、その程度によっては同様に本事象が発生する。

5.解析方法

前述のような液流動異常が発生すると濃度プロファイルは変化する。従って、その変化の程度によっては製品濃度の設計スペックからの逸脱を招く可能性がある。このことから、従来は、濃度プロファイルが変化する可能性を排除するため、想定運転条件の範囲ではそれらの事象を[殆ど発生させない]仕様とすることで抽出装置の設計が行われてきた。例えば、遠心抽出器におけるエントレインメントについては、その発生量を1%以下に抑えるような仕様で開発が行われてきており[1]、オーバーフロー流については、その発生を目視では確認できない程度まで抑える仕様がとられてきた。

しかしながら、前述のような液流動異常については、発生する流動異常事象そのものではなく、それらが引き起こす濃度プロファイルの変化が[濃度スペックの逸脱を招く]事象が、避けるべき問題の本質である。即ち、このような液流動異常が発生しても、それらが引き起こす濃度プロファイルの変化がスペックの逸脱を起こす程大きくなく、[スペックの逸脱を招かない]範囲の発生であれば許容し得る。従って、これら液流動異常の発生程度と濃度プロファイルに与える影響の関係を把握できれば、あるいは、それらの変化をキャンセルするようなフローシートとすれば、工程の運転や抽出装置設計におけるエントレインメントやオーバーフロー流の発生に対する制限を緩和することができる。

従来、以上のような液流動異常の発生と濃度プロファイル変化の関係に着目した研究やその解析ツールはなかったが、著者らの開発した既報告[2, 3]の計算コード[EASY]は、エントレインメントやオーバーフロー流が発生した場合の濃度プロファイルを求めることができる。本報の解析も同コードを利用して行っている。以下、図4-1、図4-2を参照しながら、例としてエントレインメントが発生した場合の解析方法の基本原則を示す。また、モデルの概要についてはAppendix-1に示す。なお、コードの詳細については既報告書を参照されたい。

5.1.正常な流動状態の場合

はじめに正常な流動状態の場合を、図4-1を参照しながら示す。有機相成分濃度 y と水相成分濃度 x の抽出平衡の関係、即ち、分配係数 D の関数形が分かれば、工程全体及び各段の物質収支より各段からの有機相、水相濃度を求めることができる(図参照)。図4-1は2段の例であるが、段数が増えた場合も同様に求めることができる。また、図4-1は1成分の系を示しているが、成分が増えた場合も同様に求めることができる。核燃料再処理PUREX工程では分配係数 D の関数に関し

て、ビーカースケールでの抽出試験データによる水相成分濃度基準の実験式をもとにした表現が一般に用いられている。そして、これらを用いた多段抽出工程の計算は実験値を比較的よく近似している。また、抽出平衡や物質収支の関係式を組み込んで濃度プロファイルを求める計算コードが各国で多く作られており(SEPHIS, MIXSETコード等)、フローシート設計やデータの評価等に使われてきている。

5.2. エントレインメントが発生した場合

図4-2に、例として、図4-1の状態から有機相のエントレインメントが発生、即ち、有機相の一部が水相側に流れていく場合を示す。この場合も、有機相成分濃度 y と水相成分濃度 x の関係、即ち、分配係数 D の関数と、図に示すような工程全体、各段、各分岐及び合流箇所の物質収支から、各段からの有機相、水相濃度を求めることができる。分配係数 D の関数形は、同じ抽出系を対象とする場合図4-1と同じである。従って、エントレインメント発生事象も、抽出平衡の計算(y , x の計算)と物質収支計算の組み合わせで表現でき、その組み合わせが若干複雑になるものの、対象とする抽出系における既知の分配係数の関数形から各段からの有機相、水相濃度を求めることができる(図参照)。図4-2は2段、1成分系の例であるが、段数や成分が増えた場合も同様に求めることができる。計算の信頼性は基本的に分配係数 D 中の実験式の信頼性に依存するので(他は物質収支式なので)、従来の既知の分配係数 D の表現を用いれば、同じ D の表現を用いて行っていたこれまでの正常な流動状態の場合の濃度プロファイル計算と同等の信頼性が得られる。

なお、水相エントレインメントの発生(水相の一部が有機相側に流れていく)の場合も、同様に計算できる。また、水相及び有機相エントレインメントの同時発生の場合も、解くべき式の数が増えるが同様に計算できる。

オーバーフロー発生の場合も、抽出平衡計算(y , x の計算)と物質収支計算の組み合わせで表現でき、解析の考え方はエントレインメントが発生した場合と同様である。(詳細は後述する。)

以上のように、液流動異常発生時の濃度プロファイルは、従来の正常な流動状態の場合の多段抽出工程計算に、流れの分岐発生や合流させる関係式を加え、それらの周り、各段、及び多段工程全体について物質収支をとることで計算できる。前述の計算コード[EASY]は、オブジェクト指向型言語で書いており、その特徴を生かして、抽出装置内緒現象を模擬する[要素モデル]を最小単位とし解析事象に応じてそれらを組み合わせて工程全体を模擬することにより、このような計算を行なう機能を備えている(Appendix-1 参照)。以降に示す液流動異常が濃度プロファイルに与え

る変化の計算は、同コードによるものであり、分配係数 D の表現については、既存の計算コード MIXSET[5, 6]に組み込まれているものと同じものを用いている。

6. エントレインメント発生の場合

6.1. 解析条件

図5にエントレインメント発生時の計算条件を示す(図5上図参照)。核燃料再処理PUREX工程におけるウラン逆抽出工程であり、有機相中に含まれるウランを水相中に逆抽出して除去する。有機相入り口段からの有機相エントレインメントの発生(段No.12から図で左側への発生)、及び水相入り口段からの水相エントレインメントの発生(段No.1から図で右側への発生)を除いて、全段でのエントレインメントの発生を考慮する。以上の2ケース(エントレインメント発生を考慮しないケース)は両端段から[工程外]へエントレインメントが発生する場合であり、次に示すように工程自体の運転条件を変化させる。従って、これらの2ケースは本検討では流動異常発生の許容を考慮する対象外である。図5のフローシート条件での結果を代表して以下考察を行うが、フローシートが広範囲に変化した場合(表1に条件を示す)の結果は、6.2.3.に示す。

・ 有機相入り口段からの有機相エントレインメントの発生：

有機相入り口段(段No.12)で発生したエントレインメントが同段から工程外に流出するので、有機相出口(段No.1)からの流量はその量だけ低下する。即ち、工程の定格処理流量(逆抽出される流量)を低下させる。なお、有機相入り口段(段No.12)からの水相流(工程外への流出流)にはエントレインメントとして有機相が含まれるので、有機相と水相の分離、また、分離した有機相については再び逆抽出工程で処理する必要がある、余分な設備や操作が発生する。

・ 水相入り口段からの水相エントレインメントの発生：

水相入り口段(段No.1)で発生したエントレインメントが同段から工程外に流出するので、水相出口(段No.12)からの流量はその量だけ低下する。即ち、工程の定格処理流量(逆抽出成分を含む工程からの流量)を低下させる。なお、水相入り口段(段No.1)からの有機相流(工程外への流出流)にはエントレインメントとして水相が含まれるので水相と有機相を分離する必要がある、余分な設備や操作が発生する。

6.2. 解析結果及び考察

6.2.1. 濃度プロファイルの変化

図6に濃度プロファイルの結果を示す。条件は、有機相のみ全段、水相のみ全段及び両相全段で

のエントレインメント発生であり、エントレインメント発生量は、流動が正常な場合の各相供給流量のほぼ10%である。逆抽出工程では有機相中からのウランの除去程度、即ち、有機相出口中のウラン濃度がスベックとなり、有機相出口中のウラン濃度の上昇が工程にとって好ましくないため、この傾向をみるために図6は有機相の濃度プロファイルを示している。図6にはエントレインメント発生がない場合の濃度プロファイルも比較して示す。また、フローシート設計時に考慮する必要のある他の外乱による濃度プロファイルの変化を比較して示す。ここでは外乱として有機相及び水相供給流量の制御精度をとりあげ、エントレインメント発生がない場合においてこれらが有機相出口ウラン濃度の上昇を招く方向に変化する場合の濃度プロファイルを示している。これは、フローシート設計時には、これらの制御精度からくる変化を見込んでこれらに起因する濃度変化を吸収するような段数のフローシートを設計するので、これらの影響とエントレインメント発生の影響を比較するものである。流量制御精度は $\pm 5\%$ で単独及び重複した場合を示している(図5下図参照)。 $\pm 5\%$ は、例えばかなり良好な制御が必要な供給流量用機器で採用している値であり[7]、エントレインメント発生による影響との比較という観点からは保守的な(流量制御精度による濃度変化が小さい場合の)評価である。

図6より、エントレインメントの発生は有機相出口ウラン濃度の若干の上昇を招くが、その上昇程度は、有機相及び水相流量の制御精度に起因するものよりもかなり小さい。このことは次のことを示している(図7-1、7-2参照)。

- ・エントレインメント発生による変化が流量制御精度の影響よりかなり小さいので、流量制御精度の影響から要求される段数の余裕内にエントレインメント発生の影響を吸収できれば、エントレインメントが発生しても段数を増やすことなく濃度スベックを維持できる(図7-1参照)。

- ・エントレインメント発生の影響が流量制御精度の影響から要求される段数の余裕内に吸収されない場合でも、エントレインメント発生による変化が流量制御精度の影響よりかなり小さいので、その段数への影響は僅かである(図7-2参照)。

以上より、工程全体へのインパクトが極めて小さい状態で、抽出装置設計におけるエントレインメント発生を従来より許容できる。

6.2.2.抽出装置仕様との関係

(1)従来のエントレインメント発生への制限に対する解釈

図8に、図6の有機相出口段(図5：段No.1)の有機相ウラン濃度の変化(標準条件でエントレインメント発生なしの場合からの増加分)を、エントレインメント発生とのパターンをパラメータにして示す。図8には、前述の供給流量の制御精度に起因する有機相出口段(図5：段No.1)の有機相ウラン濃度の変化(標準条件でエントレインメント発生なしの場合からの増加分)も合わせて示す。

核燃料再処理用遠心抽出器の場合、従来、エントレインメントの発生は経験的に1%以下に抑えられてきたが[1]、1%以下の領域の濃度変化は極めて小さい。即ち、図8は、[1%以下のエントレインメント発生による影響を考慮せずフローシートを設計しても、その影響は小さく事実上殆ど問題なかった]という意味において、従来の制限の仕様が妥当であったことを示している。(即ち、図より、エントレインメントが1%以下の領域で発生した場合の濃度プロファイル変化は、供給する流量を非常に厳密かつ安定に制御しないとそれらの変化に隠れて実験的には検出できない。従って、通常の工学的な実験とその結果をもとにしたフローシート設計の体系では、1%以下程度のエントレインメント発生への影響は、工学的な実験系の誤差内に埋もれ事実上意味をもたなかった。)

(2)新しいエントレインメント発生への制限に対する考え方

以上のことは、必ずしもエントレインメント発生への制限が1%以下である必然性はない(物理的にクリティカルな意味があるのではない)ことを物語っている。例えば、エントレインメント発生への上限が仮に[1.5%以下]であっても、その濃度プロファイルへの影響はやはり殆ど検出できないであろうし、前述と同様の観点で工学的には妥当な仕様であろう。即ち、エントレインメント発生への制限は、濃度プロファイルへの影響という観点からは、フローシート設計時に通常考慮する運転条件の変化(流量制御精度や試薬の濃度調整変動幅等)と同種のファクターであり、濃度スペックを維持するという観点からフローシート設計における段数との関係で、その上限(エントレインメント発生仕様への上限)を決めても差し支えないといえることができる。

従って、抽出装置設計時のエントレインメント発生への制限を、従来より緩和できるオプションが採れることになる。そして、ウラン逆抽出工程においては、エントレインメント発生による変化が従来考慮していた運転条件による変化の影響よりかなり小さいので、その制限の緩和による工程へのインパクトは小さく、また、フローシートの設定の仕方によっては、段数の増加なしに制限を緩和できる場合(図7-1)もあり得る。

