The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	アクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発と装置特性に関する研究
Author(s)	山下, 治雄
Citation	大阪大学, 2003, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/1704
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

工 8 8 7 8 3

アクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発と装置特性に関する研究

平成１５年１２月

山下 治雄

アクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発と装置特性に関する研究

平成１５年１２月

山下 治雄

目　次

第１章　序論　1

1.1　緒言　1

1.2　ミキサー･セトラーとスタティックミキサー　2

1.3　本論文の構成　3

引用文献　6

第２章　アクティブタービン翼からの液滴生成　7

2.1　緒言　7

2.2　実験　7

2.2.1　アクティブタービン翼　7

2.2.2　実験装置と操作法　8

2.2.3　溶液系　11

2.3　結果と考察　11

2.3.1　液滴生成　11

2.3.2　生成液滴径分布　14

2.3.3　平均液滴径　14

2.4　結言　21

使用記号　22

引用文献　23

第３章　アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率　24

3.1　緒言　24

3.2　実験　25
3.2.1　攪拌翼と抽出塔　25
3.2.2　溶液系　27
3.2.3　抽出装置の操作方法と測定方法　27
a）分散相ホールドアップ　28
b）分散相フラッデング　28
c）液液抽出　28
3.3　結果と考察　29
3.3.1　分散相ホールドアップ分布　29
3.3.2　分散相ホールドアップ　31
3.3.3　分散相フラッデング流量　36
3.3.4　抽出効率　36
3.3.5　逆混合　39
3.3.6　装置性能　45
3.4　結言　47
使用記号　48
引用文献　49

第４章　流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率　50

4.1　緒言　50
4.2　実験　51
4.2.1　攪拌翼と抽出塔　51
4.2.2　流動実験　51
a）分散相ホールドアップ　51
b）液滴径　53

c）分散相フラディング流量 53
4.2.3 抽出実験 53
4.3 結果と考察 54
4.3.1 液滴径 54
4.3.2 分散相ホールドアップ 54
4.3.3 分散相フラディング流量 58
4.3.4 抽出効率 58
4.4 結言 63
使用記号 64
引用文献 65

第５章 ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率 66
5.1 緒言 66
5.2 回転円板翼多段液液抽出塔の流動および抽出実験 67
5.2.1 攪拌翼と抽出塔 67
5.2.2 流動実験 67
5.2.3 抽出実験 67
5.3 考察 69
5.4 結言 76
使用記号 77
引用文献 78

第６章 アクティブタービン翼多段攪拌塔の気液流動特性 79
6.1 緒言 79

6.2　実験　80
6.2.1　攪拌翼と気液接触装置　80
6.2.2　実験方法　80
a) ガスホールドアップ　82
b) 生成気泡径　82
6.3　結果と考察　82
6.4　結言　91
使用記号　92
引用文献　93

第７章　総括　94

謝辞　99

発表論文リスト　100

第1章　序論

1.1　緒言

液液抽出操作は共沸混合物の分離、抗生物質の濃縮、ウランの濃縮、放射線廃棄物の処理など、石油精製および石油化学工業、薬品工業、原子力工業、各種化学工業などあらゆる分野に広く利用されている。液液抽出操作を用いてこれらの化学物質を効率良く分離・回収するには、抽出試薬および装置開発が重要かつ不可欠である。液液抽出装置は、蒸留塔やガス吸収塔と関連して充填塔、多孔板塔から始まった。その後、1940年代には液振動方式の脈動充填塔、脈動多孔板塔、1950~1960年代には攪拌方式の回転円板抽出塔、オルドシュー - ラシュトン塔、振動板塔が加わり、1990年代には新規な原理、例えば遠心力や電場、磁場を利用した装置が考案されるに至っている。これらの液液抽出装置については、"Liquid-Liquid Extraction Equipment"が出版され、それぞれの装置を得意とする研究者によって執筆されている[1)]。

液液系は相態が同じであるため、気液系や固液系と比べて操作が困難である。すなわち、比界面積を大きくするため微粒液滴を生成すると、二相間の浮力が小さくなり溢汪現象が生じやすい。また、液滴径を小さくすると液滴が剛体化し、物質移動速度の低下を招くと同時に相分離を困難にする。これらの観点を考慮して液液抽出装置を設計、開発する必要がある。ヨーロッパ化学工学連合の抽出部会では、液液抽出の標準化システムに関する共同研究を行い、その成果の一部として種々の液液抽出装置の性能評価と価格評価が報告されている[5)]。報告されている抽出

装置の機種とその寸法を **Table 1-1** に示す。性能評価は溶液系および操作条件を指定し、全負荷液流量に対する単位塔高当たりの理論段数で評価されている。試験抽出装置の中で負荷液流量および単位塔高当たりの理論段数共に優れた装置はない。一方、価格評価は負荷液流量および単位塔高当たりの理論段数に対する装置費用で評価され、負荷液流量の増加に伴い価格評価が有利となるスケールメリットが示されている。

Table 1-1 試験抽出装置と寸法

機種	塔径 [cm]	塔高 [cm]	開孔比 [%]	孔径 [cm]	段間隔 [cm]
Graesser	10	100	—	—	2.5
脈動多孔板塔	5	300	20	0.2	10
QVF-攪拌室抽出機	15	200	10.8	—	7.5
Karr	5	260	53	0.9	2.5
脈動充填塔	7	300	—	—	—
充填塔	7	300	—	—	—
多孔板塔	7.5	200	3	0.2,0.3	15,25,45,60
ミキサーセトラー	10	120	—	—	—
Kühni	15	200	11.8	—	—
回転円板塔	7	170	—	—	—

1.2 ミキサー・セトラーとスタティックミキサー

抽出効率の良い抽出装置の代表的なものとしてミキサー・セトラーがある。しかし、ミキサー・セトラーは設置床面積をかなり必要とし、それぞれのセトラーからの液の抜き出しにポンプが必要となる等の欠点がある。そこで、この装置の長所である抽出効率の良さを維持し、設置床面積を低減させるためミキサーとセトラーを縦型に1本にまとめた多段抽出塔が開発されている。高橋ら[6]は大きな処理量が得られかつ安定な操作が可能である多段ミキサー・セトラー抽出塔を、Steiner ら[4]はホー

ルドアップが大きい多段ミキサー・セトラー抽出塔を開発した。しかし、これらの装置は複雑な内部構造に加えて軽液分散系でしか操作できない。一方、野田らによって独自に開発された重液分散系多段ミキサー・セトラー抽出塔は、内部構造が比較的簡単で軽液分散系に転用した場合でも重液分散系の処理液流量の半分程度は操作可能である[8]。多段ミキサー・セトラー抽出塔は内部構造を工夫することで、性能が良く柔軟な操作が可能な装置になることが期待できる。

スタティックミキサーは、管内に機械的可動部分を持たない流通式混合器で、古くから液液抽出装置として注目されている[2]。野田[3]は、円板にスタティックミキサーを取り付け、スタティックミキサーが回転する新規な攪拌翼を考案し、それをアクティブタービン翼と名称した。この新規な攪拌翼を液液分散系に用いると、翼の回転で生じる圧力差により油水二液相がスタティックミキサー流路内に吸引され、その中を通過する間に遠心力と混合エレメントによる捻れせん断流れの影響を受けながら流動分散混合する。植田[7]は、既存の気泡塔反応器やループリアクターにスタティックミキサーを取りつけ、スタティックミキサーによる物質移動の促進効果によって装置性能が向上する事例を報告している。このことは、既存の液液抽出装置にもスタティックミキサーを組み込み、物質移動を促進させることで装置性能が向上する可能性を示唆している。

1.3 本論文の構成

本論文は、スタティックミキサーが回転することで従来の攪拌型液液抽出装置には見られない新規な流動分散混合方式のアクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発およびその装置特性を得ることを目的とするものである。本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔の構

造上の特徴は、新規な攪拌翼以外に各段の仕切り板開口部に液滴の合一を促進させ、セトラーの機能を有する金網があることおよび連続相と分散相の流路を分離する降水管があることである。

本論文は７章から構成される。

第１章：アクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発において基になる液液抽出装置としてミキサー・セトラーおよびスタティックミキサーについての研究を紹介する。

第２章：液滴がアクティブタービン翼の何処で、どのような機構で生成するのか、また、回転速度によって生成液滴径分布および平均液滴径はどのように変化するかについて、単一段を可視化して得られる知見をまとめる。

第３章：アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動特性、操作特性および抽出効率について得られた実験結果をまとめ、既存装置と比較することで、アクティブタービン翼多段液液抽出塔の装置特性を明らかにする。

第４章：管内混合エレメントがない中空の流通管付きディスク翼を有する多段液液抽出塔の流動特性、操作特性および抽出効率について実験的検討を行う。

第５章：アクティブタービン翼多段液液抽出塔におけるスタティックミキサーおよび管内混合エレメントの役割を確認するため、アクティブタービン翼多段液液抽出塔と管内混合エレメントがない中空の流通管付きディスク翼多段液液抽出塔およびスタティックミキサーが搭載されていない回転円板翼多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較検討する。

第６章：アクティブタービン翼多段液液抽出塔の多目的利用として気液分散系への適用の可能性を検討するため、その流動特性を実験的に調

べるとともに回転円板翼と比較実験する。

第7章：本論文を総括し、今後の課題を述べる。

[引用文献]

1) Godfrey, J.C. and M.J. Slater, eds. : "Liquid-Liquid Extraction Equipment", John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England(1994)
2) 升田恵三，森島　秦：「化学工学の進歩 16」，槙書店，東京(1982)
3) 野田秀夫：ケミカル・エンジヤリング，**40**，49-52(1995)
4) Steiner, L., B. Stoffel, A. Schopf and S. Hartland : Proc. ISEC'96, p.1173-1178, Melbourne, Australia(1996)
5) Stichlmair, J. : *Chem. Ing. Tech.*, **52**, 253-255(1980)
6) 高橋勝六，中島　元，二井　晋，竹内　寛：化学工学論文集，**19**，440-445(1993)
7) 植田全紀：ケミカル･エンジニヤリング，**36**，95-101(1991)
8) 山下治雄，山口　学，金田万平，野田秀夫：化学工学論文集，**24**，711-715(1998)

第２章　アクティブタービン翼からの液滴生成

2.1　緒言

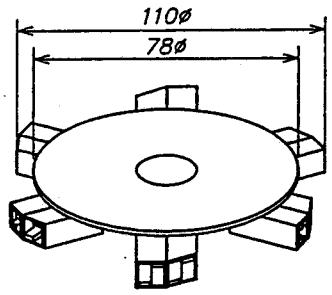
攪拌翼によらない液滴分散方式としてスタティックミキサーによる流通式液滴分散方式がある [5]。この方式では分散相、連続相の両相とスタティックミキサーの混合エレメントとの関わりが液滴生成に直接関係することが知られている [3),1)]。しかし、円板にスタティックミキサーを取り付けた攪拌翼、アクティブタービン翼 [6]のように回転しているスタティックミキサーからの液滴生成に関する知見は皆無である。

本章は、液滴がアクティブタービン翼の何処で、どのような機構で生成されるのか、またそれに伴って生成液滴径分布および平均液滴径はどのように変化するのかを調べたもので、単一段を用いて以下の２通りの実験をした。（１）透明アクリル樹脂製アクティブタービン翼および分散相に着色液を用いてスタティックミキサー流路内の分散相および連続相の流れ、挙動および液滴生成を可視化し、観察した。（２）実用翼であるステンレス製アクティブタービン翼からの生成液滴径と操作変数との関係を調べた。

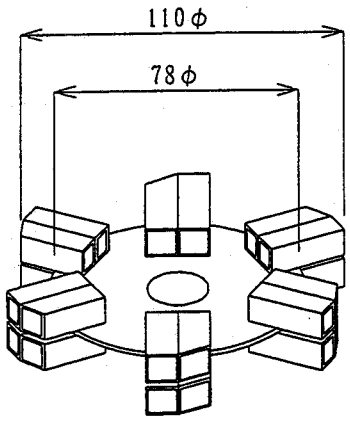
2.2　実験

2.2.1　アクティブタービン翼

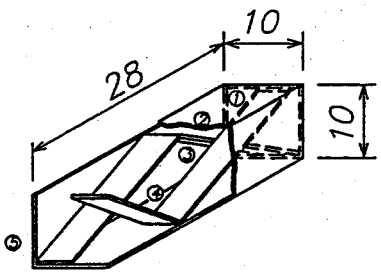
回転しているスタティックミキサー流路内の液滴の分散状態を観察するために **Fig.2-1(a)**の透明アクリル樹脂製の可視化翼を作製した。この攪



(a) アクリル樹脂製可視化翼



(b) ステンレス製実用翼



(c) スタティックミキサーの内部構造

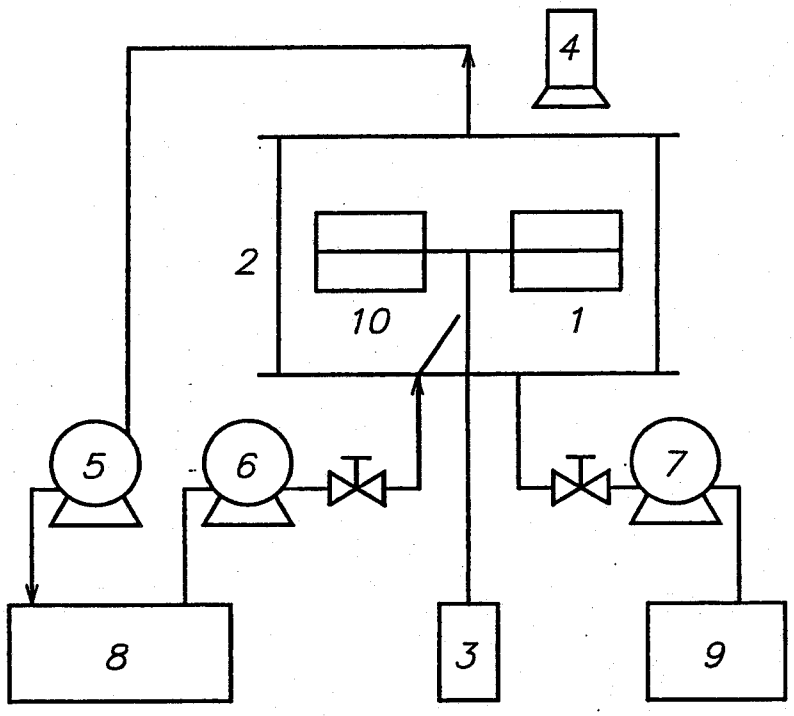
Fig. 2-1 アクティブタービン翼

拌翼は外径 78mm の円板の下部に縦横 10mm、長さ 28mm のスタティックミキサーを 12 個取り付けたものである。本論文の混合エレメントは従来のように一枚の板を捻った物ではなく、Fig.2-1(c)のように幅 4mm の平板を約 140° に折り曲げたもので、二枚隣り合わせて固定されている。図中①より吸引された連続相と分散相の両相は②で堰き止められるため③に流路を変え、④で再び堰きとめられて⑤に流路を変えて吐出される。即ち、①→③→⑤へ吸引・吐出される。Fig. 2-1(b)は本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔に用いられているステンレス製アクティブタービン翼で、各寸法およびスタティックミキサーの内部構造はアクリル樹脂製アクティブタービン翼と同じであるが、円板の上部にもスタティックミキサーを 12 個取り付けた。アクティブタービン翼の外径は両翼とも 110mm である。

2.2.2 実験装置と操作法

実験に用いた装置全体の概略図を Fig.2-2 に示す。装置本体は内径 150mm、高さ 70mm のアクリル樹脂製カラムで、本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔の一段に相当する。分散相供給管は内径 8 mm のアクリル樹脂製で、アクティブタービン翼の下方中心部に設置し、分散相を翼の下方中心部付近に供給するようにした。ローラポンプにより供給された分散相はアクティブタービン翼のスタティックミキサーにより分散・吐出され、カラムの上蓋の中央に集まる。カラムの上蓋の中央に集まった分散相はローラポンプで排出する。これは液滴の挙動観察を容易にすることおよびカラム内圧力を一定に保つためである。そのため、分散相の供給速度と排出速度が同じになるように調整した。

実験は、まずカラム内に連続相を満たし、アクティブタービン翼を所定の回転速度で回転する。次に分散相を所定の流量で供給する。スタティ



1:impeller, 2:column, 3:motor, 4:camera or video camera, 5, 6, 7:roller pump, 8:dispersed phase reservoir, 9:continuous phase reservoir, 10:supplying pipe for dispersed phase

Fig. 2-2 実験装置の概略図

ックミキサー流路内の液滴生成およびカラム内の液滴は、テレビカメラを通してビデオ録画あるいはカメラにより写真撮影した。カラム内の液滴径は定規を用いて求めた。サンプル数は 200～300 個である。なお、鮮明な液滴の画像を得るため分散相をヨウ素で着色した。液滴の分散状態および生成液滴径におよぼす分散相流量 U_d および回転速度 N の影響を、U_d=1.4×10^{-7}～5.6×10^{-6}m^3(m^2.s)、N=0.42～5.0s^{-1} の範囲で調べた。

2.2.3 溶液系

連続相に蒸留水を、分散相にシクロヘキサン、アイソパーM（イソパラフィン）およびシリコンオイルを使用した。シクロヘキサンは実験装置の材質の耐薬品性を考慮に加え、ヨーロッパ化学工学連合推奨の抽出装置性能評価標準物質トルエンの類似溶媒として、アイソパーM は実用溶媒として、シリコンオイルは分散相粘度の影響を調べるために選定した。これらの物質の物性値を **Table 2-1** に示す。

Table 2-1 液体の物性値

	粘度[mPa・s]	密度[kg/m^3]	界面張力[mN/m]
水[1)]	1.00	998	—
シクロヘキサン[1)]	0.979	779	50.6[4)]
アイソパーM[2)]	2.80	788	42.3[4)]
シリコンオイル[3)]	18.4	955	39.3[4)]

1) 20℃、2) 25℃、3) 22℃、4)水に対する値

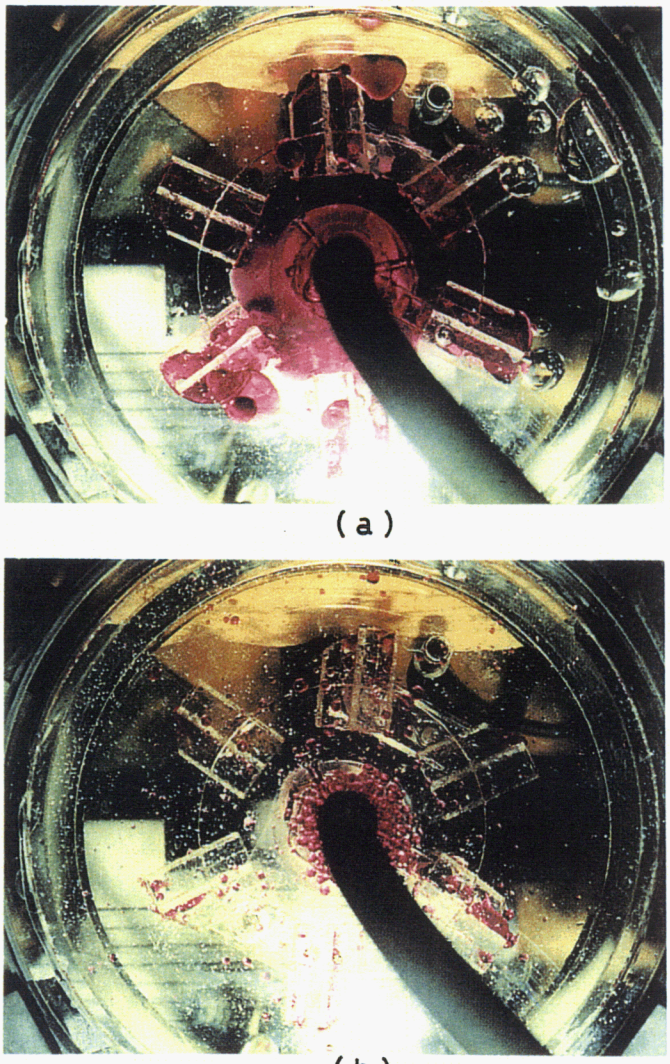
2.3 結果と考察

2.3.1 液滴生成

従来のスタティックミキサーでは連続相中に体積比が数パーセントの分散相を供給して、両相の流通過程で分散相の液滴化と両相の混合を行

う。本方式では、両相は翼の回転で生じる圧力差によってスタティックミキサー内に吸引される。そのためスタティックミキサー流路内に流入する連続相と分散相の体積比は分散相流量と回転速度に依存して変化するので、これらの操作変数によって液滴の生成場所や生成機構が異なることが予想される。

まず、ヨウ素で着色したシクロヘキサンを分散相としてアクリル樹脂製アクティブタービン翼を用いた可視化実験で、スタティックミキサーによる液滴生成におよぼす回転速度の影響を調べた。その実験結果の一例を **Fig.2-3** に示す。分散相流量 U_d が $U_d=1.4\times10^{-7}\mathrm{m}^3(\mathrm{m}^2.\mathrm{s})$と低流量で、回転速度 N が $N<0.83\mathrm{s}^{-1}$ の低回転数域では分散相はスタティックミキサー内に流入することが出来ず、スタティックミキサーとスタティックミキサーの間の円板縁から液滴生成した。$N=0.83\mathrm{s}^{-1}$ では Fig.2-3(a)のように分散相はスタティックミキサー流路内を満たして流れ、スタティックミキサーの先端から液滴を生成した。この場合にはスタティックミキサー流路端から単一液滴が、また回転速度の増加と共にスタティックミキサー流路端から液柱が生成され、それが分裂し、液滴が生成される。この実験結果は円板の材質との濡れ特性にも関係するが、$N<0.83\mathrm{s}^{-1}$ 程度ではスタティックミキサー流路内の流動抵抗が大きく、分散相がスタティックミキサー流路内に流入できないためである。回転速度がさらに大きくなると、スタティックミキサー流路端の圧力差が増加するためスタティックミキサー流路内に両相が流入するようになる。そして、両相がスタティックミキサー流路内で捻れ流れとなる際に分散相は連続相中に液滴分散され、二液混相流となってスタティックミキサー流路端から吐出される。Fig.2-3(b)は $U_d=2.8\times10^{-7}\mathrm{m}^3(\mathrm{m}^2.\mathrm{s})$、$N=3.75\mathrm{s}^{-1}$ の場合で、スタティックミキサー流路内で分散相が液滴になっているのが分かる。これは、Fig.2-3(a)と較べると分散相流量が 2 倍になっても遠心力が 20 倍



