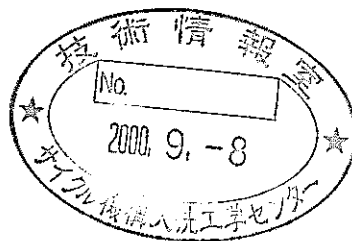


窒素同位体の濃縮技術評価

— 気相吸着法による窒素同位体濃縮実験と経済性評価 —
(研究報告)

2000年4月



核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan.

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

窒素同位体の濃縮技術評価
—気相吸着法による窒素同位体濃縮実験と経済性評価—
(研究報告)

井上賢紀*、浅賀健男*
泉順**、波多野守**

要旨

高速炉に窒化物燃料を使用した場合の¹⁴C生成問題の解決方策として、¹⁵Nの高濃度濃縮が選択肢の一つになっている。そのため、FBRサイクル実用化戦略調査研究における窒化物燃料オプションの実現性評価にあたっては、実用化段階を見通した高濃縮窒素ガスの製造コスト評価が必要とされている。

革新的な窒素同位体濃縮技術となる可能性のある気相吸着法について、窒素同位体濃縮実験と分析を行って濃縮現象の確性を行うとともに工業的な生産規模で高濃縮窒素ガスを製造した場合の製造コストを評価した。

アンモニアガスを作業物質・Na-A型ゼオライトを吸着剤として高速圧カスイング法を適用した試料製造を行った。製造した試料の高分解能質量分析とフーリエ変換型マイクロ波分光分析を行ったところ、¹⁵N同位体存在比は天然の0.366%に対して2~38%まで増大しており、窒素同位体濃縮現象が確認された。

濃縮実験結果をもとに工業規模の窒素同位体濃縮プラントを仮定した高濃縮窒素ガスの製造コスト評価を行った結果、現時点の市販価格の1gあたり十数万円のレベルを数百円のレベルまで低減できる可能性があることがわかった。

本報告書は、核燃料サイクル開発機構と三菱重工業株式会社との契約により実施した業務の成果をもとに取りまとめたものである。

* 大洗工学センター システム技術開発部燃料材料技術開発グループ

** 三菱重工業株式会社

Gas Phase Adsorption Technology for Nitrogen Isotope Separation and Its Feasibility for Highly Enriched Nitrogen Gas Production

Masaki INOUE*, Takeo ASAGA*,
Jun IZUMI**, Mamoru HATANO**

Abstract

Highly enriched nitrogen-15 gas is favorable to reduce radioactive carbon-14 production in reactor. The cost of highly enriched nitrogen-15 gas in mass production is one of the most important subject in nitride fuel option in "Feasibility Study for FBR and Related Fuel Cycle".

In this work gas phase adsorption technology was verified to be applicable for nitrogen isotope separation and feasible to produce highly enriched nitrogen-15 gas in commercial.

Nitrogen isotopes were separated while ammonia gas flows through sodium-A type zeolite column using pressure swing adsorption process. The isotopic ratio of eight samples were measured by high resolution mass spectrometry and Fourier transform microwave spectroscopy.

Gas phase adsorption technology was verified to be applicable for nitrogen isotope separation, since the isotopic ratio of nitrogen-15 and nitrogen-14 in samples were more than six times as high as in natural.

The cost of highly enriched nitrogen-15 gas in mass production were estimated by the factor method. It revealed that highly enriched nitrogen-15 gas could be supplied in a few hundred yen per gram in mass production.

This report is based on the experimental results and the evaluations under the contract between Japan Nuclear Cycle Development Institute and Mitsubishi Heavy Industries, Ltd..

* Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division, Oarai Engineering Center

** Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.

1.はじめに

1.1 実用化戦略調査研究における窒素同位体濃縮技術評価の必要性

(1) 実用化戦略調査研究における窒化物燃料オプション

FBR サイクル実用化戦略調査研究 [1-4] では幅広い技術選択肢の評価検討の一環として、様々な燃料形態が抽出されている。化学形態で分類すると、金属、炭化物、窒化物、酸化物の4種類が代表的である。特に、窒化物燃料は酸化物燃料に比較して重金属密度が高く熱伝導特性に優れることから、酸化物燃料に代わり得る燃料形態としてFBR サイクル実用化戦略調査研究が始まる前から有望視されている [5]。

(2) 窒素同位体濃縮の必要性

窒化物燃料には前述のような長所があるが、 ^{14}N の (n,p) 反応によって ^{14}C が生成するため (厳密には酸化物燃料でも不純物窒素からの生成がある)、湿式再処理プロセスで二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) の処理処分の問題がある。天然窒素には ^{14}N と ^{15}N の2種類の安定同位体があり、存在割合は $^{14}\text{N}=99.634\%$ ・ $^{15}\text{N}=0.366\%$ であるが、 ^{15}N を高濃度に濃縮すれば ^{14}C 生成量 (処理処分量) を大幅に低減できるため、窒素同位体濃縮技術への期待は大きい。

(3) 窒素同位体濃縮技術評価の必要性

実用化戦略調査研究の窒化物燃料オプションにおいては、実用化段階を見通した高濃縮 ^{15}N ガスの製造コストは最も重要な経済性評価項目の一つである。現時点では高濃縮 ^{15}N ガスの生産は実験用試薬としての生産規模にとどまり、工業的な生産規模にはない。市販されている高濃縮 ^{15}N ガス (99%濃縮) は1gあたり10万円のレベルにあり、現時点の製造コストレベルでは高濃縮 ^{15}N ガスを利用する窒化物燃料サイクルシステムの実現性はなく、革新的な窒素同位体濃縮技術を開発して1gあたり数百円 (未満) のレベルを達成することが期待されている。

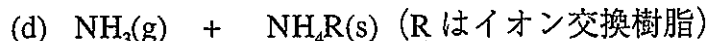
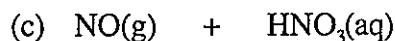
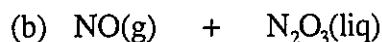
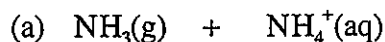
1.2 窒素同位体の濃縮技術に関する既存技術と新規技術

(1) 低温蒸留法

低温蒸留法は異なる同位体からなる分子種の平衡蒸気圧差を利用し、冷却-加熱-冷却を繰り返して濃縮を行う。窒素同位体濃縮の場合は一酸化窒素 (NO) が使用される。ちなみに、NO の120Kにおける $^{14}\text{N}^{16}\text{O}$ と $^{15}\text{N}^{16}\text{O}$ の蒸気圧比は1.027である。

(2) 化学交換法

化学交換法は化合物によって同位体の平衡分配濃度が異なる現象を利用する。窒素同位体濃縮では下記の (a)~(d) の化学系がよく知られている。



(c) の一酸化窒素と硝酸を利用したプロセスはNITROX法 [6] と呼ばれ、化学交換法の中では最も有望な反応である。NITROX法を採用した経済性評価としては、石田による評価例がある [7,8]。99.0%濃縮の高濃縮 ^{15}N ガスを年産1500kgのプラント規

模で製造した場合、1gあたり 21US\$ (1US\$=105円として約 2200円) のレベルの評価結果が得られている [8]。(d) はイオン交換法 [9] と呼ばれ、藤井 [10-17] による濃縮技術開発と山田 [18] による経済性評価例がある。99.7%濃縮の高濃縮 ^{15}N ガスを年産 1500kg のプラント規模で製造した場合、1gあたり 32000円のレベルの評価結果が得られている [18]。同位体分離効率を示す分離係数 α は、(1-1) 式の各項の濃度差をもとに (1-2) 式で表される。

$$AX+BY=BX+AY \quad (1-1)$$

$$\alpha = \frac{[BX][AY]}{[AX][BY]} \quad (1-2)$$

ここで、A と B はある元素の同位体、X と Y は反応基である。具体的な α の値は、(c) の場合で 1.055 (常温常圧) のレベルである。

(3) 気相吸着法

気相吸着法は、アンモニア (NH_3) のゼオライトへの吸着挙動の同位体効果による違いを利用する方法である。低温蒸留法と化学交換法は同位体効果による化学平衡のわずかな差を利用するため、1回の分離操作による同位体比 ($^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$) の上昇が数%なのに対して、はるかに大きな同位体分離効率を得られることが泉 [19] と岡 [20] によって報告されている。気相吸着法による窒素同位体濃縮 (分離) プロセスは、作業物質の吸着挙動の同位体効果による違いを利用する。作業物質にはアンモニア: NH_3 、吸着剤にはゼオライトを使用する。吸着法によるガス分離で一般的な圧力スイング法を利用したプロセスでは、速度分離型と平衡分離型があるが、平衡分離型 (ゼオライトに NH_3 を長期間浸漬した状態) の場合は速度分離型に比較して同位体分離効率は低下することも報告されている [19,20]。速度分離型の場合は、 NH_3 を吸着剤に短時間接触させ、吸着速度の遅い分子種: $^{15}\text{NH}_3$ リッチのガスを流過・回収した後、吸着ガス (吸着速度の速い分子種: $^{14}\text{NH}_3$ リッチのガス) を減圧して回収するプロセスを繰り返し行う。ちなみに、圧力スイング法 (PSA: Pressure Swing Adsorption) [21] は、窒素と酸素の分離、水素の精製等で工業的に利用されている。現時点では同位体効果によって吸着速度が変わるメカニズムは明確ではないが、ゼオライトの調整条件 (原料粉末個体差、イオン交換率、熱処理条件等) に依存することから、分子ふるい効果と同様に「窓」と呼ばれる細孔形態と密接な関係があると推定される [22]。

1.3 目的

(1) 気相吸着法による窒素同位体濃縮現象の確認

従来技術である低温蒸留法と化学交換法に対して革新的な窒素同位体濃縮技術となる可能性のある気相吸着法について、窒素同位体濃縮実験と分析を行って濃縮現象の確性 (窒素同位体濃縮技術としての確性) を行うことを第1の目的とする。

(2) 高濃縮窒素ガスの製造コスト評価

(1) で得られた知見をもとに工業的な生産規模で高濃縮 ^{15}N ガスを製造した場合の製造コストを評価し、FBR サイクル実用化戦略調査研究における窒化物燃料オプションの実現性評価に資することを第2の目的とする。

2. 窒素同位体濃縮現象の確認方法

(1) 課題

泉 [19] と岡 [20] が報告した NH_3 を利用した窒素同位体濃縮実験結果については、(a) 同位体比分析に四重極型質量分析器を使用しているために水分の影響を受けていた可能性があること、(b) 複数の分析機関と分析方法によって確認する必要があることが課題として指摘されている。なお、同位体分離メカニズムが不明であるが、気相吸着法の同位体濃縮技術としての可能性を否定するものではない。

課題 (a) は、四重極型質量分析器の分解能（質量数分解能は 1）に関連するものである。 $^{15}\text{N}^1\text{H}_3$ と $^1\text{H}_2^{16}\text{O}$ の分子量が整数にすると同じ 18 であるため、 $^1\text{H}_2^{16}\text{O}$ を $^{15}\text{N}^1\text{H}_3$ と誤認していた可能性に起因する。 $^1\text{H}_2^{16}\text{O}$ （質量数 18.01）と $^{15}\text{N}^1\text{H}_3$ （質量数 18.02）の誤認の問題は、質量数を小数点以下 2 桁まで判別可能な高分解能質量分析器を用いれば解決される。

課題 (b) は、 NH_3 分子が強い極性を有するため、配管等に強固に付着するという現象と関連する。つまり、外部の分析機関に試料を送付しても容器壁面への付着によって分析用試料量が減少してしまい、分析の精度を下げたり不可能にしてしまう問題がある。解決方策としては、製造する試料量を増やすこと、 NH_3 を付着が問題にならない化学成分に転換することが有効である。特に、類似した質量数の分子種のない化学成分に転換すれば、課題 (a) も同時に解決される利点がある。

(2) 実験方法（方針）の設定

泉 [19] と岡 [20] は 4 種類のゼオライトを使用して同位体分離実験を行っているが、原料粉末と調整条件によって同位体分離特性に大きな差が生じている。前述のように、同位体分離特性ゼオライトの調整条件（原料粉末個体差、イオン交換率、熱処理条件等）に依存することから、分子ふるい効果と同様に「窓」と呼ばれる細孔形態と密接な関係があると推定される [22]。そこで、ゼオライト原料粉末、イオン交換率、熱処理条件をパラメータとしたスクリーニング試験を実施し、同位体分離特性に及ぼすパラメータの影響を定性的に把握するとともに続く分析用試料製造と評価に必要な吸着剤の選定を行う（3章）。

課題 (a) と課題 (b) を同時に解決する手段として、分析用試料を付着の問題がない NO に転換するプロセスを付加することにする（4章）。具体的には、 NH_3 の触媒金属との接触による転換技術 [23] を参考とする。

前述の吸着剤調製とスクリーニング試験の結果と NH_3 の NO への転換プロセスの選定の結果をもとに分析用試料（化学形態は NO）の製造を行い、複数の分析機関と分析方法によって同位体濃縮現象確認を行う。また、十分な試料量を確保するため、吸着剤量をスクリーニング試験レベルから増量する。分析方法としては、代表的な同位体比分析技術である高分解能質量分析とフーリエ変換型マイクロ波分光分析 [24] を利用する（5章）。

3. 吸着剤調製とスクリーニング試験

3.1 吸着剤調製と実験装置

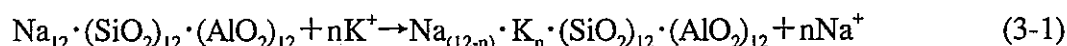
(1) 吸着剤の調製

スクリーニング試験用吸着剤として、原料粉末、イオン交換率、熱処理条件（温度と時間）をパラメータとして計 10 種類の吸着剤を順次調整する（Run1-10）。吸着剤の調製条件を表 1 にまとめて示す。なお、酸素と窒素の吸着特性をカリウム（K）交換率との関係で評価した報告 [22] を参考とし、K 交換率 15%・熱処理温度 993K・熱処理時間 1 時間を初期条件とし、Run1-3 で原料粉末、Run4-6 で K 交換率、Run7-8 で熱処理温度、Run9-10 で熱処理時間の最適条件を順次絞り込んでいくことにした。

図 1 に吸着剤となるゼオライトペレットの調製法を示す。

Na-A 型ゼオライト原料粉末メーカーをパラメータとし、甲・乙・丙の 3 社を選定する。Na-A 型ゼオライト原料粉末（ $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3=2$ ）を一昼夜 298K 飽和水蒸気に暴露して吸着窒素、酸素等を除去し、100g 毎に分取して 1000cm^3 の純水を加えてマグネツトスターによって攪拌してスラリーを調製する。

K 交換処理はスラリーを対象とし、K 交換率は 0~25mol% で調製する。スラリーに KCl 溶液を加えて母液の KCl 濃度が 1mass% を超えないように注意しながら目標とするイオン交換率になるように滴下し、30 分間攪拌を継続して (3-1) 式のイオン交換反応によって Na の一部を K で交換する。



K 交換率：R は、K 交換後の Na-A 型ゼオライト 1mol が含有する Na を a mol、K を b mol として (3-2) 式で定義する。なお、Na と K の定量分析には蛍光 X 線分析を使用する。

$$R = b / (a + b) \quad (3-2)$$

K 交換後のスラリーをろ過水洗してゼオライトケーキとして取り出した後、乾燥状態のゼオライト 100g に対してバインダーのカオリン 20g と気孔賦与剤のセルロース 15g を混練し、エクストルーダーで直径 1.6mm のグリーンペレットとして成型する。グリーンペレットを電気炉に入れて 383K で 1 時間加熱して表面水分を除去した後、昇温速度 100K/hr は一定とし、温度（953~1043K）と保持時間（0.5~2 時間）をパラメータとした熱処理を行い、吸着剤を調製する。

(2) 実験装置と実験フロー

図 2 にスクリーニング試験に使用した時の窒素同位体濃縮用実験装置の構成図を示す。配管は全てステンレス鋼製とし、継手にはスエージロックを採用して水分、空気等の混入をできるだけ抑えるように配慮している。

