



## 充填層固液抽出における脈動効果

|       |                                                                                                                                                                   |
|-------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| メタデータ | <p>言語: Japanese</p> <p>出版者: 室蘭工業大学</p> <p>公開日: 2014-07-29</p> <p>キーワード (Ja):</p> <p>キーワード (En):</p> <p>作成者: 秋吉, 亮, 内田, 晃悦, 杉田, 治八郎</p> <p>メールアドレス:</p> <p>所属:</p> |
| URL   | <p><a href="http://hdl.handle.net/10258/3732">http://hdl.handle.net/10258/3732</a></p>                                                                            |

# 充填層固液抽出における脈動効果

秋 吉 亮・内 田 晃 悦・杉 田 治八郎

## Effect of Pulsation on Solid-Liquid Extraction in Packed Bed

Makoto Akiyoshi, Koetsu Uchida and Jihachiro Sugita

### Abstract

In order to study the effect of pulsation on solid-liquid extraction, the extraction of benzoic acid-paraffin spheres was examined in packed bed by using water as solvent in the range  $3.12 < Re < 111$ ,  $0.16 < a < 1.08$  and  $0.133 < f < 0.800$ .

The results obtained were as follows :

- 1) The effect of solid-liquid extraction in pulse flow increased by about 1.5–2.0 times in comparison with that of steady flow.
- 2) The following correlations were observed between the mass transfer coefficient  $\bar{k}_L$ , the amplitude  $a$  and the frequency  $f$ .

$$\text{at } a \leq 0.33: \bar{k}_L \propto (a \cdot f)^{0.01}$$

$$\text{at } a \geq 0.52, \text{ Rep} \leq 32: \bar{k}_L \propto a^{0.61} \cdot f^{0.21}$$

$$\text{at } a \geq 0.52, \text{ Rep} > 32: \bar{k}_L \propto (a \cdot f)^0$$

- 3) It is considered that when the steady flow is accompanied by the pulsation, turbulence is caused by virtue of the pressure arised periodically out of the pulsation at the solid-liquid interface in pore of the sample sphere and so the gadiant of concentration increases and the extraction proceeds.

## 1. 緒 言

定常流れに脈動, 振動または超音波などが加えられて生ずる非定常流れ内の物質あるいは熱移動が, 定常流のみの場合に比し, 顕著に進行することが知られている。脈動流による研究はウラニウム燃料の再処理に関連した液液抽出に多く<sup>1,2,3,4)</sup>, 実用化も行われているが, 固液抽出に関するこの方面の研究はない。

本研究では, 脈動流の抽出効果および脈動特性の物質移動におよぼす影響を調べるために, 充填層を用いて安息香酸—パラフィン球状物からの安息香酸水抽出を行い, 抽出率, 物質移動  $j$  因子などで整理し, 既報の定常流中における固液抽出の結果<sup>5)</sup>と比較検討し, また脈動流中への一一般の固液系物質移動の実験式の適応性を検討した。

## 2. 実験方法

### 2. 1 実験装置

実験装置の概略を図1に示す。充填塔は内径4.0 cm、高さ43.0 cmの亚克力樹脂製のものを用いた。充填塔内に試料球300個を充填し、その上下を試料球とほぼ同径のガラス球を5 cmずつ充填し、末端効果の除去と整流を行った。供給液として、試料表面部への気泡の付着を防止するために、脱気したイオン交換水を使用した。上下2基の恒温槽で30℃に保たれた液が、必要に応じてヘッド差あるいは脈動定量ポンプにより、また両方を同時に使用し、充填塔に上昇流で送入される。流動液の濃度は試料部の前後の流路に電極を挿入し電導度法により測定した。表1に実験条件を示した。

### 2. 2 試料

安息香酸（和光純薬工業製，1級）とパラフィン（和光純薬工業製，1級，m.p.=60～62℃）を重量比1：1で熔融混合し、直径約0.6 cmの球状物に成型して使用した。