従来は、エントレインメント発生濃度プロファイルへの影響を評価できなかったため、特に遠心抽出器の場合、エントレインメント発生1%以下あるいは極力なくするように設計されてきたが、以上のことは、エントレインメント発生に対する制限を従来より緩和できることを示している。このことは、抽出装置にとっては、抽出平衡が維持されていればエントレインメント発生の有無に係りなく運転可能な領域と見なすことができるということになる(図9参照)。供給流量、有機相と水相の供給流量比及び密度比の変化範囲が大きい抽出装置ほど、装置サイズ(有効分離長、半径、分離ゾーン必要幅)は大きくなる。従って、逆に同一運転条件に対応する抽出装置は従来よりサイズの小型化を図ることができる。

6.2.3. 広範囲なフローシート条件下での挙動

図8の条件では、少なくとも10%程度までのエントレインメントの発生は、供給流量の制御精度に起因する濃度変化に比べて一桁以下の程度の変化しかもたらさず、工程へのインパクトがなしか若しくは極めて小さい条件にてエントレインメント発生制限が緩和できることを示している。(以上の例では外乱として流量制御精度のみを考慮しているが、実際は他の変動要因(供給液中の成分濃度等)も考慮対象となるので、運転条件変動に起因する濃度変化に対するエントレインメント発生による濃度変化の割合は、さらに小さくなる。)

以上の関係を広範囲なフローシート条件下で計算したものを図10-1、10-2に示す。表1にこれらの条件を示す。エントレインメントの発生は両相全段で5%及び10%である。流量制御精度は $\pm 5\%$ であり、各流量単独及びそれらの影響が重複した場合の3ケースである。この考え方は前述の通りである。両図の縦軸は、同フローシート条件下でのエントレインメント発生並びに供給流量制御精度に伴う、有機相出口ウラン濃度の変化(標準条件-エントレインメント発生なしの場合からの増加分)である。図10-1は、[エントレインメント発生なし標準条件]における有機相出口ウラン濃度をパラメータにプロットしている。図10-2は、[エントレインメント発生なし標準条件]における有機相出口ウラン濃度が $1.02\text{E-}2\text{g/l}$ 近傍のものを比較したものであり、横軸は各フローシートのケース(表1)である。両図より、前述の図8での議論が広範囲の条件下であてはまることがわかる。(核燃料再処理ウラン逆抽出工程では、通常有機相出口濃度を $1.02\text{E-}2\text{g/l}$ 程度に設定するが、この範囲でも同様である。)

7.オーバーフロー流発生の場合

7.1.オーバーフロー流発生の解釈

オーバーフロー流発生の状況をエントレインメント発生の場合と比較して、図11に模式的に示す。図11より、[有機相入口側方向へのオーバーフロー流の発生]の場合、水相については流路は異なるが正常な方向に流れており、混合部で平衡関係が保たれていればプロファイルの乱れは起こさない。一方有機相についてはオーバーフロー流が正常と逆に流れており、濃度の平衡関係からみれば、異常流が隣接段に流れ込む[経路]は異なるものの[有機相のエントレインメント発生]の場合と同じである。従って、濃度プロファイルの変化は[有機相のエントレインメント発生]の場合と同じである。また、[水相入口側方向へのオーバーフロー流の発生]時の濃度プロファイルは、同様の議論から[水相のエントレインメント発生]の場合と同じである。

同一のオーバーフローライン中で、水相と有機相が[同時に]互いに逆方向に流れることは起こり得ないが、仮にそのような事象を想定したとすると、濃度プロファイルへの影響は、上述の議論からエントレインメントの両相発生の場合に相当することになる。

7.2.濃度プロファイルの変化

即ち、オーバーフロー流及びエントレインメントの発生は、みかけの発生状況は異なるが、いずれかの相が本来の方向と逆方向に流れる事象であり(隣接段に流れる経路が異なるのみ)、濃度プロファイルを変化させる要因としては同質である。従って、オーバーフロー発生時の濃度プロファイルへの影響は、図8、10でみることができる。両方向の発生が混在している場合は、両相発生時の結果を参照すればこれが保守的な評価となる。

7.3.オーバーフロー流発生の制限の考え方

以上より、オーバーフロー流発生の制限に関しても、そのプロファイルへの影響及び他の外乱との比較に関して、既述のエントレインメント発生の場合と同じことがいえる。(この場合、エントレインメント発生量がオーバーフロー発生量となる。) 従って、従来オーバーフロー流発生に関しては目視では認められない程度にまで抑えていたが、その制限を緩和することができる。

7.4.その他

図11の考察からは、従来設計における制限の考え方に則った場合でも、オーバーフロー流発生

に関して(計算することなく)直接的に次の解釈が導かれる。即ち、現行のエントレインメントの発生上限が1%であるので、7.1.の議論から同様な理屈で、

- ・ エントレインメント発生がない場合は、オーバーフロー発生は1%まで許容できる。
- ・ エントレインメント発生がある場合は、オーバーフロー流との和が1%まで許容できる。

8.装置の設計、運転方法の合理化

8.1.装置の設計の合理化

ラフではあるが、抽出装置設計の合理化の考え方の例を図12を参照して示す。図中のグラフは有機相ウラン濃度のプロファイルである。

図の上に示すフローシートを設計定格条件とすると、この場合の濃度プロファイルはグラフ中の●印となる。グラフ中○印は、設計定格条件に設計裕度を考慮した濃度プロファイルである(エントレインメントあるいはオーバーフロー流の発生は考慮していない)。ここでは設計裕度として、2つの供給流量(水相、有機相)が有機相出口ウラン濃度を上昇させる方向に2.5%(変動幅としては小さい)重複して変動する場合に相当する濃度増加を見込んでいる(実際には、計算コード自身の精度、あらかじめ想定した範囲の他の外乱等、さらに多くの設計マージンを考慮する)。グラフ中□、△印は、各々、○印の状態からさらにエントレインメントあるいはオーバーフロー流が5%、10%発生した場合の濃度プロファイルである。

ここで、例えば有機相出口ウラン濃度スペックが $1.0\text{E-}01\text{g/l}$ であるとする、グラフより□、○印の場合とも必要段数は12段である。従って、両相5%までのエントレインメントあるいはオーバーフロー流の発生は、段数を増やすことなく許容できる。5%を超えて許容する場合は、必要段数が増えるが、グラフより、10%程度までは1段程度の増加で対応できると考えられる。このように、設計定格条件、考慮する設計裕度、濃度スペックに対応して、エントレインメント及びオーバーフロー流発生の許容限度と段数の関係を求めることができる。段数が増加する場合に(上の例では5%を超えて許容する場合)、エントレインメント及びオーバーフロー流発生の許容限度の緩和と段数増加のいずれを採用するかは、運転の容易さ及び工程や付帯設備も含めて全体として合理的なオプションを採用する。

なお、両端(例えば、図12のNo.12、No.1)の抽出装置に関しても、工程外へ液が流出しない方向へのエントレインメントやオーバーフローの発生については許容できることに注意されたい。

8.2.運転方法の合理化

エントレインメント及びオーバーフロー流発生の程度と濃度変化の関係を把握すると、装置の設計の合理化のみでなく、運転対応上のメリットも多い。例えば、想定範囲を超えた外乱が発生した場合、これらの濃度変化への影響が不明な場合は、想定運転条件を越えると運転を停止しなければならない。しかしながら、これら液流動異常発生程度と濃度変化の関係、外乱の発生状況、及び運転スケジュール等の関係から、グロスとしての製品濃度スペックの担保上停止しなければ

ならない状況に至るまでの時間を、ある程度予測できるので、即時停止を避けることができる。
(その間に運転条件を復帰させれば運転を継続できる。)

8.3.設計負担の軽減

従来、抽出装置設計では、特に遠心抽出器の場合、既述のようにエントレインメントやオーバーフローの発生に対して厳しい制限で設計が行われてきた。従って、これらの事象が発生する境界条件近傍の装置特性には細心の注意が払われてきた。しかし一方で、装置内の流体は複雑な構造中を振動場(ローター回転による)において高速で回転、流動しているので、静的な観測結果が得難いという状況や(例えば混合部の液位はある範囲で振動する)、また、実験系の条件(供給流量、回転数、液性)の安定性や供する装置の製作精度(特にエントレインメント発生特性に影響を与える[せき]の位置や形状)の再現性の現実的な制約等から、エントレインメントやオーバーフローの発生の境界条件を非常に精度よく求めるには限界があった。従って、想定する多様な外乱も含めた運転範囲でエントレインメントやオーバーフロー発生をなくすようにするため、保守的に大きな設計裕度を採らざるを得なかった。ここでの考え方では、エントレインメントやオーバーフロー発生の有無に係りなく、抽出装置内で抽出平衡あるいは想定した段効率が維持できる範囲を装置としての可能な運転領域として捉える。従って、想定する外乱の性質やフローシート設計の考え方に応じて、エントレインメントやオーバーフロー発生の制限に関して柔軟なオプションを採ることができ、装置設計の負担を軽減させる。

8.4.他の抽出系への適用

以上、核燃料再処理ウラン逆抽出工程における議論であったが、他の工程においても同様な方法で、許容できるエントレインメントやオーバーフローの発生仕様を求めることができる。但し、プルトニウム分配工程のように化学反応を含み且つその反応速度を考慮する系では、図4-2のような平衡論では取り扱えないので適用できないことに注意されたい。

また、原子力の他の分野及び一般産業界の溶媒抽出工程に対しても、平衡論でフローシートを扱っている系に対しては、分配係数の関数形が既知であれば同様な方法で、許容できるエントレインメントやオーバーフローの発生仕様を求めることができる。

なお、本報の議論は、本解析モデルの考え方(図4-1、4-2)から、遠心抽出器並びにミキサセトラ型抽出装置についていえることに注意されたい。

9.おわりに

今後の課題として以下がある。

本解析結果を実際の設計に反映するためには、発生したエントレインメント及びオーバーフローの成分が通常の場合と同等の平衡関係を保っている領域を実験的に確かめることが、最大の課題となる。(これは、図4-2からわかるように、異常流発生時の混合部での有機相、水相への成分の分配は通常時(図4-1)と同型の分配係数の表現を用いていることからきている。) 具体的には、エントレインメントであれば、エントレインメントが発生している領域での単機の抽出平衡データが重要となる。単機にてエントレインメント発生後の運転領域でも濃度データを採り、エントレインメントがない場合と同等の平衡関係を保つ境界領域を求める。オーバーフローであれば、オーバーフロー流成分の抽出平衡データが重要となる。単機にてオーバーフローを発生させ、オーバーフロー流成分の濃度データを採り、通常の流れ成分と同等の平衡関係を保つ境界領域を求める。これらの範囲が平衡関係の観点からみた運転可能領域となる。(即ち 図4-2の計算が適用できる領域である。なお、平衡関係が通常の場合から外れた領域においても、データを段効率で補正してやれば今回のモデルで濃度プロファイルを計算することができる。)

注意事項として、今回のオーバーフロー流発生時の解析はローターが回転している場合についてであり、ローターが停止している場合は系を記述する収支関係式が異なるので適用できないことに留意されたい。(ローター停止の場合も[EASY]を利用して計算するが、今回とは別モデルで解析することになる。) なお、リフラックス流発生時の場合は、段効率が通常の場合と同等に維持されていれば平衡状態における濃度プロファイルの変化はない、という一般解が導かれる。(リフラックス流発生時の図4-2のようなモデルを作り物質収支式を立てて解くと求められる。) 当然ながらコードによる計算でも同様な結果が得られる。

なお、今回の解析で逆抽出工程を対象としたのは、一連の工程の中で逆抽出工程が最もスループット(処理する液量)が大きく、抽出装置小型化のメリットが最も大きい工程であることによる。

