

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。
2001. 6. 6

[技術情報室]

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)

1993年4月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

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大字村松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)
2001



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)

委託先 石田 孝信^{*1}
William Spindel *2
担当責任者 長井修一朗^{*3}、上村勝一郎^{*4}
担当者 佐藤 俊一^{*5}、遠藤 秀男^{*4}
翻訳者 遠藤 秀男^{*4}、森平 正之^{*4}、川瀬 啓一^{*4}

要旨

現在動燃内で窒化物燃料の実用性評価研究を進めている。窒化物燃料の窒素に天然窒素を使用した場合、炉内での¹⁴Nの(n, p)反応による¹⁴Cの発生と増殖比の低下を招くことになるため、窒化物燃料としての特性を活かすためには¹⁵Nを使用する必要がある。ところが、現在の¹⁵N生産量は小さく価格も約11万円/gと非常に高価である。そのため、生産量を大きくした場合の¹⁵N濃縮コスト評価の必要性が生じ、¹⁵N濃縮研究の第一人者である米国在住の石田孝信教授及びDr. W. Spindelに委託研究としてコスト評価をお願いした。本報告書は委託研究の初年度分の成果報告書(英文)を和訳したものである。なお、初年度分の評価に当たっての¹⁵N生産量を50kg/年及び100kg/年に設定した。また、NITROX法の交換反応は



と表わせる。

*1 ニューヨーク州立大学ストーニー・ブルック校化学部教授

*2 米国科学アカデミー顧問

*3 核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室(現大洗工学センター燃料材料開発部)

*4 核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室

*5 核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室(現プルトニウム燃料工場製造課)

1. Report No.1

A Chemical Exchange System for Producing 50kg/y of Highly Enriched Nitrogen-15
(January 31, 1992)

2. Report No.2

Theory of Two-Section Square Cascade and Cost Estimation Program for Production
of 100kg/y of Highly Enriched Nitrogen-15 (August, 1992)
(理論の基礎的解説を含む)

3. Report No.3

A Chemical Exchange System for Producing 100kg/y of Highly Enriched Nitrogen
-15 (August, 1992)

4. Appendix for Report No.3

付録 1. T. I. Taylor and W. Spindel, "Preparation of Highly Enriched Nitrogen-15
by Chemical Exchange of NO with HNO₃", Proceedings of The Symposium on
Isotope Separation, Amsterdam, 1957. (和訳及び原文)
2. NITROX法を理解するための平易な解説

謝 辞

Report No.1

A Chemical Exchange System for
Producing 50kg/y of Highly Enriched
Nitrogen-15

[50kg／年規模の高濃縮窒素15
生産用化学交換システム]

1992年 1月31日

目 次

I. 要 旨	1-1
II. 序 章	1-2
NO-HNO ₃ システム(Nitrox)の主反応	1-2
III. プロセスの解説と評価の基礎	1-4
III-A. 最適化手法のアウトライン	1-4
III-B. 装置の内容(description) 及びコストの見積り	1-6
タンク及び熱交換器	1-7
コラム	1-7
ポンプ	1-8
物価上昇値	1-8
III-C. 化学薬品のコストについて	1-12
III-D. 最適化のための入力データの概要	1-12
装 置	1-12
化学物質	1-12
III-E. 最適化で用いられるコストの項目	1-13
IV. 結果及び考察	1-16
V. 結 論	1-25
V-A. 主要コスト項目	1-25
V-B. 可能な付加的研究	1-29
VI. 参考文献	1-30
Appendix. ¹⁵ Nコストに影響を及ぼす種々のパラメータの追解析	1-31

I. 要 旨

自然界の¹⁵Nの存在比 0.366%である供給原料をNitroxプロセスを用いて99%の存在比に濃縮された¹⁵Nを50kg/y (9.14 g · mol/day)生産できる2段化学交換カスケードの最初のコスト評価を行う。使われる化学物質、副産物売却による収入、全設備費、プラント建設費、固定ないしは運転資本の利息、減価償却といった様々なファクターの最終製品コストに及ぼす影響を評価する。10年償却のプラントでは、副産物硫酸のクレジットを考えなければ製品コストは1990年のドル価値換算で24ドル/g¹⁵Nと見積もられ、クレジットを考えれば19ドル/g¹⁵Nである。15年償却のプラントでは、硫酸のクレジットを考えなければ22.5ドル/g¹⁵N、考えれば17.5ドル/g¹⁵Nである。

分離ステージ数やカスケードにおける気体と液体の流量、そして製品還流に用いられる物質（二酸化硫黄（亜硫酸ガス））と売却可能な副産物（硫酸）の量やコストのようなカスケードの運転条件から計算によって直接求めることのできるコストファクターは既知量である。しかし、設備・施設は仕様によって変化し、また与えられた外径のコラムの同位体分離ステージの高さを求めるには実験が必要であり、それらのコストファクターは不正確である。データインプットの際のそれらの不正確さが製品コストに与える不正確さは±15%のオーダーであると見積もっている。

II. 序 章

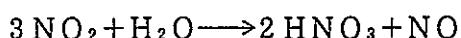
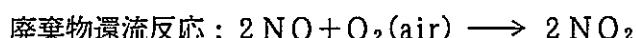
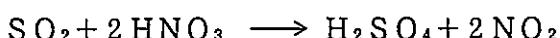
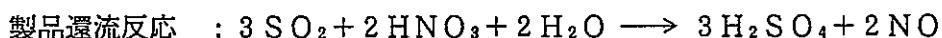
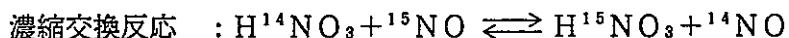
35年前、（均質）原子炉に使用可能な¹⁵Nの大規模生産手法としていくつかのプロセスが考えられた。¹ 研究されたプロセスはガス拡散、気液化学交換プロセス（何種類かある）、イオン交換、そして遠心法である。それらの中で化学交換プロセスが最も有望であると考えられた。一ステージ当たりの分離係数の大きさとサイクルを閉じるための製品還流と廃棄物還流に用いられる化学物質の経済性より、最も新しく開発された硫酸-窒素酸化物交換プロセス² が他の交換プロセスよりも経済的であると考えられた。

約15年前には、液体金属高速増殖炉における混合窒化物燃料で¹⁵Nを使用するとポテンシャルが高くなると考えられたため、多くのプロセス、つまり化学交換、低温留分、レーザーによる同位体分離（L I S）について、技術の難易度、資本費そして¹⁵N濃縮コストが評価された。³ 最も低コストと評価されたプロセスは、またもNO-HNO₃交換（Nitrox）による化学交換であった。¹⁵N濃縮に適用できると考えられる他のプロセス、つまり電磁気分離、熱拡散、質量拡散、ガス遠心法、そしてガス拡散についても当時考慮されたが、Nitroxプロセスによる化学交換法に太刀打ちできないと評価された。

今回の評価は、二酸化硫黄による製品還流を付加したNitroxプロセスに基づくものである。

一ステージ当たりの濃縮係数 α は、25°CのHNO₃ 10モルで1気圧のとき、 $\alpha = 1.055$ である。¹⁵Nが濃縮された硝酸溶液は、それぞれの濃縮コラムの下端でSO₂との反応により製品還流塔においてNOガスに転換される。1つ目の濃縮コラムの上端を出た窒素酸化物は、廃棄される前に空気と水との反応により廃棄物還流塔において硫酸に転換される。プロセスの主反応を以下に示す。

NO-HNO₃ システム(Nitrox)の主反応



また、今回の評価は以下の仮定の下に行われた。

- (a) 供給物質である硝酸のコストは0とした。したがって、同位体ストリッピングセクション (stripping section)を考えなかった。
- (b) 用地取得のコストを0とした。
- (c) 人件費を0とした。
- (d) 金利を8%とし、プラントへの投資や他の資本の減価償却の70%まで適用するとした。

2つの償却期間、すなわち10年と15年を考えた。

III. プロセスの解説と評価の基礎

2つの濃縮塔(ストリッピングコラムはない)の保守的な設計が50kg/y (9.1385 g · mol/day)の生産規模で行われた。フィードの¹⁵N存在比は自然界のそれの0.366a/oであり、濃縮度は99a/oである。図-1にフローダイアグラムと主な設備の配置を図示する。最適化手法とコスト評価手法のアウトラインと主な設備の内容についてこの章で述べる。

III-A. 最適化手法のアウトライン

物質バランス(material balances), それぞれの濃縮塔のステージ数, 液体・気体の流量, 熱交換器は, 確立された同位体分離理論⁴ を用いて特に開発されたコンピュータプログラムによって最適化された。

上で述べた分離作業の設計に必要な条件となるカスケードパラメータは以下のとおりである。

カスケードのテーパーポイント (taper point), すなわち, コラム外径と液体・気体流量が削減されるポイントの同位体濃縮度。

濃縮塔 (2つある) の還流比 R_1 と R_2 。還流比はコラムのガス流量と同じコラムからの製品流量で割った値と定義される。還流比 R_1 , R_2 は, 無限ステージ数を用いて必要な同位体濃縮度を得るために必要な $R_{1,\min}$ と $R_{2,\min}$ (最小許容還流比) に比例する (そしてそれよりも大きい)。最小値 $R_{2,\min}$ は製品の濃縮度とテーパーポイントによって決定される。パラメータ k_2 は,

$$k_2 = R_2 / R_{2,\min}$$

と定義され R_2 を決める条件である。そして, R_2 と供給物質, 製品及びテーパーポイントの濃縮度が $R_{1,\min}$ を決める。パラメータ k_1 は,

$$k_1 = R_1 / R_{1,\min}$$

と定義され R_1 を決める。

3つの可変パラメータ (テーパーポイントの濃縮度, k_1 , k_2) と 3つの固定パラメータ (供給物質と製品の濃縮度, 製造量) が他のすべてのカスケードパラメータ, つまり 2つのカスケード濃縮塔のステージ数とカスケード中の流量を決める。

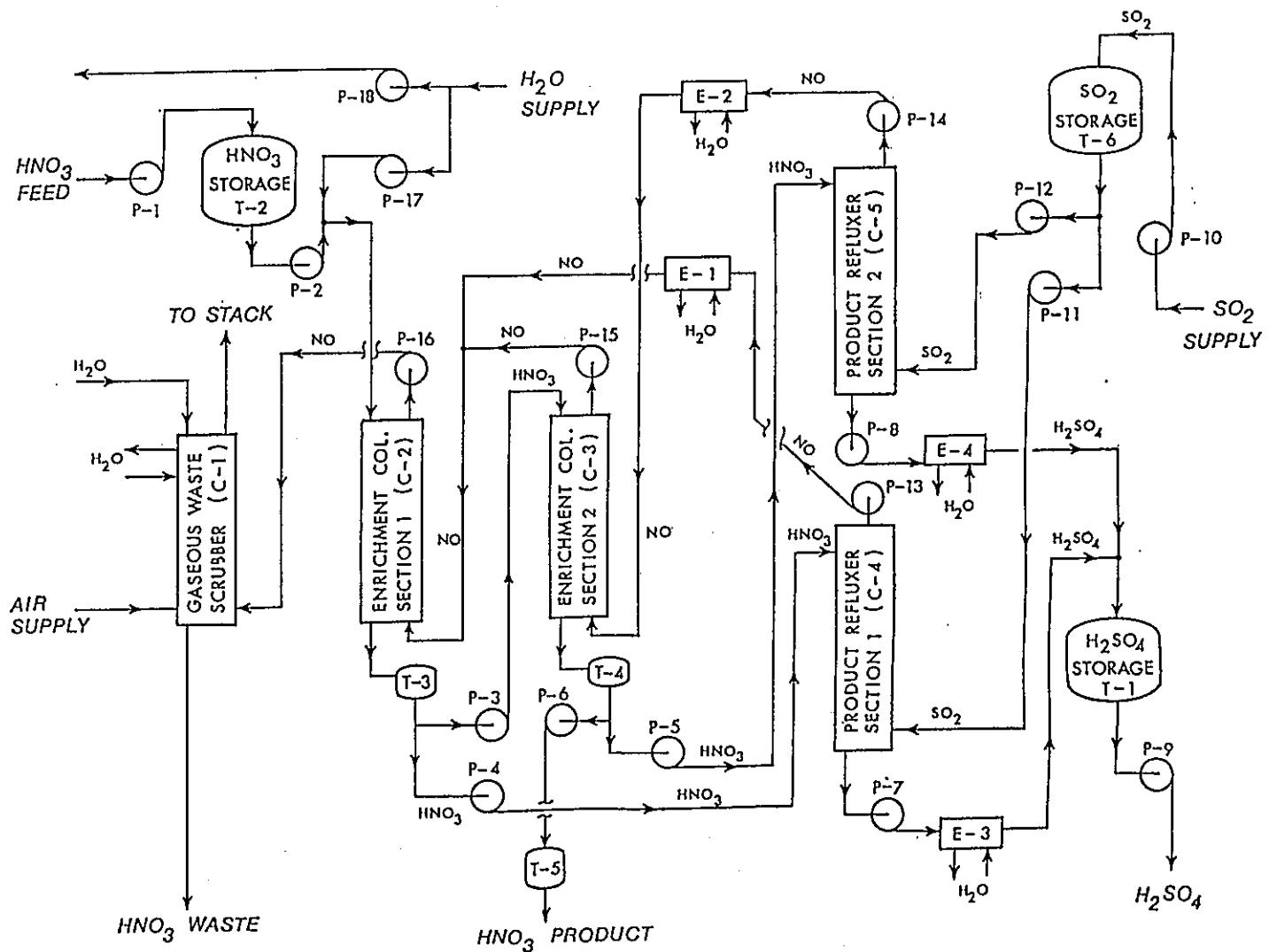


図-1 二段カスケードの流れ図

2つの濃縮塔から成るカスケードのテーパーポイントを上げた（高濃縮度にする）時、高濃縮側のセクション（図-1のSection 2, Column C-3）のステージ数は減少するが、低濃縮側のセクション（図-1のSection 1, Column C-2）のステージ数は増大する。さらに、テーパーポイントが高いとSection 2の最小還流比が減少するため、Section 2の流量も減少するであろう。しかし、高テーパーポイントでは、Section 1の最小還流比は増大しSection 1の流れも増大するはずである。還流比が大きくなると、プラントで成される還流の総量も大きくなり、その結果として製品還流塔と使われる還流化学物質（二酸化硫黄）のコストも高くなる。設定された年産規模と¹⁵N濃縮度を産み出すための全コストは、様々な資本費と運転費の相互する傾向が組み合わさった結果として決定される。

パラメータと運転条件が最適化されれば、システムが安定かつ慎重に（つまり最小還流比に近くなることはない）運転されるであろう条件の設定を目的としてキーとなるカスケードパラメータが選択される。したがって、それ（システム？）は、製品濃縮度と製造量の設計値でのそれ（システム？）の動きを保証するために十分な予備の容量を持ち、ゆるやかな流量変動（ポンプの動きの変化による）とステージ数変動（コラムパッキングのねれ性の違いによる）を吸収する。本レポートのために開発されそして最適化の中で使われたデータベースは、保守的な運転パラメータを選択する際の基礎となるものであり、以下に述べる。

III-B. 装置の内容 (description) 及びコストの見積り

この最初のレポートの納期までの時間が短かったため、最新の設備とコントロール系の選択及びそれぞれの設備のコストの適切な見積りを行うことができなかった。その替わり、本評価の製造量よりスケールが約3.33倍大きい場合の95%濃縮¹⁵N生産のために過去に行われたカスケード設計⁵で決められた設備項目を改良することによって設備リストを作った。

それを用いて主要設備（コラム、タンク、ポンプ、熱交換器）の仕様とそれらのコスト（1990年のU. S. ドル換算）を求め、表-1に示す。それぞれの設備に対応して付されたIDシンボル（つまりC-1～P-18）は図-1に示されたものであり、カスケードにおける位置と機能も示す。

表-1の最後の欄（Total Cost）は、我々（石田教授とDr. W. Spindel）が最も望ま

しいと考えたカスケードパラメータの値（テーパー濃縮度=0.05、還流比 $k_1 = k_2 = 1.20$ ）におけるコストを1990年のU.S.ドル換算で示したものである。我々は表-1のコストのいくつかを本評価では固定して扱ったが、他のコストは3つのカスケードパラメータの関数として変化させた。以下に説明する。

タンク及び熱交換器：

タンクと熱交換器のコストは、1955年に最初に得られたコスト⁵を今回のカスケードの製造パラメータにスケールダウンするか、または、そのような比例配分（スケールダウン）が正しいかどうか判断することによって導かれた。そのため、広く認められている物価上昇値が1955年のコストから今日のコストを見積もるのに用いられた。物価上昇については同じ値が表-1にリストアップされた主要機器のコストに適用されたため、物価上昇値に関する議論は1955年に行われた機器コストのすべての評価について説明した後で行う。今回の最適化のために、タンクと熱交換器のコストを固定した。

コラム：

同じような断面積のコラムでは、そのタイプのコラムのコストは、末端効果による間接費を無視すればコラムの高さにはほぼ比例する。そのため、単位長さ当たりのコストを1955年の仕様より導いた。

流量の範囲を幅広くカバーする最適化を行うために、単位流量当たりのコストを次に述べる事項に基づいて1955年の評価より求めた。必要なコラムの断面積は流量にはほぼ比例するため、コラムのコストはコラムを流れる液体、気体の流量に大きく依存する。廃棄ガス還流塔（スクラバー）と製品還流塔については、我々はコラムの高さをあらかじめ決め、それらのコラムのコストは流量にリニアに比例すると仮定した。それによって我々は単位流量当たりのコストを求めた。

交換コラムについては、コラムのコストが流量にリニアに比例することに加え、コラムの高さがテーパーポイントと還流比の関数で変化する濃縮塔のステージ数に従って変化することを我々は許容した。交換塔のコストがステージ数と硝酸の流量に比例すると仮定することによって、1955年のデータより単位流量当たりかつ分離ステージ当たりのコストを求めた。

ポンプ：

表-1に示したポンプの仕様は、1955年の評価から当時の仕様を考慮することなく同等なプロセスを選んで直接求めた。これは明らかに保守側のポンプ選択であり、1955年ままならば正しい。

しかし、コストの流量依存を少なくとも部分的に認めるために、我々はポンプを2つのグループ、すなわちSection 1 カスケードに属するものとSection 2 カスケードに属するものに分類することを選択した。どちらのSection に属するか明確に決められないポンプについては、任意に決めた。それは表-1の最後の2行に示してある。そして我々は、Section 1に属するすべてのポンプを代表する単位流量当たりの1955年当時のコストを求めるために、Section 1に属するポンプの全コストをHNO₃ 流量で割った。Section 2に属するポンプの単位流量当たりのコストも同様に求めた。

物価上昇値：

1955年に求められた当時のコストを1990年のコストに換算するために、最新（1991年2月）の大統領経済年報⁶を用いて、1955～1990年の3つの主要な物価上昇値を平均化した。

表B-3(290ページ) 1955～1990年の生産者耐久設備の価格下落は96.4／
29.3=3.29

表B-63(357ページ) 1955年～1990年の資本設備価格は124.9／27.9=4.56

表B-65(361ページ) 1955年～1990年の機器類の価格は120.7／27.2=4.43

上で述べた3つの物価上昇値の平均は4.09であり、表-1のリストアップに用了。表-1の最後の2つの欄（単価、合計コスト）は、1955年当時のコストを4.09倍して求めた。テーパーポイントを0.05、k₁とk₂を1.20とすると、設置された設備の全コストは1990年のドル換算で\$ 427,990 である。この評価は、多くの仮定、制限そして不正確さに基づくものであるが、全設備及び個々の設備のコストの決定に必要であることを付け加えておく。

表 - 1 機器の説明及びコスト

ID No.	記 事 ^(a)	単 価 ^(b) (米ドル)	合計コスト ^(c) (米ドル)
カラム (5個)			
C - 1	[廃棄物還流塔] ステンレス 304 製, 鞍型Intalox, 外径77cm, 高さ30ft	2,054/ft 1.099/(m/d)	61,610
C - 2	[Section 1 交換塔] ステンレス 304 製, ½" 鞍型Intalox, 外径31cm, 高さ113ft	826/ft 0.02163/s/(m/d)	93,350
C - 3	[Section 2 交換塔] ステンレス 304 製, ½" 鞍型Intalox, 外径8.5cm, 高さ84ft	195/ft 0.2288/s/(m/d)	16,340
C - 4	[Section 1 製品還流塔] ジャケットガラス製, 外径59cm, 高さ24ft	2,732/ft 1.264/(m/d)	65,570
C - 5	[Section 2 製品還流塔] ジャケットガラス製, ½" 鞍型Intalox, 外径17cm, 高さ17ft	636/ft 2.597/(m/d)	10,820
タンク (6個)			
T - 1	[硫酸貯蔵] スチール製, 8,000gal		11,620
T - 2	[硫酸貯蔵] ステンレス 304 製, 8,000gal (3基)(それぞれ\$19,220)		57,670
T - 3	[硝酸 (カラム 1 用)] ステンレス 304 製, 500gal		7,160
T - 4	[硝酸 (カラム 2 用)] ステンレス 304 製, 100gal		3,760
T - 5	[製品硝酸貯蔵] ステンレス 304 製, 20gal		1,510
T - 6	[二硫化硫黄貯蔵] スチール製, 加圧型, 8,000gal		36,630
熱交換器(4個)			
E - 1	[カラム 1 へ流れるガスの冷却] ステンレス 304 製, 5.0sq. ft		2,130
E - 2	[カラム 2 へ流れるガスの冷却] ステンレス 304 製, 1.9sq. ft		1,310
E - 3	[製品還流塔 1 からの硫酸冷却] 裏付きガラス製, 11.0sq. ft		5,730
E - 4	[製品還流塔 2 からの硫酸冷却] 裏付きガラス製, 11.0sq. ft		2,130

表 - 1 機器の説明及びコスト

ID No.	記 事 ^(a)	単 価 ^(b) (米ドル)	合計コスト ^(c) (米ドル)
ポンプ (18個) P - 1	[硝酸, 貯蔵タンクへ送る] ステンレス製, 33gpm, 50ftヘッド		2,910
P - 2	[硝酸, C - 2 へ送る] ステンレス製, 0.2gpm, 100ftヘッド		1,580
P - 3	[硝酸, C - 2 から C - 3] ステンレス製, 1.4gpm, 100ftヘッド		1,960
P - 4	[硝酸, C - 2 から C - 5] ステンレス製, 2.9gpm, 50ftヘッド		2,780
P - 5	[硝酸, C - 4 から C - 7] ステンレス製, 1.1gpm, 25ftヘッド		1,630
P - 6	[硝酸, C - 5 から 製品貯蔵タンク] ステンレス製, 1.0gpd, 50ftヘッド		1,060
P - 7	[硫酸, C - 4 から 貯蔵タンク] Duriron製, 4.6gpm, 25ftヘッド		3,500
P - 8	[硫酸, C - 5 から 貯蔵タンク] Duriron製, 1.8gpm, 25ftヘッド		2,470
P - 9	[硫酸, 貯蔵タンクから 売却] Duriron製, 3.3gpm, 50ftヘッド		3,720
P - 10	[二硫化硫黄, 貯蔵タンクへ送る] ステンレス製, 33gpm, 約180psi		4,940
P - 11	[二硫化硫黄, 貯蔵タンクから C - 4] ステンレス製, 2gpm, 約50ftヘッド		2,780
P - 12	[二硫化硫黄, 貯蔵タンクから C - 5] ステンレス製, 0.8gpm, 約50ftヘッド		1,960
P - 13	[窒素酸化物, C - 4 から C - 2] ステンレス製, 113cfm, 4.9psi		5,010
P - 14	[窒素酸化物, C - 5 から C - 3] ステンレス製, 44cfm, 4.9psi		1,880
P - 15	[窒素酸化物, C - 3 から C - 2] ステンレス製, 48.8cfm, 4.9psi		2,240
P - 16	[窒素酸化物, C - 2 から C - 1] ステンレス製, 154cfm, 4.9psi		6,290
P - 17	[水, C - 2 へ供給] スチール製, 1gpm, 76ftヘッド		1,580
P - 18	[水, C - 1 へ供給] スチール製, 3.3gpm, 256ftヘッド		2,350

表 - 1 機器の説明及びコスト

ID No.	記事 ^(a)	単価 ^(b) (米ドル)	合計コスト ^(c) (米ドル)
	ポンプNo.1, 2, 4, 7, 9, 10, 11, 13, 16, 17, 18	0.6683/(m/d)	
	ポンプNo.3, 5, 6, 8, 12, 14, 15	3.1608/(m/d)	

