

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年10月20日(20.10.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/220017 A1

(51) 国際特許分類:
B01D 11/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/012669

(22) 国際出願日: 2022年3月18日(18.03.2022)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2021-069670 2021年4月16日(16.04.2021) JP

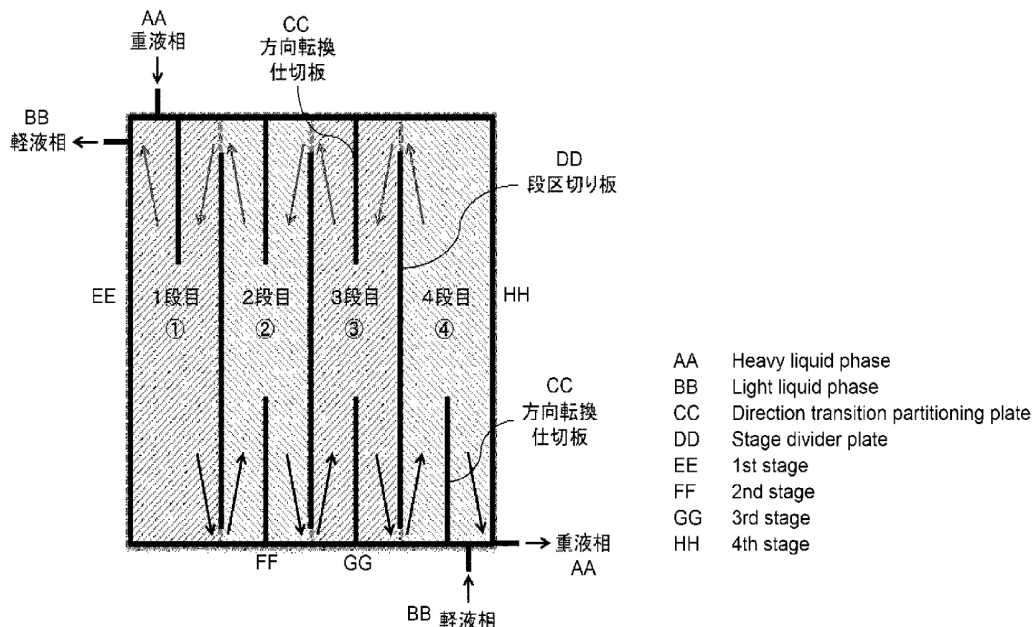
(71) 出願人: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 (JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY) [JP/JP]; 〒3191184 茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1 Ibaraki (JP).

(72) 発明者: 長縄 弘親 (NAGANAWA Hirochika); 〒3191195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所内 Ibaraki (JP). 永野 哲志 (NAGANO Tetsushi); 〒3191195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所内 Ibaraki (JP). 鈴木 英哉 (SUZUKI Hideya); 〒3191195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人日峯国際特許事務所 (NIPPO INTERNATIONAL PATENT CORPORATION); 〒3100062 茨城県水戸市大町一丁目2番6号 Ibaraki (JP).

(54) Title: LIQUID-LIQUID SYSTEM MULTI-STAGE DEVICE AND METHOD FOR PRODUCING SPECIFIC SUBSTANCE USING SAME

(54) 発明の名称: 液液系多段装置及びそれを用いた特定物質の製造方法



(57) Abstract: The present invention provides: a multi-stage device wherein, in a liquid-liquid system comprising two liquid phases that do not mix with each other, the position of an interface (liquid-liquid interface) formed by a heavy liquid phase and a light liquid phase does not fluctuate, or fluctuation thereof is suppressed; and a method for producing a specific substance using the same. Provided are: a device wherein, in two or more stages set in a container with an integral structure in which a plurality of partitions are disposed or in a connected body of a plurality of adjacent containers, a mechanism is used in which a heavy liquid phase is in communication at a container lower part and/or a light liquid phase

[続葉有]

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IR, IS, IT, JM, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

is in communication at a container upper part, and multi-stage extraction is performed such that there is no fluctuation in the position of an interface (liquid-liquid interface) formed by the heavy liquid phase and the light liquid phase, or such fluctuation is suppressed; and a method for producing a specific substance using the same.

(57) 要約: 互いに混じり合わない2つの液相から成る液液系において、重液相と軽液相が成す界面(液液界面)の位置が変動しない又は変動が抑制される多段の装置及びそれを用いた特定物質の製造方法を提供する。隣接した複数の容器の連結体又は複数の仕切りを配した一体構造の容器に設置された2つ以上の段において、重液相が容器下部において連通しているか、若しくは軽液相が容器上部において連通しているか、又はその両方である仕組みを利用し、重液相と軽液相が成す界面(液液界面)の位置が変動しない又は変動が抑制されるように多段抽出を行う装置及びそれを用いた特定物質の製造方法。

明 細 書

発明の名称：

液液系多段装置及びそれを用いた特定物質の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、互いに混じり合わない２つの液体から成る液液系において、液液界面の位置が変動しない又は変動が抑制される多段の装置及びそれを用いた特定物質の製造方法に関する。ここで言う多段とは、単位操作を繰り返すための仕組みである。その単位操作の回数が段の数に相当するので、２回以上の単位操作を繰り返す仕組みを多段と表現している。液液系での多段とは、たとえば、液液抽出（工業的には、溶媒抽出と称される）について、その単位操作を複数回繰り返す仕組みであり、金属製錬・リサイクル、有機化合物の分離精製、排水からの有害物質の回収除去など、広く産業で利用されている。

背景技術

[0002] 互いに混じり合わない２つの液体から成る液液系は、化学分野などにおいて幅広く利用されている。たとえば、物質の２液相間の分配の違いを利用して物質を分離精製したり回収除去したりする液液抽出（溶媒抽出）は、金属元素や有機化合物の分離精製法として金属工業、化学工業などの基幹産業を支え、ハイテク産業で不可欠なレアメタルの分離回収技術としても最も重要な技術の１つである。

[0003] 一方、エレクトロニクス、情報処理などのいわゆるハイテク産業では、より高度な分離精製が求められている。すなわち、フォーナイン（９９．９９％）、ファイブナイン（９９．９９９％）といった金属元素の高純度化、化学的性質が酷似した元素群（たとえば、レアアース）の中での相互分離など、分離精製に対する要求は高まるばかりである。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2020-203267号公報

特許文献2：特開2021-000622号公報

特許文献3：特許第5305382号公報

特許文献4：特許第5565719号公報

特許文献5：特願2019-229431号

特許文献6：特願2019-229432号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 液液抽出（溶媒抽出）での分離精製は、その単位操作を繰り返すことで、より高度に行うことができる。しかしながら、繰り返しの回数が多くなるに従って、より多くの単位デバイスから成る複雑なシステムが必要となり、各単位デバイスを同時にかつ十分に機能するように動作させることが難しくなる。たとえば、ミキサーセトラーに代表される溶媒抽出の装置では、段数が多くなると、重液相と軽液相が成す界面（液液界面）の位置の調整とその変化の監視に多くの労力と時間を費やすことになる。

[0006] また、段数が多くなることで、システムが大型化することも、分離精製の性能向上を経済的、空間的に阻んでいる重大な障壁である。システムが大型化すれば、それに呼応して、より大きな施設・設備及びより多くの部品が必要で、より高コストとなり、設置床面積が大きいことで導入困難になる場合もある。

[0007] さらに、処理対象の液相を順番に次の段に移行させることで単位操作を繰り返す構造である点から、段の数に比例して処理時間も長くなる。たとえば、送液のために各段を結んでいる配管が長くなると、より長い処理時間を要する。送液配管では圧力損失が大きいため、長い送液配管ではポンプ負荷が大きくなり、大容量で送液できないことから処理時間が長くなってしまいうという側面もある。

[0008] とくに、ノズルでの液滴噴出による2液相混合に基づく多段の仕組みにおいては、従来、重液相の送液に容器の下端から上端に至る長い配管を要し、

軽液相の送液でも上端から下端に至る長い配管を要するので（たとえば、特許文献 1 及び特許文献 2）、送液配管での圧力損失が大きい。

[0009] また、密閉型の容器で液滴噴出を利用した多段装置では、1つのポンプで複数の段にわたって重液相又は軽液相を送液する場合がある。たとえば、1段目のノズル、2段目のノズル、3段目のノズルというように順番に送液されることで、ノズルでの圧力損失の積み重ねにより、徐々に噴出力が低下する。このことは、各段での液液界面の位置を変動させる原因にもなる。また、体積速度を大きくすると圧力損失の影響も大きくなるため、大容量での送液が制限される。

[0010] 液液抽出（溶媒抽出）の工業用の装置として最も普及しているミキサーセトラーでの処理時間は、相分離に要する時間によって決定づけられる。セトラー部での重力による相分離を待つ排水する仕組みだからである。一方、相混合と相分離が同時に進行するエマルションフロー（たとえば、特許文献 3 及び特許文献 4）の仕組みでは、処理時間はポンプ送液での圧力損失に依存する。

[0011] このことは、ミキサーセトラーとエマルションフローでは送液の原理が異なることにも関係している。すなわち、ミキサーセトラーは、主としてインペラー（攪拌翼）の吸引力を利用したオーバーフローに基づく送液であり、エマルションフローは、ポンプなどによる圧力送液だからである。オーバーフロー送液では、圧力損失は大きな問題にならないことが多いが、ポンプなどによる圧力送液においては、圧力損失が処理速度に大きく影響する。なお、ミキサーセトラーの多段では、多くの場合、ミキサー部とセトラー部が交互に配置されるように段を隣接して設置し、両部の間を通過口で接続させているため、各段を結ぶ送液配管は不要であり、圧力損失は問題にはならない。

[0012] 一方、ミキサーセトラーと同じように機械攪拌翼を用いる場合でも、インペラー（攪拌翼）の吸引力に頼ることなく、ポンプなどによる圧力送液に基づく仕組み（特許文献 5 及び特許文献 6）においては、エマルションフロー

と同様に、送液時の圧力損失の影響を大きく受ける。

[0013] 上述したように、液液系を利用した化学的手法、たとえば、液液抽出（溶媒抽出）において、より高度な分離精製を行うには、単位操作を繰り返す多段装置が必要である。従来の多段装置では、単体でも機能する仕組みを段数に対応する数で直列に配置することで、単位操作を繰り返す構造になっている。しかしながら、このような多段の構造では、各段での界面の位置が変動しやすく、大容量での送液ができないといった問題があった。

[0014] 本発明の目的は、容器の下部若しくは上部、又はその両方を連通させることで、界面位置の変動を抑制する多段（“内部多段”と称する）の装置及びそれを用いた特定物質の製造方法を提供することにある。容器の上部及び下部の両方が連通している場合、界面位置の調整は、事実上、不要となり、装置の操作性（扱いやすさ）が大幅に向上する。

課題を解決するための手段

[0015] 本発明の多段装置の特徴は、各液相が送液配管を経ることなく次の段に運ばれる構造を有する点である。すなわち、送液配管での大きな圧力損失を避けることができる。本発明に示す装置の多くは、各段の間に送液配管を設置することなく、かつ十分な相分離を実現できるので、送液の負荷を大幅に軽減し、大容量での送液が可能となる。とくに、従来、各段を結んでの重液相の送液に容器の下端から上端に至る長い配管を要し、軽液相の送液でも上端から下端に至る長い配管を要する液滴噴出による2液相混合での多段の仕組みにおいて、送液配管での圧力損失を回避できる意義は大きい。なお、送液量の大小にかかわらず、界面位置の調整が不要になる点も、大容量での送液を可能にする一因になっている。大容量での送液が可能になることで、装置を大幅にダウンサイズできる。

[0016] 加えて、固形成分の析出などによって送液配管が狭窄したり閉塞したりする事象は日常的に発生するものであるから、各段を結ぶ配管が存在しないことで、保守・維持管理に係る作業を軽減できる点からも扱いやすさが向上する。

[0017] また、本発明に示す構造は、従来の多段のように、送液配管を介して１段目から２段目さらに３段目というように次々と順番に送液される仕組みとは異なる。すなわち、密閉容器で液滴噴出を利用した多段装置であっても、多数のノズルを順番に経ていくことで生じる圧力損失が発生しない。このことによっても、ポンプ負荷が大幅に低減され、液液界面の位置は安定する。

発明の効果

[0018] 従来、液液系で用いる多段装置の構造には、各段での界面の位置が変動しやすく、大容量での送液ができないといった問題があった。本発明により、これらの問題を解決した多段装置を提供するとともに、それを利用して、金属素材、化学品、バイオ品などに係る特定物質を、より効率的に製造できるようになる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]連結式重液相連通片方横断接触内部多段の例。

[図2]連結式軽液相連通片方横断接触内部多段の例。

[図3(a)]連結式両相連通対向接触内部多段の例。

[図3(b)]連結式両相連通対向接触内部多段で気相連通路を設置した例。

[図4(a)]仕切板式重液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の中央に設置した例。

[図4(b)]仕切板式重液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図4(c)]仕切板式重液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図5(a)]仕切板式軽液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の中央に設置した例。

[図5(b)]仕切板式軽液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図5(c)]仕切板式軽液相連通片方横断接触内部多段で方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図6(a)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上下の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図6(b)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図6(c)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図6(d)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上下の方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図6(e)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上下の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図6(f)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の方向転換板を段の中央に下方の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図6(g)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図6(h)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図7(a)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上下の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図7(b)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図7(c)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図7(d)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上下の方向転換板を段の左寄りに設置した例。

[図7(e)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上下の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図7(f)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の方向転換板を段の中央に下方の方向転換板を段の右寄りに設置した例。

[図7(g)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図7(h)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置した例。

[図8(a)]連結式両相連通対向接触内部多段で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例。

[図8(b)]気相連通路を設置した連結式両相連通対向接触内部多段で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例。

[図9(a)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その1。

[図9(b)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その1。

[図9(c)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その2。

[図9(d)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その2。

[図9(e)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その3。

[図9(f)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で上方の逆流防止板を段の左寄りに下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例：その3。

[図9(g)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（容器天井での連通）で下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例。

[図9(h)]仕切板式両相連通対向接触内部多段（段区切り板上方穴での連通）で下方の逆流防止板を段の右寄りに設置した例。

[図10(a)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その1。

[図10(b)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その2。

[図10(c)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その3。

[図10(d)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その4。

[図10(e)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その5。

[図10(f)]仕切板式両相連通対向接触内部多段で2種類の重液相を導入する例：その6。

[図11(a)]連結式両相連通並行接触内部多段で重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図11(b)]連結式両相連通並行接触内部多段で重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図11(c)]連結式両相連通並行接触内部多段で軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図11(d)]気相連通路を設置した連結式両相連通並行接触内部多段で重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図11(e)]気相連通路を設置した連結式両相連通並行接触内部多段で重液相の

導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図11(f)]気相連通路を設置した連結式両相連通並行接触内部多段で軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(a)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(b)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の中央に設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(c)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の中央に設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(d)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(e)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(f)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の右寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(g)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の左寄りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(h)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の左寄りに設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(i)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の右寄りに下方の方向転換板を段の左寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(j)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の左寄

りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(k)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の左寄りに設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(l)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の左寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(m)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(n)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(o)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上下の方向転換板を段の右寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(p)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の中央に下方の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(q)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の中央に下方の方向転換板を段の右寄りに設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(r)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の中央に下方の方向転換板を段の右寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図12(s)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図12(t)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図12(u)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方の方向転換板を段の左寄りに下方の方向転換板を段の中央に設置して軽液相の導入口が1箇所、重液

相の導入口が複数である例。

[図13(a)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(b)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の中央に設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図13(c)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(d)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の中央に設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図13(e)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の右寄り設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(f)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の右寄り設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図13(g)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の左寄り設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(h)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の左寄り設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図13(i)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の左寄り設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(j)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の左寄り設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図13(k)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の右寄り設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(l)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の右寄り設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図13(m)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の左寄り又は中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(n)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の

左寄り又は中央に設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図13(o)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の左寄り又は右寄りに設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(p)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の左寄り又は右寄りに設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図13(q)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の右寄り又は中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(r)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で下方のみに方向転換板を段の右寄り又は中央に設置して重液相の導入口が1箇所、軽液相の導入口が複数である例。

[図13(s)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の右寄り又は中央に設置して重液相、軽液相ともに導入口が1箇所である例。

[図13(t)]仕切板式両相連通並行接触内部多段で上方のみに方向転換板を段の右寄り又は中央に設置して軽液相の導入口が1箇所、重液相の導入口が複数である例。

[図14]送液配管で連結させたところの密閉型で液滴噴出式の従来の多段。

[図15]図11(b)に示す構造であるところの密閉型で液滴噴出式の本発明の多段。

[図16]図13(b)に示す構造であるところの密閉型で液滴噴出式の本発明の多段。

[図17]内部多段と同期的循環送液多段の組み合わせの効果の例。

[図18]正抽出塔が単段（内部1段）での同期的循環送液多段の仕組み。

[図19]正抽出塔が内部2段での同期的循環送液多段の仕組み。

[図20]正抽出塔が内部3段での同期的循環送液多段の仕組み。

発明を実施するための形態

[0020] 本発明は、容器の下部若しくは上部、又はその両方が連通していることで、界面位置の変動が抑制されることを特徴とする“内部多段”に関するもので、その実施形態には、大きく分けて2種類がある。1つは、隣接した複数の容器の連結体を利用する形態（連結式と称する）で、もう1つは、複数の仕切りを配した一体構造の容器を利用する形態（仕切板式と称する）である。

[0021] また、連結式と仕切板式のそれぞれに対して、重液相のみが容器下部において連通している方式（重液相連通と称する）、軽液相のみが容器上部において連通している方式（軽液相連通と称する）、及び重液相と軽液相の両方が容器下部と容器上部において連通している方式（両相連通と称する）がある。

[0022] さらに、重液相と軽液相が対向しながら各段を横断する接触方式（対向接触と称する）、重液相と軽液相が並行しながら各段を横断する接触方式（並行接触と称する）、及び重液相と軽液相のいずれか一方の液相のみが各段を横断する接触方式（片方横断接触と称する）がある。以下、上記の呼称を用いて具体的な実施形態の例を示すが、本発明の範囲はこの限りではない。また、図示する際の便宜上、4段の例を示すが、段数は任意に設置可能である。

[0023] 図1は、隣接した複数の容器において、各段の重液相が連通した連結式の例である。重液相は1段目から4段目に向かって、順次、各段を横断する。一方、軽液相は容器間で連通していないので、必然的に片方横断接触となる。この場合、各段に供給される軽液相の体積速度が厳密に同一であることが好ましく、その条件下において、液液界面の位置は変動しない。なお、連結体を成す容器は密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0024] 図2は、隣接した複数の容器において軽液相が連通した連結式の例である。軽液相は1段目から4段目に向かって、順次、各段を横断する。一方、重

液相は容器間で連通していないので、必然的に片方横断接触となる。この場合、各段に供給される重液相の体積速度が厳密に同一であることが好ましく、その条件下において、液液界面の位置は変動しない。なお、連結体を成す容器は密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0025] 図3(a)は、隣接した複数の容器において重液相と軽液相の両方が連通した連結式のバリエーションの1例である。重液相は1段目から4段目に向かって順番に各段を横断し、逆に、軽液相は4段目から1段目に向かって順番に各段を横断することで、両相を対向接触させる。また、図3(b)は、図3(a)の構造に対して、さらに気相連通路を加えたものである。気相も連通させることで、連結体を成す容器のいずれかに気体が混入した場合でも、液液界面の位置は変化しない。なお、図1及び図2の場合と同様に、図3(a)及び図3(b)に示す連結式の容器も、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0026] 図4(a)から図4(c)までは、複数の仕切りを配した一体構造の容器において、各段の重液相が連通した仕切板式のバリエーションの例である。各段は段区切り板によって区切られているが、容器下方において連通していて、重液相が通り抜けることができる。この仕組みは、重液相と軽液相が混じり合ったエマルション相が流れる方向を下から上に又は上から下に方向転換させるように配置した仕切板（方向転換仕切板と称する）を有する点に特徴がある。図4(a)では方向転換仕切板が段の中央に、図4(b)では段の右寄りに、図4(c)では段の左寄りに位置している。重液相は1段目から4段目に向かって順番に各段を横断する一方、軽液相の側（容器上部）は連通していないので、必然的に片方横断接触となる。この場合、各段に供給される軽液相の体積速度が厳密に同一であることが好ましく、その条件下に

において、液液界面の位置は変動しない。なお、上記の一体構造を成す容器は密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0027] 図5(a)から図5(c)までは、複数の仕切りを配した一体構造の容器において、各段の軽液相が連通した仕切板式のバリエーションの例である。各段は段区切り板によって区切られているが、容器上方において連通していて、軽液相が通り抜けることができる。図4(a)から図4(c)までと同様に、方向転換仕切板を有する点に特徴がある。図5(a)では方向転換仕切板が段の中央に、図5(b)では段の右寄りに、図5(c)では段の左寄りに位置している。軽液相は1段目から4段目に向かって順番に各段を横断する一方、重液相の側(容器下部)は連通していないので、必然的に片方横断接触となる。この場合、各段に供給される軽液相の体積速度が厳密に同一であることが好ましく、その条件下において、液液界面の位置は変動しない。なお、上記の軽液相が連通した一体構造を成す容器も、重液相が連通した図4(a)から図4(c)までに示す容器と同様に、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0028] 図6(a)から図6(h)までは、複数の仕切りを配した一体構造の容器において、各段の重液相及び軽液相の両方が連通した仕切板式で、両相を対向接触させるバリエーションの例である。重液相は1段目から4段目に向かって順番に各段を横断し、逆に、軽液相は4段目から1段目に向かって順番に各段を横断することで、両相を対向接触させる。各段は段区切り板によって区切られているが、容器下方及び上方において連通していて、それぞれ重液相及び軽液相が通り抜けることができる。容器の上方及び下方に設置された方向転換仕切板の位置が、段の中央、左寄り、右寄りのいずれかによって、組合せの例を示しているが、この限りではない。なお、これらの図は、軽

液相の連通が容器の天井と段区切り板との隙間によって成されていて、該隙間の形状・サイズは任意である。上記の両相が連通した仕切板式の容器も、図4（a）から図4（c）まで及び図5（a）から図5（c）までに示す容器と同様に、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0029] 図7（a）から図7（h）までは、図6（a）から図6（h）までに示すバリエーションと同様であるが、軽液相の連通が、段区切り板の上方に設けられた穴によって成されていて、該穴の形状・サイズは任意である。なお、上記の両相が連通した仕切板式の容器も、図4（a）から図4（c）まで、図5（a）から図5（c）まで、及び図6（a）から図6（h）に示す容器と同様に、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0030] 図8（a）及び図8（b）は、重液相と軽液相の両方が連通している連結式の容器において、逆流防止板の設置のバリエーションの例である。逆流防止板とは、重液相、軽液相、又はエマルション相が、該容器内に設置された段を順次移行する行程において、後の段から前の段への逆流を防止するように配置した仕切板である。逆流防止板を設置することで、逆流による混合が抑制されるため、より高精度な多段処理が可能になる。逆流防止板は、連通路の近辺において連通路での液相の流れの方向に対して後方に設置することで、より効果を発揮することができる。すなわち、液相の流れが連通路に至る前に狭い場所を通過させることで、加速された流れの範囲が拡大し、逆流が起こりにくくなる。

[0031] なお、逆流防止板は、上述した両相連通の方式に限らず、重液相連通の方式及び軽液相連通の方式においても有効である。また、図8（a）及び図8（b）は対向接触での例を示しているが、並行接触においても同様である。

[0032] 図9（a）から図9（h）までは、重液相と軽液相の両方が連通している

仕切板式の容器において、逆流防止板の設置のバリエーションの例である。連結式の容器の場合と同様に、逆流防止板を設置することで、逆流による混合が抑制されるため、より高精度な多段処理が可能になる。逆流防止板は、容器天井と段区切り板との隙間又は段区切り板上方穴の近辺において、液相の流れの方向に対して後方に設置することで、より効果を発揮することができる。すなわち、液相の流れが該隙間又は該穴に至る前に狭い場所を通過させることで、加速された流れの範囲が大幅に拡大し、逆流が起こりにくくなる。また、前記方向転換仕切板が、同時に逆流防止板の役目を果たす場合もある。なお、逆流防止板は、上述した両相連通の方式に限らず、重液相連通の方式及び軽液相連通の方式においても有効である。また、図9（a）から図9（h）までは対向接触での例を示しているが、並行接触においても同様である。

[0033] 図10（a）から図10（f）までは、複数の仕切りを配した一体構造の容器において、2種類の重液相を導入する構造のバリエーションの例である。たとえば、これらの図に記載の重液相1として処理対象の水溶液、重液相2として軽液相洗浄のための水溶液を用いることで、より高度な分離精製を実現できる。

[0034] 図11（a）から図11（f）までは、隣接した複数の容器において重液相と軽液相の両方が連通した連結式で、両相を並行接触させるバリエーションの例である。重液相、軽液相ともに、1段目から4段目に向かって順番に各段を横断させることで、両相を並行接触させる。並行接触の場合、複数の導入口から重液相又は軽液相を導入する方式が有効になる場合がある。すなわち、図11（b）、図11（c）、図11（e）、及び図11（f）に示すように、重液相又は軽液相のいずれか一方を複数の導入口から導入する。たとえば、分岐管、液だめなどを介して、同じ重液相又は同じ軽液相を同時に導入することができる。

[0035] また、対向接触の場合も、図11（b）、図11（c）、図11（e）、及び図11（f）に示す構造の例にならって、複数の導入口から重液相又は

軽液相を導入することが形式上は可能である。

[0036] なお、図3(a)及び図3(b)に示す構造と同様に、図11(a)から図11(c)までの構造は、容器上方に軽液相連通路のみが設置されている場合、図11(d)から図11(f)までの構造は、容器上方に軽液相連通路及び気相連通路の両方が設置されている場合である。

[0037] また、対向接触の場合と同様に、図11(a)から図11(f)までに示す並行接触で用いる容器についても、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

[0038] 図12(a)から図12(u)までは、各段の重液相及び軽液相の両方が連通した仕切板式において、両相を並行接触させるバリエーションのうち、方向転換仕切板を容器の上方及び下方に設置した例である。重液相、軽液相ともに、1段目から4段目に向かって順番に各段を横断させることで、両相を並行接触させる。

[0039] 連結式と同様に、仕切板式の並行接触の場合も、複数の導入口から重液相又は軽液相を導入する方式が有効になる場合がある。すなわち、図12(b)、図12(c)、図12(e)、図12(f)、図12(h)、図12(i)、図12(k)、図12(l)、図12(n)、図12(o)、図12(q)、図12(r)、図12(t)、及び図12(u)に示すように、重液相又は軽液相のいずれか一方を複数の導入口から導入する。たとえば、分岐管、液だめなどを介して、同じ重液相又は同じ軽液相を同時に導入することができる。

[0040] また、対向接触の場合も、図12(b)、図12(c)、図12(e)、図12(f)、図12(h)、図12(i)、図12(k)、図12(l)、図12(n)、図12(o)、図12(q)、図12(r)、図12(t)、及び図12(u)に示す構造の例にならって、複数の導入口から重液相又は軽液相を導入することが形式上は可能である。

- [0041] また、対向接触の場合と同様に、図12(a)から図12(u)までに示す並行接触で用いる容器についても、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。
- [0042] 図13(a)から図13(t)までは、各段の重液相及び軽液相の両方が連通した仕切板式において、両相を並行接触させるバリエーションのうち、方向転換仕切板を容器の上方又は下方のいずれかに設置した例である。重液相、軽液相ともに、1段目から4段目に向かって順番に各段を横断させることで、両相を並行接触させる。
- [0043] 上方又は下方のいずれかに方向転換板を設置した並行接触の場合も、複数の導入口から重液相又は軽液相を導入する方式が有効になる場合がある。すなわち、図13(b)、図13(d)、図13(f)、図13(h)、図13(j)、図13(l)、図13(n)、図13(p)、図13(r)、及び図13(t)に示すように、重液相又は軽液相のいずれか一方を複数の導入口から導入する。たとえば、分岐管、液だめなどを介して、同じ重液相又は同じ軽液相を同時に導入することができる。
- [0044] また、対向接触の場合も、図13(b)、図13(d)、図13(f)、図13(h)、図13(j)、図13(l)、図13(n)、図13(p)、図13(r)、及び図13(t)に示す構造の例にならって、複数の導入口から重液相又は軽液相を導入することが形式上は可能である。
- [0045] また、対向接触の場合と同様に、図13(a)から図13(t)までに示す並行接触で用いる容器についても、密閉型でも非密閉型でもよく、2液相の相混合には液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を用いることができ、液滴噴出ノズル、機械攪拌翼のいずれも、適宜、任意の数を設置できる。

実施例 1

- [0046] 各容器構造での界面位置の変化

[0047] 図1及び図4(a)乃至図4(c)に示すところの、重液相のみが容器下方にて連通している構造では、各段における軽液相の導入流速(体積速度)を同一に設定することで、重液相と軽液相の体積比(いわゆる、O/A比)は変化せず、液液界面、軽液相液面(軽液相と気相との気液界面)ともに変動しなかった。また、上記は、容器の密閉と非密閉の違い、ノズルからの液滴噴出と攪拌翼での機械攪拌の違い、重液相及び軽液相の溶媒の種類の違いにかかわらず、同じ結果であった。

[0048] また、図2及び図5(a)乃至図5(c)に示すところの、軽液相のみが容器上方にて連通している構造では、各段における重液相の導入流速(体積速度)を同一に設定することで、重液相と軽液相の体積比(いわゆる、O/A比)は変化せず、液液界面、軽液相液面(軽液相と気相との気液界面)ともに変動しなかった。また、上記は、容器の密閉と非密閉の違い、ノズルからの液滴噴出と攪拌翼での機械攪拌の違い、重液相及び軽液相の溶媒の種類の違いにかかわらず、同じ結果であった。

[0049] 図3(a)及び図3(b)、図6(a)乃至図6(h)、図7(a)乃至図7(h)、図8(a)及び図8(b)、図9(a)乃至図9(h)、図10(a)乃至図10(f)、図11(a)乃至図11(f)、図12(a)乃至図12(u)、並びに図13(a)乃至図13(t)に示すところの、重液相が容器下方にて連通し、かつ軽液相が容器上方にて連通している構造では、重液相及び軽液相の導入流速(体積速度)、導入口の数、分岐管又は液だめの有無、容器の密閉と非密閉の違い、ノズルからの液滴噴出と攪拌翼での機械攪拌の違い、重液相及び軽液相の溶媒の種類の違いにかかわらず、重液相と軽液相の体積比(いわゆる、O/A比)は変化せず、液液界面及び軽液相液面の位置は不変であった。

実施例 2

[0050] 導入流速(体積速度)限界の比較

[0051] 1例として、密閉型で液滴噴出式の多段装置について、本発明の多段と従来の多段(送液配管によって各段を連結した多段)とで、処理対象水溶液の

導入流速（体積速度）の限界を比較した。各段に対して同じ軽液相を送液する場合（たとえば、後述の〔実施例4〕に示す同期的循環送液多段を想定して）において、従来の多段としては、独立した4塔のエマルションフロー装置を送液配管によって接続させた多段（図14）、本発明の多段としては、図11（b）及び図13（b）に示すところの4段（図15及び図16）を選択した。

[0052] まず、図14は、4つの独立した段（塔）が重液相の送液配管によって接続された構造であって、図示していないが、各段には重液相用のノズルと軽液相用のノズルが上下に1対で設置されている。重液相は各段に設置されたノズル（4個のノズル）を介して1段目から4段目まで順番に横断しながら4段目で排出され、軽液相は各段で循環している仕組みである。なお、軽液相の入口側に分岐管を配置して各段に均等に該軽液相を送液し、出口側に配置した分岐管によって該軽液相を集中して回収しながら、再度、入口側の分岐管から導入して該軽液相を循環させる方法もあるが、この方法では各段での界面位置が変動しやすい。そこで、図14に示すような、同じ軽液相を各段で循環させる仕組みであって、軽液相の送液に起因する界面位置の変動が起らない構造を選択した。