(a) U_d=1.4×10^{-7}m^3(m^2.s)、N=0.83s^{-1}

(b) U_d=2.8×10^{-7}m^3(m^2.s)、N=3.75s^{-1}

Fig. 2-3　アクリル樹脂製可視化翼からの液滴生成

－シクロヘキサン＋水系－

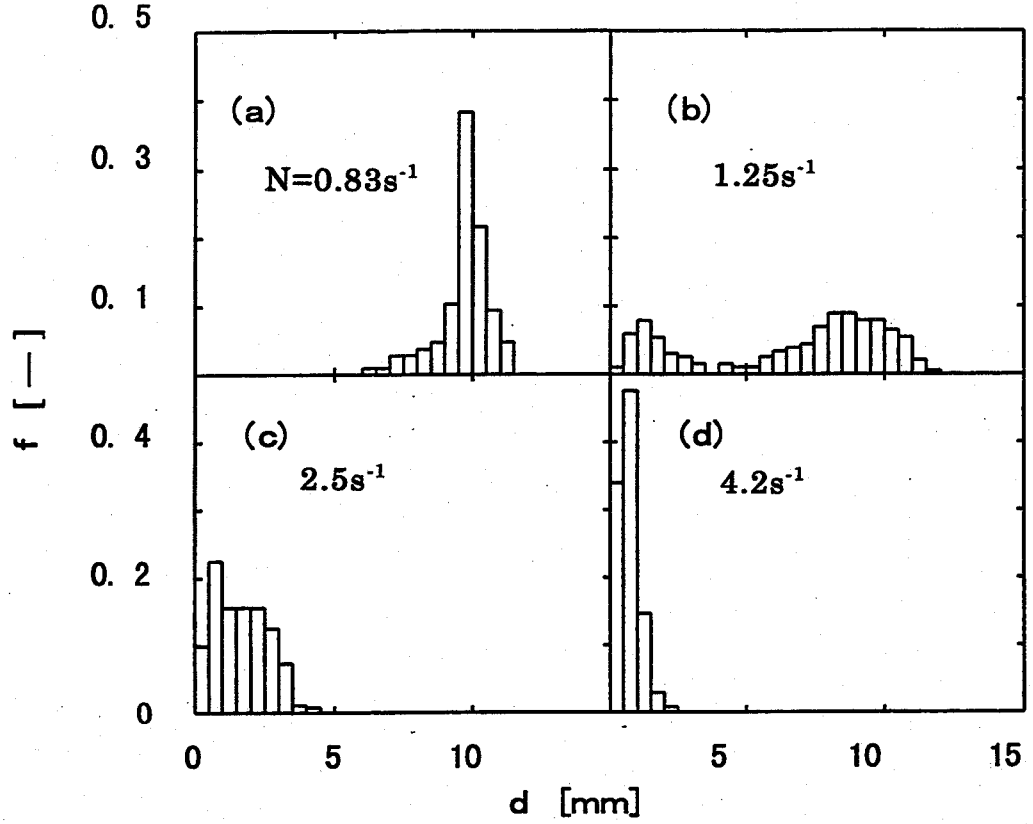
程度になるのでスタティックミキサー流路内の液流速は速くなり、分散相ホールドアップの減少と高速捻れ流れによる剪断力により分散相は液滴分散化される。このようにアクティブタービン翼からの液滴生成は分散相流量と回転速度に依存して、分散相流動支配のスタティックミキサー流路端液滴生成（単一液滴生成あるいは液柱からの液滴生成）から二液混相流動支配の流路内液滴生成（液滴分散生成）へと移行した。

2.3.2 生成液滴径分布

シクロヘキサンを分散相としてアクリル樹脂製アクティブタービン翼を用いた場合の回転速度 N に対する液滴径分布を **Fig.2-4** に示す．ここで、d は液滴径、f はその個数頻度である。液滴分布は回転速度 N の増加と共に N=0.83s^{-1} の unimodal 分布から N=1.25s^{-1} の bimodal 分布を経て、N=2.5s^{-1}、N=3.75s^{-1} の unimodal 分布へと変化した。これは 2.3.1 で述べたように回転速度の増加と共にスタティックミキサー流路内の高速捻れ流れによる剪断力のためである。bimodal 分布を形成するのは液滴が液柱から生成する場合で、主滴に続いて小滴の二次滴が生成する。

2.3.3 平均液滴径

本論文では回転速度が大きい場合、即ちスタティックミキサー流路内液滴生成の場合について考察する。**Fig.2-5** はシクロヘキサンを分散相にして、ステンレス製の実用アクティブタービン翼による体面積平均径 d_{32} におよぼす回転速度 N および分散相流量 U_d の影響を調べたものである。分散相流量が一定で回転速度が大きくなると体面積平均液滴径は小さくなっている。これは 2.3.1 で述べたように回転速度の増加と共にスタティックミキサー流路内の高速捻れ流れよる剪断力が増加するためである。それに対して体面積平均液滴径におよぼす分散相流量の影響は



U_d=1.4×10^{-7}m^3/(m^2.s)

Fig. 2-4　アクリル樹脂製可視化翼からの生成液滴径分布

－シクロヘキサン＋水系－

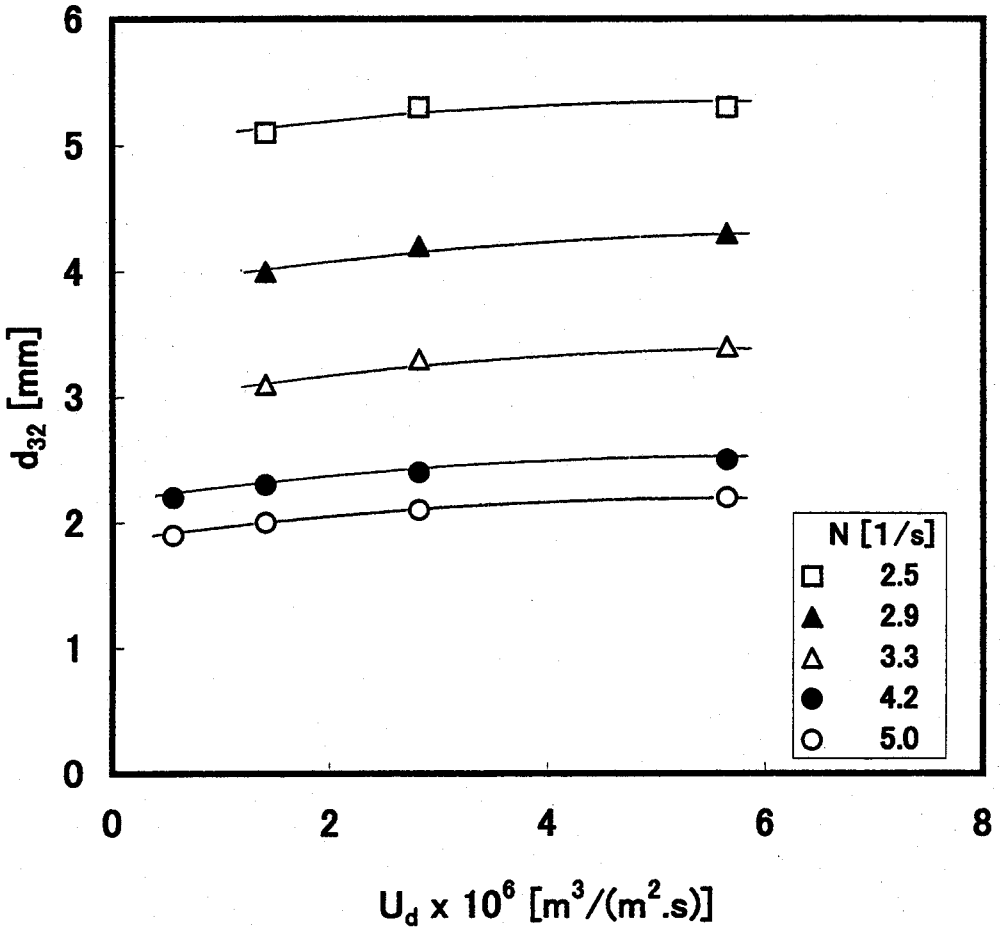


Fig. 2-5　体面積平均液滴径におよぼす分散相流量と回転速度の影響
－ステンレス製実用翼、シクロヘキサン＋水系－

小さかった。

体面積平均液滴径におよぼす液物性の影響について従来のスタティックミキサーでは連続相流速および管径基準のウェーバー数を用いて検討されているが、本方式のように回転しているスタティックミキサーではスタティックミキサー流路内の流速を測定することは困難である。そこで、Eq.(2.1)で定義される回転速度および翼径基準のウェーバー数Weを用いて検討することを試みた。ここで、Dは翼径、ρ_cは連続相密度、σは界面張力である。

$$We = N^2 D^3 \rho_c / \sigma \tag{2.1}$$

Fig. 2-6 はシクロヘキサン、アイソパーMおよびシリコンオイルを分散相にして、ステンレス製の実用アクティブタービン翼による体面積平均液滴径をウェーバー数で両対数プロットしたものである。図のように体面積平均液滴径d_{32}はウェーバー数Weで相関できることが実験的に示され、次式の実験式を得た。

$$d_{32}/D = We^{-0.59} \tag{2.2}$$

従来のスタティックミキサーでは分散相粘度μ_dの値が 1mPa·s よりも小さい場合には体面積平均液滴径は Eg.(2.2)で相関できるが、μ_d=1mPa·s よりも大きい場合には分散相粘度の値が大きくなると共に Eg.(2.2)から算出した値よりも大きくなることが知られている[4)]。これと較べ、Weの定義の違いがあるが、本方式のスタティックミキサーではμ_d=18.4mPa·s まで Eg.(2.2)で相関できた。分散相粘度の値が大きくてもEg.(2.2)で相関できるのは従来のスタティックミキサーよりも分散相の

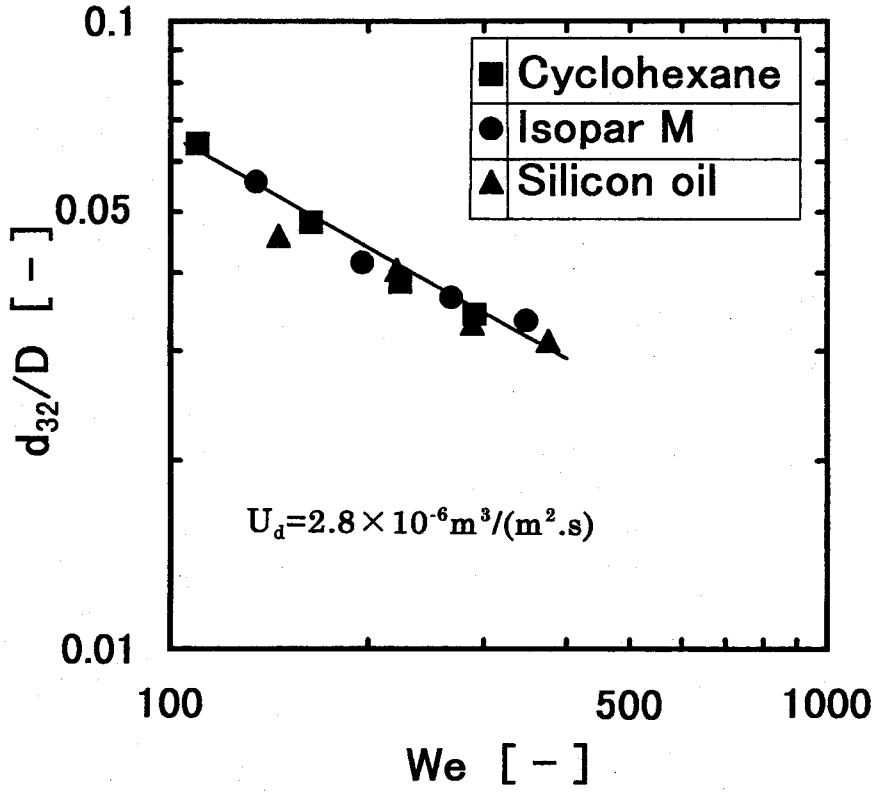


Fig. 2-6　d_{32}/D 対 We

－ステンレス製実用翼－

分裂が促進されるためと思われる。また、Weの依存性を示す値 0.59 は従来のスタティックミキサーにおける理論値 0.6[4]と良く一致した。

Fig.2-7 はシクロヘキサンを分散相にして、液滴分布におよぼす翼材質の影響を調べたものである。ステンレス製アクティブタービン翼（SAT）の方がアクリル樹脂製アクティブタービン翼（AAT）よりも滴径分布が広く、体面積平均液滴径についても SAT の方が AAT よりも約 1.5 倍大きくなった。この原因は分散相と翼材質との濡れ特性の相違によると考え [2]、水相中でのステンレスおよびアクリル樹脂表面上のシクロヘキサンの接触角θを写真撮影法で測定した。その結果、ステンレスではθ=79°、アクリル樹脂ではθ=109°となり、ステンレスの方が濡れ難いことが分かった。しかし、回転速度の増加と共に濡れ特性の差異の影響は小さくなり、両翼の滴径分布の形状、体面積平均液滴径の値の差異は小さくなった。

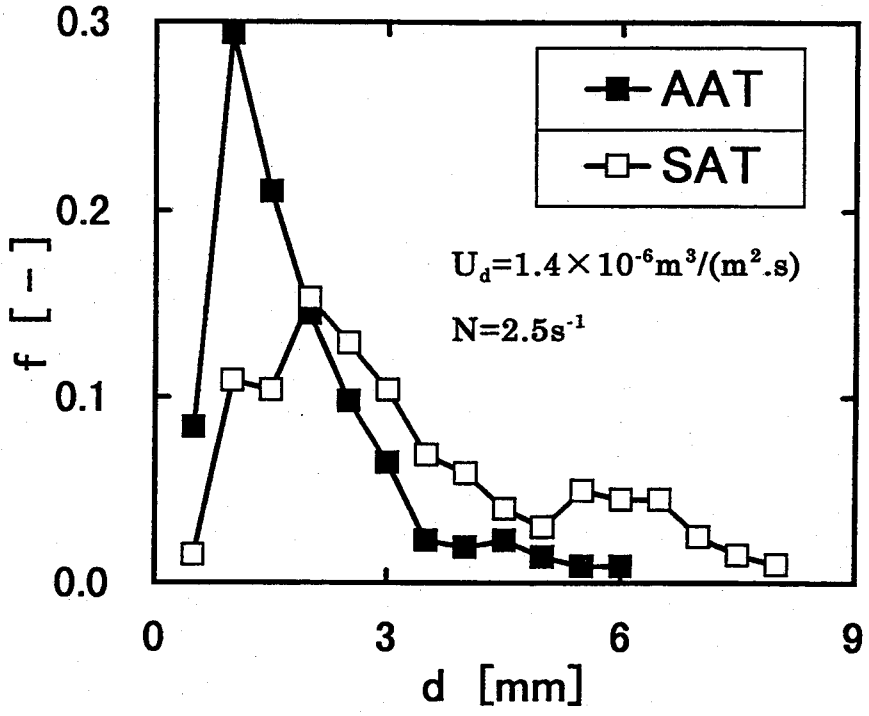


Fig. 2-7　滴径分布におよぼすステンレス製実用翼（SAT）と
アクリル樹脂製可視化翼（AAT）の比較
－シクロヘキサン＋水系－

2.4 結言

可視化翼のアクティブタービン翼と実用翼のアクティブタービン翼からの液滴生成の実験から液滴生成機構および液滴径について分かったことを下記に示す。

（1）アクティブタービン翼からの液滴生成は回転速度の増加と共に、分散相支配のスタティックミキサー流路端液滴生成（単一液滴生成あるいは液柱からの液滴生成）から二相混相流動支配の流路内液滴生成（液滴分散生成）へと移行する。それに伴い、液滴径分布はunimodal分布からbimodal分布を経て再びunimodal分布となり、液滴径は減少する。

（2）スタティックミキサー流路内液滴生成領域では、体面積平均液滴径は回転速度および翼径基準のWeの-0.59乗に比例する。

（3）スタティックミキサー流路内液滴生成領域では、体面積平均液滴径は分散相流量の減少と共に幾分小さくなる。

（4）生成液滴径には翼材質に対する分散相の濡れ特性が影響する。

[使用記号]

D	翼径	[m]
d	液滴径	[m]
d_{32}	体面積平均液滴径	[m]
f	液滴の個数頻度	[-]
N	回転速度	[s^{-1}]
U_d	単位カラム断面積当たりの分散相流量	[$m^3(m^2.s)$]
We	ウェーバー数	[-]

[ギリシャ文字]

μ	粘度	[Pa・s]
θ	接触角	[°]
ρ	密度	[kg/m^3]
σ	界面張力	[N/m]

[下付添字]

c	連続相
d	分散相

[引用文献]

1) Berkman, P.D. and R.V.Calabrese : *AIChE J.*, **34**, 602-609(1988)

2) George, O., E.P. Peter and D.B. Dreisinger : *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 173-180(1992)

3) Hass, P.A. :*AIChE J.*, **33**, 987-995(1987)

4) Middleman, S. : *Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop.*, **13**, 78-83(1973)

5) Slater, M.J. : "Co-current Flow Equipment", Liquid-Liquid Extraction Equipment, Godfrey, J.C. and M.J. Slater, eds., p.569-583, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England(1994)

6) 山下治雄，山口　学，清瀬章則，仙波靖英，金田万平，野田秀夫：化学工学論文集，**25**，707-713(1999)

第3章　アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率

3.1　緒言

回転円板塔、オルドシュー - ラシュトン塔などの攪拌式段型抽出塔は工業用液液抽出装置として広く採用されている。これらの装置の基本型は1950~1960年代に完成し、その後、装置内部の改良[3),1)]や装置の新展開[4),8)]が進み、装置性能および操作性が向上している。本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔には次の特徴がある。(1)攪拌翼はスタティックミキサーが回転する新規な攪拌翼、アクティブタービン翼である。分散相と連続相の両相は翼の回転で生じる圧力差によってアクティブタービン翼のスタティックミキサー流路内に吸引され、この中を通過する間に遠心力と混合エレメントの影響を受けながら液滴分散流動する[10)]。この液滴分散方式は従来の攪拌翼では見られないものである。(2)各段の仕切り板に金網を設け、液滴の合一を促進させた。(3)連続相と分散相の流路を分離する降水管を設けた。

本章では、新規な攪拌翼、アクティブタービン翼を有する多段液液抽出塔の開発指針およびその装置特性を得るため、以下のことについて実験的に、検討した。(1)流動特性として分散相ホールドアップおよび分散相フラッデング流量におよぼす分散相流量，連続相流量および攪拌速度の影響を実験的に調べた。(2)液液抽出装置の性能評価法として、ヨーロッパ化学工学連合は実験に用いる溶液および操作条件を統一して行うことを提案している。本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔

を既存装置と比較する意味もあり、抽出効率として単位塔高当たりの理論段数を取り上げ、それにおよぼす全流量および攪拌速度の影響をヨーロッパ化学工学連合推奨の溶液系および操作条件下 [2)]で実験的に調べた。

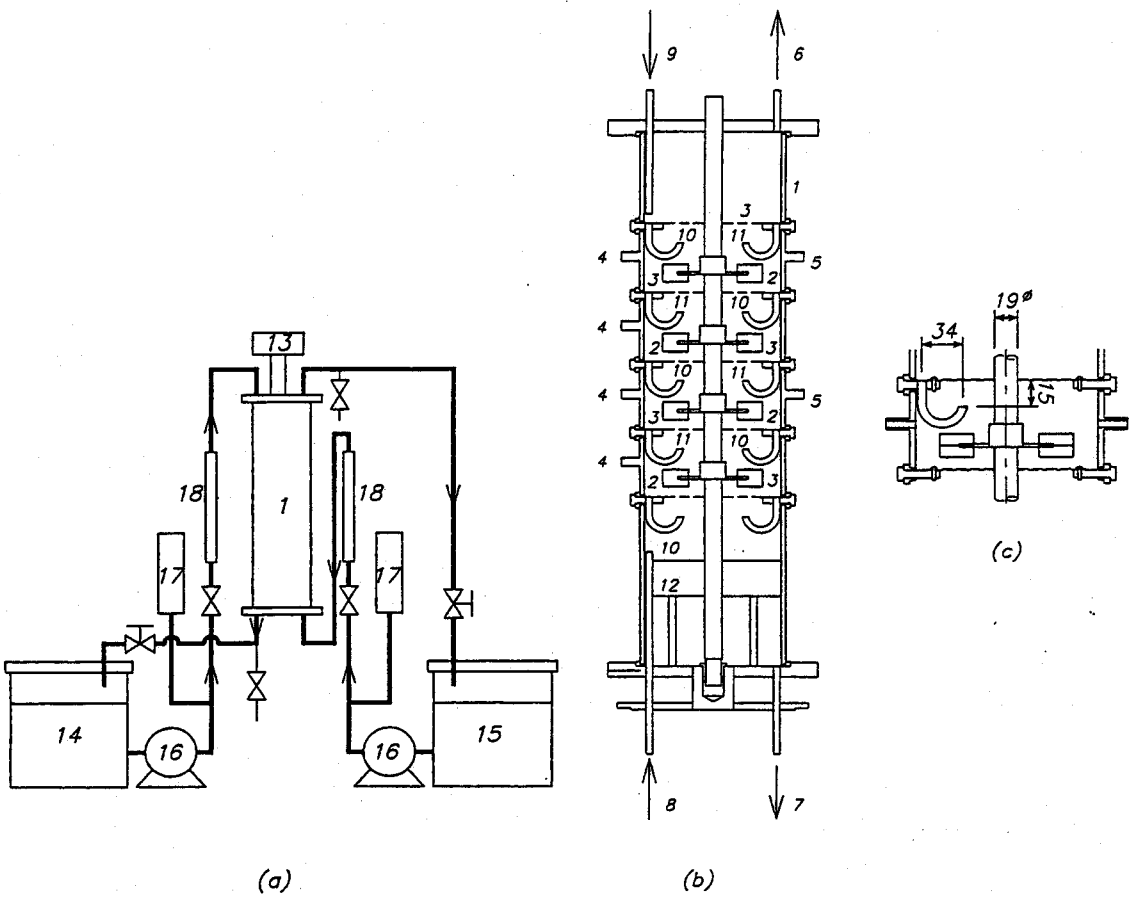
（３）各段の仕切り板に設けた金網による液滴の合一が抽出効率におよぼす影響を実験的に調べた。

3.2　実験

3.2.1　攪拌翼と抽出塔

実験に用いたアクティブタービン翼およびスタティックミキサーの内部構造は、第２章の Fig.2-1(b)および Fig.2-1(c)に示したものと同じである。

装置の全体図を Fig.3-1(a)に、主要部である抽出塔本体を Fig.3-1(b)に、各段の連続管降水管の詳細を Fig.3-1(c)に示す。塔は上部セトラー、下部セトラーおよび４段で構成されている。塔本体"1"はガラス製で，内径 150 mm である。各段は仕切り板"3"で仕切られている。仕切り板の開口部口径はアクティブタービン翼"2"の外径と等しい 110 mm である。開口部にはテフロン被膜した金網"11"を取り付けて液滴の合一を促進するようにした。各段の高さは 70 mm で、その中央部にアクティブタービン翼がある。翼のない最上部および最下部の高さはそれぞれ 100 mm および 185 mm で、分散相と連続相を相分離するセトラー部になっている。なお、下部セトラー部には分散滴の飛沫同伴を防ぐために厚さ 50 mm のステンレス製不規則金網、即ちデミスター"12"がある。図中の"4"および"5"は各段の液相採取口である。また、"9"および"7"はそれぞれ連続相供給口および排出口、"8"および"6"はそれぞれ分散相供給口および排出口である。各段の"10"は内径 8 mm のステンレス製連続相降水管で、



1:column, 2:active turbine impeller, 3:stator ring, 4,5:sampling ports, 6:outlet of dispersed phase, 7:outlet of continuous phase, 8:inlet of dispersed phase, 9:inlet of continuous phase, 10:downcomer of continuous phase, 11:wiremesh coated by teflon for coalescende, 12:demister, 13:electic moter, 14: continuous phase reservoir, 15: dispersed phase reservoir, 16:liquid pump, 17:air damper, 18:flow meter

Fig. 3-1 実験装置図

連続相の滞留時間を長くするためＪ字型になっている。段は塔頂より上部セトラー段、１段、２段、３段、４段、下部セトラー段とする。

3.2.2　溶液系

流動実験では連続相に水を、分散相にトルエンを使用した。抽出実験ではヨーロッパ化学工学連合推奨の水（連続相)/アセトン（溶質）/トルエン（分散相）を用いた。これは既存の抽出装置との性能比較をするためである。両実験で使用した物質の物性値を **Table 3-1** に示す。

Table 3-1　液体の物性値（別記しない限り 20℃の値）

	粘度[mPa･s]	密度[kg･m^{-3}]	界面張力[mN･m^{-1}]
水	1.00	997	-
トルエン	0.589	862	36.3[2)]
アセトン	0.322	784[1)]	-

