研究論文

1099. PUREX法再処理のウラン逆抽出工程における エントレインメントおよびオーバーフロー 発生時の濃度プロファイルへの影響

上 田 吉 徳^{*,†}

*Effect of Entrainment and Overflow Occurrence on Concentration Profile
in Uranium-Strip Bank of PUREX Flowsheet*

By Yoshinori UEDA

An occurrence of entrainment and overflow (a leakage flow through the overflow-passageway) should be considered in the operation of the solvent extraction process and design of an extractor because they affect the concentration profile. A computer code permitting the calculation of the concentration profile under an occurrence of such abnormal flows has been developed for the PUREX flowsheet. The concentration profile is calculated by solving overall mass balance equations considering those from abnormal flows. The effect of internal abnormal flows on the concentration profile was studied for the uranium-strip bank. The results showed that the internal abnormal flows disturbed the uranium stripping i.e. increased the uranium concentration in the solvent outflow, but the increase was far smaller than that caused by the deviation of feed flowrate into the bank due to its usual control precision which is considered in an industrial flowsheet. An occurrence of entrainment and overflow has been restricted severely because there has been no quantitative study about its effect on the concentration profile, however, the results suggested the possibility of relaxing that restriction, which provides a more flexible operation of process for disturbance and a smaller design load of a solvent extractor for the uranium-strip bank.

KEYWORDS : PUREX process, solvent extraction, uranium strip, entrainment, overflow, concentration profile, simulation, calculation code, leakage flow

I. 緒 言

PUREX法による再処理の溶媒抽出工程に用いる遠心抽出器やミキサセトラ等の抽出装置は、運転条件が設計条件に対して過負荷になると、正常な相分離ができなくなり、エントレインメントやオーバーフロー等の液流動異常が発生する。これらは、工程の濃度プロファイルを乱したり、工程端から有機相、水相が十分に分離されない状態で液が流出する等、後続工程へ悪影響を与える要因となる。したがって、従来、溶媒抽出工程の運転は工程の全段に対してこれらの事象が発生しない範囲で行われ、また、抽出装置についても適用する運転条件範囲でこれらの事象が発生しないように設計されてきた。しかしながら、工程として回避すべき事象は、エントレインメントやオーバーフローの発生自体というよりも、これらが誘発する悪影響である。すなわち、工程端からの流出液の相分離が従来通り確保されていれば、工程の内部でエントレインメントやオーバー

フローが発生しても、その影響が製品スペックを逸脱するほど大きくなければ運転を継続できる可能性がある。また、これらの工程内部でのある程度の発生を前提として工程の設計を行うことで、抽出工程や抽出装置について、従来よりも柔軟な設計や運転対応が図れる可能性がある。

このような検討にあたっては、エントレインメントやオーバーフローの発生が濃度プロファイルに与える影響を把握することが必要である。しかしながら、従来、相分離能力の十分な確保を前提として抽出装置や工程の設計が行われてきたためか、このような関係に着目した系統的な研究は報告されていない。例えば再処理用遠心抽出器では、エントレインメントの発生上限が設けられてきており、その値は各国とも1%程度以下であるが⁽¹⁾、これらの制限について定量的な解釈を議論した報告はほとんどない。1%以下の発生であっても濃度プロファイルへの影響は生ずるはずであり、発生の上限を必ずしも1%程度に制限する必然性は見出し難い。

以上より本報では、工程内部におけるエントレインメントおよびオーバーフロー発生時の、濃度プロファイルへの影響の解析を目的とし、解析手法の検討およびウラン逆抽出工程を対象とした解析を行った。解析にあたっては、オブ

* 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nucl. Cycle Develop. Inst.)