[0053] 図14の仕組みを動作させる方法は、以下である。まず、各段での軽液相の循環送液を開始すると、各段において液液界面から生じたエマルション相が徐々に上下に拡大していく。エマルション相が重液相用のノズルに達した段階で、重液相の送液を開始すると、その後、数分で定常状態に達する。

[0054] 図15は、隣接する4つの段（塔）が重液相及び軽液相の両方が連通路によって連通した容器構造であって、図示していないが、1段目には重液相用のノズルと軽液相用のノズルが上下に1対で設置され、2段目、3段目、及び4段目には、それぞれ下部に軽液相用のノズルが1個だけ設置されている。重液相が1段目から4段目まで順番に横断しながら4段目で排出される点は、図14と同様であるが、軽液相は、分岐管から各段に送液され、4段目に設置された出口から、再度、分岐管に至る。すなわち、軽液相は4つの段

全体で循環している仕組みである。図 1 5 では、重液相が通過するノズルは 1 個のみであって、かつ該重液相が送液配管を通じて次の段に送液されない点において、図 1 4 とは異なる。

[0055] 図 1 6 は、仕切りを配した一体構造の容器に配置した 4 つの段が重液相及び軽液相の両方で連通した仕組みであって、図示していないが、1 段目には重液相用のノズルと軽液相用のノズルが上下に 1 対で設置され、2 段目及び 3 段目には軽液相用のノズルが下部に 2 個ずつ、4 段目には軽液相用のノズルが下部に 1 個のみ設置されている。重液相が 1 段目から 4 段目まで順番に横断しながら 4 段目で排出される点は、図 1 4 と同様であるが、軽液相は、分岐管から各段に送液され、4 段目に設置された出口から、再度、分岐管に至る。図 1 6 でも、図 1 5 と同様に、重液相が通過するノズルは 1 個のみであって、かつ該重液相が送液配管を通じて次の段に送液されない点において、図 1 4 とは異なる。

[0056] なお、図 1 5 及び図 1 6 の動作方法は、図 1 4 の動作方法と同様であり、まず、軽液相の循環送液を開始すると、各段において液液界面から生じたエマルション相が徐々に上下に拡大していく。エマルション相が 1 段目に設置された重液相用のノズルに達した段階で重液相の送液を開始すると、その後、数分で定常状態に達する。

[0057] 導入流速（体積速度）の限界は、排水の明らかな濁り又は液液界面位置の明らかな変動のいずれかが生じた時点とした。その結果、本発明の多段（図 1 5 及び図 1 6 に示す多段）では、導入流速（体積速度）の限界が、従来の多段（図 1 4 に示す多段）の少なくとも 5 倍の速度であることがわかった。

実施例 3

[0058] 対向接触多段によるレアアースの抽出分離

[0059] リン酸系抽出剤の 1 つである 2-エチルヘキシル（2-エチルヘキシル）ホスホネート（商品名 PC-88A）が溶解したアルカンを主成分とする希釈用溶媒（商品名 Shell Sol D70）を有機相として、硝酸水溶液（水相）からエルビウム（Er）とジスプロシウム（Dy）を分離する実験

を行なった。その結果、対向接触による多段が理想的に行われた場合のシミュレーションの値（理論値）と実際の測定値は近い値であり、理想に近い対向接触多段が実現できていることがわかった。

[0060] 具体的には、図6（h）に示す容器構造で機械攪拌翼を設置した非密閉型の装置を用いて、重液相を処理対象のE_r、D_y含有硝酸水溶液、軽液相をPC-88A含有Shell Sol D70として実験を行なった。その結果、たとえば、E_rとD_yの分配が定常状態に至った際のE_rの抽出率の理論値が98%であった時に実際の測定値は97%であり、D_yの抽出率の理論値が53%であった時に実際の測定値は52%であった。

[0061] さらに、図10（f）に示す容器構造で機械攪拌翼を設置した非密閉型の装置を用いて、図10（f）に記載の重液相1を処理対象の硝酸水溶液、重液相2を軽液相洗浄のための硝酸水溶液として実験を行なった。その結果、たとえば、E_rとD_yの分配が定常状態に至った際のE_rの抽出率の理論値が92%であった時に実際の測定値は90%であり、D_yの抽出率の理論値が25%であった時に実際の測定値は27%であった。

実施例 4

[0062] 同期的循環送液多段との組み合わせによるレアアースの抽出分離

[0063] 正抽出、洗浄、及び逆抽出を一体化して同期的に循環送液することで生じる多段効果、“同期的循環送液多段”を利用するレアアースの抽出分離において、正抽出塔として、本発明の“内部多段”を利用した実験を行なった。

“同期的循環送液多段”では、正抽出塔内の水相の同塔内での循環回数が段数に対応するが、“内部多段”の利用によって、その循環回数を大幅に減らせることがわかった。具体的には、“内部多段”で設置された段数nに対して、理想的には、循環回数が単段の時の $1/n$ になることがわかった。

[0064] [実施例3]と同じ抽出剤と希釈用溶媒を用い、硝酸水溶液から下記の4つのレアアース元素を抽出分離する実験を行った。図17に、ホルミウム（Ho）とルテチウム（Lu）の分離におけるHoの純度、及びエルビウム（Er）とイッテルビウム（Yb）の分離におけるErの純度を示す。従来の

エマルションフロー装置（内部１段）を正抽出塔として用いた場合と比較すると、理想的には、内部２段の正抽出塔では循環回数は $1/2$ に、内部３段の正抽出塔では循環回数が $1/3$ にできることがわかった。実際に用いた仕組みについて、“同期的循環送液多段”における正抽出塔が内部１段である場合、内部２段である場合、及び内部３段である場合を、それぞれ図１８、図１９、及び図２０に示す。図１９及び図２０に示す内部多段（内部２段及び内部３段）では、正抽出塔への軽液相の導入に分岐管を用い、同じ軽液相を均等に送液した。

実施例 5

- [0065] 強い界面活性を持つ成分が含まれる系での安定した液液抽出
- [0066] 強い界面活性を持ち、激しい濁りが生じゲル化しやすい物質を液液系で用いることは、基本的には避けたいが、実際には、このような物質が、金属イオンの抽出分離に際して、非常に高い抽出能や選択的分離能を発現させる場合がある。たとえば、不活性な媒体の中で逆ミセルと呼ばれるナノサイズの分子集合体を形成するビス（エチルヘキシル）スルホコハク酸ナトリウム（商品名 *A e r o s o l O T*）は、液液抽出において有用な物質であるが、界面活性剤であるがゆえに、激しい濁りやゲルを生じさせやすい。
- [0067] ところが、液滴を穏やかに積層することで２液相を相混合する液滴噴出では、剪断力が強く働く攪拌翼回転による機械攪拌や激しい攪乱を伴う振とうとは異なり、強い界面活性を持つ物質であっても濁りやゲルを生じさせることなく、液液抽出に利用できることがある。
- [0068] 本発明が提供する容器構造は、液滴噴出に基づく液液抽出を多段で高効率に行うことができる点で、たとえば、*A e r o s o l O T*のような強い界面活性を持つ物質を多段で扱う仕組みとして有用である。実際に、機械攪拌では激しい濁りが生じてしまう *A e r o s o l O T* 含有系に対して、図１３（b）に示す内部多段の液滴噴出式装置を用いたところ、濁りを生じさせることなく、多段での液液抽出を行うことができた。

実施例 6

[0069] 固形成分の精製

[0070] シリコン粉（固形成分）から、鉄などの金属、炭素、リン、ホウ素から成る微細な不純物（固形成分）を除去することを目的として、液液抽出を利用することができる。本発明が提供する内部多段は、このような目的にも適した仕組みであり、シリコン粉から高効率で不純物を除去することができた。

[0071] 具体的には、図 13（b）に示す内部多段の液滴噴出式装置を用いて、シリコン粉からの不純物除去を行なった。水とヘキサンとが成す液液系において、シリコン粉はヘキサン相に分配しやすく、不純物は水相に分配されやすかったことから、両者を分離することができた。また、内部多段の段数を多くすることで、シリコン粉からの不純物の回収率が上がった。

実施例 7

[0072] 藻類からの有価成分のミルキング

[0073] 本発明が提供する液滴噴出式の内部多段の仕組みは、牛を搾乳するように、藻類を殺すことなく有価成分を回収する“ミルキング”に利用することができる。

[0074] 藻類は、トリグリセリド、クロロフィル、 β カロテノイドなどの有価成分を生成・貯蔵することができるが、これらの有価成分を液液抽出で溶媒に回収しようとする、藻類は死滅してしまう。唯一、細胞間マトリックスに有価成分を溜め込むことができるボトリオコッカスのみが、外に浸み出してくる有価成分をミルキングによって回収できる藻類と言われている。

[0075] ところが、穏やかに液滴を積層させることで 2 液相を相混合する液滴噴出方式の液液抽出では、ボトリオコッカスのような特殊な藻類に限らず、ミルキングが可能であることがわかった。本発明が提供する容器構造は、液滴噴出に基づく液液抽出を多段で高効率に行うことができる点で、藻類のミルキングに適している。

[0076] 具体的には、図 13（b）に示す内部多段の液滴噴出式装置を用いて、ドナリエラ・サリナから、 β カロテノイド、クロロフィル、トリグリセリドをミルキングできることがわかった。また、内部多段の段数を多くすることで

、これらの有価成分の回収率を上げることができた。なお、ドナリエラ・サリナが生きていることは、細胞の形状が保持されていること、細胞液の漏出がないこと、培養によって数が増加したことから確認した。

実施例 8

[0077] 油水分離

[0078] 本発明が提供する内部多段は、油水分離の方法として利用することもできる。とくに、相分離の能力が高い液滴噴出式は、高度な油水分離を実現できる。

[0079] 油分として、模擬的に、アルカンを主成分とする溶媒であるShellSol D70を選択し、以下に示す方法によって、水に乳濁させた。空円錐ノズルを設置した開放系の容器をイオン交換蒸留水で満たし、配管でつないだ空円錐ノズルから水中に向けてShellSol D70を噴出させたところ、乳濁状態へと至り、その状態が長く維持された。そこで、乳濁液を採取して光学顕微鏡で観測したところ、直径が数 μm から最大100 μm 程度までのShellSol D70の油滴が分散していることがわかった。また、該乳濁液の全有機炭素（TOC）を測定したところ、239 mg/L であった。

[0080] 上記のShellSol D70の油滴で乳濁した水を内部多段の液滴噴出式装置を用いて処理した結果、TOCは大幅に減少した。また、内部多段の段数を多くすることで、TOCの値をより大きく減少させることができた。たとえば、図13（b）に示す仕組みで内部4段の液滴噴出式装置を用いることで、TOCは239 mg/L から23 mg/L （約1/10）にまで減少した。

産業上の利用可能性

[0081] 本発明は、2液相から成る液液系を利用した液液抽出（溶媒抽出）などの単位操作を繰り返し行う多段の仕組みに関するもので、界面位置の調整を不要するなど、従来の多段装置の扱いづらさを解消するとともに、大容量での送液を可能にする。操作性（扱いやすさ）が向上することで、装置の制御・

自動化が容易になり、送液量を増やせることで処理速度が上がり、それに応じて装置をダウンサイズできる。

[0082] たとえば、液液抽出（溶媒抽出）を多段で行うことで、金属素材、化学品、バイオ品などの製品の純度を上げたり、化学的性質が類似した元素間の分離などの困難な元素分離を可能にしたりできるが、扱いづらい多段装置を稼働させるための労力と時間、必要な段数を用意するためのコストと床面積の不足から、採算が合わず、事業として成立しないことが多い。

[0083] 本発明によって、従来の多段装置が持つ低い操作性、高コスト、非コンパクトのすべてが解消されれば、液液抽出（溶媒抽出）などの2液相系を利用した技術は、もっと身近なものになり、実施例に示すように、金属、化学、半導体、バイオなど、多種多様な産業分野において革新がもたらされると期待できる。

符号の説明

- [0084] 1：重液相連通路
2：軽液相連通路
3：気相連通路
4：段区切り板
5：方向転換板
6：逆流防止板

請求の範囲

- [請求項1] 互いに混じり合わない2つの液相を相混合するための液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を有する多段の仕組みであって、隣接した複数の容器の連結体又は複数の仕切りを配した一体構造の容器に設置された2つ以上の段において、重液相が容器下部において連通しているか、若しくは軽液相が容器上部において連通しているか、又はその両方であるところの、液液系多段装置。
- [請求項2] 隣接した複数の容器の連結体が、該容器の上部若しくは下部又はその両方において、連通路により連結されているところの、請求項1に示す液液系多段装置。
- [請求項3] 複数の仕切りを配した一体構造の容器の中で、重液相と軽液相が混じり合ったエマルション相が流れる方向を下から上に又は上から下に方向転換させるように配置した仕切板を有するところの、請求項1に示す液液系多段装置。
- [請求項4] 隣接した複数の容器の連結体又は複数の仕切りを配した一体構造の容器の中で、重液相、軽液相、又はエマルション相が、該容器内に設置された段を順次移行する行程において、後の段から前の段への逆流を防止するように配置した仕切板を有するところの、請求項1、請求項2又は請求項3のいずれか1項に示す液液系多段装置。
- [請求項5] 互いに混じり合わない2つの液相を相混合するための液滴噴出ノズル若しくは機械攪拌翼又はその両方を有する多段の仕組みであって、隣接した複数の容器の連結体又は複数の仕切りを配した一体構造の容器に設置された2つ以上の段において、重液相が容器下部において連通しているか、若しくは軽液相が容器上部において連通しているか、又はその両方であるところの、液液系多段装置を用いた特定物質の製造方法。
- [請求項6] 隣接した複数の容器の連結体が、該容器の上部若しくは下部又はその両方において、連通路により連結されているところの、請求項5に

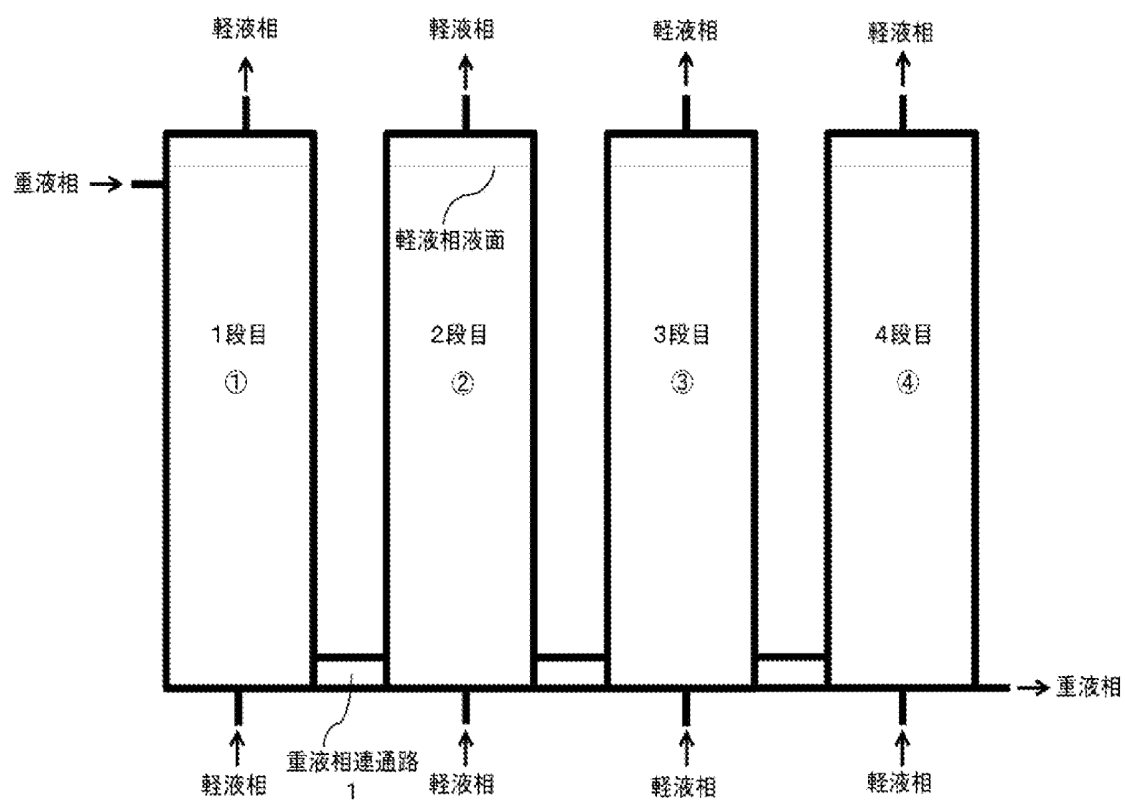
示す液液系多段装置を用いた特定物質の製造方法。

[請求項7] 複数の仕切りを配した一体構造の容器の中で、重液相と軽液相が混じり合ったエマルション相が流れる方向を下から上に又は上から下に方向転換させるように配置した仕切板を有するところの、請求項5に示す液液系多段装置を用いた特定物質の製造方法。

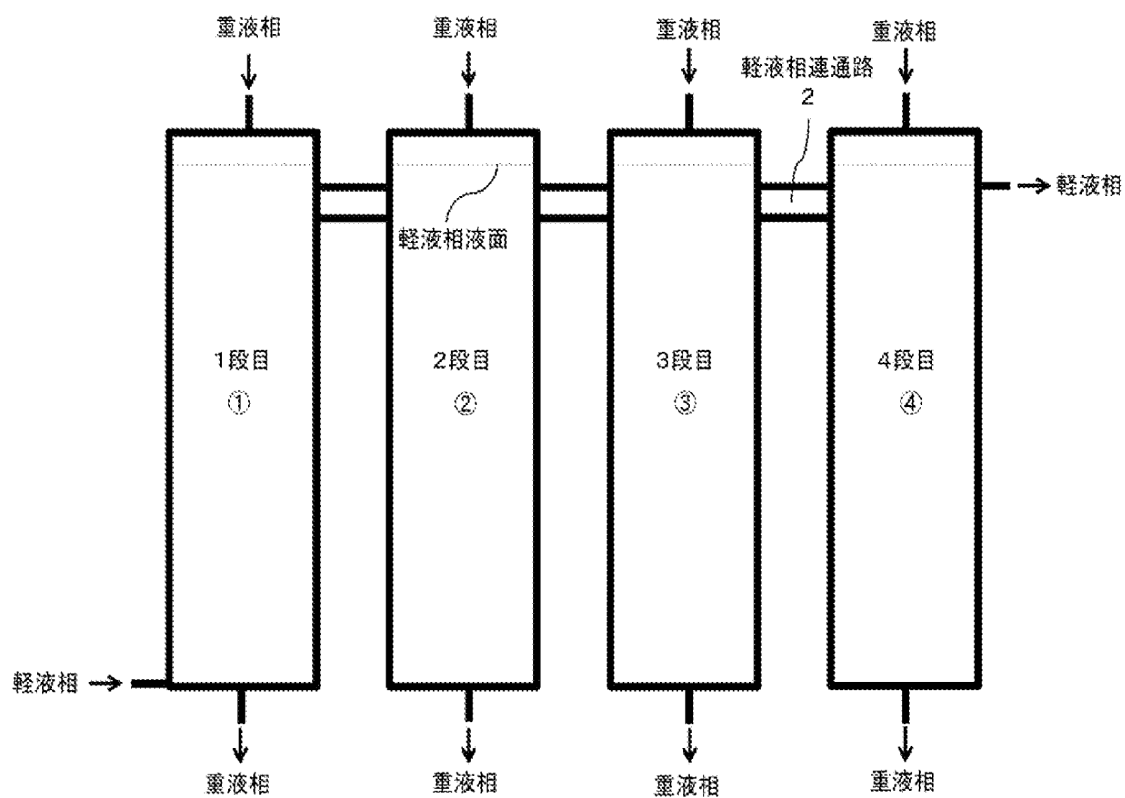
法」。

[請求項8] 隣接した複数の容器の連結体又は複数の仕切りを配した一体構造の容器の中で、重液相、軽液相、又はエマルション相が、該容器内に設置された段を順次移行する行程において、後の段から前の段への逆流を防止するように配置した仕切板を有するところの、請求項5、請求項6又は請求項7のいずれか1項に示す液液系多段装置を用いた特定物質の製造方法。

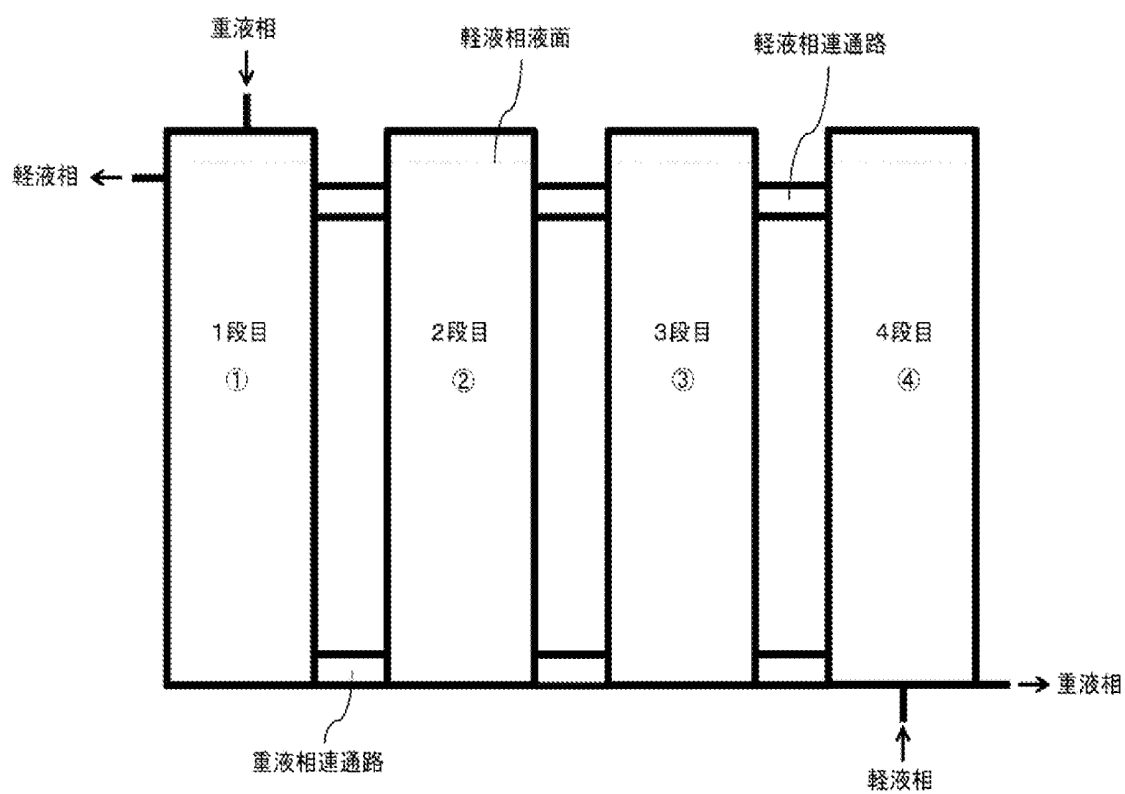
[図1]



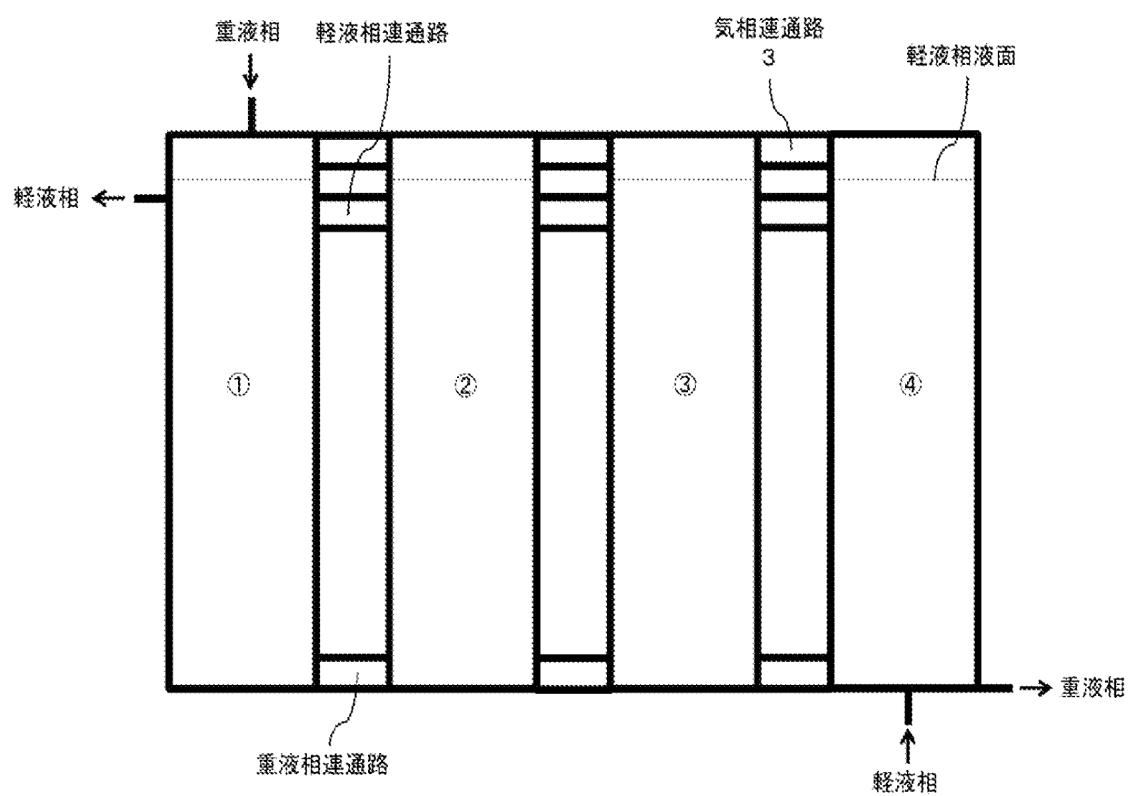
[図2]



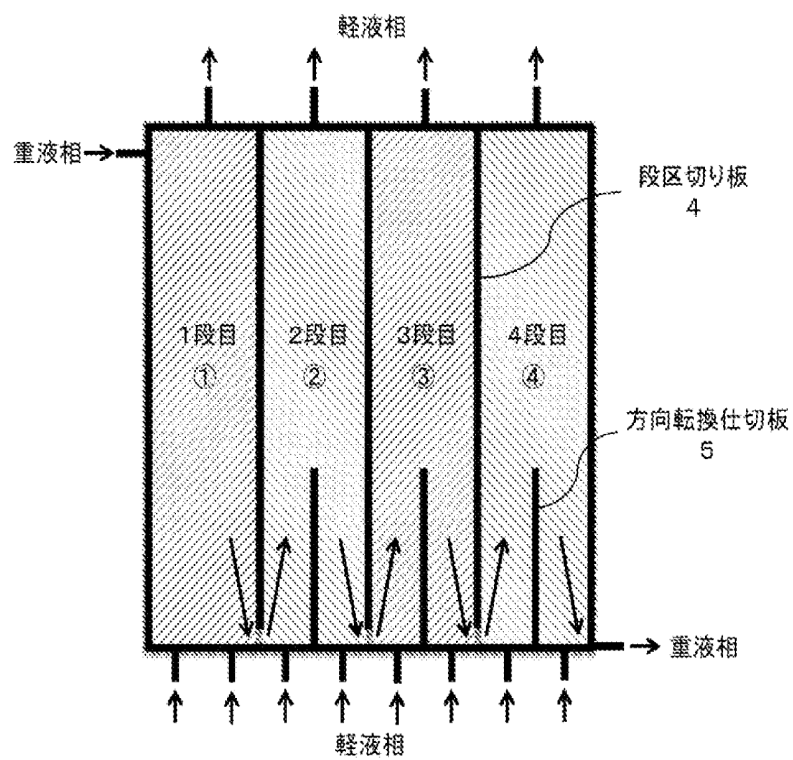
[図3(a)]



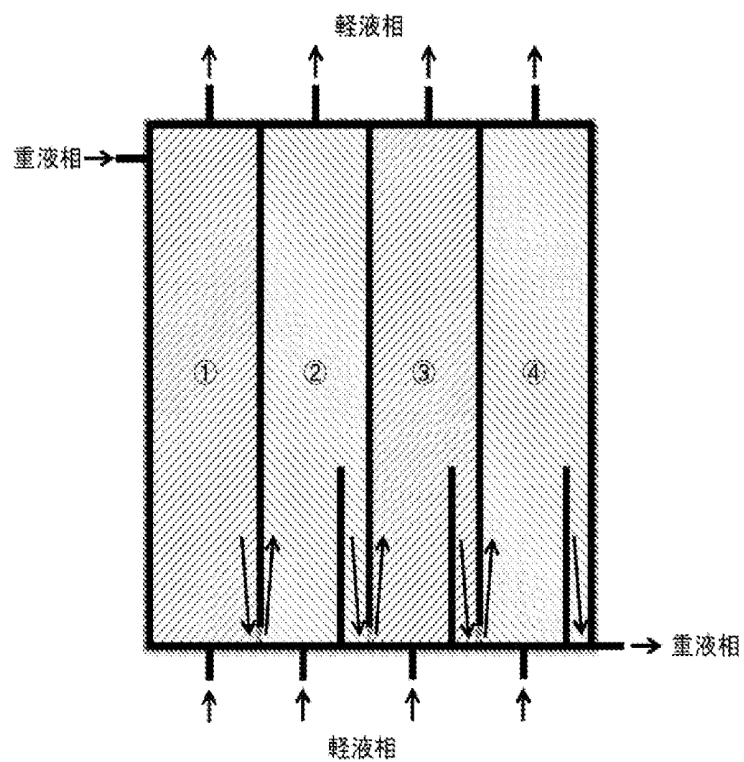
[図3(b)]



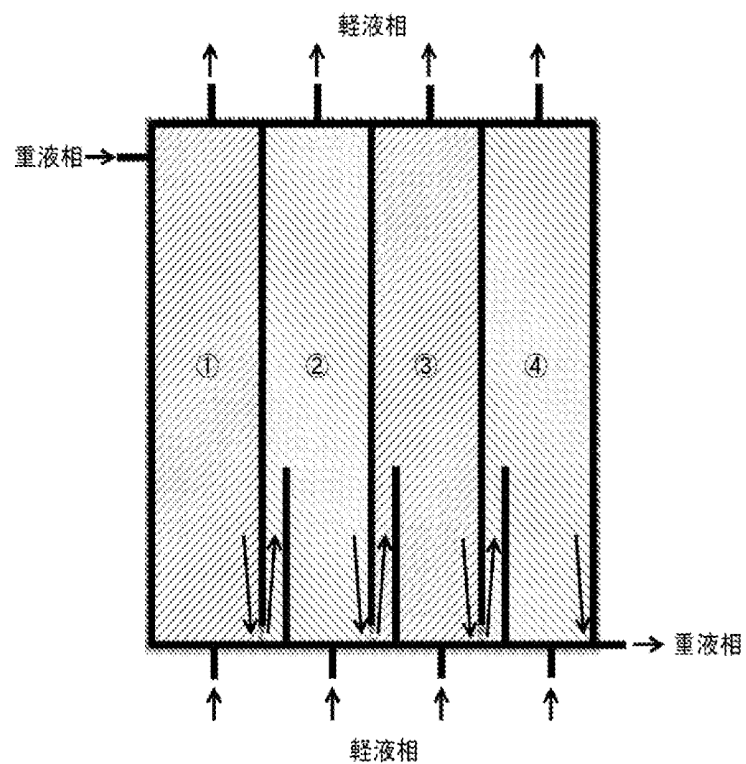
[図4(a)]



