

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

高速炉燃料再処理パルスカラム技術開発

分離型セトラーによるパルスカラム界面制御法の検討

1988年9月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

- (2) 分離型セトラーの形状はカラム本体にとらわれることなく任意に決定できるため、臨界安全形状、遠隔保守性、レイアウトの融通性など設計上、従来型に比べ有利となった。
- (3) カラム内液密度変化やパルシングの影響を受けないため安定に抽出操作を行うことができる。

目 次

1. まえがき	1
2. パルスカラムの基本	2
3. 従来のパルスカラム界面制御法	3
3.1 構 造	3
3.2 分離型セトラ開発の着目点	5
3.2.1 重液抜き出しコントロール	5
3.2.2 パルスカラムの運転状況	5
3.2.3 パルスカラムの界面検出法	5
3.2.4 界面検出器の保守	5
3.2.5 界面第3相の除去	7
3.2.6 スケールアップ	7
3.3 改良例	7
3.3.1 減圧式重液抜き出し法	7
3.3.2 供給口ノズルの改良	9
4. 分離型セトラによるパルスカラムシステム	10
4.1 分離型セトラシステムの概略フロー	10
4.2 分離型セトラシステムの安定性	12
4.2.1 有機相連続操作運転の安定性	12
4.2.2 水相連続操作運転の安定性	13
4.3 分離型セトラシステムの配置	15
4.3.1 有機相連続	15
4.3.2 水相連続	15
5. 分離型セトラ	18
5.1 分離型セトラの概要	18
5.2 分離型セトラの各部の役割	18
5.2.1 仮静置部	18

5.2.2 相分離部	18
5.2.3 界面制御用堰	21
5.2.4 第3相除去装置	21
5.2.5 付属装置	24
5.3 処理能力	24
5.4 分離型セトラの設計	24
5.4.1 処理能力	24
5.4.2 形状、寸法	25
5.4.3 界面位置	28
5.4.4 第3相除去	31
5.4.5 メンテナンス	31
5.4.6 安全率	32
6. 通水試験	33
6.1 試験条件	33
6.1.1 装置	33
6.1.2 試薬等	33
6.1.3 運転条件	33
6.2 試験状況	36
6.2.1 仮静置部	36
6.2.2 相分離部	36
6.2.3 第3相除去	36
6.3 試験結果	40
6.3.1 分離型セトラの安定性	40
6.3.2 分離型セトラの相分離性能	46
6.3.3 第3相除去性能	46
6.3.4 試験結果のまとめ	47
7. まとめ	52
8. 参考文献	53

図一覧

Fig. 3.1.1	パルスカラムの基本構造	4
Fig. 3.1.2	水相抜き出し量のコントロール法	4
Fig. 3.3.1	減圧式重液抜き出しシステム	8
Fig. 4.1.1	分離型セトラシステムの概略フロー	11
Fig. 4.2.1	ホールドアップの変化に対する排出量の変化	14
Fig. 4.3.1	パルスカラムと分離型セトラの配置（有機相連続）	16
Fig. 4.3.2	パルスカラムと分離型セトラの配置（水相連続）	17
Fig. 5.2.1	仮静置部の構造と液の流れ	19
Fig. 5.2.2	相分離部	20
Fig. 5.2.3	界面制御用堰	22
Fig. 5.2.4	第3相除去装置	23
Fig. 5.4.1	分相時間と硝酸濃度の関係	26
Fig. 5.4.2	分離型セトラ（固定堰型）	27
Fig. 5.4.3	分離型セトラ模式図	30
Fig. 6.1.1	分離型セトラ試験フロー図	34
Fig. 6.3.1	流量及び流量比の界面位置の変動に与える影響	42
Fig. 6.3.2	分離型セトラへの供給液流と界面位置	43
Fig. 6.3.3	有機相流量と界面位置の関係	44
Fig. 6.3.4	水相流量と界面位置の関係	45
Fig. 6.3.5	分離型セトラへの供給流量の相分離性能への影響	48
Fig. 6.3.6	各相の流量とエマルジョン相生成の関係	49
Fig. 6.3.7	相分離部での滞留時間とエマルジョン相生成の関係	50
Fig. 6.3.8	第3相抜き出し状況	51

表 一 覧

Table 3.1.1 パルスカラム各部の役割	3
Table 3.2.1 界面検出器の原理による比較と適用性	6
Table 6.1.1 試験条件	35
Table 6.3.1 運転記録表	41

写真一覧

Photo 6.2.1	定常状態の分離型セトラ	37
Photo 6.2.2	仮静置部	37
Photo 6.2.3	相分離部	38
Photo 6.2.4	模擬第3相の生成	38
Photo 6.2.5	第3相の除去	39

1. まえがき

従来、パルスカラムの界面はパルスカラム抽出器内部の分相タンク内に生成され、その界面位置を制御している。

一部外国において、界面制御を分離型と称してレポート⁽¹⁾に散見できるが、その詳細については報告されていないようである。

そこで今回、これまでのパルスカラムの概念を超えて、まったく新しくパルスカラム本体（有効抽出部）と分相タンク（相分離部）を分離したシステム（分離型セトラシステム）を考案し、分離型セトラを試作し、実験を実施した。

実験の結果から、従来の界面制御法に比べ、より安定に運転が行え、また、メンテナンス上も効率的であるという確信を持ち、今後実規模器の設計、製作及びその能力調査を行うのに必要な基礎データを得たので報告する。

2. パルスカラムの基本

パルスカラムは溶媒抽出装置であり、核燃料の再処理においてミキサ・セトラ等と同様、核分裂生成物 (PPs) の除去や、ウラン、プルトニウムの精製、分離に使用されている。

ここで、パルスカラム抽出器の基本的役割は、

- ① 抽出操作が行われ、その抽出効率が高いこと。
- ② 有機相と水相が分離して取り出せること。
- ③ ①、②が長期間安定であること。

であり、これを満足するためにパルスカラム内において、有機相と水相を向流接触させて連続的に抽出を行い、有機相か水相の一方を液滴として適度に分散させ、接触界面積を広くし抽出効率を高めている。さらに、2相を別々に取り出すために、底部又は頂部に界面を生成させて2相を分離し、重液の抜き出し量をコントロールして界面位置を安定に保ち、パルスカラム内の縦方向の液位変動を防ぎながら、有機相と水相を個々に取り出している。

また、これらを長期間安定に保つことが出来る様に、種々の装置開発がなされている。

3. 従来のパルスカラム界面制御法

3.1 構造

Fig. 3.1.1 に従来のパルスカラムの基本滴な構造と、主要な液の流れを示す。

パルスカラムは頂部の分相タンクと、目皿の配置された有効接触部、それに底部分相タンクから構成されており、それぞれの役割はTable 3.1.1 の通りである。

有機相は下部に供給され上部からオーバーフローで流出し、水相は上部から供給され、下部から抜き出し流量をコントロールされて排出される。またパルスカラムに印加するパルスは、下部から供給する。

Fig. 3.1.2 に有機相連続の場合の水相抜き出し量のコントロール法を示す。ここでは有機相、水相の界面はパルスカラム底部の分相タンク内で生成され、界面検出器により連続的に位置が検出される。水相抜き出し量のコントロールは、検出された界面位置とともに、コントロールバルブに信号が送られ、その開度が調節されて抜き出し量が決定される。

界面検出方法は差圧法が一般的であるが、分相タンクの加工を必要としない超音波法等も開発されている。

Table 3.1.1 パルスカラム各部の役割

	有機相連続の場合	水相連続の場合
頂部分相タンク	・有機相流出液中への水相エントレメントの防止	・2相界面の生成 ・相分離
有効接觸部	・水相液滴の生成と分散 ・溶質の抽出、逆抽出	・有機相液滴の生成と分散 ・溶質の抽出、逆抽出
底部分相タンク	・2相界面の生成 ・相分離	・水相流液中への有機相エントレメントの防止

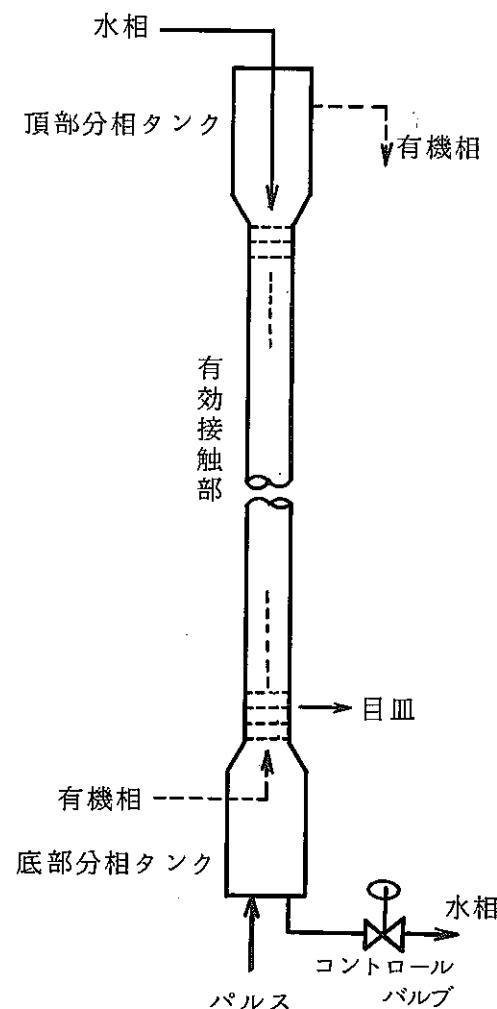
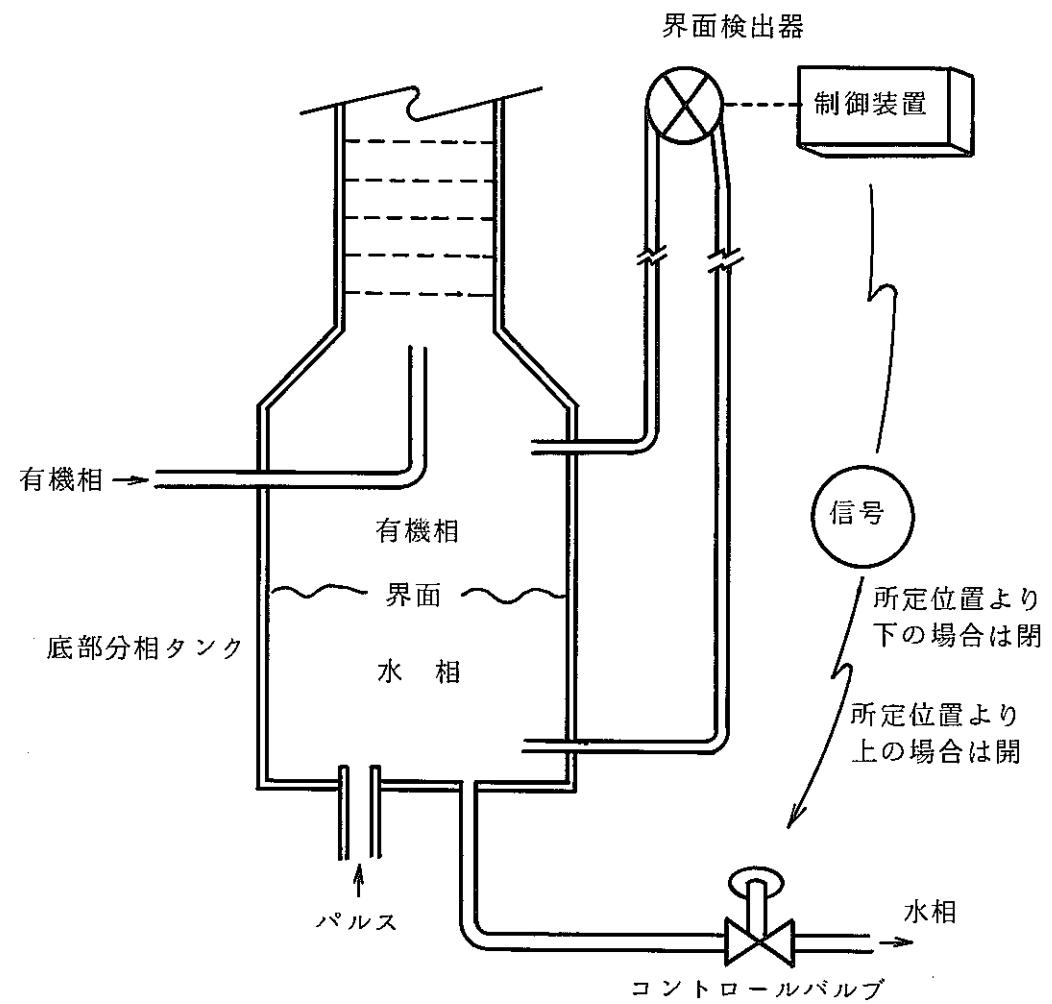


Fig. 3.1.1 パルスカラムの基本構造

Fig. 3.1.2 水相抜き出し量のコントロール法
(有機相連続の場合)

3.2 分離型セトラ開発の着目点

3.2.1 重液抜き出しコントロール

従来のパルスカラムシステムは、界面位置のコントロールのため重液抜き出し量を高精度でコントロールする必要があり、この高精度コントロールのため複雑なコントロールシステムが組み込まれている。

3.2.2 パルスカラムの運転状況

パルスカラムを運転するためには、有機相、水相の供給及びバルサーによるパルスの印加が不可欠であり、また差圧伝送器による界面検出では分相タンク内に空気が供給され、運転条件によっては昇温あるいは冷却等の操作も行われる。

従来法では、界面はパルスカラム本体の頂部あるいは底部に生成し制御されるため、前記パルス印加等の震動が界面に伝わり、界面の揺れの原因となる可能性がある。

また、供給液流量の変動、液温の変化によるカラム内各相のホールドアップ量の変化及び液密度の変化が、界面位置を変動させる要因となりえる。

これらへの対応としては、従来上記の重液抜き出しコントロールによっている。

3.2.3 パルスカラムの界面検出法

従来法では、有機相連続時のパルスカラム界面は、パルスカラム底部の分相タンクに生成させて制御している。

この界面位置を検出する方法として、液の密封性等を考慮して、一般的には差圧式の界面検出器が使用されているが、分相タンクを加工しない超音波方式等の新しい技術も開発されてきている。

Table 3.2.1 に界面検出器の適用性の比較を示す。

東海再処理工場のミキサ・セトラ界面の検出に採用されている電極式は、すぐれた利点を持ちながら従来のパルスカラムシステムでは液の密封性の問題から、適用が難しいことがわかった。

3.2.4 界面検出器の保守

パルスカラムシステムに設置してある界面検出器の保守は、その装置の使用目的から通常、放射能下での作業となる。

そこで、補修や交換は遠隔で容易に行えることが望ましい。

Table 3.2.1 界面検出器の原理による比較と適用性⁽²⁾

	構 造	コ 料	検出部の交換 メンテナンス	検出感度	使用実績 信頼性	従来法へ の適用性	分離型セトラ への適用性
差圧式	普通	普通	困難	普通	○	○	○
電極式	簡易	安価	容易	良好	○	×	○
比熱式	普通	普通	容易	普通	△	×	×
超音波式	複雑	普通	容易	普通	△	○	○

3.2.5 界面第3相の除去

パルスカラム内に生成した第3相は、通常分相タンク内の界面に蓄積する。この第3相は定期的にパルスカラムから取り除かれるが、運転中の除去は難しい。

3.2.6 スケールアップ

パルスカラムにおけるスケールアップ上の注意点は、その抽出器としての性能に関するところを除けば、主に臨界にあると考える。

パルスカラム本体では、アニュラータイプ（中空円筒形）等の開発が行われており、分相タンクにおいても臨界形状が考慮され開発されている。

分離型セトラシステムの開発に当たり、当初よりこれらの着目点が全て念頭にあったわけではないが、開発段階でこれらの項目について、従来のシステムに比べより効率的で安定性の高いシステムを開発出来る目安を得ることが出来た。

3.3 改良例

ここでは、より高い安定性をもとめてこれまでに行われた改良の例を示す。

3.3.1 減圧式重液抜き出し法⁽³⁾

本方式は上記3.2.1に上げた重液抜き出しコントロール法の精度及び安定性の向上を目的に開発された方法である。

Fig. 3.3.1に減圧式重液抜き出しシステムの概略を示す。

本方式では、重液抜き出し量のコントロールは、流量制御槽の減圧度の調整によりなされ、重液は一旦パルスカラム内液より高い位置に設置してある流量制御槽に昇液され、そこから、流出量をコントロールされて減圧シール槽に流下し、次工程に送られる。ここで、流量制御槽の減圧度は、界面検出器で検出された界面位置を基に流量制御槽内の液位と減圧度とのバランスを取りながら行われる。この方式によると、装置の故障等のトラブルが発生しても、パルスカラム内の液が流出することがなく、また、重液抜き出しにポンプ等の可動部が無いため、これらの故障による運転への影響の心配がない。しかし、減圧系へのミストの上昇に対する対策が必要であり、また、コントロールシステムが複雑となる。

