

## 学位論文の要旨

氏名

平山 幹朗

学位論文題目

液滴層を分離場とする塔型液-液抽出装置における物質移動特性

本論文は、最近開発された塔型の液-液抽出装置で、性能の高さゆえに産業応用が進んでいる、エマルションフロー塔の合理的設計の鍵となる物質移動特性を表す相関式の確立に関する研究がまとめられている。

第1章では、液-液抽出装置の歴史的背景からエマルションフロー塔の特徴を述べるとともに、本研究の目的を示した。エマルションフロー塔は塔内部のエマルション滴の層を分離場として向流操作を行うことが特徴で、従来の塔型液-液抽出装置よりも大幅に安定な向流操作を小さい液滴径で実現できる。また、広く工業的に用いられる液-液抽出装置であるミキサーセトラーでは実現できなかった密閉化と所要床面積の低減に成功し、溶媒の揮発ロスを抑えて環境負荷を低減している。これまで経験的に行われてきた装置設計を合理的に行うための指針として、本研究では液滴層高さ、総括物質移動容量係数、混合の強度、移動単位高さ及び理論段数を操作条件と相関付けた。さらに、この塔の性能を従来から報告されている多くの抽出塔と比較するためのマップを作成して優れる点を明確に示した。

第2章ではエマルションフロー塔の特徴である液滴層に着目し、定常状態に達した後の層高さと、ヨウ素を水相から $n$ -ヘプタン相へ抽出する実験から決定された総括物質移動容量係数を、操作条件である水相流速と油相流速で特徴付け、相関式を得た。この成果により、分離性能と操作条件との間の定量的な関係が初めて明らかになり、要求される性能を達成するための条件決定が可能となった。

第3章は、エマルションフロー塔内での混合の強さを定量化するとともに、現在幅広く利用されている抽出装置である各種スプレー塔と充填塔との比較を行った。混合強度の指標として無次元数のペクレ数を選択し、この値をインパルス応答実験から決定し、既報の多数のスプレー塔と充填塔のペクレ数とともにレイノルズ数に対してプロットした。本装置の混合強度が、一般的に混合が弱いとされる充填塔と混合が強いとされるスプレーの中間にあることがわかり、液滴層という独特な分離場での混合の強さを定量的に評価した。

第4章は、抽出装置の分離性能の指標として広く用いられている移動単位高さ( $HTU$ )と理論段数( $N_{th}$ )について、産業応用や研究報告されている抽出装置とエマルションフロー塔を比較することで、分離性能と装置構造、安定運転の難易さの観点で特徴付けを行った。 $HTU$ 及び $N_{th}$ の値を第2,3章で示す研究成果から決定し、それらの値を水相および油相流速で相関した。 $HTU$ 値と $N_{th}$ の値は互いに関係しており、 $HTU$ が小さいほど分離性能が高く $N_{th}$ は大きい。小さい $HTU$ 値を有する既存装置の内部で強い攪拌が行われて微細滴が生成されるが、微細滴は安定な向流操作を妨げるので、滴を合一させる仕組みが必要で塔内構造が複雑になる。一方、スプレー塔のように攪拌を行わないものは、抽出性能は低いものの簡単な塔構造で運転が容易である。エマルションフロー塔はスプレー塔のようにシンプルな塔構造でありながら、抽出性能は攪拌型の装置に匹敵する性能を有している。これらの検討から、液-液抽出装置におけるエマルションフロー塔の特徴をより明確かつ定量的に表すことができた。

第5章では、さらなる精密な設計と現象理解を深めるためには、液滴の合一現象を制御することが課題であることを認識し、類似の先行研究を調査してエマルションフロー塔の理解に有用な手法を示したことで、取り組むべき課題を明確にした。

第6章では、各章で得られた結論を総括した。各種抽出装置の中でエマルションフロー塔の位置づけの明確化と合理的な設計を行うための指針を示した。

## Summary of Doctoral Dissertation

Title of Doctoral Dissertation:

Mass-transfer in An Extraction Column Characterized by Dropwise  
Contact between Two Phases in the Middle of the Column

Name: HIRAYAMA Mikiro

This thesis focuses on elucidating characteristics of mass-transfer as well as flow behavior of novel column-type extraction equipment called emulsion-flow column. The column achieves a high extraction ratio of the target material with a simple operation of supplying both aqueous and organic phases as droplets. In the middle of the column, the layer of droplets occurs and the height of the layer is kept constant by rapid drop coalescence at both ends of the layer. Thanks to the layer, mass-transfer between two-phases progresses effectively and a stable counter-current flow attains successfully.

Chapter 1 introduces the background of liquid-liquid extraction. The contribution of chemical industry was described in terms of history and development of apparatus. Various types of extraction equipment were described and their characteristics were summarized. In the course of the development, emulsion column has been invented and both the strength and weakness were illustrated. The major weakness is a lack of rational design method for the scaling-up. Since the method strongly needs correlations of mass-transfer parameters and operating conditions. Therefore, studies were conducted to obtain those correlation.

In Chapter 2 suggested correlations were of overall mass-transfer capacity coefficient based on aqueous phase,  $K_w a$  and the height of droplet bed,  $H$  and various operating conditions. In iodine extraction, velocity of organic phase had a stronger effect on  $H$ . Furthermore  $K_w a$  was correlated with a root of  $H$ . This fact suggests that the velocity of organic phase plays a major role in mass-transfer in emulsion flow operation.

Chapter 3 discusses the strength of axial mixing of the emulsion-flow column. Peclet numbers were determined for various flow conditions. Furthermore, the degree of axial mixing of the emulsion-flow column was compared with a number of conventional spray and packed columns by plotting the droplet Peclet number against the droplet Reynolds number. Points of the Peclet numbers of emulsion-flow column located in the middle of the spray and the packed columns, which suggests that the strength of axial mixing in the emulsion-flow column is in between spray and packed columns.

In Chapter 4, the performance of iodine extraction in the emulsion-flow column was evaluated using an indicator of difficulty in separation, height of transfer unit,  $HTU$  and of the number of theoretical plates,  $N_{th}$ . Observed  $HTU$  values were compared with those of many conventional extraction columns with or without mechanical agitation. The emulsion-flow column showed a top-level performance of extractors without mechanical agitation, such as packed and spray columns. Also, that performs in the middle range of agitated extractors. However, structure and operation of the emulsion-flow column is far simpler than those agitated extractors. From an engineering view, a method for this point provides a big advantage for the practical application.

Chapters 5 and 6 summarize the results of this study, and subjects for future works were presented.