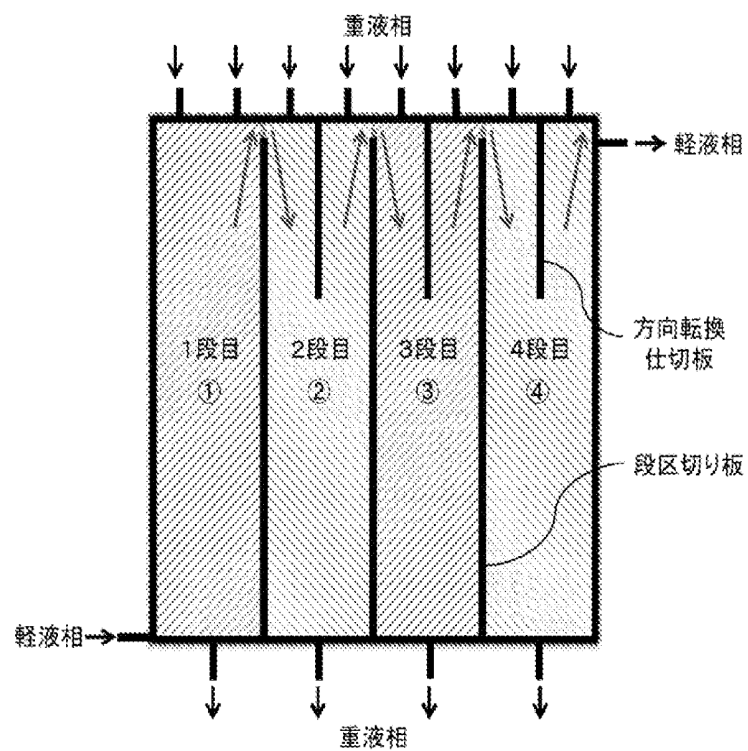
[図4(b)]



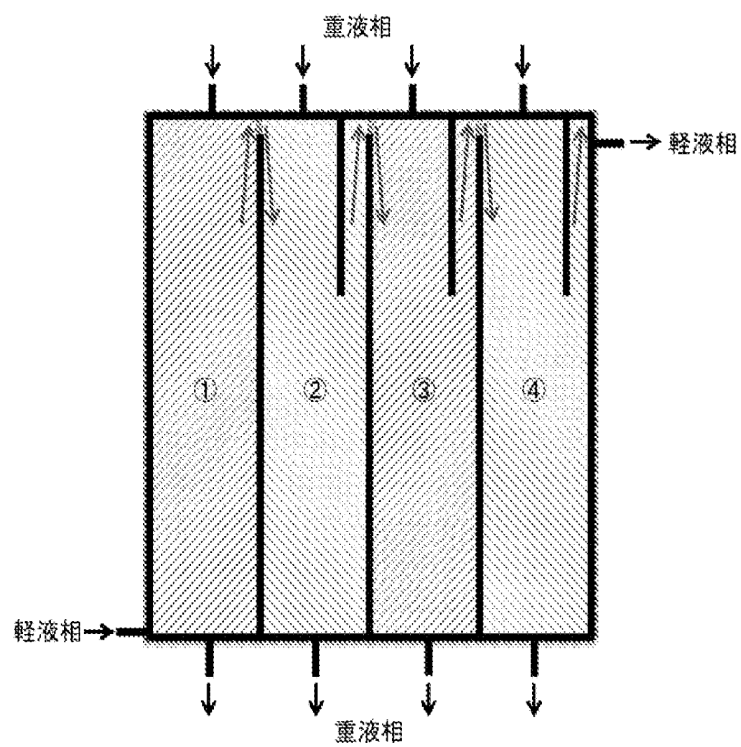
[図4(c)]



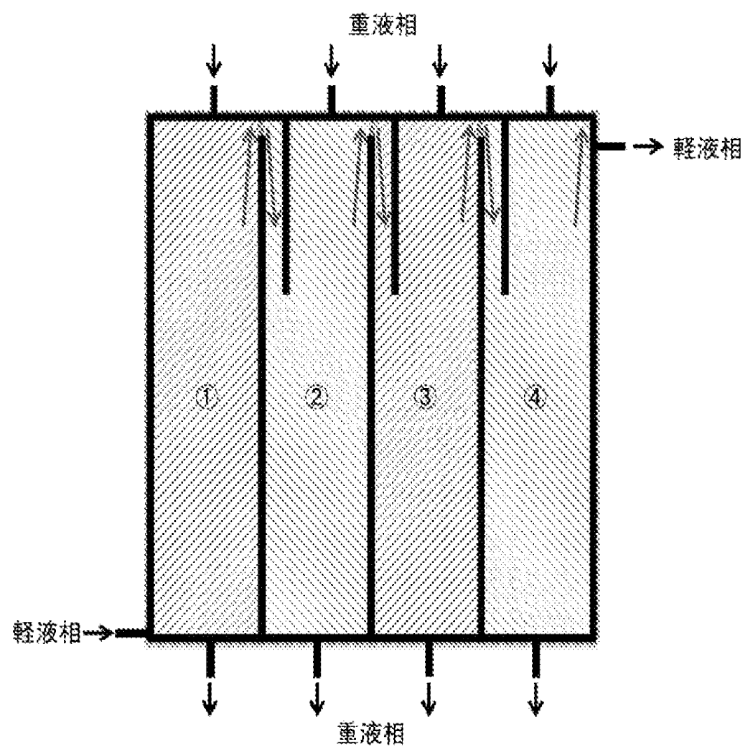
【図5(a)】



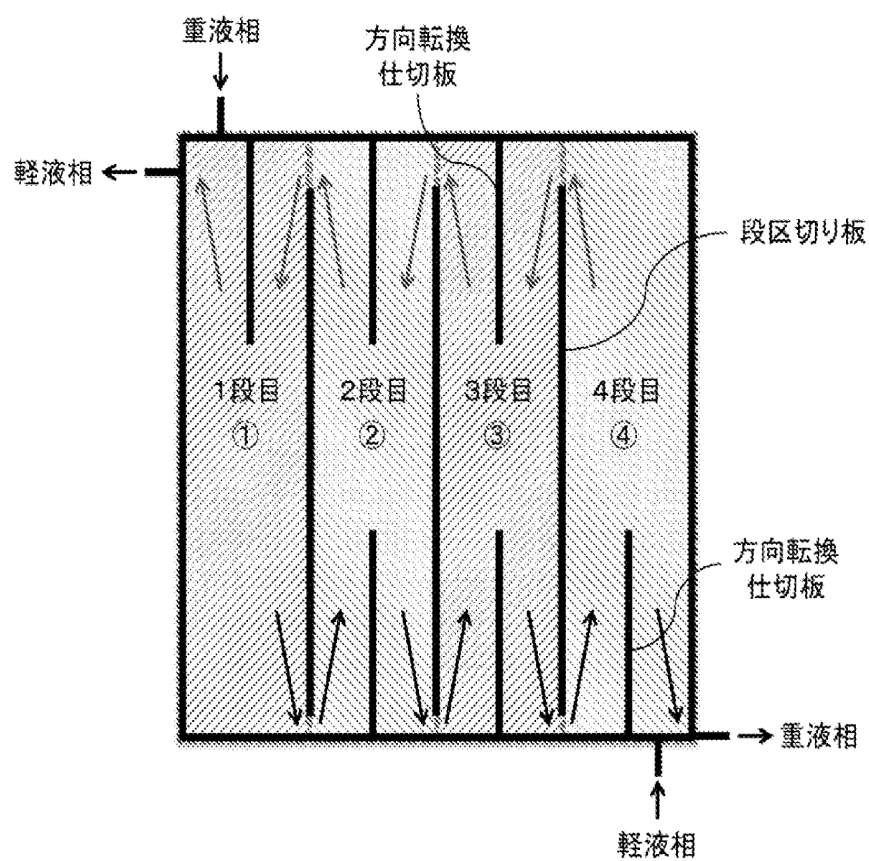
[図5(b)]



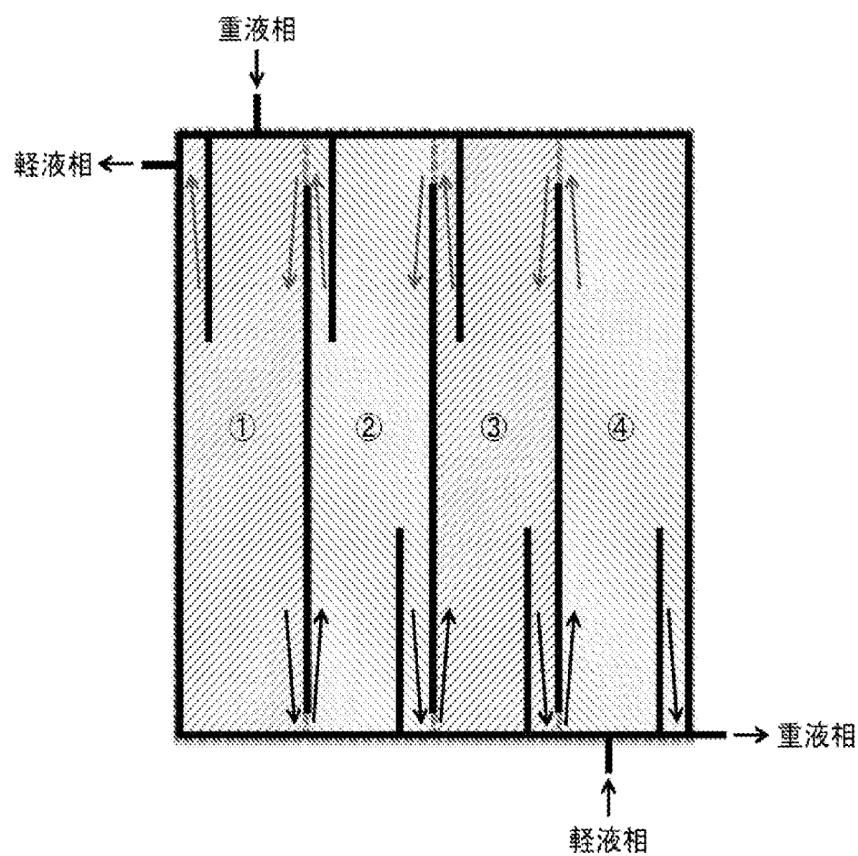
[図5(c)]



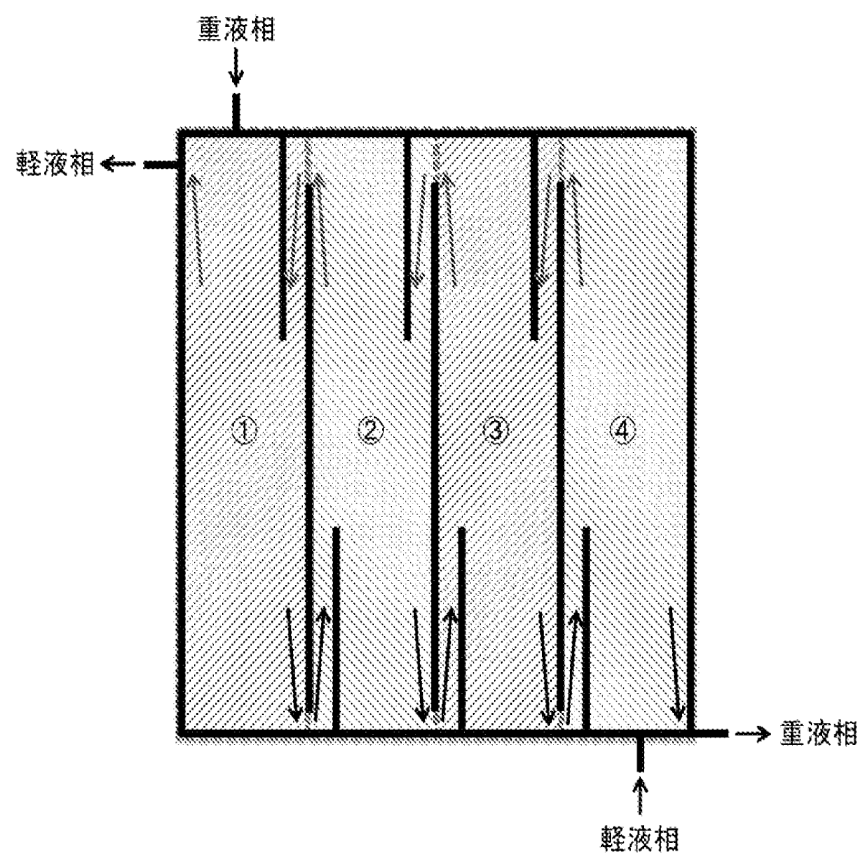
[図6(a)]



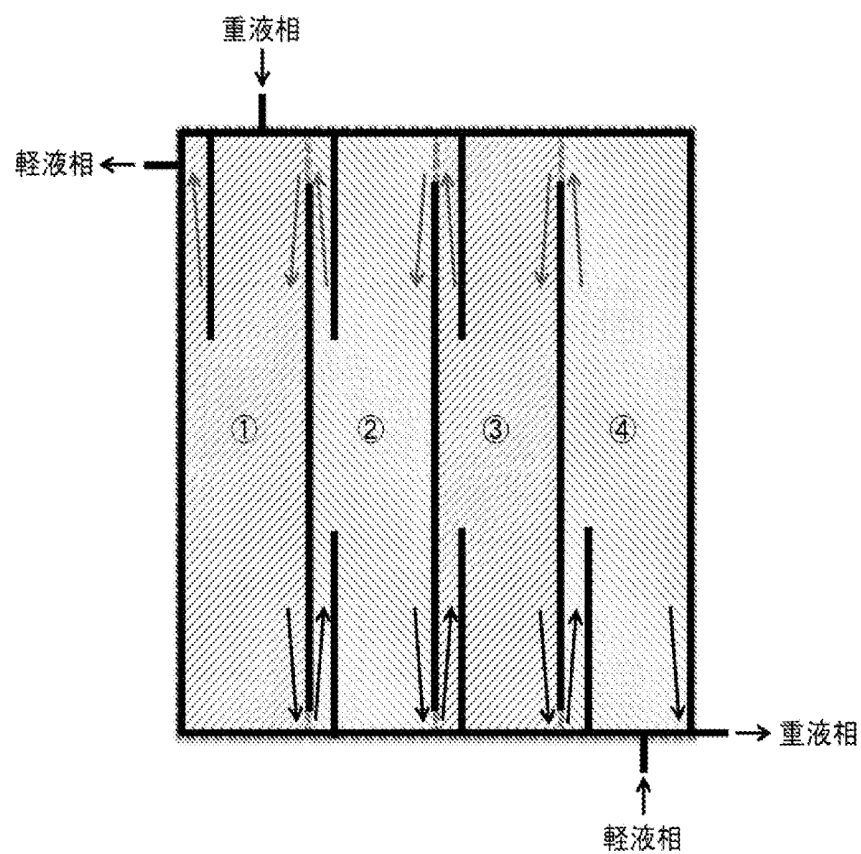
[図6(b)]



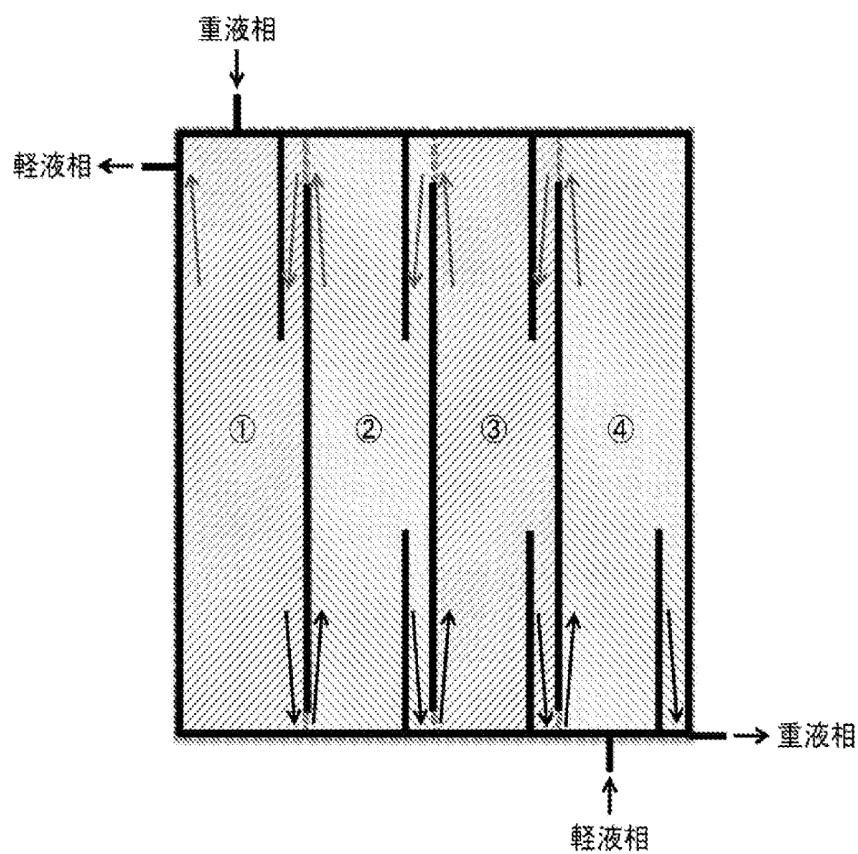
[図6(c)]



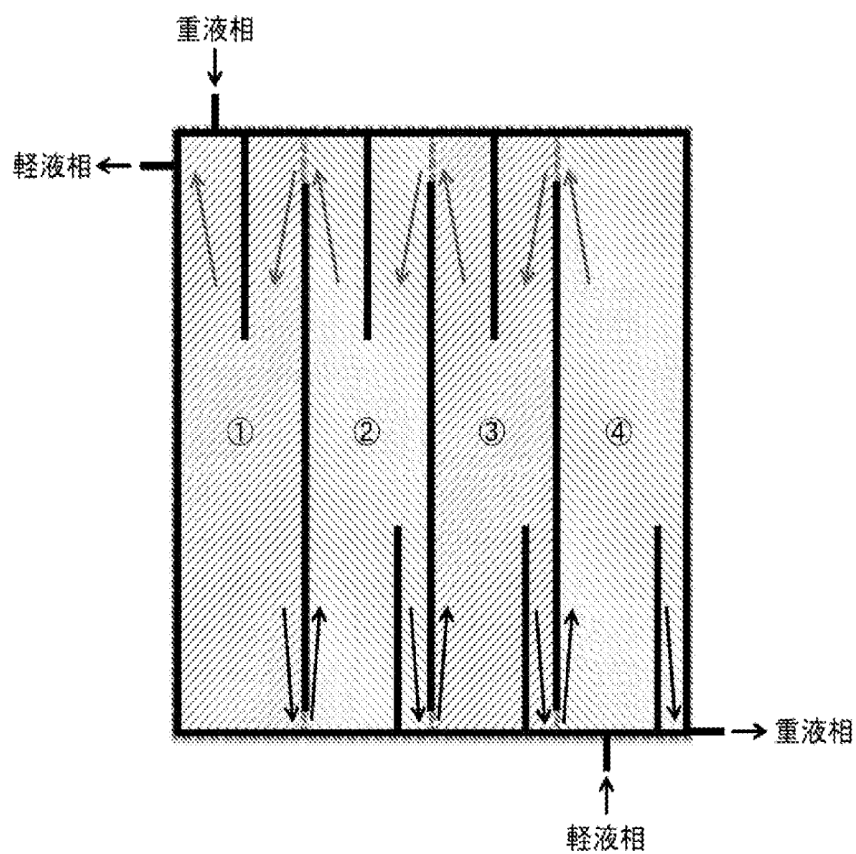
[図6(d)]



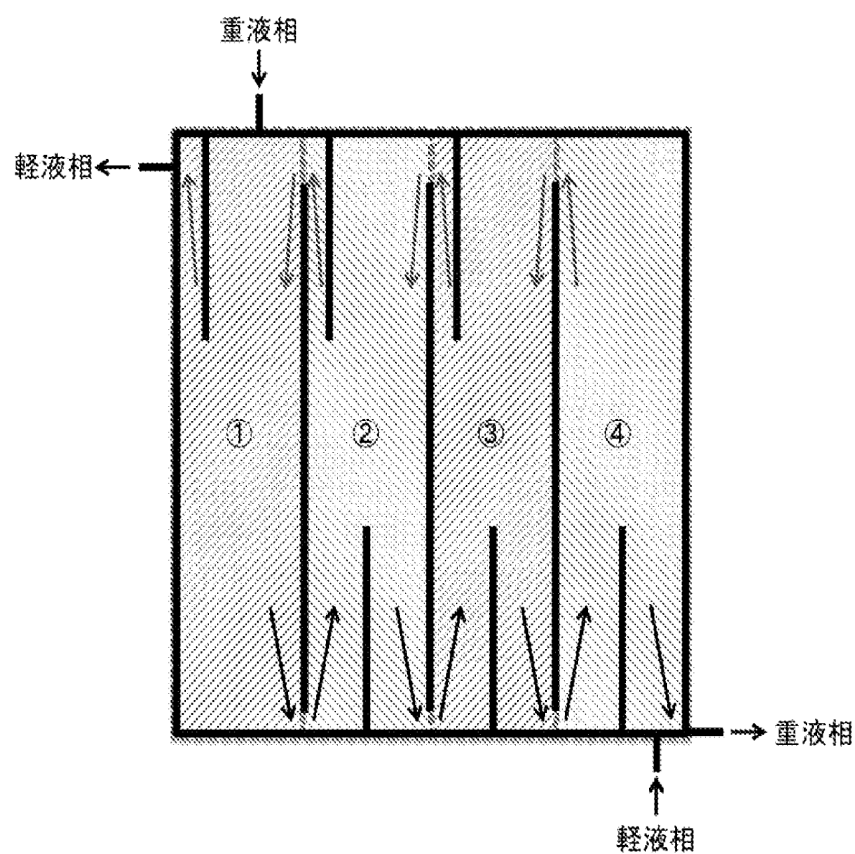
[図6(e)]



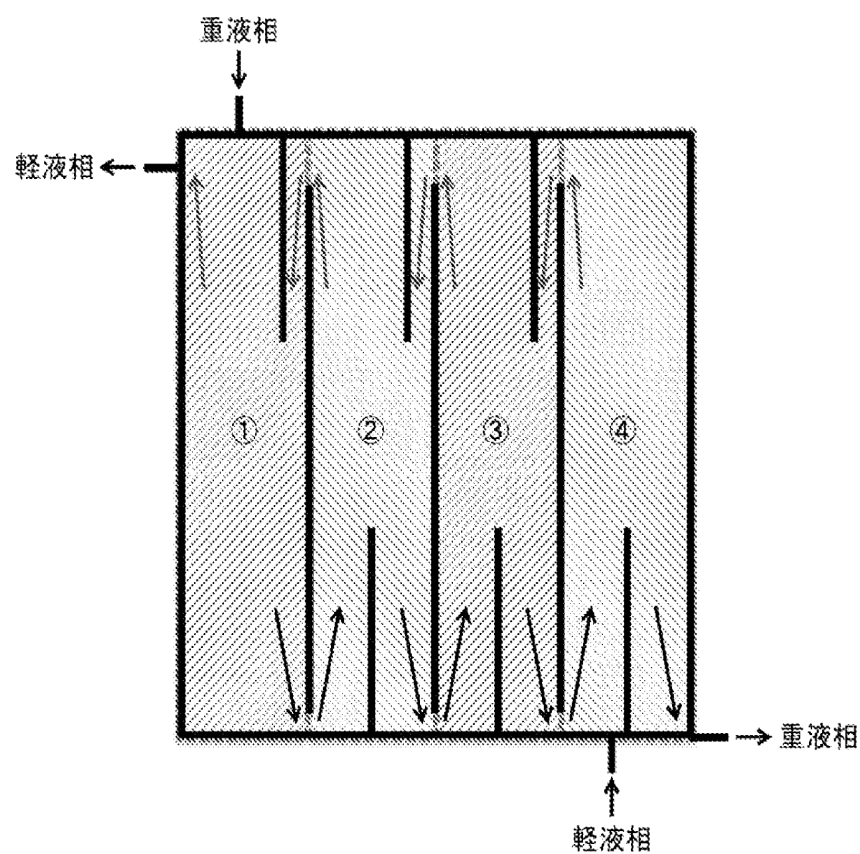
[図6(f)]



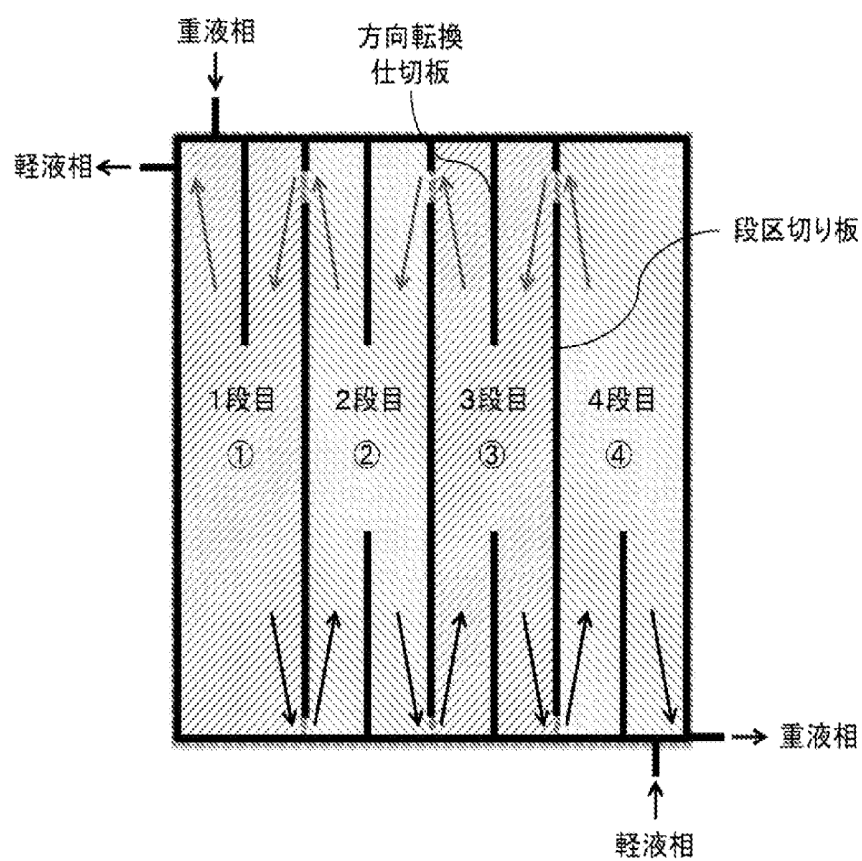
[図6(g)]



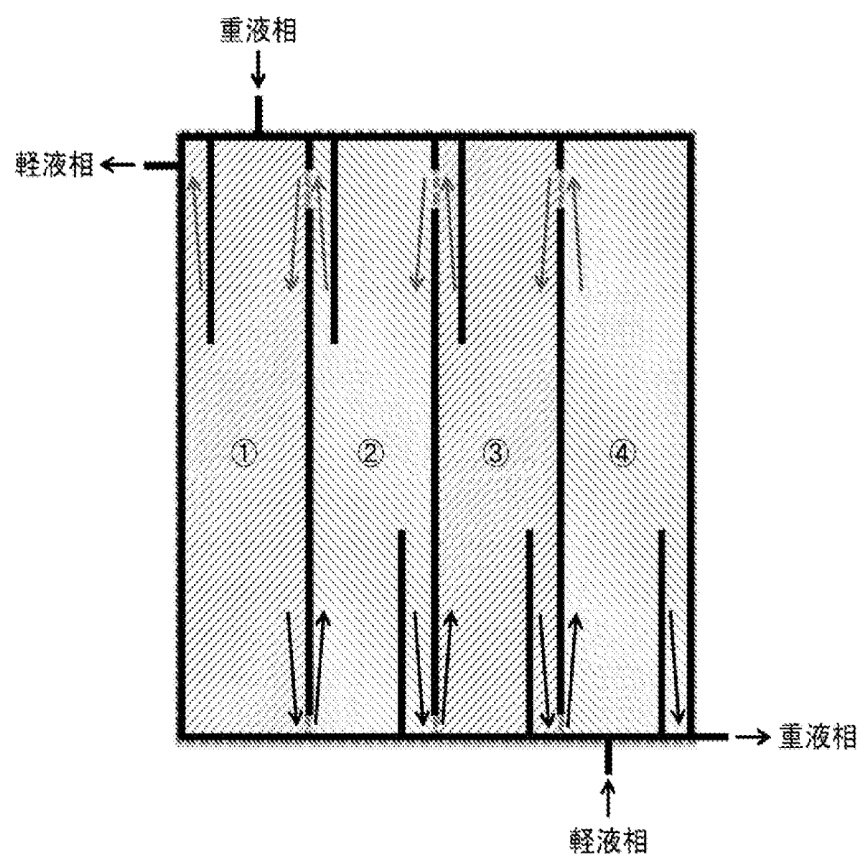
[図6(h)]



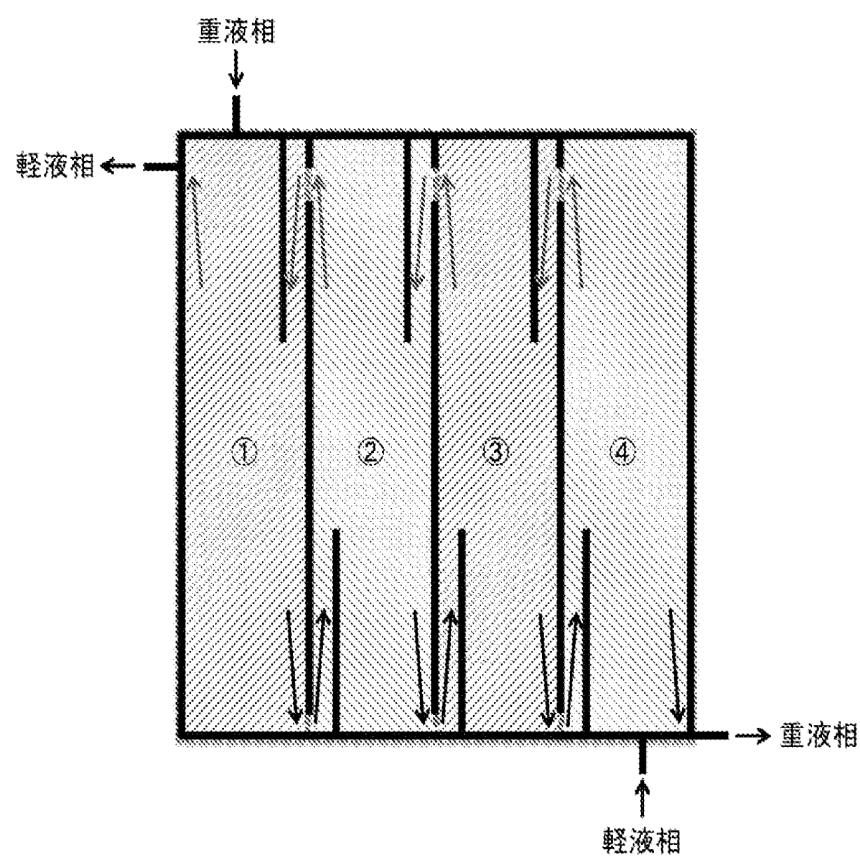
[図7(a)]



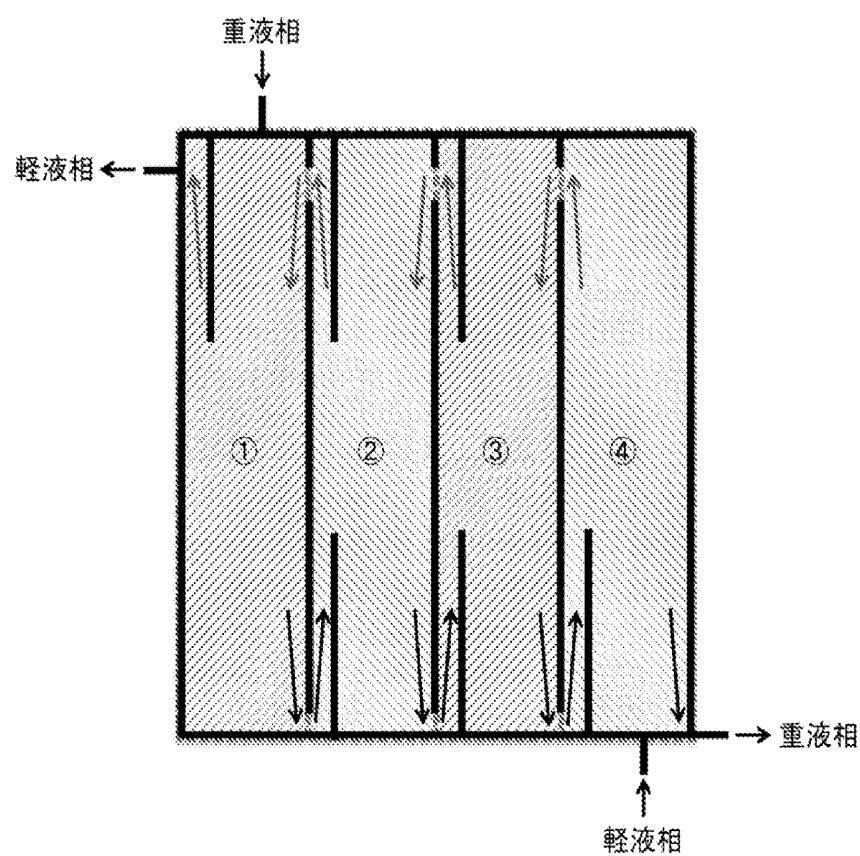
[図7(b)]