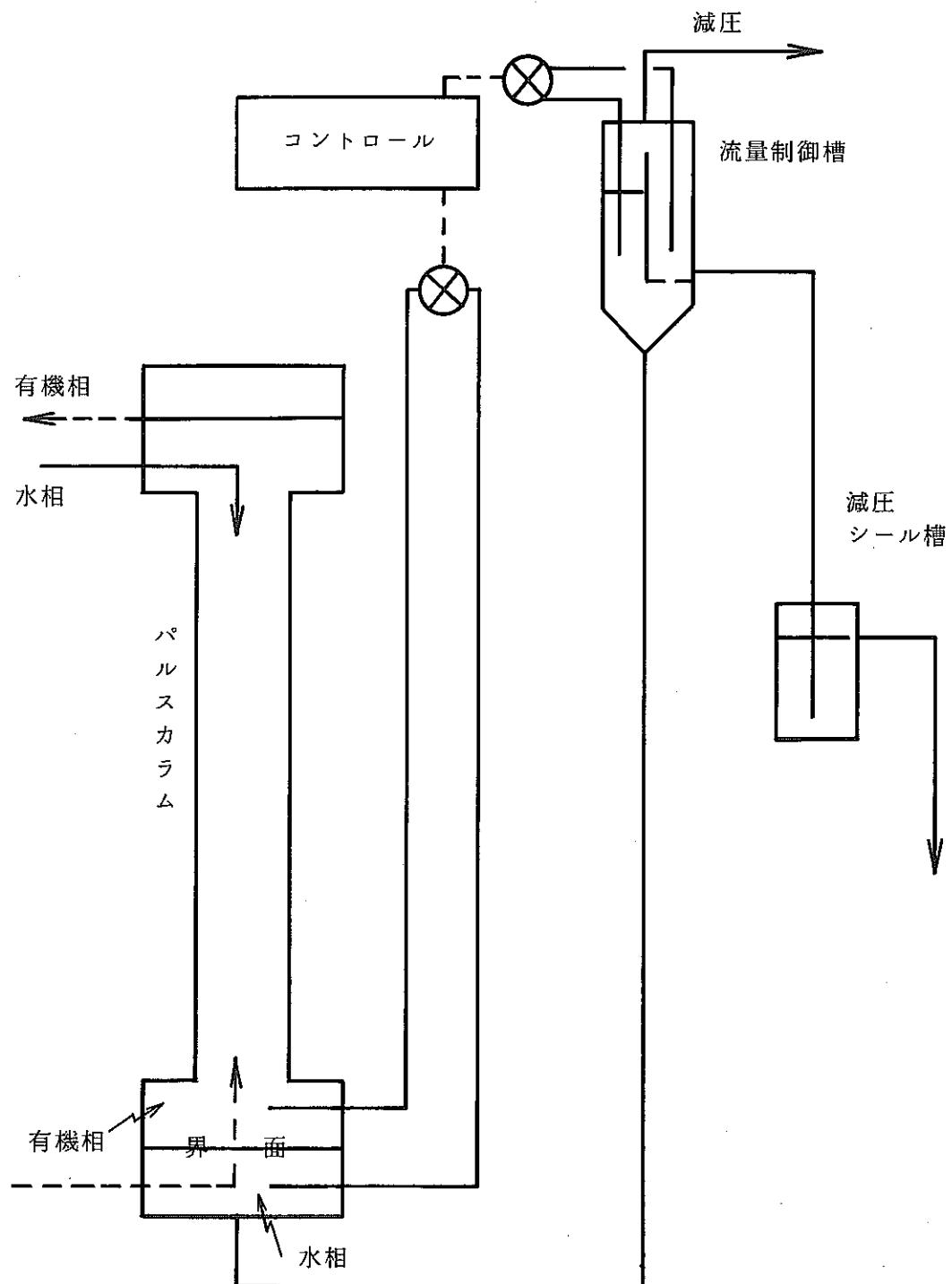


Fig. 3.3.1 減圧式重液抜き出しシステム

3.3.2 供給口ノズルの改良

パルスカラム無いで供給液の初期分散率を向上させるため、供給口ノズルの形状がいくつか工夫されている。

一般的にこれらの形状はリング状の多孔式のものであり、このようなノズルと供給液の脈流を防止する機構（ヘッドポットによる重力流下方式等）を備えた供給システムにより、前記3.2.2で述べたような、供給液流入による界面への影響は、ほとんどなくなった。

4. 分離型セトラによるパルスカラムシステム

4.1 分離型セトラシステムの概略フロー⁽⁴⁾

Fig. 4.1.1 に分離型セトラシステムのフロー図を示す。

パルスカラムに供給される液は、従来と同様に有機相しパルスカラムの下部から供給され水相は上部から供給される。

また有機相連続の場合、有機相がパルスカラムの上部から排出されるものも従来と同じであるが、水相については従来パルスカラム底部分相タンクに生成した界面により相分離され、水相のみをパルスカラム下部から抜き出していたが、本システムではパルスカラム内に界面を生成させず、カラム下部に落下してきた水相液滴の全てを抜き出し、パルスカラム外部に設けた分離型セトラに供給する。この際、水相液滴と共に連続相である有機相も同伴してくる。しかし、分離型セトラ内に生成した界面により相分離され、有機相は再びパルスカラム下部に戻される。なお、分離型セトラで分離され静置した水相は、オーバーフローにより次工程に流出する。

また、分離型セトラ内に生成した界面に第3相が蓄積した場合は、界面位置に設置した第3相抜き出しラインから、水相及び有機相に第3相を同伴させて抜き出し、フィルターで濾過する。

そして、その濾過液は再び分離型セトラに戻される。

次に有機相連続の場合、液の供給については有機相連続の場合と同じであるが、液の抜き出しについては有機相は上昇してきた液滴の状態で水相と共にオーバーフローによりカラム上部から流出し、分離型セトラに供給され分離後、水相はパルスカラムに戻され、有機相は系外に流出する。

また水相については、カラム下部から抜き出され、カラム上部に有機相の界面が出来ず、なおかつ水相が単独で有機相ラインに排出しない位置（有機相出口より若干低い位置）まで昇液し、オーバーフローさせ排出する。

なお、第3相の抜き出しについては、有機相連続の場合と同じである。

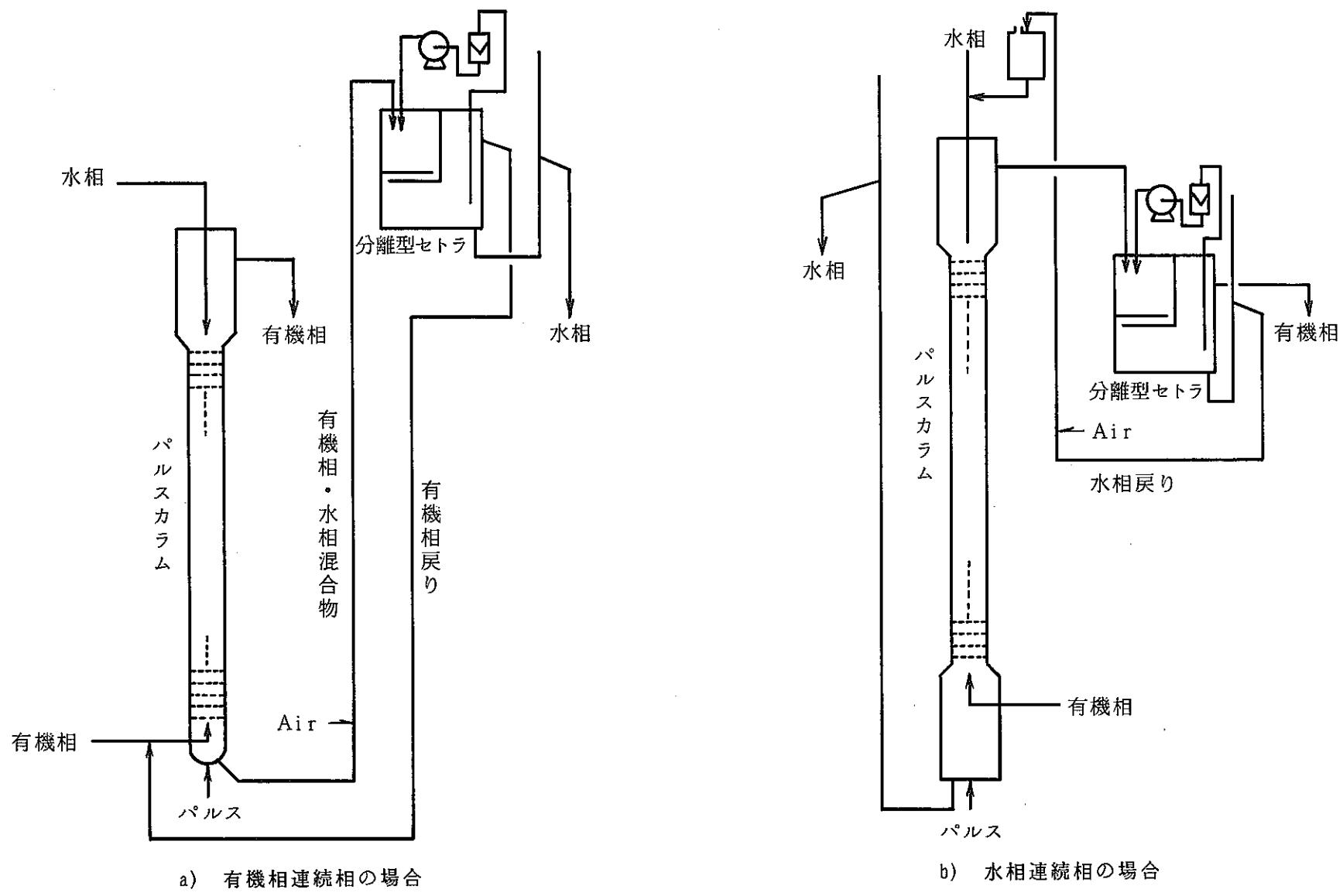


Fig. 4.1.1 分離型セトラシステムの概略フロー

4.2 分離型セトラシステムの安定性

本分離型セトラシステムは、従来型と異なり水相の抜き出し量によりパルスカラム内の液位が変動することなく、パルスカラム内の液位は有機相出口のオーバーフロー位置に固定される。

すなわち、従来の様に水相抜き出し量をコントロールして一定液位を保つのではなく、一定容量の容器の中に供給される液が、その容器がすでに液で満たされている場合、供給された液量だけ容器から溢れる様に、分離型セトラシステムも定常状態では、供給された水相及び有機相がそれぞれその供給量だけ自動的に出口からオーバーフローする様なシステムとなっている。

このため、通常の運転では水相の抜き出し量をコントロールする必要はなく、液位及び界面位置は常に安定している。

これらのことについてより詳細に説明する。

4.2.1 有機相連続操作運転の安定性

有機相のパルスカラムへの供給は、パルスカラム下部に分離型セトラからの戻りと合流して供給される。パルスカラムからの排出は、カラム上部の液面からオーバーフローでカラム外に流出する。また、分離型セトラへも水相との混合液として一部送られるが、分離型セトラの有機相ホールドアップが一定であれば、分離型セトラに供給された量だけパルスカラムに戻ってくる。従って、パルスカラムから系外に排出される有機相の量は、定常状態であれば、系外からパルスカラムに供給された量と同一になる。また、カラム内及び分離型セトラ内の有機相のホールドアップがなんらかの原因で変化した場合は、その変化に応じて流出量が変化するが、再び平衡になった時点で、排出量は供給量と等しくなり安定する。

次に水相について考えると、カラム内に供給された水相は液滴としてカラム底部に達し、その全量と有機相の一部が混合液として分離型セトラに供給され、2相に分離し分離型セトラの界面制御用堰をオーバーフローして系外に排出される。

この水相のオーバーフロー位置は、定常状態時の液の密度と各相のホールドアップから計算された位置に設置しておく、定常運転では界面が安定しているためホールドアップの変化がなく、分離型セトラに供給される水相と同量が分離型セトラから排出

される。従って、パルスカラム内のホールドアップの変化が無ければ、パルスカラムに供給される水相と同量が常に分離型セトラから排出される。また、パルスカラム内や分離型セトラ内の水相のホールドアップが変化した場合、有機相時と同じく変化している間は各液の排出量も変化するが、平衡になった段階で排出量も再び安定する。

なお、パルスカラム内液のホールドアップが変化する要因としては種々あるが、分離型セトラ内の液のホールドアップが変化する原因としては、液の密度が変化した場合のみであり、パルスカラムの運転条件が直接界面位置に影響を与えることはない。

Fig. 4.2.1 にホールドアップの変化に帶する排出量の変化の概念を示す。

同図からわかる様に、微小時間に変化したホールドアップ量 $\frac{dh}{dt}$ から有機相排出量の変化量は $\frac{dh}{t+dt} - \frac{dh}{dt}$ となる。つまり、ホールドアップの変化加速量が排出量の変化量として表れる。

4.2.2 水相連続操作運転の安定性

システムとしてのフローは有機相連続時と異なるが、ホールドアップの変化に帶する排出量の変化は同様である。

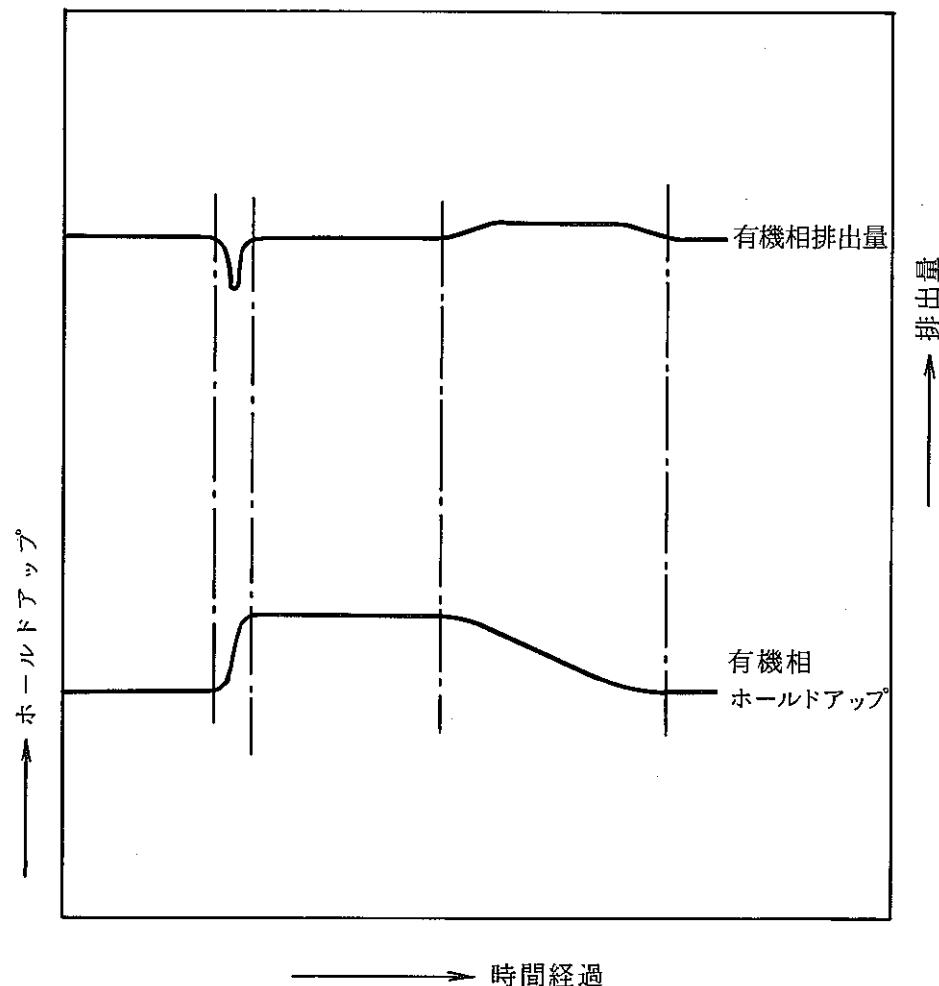


Fig. 4.2.1 ホールドアップの変化に対する排出量の変化

4.3 分離型セトラシステムの配置

4.3.1 有機相連続

Fig. 4.3.1 に有機相連続のときのパルスカラム及び分離型セトラの基本的な配置を示す。

有機相連続においてパルスカラム及び分離型セトラを配置する場合の留意点としては、なんらかの原因によりカラム内各相のホールドアップや液の密度が変化しても、分離型セトラからの有機相の戻りが、スムーズに流下する様に配慮することである。

分離第1サイクルの抽出カラムを例に分離型セトラの位置を計算すると、カラム内が水相供給液で満たされるという様な最悪の条件を考慮して、水相、有機相の各々の液密度から、パルスカラム液面の1.4倍以上の高さに分離型セトラの液面を確保すれば、有機相の流れを阻害することはない。