1) 25℃、2)水に対する値

3.2.3　抽出装置の操作方法と測定方法

流動実験の操作方法を以下に説明する。まず、塔内を連続相の水で満たし、断続的な攪拌で塔内に残存する空気を塔外に強制排出する。次に、送液ポンプを用いて所定の流量の連続相および分散相を同時に塔内に供給し、所定の攪拌速度で塔内を流動化させる。連続相は上部セトラーに供給され、各段の連続相降水管を通って連続相排出口より排出される。分散相は下部セトラーに供給され、一度仕切り板開口部の金網でセトリングされて第４段に入る。そして、アクティブタービン翼で液滴分散され、上昇し、仕切り板開口部の金網でセトリングされて第３段に入る。以下第１段まで分散･セトリングが繰り返される。上部セトラー部で連続相と分散相は完全に相分離され、分散相は分散相排出口より排出される。

連続相排出口のバルブを調整して上部セトラー部の油水界面の位置が一定になると塔内の流動状態は定常になったと見なし、以下の測定を行った。

a)　分散相ホールドアップ

各段の液相採取口より連続相と分散相の混合溶液をメスシリンダーに採取し、各段の分散相ホールドアップを分散相体積/（連続相体積+分散相体積）で定義して求めた。分散相ホールドアップにおよぼす連続相流量 U_c、分散相流量 U_d および攪拌速度 N の影響を U_c=1.04×10^{-3}~2.07×10^{-3} m^3/(m^2・s)、U_d=0.52×10^{-3}~1.84×10^{-3} m^3/(m^2・s) および N =2.33~3.33 s^{-1} の範囲で調べた。

b)　分散相フラッデング

連続相流量と攪拌速度を所定の値に設定して分散相流量を増加させると塔内の定常流れが不可能になる。この状態をフラッデングと定義し、その時の分散相フラッデング流量を求めた。フラッデング状態になると、まず第１段と上部セトラーとの間の金網に分散相が蓄積し始め、それが第１段全体に広がり分散相と連続相との間で相転移が生じる。その状態がさらに下段に伝播し、分散相が連続相排出口から流出する。分散相フラッデング流量を U_c=0.96×10^{-3}~1.59×10^{-3} m^3/(m^2・s) および N =1.67~3.67 s^{-1} の範囲で調べた。

c)　液液抽出

既存の液液抽出装置との装置性能を比較するためにヨーロッパ化学工学連合推奨の操作条件に設定した。即ち、供給連続相中のアセトン濃度を５wt%に調整し、分散相と連続相の流量比 U_d/U_c を 1.5 に固定した。まず、流動実験の場合と同様の操作法で塔内の流動状態を定常にさせる。次に、アッベ屈折計を用いて分散相排出口より排出される分散相の屈折率を一定の時間間隔で測定し、その値が一定になると、アセトンの連続

相から分散相へ物質移動は定常であると見なした。その後、各段の液相採取口より両相の混合溶液を採取、相分離し、連続相と分散相を別々に分取する。また、連続相および分散相排出口から排出する両相も採取した。採取した両相中のアセトン、水およびトルエンはガスクロマトグラフィー(島津製作所 GC-4A)を用いて分析し、各相中のアセトン濃度を求めた。なお、分析は充填剤ポリジビニルベンゼンを長さ2mのステンレスカラムに充填し、カラム温度を323Kから448Kに昇温させ、He気流下で行った。抽出効率におよぼす攪拌速度Nおよび連続相と分散相の全供給流量 U_c+U_dの影響を、N=2.00~3.67 s^{-1}、U_c+U_d=0.80×10^{-3}~2.70×10^{-3} $m^3/(m^2 \cdot s)$の範囲で、仕切り板開口部に金網を設けた場合と設けない場合の両方について行った。ただし、上部セトラーと第1段の間および下部セトラーと第4段の間の金網は取り外さなかった。

3.3 結果と考察

3.3.1 分散相ホールドアップ分布

塔内の分散相ホールドアップ分布の一例を **Fig.3-2** に示す。ここで、ϕは分散相ホールドアップ、Sは段数である。第1段の分散相ホールドアップは、連続相流量、分散相流量および攪拌速度に関わらず Fig.3-2 に示すように他の段の分散相ホールドアップより大きい。この理由として、金網で合一した各段の分散相は浮力と上段のアクティブタービン翼の吸引力によって上段へ流入するが、第1段では上部セトラー段からのアクティブタービン翼による吸引力がないので、分散相は他の段と較べ上昇し難くなるためと考えられる。一方、オルドシュー - ラシュトン塔では極大になる分散相ホールドアップの位置は、操作変数（連続相流量、分散相流量、攪拌速度）の値が大きくなると塔頂から塔底へ移行する[5]。

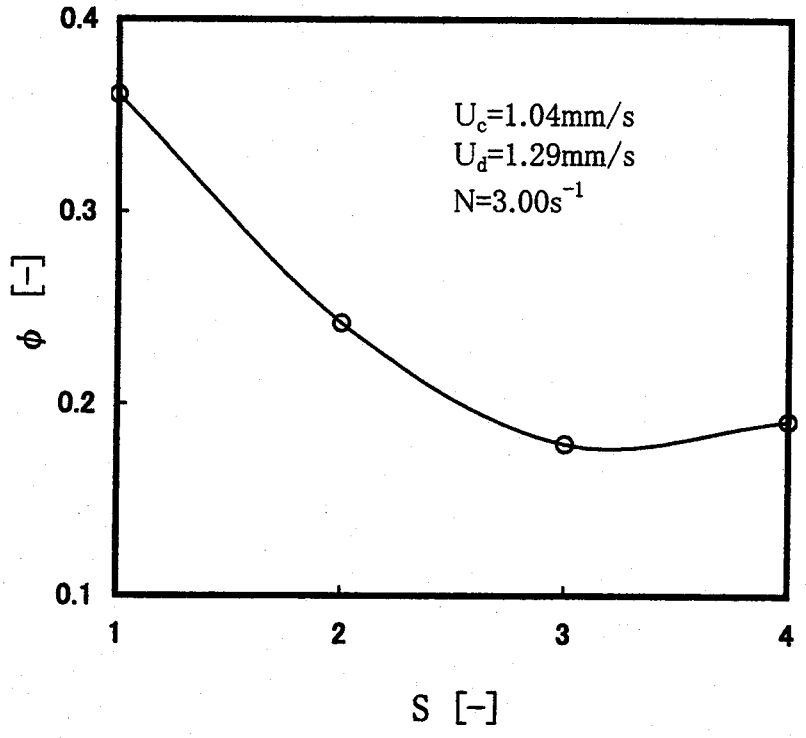


Fig. 3-2　各段の分散相ホールドアップ分布

これは、フラッデングとも関連するが、各操作変数の値が大きくなると小液滴が塔底に蓄積し易くなるためである。

3.3.2　分散相ホールドアップ

第２段を代表段として分散相ホールドアップにおよぼす連続相流量、分散相流量および攪拌速度の影響について考察した。各段の分散相ホールドアップにおよぼす操作変数の影響が第２段と異なる第１段については別途に表示し、考察した。

Fig.3-3 は、連続相流量 U_c および攪拌速度 N をパラメータとして第２段の分散相ホールドアップ ϕ_2 におよぼす分散相流量 U_d の影響を示したものである。連続相流量および攪拌速度が一定での分散相ホールドアップは分散相流量の増加と共に大きくなる。これは、分散相流量の増加と共に液滴径は増大するが、その個数も増加するためであると考えられる。

Fig.3-4 は、分散相流量 U_d をパラメータとし、攪拌速度 N が N=3.33 s^{-1} 一定での第１段および第２段の分散相ホールドアップにおよぼす連続相流量 U_c の影響を示したものである。分散相流量および攪拌速度が一定での第２段の分散相ホールドアップは連続相流量の増加と共に増加した。これは、連続相流量の増加と共に仕切り板の金網からも連続相が降下し、液滴が上昇し難くなるためである。一方、第１段の分散相ホールドアップは、$U_d \leq 1.29\times10^{-3}$ $m^3/(m^2\cdot s)$ の分散相低流量域では連続相流量の増加と共に単調減少、$U_d > 1.29\times10^{-3}$ $m^3/(m^2\cdot s)$ の分散相高流量域では連続相流量の増加と共に極小値を経て増加する。この理由として以下のことが考えられる。Fig.3-1(c)に示すように連続相降水管がＪ字型であるので、上部セトラーの連続相は連続相降水管を通って第１段へ上向きに流入し、下降する。低 U_d 域では、分散滴がこの上向きの連続相流に乗り、上部セトラーに吐出されるため、分散相ホールドアップは減少すると思われ

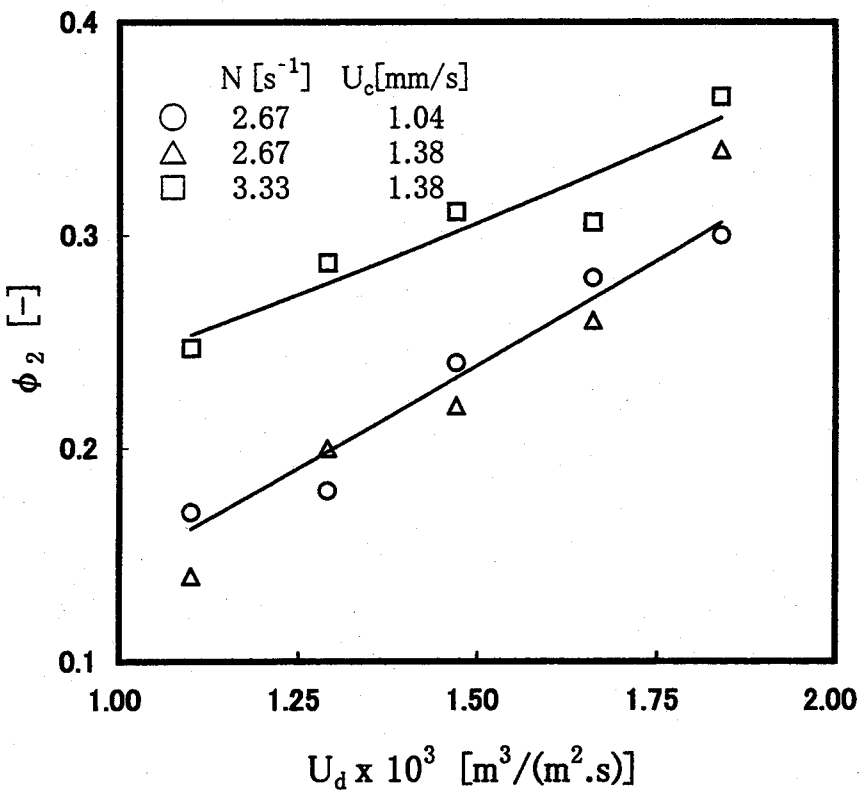
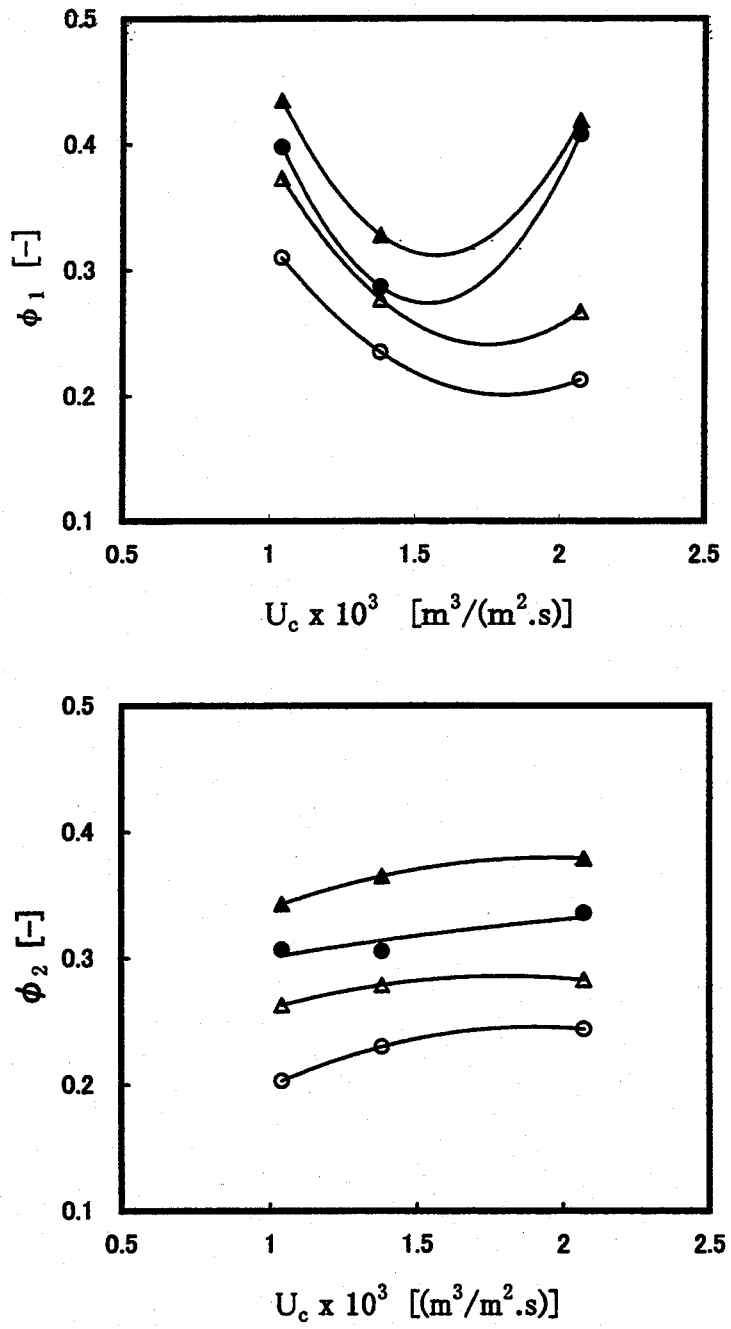


Fig. 3-3　第２段の分散相ホールドアップにおよぼす分散相流量の影響



○: U_d=0.92×10^{-3}m^3/(m^2.s),△:U_d=1.29×10^{-3}m^3/(m^2.s)

●: U_d=1.66×10^{-3}m^3/(m^2.s),▲:U_d=1.84×10^{-3}m^3/(m^2.s)

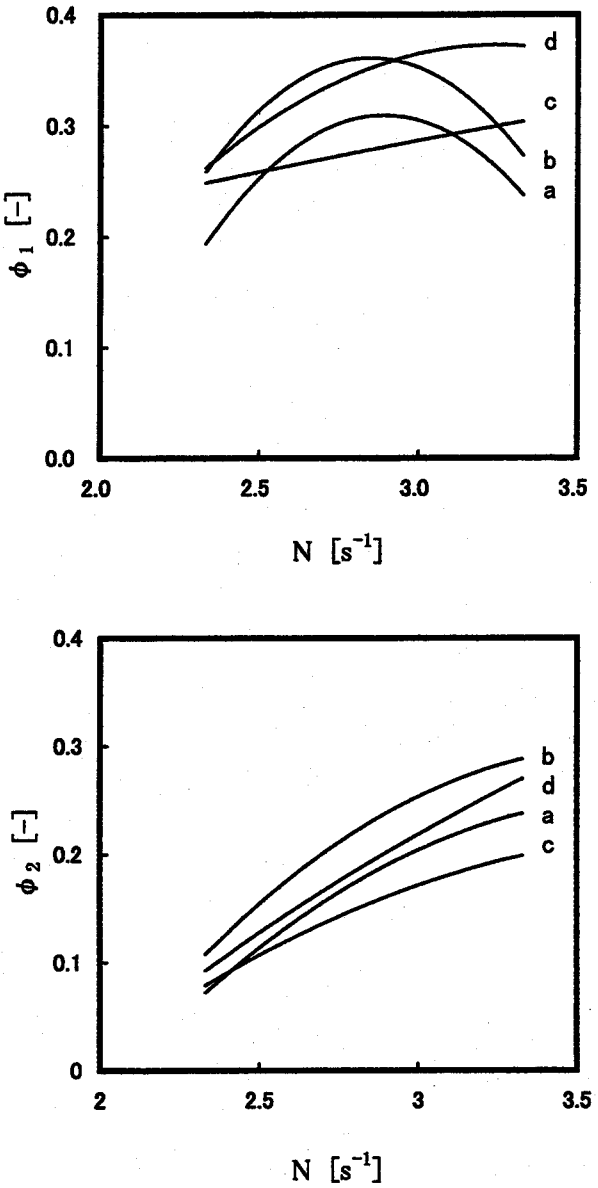
Fig. 3-4 第１段と第２段の分散相ホールドアップにおよぼす連続相流量の影響（N=3.33s^{-1}）

る。一方、高 U_d 域では、上部セトラーでの相分離が悪くなり、連続相降水管を通って上部セトラーから第1段へ流入する連続相に同伴される分散相が増加するため、分散相ホールドアップは減少から増加に転ずると思われる。しかし、攪拌速度 N が N=3.33 s^{-1} より小さくなると、分散相ホールドアップは分散相流量に関わらず連続相流量の増加と共に若干増加した。

以上のことを整理すると、分散相ホールドアップは連続相流量 U_c の増加と共に極小値を経て増加するが、この極小点の U_c の位置は攪拌速度が一定で分散相流量が減少すると高 U_c 値へ、分散相流量が一定で攪拌速度が減少すると低 U_c 値へ移行すると考えられる。

Fig.3-5 は、連続相流量 U_c および分散相流量 U_d をパラメータとして第1段および第2段の分散相ホールドアップにおよぼす攪拌速度 N の影響を示したものである。実験データを見易くするために平均化した曲線で表示した。第2段の分散相ホールドアップは攪拌速度の増加と共に増加する。これは、攪拌速度の増加と共に液滴径が小さくなり、滴上昇速度が減少するためである。一方、第1段の分散相ホールドアップは、図中の曲線 a、b 群と曲線 c、d 群との比較から分かるように分散相流量の値に関わらず、U_c<1.38×10^{-3} $m^3/(m^2 \cdot s)$の連続相低流量域では攪拌速度の増加と共に増加するが、U_c≥1.38×10^{-3} $m^3/(m^2 \cdot s)$の連続相高流量域では攪拌速度の増加と共に極大値を経て減少する。これは、低 U_c 域では攪拌速度の増加と共に分散滴径が小さくなり、滴上昇速度が減少するためである。一方、高 U_c 域では攪拌速度の増加と共に液滴径は減少するが、上向きの連続相流による分散滴の上部セトラー段への吐出が増加するため、分散相ホールドアップは増加から減少に転ずると思われる。

以上のことを整理すると、分散相ホールドアップは攪拌速度 N、の増加と共に極大値を経て減少するが、この極大点の位置は分散相流量に関



a: U_c=1.38×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d=0.92×10^{-3}m^3/(m^2.s)

b: U_c=1.38×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d=1.92×10^{-3}m^3/(m^2.s)

c: U_c=1.04×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d=0.92×10^{-3}m^3/(m^2.s)

d: U_c=1.04×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d=1.92×10^{-3}m^3/(m^2.s)

Fig. 3-5 第１段と第２段の分散相ホールドアップにおよぼす撹拌速度の影響

わらず連続相流量が減少すると高 N 値へ移行すると考えられる。

3.3.3 分散相フラッデング流量

分散相フラッデング流量 U_{df} におよぼす攪拌速度 N および連続相流量 U_c の影響を **Fig.3-6** に示す。連続相流量が一定の条件では、攪拌速度の増加と共に分散相フラッデング流量は極大値を経て減少する。これは、攪拌速度の増加と共にアクティブタービン翼の吸引・吐出力の増加により分散相が流れ易くなるが、さらに攪拌速度が増加すると吐出流量が増加し、上部セトラーでの相分離が悪くなり、それが第１段へ伝播し、連続相流量が小さくてもフラッデングが起こり易くなると考えられる。一方、攪拌速度が一定の条件では、連続相流量の増加と共に分散相フラッデング流量が減少する。これは連続相流量の増加と共に滴上昇速度が減少することに加え連続相降水管を通って上部セトラーから第１段へ流入する連続相に同伴する分散相が増加するためであると考えられる。回転円板塔およびオルドシュー - ラシュトン塔ではフラッデング状態になると分散相は最下段から凝集するが [6]、アクティブタービン翼多段液液抽出塔では第１段から凝集する。この相違は、アクティブタービン翼による分散相吸引・吐出力が回転円板翼やラシュトン翼よりも強く、その吸引力が上部セトラーにないことおよび仕切り板開口部に金網を設けたためと考えられる。

3.3.4 抽出効率

既存装置との性能比較を行うためヨーロッパ化学工学連合推奨の操作条件、分散相と連続相の流量比 U_d/U_c=1.5 での実験結果を塔高 1m 当たりの理論段数 NTS/H で整理し、それにおよぼす操作変数の影響を調べた。理論段数 NTS は、分配曲線と操作線を用い、塔頂の連続相供給口

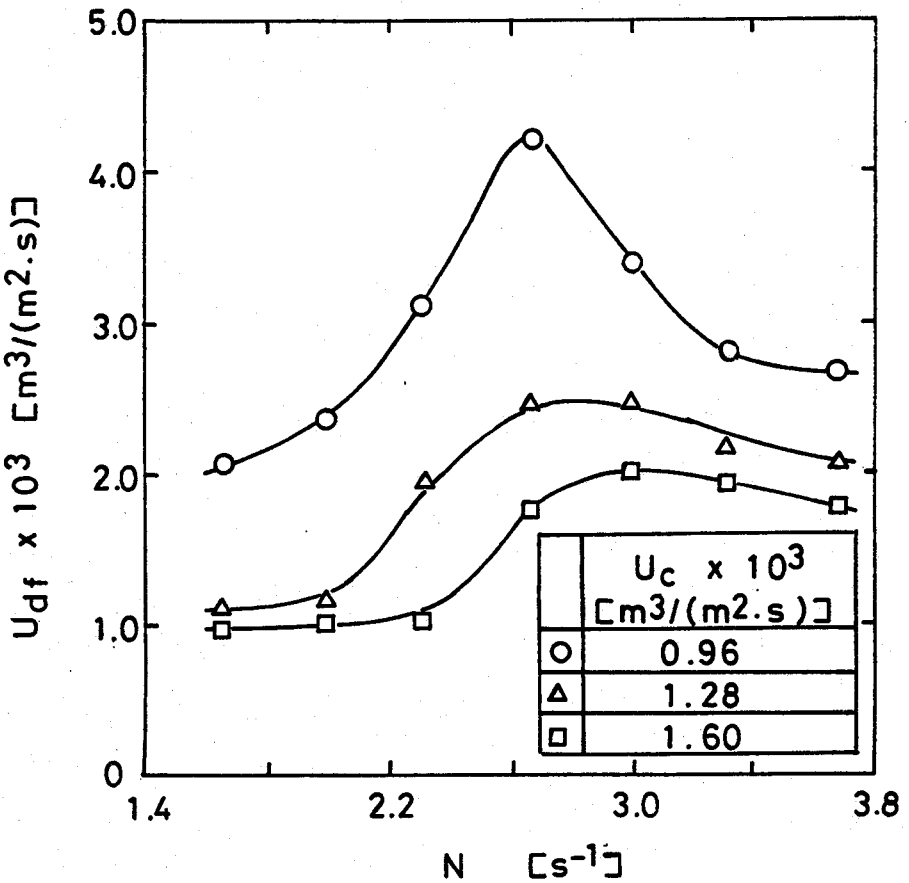


Fig. 3-6 分散相フラッディング流量におよぼす攪拌速度および連続相流量の影響

と分散相排出口のアセトン濃度を始点に、塔低の連続相排出口と分散相供給口のアセトン濃度を終点とする階段作図法で求めた。分配曲線Eq.(3.1)では、二相間のアセトンの分配係数 K は一定であるとした。

$$y=Kx \tag{3.1}$$

ここで、x は水相中のアセトンモル分率、y はトルエン相中のアセトンモル分率である。K 値は文献値 [9]3.12(10℃)と 3.63(20℃)を内挿して温度補正した。