最後に、本報の各計算結果を担保するものは、工程全体、各段で物質収支が保たれているかどうかであるが、これについては全ケースについて確認している。また、モデル内の全ての要素モデル周り(Appendix-1参照)の物質収支及び混合部の平衡関係についても、代表ケースで確認している。

10.参考文献

- [1] 例えば、Ph. Bergeonneau, C. Jaonenら、"Uranium, Neptunium and Plutonium Kinetics of Extraction by Tributylphosphate and Trilaurylamine in a Centrifugal Contactor" , Proceedings of ISEC '77, (1977) 等
- [2] 上田, 五十嵐、"核燃料再処理抽出プロセス計算コードへのObject DPSの適用(その1、その2)"、ケミカルエンジニアリング, Vol.43, No.3, No.4 (1998)
- [3] 上田, 五十嵐、"COMPUTER CODE FOR PUREX FLOWSHEET SIMULATION IN ABNORMAL HYDRAULIC BEHAVIOR OF CENTRIFUGAL CONTACTOR"、Proceedings of RECOD'98, (1998)
- [4] J. A. Jenkinsら、"PERFORMANCE OF CENTRIFUGAL CONTACTORS ON URANIUM AND PLUTONIUM ACTIVE PUREX FLOWSHEETS" , Proceedings of ISEC '93, (1993)
- [5] 宮地, 舩井、"核燃料再処理溶媒抽出工程のための溶媒抽出シミュレーションコードMIXSETおよびPULCOの開発"、動燃技法 No.76、(1990)
- [6] 権田、"Purexプロセス計算コードMIXSET"、PNCT 841-77-60、(1977)
- [7] 荻野, 後藤ら、"リサイクル機器試験施設(RETf)の抽出工程用流量可変フィーダの開発"、日本原子力学会1997年(第35回)春の年会 要旨集 K5、(1997)

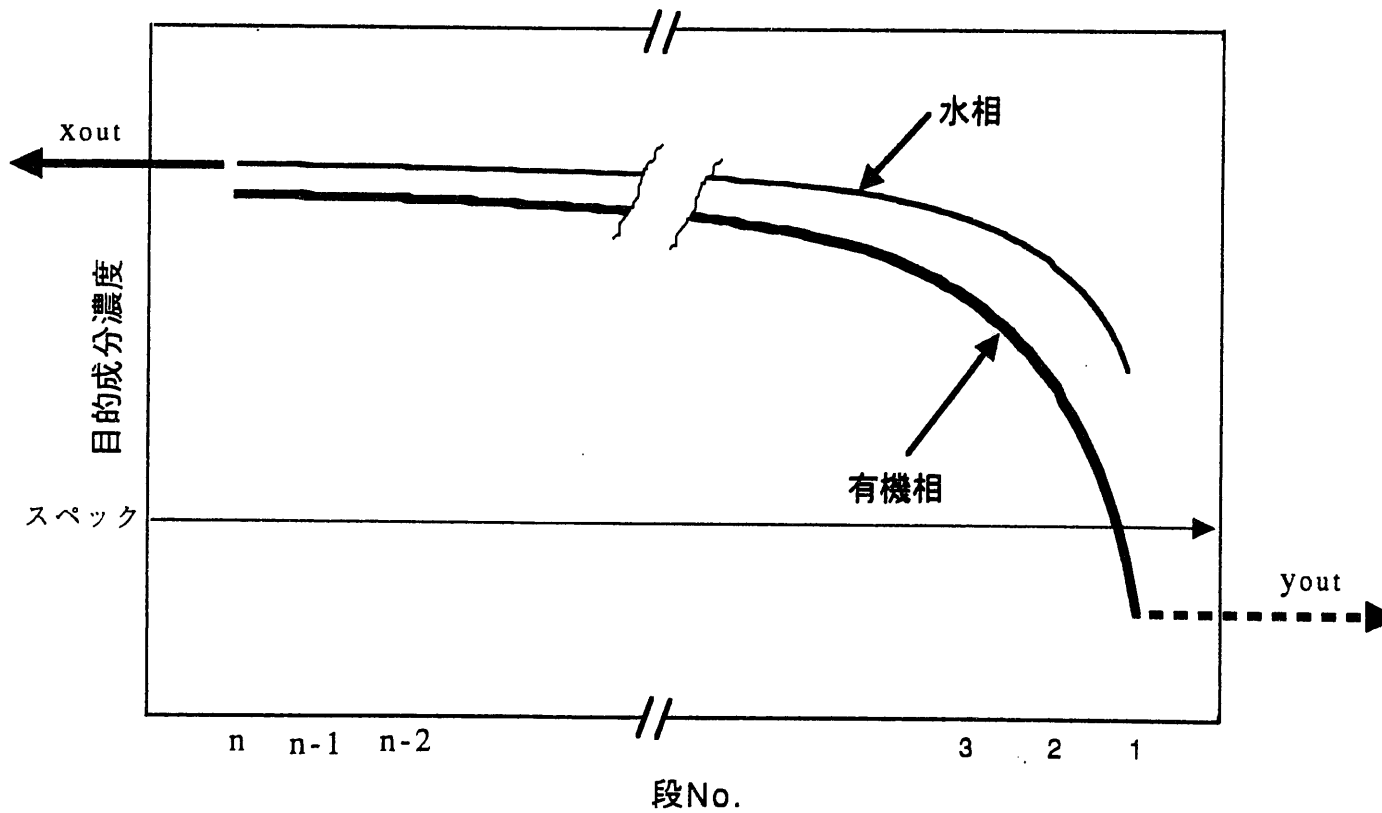
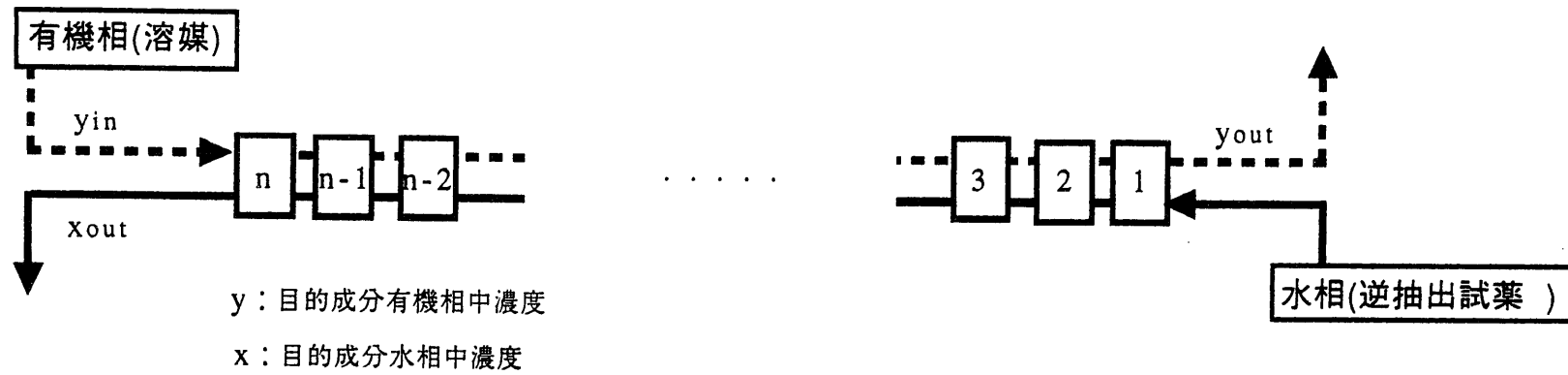


図1 抽出工程の概要(逆抽出操作の例)