ただし、配管中に空気溜りとなる所が無い様、配管設計を行う必要がある。

4.3.2 水相連続

Fig. 4.3.2 に水相連続のときのパルスカラム及び分離型セトラの基本的な配置を2例示す。

水相連続の場合、カラム液面から流出する有機相、水相の混合液が、分離型セトラに供給される。また、分離型セトラからパルスカラムに戻される液は水相であり、カラムの頂部に戻さなければならない。

Fig. 4.3.2 a)は、カラム液面からの混合液がオーバーフローにより重力流で分離型セトラに供給されるシステムであるが、この場合、分離型セトラから流出する水相をカラム頂部に戻す際に、エアーリフト等の昇液装置を必要とする。

Fig. 4.3.2 b)は、カラム液面から流出する混合液をエアーリフト等の昇液装置で、カラムより上部に設置した分離型セトラに供給する方式であり、この場合分離型セトラから流出する水相は、重力流でパルスカラムに戻される。

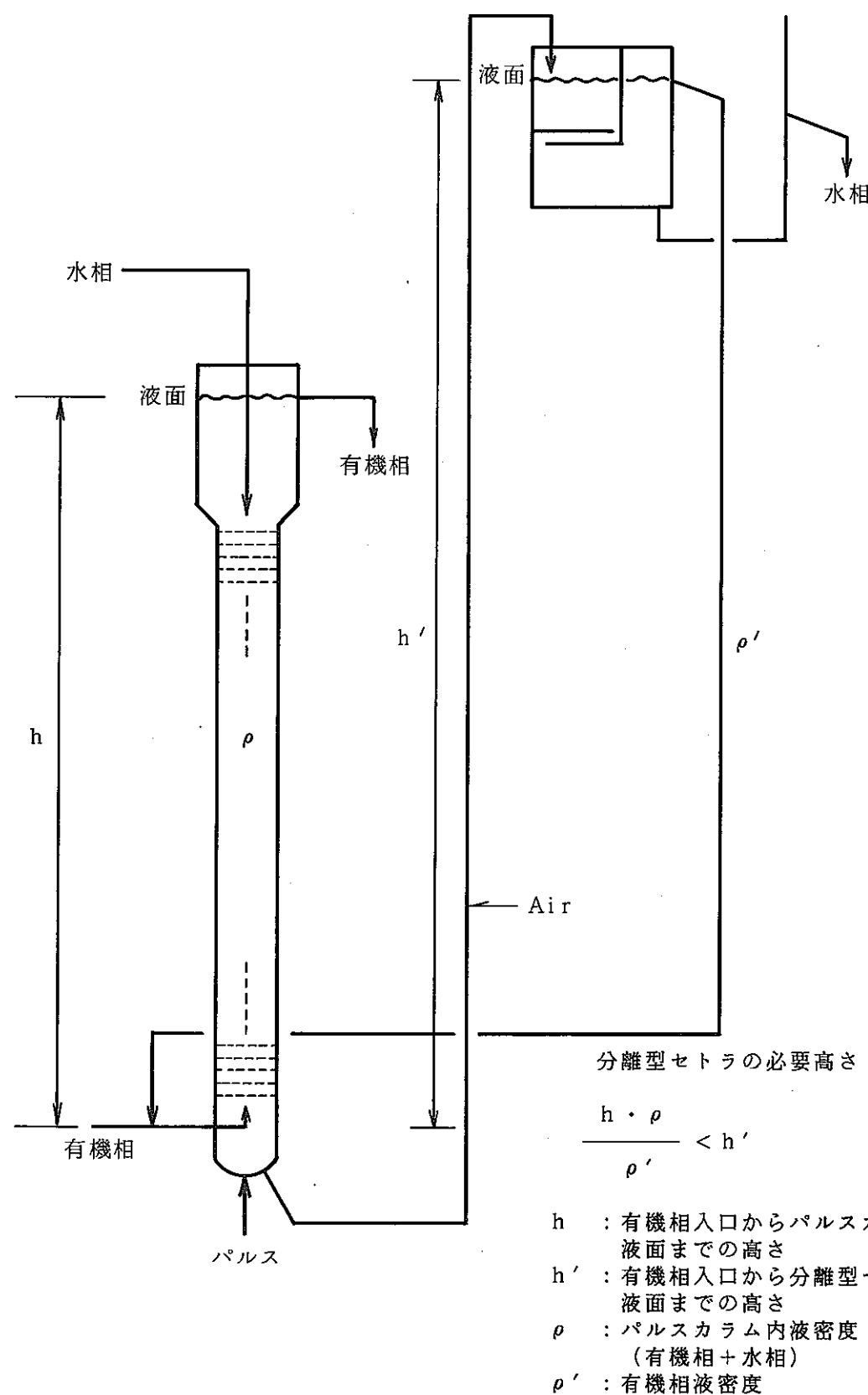


Fig. 4.3.1 パルスカラムと分離型セトラの配置（有機相連続）

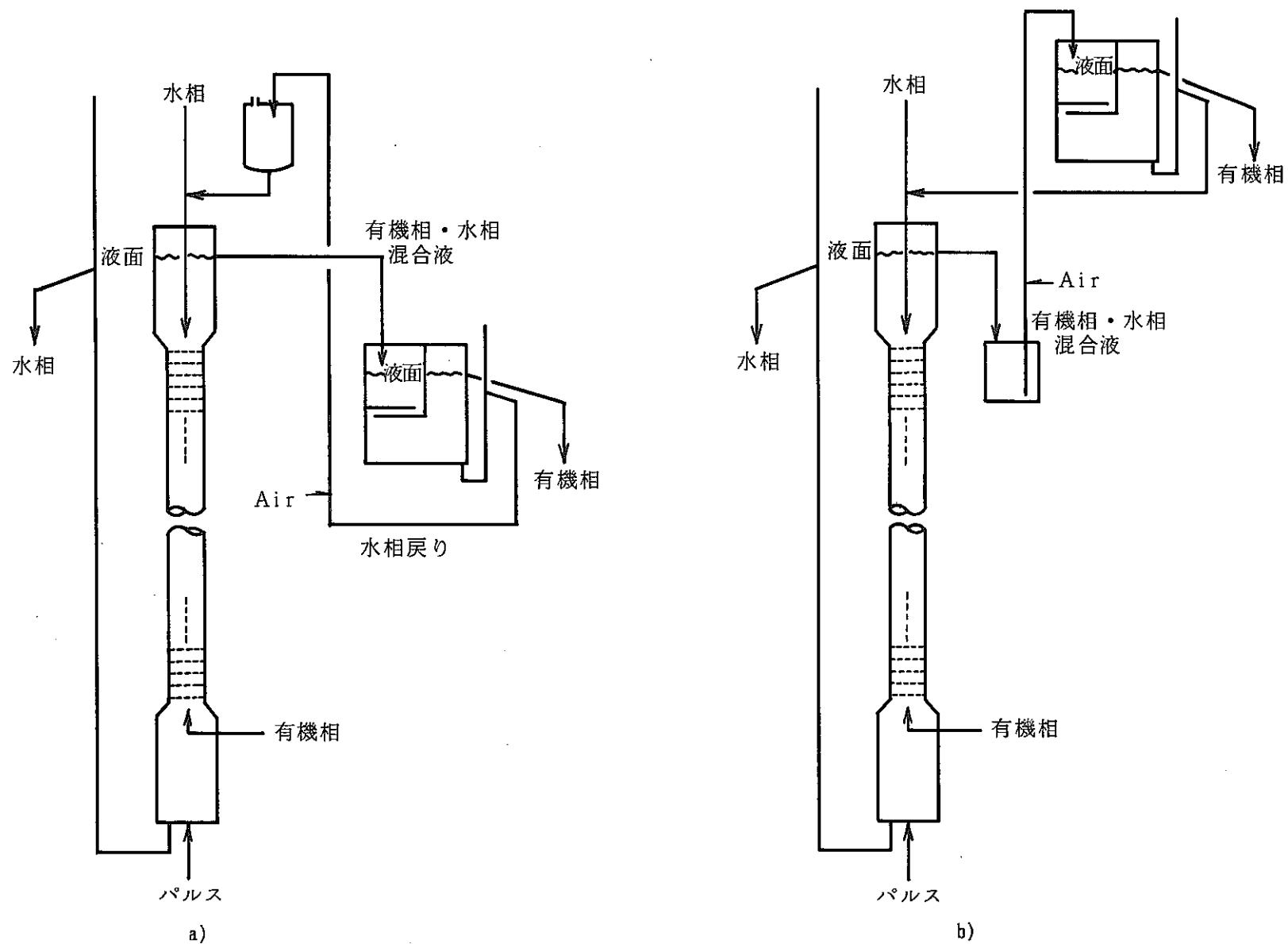


Fig. 4.3.2 パルスカラムと分離型セトラの配置（水相連続）

5. 分離型セトラ

5.1 分離型セトラの概要

分離型セトラの役割は、パルスカラム内で向流接触する有機相、水相を分離型セトラ内で完全に分離することである。

このため、分離型セトラ内に界面が生成され維持される。

また分離型セトラでは、界面に生成した第3相を除去することも可能とする。従って、上記の条件を満たせば形状は自由であり、処理量に応じた形状管理による臨界管理を行えばよい。

ここでは、中規模程度の試験用とし、平板上の分離型セトラを試作した。以下では、この試作器を例にして解説する。

5.2 分離型セトラの各部の役割

5.2.1 仮静置部

パルスカラムの混合液は、まず仮静置部に供給される。

Fig. 5.2.1 に仮静置部の構造と液の流れを示す。

同図に示す様に、混合液は仮静置部壁面に流出し、じゃま板により未分離液は滞留し、粗分離した水相はじゃま板の下のすき間から次段に流れ、同時に有機相はじゃま板の上を通過し、次段に入る。これをくり替えし、しだいに未分離液を分離していき、次の相分離部に液は流下する。

5.2.2 相分離部

Fig. 5.2.2 に相分離部の模式図を示す。

仮静置部で粗分離した液は、相分離部に流下し完全に2相に分離される。

相分離部では有機相、水相の界面が生成され、2相の滞留時間が充分にとられ、有機相は分離型セトラの液面からオーバーフローして排出され、水相は次の界面セトラ用堰に送られる。

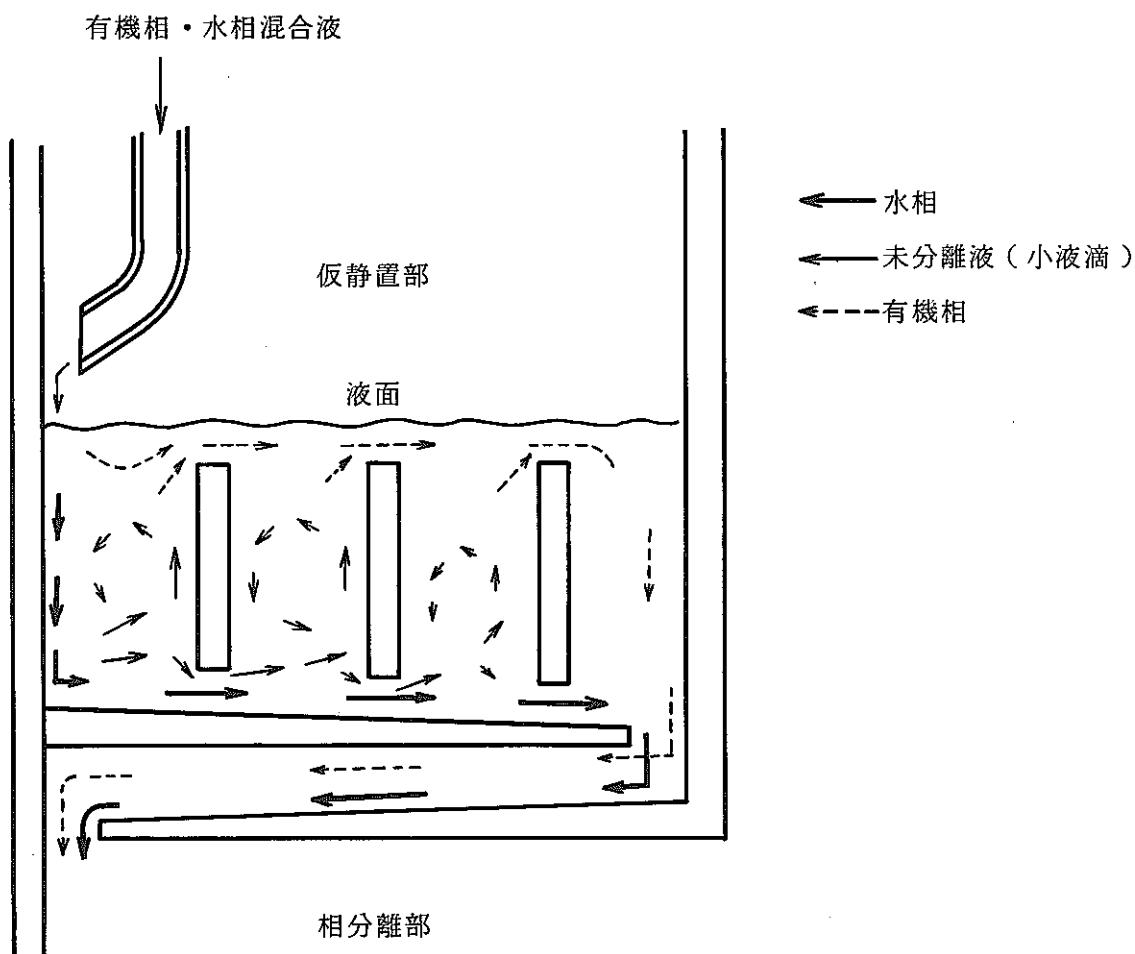


Fig. 5.2.1 仮静置部の構造と液の流れ

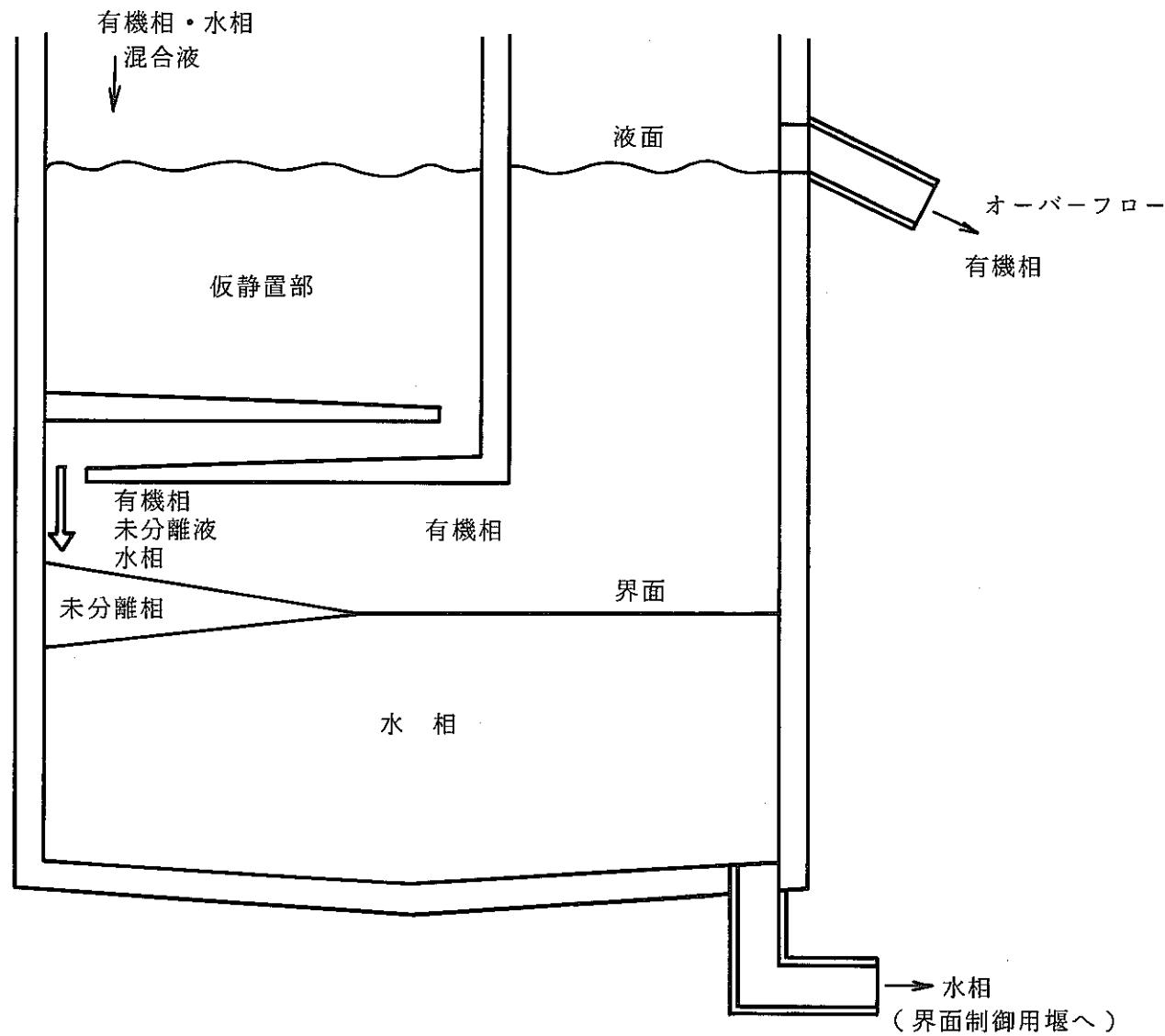


Fig. 5.2.2 相分離部

5.2.3 界面制御用堰

Fig. 5.2.3 に界面制御用堰の模式図を示す。

界面制御用堰は、相分離部に水相を保持し界面を生成させ、界面の位置をコントロールするために設けられる。

界面制御用堰では水相は、分離型セトラ内に有機相と水相の界面を生成するために、次式によって平衡となる位置まで昇液され、オーバーフローする。

$$L_o \cdot \rho_o + L_a \cdot \rho_a = L_x \cdot \rho_a$$

$$L_o + L_a = \text{Const} \quad (\text{液面高さ})$$

ρ_o : 有機相密度 (g/cm^3)

