

## 窒素の低温蒸留による窒素15安定同位体 (<sup>15</sup>N) の分離

### Separation of Nitrogen-15 from Natural Nitrogen by Cryogenic Distillation

神 辺 貴 史\*      木 原 均\*  
KAMBE Takashi      KIHARA Hitoshi

#### 1. はじめに

現在、原子力発電の燃料として酸化燃料が使用されているが、窒化物燃料はその熱伝導性や高重金属密度を持つなど酸化燃料より優れた面があり、高速増殖炉用燃料や、長半減期のマイナーアクチノイドを核変換して処理する加速器駆動核変換システム(ADS)用燃料として使用が検討されている<sup>1)</sup>。

窒化物燃料の製造では窒素を使用するが、天然に多く存在する<sup>14</sup>Nは原子炉内で中性子により<sup>14</sup>C(半減期約5730年)となるため、大量の放射性廃棄物を発生させることになる。<sup>15</sup>Nを使用することで<sup>14</sup>Cの発生を防ぐことができる。このため、窒化物燃料の実用化には<sup>15</sup>Nの大量・安価な供給が必要であるが、これまで<sup>15</sup>Nは農業、医学などにトレーサとして利用されるのみで、少量生産(4kg/y)、高価格(数万円/g)という問題があり、窒化物燃料開発の妨げともなっていた<sup>2)</sup>。

当社は酸素の蒸留による<sup>18</sup>Oの高濃縮を工業規模で成功し市場へ供給している<sup>3)</sup>。本報では酸素同位体分離技術を応用し、窒素の蒸留による<sup>15</sup>Nの分離プロセスを検討した結果を報告する。

#### 2. 窒素蒸留法による同位体分離

同位体分離は通常分離係数が小さく、高濃度に濃縮するためには多段の分離装置が必要になる<sup>4)</sup>。今回の窒素蒸留による同位体分離においても蒸留塔を複数本接続することで連続多段蒸留とし、<sup>18</sup>O分離装置と同様にステップカスケードプロセスを採用することにした。

窒素安定同位体の天然存在比を表1に示す。窒素の安定同位体は2種類であり窒素分子は3種類である。

これまでの<sup>15</sup>Nの分離はNitrox法<sup>5)</sup>に代表される化学交換法や一酸化窒素(NO)の蒸留法により行われていた。各分離方法の比較を表2に示す。

Nitrox法は大量の硝酸(HNO<sub>3</sub>)やNOを使用することや、NO蒸留法ではNOを使用するため、毒性や

腐食性の問題があり、商業規模の大量生産には難点がある。窒素蒸留法は分離係数が小さいものの、安全性が高く大量生産のための大型化が容易である。

表1 窒素安定同位体の天然存在比

原子	原子量	存在比 (-)	分子	分子量	存在比 (-)
<sup>14</sup> N	14	0.99635	<sup>14</sup> N <sub>2</sub>	28	0.9927
<sup>15</sup> N	15	0.00365	<sup>14</sup> N <sup>15</sup> N	29	0.0073
			<sup>15</sup> N <sub>2</sub>	30	1.3 × 10 <sup>-5</sup>

表2 <sup>15</sup>N分離方法の比較

原理	化学交換法	蒸留法	
原料流体	HNO <sub>3</sub> , NO	NO	N <sub>2</sub>
分離係数	1.063	1.031	1.004
温度	300K	112K	77K
取り扱い	毒性, 腐食性	毒性, 腐食性	安全

#### 3. 分離プロセス

高濃度の<sup>15</sup>Nを得るためには、<sup>15</sup>N<sub>2</sub>を高濃度に濃縮しなければならない。原料N<sub>2</sub>に<sup>15</sup>N<sub>2</sub>はわずかしが含まれていないので、まず<sup>14</sup>N<sup>15</sup>Nを濃縮したのち同位体スクランブラで<sup>15</sup>N<sub>2</sub>を製造してこれを再度蒸留塔で濃縮することで目標濃度の<sup>15</sup>Nを得るプロセスとした。プロセスの構成を図1に示す。

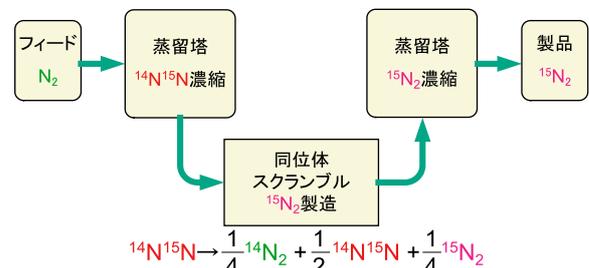


図1 分離プロセスの概要

#### 4. プロセス計算

プロセス計算は空気分離装置の設計プログラムを窒素同位体用に修正したものを使用した。この計算プログラムは多成分系における熱と物質の同時移動現象に基づき作成されており、深冷空気分離装置や<sup>18</sup>O分離

装置の設計に使用されその有効性が実証されている<sup>4)</sup>。

#### 4.1 定常計算

定常計算に当たって製作可能な蒸留塔高さを考慮して塔数を決定し、ステップカスケードを構成するようにした。また、各塔にリボイラとコンデンサを設置して各塔の圧力が低圧となるようにし、圧力上昇により分離係数が低下しないようにした。蒸留塔には規則充填物を使用することにした。同位体スクランブラには、スクランブラに導入した窒素ガスが確率的に分解、結合するものとして接続位置と流量を決定した。