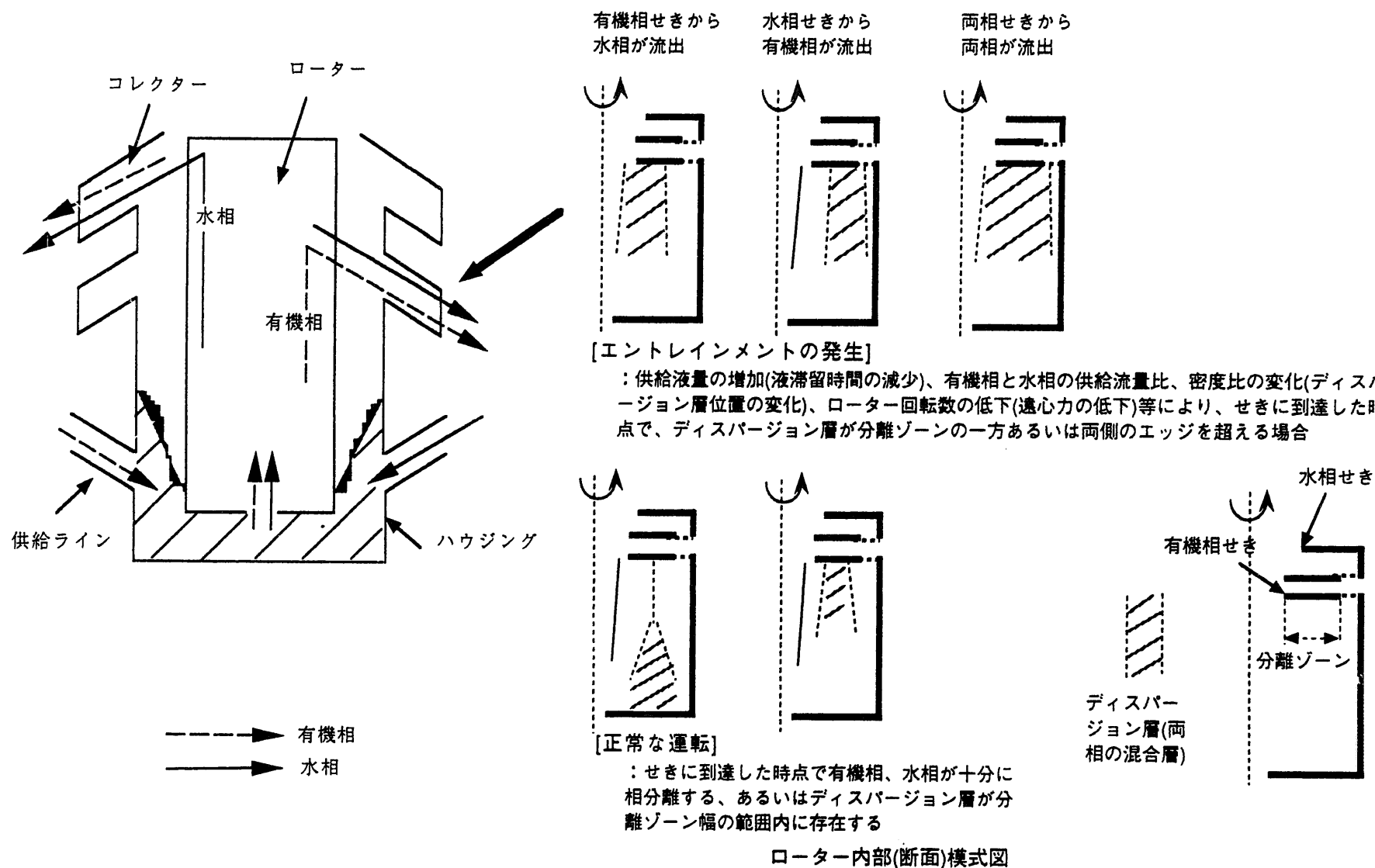


図2 エントレインメントの発生

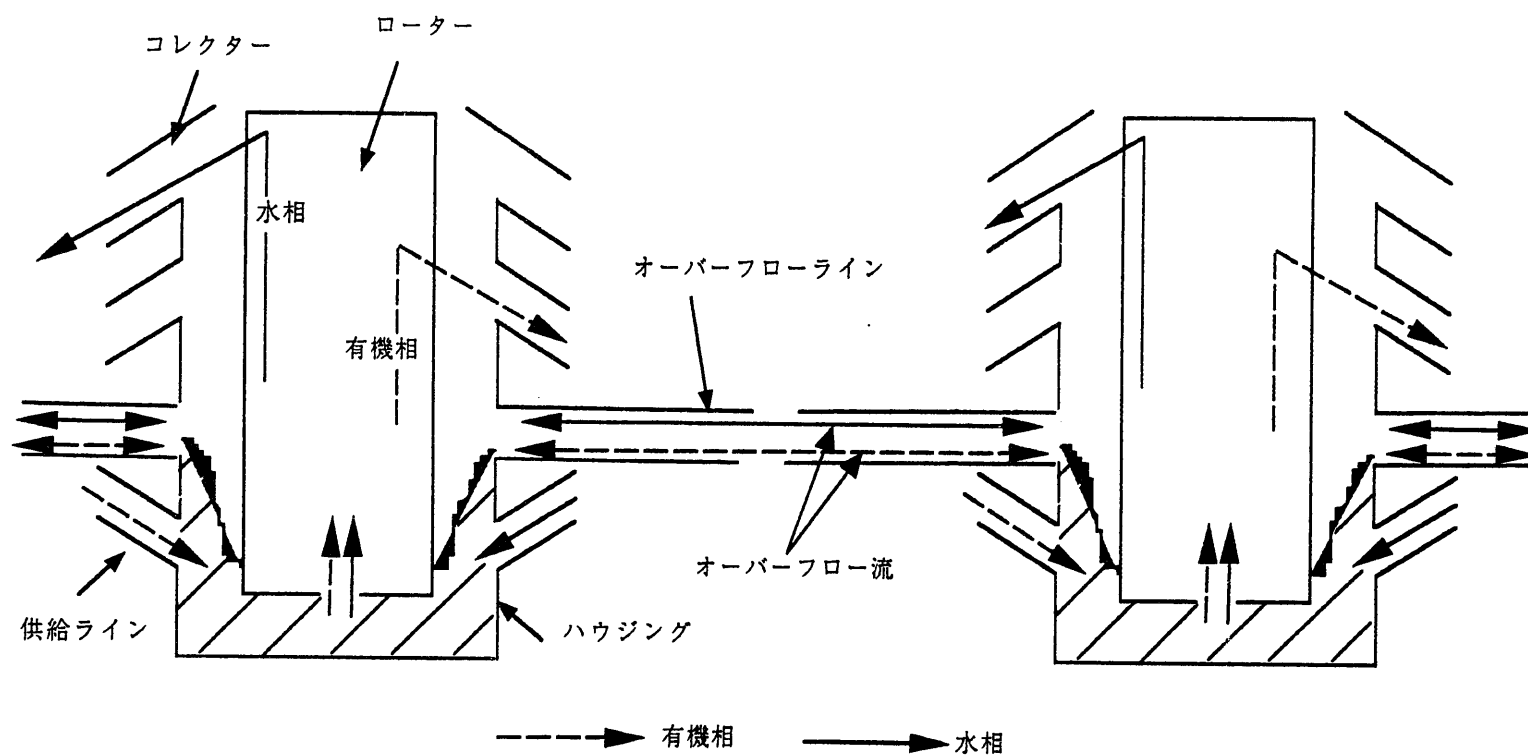
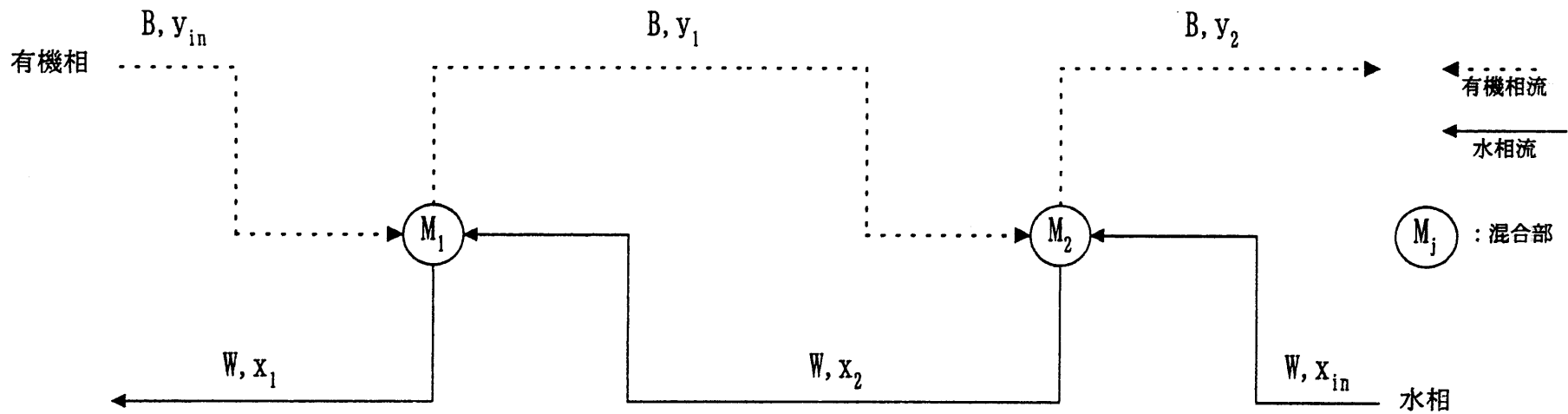


図3 オーバーフロー流の発生



物質収支

$$\text{バンク全体: } B \cdot y_{in} + W \cdot x_{in} = B \cdot y_2 + W \cdot x_1$$

$$1 \text{ 段目: } B \cdot y_{in} + W \cdot x_2 = B \cdot y_1 + W \cdot x_1$$

$$2 \text{ 段目: } B \cdot y_1 + W \cdot x_{in} = B \cdot y_2 + W \cdot x_2$$

抽出平衡 (x, y の関係)

$$y_1 = D_1 \cdot x_1, \quad y_2 = D_2 \cdot x_2$$

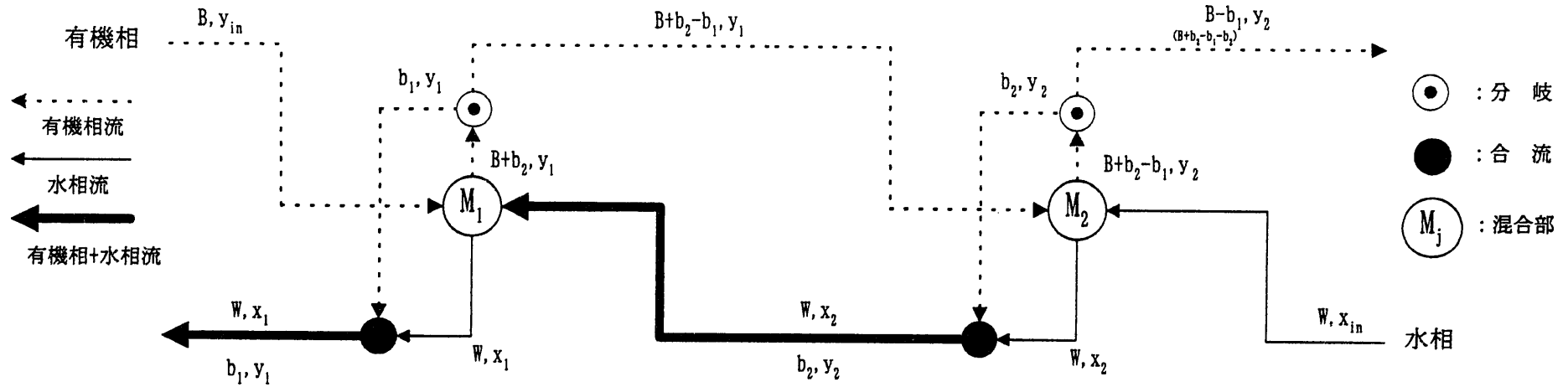
$$D_1 = f(x_1), \quad D_2 = f(x_2)$$

(B : 有機相流量 W : 水相流量 y : 有機相濃度 x : 水相濃度 D : 分配係数)



・ n 段, i 成分に対して, 各段濃度プロファイルが求められる (MIXSET 等の計算コードも同じ)。

図 4-1 正常な流動状態の場合 (2 段, 1 成分の例)



物質収支

バンク全体: $B \cdot y_{in} + W \cdot x_{in} = (B - b_1) \cdot y_2 + b_1 \cdot y_1 + W \cdot x_1$

1 段目: { 段全体: $B \cdot y_{in} + b_2 \cdot y_2 + W \cdot x_2 = (B + b_2 - b_1) \cdot y_1 + b_1 \cdot y_1 + W \cdot x_1$

① まわり: $B \cdot y_{in} + b_2 \cdot y_2 + W \cdot x_2 = (B + b_2) \cdot y_1 + W \cdot x_1$

② まわり: $(B + b_2) \cdot y_1 = b_1 \cdot y_1 + (B + b_2 - b_1) \cdot y_1$

● まわり: $b_1 \cdot y_1 + W \cdot x_1 = b_1 \cdot y_1 + W \cdot x_1$

2 段目: 上記と同様

(b_1 : 1 段からのエントレインメント b_2 : 2 段からのエントレインメント 他の記号は図 4-1 と同じ。)



抽出平衡 (x, y の関係)

$$y_1 = D_1 \cdot x_1, \quad y_2 = D_2 \cdot x_2$$

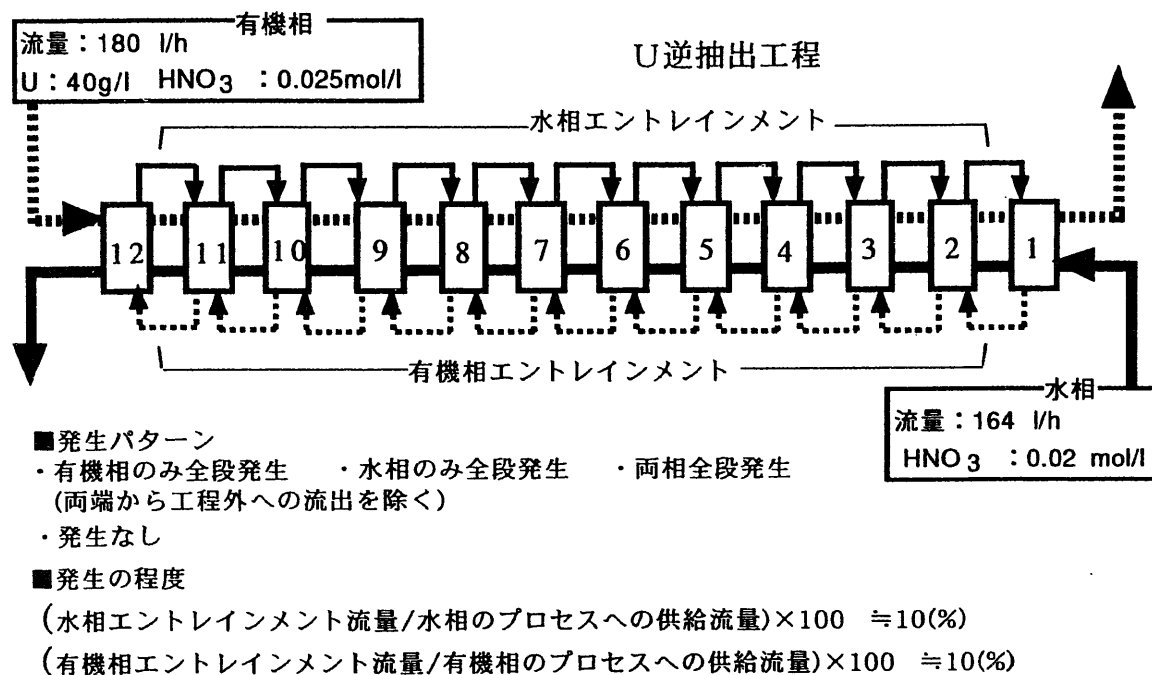
$$D_1 = f(x_1), \quad D_2 = f(x_2)$$

$D=f(x)$ の形は、
図 4-1 と同じ。
(同じ抽出系であるので)

・エントレインメント発生時も、物質収支及び抽出平衡計算の組み合わせ事象である。 → 以上を 1 段、1 成分に対して解けば各段、各箇所の濃度プロファイルが求められる。