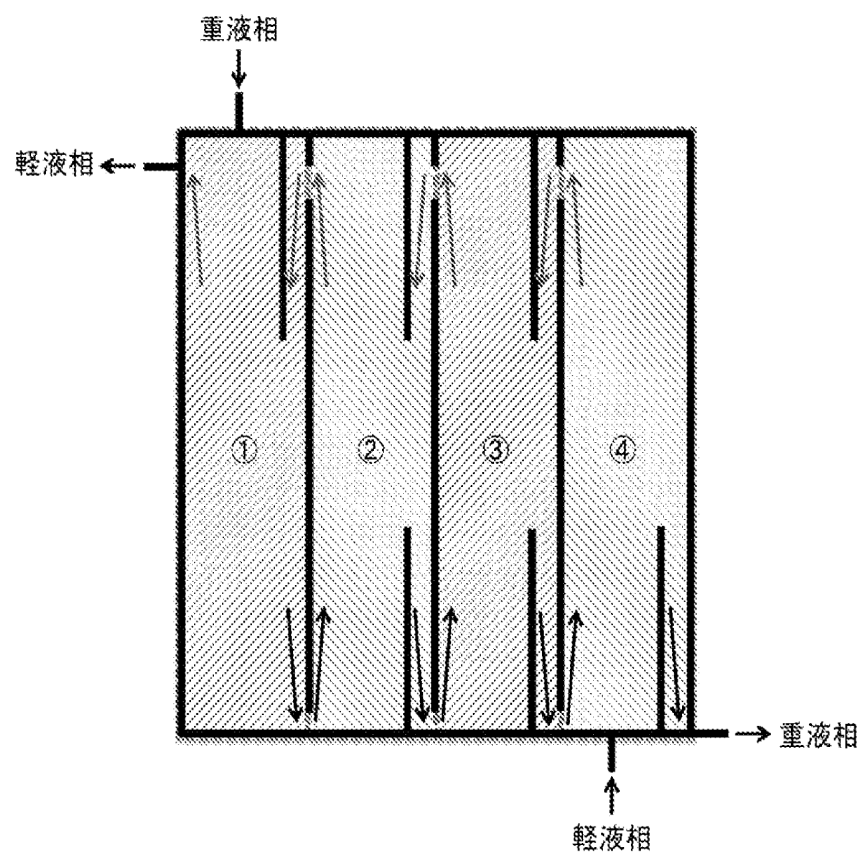
[図7(c)]



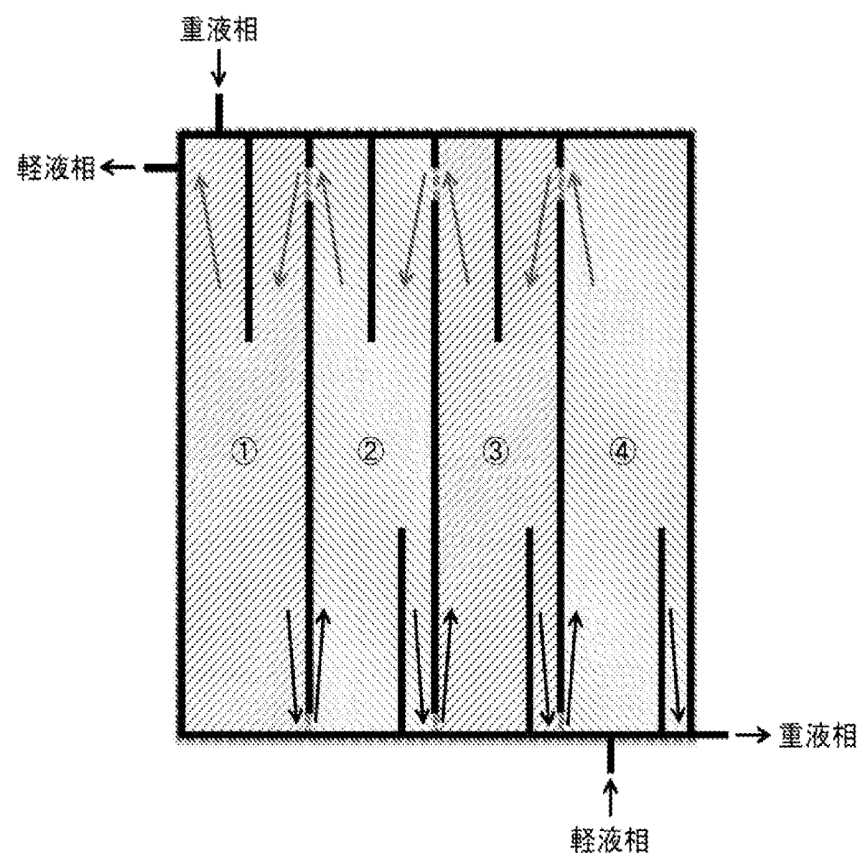
[図7(d)]



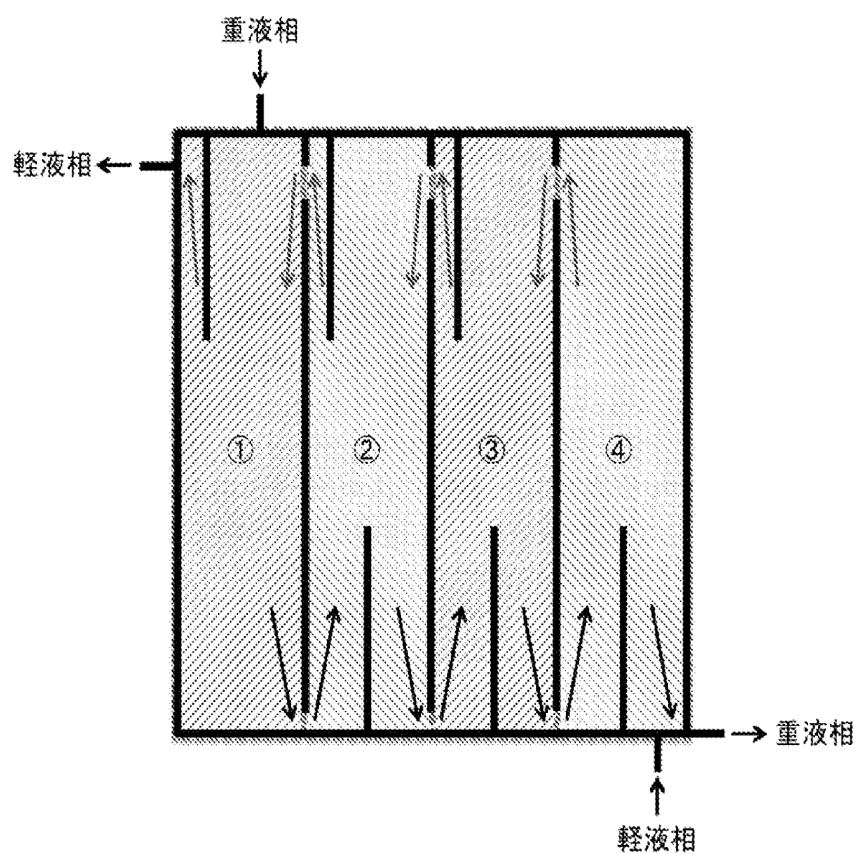
[図7(e)]



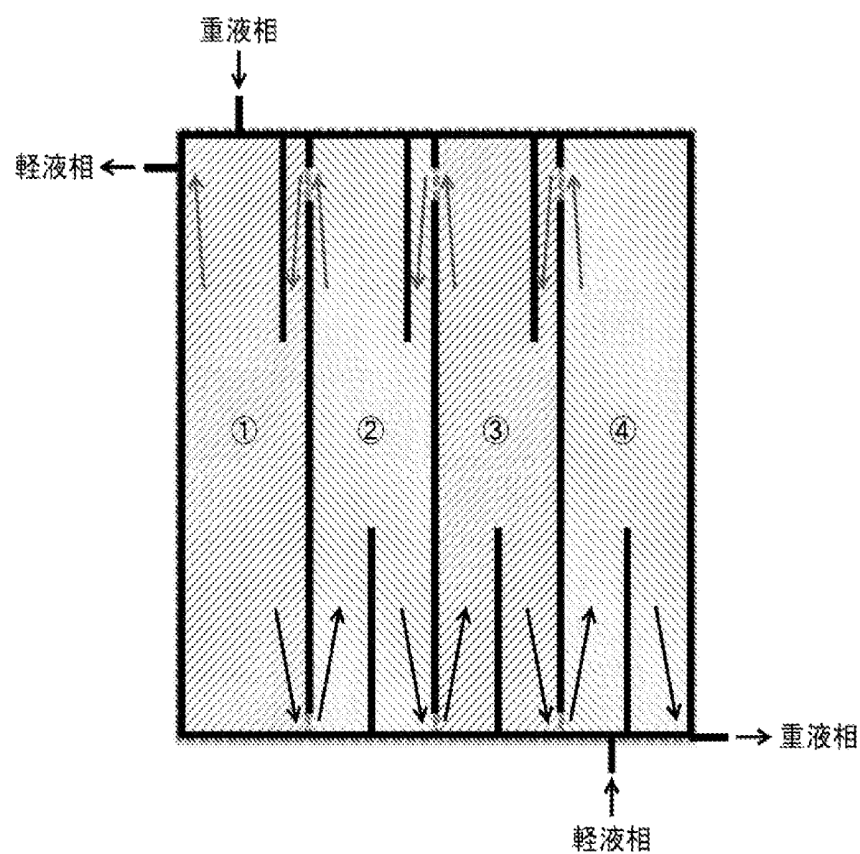
[図7(f)]



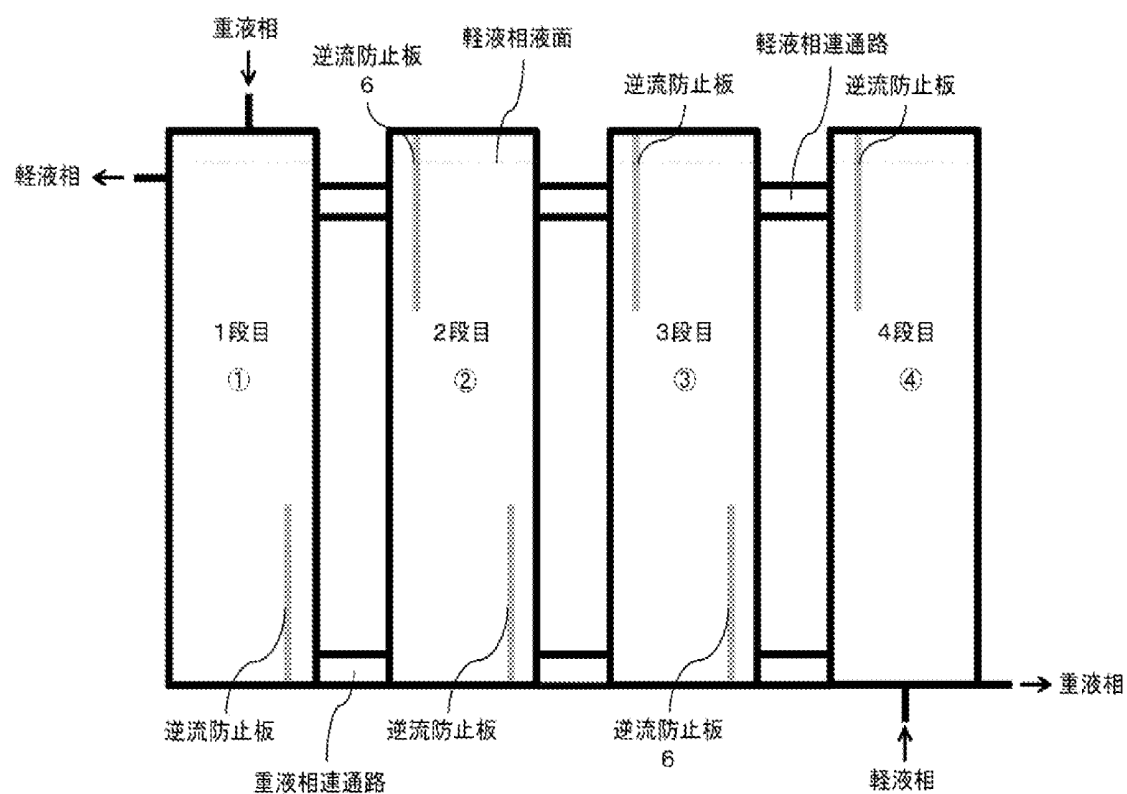
[図7(g)]



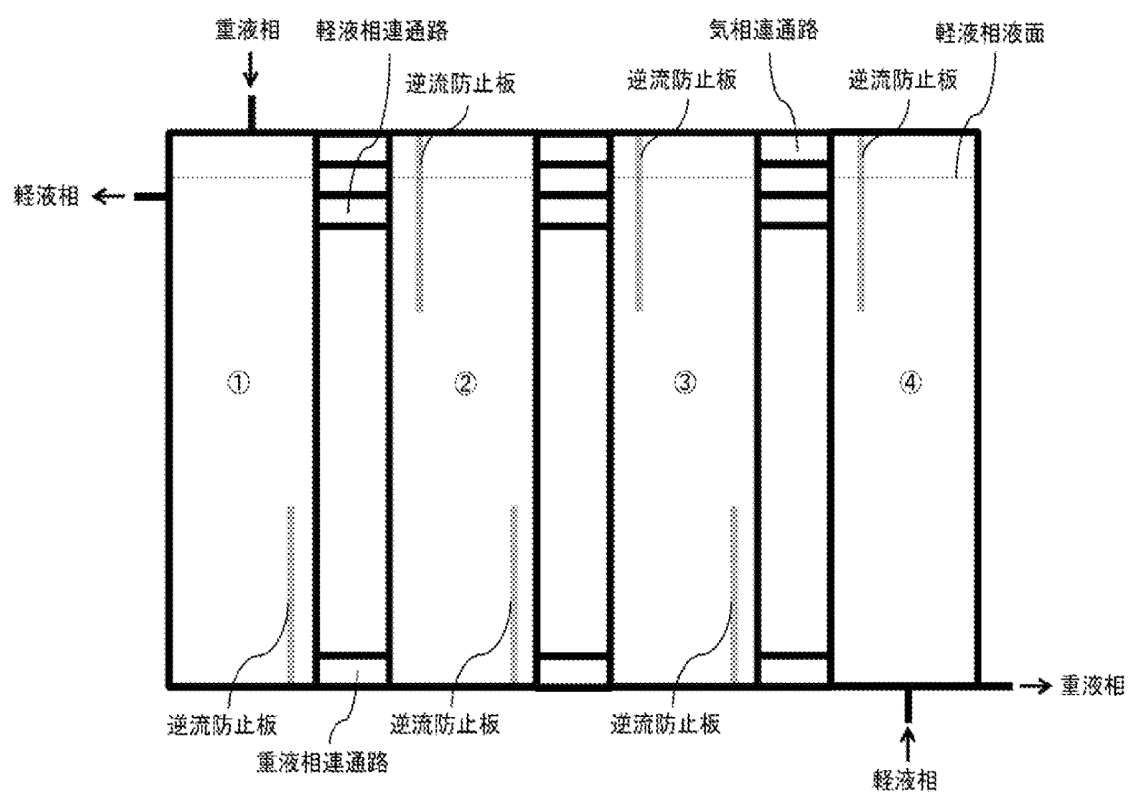
[図7(h)]



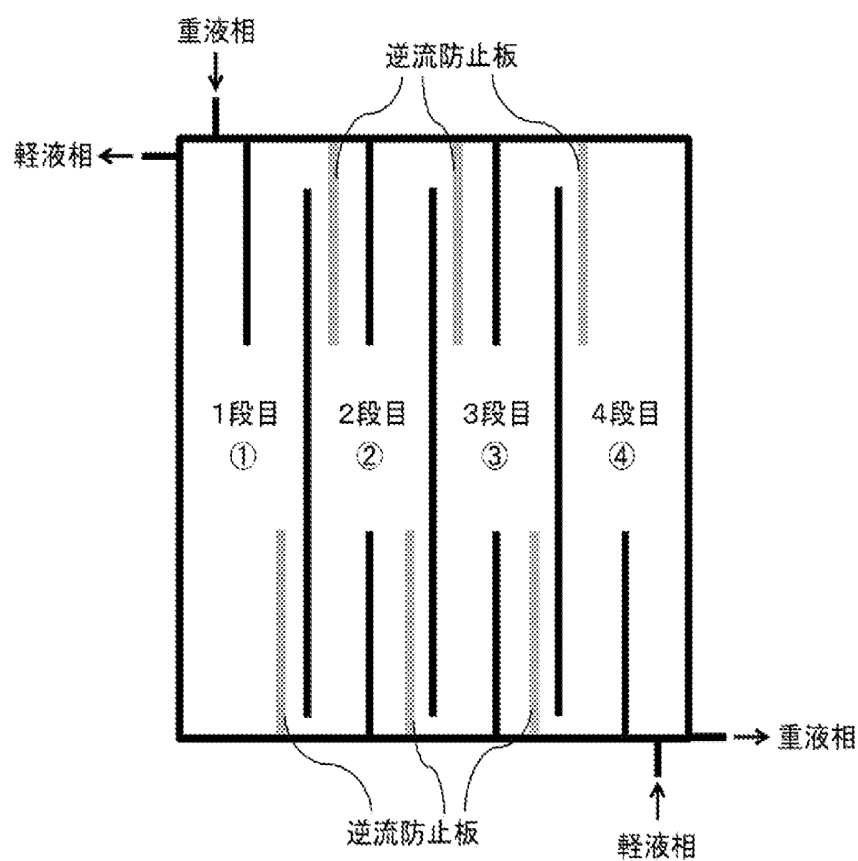
[図8(a)]



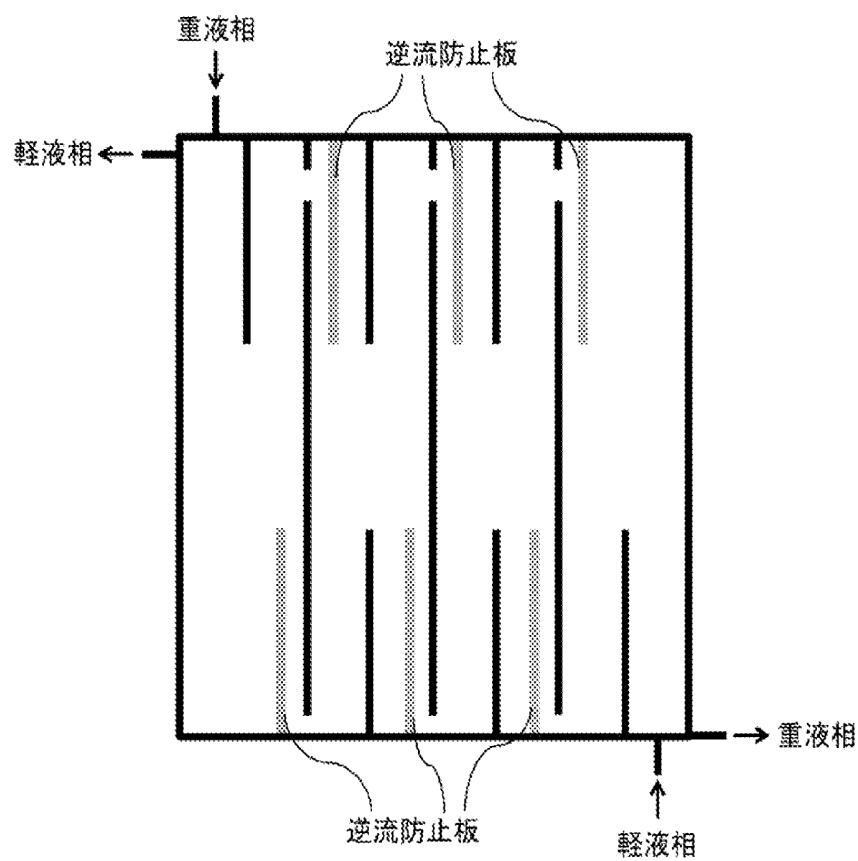
[図8(b)]



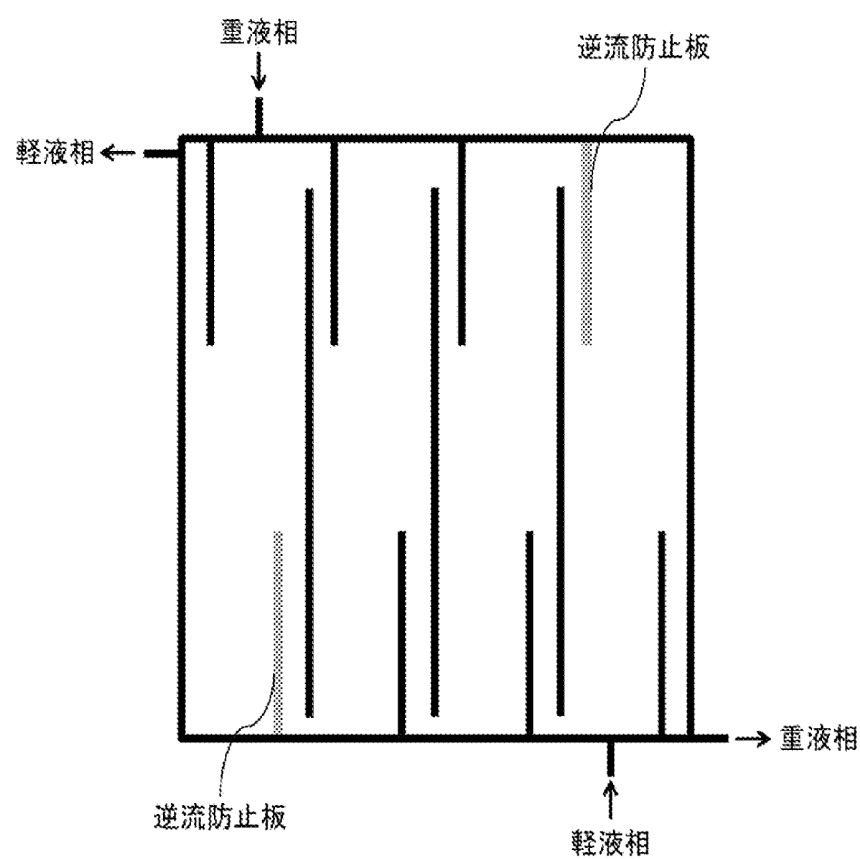
[図9(a)]



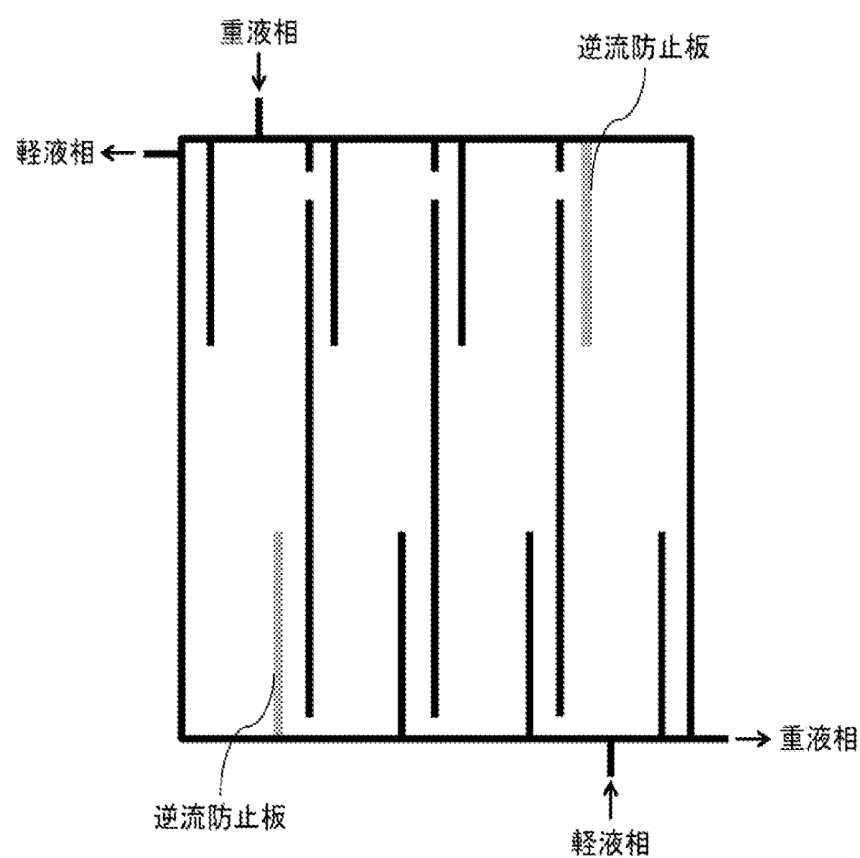
[図9(b)]



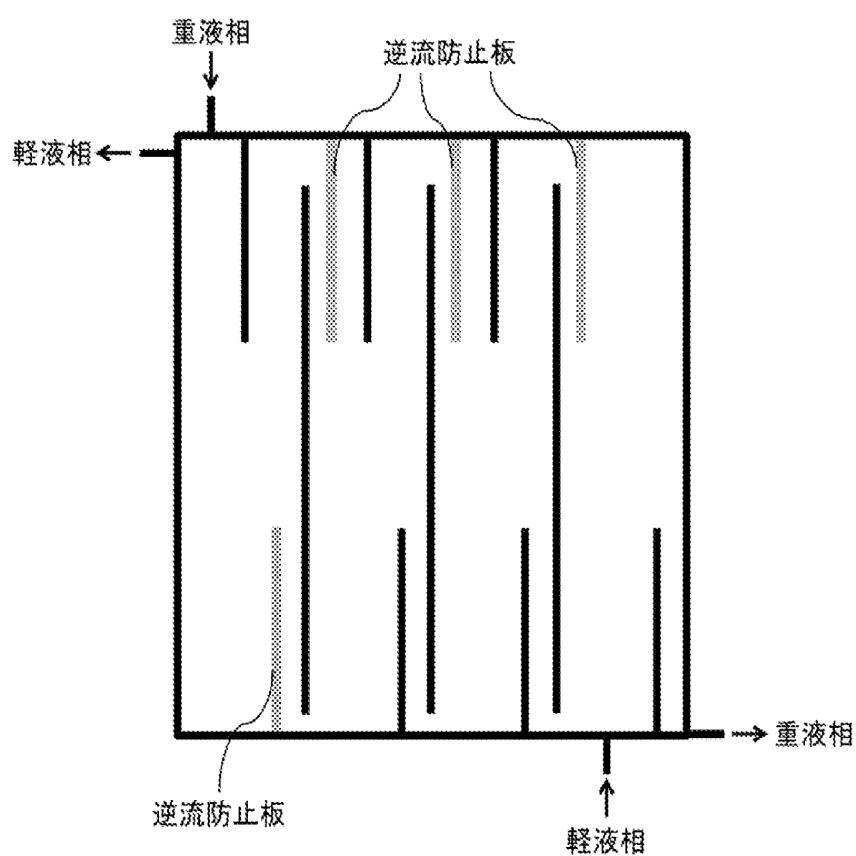
[図9(c)]



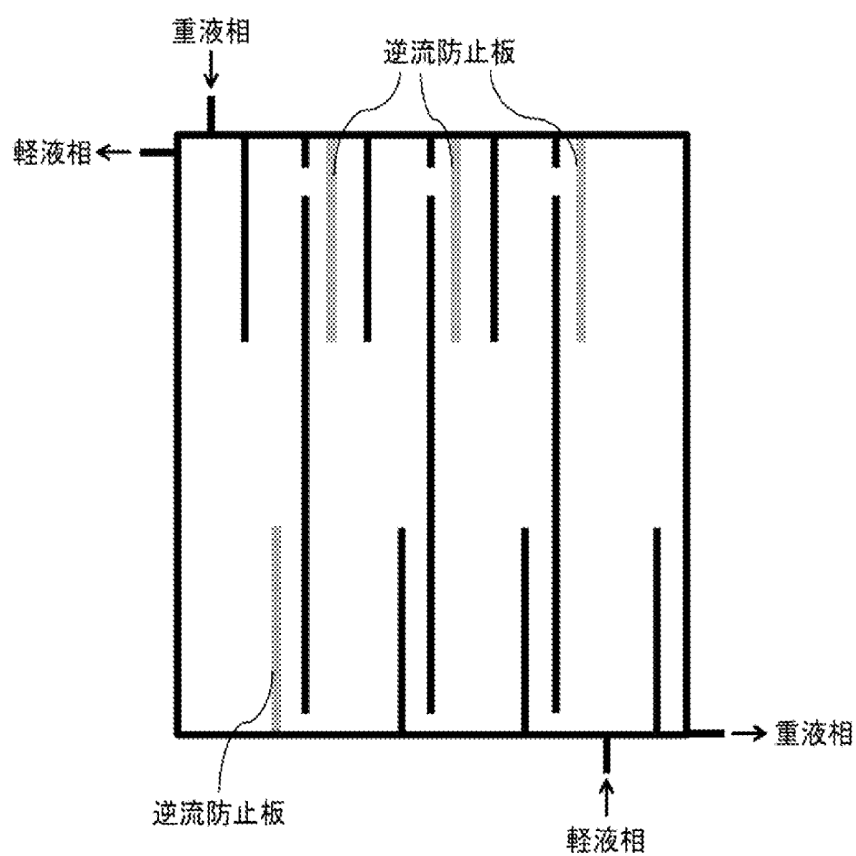
[図9(d)]



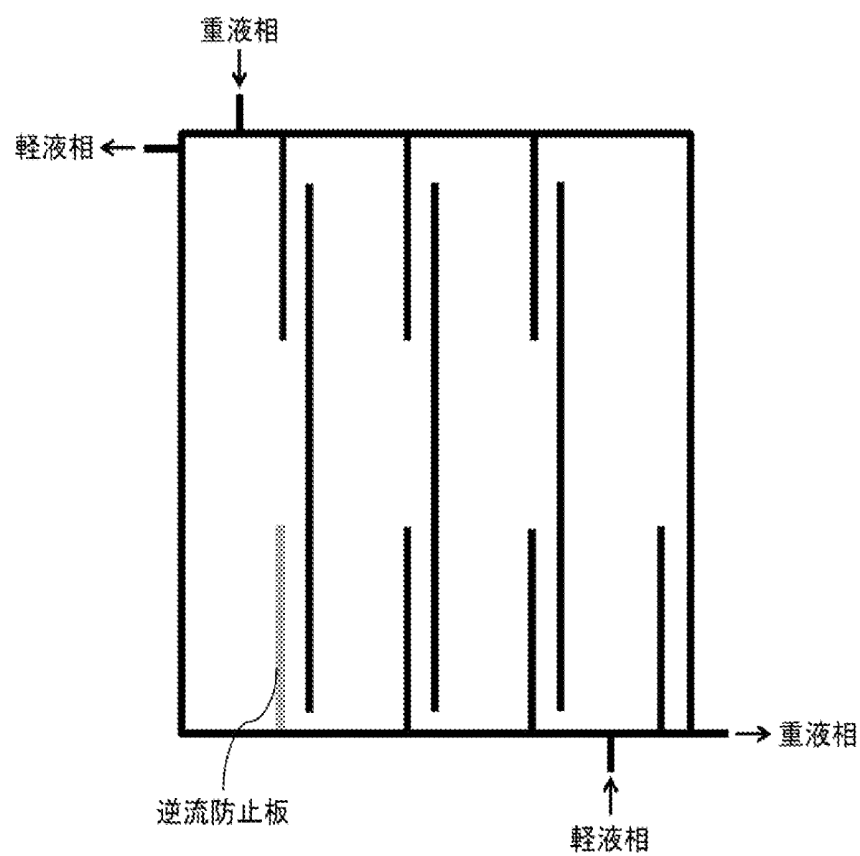
[図9(e)]