実験では、最初にバルブ-V3 を開いてカラム内圧力をヘリウム（He）で 102kPa に調整した後、バルブ-V1・V2 を開いて NH_3 濃度 20vol%（残りは He）の原料ガスをカラムに流入させ、直径 1.6mm のペレットに成型された吸着剤約 3g が充填されている内径 10mm、層長 80mm の小型カラムを流過させる。流過したガスは出口に設置したガス流量計によってガス量が計測されて、一部は質量分析器（四重極型質量分析計、日電アネルバ製、質量数分解能 1）に導かれて $\text{He} \cdot {}^{14}\text{NH}_3 \cdot {}^{15}\text{NH}_3$ の濃度が計測される。

設定された吸着時間が経過（最終圧力 116kPa 程度）した後、バルブ-V1・V2 を閉じてバルブ-V4 を開き、カラムを真空ポンプとつなぎ 13Pa 以下まで排気すると、吸着されたガスのほとんどは除去（脱着）される。真空ポンプの出口にも流量計が設置されており、脱着ガス量が計測される。ただし、脱着ガスにおける He・ $^{14}\text{NH}_3$ ・ $^{15}\text{NH}_3$ の濃度については、真空ポンプからのオイルミストによる質量分析器の劣化が懸念されるために測定は行わない。シーケンスコントローラーにより表 2 に示すように、1) 昇圧工程、2) 吸着工程、3) 再生工程の所要時間を設定し、1) 昇圧工程～3) 再生工程を 1～2 時間繰り返して、質量分析器で計測される $^{14}\text{NH}_3$ ・ $^{15}\text{NH}_3$ の濃度プロファイルが安定した後、前述の流量、濃度計測を行う。また、吸着温度の影響を避けるため、試験は厳密に 298K に設定された実験室で実施する。

3.2 スクリーニング試験結果

(1) 実験条件（高速圧力スイング・プロセス条件）

高速圧力スイング法に基づくプロセス条件としては、吸着圧力 120kPa、再生圧力 0.1kPa、吸着温度 298K、吸着時間 15 秒、入口ガス供給速度 $10\text{cm}^3/\text{sec}$ （供給ガス量で 150cm^3 ）を採用した。

(2) スクリーニング試験データ

吸着剤の $^{14}\text{NH}_3/^{15}\text{NH}_3$ 分離性能（以後、分離性能と略す）を評価する上で必要となる物質収支は、入口ガス組成（CN14(i)、CN15(i)、CHe(i)）、出口ガス組成（CN14(o)、CN15(o)、CHe(o)）、出口ガス流量 G1、脱着ガス流量 G2 がもとめられれば一意に決めることが出来る。

$$\cdot \text{出入口 } ^{14}\text{NH}_3 \text{ 比} = \text{出口 } ^{14}\text{NH}_3 \text{ 濃度} / \text{入口 } ^{14}\text{NH}_3 \text{ 濃度} : \quad A = \text{CN14(o)} / \text{CN14(i)}$$

$$\cdot \text{出入口 } ^{15}\text{NH}_3 \text{ 比} = \text{出口 } ^{15}\text{NH}_3 \text{ 濃度} / \text{入口 } ^{15}\text{NH}_3 \text{ 濃度} : \quad B = \text{CN15(o)} / \text{CN15(i)}$$

$$\cdot \text{出入口 } ^{15}\text{NH}_3 / ^{14}\text{NH}_3 \text{ 比} : \quad B/A$$

原料粉末、K 交換率、熱処理条件をパラメータとしたスクリーニング試験結果を表 3 にまとめて示す。

(3) 原料粉末の選定

Run1-3 の試験結果に基づく比較結果を図 3 に示す。甲社製と乙社製はほぼ同様の分離性能を示し、 $^{14}\text{NH}_3$ は約 40% が流過（約 60% が吸着）するが、 $^{15}\text{NH}_3$ は約 70% が流過（約 30% が吸着）しており、 $^{14}\text{NH}_3$ が $^{15}\text{NH}_3$ よりも選択的に吸着されている。また、出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比に直すとそれぞれ 1.76 と 1.82 であり、 $^{15}\text{NH}_3$ の分離が生じている。一方、丙社製については $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ の流過率は約 80% で差がなく、出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比は 0.97 となり、 $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ の分離はほとんど認められない。

Run1-3 の試験結果からは甲社製と乙社製はほぼ同等であるが、既往研究 [19,20] では甲社製を使用していたことから、比較検討の観点から Run4-10 においては甲社製の原料粉末を使用することにした。なお、丙社製については、採用した初期条件（熱処理条件と K 交換率）がうまく適合していない可能性も考えられ、丙社製に対する最適化を計れば吸着剤の原料としての使用の可能性は残されている。

(4) K 交換率の選定

(3)の結果をもとに原料粉末を甲社製に限定し、K 交換率をパラメータとした吸着剤を調整して Run4-6 を行った（熱処理条件は初期条件のまま）。図 4 a) に Run1 と Run4-6 の試験結果をもとに K 交換率と出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) の関係、図 4 b) に出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比 (B) の関係、図 4 c) に出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) の関係を示す。K 交換率の増大にともない出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比と同時に出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) も増大しており、分離特性の悪化が生じている。出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) は、K 交換率 0mol% の場合の 3.31 から K 交換率 20mol% 場合の 1.38 へと急速に低下した。K イオン交換率が大きくなると、 $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ の両方の吸着を阻害する方向に窓径が変化している可能性が考えられる（A 型ゼオライトでは Na から K にイオン交換すると窓径を縮小する方向に働く [26]）。

結論として、K 交換率は初期条件では 15mol% に設定したが、K 交換率の増大による分離特性の悪化が生じているため、甲社製原料粉末には K 交換処理を行わない方がよいと判断される。また、Run7-10（熱処理条件の選定）では K 交換を行わずに吸着剤を調整する。

(5) 熱処理温度の選定

(3) と (4) の結果を受けて熱処理温度をパラメータに吸着剤を調整し、Run7-8 を行った。図 5 a) に Run4 と Run7-8 の試験結果に基づく熱処理温度と出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) の関係、図 5 b) に出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比 (B) の関係、図 5 c) に出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) の関係を示す。熱処理温度の上昇にともない出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比 (B) と同時に出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) も増大する傾向があるが、出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) の熱処理温度への依存性をみると 993K で 3.31 と極大値を示すことがわかる。

結論として、熱処理温度は初期条件と同じ 993K で分離特性の極大を示しており、甲社製原料粉末と K 交換処理なしの組合せの場合の熱処理温度は 993K が最適と判断される。Run9-10 では熱処理温度を 993K に設定して吸着剤を調整することにした。

(6) 熱処理時間の選定

(3)~(5)の結果を受けて熱処理時間をパラメータ（0.5~2 時間）に吸着剤を調整し、Run9-10 を行った。図 6 a) に熱処理時間と出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) の関係を、図 6 b) に出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比 (B) の関係を、図 6 c) に出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) の関係を示す。

熱処理時間を 0.5~2 時間の間で変更しても出入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比 (A) と出入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比 (B) に大きな変化はない。出入口 $^{15}\text{NH}_3/^{14}\text{NH}_3$ 比 (B/A) においても大きな変化はないが、熱処理時間を 0.5~1 時間で比較的良い結果が得られている。結論として、熱処理時間は初期条件と同じ 1 時間で十分であると判断される。

(7) 最適な吸着剤調製条件

(3)~(6)の結果選定された最適な吸着剤調製条件 (Run4) は下記のとおりである。

- ・ゼオライト原料粉末： 甲社製
- ・K 交換率： 0mol% (なし)
- ・熱処理温度： 993K (720°C)
- ・熱処理時間： 1 時間

4. アンモニアの一酸化窒素への転換プロセスの選定

(1) NH_3/NO 転換触媒の調製

試験に使用する「 NH_3/NO 転換触媒」（以後、転換触媒と略称する）の調製手順を図7に示す。

硝酸コバルト ($\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) に純水を加えて攪拌してスラリーとし、スラリーをホットスターラー上に移して徐々に加熱、蒸発乾固させる。乾固した試料は乳鉢で十分に粉砕の後、磁製皿に移し、電気炉で焼成、硝酸成分を除去する。得られた焼成試料を乳鉢にて十分に粉砕する。粉砕された焼成試料を一軸プレス機で加圧成形した後、粉砕して16~80メッシュに分級する。さらに、試験前に水素と窒素の混合ガス中で還元処理を行った後、同ガス気流中で室温まで冷却して最終製品とする。

(2) NH_3/NO 転換試験

「 NH_3/NO 転換試験」（以後、転換試験と略称する）に使用した転換触媒の物性と性能評価条件を表4に示す。試作した転換触媒の性能評価に使用した流通式の試験装置を図8に示す。出口側の NO_x と NH_3 濃度をそれぞれ計測し、反応温度、 NH_3 濃度、酸素濃度、SV値（処理ガス量/触媒体積比）等をパラメータとして「 NH_3 から NO への転換率」（以後、転換率と略称する）を評価して最適条件の選定を行う。

反応管は石英ガラス製の内径10mmの円筒形状とし、輻射式透明電気炉（ゴールドファーネス）内に装荷して反応温度を制御する。

転換試験は下記のフローで行う。転換触媒を窒素気流中で所定の温度に設定後、試験ガスを通気する。試験ガスの調整は標準ガスをマスフロコントローラで流量調節し濃度調整する。ガス成分分析には、 NO は非分散赤外式 NO_x 計、酸素はジルコニア式酸素濃度計、 NH_3 は簡易分析器として用いられているドレーゲル検知管を使用する。

(3) 結果と考察

転換試験の結果を表5にまとめて示す。

図9にRun1、Run2、Run5における反応最大値と転換率（酸化率）の関係を示す。反応温度の上昇にともない酸化率は上昇し、973Kで最大値（99%）に達する。反応温度がさらに上昇すると酸化率は低下し、 NH_3 と酸素との反応による NO への転換と一度生成した NO と残留する NH_3 の反応による窒素転換が優勢になるためと考えられる。以上のように、反応温度を973Kに設定し、酸素濃度の最適化を試みる。

図10に NH_3 濃度3,000ppm、SV値40,000、反応温度973Kにおける酸素濃度と転換率の関係を示す。酸素は本反応では必要な酸化剤であるが酸素濃度の上昇にともない転換率は低下することがわかる。

前述の高温領域での現象と同じく酸素濃度の上昇にともない NH_3 と酸素反応による NO への転換と一度生成した NO と残留する NH_3 の反応による窒素転換が優勢になるためと考えられるため、酸素濃度は10,000ppmに設定するのが適切であると判断される。

(4) 質量分析器による計測感度の確認

カラムの後流に転換触媒を設置し、四重極型質量分析器で ^{14}NO と ^{15}NO を同時計測して $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比を測定した。温度973K、SV値40000、酸素濃度10000ppmにて NH_3

の90%以上をNOに転換した後、この時に用いた質量分析計の ^{14}NO と ^{15}NO の検量線を図11に示す。この検量線で最も低い計測値は、トータルNO濃度0.5%であり、 ^{15}N 濃度は0.0016%である。この時の質量分析計の値は 1.516×10^{10} CPSであり、バックグラウンドノイズは 0.45×10^{10} CPS程度である。このバックグラウンドノイズは±5ppm程度に相当する。以上のように、NOは妨害成分がなく、かなりの高感度で質量分析が可能である。

5. 分析用試料製造と分析

5.1 スクリーニング試験結果に基づく分析用試料製造

(1) 試料製造方法

スクリーニング試験は吸着剤量 3g（充填長さ 60mm）、供給ガス量 100cm³N/Batch で実施した。しかし、分析用試料にはある程度の試料量が要求されるため、吸着剤量を 20g（充填長さ 100mm）にスケールアップすることにした。

分析用試料製造に採用した分離条件を表 6 に示す。なお、転換触媒反応層の後流には未反応の NH₃ を除去するため、NH₃ と水の吸着カートリッジ（吸着剤にはゼオライトを使用）が接続されている。分離操作は 3 章で採用したものと同一なのでここでは省略する。分析用試料はそれぞれ容積 5000cm³ のテドラバッグに所要時間 5 分程度で回収される。

(2) 試料製造結果

(1) で述べた試料製造方法に基づいて分析用試料 8 試料の製造を行った。試料製造時のオンライン質量分析データ（30 分間 50 点平均値）を表 7 に示す（表 7 の出口ガスデータは、NO による測定値を転換率 98% で ¹⁴NH₃ 濃度に換算してある）。供給された ¹⁴NH₃ の流過率が約 1% であるのに対し、¹⁵NH₃ の流過率は約 28% である。また、出口ガスにおける ¹⁵NO/¹⁴NO 比は 8.83% であり、天然窒素の ¹⁵N/¹⁴N 比の 0.367% に対して約 24 倍である。

(3) 酸素の残留の問題

分析用試料は He-1000ppmNO-9000ppmO₂ の 3 成分からなり、NO から NO₂ への酸化が進行して NO 濃度が著しく低下する現象が懸念される。しかし、採取した試料を化学発光法で計測したところ、NO から NO₂ への酸化は分取後 30 分程度で停止することが確認されている。また、NO から NO₂ への酸化は全 NO_x 量の 10% 以下にとどまっており、分析には支障のないことも確認されている。

5.2 分析

(1) 分析方法

「5.1」で製造した分析用試料について、二重収束型質量分析計を用いた高分解能質量分析とフーリエ変換型マイクロ波分光分析（FTMW）によって ¹⁴NO/¹⁵NO 比を測定し、窒素同位体濃縮現象の確認を行う。高分解能質量分析は、株式会社東レリサーチセンターと日本酸素株式会社へ依頼した。また、フーリエ変換型マイクロ波分光分析は、総合研究大学院大学（東京工業大学理学部物理学科金森研究室：金森英人助教授）へ依頼した。

(2) 高分解能質量分析器による分析結果

¹⁴NO/¹⁵NO 比についての分析用試料製造時の分析値、株式会社東レリサーチセンターと日本酸素株式会社による分析値を表 8 に示す（表 8 の値は、¹⁴NO/¹⁵NO 比をもとに ¹⁴N と ¹⁵N の存在比に換算してある）。高分解能質量分析は、株式会社東レリサーチセンター（DX-303）と日本酸素株式会社（AX-505W）ともに日本電子株式会社製の二重収束型質量分析器を使用した。

株式会社東レリサーチセンターは2試料、日本酸素株式会社は3試料を対象とし、日本酸素株式会社は同一のテドラバッグから3試料を分取して分析を行い、3つの分析値の平均値を用いている。また、株式会社東レリサーチセンターと日本酸素株式会社はともに $^{14}\text{N}^{16}\text{O}$ と $^{15}\text{N}^{16}\text{O}$ の強度比（計数値の比）をそのまま $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比として報告している。 ^{15}N の存在比に着目すると、四重極型質量分析器による分析値は0.068～0.122の間に分布しているが、株式会社東レリサーチセンターの分析値は0.115～0.375、日本酸素株式会社の分析値は0.024～0.033と差がある。天然窒素の ^{15}N 存在比は0.00366なので、高分解能質量分析結果は最小で約7倍、最大で約102倍の値を示し、窒素同位体濃縮現象の発現を確認する結果になっている。分析値が大きくばらついている原因は定量的には特定できていないが、 $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ の吸着帯がPSAの操作条件で経時的に変化していること、分析用試料のNO濃度が1000ppmと低いために計測誤差（最大でも±10～20%程度）が大きいことが考えられる。

(3) フーリエ変換型マイクロ波分光分析器による分析結果

$^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比についての総合研究大学院大学による分析値を表8に示す（表8の値は、試料の $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比測定値を天然窒素によるリファレンスNO試料測定値をもとにもとに補正し、2試料の平均値をもとに ^{14}N と ^{15}N の存在比に換算してある）。

^{15}N の存在比に着目すると、四重極型質量分析器による分析値は0.073と0.122であるが、総合研究大学院大学の分析値はそれぞれ0.035と0.022である。天然窒素の ^{15}N 存在比に対して2試料平均値で約8倍の値を示し、高分解能質量分析の場合と同じく窒素同位体濃縮現象の発現を確認する結果になっている。

(4) 考察

三菱重工業株式会社でオンライン質量分析した試料を株式会社東レリサーチセンター・日本酸素株式会社・総合研究大学院大学へ送付し、それぞれ分析を行った。結果として、窒素同位体濃縮現象の発現を確認する結果になっているが、分析値に大きなばらつきが見られた。一般に質量分析誤差は計測値に対し±10～20%程度である。FIMWについては誤差論的な検討をするのに十分なデータは集積されていないが、質量分析誤差±10～20%を上回ると考えられる。