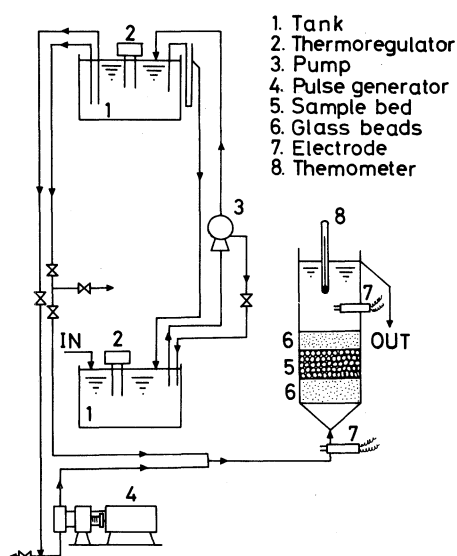


表1. 実験条件

|                            |               |
|----------------------------|---------------|
| $a[\text{cm}]$             | 0.16 ~ 1.08   |
| $f[\text{sec}^{-1}]$       | 0.133 ~ 0.800 |
| $d_p[\text{cm}]$           | 0.603 ~ 0.612 |
| $H[\text{cm}]$             | 4.83 ~ 5.25   |
| $\epsilon[-]$              | 0.420 ~ 0.466 |
| $\bar{u}_f[\text{cm/sec}]$ | 0.0427 ~ 1.51 |
| $\bar{u}_s[\text{cm/sec}]$ | 0 ~ 1.04      |
| $Re[-]$                    | 3.12 ~ 111    |
| $Re_s[-]$                  | 0 ~ 76.6      |
| $Re_p[-]$                  | 3.12 ~ 44.4   |

図1 実験装置図

## 2. 3 実験値の整理法

### 2. 3. 1 空塔速度

脈動流中の時間平均流量  $\bar{q}_f$  は、脈動流中の定常流分の時間平均流量  $\bar{q}_s$  と脈動分の容積速度との和で示される。また脈動分の容積速度は脈動数  $f$  と容積振幅  $a_v$  の積で示され<sup>6)</sup>、 $a_v$  は塔内での脈動 1 周期当りの全変位をあらわす。したがって、 $\bar{q}_f$  は次式で示される。

$$\bar{q}_f = \bar{q}_s + a_v \cdot f \quad (1)$$

空塔速度を  $\bar{u}_f$ 、脈動流中の定常流分の流速を  $\bar{u}_s$ 、塔内線分振幅（以後、単に振幅と記す）を  $a$  とすると、式（1）は次式のように書きあらためられる。

$$\bar{u}_f = \bar{u}_s + a \cdot f \quad (2)$$

本実験で使用した空塔速度は式（2）で示される。

### 2. 3. 2 積算抽出率

実験で得られた安息香酸濃度の時間的变化図を用いて図積分法で算出した。

微小時間  $\Delta\theta_i$  における抽出液の平均濃度を  $c_i$  とすると、 $\Delta\theta_i$  での抽出量  $M_i$  は  $\bar{q}_f \cdot c_i \cdot \Delta\theta_i$  に等しく、積算抽出量  $M_k$  は  $\sum_{i=1}^k M_i$  で表わされるので、積算抽出率  $E$  は次式により算出できる。

$$E = M_k / M_o \times 100 \quad (3)$$

ここで  $M_o$  は実験開始時の試料中の全安息香酸量である。

### 2. 3. 3 接触表面後退距離

試料球を切断し、メチルレッド指示薬により安息香酸の分布状態を観察すると、安息香酸は放射状に分布していることが認められた。このことから抽出が進み試料表面部から安息香酸が抽出され、細孔を形成する。杉田<sup>7)</sup>は細孔の形状として円柱および円錐を仮定したが、本研究では円錐状細孔を採用し、抽出の進行に伴って細孔の試料表面から内部に固液接触界面が後退する距離  $x$  を求めた。

試料 1 個当りの抽出量  $M_s$  は次式で表わされる。

$$M_s = \left\{ \frac{\pi}{6} d_p^3 - \frac{\pi}{6} (d_p - 2x)^3 \right\} \cdot P \cdot \rho_{BA} \quad (4)$$

ここで  $d_p$ ：試料径、 $\rho_{BA}$ ：固体安息香酸密度、 $P$ ：細孔率である。式（4）を展開すると

$$x^3 - \frac{3}{2} d_p x^2 + \frac{3}{4} d_p^2 x - \frac{3M_s}{4\pi P \rho_{BA}} = 0 \quad (5)$$

この式から試行錯誤法で  $x$  を求めることができる。

#### 2. 3. 4 平均固液接触表面積

固液接触表面積は実験開始から終了まで徐々に変化するが、 $x$  は本実験範囲では非常に小さく<sup>9)</sup>、任意時間での接触表面積  $\bar{s}$  はその時の  $x$  の中間値  $x/2$  後退した時点の値を用いると

$$\bar{s} = \pi (d_p - x)^2 \cdot P \quad (6)$$

また充填層単位体積当りの平均固液接触表面積  $\bar{a}_p$  は次式で求まる。

$$\bar{a}_p = \frac{N \cdot \bar{s}}{A_c \cdot H} \quad (7)$$

ここで  $N$  : 充填試料個数,  $A_c$  : 充填層断面積,  $H$  : 充填層高である。

#### 2. 3. 5 物質移動係数および物質移動 $j_M$ 因子

従来充填層における物質移動に関する実験結果は、物質移動  $j_M$  因子,  $Sh$  数,  $Re$  数などの無次元項からなる簡単な式で整理されている。そこで本研究においても同様の整理を行い、物質移動係数  $\bar{k}_L$  には次式で示すものを用いた。