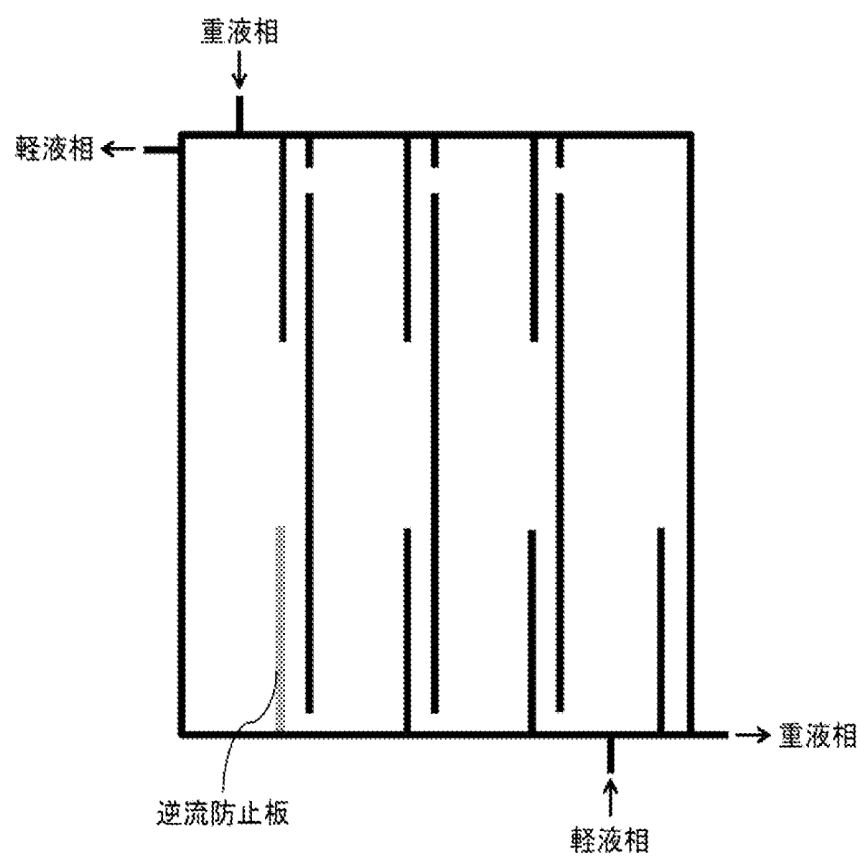
[図9(f)]



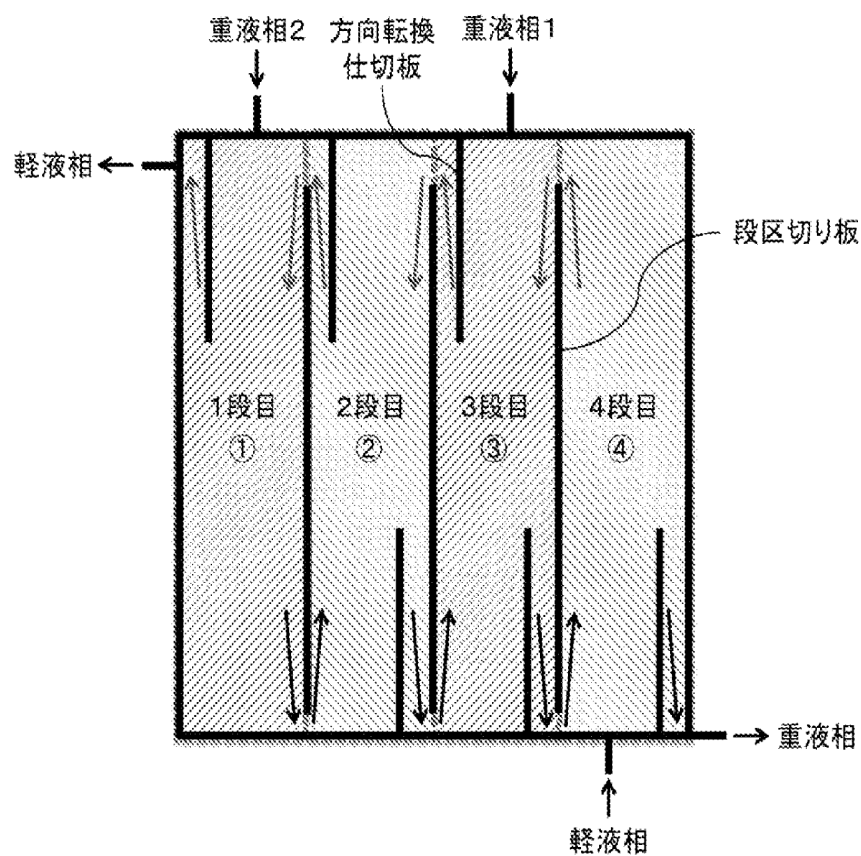
[図9(g)]



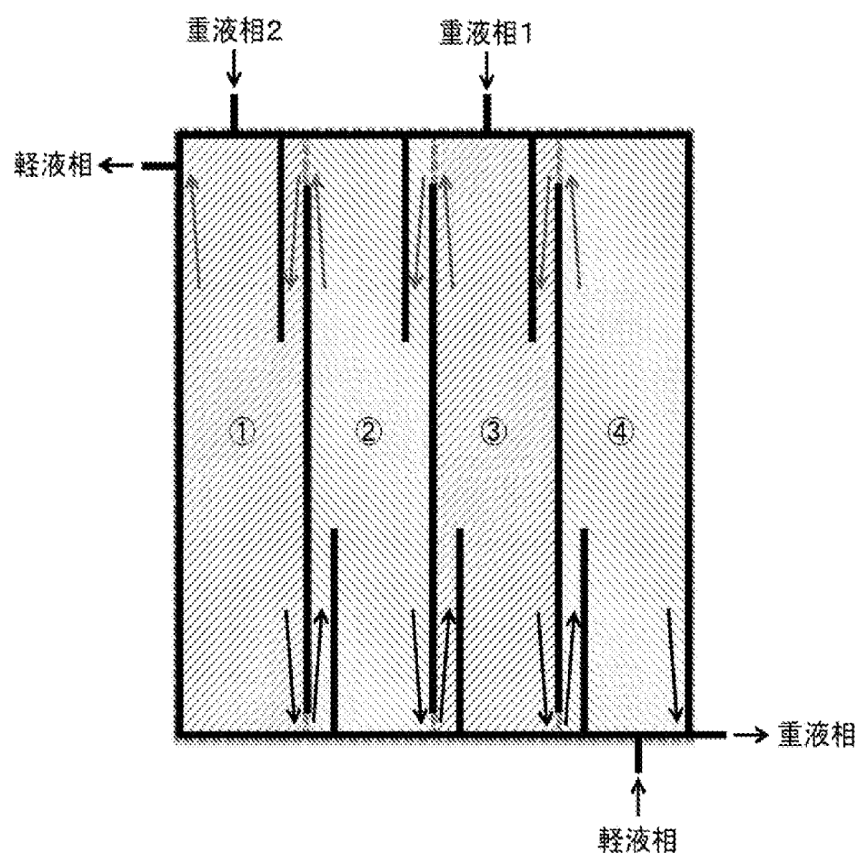
[図9(h)]



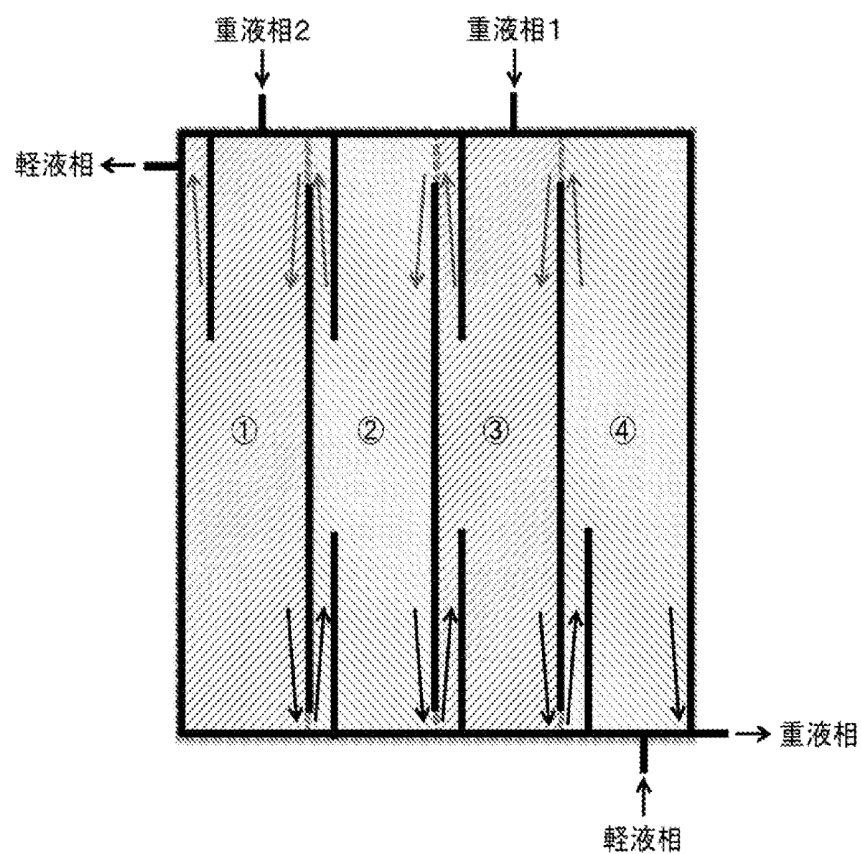
[図10(a)]



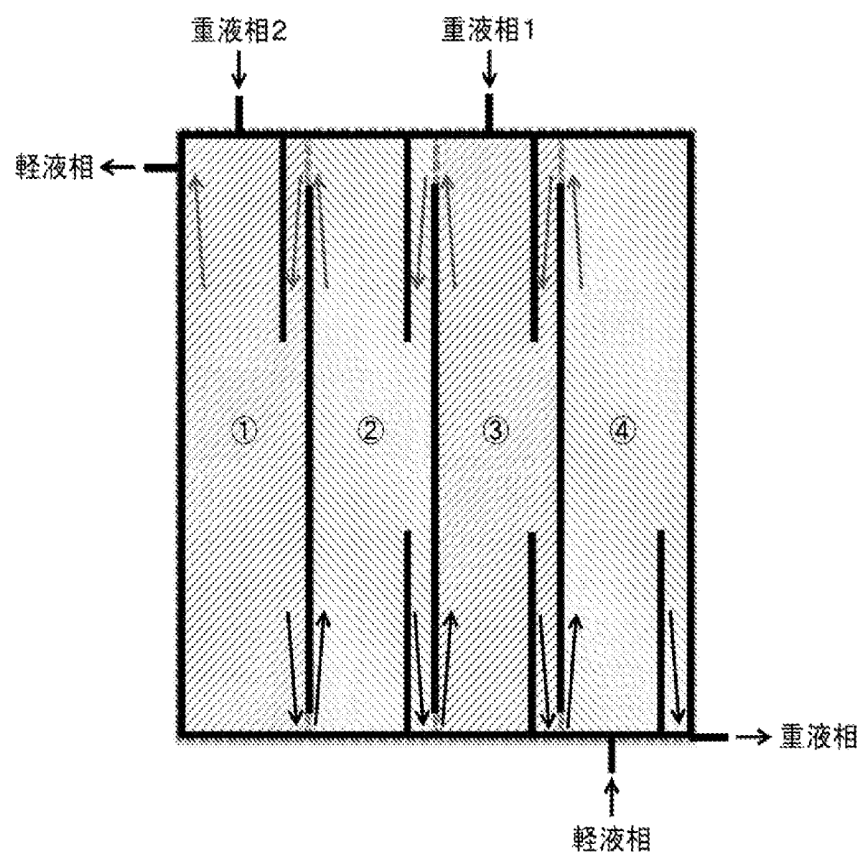
[図10(b)]



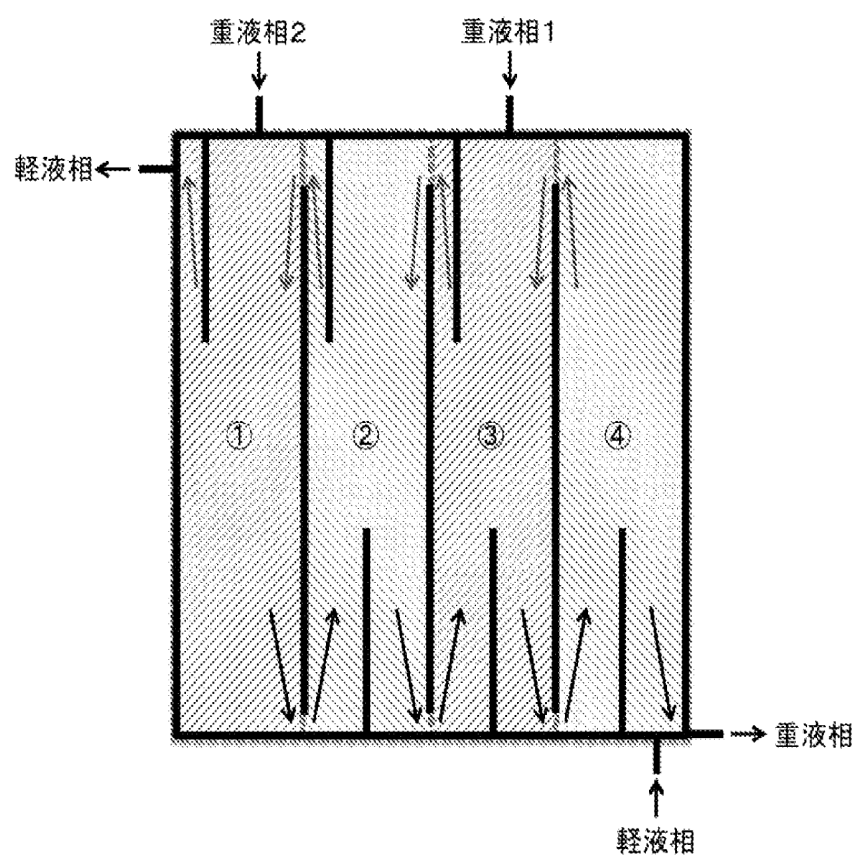
[図10(c)]



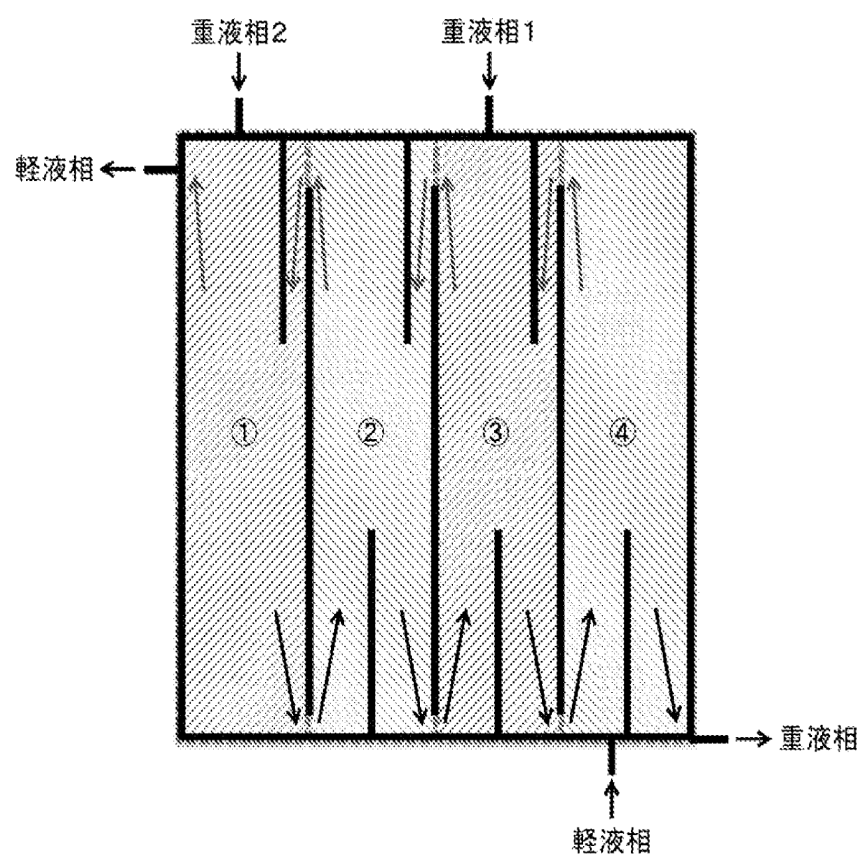
[図10(d)]



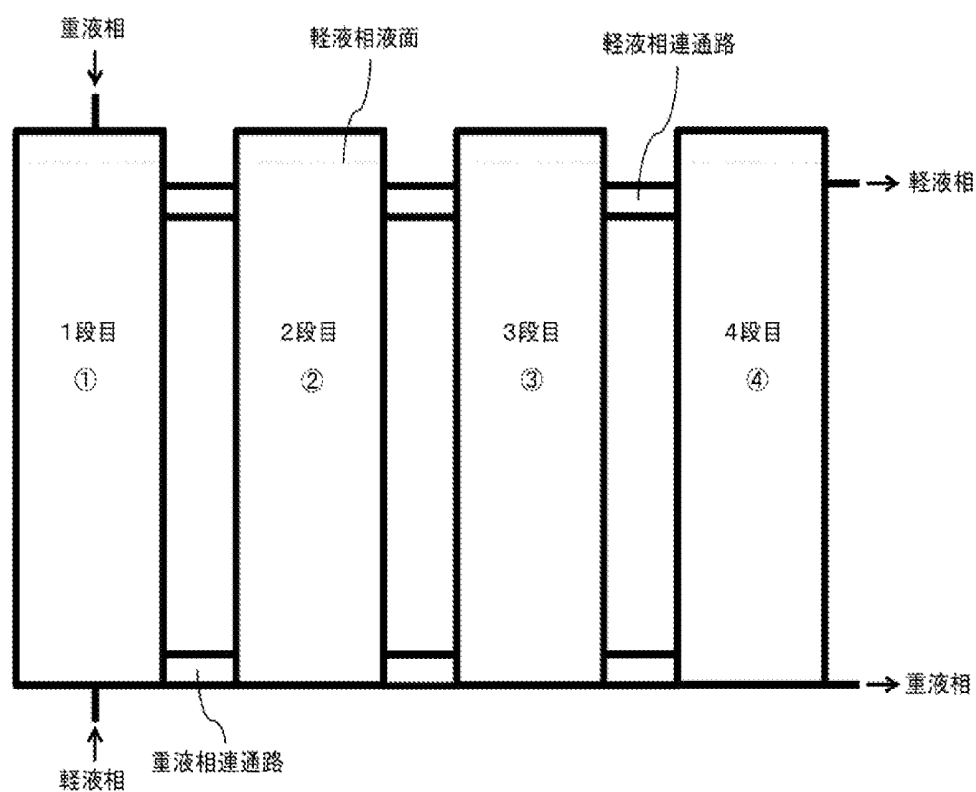
[図10(e)]



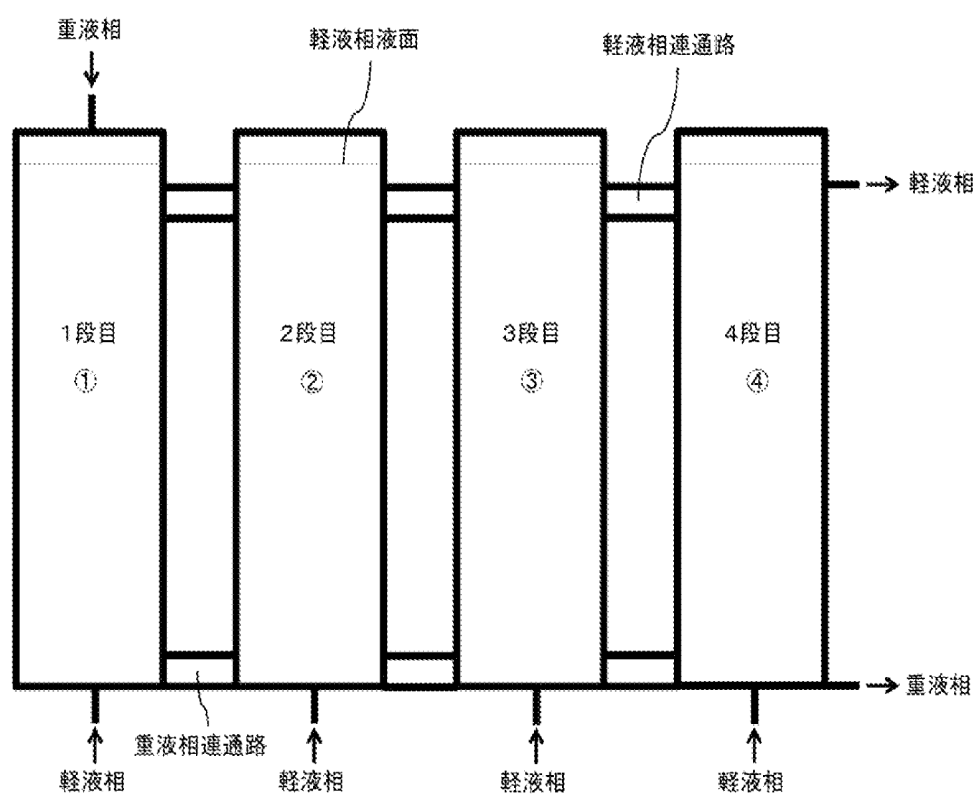
[図10(f)]



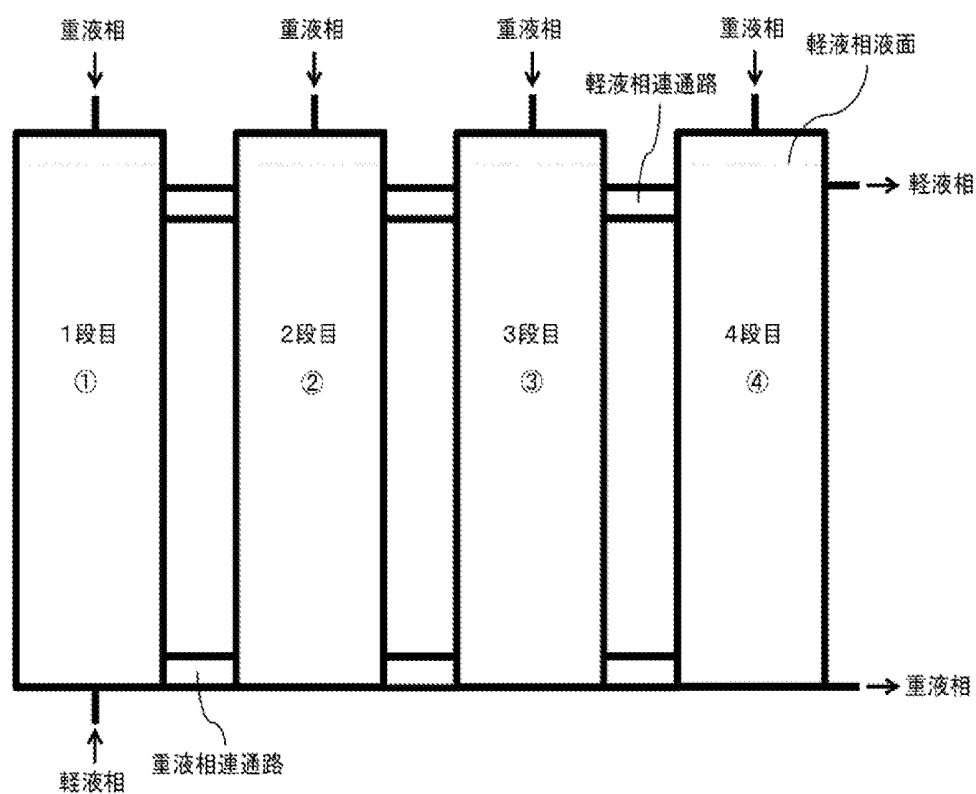
[図11(a)]



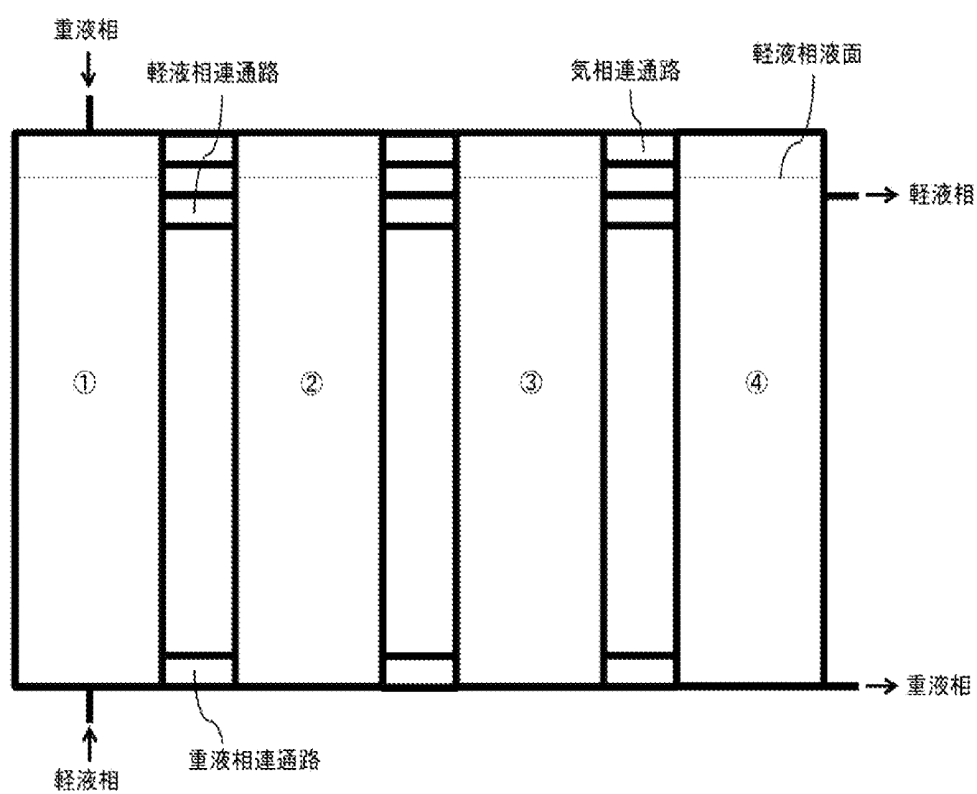
[図11(b)]



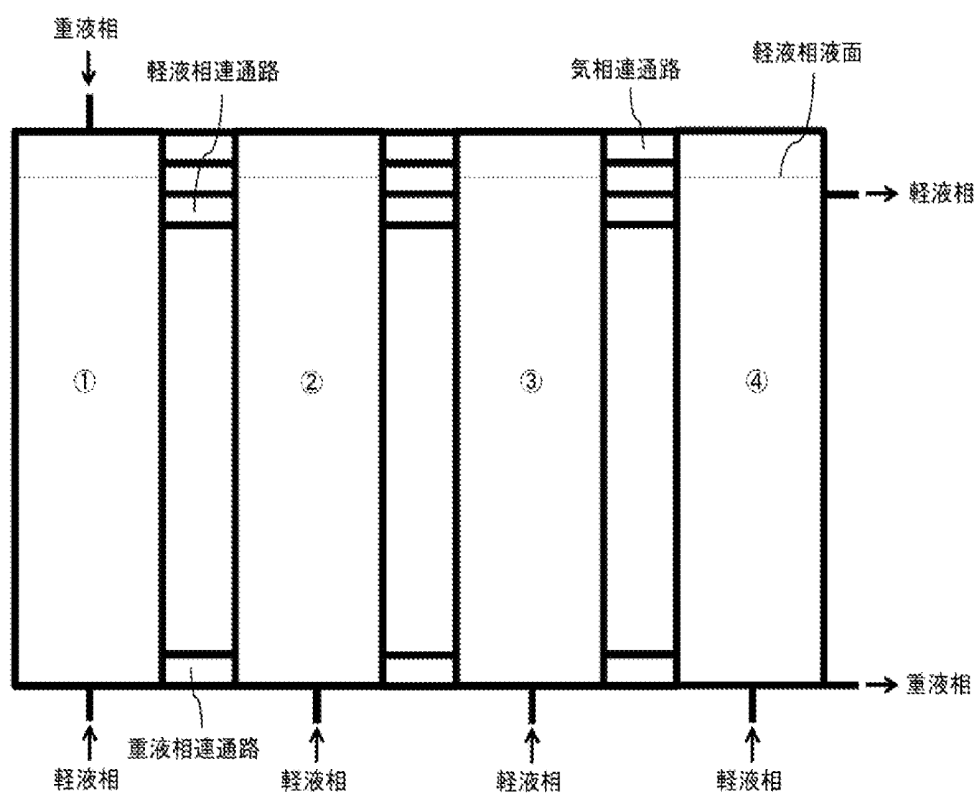
[図11(c)]



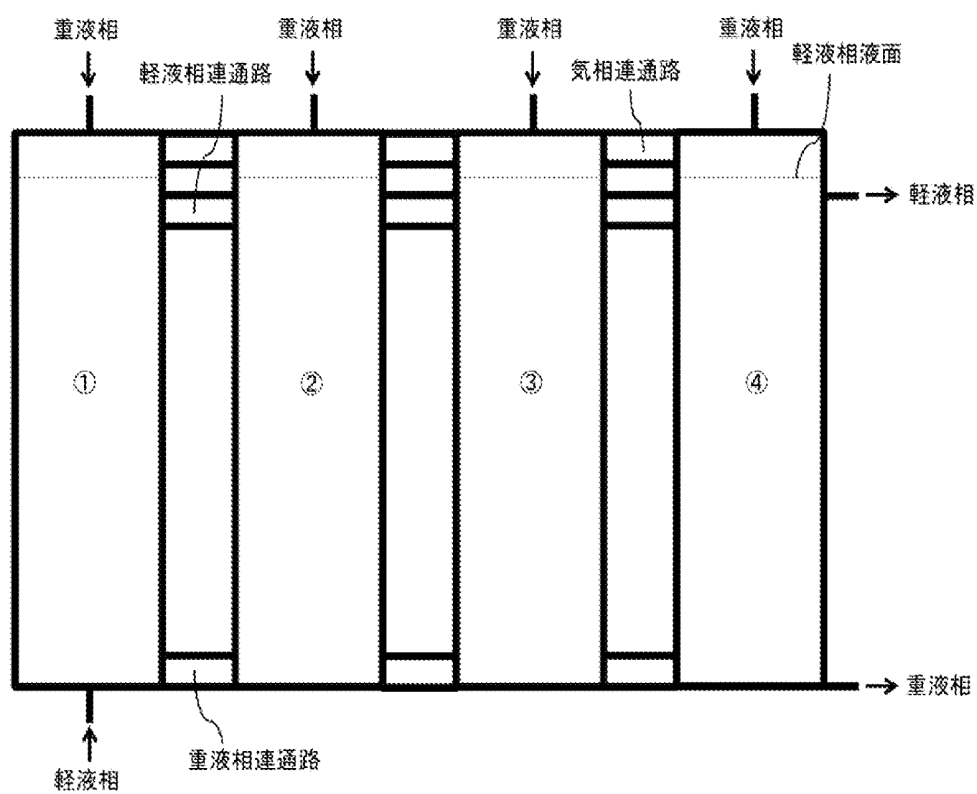
[図11(d)]