図 4-2 エントレインメント発生の場合 (2 段, 1 成分の例)

□ エントレインメント発生による影響



□ 有機相、水相供給流量変動による影響

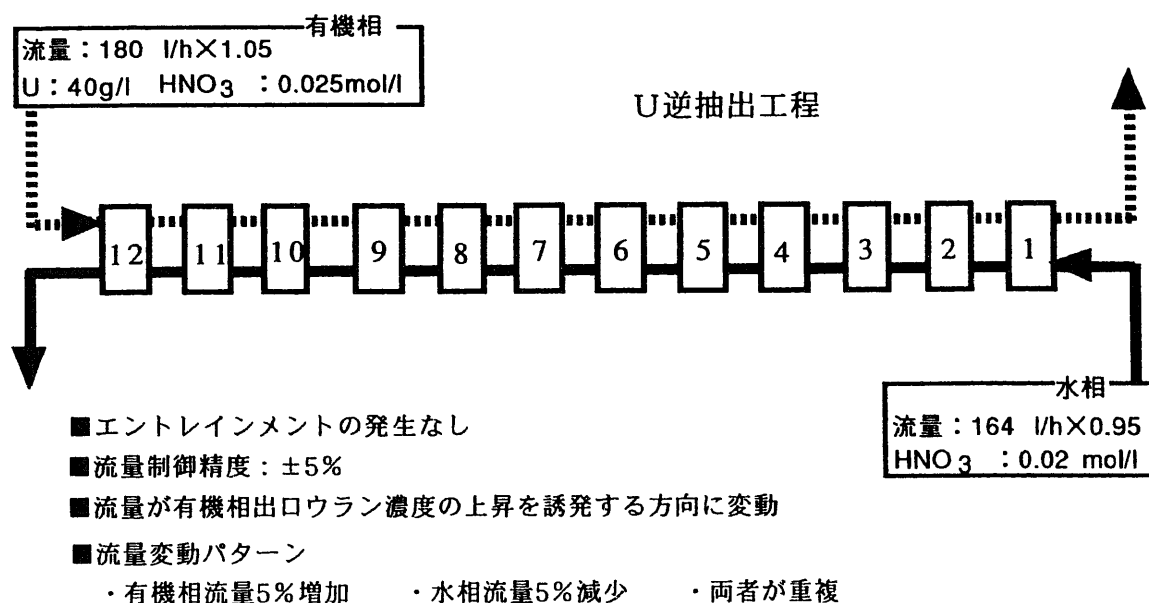


図5 計算条件(エントレインメント発生の影響)

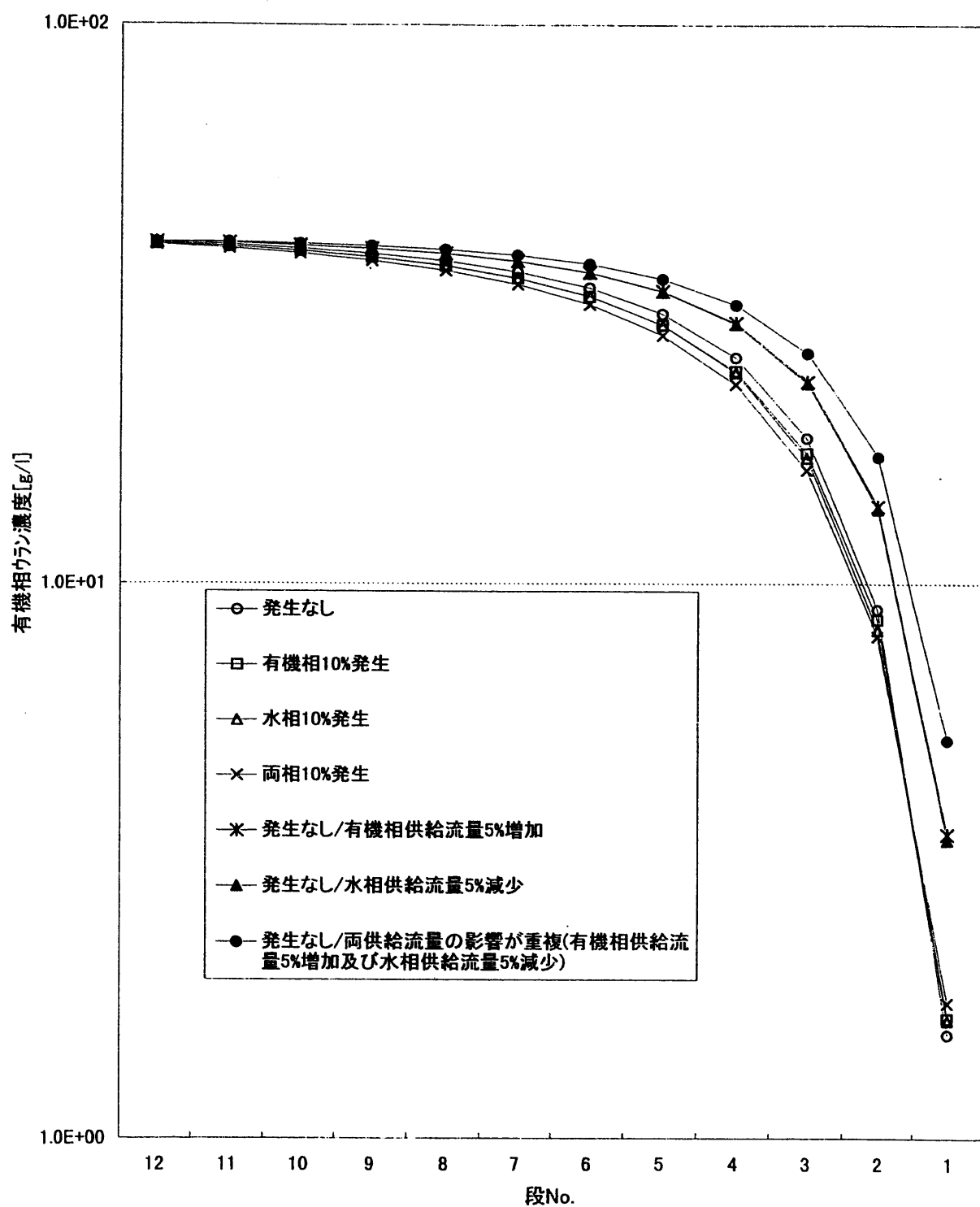


図6 エントレインメント発生及び供給流量制御精度による有機相ウラン濃度プロファイルへの影響

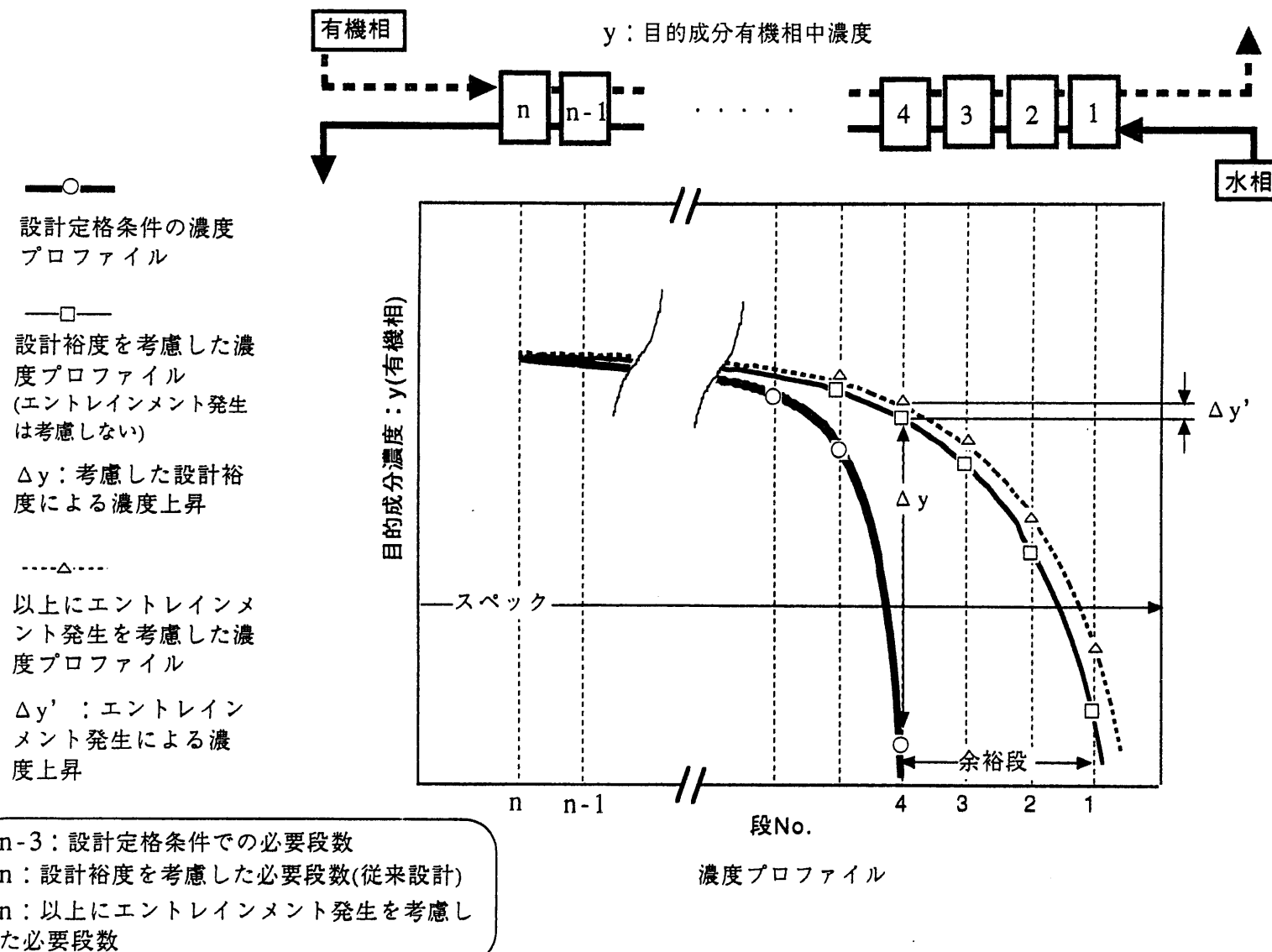
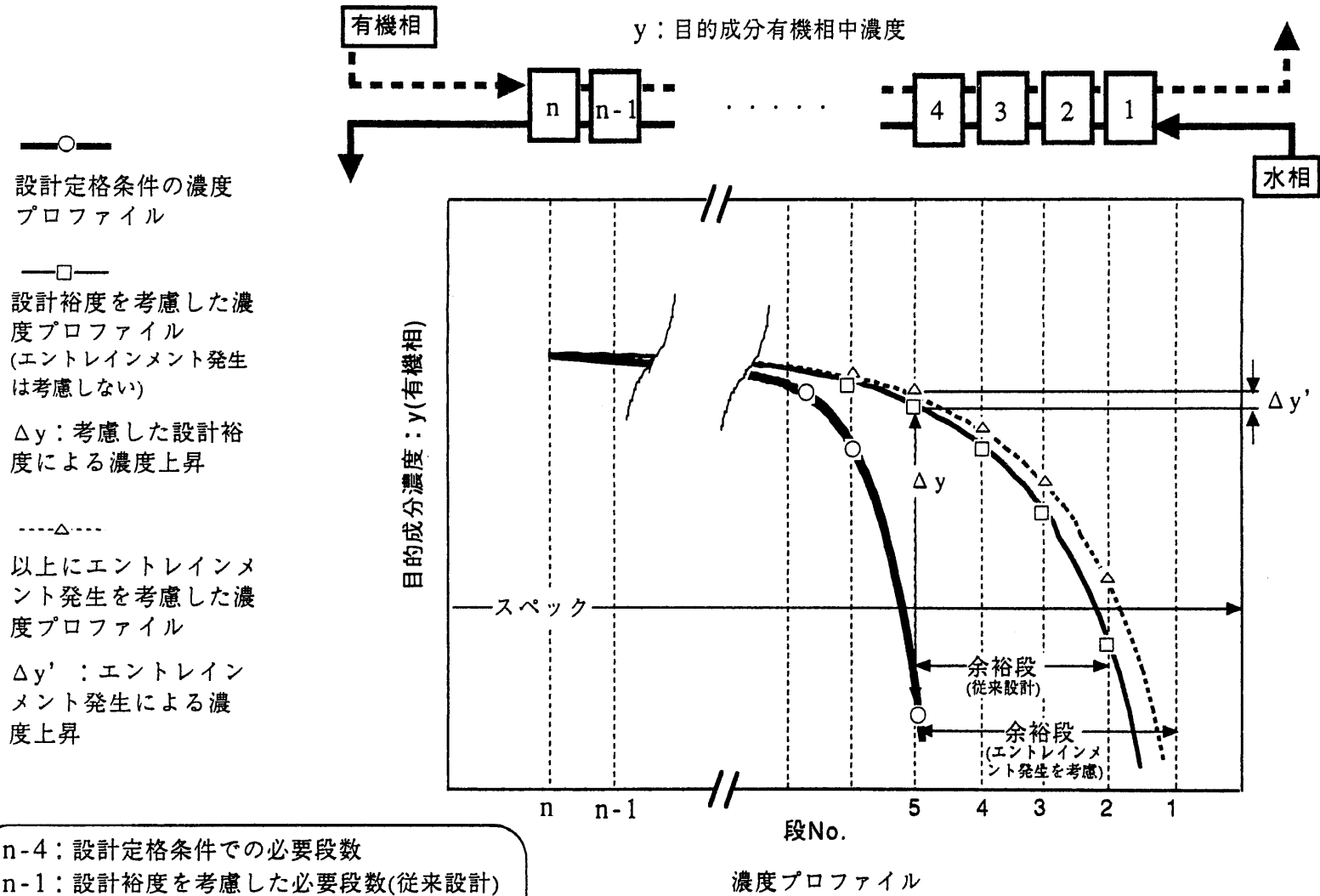