いま充填層の層高  $dH$  部分の物質移動を考えると、単位時間当りの物質移動量  $dN$  は、1) 推進力は粒子を取り囲む流体境膜部分の濃度勾配である、2) 固液接触界面における流体は飽和状態にある、3) 定常状態にある、の仮定のもとで

$$dN' = \bar{k}_L \cdot \bar{a}_p \cdot A_c \cdot dH (c_s - c) = \bar{u}_f \cdot A_c \cdot dC \quad (8)$$

で表示することができる。

この式を層入口 (添字 1) および層出口 (2) 間で積分すると、 $c_1 = 0$  故

$$\bar{k}_L = \frac{\bar{u}_f}{a_p \cdot H} \ln \frac{C_s}{C_s - C_2} \quad (9)$$

また物質移動  $j_M$  因子については Chilton-Colburn<sup>9)</sup> の定義した次式を用いた。

$$j_M = St'_t \cdot Sc_c^{2/3} = \frac{\bar{k}_L}{\bar{u}_f} \left( \frac{\mu}{\rho D} \right)^{2/3} = \frac{\bar{k}_L}{\bar{u}_f} \left( \frac{\nu}{D} \right)^{2/3} \quad (10)$$

ここで  $D$  : 拡散係数,  $\nu$  : 動粘度である。

### 2. 3. 6 レイノルズ数

本研究で使用したレイノルズ数は粒径基準とし、流速のとり方により3種を用いた。空塔速度  $\bar{u}_f$  を用いた時

$$Re = \frac{d_p \bar{u}_f \rho}{\mu} \quad (11)$$

脈動流中の定常流の速度  $\bar{u}_s$  を用いた時

$$Re_s = \frac{d_p \bar{u}_s \rho}{\mu} \quad (12)$$

脈動の線速度  $af$  を用いた時

$$Re_p = \frac{d_p af \rho}{\mu} \quad (13)$$

### 2. 3. 7 その他の数値

動粘度  $\nu$  は流動液濃度が非常に希薄であるため純水の値<sup>9)</sup> で近似し、飽和濃度  $c_s$  は文献値<sup>9)</sup> を用いた。安息香酸-水系の拡散係数  $D$  は Steinberger<sup>10)</sup> の  $(9.084 \pm 0.028) \times 10^{-6}$  cm/sec (25°C) の値を Wilke<sup>11)</sup> の方法で温度補正した数値を使用した。流動液濃度  $c_2$  については抽出開始から終了までの濃度の平均値を用いた。細孔率  $P$  は試料球に占める安息香酸の体積比より求め、 $P=0.419$  を使用した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1 脈動の抽出率に与える影響

定常流、脈動および脈動流（定常流に脈動を付加させた流れを以後このように呼ぶ）の3種の異なった流れによる抽出を行い、抽出率と抽出時間の関係を図2に示す。図からわかるように、脈動の抽出におよぼす影響は大きく、定常流の場合より脈動の方が高い抽出率が得られ、脈動流ではさらに高い抽出率が得られた。抽出率曲線の傾きに注目すると、抽出初期では脈動流の傾きは非常に大きく、定常流ではそれより小さい。抽出が進むにつれて流れの影響が初期よりさらに大きくなり、定常流では抽出率曲線の傾きは非常にゆるやかになり、脈動、脈動流では定常流に比べて極めて大きい。このように抽出率に与える脈動の効果は大きいですが、これは脈動によって流れに瞬間的な圧力の変動が加えられ、固体試料中の抽剤と可溶性成分との界面を乱されるため定常流よりも物質移動が促進されると考えられる。抽出初期においてはその界面が試料球表面ごく近傍にあるため、流れによる差異は小さいが、抽出が進むにつれて固液界