† 現在、(株)原子力発電技術機構 (Nucl. Power Eng. Corp.)
(1999年3月31日受理)、(1999年7月5日再受理)

ジェクト指向型の計算コードを開発した。なお、解析対象をウラン逆抽出工程としたのは、同工程はPUREX法による再処理における溶媒抽出工程では、一般に抽出装置への供給流量が最大となること(装置への負荷が最大となる)、抽出装置サイズも最大のものが要求されることから、検討結果の反映のメリットが最も大きいことによる。

II. エントレインメントおよびオーバーフロー発生現象

1. エントレインメント発生現象

Fig. 1 に発生の様式図を遠心抽出器の例で示す。抽出装置への供給流量の増加は、相分離部(ローター内部)での液滞留時間を減少させ、ディスパージョン層(両相が混合した部分)の厚さを増加させる。また、有機相と水相の供給流量比や密度比の変化は、ディスパージョン層の位置および厚さを変化させる。したがって、抽出装置設計時に想定した範囲以上にこれらが変化すると、水相または有機相出口から他相の一部が流出したり、あるいは、その両方が発生する。このような事象をエントレインメントの発生という。遠心抽出器の場合は、ローター回転数の低下によっても、エントレインメントが発生する。

2. オーバーフロー発生現象

オーバーフローラインを設けている遠心抽出器での現象であり、Fig. 2 に発生の様式図を示す。オーバーフローラインは本来、ローターの回転停止時にその段の液を逃がす目的で設けられている⁽²⁾。しかしながら、ローター回転中でも、抽出器への供給流量の過負荷あるいはローター回転数の低下により混合部液位が上昇し、液位がオーバーフローライン設置位置を越える状況になると、液の一部がオーバーフローラインから隣接段へ直接流出する。このような事象を、本報では、オーバーフローの発生という。

Fig. 2 Occurrence of overflow in centrifugal contactor

III. 解析方法

1. 解析の考え方

エントレインメント発生の場合を例にとり、Fig. 3, 4 を参照して示す。Fig. 3 は正常な場合である。分配係数 D が x または y の関数で表されれば、工程全体および各段の物質収支式と連立して解くことにより、各段水相濃度 x 、有機相濃度 y が求められる。PUREX 溶媒抽出工程では、基本的にこのようにして濃度プロファイルを求める計算コードが各国で作られており、フローシート設計やプロセスデータの評価に使われている。一般にこれらコード中の分配係数 D は、ピーカースケールでの試験データによる実験式をもとに表現されている。

液流動異常発生時の例として、Fig. 3 の状態から有機相エントレインメントが発生(有機相の一部が水相側に流出)した場合を Fig. 4 に示す。この場合も、Fig. 4 に示す工程全体、各段、各分岐および合流箇所の物質収支と分配係数 D の関数とから、正常時の場合と同様に、各段水相濃度 x 、有機相濃度 y が求められる。Fig. 3, 4 は 2 段、1 成分の例であるが、段数、成分が増えた場合、また、水相エントレインメントが発生(水相の一部が有機相側に流出)する場合も同様に求められる。なお、両相で同時に、エントレインメントが発生する場合も、解く式の数が増えるが同様に計

Fig. 1 Occurrence of entrainment in centrifugal contactor

Fig. 3 Calculation model of concentration profile for normal condition (2stages, 1 component)

Fig. 4 Calculation model of concentration profile for entrainment occurrence (2stages, 1 component)

算できる。

以上のように、エントレインメントやオーバーフロー発生等の液流動異常時の濃度プロファイルは、正常な場合の多段抽出工程計算に、発生事象に対応した流れの分岐や合流の関係式を加え、それらの周り、各段および多段工程全体について物質収支をとることによって求められる。

2. 計算コード

以上の考え方をもとに、液流動異常発生時の濃度プロファイルを求める計算コードを開発してきている⁽³⁾⁽⁴⁾。解析対象とするモデルは、流路構成や液流動異常発生パターンが複雑、多様であり、また、解析の進捗に伴って流路構成や計算機能の拡張、解析式の変更等が予想される。そこ