表7（表3）の三菱重工業株式会社の四重極型質量分析器は出口の ^{14}NO と ^{15}NO の濃度を約30分間平均（50点のデータ点の平均値）である。測定された窒素同位体存在比のばらつきは2 σ で20%以内であり、日本酸素株式会社と総合研究大学院大学のデータは三菱重工業株式会社の測定値に対して2 σ を超える範囲にある。データのばらつきの原因を特定することは難しいが、出口 $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比がわずかな流量の差異で大きく変化するため、試料採取用テドラバッグの有無によるガス供給条件の変化の影響を受けている可能性が考えられる。

なお、実用化段階のレベルにスケールアップ（年間生産量でトンレベル）した場合は、吸着剤長さはさらに長くなり、出口 $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比を入口流量にフィードバックして制御することから、出口 $^{14}\text{NO}/^{15}\text{NO}$ 比はより安定した値を示すと推定される。

6. 高濃縮窒素ガスの製造コスト評価

6.1 評価条件

(1) 採用する評価手法

^{15}N の濃縮費 ($^{15}\text{N}1\text{g}$ あたりの製造コスト) を算出するためには、濃縮プラントの建設費と運転費とを評価する必要がある。実際の評価作業においては物質収支推算プログラムを用いてプロセスの主要機器について最適化を行い、最適化したプロセス構成をもとに設備全体と運転費を推算して経済性の評価を行う。

評価方法としては個別積算法等の方法があるが、今回の評価では NITROX 法とイオン交換法による既往研究 [7,8,18] との比較検討の観点から、ファクター法 (Factor Method) を採用する。ファクター法とは、設備を構成する主要装置類の購入・据付費を基礎として、付随する設備・施設費をはじめ、年間変動費や固定費について、経験的に定めた装置類購入・据付費に対する比率を用いて概算する方法である。構成費用項目と使用するファクターは既往研究に準じて表 9 に示す値とする。ファクターについては、通常化学プラントのコスト試算に採用している値を使用しており、この段階での試算としては妥当と考えられるが、吸着剤の性能、価格により、今後の開発過程で最大で 3 倍程度にコストが上昇する事は予想しておく必要がある。また、評価に用いる償却と運転員の費用の考え方は 2 種類 (ケース 1 [7,8]、ケース 2 [18]) とした。

(2) 製品仕様

製品仕様も基本的には既往研究 [7,8,18] に準じることとし、化学形態は N_2 ガス、 ^{15}N の濃縮度を 90%、99%、99.9% の 3 レベルに設定する。

(3) 生産規模

年間生産量としては 1500、3000、12000kg の 3 レベルに設定する。年産 1500kg は既往研究との比較検討に着目して設定されている。年産 3000kg と年産 12000kg は混合酸化物燃料の年間生産量に関する設定例 [2] のそれぞれ 50 トンと 200 トンに対応している。

6.2 評価方法

(1) ^{15}N 濃縮費の評価方法

^{15}N の濃縮費 E_c は (6-1) 式で与えられる。

$$\begin{aligned} ^{15}\text{N} \text{ の濃縮費 } E_c &= (\text{年間変動費} + \text{年間固定費}) \div (\text{年間生産量}) \\ &= (T+Z)/P_c \end{aligned} \quad (6.1)$$

ここで、 E_c 、 T 、 P_c はそれぞれ下記のとおりである。

E_c :	^{15}N 濃縮費 [円/g]
T :	年間変動費 [円/年]
Z :	年間固定費 [円/年]
P_c :	^{15}N 年間生産量 [g/年]

プラントの設計生産能力に対する実際の年間生産量の割合を操業率という。プラントの 1 年間の運転に伴い発生する費用のうち、操業率に比例して変わるものを年間変動費、操業率によらず一定のものを年間固定費という。

T (年間変動費) を構成する費用項目は次の通りである。

・原料アンモニア購入費：	N1
・薬品購入費：	N2
・直接人件費：	O
・ユーティリティ費 (電気代)：	P
・運転維持費 (保守・修繕費)：	Q
・消耗品費：	R
・取替・補充ゼオライト吸着剤費：	S

Z (年間固定費) を構成する費用項目は次の通りである。

・減価償却費：	U
・固定資本に対する支払金利：	V
・運転資金に対する支払金利：	W
・諸税引当金：	X
・間接費 (間接人件費、共通的保守・修繕費)：	Y

(2) 建設費の評価方法

狭義の建設費は施設建設費を意味し、「装置類購入・据付費：A1」と「ゼオライト吸着剤費：A2」をもとに推算した以下の費用項目から構成される。

・装置類購入・据付費：	A1
・初期充填ゼオライト吸着剤費：	A2
・配管設備費：	$B=fb \times A1$
・計測制御設備費：	$C=fc \times A1$
・プラント建家費：	$D=fd \times A1$
・分析装置費：	$E=fe \times A1$
・サービス施設費：	$F=ff \times A1$

ここで、fb、fc、fd、fe、ffはファクターを表す。よって、施設建設費 G は (6-2) 式で与えられる。

$$\begin{aligned} \text{施設建設費 } G &= A1 + N + B + D + E + F + A2 \quad [\text{円}] & (6-2) \\ &= A1(1 + fb + fc + fd + fe + ff) + A2 \end{aligned}$$

一方、広義の建設費とは設備投資総額を意味し、以下の費用項目から構成される。

・施設建設費：	G
・設計料：	$H=fh \times (G-A2)$
・敷地造成費：	$I=fi \times (G-A2)$
・運開準備金：	$J=fj \times G$
・予備費：	$K=fk \times G$
・運転資金：	L

ここで、fh、fi、fj、fkはファクターである。

また、運転資金は未払勘定運転費 (U+V+X+Y)、年間変動費 (T)、原料・薬品在庫費と仕掛品費 (装置内ホールドアップ分) から構成される。よって、設備投資総額 M は、「装置類購入・据付費：A1」、「ゼオライト吸着剤費：A2」及び「運転資金：

L] をもとにした推算により、(6-3) 式で与えられる。

$$\begin{aligned} \text{設備投資総額：} \quad M &= G+H+I+J+K+L \quad [\text{円}] & (6-3) \\ &= A1(1+fh+fi+fj+fk)(1+fb+fc+fd+fe+ff)+(1+fj+fk)A2+L \end{aligned}$$

年間固定費は広義の建設費用項目をもとに評価され、年間固定費 Z は、(6-4) 式で与えられる。

$$\text{年間固定費：} Z = U+V+W+X+Y \quad [\text{円/年}] \quad (6-4)$$

また、年間固定費は以下の費用項目から構成される。

$$\begin{aligned} \text{減価償却費：} \quad & U = Da/nd \quad (\text{定額法}) \\ \cdot Da : & \text{減価償却対象額 } (=G+H+I+J+K) \\ \text{償却年数：} \quad & nd \\ \text{固定資本に対する支払金利：} \quad & V = (rv/100) \times fv \times Da \\ \text{運転資金に対する支払金利：} \quad & W = (rw/100) \times fw \times L \\ \cdot rv, rw : & \text{年間利子率} \\ \cdot fv, fw : & \text{借入金比率} \\ \text{諸税引当金：} \quad & X = tx \times fx \times Da \\ \cdot tx : & \text{諸税の総合税率} \\ \cdot fx : & \text{諸税の課税対象比率} \\ \text{間接税：} \quad & Y = fy1 \times (Q+R) + fy2 \times O \end{aligned}$$

(3) 運転費の評価方法

運転費とは年間変動費を意味し、主に施設建設費をもとに評価される。具体的には、年間変動費 T は、(6-5) 式で与えられる。

$$\begin{aligned} \text{年間変動費：} \quad T &= N1+N2+O+P+Q+R+S \quad [\text{円/年}] & (6-5) \\ &= N1+N2+O+P+(fq+fr)(G-A2)+S \end{aligned}$$

ここで、

$$\begin{aligned} \text{原料アンモニア購入費：} \quad & N1 \\ \text{薬品購入費：} \quad & N2 \\ \text{直接人件費：} \quad & O = \sum ai \times mi \\ \cdot ai : & \text{職種 } i \text{ の年収} \\ \cdot mi : & \text{職種 } i \text{ の人数} \\ \text{ユーティリティ費：} \quad & P = \sum cpi \times pui \\ \cdot cpi : & \text{ユーティリティ } i \text{ の単価} \\ \cdot pui : & \text{ユーティリティ } i \text{ の年間所要量} \\ \text{運転維持費：} \quad & Q = fq \times (G-A2) \\ \text{消耗品費：} \quad & R = fr \times (G-A2) \\ \text{取替・補充ゼオライト吸着剤費：} \quad & S \end{aligned}$$

である。

6.3 評価結果

(1) 製造プロセスの設定

本試験結果より濃縮プラントの概念設計を行った。計算の手順を表10に、設定したフローシートを図12に示す。

(2) 吸着剤所要量の設定、ファクター、電力量コスト等の設定

吸着剤の使用量については、5章の表7の分析結果を参考に設定する。図13は同じNa-A型ゼオライトを用いた窒素同位体濃縮実験結果である[19]。出口 $^{15}\text{NH}_3$ 流過率50%、 $^{15}\text{NH}_3/({}^{14}\text{NH}_3+{}^{15}\text{NH}_3)$ 比10%の入口流量は、約 $120\text{cm}^3\text{N}/\text{Batch}$ （吸着剤1gあたり入口ガス量 $40\text{cm}^3\text{N}/\text{g}/\text{Batch}$ ）である。入口ガス量を $80\text{cm}^3\text{N}/\text{Batch}$ （吸着剤1gあたり入口ガス量 $27\text{cm}^3\text{N}/\text{g}/\text{Batch}$ ）に減少すると $^{15}\text{NH}_3$ 流過率は20%、 $^{15}\text{NH}_3/({}^{14}\text{NH}_3+{}^{15}\text{NH}_3)$ 比は90%以上に上昇しており、入口ガス量を一定とした場合に吸着剤充填量を1.5倍にしたことと等価である。今回の評価で10%から90%への増加を推定する場合、図13からは吸着剤充填量は1.5倍で十分ではあるが、5章で述べたばらつきの問題と実機設計では通常安全率を見込んで吸着剤充填量を設定し、2.5倍（50g）とした。90%から99%への増加については現在のところは実験的に明らかではないが、吸着剤の使用量の増加（酸素/窒素の単体ガス製造と水素精製の工業化経験からは1.2倍程度）によって達成できると予想される。しかし、今回の評価では安全率を大きく取り、90%から99%で2倍、99.9%で3倍の吸着剤量が必要と設定した。

年間生産量を1500kgとすると、吸着剤の使用量は表10に示すように、1000kg程度必要と推算される。現在、PSA- $^{14}\text{NH}_3/^{15}\text{NH}_3$ 分離ユニット、TSA- $^{15}\text{NH}_3/\text{He}$ 分離ユニット、PSA- $^{14}\text{NH}_3/\text{He}$ 分離ユニットのトータルコストと $^{14}\text{NH}_3/^{15}\text{NH}_3$ 吸着剤コストとの比を20:1程度と見積っているため、トータルコストは表10に示すように2億円となる。ちなみに、通常動力原単位の観点から、低濃度のガス分離ではTSA（温度スイング法：Temperature Swing Adsorption）、高濃度のガス分離ではPSAが採用される。低濃度域では、吸着剤の再生に多量の熱エネルギーを必要としないTSA法が有利であるが、処理ガス濃度の上昇にともなって吸着剤量の増大して消費熱エネルギーも増大するためTSA法は不利となる。

消費電力は全ユニットで60kW程度となるので、1kWhの電力量コストを20円、年間稼働時間を8000時間とするとランニングコストは表10に示すように約1600万円となる。

以上のように、生産規模1500kg/年の設備費、変動費を基準として経済性を試算した。90%以上の濃縮に対する吸着剤の使用量、消費電力は現在のデータの範囲外のため、圧力スイング法による水素、窒素等の分離における製品濃度と吸着剤使用量、消費電力の実績をもとに同位体分離の困難さを考慮して、99%は90%の2倍、99.9%は3倍の吸着剤層高が必要と設定した。また、消費電力については、99%は90%の1.5倍、99.9%は2.25倍とした。ちなみに、圧力スイング法による水素分離では99vol%から99.999vol%への製品濃度の向上で吸着剤の使用量は1.5倍、動力原単位は1.4倍に上昇している。

原料の大部分は元のプラントに戻されるため、 NH_3 原料費としては高濃縮 ^{15}N ガスとして払い出される NH_3 量のみを考えればよい。また、直接人件費において、運転員は1名とした。装置に関しては、濃縮度と生産規模を考慮した設備容量の一般的なスケールアップ則である0.7乗則を採用し、ユーティリティー費に関しては処理ガス量（吸着剤量）に比例させて試算した。気相吸着法の特徴として、濃縮度の増大に対する吸着塔層高の増加は対数に比例するため、極端な吸着剤の使用量の増加にはつながらないと考えられる。

(5) 製造コスト評価結果

経済試算結果（計算条件2ケース×濃縮度3ケース×生産規模3ケース＝合計18ケース）を表11 a)～r)に示す。評価の結果を表12にまとめて示す。最も安価な評価値は ^{15}N 濃度90%・製造規模12000kg/年における43円/gであり、最も高価な評価値は ^{15}N 濃度99.9%・製造規模1500kg/年における235円/gであった。なお、今回の製造コスト評価における吸着剤量設定、実験結果の高濃縮度への外挿等は、泉が過去に報告[19]した図13を根拠にしており、工学規模による実証試験を行い、今回の設定値の妥当性を確認するとともに製造コスト評価用データを拡充する必要がある。

今回の試算値はNOの低温蒸留法による ^{15}N の製造コストを大幅に下まわる可能性があることを示した。ただし、今回の評価は「ピーカースケール」のレベルにあるため、工学規模に拡大して吸着剤の品質管理、耐久性、 NH_3 ・He回収系等の周辺機器、スケールアップ因子等の不確定な要因を明確にしていく必要がある。

7. おわりに

7.1 まとめ

(1) 気相吸着法による窒素同位体濃縮現象の確認

アンモニアガスを作業物質・Na-A型ゼオライトを吸着剤として高速圧力スイング法を適用した試料製造を行い、高分解能質量分析とフーリエ変換型マイクロ波分光分析を行ったところ、 ^{15}N 同位体存在比は天然の0.366%から2~38%まで増大しており、気相吸着法による窒素同位体濃縮現象の確認を行うことができた。つまり、気相吸着法による窒素同位体濃縮技術はNITROX法やイオン交換法をはるかに上回る分離効率があり、非常に有望な技術であることがわかった。

(2) 高濃縮窒素ガスの製造コスト評価

(1)の分離実験結果を高濃縮度まで外挿して工業規模の窒素同位体濃縮プラントを仮定した高濃縮窒素ガスの製造コスト評価を行ったところ、現時点の市販価格(十万円/g)から大幅に低減(数百円/g)できる可能性があることがわかった。ただし、今回の製造コスト評価における吸着剤量、実験結果の高濃縮度への外挿等の設定は過去の実験結果を参考にしており、追加の濃縮実験等を行って今回の設定値の妥当性を確認するとともに製造コスト評価用データを拡充する必要がある。

7.2 今後の課題

(1) 窒素同位体濃縮実験の工学規模への拡大

高濃縮窒素ガスの製造コスト評価精度の向上のため、今回のような実験室規模から工学規模(吸着剤充填量0.5kg/塔×2塔、 $^{15}\text{NH}_3$ 1.5kg/年製造)にスケールアップした試験による工業化データの取得と経済性の確認が必要である。

(2) 気相吸着法による同位体濃縮メカニズムの解明

気相吸着法による同位体分離メカニズムは現時点では不明であり、工学規模と工業規模へのスケールアップ、より一層の製造コストの低減、品質保証等の観点からメカニズムの解明が不可欠と考えられる。