図7-1 エントレインメント発生に対する仕様緩和の考え方(その1)



n-4: 設計定格条件での必要段数
 n-1: 設計裕度を考慮した必要段数(従来設計)
 n: 以上にエントレインメント発生を考慮した必要段数

図7-2 エントレインメント発生に対する仕様緩和の考え方(その2)

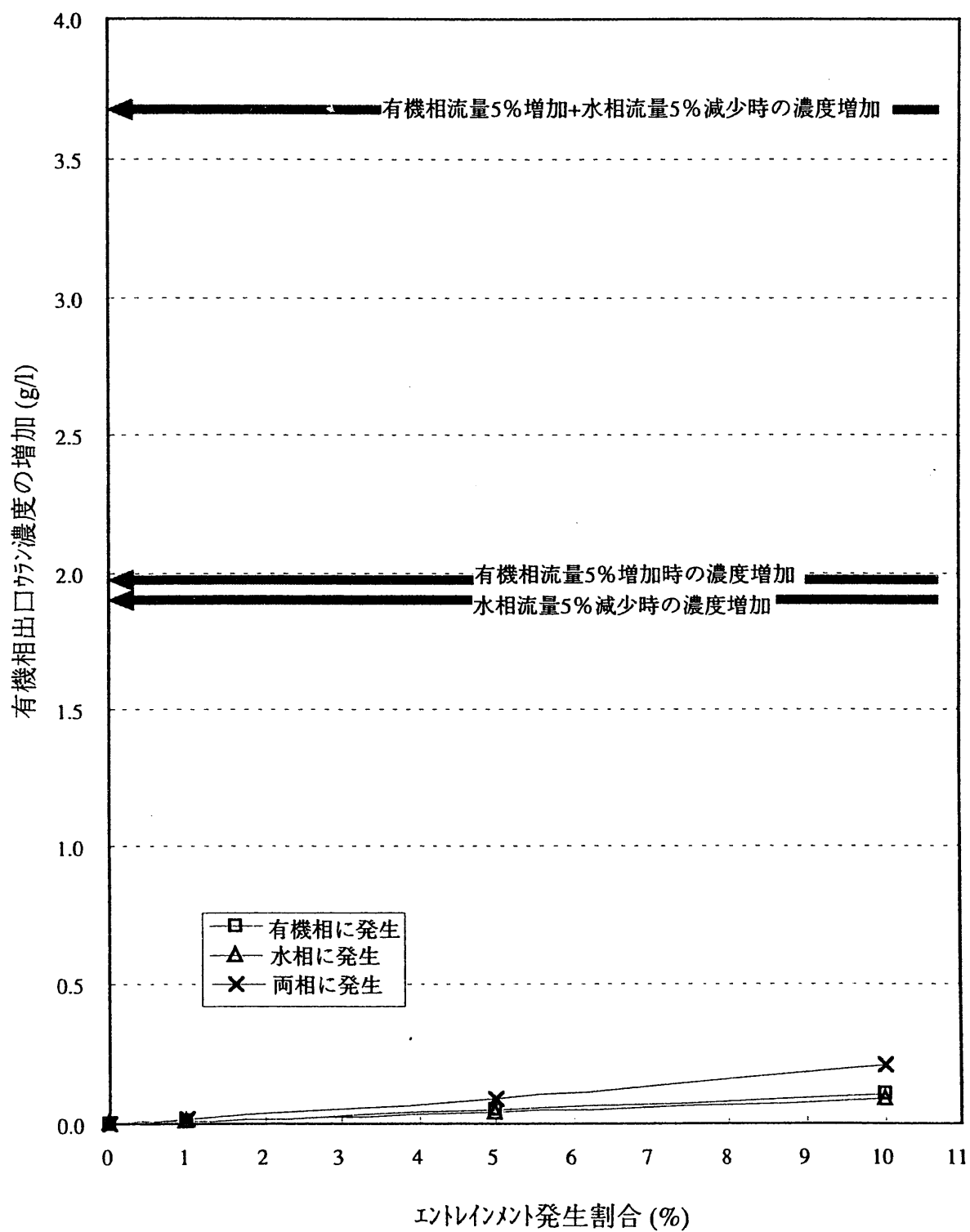


図8 エントレインメント発生が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響

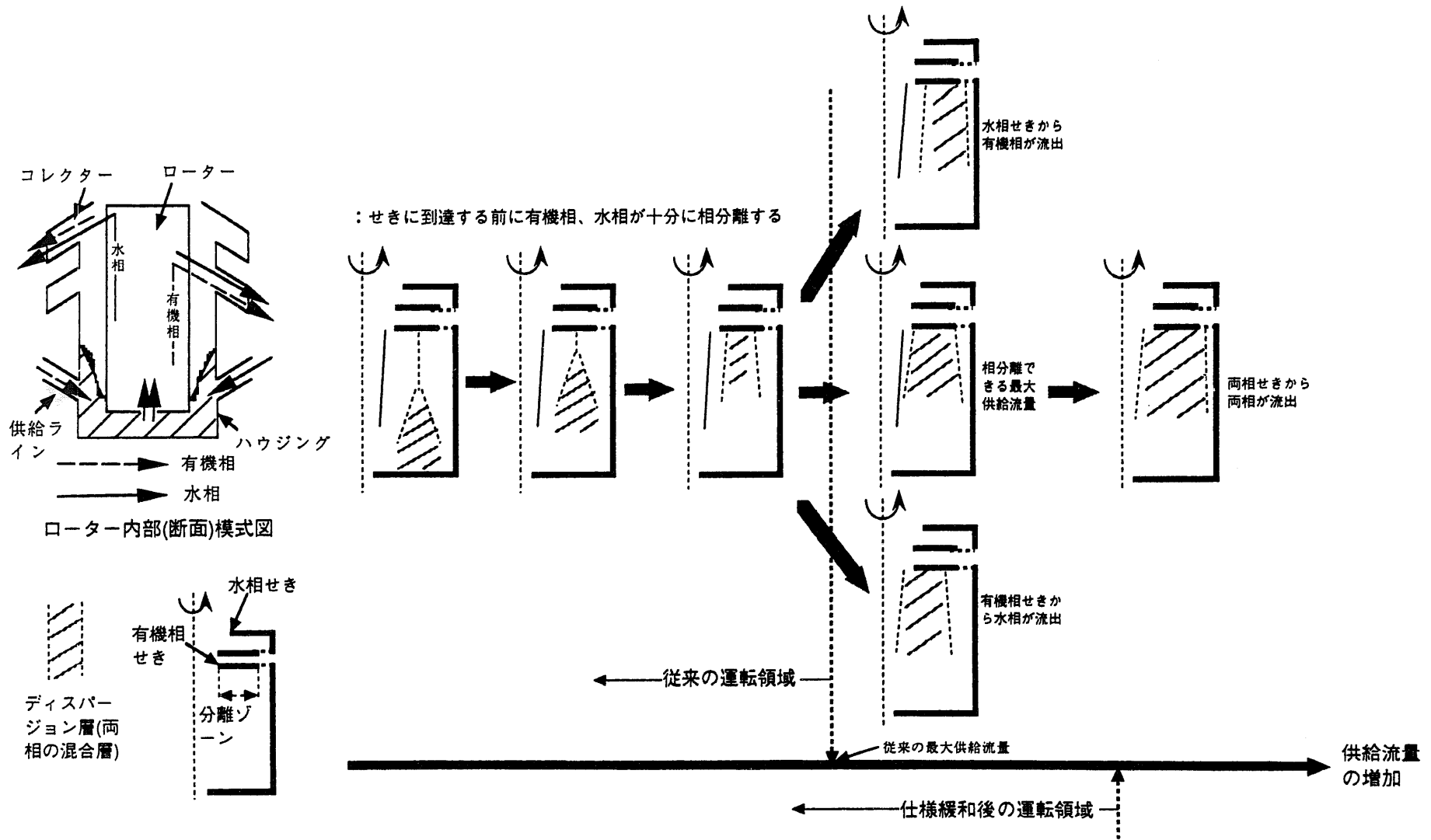


図9 エントレインメント発生仕様緩和に伴う抽出装置の合理化

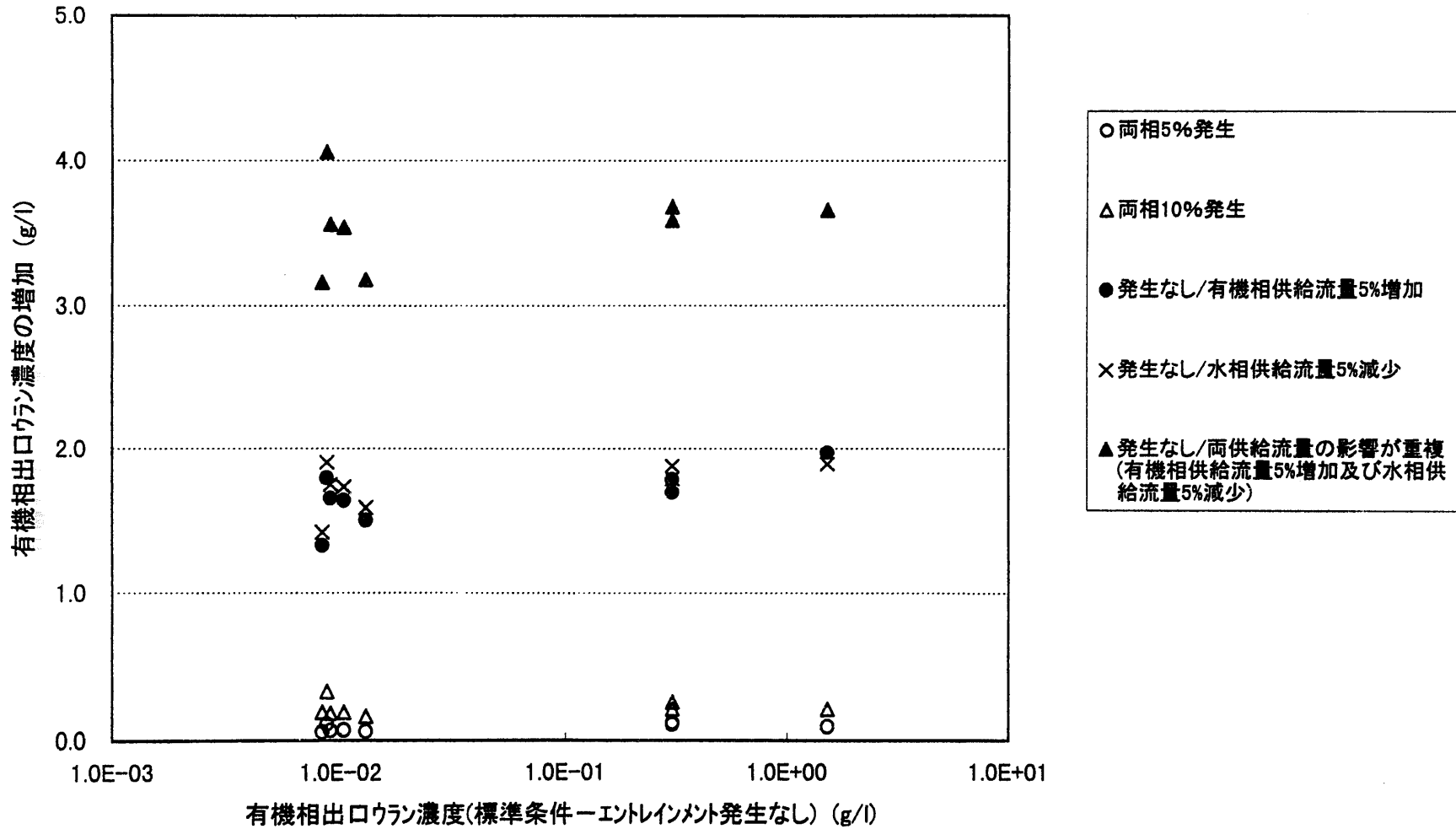


図10-1 エントレインメント発生及び供給流量変化が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響(その1)