Fig.3-7 は、分散相 U_d と連続相 U_c の全供給流量 $U_{tot}=2.00\times10^{-3}$ m^3/(m^2・s)および流量比 $U_d/U_c=1.5$ 一定での単位塔高当たりの理論段数 NTS/H におよぼす攪拌速度 N の影響を、仕切り板開口部に金網を設けた場合と設けない場合の両方について示したものである。金網を設けた場合 $N=2.33$ s^{-1} 付近で NTS/H は極大になる。NTS/H が N に対して極大になる挙動は EC 塔 [3]でも報告されているが、アクティブタービン翼多段液液抽出塔では次の理由によると考えられる。分散相ホールドアップの実験結果から $U_{tot}=2.00\times10^{-3}$ m^3/(m^2・s)および $U_d/U_c=1.5$ 一定の実験条件下では、段全体の分散相ホールドアップは攪拌速度の増加と共に増加する。また、各段のアセトンモル分配比 y/x は攪拌速度 N の増加と共に増加し、$N=3.67$ s^{-1} でほぼ K 値と等しくなった。これらのことから攪拌速度が増加すると段全体の分散相ホールドアップが増加するため NTS/H は増加するが、さらに攪拌速度が増加するとアクティブタービン翼上部の吸引力が強くなり、相分離できない分散相の一部がアクティブタービン翼上部のスタティックミキサー流路内へ吸引され循環流となる逆混合のため NTS/H は極大値を経て減少すると考えられる。

金網を設けない場合の NTS/H は金網を設けた場合の約 45%～70%に

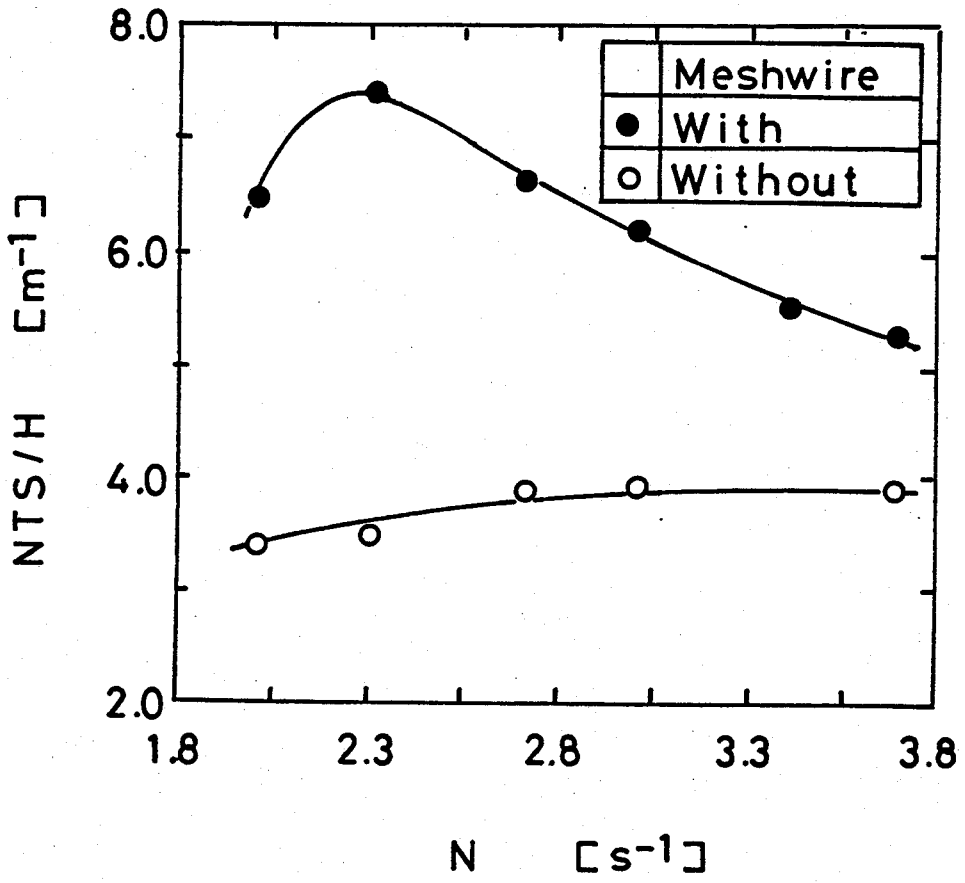


Fig. 3-7 単位塔高当たりの理論段数におよぼす攪拌速度の影響

(U_{tot}=2.00×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d/U_c=1.5)

なった。これは、金網がないと逆混合の影響は小さくなるが、各段で相分離されず液滴のまま上段へ輸送されるために抽出効率が低下すると考えられる。

Fig.3-8 は、攪拌速度 N=3.00 s^{-1} および流量比 U_d/U_c=1.5 が一定での単位塔高当たりの理論段数 NTS/H におよぼす全供給流量 U_{tot} の影響を、仕切り板開口部に金網を設けた場合と設けない場合の両方について示したものである。金網を設けた場合、U_{tot} の増加と共に NTS/H は増加する。分散相ホールドアップの実験結果から N=3.00 s^{-1} および U_d/U_c=1.5 一定の実験条件では、段全体の分散相ホールドアップは U_{tot} の増加と共に増加する。U_{tot} の増加と共に NTS/H が増加するのは、段全体の分散相ホールドアップが増加するためで逆混合の影響は小さいと思われる。

金網を設けない場合の NTS/H は金網を設けた場合の約 60%～71%になった。これは、NTS/H におよぼす攪拌速度の影響を考察したと同様に金網が無いと逆混合の影響は小さくなるが、各段で相分離されず液滴のまま上段へ輸送され易くなるために抽出効率が低下すると考えられる。金網の有無による NTS/H の実験結果、Figs.3-7 と 3-8 から各段の金網による相分離が NTS/H におよぼす影響は顕著で、仕切り板開口部に設けた金網はセトラー機能を十分に果たしていることが確認された。

3.3.5 逆混合

Fig.3-7 の操作条件、流量比 U_d/U_c=1.5、全供給量 U_{tot}=2.00×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ および攪拌速度 N=3.67 s^{-1} での塔内抽出挙動を追試するため、**Fig.3-9** に示す階段逆混合モデル [7]を本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔に適用した。この操作条件下では各段は、3.3.4 で述べたようにほぼ平衡段である。アセトンの物質収支は次式で表わされる。

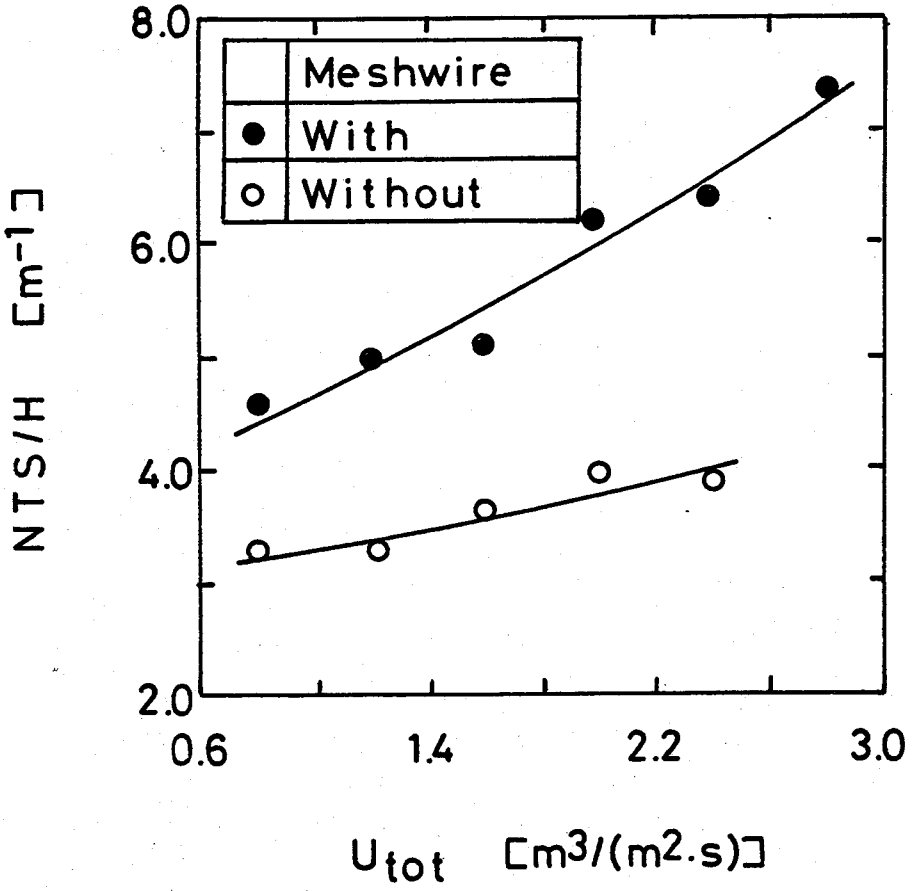


Fig. 3-8 単位塔高当たりの理論段数におよぼす連続相と分散相の全供給流量の影響（N=3.00s^{-1}, U_d/U_c=1.5）

$S=1$

$$Wx_f+fWx_2+(1+g)Ty_2=(1+f)Wx_1+gTy_1+Ty_o$$

$$y_1=Kx_1 \tag{3.2}$$

$S=2$

$$(1+f)Wx_1+fWx_3+gTy_1+(1+g)Ty_3=(1+f)Wx_2+fWx_2+gTy_2+(1+g)Ty_2$$

$$y_2=Kx_2 \tag{3.3}$$

$S=3$

$$(1+f)Wx_2+fWx_4+gTy_2+(1+g)Ty_4=(1+f)Wx_3+fWx_3+gTy_3+(1+g)Ty_3$$

$$y_3=Kx_3 \tag{3.4}$$

$S=4$

$$(1+f)Wx_3+gTy_3+Ty_f=Wx_o+fWx_4+(1+g)Ty_4$$

$$y_4=Kx_4 \tag{3.5}$$

ここで、f、T、x_f、x_o、はそれぞれ連続相逆混合係数、連続相供給流量、連続相供給アセトンモル分率、連続相排出アセトンモル分率、g、W、y_f、y_oはそれぞれ分散相逆混合係数、分散相供給流量、分散相供給アセトンモル分率、分散相排出アセトンモル分率である。また、x_s、y_sはそれぞれS段の連続相アセトンモル分率、分散相アセトンモル分率である。上部セトラーおよび下部セトラーでは物質移動は生じないとして（$y_o=y_1$、$x_o=x_4$)、Eqs.(3.2)~(3.5)からx_oの解析解と実測値の偏差二乗が最小になるようにパラメータ$(fW+KgT)/W$を探索した結果、その値は 3.3 になった。このパラメータの物理的意味は、各段において連続相に対する両相の逆混合流により流出するアセトン量の割合であると解釈できる。**Fig.3-10**は塔内のアセトンモル分率の実測値と計算値を比較したものである。連続相中のアセトンモル分率および分散相中のアセトンモル分率の計算値は、実験値の－3%～＋5%の範囲内で一致した。階段逆混合モ

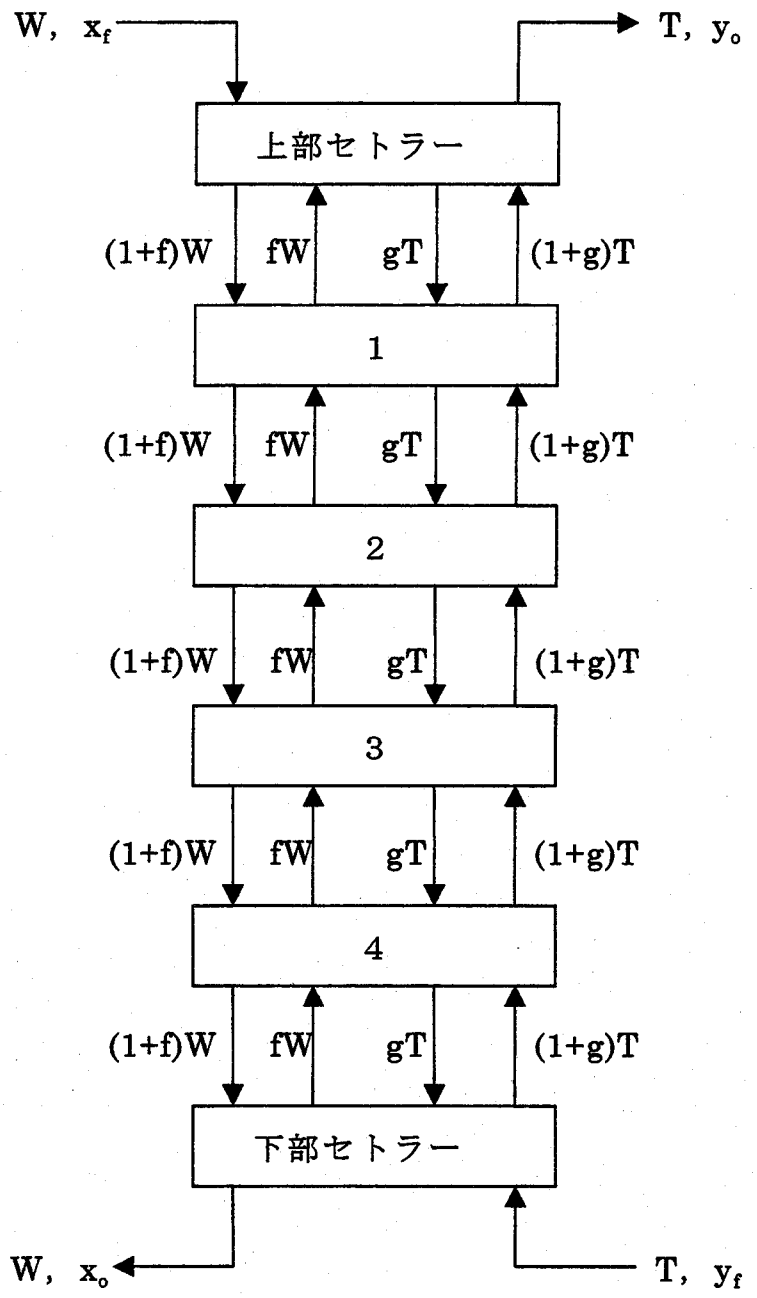


Fig. 3-9 階段逆混合モデル図

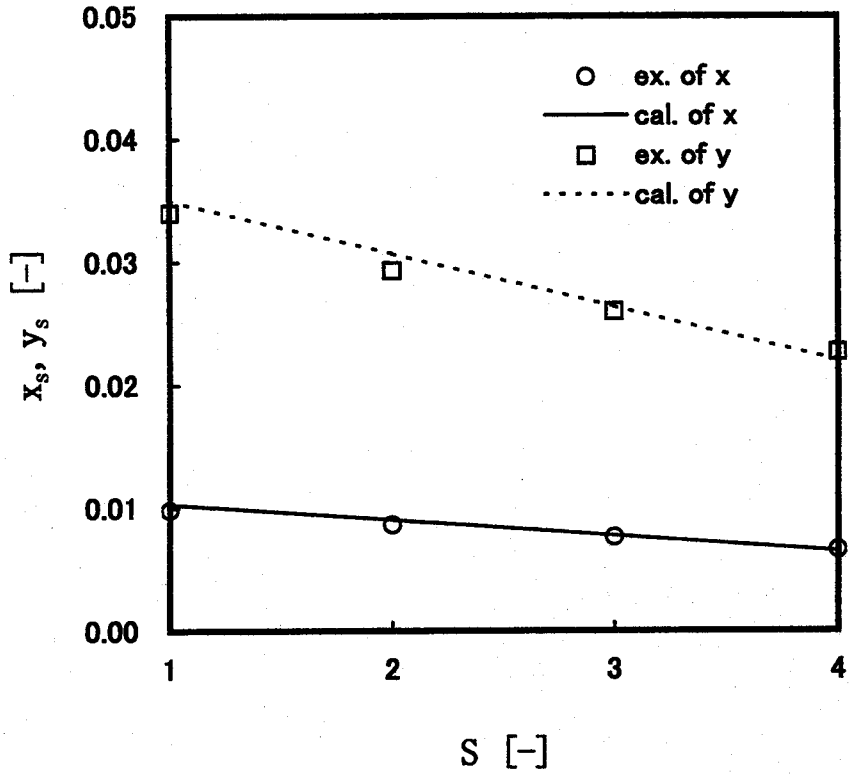


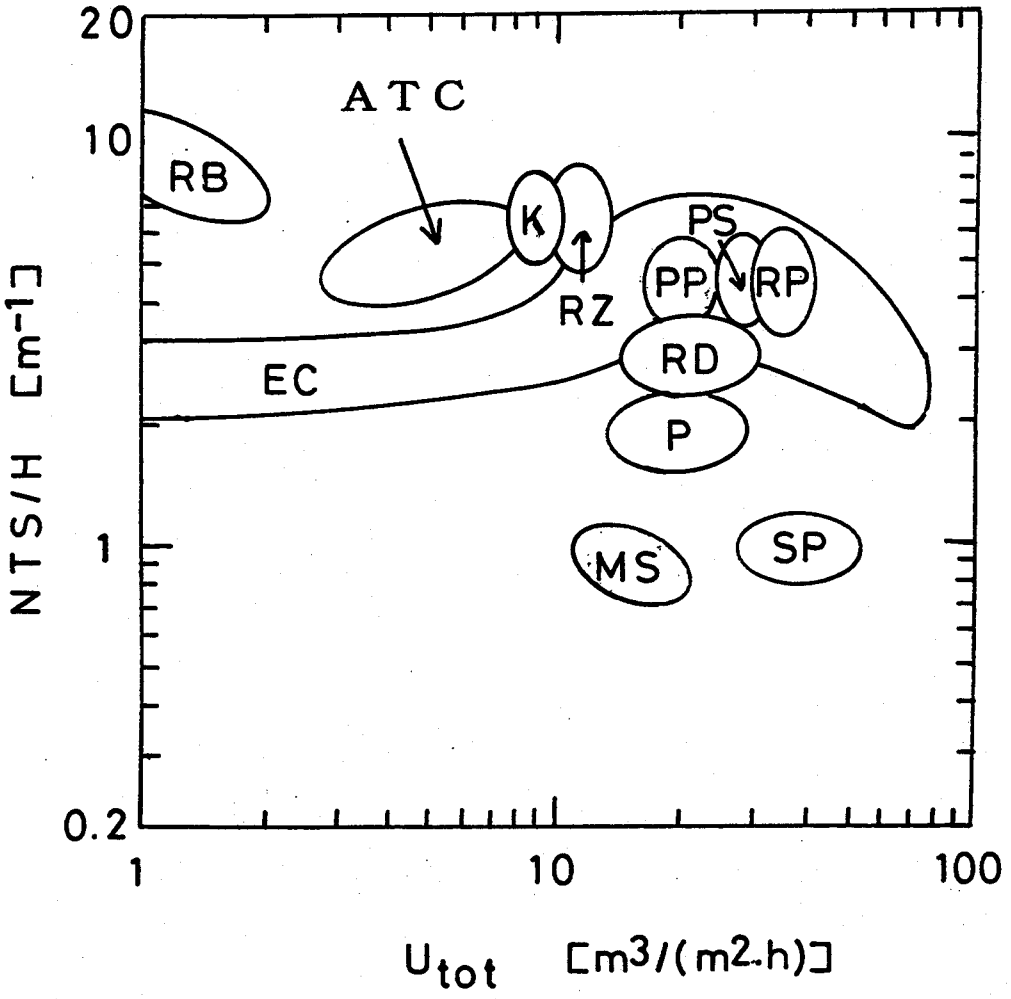
Fig. 3-10 塔内アセトン濃度分布の実測値と計算値の比較

(N=3.67s^{-1}, U_{tot}=2.00×10^{-3}m^3/(m^2.s), U_d/U_c=1.5)

デルは本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔内の抽出挙動を良く表わし、Fig.3-7 の *NTS/H* におよぼす逆混合の影響を定量的に議論できた。

3.3.6 装置性能

Fig.3-11 は、本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔（ATC）と既存装置の性能を文献[3)]の評価法に準じて *NTS/H* 対 U_{tot} で比較したものである。各 U_{tot} に対して *NTS/H* に幅があるのは攪拌速度の影響によるものである。なお、図中の既存装置の寸法は第1章の Table 1-1 に示した。各 U_{tot} に対して本論文の ATC の *NTS/H* は EC 塔より良く、Kuhni 塔と同程度である。また、U_{tot} の範囲は異なるが、既存装置と比較すると総じて *NTS/H* は良好である。このことから本論文の ATC は良好な抽出性能を有する抽出塔であると結論できる。なお、本論文の ATC において U_{tot} の最大値が約 $10\mathrm{m^3/(m^2 \cdot h)}$ であるのは実験に用いた送液ポンプの流量限界のためである。装置性能を評価する他の重要な指針に限界処理液流量がある。Fig.3-6 のフラッデング流量の実験結果から各攪拌速度および連続相流量における限界処理液流量 $U_{df}+U_c$ を算出した。本論文の ATC の $U_{df}+U_c$ は N=3.33 $\mathrm{s^{-1}}$ および U_d/U_c=1.2～3.1 の範囲で攪拌式段型抽出塔の代表的なオルドシュー - ラシュトン塔[5)]の $U_{df}+U_c$ の約 0.38 倍～0.46 倍であった。



RB:raining bucker, K:Kuhni agitated column, RZ:QVF agitated column, PP:pulsed packed column, PS:pulsed sieve plate column, RP:reciprocating column, RD:rotating disc column, P:packed column, SP:sieve plate column, MS:mixer settler, EC:enhanced coalescence column

Fig. 3-11 アクティブタービン翼多段抽出塔（ATC）と既存装置の装置性能の比較（物質移動の方向：連続相から分散相、U_d/U_c=1.5）

3.4 結言

円板にスタティックミキサーを取り付けた新規な攪拌翼を有する多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を実験的に調べ、以下のことが分かった。

（１） 分散相ホールドアップは塔高さ方向に分布を形成し、第１段の分散相ホールドアップが最も大きい。

（２） 第２段、第３段および第４段の分散相ホールドアップは、連続相流量、分散相流量または攪拌速度の増加と共に増加する。第１段の分散相ホールドアップは分散相流量の増加と共に増加する。第１段の分散相ホールドアップは、低攪拌速度域では分散相流量に関わらず連続相流量の増加と共に増加するが、高攪拌速度かつ分散相低流量域では減少、高攪拌速度かつ分散相高流量域では極小値を経て増加する。第１段の分散相ホールドアップは分散相流量に関わらず連続相低流量域では攪拌速度の増加と共に増加するが、連続相高流量域では極大値を経て減少する。