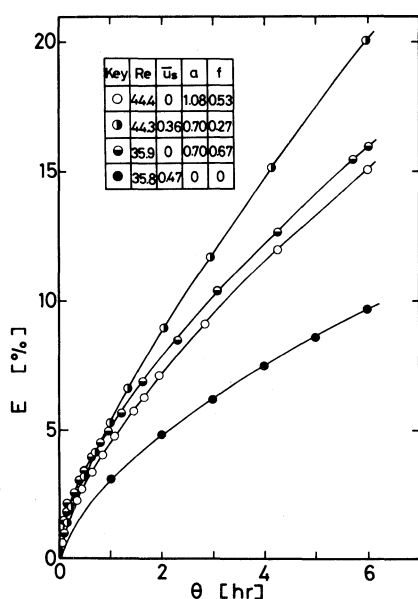


図2 抽出率曲線

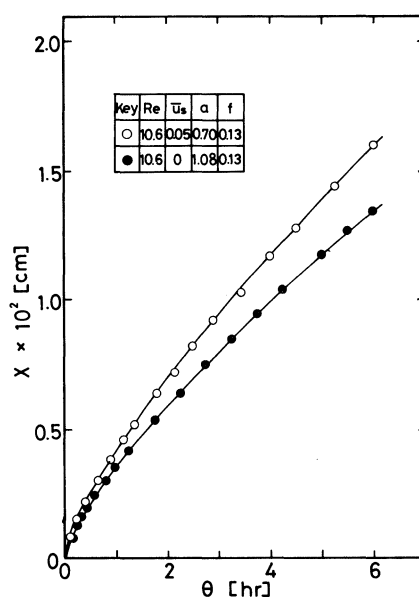


図3 抽出時間と後退距離の関係

面が試料中心へと後退するために定常流では細孔内で分子拡散抵抗を大きく受けるので抽出率曲線はゆるやかになる。一方脈動流では脈動による変動圧力の効果が細孔内にも影響をおよぼし、分子拡散抵抗が小さくなるために定常流に比べて抽出が進むと考えられる。

### 3. 2 接触表面後退距離と固液接触表面積

注意の抽出時間までの抽出量から試料球細孔内の固液接触界面の後退距離を計算し、その結果を図3に示す。脈動流中の後退距離が脈動のみの場合より大きく、その距離はおよそ  $10^{-2}$  cm のオーダーであり、定常流<sup>5)</sup>の  $10^{-3}$  cm より大きかった。後退距離は非常に小さく、接触表面積を算出する際に2. 3. 4項の方法で近似できる。固液接触表面積と抽出時間の関係を図4に示す。接触表面が抽出時間と共に減少していくことがわかる。

### 3. 3 物質移動係数と空塔速度の関係

物質移動係数  $\bar{k}_L$  と空塔速度  $\bar{u}_f$  の関係を図5に示す。図より脈動流中の固液抽出の  $\bar{k}_L$  は  $\bar{u}_f$  にほとんど影響されないでほぼ一定となる。定常流<sup>5)</sup>では  $\bar{u}_f > 3 \times 10^{-3}$  cm/sec の時、脈動流の場合と同じく  $\bar{k}_L$  は  $\bar{u}_f$  に無関係であった。これについての検討をあとで詳述する。 $\bar{k}_L$  値は流れの種類に関係し、脈動脈では  $2.30 \times 10^{-4}$  cm/sec、定常流で  $1.0 \times 10^{-4}$  cm/sec となり、脈動流中では定常流中の2倍以上の値となり、脈動流は抽出に効果のあることを示している。