ρ_a : 水相密度 (g/cm^3)

L_o : 有機相厚さ (cm)

L_a : 水相厚さ (cm)

L_x : 界面制御用堰高さ (cm)

但し、実際の設計においては、運転中の仮静置部内の混合液密度を ρ_o において考慮する必要がある。

5.2.4 第3相除去装置

Fig. 5.2.4 に第3相除去装置の模式図を示す。

第3相除去装置は、第3相抜き出しライン、第3相除去フィルター、吸引装置、濾液戻りラインからなっており、相分離の界面に蓄積する界面クラッド等の第3相の除去を行う。

第3相の抜き出しは、相分離部内の界面位置から第3相を液と共に第3相抜き出しラインから吸引し、第3相除去フィルターに供給して濾過する。濾液については、吸引装置を経て再び分離型セトラの仮静置部に戻される。その吸引装置は、第3相の生成速度により、能力を決定する。

またフィルター等は、その保守、交換の都合から、分離型セトラ液面より上部に設置する。

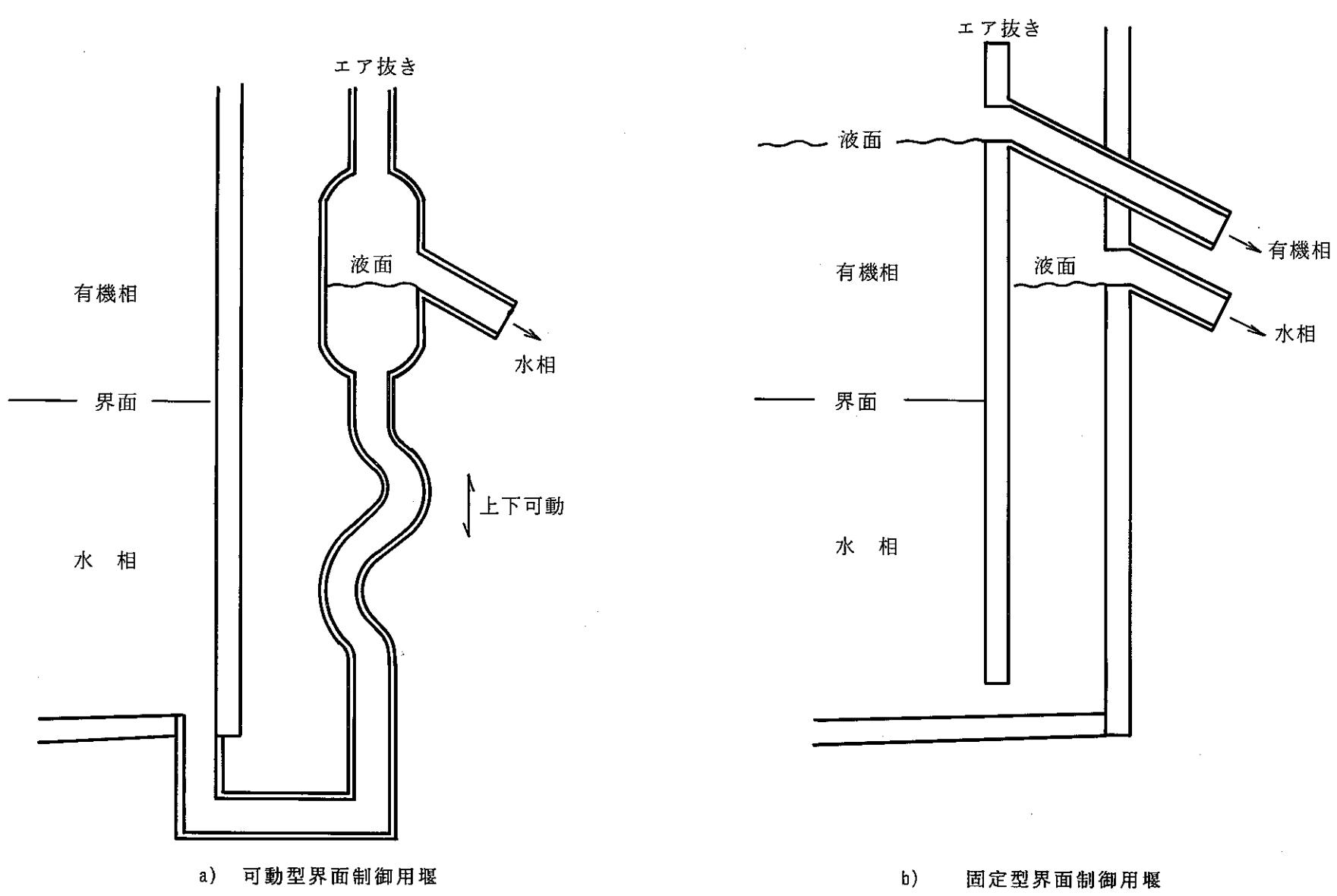


Fig. 5.2.3 界面制御用堰

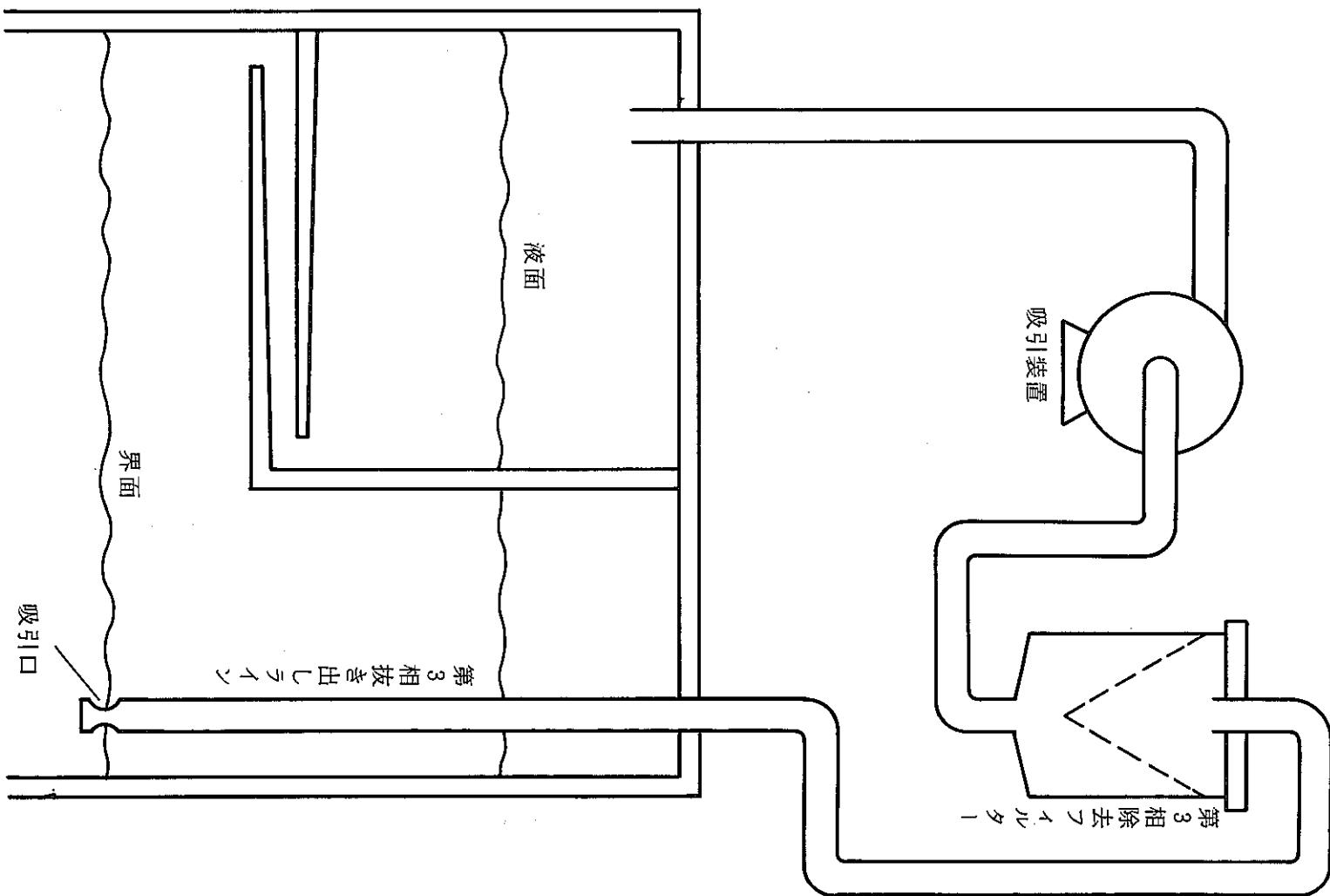


Fig. 5.2.4 第3相除去装置

5.2.5 付属装置

分離型セトラの付属装置には、界面検出装置及び、記録計が界面位置確保の検証として必要である。

本分離型セトラに設置する界面検出装置は、常温仕様であれば、その検出原理を問わないが、今回の試作器では、保守上、精度上から電極式界面検出装置を用いた。

記録計は、長期連続記録が可能であれば、機種を問わない。

5.3 処理能力

分離型セトラの処理能力は、有機相、水相の分離能力によっている。

つまり、分離型セトラに供給される混合液が、分離型セトラ内で完全分離に要する時間以上の滞留時間を持つ様に、その容積が決定される。しかしその分離時間は、供給された混合液の状態により一様でなく、また分離型セトラの構造によっても異なってくる。

そこで今回は、中規模程度の試験に対応出来る様な予想処理能力を持つ分離型セトラを設計し、試作した。

なお、本試作器を用いた試験から、同器の処理能力を調査し、分離型セトラにおける分離時間を評価した。

5.4 分離型セトラの設計

5.4.1 処理能力

分離型セトラの容積は、その予想処理能力を基に決定している。

ここでは、その予想処理能力の推定について、有機相連続の場合を基に説明する。

～分離型セトラへの混合液供給流量～

分離型セトラに供給される液は、パルスカラム底部に到達した水相の全量と、これに同伴してくる一部の有機相である。

定常状態では、水相の量はパルスカラムに供給される水相の量と同じである。

また、同伴する有機相の量は、水相の10%とした。

今回試作した分離型セトラは、処理能力240kg/dayの抽出パルスカラムを対象に設計した。

このパルスカラムの標準的な各部の流量は、

有機相流量 125 l/h (30vol% TBP-n. Dodecane)

Feed液流量 45.5 l/h ($\mu : 220 \text{ g/l}$, $\text{H}^+ + 3\text{N}$)

洗浄液流量 37.5 l/h ($\text{H}^+ : 3\text{N}$)

であり、上記から分離型セトラへの混合液供給流量は、

混合液流量 91.3 l/h

となる。

一分離時間

分離型セトラ試験に先だって、有機相、水相の分離速度を調査するため、ビーカーによる分離試験を行った。

Fig. 5.4.1 に硝酸濃度と分離時間の関係を示す。

但し、有機相、水相の混合比は $1:1$ とし、界面高さ 5 cm であり、混合は手混合で 1 分間行い、混合状態は密である。

この図からわかるように、酸濃度に影響なく分離は 1 分以内に完了している。

しかし、分離型セトラでは、界面高さや形状の違いを考慮し、分離時間を相分離部で 2 分弱とした。

5.4.2 形状、寸法

分離型セトラの形状は、先に述べたようにその性能上からの特別の制約はない。

しかし、大容量の処理を考えると、臨界管理上その形状には考慮すべき点がある。

一般的に臨界を考慮した容器の形状は、平板形か中空円筒形（アニュラー）が考えられる。

ここでは、 240 kg/day 程度の予想処理能力を持つ平板形の分離型セトラを設計、試作した。Fig. 5.4.2 にその主要部の寸法を示す。

本器の構造上の特徴として、蓋がフランジタイプになっており、供給口、第 3 相抜き出し口等を蓋に固定して、蓋を開けることにより内部の洗浄等を容易にしている。

その他、界面制御用の堰を固定堰としてあり、可動部を無くしている。ただし、第 3 相抜き出しラインについては、なんらかの原因で界面一が変動した場合に対応するため、その吸引位置を変更出来るように、上下移動を可能としている。