(a) 交換カラムC-2, C-3の高さは、テーパポイント濃縮度0.05, $k_1 = k_2 = 1.20$ となるような高さである。その他のカラムの高さと他のすべての寸法は予め設定したものである。

(b) “米ドル”は1990年価値換算した。“/ft”はカラムの高さ1フィート当たり，“/s”は分離ステージ当たり，“/(m/d)”は一日に処理される硝酸のモル当たりという意味である。単価についての議論は本章の考査を参照されたい。

(c) 合計コストは1990年価値換算し、テーパポイント濃縮度0.05, $k_1 = k_2 = 1.20$ となるようなコストである。詳細は第4章「結果及び考察」を参照されたい。

III-C. 化学薬品のコストについて

主要な化学物質の価格は、最近の化学物質価格表（Chemical Marketing Reporter, 1991年12月13日）より直接求めた。還流塔で用いられる二酸化硫黄と副産物として得られ売却によるクレジットのある硫酸のコストはIII-D節で示している。

III-D. 最適化のための入力データの概要

下表は、コストデータベースの概要である。我々は最適化計算中の丸め誤差を避けるために、有効数字以上の桁の数値を用いた。

装 置 :

廃棄ガススクラバー (C-1)	:	\$ 1.0990/(g-moleHNO ₃ /day in Section 1)
濃縮塔 (C-2)	:	\$ 0.02163/ステージ(g-moleHNO ₃ /day) Section 1
濃縮塔 (C-3)	:	\$ 0.02288/ステージ(g-moleHNO ₃ /day) Section 2
製品還流塔 (C-4)	:	\$ 1.2638/(g-mole還流HNO ₃ /day) Section 1
製品還流塔 (C-5)	:	\$ 2.5965/(g-mole還流HNO ₃ /day) Section 2
タンク :		
	T - 1	\$ 11,616.0
	T - 2	\$ 57,669.0
	T - 3	\$ 7,157.5
	T - 4	\$ 3,762.8
	T - 5	\$ 1,513.3
	T - 6	\$ 36,626.0
熱交換器:		
	E - 1	\$ 2,126.8
	E - 2	\$ 1,308.8
	E - 3	\$ 5,726.0
	E - 4	\$ 2,126.8
ポンプ :	Section 1	\$ 0.6683/(g-moleHNO ₃ /day)
	Section 2	\$ 3.1608/(g-moleHNO ₃ /day)
<u>化学物質:</u>	S O ₂	\$ 0.01623/(g-moleS O ₂)
	H ₂ S O ₄	\$ 0.00803/(g-moleHNO ₄ as 60° Be H ₂ SO ₄)

注) ° Beはボーメ度という。60° Beは60%
溶液の比重の意。

III-E. 最適化で用いられるコストの項目

テーパーポイントの濃縮度と還流比に条件を与えると、コンピュータプログラムが両セクションのすべての流量と必要なステージ数を計算する。それから多くのコストを計算するが、以下にアウトラインを述べる。

上で求めた設備の全コストより、配管、装置、試験所そして他のサービス施設が化学プラントの見積もりで一般的に用いられているファクターを乗じることによって最初に決定された。上でリストアップされた設備コストと付加的な項目のコストの合計は、実プラント費合計（1-14ページの項目G）のコストと名付ける。エンジニアリング、試運転コスト、臨時費のような初期投資は実プラント費合計コストに比例すると考え、それらの初期投資と実プラント費合計コストとの合計が全固定資本（G～Kの合計、1-14ページ）である。土地取得とサイト整備の費用はPNCの承認を得た上で0にしてある。

他の費用は年当たりの見積もりである。

原料（二酸化硫黄、硝酸、圧縮空気、水）のコストはカスケードで必要な量から評価した。人件費はPNCの要望に沿って0にした。ユーティリティー、保守や他の支出は実プラント費合計コストに比例するとした。原料の梱包、貯蔵、払底(shortage)等に関わる種々雑多な費用は原料費に比例するとした。この節で述べたすべての項目の合計は全年間変動コスト（項目T、1-14ページ）を構成する。

全年間固定コスト（項目Z、1-15ページ）は減価償却、全固定資本の利息、流動資本の利息、税の支払い、間接費から成る。全固定資本の減価償却費は2つの償却期間（10年、15年）について計算した。PNCの要望に沿って、全固定資本にかかる利息と固定資本にかかる税の支払いは固定資本投資の70%について年利8%で評価した。流動資本にかかる利息もまた流動資本の70%について年利8%で計算した。

（流動資本については次のパラグラフ参照）

流動資本は全年間変動コストと全年間固定コストを合計して12で割り、プラントの化学薬品のインベントリーの値を加えて求めた。全固定資本と流動資本の合計が全プラント投資（項目M、1-14ページ）を構成する。

1-14ページの表では、プラントコストの見積もりに当たって一般に受け入れられている工学上の慣例に従って特別な係数を乗じている。 L_1 と L_2 はSection 1、2の硝酸の流量(g-mole HNO₃/day)であり、 N_1 と N_2 はSection 1、2のステージ数、 Q_1

と Q_2 は Section 1, 2 で還流される硝酸の総量 (g-mole HNO₃/day) である。

(A) プラント構成機器： 下記の合計

$$(1) \text{ 下記の } 5 \text{ 基の塔 ; 第 } 1 \text{ 交換塔} = [\$/0.02163/s/(m/d)] \cdot N_1 \cdot L_1$$

$$\text{第 } 2 \text{ 交換塔} = [\$/0.02288/s/(m/d)] \cdot N_2 \cdot L_2$$

$$\text{第 } 1 \text{ 還流塔} = [\$/1.2638/(m/d)] \cdot Q_1$$

$$\text{第 } 2 \text{ 還流塔} = [\$/2,5965/(m/d)] \cdot Q_2$$

$$\text{気相廃棄物還流塔} = [\$/1.099/(m/d)] \cdot L_1$$

(2) タンク, 熱交換器

$$(3) \text{ 下記の二群のポンプ ; セクション } 1 \text{ のポンプ} = [\$/0.6683/(m/d)] \cdot L_1$$

$$\text{セクション } 2 \text{ のポンプ} = [\$/3.1608/(m/d)] \cdot L_2$$

$$(B) \text{ 配管類} = 0.60 \times (A)$$

$$(C) \text{ 機器類} = 0.14 \times (A)$$

$$(D) \text{ 建屋} = 0.30 \times (A)$$

$$(E) \text{ 建屋設備機器} = 0.03 \times (A)$$

$$(F) \text{ 機械室} = 0.30 \times (A)$$

$$(G) \text{ 実プラント費合計} = A + B + C + D + E + F$$

$$(H) \text{ エンジニアリング} = 0.40 \times (G)$$

$$(I) \text{ 敷地整備 : (ゼロにセット)} = 0$$

$$(J) \text{ 比例コスト} = 0.40 \times (G)$$

$$(K) \text{ 臨時費} = 0.25 \times (G)$$

$$(L) \text{ 流動資本 (脚注参照)}$$

$$(M) \text{ 全プラント投資} = G + H + I + J + K + L$$

(N) 年間消費原料物質 :

二酸化硫黄, 硝酸, 空気, 水の合計。ただし, その90%を二酸化硫黄が占める。

$$(O) \text{ 直接人件費 : (ゼロにセット)} = 0$$

$$(P) \text{ ユーティリティ} = 0.06 \times (G)$$

$$(Q) \text{ メンテナンス} = 0.05 \times (G)$$

$$(R) \text{ 補給品} = 0.005 \times (G)$$

$$(S) \text{ 梱包・貯蔵・払底} = 0.05 \times (N)$$

$$(T) \text{ 全年間変動コスト} = N + O + P + Q + R + S$$

(U) 減価償却	=	(G+H+I+G+K) / (期間)
(V) 全固定資本に対する金利	=	0.08 × 0.7 × (G+H+I+G+J+K)
(W) 流動資本に対する金利	=	0.08 × 0.7 × (L)
(X) 税の代わりの出費	=	0.08 × 0.7 × (G+H+I+G+J+K)
(Y) 間接費	=	(Q)+(R)+[0.55 × (O)]
(Z) 全年間固定コスト	=	U+V+W+X+Y

[注] 流動資本(L)は負債項目(U,V,X,Y)の処理、年間変動コスト、及び薬品の在庫に係る流動資本である。

IV. 結果及び考察

図-2, 3に、カスケードの3つの独立した変数、すなわち、テーパーポイントの濃縮度、還流比 k_1 、 k_2 の関数として、99%¹⁵Nのグラム当たりのコストを1990年U.S.ドル換算で示した。“A”と“B”は製品還流塔で大量に作られる副産物である硫酸の売却によるクレジットを考慮するかどうかが異なる。(脚注参照)

これらの図の考察において、

- (a) 年度規模は99%¹⁵N 50kgであり、9.1385mole/dayに相当し、¹⁵Nの自然界における存在比は0.366%である。
- (b) 生産規模、製品濃縮度、フィードの¹⁵N存在比を決めた後でも、テーパーポイントの濃縮度、2つの還流係数は独立した変数である。
- (c) 還流係数 k_1 、 k_2 は最小許容還流比と還流比 R_1 、 R_2 との比である。

$$R_1 = k_1 R_{1,\min}, \quad R_2 = k_2 R_{2,\min}$$

を復習しなければならない。

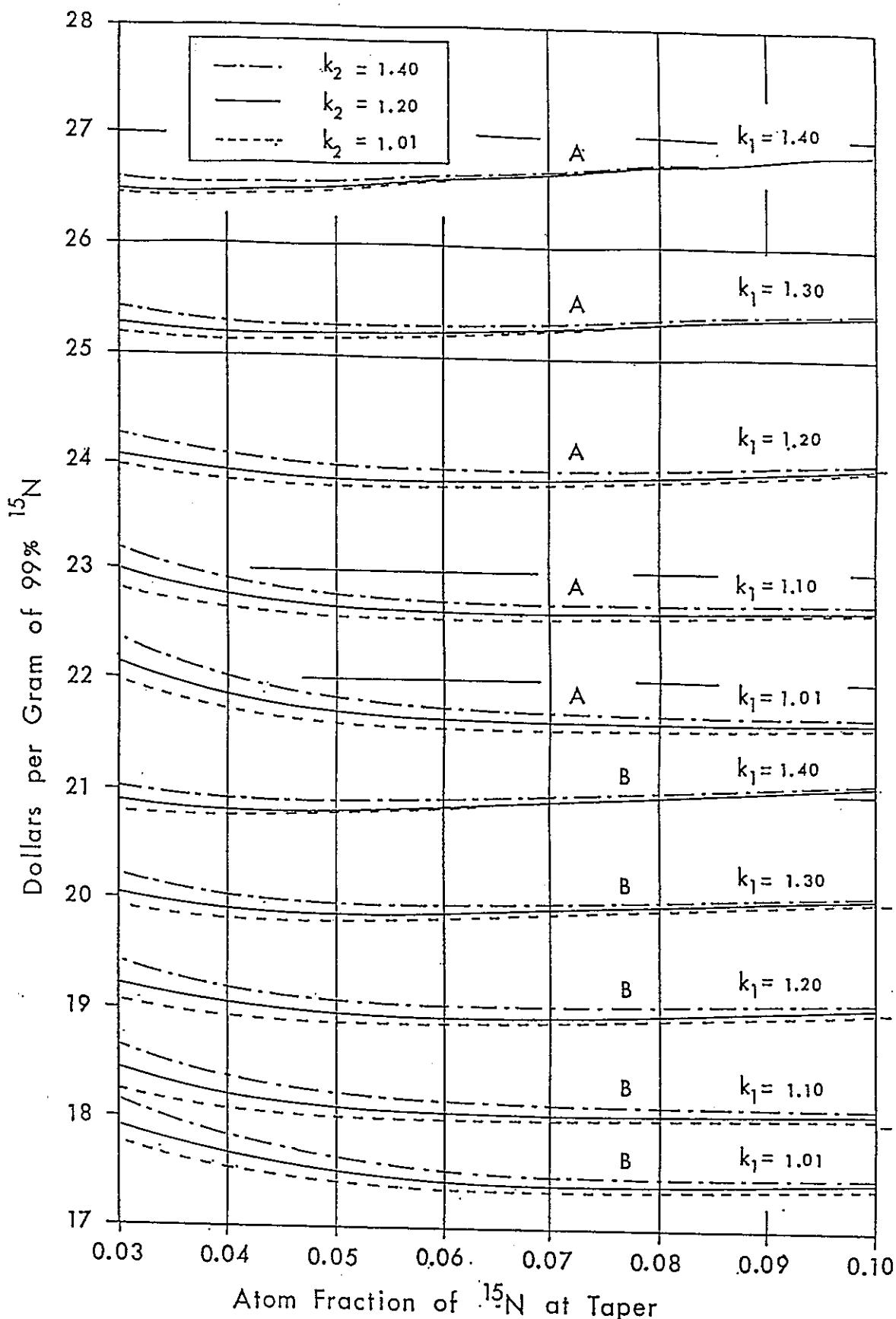
3つの固定パラメータとそして同じく3つの変動パラメータの体系を以下に示す。

- (i) $R_{2,\min}$ は製品とテーパーポイントの濃縮度より最初に決まる。
- (ii) 次に $R_{1,\min}$ が R_2 の値と製品、テーパーポイント、供給材料の各濃縮度により決まる。
- (iii) Section 2(高濃縮側)のステージ数とすべての流量が、 R_2 の値と製造量、そして製品、テーパーポイントの濃縮度より決まる。
- (iv) 最後に、Section 1(低濃縮側)のステージ数とすべての流量が、 R_1 、 R_2 の値、製造量、そして3つの濃縮度の値より決まる。

$R_{1,\min}$ はテーパーポイント($R_{2,\min}$ に対する)に何を選ぶか、また k_2 によって決まるから、還流比 k_1 が同じであっても R_1 は異なる値となる。

図2、3のA、B 2種類のカーブは互いにほぼ平行しているが、Bはそれに相当するAより\$5.00~5.50/g¹⁵Nほど安い。それは、副産物酸売却による回収のためである。2つの図はプラントコストの償却期間が異なるだけであり、図-2は10年償却、

[脚注] 10モルの硝酸を同位体交換に用いたNitroxプラントは約10モルの硫酸を副産物として作り出す。その売り値は\$0.00803/g-moleと見積もられる。

図-2 10年減価償却の場合の ^{15}N 単価A : H_2SO_4 クレジットを考慮しない, B : H_2SO_4 クレジットを考慮する

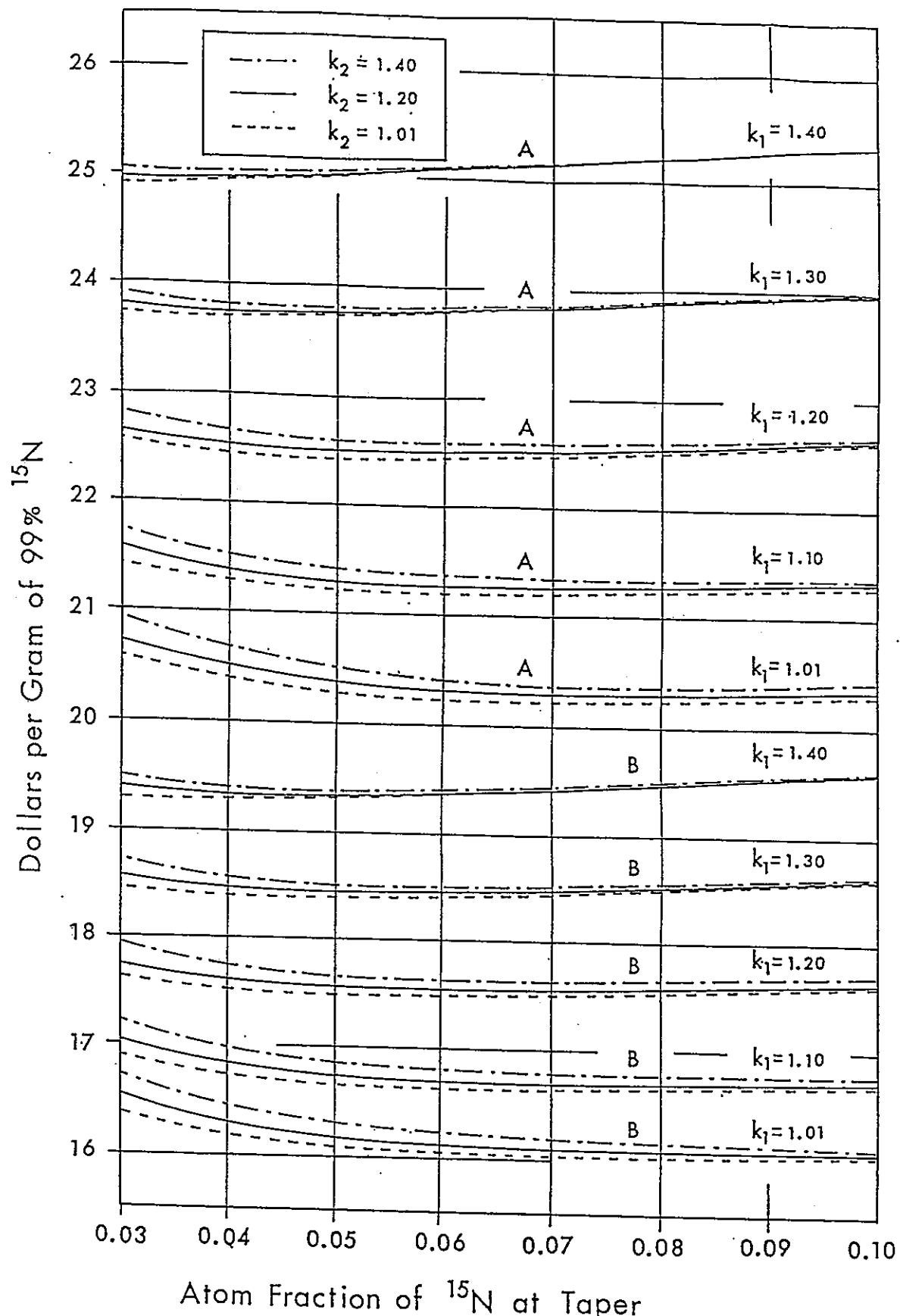


図 - 3 15年減価償却の場合の ^{15}N 単価

A : H_2SO_4 クレジットを考慮しない, B : H_2SO_4 クレジットを考慮する

図-3は15年償却である。AとBはほぼ平行だが、図-3の方が図-2より約\$1.50～2.00/g¹⁵N安く、償却期間が長いためである。

それ以外の着目すべき点を以下に述べる。

- (1) k_1 , k_2 增加とともに¹⁵Nコストも増える。 k_1 , k_2 が増加すると、還流の仕事量を増やす、つまり還流塔が大きくなり、また必要な二酸化硫黄の量も増えるため、予想される結果である。還流が増えることは濃縮セクションにその分、分離能力の付加が必要となり、それは臨時費に組み込まれるが、留保金として支払わなければならない。
- (2) Section 1の還流係数 k_1 は、Section 2の還流係数 k_2 よりも¹⁵Nのコストにかなり大きく影響する。それは主にSection 1の還流塔のサイズが大きくSection 1で行われる還流の方がSection 2で行われるそれよりも仕事量が大きいためである。2つの濃縮セクション間の還流条件の大きさの差により、 k_1 と k_2 が同じ割合で変化したとしても、コストの絶対値の変化は k_1 の変化による場合の方がはるかに大きい。我々は後で、表-2, 3, 4（原文のまま。表-3, 4はそれぞれ表-A-1, A-2の間違いと思われる。）によってそれらを示す。しかし我々は、コラムコンポーネントにかかるコストをより正確にそして最新のものにすると、コラムコストの相対的な大きさが変化するであろうことに注目している。
- (3) テーパーにおける濃縮度の変化によって¹⁵Nのコストがどのように変わるかは、テーパーポイントが低く(<0.03)なるときを除いて、驚くほどに平坦である。その理由は後に表-2～4（表-3, 4はそれぞれ表-A-1, A-2）で明らかとなる。ところで、テーパーポイントが両極端な値になる場合を考えてみよう。テーパーポイントが¹⁵Nの自然界の存在比である0.00366に近づくならば、¹⁵Nのコストは急激に増大する。なぜならばSection 1の還流によって供給原料とはほぼ同じ同位体組成の窒素酸化物ができるからである。そしてSection 1は有益な物は何も産み出さずにコストのみ増える。次にテーパーポイントが製品濃縮度に近づく場合、コストは単一セクションカスケードによる¹⁵N生産コストに近づく。したがって、テーパーポイントが両極端に近づくにつれて、¹⁵Nコストも増大する。加えて、濃縮仕事量のほとんどを行うSection 1のコラム径を大きくすると単位長さ当たりの¹⁵N量が多くなるため、定常状態に達するまでの時

間、すなわちコラムに貯えられる濃縮された窒素のインベントリーが蓄積されるまでに必要な時間が大きく増大する。つねに2つのセクションによるカスケードの有利が失われる。したがって、どのような k_1 と k_2 の組み合わせであっても、最適なテーパーポイントが存在する。

表-2はテーパーポイントの濃縮度が0.05で $k_2 = 1.20$ の場合の ^{15}N コストの詳細を示し、個々のコストが流量と分離段数によってどのように変化するかを表わしている。つまりそれらはテーパーポイントと k_1 によって変化する。表の上半分はカスケードパラメータを示している。シンボルは脚注で定義され、また説明されている。下半分は主要なコスト項目の要約である。消費される SO_2 のコストの重要性を強調するために、 SO_2 の年当りのコストを全年間変動コストの一部に含めている。 SO_2 のコストは、 $k_1 = 1.20$ のとき、年間変動コストの72%，全コストの41%にもなる。同様に、10年減価償却では、減価償却が年間固定コストの42%，全コストの17.4%になる。15年以上でプラントを償却することによって、他の運転条件がすべて一定の場合、年間固定コストが\$71,000減少し、生産コストは約\$1.50/g安くなる。それは、10年償却よりも約8%安い（硫酸売却によるクレジットを含む）。

テーパーポイントが異なるだけの同様な表である表-A-1, A-2が本レポートのAppendixに、カスケード運転パラメータが ^{15}N 生産コストにどのような影響を及ぼすか、さらに詳しい議論も含めて示している。

計算の基本として、最も経済的と考えられるカスケード設計はテーパーポイントが0.05~0.07の範囲にあり、そして k_1 と k_2 ができるだけ1に近づいたときにあると考えた。残念ながら、生産量に関係なく k_1 と k_2 が1のカスケードのステージ数は無限となり、無限長になるであろう。さらに、値が1に接近（例えば k_1 と $k_2 = 1.01$ ）した物を選ぶならば、少し（恐らく1%）の流量変動、またはコラムのステージ効率（すなわち充填コラムのHETP、またはバブルプレート、もしくはバブルキャップコラムのプレート効率）の変動が、プラントの運転を $k = 1$ の状態にしてしまうであろう。

これらの理由によって、我々は $k_1 = k_2 = 1.20$ 、テーパーポイント濃縮度0.05を推薦する。これらの運転条件下で表-2が作られ、 ^{15}N のコストの評価結果は以下のようにになる。

10年減価償却 : H_2SO_4 クレジット無, \$24

10年減価償却 : H₂S O₄ クレジット有, \$ 19
15年減価償却 : " 無, \$ 22.5
" : " 有, \$ 17.5

表-2 テーパボイント濃縮度=0.05, $k_2=1.20$ の時のカスケードパラメータ^(a)とコストの詳細

$$R_{2,\min} = 380 \quad ; \quad (N_{2,\min} = 137)$$

$$R_2 = 456.0 \quad ; \quad N_2 = 171 \quad ; \quad R_{1,\min} = 10.352$$

$$L_2 = 4,176 \text{gTN/N/日} \quad ; \quad G_2 = Q_2 = 4,167 \text{gTN/N/日}$$

第1(交換、還流)部/タ	@ $k_1=1.01$	@ $k_1=1.10$	@ $k_1=1.20$	@ $k_1=1.40$
R_1	10,456	11,388	12,423	14,493
L_1 (gモル/日)	47,843	51,734	56,057	64,704
G_1 (gモル/日)	47,834	51,725	56,048	64,695
Q_1 (gモル/日)	43,667	47,558	51,881	60,528
N_1	98	84	77	69