で、これらを効率的に行うため、オブジェクト指向型汎用ソフトを利用して計算コードを作成している。これは、FORTRAN等の言語でコードを作成する場合は、例えば模擬する流路構成のバリエーション等、モデルの仕様範囲をプログラム設計時にあらかじめ決める必要があり、これらの変更にはプログラムに直接手を入れる必要があるが、オブジェクト指向型ソフトは要素モデルを組み合わせることで全体のモデルを構築できるので、適切に要素モデルを作成すればモデル変更が容易に行えることによる。以上の特徴を有効に発揮するため、要素モデルは、構造が単純で汎用性の高いものにする(少ない種類の要素モデルで多様な事象を表現できること)、装置内の挙動をできるだけ液の流れに近い形で表現できることを考慮して作成している。

Table 1に今回の解析に用いた要素モデルを示す。4種類を用いている。Fig. 5(上部)に、要素モデルを組み合わせで作成した抽出装置1台分のモデルを示す。右側はパソコン画面上のモデル図である。要素モデル間の物質移動はストリーム(モデル図中の矢印)で表し、ストリームに各成分の流量(mol/h)が定義される。物質収支計算モデル(■)は、入力ストリームを合流させ各成分のホールドアップ変化を算出する。平衡濃度計算モデル(Ⓔ)は、水相-有機相間の抽出種の移動を模擬し両相間の平衡濃度を算出する。平衡濃度計算モデル中で用いる分配係数 D の関数については、現在、既存計算コードMIXSET中のものと同一のものを組み込んである⁽⁵⁾。以上2つのモデルで混合部を構成する。液流動異常に伴うイレギュラーな流れは、分流利器(◎)および合流利器モデル(●)で模擬する。分流利器モデルの機能は、分流比($0 \leq \text{分流比} \leq 1$)を定義して流量を2つの出力ストリームに分配するという単純なものであり、分流比を与えることでエントレインメントやオーバーフローを発生させる。合流利器モデルの機能も、2つの入力ストリームを合流させ一つの出力ストリームとするという単純なものである(物質収支計算モデルへの有機相、水相ストリームは外部からの供給流量を示し、必要な段では値を設定する)。一たん要素モデルを作成した後は、模擬する異常事象と工程の構成に従って、抽出装置1台分、多段工程と順に組み立てて全体のモデルを作成する。Fig. 5(下部)に今回用いた工程モデルを示す。パソコン画面上のモデル図である。抽出装置1台分のモデルを12個組み合わせて多段工程モデルを作成している(モデル図中の各四角□が抽出装置1台分のモデルである)。このモデルで機器仕様、フローシ-

ャ条件、運転方法、液流動異常の発生等を設定し、モデル全体の計算を実行する。各分流利器の分流比を変えることで、任意の段および相で、任意の大きさの液流動異常発生を模擬する。なお、異常液発生方向の分流がゼロとなるように設定すれば、正常な液流動状態の場合のモデルとして機能する。

Fig. 6に、以上のモデルで計算した正常な流動状態の場合の定常状態の濃度プロファイルを示す。Fig. 6には、同条件での既存コードMIXSETによる計算結果を合わせて示す。両者の結果はよく一致しており、抽出平衡計算のロジックが要素モデルに正しく搭載されていることがわかる。以上を確認後、以降に述べる液流動異常発生時の計算を行った。なお、これらの計算結果については、工程全体、各段および要素モデル周りで物質収支が保たれていること、また、各段混合部の有機相/水相濃度が適用した平衡関係式通りになっていることを確かめ、Fig. 4の例で示したようなモデル通りの計算がコード内部で行われていることを確認した。

ソフトウェアはObject DPS(㈱日科技研)を用いている。なお、本コードの体系は他の解析ニーズも考慮して作成したものであるが、これらについては既報に詳しい⁽³⁾⁽⁴⁾。

IV. 解析結果

1. エントレインメント発生の影響

(1) 工程外へのエントレインメントの発生

ウラン逆抽出工程でエントレインメントが発生している状況をFig. 7に示す。Fig. 7では、工程の両端段から工程外へ流出するエントレインメントは、有機相入口段での有機相エントレインメント発生(段No.12から左側方向)および水相入口段での水相エントレインメント発生(段No.1から右側方向)である。このような発生では、工程両端から出てくる水相、有機相流が他相のエントレインメント成分を含むので、引き続き工程への影響を避けるため、両相を分離するとともに分離したエントレインメント成分を適切に処置する必要がある。余分な運転操作あるいは設備の増加を招く。したがって、工程端からの流出液の相分離は従来通り確保する必要がある。すなわち、両端段からの2相のエントレインメント発生のうち、工程外へ流出する相のエントレインメント発生(工程全体で2ケース)については、濃度プロファイルへの影響が設計上許容する範囲内であっても避ける必要がある。