(3) 窒素同位体比の分析技術の高度化

高濃縮窒素ガスの安定生産のためのプロセス制御に必要な高信頼性分析技術を確立する必要がある。

8. 参考資料・参考文献

- (1) 野田宏、可児吉男、稲垣達敏、「FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 -21 世紀の多様なニーズに応える FBR サイクルのシステム候補概念構築に向けて- FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 (1) 全体計画」、日本原子力学会「2000 春の年会」総合報告 3、総 11 (2000)
- (2) 佐藤和二郎、佐賀山豊、小島久雄、小平清、野田宏、稲垣達敏、「FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 -21 世紀の多様なニーズに応える FBR サイクルのシステム候補概念構築に向けて- FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 (2) 開発目標と設計要求」、日本原子力学会「2000 春の年会」総合報告 3、総 12 (2000)
- (3) 可児吉男、一宮正和、池上哲雄、佐賀山豊、稲垣達敏、「FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 -21 世紀の多様なニーズに応える FBR サイクルのシステム候補概念構築に向けて- FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 (3)FBR の幅広い技術選択肢に係る設計検討」、日本原子力学会「2000 春の年会」総合報告 3、総 13 (2000)
- (4) 鹿倉栄、田中博、可児吉男、小島久雄、安部智之、稲垣達敏、「FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 -21 世紀の多様なニーズに応える FBR サイクルのシステム候補概念構築に向けて- FBR サイクルの実用化戦略調査研究の現状 (4) 燃料サイクルシステムの設計検討」、日本原子力学会「2000 春の年会」総合報告 3、総 14 (2000)
- (5) 燃料開発会議新型燃料分科会、「FBR 新型燃料評価研究第 2 ステップ最終報告書」：PNC TN8410 94-201 (1994)
- (6) W.Spindel and T.I.Taylor,"Preparation of 99.8% Nitrogen-15 by Chemical Exchange", J. Chem.Phys., Vol.24, P.626-627 (1956)
- (7) 石田孝信、William Spindel、「NO-HNO₃ 化学交換法 (NITROX) による窒素 15 濃縮コスト評価委託研究 (I) (成果報告書和訳)」：PNC TN8410 93-065 (1993)
- (8) 石田孝信、William Spindel、「NO-HNO₃ 化学交換法 (NITROX) による窒素 15 濃縮コスト評価委託研究 (II) (最終成果報告書)」：PNC TN8410 94-003 (1993)
- (9) F.H.Spedding et.al.,"a Laboratory Method for Separating Nitrogen Isotopes by Ion Exchange", J.Amer. Chem.Soc., Vol.77, P.6125-6132 (1955)
- (10) 大塚温久ら、「イオン交換法による ¹⁵N 濃縮分離に関する研究」：日本原子力学会「1993 秋の大会」、H29 (1993)
- (11) 藤井靖彦、「イオン交換法による ¹⁵N 濃縮分離に関する研究 (II)」：PNC ZJ1607 94-003 (1994)
- (12) 大脇理夫ら、「イオン交換法による ¹⁵N 濃縮分離に関する研究 (II)」：日本原子力学会「1994 秋の大会」、N17 (1994)
- (13) 盛田啓一郎ら、「イオン交換法による ¹⁵N 濃縮分離に関する研究 (III)」：日本原子力学会「1995 秋の大会」、G52 (1995)

- (14) 大脇理夫ら、「イオン交換法による ^{15}N 濃縮分離に関する研究 (IV)」：
日本原子力学会「1996 春の年会」、N47 (1996)
- (15) 大脇理夫ら、「イオン交換法による ^{15}N 濃縮分離に関する研究 (V)」、
日本原子力学会「1996 秋の大会」、J28 (1996)
- (16) 藤井靖彦、「イオン交換法による ^{15}N 濃縮分離に関する研究 (V)」：
PNC ZJ1607 97-002 (1997)
- (17) 大脇理夫ら、「イオン交換法による ^{15}N 濃縮分離に関する研究 (VI)」、
日本原子力学会「1997 春の年会」、L41 (1997)
- (18) 山田隆、有村隆治、波多野守、「イオン交換法による窒素 15 の濃縮プラント
経済解析」：PNC TJ8216 95-001 (1995)
- (19) 泉順ら、「気相吸着法による ^{14}N と ^{15}N の同位体分離の基礎検討」、
日本原子力学会「1997 春の年会」、L39 (1997)
- (20) 岡伸樹ら、「各種気相吸着法による ^{14}N と ^{15}N の同位体分離の比較検討」、
日本原子力学会「1997 秋の大会」、L88 (1997)
- (21) 竹内節、「吸着の化学」、産業図書 (1995) (ISBN 4-7828-3559-0)
- (22) J.Izumi and M.Suzuki,"Oxygen Selectivity on Partially K Exchanged Na-A Type Zeolite at
Low Temperature", to be published
- (23) 例えば、清水豊満ら、「白金網によるアンモニアの接触酸化モデル」、
化学工学論文集、第 6 巻第 4 号、P.378-384 (1980)
- (24) R.D.Suenram et.al."Fourier Transform Microwave Spectroscopy: a Potential New
Analytical Tool for Trace Gas Species",
Proceedings of the 1994 U.S. EPA/A&WMA International Symposium (1994)
- (25) 富永博夫編、「ゼオライトの科学と応用」、講談社サイエンティフィック (1987)
(ISBN 4-06-139690-0)

9. 関連する特許

- (A) 三菱重工業株式会社、「酸素の選択的吸着方法」、特許第 1419499 号、
出願日昭和 55 年 5 月 22 日
- (B) 三菱重工業株式会社、「酸素、窒素 2 成分ガスからの酸素吸着剤及び該吸着剤
による酸素・窒素の分離方法」、特許第 1511317 号、出願日昭和 55 年 5 月 23 日
- (C) 三菱重工業株式会社、「窒素 2 成分ガスからの酸素吸着剤及び該吸着剤の使用
方法」、特許第 1511319 号、出願日昭和 55 年 6 月 2 日
- (D) 三菱重工業株式会社、「酸素選択的吸着剤及び酸素分離方法」、
特許第 1450410 号、出願日昭和 56 年 12 月 28 日
- (E) 三菱重工業株式会社、「速度分離型吸着剤を利用した同位体ガスの分離方法」、
特開平 10-128071 号（公開日平成 10 年 5 月 19 日）、出願日平成 8 年 10 月 28 日
- (F) 三菱重工業株式会社、「N14 アンモニアと N15 アンモニアの銅イオン交換ゼオラ
イトを用いた分離方法」、特開平 10-128073 号（公開日平成 10 年 5 月 19 日）、
出願日平成 8 年 10 月 29 日
- (G) 三菱重工業株式会社、「アンモニア酸化触媒の製造方法」
特願昭 52-082767 号

表1 スクリーニング試験における吸着剤調整条件

Run	原料メーカー	K交換率(mol%)	熱処理温度(K)	熱処理時間(hrs)
1	甲社	15	993	1
2	乙社	15	993	1
3	丙社	15	993	1
4	最適品	0	993	1
5	最適品	7	993	1
6	最適品	20	993	1
7	最適品	最適条件	953	1
8	最適品	最適条件	1033	1
9	最適品	最適条件	最適条件	0.5
10	最適品	最適条件	最適条件	2

表2 スクリーニング試験における高速圧カスイング法・プロセス条件

吸着圧力 (kPa)	再生圧力 (kPa)	吸着温度 (K)	吸着時間 (sec)	入口流量 (mlN/min)	バージの有無	入口NH ₃ 濃度 (vol%)
120	0.13	298	15	600	有	20

表3 スクリーニング試験結果

Run	出口 ¹⁴ NH ₃ /入口 ¹⁴ NH ₃ (A) [-]	出口 ¹⁵ NH ₃ /入口 ¹⁵ NH ₃ (B) [-]	出入口 ¹⁵ N比/出入口 ¹⁴ N比(B/A) [-]	入口 ¹⁴ NH ₃ 濃度 [%]	出口 ¹⁴ NH ₃ 濃度 [%]	入口 ¹⁵ NH ₃ 濃度 [ppm]	出口 ¹⁵ NH ₃ 濃度 [ppm]	備考
1	0.34	0.60	1.76	20.0	6.8	730	438	甲社
2	0.41	0.75	1.82	20.0	8.2	730	548	乙社
3	0.84	0.82	0.97	20.0	16.8	730	599	丙社
4	0.16	0.53	3.31	20.0	3.2	730	387	甲社
5	0.29	0.67	2.31	20.0	5.8	730	489	甲社/K交換率7mol%
6	0.52	0.72	1.38	20.0	10.4	730	526	甲社/K交換率20mol%
7	0.12	0.35	2.91	20.0	2.4	730	256	甲社/K交換率0mol%
8	0.65	0.75	1.15	20.0	13.0	730	548	甲社/K交換率0mol%
9	0.15	0.47	3.13	20.0	3.0	730	343	甲社/K交換率0mol%
10	0.16	0.42	2.62	20.0	3.2	730	307	甲社/K交換率0mol%

表4 転換試験条件

		Run.1	Run.2	Run.3	Run.4	Run.5
NH ₃	(ppm)	3000	3000	3000	3000	3000
O ₂	(vol%)	15	15	10	5	1
N ₂	(-)	balance	balance	balance	balance	balance
H ₂ O	(vol%)	0	0	0	0	0
ガス流量	(mlN/min)	500	500	500	500	500
反応管径	(mm φ)	10	10	10	10	10
触媒充填長	(mm)	20	10	10	10	10
SV	(1/H)	19099	38197	38197	38197	38197
U _{gs}	(m/sec)	0.106	0.106	0.106	0.106	0.106
反応温度	(K)	573	573	-	-	-
		673	673	-	-	-
		-	773	-	-	-
		873	873	-	-	-
		-	-	-	-	923
		973	973	973	973	973
		-	-	-	-	1,073

表 5 転換試験結果

Run No.	温度 (K)	SV (1/H)	入口O ₂ (%)	入口NH ₃ (ppm)	出口NO _x		酸化率 (%)
					NO (ppm)	NO ₂ (ppm)	
1	573	20000	15	3000	254	454	23.6
	673				570	415	32.8
	773				2070	500	85.7
	873				2190	450	88.0
2	573	40000	15	3000	630	230	28.7
	673				880	495	45.8
	773				1600	505	70.2
	873				2070	500	85.7
	973				2205	455	88.7
3	973	40000	10	3000	2330	360	89.7
4	973	40000	5	3000	2560	250	93.7
5	923	40000	1	3000	2850	135	99.5
	973				2785	135	97.3
	1073				2510	90	86.7

表 6 分析用試料製造における高速圧カスイング法・プロセス条件

吸着圧力	120kPa
吸着時間	30sec
再生時間	60sec
昇圧時間	5sec
入口ガス量	1430m ³ N/batch
入口組成	¹⁵ NH ₃ 20vol% 残ガスHe
吸着剤種類, 形状	Na-K-A(993K, 1h, K交換率0mol%)
吸着剤充填量	20g
吸着温度	298K
小型カラム形状	16 ^φ ×100 ^φ

表7 分析用試料製造における計測データ

成分	Line	入口ガス	出口ガス	再生ガス
		Line 0	Line 1	Line 2
濃度 (%)	$^{14}\text{NH}_3$	19.92658	0.26760	87.290
	$^{15}\text{NH}_3$	0.07320	0.02362	0.243
	He	80.00022	99.70878	12.466
	Total	100.00000	100.00000	100.00000
流量 (mLN/Batch)	$^{14}\text{NH}_3$	322.066	3.348	318.718
	$^{15}\text{NH}_3$	1.183	0.296	0.888
	He	1293.016	1247.497	45.518
	Total	1616.265	1251.141	365.124

は実測値

$$\frac{\text{出口}^{15}\text{NO}}{\text{出口}^{14}\text{NO} + \text{出口}^{15}\text{NO}}$$
→ 出口 ^{15}NO 濃度 0.079
$$\frac{\text{出口}^{15}\text{NO} / \text{出口}^{14}\text{NO}}{\text{入口}^{15}\text{NO} / \text{入口}^{14}\text{NO}}$$
→ ^{15}NO 分離係数 263

表 8 分析用試料に対する同位体比分析結果のまとめ
分析試料の化学形態はNOガス

$^{15}\text{N}/(^{14}\text{N}+^{15}\text{N})$
天然データ=0.00366

通し番号	MHI OnLine 四重極型 質量分析	東レリサーチ 高分解能 質量分析	日本酸素 高分解能 質量分析	総研大 フーリエ変換型 マイクロ波 分光分析
1	0.109	0.115		
2	0.067	0.194		
3	0.090	0.375		
4	0.073			0.035
5	0.122			0.022
6	0.068		0.035	
7	0.078		0.033	
8	0.099		0.024	

表 10 分析用試料製造結果を利用した吸着剤所要量のスケールアップ化

① 吸着剤	50 g	(20gのN15O濃度が10%の為50g で90%に達するとした。)	
② 原料NH ₃ 濃度	20 vol%		
③ 原料ガス流量	1.4 lN/batch		
	280 mlN/batch as NH ₃		
	1.022 mlN/batch as ¹⁵ NH ₃		
	16800 mlN/h/50g as NH ₃		
	840000 mlN/h/kg	=lN/h/Ton	NH ₃
	4200000 mlN/h/kg	=lN/h/Ton	He
④ 回収率	20 %		
	0.204 mlN/batch as ¹⁵ NH ₃		
同位体分離装置		→	245.3 lN/h/Ton
1分間に1batch (30sec吸着, 30sec再生)			
1時間	12.3 mlN/h/50g		
⑤ ¹⁵ NH ₃ 吸着剤負荷	245.3 mlN/h/kg	→	1576.8 kg/Year/Ton
⑥ 年間運転時間	8,000 h		
⑦ 1Tonの吸着剤による年間 ¹⁵ NH ₃ 吸着剤負荷			
	1962.2 m ³ N/Year/Ton		
⑧ 吸着剤1Tonの価格	10,000 千円		
⑨ 装置全体の価格	<u>200,000</u> 千円		
⑩ 年経費	17 %		
⑪ 減価償却費	34,000 千円		
⑫ ランニングコスト	16,000 千円	(@20円/kWh)	26.4 円/g
	<u>50,000</u> 千円		

表 11a) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 1500kg・ケース1)

15N濃縮費の評価法				
15Nの濃縮費	Ec			68.2 円/g-15N
年間変動費	T			28428000 円/年
年間固定費	Z			73920263.7 円/年
15N年間生産量	Pc			1500000 g-15N/年
建設費の評価法				
装置類購入・据付費	A1			80000000
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2			10000000
配管設備費	B	fb	0.6	
計測制御設備費	C	fc	0.14	
プラント建設費	D	fd	0.3	
分析装置費	E	fe	0.03	
サービス施設費	F	ff	0.3	
施設建設費	G			199600000 円
設計料	H	fh	0.4	75840000
敷地造成費	I	fi	0	0
運開準備金	J	fj	0.4	79840000
予備費	K	fk	0.25	49900000
運転資金	L			102290981
設備投資総額	M			507470981 円
減価償却費	U			40518000
減価償却対象額	Da			405180000
償却年数	nd		10	
固定資本に対する支払金利	V			226900.8
運転資金に対する支払金利	W			57282.9492
年間利子率	rv		0.08	
"	rw		0.08	
借入金比率	fv		0.7	
"	fw		0.7	
諸税引当金	X			22690080
諸税の総合税率	tx		0.08	
諸税の課税対象比率	fx		0.7	
間接税	Y			10428000
	fg1		1	
	fg2		0.55	
年間固定費	Z			73920263.7 円/年
運転費の評価法				
原料アンモニア購入費	N1			0
薬品購入費	N2			0
直接人件費	O			0
職種iの年収	ai		0	
職種iの人数	mi		0	
ユーティリティ費	P			16000000
ユーティリティの単価	api			
ユーティリティの年間所要量	pui			
運転維持費	Q	fq	0.05	9480000
消耗品費	R	fr	0.005	948000
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S			2000000
年間変動費	T			28428000 円/年

表 11b) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 1500kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		140.6 円/g-15N
年間変動費	T		88628000 円/年
年間固定費	Z		122245135 円/年
15N年間生産量	Pc		1500000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		80000000
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		10000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		199600000 円
設計料	H	fh	0.4 75840000
敷地造成費	I	fi	0 0
運開準備金	J	fj	0.4 79840000
予備費	K	fk	0.25 49900000
運転資金	L		210828860.7
設備投資総額	M		616008861 円
減価償却費	U		40518000
減価償却対象額	Da		405180000
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		138976.74
運転資金に対する支払金利	W		44274.0608
年間利率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		38005884
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		43538000
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		122245135 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		16000000
ユーティリティの単価	cpu		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 9480000
消耗品費	R	fr	0.005 948000
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		2000000
年間変動費	T		88628000 円/年