減価償却期間	コスト因子	コスト(1000米ドル)		単位記載の項目を除く	
		@ $k_1=1.01$	@ $k_1=1.10$	@ $k_1=1.20$	@ $k_1=1.40$
10年	プラント構成機器(A) 第1交換塔 第2交換塔 第1還流部 第2還流部 減損還流塔 他の機器	411 101.4 16.3 55.2 10.8 52.6 175	416 94.0 16.3 60.1 10.8 56.9 177	428 93.4 16.3 65.6 10.8 61.6 180	457 96.6 16.3 76.5 10.8 71.1 186
	実プラント費合計(G)	974	985	1,014	1,084
	全プラント投資(M)	2,092	2,117	2,183	2,337
	年間原料コスト(N) SO_2 の年間コスト	467 425	505 460	547 498	632 575
	全年間変動コスト(T)	603	644	691	788
	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	482 200	488 202	502 208	537 222
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (M/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	21.70 17.49	22.63 18.08	23.88 18.95
					26.51 20.82
	15年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	415 138	420 134	433 139
		硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	20.36 16.16	21.28 16.73	22.48 17.56
					25.02 19.33

(a) R_i と $R_{i,\min}$ ($i=1,2$) は還流比と最小還流比、そして $R_i = k_i \times R_{i,\min}$ である。

N_i ($i=1,2$) はステージ数である。

L_i 及び G_i ($i=1,2$) は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量 (g モル/日) を示す。

Q_i ($i=1,2$) は、1 日当たりの還流される窒素の流量 (g モル) である。製品量、 k_2 、そして供給時、製品、テーパボイントの濃縮度が与えられても、1 つ独立変数が残り、それは k_1 である。他のすべてのカスケードパラメータはこれらの 6 つの変数から計算される。

これらの数値の不正確さを我々は評価したが、恐らく $\pm 15\%$ であろう。

図-2, 3そして表-2より k_1 の変化の効果が非常に大きく、 k_1 が 1.20 から 1.10 に小さくなると 1 g 製品窒素当たり、副産物硫酸のクレジットを考えなければ \$1.20 から \$1.50、考えれば \$0.80 から \$1.00 節約になるが、それに注目すべきであると前に述べた。それによって、還流比を小さくしたくなる。しかし、還流比縮小のメリットは、それによりプラント運転パラメータに要求される厳しいコントロールのために設置されるべき設備及び計装のコストの増加分を慎重に考えなくてはならない。

本レポートを作成するにしたがって、我々はこの評価が、不正確であることに段々と気が付いてきた。

表-2で報告したカスケードパラメータは、正確ではあるが、コストにかかるるインプットデータと個々のコスト項目の評価結果はかなり大きな数字であることに弁解はできない。我々はこれらの数字について、内部矛盾がないようにし、また丸め誤差がないことを確認し、さらに結果よりある傾向を見出した。しかし、結果は、(a)インプットに用いたコストベース、(b)流量当りのコストを得る際の仮定、(c)プラントデザインに導入した制限、の範囲内で正しい。制限の例を以下に示す。

(i) PNCより硝酸のコストを考えなくてもよいとの仕様だったため、ストリッピングセクションを考えていない。供給原料より ^{15}N をできるだけ多く抽出して硝酸のコストを削減しようとすれば、ストリッピングセクションは重要な付属設備となる。比較的短いストリッピングセクションでも、硝酸の使用量は10分の1になる。

(ii) カスケードのどの部分にももう1つのコラムを並行させて用いることは考えなかった。小径コラムを複数にしてその全断面積をSection 1 の單一コラムのそれと等しくすると、分離ステージ当りの高さをより短くするであろう。したがって、交換コラムコストがコラム体積に比例すると仮定すれば、Section 1 のようなセクションのコストは並行して用いられる小径コラムの数の平方根に反比例するであろう。還流コラムも小粒径で複数にしてやれば（特にSection 1 の還流）、還流塔からの除熱も容易になり、コラム充填材を流れる流体の流路を削減するであろう。しかし、それに必要なポンプと計装のコストは増大するであろう。

(iii) 還流塔については、硝酸が硫酸に化学的に還元される還流以外は考えなかつた。他の手法は考えられる。

(iv) コラム外径が異なる場合に関連して、ランダム充填コラムを用いるのではなく、平板コラムを用いることの長所・短所の比較評価は行わなかった。

(v) 3つのセクションから成るカスケードも考えなかった。3つのセクションから成るカスケードは全還流コストが安くなるために、 ^{15}N コストを低くするであろう。さらに、3つのセクションから成るカスケードはそれと同じ分離能力を持つ。2つのセクションから成るカスケードよりも、 ^{15}N のホールドアップが小さくなることが予想され、それによって非定常時間をも短くするはずである。しかし我々の判断では、2つのセクションから成るカスケードが恐らく50kg/yの生産規模では適当である。

それぞれのコラム、タンク、熱交換器、ポンプ、バルブ、メーター、センサ、そして計装の様々な仕様の設備を我々は収集し評価している段階である。それが終わるまで、信頼性の高い評価ができるであろう。ほとんどの場合は評価はそのインプットデータの範囲内で正しい。

V. 結 論

図-2, 3で示したカスケードパラメータとコストの計算は最終製品コストを決める固定コスト項目と変動コスト項目(1-13ページ及び表-2)とともに、図-1で図示した2つのセクションからなる同位体分離カスケードと1-20ページで提唱したSection 1, 2間のテーパーポイントが0.05, $k_1 = k_2 = 1.20$ という運転条件が濃縮度99%以上の¹⁵Nを50kg/yの規模で生産するための安定モードに達したときにおいて最もコスト的に効果的であるという結論を確かなものにしている。

本節では、コスト評価の精度を上げるかもしくは、製品コストを削減する絶好の機会を与えるコスト要素と“固定”または“変動”コストのカテゴリーについて説明する。このような解析は、PNCが新型燃料としての窒化物燃料の評価研究をさらに前進させると決定するならば、パイロットスケールの施設の建設と運転に向けての次のステップの研究(解析または実験の両面において)の案内役を果たすものとなる。

V-A. 主要コスト項目

1-13ページで述べた要旨及び表-2よりコストの主要項目(さらに評価すれば恐らくより確実になる)は以下のとおりである。(A) プラント設備, (C) 計器, (N) 原料, (O) 直接人件費, (U) 減価償却, そして(Y) 間接費, である。コストの再評価に当たって、1-14ページで示した様々なコスト項目で用いられた乗数は、プラントコストのイニシャル評価を行う場合に米国のエンジニアが一般に用いられているもの(Lang係数と呼ばれることがある)である。それらは特に同位体生産施設のために選ばれたものではなく、また米国以外の経営、金融の実際、例えば日本の産業界に必ずしもマッチングするわけでもない。(O), (P), (Q), (U), (V), (W), (X), (Y)のような項目は、技術的な問題よりも会社の経営に依存するものであり、PNCの施設に限定したコスト評価の精度は、PNCの専門家との議論と専門家からの教えによって向上するであろう。一つの例として項目(O)(直接人件費)は、PNCの提案により一次コスト評価では0としたものであるが、より正確な評価では恐らく含めるべきものである。この項目の権威ある、そして正確な評価を行うためには、PNCの広報(liaison representative)との連絡が必要であるのは明らかである。もちろん我々は、そのような経営情報は社外秘であることが

多く、外部には出せないことは十分に承知している。したがって、我々は会社の機微な情報にアクセスする考えはない。以下に主要なコスト項目をより詳細に論じる。

プラント設備

プラント設備コストは決定的なコスト要素である。なぜなら、それは年間固定コストのほとんどを評価するためのベースだからである。それらの設備項目の評価は、2つの情報を加えることによって改良することができる。最初の情報は近い将来米国と欧州より得ようと計画しているものであるが、設計したプラントに適用可能なポンプ、タンク、熱交換器、コラムのような設備、そして恐らくバルブ、制御機器とモニタリング機器のような設備に関する製造価格の見積りによって提供されるであろう。我々は、設備設置コストの製造側見積りに対しても製造側に質問するつもりである。2つめの情報によりコスト評価精度を大きく向上させることができるが、それは測定されるべき設備の特徴、すなわちカスケードセクションで予期される流量と化学反応に合わせて決められた外径と断面積に関する実験データである。この実験情報は、コラムの種類、外径、高さのようなコラムパラメータをコストを最小にするために設定するために設定する際に適切なものとなる。次節でこのことについてより詳しく述べる。

コラム

表-2よりコラム（交換塔、還流塔、ガススクラバー）のコストは推奨されるカスケード運転条件下ではプラント設備コストの60%（\$ 428,000に対して\$ 248,000）を占めることがわかる。交換塔では、分離ステージの高さはコラム種類（バブルプレートなのかバブルキャップコラム、もしくはランダム充填コラム）によって決まる。ランダム充填でもその高さは充填材種類（サドル、らせん形、リング）と大きさによって決まる。コラムのすべての種類に対して分離ステージ高さは、モル・単位時間・コラム断面積当たりの交換反応比と向流する液体と気体の流量によって決まる。我々の知り得ている範囲では、提案されている50kg/yを生産するためのSection 1に相当する断面積のコラムについて、そして HNO_3/NO 交換反応を起こさせる流量を関数とした分離ステージの高さについての実験データはない。この交換反応での適当な大きさのバブルプレーシやバブルキャップコラムの有

効性に関する実験データもまたない。信頼できる実験データがないためコラムパラメータは広く用いられている化学工学手法によってラフに見積もられ、保守側に決められた。それによって、必要な同位体濃縮度と生産量を確実に達成できるコラムにするための裕度を許すことになる。実験データは最初のセクションの交換コラム（第1交換塔）のより精度の高いコスト評価を行う場合に特に重要となる。それは、表-2よりプラント構成機器コスト（\$428,000）のうち22%（\$93,400）を占めることから分かる。実験データは、ストリッピング交換コラムのコスト評価でも比較的有用であろう。なぜなら、ストリッピング交換コラムは、10モル硝酸供給量を10分の1に減量するには、Section 1濃縮コラムと比べて外径は同じ、高さは1/2から1/3になると考えられるからである。

同じ理由によって、第1還流部の評価コスト（\$65,600つまり第1交換塔コストの70%）の不正確さと減損還流塔について評価された\$61,600というコストの不正確さもその幅を狭くすることができ、コストを決めるためのインプットとして実験室で得られたデータが利用できれば、コストは低くなるであろう。そのため、恐らく数年先にならうが、運転挙動、すなわち短高大外径交換コラムでのステージ高さと流量比の関係、そして50kg/yカスケードのSection 1にラフに相当する外径の製品還流塔における熱除去、制御、モニタリング、硝酸還元効率について試験するために少人数（恐らく1～3人）の研究者によりPNCが実験を始めるならば、たいへん望ましいことである。

計 器

プラント制御、モニタリング計器として利用できる最近のセンサは、自動運転を可能とし、またプラントに必要な人員とそれに伴うコストを削減するため、ここ数か月にわたって我々は米国における製造メーカー等から技術、コスト情報の収集を行う計画である。

原 料

再び表-2より、製品還流塔で硝酸を窒素酸化物に還元するのに用いられる二酸化硫黄のコストは、プラントが10年で償却される場合、全年間プラントコスト（固定コスト及び変動コスト）の約50%（\$1,000,000のうち\$498,000）にも達するこ

とに我々は注目している。15年償却では54%に増加する。したがってそのコストを削減する手法を見出す必要がある。幸いなことに、製品還流塔での硝酸還元の副産物として硫酸が産み出される。交換コラムで10モル硝酸が使われると、硫酸は約60° Beの濃度ででき、それは売却できるものとなる。現在市場価格（1-12ページ参照）で硫酸を売却すると、15年プラント償却では¹⁵N製品コストを1 g当たり\$5、つまり22%（\$22.50/gから\$17.50）削減するのに十分な収益が得られる。

同様に、一つめの交換コラムと比較して外径がほぼ等しく、高さが約40%のストリッピング交換コラムを建設すると、供給される硝酸の¹⁵N濃度の約半分がストリッピングされることを許し、硝酸供給量も10分の1に減少しよう。カスケードを流れる硝酸は、売却可能製品と等しい10モル硝酸（¹⁵Nは減損しているが化学的には変化はない）として回収できる。本評価ではPNCのアドバイスによって、硝酸のコストは考えなかったし、また硝酸の再販売値も調べなかつた。その計算はこれからの評価で行うかもしれない。

¹⁵Nを50kg/yを生産するプラントであっても、その中で循環し、消費され、また産み出される硝酸、二酸化硫黄、硫酸の量は、非常に多いため、¹⁵N濃縮商業プラントに隣接してこれらの化学物質のうち一種類もしくはそれ以上を生産するプラントを建設することも、もしそれによって輸送コストの削減が可能になるならば、調査する価値があるだろう。我々は、これらの可能性を述べたので、PNCが決断すれば、我々がコスト評価の精度向上を図っている間、PNCが種々のオプションを調べるかもしれない。PNCが可能なサイトオプションについて我々に情報を提供でき、次のレポートに含めるのに間に合えば、我々は喜んで我々の計算にそれを取り込むであろう。

経営・金融政策に関するコスト

前に述べたごとく、項目（J）、（K）、（L）、（U）、（V）、（W）、（X）、（Y）（1-14～15ページにリストアップし、製品コストの最終評価の計算に用いられている）は、技術的というよりも企業もしくは国家の政策と実際により関連したものである。1-14ページで示した乗数は米国の工業界で一般に用いられているものである。前に述べたごとく、我々はPNCの経営情報を求めるこことはしない。ただPNCの誰かがPNCの経営に合わせて評価し、製品コストがどの程

度異なるかを調べようとするのを我々は提案したいだけである。

V - B. 可能な付加的研究

高濃縮¹⁵Nが将来にわたってコスト的に金の値格と等しい物質であるのは明らかと思われる。Troyオンス当たり \$350 という1991年の価格では、金はグラム当たり \$11.30 である。生産規模を大きくして安くなつたとしても、¹⁵Nのコストは金のコストと同じになるか、または下回るということはないと考えられる。前提としてこれを受け入れると、PNCが窒化物燃料の調査研究をさらに続けようと考えるならば、濃縮¹⁵N生産の調査と同時に窒化物燃料の再処理で¹⁵Nを回収するアプローチとプロセスの調査も開始すべきであると考えることができる。それによって¹⁵N分離コストの80%が回収できると我々は見積もっている。この数字は、毎年の原子炉運転に必要な新しく分離された¹⁵Nの量を5分の1に削減し、また、窒化物燃料に必要なkg当たりの¹⁵Nのコストも5分の1まで削減することを意味する。

VI. 参考文献

1. Hayford, D. A.; Johnson, W. N.; Levin, S. A.; Shacter, J.; Von Halle, E. "Feasibility of Large-Scale Nitrogen-15 Production for Nuclear Reactors", Carbide and Carbon Chemical Co., K-25 Plant, K-1232, August 17, 1955.
2. Spindel, W. and T. I. Taylor, J Chem Phys, 24, 626, (1956); Spindel, W. and T. I. Taylor, Trans. N.Y. Acad. Sci., 19, 36(1956); Taylor, T. I. and W. Spindel, Proceedings International Symposium on Isotope Separation, Interscience Publishers Inc., New York 1958, pp. 158-177.
3. Tennery, V. J. "Nitrogen-15 Enrichment and its Potential Use in Advanced LMFBR Mixed Nitride Fuels", ORNL, Union Carbide Corp., ORNL/TM-5621, November 1976.
4. Benedict, M.; Pigford, T. H.; Levi, H. W., Nuclear Chemical Engineering, 2nd. ed.; McGraw-Hill, New York, 1981, Chapter 12.
5. Garrett, G. A.; Shacter, J. "Evaluation of Isotope Separation Processes", Proceedings International Symposium on Isotope Separation, Interscience Publishers Inc., New York 1958. pp. 17-32.
6. ECONOMIC REPORT OF THE PRESIDENT -- Transmitted to the Congress February 1991, United States Printing Office, Washington: 1991.

Appendix. ^{15}N コストに影響を及ぼす種々のパラメータの追解析

「結果及び考察」の節で、推奨したテーパーポイント濃縮度0.05（表-2）についての結果を報告した。このAppendixでは、テーパーポイントが変化したときの効果について議論する。

表-A-1, A-2はテーパーポイント濃縮度がそれぞれ0.03, 0.10であることを除けば、表-2と同じである。

これら3つの表を比較して、以下に示す重要な傾向に我々は着目している。

- (1) テーパーポイントはSection 2のステージ数 (N_2)にそれほど影響を与えないが、Section 2の硝酸流量 (L_2)と窒素酸化物流量 (G_2)には大きく影響する。 G_2 はSection 2の還流比 Q_2 と等しいことに我々は注目している。これらの流量の変化はSection 2の交換塔と還流塔コラムのコストに比例する。しかし、そのコストの大きさはSection 1の同じコラムのコストよりも小さい。
- (2) テーパーポイントはSection 1の硝酸流量 (L_1)と窒素酸化物流量 (G_1)にそれほど影響を与えないが、還流比 Q_1 とステージ数 N_1 には大きく影響する。さらに、 k_1 もまた、 Q_1 と N_1 だけではなく L_1 と Q_1 にも重要な効果を与える。ファクター k_1 は L_1 と N_1 を異なる方向に変化させる。交換コラム1のコストは L_1 , G_1 , そしてコラムのユニットコスト（我々の評価では \$0.02163 / ステージ / (mole/day)）より決まる結果である。そのため、コラムコストは k_1 の値の変化に伴って最小値を持つ。
- (3) Section 1の還流比 (Q_1)はテーパーポイントの関数で変化するが、 k_1 の効果が最も大きい。還流塔のコストはそのユニットコスト（我々の評価では \$1.2638 / (mole/day)）と Q_1 によって決まるものであるが、そのコストは Q_1 の変化に比例して変化する。多くの場合還流塔のコストはすべての設備の中で2番目に大きなコストを持つ。したがって、 k_1 が1.01から1.40に増えると、テーパーポイントが0.03, 0.05, 0.10と変化するにしたがって、プラント構成機器 (A) と実プラント費合計 (G) はそれぞれ9%, 11%, 13%増加する。

(4) SO_2 コストもまた Q_1 に比例する。そして、表から明らかなように、 SO_2 の年当たりのコストは、すべての変動コスト項目、固定コスト項目を含んだすべての評価された年当たりのコストの中で最大のものである。 k_1 が1.01から1.40に増えると、テーパーポイントが0.03, 0.05, 0.10と変化するにしたがって、 SO_2 のコストはそれぞれ33%, 35%, 36%増加する。また、 k_1 が1.01, 1.20, 1.40と変化するにしたがって、 SO_2 の年当たりのコストはすべての変動、固定コストのうちそれぞれ39%, 41%, 43%を占める。

以上より、二酸化硫黄のコストが最も重要なコストであるという我々の結論の一つは、さらに確実になったと言える。

表-A-1 テーパポイント濃縮度 = 0.03, $k_2 = 1.20$ の時のカスケードパラメータ^(a)とコストの詳細

$$R_{2, \min} = 380 ; (N_{2, \min} = 137)$$

$$R_2 = 456.0 ; N_2 = 171 ; R_{1, \min} = 10.352$$

$$L_2 = 4,176 \text{ gMN/日} ; G_2 = Q_2 = 4,167 \text{ gMN/日}$$

第1(交換、還流)部パラメータ	@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.40$
R_1	5,879	6,403	6,985	8,149
L_1 (gMN/日)	47,815	51,457	55,503	63,594
G_1 (gMN/日)	47,806	51,447	55,493	63,585
Q_1 (gMN/日)	40,864	44,506	48,552	56,644
N_1	88	75	67	60

減価償却期間	コスト因子	コスト(1000米ドル) 単位記載の項目を除く			
		@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.40$
	プラント構成機器(A) 第1交換塔 第2交換塔 第1還流部 第2還流部 減損還流塔 他の機器	425 91.0 28.3 51.6 18.0 52.5 184	429 83.5 28.3 56.2 18.0 56.6 186	438 80.4 28.3 61.4 18.0 61.0 189	464 82.5 28.3 71.6 18.0 69.9 194
	実プラント費合計(G)	1,007	1,016	1,038	1,101
	全プラント投資(M)	2,162	2,182	2,232	2,371
	年間原料コスト(N) SO_2 の年間コスト	467 425	502 457	542 493	621 565
	全年間変動コスト(T)	606	644	688	779
10年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	499 207	503 208	514 213	545 226
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (M/g)	硫酸の売却収入を見込まない 22.10	硫酸の売却収入を見込む 17.89	22.95 18.42	24.05 19.17
15年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	429 138	433 139	443 142	470 150
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (M/g)	硫酸の売却収入を見込まない 20.71	硫酸の売却収入を見込む 16.51	21.55 17.03	22.62 17.74
					24.97 19.38

(a) R_i と $R_{i, \min}$ ($i=1, 2$) は還流比と最小還流比、そして $R_i = k_1 \times R_{i, \min}$ である。

N_i ($i=1, 2$) はステージ数である。

L_i 及び G_i ($i=1, 2$) は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量 (g モル/日) を示す。

Q_i ($i=1, 2$) は、1 日当たりの還流される窒素の流量 (g モル) である。製品量、 k_2 、そして供給時、製品、テーパポイントの濃縮度が与えられても、1 つ独立変数が残り、それは k_1 である。他のすべてのカスケードパラメータはこれらの 6 つの変数から計算される。

表-A-2 テーパポイント濃縮度 = 0.10, $k_2 = 1.20$ の時のカスケードパラメータ^(*)とコストの詳細

$$R_{2,\min} = 380 \quad ; \quad (N_{2,\min} = 137)$$

$$R_2 = 456.0 \quad ; \quad N_2 = 171 \quad ; \quad R_{1,\min} = 10.352$$

$$L_2 = 4,176 \text{gモル/日} \quad ; \quad G_2 = Q_2 = 4,167 \text{gモル/日}$$

第1(交換, 還流)部パラメータ	@ $k_1=1.01$	@ $k_1=1.10$	@ $k_1=1.20$	@ $k_1=1.40$
R_i	21,872	23,821	25,986	30,317
L_i (gモル/日)	47,864	51,942	56,474	65,538
G_i (gモル/日)	47,855	51,933	56,465	65,529
Q_i (gモル/日)	45,771	49,850	54,381	63,445
N_i	113	98	91	83

減価償却期間	コスト因子	コスト (1000米ドル)		単位記載の項目を除く	
		@ $k_1=1.01$	@ $k_1=1.10$	@ $k_1=1.20$	@ $k_1=1.40$
	プラント構成機器(A) 第1交換塔 第2交換塔 第1還流部 第2還流部 減損還流塔 他の機器	409 117.0 7.7 57.8 5.4 52.6 168	414 110.1 7.7 63.0 5.4 57.1 171	429 111.1 7.7 68.7 5.4 62.1 174	463 117.6 7.7 80.2 5.4 72.0 180
	実プラント費合計(G)	969	982	1,017	1,097
	全プラント投資(M)	2,080	2,111	2,189	2,366
	年間原料コスト(N) SO_2 の年間コスト	467 425	507 461	552 502	640 582
	全年間変動コスト(T)	602	646	696	798
10年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	480 199	486 201	504 208	544 225
	濃縮 ^{15}N 硫酸の売却収入を見込まない 単価(ドル/g)	21.64	22.63	23.99	26.84
	硫酸の売却収入を見込む	17.43	18.07	19.03	21.08
15年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	413 132	419 134	434 139	468 150
	濃縮 ^{15}N 硫酸の売却収入を見込まない 単価(ドル/g)	20.31	21.29	22.60	25.33
	硫酸の売却収入を見込む	16.10	16.72	17.63	19.57

(a) R_i と $R_{i,\min}$ ($i=1,2$) は還流比と最小還流比、そして $R_i = k_i \times R_{i,\min}$ である。

N_i ($i=1,2$) はステージ数である。

L_i 及び G_i ($i=1,2$) は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量 (g モル/日) を示す。

Q_i ($i=1,2$) は、1 日当たりの還流される窒素の流量 (g モル) である。製品量、 k_2 、そして供給時、製品、テーパポイントの濃縮度が与えられても、1 つ独立変数が残り、それは k_1 である。他のすべてのカスケードパラメータはこれらの 6 つの変数から計算される。

Report No. 2

Theory of Two-Section Square Cascade and Cost Estimation Program for Production of 100kg/y of Highly Enriched Nitrogen-15

[100kg／年規模の高濃縮窒素15生産
用 2セクションスクエアカスケード
理論とコスト評価プログラム]

1992年8月

ニューヨーク州立大学Stony Brook校
石田 孝信

目 次

	ページ
1. 2セクションカスケードのための設計公式	2-0
2. プログラム “50kg2S”	2-12
2-A:序論	2-12
2-B:入力データ構成	2-13
3. プログラム “Minimum”	2-15