(2) 解析条件

Fig. 8に解析対象工程を示す。12段のウラン逆抽出工程であり、工程内部全箇所での発生を考慮する。発生パターンは、発生なし、有機相のみ発生、水相のみ発生、両相発生(4ケースである(両端段についても工程内部への発生については対象としている))。エントレインメント発生程度のパラメータとして、エントレインメント成分流量(Fig. 8中で逆流する流量)の正常時供給流量に対する割合

Table 1 Elemental models

Symbol ^{*)}	Function
■	Calculate mass balance
Ⓔ	Calculate equilibrium concentration
◎	Split mass flowrate
●	Join mass flowrate

*) Symbols are used in Fig. 3, 4, and 5

Fig. 5 Structure of developed code to calculate concentration profile with abnormal flow

をとり、10, 5, 1%とした(以下、この割合をエントレインメント発生率という)。以上でTable 2に示す8ケースのフローシート条件で定常状態の濃度プロファイルを計算

した。フローシート条件は、有機相出口ウラン濃度が0.01 g/l(逆抽出工程での一般的な値)から、1 g/lのオーダーの範囲になるよう、各条件を変化させている。

Fig. 6 Comparison of concentration profile without abnormal flow between by MIXSET and developed code

Fig. 7 Schematic process diagram with entrainment in every stage

Fig. 8 Schematic process diagram with entrainment for evaluation

Table 2 Flowsheet conditions for entrainment occurrence

Case	Organic flowrate Aqueous flowrate	U in organic feed (g/l)	HNO ₃ in organic feed (mol/l)	HNO ₃ in aqueous feed (mol/l)	Temperature (°C)	U in organic exit with no entrainment (g/l)
Case 1	1.10	40.0	0.025	0.020	25	1.530E+00
Case 2	1.06	↑	↑	↑	↑	3.038E-01
Case 3	1.05	↑	↑	↑	↑	1.032E-02
Case 4	1.10	34.4	↑	↑	↑	1.293E-02
Case 5	1.18	40.0	↑	↑	35	3.045E-01
Case 6	1.17	↑	↑	↑	35	9.023E-03
Case 7	1.10	50.8	↑	↑	35	8.684E-03
Case 8	↑	40.0	↑	0.055	35	8.294E-03

なお、抽出工程の設計では、運転条件の変動やある程度の外乱を見込み、それらによる濃度変化を考慮したフローシートおよび段数とする。そこで、影響の比較対象として、工程への供給流量の制御精度をとりあげ、その濃度プロファイルに与える影響を計算した。制御精度としては±5%を想定した。これは、例えば、PUREX抽出工程でかなり良好な制御が必要な給液機器で採用している値である⁽⁶⁾。ウラン逆抽出工程の目的は、ウランを有機相から水相に回収することであり、有機相出口ウラン濃度の増加が好ましくない。そこで、Table 2の各条件でエントレインメント発生がない場合において、有機相、水相供給流量が有機相出口ウラン濃度を増加させる方向に5%単独および重複して変化する場合の、定常状態の濃度プロファイルを計算した。

(3) 解析結果

Fig. 9 に、有機相ウラン濃度プロファイルの変化を

Table 2 ケース 1 の例で示す。エントレインメント発生率が10%の場合であり、流量制御精度に起因する変化も合わせて示す。エントレインメントの発生は有機相出口段ウラン濃度(段 No. 1)の増加を招くことがわかる。これはウラン逆抽出工程では好ましくない変化である。しかしながら、その増加程度は流量制御精度(±5%)によるものより小さい。両者の影響の違いを比較するため、Fig. 10 に、有機相出口段ウラン濃度の正常時からの増加量を各ケースについて示す。エントレインメント発生率は10、5%で両相発生の場合である。まず、発生に伴う濃度増加のオーダーは全ケースで同じであり、フローシートによる違いはみられない。そして、今回計算した両相10%までの発生の影響は、全ケースで、流量制御精度(±5%)に起因する変化に比べおよそ1桁程度小さい。両相5%発生の影響は、両相10%発生時に比べさらに半分程度になる。