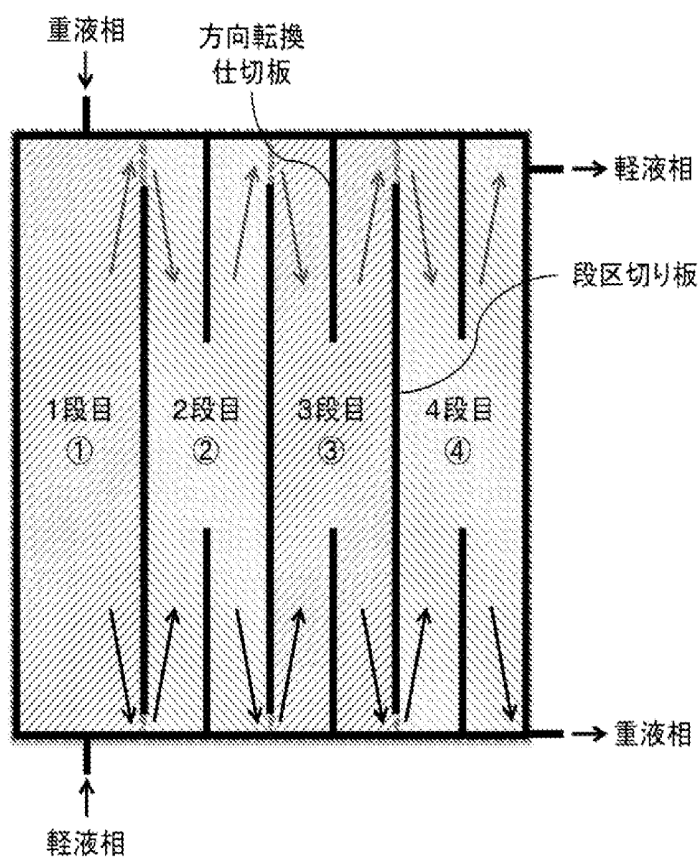
[図11(e)]



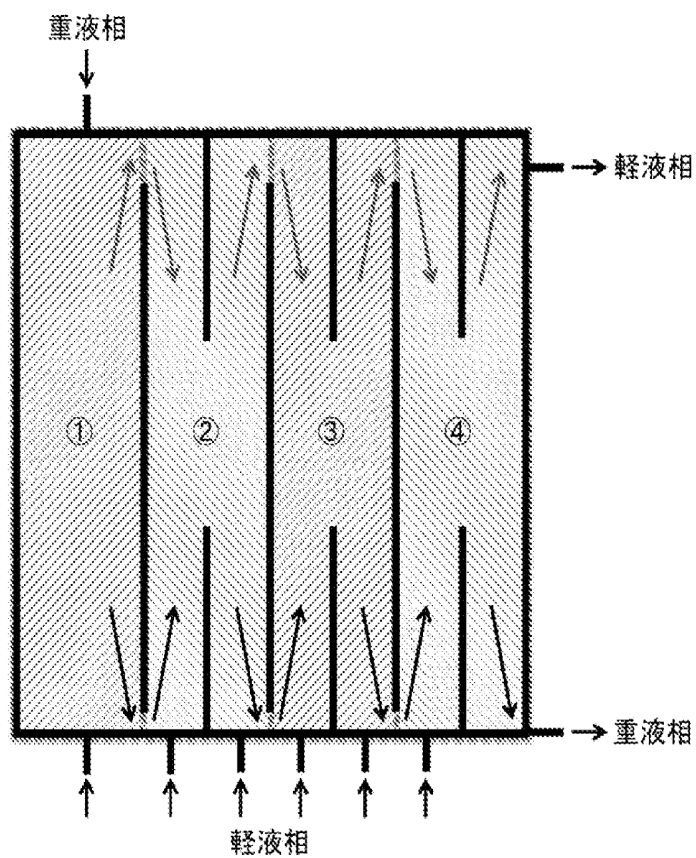
[図11(f)]



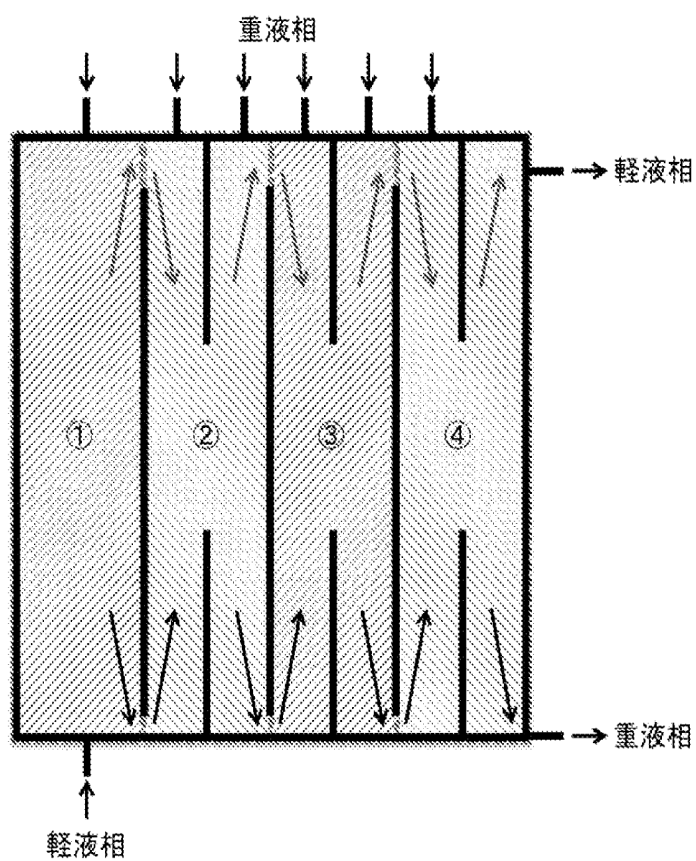
[図12(a)]



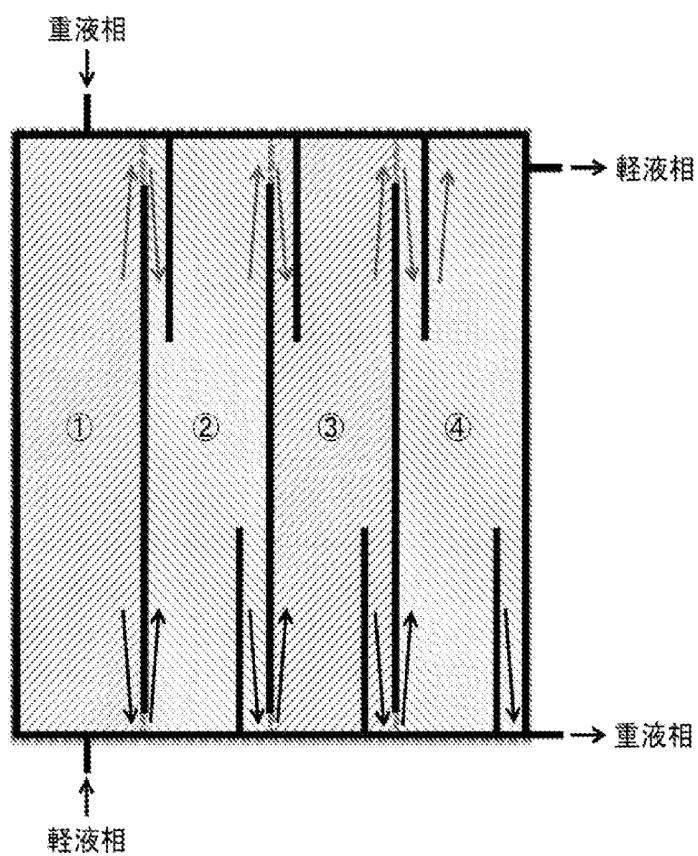
[図12(b)]



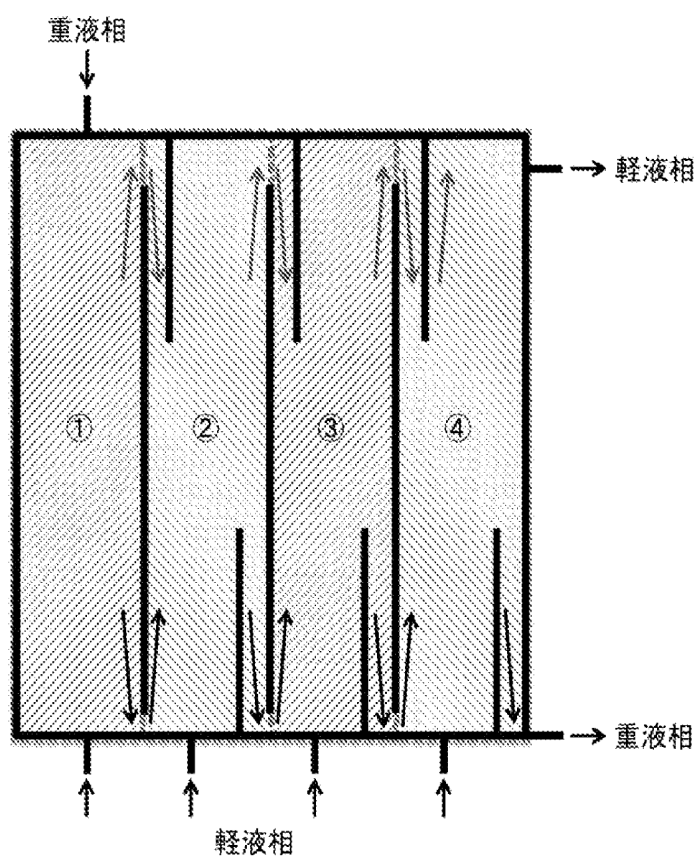
[図12(c)]



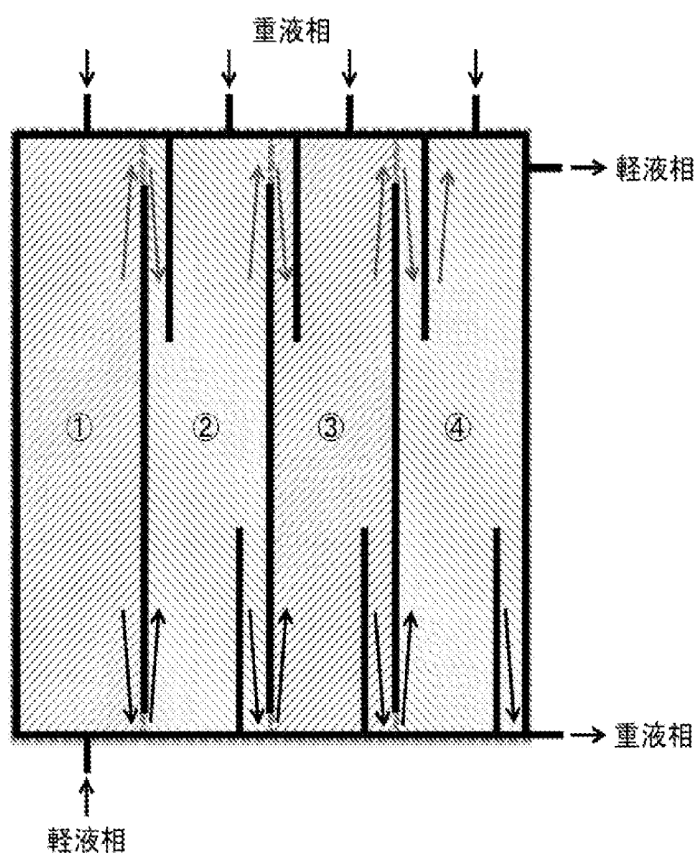
[図12(d)]



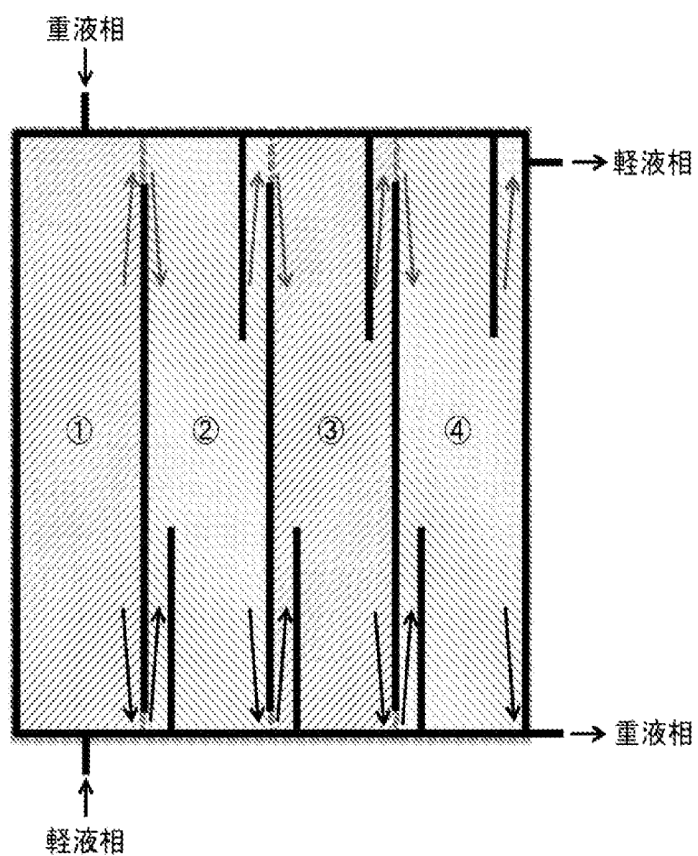
[図12(e)]



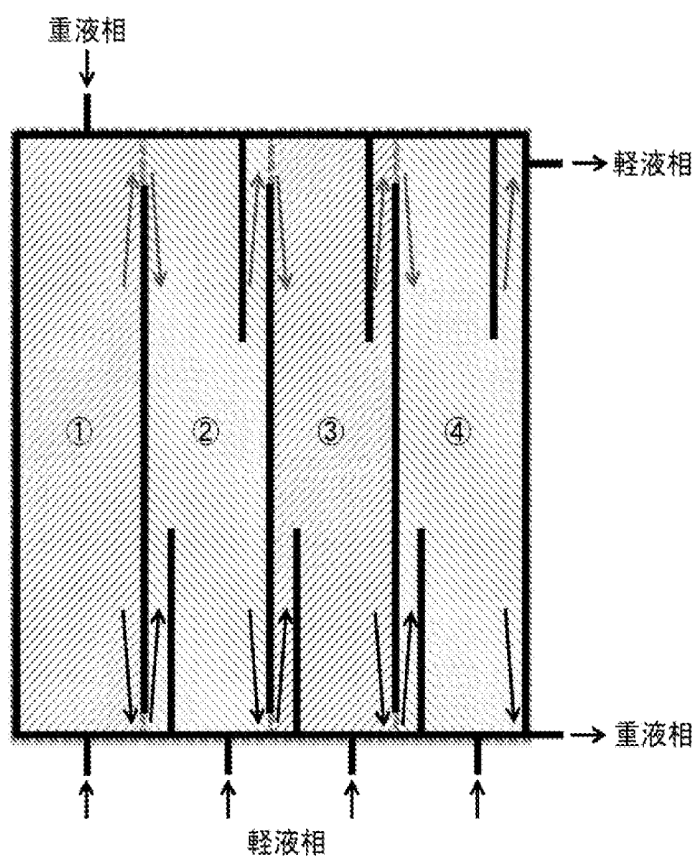
[図12(f)]



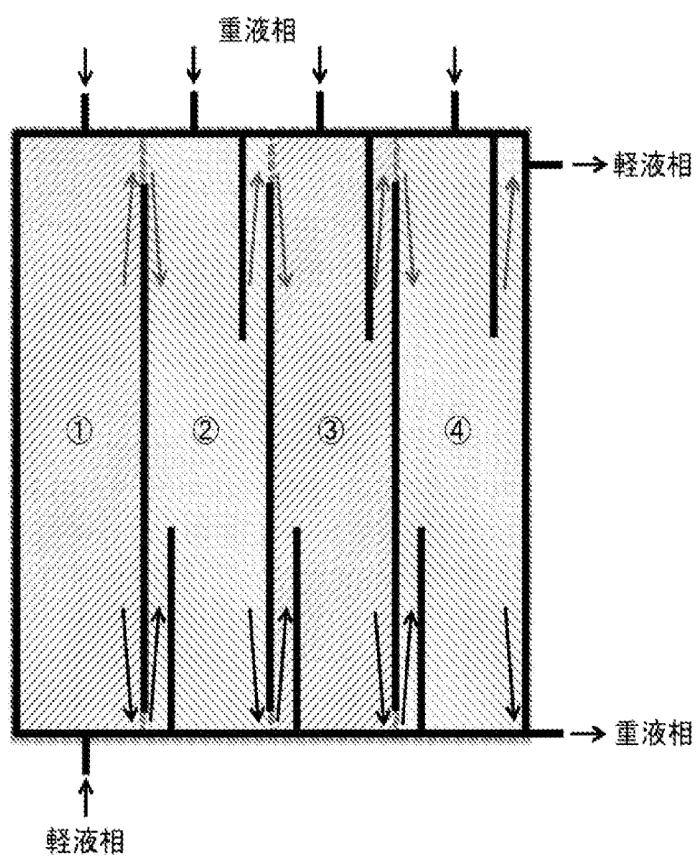
[図12(g)]



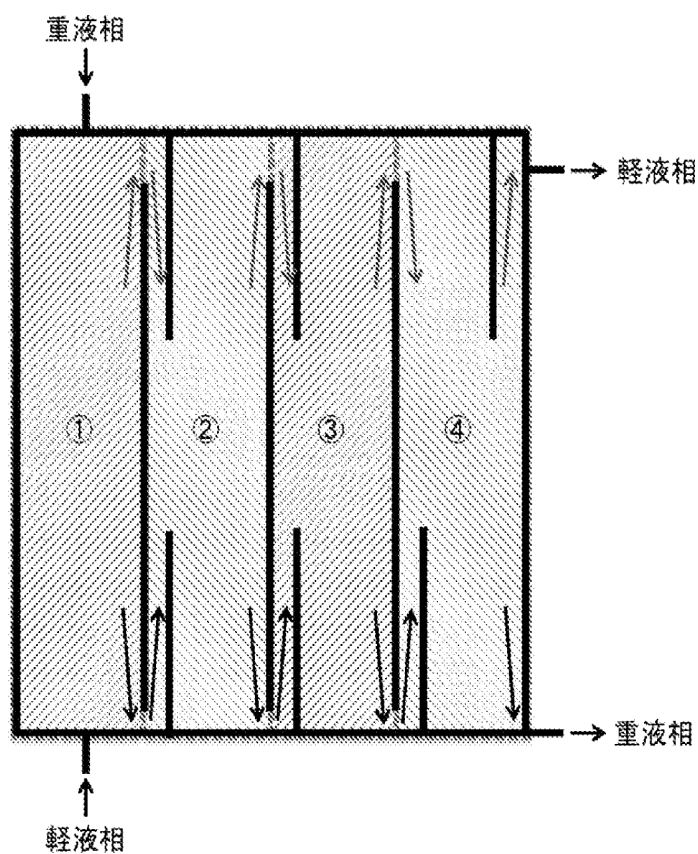
[図12(h)]



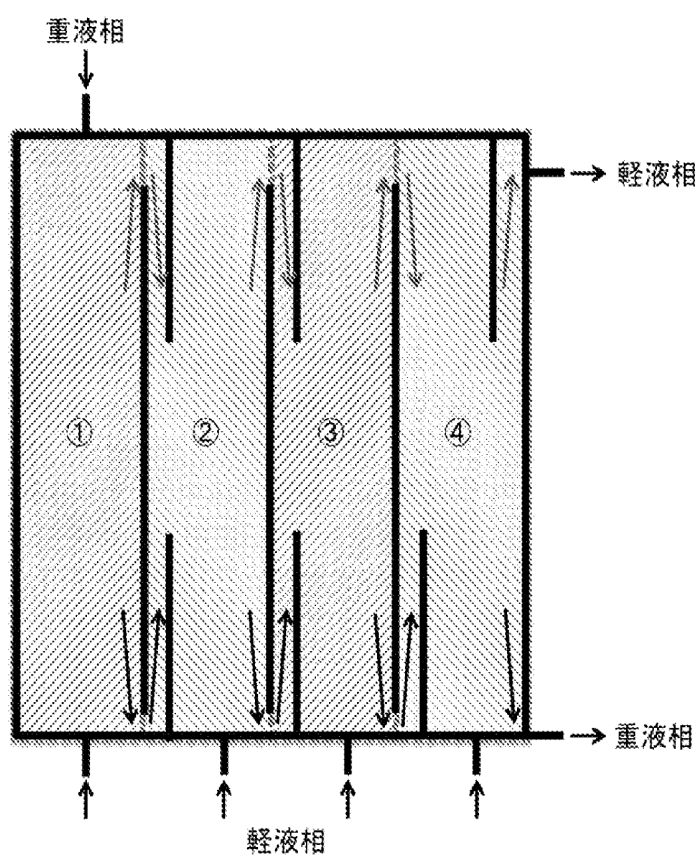
[図12(i)]



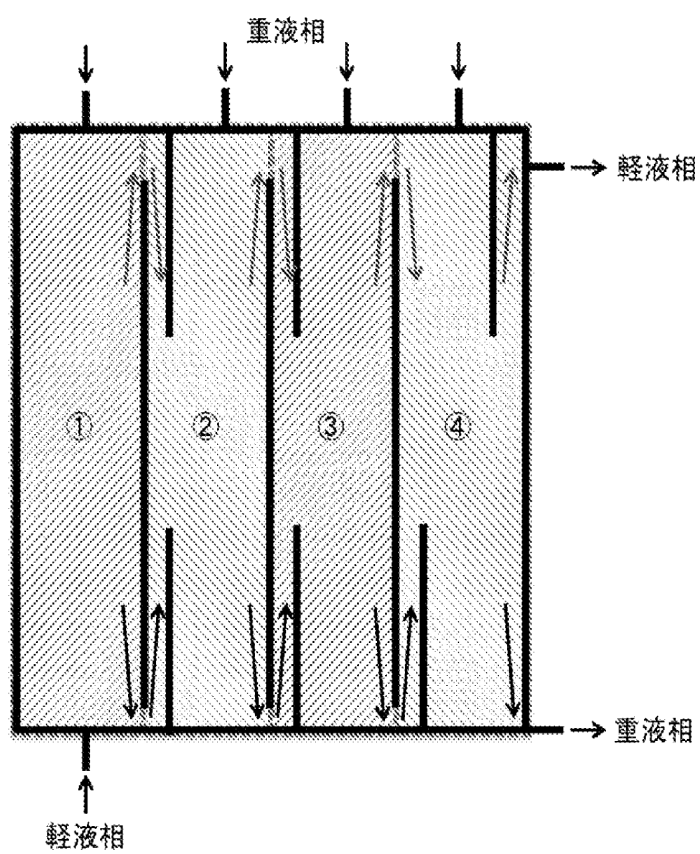
[図12(j)]



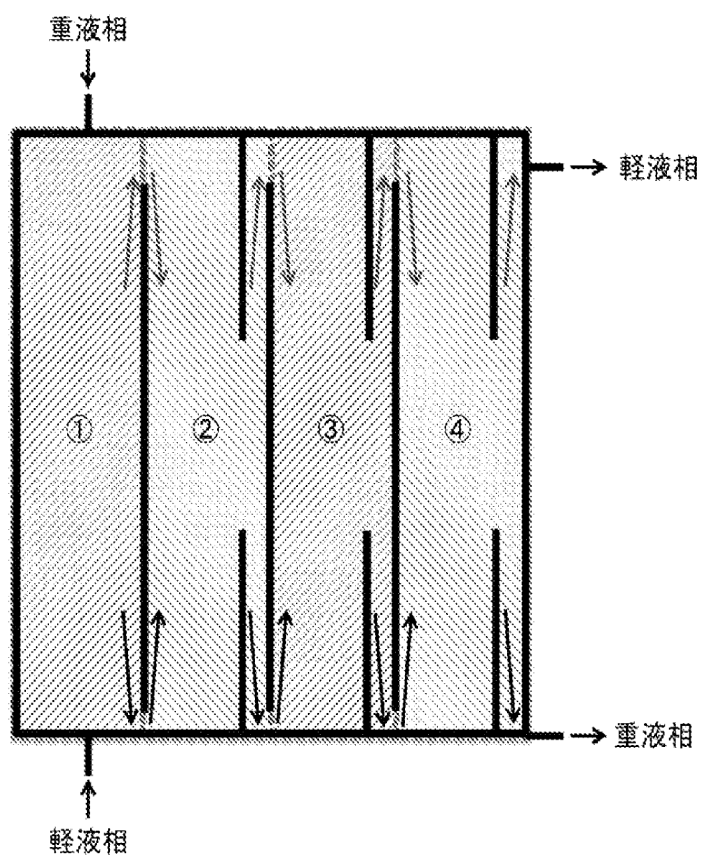
[図12(k)]



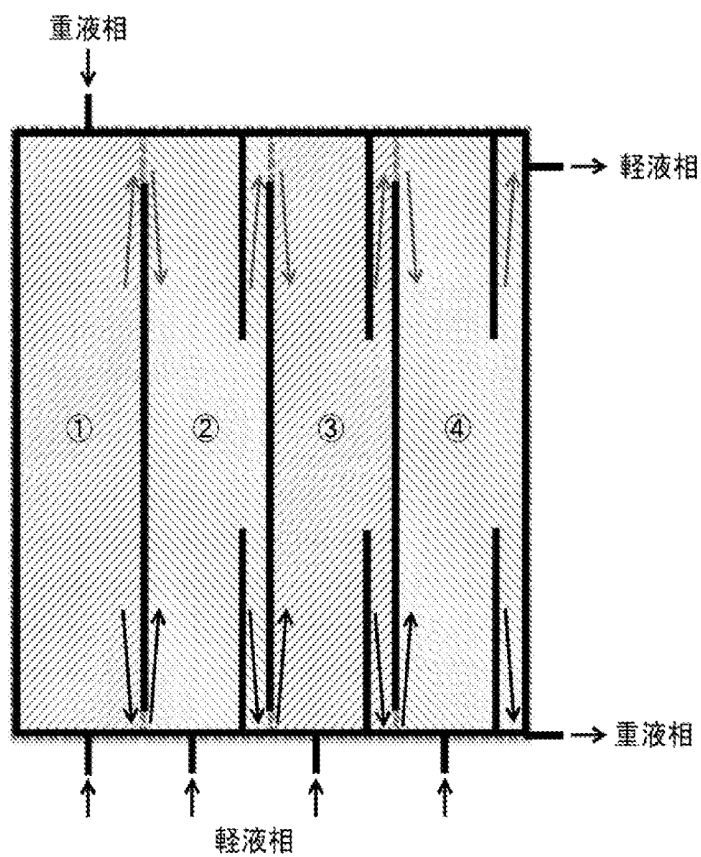
[図12(l)]



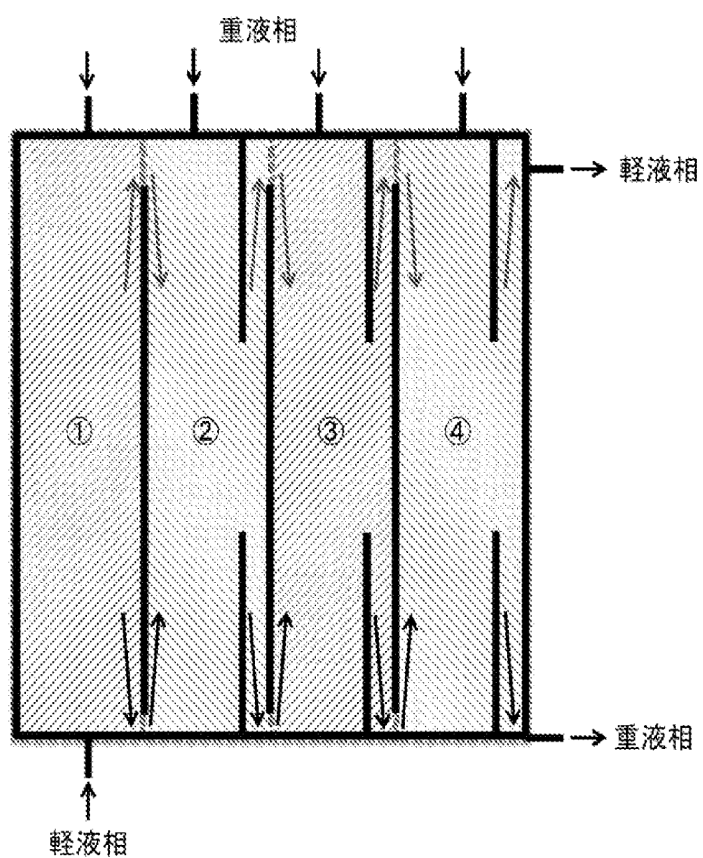
[図12(m)]



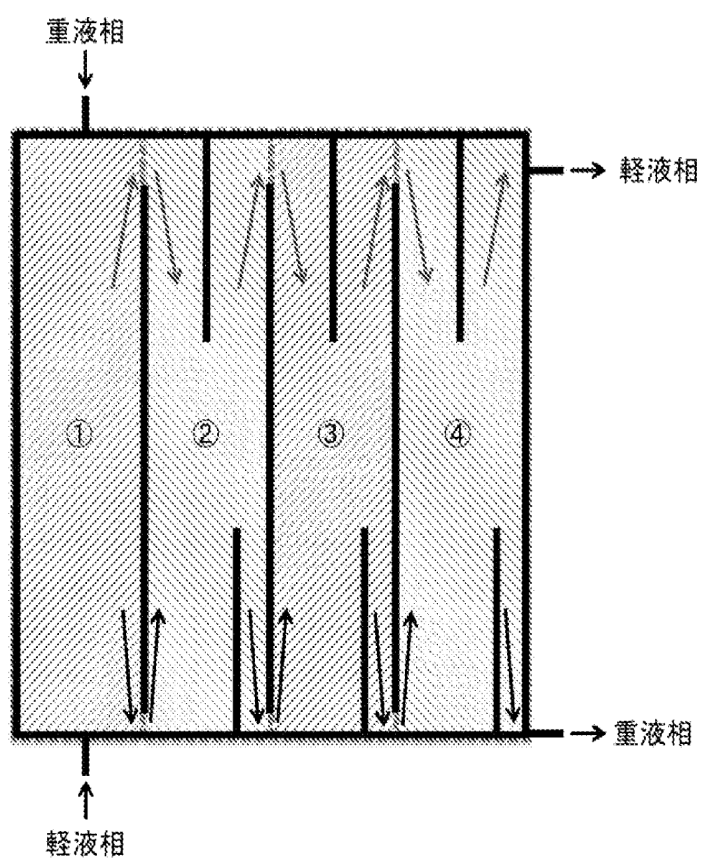
[図12(n)]



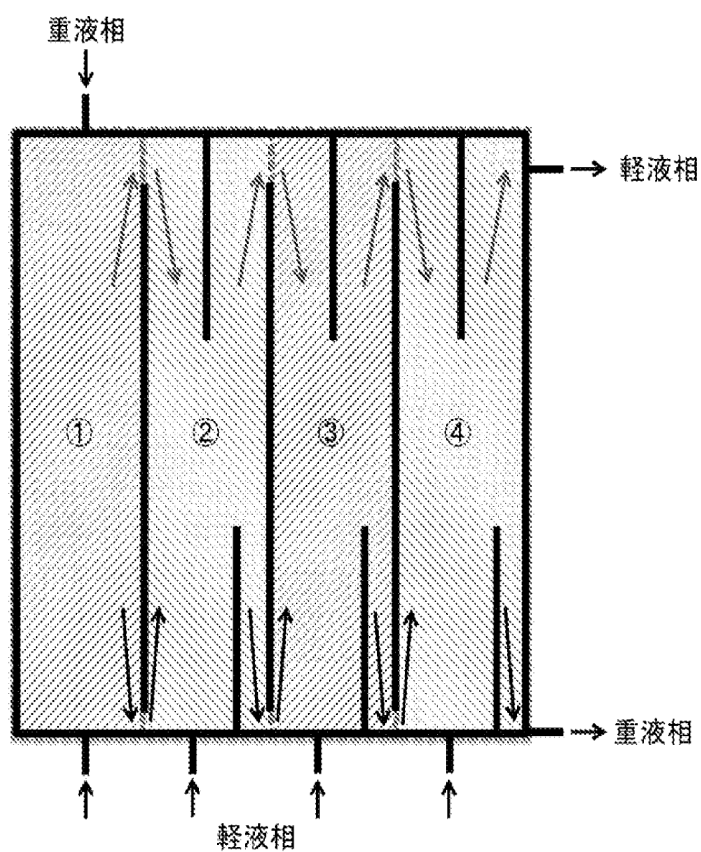
[図12(o)]