2セクションカスケードのための設計公式

石田 孝信

1992年1月

目 次

I. 2セクションカスケードの物質収支	2-1
II. セクション2(高濃縮セクション)の操作線	2-2
II-A. 操作線(Line a)	2-2
II-A-1. ステージiを通過する物質収支	2-2
II-A-2. 操作線の傾き	2-2
II-A-3. 還流比	2-3
II-B. 最小還流比(セクション2)	2-3
III. セクション1(低濃縮セクション)の操作線	2-4
III-A. 操作線(Line a)	2-4
III-A-1. ステージiを通過する物質収支	2-4
III-A-2. 操作線の傾き	2-4
III-A-3. 窒素-15の物質収支公式	2-4
III-B. 最小還流比に相当する操作線	2-5
III-B-1. 操作線bの傾き	2-5
III-B-2. セクション1の最小還流比	2-6
III-C. セクション1の還流比	2-6
III-D. セクション1とセクション2の全体の還流比	2-7
IV. ステージ数	2-8
IV-A. セクション2(高濃縮セクション)	2-8
IV-A-1. 最小のステージ数	2-8
IV-A-2. ステージ数	2-8
IV-B. セクション1(低濃縮セクション)	2-9
IV-B-1. 最小のステージ数	2-9
IV-B-2. ステージ数	2-9
関係式(31)導出の概要	2-9
IV-C. ストリッピングセクション	2-10
IV-C-1. 操作線の傾き	2-10
IV-C-2. ステージ数	2-11

I. 2セクションカスケードの物質収支

$$L_2 = P_1 \quad (1)$$

$$G_2 = P_1 - P_2 \quad (2a)$$

$$G_2 = R_2 P_2 \quad (2b)$$

$$P_1 = P_2 + G_2 \quad (3a)$$

$$P_1 = (1 + R_2) P_2 \quad (3b)$$

$$L_1 = P_1 + R_1 P_1 \quad (4a)$$

$$L_1 = (1 + R_1) P_1 \quad (4b)$$

$$L_1 = (1 + R_1) (1 + R_2) P_2 \quad (4c)$$

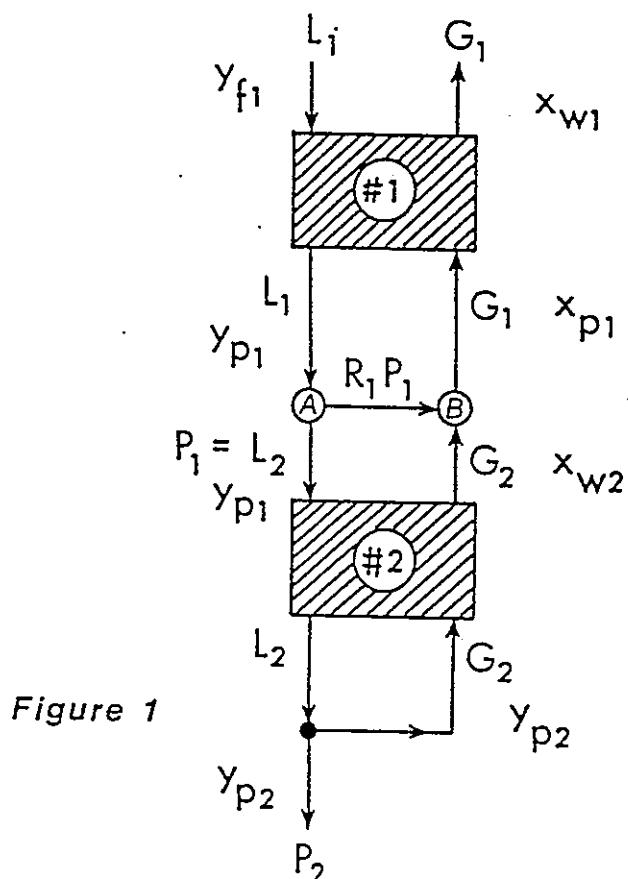
$$G_1 = R_1 P_1 + G_2 \quad (5a)$$

$$G_1 = R_1 (1 + R_2) P_2 + R_2 P_2 \quad (5b)$$

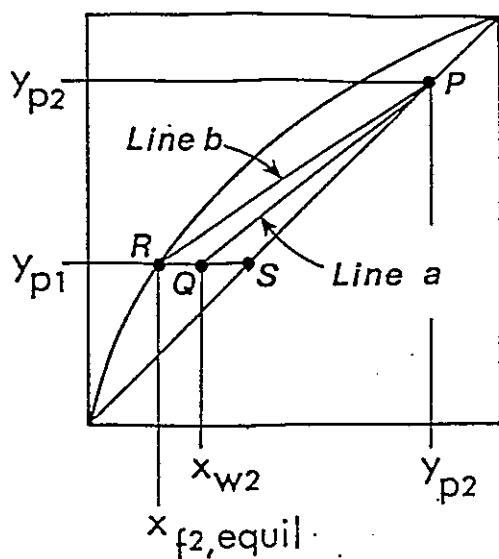
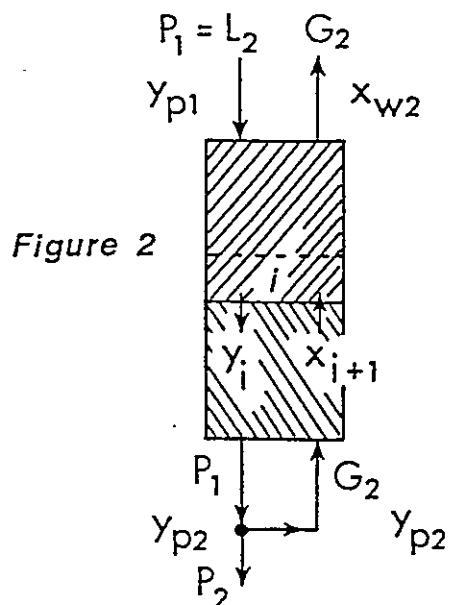
$$= (R_1 + R_2 + R_1 R_2) P_2$$

$$G_1 = (L_1 - P_2) + (P_1 - P_2) \quad (5c)$$

$$= L_1 - P_2$$



II. セクション2（高濃縮セクション）の操作線



II-A. 操作線 (Line a)

・ II-A-1. ステージ i を通過する物質収支

$$y_{pi} P_1 + x_{i+1} G_2 = y_i P_1 + x_{w2} G_2 \quad (6a)$$

$$\frac{G_2}{P_1}$$

$$y_i = y_{pi} + \frac{(x_{i+1} - x_{w2})}{P_1} \quad (6b)$$

・ II-A-2. 操作線の傾き

$$(傾き)_2 = \frac{G_2}{P_1} \quad (7a)$$

$$(傾き)_2 = 1 - \frac{1}{(L_2 / P_2)} \quad (7b)$$

$$(傾き)_2 = \frac{y_{p2} - y_{p1}}{y_{p2} - x_{w2}} \quad (7c)$$

$$(傾き)_2 = \frac{R_2}{1 + R_2} \quad (7d)$$

II-A-3. 還流比

本レポート全般にわたって還流比は、(還流量) / (生産量) と定義されている。これは、一般の定義、例えば(還流量) / (議論されているカラムのガス流量)、とは異なっている。

$$R_2 = \frac{G_2}{P_2} \quad (8a)$$

$$R_2 = \frac{(傾き)_2}{1 - (傾き)_2} \quad (8b)$$

$$R_2 = (Fac 2) \cdot R_{2,min} \quad (8c)$$

II-B. 最小還流比(セクション2)

(Line bの傾き)

$$R_{2,min} = \frac{y_{p1}}{1 - (\text{Line bの傾き})} \quad (9a)$$

$$\text{ここで } (\text{Line bの傾き}) = \frac{y_{p2} - y_{p1}}{y_{p2} - y_{f2,equil}} \quad (10)$$

$$\text{さらに } x_{f2,equil} = \frac{y_{p1}}{y_{p2} + \alpha (1 - y_{p1})} \quad (11)$$

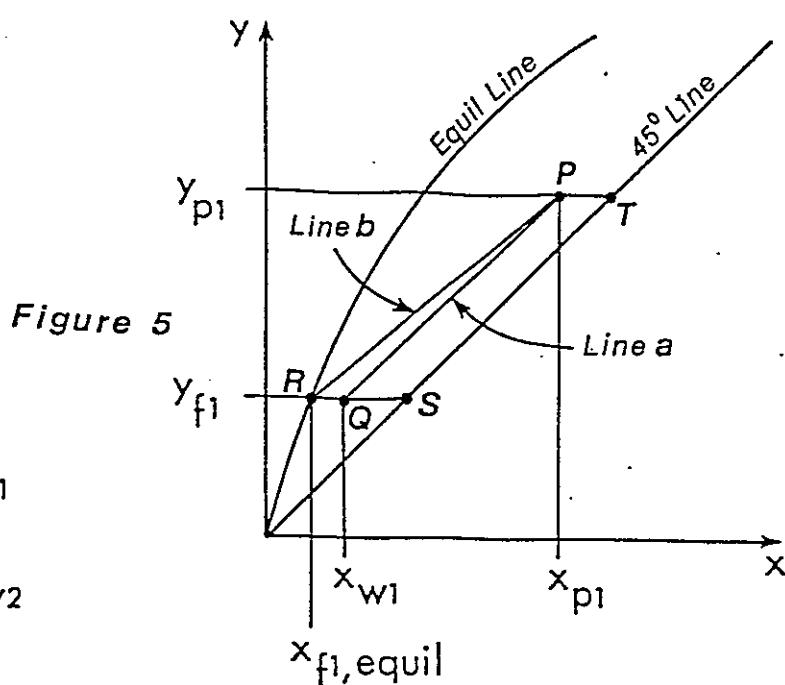
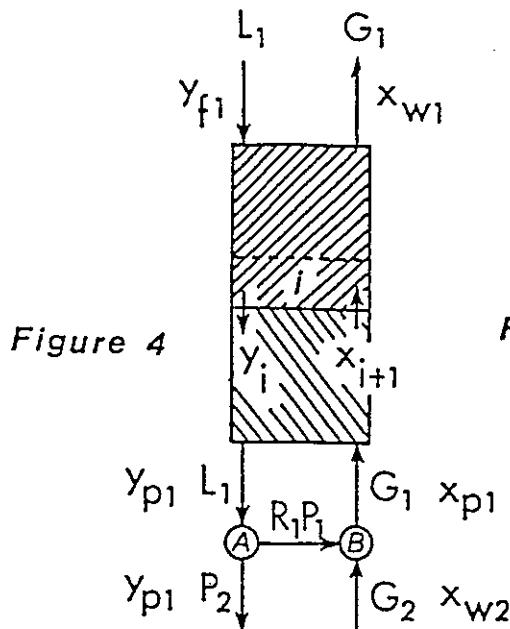
$$R_{2,min} = \left[\frac{L_2}{P_2} \right]_{min} - 1 \quad (9b)$$

$$R_{2,min} = \frac{y_{p2} [1 + \varepsilon (1 - y_{p1})] - y_{p1}}{\varepsilon y_{p1} (1 - y_{p1})} - 1 \quad (9c)$$

〔注〕

式(9c)は、TaylorとSpindel のアムステルダムでの報告(訳者注、付録1参照)や、更にBenedictの式(12. 78)(12. 78は原文のまま、意味不明)にまさしく一致する。

III. セクション1(低濃縮セクション)の操作線



III-A. 操作線 (Line a)

- III-A-1. ステージ i を通過する物質収支

$$y_i = y_{f1} + \frac{G_1}{L_1} (x_{i+1} - x_{w1}) \quad (12)$$

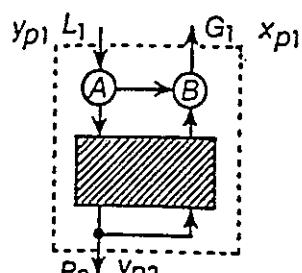
- III-A-2. 操作線の傾き

$$(傾き)_i = \frac{G_1}{L_1} \quad (13a)$$

$$(傾き)_i = 1 - \frac{1}{(L_1 / P_2)} \quad (13b)$$

$$(傾き)_i = \frac{y_{p1} - y_{f1}}{y_{p1} - x_{w1}} \quad (13c)$$

- III-A-3. 窒素-15の物質収支公式



点線で囲まれた部分での窒素-15の収支

$$x_{p1} = \frac{(1+R_1)(1+R_2) - y_{p2}}{(1+R_1)(1+R_2) - 1} \quad (14)$$

カスケード全体（セクション1とセクション2）での窒素-15の収支

$$x_{w1} = \frac{y_{t1}(1+R_1)(1+R_2) - y_{p2}}{(1+R_1)(1+R_2) - 1} \quad (15)$$

セクション2における窒素-15の収支

$$x_{w2} = \frac{y_{p2}(1+R_2) - y_{p2}}{R_2} \quad (16)$$

III-B. 最小還流比に相当する操作線

$$y_i = y_{t1} + \left[\frac{G_1}{L_1} \right]_{\min} (x_{i+1} - x_{w1}) \quad (17)$$

・ III-B-1. 操作線bの傾き

$$(傾き)_{1,\min} = \left[\frac{G_1}{L_1} \right]_{\min} \quad (18a)$$

$$(傾き)_{1,\min} = 1 - \frac{1}{(L_1/P_2)_{\min}} \quad (18b)$$

$$(傾き)_{1,\min} = \frac{y_{p1} - y_{t1}}{x_{p1} - x_{t1, \text{equil}}} \quad (18c)$$

$$\text{ここで, } x_{f1, \text{equil}} = \frac{y_{f1}}{y_{f1} + \alpha (1 - y_{f1})} \quad (19)$$

また, x_{p1} は式 (14) より得られる。

・III-B-2. セクション1の最小還流比

このセクション1の最小還流比(還流量/セクション1の生産量)は、Figure 5 のラインbの傾きより導かれる。式(14)と(19)を式(18c)に代入し、結果として得られる(傾き) $_{1, \min}$ と、式(18b)からの(傾き) $_{1, \min}$ を等しいとして(L_1 / P_2) $_{\min}$ を解くと、

$$\left[\frac{L_1}{P_2} \right]_{\min} = \frac{y_{p2} [1 + \varepsilon (1 - y_{p1})] - y_{f1}}{\varepsilon y_{f1} (1 - y_{f1})} \quad (20)$$

この式は、まさに式(9c)と一致する。そして、右辺は y_{f1} から y_{p2} を生産する1セクションカスケードの最小還流比と等しくなる。したがって、次のようにおくと

$$\left[\frac{L_1}{P_2} \right]_{\min} = R_{one, \min} \quad (21)$$

式(4c)を式(21)に代入し、 R_1 について解くと、この R_1 は $R_{1, \min}$ である。

$$R_{1, \min} = \frac{R_{one, \min}}{1 + R_2} - 1 \quad (22)$$

III-C. セクション1の還流比

$$R_1 = (Fac 1) \cdot R_{1, \min} \quad (23)$$

$$(還流総量)_1 = R_1 P_1 = R_1 (1 + R_2) P_2 \quad (24a)$$

$$(還流総量)_1 = L_1 - P_1 = L_1 - (1 + R_2) P_2 \quad (24b)$$

$$L_1 = (1 + R_1) (1 + R_2) P_2 \quad (4c)$$

$$G_1 = L_1 - P_2 \quad (5c)$$

III-D. セクション1とセクション2の全体の還流比

$$\begin{aligned}(\text{全還流比}) &= (\text{還流比})_1 + (\text{還流比})_2 \\&= [L_1 - (1 + R_2) P_2] - R_2 P_2 \\&= L_1 - P_2\end{aligned}\tag{25}$$

IV. ステージ数

IV-A. セクション2（高濃縮セクション）

・IV-A-1. 最小のステージ数

最小ステージ数は、唯一考察中のセクションへの供給時の濃縮度とセクションの終わりでの生産物の濃縮度によって決まる。なぜならば、最小ステージ数の操作線はFigure 3のPとS点を通るからである。

$$n_{\min} = \frac{1}{\varepsilon} \ln S \quad (26)$$

$$\text{ここで, } S = \frac{y_{p2}/(1-y_{p2})}{y_{p1}/(1-y_{p1})} \quad (27)$$

・IV-A-2. ステージ数

$$n = \frac{1}{\varepsilon b} \ln \left[\frac{1+a}{1-a} \right] \quad (28)$$

ここで,

$$a = \frac{b(x_2 - x_1)}{(x_2 + x_1)(1+c) - 2x_1x_2 - 2c y_p} \quad (29a)$$

$$b = [1 + 2c(1-y_p) + c^2]^{1/2} \quad (29b)$$

$$c = \frac{1}{\varepsilon} \frac{1}{R} \quad (29c)$$

さらに,

$$x_2 = y_{p2} \quad (30a)$$

$$x_1 = y_{p1} \quad (30b)$$

$$y_p = y_{p2} \quad (30c)$$

$$R = R_2 = \frac{G_2}{P_2} \quad (30d)$$

IV-B. セクション1 (低濃縮セクション)

・IV-B-1. 最小のステージ数

ステージ数は、操作の線が平衡の線から離れるにしたがって、一般に減少する。低濃縮セクションについてのFigure 5において、 x_{p1} は高濃縮セクションの操作条件次第である。なぜならば、 x_{p1} はセクション2 (高濃縮セクション) から還流するガス流の濃縮度と、セクション1の還流装置からの還流物の濃縮度との重量平均であるためである。

Figure 5でP点とS点を結んだ線は、低濃縮セクションの実際的な n_{min} を与えてくれる。しかし、結果は x_{p1} に影響を及ぼすパラメータ次第であろう。それは、濃縮度だけの関数ではない。Figure 5でP点とS点を結んだ線は、式(26)と(27)の y_{p2} を y_{p1} に、 y_{p1} を y_{t1} と置き換えることによって還流の独自の評価をするための n_{min} を与えてくれるが、この n_{min} は、実際の n_{min} よりも著しく過小評価をする。

・IV-B-2. ステージ数

ステージ数は、以下の置き換えを行って、式(28)–(29)によって得られる。

$$x_2 = y_{p1} \quad (31a)$$

$$x_1 = y_{t1} \quad (31b)$$

$$y_p = y_{p2} \quad (31c)$$

$$R = \frac{G_1}{P_2} \quad (31d)$$

・関係式(31)導出の概要

式(28)と(29)は、一般に方形カスケード内において、供給される物質中の濃縮度 x_1 から生産される物質中の濃縮度 x_2 に濃縮するためのステージ数を与える。式(29)のa, b, cのパラメータは、問題としているカスケードのうち、点線まで囲まれた部分(Figure 7参照)を通過する物質のバランスとして得られる二次方程式の解として導かれる。

セクション2についての二次方程式は、

$$\varepsilon x^2 - \left[\frac{P_2}{G_2} + \varepsilon \right] x + \frac{P_2 y_{p2}}{G_2} = 0 \quad (32a)$$

セクション1についての二次方程式は、

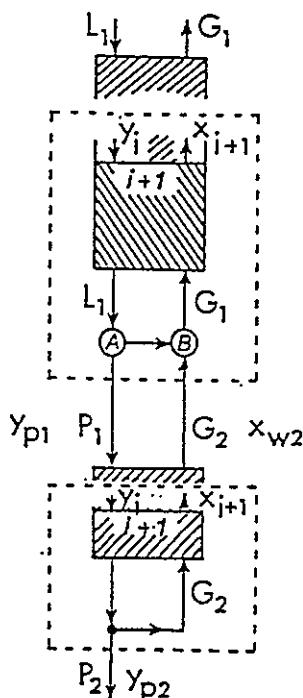
$$\varepsilon x^2 - \left[\frac{P_1}{G_1} - \frac{G_2}{G_1} + \varepsilon \right] x + \frac{(P_1 y_{p1} - G_2 x_{w2})}{G_1} = 0 \quad (32b)$$

(32b) 式において,

$$\frac{P_1 - G_2}{G_1} = \frac{P_2}{G_1} \quad (33)$$

そして,

$$\frac{P_1 y_{p1} - G_2 x_{w2}}{G_1} = \frac{P_2 y_{p2}}{G_1} \quad (34)$$



式(32a) と(32b) のどちらにおいても、一次部分の係数は、問題とするセクションにおける純製品回収率のガス流量に対する比率であり、定数項は問題としている部分でのガス流量に対する純窒素-15の回収率である。

したがって、セクション1について、 G_1 はセクション1の G_2 の役割を果たし、 P_1 は P_2 の代わりを、 y_{p1} は y_{p2} の代わりをそれぞれ果たす。

IV-C. ストリッピングセクション

・IV-C-1. 操作線の傾き

$$(傾き)_{stripping} = \frac{y_{t1} - y_w}{x_{w1} - y_w} = \frac{G_1}{L_s} \quad (35)$$

*独立変数の数は1つ:

y_{t1} は決まっている。; G_1 と x_{w1} は濃縮セクションの選択によって決定される; y_w は x_w である。

*独立変数の確実な選択は、 y_w である。; $[0 < y_w < y_{t1}]$

そこで、

$$L_s = \left[\frac{y_{f1} - y_w}{x_{w1} - y_w} \right] \cdot G_1 \quad (36)$$

$$W = G_1 - L_s \quad (37)$$

$$F = L_1 - L_s \quad (38)$$

・ IV-C-2. ステージ数

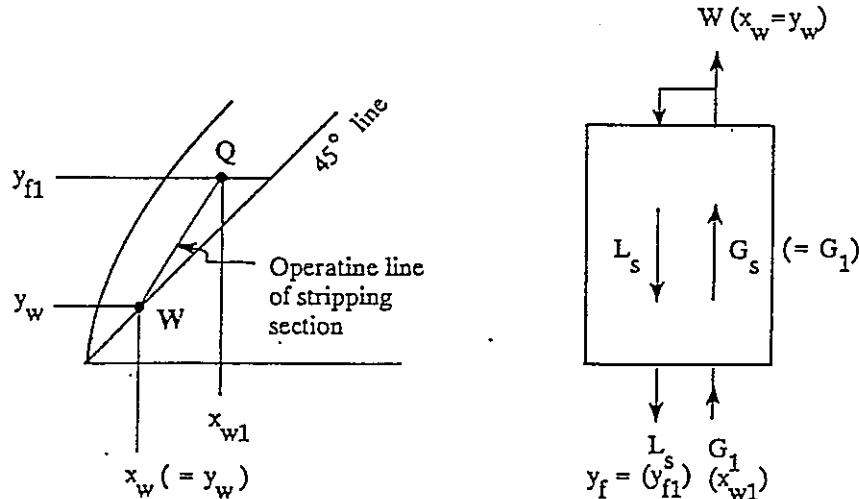
式(28) - (29)において

$$x_2 = y_f \quad (39a)$$

$$x_1 = y_w \quad (39b)$$

$$y_p = y_w \quad (39c)$$

$$R = \frac{L_s}{W} \quad (39d)$$



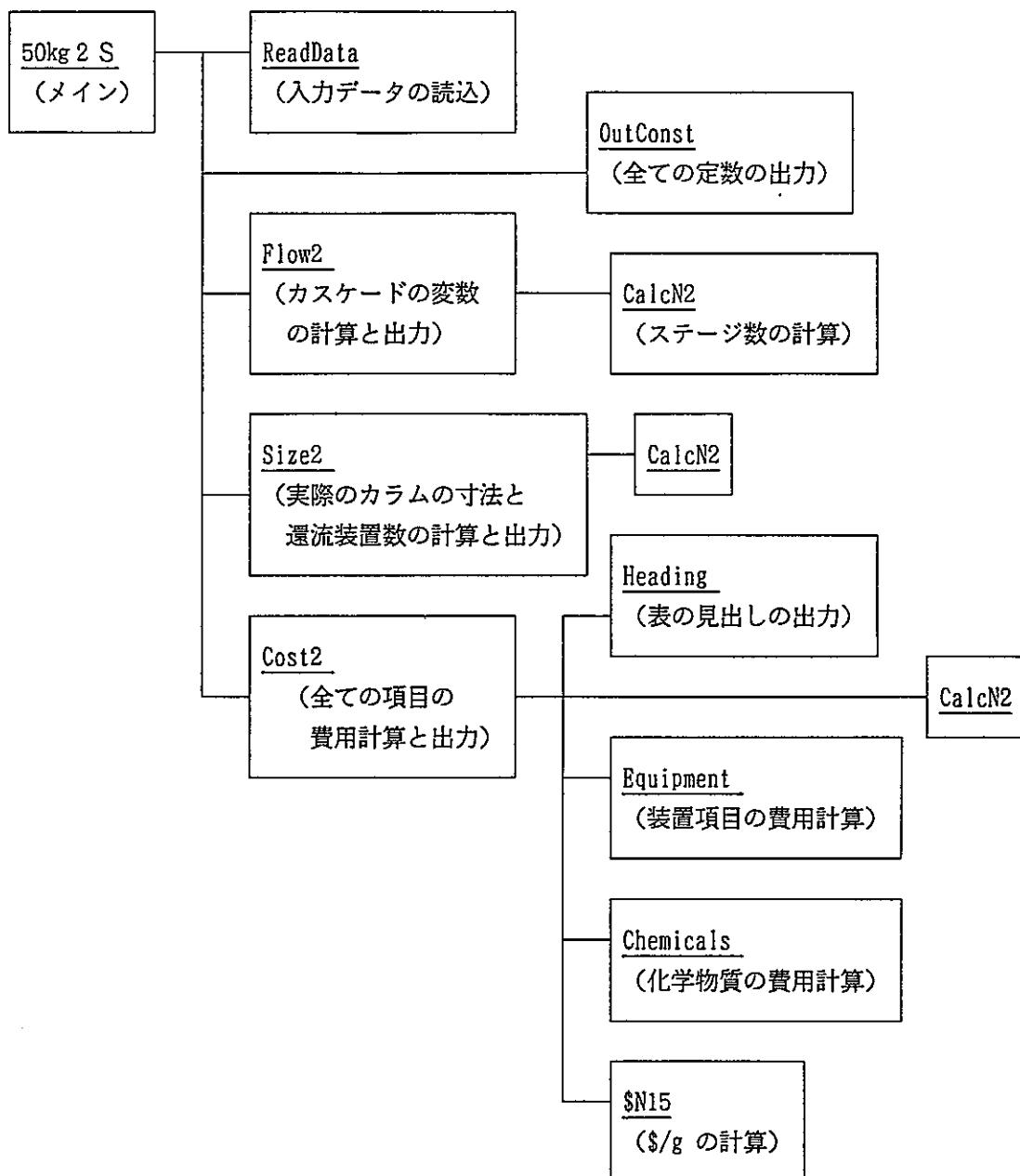
プログラム "50kg 2S"