製品量を年産5トン、製品同位体純度を90.0, 99.0, 99.9% (atom) としたときの蒸留塔の大きさや本数を求めた。製品同位体純度99.0% (atom) の結果は蒸留塔本数8本となった。装置内の同位体組成分布を図2に示す。

#### 4.2 起動計算

起動計算は定常計算プログラムを起動計算用に修正し計算を行った。図3に製品同位体純度99.0% (atom) のプロセスにおける各塔の同位体組成分布の変化を示す。濃縮が進むにつれ、同位体組成分布は定常状態に近づいていく。製品純度により塔径や塔数が異なるが、それぞれについて起動計算を実施した結果、起動

時間は50～230日程度であった(表3)。同位体分離装置は半年から1年の起動となることも多い<sup>3)</sup>ことを考慮すると、短期間での起動が可能であることがわかった。

表3 シミュレーション結果

製品濃度仕様	90.0%	99.0%	99.9%
塔数	8本	9本	10本
フィード	800m <sup>3</sup> /h (normal)		
起動時間	49日	105日	229日

#### 5. おわりに

シミュレーションにより、窒化物燃料に使用される<sup>15</sup>Nを大量・安価に供給可能であることが明らかになった。たとえばADSでの使用における<sup>15</sup>Nの希望単価は年産5トンで1300円/g程度とされており<sup>1)</sup>、今回の計算結果から求めた消費エネルギーや装置コストを考慮するとこの価格は十分実現可能である。

分離プラントは、現在保有する空気分離用蒸留塔の製作技術で十分対応可能であり、新たな開発課題もほとんどない。唯一開発が必要なものは同位体スクランブラであるが、これについても実用化に向け基礎実験を実施し良好な結果を得ている。

#### 参考文献

- Wallenius, J.; Pillon, S. N-15 requirement for 2nd stratum ADS nitride fuels. Proceedings of American Nuclear Society Conference "Nuclear Applications in the New Millennium". 2002.
- 松尾雄司, 泉順, 滑川卓志. 第24回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス講演論文集. 2008.
- 神辺貴史, 木原均, 林田茂, 川上浩. 酸素同位体<sup>18</sup>O分離装置—商業化実証装置の開発—. 大陽日酸技報. 2004, (23), p.20-25.
- 木原均, 神辺貴史, 林田茂, 川上浩. 酸素同位体<sup>18</sup>O分離装置—プロセスの開発—. 大陽日酸技報. 2004, (23), p.14-19.
- Andreev, B. M. et al. Separation of isotopes of biogenic elements in two-phase systems. ELSEVIER, 2007, 297p.

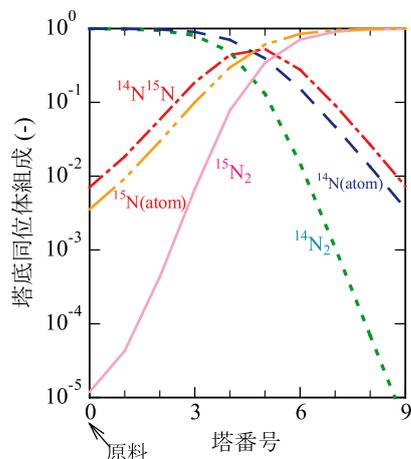


図2 同位体組成分布 (製品同位体純度99.0% (atom))

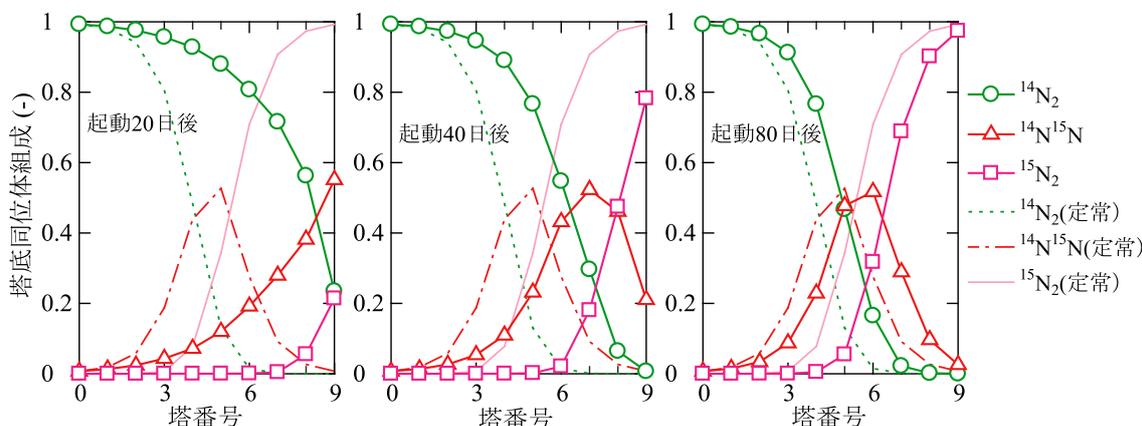


図3 製品濃度99.0% (atom) 起動運転時の濃度推移シミュレーション結果