（３） 分散相フラッデング流量は連続相流量の増加と共に増加するが、攪拌速度に対して極大値を経て減少する。

（４） 単位塔高当たりの理論段数は連続相と分散相の全供給流量の増加と共に増加するが、攪拌速度に対して極大値を経て減少する。

（５） 各段の金網が単位塔高当たりの理論段数におよぼす影響は顕著で、抽出におけるセトラーとして機能する。

（６） 単位塔高当たりの理論段数表示による既存装置との比較から本装置は良好な性能の抽出塔である。

[使用記号]

f	連続相逆混合係数	[-]
g	分散相逆混合係数	[-]
H	塔高	[m]
K	分配係数	[-]
N	攪拌速度	[s^{-1}]
NTS	理論段数	[-]
S	段の位置	[-]
T	連続相流量	[mol/s]
U_c	単位塔断面積当たりの連続相流量	[$m^3/(m^2 \cdot s)$]
U_d	単位塔断面積当たりの分散相流量	[$m^3/(m^2 \cdot s)$]
U_{df}	分散相の溢汪流量	[$m^3/(m^2 \cdot s)$]
U_{tot}	単位塔断面積当たりの連続相と分散相の全供給流量	[$m^3/(m^2 \cdot s)$]
W	分散相流量	[mol/s]
X	連続相中アセトンモル分率	[-]
x_f	連続相供給アセトンモル分率	[-]
x_s	第 S 段の連続相中アセトンモル分率	[-]
x_o	連続相排出アセトンモル分率	[-]
y	分散相中アセトンモル分率	[-]
y_f	分散相供給アセトンモル分率	[-]
y_s	第 S 段の分散相中アセトンモル分率	[-]
y_o	分散相排出アセトンモル分率	[-]
ϕ	分散相ホールドアップ	[-]
ϕ_s	第 S 段の分散相ホールドアップ	[-]

[引用文献]

1) Bailes, P.J. and E.H. Stitt : *Chem. Eng. Res. Des.*, **65**, 514-523(1987)

2) Blass, E., G. Goldman, K. Hirschmann, P. Mihailowitsh and W. Pietzsch : *Ger. Chem. Eng.*, **9**, 222-238(1986)

3) von Fischer, E., L. Steiner and S. Hartland : *Ger. Chem. Eng.*, **6**, 288-291(1983)

4) Horvath, M. and S. Hartland : *Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev.*, **24**, 1220-1225(1985)

5) Kirou, V.J., L.L. Tavarides, J.C. Bonnet and C. Tsoris : *AIChE J.*, **34**, 283-292(1988)

6) Sarkar, S., C.R. Phillips and C.J. Mumford : *Can. J. Chem. Eng.*, **63**, 701-709(1985)

7) Steiner, L. : "Computational Procedures for Column Simulation and Design", liquid-liquid Extraction Equipment, Godfrey, J.C. and M.J. Slater, p.115-136, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, England(1994)

8) Steiner, L., B. Stoffel, A. Schopf and S. Hartland : Proc. ISEC'96, p.1173-1178, Melbourne, Australia(1996)

9) S ϕ rensen, J.M. and W. Arlt : Chemistry Data Series vol.5, part 2, p.494-502, DECHEMA, Frankfurt, Germany(1980)

10) 山下治雄，田坂隆典，山口学，野田秀夫：化学工学論文集，**25**, 478-481(1999)

第４章　流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率

4.1　緒　言

アクティブタービン翼は、円板にスタティックミキサーを取り付けた攪拌翼で、分散相と連続相の両相は翼の回転で生じる圧力差によってスタティックミキサー流路内に吸引され、その中を通過する過程で混合エレメントによる捻れ剪断力の影響を受けながら流動混合し、吐出される[4)]。このアクティブタービン翼による流動混合方式から推察するとアクティブタービン翼多段液液抽出塔では、スタティックミキサーの内部構造によって流動特性や抽出効率が大きく変化すると考えられる。スタティックミキサー流路内に混合エレメントがないアクティブタービン翼、すなわち中空の流通管付き円板翼は、攪拌翼として新規なものである。攪拌翼は攪拌式抽出塔の開発において出発点となる重要な要素で、翼によって装置性能および装置特性が決定されると言っても過言でない。

そこで、本章では中空の流通管付きディスク翼を用いた新規な多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を実験的に調べることを中心とし、次章でスタティックミキサーの内部構造が異なる多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較検討するための実験データを提供する。なお、攪拌翼以外はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同じ装置を用い、溶液系および装置性能評価のための操作条件もアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同じ溶液系および操作条件に設定した。

4.2 実験

4.2.1 攪拌翼と抽出塔

実験で用いた攪拌翼を Fig.4-1 に示す。この翼は直径 78mm の円板の上部および下部に縦横 10mm，長さ 28mm の中空管を 24 個取り付けた翼径 110mm のステンレス製で、混合エレメントがない以外はアクティブタービン翼と同じものである。連続相と分散相の両相は翼の回転で生じる圧力差によってスタティックミキサー流路内に吸引され、その中を通過し各段へ吐出される。

装置の全体図を第3章の Fig.3-1 に示す。攪拌翼以外は、アクティブタービン翼多段液液抽出塔と同じものである。

4.2.2 流動実験

流動実験では水(連続相)/トルエン(分散相)を使用した。この溶液系はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動実験で用いたものと同じである。

アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動実験の場合と同様の操作によって塔内の流動状態が定常になったと見なした後、以下の測定を行った。

a) 分散相ホールドアップ

攪拌式段型抽出塔では、最上段および最下段の流動は他の段と比べ特異である。従って、塔の流動特性を代表する段として塔頂から2段目を選び、その段の分散相ホールドアップを測定した。測定は、第2段の液相採取口より連続相と分散相の混合溶液をメスシリンダーに採取し、分散相ホールドアップを分散相体積/（連続相体積＋分散相体積）で定義して求めた。分散相ホールドアップにおよぼす攪拌速度 N, 分散相供給流

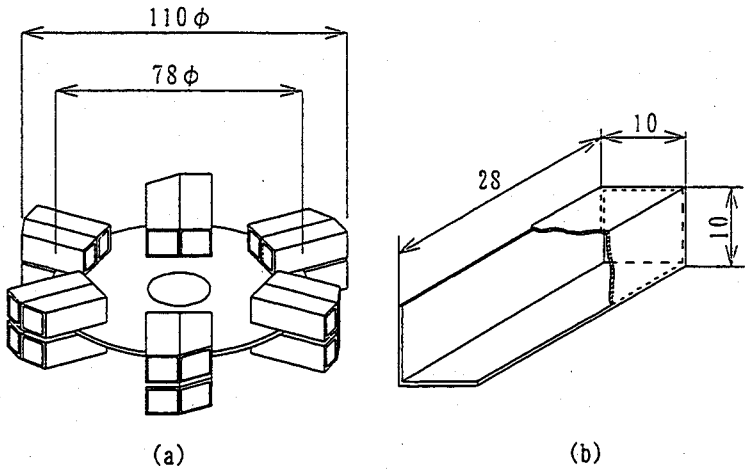


Fig. 4-1　流通管付き攪拌翼

量 U_d および連続相供給流量 U_c の影響を N=6.00～7.33 s^{-1}、U_d=0.319×10^{-3}～1.28×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ および U_c=0.319×10^{-3}～0.958×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ の範囲で調べた。

b) 液滴径

デジタルビデオカメラ(ソニー製 SSC - M37D)を用いて第 2 段の液滴径とその個数を攪拌速度 N=3.3～4.7s^{-1}、分散相供給流量 U_d=0.160×10^{-3}～6.39×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ および連続相供給流量 U_c=0～0.639×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ の範囲で測定した。サンプル滴個数は約 100 個である。

c) 分散相フラッデング流量

連続相流量および攪拌速度を固定して分散相流量を増加させると各段の微小分散液滴は下方に押し流され、下部セトラー部の金網に凝集相を形成し、連続相と共に連続相排出口より排出される。この状態をフラッデングと定義し、その時の分散相フラッデング流量を求めた。分散相フラッデング流量におよぼす連続相流量 U_c および攪拌速度 N の影響を U_c=0.990×10^{-3}～1.63×10^{-3} $m^3/(m^2.s)$ および N=6.00～7.33 s^{-1} の範囲で調べた。

4.2.3 抽出実験

既存装置との比較を行うためにアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同様にヨーロッパ化学工学連合推奨の水(連続相) /アセトン(溶質) /トルエン(分散相)溶液系を使用し、連続相中のアセトン濃度を 5 wt%に、分散相と連続相の流量供給比 U_d/U_c を 1.5 に固定して抽出実験を行った。実験はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同様に流動状態および物質移動が定常になった後，連続相および分散相排出口から各相を採取し、各相中のアセトン濃度をガスクロマトグラフィー(島津製作所製 GC - 14B)を用いて決定した。分析は，充填剤 1.2.3 - Tris(2

- cyanoethoxy)propane/Uniporto B(ジーエルサイエンス製)を長さ 2m のガラス管に充填し、カラム温度 150℃、He 気流下で行った。実験は連続相と分散相の全供給流量 U_{tot}=0.798×10^{-3}～1.60×10^{-3}m^3/ (m^2.s)および攪拌速度 N=6.00～7.33 s^{-1}の範囲で調べた。

4.3 結果と考察

4.3.1 液滴径

攪拌速度 Nに対する液滴径分布の変化を **Fig.4-2** に示す。ここで、dは滴径、fはその個数頻度である。液滴径分布は攪拌速度 Nの増加と共に N=3.3s^{-1} の bimodal 分布から N=4.0s^{-1} の unimodal 分布を経て、N=4.7s^{-1}の小液滴径の unimodal 分布へ変化した。これは、翼の上部では連続相降水管から流出する上向きの連続相によって縦方向の循環流ができ、これに乗った液滴が攪拌翼で再分裂し小さい液滴となるので、攪拌速度が小さいと bimodal 分布を形成するが、攪拌速度が大きいと分散滴が均一微粒化され、小液滴径の unimodal 分布へ移行すると考えられる。

Fig. 4-3 は体面積平均径 d_{32}におよぼす攪拌速度 N、分散相流量 U_dおよび連続相流量 U_cの影響を示すものである。体面積平均径は攪拌速度の増加と共に減少するが、分散相流量および連続相流量の影響は小さかった。

4.3.2 分散相ホールドアップ

第2段の分散相ホールドアップϕ_2におよぼす攪拌速度 N、分散相流量 U_dおよび連続相流量 U_cの影響を **Fig.4-4** に示す。連続相流量の増加と共に分散相ホールドアップは増加した。これは、連続相流量の増加と

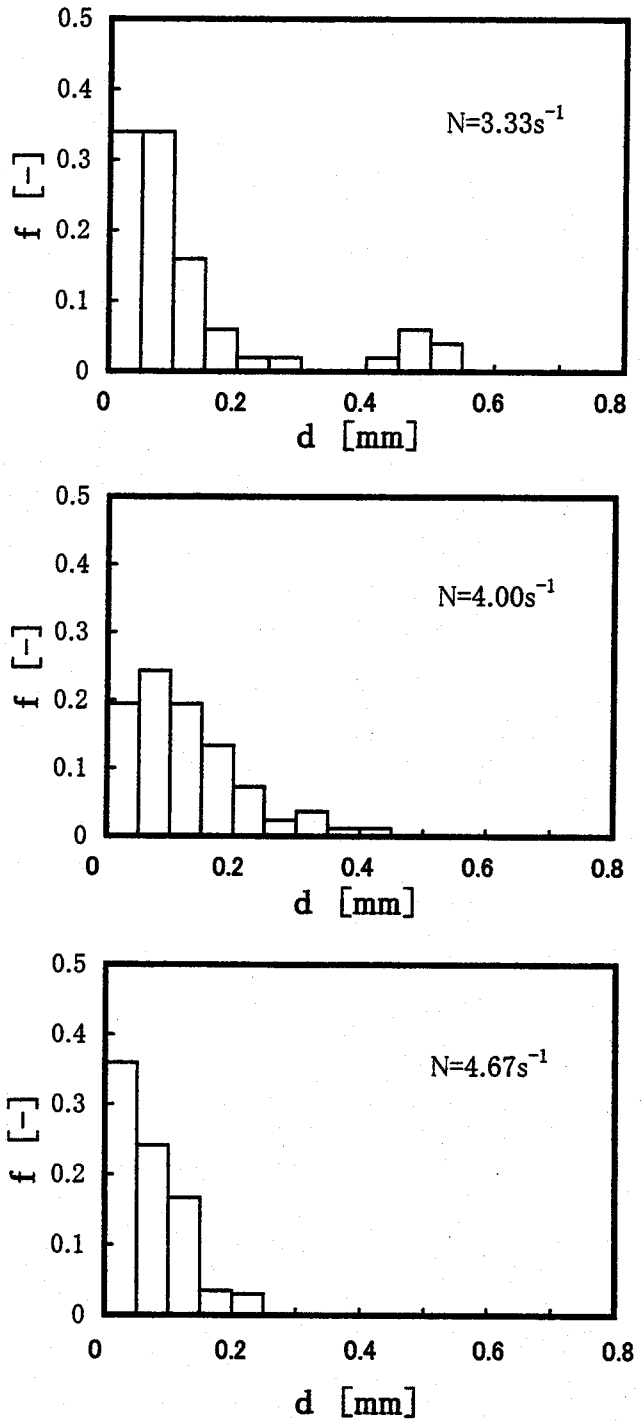
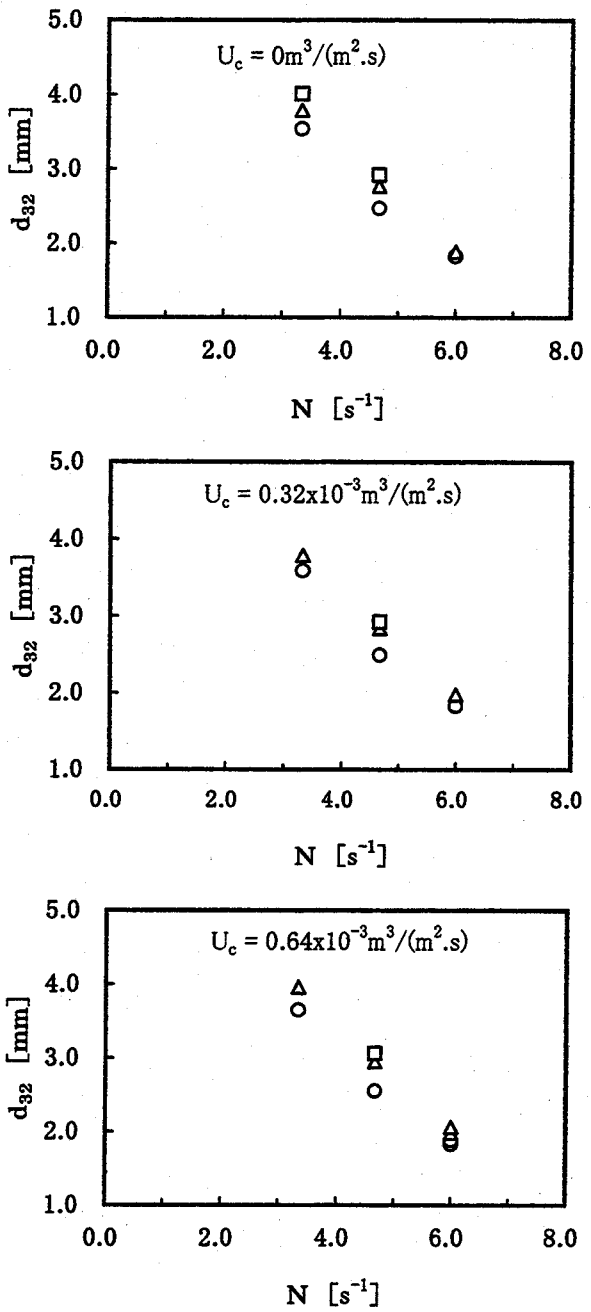


Fig. 4-2　滴径分布におよぼす攪拌速度の影響

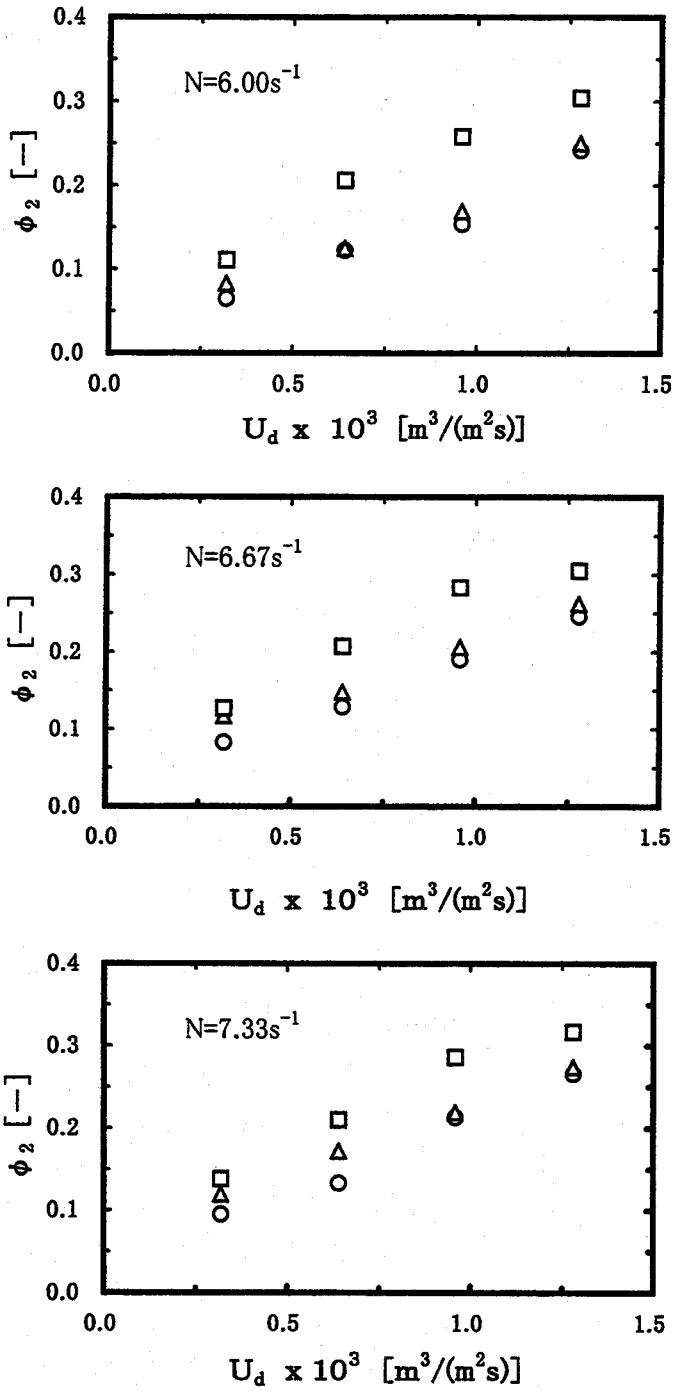
（U_c=0m^3/(m^2.s), U_d=0.32×10^{-3}m^3/(m^2.s)）



○: U_d=0.16x10^{-3}m^3/(m^2.s), △: U_d=0.32x10^{-3}m^3/(m^2.s)

□: U_d=0.64x10^{-3}m^3/(m^2.s)

Fig. 4-3　第２段の体面積平均径におよぼす攪拌速度、連続相流量および分散相流量の影響



○: U_c=0.32x10^{-3}m^3/(m^2.s), △: U_c=0.64x10^{-3}m^3/(m^2.s)

□: U_c=0.96x10^{-3}m^3/(m^2.s)

Fig. 4-4 第２段の分散相ホールドアップにおよぼす攪拌速度、連続相流量および分散相流量の影響

共に連続相は仕切り板の金網からも下降し、分散滴が上昇し難くなるためである。同様に、分散相流量の増加と共に分散相ホールドアップは増加した。これは、Fig.4-3 に示すように分散相流量が増加しても滴径はほぼ変化しないので、滴上昇速度におよぼす浮力の影響は小さく、分散滴の増加のためであると考えられる。一方、攪拌速度の増加と共に分散相ホールドアップは増加した。これは滴径の減少により滴上昇速度が小さくなるためである。

4.3.3 分散相フラッデング流量

分散相フラッデング流量 U_{df} におよぼす攪拌速度 N および連続相流量 U_c の影響を **Fig.4-5** に示す。連続相流量 U_c が一定で攪拌速度 N が増加すると共に分散相フラッデング流量 U_{df} は極大を経て減少した。これは、攪拌速度が増加すると攪拌翼の吸引・吐出力の増加により分散相は流れ易くなるが、さらに攪拌速度が増加すると液滴径の減少に加え分散相ホールドアップが増加するので、連続相に同伴されて下部セトラーに下降する液滴が増加し、フラッデング流量は極大値を経て減少する。一方、攪拌速度が一定で連続相流量が増加すると共に分散相フラッデング流量が減少した。これは、連続相流量の増加と共に分散相ホールドアップの増加により連続相に同伴されて下降する液滴が増加することおよび仕切り板の金網からも連続相が下降するようになり、分散滴が上昇し難くなるためである。

4.3.4 抽出効率

塔高 1m 当たりの理論段数表示により本論文の流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の抽出効率を考察した．理論段数は分配平衡曲線と操作線を用い、塔頂の連続相供給口および分散相排出口のアセトンモル分率

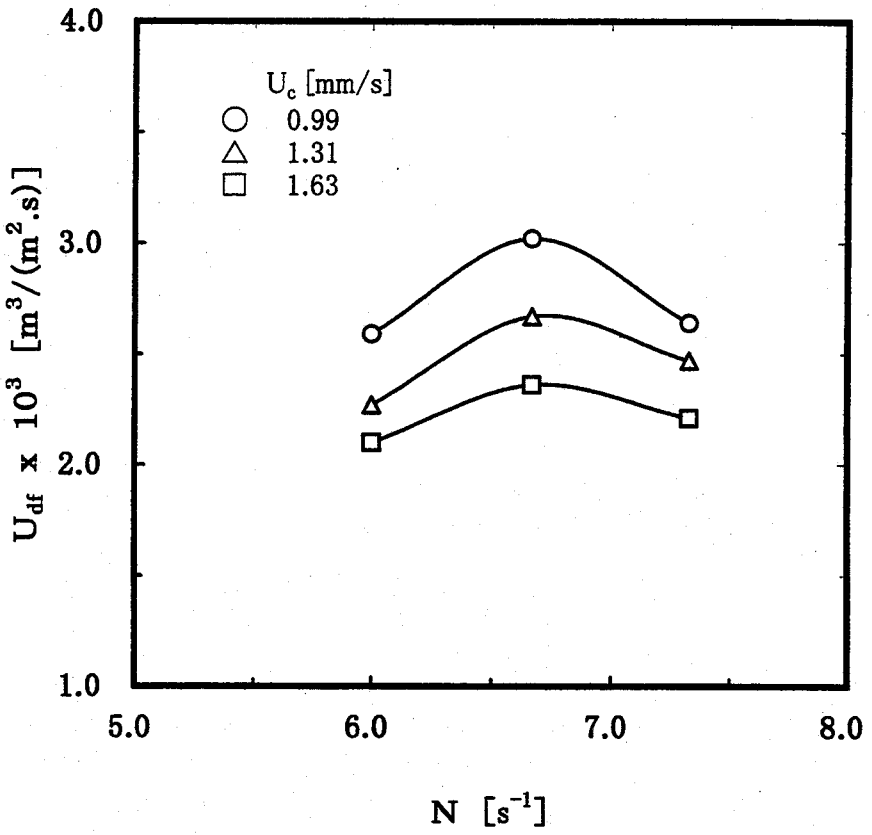


Fig.4-5 分散相フラディング流量におよぼす攪拌速度および連続相流量の影響

を始点に、塔底の連続相排出口および分散相供給口のアセトンモル分率を終点とする階段作図法で算出した。Sφrensen ら[3]の実験データから二相間のアセトンモル分配比は一定であるとして解析した。

Fig.4-6 は、分散相 U_d と連続相 U_c の流量比 U_d/U_c が一定の条件下での単位塔高当たりの理論段数 *NTS/H* におよぼす連続相と分散相の全供給流量 U_{tot} および攪拌速度 N の影響を示すものである。*NTS/H* は全供給流量 U_{tot} に関わらず攪拌速度 N の増加と共に減少した。攪拌速度の増加と共に界面積が増加するにも関わらず *NTS/H* が減少するのは逆混合が大きくなるためと考えられる。