2-A ; 序論

プログラム "50kg 2S" は、(a) 2つの濃縮部分と1つのストリッピング部分から構成されるカスケードのためのすべての物理的な変数を計算するため、そしてさらに、(b) 高濃度の窒素-15を50kg/年と100 kg/年の生産量で生産するための費用を概算するためを作成された。中心のコードは、主に机上用コンピュータで使用するためにFORTRANで書かれている。IBM-PCタイプの標準的なディレクトリ構成とIBM-又はMS-DOS 2.0か更に、例えばDOS 5.0もしくはそれ以上のものが要求されているとしても、上位のものを想定している。

プログラムは、それ自身にコメント行を用いて詳しく示されている；それらの行で、すべての重要な定数と変数とすべての重要な手順は説明されている。

プログラムの構成は、以下のとおりである。



入力構成は、次の章で説明する。出力例（それはファイル pnc/fortran/out2 上に置かれている）について、読者は報告書No.3のAppendixを参照するとよい。

2-B ; 入力データの構成

プログラムは、2つのデータファイル、どちらも pnc/fortran のディレクトリの中にある “InFlow” と “InCost” を読まなければならない。プログラムは、同じ行の上の連続的なデータ項目を最もよく、少なくとも 1 つのスペースによって分割するために、フォーマットされていない READ を使用する。以下のデータ構成の説明の中で、始めの行はプログラムの中で使用される種々の名前のセット、そしてそれぞれのすぐ下の数字は例である。“InFlow” は、カスケード計算のためのデータをセットする、そして “InCost” は、費用計算のためのものである。

pnc/fortran/inflow : これは、6つの行から構成される。

1) P2 Yf Yp2 Yw RoneMin Nr2 Nr1
18.27 0.00366 0.99 0.00037 5188 3 4

2) Yp1 R2min N2min N1min
0.05 380 137 48

3) (f2(i), i=1, Nr2)
1.10 1.20 1.50

4) (f1(i), i=1, Nr1)
1.01 1.10 1.20 1.40

5) Kpac
1

6) Fchem1 FchemPP Fht1 Fht2PP FhtHP
2.0 2.0 1.1 1.1 1.1

これらのデータの多くは、はじめに走らせたプログラム “Minimum” によって得られる。それは、次の章で説明する。

pnc/fortran/lnCost : これは、9つの行が必要である。

1) 債却年数 年率
15 0.08

2) \$充填材1 \$LD1 \$LRD1 \$その他1 \$パイプ1
5820 1000 450 450 75

3)	\$充填材PP	\$充填材HP	\$LD2	\$LRD2	\$その他2	\$パイプ2
	38	275	200	55	200	25
4)	\$還流器ユニット	\$分配器	\$還流器のその他			
	20000	1000	2000			
5)	(\$T(i), i = 1, 8)					
	9000	27600	4300	2900	2100	46500
6)	(\$P(i), i = 1, 10)					
	2400	4500	3000	5000	3000	1700
7)	(\$P(i), i = 13, 21)					
	2000	7000	3600	4500	1380	13300
8)	(\$HX(i), i = 1, 5)					
	10000	3000	14000	8000	5000	
9)	\$SO2	\$H2SO4	Conc H2SO4			
	0.01623	0.00803	9.6			

プログラム "Minimum"

プログラム "Minimum" は、50kg2Sのプログラムで必要とされる、以下の "minimum" カスケードの規模を計算するために用いられる。

- 1)N2Min: 2セクションカスケードのセクション2に必要な分離のための最小ステージ数
- 2)R2Min: セクション2における最小還流比
- 3)RoneMin: 2セクションカスケードの最終濃縮度のレベルが、1セクションカスケードによって達成されたときに2セクションカスケードで同じ供給レベルから開始されるのに必要な最小還流比

入力は、相互に作用する；すべての入力は、コンピュータによりスクリーン上に表示される質問的回答としてキーボードより入力され作られる。それは、

- (a) 単位ステージ分離係数
- (b) あなたの使用したい供給物質の濃縮度との差はいくらか
- (c) それらの濃縮度の値はいくらか
- (d) あなたの得たい生成物質の濃縮度との差はいくらか
- (e) それらの生成物質の濃縮度との値はいくらか

のように聞いてくる。

あまり大きな見栄を張ってはいけない。製品濃縮度は、すべて供給物質の濃縮度よりも必ず大きくなければならない。

出力は、pnc/fortran/output のファイル上に置かれる。

いくつかのこのファイルのプリントアウトの例を以下に示す。

プログラム "Minimum" の出力

このランにおけるステージ分離係数=1.0550

供給物質中の窒素15の濃縮度=0.00366

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9000	2450.	141	4715.
.9500	5172.	155	4978.
.9900	26950.	185	5188.
.9950	54173.	198	5215.
.9990	271955.	227	5236.

供給物質中の窒素15の濃縮度=0.05000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9000	171.	93	343.
.9500	361.	107	363.
.9900	1881.	137	380.
.9950	3781.	149	382.
.9990	18981.	179	383.

このランにおけるステージ分離係数=1.0550

供給物質中の窒素15の濃縮度=0.03000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9900	3201.	146	633.

供給物質中の窒素15の濃縮度率=0.04000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9900	2376.	141	475.

供給物質中の窒素15の濃縮度率=0.05000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9900	1881.	137	380.

供給物質中の窒素15の濃縮度率=0.06000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9900	1551.	133	316.

供給物質中の窒素15の濃縮度率=0.07000

製品濃縮度	全ステージ数	Nmin	Rmin
.9900	1315.	130	271.

CC

C * * * * * プログラム “50kg2S” * * * * * [1992 年 8 月 ; T. Ishida]

CC

C プログラム “50kg2S” は、 硝酸プロセスの 2 セクションカスケードで、 50kg／年の割合で窒
C 素15を生成するためのカスケードパラメータの解析と、 経費を評価するためのものである。

C

C 生産物質の濃縮レベルは、 いくらかの範囲で変化するであろう。

C

C このプログラムは、 机上型 PC の環境で最も使いやすい。

C

C いくつかの装置が、 時々ファクターが 2 つ以上になるためオーバーサイズとなるので仕事を
C 行うために必要になる、 それらは、 50kg／年の割合よりも、 もっと大きな量の原料、 それらの
C 費用の増加は除くことが必要であるが、 を扱うことができる。

C

C 使用者は、 50kg／年以上の変化する生産率のための実験を促進できる。

C

C セクション 1 の同位体交換カラムは、 ノートンの工程システムの I M T P で、 充填材 No.15 を
C 6 インチ 内径のカラムにつめたものをベースにしている。

C 流量は、 直径の増加なしに約 100 kg／年の生産率に相当する量まで増加させることができる。
C この割合は、 この直径におけるほぼ飽和する量に相当する。

C

C セクション 2 の交換カラムについて、 使用者は ProPack 充填材と HeliPak 充填材のどちらで
C も選択できる。（付随している “Program Description” シートを読むこと。） 使用者は、 飽
C 和する限界までの高い生成割合を使用することができるが、 セクション 2 の交換カラムのト
C タル費用は流量の増加とともに増加するであろう。 カラムの内径は 3 インチ にセットされている。

C

C 起こりうる飽和条件が検出されたとき、 プログラムから警告が発せられるであろう。

C

C それぞれの生成物エンド還流器の部分は、 並列に接続された幾つかのモジュラーユニット
C で構成されていて、 使用者が生成割合を増加させるとその数、 費用は増加する。

C

C プログラムの中で使用される主なパラメータの概略を以下に示す。

C

C 外部のデータファイルからの読み込み :

C

C (A) 流量のパラメータは、 pnc/fortran/inflow ファイルから読み込む

C

C P2 = 製品量 (molN/日) [=9.1385; 50kg/年で@99%のとき]

C Yf = 供給物質中の濃縮度

C Yp2 = 製品の濃縮度

C Yp1 = テーパーポイントでの濃縮度

c Y_w = 廃棄物の濃縮度

c RoneMin = もし製品の濃縮度が 1 セクションカスケードで得られる場合の最少還流比。

c R2min = セクション 2 の最小還流比

c N2min = セクション 2 の最小ステージ数

c N1min = “セクション 1 の最小ステージ数”；テーパーポイント点の濃縮度 (Y_p1)
c が 1 セクションカスケードの目標である場合の。

c NR2 = セクション 2 の異なる R_2' の数；ここで R_2 は、セクション 2 の製品還流比

c F2 = セクション 2 の還流比係数； $N2min$ は、セクション 2 における実際の還流比
c を計算して $F2(i)$ に掛けられたものである。 $F2(i), [i=1, NR2]$

c NR1 = セクション 1 の異なる R_1' の数；ここで R_1 は、セクション 1 の製品還流比

c F1 = セクション 1 の還流比係数； $F1(i), [i=1, NR1]$

c Fchem1 = 使用者が選択してセクション 1 の交換カラムの基本HETPからガス-液体
c 反応を説明するために掛ける係数 [例 ; 2.0]

c FchemPP = 使用者が選択してセクション 2 の交換カラムの基本HETPからガス-液体
c 反応を説明するために掛ける係数 [例 ; 2.0]

c Fht1 = 使用者が選択してセクション 1 の交換カラムの理論高さに掛ける安全係
c 数 [例 ; 1.2]

c Fht2PP = 使用者が選択してセクション 2 のProPack を充填した交換カラムの理論
c 高さに掛ける安全係數 [例 ; 1.2]

c Fht2HP = 使用者が選択してセクション 2 のHeliPak を充填した交換カラムの理論
c 高さに掛ける安全係數 [例 ; 1.2]

c (B)費用のパラメータは、 pnc/fortran/InCost のファイルから読み込まれる。

c 1a. Amort years = 減価償却期間 (年)

c 1b. Pann interest = 年間の利率 (%)

c 2a. \$Packing1 = セクション 1 の交換カラム充填材の 1 m³当たりの単価 (\$)

c 2b. \$LD1 = セクション 1 の交換カラムのそれぞれの液体の分配器の単価
c (\$)

c 2c. \$LRD1 = セクション 1 の交換カラムの液体再配分器の単価 (\$)

c 2d. \$others1 = セクション 1 の交換カラムのその他 (充填材、支持具、凝縮
c 器、板、フランジ等) のセット当たりの費用 (\$)

c	2e. \$pipe1	= セクション1の交換カラムのカラムパイプ1フィート当たりの単価 (\$)
c	3a1. \$Packing PP	= セクション2の交換カラムのProPack 充填材 1 ℥当たりの単価 (\$)
c	3a2. \$Packing HP	= セクション2の交換カラムのHeliPak 充填材 1 ℥当たりの単価 (\$)
c	3b. \$LD2	= セクション2の交換カラムのそれぞれの液体の分配器の単価 (\$)
c	3c. \$LRD2	= セクション2の交換カラムの液体再配分器の単価 (\$)
c	3d. \$others2	= セクション2の交換カラムのその他のセット当たりの単価 (\$)
c	3e. \$pipe2	= セクション2の交換カラムのカラムパイプ1フィート当たりの単価 (\$)
c	4a. \$refluxer unit	= それぞれの還流器モジュラーユニットの単価 (\$) 詳細はレポートを見ること。
c	4b \$divider	= セクション1のそれぞれの還流器の液体分離器単価 (\$), セクション2では、その価格は半分
c	4c. \$others refluxer	= セクション1のその他 (N02 スクラバー等) の費用 (\$), セクション2では、その価格は半分
c	5a. \$T(1)	= タンク 1の費用 (\$) (H2S04, 貯蔵)
c	5b. \$T(2)	= タンク 2の費用 (\$) (HN03, 供給物貯蔵)
c	5c. \$T(3)	= タンク 3の費用 (\$) (HN03, ダンプ, セクション1交換カラム)
c	5d. \$T(4)	= タンク 4の費用 (\$) (HN03, ダンプ, セクション2交換カラム)
c	5e. \$T(5)	= タンク 5の費用 (\$) (HN03, 生成物)
c	5f. \$T(6)	= タンク 6の費用 (\$) (S02, 貯蔵)
c	5g. \$T(7)	= タンク 7の費用 (\$) (HN03, ダンプ, ストリッピング)
c	5h. \$T(8)	= タンク 8の費用 (\$) (HN03, 廃棄物貯蔵)
c	6a. \$P(1)	= ポンプ 1の費用 (\$) (H2S04, 供給物貯蔵への)
c	6b. \$P(2)	= ポンプ 2の費用 (\$) (HN03, セクション1交換カラムへの供給)
c	6c. \$P(3)	= ポンプ 3の費用 (\$) (HN03, セクション1交換カラムからセクション2交換カラムへ)
c	6d. \$P(4)	= ポンプ 4の費用 (\$) (HN03, セクション1交換カラムから生成物還流器へ)
c	6e. \$P(5)	= ポンプ 5の費用 (\$) (HN03, セクション2交換カラムから生成物還流器へ)
c	6f. \$P(6)	= ポンプ 6の費用 (\$) (HN03, セクション2交換カラムから生成物貯蔵へ)
c	6g. \$P(7)	= ポンプ 7の費用 (\$) (H2S04, セクション1製品還流器から貯蔵へ)
c	6h. \$P(8)	= ポンプ 8の費用 (\$) (H2S04, セクション2製品還流器から貯蔵へ)

c	6i. \$P(9)	= ポンプ 9 の費用 (\$)(H2S04, 貯蔵から販売へ)
c	6j. \$P(10)	= コンプレッサー 10の費用 (\$)(SO2, タンク車から貯蔵へ)
c	6k. \$P(13)	= コンプレッサー 13の費用 (\$)(NO, セクション1製品還流器から交換カラムへ)
c	6l. \$P(14)	= コンプレッサー 14の費用 (\$)(NO, セクション2製品還流器から交換カラムへ)
c	6m. \$P(15)	= コンプレッサー 15の費用 (\$)(NO, セクション2交換カラム からセクション1交換カラムへ)
c	6n. \$P(16)	= コンプレッサー 16の費用 (\$)(NO, セクション1交換カラム からストリッピングカラムへ)
c	6o. \$P(17)	= ポンプ17の費用 (\$)(H2O, セクション1交換カラム への供給)
c	6p. \$P(18)	= ポンプ18の費用 (\$)(H2O, 廃棄物還流器への供給)
c	6q. \$P(19)	= ポンプ19の費用 (\$)(HN03, ストリッパーカラム からセクション1交換カラム)
c	6r. \$P(20)	= コンプレッサー 20の費用 (\$)(NO, ストリッパーカラム から廃棄物還流器へ)
c	6s. \$P(21)	= ポンプ21の費用 (\$)(HN03, 廃棄物還流器からストリッパーカラムへ)
c	7a. \$HX(1)	= 熱交換器 1 の費用 (\$)(セクション1 還流器からのNO)
c	7b. \$HX(2)	= 熱交換器 2 の費用 (\$)(セクション2 還流器からのNO)
c	7c. \$HX(3)	= 熱交換器 3 の費用 (\$)(セクション1 還流器からのH2S04)
c	7d. \$HX(4)	= 熱交換器 4 の費用 (\$)(セクション2 還流器からのH2S04)
c	7e. \$HX(5)	= 熱交換器 5 の費用 (\$)(廃棄物還流器からのHN03)
c	8. \$SO2	= SO2 1 モルあたりの単価 (\$)
c	9. \$H2S04	= クレジットのためのH2S04 1 モルあたりの単価 (\$)
c	10. \$conc H2S04	= 生成されるH2S04 のモル濃度

c
c * * 定数 :

c G1max = セクション1の流出(ガス)流量, モルNO/日

c G2PPmax = ProPack の流出(ガス)流量, モルNO/日

c L2HPmax = HeliPak の流出(液体)流量, モルHN03/日

c dial = セクション1の交換カラムの内径= 6 インチ

c dia2 = セクション2の交換カラムの内径= 3 インチ

c
c A = 1.055

c E = a-1.0

c G1max = 1.26e5

c G2PPmax = 12000.0

c L2HPmax = 5910.0

c dial = 6.00

c dia2 = 3.00

c \$Wrefluxer = 5.0e4

Report No. 3

A Chemical Exchange System for
Producing 100kg/y of Highly Enriched
Nitrogen-15

[100kg／年規模の高濃縮窒素15
生産用化学交換システム]

1992年8月

ニューヨーク州立大学Stony Brook校

石田 孝信

Senior Consultant, National Academy of Sciences

William Spindel

目 次

I. 要 旨	3 - 1
II. 序 章	3 - 3
III. プロセスの解説とコスト評価の基礎	3 - 5
III-A 装置の解説とコスト評価	3 - 10
1. 交換塔	3 - 10
1-a 第1交換塔及び回収塔	3 - 11
1-b 第2交換塔	3 - 12
2. 製品還流部	3 - 14
3. ポンプ	3 - 18
4. タンク	3 - 19
5. 熱交換器	3 - 20
III-B 化学薬品	3 - 21
III-C 運転におけるコスト因子	3 - 21
III-D 最適化の手順	3 - 23
IV. 結果と考察	3 - 25
IV-A 濃縮度99.0%のコスト	3 - 26
IV-B 濃縮度99.9%のコスト	3 - 34
IV-C 濃縮度90.0%のコスト	3 - 37
V. 結 論	3 - 40

I. 要 旨

原料として天然窒素存在率(0.366%)の硝酸を用い、濃縮度90.0%、99.0%及び99.9%の¹⁵Nを100kg/年(18.27gモルN/日)の規模で製造するプラントについて詳細なコスト評価を行った。評価に用いた濃縮プラントはNitrox法に基づくものであり、2つの濃縮交換部(enriching section, exchange section)と1つの回収部(stripping section)から構成される。このプラントについてカスケードパラメータ及びコスト因子が濃縮コストに及ぼす影響を調べた。前者の例としてはテーパーポイント及び減損廃棄物中の濃縮度、H E T P (Height Equivalent of Theoretical Stages), 還流比(reflux ratio)が、後者としては薬品消費コスト、転売可能な副生成物の売却収入、全プラント資本、固定及び流動資本の金利、運転コスト、減価償却費が挙げられる。次表に濃縮¹⁵Nの単価を示す。

濃 縮 度	全 濃 縮 コ ス ト (米ドル/g ¹⁵ N)			
	減価償却期間10年		減価償却期間15年	
	硫酸売却無	売 却 有	売 却 無	売 却 有
90.0%	19.75	15.60	18.60	14.45
99.0%	20.95	16.40	19.80	15.25
99.9%	21.10	16.50	19.90	15.30

*：“硫酸売却”の有無とは、副生成物である硫酸の売却収入を考慮したか否かを示す。なお、コストは0又は5セントに近似した。

以上の評価はPNCから指定された以下の4条件に基づいて実施した。

- (a) 硝酸については、原料としての購入費用も減損廃棄物硝酸の転売による収入も考慮しない。
- (b) プラントの建設用地取得費、造成費は含まない。
- (c) 運転員の人件費は含まない。
- (d) 金利は8%とし、プラント及び他の固定資産の減価償却の70%に適用される。

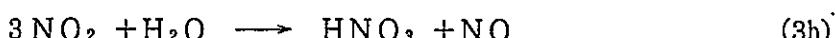
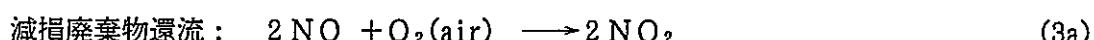
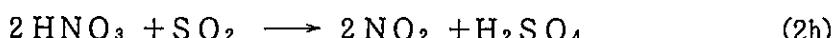
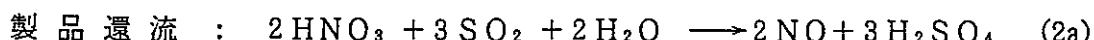
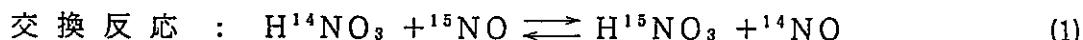
各装置及びその構成機器の価格は、1992年夏現在のメーカー見積額に基づくものであり、化学薬品の価格も信頼度が高いものである。唯一最大の不確定性因子は本評価に用いたランダム充填材におけるH E T P 値である。しかし、信頼性の高いH E T P 値はNitrox法の条件下にお

ける実験によってのみ得ることができる。この大きな不確定性を含むため、今回の評価コストは±0.25ドル/gの不確定幅をもつものとなった。

II. 序 章

本報告書は今回の研究に関する3番目のものである。別冊とした報告書No.2は、2段カスケードの理論と方程式についてのまとめ、本評価に用いた計算プログラムの説明、プログラムソースコード及び入力データの例を含んでおり、本報告書を補うものである。

本研究の目標は、年産100kgの規模で99.9%，99.0%，90.0%の¹⁵N濃縮窒素を製造する際の詳細なコスト評価を行うことがある。¹⁵Nの濃縮は一酸化窒素ガス(NO)と硝酸(HNO₃)の同位体交換反応(1)に基づくものであり、製品還流はHNO₃をSO₂で還元することで行う(反応(2))。また、減損廃棄物の還流はNOを空気で酸化して行う(反応(3))。



1992年1月に提出した報告書で述べたように、今回のコスト評価は以下の仮定の下に行つた。

(a) 原料物質としての硝酸のコストは含まない。

[訳者註：減損廃棄物として得られる硝酸の化学的性質は天然窒素組成の硝酸となんら変わりないため、一般化学工業用原料として売却できると考えられる。従って、原料硝酸(天然窒素原子分率)の購入費と減損廃棄物硝酸(¹⁵N減損)の売却収入が完全に相殺すると仮定した。]

(b) プラント建設用地取得費、サイト造成費は含まない。

(c) プラント運転に係る人件費は考慮しない。

(d) 金利は8%とし、プラント及び他の固定資産の減価償却の70%に適用される。

これに加えて、(e) III-A-1で述べるように、交換塔充填材のH E T P (Height Equivalent of Theoretical Stages)に関して様々な仮定を行った。また、減価償却期間としては10年と15年

の2通り設定した。

1992年1月の報告後、まず、年産50kgの規模で99%の濃縮¹⁵Nを製造する場合のコストを更に詳細に評価する作業に着手した。そして、主要な装置に必要な最低限の仕様を決定し、その見積金額を得た。しかし、その過程で、市販品として得られる最新の高効率充填材の場合、メーカーが推奨する塔径は最小値でも6インチ（内径）であることがわかった。50kg/年規模のプラントの気相及び液相の流量は、大雑把に見て6インチ交換塔に相当する資本比を下回る。そして、分離板、分離カップ及び構造充填材といった工業的に利用されている他の交換塔の場合、更に過剰設備となる。このため、PNCが更に大規模な¹⁵N製造を検討していることを踏まえて、製造規模を年産50kgから年産100kgに変更した。この変更により¹⁵N濃縮コストをかなり下げる事ができた。