Fig. 11 に、有機相出口段ウラン濃度の正常時からの増

Fig. 9 Transition of U concentration profile in organic due to entrainment occurrence and flowrate control precision

加量のエントレインメント発生率に対する変化を、Table 2 ケース 1 の例で示す。正常時からの濃度増加はエントレインメント発生率に伴い単調に大きくなる。有機相、水相での発生に伴う濃度増加はほぼ同程度であり、相による影響の違いはみられない。両相発生時の増加量は、見掛け上、各相の影響を加算した程度になっている。遠心抽出器における従来制限領域(ほぼ 1% 以下)での増加量は、流量制御精度($\pm 5\%$)に起因するものよりも極めて小さい(例えば、両相 1% 発生時の増加量は、流量制御精度が重複した場合の増加量の $1/200$ のオーダーである)。なお、以上は各ケースについて認められた。

2. オーバーフロー発生の影響

Fig. 12 に、オーバーフロー発生状況をエントレインメント発生と比較して模式的に示す。有機相入口側方向への発生(図で左側方向)を例としている。ここで、異常流の相と発生方向に着目すると、オーバーフロー流中の水相については、流路は異なるが水相プロセス流と同方向(図で左

側方向)に流れる。したがって、混合部で平衡関係が保たれていれば濃度プロファイルの乱れは生じない。一方、オーバーフロー流中の有機相については有機相プロセス流(図で右側方向)に対して逆方向に流れ、これは、異常流が流出する流路は異なるが、有機相エントレインメント発生の場合(異常流が図で右側方向に流れる)と同じである。したがって、両者の混合部の平衡関係が同じであれば、濃度プロファイルに与える影響は有機相エントレインメント発生の場合と同じである。同様な議論から、水相入口側方向へのオーバーフロー流の発生は、水相エントレインメント発生の場合と同じである。同一オーバーフロー配管中を両相が同時に逆方向に流れるという状況は起こり得ないが、この場合は両相エントレインメント発生の場合が保守的な評価となる。すなわち、オーバーフローおよびエントレインメントの発生は、液の一部が工程内を逆流する事象であり、濃度プロファイルを変化させる要因としては同質である。

以上の議論より、オーバーフロー発生の濃度プロファイ

Fig. 10 Increase of U concentration at organic exit due to entrainment occurrence and flowrate control precision

Fig. 11 Relation between increase of U concentration at organic exit and magnitude of entrainment occurrence

ルへの影響はFig.9~11でみることができ、エントレインメント発生の場合と同様なことがいえる。この場合、オーバーフロー流量の正常時供給流量に対する割合がエントレインメント発生率に相当する。

V. 考 察

1. エントレインメントおよびオーバーフロー発生制限の緩和

流量制御精度(有機相, 水相供給流量の有機相出口ウラン濃度を増加させる方向への変化率)をパラメータとして正常な流動状態の場合の濃度プロファイルを計算し、エントレインメントあるいはオーバーフローが両相1%発生時に相当する濃度増加を生じる流量制御制度を求めると、およそ0.1%程度となる。一方、通常の工学試験では、0.1%程度のレベルの厳密な流量制御は行われない。すなわち、1%程度までのエントレインメントあるいはオーバーフロー発生の濃度プロファイルへの影響は、通常の工学試験では、試験条件のバラツキに起因する影響に隠れて検出できないことになる。したがって、従来の発生制限の解釈としては、通常の工学的な試験結果をもとにしたフローシート設計の体系においては、1%程度までの発生の影響を考慮せずフローシートを設計しても工学的には問題はなかった、ということができる。このことは逆に、必ずしもエントレインメントあるいはオーバーフロー発生の上限を1%程度に抑える必然性はないことを示唆している。すなわ