Fig.4-7 は、本論文の流通管付きディスク翼多段液液抽出塔（FCC）と既存装置の性能を第3章の装置性能評価の場合と同様に *NTS/H* 対 U_{tot} で比較したものである[1]。図中の回転円板塔（RD）と比較して本論文の FCC の *NTS/H* は同程度であった。しかし、本論文の FCC の U_{tot} は図中の RD と比較して小さい。N をパラメータに U_{df} 対 U_c で整理した分散相フラッデング流量の実験から、$U_{df}/U_c=1.5$ での本論文の FCC の最大処理液流量は $14.4 m^3/(m^2 h)$ になった。本論文の FCC ではこの流量まで処理可能であるが、この流量は既存の回転円板塔の最大処理液流量[2]と較べて約 0.40 倍である。

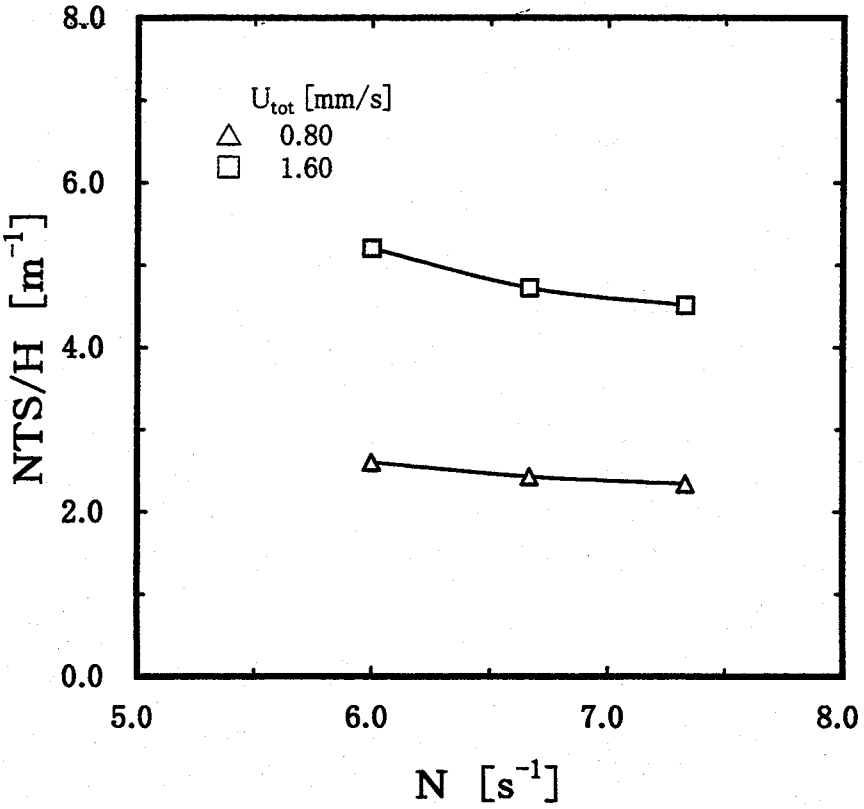
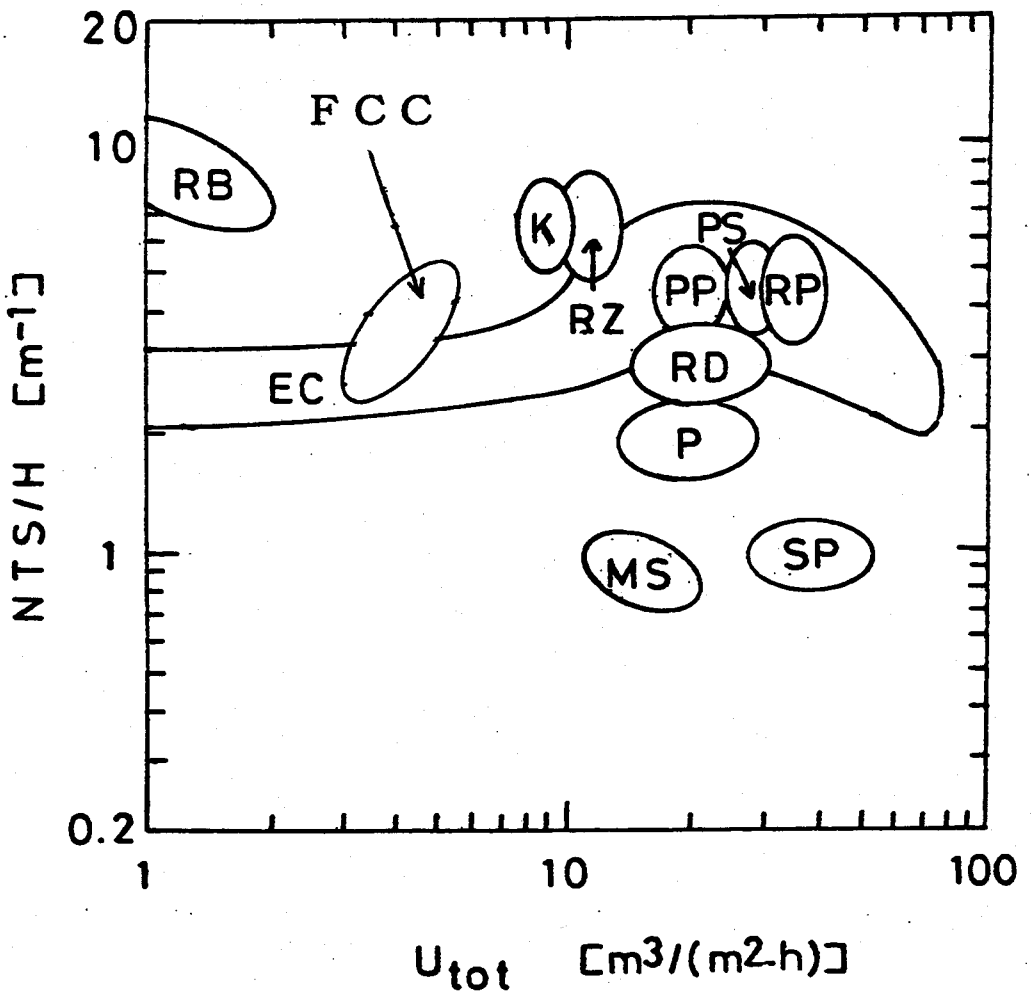


Fig. 4-6 単位塔高当たりの理論段数におよぼす攪拌速度、連続相流量および分散相流量の影響（U_d/U_c =1.5）



RB:raining bucker,K: Kuhni agitated column, RZ:QVF agitated column,PP:pulsed packed column,PS:pulsed sieve plate column,RP:reciprocating column,RD:rotating disc column, P:packed column, SP:sieve plate column,MS:mixer settler, EC:enhanced coalescence column

Fig. 4-7 流通管付きディスク翼多段液液抽出塔 FCC と既存装置との装置性能の比較(物質移動の方向:連続相から分散相、U_d/U_c =1.5)

4.4 結　言

円板に流通管を取り付けた攪拌翼を有する多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率について実験的に調べ、以下のことがわかった。

（1）液滴径分布は、攪拌速度の増加と共に bimodal 分布から unimodal 分布に変化する。平均液滴径は攪拌速度の増加と共に減少するが、それにおよぼす分散相流量および連続相流量の影響は小さい。

（2）分散相ホールドアップは、攪拌速度、分散相流量または連続相流量の増加と共に増加する。

（3）分散相フラッデング流量は連続相流量の増加と共に減少するが、攪拌速度に対して極大値を経て減少する。

（4）単位塔高当たりの理論段数は攪拌速度の増加と共に減少する。

（5）単位塔高当たりの理論段数は、既存の攪拌式抽出塔と比較して同程度である。

[使用記号]

d	滴径	[m]
d_{32}	体面積平均径	[m]
f	滴個数頻度	[−]
H	塔高	[m]
N	攪拌速度	[1/s]
NTS	理論段数	[−]
NTS/H	単位塔高当たりの理論段数	[1/m]
U_c	単位塔断面積当たりの連続相流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_d	単位塔断面積当たりの分散相流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_{df}	分散相フラッデング流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_{tot}	単位塔断面積当たりの分散相と連続相の全供給流量	[$m^3/(m^2.s)$]
ϕ_2	第２段の分散相ホールドアップ	[−]

[引用文献]

1) von Fischer, E., L. Steiner and S. Hartland : *Ger. Chem. Eng.*, **6**, 288-291(1983)

2) Sarkar, S., C.R. Philips and C.J. Mumford : *Can., J. Chem. Eng.*, **63**, 701-709(1985)

3) S ϕ rensen, J.M. and W. Arlt : "Liquid-Liquid Equilibrium Data Collection Ternary Systems" , Chemistry Data Series, vol.5, part 2, pp.494 - 502, DECHEMA, Frankfurt, Germany(1980)

4) 山下治雄，田坂隆典，山口学，野田秀夫：化学工学論文集，**25**, 427-481(1999)

第５章　ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率

5.1　緒言

アクティブタービン翼 [2]はディスクにスタティックミキサーを、流通管付きディスク翼 [3]はディスクに混合エレメントがない中空の流通管を取り付けた攪拌翼である。本論文では、これらの攪拌翼と回転円板の攪拌翼をディスク型攪拌翼と呼ぶことにする。アクティブタービン翼多段液液抽出塔では、分散相は翼の回転で生じる圧力差によってスタティックミキサー流路内へ吸引され、その中を通過する過程で混合エレメントによる捻れ剪断力の影響を受けながら分散混合し、各段へ吐出される。このアクティブタービン翼による分散混合方式から推察すると、スタティックミキサーの内部構造によってアクティブタービン翼多段液液抽出塔の装置性能およびその装置特性は大きく変化すると考えられる。

本章では、アクティブタービン翼における流通管混合エレメントおよびスタティックミキサーの役割を確認するため、混合エレメントがない中空の流通管付きディスク翼およびスタティックミキサーがない回転円板翼とアクティブタービン翼のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較検討した。アクティブタービン翼多段液液抽出塔の装置特性は第３章に記述した。流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の装置特性は第４章に記述した。回転円板翼多段液液抽出塔については本章で流動特性と抽出効率の実験を行い、データ収集した。

5.2 回転円板翼多段液液抽出塔の流動および抽出実験

5.2.1 攪拌翼と抽出塔

攪拌翼以外はアクティブタービン翼多段液液抽出塔と同一の装置を用いた。回転円板翼は、**Fig.5-1** に示すように外径 110mm のステンレス製のものである。

5.2.2 流動実験

使用した溶液系および流動実験の操作は３、４章で述べた実験の場合と同様である。塔内の流動状態が定常になった後、分散相ホールドアップを以下の方法で測定した。連続相と分散相の供給を同時に止める。十分に相分離した後、連続相と分散相の界面の位置を測定し、両相の供給を止める直前の油水界面の位置との差を算出する。塔全体の分散相ホールドアップは、この差と両相の供給を止める直前の油水界面の位置との比で定義した。

塔の代表段として第２段を選択し、この段の液滴径およびその個数をデジタルビデオカメラ(ソニー製 SSC－M37D)で測定し、体面積平均径を算出した。分散相ホールドアップおよび液滴径を連続相流量 U_c=0~0.6x10^{-3} m^3/(m^2.s)、分散相流量 U_d=0.5 x10^{-3}~1.1x10^{-3} m^3/(m^2.s)および攪拌速度 N=2.33~8.33 s^{-1} の範囲で測定した。

5.2.3 抽出実験

溶液系はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同じものを使用した。供給連続相中のアセトン濃度および分散相と連続相の流量比はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同じ操作条件に設定した。アクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同様の方法で定常状態で

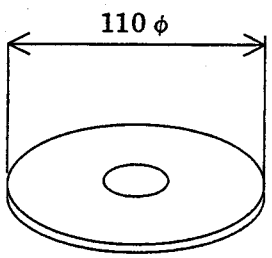


Fig. 5-1　回転円板翼

の分散相排出口のアセトン濃度を測定した。実験は、連続相 U_c と分散相 U_d の流量比を U_c/U_d=1.5 に固定し、連続相と分散相の全供給流量 U_{tot}=0.8 x10^{-3}~1.6x10^{-3} m^3/(m^2.s)、攪拌速度 N=6.00~8.33 s^{-1} の範囲で行った。

5.3 考察

本章の実験で得た回転円板翼多段液液抽出塔の実験結果を交えながら、第3章および第4章で得たアクティブタービン翼多段液液抽出塔および流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の実験データを用いて、これら3種類のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較検討した。

Fig.5-2 はディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の体面積平均径 d_{32} を比較したものである。ここで、ATC はアクティブタービン翼多段液液抽出塔、FCC は流通管付きディスク翼多段液液抽出塔、RDC は回転円板翼多段液液抽出塔である。FCC と RDC を比較すると、FCC の体面積平均径は RDC の体面積平均径より小さい。この結果は、ディスクに取り付けた流通管は分散滴の微粒化に有効に働くことを示している。一方、ATC と FCC を比較すると、ATC は連続相流量 U_c および分散相流量 U_d が大きい上に攪拌速度 N が小さくても、ATC の体面積平均径は FCC の体面積平均径とほぼ同じである。流通管混合エレメントは、高流量および低攪拌速度域でも分散滴の微粒化に有効に働くと考えられる。

Fig.5-3 は3種類のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の分散相ホールドアップ ϕ を比較したものである。図中の分散相ホールドアップは、ATC および FCC では第2段の、RDC では4段を含む塔全体の測定値である。ATC の分散相ホールドアップは、RDC の場合と同様の方法で測

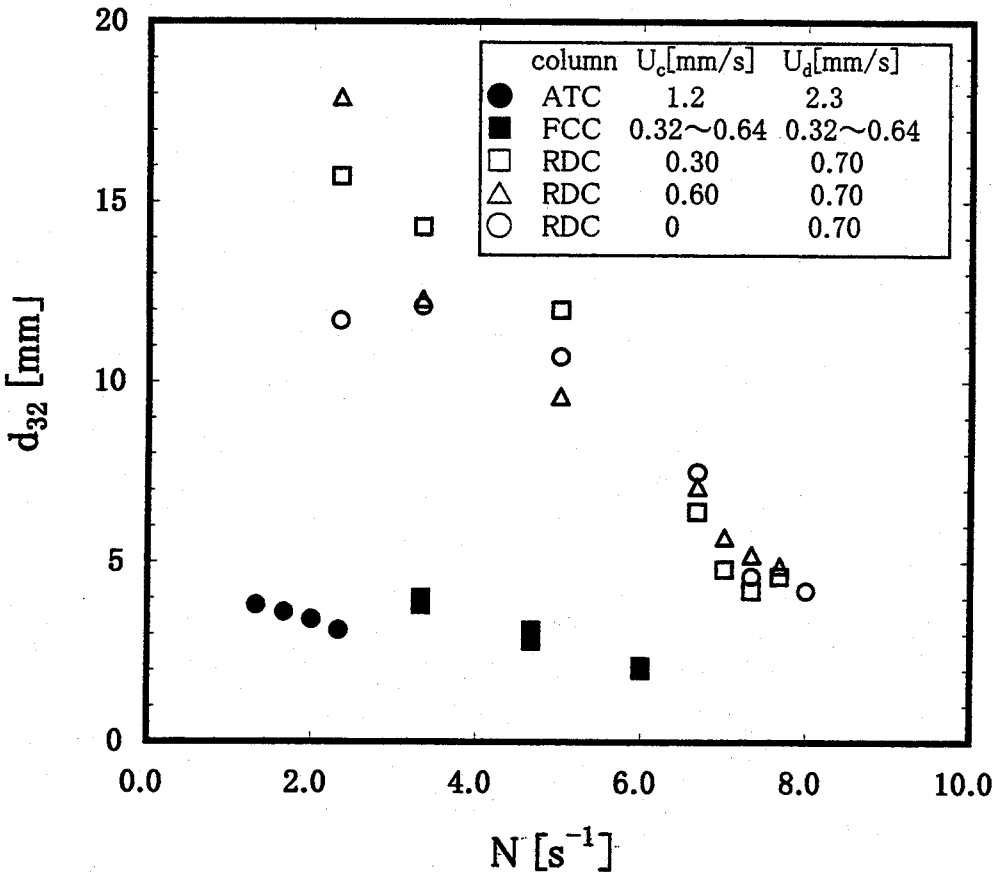


Fig. 5-2 ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔（ATC,FCC,RDC）の体面積平均径の比較

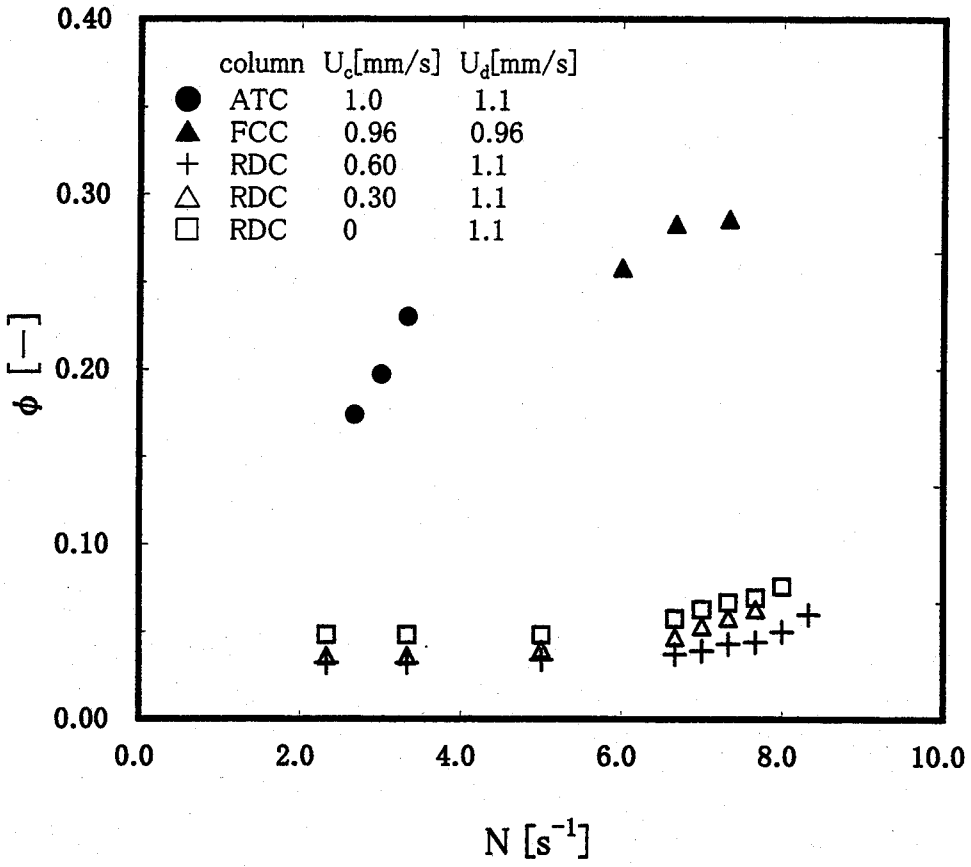


Fig. 5-3 ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔（ATC,FCC,RDC）の分散相ホールドアップの比較

定してもほぼ等しかったが、FCC と比較する意味から第2段の分散相ホールドアップで表示した。本章の実験結果から RDC の分散相ホールドアップは、連続相流量が増加すると若干減少した。この実験結果を考慮に入れて ATC と比較すると、ATC の分散相ホールドアップは RDC の分散相ホールドアップより大きい。これは、スタティックミキサーの効果により分散滴が微粒化することおよび循環流が大きくなるためと考えられる。また、この図から FCC では、その攪拌速度を大きくすると ATC の分散相ホールドアップより大きくすることが出来るが、RDC では、攪拌速度を大きくしても ATC の分散相ホールドアップより大きくすることが出来ない。回転円板翼と較べて、流通管付きディスク翼は大きい分散相ホールドアップを得るのに有効である。

Fig.5-4 は3種類のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の抽出効率を単位塔高当たりの理論段数 NTS/H で比較したものである。連続相と分散相の全供給流量 U_{tot} に関わらず、攪拌速度 N の増加と共に FCC では抽出効率は低下するが、RDC では向上した。この差異は、攪拌速度によって逆混合と物質移動のどちらの要因が抽出効率に大きく影響するかで決まる。FCC では逆混合の影響が物質移動の影響より大きいので抽出効率は低下するが、RDC では物質移動の影響が逆混合の影響より大きいので抽出効率は向上することになる。ATC と RDC を比較すると、連続相と分散相の全供給流量が大きい上に攪拌速度が小さくても ATC の理論段数は RDC の理論段数より大きい。ディスクに取り付けたスタティックミキサーは、高流量および低攪拌速度域でも抽出効率に有効に機能する。

3種類のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の装置性能を文献 [1]の評価法に準じてに NTS/H 対 U_{tot} で比較した結果を、既存装置の結果を加えて **Fig.5-5** に示す。ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の中で比較すると ATC の装置性能が最も良く、FCC と RDC の装置性能はほぼ同程度であ