表 11c) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 3000kg・ケース 1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		58.0 円/g-15N
年間変動費	T		52940336 円/年
年間固定費	Z		121058145 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		129960383.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		20000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		328006109 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		173901097
設備投資総額	M		838313619 円
減価償却費	U		66441252.3
減価償却対象額	Da		664412523
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		372071.013
運転資金に対する支払金利	W		97384.6141
年間利率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		37207101.3
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		16940336
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		121058145 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		32000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 15400305.4
消耗品費	R	fr	0.005 1540030.54
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		4000000
年間変動費	T		52940336 円/年

表 11d) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 3000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		97.4 円/g-15N
年間変動費	T		113140336 円/年
年間固定費	Z		179102735 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		129960383.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		20000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		328006109 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		292181712.4
設備投資総額	M		956594235 円
減価償却費	U		66441252.3
減価償却対象額	Da		664412523
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		227893.495
運転資金に対する支払金利	W		61358.1596
年間利子率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		62321894.6
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		50050336
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		179102735 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		32000000
ユーティリティの単価	cpi		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 15400305.4
消耗品費	R	fr	0.005 1540030.54
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		4000000
年間変動費	T		113140336 円/年

表 11e) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 12000kg・ケース1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		42.9 円/g-15N
年間変動費	T		188705815 円/年
年間固定費	Z		326537233 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		342967508
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		80000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		892832994 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		514954673
設備投資総額	M		2313262311 円
減価償却費	U		179830764
減価償却対象額	Da		1798307638
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		1007052.28
運転資金に対する支払金利	W		288374.617
年間利子率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		100705228
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		44705814.7
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		326537233 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		128000000
ユーティリティiの単価	api		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 40641649.7
消耗品費	R	fr	0.005 4064164.97
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		16000000
年間変動費	T		188705815 円/年

表 11f) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 90%・年間生産量 12000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		56.3 円/g-15N
年間変動費	T		248905815 円/年
年間固定費	Z		427086583 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		342967508
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		80000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		892832994 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		675850469
設備投資総額	M		2474158107 円
減価償却費	U		179830764
減価償却対象額	Da		1798307638
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		616819.52
運転資金に対する支払金利	W		141928.598
年間利率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		168681256
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		77815814.7
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		427086583 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		128000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 40641649.7
消耗品費	R	fr	0.005 4064164.97
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		16000000
年間変動費	T		248905815 円/年

表 11g) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 1500kg・ケース 1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		110.7 円/g-15N
年間変動費	T		44940336 円/年
年間固定費	Z		121053665 円/年
15N年間生産量	Pc		1500000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		129960383.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		20000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		328006109 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		165901097
設備投資総額	M		830313619 円
減価償却費	U		66441252.3
減価償却対象額	Da		664412523
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		372071.013
運転資金に対する支払金利	W		92904.6141
年間利率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		37207101.3
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		16940336
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		121053665 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		24000000
ユーティリティの単価	cpu		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 15400305.4
消耗品費	R	fr	0.005 1540030.54
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		4000000
年間変動費	T		44940336 円/年

表 11h) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 1500kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法

15Nの濃縮費	Ec		189.5	円/g-15N
年間変動費	T		105140336	円/年
年間固定費	Z		179101055	円/年
15N年間生産量	Pc		1500000	g-15N/年

建設費の評価法

装置類購入・据付費	A1			129960383.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2			20000000
配管設備費	B	fb	0.6	
計測制御設備費	C	fc	0.14	
プラント建設費	D	fd	0.3	
分析装置費	E	fe	0.03	
サービス施設費	F	ff	0.3	
施設建設費	G			328006109 円
設計料	H	fh	0.4	123202443
敷地造成費	I	fi	0	0
運開準備金	J	fj	0.4	131202443
予備費	K	fk	0.25	82001527.2
運転資金	L			284181712.4
設備投資総額	M			948594235 円
減価償却費	U			66441252.3
減価償却対象額	Da			664412523
償却年数	nd		10	
固定資本に対する支払金利	V			227893.495
運転資金に対する支払金利	W			59678.1596
年間利子率	rv		0.049	
"	rw		0.03	
借入金比率	fv		0.7	
"	fw		0.7	
諸税引当金	X			62321894.6
諸税の総合税率	tx		0.134	
諸税の課税対象比率	fx		0.7	
間接税	Y			50050336
	fg1		1	
	fg2		0.55	
年間固定費	Z			179101055 円/年

運転費の評価法

原料アンモニア購入費	N1			0
薬品購入費	N2			0
直接人件費	O			60200000
職種iの年収	ai		60200000	
職種iの人数	mi		1	
ユーティリティ費	P			24000000
ユーティリティiの単価	cpi			
ユーティリティiの年間所要量	pui			
運転維持費	Q	fq	0.05	15400305.4
消耗品費	R	fr	0.005	1540030.54
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S			4000000
年間変動費	T			105140336 円/年

表 11i) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 3000kg・ケース 1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		94.0 円/g-15N
年間変動費	T		83519657 円/年
年間固定費	Z		198599222 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		211121265.7
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		40000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		540357400 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		281960981
設備投資総額	M		1373693650 円
減価償却費	U		109173267
減価償却対象額	Da		1091732670
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		611370.295
運転資金に対する支払金利	W		157898.149
年間利子率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		61137029.5
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		27519657
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		198599222 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		48000000
ユーティリティの単価	cpu		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05
消耗品費	R	fr	0.005
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		8000000
年間変動費	T		83519657 円/年

表 11j) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 3000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		138.8 円/g-15N
年間変動費	T		143719657 円/年
年間固定費	Z		272669336 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		211121265.7
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		40000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		540357400 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		416301569.6
設備投資総額	M		1508034239 円
減価償却費	U		109173267
減価償却対象額	Da		1091732670
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		374464.306
運転資金に対する支払金利	W		87423.3296
年間利率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		102404524
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		60629657
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		272669336 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		48000000
ユーティリティの単価	cpi		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05
消耗品費	R	fr	0.005
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		8000000
年間変動費	T		143719657 円/年

表 11k) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 12000kg・ケース1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		69.6 円/g-15N
年間変動費	T		296624810 円/年
年間固定費	Z		538220039 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		557152360.5
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		160000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		1480451094 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		834377598
設備投資総額	M		3805302342 円
減価償却費	U		297092474
減価償却対象額	Da		2970924744
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		1663717.86
運転資金に対する支払金利	W		467251.455
年間利子率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		166371786
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		72624810.2
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		538220039 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種lの年収	al		0
職種lの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		192000000
ユーティリティlの単価	cpi		
ユーティリティlの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 66022554.7
消耗品費	R	fr	0.005 6602255.47
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		32000000
年間変動費	T		296624810 円/年

表 111) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99%・年間生産量 12000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		86.6 円/g-15N
年間変動費	T		356824810 円/年
年間固定費	Z		682737315 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		557152360.5
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		160000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		1480451094 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		1039343863
設備投資総額	M		4010268606 円
減価償却費	U		297092474
減価償却対象額	Da		2970924744
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		1019027.19
運転資金に対する支払金利	W		218262.211
年間利率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		278672741
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		105734810
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		682737315 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		192000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 66022554.7
消耗品費	R	fr	0.005 6602255.47
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		32000000
年間変動費	T		356824810 円/年

表 11m) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 1500kg・ケース1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		150.8 円/g-15N
年間変動費	T		64500175.3 円/年
年間固定費	Z		161674414 円/年
15N年間生産量	Pc		1500000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		172613542.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		30000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		439094095 円
設計料	H	fh	0.4 163637638
敷地造成費	I	fi	0 0
運開準備金	J	fj	0.4 175637638
予備費	K	fk	0.25 109773524
運転資金	L		226048002
設備投資総額	M		1114190898 円
減価償却費	U		88814289.6
減価償却対象額	Da		888142896
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		497360.022
運転資金に対する支払金利	W		126586.881
年間利子率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		49736002.2
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		22500175.3
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		161674414 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		36000000
ユーティリティの単価	cpi		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 20454704.8
消耗品費	R	fr	0.005 2045470.48
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		6000000
年間変動費	T		64500175.3 円/年

表 11n) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 1500kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		235.2 円/g-15N
年間変動費	T		124700175 円/年
年間固定費	Z		228110976 円/年
15N年間生産量	Pc		1500000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		172613542.4
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		30000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		439094095 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		352737076.7
設備投資総額	M		1240879972 円
減価償却費	U		88814289.6
減価償却対象額	Da		888142896
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		304633.013
運転資金に対する支払金利	W		74074.7861
年間利子率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		83307803.6
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		55610175.3
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		228110976 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		36000000
ユーティリティの単価	cpi		
ユーティリティの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 20454704.8
消耗品費	R	fr	0.005 2045470.48
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		6000000
年間変動費	T		124700175 円/年

表 11o) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 3000kg・ケース 1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		128.7 円/g-15N
年間変動費	T		120551643 円/年
年間固定費	Z		265561304 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		280411526.9
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		60000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		724575319 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		385896844
設備投資総額	M		1847276248 円
減価償却費	U		146137940
減価償却対象額	Da		1461379404
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		818372.466
運転資金に対する支払金利	W		216102.233
年間利率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		81837246.6
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		36551642.5
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		265561304 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		72000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 33228765.9
消耗品費	R	fr	0.005 3322876.59
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		12000000
年間変動費	T		120551643 円/年

表 11p) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 3000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		178.1 円/g-15N
年間変動費	T		180751643 円/年
年間固定費	Z		353490391 円/年
15N年間生産量	Pc		3000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		280411526.9
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		60000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		724575319 円
設計料	H	fh	0.4 265830128
敷地造成費	I	fi	0 0
運開準備金	J	fj	0.4 289830128
予備費	K	fk	0.25 181143830
運転資金	L		534129866.6
設備投資総額	M		1995509270 円
減価償却費	U		146137940
減価償却対象額	Da		1461379404
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		501253.135
運転資金に対する支払金利	W		112167.272
年間利子率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		137077388
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		69661642.5
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		353490391 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種lの年収	ai		60200000
職種lの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		72000000
ユーティリティiの単価	api		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 33228765.9
消耗品費	R	fr	0.005 3322876.59
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		12000000
年間変動費	T		180751643 円/年

表 11q) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 12000kg・ケース1)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		96.2 円/g-15N
年間変動費	T		432460363 円/年
年間固定費	Z		721990810 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		740010456.1
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		240000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		1993824781 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		1153805042
設備投資総額	M		5145145842 円
減価償却費	U		399134080
減価償却対象額	Da		3991340801
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		2235150.85
運転資金に対する支払金利	W		646130.823
年間利子率	rv		0.08
"	rw		0.08
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		223515085
諸税の総合税率	tx		0.08
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		96460362.9
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		721990810 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		0
職種iの年収	ai		0
職種iの人数	mi		0
ユーティリティ費	P		288000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05
消耗品費	R	fr	0.005
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		48000000
年間変動費	T		432460363 円/年

表 11r) 濃縮度、年間生産量、ファクター等の組合せ毎の製造コスト評価結果
(濃縮度 99.9%・年間生産量 12000kg・ケース 2)

15N濃縮費の評価法			
15Nの濃縮費	Ec		116.5 円/g-15N
年間変動費	T		492660363 円/年
年間固定費	Z		904754636 円/年
15N年間生産量	Pc		12000000 g-15N/年
建設費の評価法			
装置類購入・据付費	A1		740010456.1
初期充填ゼオライト吸着剤費	A2		240000000
配管設備費	B	fb	0.6
計測制御設備費	C	fc	0.14
プラント建設費	D	fd	0.3
分析装置費	E	fe	0.03
サービス施設費	F	ff	0.3
施設建設費	G		1993824781 円
設計料	H	fh	0.4
敷地造成費	I	fi	0
運開準備金	J	fj	0.4
予備費	K	fk	0.25
運転資金	L		1397121603
設備投資総額	M		5388462404 円
減価償却費	U		399134080
減価償却対象額	Da		3991340801
償却年数	nd		10
固定資本に対する支払金利	V		1369029.89
運転資金に対する支払金利	W		293395.537
年間利率率	rv		0.049
"	rw		0.03
借入金比率	fv		0.7
"	fw		0.7
諸税引当金	X		374387767
諸税の総合税率	tx		0.134
諸税の課税対象比率	fx		0.7
間接税	Y		129570363
	fg1		1
	fg2		0.55
年間固定費	Z		904754636 円/年
運転費の評価法			
原料アンモニア購入費	N1		0
薬品購入費	N2		0
直接人件費	O		60200000
職種iの年収	ai		60200000
職種iの人数	mi		1
ユーティリティ費	P		288000000
ユーティリティiの単価	cpi		
ユーティリティiの年間所要量	pui		
運転維持費	Q	fq	0.05 87691239
消耗品費	R	fr	0.005 8769123.9
取替・補充ゼオライト吸着剤費	S		48000000
年間変動費	T		492660363 円/年

表 1 2 製造コスト評価結果のまとめ
単位：円/g

ケース1

生産規模 kg/年	濃縮度 90.0%	濃縮度 99.0%	濃縮度 99.9%
1500	68	111	151
3000	58	94	129
12000	43	70	96

ケース2

生産規模 kg/年	濃縮度 90.0%	濃縮度 99.0%	濃縮度 99.9%
1500	141	190	235
3000	97	139	178
12000	56	87	117

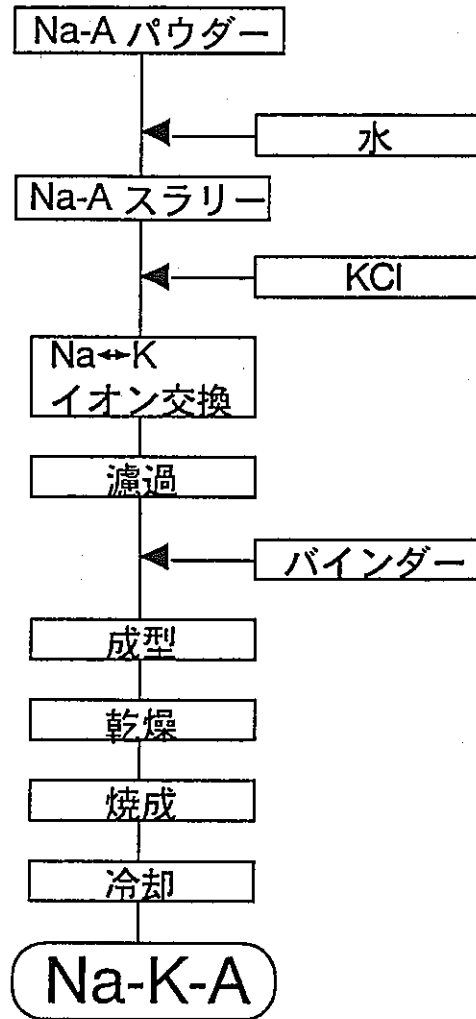
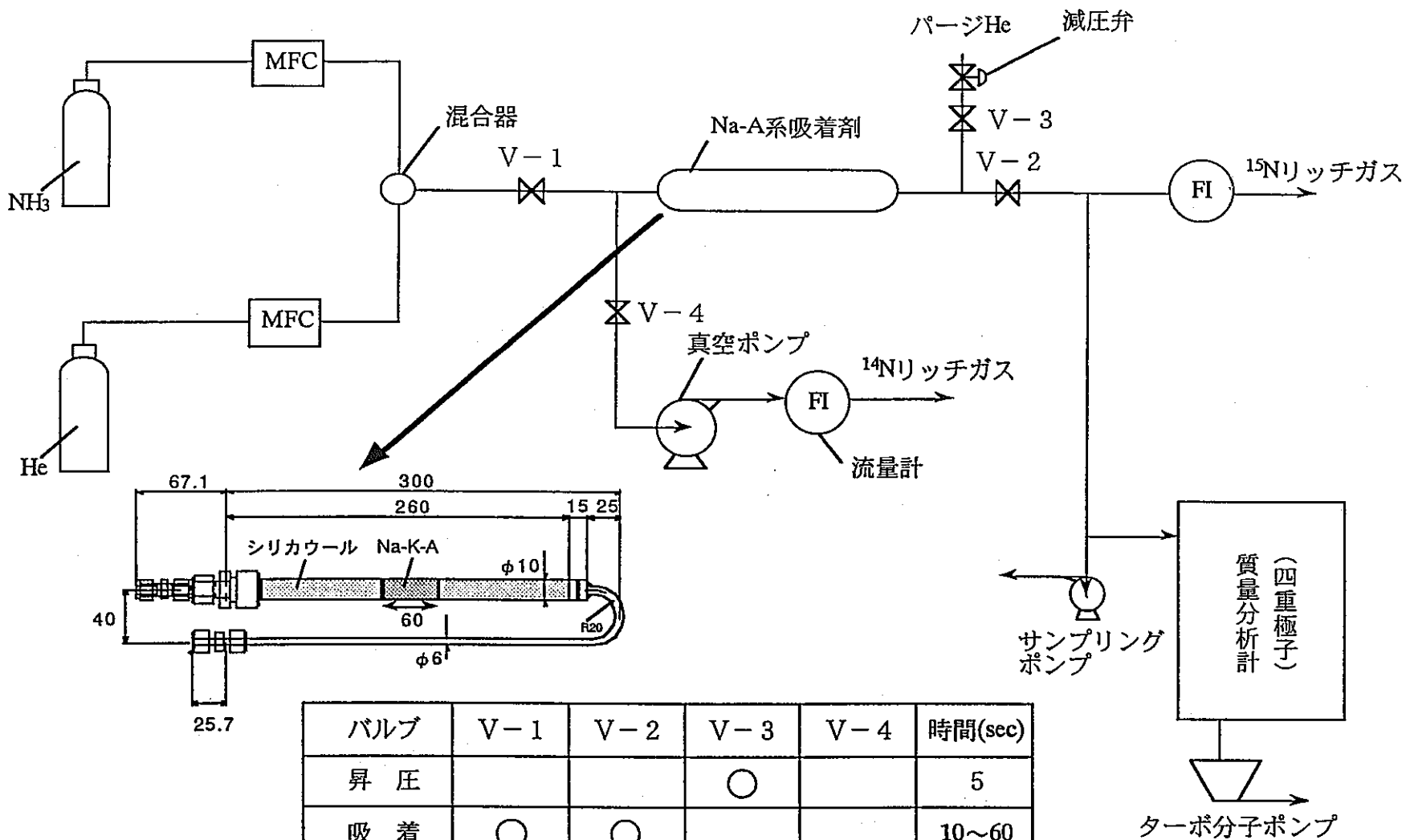