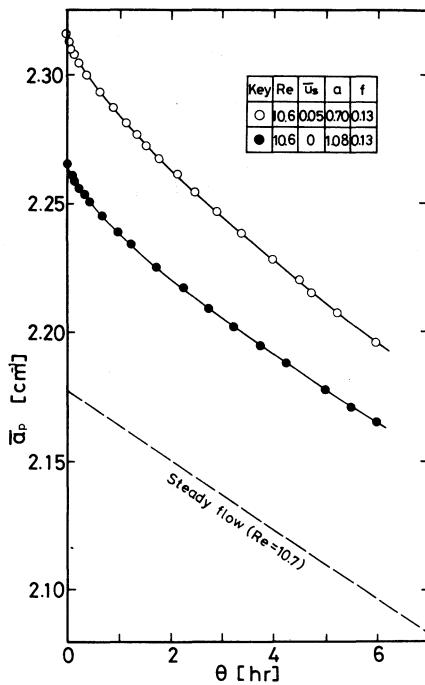


図4 固液接触表面積の時間的变化

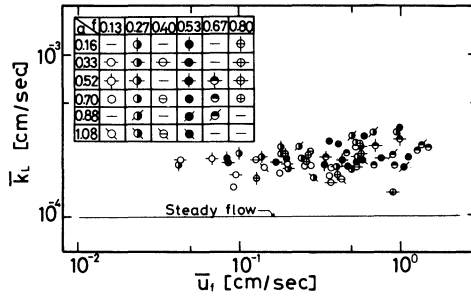


図5 空塔速度と物質移動係数の関係

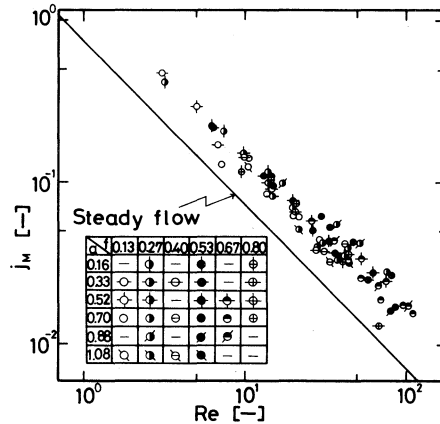


図6 物質移動 \$j\_M\$ 因子におよぼす \$Re\$ 数の影響

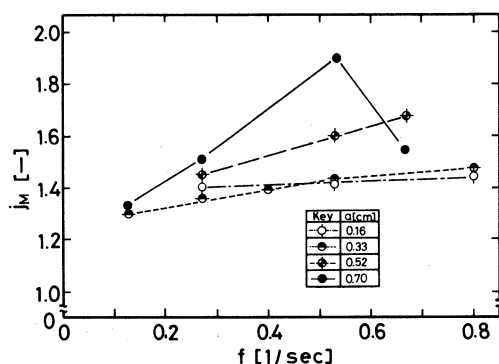
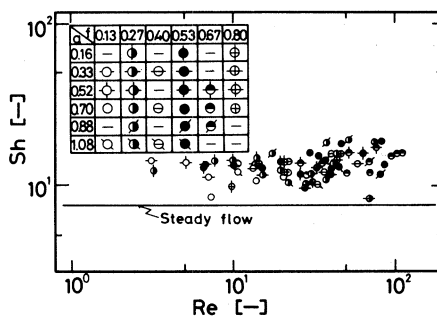
### 3・4 \$j\_M\$ 因子と \$Re\$ 数の関係

\$j\_M\$ 因子と \$Re\$ 数の関係を図6に示す。図から脈動流の \$j\_M\$ は定常流の場合と同じく \$Re^{-1.0}\$ に比例することがわかる。\$j\_M \propto Re^{-1.0}\$ と式(10)から

$$\bar{k}_L \propto \frac{D^{2/3} \cdot \bar{u}_f^0 \nu^{1/3}}{d_p} \quad (14)$$

が得られ、\$\bar{k}\_L\$ は \$\bar{u}\_f\$ に無関係となり、3.3項の結果と一致する。脈動流の \$j\_M\$ 値は定常流の1.5~2.5倍大きく、\$j\_M\$ 因子と \$Re\$ 数の関係からも脈動効果の大きいことが認められる。

つぎに脈動の効果を振幅と脈動数の面から、それぞれの物質移動におよぼす影響を検討した。図6から一組の \$a\$ と \$f\$ より \$Re=1\$ の時の \$j\_M\$ 値を求め、\$a\$ をパラメータにして \$j\_M\$ と \$f\$ の関係を図示すると図7になる。脈動数の増大に対して、極大を示す場合もあるが、\$j\_M\$ 値は増加する。また振幅の影響は一様でなく、脈動数の小さい時は \$j\_M\$ 値も小さく、大きくなると増大する。振幅が \$0.70 \text{ cm}\$ となると \$f \geq 0.533 \text{ sec}^{-1}\$ では減少した。

図7 物質移動 $j_M$  因子と脈動数の関係図8  $Sh$ 数と $Re$ 数の関係

### 3. 5 $Sh$ 数と $Re$ 数の関係

物質移動現象を扱う場合、常用される整理法である  $Sh$  数と  $Re$  数の相関を本研究に試みた。 $Sh$  数としてつぎの式を用いた。

$$Sh \equiv \bar{k}_L \cdot d_p / D \quad (15)$$

ここで  $D$  は拡散係数である。その結果を図8に示す。図より  $Sh$  数は  $Re$  数にほぼ無関係に一定となって、定常流<sup>5)</sup>の結果と一致するが、その値は定常流より約2倍の大きさを示す。

### 3. 6 粒子径と塔径比による $j_M$ 因子の補正

環状路を用いた溶解実験<sup>12)</sup>から得た  $j_M$  因子と  $Re$  数の相関に対して、 $d_p$  と塔径  $D_E$  の比を考慮した補正項  $(d_p/D_E)^{-0.29}$  を用いて整理すると

$$j_M \propto Re^{-1.0} \cdot \left( \frac{d_p}{D_E} \right)^{-0.29} \quad (16)$$

を得た。

### 3. 7 既往の文献による整理

北浦<sup>13)</sup>は、一様な物質からなる単一球および充填粒子に対する振動を伴う場合の物質移動の整理を行い、城塚<sup>14)</sup>は充填層粒子を用いて脈動流中の物質移動の研究で、その効果について無次元項で整理している。ここではこれらの式の脈動流中の固液抽出への適用性について検討した。

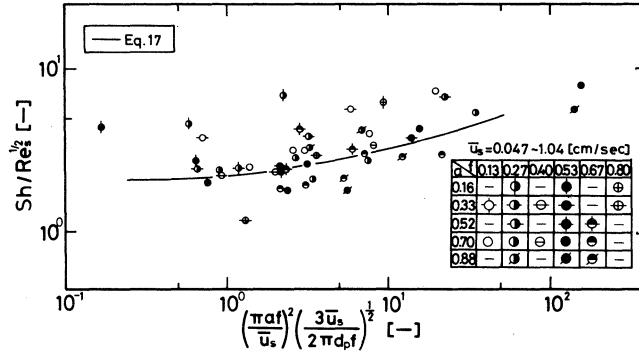


図9 脈動流中の固液抽出への式(17)の適応性の検討

### 3. 7. 1 北浦の式による整理

北浦<sup>13)</sup>は振動を伴う充填層の物質移動示数  $\Lambda = (\pi a f / \bar{u}_s)^2$  と無次元境界層厚み  $(3 \bar{u}_s / 2 \pi d_p f)^{1/2}$  の2つの無次元項で特徴づけられるとして、これらと  $Sh/Res^{1/2}$  との相関より次式を得た。