った。なお、この図から本章の RDC の装置性能は、既存装置と比較して中程度であるが、円板抽出塔（ＲＤ）よりはやや優れている。

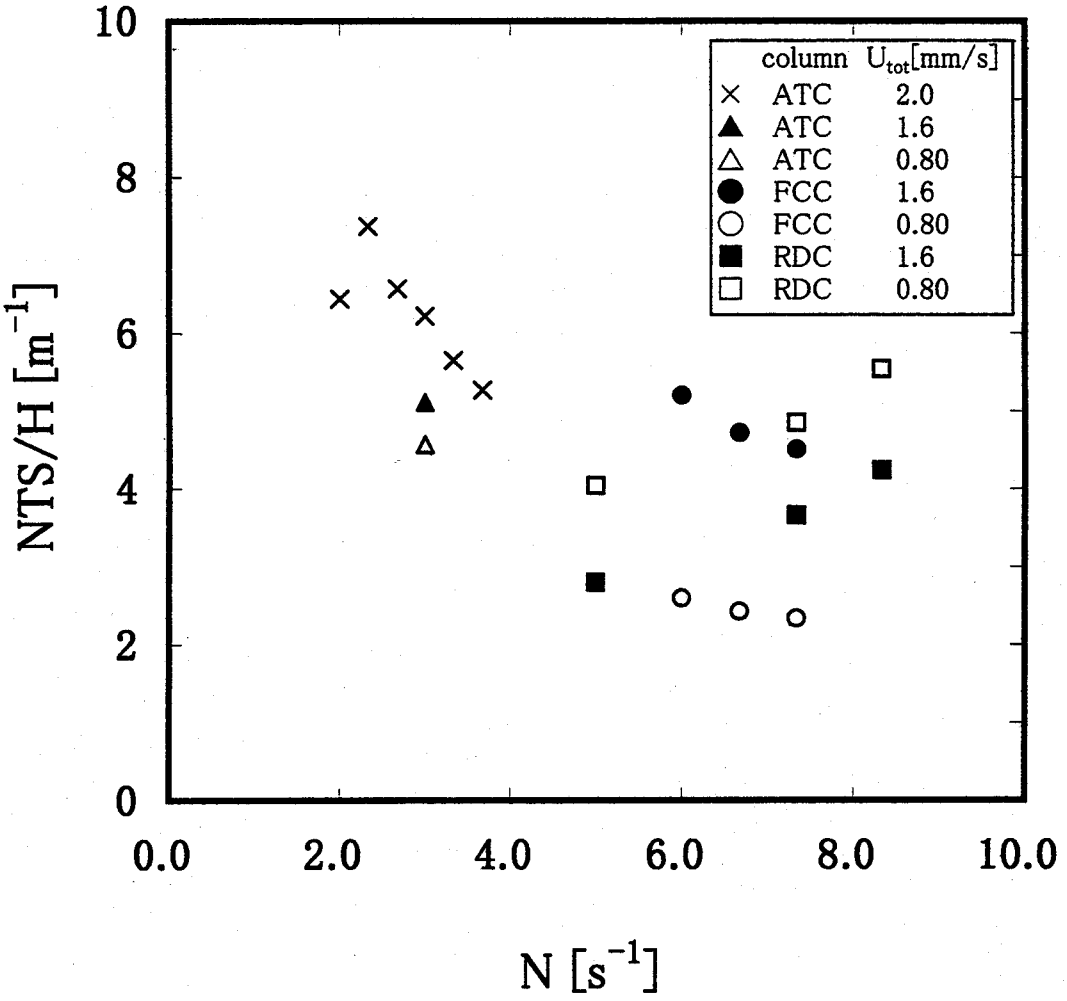
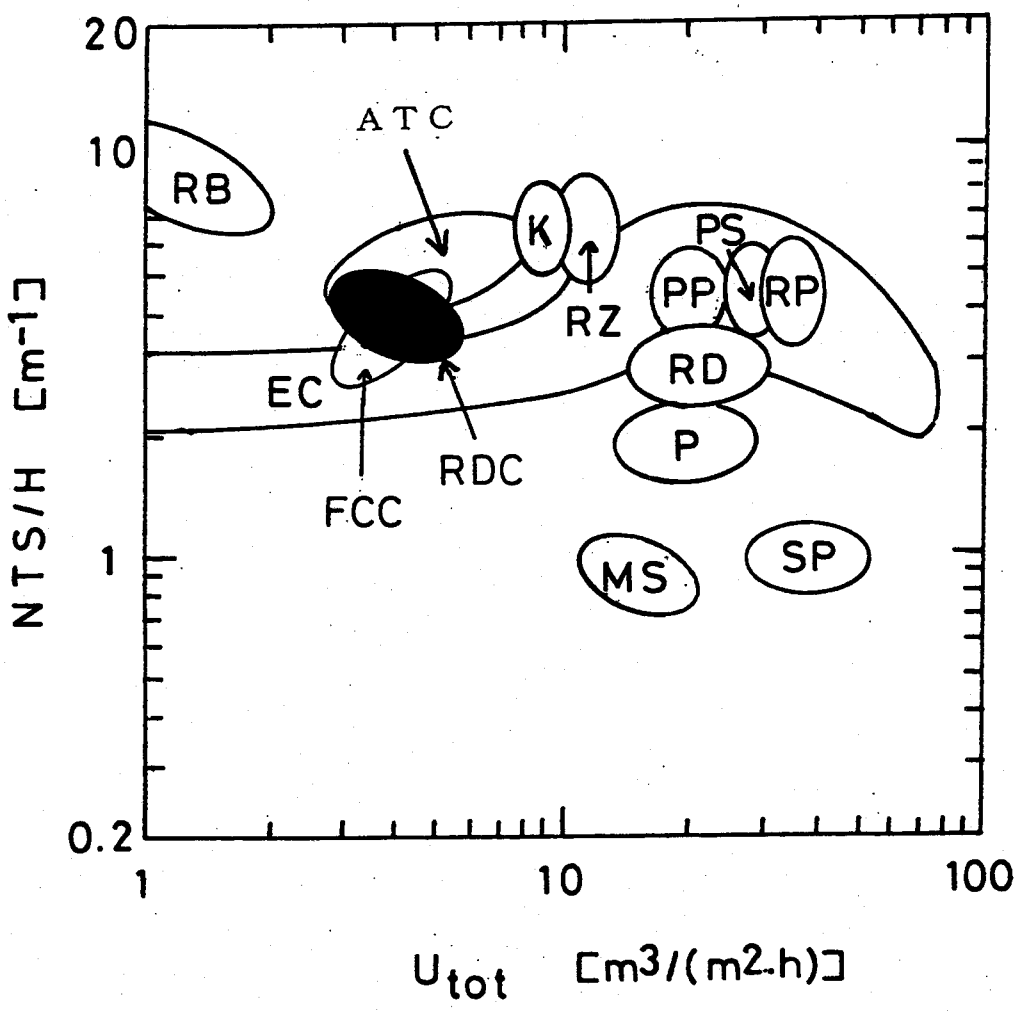


Fig. 5-4 ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔（ATC,FCC,RDC）の理論段数の比較



RB:raining bucker, K:Kuhni agitated column, RZ:QVF agitated column, PP:pulsed packed column, PS:pulsed sieve plate column, RP:reciprocating column, RD:rotating disc column, P:packed column, SP:sieve plate column, MS:mixer settler, EC:enhanced coalescence column

Fig. 5-5 ディスク型攪拌翼多段液液抽出塔（ATC,FCC,RDC）および既存装置との装置性能の比較

5.4 結言

３種類のディスク型攪拌翼多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較して以下の知見を得た。

（１）平均液滴径は、回転するスタティックミキサー流路内の高速捻れ剪断力によりアクティブタービン翼多段液液抽出塔の方が、その負荷液流量が大きくかつ攪拌速度が小さくても回転円板翼多段液液抽出塔より小さいが、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔とほぼ同程度である。

（２）分散相ホールドアップは、液滴の微粒化に加え回転するスタティックミキサーによる循環流によりアクティブタービン翼多段液液抽出塔の方が回転円板翼多段液液抽出塔より大きいが、アクティブタービン翼多段液液抽出塔と流通管付きディスク翼多段液液抽出塔ではほぼ同程度である。

（３）単位塔高当たりの理論段数表示による装置性能は、大きい分散相ホールドアップおよび液滴の微粒化に加えスタティックミキサー流路内の高速捻れ剪断力による物質移動速度の促進によりアクティブタービン翼多段液液抽出塔が最も良く、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔と回転円板翼多段液液抽出塔はほぼ同程度である。

[使用記号]

d_{32}	体面積平均径	[m]
N	攪拌速度	[s^{-1}]
NTS/H	単位塔高当たりの理論段数	[m^{-1}]
U_c	単位塔断面積当たりの連続相流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_d	単位塔断面積当たりの分散相流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_{tot}	単位塔断面積当たりの連続相と分散相の全供給流量	[$m^3/(m^2.s)$]
ϕ	第２段または塔の分散相ホールドアップ（ATC,FCC：第２段，RDC：塔全体）	[-]

[引用文献]

1) von Fischer, E.L. Steiner and S. Hartland : *Ger.Chem.Eng.*,**6**,288-291(1983)

2) 山下治雄，山口　学，清瀬章規，仙波靖英，金田万平，野田秀雄：化学工学論文集，**25**，707-713(1999)

3) 山下治雄，山口　学，野田秀雄：化学工学論文集，**28**，358-362(1999)

第6章　アクティブタービン翼多段攪拌塔の気液流動特性

6.1　緒言

気液反応装置には多種多様なものがあるが、一般に気泡塔が広く用いられている。この装置には、気液物質移動速度が大きい、熱移動速度が大きい、スラリーが共存する場合には懸濁粒子が均一に分布する利点があるが、欠点として気相および液相の逆混合が大きい [1)]。この欠点を低減するため、攪拌式段型抽出塔を気液系に適用することが試みられている [1),2),3)]。しかし、これらの装置に用いられる攪拌翼は、回転円板翼および平羽根ディスクタービンである。アクティブタービン翼は、円板にスタティックミキサーを取り付けた新規な攪拌翼である [4)]。アクティブタービン翼を気液分散系に用いると、液液分散系の場合と同様に、翼の回転で生じる圧力差によって気液二相がスタティックミキサー流路内に吸引され、その中を通過する過程で混合エレメントによってミクロ混合される。従って、アクティブタービン翼多段液液抽出塔 [6),7)]は、翼による良好な分散混合に加え、各段の仕切り板による逆混合の低減から有望な気液接触装置になる可能性がある。

本章は、アクティブタービン翼多段液液抽出塔を気液接触装置に用いた場合の流動特性を調べるとともに回転円板翼による流動特性と比較検討した。なお、気泡塔反応器にスタティックミキサーを取り入れた装置は多くあるが [5)]、本論文で開発したようなスタティックミキサーが回転する多段化した装置は皆無である。

6.2 実験

6.2.1 攪拌翼と気液接触装置

実験で用いたアクティブタービン翼は2章の Fig.2-1 に、円板翼は5章の Fig.5-1 に示したものと同じである。

気液系として、本章では相互不溶性の条件から連続相に水、分散相に窒素ガスを用いた。これらの物性値を **Table 6-1** に示す。

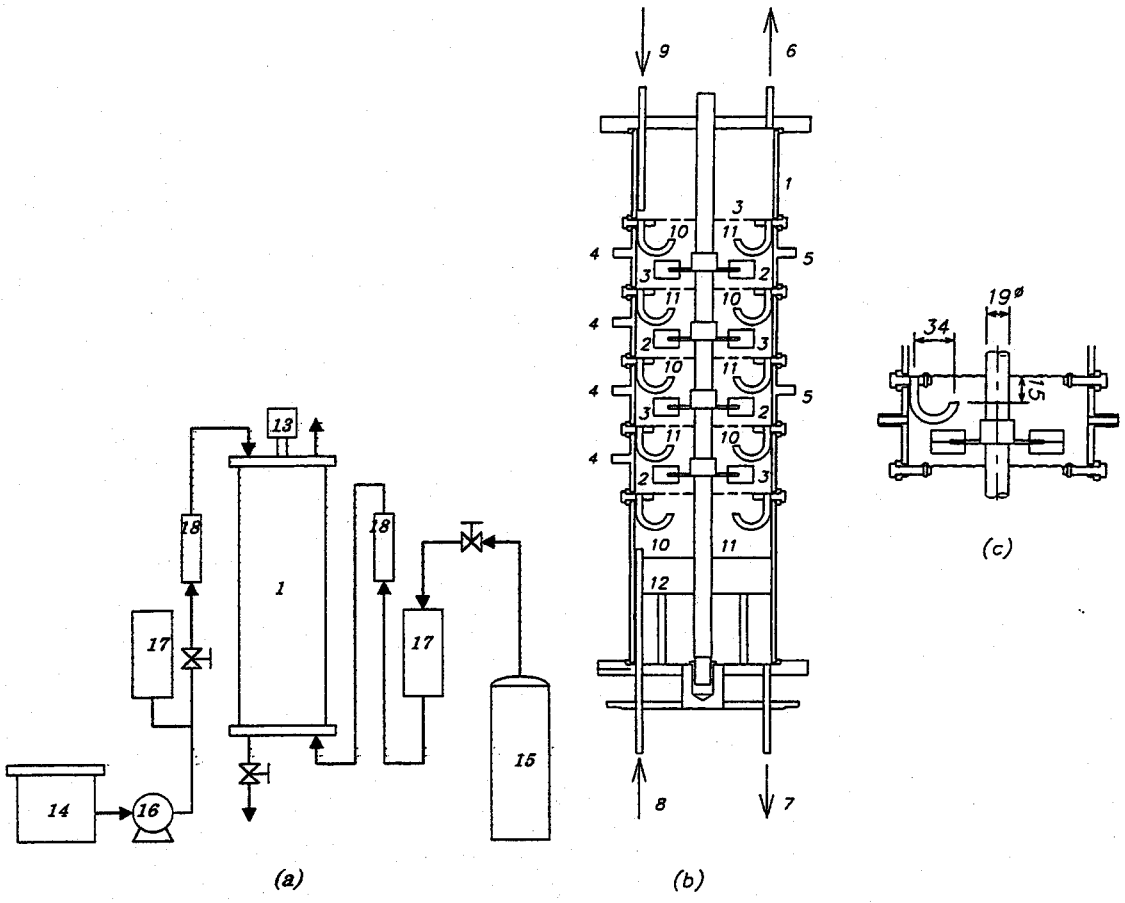
Table 6-1 液体と気体の物性値（10℃の値）

	粘度[mPa·s]	密度[kg/m^3]	界面張力[N/m]
水	1.306	999.7	—
窒素	0.018	1.193	0.0742

実験で用いた装置を **Fig.6-1** に示す。装置本体はアクティブタービン翼多段液液抽出塔と同じもので、内径 150mm のガラス製である。各段は仕切り板で仕切られている。仕切り板の開口径は 110mm である。開口部にはテフロン被膜した金網を取り付け、気泡の合一を促進させた。各段の高さは 70mm で、その中央部に攪拌翼を固定した。上部セトラーおよび下部セトラーの高さはそれぞれ 100mm および 185mm である。各段の降水管は内径 8mm のステンレス製で、J字型になっている。段は塔頂から上部セトラー段、1段、2段、3段、4段、下部セトラー段と呼ぶ。

6.2.2 実験方法

まず、塔内を水（連続相）で満たし、攪拌翼を回転させる。次に、連続相を所定の流量で上部セトラーに供給する。連続相排出口のコックを調整して上部セトラーにおける連続相の液面高さ h_0 が一定になると塔



1:column, 2:impeller, 3:stator ring, 4,5:sampling ports, 6:outlet of gas phase, 7:outlet of continuous phase, 8:inlet of gas phase, 9:inlet of continuous phase, 10:downcomer of continuous phase, 11:wiremesh, 12:demester, 13:electric motor, 14:continuous phase reservoir, 15:gas cylinder, 16:liquid pump, 17:air damper, 18:flow meter

Fig. 6-1 実験装置図

内の連続相の流動状態は定常になったと見なした。その後、窒素ガス（気相）を所定の流量でエアダンパーを通して下部セトラーに供給する。気相は一度仕切り板開口部の金網でセトリングされて第4段に入る。そして、攪拌翼で気泡分散され、上昇し、仕切り板開口部の金網でセトリングされて第3段に入る。以下第1段まで分散・セトリングが繰り返され、上部セトラー段で気液分離され、ガス排出口から排出される。上部セトラー段の液相の液面高さ h が一定になると塔内の気液流動状態は定常になったと見なし、下記の測定を行った。

a) ガスホールドアップ

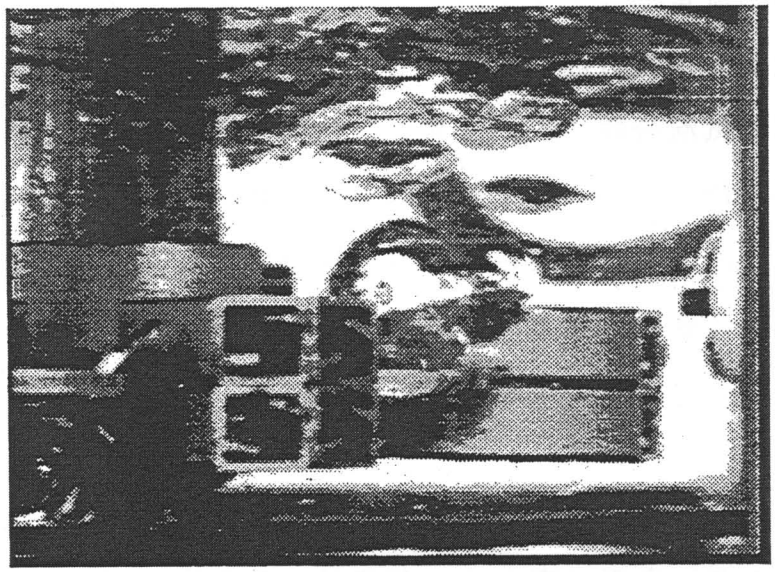
気液供給前の定常状態での連続相の液面高さ h_0 および気液供給後の定常状態での気液界面の高さ h を測定し、塔全体のガスホールドアップを $(h-h_0)/h$ で定義して求めた。ガスホールドアップを連続相流量 U_L =0～15.7×10^{-4} $m^3/(m^2.s)$、ガス流量 U_G=3.16×10^{-4}～10.0×10^{-4} $m^3/(m^2.s)$、攪拌速度 N=1.67～10.0 s^{-1} の範囲で測定した。

b) 生成気泡径

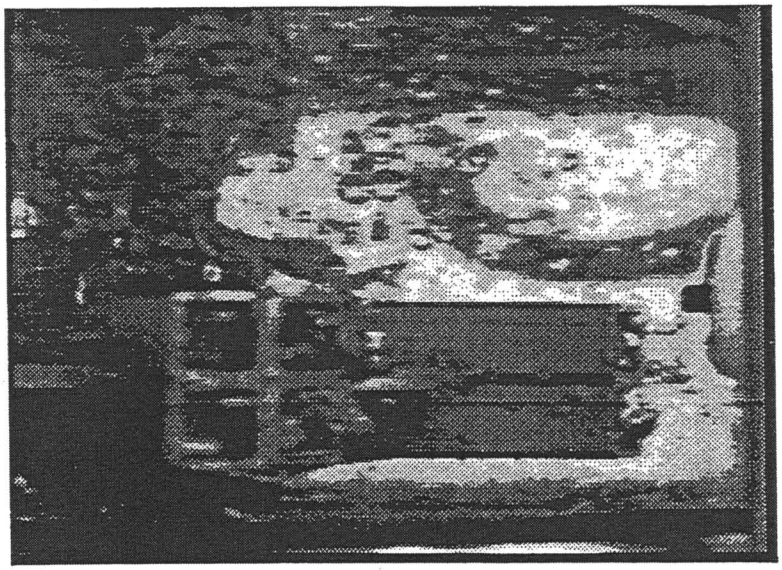
塔の代表段として第2段を選択し、その段の生成気泡径 d とその個数頻度 f をデジタルビデオカメラ（ソニー製ＳＳＣ－M37D）を用いて、連続相流量 U_L=0 $m^3/(m^2.s)$、ガス流量 U_G=3.16×10^{-4}～10.0×10^{-4} $m^3/(m^2.s)$、攪拌速度 N=1.67～10.0 s^{-1} の範囲で測定した。

6.3 結果と考察

Fig.6-2 はアクティブタービン翼多段攪拌塔の第 2 段における翼からの気泡生成を撮影したもので、(a)は攪拌速度 N=1.67 s^{-1}、(b)は攪拌速度 N=5.00 s^{-1} の場合である。低攪拌速度域では気相はスタティックミキサーとスタティックミキサーの間の円板から遠心吐出されて気泡になる



(a) N=1.67s^{-1}



(b) N=5.00 s^{-1}

Fig. 6-2 アクティブタービン翼多段攪拌塔の第２段の気泡生成挙動

が、高攪拌速度域ではスタティックミキサー流路内に吸引・吐出されて気泡になる。

Fig.6-3 は第 2 段における生成気泡分布の変化を示すものである。低攪拌速度域では気泡分布は多峰を形成している。これはスタティックミキサーとスタティックミキサーの間の円板縁から吐出した気泡が回転するスタティックミキサーの外側壁に衝突し、小気泡に分裂するためである。一方、高攪拌速度域では気泡分布は単峰で、気泡の均一化にスタティックミキサーが有効に働いている。

Fig.6-4 は、算術平均気泡径 d_e におよぼす攪拌速度 N の影響についてアクティブタービン翼多段攪拌塔（ATC）と回転円板翼多段攪拌塔（RDC）を比較したものである。高攪拌速度域では、RDC の算術平均気泡径よりも ATC の算術平均気泡径が小さく、気泡の微粒化にスタティックミキサーが有効に働いている。また、低攪拌速度域でも RDC の算術平均気泡径より ATC の算術平均気泡径が小さかった。これは、低攪拌速度域では両翼とも気相は円板に沿って広がり、遠心吐出されて気泡になるが、アクティブタービン翼では上述した様にスタティックミキサーとスタティックミキサーの間の円板縁から吐出した気泡の一部が回転する円板上部のスタティックミキサーの外側壁に衝突分裂し、小気泡になるためと考えられる。

Fig.6-5 は、ガス流量 U_G および連続相流量 U_L が一定での塔全体のガスホールドアップ ϕ におよぼす攪拌速度 N の影響について ATC と RDC を比較した一例である。ATC では攪拌速度の増加と共にガスホールドアップが増加した。これは、攪拌速度の増加と共に平均気泡径が減少し、気泡の上昇速度が減少するためである。攪拌速度の増加と共に ATC の平均気泡径と RDC の平均気泡径の差は減少するにも関わらず、RDC の