図1 吸着剤調整プロセス



バルブ	V-1	V-2	V-3	V-4	時間(sec)
昇圧			○		5
吸着	○	○			10~60
減圧				○	30
パージ			○	○	90

図2 スクリーニング試験における実験装置

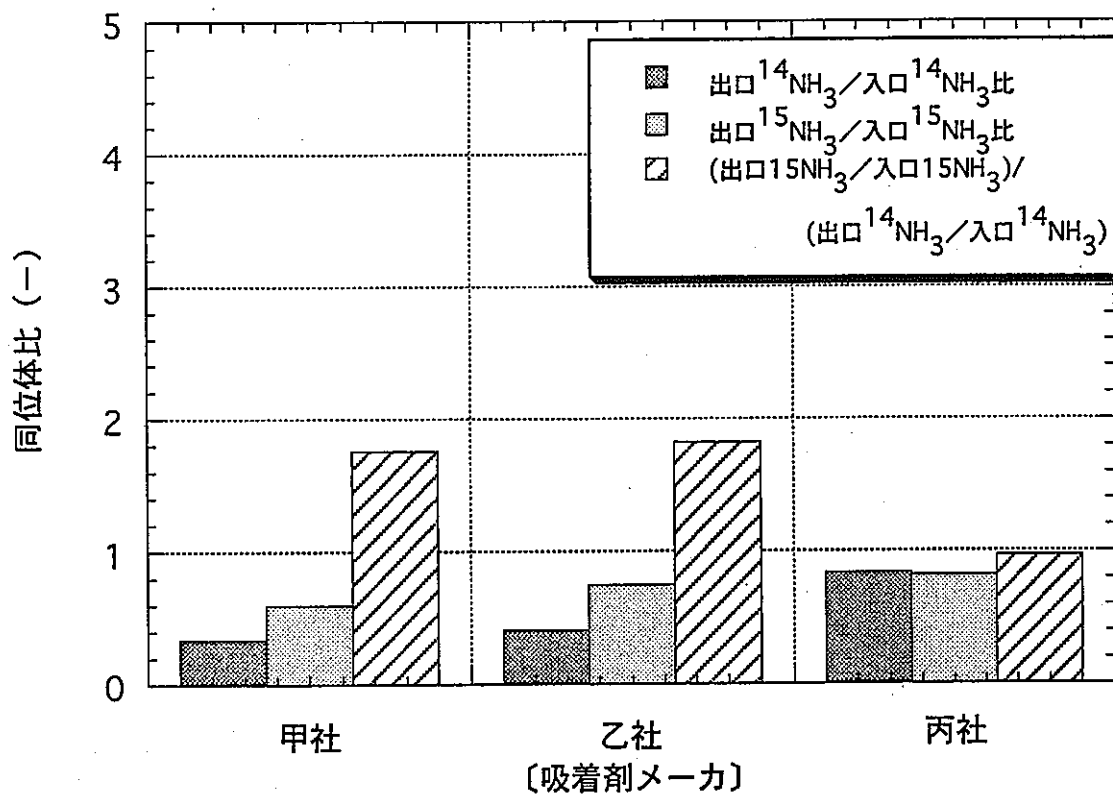
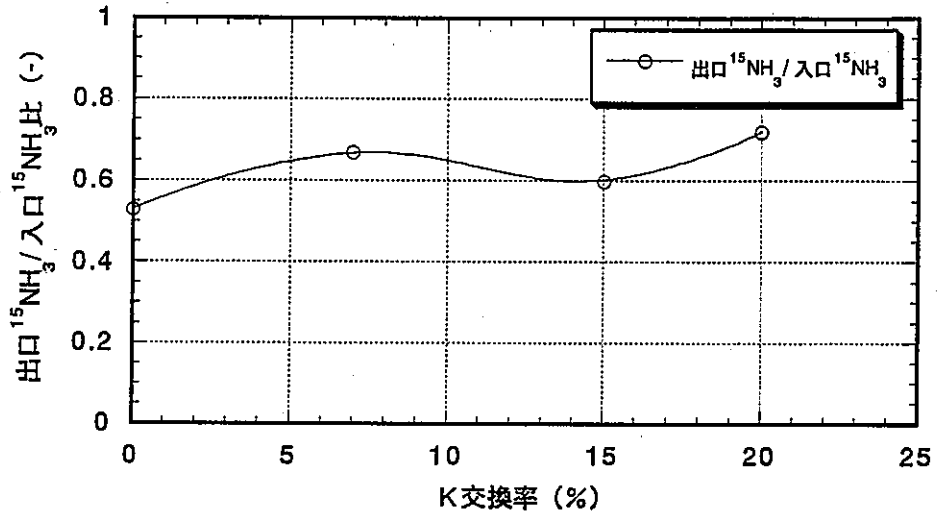
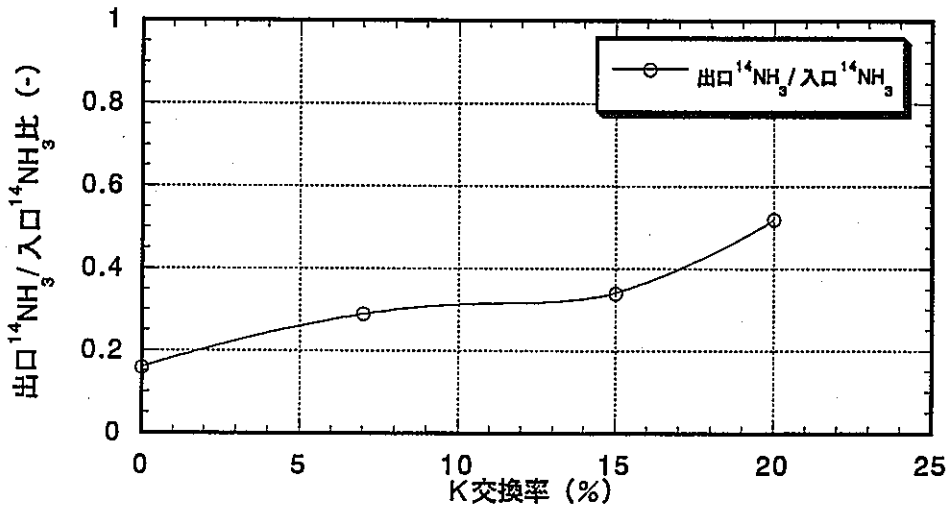


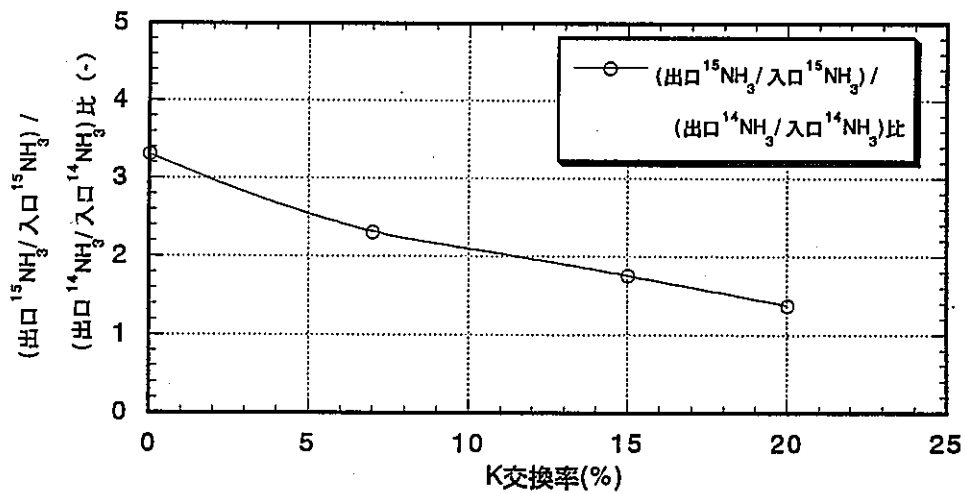
図3 原料粉末による分離性能の比較検討



a) 出口 $^{15}\text{NH}_3$ / 入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比の K 交換率依存性

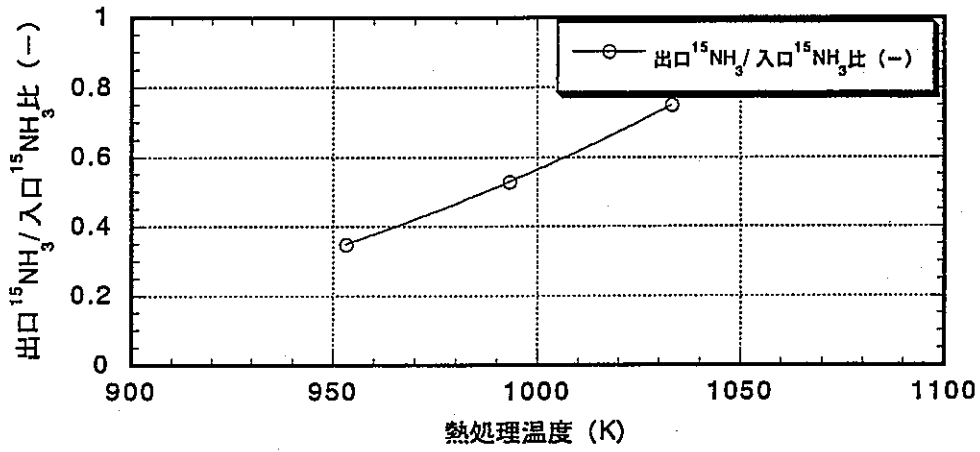


b) 出口 $^{14}\text{NH}_3$ / 入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比の K 交換率依存性

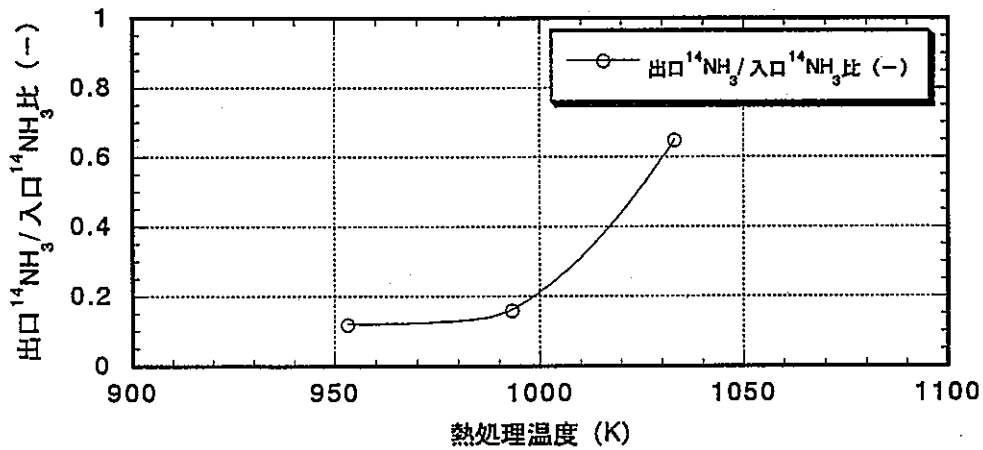


c) (出口 $^{15}\text{NH}_3$ / 入口 $^{15}\text{NH}_3$) / (出口 $^{14}\text{NH}_3$ / 入口 $^{14}\text{NH}_3$) 比の K 交換率依存性