$$\frac{Sh}{Res^{1/2}} = \left[ (0.55 S_c^{1/3} \sqrt{1+f(\epsilon)})^3 + \{0.35 S_c^{1/3} \sqrt{1+f(\epsilon)}\}^3 \left( \frac{\pi a f}{\bar{u}_s} \right)^2 \sqrt{\frac{3 \bar{u}_s}{2 \pi d_p f}} \right]^{1/3} \quad (17)$$

ここで  $S_c$  はシュミット数,  $F(s) = \sqrt{1+f(\epsilon)} = \sqrt{1+17.9(1-\epsilon)^{2.45}}$ ,  $\epsilon$  は空間率である。

上式より定常流支配では

$$\frac{Sh}{Res^{1/2}} = 0.55 S_c^{1/3} \sqrt{1+f(\epsilon)} \quad (18)$$

振動流支配では

$$\frac{Sh}{Res^{1/2}} = 0.35 S_c^{1/3} \sqrt{1+f(\epsilon)} \left\{ \left( \frac{\pi a f}{\bar{u}_s} \right)^2 \sqrt{\frac{3 \bar{u}_s}{2 \pi d_p f}} \right\}^{1/3} \quad (19)$$

となる。

本研究の結果を  $Sh/Res^{1/2}$  と  $(\pi a f / \bar{u}_s)^2 (3 \bar{u}_s / 2 \pi d_p f)^{1/2}$  で図示すると図9になり、北浦の式を脈動流中の固液抽出には適用できないことがわかった。

### 3. 7. 2 城塚の式による整理

城塚<sup>14)</sup>は脈動による物質移動の促進と脈動特性の関連を明らかにするために、定常流に脈動を付加することによる  $j_M$  値の増加率と、これに影響する物理量により次元解析を行い無次元式を得ているので、本研究に同様な解析を試みたが、よい相関は得られなかった。そこで  $j_M$  値の増加率の代わりに  $j_M$  値を用い、これに影響を与える物理量は脈動数  $f$ , 振幅  $a$ , 試料径  $d_p$ , 空

塔速度  $\bar{u}_f$  および動粘度  $\nu$  であると考え、次元解析を行い次式を得た。

$$j_M = C \left( \frac{af}{\bar{u}_f} \right)^\alpha \left( \frac{af d_p}{\nu} \right)^\beta \left( \frac{d_p}{a} \right)^\gamma \quad (20)$$

各指数を求めると次のようになる。

$a \leq 0.33$  の時

$$j_M = 1.55 \left( \frac{af}{\bar{u}_f} \right)^{1.05} \left( \frac{af d_p}{\nu} \right)^{-1.04} \left( \frac{d_p}{a} \right)^0 \quad (21)$$

$a \geq 0.52, R_{ep} \leq 32$  の時

$$j_M = 0.50 \left( \frac{af}{\bar{u}_f} \right)^{0.83} \left( \frac{af d_p}{\nu} \right)^{-0.63} \left( \frac{d_p}{a} \right)^{-0.41} \quad (22)$$

$a \geq 0.52, R_{ep} > 32$  の時

$$j_M = 0.75 \left( \frac{af}{\bar{u}_f} \right)^{0.83} \left( \frac{af d_p}{\nu} \right)^{-0.83} \left( \frac{d_p}{a} \right)^0 \quad (23)$$

式 (21), (22), (23) から脈動の抽出におよぼす影響を検討した。無次元式の第1項  $(af/\bar{u}_f)$  は脈動流と脈動の線速度の比で、その指数  $\alpha$  は正の値をとり、振幅と脈動数の積が大きいくほど  $j_M$  値は大きくなる。また  $\bar{u}_f = \bar{u}_s + af$  故  $(af/\bar{u}_f)^\alpha = (\bar{u}_s/af + 1)^{-\alpha}$  となり、 $\bar{u}_s/af$ ,  $\alpha$  が1より小なる場合ほど脈動効果が大きくなる。 $a \geq 0.52$  の時その効果が大きいと言える。第2項  $(afd_p/\nu)$  は定常流に加えられた脈動のみの  $R_e$  数であり、いずれの場合も  $\beta < 0$  故  $R_{ep}$  数の増大にしたがって脈動効果が減少することを意味する。第3項  $(d_p/a)$  は試料径と脈動の振幅の比で  $a \geq 0.52, R_{ep} < 32$  の時脈動効果が出現する。