Fig. 12 Comparison of liquid behavior between overflow and entrainment occurrence

ち、種々の運転条件の変動を考慮したフローシートと段数との関係の中でエントレインメントおよびオーバーフローの発生上限を設定する、という考え方も成立することになる。

例えば、解析対象としたウラン逆抽出工程では、今回計算した10%程度までのエントレインメントおよびオーバーフロー発生時の濃度プロファイルへの影響は、一般的な流量制御精度の影響より1桁程度小さい。一方、抽出工程のフローシートおよび段数の設計においては、供給流量の制御精度に起因する流量変動のほか、供給液中の成分濃度や液温度等、様々な運転条件の変動を考慮して製品仕様を維持できるようにするとともに、通常、数段の余裕段を設ける。したがって、工程全体へのインパクトが比較的小さい状態で、抽出装置のエントレインメントやオーバーフローの発生を従来より許容できると考えられる。この場合、発生の影響が工程の段数を増やすほど大きくなければ、工程の段数を維持しつつこれらの発生を許容することになる。

以上の考え方の試算例をFig.13に示す。図は有機相ウラン濃度プロファイルである。●印は、図上方に示す条件での濃度プロファイルであり、ここでは設計定格条件とみなす○印は、●印の状態から、2つの供給流量(水相、有機相)が有機相出口ウラン濃度を増加させる方向に2.5%重複して変動した場合であり、ここでは、運転条件の変動を考慮した設計フローシートにおける濃度プロファイルとみなす(○印の計算では供給流量の変動幅を2.5%とし、これまでの計算におけるケース(5.0%)よりも、濃度変動幅を保守的に(小さく)見積もっている)。ここで、例えば、出口濃度仕様を0.1g/lとすると、設計フローシートにおける必要段数は12段となる(余裕段を考慮しない場合)。この状態から、両相でエントレインメントあるいはオーバー

Fig. 13 Example of flowsheet study with expanding restriction of abnormal flow occurrence

フローが全段(工程外への発生は除く)で5% および10%発生した場合の濃度プロファイルを、おのおの□, △印で示

す。図より、両相で5%発生の場合は、段数を増やすことなくスペックを維持できることになる。両相で10%発生の場合は段数を増やす必要があるが、その影響は濃度プロファイルの傾きから1段程度と見積もられる(以上は余裕段を考慮しない場合であるが、余裕段を考慮すると10%発生の場合でも段数を維持できると考えられる)。なお、詳細には、想定する個々のフローシート条件で計算する必要がある。

2. 抽出装置設計の柔軟性の向上

以上の考え方は、抽出装置の側からみると、エントレインメントやオーバーフローの発生に係わりなく設計段効率が維持できる領域を、装置の運転可能な領域として捉えることになる。このことは、装置仕様の採用できるオプションが広がるという意味で、従来よりも柔軟に抽出装置の設計が行える可能性をもたらす。

例えば、エントレインメントの発生仕様は満足しているがオーバーフロー発生を抑制する必要がある遠心抽出器を考える。ローターの相分離能力を低下させないでオーバーフロー発生を抑制するには、混合部ギャップ(ローターとハウジング間ギャップ)の拡大、抽出器長さ方向の延長、抽出器全体の大型化などがある(いずれも、混合部体積の増加による混合部液位の低下対策である。ただし、混合部ギャップの拡大は、段効率の低下を招くので限界がある)。しかしながら、いずれの場合も装置サイズが大きくなり、コンパクトであるという遠心抽出器のメリットを損なうことになる。このような場合、詳細にはプラント個々の設計条件によりケースバイケースであるが、例えば、オーバーフロー発生仕様の緩和により抽出工程の段数が若干増えるとしても、装置サイズの大型化を避ける方がプラント全体としてはメリットが大きい、といった場合もあるであろう。このように、従来は抽出装置の側のみで対応していた事項に対して、対応できるオプションが増えることになる。