すなわち、本報告では以後、90.0%，99.0%，99.9%の濃縮¹⁵Nを年産100kgの規模で製造する場合について評価することにする。

プラント設計上の大きな変更点がもう一つある。1月に報告したプラントは二段カスケードを基本とし、回収部を含まないものであった。回収部は原料物質（硝酸）中に含まれている必要同位体（¹⁵N）を更に抽出することを可能にし、より多くの¹⁵Nを濃縮塔に供給することができる。回収部からの減損廃棄物流の¹⁵N存在比は天然窒素より低くなるが、このことは硝酸の再販価値に何ら影響を与えない。

回収部の真価は、濃縮プラントの硝酸供給側への依存を著しく低減することであるが、これについてはIV章で説明する。

1月に報告したプラントで回収部を考慮しなかった理由は前述した条件(a)によるもので、原料の節減に由来する供給コストの減少が全くなく、単に回収部とそれに伴う、ポンプ、タンクの追加に伴う濃縮コストの増加を招くだけであったからである。回収部の採用が全濃縮コストの負担になるという点は今回も同様である。しかし、¹⁵N濃縮プラントが既成の硝酸工業に寄生する性格のものであることをPNCに注目してもらうために、回収部を採用することにした。

III. プロセスの解説とコスト評価の基礎

図-1にカスケードのフローと主要装置の配置を示す。1月の報告とは以下の点が異なる。

追加した機器： 回 収 部 ; カラム C-6
タンク T-7
ポンプ Pump-19
ポンプ Pump-21
コンプレッサ P-20
減損硝酸貯蔵槽 ; タンク T-8
熱交換器 E-5

除去した機器： ポンプP-11, P-12（本報告書の図-1には示していない。）

表-1に各機器に必要な最低限の仕様を示す。表に示したコストは1992年夏に合衆国内のメーカー数社に問い合わせて得たものである。

本章では、始めに各々の機器の仕様について議論し、次に評価に用いた最適プロセスの概要を説明する。プロセスの詳細については報告書No.2を参照されたい。

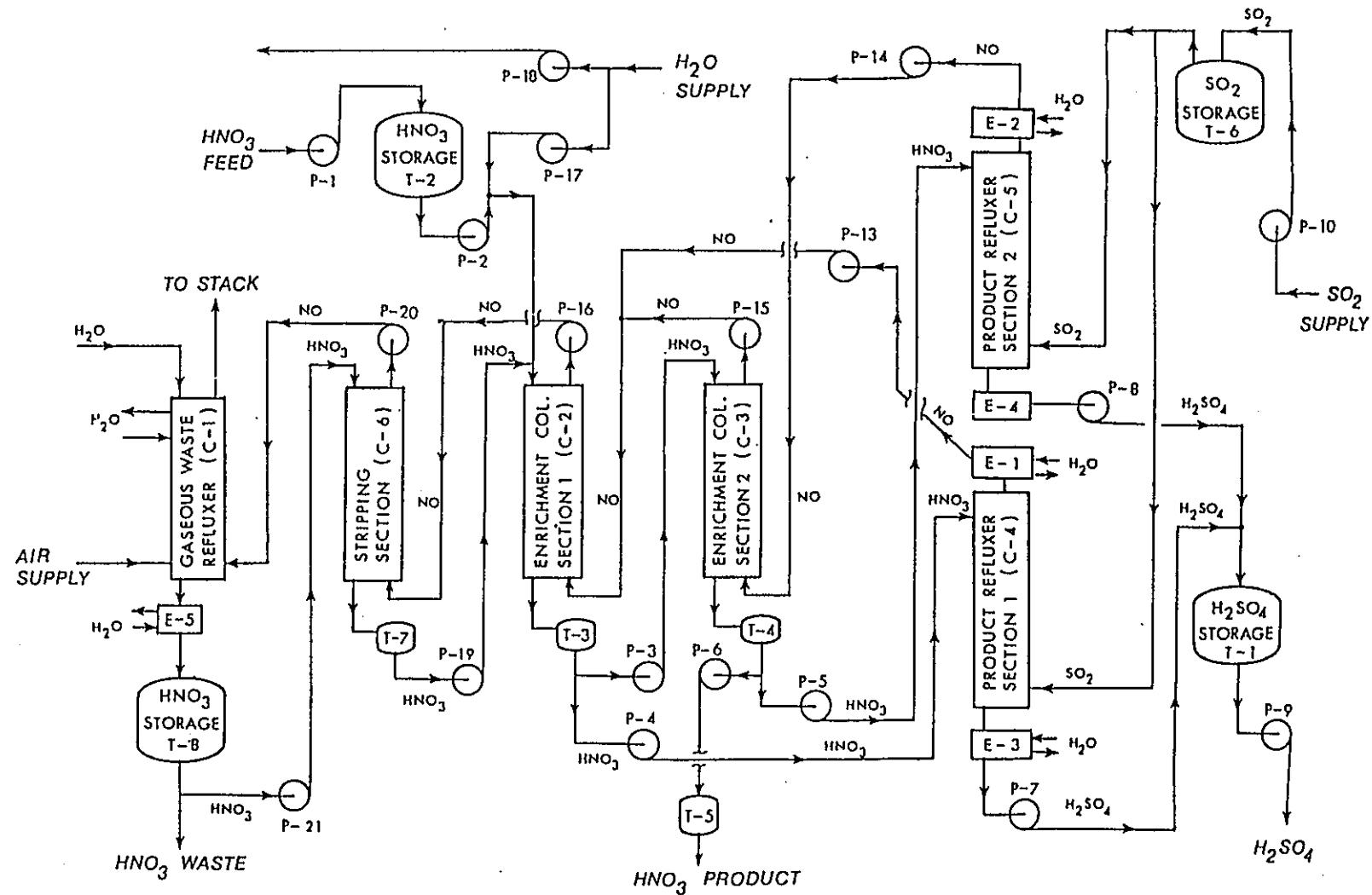


図-1 コスト評価に用いた2段カスケードと回収部の流れ図

表 - 1 機器の説明及びコスト

塔及びカラム

ID No.	記 事	単 価 (米ドル)	合計コスト (米ドル)
C - 2	<p>〔第1交換塔〕</p> <p>(1) 内径6インチ、高さ可変、316SS製、スケジュール40； (2) 充填材=Norton IMTP No.15 (316SS製)</p> <ul style="list-style-type: none"> ・充填材 ・液体分配器 ・液体分配器 (9 ft毎に必要) ・他の塔内部材 (9 ft毎に必要) 充填材支持材、支持棚、液相捕集器 (塔内部材は全て316SS製) ・パイプ (6インチ)、スケジュール40、316SS製 	5,820/m ³ 各1,000 各450 各450 75/ft	
C - 3	<p>〔第2交換塔〕</p> <p>(1) 内径3インチ (〔注〕に記すものを除く)、高さ可変、316SS製、スケジュール40</p> <ul style="list-style-type: none"> ・充填材A : ProPak (0.16インチ, 316SS) ・充填材B : Helipak (Cサイズ, 316SS) <p>〔注〕 Helipakを使用するのは硝酸流量が5,910モル/日を超えて塔径を4インチに繰り上げた場合である。 詳細については本文を参照のこと。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・液体分配器 ・液体分配器 (6ft毎に必要) ・他の塔内部材 (6ft毎に必要) 充填材支持材、支持棚、液相捕集器 (塔内部材は全て316SS製) ・パイプ (3インチ)、スケジュール40、316SS製 	38/ℓ 275/ℓ 各200 各 55 200/組 25/ft	
C - 4	<p>〔第1製品還流部〕</p> <p>(1) 還流器：改良型シェル・チューブ型熱交換器； パイレクスガラス製 (但しチューブシートはガラス繊維強化型polytetrafluoroethylene製) 12インチシェル ; 外径44mm、長さ4 mの18本のチューブを持つ；硝酸還流量9,300gモル/日毎に1基必要</p> <p>(2) 還流液相スピッタ (還流器毎に1基必要)</p> <p>(3) NO_x回収器 (還流器5基毎に1基必要)</p>	各20,000 各 1,000 各10,000	
C - 5	〔第2製品還流部〕 (1) 第1製品還流部と同様		
C - 6	〔回収塔〕 (1) 第1交換塔と同じ構成		
C - 1	<p>〔減損廃棄物還流部〕</p> <p>(1) 内径6インチ×高さ10m、316SS製</p> <p>(2) 1基</p> <p>(3) 充填材；3/4インチ鞍型Intalox</p>	50,000	50,000

タンク

ID No.	貯蔵物質	用 途	記 事	単 価 (米ドル)	合計コスト (米ドル)
T-1	H ₂ SO ₄	貯 藏	8,000米ガロン, Hatron922I樹脂製	9,000	9,000
T-2	HNO ₃	貯 藏	2,000米ガロン, 304SS製, 3基	9,200	27,600
T-3	"	第1交換塔 ダンプ	500米ガロン, 304SS製	4,300	4,300
T-4	"	第2交換塔 ダンプ	100米ガロン, 304SS製	2,900	2,900
T-5	"	製品貯蔵	20米ガロン, 304SS製	2,100	2,100
T-6	SO ₂	貯 藏	6,000米ガロン, 304SS製, 3基	15,500	46,500
T-7	HNO ₃	回収塔ダンプ	500米ガロン, 304SS製	4,300	4,300
T-8	"	減損廃棄物 貯 藏	3,000米ガロン, 304SS製	9,600	9,600

熱交換器

ID No.	用 途	記 事	単 価 (米ドル)	合計コスト (米ドル)
E-1	第1還流塔からの NOガス冷却	[シェル・チューブ型] 61インチシェル, 37本チューブ, パイレックスガラス製	10,000	10,000
E-2	第2還流塔からの NOガス冷却	[ジャケット構造 ガラスコイル内蔵型] 37本チューブ, 3m長, パイレックスガラス製	3,000	3,000
E-3	第1還流塔からの H ₂ SO ₄ 冷却	[シェル・チューブ型] 61インチシェル, 37本チューブ, 4.5m長, パイレックスガラス製	14,000	14,000
E-4	第2還流塔からの H ₂ SO ₄ 冷却	[冷却用内部螺旋コイル付き ジャケット型塔] パイレックスガラス製	8,000	8,000
E-5	減損還流塔からの HNO ₃ 冷却	[シェル・チューブ型熱交換器] 316SS製	5,000	5,000

ポンプ

ID No.	流 体	用 途	容 量	水頭圧 (psid)	価 格 (米ドル)
P-1	HNO ₃	タンクローリから貯蔵タンク	33gpm	25	2,400
P-2	"	C-2へ貯蔵	50gph	100	4,500
P-3	"	C-2からC-3(DP) ⁽³⁾	30gph	45	3,000
P-4	"	C-2からC-4(DP)	100gph	70	5,000
P-5	"	C-3からC-5(DP)	30gph	70	3,000
P-6	"	C-3から製品取出し(DP)	1ml/min	15	1,700
P-7	H ₂ SO ₄	C-4から貯蔵所へ(DPT)	120gph	45	2,000
P-8	"	C-5から貯蔵所へ(DP)	30gph	30	3,200
P-9	"	貯蔵所から売却拡出	120gph	45	3,000
P-10	SO ₂	タンクローリから貯蔵タンク	17gpm	20	6,800
P-13	NO ₂	C-4からC-2(DP)	50scfm	5	100,000
P-14	"	C-5からC-3(DP)	5scfm	5	3,050
P-15	"	C-3からC-2(DP)	5scfm	5	3,050
P-16	"	C-2からC-6	50scfm	5	13,300
P-17	H ₂ O	供給硝酸の希釈	60gph	250	1,380
P-18	"	C-1へ供給	250gph	250	3,600
P-19	HNO ₃	C-6からC-2	50gph	100	4,500
P-20	NO	C-6からC-1	50scfm	5	7,000
P-21	HNO ₃	T-8からC-6	100gph	50	2,000

(1) gpm = US gallons per minute

gph = US gallons per hour

scfm = Standard cubic feet per minute

(2) psid = pounds per square inch, differential

(3) DP : Diaphragm pump ; ダイアフラム(PTFEベース), 本体(316SS), 湿式用

DPT : Diaphragm pump ; ダイアフラム(PTFEベース) 本体(強化型PTFE)

DC : Diaphragm compressor ; ダイアフラム(PTFEベース), 本体(316SS)

〔注〕他のすべてのポンプ及びコンプレッサは316SS製

III-A 装置の解説とコスト評価

III-A-1 交換塔 (C-2, C-3, C-6)

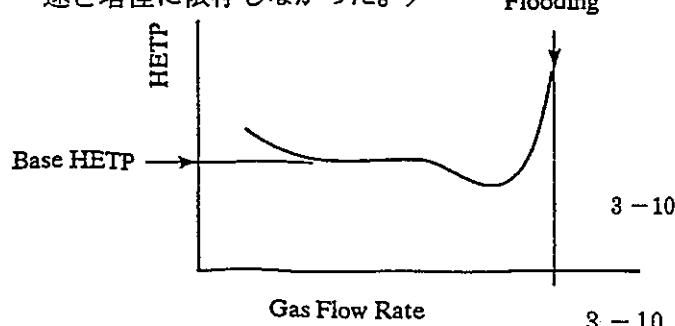
商業的に利用できる気液反応装置の研究を行う上でまず認識しなければならない点について以下に述べる。

- (1) 50kg/年にせよ100kg/年にせよ、そこにおける気相及び液相の流量は、どんな分離板、分離カップ、構造充填材に対しても小さ過ぎる。
- (2) 今回検討した第2交換塔 (C-3) における流量は、最新の高効率工業用ランダム充填材に対しては小さ過ぎる。このため、主に実験室規模用に作られたランダム充填材を採用せざるを得ない。
- (3) Nutter Engineering社(Tulsa Oklahoma), Koch Engineering社(Wichita Kansas), Glitsch Inc.社(Dallas Texas), Norton Chemical Process Products社(Akron Ohio)といったメーカーの中で、求めるランダム充填材の仕様を満たすことができたのはNorton社のみであった。他社の場合、製造している最小のランダム充填材でさえ、今回のプラントの第1交換塔用として大き過ぎるものであった。

Norton社の製品は第2交換塔用の場合幾つかの選択の余地がある。すなわち、IMTP充填材(Intarox充填材の新しいタイプ)、Hy-Pak (IMTP充填材の形に比べて円筒度が大であるIntarox type)、種々の金属の薄板リング、またはセラミックスやプラスチック製の鞍型やリング上である。我々は、容量が大きい(つまり流体流量が大)、高効率である(つまりHETPが小)、圧力損失が小さい、等の理由からIMTP充填材を選択した。最小のIMTP充填材はNo.15(径=約15mm)であり、これに適応する最小の塔径は6インチ(内径)となる。

最新の工業用充填材の効率は一般的に下記に示すような傾向を持つ。これをガス流速と塔径の増加に伴いHETPが単調に増加する傾向を持つ実験室規模の充填塔と比較してみるとよい。

(我々が調べた実験室規模の充填材の場合、PropakのHETPは、HeliPakのHETPほど流速と塔径に依存しなかった。)



Norton IMTP Packing

III-A-1-a 第1交換塔及び回収塔に使用するNorton社のIMTP (No.15)

1月の報告書で推奨した年産50kgのプラントにおける最良の条件下では、IMTP-15を充填した内径6インチの第1交換塔におけるガス流量は限界流量の44%に相当する。(限界流量である126,000モルNO/日は、実際の流体容量の85%に相当する。)

2倍の製造率、例えば100kg/年の場合の流量は限界流量の88%に相当し、なお危険域を十分に下回っている。それゆえ、他のすべての機器も少なくとも50kg/年の倍以上の容量を持つように選択することが求められた。

Norton社は内径6インチの塔では少なくとも充填床高さ9ftごとに液相を再分配することを推奨している。一連の再分配器、保持板、保持棚、液相コレクタは塔の深さ9ftごとに必要である。本評価では、充填床の全高を次式で計算した。

$$\text{Height-1} = (f_{1,n} n_{1,0}) \cdot [f_{1,HETP} (\text{HETP})_{1,0}] \dots \dots \dots (4)$$

$n_{1,0}$ = 第1反応塔の理論段数

$f_{1,n}$ = カスケード段数に対する分離容量の裕度係数

$(\text{HETP})_{1,0}$ = IMTP-15の基準H E T P

$f_{1,HETP}$ = Nitrox反応の反応速度を考慮した乗数

ここで、

$$(\text{HETP})_{1,0} \text{ [単位: cm]} = 29.6 \left(\frac{\sigma}{20} \right)^{-0.19} \left(\frac{\mu}{0.2} \right)^{0.21} \dots \dots \dots (5)$$

であり、10モル硝酸の場合、 $\sigma=60\text{dyne/cm}$ 、 $\mu=1.5\text{cp}$ 、 $(\text{HETP})_{1,0}=36.8\text{cm}$ である。基準H E T Pは流体の乱流のみを考慮したもので、分離係数が小さい場合に境界蒸留にのみ直接適用する。例えば二相化学反応の速度は通常拡散律速であるが、今回は考慮しなかった。Nitrox法における真のH E T P値は当該充填材を用いた実験によってのみ測定することができる。そのデータは現在得られていないので、すべての付加的な反応床の高さを考慮するために今回係数 $f_{1,HETP}$ を導入したが、近いうちにH E T Pの真値がこの修正項により求められるようになることを期待する。計算プログラム“50kg2S”(2Sは二段カスケードを意味する。)では、 $f_{1,HETP}$ をF c h e m 1、 $f_{1,n}$ をF h t 1としてある。両者共、入力データでありプログラム中の定数ではない。係数 $f_{1,HETP}$ は流速の関数であるが、本評価における大部分の計算では単に2.0という定数を選び、次にその増加の影響を調べた。

70%であるから、年産量を2倍に増強すれば3インチ塔から液相が溢れ出ることになる。ここため、計算プログラムでは $L_2 \geq 5,910$ の場合充填塔の内径が自動的に4インチに繰り上がるようになっている。

HeliPakは高価であり、316SS製、Cサイズの単価は275ドル/ ℓ である。その充填係数は960以上と非常に高く、このため圧力損失も大きくなる。50kg/年のプラントの場合、3インチのHeliPak充填塔に必要な深さ（約40ft）の ΔP は約2.9psiである。

次に第二交換塔の場合、液相溢出点が低い、圧力損失が大である、コストが高い等の理由から、今回HeliPakの採用を見送った。なお、計算プログラム中にはHeliPakが充填材の選択肢の一つとして含めてあるが、それは、HeliPakのHETPが実験データに基づくものであるという理由からだけである。このため、以後の部分ではProPakを充填した第2交換塔についてのみ検討する。

ProPak充填材

ProPak充填材は同位体分離の分野ではHeliPakほどは知られていないが、HeliPakに比べて非常に優れた流体力学的性質を有している。

316SS製、サイズ0.16インチのProPakのHETPは、内径3インチの塔に基づく工業規模の実験データを利用できる。

$$(HETP)_{2PP,0} \text{ [単位: cm]} = 1.63V_s + 2.21 \quad \dots \dots \dots (10)$$

ここで V_s はft/秒で表す気相流速であり、内径3インチの塔の場合、

$$V_s = 2.033 \times 10^{-4} G_2 \quad \dots \dots \dots (11)$$

となる。 G_2 はmolNO/日である。すなわち、

$$\text{Height-2} = (f_{2PP,n} n_{2,0}) \cdot [f_{2PP,HETP} (HETP)_{2PP,0}] \quad \dots \dots \dots (12)$$

ここで、 $f_{2PP,HETP}$ はNitrox反応の修正係数であり、計算プログラムではChemPPとしてある。また、 $f_{2PP,n}$ （プログラムではFht2PP）は反応段数に加える余裕段数である。

本報告書では以降、前述した一連の乗数について以下の数値を用いる。なお、これらの係数の影響については後で議論する。

$$f_{1, \text{HETP}} = F_{\text{chem1}} = 2.0$$

$$f_{2PP, \text{HETP}} = F_{\text{chemPP}} = 2.0$$

$$f_{1, n} = F_{ht1} = 1.1$$

$$f_{2PP, n} = F_{ht2PP} = 1.1$$

$$f_{2HP, n} = F_{ht2HP} = 1.1$$

これらのパラメータは入力データの一部となっているので、プログラムのユーザーは自由に変えることができる。

ProPakの溢出点はボイド占有比が高い（0.16インチの場合で0.94）ため、その溢出点はどちらかといえば高い。内径3インチの塔の場合、液溢出点の90%は約12,000モルN0/日に相当する。今回の装置ではこの値を溢出限界量として採用した。これは、50kg/年のプラントの第2交換塔の典型的な気相流量比の約2.9倍である。このため、第2交換塔として採用したProPakを充填した3インチの塔は100kg/年の製造を行うだけの余裕を持っている。40ftの充填床高さにおける圧力損失は約0.5psiである。

ProPakはHeliPakと異なり充填材の濡れは問題にならない。また、316SS製、サイズ0.16インチのProPakの単価は38ドル/ℓである。

ここで再度、第2交換塔の設計とそのコスト評価には大きな不確定性があることを述べておきたい。それは、Nitrox法の条件下におけるProPakのH E T P の実験データが無いことによる。しかし、この交換塔にかかるコストは相対的に小さいものである（結果と考察を参照）ため、H E T P が更に悪くても全濃縮コストに及ぼす影響は比較的小さい。

III-A-2 製品還流部

ある意味で、製品還流器はあらゆる化学同位体交換プラントの中で最も難しい機器である。McCabe-Thieleダイアグラムの運転ラインには傾きがあり、それは還流ガスの流量と製品取出量の比に等しい。この運転ラインは傾き45°Cの直線と交わる点の上端において尽きる。このように実際上製品取出量の要因となるどんな理由（還流部及びその周辺からの濃縮製品の洩れ、 HNO_3 から NO への不十分な還元）も、操作ラインの傾きの減少とその結果として製品の到達濃縮度の低下をもたらす。

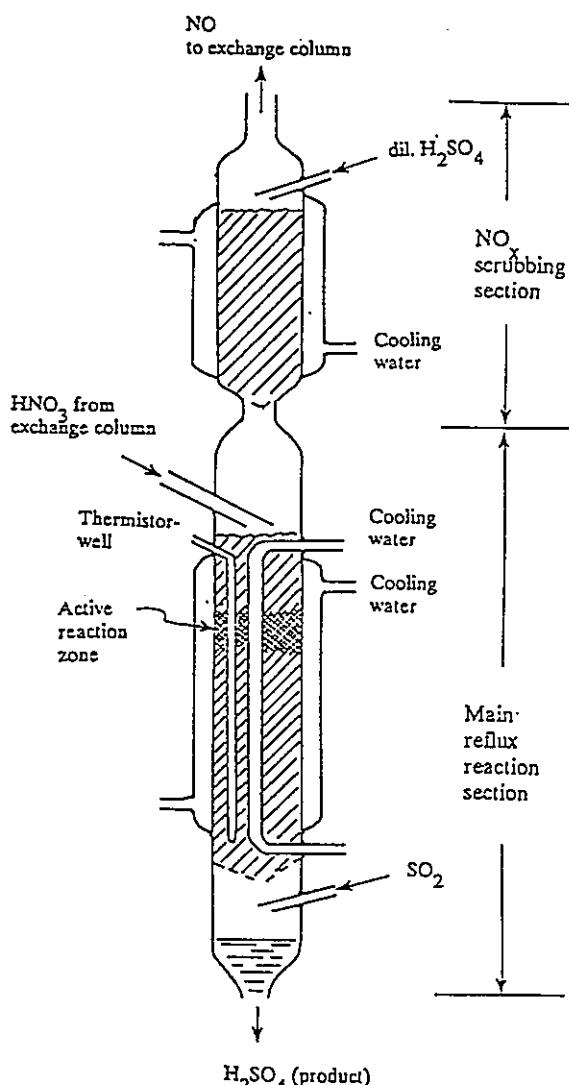
ここで、実験室規模のNitrox還流部を読者に紹介するためにその概略図を下図に示す。こ

の動作は以下のとおりである。 ^{15}N 濃縮硝酸は主還流部の上部から入り下降する。二酸化硫黄(SO_2)は底部近くから入り、充填材の入った冷却された主反応部を通って上方に移動する。硝酸と SO_2 が接触する領域では還流反応が行われ、 NO ガスと硫酸の生成が行われる。還流反応(2)は反応速度の大きな発熱反応である。主反応(2a)の発熱量は硝酸1モルの還元につき65kcalとなる。