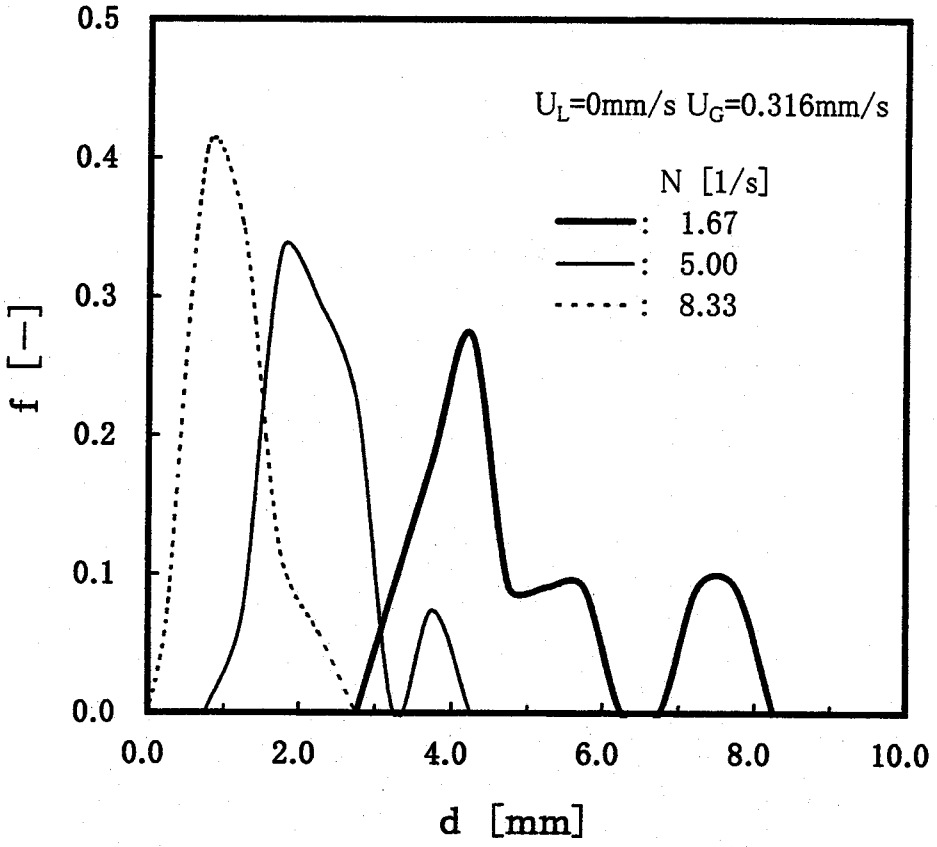


Fig. 6-3 アクティブタービン翼多段攪拌塔の第２段の気泡径分布

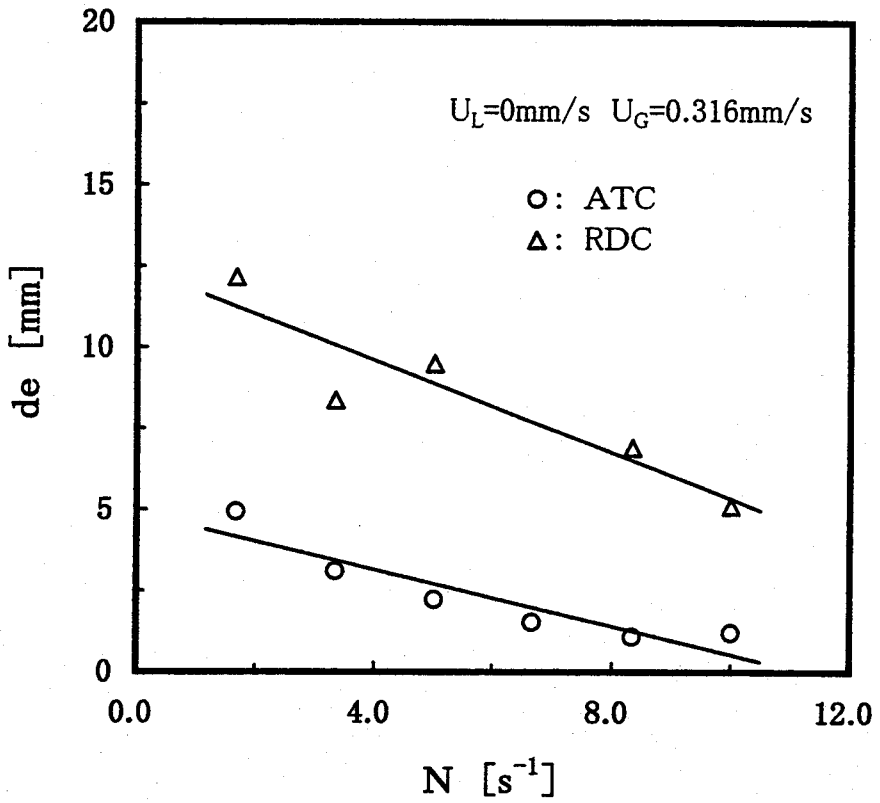


Fig. 6-4 アクティブタービン翼多段攪拌塔と回転円板翼多段攪拌塔の算術平均気泡径の比較－攪拌速度の影響－

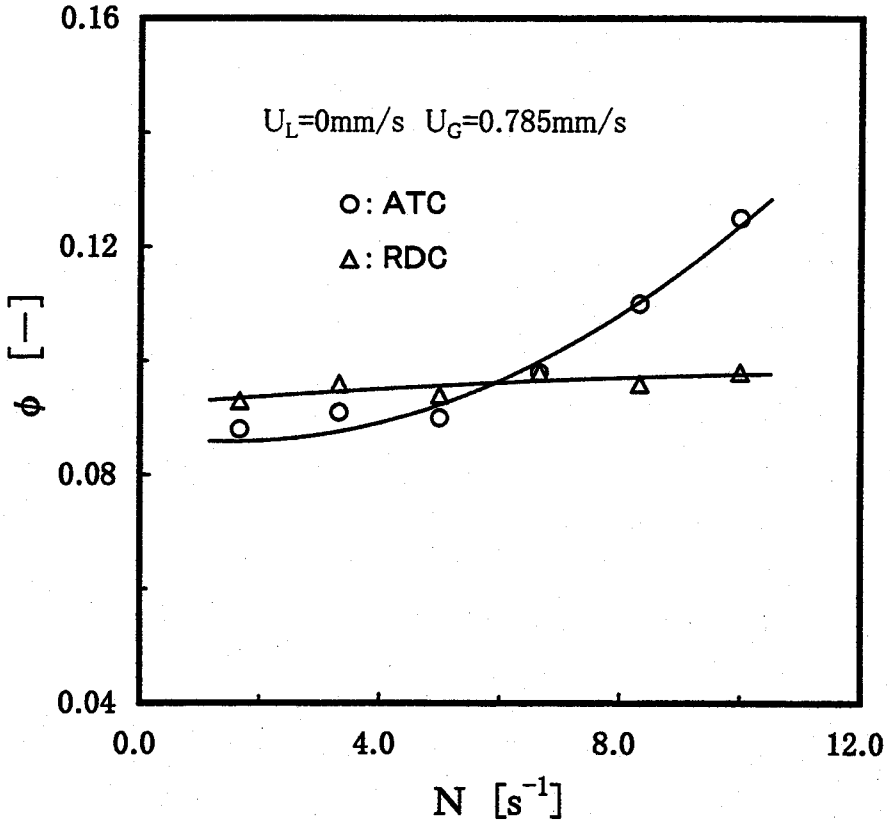


Fig. 6-5 アクティブタービン翼多段攪拌塔と回転円板翼多段攪拌塔のガスホールドアップの比較－攪拌速度の影響－

ガスホールドアップより ATC のガスホールドアップが大きくなった。これは、RDC と比較して ATC では攪拌速度の増加と共にアクティブタービン翼の吸引・吐出力の増加によって気泡が円板上部のスタティックミキサー流路内に吸引され、塔内に滞留し易くなるためと考えられる。

Fig.6-6 は攪拌速度Nをパラメータとし、連続相流量U_L=0m^3/(m^2.s)での塔全体のガスホールドアップϕにおよぼすガス流量U_Gの影響についてアクティブタービン翼多段攪拌塔 ATC と回転円板翼多段攪拌塔 RDC を比較したものである。ガス流量が増加すると、ATC と RDC のガスホールドアップ差は減少した。この理由として次のことが考えられる。図からガスホールドアップにおよぼす攪拌速度の影響は、RDC より ATC の方が大きい。この結果から、RDC では回転円板翼下部に蓄積する気相量がガスホールドアップに大きい影響を与えるが、ATC では生成気泡量がガスホールドアップに大きい影響を与えると考えられる。ガス流量の増加と共に翼下部に蓄積する RDC の気相量が ATC の生成気泡量より大きなり、ATC と RDC のガスホールドアップ差は減少すると考えられる。

Fig.6-7 は攪拌速度Nをパラメータとし、ガス流量U_G=4.67×10^{-4} m^3/(m^2.s)での塔全体のガスホールドアップϕにおよぼす連続相流量U_Lの影響についてアクティブタービン翼多段攪拌塔 ATC と回転円板翼多段攪拌塔 RDC を比較したものである。ガスホールドアップは、ATC では若干増加し、RDC では若干減少するが、総じて両塔とも連続相流量の影響は小さいと考えられる。ガスホールドアップにおよぼす攪拌速度の影響については前述したが、連続相流量が変化しても RDC より ATC のガスホールドアップの方が攪拌速度に対して大きい影響を受ける。

操作条件は異なるが、Meister らが開発した攪拌式段型塔 MAC[2)]と ATC のガスホールドアップを比較した。MAC では、U_L＝0m^3/（m^2. s）、N＝10.0 s^{-1}、U_G＝28.3×10^{-4} m^3/（m^2. s）のときガスホールド

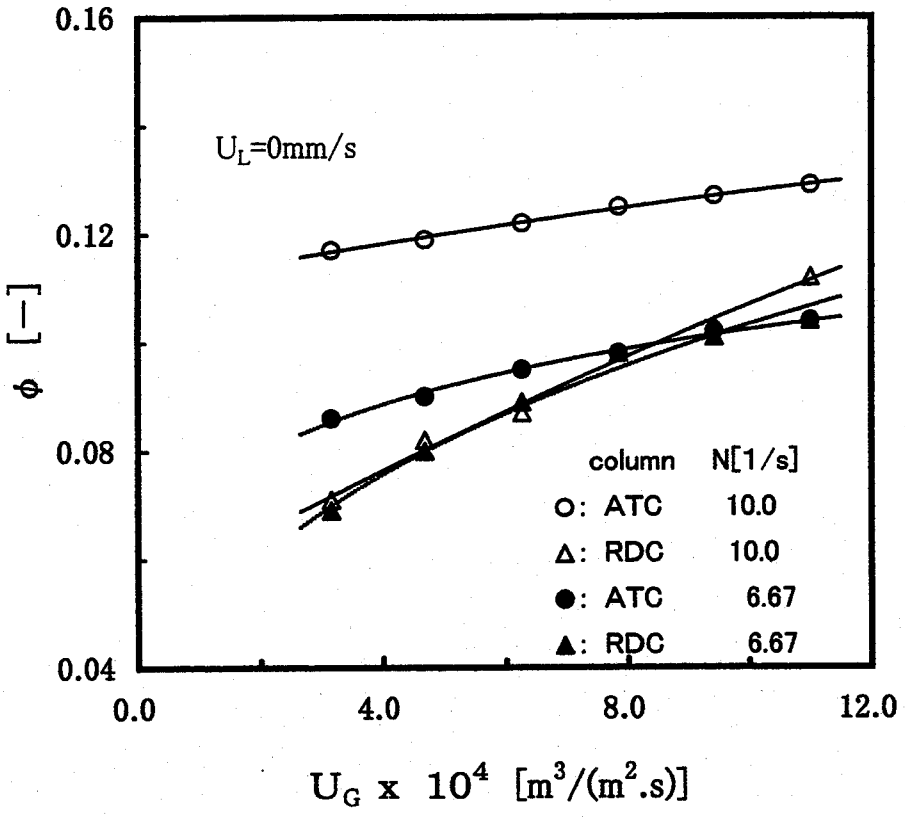


Fig. 6-6 アクティブタービン翼多段攪拌塔と回転円板翼多段攪拌塔のガスホールドアップの比較－ガス流量の影響－

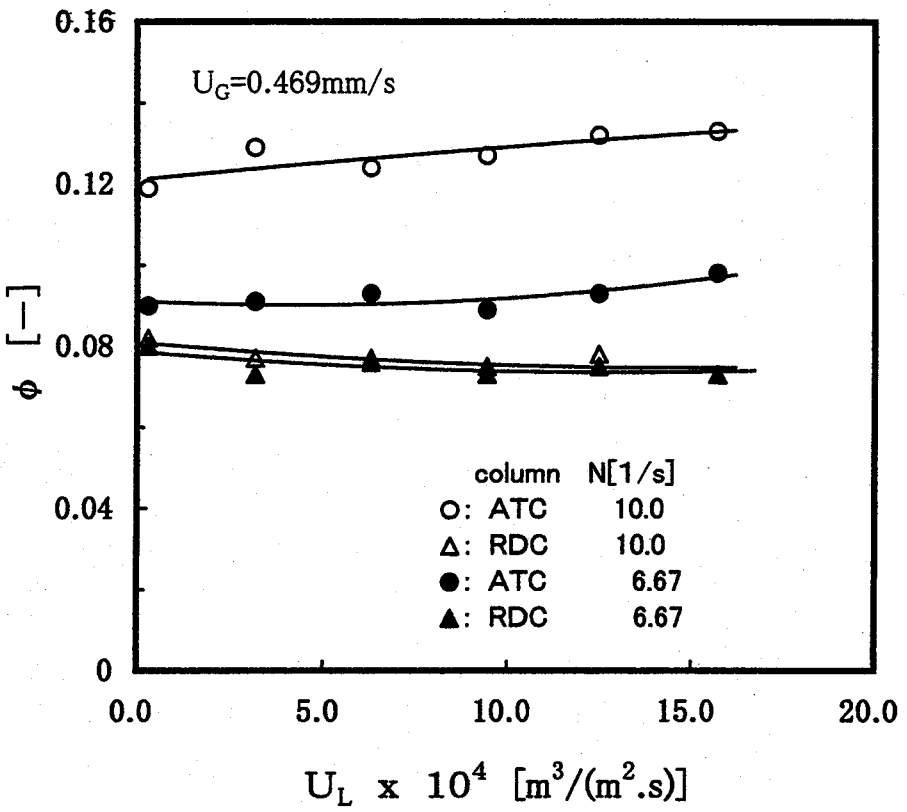


Fig. 6-7 アクティブタービン翼多段攪拌塔と回転円板翼多段攪拌塔のガスホールドアップの比較－連続相流量の影響－

アップは 0.088 である。ATC では、連続相流量および攪拌速度が MAC と同じであるが、ガス流量が $U_G = 11.0 \times 10^{-4} m^3/(m^2.s)$ と小さくても、ガスホールドアップは MAC より約 1.5 倍大きかった。この結果と回転円板翼のガスホールドアップの比較からアクティブタービン翼多段液液抽出塔は気液接触装置に適用できる可能性が示唆された。

6.4 結言

アクティブタービン翼を有する多段液液抽出塔を気液分散系に適用した場合の流動特性を調べると共に回転円板翼と比較実験して以下のことがわかった。

（1）アクティブタービン翼多段攪拌塔の生成気泡径は攪拌速度の増加と共に減少し、その分布は多峰性から単峰性に変化する。

（2）アクティブタービン翼多段攪拌塔のガスホールドアップは攪拌速度またはガス流量の増加と共に増加するが、連続相流量に対してほとんど変化しない。

（3）アクティブタービン翼多段攪拌塔と回転円板翼多段攪拌塔のガスホールドアップ差は攪拌速度の増加と共に増加するが、ガス流量の増加と共に減少する。連続相流量に対してその差はほぼ変わらない。

[使用記号]

d	気泡径	[m]
d_e	算術平均気泡径	[m]
f	個数頻度	[−]
h	定常状態での気液界面の位置	[m]
h_0	定常状態での液面の位置	[m]
N	攪拌速度	[s^{-1}]
U_L	単位塔断面積当たりの連続相流量	[$m^3/(m^2.s)$]
U_G	単位塔断面積当たりのガス流量	[$m^3/(m^2.s)$]
ϕ	ガスホールドアップ	[−]

[引用文献]

1) Breman, B.B., A.A. Beenackers and M.J. Bouma : *Chem. Eng. Sci.*, **50**, 2963-2982(1995)

2) Meister, D., T. Post, I.J. Dunn and J.R. Bourne : *Chem. Eng. Sci.*, **34**, 1367-1374(1979)

3) Miyanami, K., K. Tojo, I. Minami and T. Yano : *Chem. Eng. Sci.*, **33**, 601-608(1978)

4) 野田秀夫：ケミカル・エンジニヤリング，**40**，49-52 (1995)

5) 植田全紀：ケミカル・エンジニヤリング，**36**，95-101(1991)

6) 山下治雄，山口学，清瀬章規，仙波靖英，金田満平，野田秀夫：化学工学論文，**25**，707-713 (1999)

7) Yamashita, H., M. Yamaguchi and H. Noda : *Sol. Extr. Res. Dev. Japan*, **10**, 113-121 (2003)

第７章　総　括

本論文は、円板に取り付けたスタティックミキサーが回転する新規な攪拌翼、アクティブタービン翼を有する多段液液抽出塔の開発およびその装置特性を得るため流動および抽出効率について実験的に調べたものである。

第１章

アクティブタービン翼多段液液抽出塔の開発において基本になる液液抽出装置としてミキサー・セトラーおよびスタティックミキサーについての研究を紹介した。本論文の装置には、スタティックミキサーが回転する新規な攪拌翼を有すること、液滴の合一を促進し、セトラーの機能を持つ金網を各段の仕切り板開口部に設けたことおよび連続相と分散相の流路を分離する降水管を設置したことに特徴がある。

第２章

液滴がアクティブタービン翼の何処で、どのような機構で生成されるのか、また、それに伴い生成液滴径分布および平均液滴径はどのように変化するかについて、単一段を可視化して調べた。

翼回転数が低い場合には、翼による吸引・吐出力よりスタティックミキサー流路内の流動抵抗力の方が大きく、分散相はスタティックミキサー流路内に吸引されず、スタティックミキサーの間の円板縁から液滴生成する。翼回転数の増加と共に吸引・吐出力が増加し、分散相はスタティックミキサー流路内に吸引され、スタティックミキサー流路端で単一

液滴あるいは液柱からの液滴生成となる。翼回転数が高い場合には、スタティックミキサー流路内の捻れ剪断流れにより分散相はスタティックミキサー流路内で分裂・微粒化され、スタティックミキサー流路端から吐出される。それに伴い、液滴径分布も unimodal 分布から bimodal 分布を経て再び unimodal 分布となる。スタティックミキサー流路内液滴生成領域では、体面積平均液滴径は分散相流量の減少と共に幾分小さくなるが、翼回転数および翼径基準の We で相関できる。

第３章

アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動および抽出効率について実験的検討を行い、本論文の中心課題である装置開発およびその装置特性に関して検討した。

分散相ホールドアップは塔高さ方向に分布を形成するが、上部セトラー段に翼による吸引・吐出力がないため、第１段の分散相ホールドアップが最も大きい。第２段、３段および４段の分散相ホールドアップは連続相流量、分散相流量または攪拌速度の増加と共に増加する。一方、第１段は、その分散相ホールドアップが分散相流量の増加に対して増加、連続相流量に対して極小値を経て増加、攪拌速度に対して極大値を経て減少する複雑な段である。本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔ではフラッディングは、まず、この段で分散相と連続相の相転移が生じ、それが下段へ伝播することで起こる。このフラッディング現象は既存の装置とは異なる。分散相フラッディング流量は連続相流量の増加と共に増加するが、翼の回転による吸引・吐出力の増加と共に極大値を経て減少する。

単位塔高当たりの理論段数は、物質移動速度と逆混合の影響によって変化するが、本論文のアクティブタービン翼多段液液抽出塔では連続相

と分散相の全供給流量の増加と共に増加、攪拌速度の増加と共に極大値を経て減少する。金網の有無による比較実験から各段の仕切り板開口部に設けた金網が単位塔高当たりの理論段数におよぼす影響は顕著で、抽出におけるセトラーとして十分に機能することが分かった。単位塔高当たりの理論段数表示による既存装置との比較から本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔は良好な性能の装置であることが明らかになった。

第４章

円板に流通管混合エレメントが装着されていない中空の流通管を取り付けた攪拌翼、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率について実験的検討を行った。

翼回転数が低い場合には、翼による吸引・吐出力より流通管内の流動抵抗力の方が大きく、分散相は流通管内に吸引されず、流通管の間の円板縁から吐出され、それが円板上部の流通管により液滴分散される。翼回転数が高い場合には、流通管内の高速流れにより分散相は流通管内で分裂・微粒化され流路端から吐出される。それに伴い、液滴径分布はbimodal分布からuimodal分布となり、液滴径は減少するが、液滴径におよぼす連続相流量および分散相流量の影響は小さい。

第２段の分散相ホールドアップは、攪拌速度、連続相流量または分散相流量の増加と共に増加する。分散相フラッディング流量は連続相流量の増加と共に増加するが、攪拌速度の増加と共に極大値を経て減少する。これらの流動特性はアクティブタービン翼多段液液抽出塔の場合と同じである。

単位塔高当たりの理論段数は、攪拌による吸引・吐出力の増加と共に極大値を経て減少する。これらの挙動もアクティブタービン翼多段液液

抽出塔の場合と同じである。単位塔高当たりの理論段数表示による既存の攪拌式抽出塔の性能と比較して、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の性能は同程度である。

第５章

アクティブタービン翼におけるスタティックミキサーおよび流通管混合エレメントの役割を確認するため、混合エレメントがない流通管付きディスク翼およびスタティックミキサーがない回転円板翼とアクティブタービン翼の多段液液抽出塔の流動特性および抽出効率を比較検討した。

アクティブタービン翼のスタティックミキサー流路内の捻れ剪断力は、流通管付きディスク翼および回転円板翼による剪断力と比較して、攪拌速度が小さくても液滴の微粒化に有効に作用する。また、流通管付きディスク翼による平均液滴径は回転円板翼による平均液滴径より小さい。

アクティブタービン翼多段液液抽出塔では各段に循環流が発生することおよび液滴の微粒化により、分散相ホールドアップは回転円板翼多段液液抽出よりも優れているが、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔とは同程度である。

単位塔高当たりの理論段数表示による装置性能は、スタティックミキサー流路内の捻れ剪断力による物質移動速度の促進により、アクティブタービン翼多段液液抽出塔が最も良いが、流通管付きディスク翼多段液液抽出塔と回転円板翼多段液液抽出塔は同程度である。

第６章

アクティブタービン翼多段液液抽出塔を気液接触装置に適用した場合の流動特性を調べるとともに回転円板翼による流動特性と比較した。

アクティブタービン翼多段攪拌塔の生成気泡径分布は、液液系の場合

と同様に攪拌速度の増加と共に多峰性から単峰性へ変化し、それに伴い平均気泡径は減少する。ガスホールドアップは攪拌速度またはガス流量の増加と共に増加するが、連続相流量に対してほぼ変わらない。

アクティブタービン翼による循環流の発生および気泡の微粒化により、ガスホールドアップは回転円板翼多段攪拌塔よりアクティブタービン翼多段攪拌塔の方が大きい。

既存の攪拌式段型塔と比較して、アクティブタービン翼多段攪拌塔のガスホールドアップは大きい。この結果と回転円板翼との比較から、アクティブタービン翼多段攪拌塔は有望な気液接触装置であることが示唆された。

今後の課題

本論文で開発したアクティブタービン翼多段液液抽出塔の装置特性について検討し、良好な性能の装置であることが明らかになった。今後、装置設計およびスケールアップするには、本研究で得た装置特性（流動、抽出効率）を定式化することおよび装置特性に対するスタティックミキサーのユニット数の影響、大流量の連続相に対する降水管の働き等の実験データの蓄積を必要とする。アクティブタービン翼多段液液抽出塔の装置特性に関して多くの知見を得たが、さらに逆混合を定量化することが装置設計およびスケールアップするためにも重要である。アクティブタービン翼多段液液抽出塔の多目的利用として気液接触装置の可能性が示唆されたが、これに関してはさらに多くの研究が必要である。

謝　辞

本研究を遂行するにあたり、大阪大学在職の時から常に変わらぬ暖かい御指導と御教授を賜りました元姫路工業大学大学院工学研究科　機械系専攻機械工学部門教授　山口　学先生に心から御礼申し上げます。

論文の完成に際して、多くの御助言と御指導を賜りました大阪大学大学院基礎工学研究科　物質創成専攻化学工学領域教授　新田　友茂先生、同大学院教授　上山　惟一先生、同大学院教授　久保井　亮一先生、同大学院教授　平井　隆之先生に厚く御礼申し上げます。

また、本研究をまとめる機会を与えて下さいました大阪大学大学院基礎工学研究科　物質創成専攻化学工学領域教授の先生方に御礼申し上げます。

実験に御協力して頂きました姫路工業大学大学院工学研究科助手　佐野　紀彰先生、大阪大学大学院基礎工学研究科　新田研究室の当時の学生　清瀬　章規氏、仙波　靖英氏、田坂　隆典氏および元姫路工業大学大学院工学研究科　山口研究室の当時の学生　足立　慎司氏、井上　暢人氏、橘　龍彦氏、吉武　知哉氏に感謝します。

実験装置の立案に御協力して頂きました関西化学機械製作株式会社代表取締役社長　野田　秀夫氏および実験装置のメンテナンスに御協力して頂きました同社　金田　万平氏、倉谷　伸行氏に御礼申し上げます。

発表論文リスト

学術雑誌

1) 山下治雄，山口　学，金田万平，野田秀夫：重液分散型ミキサーセトラー多段抽出塔の流動特性，化学工学論文集，**24**，711-715(1998)
2) 山下治雄，田坂隆典，山口　学，野田秀夫：スタティックミキサー付き攪拌翼からの液滴生成，化学工学論文集，**25**，471-481(1999)
3) 山下治雄，山口　学，清瀬章規，仙波靖英，金田万平，野田秀夫：アクティブタービン翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出性能，化学工学論文集，**25**，707-713(1999)
4) 山下治雄，山口　学，野田秀夫：流通管付きディスク翼多段液液抽出塔の流動特性と抽出効率，化学工学論文集，**28**，358-362(2002)
5) Haruo YAMASHITA, Manabu YAMAGUCHI and Hideo NODA : Column Characteristics of a Mixer-Settler Extractor Various Disc Type Impellers, *Solvent Extraction Research and Development, Japan*, **10**, 113-121(2003)

Proceedings

1) 山下治雄：液液抽出塔のシミュレーションとモデリング，「化学工学シンポジウムシリーズ 60」，73-78(化学工学会，1997)
2) Manabu Yamaguchi, Haruo Yamashita and Hideo Noda : Development of a Multistage Mixer-Settler Column with a Novel

Impeller, International Solvent Extraction Conference, pp.433-437, Barcelona, Spain, July(1999)

3) Manabu Yamaguchi, Haruo Yamashita and Hideo Noda : Hydrodynamics and Mass Transfer of a Rotation Disc Column, International Solvent Extraction Conference, pp.1334-1338, Cape Town, South Africa, July(2002)