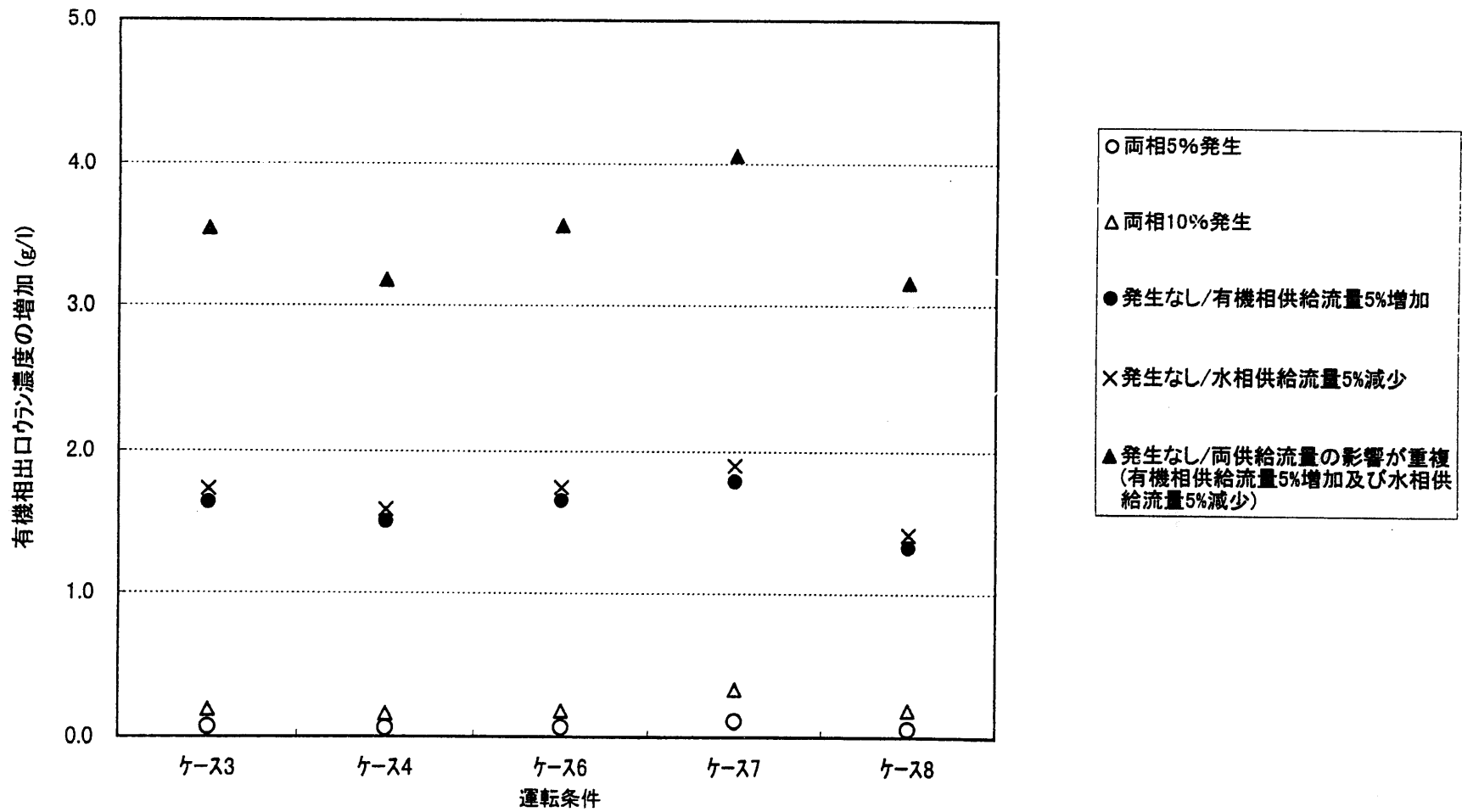
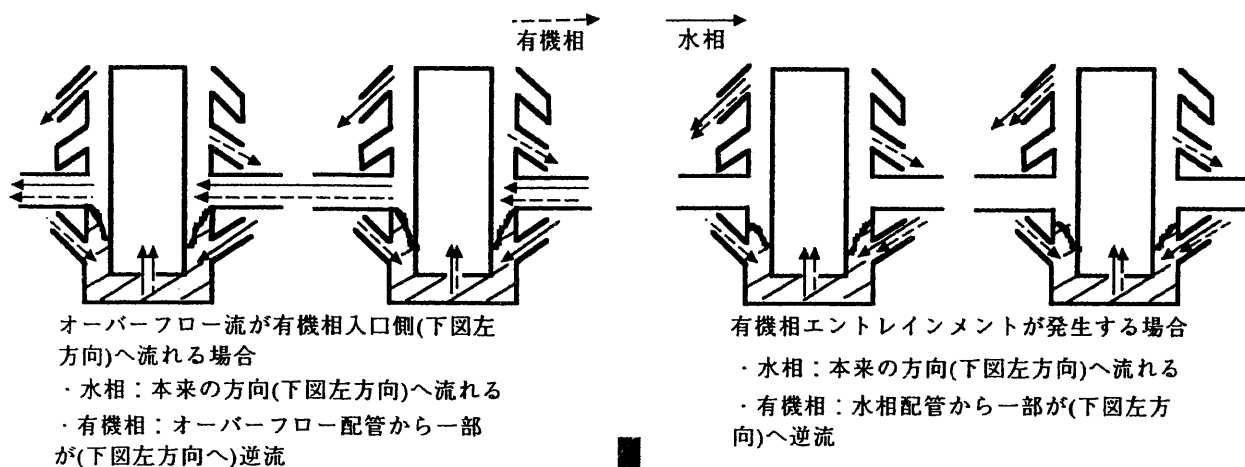
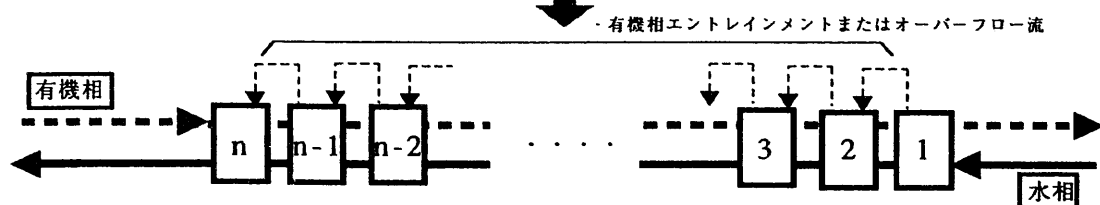


図10-2 エントレインメント発生及び供給流量変化が有機相出口ウラン濃度の変化に与える影響(その2)

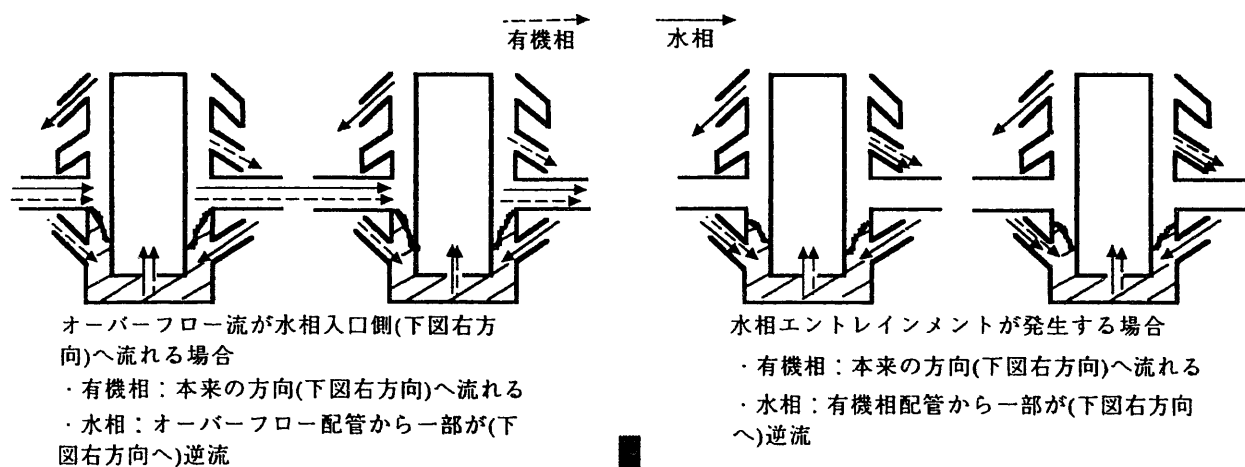
■有機相入口側方向へのオーバーフロー流発生



濃度プロファイルを変化させる要因(逆流する有機相流)は同じ



■水相入口側方向へのオーバーフロー流発生



濃度プロファイルを変化させる要因(逆流する水相流)は同じ

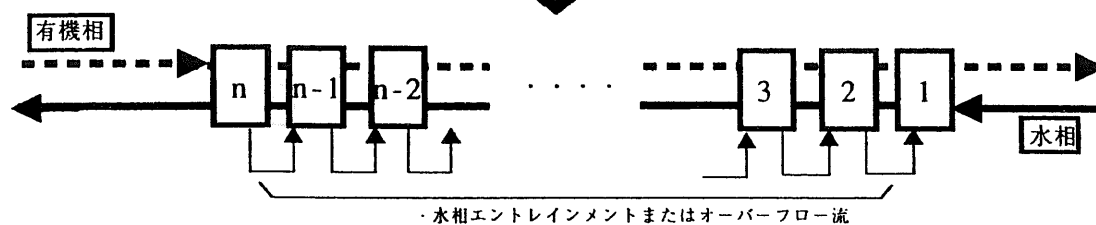
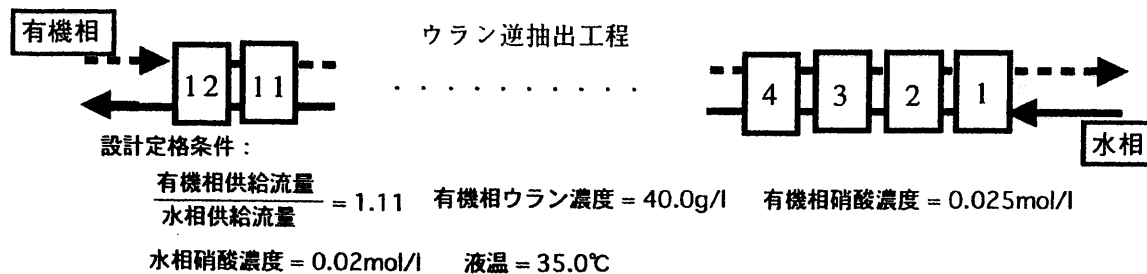