ガス生成物 NO_x は上方に流れ
る。そして大部分の NO_2 は(3b)
の反応によって HNO_3 と NO に
なる。これよりガス流は主成分で
ある NO と少量の NO_x から構成
されるようになる。また、水分は
交換塔に戻される。

硝酸が反応領域に供給されない
ことは非常に重要である。そうし
ないと未反応の硝酸が濃縮 ^{15}N を
含むことになり、硫酸を取り出す
ときにこれが無駄になる。未使用
の SO_2 が主還流部の塔頂に行く
ことができないことも重要である。
そうでない場合余剰の SO_2 が交
換塔に入り、塔内の化学平衡を乱
すことになる。

本評価で検討するような大規模
の還流は以下に述べる二つの解決
すべき課題を含んでいる。第一
に、還流硝酸1モル当たり65kcalと
いう大きな発熱量を除去するための高効率で大容量の冷却が必要となること。典型的な還流
速度は112,000モル HNO_3 /日である。また、還流反応が速いので十分大きな容量を供給するため
には酸化還元に使用する還流器の断面積を十分に大きくとらなければならない。断面積の不
足は発熱源の偏りを招き、局所的な高温を生じる。過度の温度上昇は、副反応、水の沸騰、



圧力上昇等の好ましくない反応の原因になる。第二の問題点は、硝酸と二酸化硫黄の反応に大きな断面積を与えることである。還流器の内表面は連続的に高温の硝酸、 SO_2 と接触するので、使用可能な材質としてはホウ珪酸塩ガラス（パイレクスガラス）が唯一のものである。100kg/年規模のプラントの場合、第1交換塔に必要な還流器は次のようなものになる。

- (a) 1日当たりの硝酸還流量は112,000モル
- (b) 必要な熱交換面積は $1.12 \times 10^6 \text{ cm}^2$
- (c) 反応に必要な断面積は $2,800 \text{ cm}^2$

このような仕様について合衆国内の2メーカー（Corning Process Systems社及びSchott Process Systems社）に問い合わせた結果、パイレクスガラス製シェル・チューブ型熱交換器を基本とする還流器が現実的な唯一のものであるとの結論に達した。

両メーカー共、全ガラス製シェル・チューブ型交換器の既成製造ラインを持っている。この熱交換器は、(a) 主円筒シェル、(b) シェルの軸に並行に巻かれる多くのパイレクスガラス製小径チューブ、(c) 2個の端部ドームから構成される。2つのチューブは、2枚のガラス繊維強化型poly tetrafluoroethylene (PTFE) 製板の間で固定されている。各々のチューブはチューブシートに対してOリングでシールされている。端部ドームにはチューブの両端でチューブ側面を充満するための分岐管を設けてある。

しかし、両メーカーの既製熱交換器で我々の仕様を満足するものはなく、改良が必要であった。その場合最良の方法は、主シェルを改良することなくその代わりに以下の改良した機器から構成することである。

- * 大径チューブの数を減らすためにチューブシートを改良する。我々の設計では12インチのシェルに収めた18本の外径44mmのチューブが必要である。
- * チューブの内側に螺旋型ガラスを充填しシェルの側面を冷却水のスペースとする。
- * 上部ドームを、硝酸の入口及び18本のチューブにほぼ等しい量の硝酸を供給するための液体分配器として適した形に改良する。
- * 各々のチューブについて底部ドームを18本の独立した SO_2 供給口として適した形に改良する。ドームの空きスペースは硫酸の回収口として利用し、硫酸は底から抜き取る。

これらの概念の詳細については、本報告書の付録（Appendix. B）中の2枚の図を参照されたい。上記概念に基づくチューブは、独立操作型の実験室規模の還流器であり、1つの冷却水用スペースに覆われた18本のチューブを持つ。この概念設計に従って2社の既製ユニットを次の仕様を満たすように改造することができる。

シェルの径 : 12インチ

熱交換器の管長 : 457cm (Scott社), 402cm (Corning社)

チューブの径 : 外径44mm

チューブの肉厚 : 1.6 mm

チューブ数 : 18本

チューブシート : ガラス繊維強化型P T F E

全熱交換面積 : $1.13 \times 10^5 \text{ cm}^2$ (Schott社)

$1.00 \times 10^5 \text{ cm}^2$ (Corning社)

全反応空間面積 : 235cm² (両者共)

既に述べたように、100kg/年のプラントに必要な2,800cm²の断面積は実験室規模の還流器を用いた実験データに基づくものである。反応に必要な断面積が2,800cm²であることから、各チューブの反応領域の長さを40cmから50cmに伸ばすのが適当である。この長さは冷却されるチューブの長さの10分の1であるが、それで十分である。

このことは、Schott社のユニットの場合熱交換用に10基のユニットが必要であることを意味し、さらに12基が反応領域用に必要である。Corning社製のユニットの場合、両方の目的に必要な数は各12基となる。すなわち、両社の製品を改良した場合必要なユニット数はほぼ同数となり、例として挙げた典型的な場合では約12基となる。計算プログラム“50kg2S”はユニット1台が1日当たり9,300モルの還流硝酸量を取り扱うことができるよう設定している。

10基またはそれ以上のユニットを購入をする際の見積額（注、値引き価格や正規の価格でなく、定式化するためのみの金額）を両メーカーに問い合わせたところ、次の回答が得られた。

Schott社 : 25,000ドル (1台目のユニット)

20,000ドル (2台目以降のユニット)

Corning社 : 25,000ドル (全てのユニットについて)

これらの価格は標準的な支持材と接続用フランジを含んでいる。両社共、1ダース以上のユニットを受注した場合、その単価は、改良が要求される場合であっても標準熱交換器よりも安くなるであろうと述べている。これは、チューブ数やチューブシートに必要な加工量が1ユニットにつき72本のチューブを持つ標準品より少ないためである。

全ガラス製構造物の場合、反応領域の位置を目視で確認することが可能である。これは反応(2b)によって生じるNO₂が濃い茶色をしているためであり、このため、還流器の制御システムが正しく働いているかどうかを確認することができる。

本コスト評価はユニットの単価を20,000ドルとして算出したものである。

さらに、各ユニットには蒸留の際に還流比をコントロールするための液体分配器が必要となる。還流反応によって生じるガス生成物は比較的多くの高次NO_xを含んでいる。ガスの化学組成を10MのHNO₃と化学平衡にある気相に近づけるため、還流器で発生するガス生成物はNO_x除去塔に送られる。この除去塔はパイレクスガラス製ジャケット構造の充填塔であり、5台の還流ユニットにつき1台の除去塔が必要である。

第2製品還流器も同様のユニットである。この部分の還流器にはほぼ容量限度のユニット1基を用いるが、還流比によっては第2ユニットを付け加える必要が生じる場合もある。

III-A-3 ポンプ

100kg/年規模のプラントに必要なポンプの条件を表-1にまとめて示した。表に示した価格は最低2社、物によっては5社の見積金額を検討した結果である。

ポンプと総称しているが、P-13からP-16及びP-20はガスコンプレッサである。水専用のP-17、P-18を除くすべてのポンプとコンプレッサはSUS-316材か繊維強化型PTFEで作られている。

本報告書で以前説明したように、すべての同位体分離プラントは最終濃縮製品のリークをゼロにしなくてはならない。このため下記のポンプ及びコンプレッサは漏れのないダイアフラム型でなくてはならず(図-1参照)、溶液と接するダイアフラム面はPTFE製としなくてはならない。下記の表では、リークフリーの必然性の高い順にポンプを並べてある。

P-14： 第2還流部から第2交換塔に濃縮NO(最終製品濃縮度)を戻すためのコンプレッサ

P-5： 第2交換塔から第2還流部へ濃縮HNO₃(最終製品濃縮度)を送るポンプ

P-13： 第1還流部から第1交換塔に濃縮NO（テーパポイント濃縮度）を戻すためのコンプレッサ

P-15： 第2交換塔から第1交換塔へ濃縮NO（テーパポイント濃縮度）を送るコンプレッサ

P-4： 第1交換塔から第1還流部へ濃縮HNO₃（テーパポイント濃縮度）を送るポンプ

本装置のコンプレッサに必要な水頭圧は低い。これは、必要な圧力差が蒸留塔の中で生じる圧力損失を補う分だけだからである。

ここで、コンプレッサP-13については特別な説明を要する。一般に水頭圧の小さいコンプレッサというのは稀であるから、大流量のものを見つけることは非常に難しい。P-13は5psiの圧力差で50ft³/分の流量を必要とするが、この仕様を満たす唯一のコンプレッサは1台が10万ドルするBurton-Corblin社製のものであった。しかし、この点については、もっと安価なコンプレッサを見つける必要があることを強く感じている。

ポンプP-10についても特記すべき事項がある。このポンプはタンクローリで輸送されてきた液化SO₂を速やかにプラントに移す役割を果たすが（タンクローリ1台のタンクを空にするのに8~10時間かかる），このため多くの安全管理上の要求を満たす必要がある。このようなポンプとして、我々はCrane ChemPump社のGA-11/2K-1CA20型を選択した。

今回、2台のポンプ（1月の報告書の図-1のP-12、P-13で、本報告書には記載されていない。）を取り除いた。これは周辺温度から考えてSO₂は、還流器に送るのに足るだけの十分な蒸気圧を持つと考えたからである。このため、必要となるのは圧力調整器と流量調節器のみである。（ただし、下記のタンクT-6についての既述を参照のこと。）

III-A-4 タンク

再び表-1に話を戻すと、T-1を除くすべてのタンクはSUS-304で構成されている。T-1は出荷を待つ副生成物硫酸の貯蔵用であり、耐硫酸性のポリマー材であるHetron-9221樹脂で作られる。表中の価格は5つの見積依頼に対する結果である。タンクT-6はタンクローリから溢れた液化SO₂に強く、特に温度コントロールされた建屋の中に置かれる。タンク中でSO₂が蒸発すると蒸発冷却により液とタンクの温度が下がり、得られるSO₂ガスの圧力はすぐにゼロになってしまう。小規模の実験室の場合、SO₂を含む圧縮ガスシリンドラをタンクの回りに巻いた電気ヒータで加熱するが、6,000ガロンのタンクの場合、独立

した特別の建屋かこの目的のために設計したチャンバが必要である。建屋やチャンバの加熱ヒータは液化S O₂の蒸発に必要な熱を連続的に供給できるだけの十分大きな容量を持っていなければならない。

III-A-5 热交換器

热交換器E-1, E-2は濃縮NOを, E-5, E-4は高温の硫酸(40から50°C)を取り扱う。このためE-1～E-4はパイレクスガラス製としなくてはならない。Corning, Schott両社共、これらの目的に適合した容量のシェル・チューブ型热交換器を取り扱っている。热交換器E-5は減損還流部から出てくる減損HNO₃が貯蔵タンクT-8に入る前に十分冷却されていることを確認するためのものである。還流器そのものの冷却系は、硝酸を冷却するのに匹敵するものとすべきである。

III-B 化学薬品

化学薬品のコストについては1月の報告からの変更はない。“Chemical Marketing Reporter, 1992年6月13日”から以下の単価を得た。

SO_2 : 0.01623ドル/gモル SO_2

H_2SO_4 : 0.00803ドル/gモル H_2SO_4 (60°Cにおけるボーメ比重計測定値)

III-C 運転におけるコスト因子

表-1は全設備コストについてのまとめであり、このコストについては本評価で定数とした。各塔の構成部品単価は寸法及び数量をある流量に応じて変化させた。これら表-1の各項目と SO_2 , H_2SO_4 の単価が本評価の基礎を成している。

1月に報告したように、プラントコストを算出する際にはエンジニアリング上の一般的な慣例に適合する特別の乗数を用いた。今回の評価でも前回と矛盾が生じないようにするために、同じ値を用いた。使用した記号のうち、 L_1 と L_2 は各々第1交換塔と第2交換塔における硝酸の流量(gモル HNO_3 /日)を、 N_1 と N_2 は交換塔の段数を、そして、 Q_1 及び Q_2 は還流する硝酸の量(gモル HNO_3 /日)を示す。

(A) プラント構成機器： 下記の合計

(1) 下記の5基の塔；

第1交換塔, 第2交換塔

第1還流塔, 第2還流塔

気相減損廃棄物還流塔

(2) 表に示したタンク, 熱交換器

(3) 下記の二群のポンプ；

セクション1のポンプ, セクション2のポンプ

$$(B) \text{ 配管類} = 0.60 \times (A)$$

$$(C) \text{ 機器類} = 0.14 \times (A)$$

(D) 建屋	= 0.30 × (A)
(E) 建屋設備機器	= 0.03 × (A)
(F) 機械室	= 0.30 × (A)
(G) 実プラント費合計	= A + B + C + D + E + F
(H) エンジニアリング	= 0.40 × (G)
(I) 敷地整備：(ゼロにセット)	= 0
(J) 比例コスト	= 0.40 × (G)
(K) 臨時費	= 0.25 × (G)
(L) 流動資本(脚注参照)	
(M) 全プラント投資	= G + H + I + J + K + L
(N) 年間消費原料物質：	

二酸化硫黄、硝酸、空気、水の合計。ただし、その90%を二酸化硫黄が占める。

(O) 直接人件費：(ゼロにセット)	= 0
(P) ユーティリティ	= 0.06 × (G)
(Q) メンテナンス	= 0.06 × (G)
(R) 補給品	= 0.005 × (G)
(S) 荷作・貯蔵・不足	= 0.05 × (N)
(T) 全年間変動コスト	= N + O + P + Q + R + S
(U) 減価償却	= (G + H + I + G + J) / (期間)
(V) 全固定資本に対する金利	= 0.08 × 0.7 × (G + H + I + G + J - K)
(W) 流動資本に対する金利	= 0.08 × 0.7 × (L)
(X) 税の代わりの出費	= 0.08 × 0.7 × (G + H + I + G + J + K)
(Y) 間接費	= (Q) + (R) + [0.55 × (O)]
(Z) 全年間固定コスト	= U + V + W + X + Y

[注] 流動資本(L)は負債項目(U, V, X, Y)の処理、年間変動コスト、及び薬品の在庫に係る流動資本である。

III-D 最適化の手順

100kg/年規模で ^{15}N 濃縮を行う場合にコストがほぼ最小となる条件を見つけるために、以下の4パラメータを変化させてその効果を調べた。全体の最適化は製品濃縮度90.0%，99.0%，99.9%の各々について個別に行い、減価償却期間は10年と15年の2とおりとした。パラメータは次のとおりである。

- 1) 交換塔の内径が6インチから3インチに減じる点であるテーパポイントにおける濃縮度 y_{p1}
- 2) 減損廃棄物の濃縮度 $y_w = x_w$
- 3) 第1還流部における還流比：実際に変化するパラメータは k_1 ($k_1 > 1$) であり、これによって $R_1 = k_1 \cdot R_{1,\min}$ で表される還流比 R_1 が変化する。ここで $R_{1,\min}$ は第1還流部における最小還流比である。二段カスケードにおける最小還流比は y_f （原料の濃縮度）や y_{p1} だけでなく、 y_{p2} （最終製品の濃縮度）と R_2 （第2還流塔の還流比）にも依存する。
- 4) 第2還流部における還流比：実際に変化するパラメータは k_2 ($k_2 > 1$) であり、これによって $R_2 = k_2 \cdot R_{2,\min}$ で表される還流比 R_2 が変化する。なお、 $R_{2,\min}$ は、 y_{p1} と y_{p2} のみに依存する。

濃縮コストがほぼ最少になる一般領域を見つけた後、最終的な推奨条件に達する段階で次の2条件が得られた。

- a) 両交換塔におけるガス流量は溢出条件より十分低くなくてはならない。繰り返して言うと、溢出警告条件は以下のようになる。
 - * 内径6インチの第1交換塔では126,000モル NO_3 /日
 - * ProPak充填3インチ内径の第2交換塔では12,000モル NO_3 /日
 - * HeliPak充填3インチ内径の交換塔では5,910モル HN_3 (10M- HN_3) /日
 最後の条件では、5,910モル/日の上限を超える場合塔径を4インチに増加する。
- b) 還流比は両塔の最小還流比よりも十分に大きくなければならない。そうでないと濃縮末端における僅かなリークのように、比較的軽微なカスケード装置の不具合によっても求める濃縮製品に比べて濃縮度が著しく低くなることになる。本評価作業

では、還流比の下限値として $k_1 \geq 1.05$ と $k_2 \geq 1.05$ を用いた。

回収塔を持つ二段カスケードの理論と方程式については、報告書No.2を参照されたい。その中に理論の検討、古今のすべての方程式の提示、そして本評価に用いた3つのプログラムが記載してある。また、プログラムの章にはFORTRANで書かれたプログラムリストが含まれている。

IV. 結果と考察

今回の検討によって、テーパポイント (y_{p1}) と還流比 (k_1 , k_2) を関数とした ^{15}N 濃縮コストが、1月の報告と同じく以下のような一般傾向があることを改めて確信した。しかし、今回の評価で得られたコストは y_{p1} , k_1 , k_2 のなめらかな関数とはならなかった。これは、一部のカスケード機器の寸法と数量が前章で概要を示したように或る限度まで増加するからである。

傾向 1 : k_1 または k_2 の増加は常に濃縮コストの上昇を招く。

傾向 2 : 調査したパラメータの中で、還流比 k_1 は最もコストに大きく影響する。

傾向 3 : テーパポイント $y_{p1} < 0.04$ 及び $0.10 < y_{p1}$ の範囲では、テーパポイントの濃縮度が変化しても、濃縮コストは緩やかにそして僅かしか変化しない。濃縮コストが僅かな最小値をもつ場合もあるが、他の場合はテーパポイントの変化に伴って多少増減する。

本評価作業の中では濃縮度99.0%のケースに最も力を入れたので、まずこのケースについて検討し、続いて99.9%, 90.0%の順で説明する。

IV-A 濃縮度99.0%のコスト

表-2にテーパポイント濃縮度0.05, $k_2=1.20$ の場合の ^{15}N 濃縮コストの概要と第1還流部における還流比の変化により個々のコスト因子がどのように変化するかについて示す。表の上半分はカスケードパラメータについての結論を示す。 N_1 （または N_2 ）と $N_{1,\text{theor}}$ （または $N_{2,\text{theor}}$ ）の差は、後者がカスケード理論から計算した理論段数であり、前者が理論段数より10%高い段数であるが（式(4), (9)及び(12)参照），コスト評価には前者の式を用いた。使用した他の記号の定義と説明を脚注に示す。下半分は、III-C章で示した主要コスト因子(A)-(Z)の要約である。

表-2には以下の内容が記してある。

- (a) 交換塔の建設コストは予想外に低かった。これは、最新のランダム充填材の容量と効率が高いことによる。
- (b) 第1セクションの製品還流部は価格が最も高い機器である。 k_1 を1.01から1.10に、あるいは1.01から1.02, 1.02から1.03と高めることにより還流器の基数が増えると23,000ドルのコスト高になる。この点については表-3にも図示する。
- (c) SO_2 のコストはランニングコスト因子の中で最大のものである。これは $k_1=1.20$ の場合のランニングコストの73%に相当し、全コストに対しては42%を占める。還流器の場合と異なり SO_2 のコストは還流量の増加に伴い緩やかに直線的に増加する。

99.9%の ^{15}N 濃縮を行う場合に推奨する最良のカスケードパラメータは、テーパポイント0.05, 減損 ^{15}N 濃度0.00037（天然 ^{15}N 濃度の10分の1）， $k_1=1.10$, $k_2=1.20$ である。

更に詳細な解析結果を、付録A-3及びA-4にコンピュータ出力の形で示す。

表-2では明確になっていないが、実はより重要であるキー・パラメータの変化の効果について表-4（償却期間10年の場合）及び表-5（償却期間15年の場合）にまとめた。これらの結果は計算プログラム“50kg2S”を用い、入力データを変えて得たものである。表-3, 表-4の最初の欄に記した変化は、基本条件 [$k_1=k_2=1.20$, $y_{p1}=0.05$, $y_w=0.00037$] の下に実施した結果であり、99% ^{15}N のコストにおける変化は表の2番目の欄に記入した。

以下の考察は表-4及び表-5について行ったものである。

表-2 カスケードパラメータ^(a)とコストの詳細
(濃縮度: 99%, 製造規模: 100kg/年)

減損廃棄物同位体組成=0.00037
テーパボイント同位体組成=0.05
 $k_2 = 1.20$

$$R_{2,\min}=380 \quad R_2=456.0 \quad N_2(\text{theoretical})=171 \quad N_2(\text{used})=188 \\ R_{1,\min}=10.352 \quad L_2=8349 \quad G_2=Q_2=8331 \quad \text{原料}=5496 \quad \text{廃棄物}=5477$$

セクション1のパラメータ	@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.30$
R_1	10.456	11.388	12.423	13.458
L_1 (gモル/日)	95,649	103,428	112,072	120,715
G_1 (gモル/日)	95,631	103,410	112,054	120,697
Q_1 (gモル/日)	87,300	95,079	103,722	112,366
N_1 (theoretical)	98	84	77	72
N_1 (used)	107	92	84	79
N_s (theoretical=used)	28	29	29	30

減価償却期間	コスト因子	コスト (1000米ドル) 単位記載の項目を除く			
		@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.30$
	プラント構成機器(A) 第1交換塔 第2交換塔 回収塔 第1還流部 第2還流部 減損還流塔 他の機器	699 54 10 14 230 22 50 319	715 46 10 15 253 22 50 319	734 43 10 15 276 22 50 319	755 40 10 15 299 22 50 319
	実プラント費合計(G)	1,656	1,694	1,739	1,788
	全プラント資本(M)	3,565	3,651	3,753	3,864
	年間原料コスト(N) SO_2 の年間コスト	934 850	1,010 919	1,094 996	1,179 1,073
	全年間変動コスト(T)	1,171	1,255	1,349	1,443
10年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	820 340	839 347	862 356	887 367
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (M/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	19.92 15.72	20.95 16.41	22.12 17.19
15年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	707 226	723 231	743 238	764 244
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (M/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	18.79 14.58	19.79 15.24	20.93 16.00
					22.08 16.77

(a) 流量 L_1 , L_2 , G_1 , G_2 , Q_1 , Q_2 , 供給流, 減損流の単位はg-モル/日である。

L_i 及び G_i ($i=1, 2$)は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量を示す。

$R_i = k_i \cdot R_{i,\min}$, N_i ($i=1, 2$)はカスケード段数を、 N_s は回収塔のカスケード段数を示す。

表 - 3 還流比の影響（濃縮度99%）

第1部還流比 = $k_1 \cdot R_{1,\min}$ 第2部還流比 = $k_2 \cdot R_{2,\min}$

他のカスケードパラメータ：製造規模=100kg/年

同位体組成：(テーパポイント) = 0.05
(減損廃棄物) = 0.00037他の因子 = (2.0, 2.0, 1.1, 1.1, 1.1) 1^(a)

減価償却期間：10年					減価償却期間：15年						
必要な還流ユニット数 ^(b)						必要な還流ユニット数 ^(b)					
k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30		
1.01	11	12	13	14	1.01	11	12	13	14		
1.20	11	12	13	14	1.20	11	12	13	14		
1.40	12	13	13	14	1.40	12	13	13	14		

99.0%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)					99.0%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)				
k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30
1.01	19.93	20.97	22.15	23.36	1.01	18.79	19.81	20.96	22.13
(c)	15.72	16.42	17.21	18.03		14.59	15.25	16.02	16.80
1.20	19.92	20.95	22.12	23.31		18.79	19.79	20.93	22.08
	15.72	16.41	17.19	18.00		14.58	15.24	16.00	16.77
1.40	20.24	21.26	22.07	23.26		19.06	20.06	20.88	22.03
	16.03	16.72	17.16	17.97		14.86	15.52	15.97	16.74

(a) 1番目の数値：第1交換塔の基本H E T Pに対する乗数

2番目の数値：ProPak充填塔の基本H E T Pに対する乗数

3番目の数値：第1交換塔の理論段数に対する乗数

4番目の数値：ProPak充填塔の理論段数に対する乗数

5番目の数値：Helipak充填塔の理論段数に対する乗数

(b) 還流ユニットの必要数は、減価償却期間と無関係である。

(c) 上段の数値は硫酸の売却収入を考慮しない場合の単価を、下段の数値は売却収入を考慮する場合の単価を示す。

(d) 枠で囲んだ数値は、推薦するカスケードパラメータである。

(1) 減損廃棄物組成の影響

本報告書の冒頭で述べたように推定したコストを見る限り回収部の付加はコスト上昇を招くだけに見え、本評価の枠組みにおいてはコスト的なメリットはない。しかし、それにより¹⁵N濃縮プラントの硝酸工業への依存を著しく減じることができる。この点はPNCが考慮して計画を進めねばならないことである。