エントレインメント発生についても同様である。例えば、遠心抽出器のエントレインメント発生の特性は、抽出器仕様のはとんどの要素(せき仕様、回転数、ローター直径、有効分離長など)に依存し、さらに、同一構造の抽出器に対しても、供給流量、有機相と水相の流量比や密度比等多くの液性パラメータに依存する。また、コンパクトで複雑な構造の装置内を流体が高速で回転、流動するので、実験時の現実的な制約等から、エントレインメント発生の境界条件を精度よく求めるには限界がある。したがって、エントレインメント発生に関しては従来、保守的に大きな設計裕度を採らざるを得なかったが、フローシート設計との関係で発生上限を柔軟に設定できれば、エントレインメント発生の抑制が装置設計上困難な場合は、設計および性能確認作業等の負荷は軽減する。なお、エントレインメント発生制限を緩和した場合は、同一の処理能力(装置への供給

流量)に対して装置のサイズは若干小型化する。

エントレインメントやオーバーフロー発生を抑制する上での抽出装置設計上の負荷は、一般的には処理能力が大きくなるにつれて大きくなる。したがって、エントレインメントおよびオーバーフロー発生制限の緩和は、今後、大処理能力の遠心抽出器を設計する際には、特に留意すべきオプションになると考えられる。

3. 今後の課題

(1) 検討事項

エントレインメントおよびオーバーフロー発生制限の緩和を実際の設計に反映するための今後の検討事項を示す。従来、抽出装置単機の運転特性試験では、エントレインメントやオーバーフローが発生する境界条件までの運転特性には細心の注意が払われてきたが、そこまでを運転可能領域とする前提のため、それを越えた領域のデータにはあまり関心が払われてこなかった。しかしながら、今後は、これらの発生程度と抽出装置の運転条件との関係を把握することが重要となる。

また、エントレインメントやオーバーフローが発生する条件下での単機の抽出平衡データを採取し、濃度の平衡関係を確認することが重要となる。これは、今回の検討では、異常流発生および正常時の場合について同じ分配係数の関係式を用いているので、正常な場合の段効率がどの程度の異常流発生まで維持されるかを実験的に確認するためである。

(2) 段効率への影響の考察

異常流発生時の段効率の低下について定性的に考察する。異常流発生が段効率に影響を与える因子として、混合部での攪拌条件および液滞留時間が考えられる。前者については、ミキサセトラの攪拌翼や遠心抽出器ローターの駆動部は通常、定格負荷に対してある程度の余裕を持って設計されるので、同設計余裕範囲内の混合部流量の増加であれば、攪拌能力が低下する可能性は小さい。後者については、発生制限の緩和は、同一サイズの抽出装置に対する運転可能供給流量の増加、同一供給流量に対する装置サイズの小型化と、いずれも混合部液滞留時間を減少させるので、両相の接触時間の減少による段効率の低下が考えられる。そこで、ここでは、混合部液滞留時間の減少による段効率の影響を考察する。

この影響の考察には、段効率に対する混合部での液滞留時間の依存性が参考になる。このような関係に関する系統的な研究データは少ないが、Kuznetsovらは、遠心抽出器について段効率の滞留時間依存性を報告している⁽⁷⁾。彼らのウラン逆抽出工程での依存性のグラフによると、液滞留時間とともに段効率は減少するが、およそ1s程度まではほぼ段効率90%以上を維持しており、以降、次第に低下が激しくなる。このデータをもとに、異常流発生が液滞留