図11 オーバーフロー流及びエントレインメント発生挙動の比較



- 設計定格条件から設計裕度を考慮(設計裕度については本文参照)
- 設計裕度を考慮した状態から全段両相でエントレインメントあるいはオーバーフローが5%発生(発生量の定義は表1と同じ)
- △— 設計裕度を考慮した状態から全段両相でエントレインメントあるいはオーバーフローが10%発生(発生量の定義は表1と同じ)

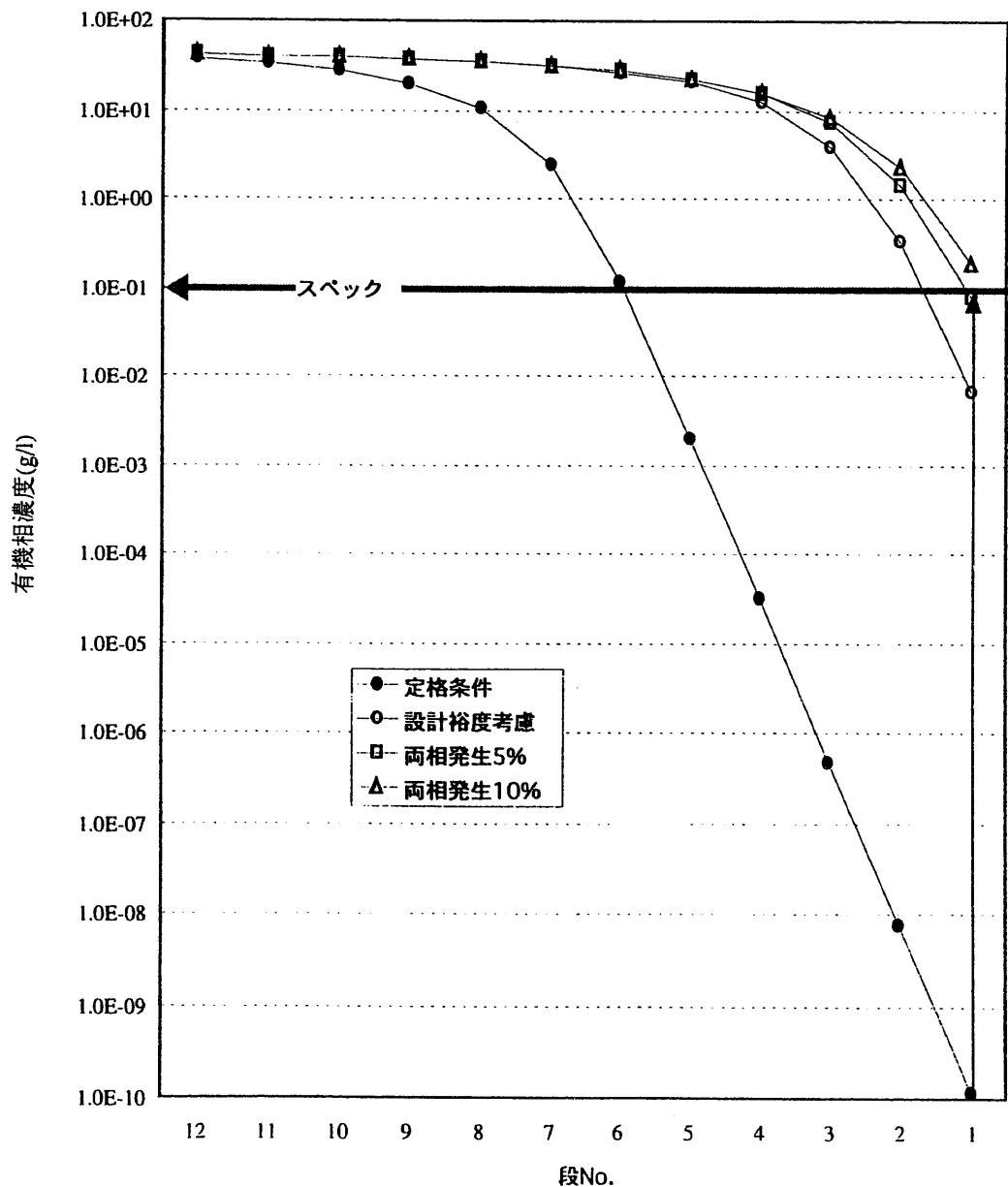


図12 装置仕様合理化例

表1 エントレインメントの発生の計算条件

	有機相供給流量 水相供給流量	有機相中ウラン濃度 (g/l)	有機相中硝酸濃度 (mol/l)	水相中硝酸濃度 (mol/l)	液温 (℃)	有機相出口ウラン濃度 ^{*1)} (g/l)
ケース1	1.10	40.0	0.025	0.02	25.0	1.530
ケース2	1.06	↑	↑	↑	↑	3.038E-01
ケース3	1.05	↑	↑	↑	↑	1.032E-02
ケース4	1.10	34.4	↑	↑	↑	1.293E-02
ケース5	1.18	40.0	↑	↑	35.0	3.045E-01
ケース6	1.17	↑	↑	↑	35.0	9.023E-03
ケース7	1.10	50.8	↑	↑	35.0	8.684E-03
ケース8	↑	40.0	↑	0.055	35.0	8.294E-03

*1):各ケースでエントレインメント発生がない場合の有機相出口ウラン濃度

■各ケースで以下の場合を計算

- 1) 全段両相エントレインメント発生5% 2)全段 両相エントレインメント発生10%
 3) 有機相供給流量5%増加 4) 水相供給流量5%低下 5) 有機相供給流量5%増加+水相供給流量5%低下

■エントレインメント発生量(%)は、各相について以下の通り

(エントレインメント流量/プロセスへの供給流量)×100

Appendix-1

-今回使用したモデルについて-

今回の濃度プロファイルの解析は、計算コード[EASY]によって行っている。[EASY]はオブジェクト指向型言語で書いており、その特徴を生かして、平衡濃度計算、物質収支計算、液の分流、合流等の抽出装置内緒現象を模擬する[要素モデル]を最小単位として準備し、解析事象に応じてそれらを組み合わせて装置や工程全体を模擬するモデルを組んで計算するものである。今回使用したモデルの構造を次ページの図に示す。工程全体を4種類の要素モデルにより構築しており、各要素モデルの周り、抽出装置各段、及び多段工程全体について物質収支をとることで、液流動異常発生時の濃度プロファイルを計算している。

次ページ図右上は抽出装置一段分のモデルを示している。図中の各口が要素モデルである(口中の2行目の記述が要素モデル固有の名前を示す)。要素モデル間の線はストリームであり、質量流量の流れを表す。左上及び本文図4-1を合わせて参照すると、各要素モデル機能との対応がよくわかるであろう。以下に各要素モデルの機能を示す。

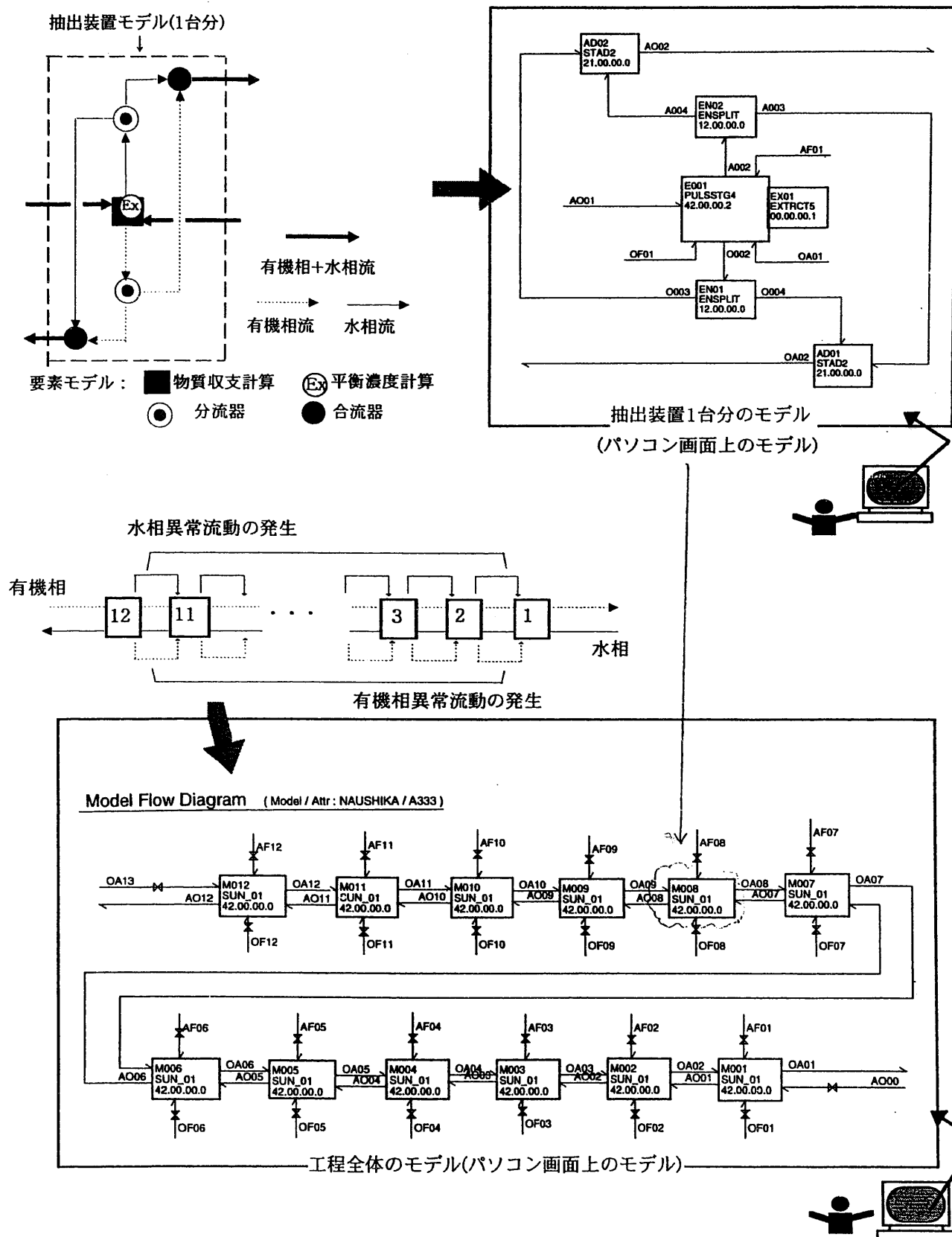
ENSPLIT：質量流量を分流する機能を有する。各々有機相、水相用であり、分流比を与えてエントレインメント、オーバーフロー流を発生させる。分流をさせない場合は、流れが正常な場合のモデルとして機能する。

STAD2：質量流量を合流する機能を有する。有機相、水相用と2個ある。

PULSSTG4：混合部の物質収支計算を行う。

EXTRCT5：混合部の抽出平衡計算を行う。

以上のモデルを12個組み合わせて、次ページ図下にある工程全体のモデル(12段)を構築する(各口が抽出装置1台分のモデルである)。装置モデル間の線はストリームであり、質量流量の流れを表す。このモデルに運転条件、方法、液流動異常の発生等を定義し計算を行う。



Appendix図1 計算コードの構造