つぎに物質移動係数におよぼす空塔速度、脈動の脈動数と振幅の影響を検討すると、式(21)より

$$\bar{k}_L \propto \bar{u}_f^{-0.05} \cdot a^{0.01} \cdot f^{0.01} \quad (24)$$

となり、 $a \leq 0.33$  では  $\bar{u}_f$ ,  $a$ ,  $f$  は  $\bar{k}_L$  にほとんど影響を与えてないことがわかる。

式 (22) より

$$\bar{k}_L \propto \bar{u}_f^{0.17} \cdot a^{0.61} \cdot f^{0.21} \quad (25)$$

となり、 $a \geq 0.52, R_{ep} \leq 32$  の条件下では  $\bar{u}_f$ ,  $a$ ,  $f$  共に物質移動を左右するが、特に振幅の影響が大きい。式 (23) より

$$\bar{k}_L \propto \bar{u}_f^{0.17} \cdot a^0 \cdot f^0 \quad (26)$$

を得、 $a \geq 0.54, R_{ep} > 32$  の条件下では  $a$ ,  $f$  は影響しないが、 $\bar{u}_f$  の影響をわずかに受けることがわかる。3.3 項で  $\bar{k}_L$  は  $\bar{u}_f$  にほとんど影響されないとしたが、条件によってはわずかに影響され

ることを示している。

### 3. 8 脈動の固液抽出への作用機構

脈動流を用いた固液抽出では、定常流のみで行うよりも抽出効果の大きいことがわかった。そこで脈動固液抽出への作用機構について考える。定常流での固液抽出では固液界面と試料球外液間の濃度勾配は(1)流速の遅い時、(2)流速の速い時とでは前者では小さく、後者は大きい。一方定常流と同一流速(同一  $Re$  数)の脈動流では周期的に付加される脈動の有無により濃度勾配は異なり、(3)脈動の付加される前では定常流のみであり、(1)と同様に濃度勾配は小さく、(4)脈動の付加された時では大きく、(2)の場合よりも濃度勾配は大きいと考えられる。(4)の場合の瞬間的な線速度は大きく、これが特に濃度勾配を大きくすると考えられるが、この線速度に相当する定常流で検討したところ、抽出効果は脈動流よりも小さいことが報告されており<sup>15)</sup>、流動状態の急激な変動にもとづく乱れによるとされている。このことは本研究においても認められ、同一  $Re$  数の脈動流と定常流の場合の抽出率を比較すると、脈動流中の抽出率は抽出が進んでも高い値を得ることができる。このことから脈動流で固液抽出を行うと、定常流では抽出が進むにつれて細孔内拡散抵抗を大きく受けるのに対し、脈動による流動状態の急激な変動により固液界面が乱れ、細孔内分子拡散抵抗が小さくなると考えられる。

そこで流動状態に急激な変動を与える脈動を振幅と脈動数の二つの要素に分離し、その寄与の程度を調べるとつぎのようになる。式(24)より  $a \leq 0.33$  では  $\bar{k}_L \propto (af)^{0.01}$ 、すなわち流動状態の変動の程度を示す  $af$  が物質移動に影響を与えないということは、この程度の変動では粒子間空隙部液をはじめ、細孔内部の固液界面部にその効果がおよばないことを意味している。既往の報告によると、固定層での流体—粒子間物質移動において、その境界層は1粒子直径とほぼ等しい距離で発達、崩壊すると言われている<sup>16)</sup>。本研究の試料球は  $d_p = 0.60$  cm で、振幅が  $0.33$  cm は  $d_p$  の半分以下であり、その変動が界面におよばなかったと考えられる。振幅が大きくなると( $0.52$  cm 以上の時)、脈動の線速度  $af$  は試料球外液はもとより、細孔内固液界面部に対しても急激な変動による乱れがおよび、 $Re_p$  数が32以下では式(25)からわかるように脈動数よりも振幅が大きく寄与し、濃度勾配を大きくするために物質移動が増大すると考えられるが、 $Re_p$  数が32以上では粒子間の空隙部においては分離現象が起き、物質移動が減少したと考えられる。

## 4. 結 言

固液抽出における脈動の効果を調べるために、充填層を用いて、安息香酸—パラフィン球から安息香酸水抽出を  $Re = 3.12 \sim 111$ ,  $a = 0.16 \sim 1.08$  cm,  $f = 0.133 \sim 0.800$  sec<sup>-1</sup> の条件で行い、