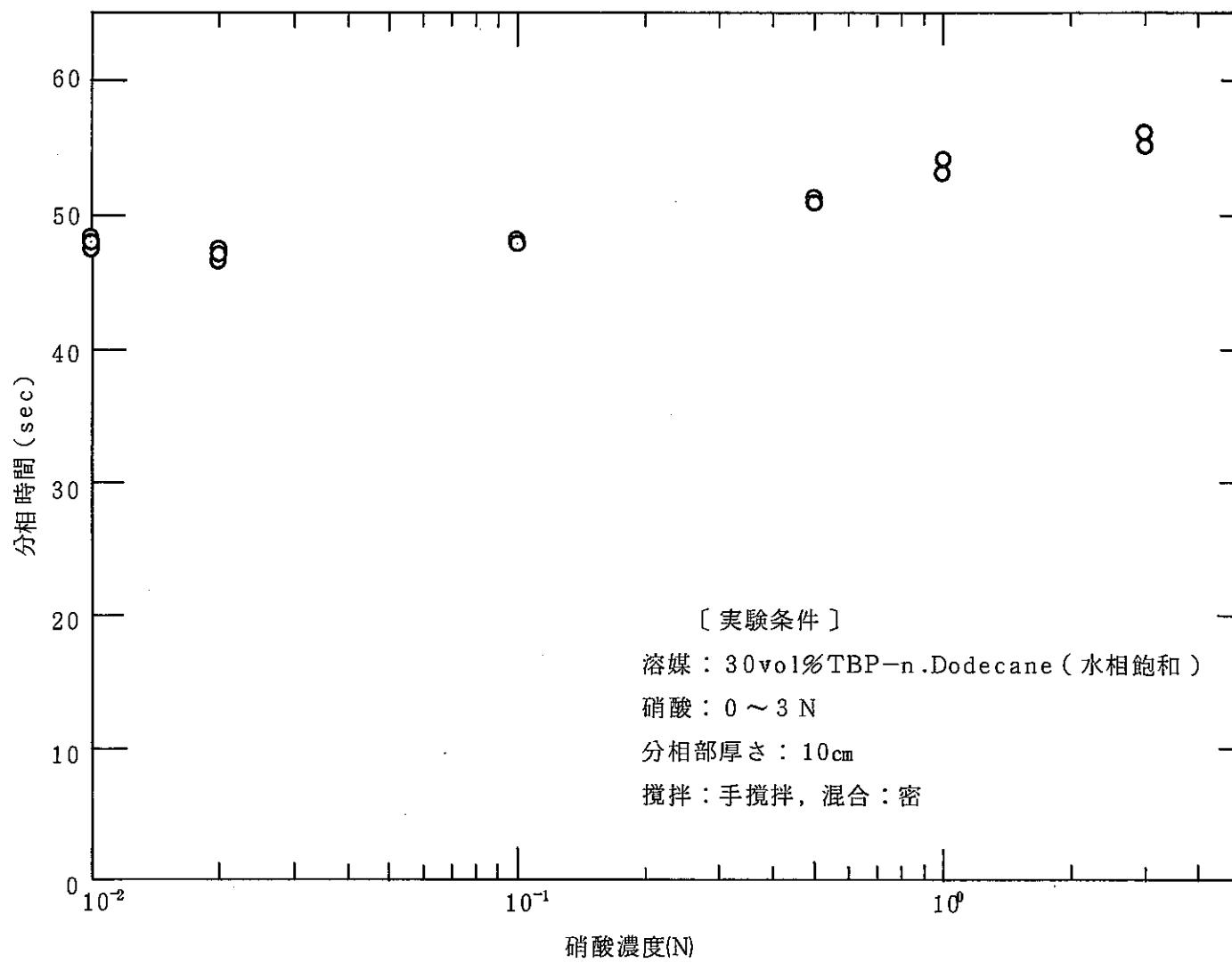


Fig. 5.4.1 分相時間と硝酸濃度の関係

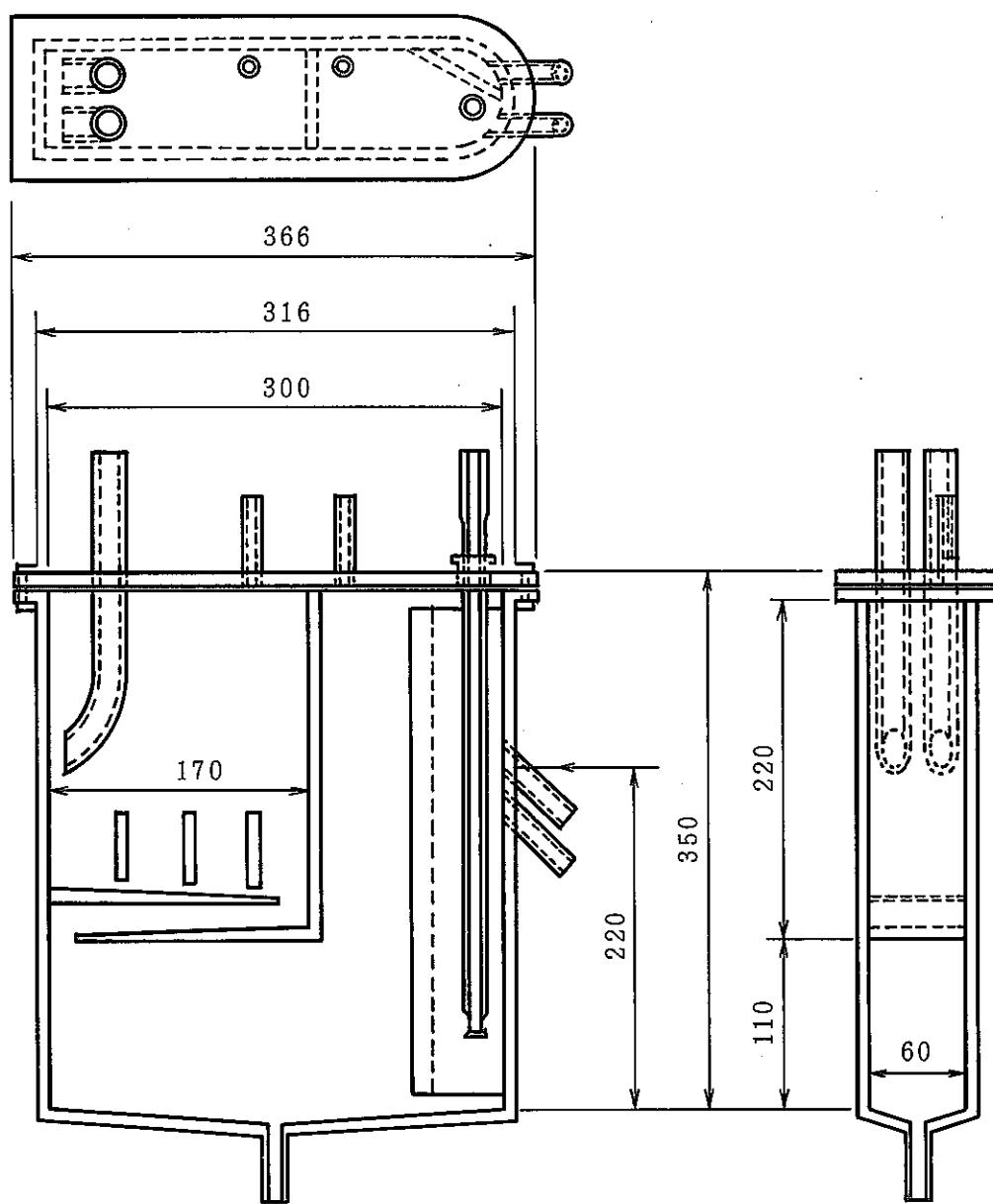


Fig. 5.4.2 分離型セトラ（固定堰型）

次に寸法上の考慮点としては、まず臨界形状管理として液の厚さを60mmにし、平板として対応している。

また、界面制御用固定堰は、相分離部各相の容量が等しくなるような界面位置になるよう設定している。

しかし、実用器を設計する場合は、混合液の混合比や、安全裕度の違いを考慮して界面位置は決定されるべきである。

また分離型セトラは、内液のホールドアップや密度により界面位置が決定し、安定する構造となっており、液の流量には影響されない。しかし、流量の増大によって出口配管等に配管抵抗が発生した場合、上記の安定がそこなわれる。

そこで配管形については、流量変化に対応出来る様に充分に余裕を持って設計する必要がある。

5.4.3 界面位置

界面位置については、今回は試験用の試作器ということで、先に述べたように相分離部内各相の容量が等しくなるような位置とした。

以下に、その設計根拠を示す。

－容 積－

- ・分離型セトラの接液容積 3,600 (cm³)
- ・仮静置部の接液容積 900 (cm³)
- ・相分離部の接液容積 2,700 (cm³)
- ・相分離部の有機相接液容積 1,350 (cm³)
- ・相分離部の水相接液容積 1,350 (cm³)

従って界面位置は、底面から7.5cmの位置となる。

－密 度－

- ・有機相 30vol%TBP-n. Dodecane

無負荷 : 0.814 (g/cm³)

HNO₃ : 0.5N負荷 : 0.827 (g/cm³)

HNO₃ : 0.8N, u : 100 g/l 負荷 : 0.971 (g/cm³)

・水相 3N-HNO₃

無負荷 : 1.106 (g/cm³)

HAW負荷 : 1.146 (g/cm³)

u : 100 g/l, HAW負荷 : 1.233 (g/cm³)

上記から、定常運転状態で界面位置7.5cmを保つような界面制御用堰の高さを算出する。

但し、仮静置部内の有機相、水相の混合比は2:1と仮定する。

また、パルスカラム運転は、分離第1サイクルの抽出工程を対象とする。

従って、定常運転状態時の分離型セトラ内の溶液密度は、有機相が30vol%TBP-n.
Dodecane (HNO₃: 0.5N負荷) 0.827 (g/cm³) を使用し、水相は3N-HNO₃(HAW負荷)
1.146 (g/cm³) を使用する。

Fig. 5.4.3 から、

$$\rho_2 \cdot h = \left[\frac{\rho_1 \cdot V_1 + \rho_3 \cdot V_2}{V_1 + V_2} \right] h_1 + \rho_2 \cdot h_2 \quad \dots \dots (2)$$

$$\rho_3 = \frac{\rho_1 \cdot \frac{2}{3} V_2 + \rho_2 \cdot \frac{1}{3} V_2}{V_2} = \frac{2}{3} \rho_1 + \frac{1}{3} \rho_2 \quad \dots \dots (3)$$

上式に各値をあてはめると界面制御用堰高さhは、

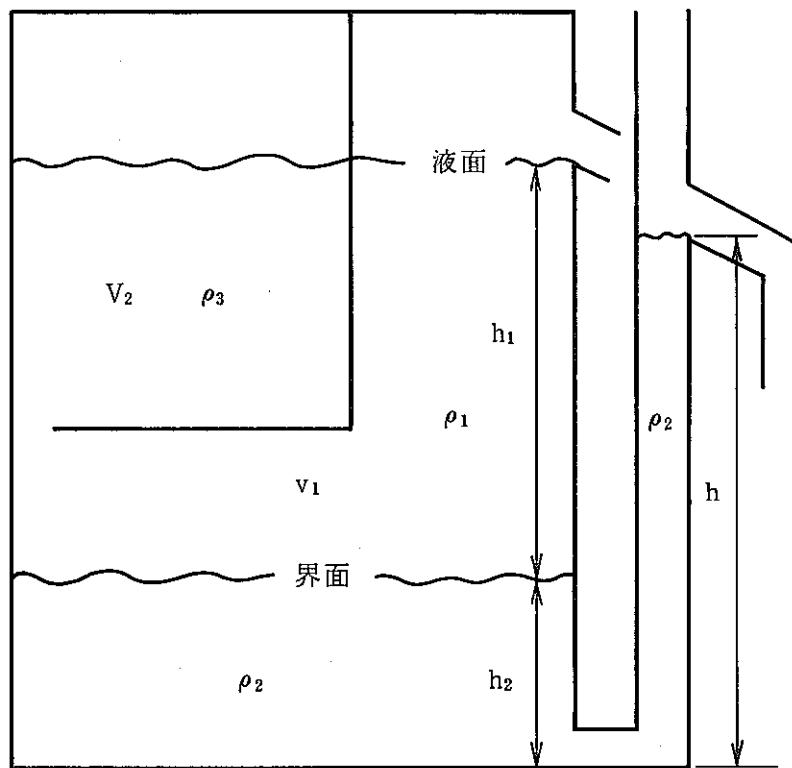
$$h = 18.5 \text{cm}$$

となる。

次になんらかの原因により異常が発生し、HAW側に高濃度のウランが漏洩した場合の界面位置の変動量を調査した。

ここで有機相は、30vol%TBP-n.Dodecane (HNO₃: 0.8N, u : 100 g/l 負荷) 0.971
(g/cm³) を使用し、水相は3N-HNO₃ (u : 100 g/l, HAW負荷) 1.233 (g/cm³) を
使用する。

但し、界面制御用堰は18.5cmに固定してある。



h : 界面制御用堰高さ (cm)

h_1 : 有機相部厚さ (cm)

h_2 : 水相部厚さ (cm)

ρ_1 : 有機相密度 (g/cm^3)

ρ_2 : 水相密度 (g/cm^3)

ρ_3 : 仮静置部内液平均密度 (g/cm^3)

V_1 : 相分離部有機相容量 (cm^3)

V_2 : 仮静置部容量 (cm^3)

Fig. 5.4.3 分離型セトラ模式図

このときの界面位置は、

$$h_2 = 3.95 = 4 \text{ cm}$$

となり、定常時の界面位置7.5cmから3.5cm下降するだけである。

従って、なんらかの原因により液密度の変化等の異常が発生しても、固定式の界面制御用堰で十分に対応出来る。

5.4.4 第3相除去

パルスカラム内で発生したクラッド等の第3相は、水相に同伴して分離型セトラに送られ、分離型セトラ内の界面に蓄積する。

この第3相を除去するために、分離型セトラには第3相除去装置が設けられている。

界面から第3相を吸引する抜き出しラインの径は、その吸引能力にもよるが、10mm ϕ 程度で充分であり、試作器では内径7mm ϕ のラインを使用した。またその設置位置は、液の流れ、第3相の滞留場所を考慮して配置した。

次に濾過フィルターについては、試作器では限界粒子径1 μm の焼結金属フィルターを使用し、吸引装置としてペローズポンプを使用した。

通常抽出パルスカラムで発生する第3相は、そのほとんどが溶解液中の不溶解残渣粒子を核とした溶媒液滴であり、ある程度の時間が経過すれば、その液滴は壊れ有機相中に吸収される。

しかしその他に、ZrやRu等は溶媒と錯体を形成し、界面に蓄積する。そこで濾過フィルターの能力としては、溶解液中の不溶解残渣粒子と、Zr, Ru等の錯体を濾過出来る性能があれば良く、界面において重合や凝集の進んだ第3相の除去は、1 μm 程度のコア径で十分に達成出来る。

吸引装置については、抜き出しライン内を第3相がその沈降力に逆って上昇する流速以上で吸引すれば良く、特に大きな能力は必要ない。

5.4.5 メンテナンス

核燃料再処理の主工程でパルスカラムが使用され、本分離型セトラが組み込まれる場合、分離型セトラは高放射能下で使用され、その保守は遠隔操作又は、グローブボックス等の隔離設備で取り扱わなければならない。

そこで、その保守、交換が用意かつ迅速に行えるように、また、故障がなるべく発

生しないような構造でなければならない。

本分離型セトラの構造は比較的単純であり、液の滞留する場所もなく、また配管等も太く洗浄が容易であり、閉塞等の可能性は少ない。

また、なんらかの原因で故障が発生しても、本分離型セトラの特徴であるパルスカラム本体と分離しているという点から、必要であるならば運転中でも容易に予備の分離型セトラに切り換えることが可能で、故障品は系外に切り離し、単独に保守するという、設計を行うことも可能である。

実機への使用に際しては、上記のことを考慮に入れて配管接続等を設計すれば、メンテナンスに関する問題はない。

5.4.6 安全率

分離型セトラにおいて安全率を考慮する必要があるのは、界面位置の変動に対してと、2相の分離速度の遅れによるエマルジョン相の増加に対してであろう。

試作器では、界面位置の変動に対して、最悪条件を考慮しても相分離部に界面を保てるように、相分離部高さ及び定常界面位置を決定している。

また、2相の分離速度の遅れに対しては、接液容積を大きめにし、滞留時間を若干長くとっている。

6. 通水試験

6.1 試験条件

6.1.1 装置

分離型セトラ試験は、動燃応用試験棟内に設置してあるガラス製パルスカラムを使用して行った。

Fig. 6.1.1 に分離型セトラ試験フロー図を示す。

混合液の供給はポンプを使用し、パルスカラムへの液の供給については、ヘッドポートを設置して流量の安定を図っている。

また、供給液である溶媒と硝酸は、リサイクル使用により廃液の減容を図っている。

なお、模擬第3相生成用のアルミナ粒子は、パルスカラム上部よりピペットを用いて供給した。

6.1.2 試薬等

今回の試験に使用した試薬を以下に示す。

① 有機相

30vol% TBP-n. Dodecane

② 水相

3N-HND₃

③ 模擬第3相

アルミナ粒子 0.4 μm

なお本試験では、ウラン等の核物質は使用していない。

6.1.3 運転条件

Table 6.1.1 に運転条件を示す。

試験の着眼点としては、まず全試験を通じて分離型セトラの安定性を調査し、次に混合液の供給量を変化させて、相分離性能を調べ、第3相の供給量をパラメータとして、その除去性能を調査した。

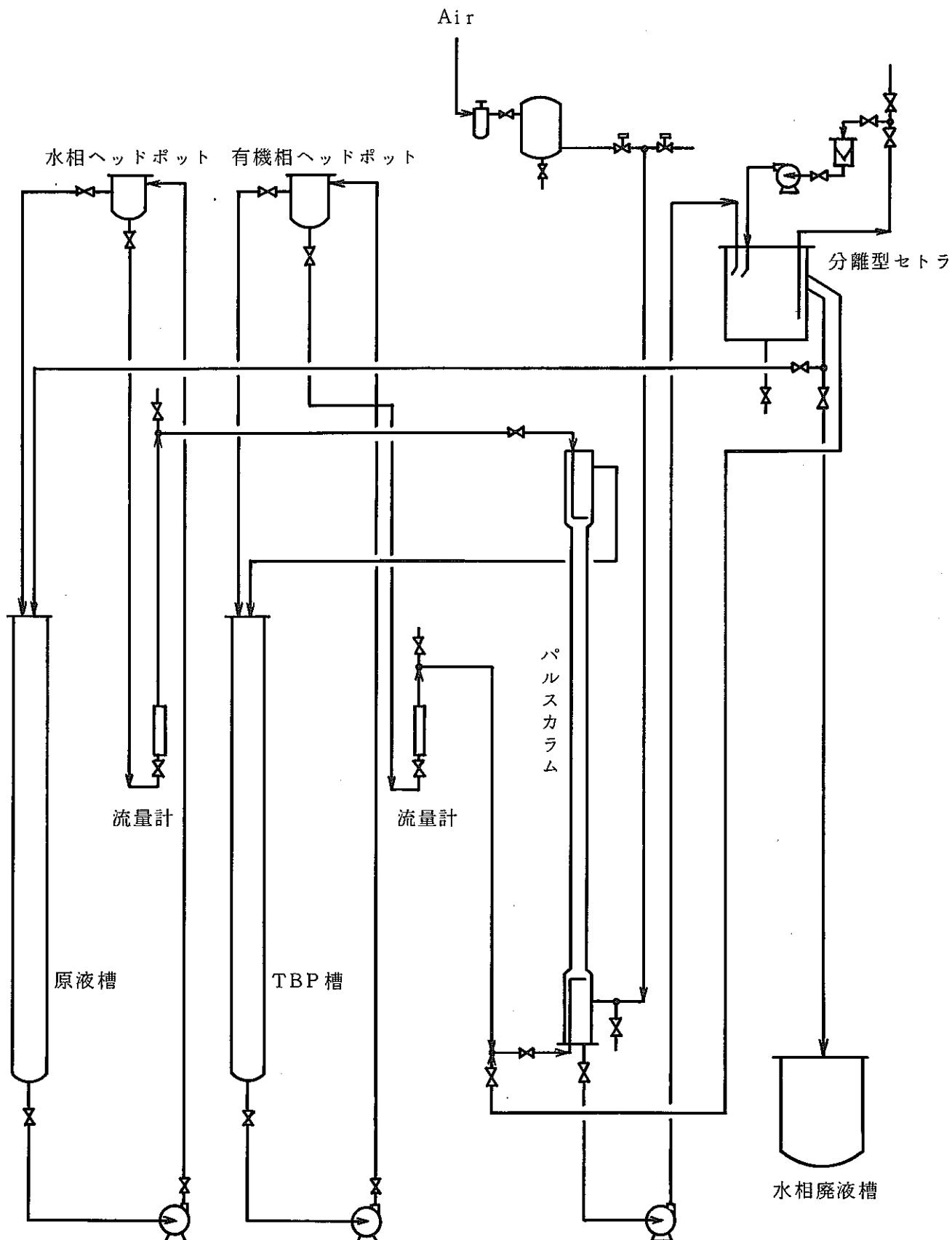


Fig. 6.1.1 分離型セトラ試験フロー図

Table 6.1.1 試験条件

Run No.	パルスカラムへの供給流量		混合液抜き出し流量 (ℓ/h)	第三相抜き出し流量 (ℓ/h)	パルス振幅 a (cm)	パルス振動 数 f (Hz)	アルミナ供給 (有無) 濃度, 流量, 時間
	水相 (ℓ/h)	有機相 (ℓ/h)					
SS-01	8.0	10.0	20.0	—	2	60	無
02	12.0	7.0	20.0	—	2	60	無
03	17.0	2.0	20.0	—	2	60	無
04	8.0	8.0	15.0	6.0	2	60	有: 1g/L, 1L/h, 0.1h
05	8.0	8.0	15.0	6.0	2	60	有: 1g/L, 1L/h, 0.1h
06	50.0	10.0	60.0	—	2	60	無
07	50.0	20.0	70.0	—	2	60	無
08	50.0	30.0	70.0	—	2	60	無
09	50.0	25.0	75.0	—	2	60	無
10	50.0	35.0	80.0	—	2	60	無
11	50.0	5.0	50.0	10.0	2	60	有: 5g/L, 1L/h, 0.1h
12	50.0	10.0	60.0	10.0	2	60	有: 5g/L, 1L/h, 0.1h