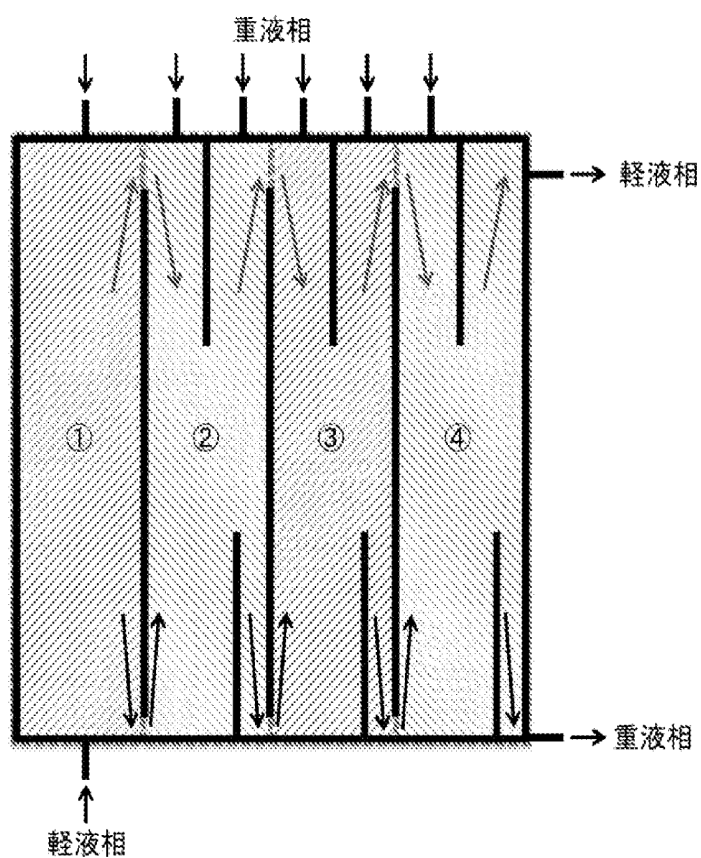
[図12(p)]



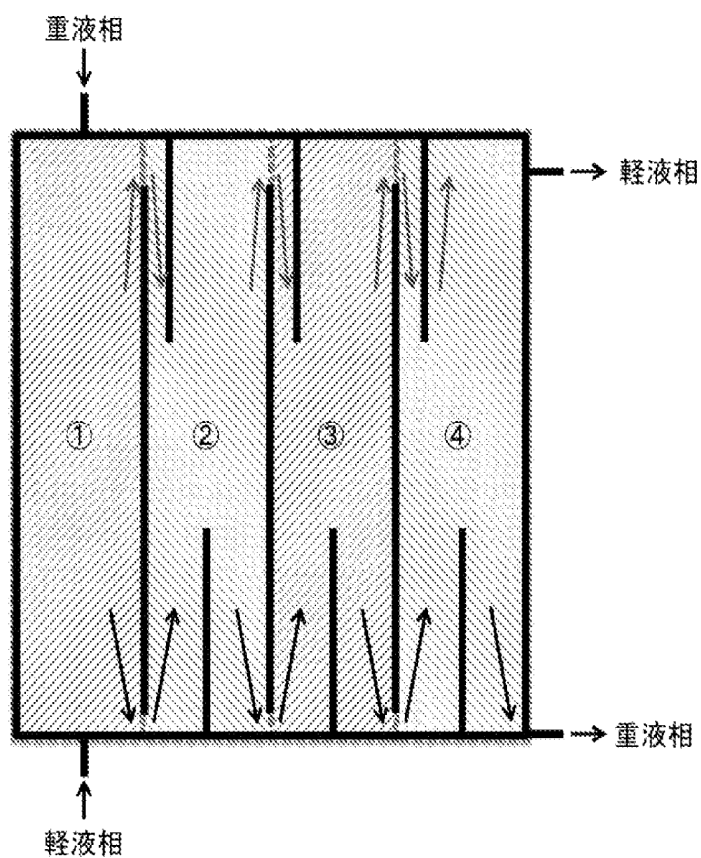
[図12(q)]



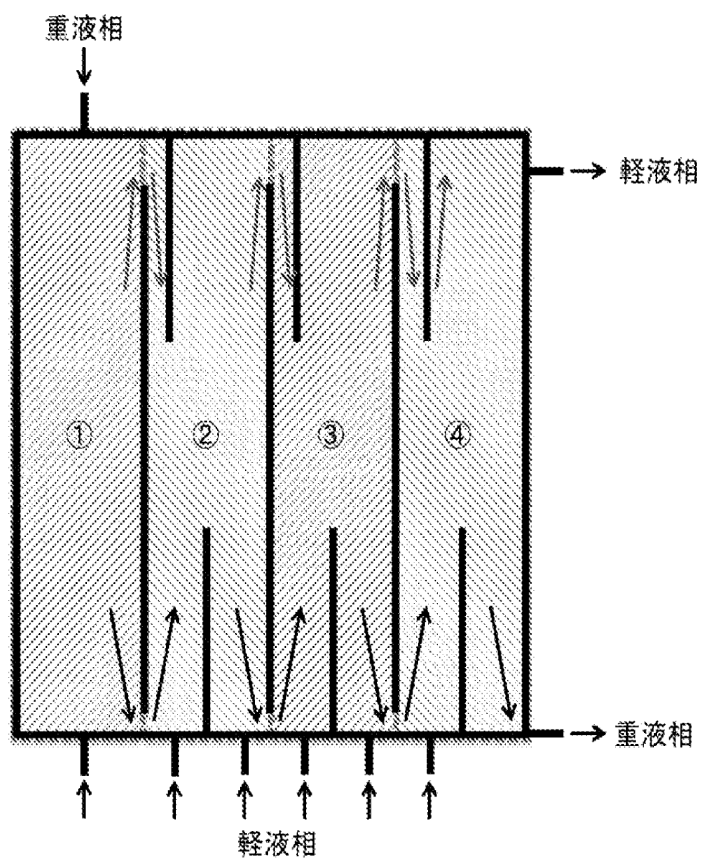
[図12(r)]



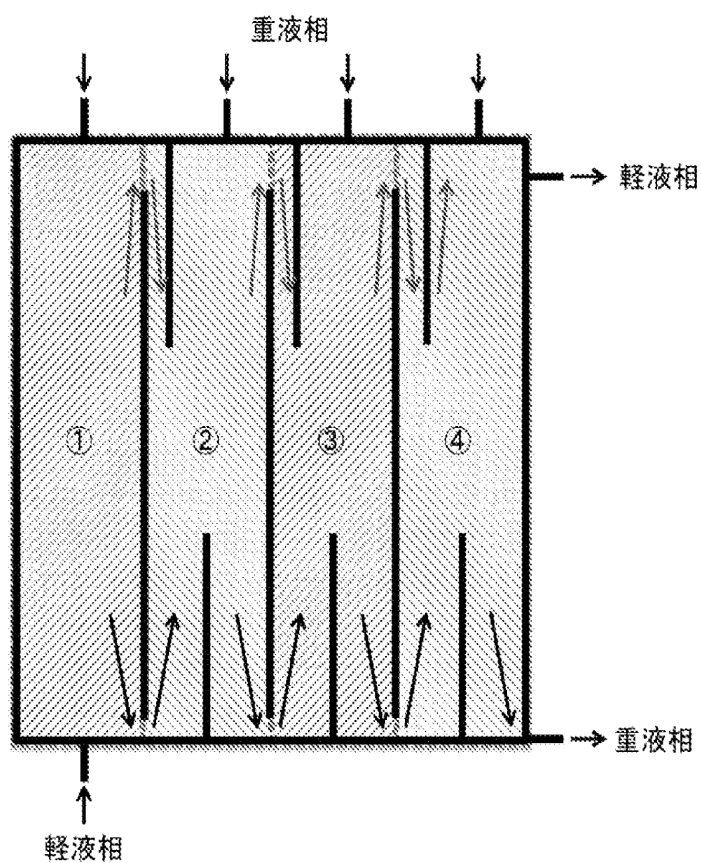
[図12(s)]



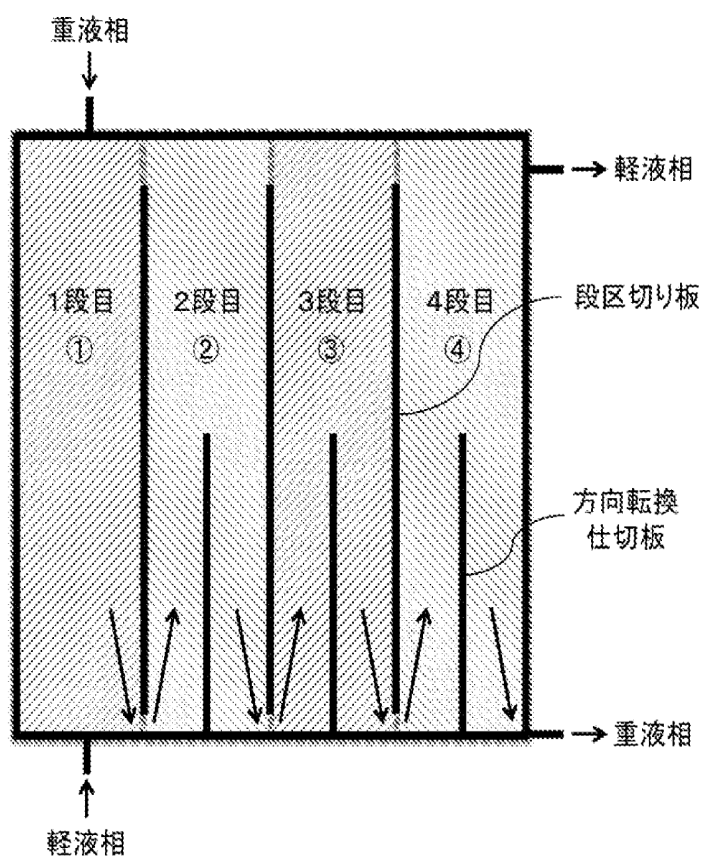
[図12(t)]



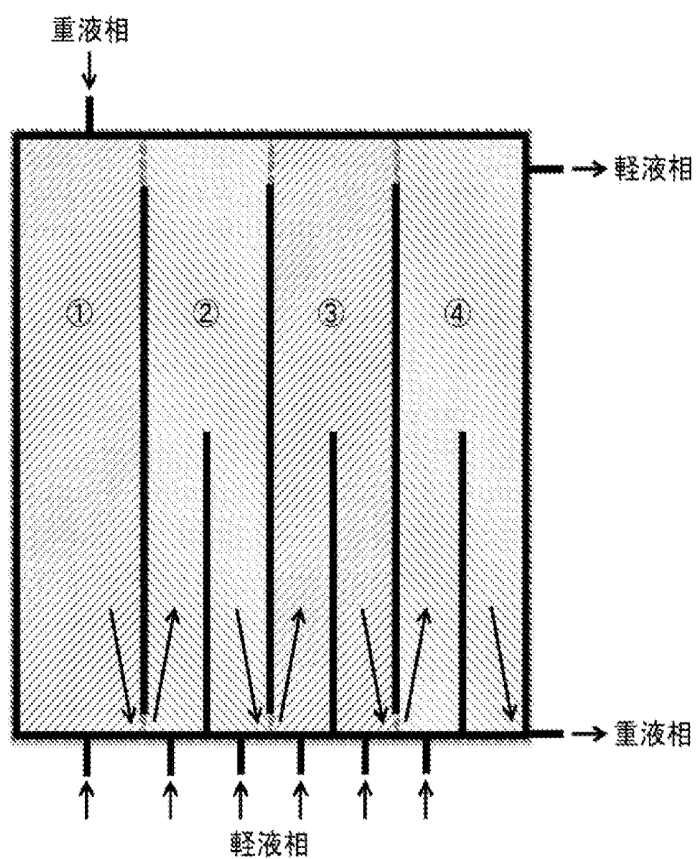
[図12(u)]



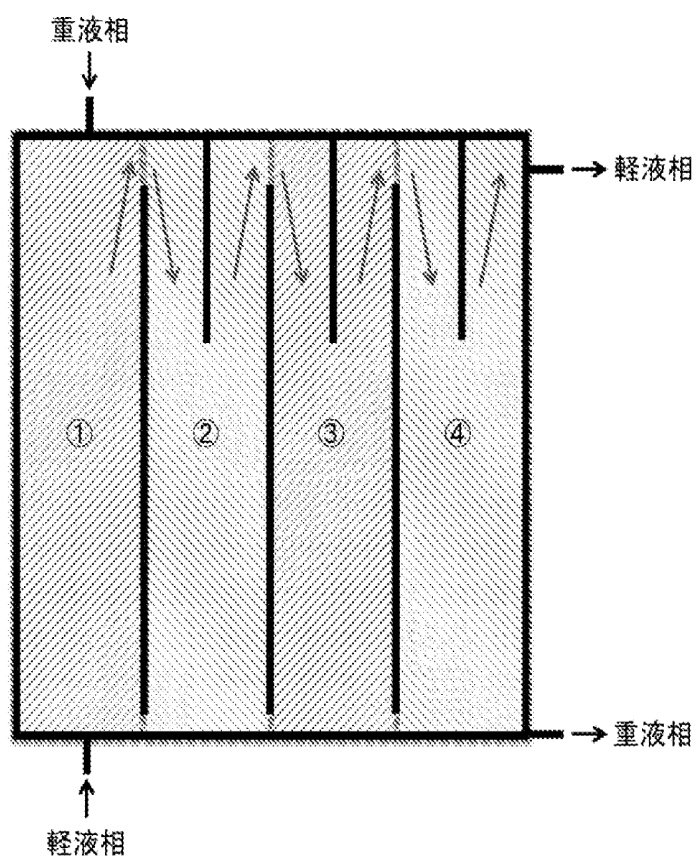
[図13(a)]



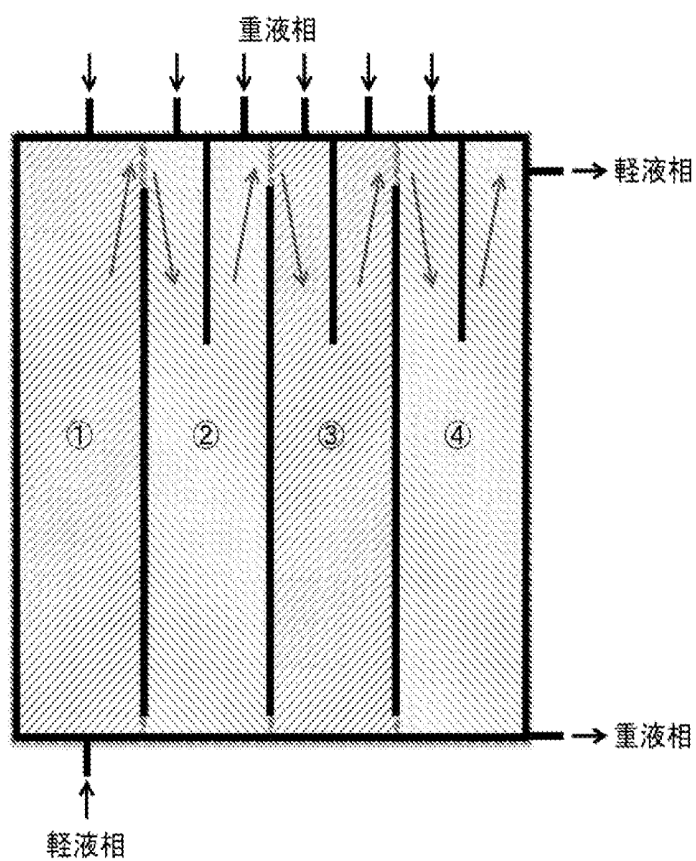
[図13(b)]



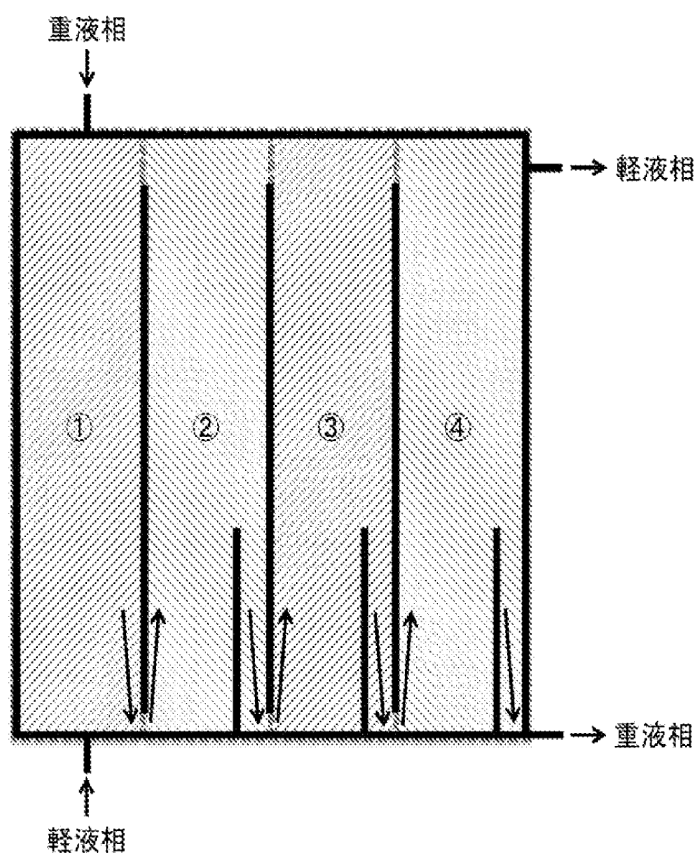
[図13(c)]



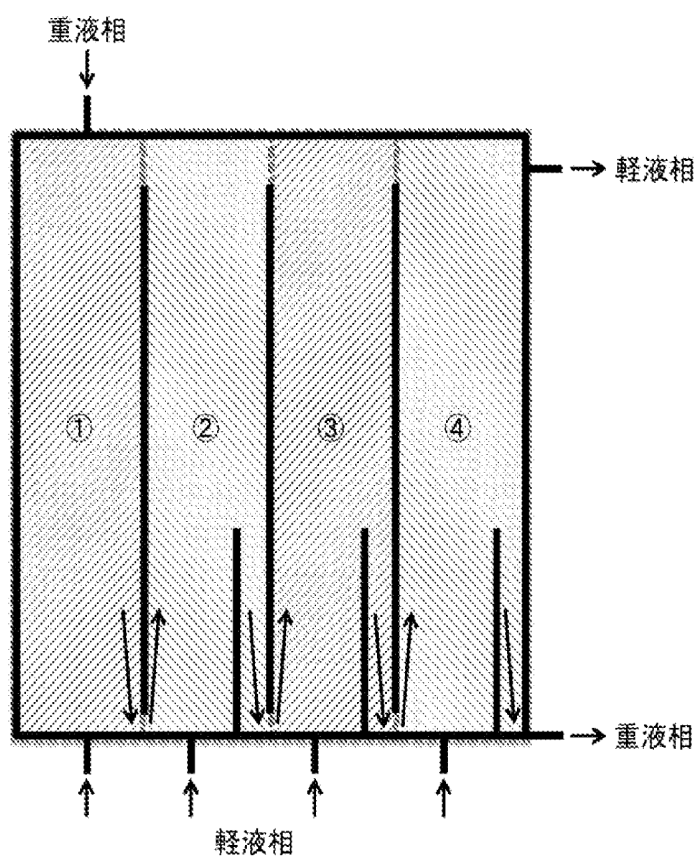
[図13(d)]



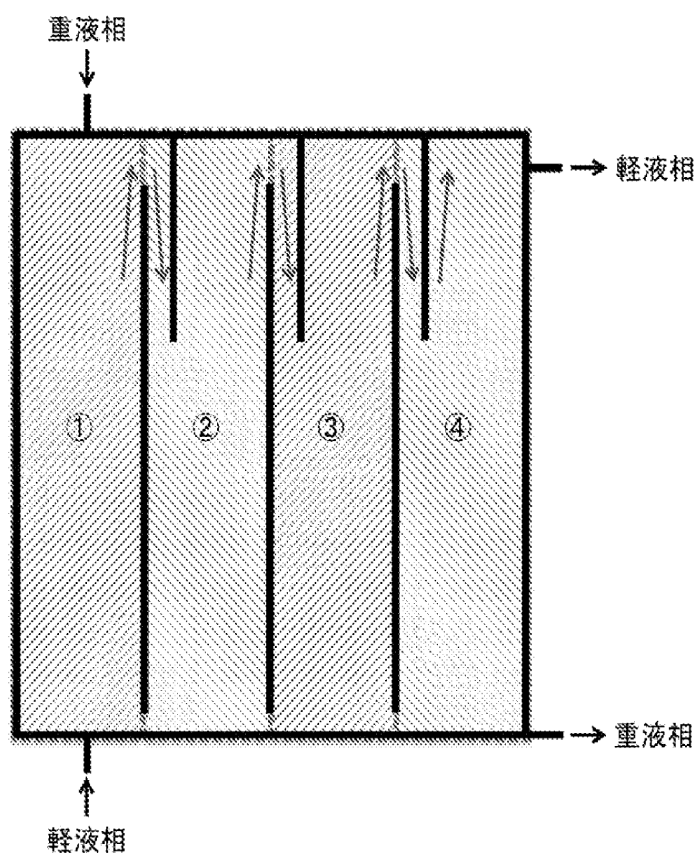
[図13(e)]



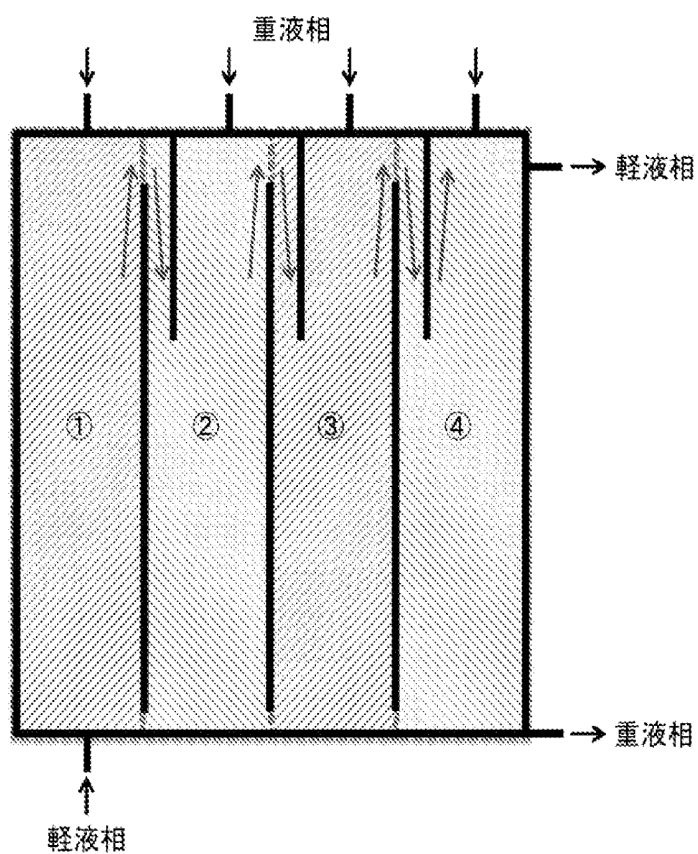
[図13(f)]



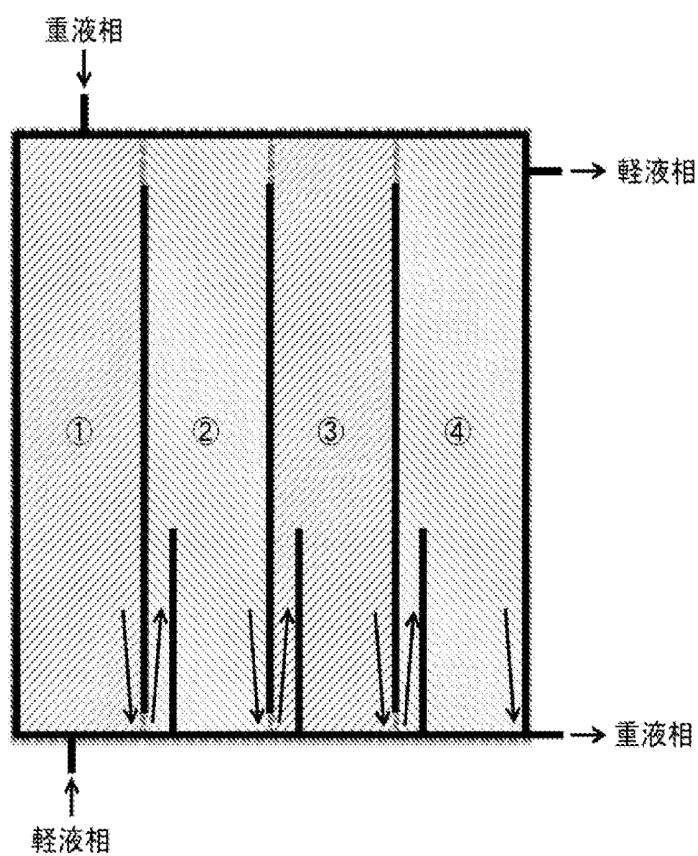
[図13(g)]



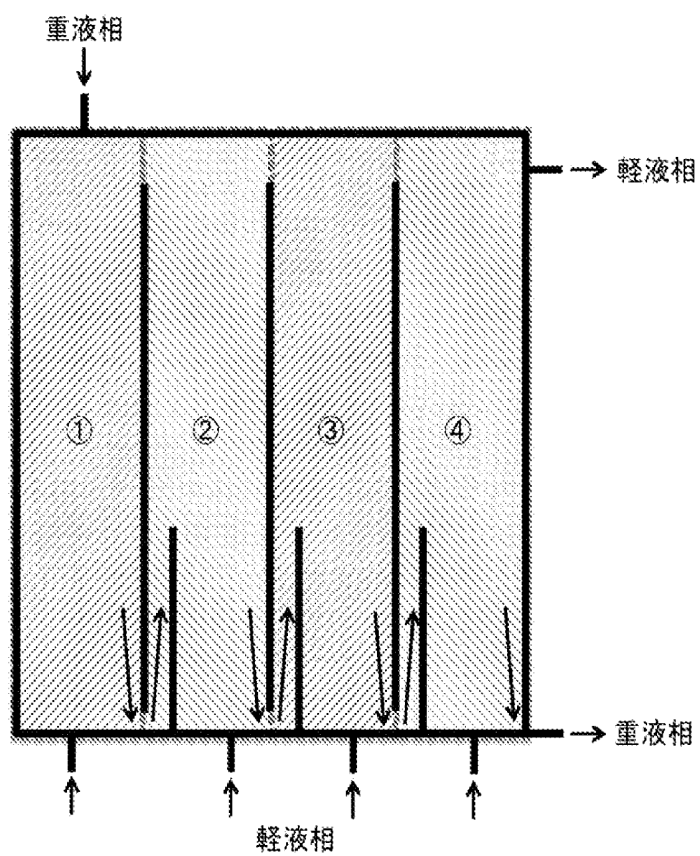
[図13(h)]



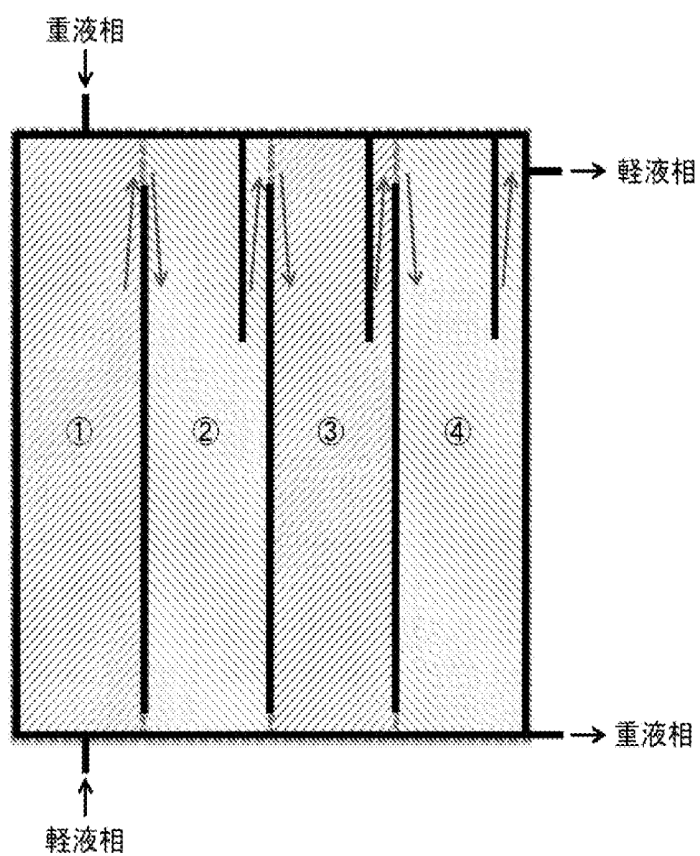
[図13(i)]



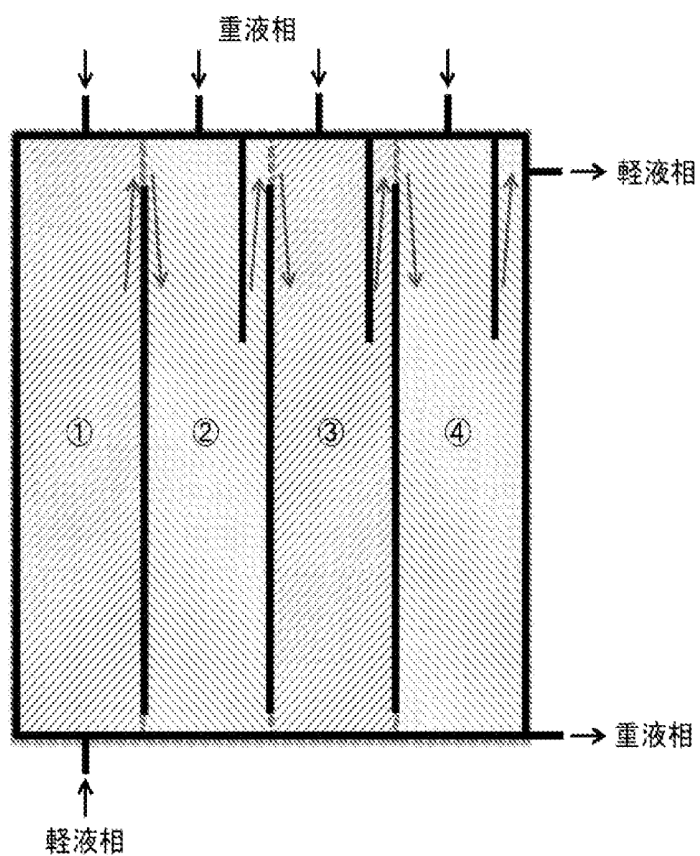
[図13(j)]