次の結果が得られた。

1) 脈動流中の固液抽出は定常流の場合よりも 1.5~2.0 倍の抽出効果がある。

2) 物質移動係数  $\bar{k}_L$  と脈動の振幅  $a$ , 脈動数  $f$  の間に次の関係がある。

$$a \leq 0.33 \text{ の時, } \bar{k}_L \propto (af)^{0.01}$$

$$a \geq 0.52, Re_p \leq 32 \text{ の時, } \bar{k}_L \propto a^{0.61} \cdot f^{0.21}$$

$$a \geq 0.52, Re_p > 32 \text{ の時, } \bar{k}_L \propto (a \cdot f)^0$$

3) 定常流に脈動を加えると, 試料球の細孔内固液界面が脈動の変動圧力により急激に乱れ, 濃度勾配が大きくなり, 抽出が進むと推論された。 (昭和 56 年 5 月 20 日受理)

### 使用記号

|                                 |                |                               |                      |
|---------------------------------|----------------|-------------------------------|----------------------|
| $A_c$ : 充填層断面積                  | [ $cm^2$ ]     | $N$ : 充填粒子数                   | [—]                  |
| $a$ : 脈動の振幅                     | [ $cm$ ]       | $P$ : 細孔率                     | [—]                  |
| $\bar{a}_p$ : 充填層単位体積当りの平均接触表面積 | [ $cm^{-1}$ ]  | $\bar{q}_f$ : 脈動流の時間平均流量      | [ $cm^3/sec$ ]       |
| $c$ : 液濃度                       | [ $g/cm^3$ ]   | $\bar{q}_s$ : 脈動流中の定常流の時間平均流量 | [ $cm^3/sec$ ]       |
| $c_s$ : 飽和濃度                    | [ $g/cm^3$ ]   | $Re$ : レイノルズ数                 | [—]                  |
| $D$ : 拡散係数                      | [ $cm^2/sec$ ] | $\bar{s}$ : 接触表面積             | [ $cm^2$ ]           |
| $D_e$ : 充填層径                    | [ $cm$ ]       | $S_c$ : シュミット数                | [—]                  |
| $d_p$ : 粒子径                     | [ $cm$ ]       | $Sh$ : シャーウッド数                | [—]                  |
| $E$ : 抽出率                       | [ $\%$ ]       | $Sf$ : 修正スタントン数               | [—]                  |
| $f$ : 脈動の脈動数                    | [ $sec^{-1}$ ] | $x$ : 固液接触表面後退距離              | [ $cm$ ]             |
| $H$ : 充填層高                      | [ $cm$ ]       | $\bar{u}$ : 流速                | [ $cm/sec$ ]         |
| $j_M$ : 物質移動 $j$ 因子             | [—]            | $\epsilon$ : 空間率              | [—]                  |
| $\bar{k}_L$ : 液相物質移動係数          | [ $cm/sec$ ]   | $\theta$ : 抽出時間               | [ $sec$ ]            |
| $M_k$ : 積算抽出量                   | [ $g$ ]        | $\mu$ : 粘度                    | [ $g/cm \cdot sec$ ] |
| $M_o$ : 試料中の全安息香酸               | [ $g$ ]        | $\rho_{BA}$ : 安息香酸密度          | [ $g/cm^3$ ]         |
| $M_s$ : 試料 1 個当りの抽出量            | [ $g$ ]        | $\nu$ : 動粘度                   | [ $cm^2/sec$ ]       |

### 参 考 文 献

- 1) Coddling, J. W., Ind. Eng. Chem., 50, 145 (1958).
- 2) Sege, G. and Woodfield, F. W., Chem. Eng. Progr., 50, 396 (1954)
- 3) 城塚 正, 本田尚士, 安野武彦, 化学工学, 21, 645 (1957)
- 4) Woodfield, F. W. and Sege, G., Chem. Eng. Progr. Symposium Ser. No. 12, 50, 39 (1954)
- 5) 秋吉 亮, 白戸正美, 杉田治八郎, 室蘭工業大学研究報告 (理工編), 10, 225 (1980).
- 6) 化学工学協会編, 化学工学便覧 (丸善) (1976)
- 7) 杉田治八郎, 化学工学, 33, 994 (1969)
- 8) Chilton, T. H. and Colburn, A. P., Ind. Eng. Chem., 26, 1183 (1934)
- 9) 日本化学会編, 化学便覧 (1975)
- 10) Steinberger, R. L. and Treybal, R. F., A. I. Ch. E. Journal, 6, 227 (1960)
- 11) Wilke, C. R., Chem. Eng. Progr., 45, 218 (1949)
- 12) 秋吉 亮, 尾本行寛, 杉田治八郎, 室蘭工業大学研究報告 (理工編), 10, 235 (1980)
- 13) 北浦嘉之, 田中久弥, 上田義一, 小島紀夫, 化学工学, 33, 175 (1969)

- 14) 城塚 正, 本田尚士, 大庭敏郎, 化学工学, 22, 2 (1958)
- 15) 城塚 正, 本田尚士, 化学工学, 21, 287 (1957)
- 16) Carberry, J. J., A. I. Ch. E. Journal, 6, 460 (1960)