6.2 試験状況

Photo 6.2.1 に定常状態の分離型セトラを示す。

この写真からわかるように、仮静置部で2相の分離が促進され、相分離部では完全に分離し、ゆらぎ等のない安定した界面を得ている。

次に個々の部位について観察する。

6.2.1 仮静置部

Photo 6.2.2 に仮静置部の様子を示す。

供給された混合液は仮静置部内で、連続相である有機相が上部に、水相液滴が下部に分かれている。また極小さい液滴は、仮静置部内の隔壁により滞留し、分離時間を長く保たれている。

なお、すでに分離している有機相、水相は、速やかに次の相分離部に流出している。

6.2.2 相分離部

Photo 6.2.3 に相分離部の様子を示す。

仮静置部から落下してきた水相液滴が、界面で時間を追って分離していく様子がわかる。分離の程度を調査するため、水相出口から排出された水相を2日間放置し、水相に混入した有機相の量を測定したが、100PPM程度であった。

6.2.3 第3相除去

Photo 6.2.4 に模擬第3相が界面に生成している様子を示し、Photo 6.2.5 (a)～(d) に第3相を第3相抜き出しラインから抜き出し除去している様子を示す。

模擬第3相用のアルミナを過剰に供給したため、水相が白濁してしまったが、界面はあきらかに第3相が生成している。

第3相除去装置を作動させたところ、写真のように第3相は吸引され、抜き出し流量 6 l/h 程度でも約2分間で界面の第3相を除去することが出来た。

吸引した第3相は、除去フィルターで濾過され濾液として十分に透明な液を得た。

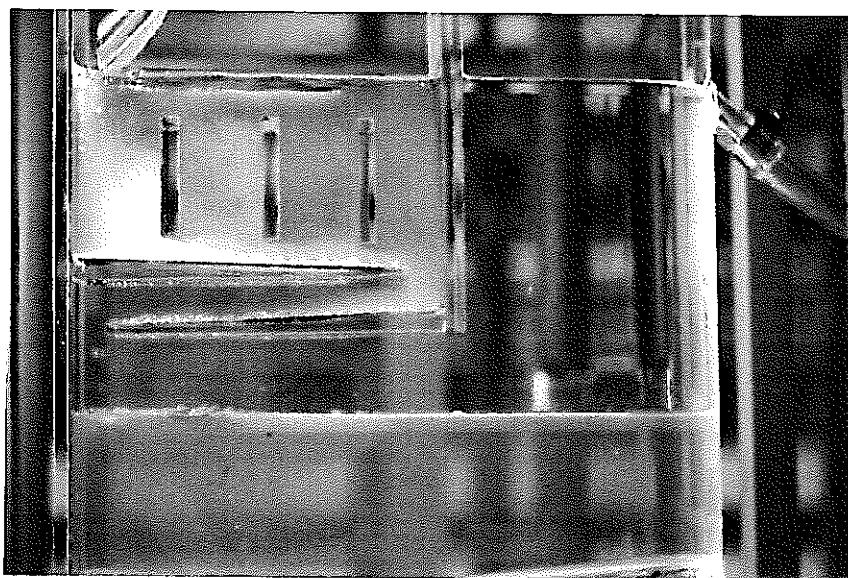


Photo 6.2.1 定常状態の分離型セトラ

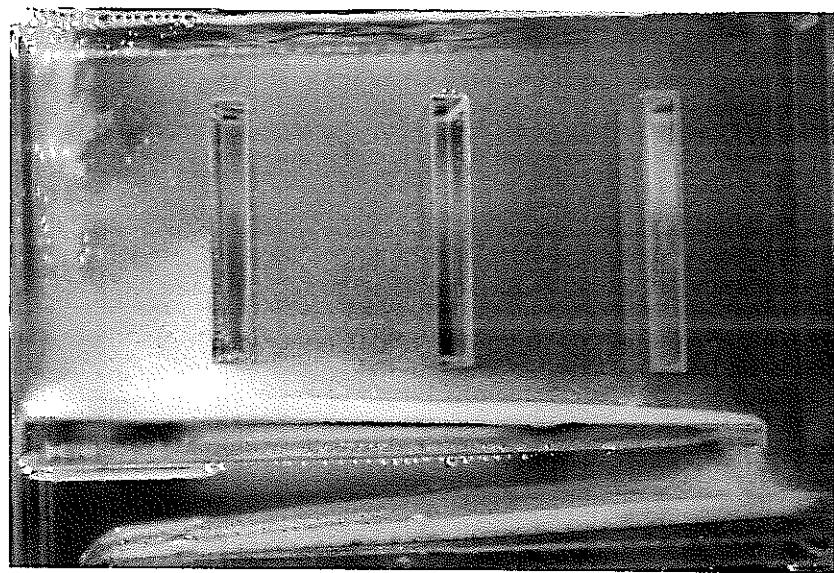


Photo 6.2.2 仮静置部

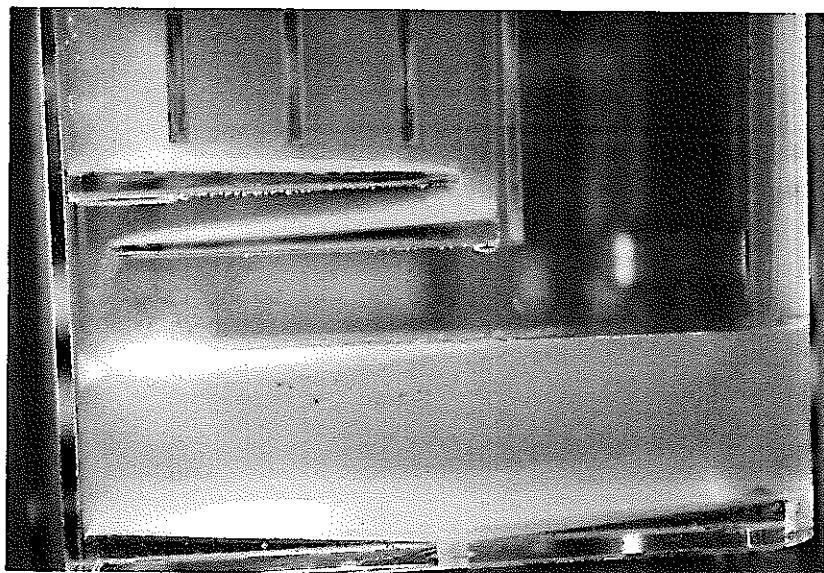


Photo 6.2.3 相分離部

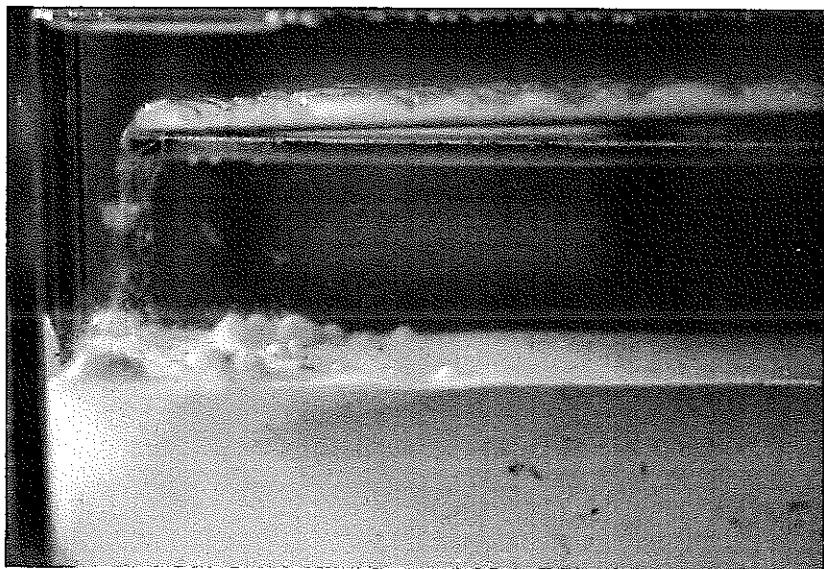
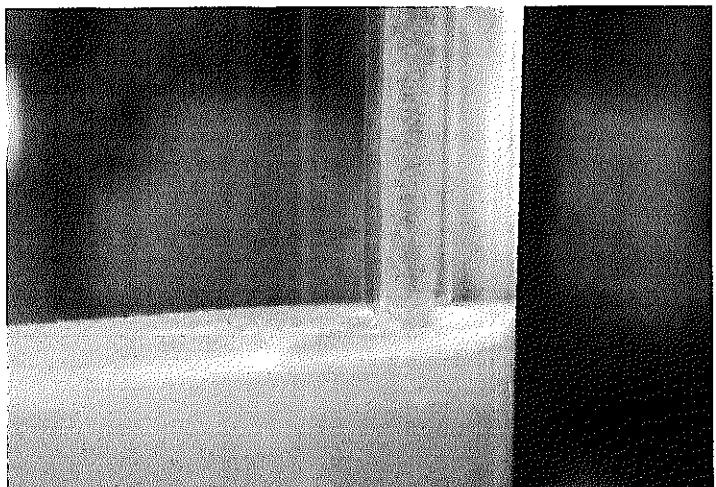
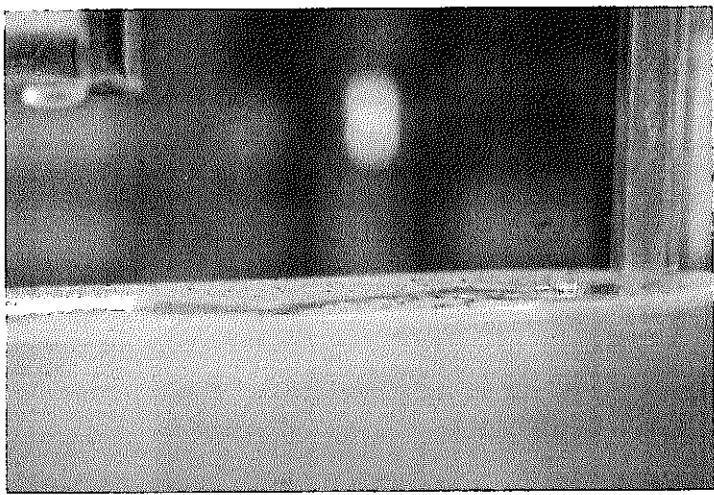


Photo 6.2.4 模擬第3相の生成



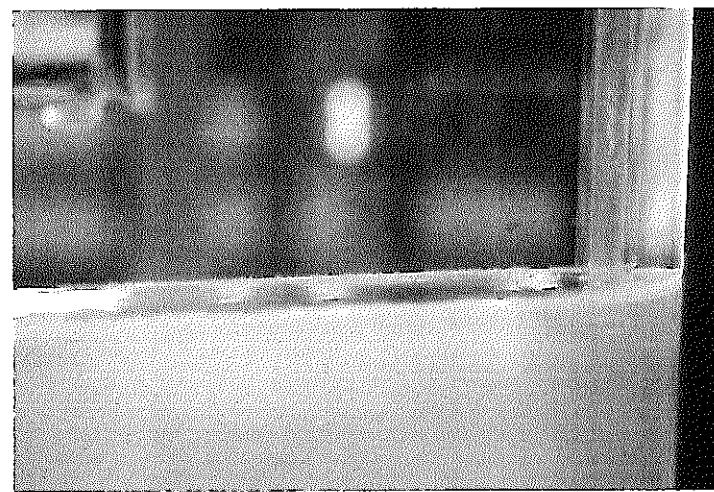
(a)



(c)



(b)



(d)

Photo 6.2.5 第3相の除去

6.3 試験結果

Table 6.3.1 に分離型セトラの運転記録表を示す。

試験は計画に対し順調に行われ、流量等のコントロールもほぼ良効であった。

6.3.1 分離型セトラの安定性

Fig. 6.3.1 に流量及び流量比の界面位置の変動に与える影響を示す。

この図から、流量比が界面位置の変動に与える影響はほとんどなく、安定していることがわかる。

しかし、分離型セトラに供給される混合液に対しては、その増加によって界面位置が変動している。

Fig. 6.3.2 に分離型セトラへの供給液流量と界面位置との関係を示す。

この図からは、分離型セトラへの供給液流量の増加によって、界面位置の上昇が起こっていると考えられる。

この変動原因について調査した。Fig. 6.3.3, Fig. 6.3.4 に有機相、水相流量別の界面位置との関係を示す。

なお、作図に際して、有機相流量をパラメータとした場合は、水相流量のほぼ一定の所を使用し、水相流量をパラメータとした場合は、有機相流量のほぼ一定のものを使用した。

これらの図から、有機相流量の変化による界面位置の変動の傾向は見られないが、水相流量に対しては界面位置との関係に傾向が見られる。

つまり、水相流量の増加に伴い、界面位置が高くなる傾向がある。

この原因としては、相分離部からの水相の出口が小さすぎたため、水相の排出量が供給量の増加に対応出来ず、水相ホールドアップが多くなり、排出圧が高くなつて排出量が高まり、供給量と排出量が一致したと考えられる。

Table 6.3.1 運転記録表（分離型セトラ試験）

Run. No.	混合液流量 (l/hr)	混合比 (O/A)	流量 (l/hr)			相分離部滞留時間 (min)			界面位置 (cm)	エマルジョン厚 (cm)	第3相抜き出し流量 (l/hr)	第3相生成	アルミナ供給		
			水相	有機相	水相	有機相	混合						濃度	流量	時間
SS-01	19.0	1.380	8.0	11.0	10.2	7.4	8.5	7.0	0.0	-	無				
SS-02	18.8	0.563	12.1	6.8	6.7	12.0	8.6	7.2	0.0	-	無				
SS-03	18.8	0.111	17.0	1.9	4.8	43.6	8.6	8.0	0.0	-	無				
SS-04 **	15.0 21.0	1.000 1.000	7.5 10.5	7.5 10.5	10.8 7.7	10.8 7.7	10.8 7.7	6.8	0.0 (1.2*)	6.0	有	1g/L	1L/h	0.1h	
SS-05 **	15.0 12.0	1.000 1.000	7.5 10.5	7.5 10.5	10.8 7.7	10.8 7.7	10.8 7.7	6.7	0.0 (1.1*)	6.0	有	1g/L	1L/h	0.1h	
SS-06	58.6	0.202	48.8	9.9	1.7	8.2	2.8	10.2	0.0	-	無				
SS-07	70.3	0.496	47.0	23.3	1.7	3.5	2.3	9.7	0.7	-	無				
SS-08	71.6	0.768	40.5	31.1	2.0	2.6	2.3	9.7	1.0	-	無				
SS-09	74.4	0.542	48.2	26.2	1.7	3.1	2.2	10.4	2.2	-	無				
SS-10	82.0	0.814	45.2	36.8	1.7	2.2	2.0	11.0	4.5	-	無				
SS-11 **	50.5 60.7	0.108 0.197	45.6 50.7	4.9 10.0	1.8 1.6	16.5 8.1	3.2 2.7	9.0	0.4	10.0	有	5g/L	1L/h	0.1h	
SS-12 **	58.8 69.0	0.222 0.297	48.1 53.2	10.7 15.8	1.7 1.5	7.6 5.1	2.8 2.3	9.8	0.6	10.0	有	5g/L	1L/h	0.1h	