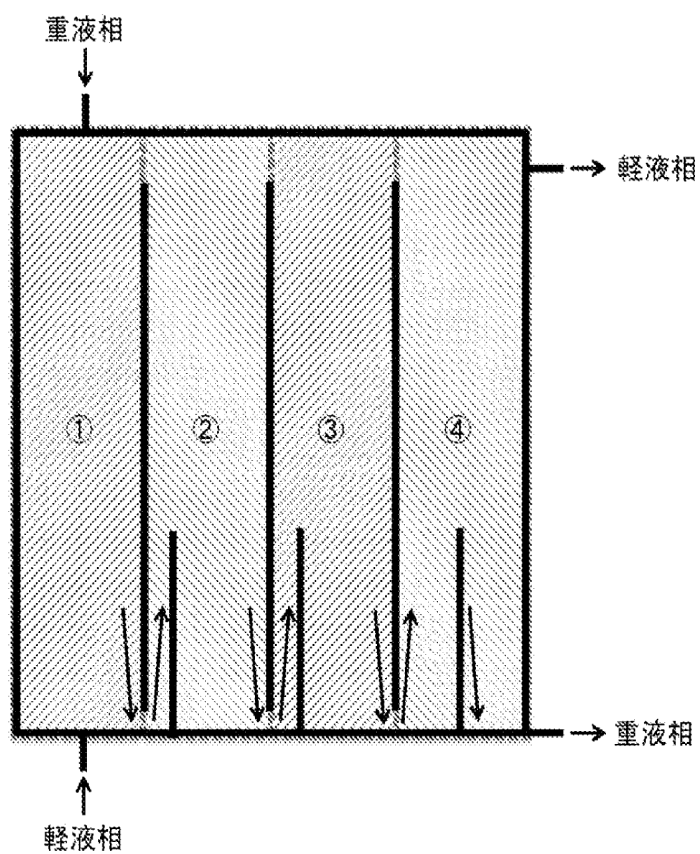
[図13(k)]



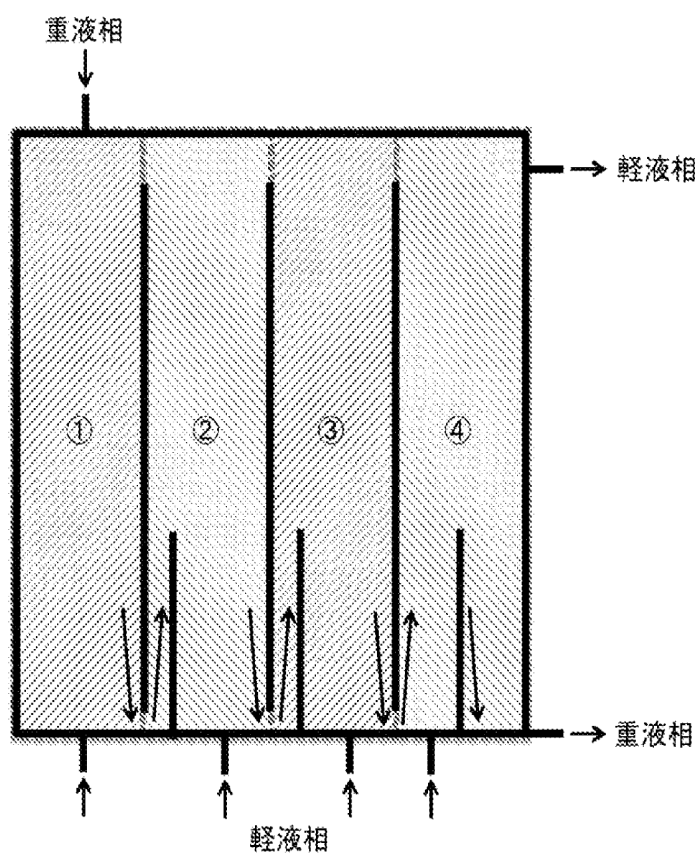
[図13(l)]



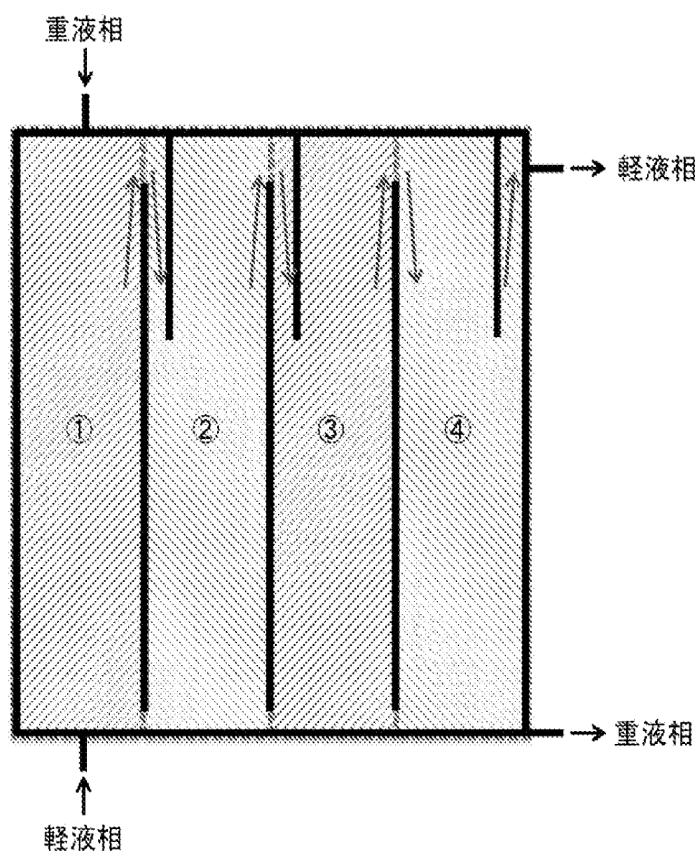
[図13(m)]



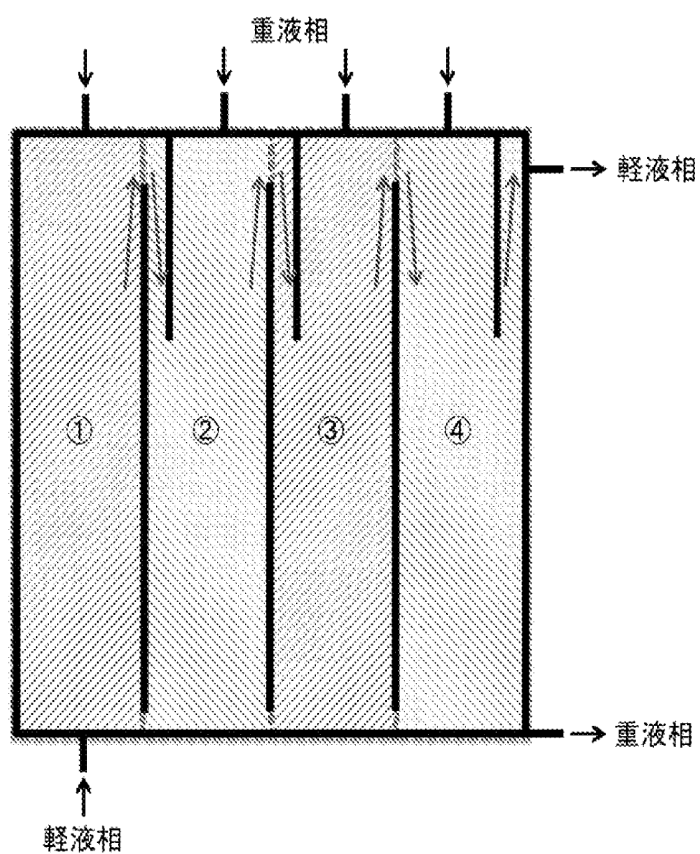
[図13(n)]



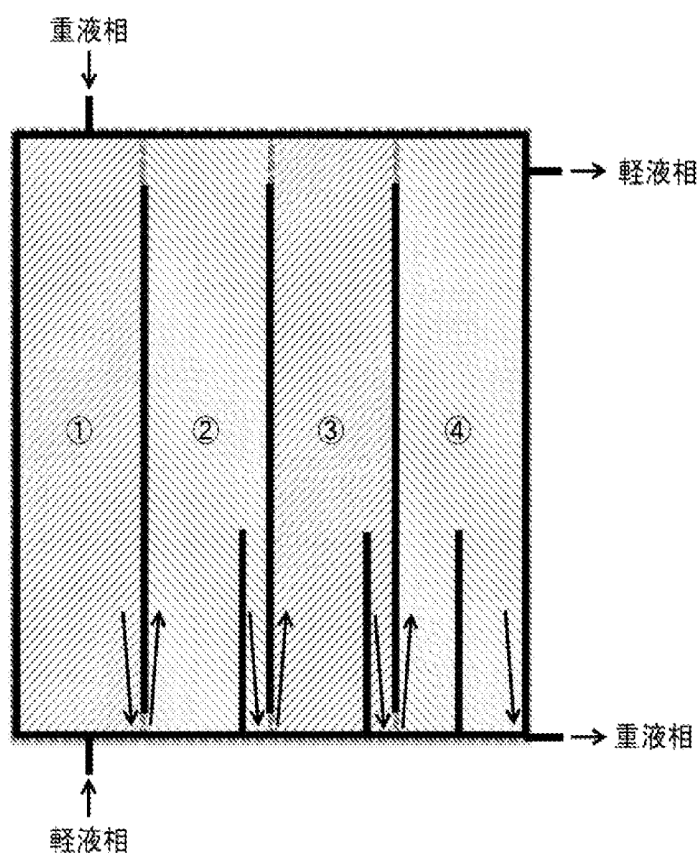
[図13(o)]



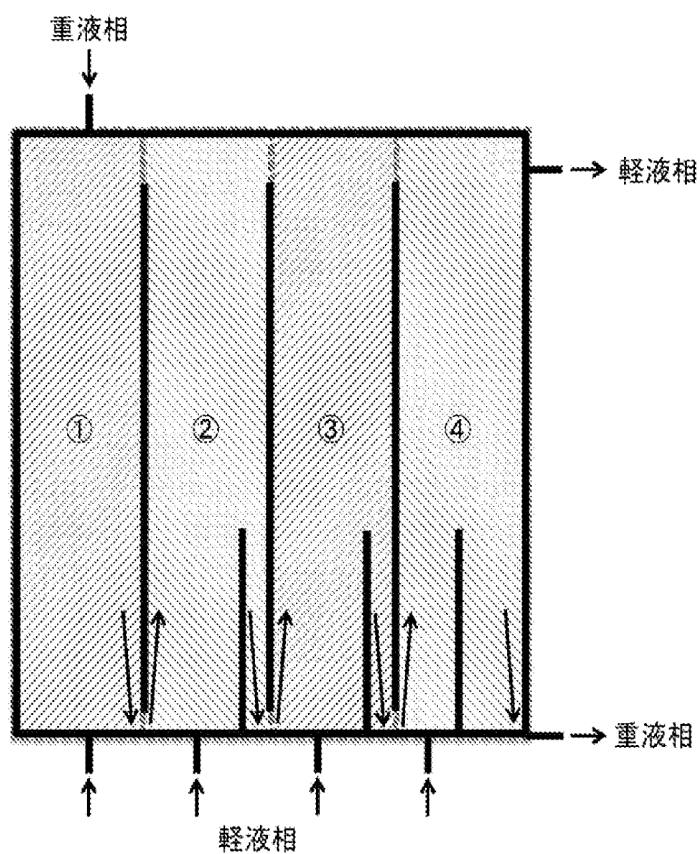
[図13(p)]



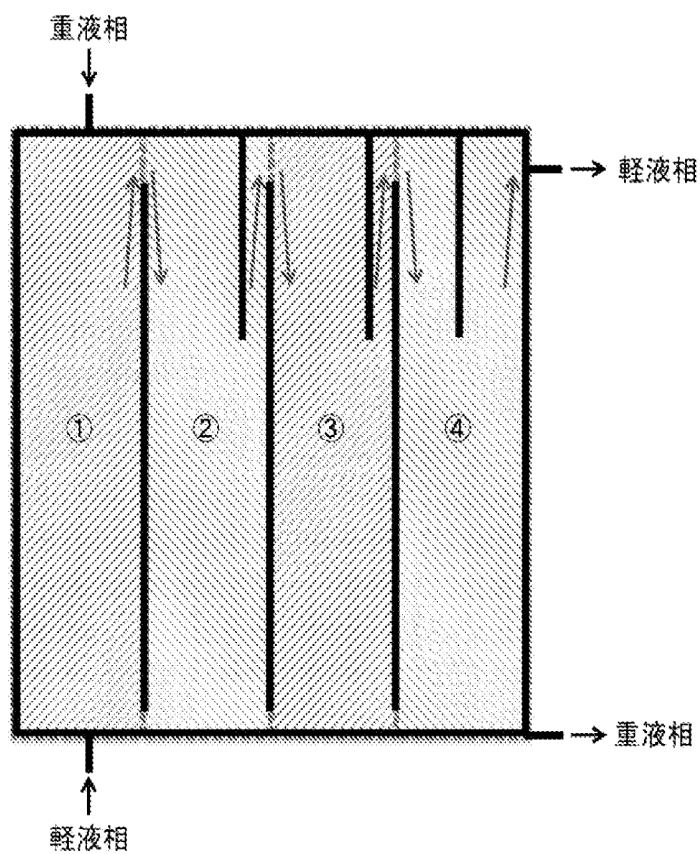
[図13(q)]



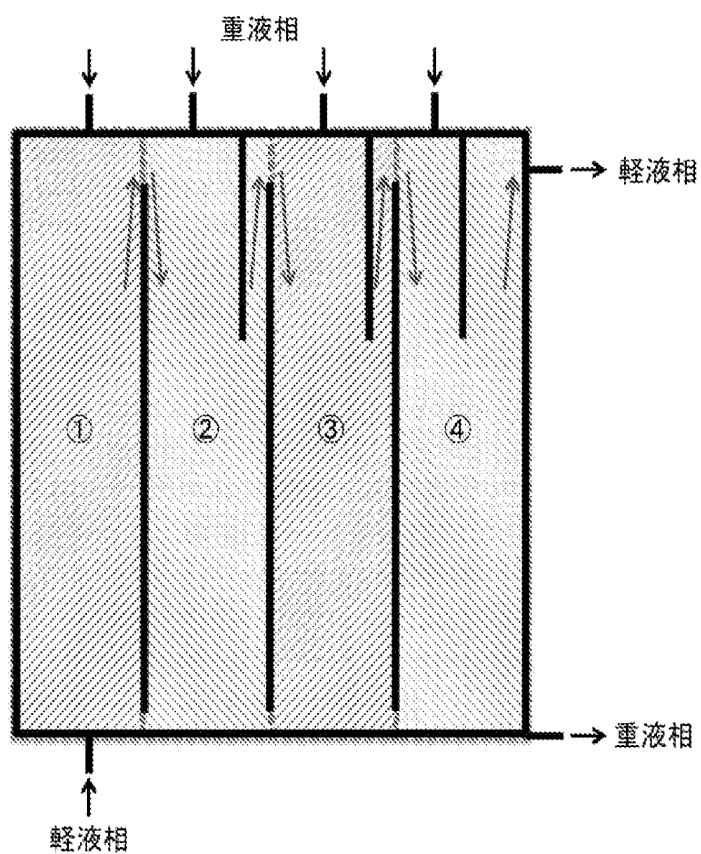
[図13(r)]



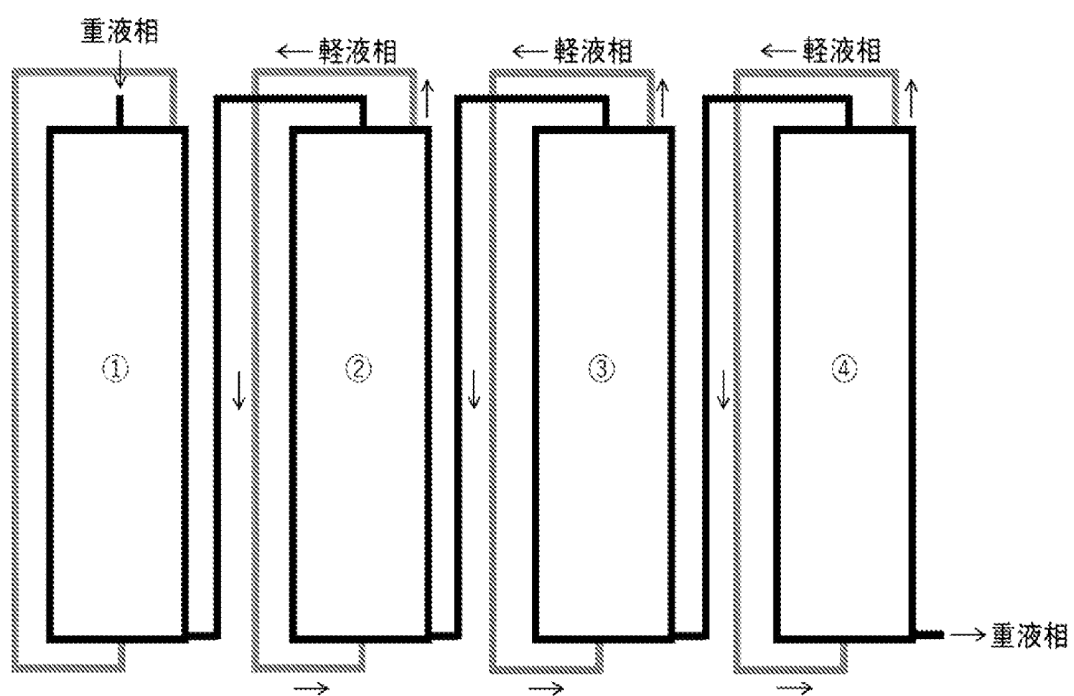
[図13(s)]



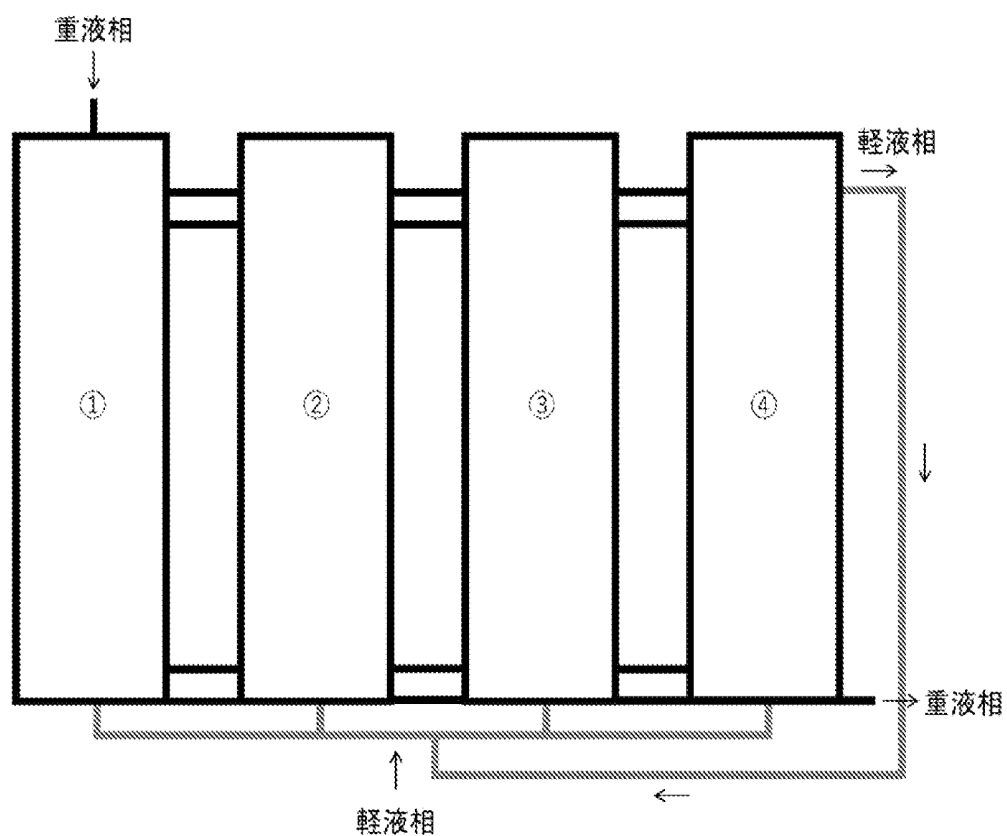
[図13(t)]



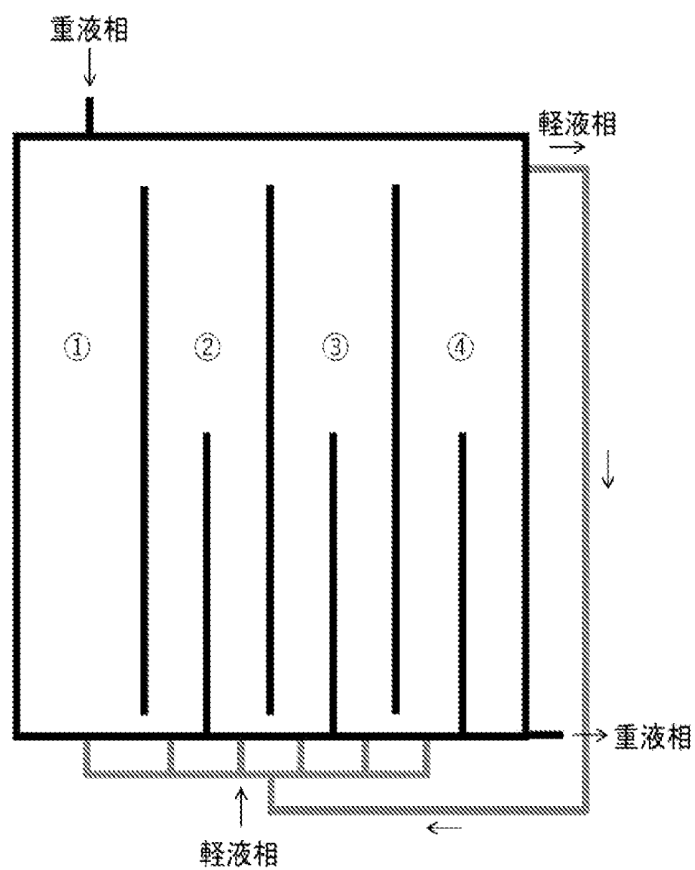
[図14]



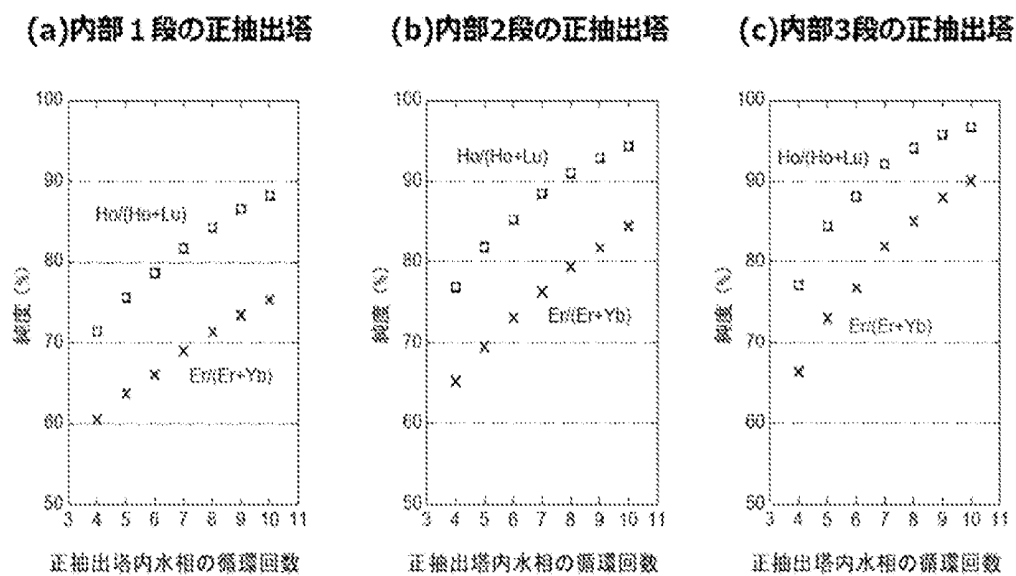
[図15]



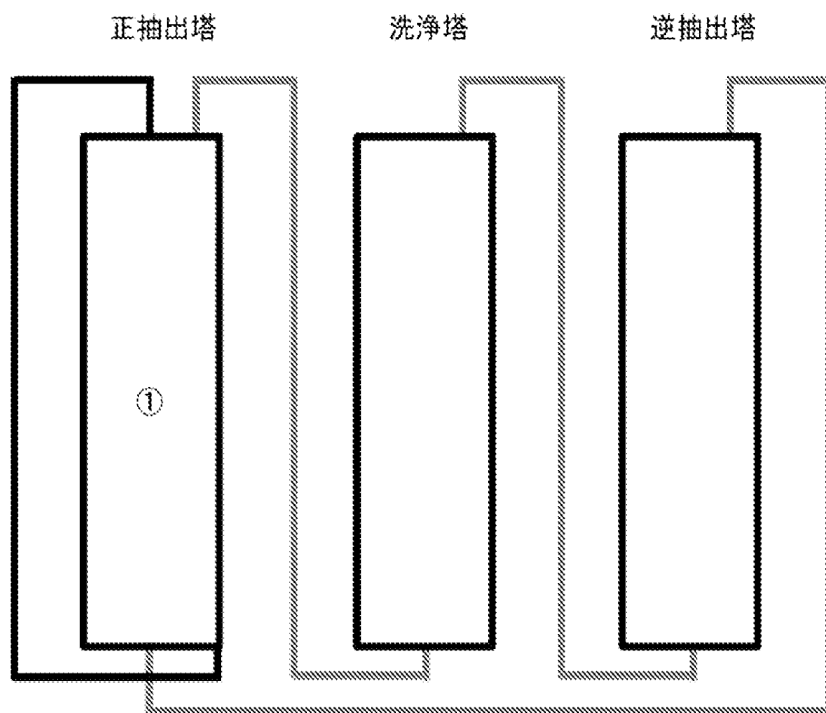
[図16]



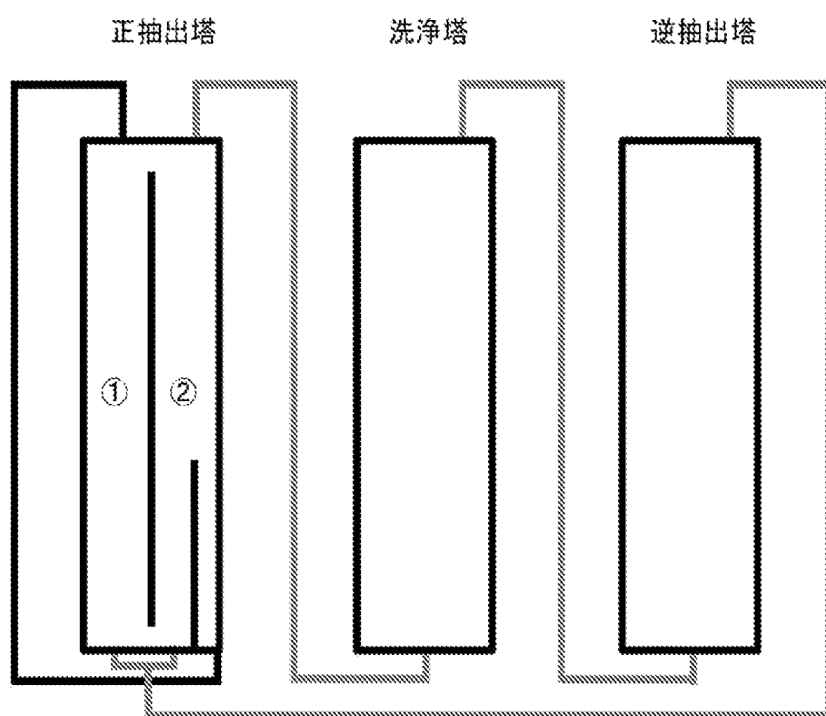
[図17]



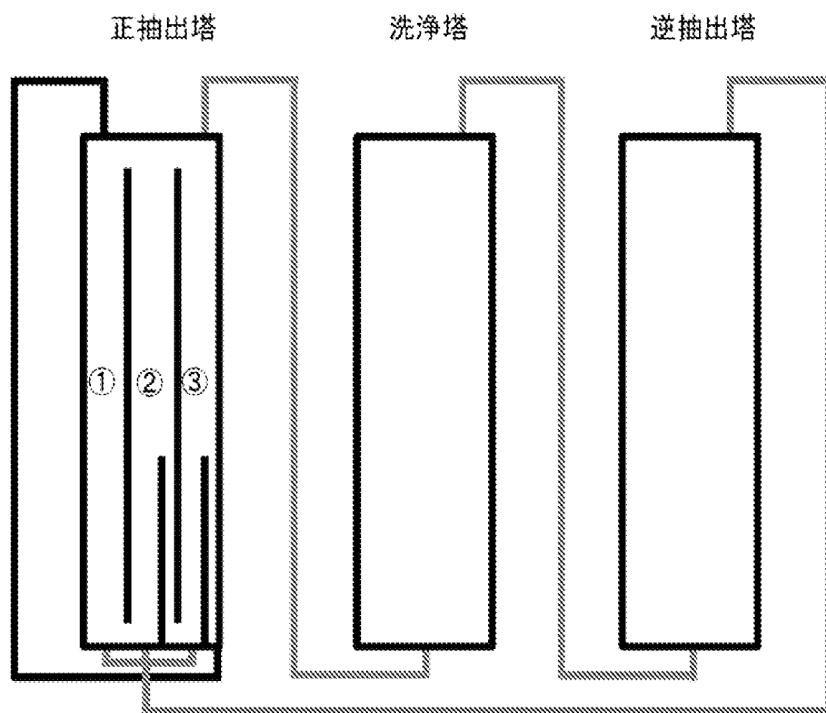
[図18]



[図19]



[図20]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/012669

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B01D 11/04**(2006.01)i

FI: B01D11/04 Z

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01D11/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022

Registered utility model specifications of Japan 1996-2022

Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2016-123907 A (JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY) 11 July 2016 (2016-07-11) claims, paragraphs [0022]-[0024], [0028]-[0032], fig. 3, 5	1-8
X	JP 49-33731 B1 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO LTD) 09 September 1974 (1974-09-09) claims, drawings	1-3, 5-7
X	JP 2001-17802 A (CENTRAL RES INST OF ELECTRIC POWER IND) 23 January 2001 (2001-01-23) claims, drawings	1-2, 5-6
A	JP 2013-144270 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO LTD) 25 July 2013 (2013-07-25)	1-8
A	CN 211713175 U (CHINA NORTH RARE EARTH GROUP HIGH TECH CO LTD) 20 October 2020 (2020-10-20)	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 April 2022

Date of mailing of the international search report

26 April 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/012669

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2016-123907	A	11 July 2016	(Family: none)	
JP	49-33731	B1	09 September 1974	US 3844723	A
				figures, claims	
JP	2001-17802	A	23 January 2001	(Family: none)	
JP	2013-144270	A	25 July 2013	US 2013/0183208	A1
				US 2016/0304986	A1
				EP 2614868	A1
				CA 2802054	A1
				CN 103203120	A
				KR 10-2013-0083850	A
CN	211713175	U	20 October 2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B01D 11/04(2006.01)i FI: B01D11/04 Z		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） B01D11/04		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022年		
国際調査で使用了電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2016-123907 A（国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）11.07.2016（2016-07-11） 特許請求の範囲，[0022]-[0024]，[0028]-[0032]，[図3]，[図5]	1-8
X	JP 49-33731 B1（信越化学工業株式会社）09.09.1974（1974-09-09） 特許請求の範囲，図面	1-3，5-7
X	JP 2001-17802 A（財団法人電力中央研究所）23.01.2001（2001-01-23） 特許請求の範囲，図面	1-2，5-6
A	JP 2013-144270 A（信越化学工業株式会社）25.07.2013（2013-07-25）	1-8
A	CN 211713175 U（CHINA NORTH RARE EARTH GROUP HIGH TECH CO LTD）20.10.2020（2020-10-20）	1-8
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “I” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 15. 04. 2022		国際調査報告の発送日 26. 04. 2022
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 壺内 信吾 4Q 3773 電話番号 03-3581-1101 内線 3468

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/012669

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2016-123907	A	11.07.2016	(ファミリーなし)	
JP	49-33731	B1	09.09.1974	US 3844723 A	
				FIGs, Claims	
JP	2001-17802	A	23.01.2001	(ファミリーなし)	
JP	2013-144270	A	25.07.2013	US 2013/0183208 A1	
				US 2016/0304986 A1	
				EP 2614868 A1	
				CA 2802054 A1	
				CN 103203120 A	
				KR 10-2013-0083850 A	
CN	211713175	U	20.10.2020	(ファミリーなし)	