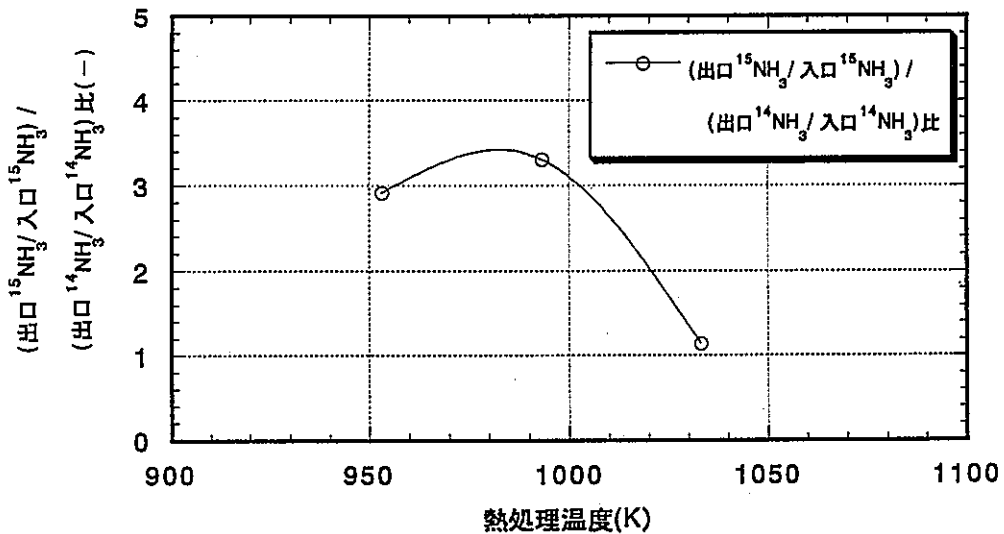
図 4 分離性能に及ぼす K 交換率の影響



a) 出口¹⁵NH₃/入口¹⁵NH₃比の熱処理温度依存性

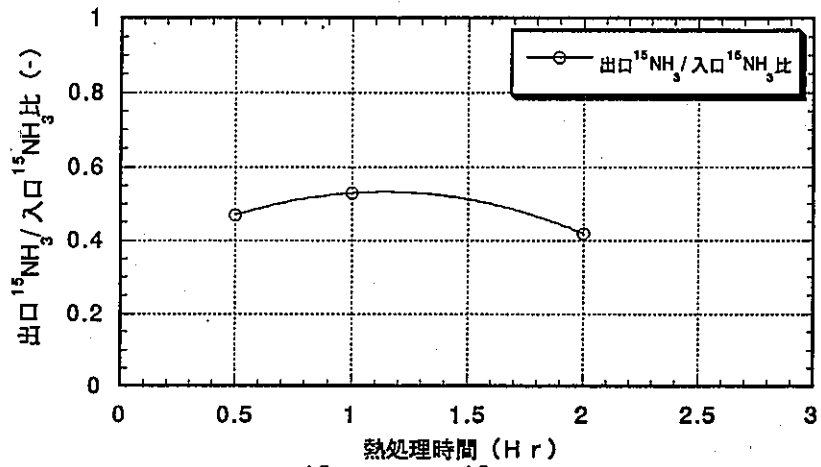


b) 出口¹⁴NH₃/入口¹⁴NH₃比の熱処理温度依存性

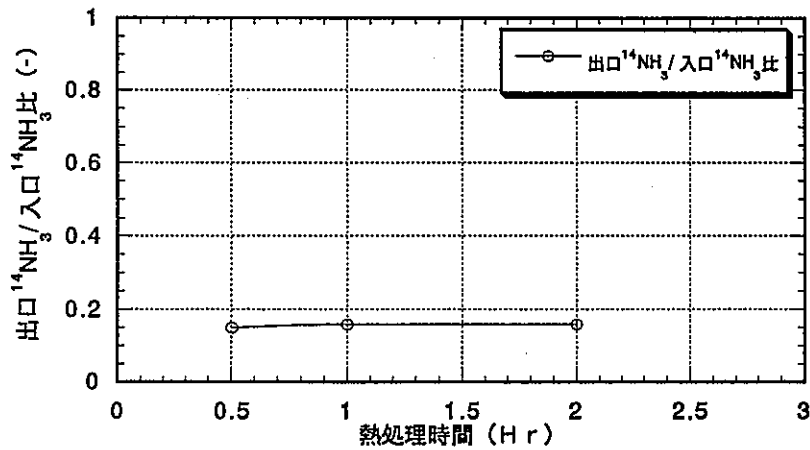


c) (出口¹⁵NH₃/入口¹⁵NH₃)/(出口¹⁴NH₃/入口¹⁴NH₃)比の熱処理温度依存性

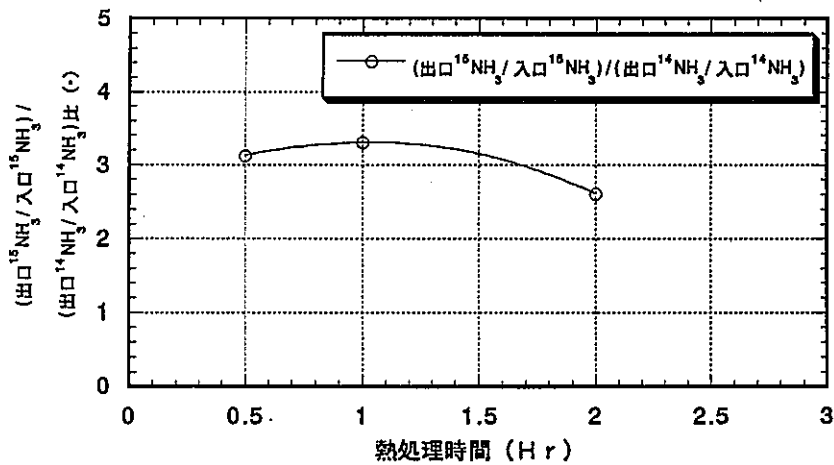
図5 分離性能に及ぼす熱処理温度の影響



a) 出口 $^{15}\text{NH}_3$ /入口 $^{15}\text{NH}_3$ 比と熱処理時間の関係



b) 出口 $^{14}\text{NH}_3$ /入口 $^{14}\text{NH}_3$ 比と熱処理時間の関係



c) $(\text{出口}^{15}\text{NH}_3/\text{入口}^{15}\text{NH}_3) / (\text{出口}^{14}\text{NH}_3/\text{入口}^{14}\text{NH}_3)$ 比の熱処理時間との関係