時間に与える影響のオーダーを推測してみる。彼らのグラフで図上からデータを読み取り近似式を求めると、以下の式でフィティングできる。

$$Ef = 11.806t / (1 + 11.806t)$$

ここで、 Ef ：段効率

$t(s)$ ：滞留時間

一方、通常時の遠心抽出器の液滞留時間については各国で多くの報告があり、ほぼ数秒程度である。これは、以上の式からおおむね段効率95%以上の領域(例えば $t=2$ の場合で $Ef \approx 0.959$)に相当し妥当な範囲である。以上の領域で異常流が10%程度まで発生した場合、混合部液ホールドアップ量が変わらないとすると、液滞留時間はおよそ90%まで減少するが、この場合の段効率は、発生がない場合と比べてほとんど変わらない(例えば $t=1.82(2/1.1)$ の場合で $Ef \approx 0.956$)。また、装置への供給流量の増加に伴い、一方で混合部液ホールドアップ量も増えるので、以上の変化はさらに小さくなる。以上より、エントレインメントやオーバーフローが10%程度まで発生した場合の段効率への影響としては、工程设计時に想定した段効率から著しく低下する可能性は少ないと考えられる。

VI. 結 言

PUREX法再処理の抽出工程を対象に、液の一部が工程内で逆流する事象が発生する場合の濃度プロファイルを解析する計算コードを開発した。計算コードでは、正常な場合の多段抽出工程計算に、発生事象に対応した液の分岐や合流の関係式を加え、それらの周り、各段および工程全体について物質収支をとることで濃度プロファイルを求めた。また、ウラン逆抽出工程を対象として、エントレインメントおよびオーバーフローの工程内部での発生が濃度プロファイルへ与える影響を解析し、以下の知見が得られた。

- (1) 工程内部でのエントレインメントおよびオーバーフローの発生は、有機相出口ウラン濃度の正常時からの増加を招き、発生の程度、発生台数に伴い濃度増加量は大きくなる。有機相、水相での発生による濃度増加量はほぼ同程度であり、相による顕著な違いはみられない。また、発生による濃度増加量のオーダーは、有機相出口ウラン濃度が $0.01 \sim 1 \text{ g/l}$ の範囲では、フローシートによる顕著な違いはみられない。

- (2) 両相10%までの工程内部でのエントレインメントおよびオーバーフローの発生に伴う、有機相出口ウラン濃度の正常時からの増加量は、工程供給流量制御精度 $\pm 5\%$ に起因する濃度増加量に比べ、およそ1桁程度小さい。

- (3) 遠心抽出器における従来のエントレインメント発生制限領域(およそ1%以下)での、有機相出口ウラン濃度の正常時からの濃度増加量は、工学的にはほとんど無視できる量である。

以上より、従来、相分離能力の十分な確保を前提として抽出装置や工程の設計、運転が行われてきたが、ウラン逆抽出工程においては、工程内部でのエントレインメントやオーバーフロー発生の工程全体へのインパクトは比較的小さく、これらのある程度の発生を前提とした工程の運転や設計が行える可能性が示された。このことは、抽出工程や抽出装置に対して、従来よりも柔軟な設計や運転対応をもたらす。

今後は、従来注目されてこなかった、エントレインメントやオーバーフロー発生領域での濃度平衡データの取得、ウラン逆抽出工程以外の工程についての解析が課題となる。なお、共除染工程の解析にあたっては、核分裂生成物の除染係数のスベックも考慮し、核分裂生成物の抽出挙動も合わせて評価する必要がある。

終わりに、本研究を遂行するにあたり、Object DPSによる解析等において多大な協力を頂いた藤川克巳氏(原子力システム㈱)、有益な助言を頂いた五十嵐 幸氏(核燃料サイクル開発機構)に厚く謝意を表します。

— 参 考 文 献 —

- (1) 例えば、Eergeonneau, Ph., *et al.* : *Proc. ISEC '77*, (1977)等。
- (2) Jenkins, J.A., *et al.* : *Proc. ISEC '93*, (1993)。
- (3) 上田吉徳, 五十嵐 幸 : ケミカルエンジニアリング, 43(3, 4), (1998)。
- (4) Ueda, Y., Igarashi, M. : *Proc. RECOD'98*, Vol.3, p.789 (1998)。
- (5) 権田浩三 : *PNCT* 841-77-60, (1977)。
- (6) 荻野英樹他 : 原子力学会「1997春の年会」要旨集, K 5, (1997)。
- (7) Kuznetsov, G.I., *et al.* : *Proc. RECOD'91*, Vol.2, p.770 (1991)。