* 第3相込みの最大値

** 下段は第3相濾液を含んだ値

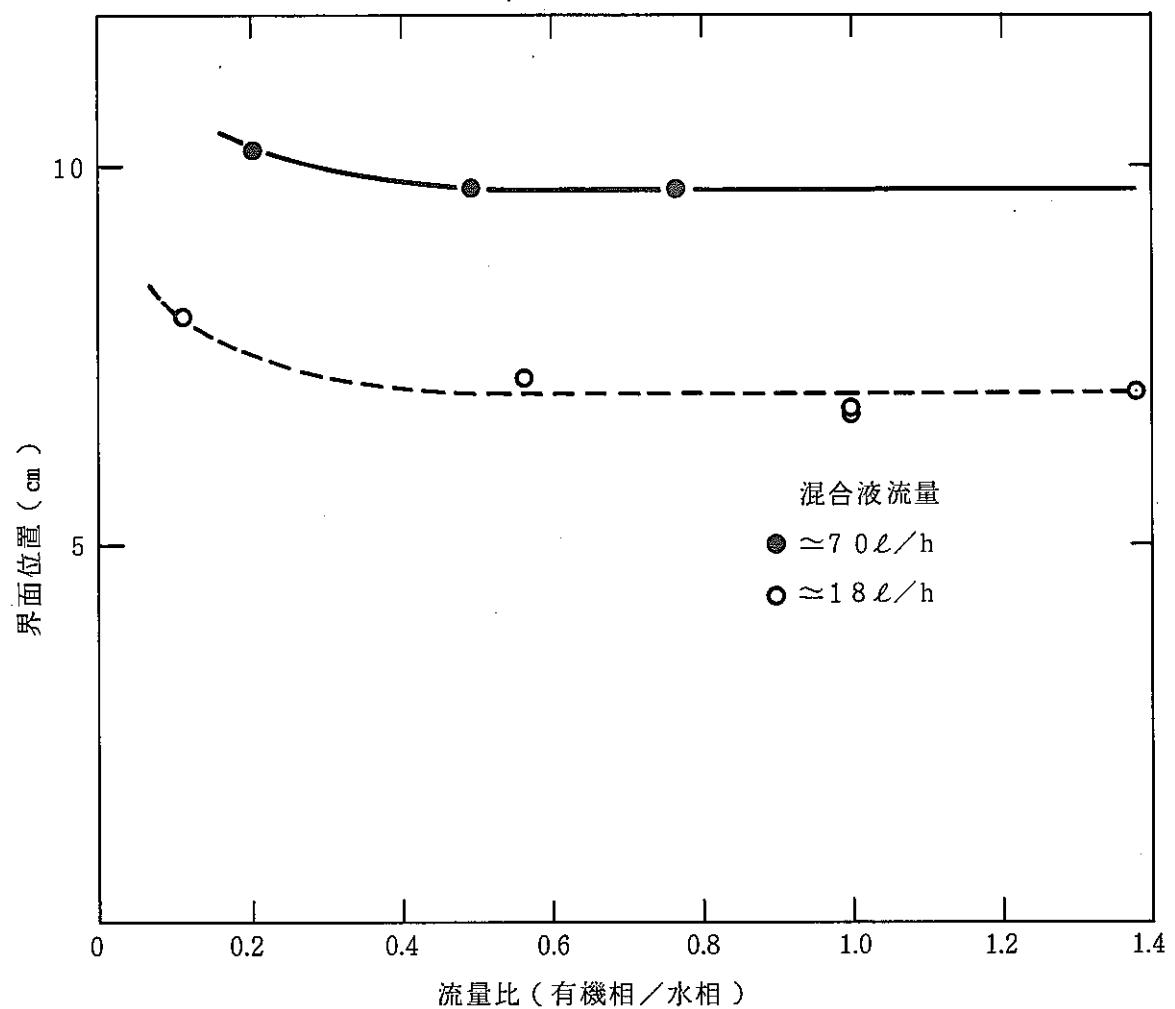


Fig. 6.3.1 流量及び流量比の界面位置の変動に与える影響

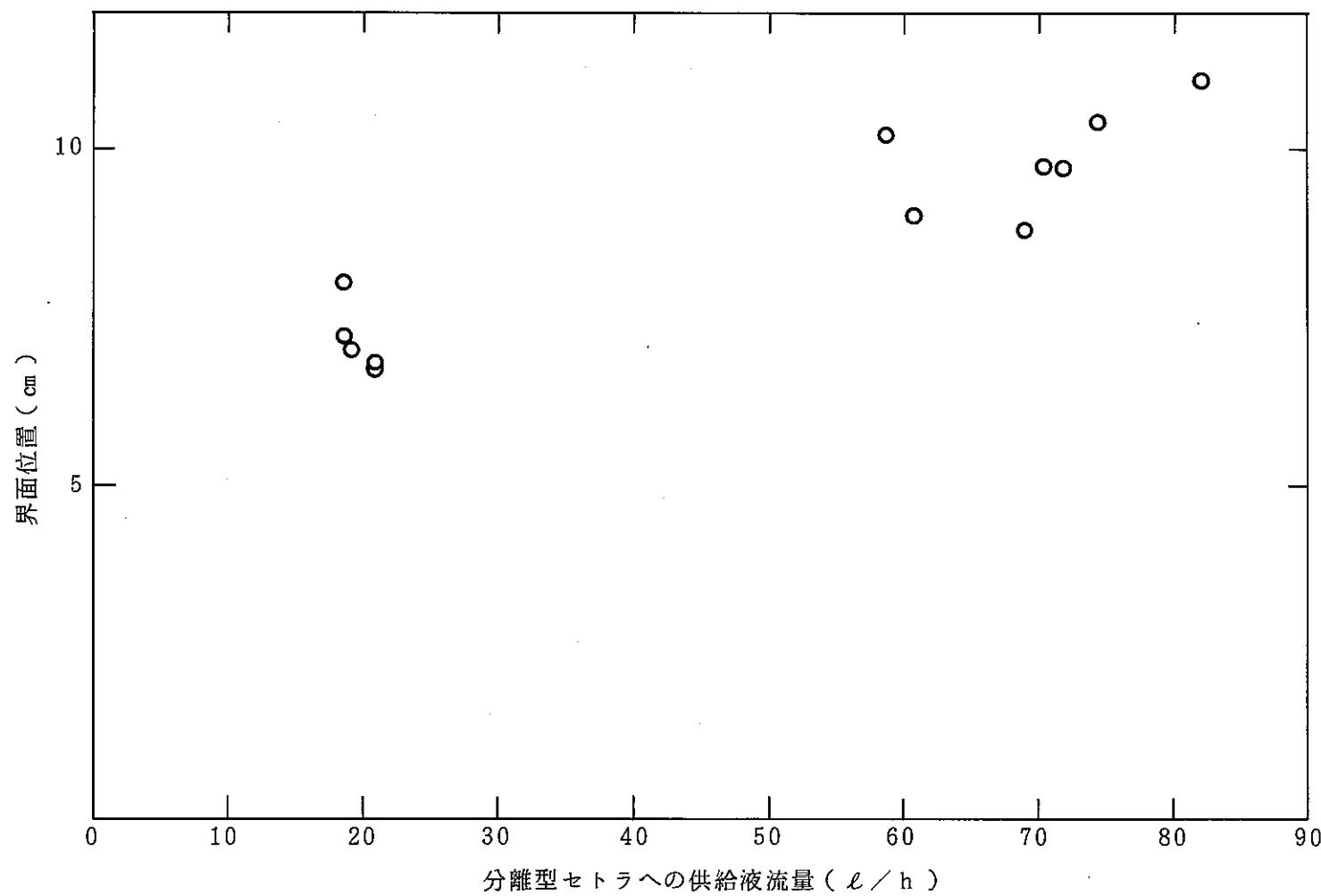


Fig. 6.3.2 分離型セトラへの供給液流量と界面位置

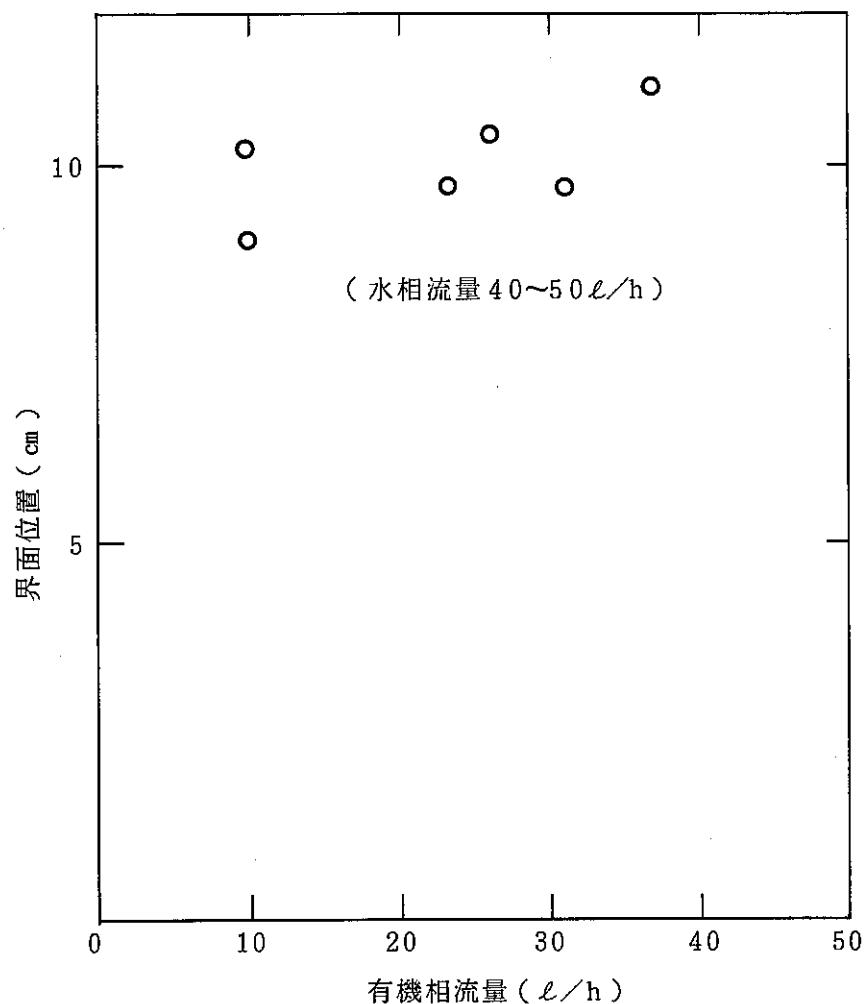


Fig. 6.3.3 有機相流量と界面位置の関係

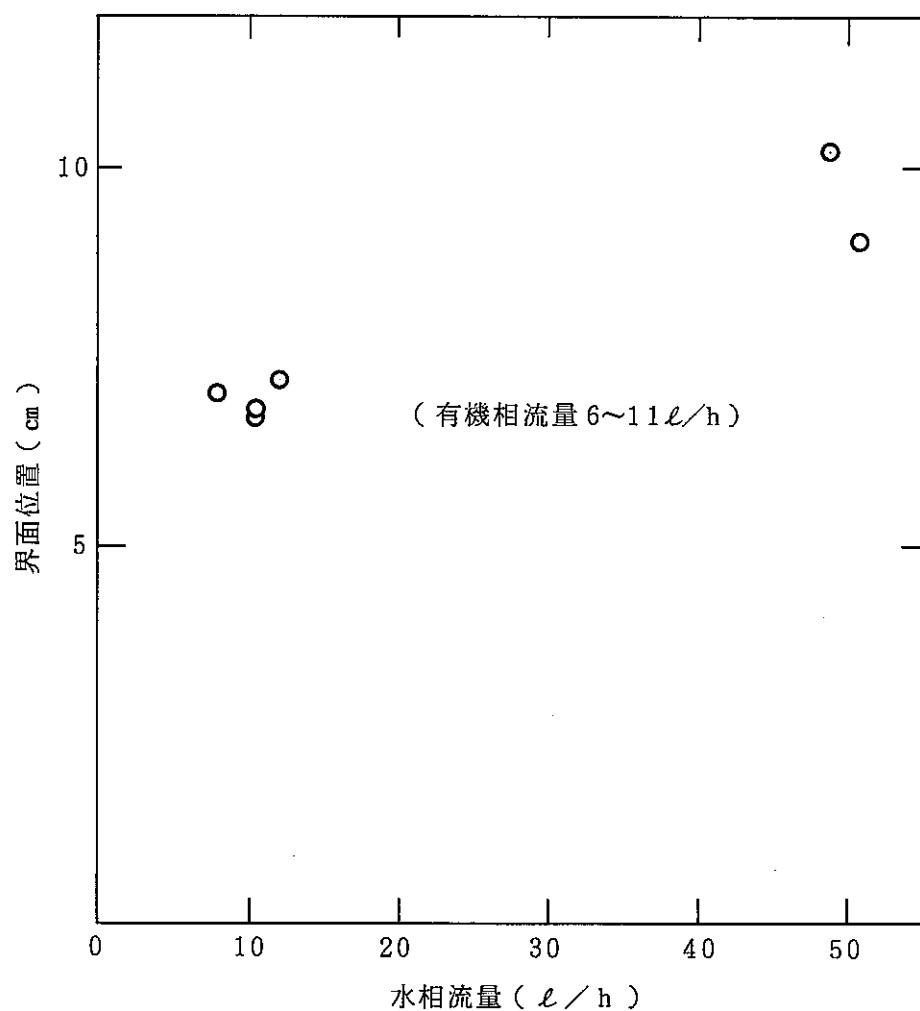


Fig. 6.3.4 水相流量と界面位置の関係

6.3.2 分離型セトラの相分離性能

Fig. 6.3.5 に分離型セトラへの供給流量をパラメータとした分離型セトラの相分離性能を示す。

この図から、混合流量液が 60 l/h 以下であれば、エマルジョン相は生成しないことがわかった。またエマルジョン相が 1 cm 以内であれば、エマルジョン相は消滅と生成をくり返すだけで、相分離性能には影響を与えないことがわかった。従って本分離型セトラは、混合液全流量 70 l/h までは使用可能であることがわかった。

次にこの相分離性能の影響を各相毎に検討した。

Fig. 6.3.6 に各相の流量とエマルジョン相の生成の関係を示す。

ただし、有機相流量をパラメータとした場合は、そのときの水相流量は $45 \sim 49 \text{ l/h}$ とだいたい同じ流量条件のデータを使用しており、水相流量をパラメータとした場合は有機相流量は約 10 l/h のデータを使用した。（どちらもエマルジョン相生成に影響をもたないデータである。）

この結果からエマルジョン相生成には、有機相流量の影響が大きく、水相流量は、ほとんどエマルジョン相生成に関与しないことがわかった。

この同じデータを用いて、相分離部での滞留時間とエマルジョン相生成の関係を Fig. 6.3.7 に示す。

この図から、本分離型セトラの相分離部滞留時間は 4 分以上必要であり、エマルジョン相生成への影響から、混合液中の水相液滴に同伴する有機相量は、なるべく少ないほうが良いことが判った。

6.3.3 第3相除去性能

第3相の除去については、6.2.3)に記したように、短時間で速やかに除去出来た。

Fig. 6.3.8 に今回の試験での第3相抜き出しの様子を示した。

第3相抜き出し口の位置については、界面に対して有機相部 3、水相部 7 の割合での浸漬位置が、もっとも効率良く第3相を除去出来た。この部位での抜き出し液中の有機相、水相の混合比は、約 $1 : 1$ であった。以上の結果から、抜き出し口をもう少し小さくした方がより効率的に抜き出せると思われるが、反面、界面位置への抜き出し口のセッティングが難しくなる恐れがある。

また、今回はアルミナを短時間の内に供給して模擬第3相を生成させたが、実際に核燃料を処理する運転では、少量ずつ定常的に生成される。そのため第3相の抜き出しは、少量ずつ連続的に行われることが望ましい。しかし、第3相を除去した濾液を再び分離型セトラにもどすことを考えると、分相能力の維持を考慮するならば、間歇的な運転が望ましく、第3相の発生、蓄積量を考えても、間歇的な抜き出しで充分対応可能と考える。