図 6 分離性能に及ぼす熱処理時間の影響

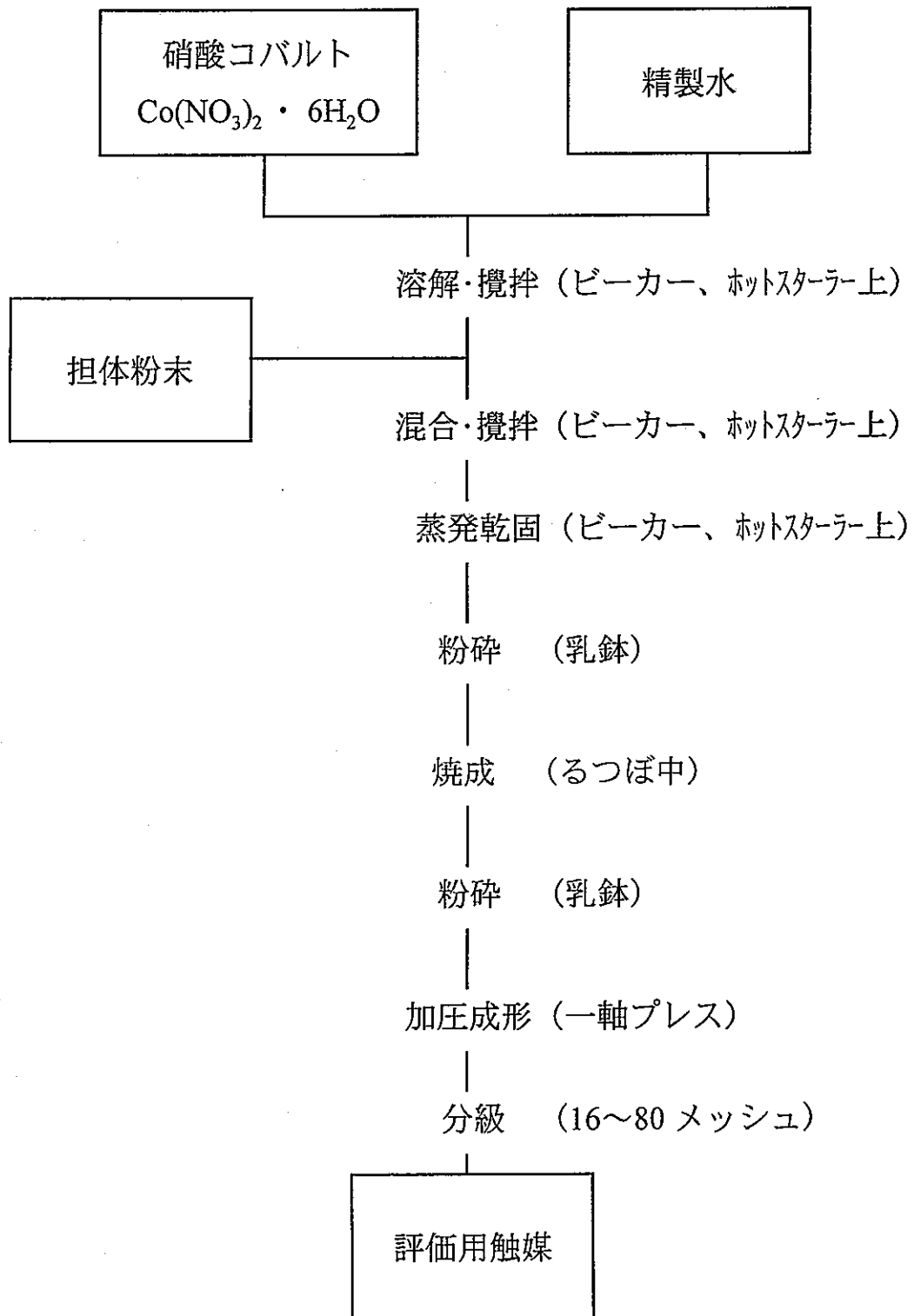


図7 アンモニア/一酸化窒素転換触媒の調整プロセス

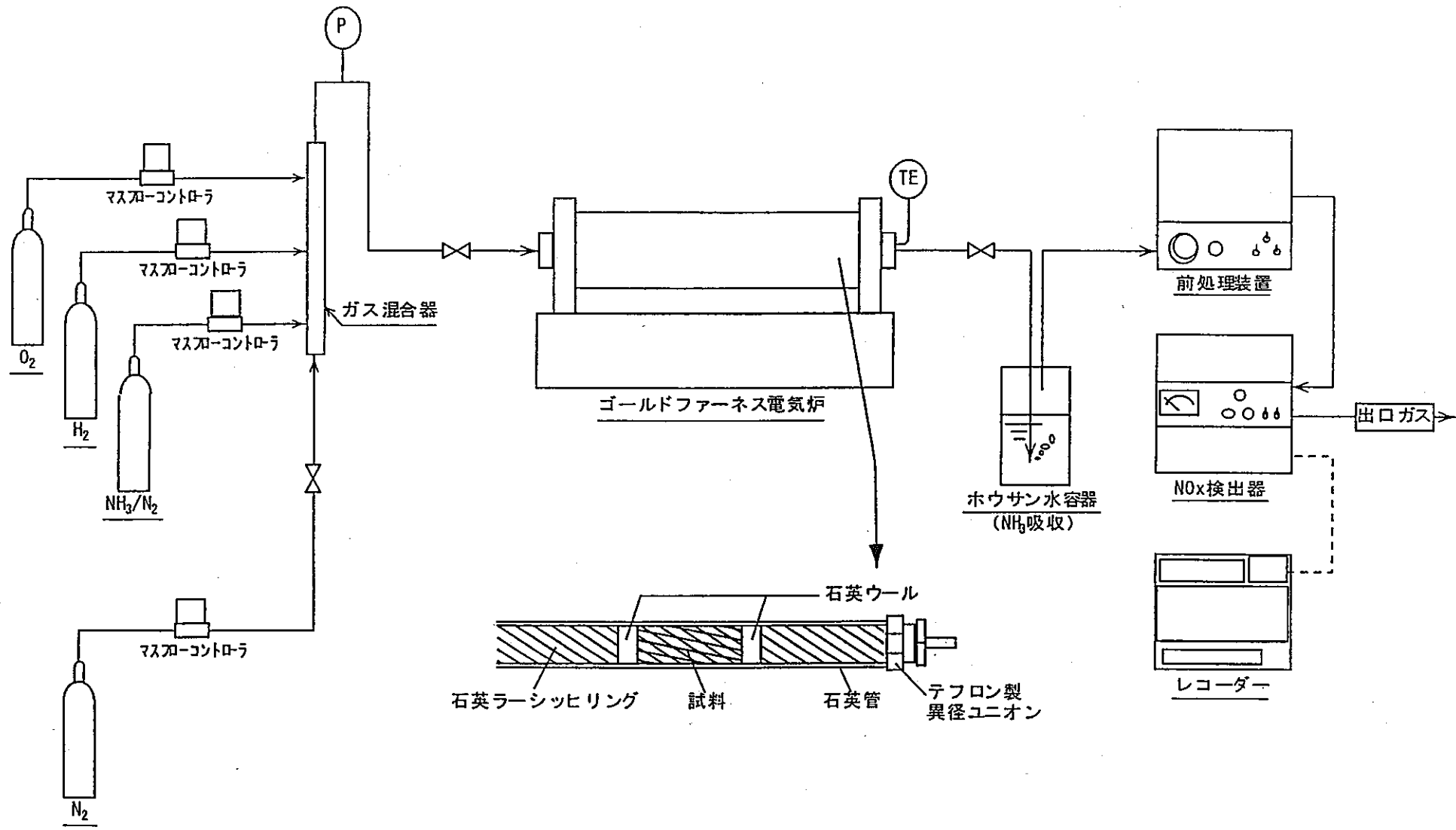


図8 アンモニア/一酸化窒素転換のための装置レイアウト

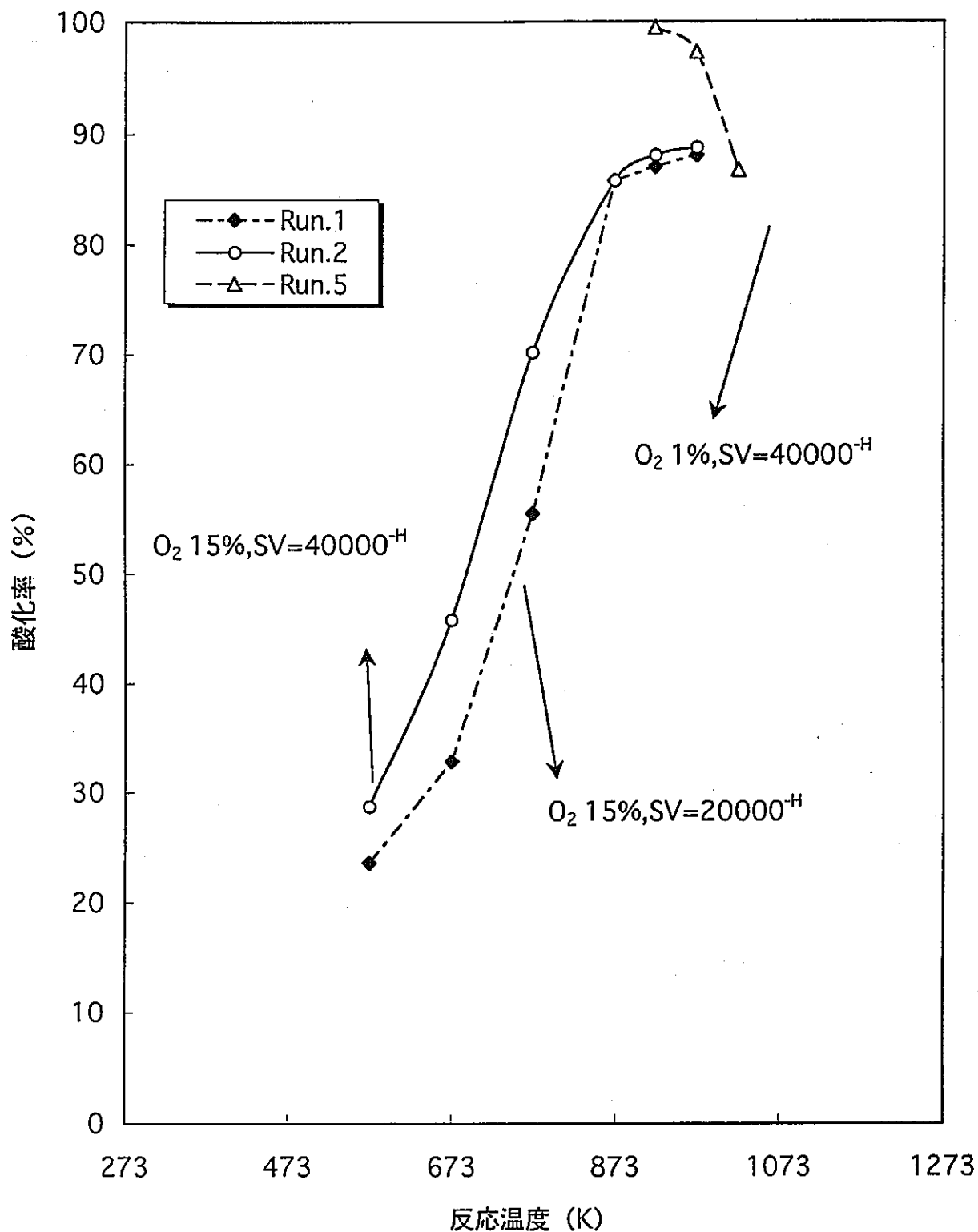


図9 アンモニア/一酸化窒素酸化率に及ぼす反応温度の影響

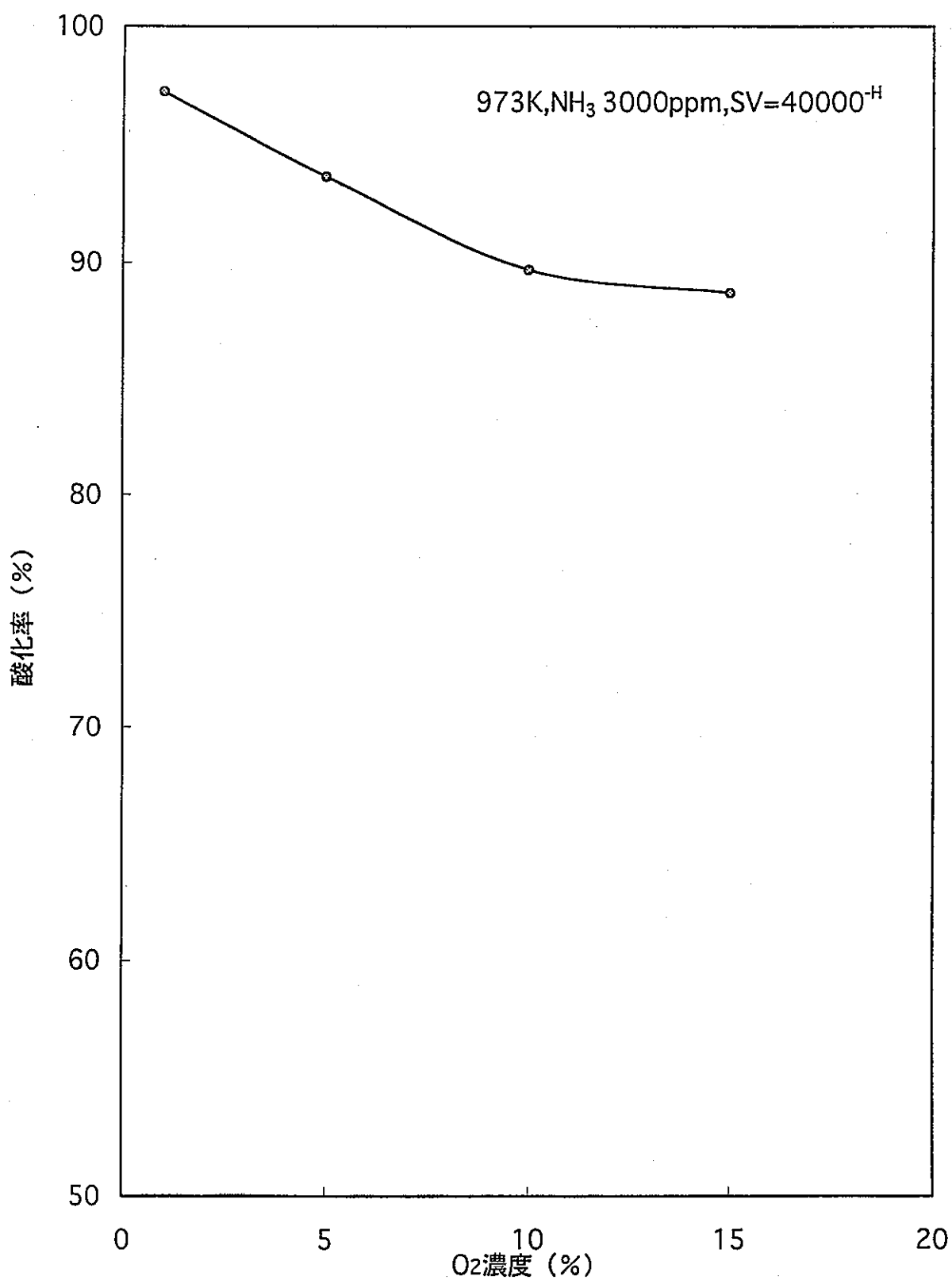
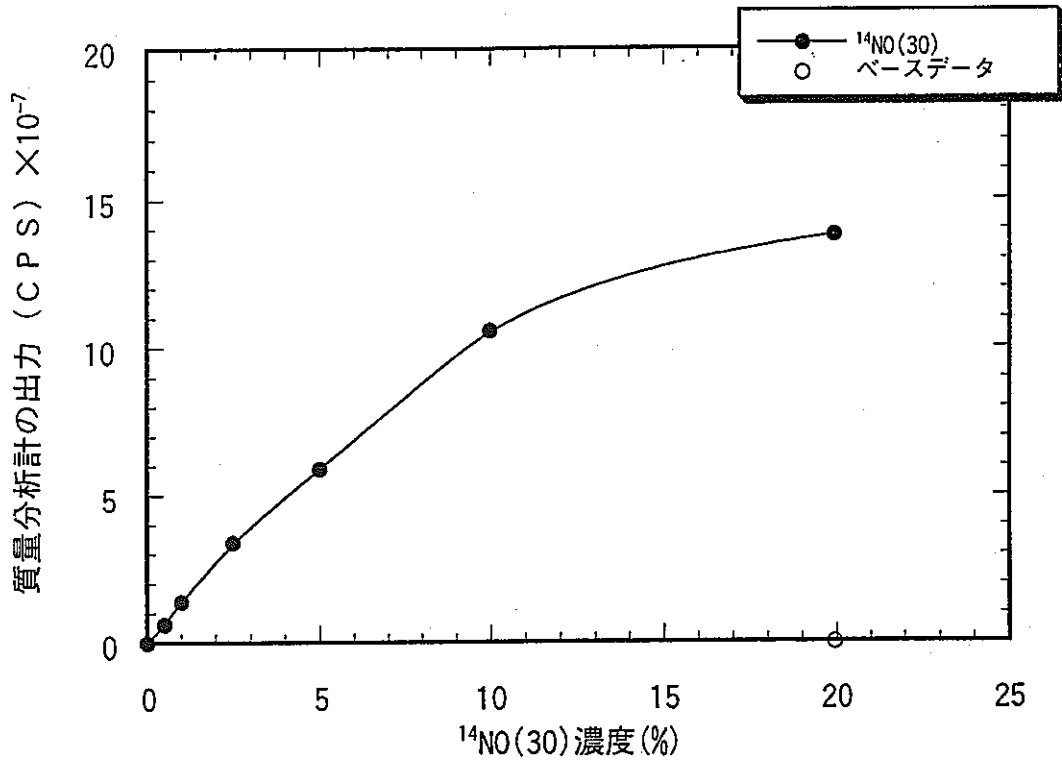
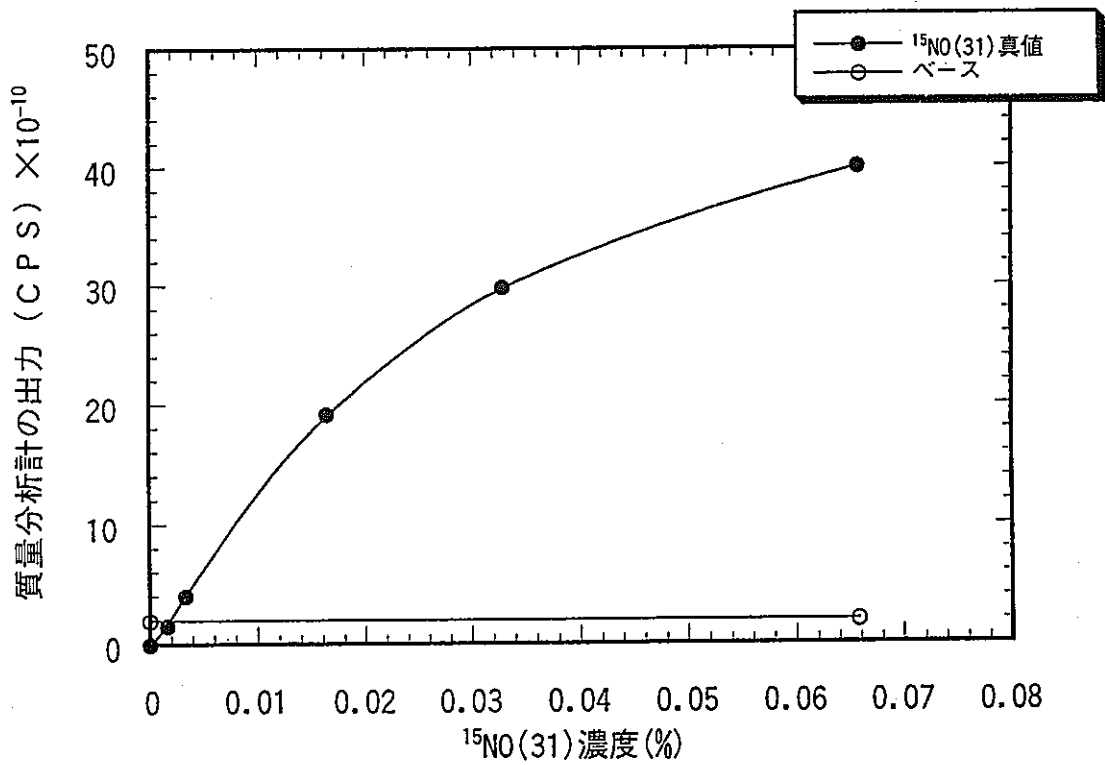


図10 アンモニア/一酸化窒素酸化率に及ぼす酸素濃度の影響



a) $^{14}\text{NO}(30)$ 検量線



b) $^{15}\text{NO}(31)$ 検量線

図 11 四重極型質量分析に使用する一酸化窒素計数值用検量線

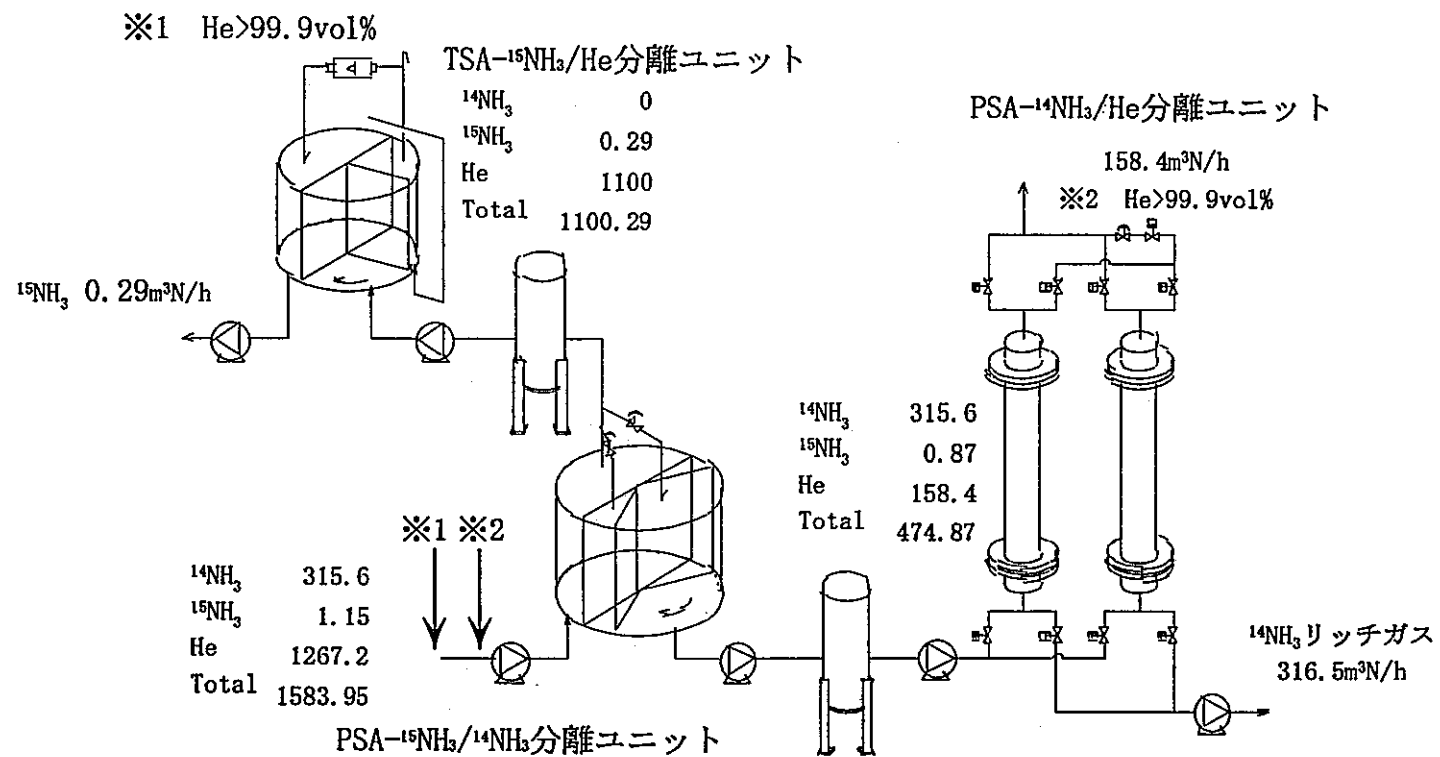
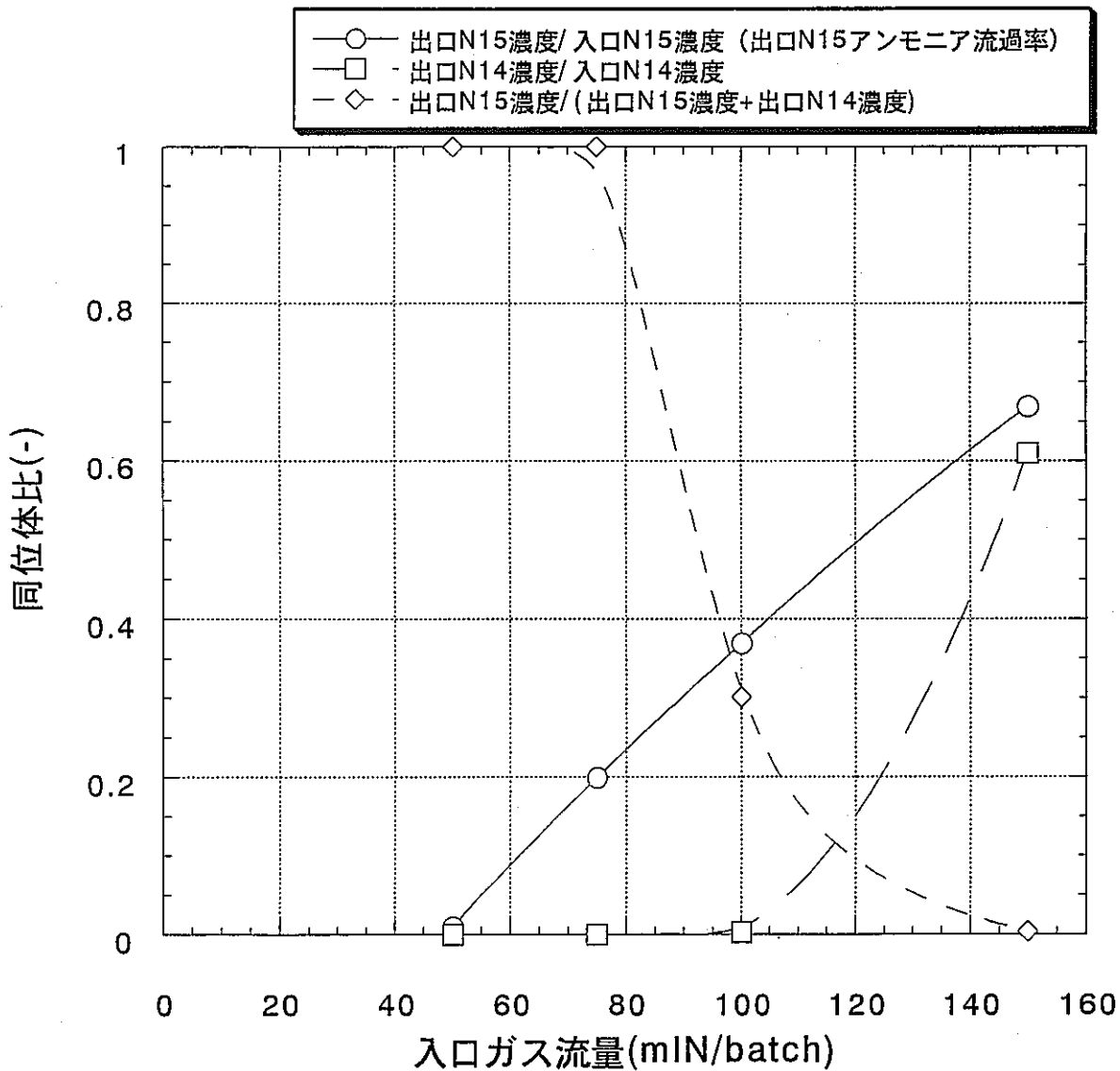


図 12 アンモニアを利用した窒素同位体分離装置フローシート



(温度298K, 空塔速度6cm/sec)

図 13 供給ガス量と吸着剤重量に依存した流過率・¹⁵NH₃濃度・¹⁴NH₃濃度の変化