6.3.4 試験結果のまとめ

以上の試験結果から、今後の設計に資する情報をまとめると、

- ① 基本的には、本分離型セトラの構造で安定な界面を得た。
- ② 相分離部から排出する水相の出口は、供給量に対して余裕をもって大きくし、配管抵抗等のかからないようにする。
- ③ 相分離部の界面に蓄積するエマルジョンの量は、分離型セトラに供給される有機相の滞留時間に関係があり、その消滅速度は、有機相流量に対して最大 340ml/min であった。

つまり、この滞留時間に対する消滅速度以上の有機相が供給されれば、エマルジョン相が発生、蓄積することになる。

- ④ 第3相の抜き出し口の位置については、有機相を抜き出しすぎないような位置が望ましく、本分離型セトラでは、有機相部と水相部の抜き出し口位置割合は3:7で最も効率的であった。しかし、抜き出し口の大きさや形状により界面に対する位置を各々考慮する必要がある。

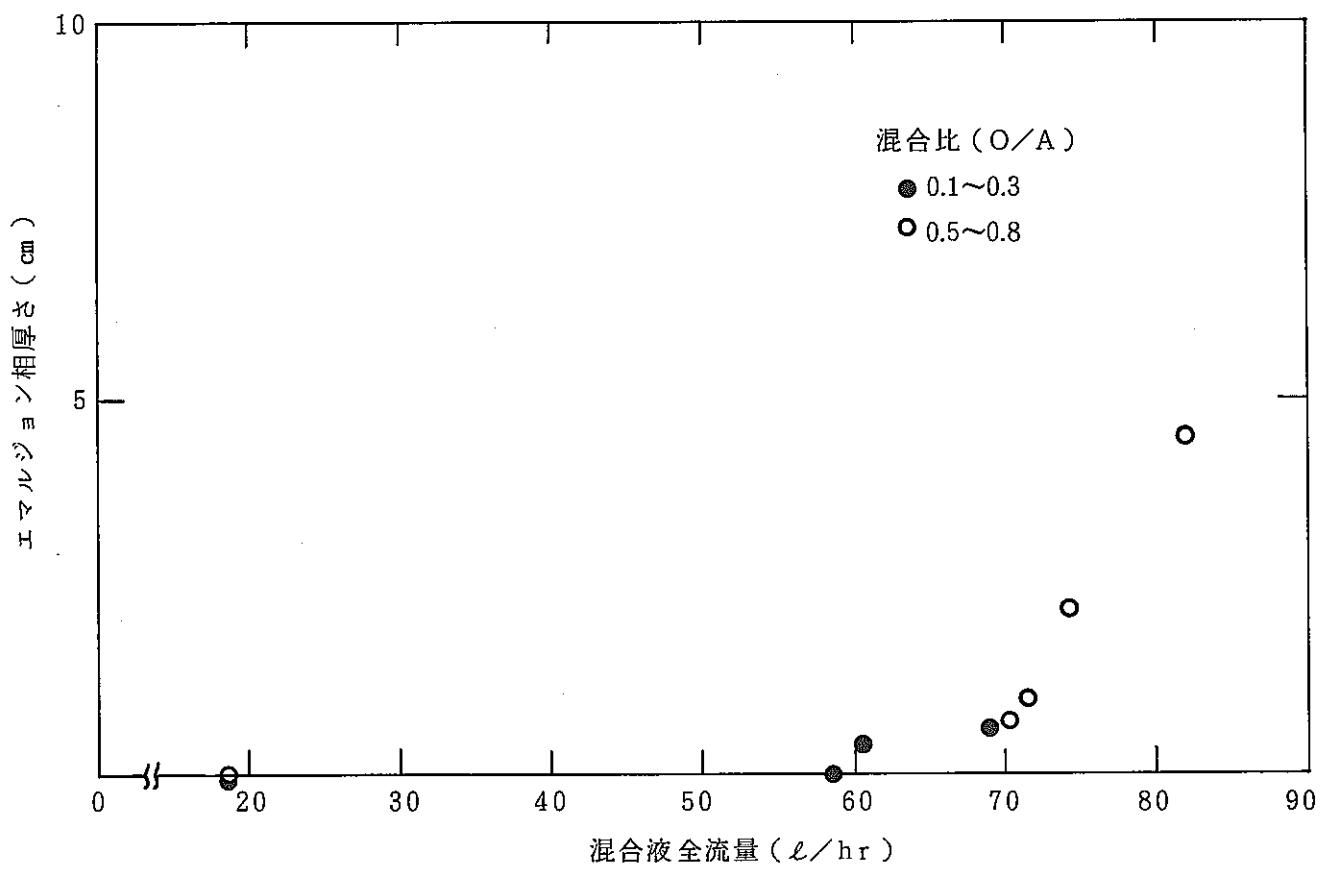


Fig. 6.3.5 分離型セトラへの供給流量の相分離性能への影響

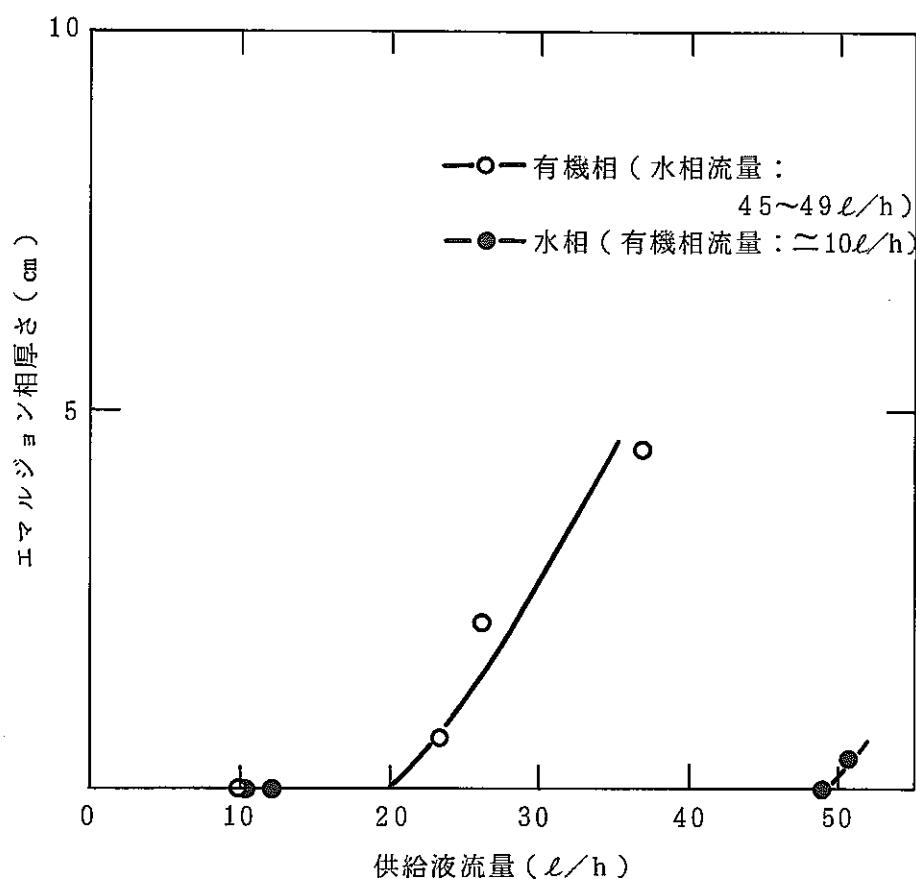


Fig. 6.3.6 各相の流量とエマルジョン相生成の関係

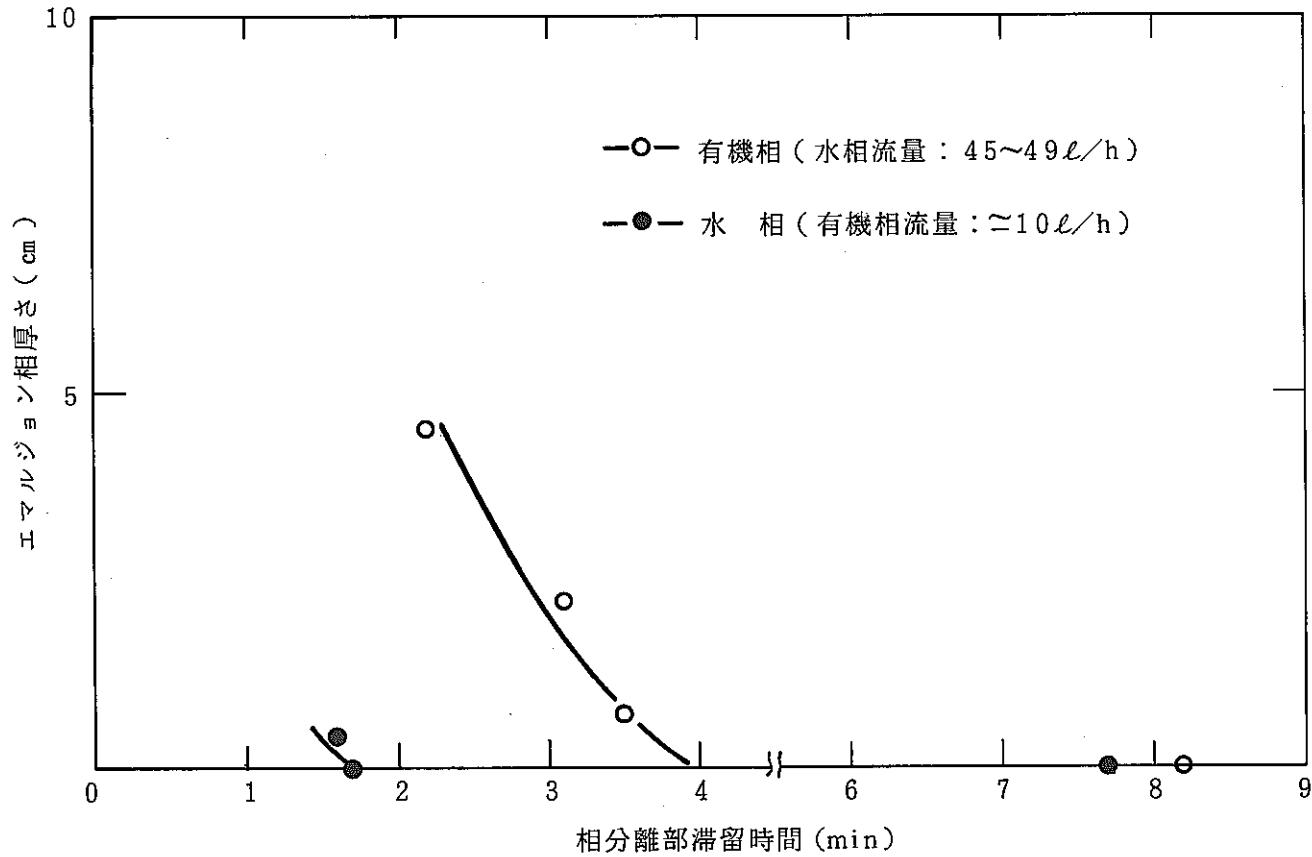


Fig. 6.3.7 相分離部での滞留時間とエマルジョン相生成の関係

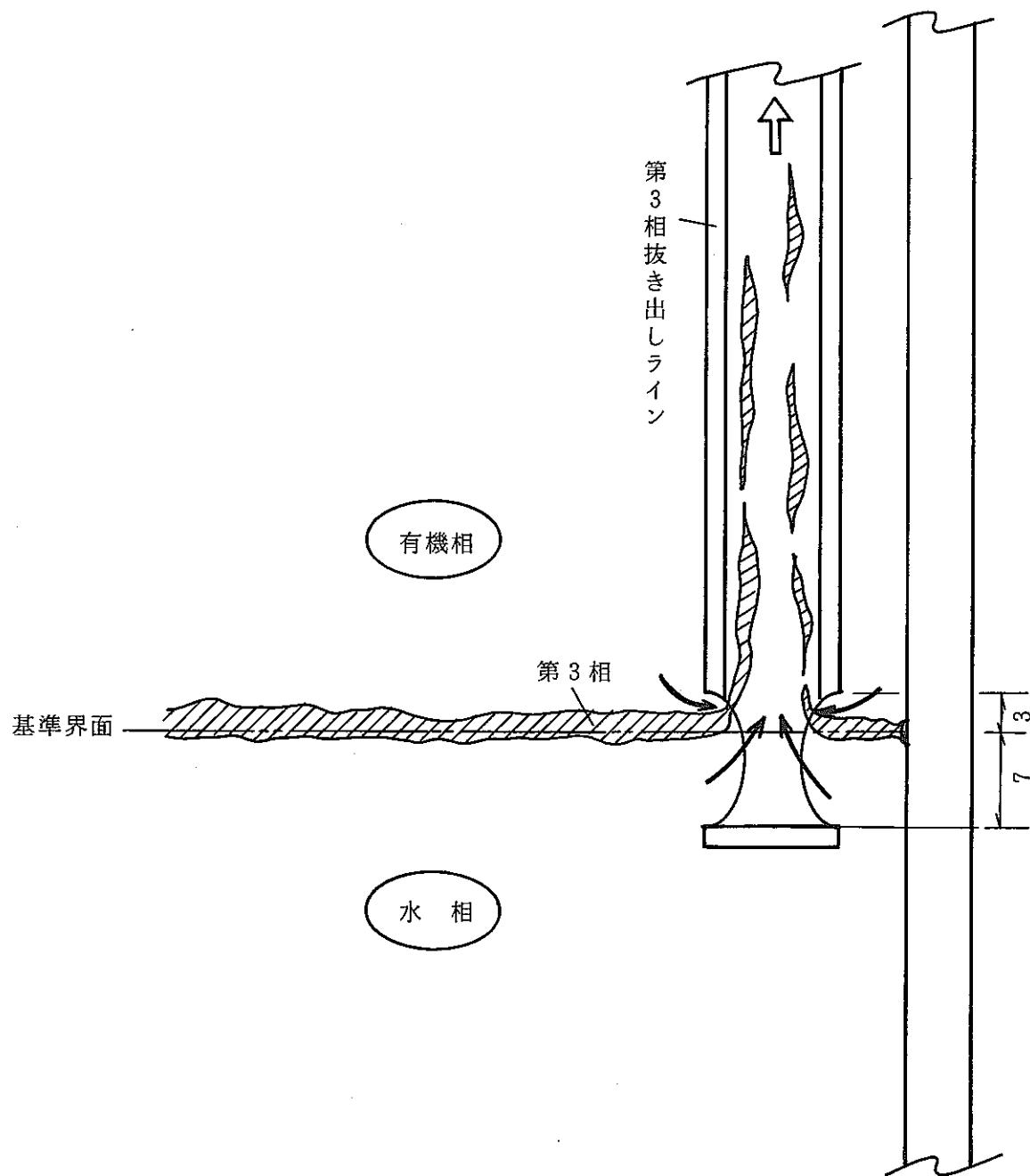


Fig. 6.3.8 第3相抜き出し状況

7. まとめ

前記諸見について総括すると、

- ① 分離型セトラによるパルスカラムシステムは、従来法に比べ界面の安定性に優れています。より精度のよい界面検出及びコントロールが可能であることが判った。
- ② 分離型セトラは、パルスカラム本体から分離しているため、補修、交換等のメンテナンスが容易と期待される。
- ③ 分離型セトラの基本構造は単純で、かつ形状についての選択幅があるため、臨界管理上の対応が容易と判断される。
- ④ 試作器を用いて通水試験を実施した結果、ほぼ予想通りの性能が得られた。
- ⑤ 各種パラメータ試験の結果から、実機設計への手掛りとなる諸データを取得出来た。

8. 参考文献

- (1) J. P. Charvillat, J. J. Fabre, M. Le Bouhellec and M. Henry
: A five years experience of pulse columns extraction cycles for the
reprocessing of fast breeder reactor at the Marcoule pilot plant(S. A. P),
SYMPOSIUM ON LIQUID-LIQUID EXTRACTION SCIENCE, EXTRACTION '84(1984)
- (2) R. C. Asher, L. Bradshaw and A. C. Tolchard
: The use of ultrasonic instrumentation in liquid/liquid extraction plant,
SYMPOSIUM ON LIQUID-LIQUID EXTRACTION SCIENCE, EXTRACTION '84(1984)
- (3) M. Nabeshima, A. Togashi, H. Kashiwara and M. Yamamoto
: Design and performance of a pulse column system for FBR fuel reprocessing,
SYMPOSIUM ON LIQUID-LIQUID EXTRACTION SCIENCE, EXTRACTION '84(1984)
- (4) 岸本洋一郎, 河田東海夫, 根本慎一, 宮地茂彦
: 分離型セトラによるパルスカラム界面制御法の検討,
原子力学会 昭和62年秋の大会 予稿集