減損廃棄物組成0.00037は天然¹⁵N存在比の10%である。1本の供給流と2本の出口流（濃縮流と減損流）を持つ完全なプラントにおける¹⁵Nの物質収支から、回収部の採用により原料の劇的な低減が可能になることは容易にわかるであろう。例えば、99%の¹⁵Nを年間100kg生産するプラントの場合、表-2に示すように必要な硝酸の量は僅か5,496gモルHNO₃/日で済むようになる。回収部が無い場合に必要な硝酸の量はL₁に等しく、112,072gモルHNO₃/日(@k₁=1.20)となる。減損廃棄物組成0.00183は、原料の量を112,072gモルHNO₃/日から9,866gモルHNO₃/日へ低減する効果がある。0.0083から0.00037にするとき、必要な原料はほぼ半減され(9,866gモルHNO₃/日から5,496gモルHNO₃/日)、これに伴うコスト上昇は減価償却期間を10とした場合0.14ドル/g、15年とすれば0.13ドル/gとなる。一般に、回収塔の付加によるメリットは同位体濃縮コストの増加を補って余りある。

ここで次の点を簡単に指摘しておく。減損廃棄物の原子分率を天然存在比並みとすると回収塔のコストはゼロになる。しかし、他の回収部用機器(例、P-19、P-20、P-21、T-7)はそれでも必要となるので全コストは依然高いままとなる。

(2) H E T P の影響

H E T P は本評価において唯一最大の不確定要素である。我々が用いた値が完全に見当違いという可能性もある。表-4から、減価償却期間10年として全交換塔でのH E T P を約25%増加させた場合、今回推定した濃縮コスト20.95ドル/g(硫酸の売却収入を含まない場合)または16.41ドル/g(硫酸の売却収入を考慮)よりも0.26ドル/g上昇することがわかる。表-4には0.46ドル/g、1.07ドル/gといったより大きな値も見受けられるが、これらのコストは我々が信頼性が高いと考えるコスト因子である。例えば、二酸化硫黄の単価において不確定性が10%になるということは殆どあり得ない。

我々はここで再度、PNCができるだけ早期にH E T P の測定実験を行うことを勧める。

表-4 カスケードフロー及びコストパラメータの効果
(濃縮度99%，減価償却期間10年)

基 準： 年産規模 = 100kg/年

濃縮度(原子分率) (原 料) = 0.00366
(製 品) = 0.990
(減損廃棄物) = 0.00037

還流比 (第1部) = 1.10R_{1, min}
(第2部) = 1.20R_{2, min}

H E T P (第1部; IMTP15) = 2.0 × (HETP1) o = 74cm
(第2部; ProPak) = 2.0 × (HETP2) o = 10cm

カスケード段数 (第1部) = 1.1 × N₁ (theor.) = 92
(第2部) = 1.1 × N₂ (theor.) = 188

濃縮コスト: 20.95ドル/g (硫酸壳却收入有), 16.41ドル/g (硫酸壳却收入無)

パ ラ メ ー タ の 変 化	濃 縮 ¹⁵ N 単 価 の 変 化
カスケードフローパラメータ	
(1) 減損廃棄物原子分率の増加; 0.00037から0.00183	0.14ドル/gの減少 (硫酸壳却有り無し共)
(2) 両交換塔のHETPの増加; 基準HETPの 2.0から2.5倍	0.26ドル/gの増加 (硫酸壳却有り無し共)
(3) 両交換塔のカスケード段数の増加; 理論段数の 1.1から1.2倍	0.10ドル/gの増加 (硫酸壳却有り無し共)
コストパラメータ	
(1) 第1交換塔及び回収塔の全機器コストが10%増加	0.09ドル/gの増加
(2) ProPak充填第2交換塔の全機器コストが10%増加	0.02ドル/gの増加
(3) 還流部の全機器コストが10%増加	0.37ドル/g増加 ($k_1=1.01$) 0.40ドル/g増加 ($k_1=1.10$) 0.46ドル/g増加 ($k_1=1.30$) (全て、硫酸壳却有り無し共)
(4) 全タンク、ポンプ、熱交換器のコストが10%増加	0.46ドル/gの増加
(5) SO ₂ のコストが10%増加	0.99ドル/g増加 ($k_1=1.01$) 1.07ドル/g増加 ($k_1=1.10$) 1.24ドル/g増加 ($k_1=1.30$) (全て、硫酸壳却有り無し共)
(6) H ₂ SO ₄ のコストが10%増加	0.46ドル/gの減少 (硫酸壳却有りのときのみ)

表-5 カスケードフロー及びコストパラメータの効果
(濃縮度99%，減価償却期間15年)

基 準： 年産規模 = 100kg/年

濃縮度(原子分率) (原 料) = 0.00366
(製 品) = 0.990
(減損廃棄物) = 0.00037

還流比 (第1部) = 1.10 $R_{1, \text{min}}$
(第2部) = 1.20 $R_{2, \text{min}}$

H E T P (第1部; IMTP15) = 2.0 × (HETP1) o = 74cm
(第2部; ProPak) = 2.0 × (HETP2) o = 10cm

カスケード段数 (第1部) = 1.1 × N₁ (theor.) = 92
(第2部) = 1.1 × N₂ (theor.) = 188

濃縮コスト: 19.79ドル/g (硫酸壳却収入有), 15.24ドル/g (硫酸壳却収入無)

パ ラ メ ー タ の 変 化	濃 縮 ¹⁵ N 単 価 の 変 化
カスケードフローパラメータ	
(1) 減損廃棄物原子分率の増加; 0.00037から0.00183	0.13ドル/gの減少 (硫酸壳却有り無し共)
(2) 両交換塔のHETPの増加; 基準HETPの2.0から2.5倍	0.23ドル/gの増加 (硫酸壳却有り無し共)
(3) 両交換塔のカスケード段数の増加; 理論段数の1.1から1.2倍	0.08ドル/gの増加 (硫酸壳却有り無し共)
コストパラメータ	
(1) 第1交換塔及び回収塔の全機器コストが10%増加	0.08ドル/gの増加
(2) ProPak充填第2交換塔の全機器コストが10%増加	0.01ドル/gの増加
(3) 還流部の全機器コストが10%増加	0.32ドル/g増加 ($k_1=1.01$) 0.35ドル/g増加 ($k_1=1.10$) 0.41ドル/g増加 ($k_1=1.30$) (全て、硫酸壳却有り無し共)
(4) 全タンク、ポンプ、熱交換器のコストが10%増加	0.41ドル/gの増加
(5) SO ₂ のコストが10%増加	0.98ドル/g増加 ($k_1=1.01$) 1.06ドル/g増加 ($k_1=1.10$) 1.24ドル/g増加 ($k_1=1.30$) (全て、硫酸壳却有り無し共)
(6) H ₂ SO ₄ のコストが10%増加	0.45ドル/gの減少 (硫酸壳却有りのときのみ)

(3) 余剰段数の影響

濃縮製品の貯蔵能力は余剰段数によって決まる。今回の評価では、製品の濃縮度が高くなるというメリット無しに各交換塔に10%の余剰段数を盛り込んでいる。この10%の余裕が濃縮コストに対する負担の増加となり、例えば、減価償却期間を10年とした場合0.10ドル/gコストを押し上げる結果となっている。もし、両濃縮部のカスケード段数を理論値どおりとする濃縮単価は減価償却期間10年のとき0.10ドル/g低くなる。

しかし、充填床の全高自体、評価に用いた二つの因子、即ちHETPとカスケード段数に比例して変動し得るものである。このため、HETPが100%の不確定性を持ち得る状況下で、後者の点から“余剰”裕度が濃縮容量に及ぼす影響について議論しても、それは単に学術的なものでしかないことを覚えて置いて欲しい。

(4) コストパラメータの影響

表-4及び表-5をまとめ目的から、コストパラメータを6つのカテゴリに分類した。第1交換塔構成部品の推定単価の誤差は2%であるので、これが濃縮コストの評価値に及ぼす誤差は0.02ドル/g以下となる。第2交換塔についての評価誤差はやや小さく、これを原因とする濃縮コストの誤差は無視できる程度である。製品還流器のコスト誤差の推測値は5%であり、これは還流器に由来する濃縮コスト誤差が0.20ドル/g（減価償却期間10年）及び0.17ドル/g（減価償却期間15年）であることを意味する。

タンク、ポンプ及び熱交換器の各価格は、大容量コンプレッサP-10の10万ドルを除いて正確である。このカテゴリの各機器の価格は固定のものであり、本評価では手を加えなかった。すなわち、

$$\text{ポンプの全コスト} = 39,280 \text{ ドル}$$

$$\text{コンプレッサの全コスト} = 133,200 \text{ ドル}$$

$$\text{タンクの全コスト} = 106,300 \text{ ドル}$$

$$\text{熱交換器の全コスト} = 40,000 \text{ ドル}$$

$$\text{“その他の機器”の合計} = 318,780 \text{ ドル}$$

今述べたように、コンプレッサP-10のコストは“その他の機器”すべてのコストの31%を占める。したがって、P-10の価格が10%低くなることは可能性として十分高いが、その場合の濃縮コストは減価償却期間10年の場合で $(0.46 \text{ ドル/g}) \times 0.31 = 0.14 \text{ ドル/g}$ 低くなる。

(5) 化学薬品費の変化の影響

合衆国における SO_2 及び H_2SO_4 の価格は十分信頼のおけるものである。表-4 及び
表-5 の数値は、日本市場の評価に換算するのに使えるものと思われる。

IV-B 濃縮度99.9%のコスト

99.0%濃縮用に設計検討した機器に二、三の変更を加えて100kg/年規模の99.9%濃縮用プラントの基本とした。必要な変更は交換塔の長さと製品還流部のモジュール数である。表-6に準最適領域における99.9%濃縮プラントのコストのまとめを示す。ここでは、テーパポイント濃縮度0.045、減損廃棄物濃縮度0.00037、そして最も望ましい分離係数として $k_1 = k_2 = 1.10$ を推奨する。表-7に、99.9%¹⁵Nの濃縮コストと第1還流部還流比 k_1 及び必要な還流モジュール数の適正な関係を示す。

解析結果の詳細については、Appendix A-1 及び A-2 に計算機出力の形式で示してある。カスケードパラメータに関する製品濃縮度99.0%のプラントと99.9%のプラントの主な違いは、第2交換塔に必要なカスケード段数である。コスト評価に用いたカスケード段数は濃縮度99%のプラントが188段、99.9%のプラントが246段である（両者とも理論段数の1.1倍）。しかし、結果的に交換塔のコスト上昇が全濃縮コストに占める割合は小さいものとなった。このため製品濃縮度を99.0から99.9%に上げることによるコスト増加は0.15ドル/g（減価償却期間を10年とし、硫酸の売却収入を見込まない場合）、0.10ドル/g（減価償却期間10年、硫酸の売却収入を見込む場合）、0.10ドル/g（減価償却期間15年、硫酸の売却収入なし）、0.05ドル/g（減価償却期間15年、硫酸の売却あり）となった。

表-2 及び表-3（製品濃縮度99.0%のケース）の関係に対する一般的なコメントは、99.0%に関する表-5、表-6でも妥当なものである。このように、99.0%の場合のカスケードパラメータ及びコストパラメータの影響を近似的に把握するためには、表-4 及び表-5に示したデータに基づく比例計算を行う必要がある。例えば、99.9%の濃縮の際の全交換塔におけるHETPが基準HETPの2倍から2.5倍になった場合の影響は、減価償却期間10年の場合、 $(0.26\text{ドル/g}) \times (21.07/20.95) \approx 0.26\text{ドル/g}$ （硫酸売却収入なし）となる。このように表-4 及び表-5の全ての数値は、製品濃縮度99.9%の場合にも近似的に有効である。

表-6 カスケードパラメータ(“)とコストの詳細

(濃縮度: 99.9%, 製造規模: 100kg/年)

$$\begin{aligned} \text{減損廃棄物同位体組成} &= 0.00037 \\ \text{テーパポイント同位体組成} &= 0.05 \\ k_2 &= 1.20 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} R_{2,\min} &= 426 & R_2 &= 468.6 & N_2(\text{theoretical}) &= 224 & N_2(\text{used}) &= 246 \\ R_{1,\min} &= 10.150 & L_2 &= 8580 & G_2 = Q_2 &= 8561 & \text{原料} &= 5546 & \text{廃棄物} &= 5527 \end{aligned}$$

第1(交換、還流)部/マーク	@k ₁ =1.01	@k ₁ =1.10	@k ₁ =1.20	@k ₁ =1.30
R ₁	10.251	11.165	12.180	13.195
L ₁ (gモル/日)	96,533	104,370	113,078	121,786
G ₁ (gモル/日)	96,514	104,350	113,060	121,768
Q ₁ (gモル/日)	87,953	95,790	104,499	113,207
N ₁ (theoretical)	96	82	75	70
N ₁ (used)	105	90	82	77
N _s (theoretical=used)	28	29	29	30

減価償却期間	コスト因子	コスト(1000米ドル)		単位記載の項目を除く	
		@k ₁ =1.01	@k ₁ =1.10	@k ₁ =1.20	@k ₁ =1.30
10年	プラント構成機器(A)	701	717	736	757
	第1交換塔	53	45	41	39
	第2交換塔	13	13	13	13
	回収塔	14	15	15	15
	第1還流部	230	253	276	299
	第2還流部	22	22	22	22
	減損還流塔	50	50	50	50
	他の機器	319	319	319	319
	実プラント費合計(G)	1,661	1,699	1,744	1,793
	全プラント資本(M)	3,577	3,662	3,765	3,876
15年	年間原料コスト(N) SO ₂ の年間コスト	943 858	1,019 927	1,104 1,005	1,189 1,082
	全年間変動コスト(T)	1,181	1,266	1,360	1,455
	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	823 341	842 348	865 358	889 368
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (ドル/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	20.03 15.79	21.07 16.48	22.24 17.27

(a) 流量L₁, L₂, G₁, G₂, Q₁, Q₂, 供給流, 減損流の単位はg-モル/日である。L_i及びG_i (i=1,2)は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量を示す。R_i=k_i・R_{i,min}, N_i (i=1,2)はカスケード段数を、N_sは回収塔のカスケード段数を示す。

表 - 7 還流比の影響（濃縮度99.9%）

第1部還流比 = $k_1 \cdot R_{1,\min}$ 第2部還流比 = $k_2 \cdot R_{2,\min}$

他のカスケードパラメータ：製造規模=100kg/年

同位体組成：(テーパポイント) = 0.045
(減損廃棄物) = 0.00037他の因子 = (2.0, 2.0, 1.1, 1.1, 1.1) $1^{(a)}$

減価償却期間：10年					減価償却期間：15年						
必要な還流ユニット数 ^(b)						必要な還流ユニット数 ^(b)					
k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30		
1.01	11	12	13	14	1.01	11	12	13	14		
1.10	11	12	13	14	1.10	11	12	13	14		
1.20	12	13	14	14	1.20	12	13	14	14		
1.30	12	13	14	14	1.30	12	13	14	14		

99.9%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)					99.9%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)				
k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1=1.01$	1.10	1.20	1.30
1.01	20.04 15.80	21.08 16.49	22.26 17.28	23.46 18.10	1.01	18.90 14.66	19.91 15.32	21.06 16.09	22.23 16.87
1.10	20.03 15.79	21.07 16.48	22.24 17.27	23.44 18.09	1.10	18.89 14.65	19.90 15.32	21.04 16.07	22.21 16.85
1.20	20.35 16.10	21.37 16.79	22.54 17.57	23.73 18.38	1.20	19.17 14.93	20.17 15.59	21.31 16.34	22.46 17.12
1.30	20.35 16.11	21.37 19.79	22.53 17.57	23.88 18.04	1.30	19.17 14.93	20.17 15.59	21.29 16.34	22.15 16.81

(a) 1番目の数値：第1交換塔の基本H E T Pに対する乗数

2番目の数値：ProPak充填塔の基本H E T Pに対する乗数

3番目の数値：第1交換塔の理論段数に対する乗数

4番目の数値：ProPak充填塔の理論段数に対する乗数

5番目の数値：Helipak充填塔の理論段数に対する乗数

(b) 還流ユニットの必要数は、減価償却期間と無関係である。

(c) 上段の数値は硫酸の売却収入を考慮しない場合の単価を、下段の数値は売却収入を考慮する場合の単価を示す。

(d) 枠で囲んだ数値は、推薦するカスケードパラメータである。

IV-C 濃縮度90.0%のコスト

ここで再び製品濃縮度99.0%用に構成したカスケードの塔の高さと還流器及びモジュール数にいくつかの変更を加え、100kg/年規模の90.0%濃縮プラントにおけるコスト評価を行った。高濃縮プラントについて示した表-2及び表-6と同様の形で、表-8に90.0%濃縮¹⁵Nのコストの概要を示した。90.0%用プラントの最良の運転条件は、テーパポイント濃縮度0.05、減損廃棄物濃縮度0.00037、 $k_1=1.10$ 、 $k_2=1.20$ である。製品濃縮度99.0%に比べた場合の90.0%のコストの主な違いは、還流量の著しい減少によるが、第2交換部の高さの減少にもよる。表-9に製品濃縮度90.0%の場合の第1セクションの還流比 k_1 と還流器のモジュール数を示す。製品濃縮度99.0%と比較した場合の還流比の減少によるコスト低下は、1.20ドル/g（減価償却10年、硫酸壳却なし）、0.80ドル/g（減価償却10年、硫酸壳却あり）、1.20ドル/g（減価償却15年、硫酸壳却なし）、0.80ドル/g（減価償却15年、硫酸壳却あり）となった。

コスト評価の詳細についてはAppendix A-5、A-6に計算機出力の形で示してある。

表-2及び表-3に関する考察は、90.0%についての表-8及び表-9に示すデータについても有効である。製品濃縮度90.0%の場合のカスケード及びコストパラメータの効果は、99.0%について示した表-4及び表-5の対応する数値と実質的に一致する。

表-8（製品濃縮度90.0%）を表-2（同99.0%）及び表-6（同99.9%）と比較すると、90.0%の場合の流量が他の高濃縮の場合より著しく低いことがわかる。しかし、この事実はカスケード理論からすると驚くには当たらない。ここで、濃縮度の異なる3つのプラントは同じ交換塔（第1塔が内径6インチ、第2塔が内径3インチ）、ポンプ、タンク、熱交換器を使用しているのだから、90.0%の場合、プラントの稼働率を高めて年産量を上げればもっとコストを下げられるのではないかという疑問が生じる。つまり、流量を99.0%及び99.9%並にして製造量を約10%上げられるのではないかということである。しかし、このような流量の増加は還流器を1基増やすことにつながる。還流器1基の価格が23,000ドルのとき、前述した評価（III-C参照）における装備機器コストに比例する全コストを考慮すると、還流器1基の追加はプラント資産費（M項）と（ユーティリティ+保守+供給）の合計に $4.98 \times 23,000\text{ドル} = 114,540$ ドル効いてくる。この機器コストにSO₂の10%の増加を加えると、製造量の増加によるメリットは帳消しとなる。

表-8 カスケードパラメータ^(a)とコストの詳細

(濃縮度: 90%, 製造規模: 100kg/年)

$$\begin{aligned} \text{減損廃棄物同位体組成} &= 0.00037 \\ \text{デーパポイント同位体組成} &= 0.05 \\ k_2 &= 1.20 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} R_{2,\min} &= 343 & R_2 &= 411.6 & N_2(\text{theoretical}) &= 125 & N_2(\text{used}) &= 137 \\ R_{1,\min} &= 10.428 & L_2 &= 7598 & G_2 = Q_2 &= 7520 & \text{原料} &= 4996 & \text{減損物} &= 4978 \end{aligned}$$

第1(交換、還流)部 ^(b)	@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.30$
R_1	10.532	11.470	12.513	13.565
L_1 (gモル/日)	86,926	94,004	101,864	109,724
G_1 (gモル/日)	86,911	93,985	101,846	109,706
Q_1 (gモル/日)	79,391	86,465	94,326	102,186
N_1 (theoretical)	98	84	77	72
N_1 (used)	107	92	84	79
N_s (theoretical=used)	28	29	29	30

減価 償却 期間	コスト因子	コスト (1000米ドル)		単位記載の項目を除く	
		@ $k_1 = 1.01$	@ $k_1 = 1.10$	@ $k_1 = 1.20$	@ $k_1 = 1.30$
	プラント構成機器(A) 第1交換塔 第2交換塔 回収塔 第1還流部 第2還流部 減損還流塔 他の機器	673 54 8 14 207 22 50 319	689 46 8 15 230 22 50 319	708 43 8 15 253 2200 50 319	729 40 8 15 276 22 50 319
	実プラント費合計(G)	1,595	1,633	1,679	1,728
	全プラント資本(M)	3,431	3,516	3,618	3,729
	年間原料コスト(N) SO_2 の年間コスト	849 772	919 836	997 907	1,075 978
	全年間変動コスト(T)	1,075	1,153	1,240	1,327
10年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	790 327	809 335	832 344	856 354
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (ドル/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	18.77 14.93	19.75 15.58	20.85 16.33
15年	全年間固定コスト(Z) 減価償却分(U)	681 218	697 223	717 229	738 236
	濃縮 ¹⁵ N 単価 (ドル/g)	硫酸の売却収入を見込まない 硫酸の売却収入を見込む	17.67 13.82	18.62 14.45	19.69 15.17
					20.79 15.92

(a) 流量 L_1 , L_2 , G_1 , G_2 , Q_1 , Q_2 , 供給流, 減損流の単位は g-モル/日である。 L_i 及び G_i ($i=1, 2$) は、各々硝酸及び一酸化窒素の流量を示す。 $R_i = k_i \cdot R_{1,\min}$, N_i ($i=1, 2$) はカスケード段数を、 N_s は回収塔のカスケード段数を示す。

表 - 9 還流比の影響（濃縮度90%）

第1部還流比 = $k_1 \cdot R_{1, \min}$ 第2部還流比 = $k_2 \cdot R_{2, \min}$

他のカスケードパラメータ：製造規模=100kg/年

同位体組成：(テーパポイント) = 0.05
(減損廃棄物) = 0.00037他の因子 = (2.0, 2.0, 1.1, 1.1, 1.1) $1^{(a)}$

減価償却期間：10年					減価償却期間：15年						
必要な還流ユニット数 ^(b)						必要な還流ユニット数 ^(b)					
k_2	$k_1 = 1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1 = 1.01$	1.10	1.20	1.30		
1.01	10	12	12	13	1.01	10	11	12	13		
1.20	10	12	12	12	1.20	10	11	12	12		
1.30	10	11	11	12	1.30	10	11	11	12		

99.9%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)					99.9%濃縮 ¹⁵ Nの単価コスト(米ドル/g)				
k_2	$k_1 = 1.01$	1.10	1.20	1.30	k_2	$k_1 = 1.01$	1.10	1.20	1.30
1.01	18.77 14.93	19.75 15.58	20.85 16.33	21.98 17.11	1.01	17.67 13.82	18.62 14.45	16.69 15.17	20.79 15.92
1.20	18.76 14.92	19.72 15.57	20.82 16.31	21.60 16.75	1.20	17.66 13.81	18.60 14.44	19.66 15.15	20.44 15.59
1.30	18.76 14.92	19.72 15.57	20.46 15.96	21.57 16.73	1.30	17.66 13.81	18.59 14.44	19.34 14.84	20.41 15.58

(a) 1番目の数値：第1交換塔の基本H E T Pに対する乗数

2番目の数値：ProPak充填塔の基本H E T Pに対する乗数

3番目の数値：第1交換塔の理論段数に対する乗数

4番目の数値：ProPak充填塔の理論段数に対する乗数

5番目の数値：Helipak充填塔の理論段数に対する乗数

(b) 還流ユニットの必要数は、減価償却期間と無関係である。

(c) 上段の数値は硫酸の売却収入を考慮しない場合の単価を、下段の数値は売却収入を考慮する場合の単価を示す。

(d) 枠で囲んだ数値は、推薦するカスケードパラメータである。

V. 結 論

濃縮度90.0%, 99.0%, 99.9%の¹⁵Nを年産100kgの規模で製造する場合のコストを、1992年現在のU.S.ドルベースの機器見積価格及び化学薬品単価に基づいて評価した。我々が推奨する最良のカスケードパラメータを表-10にまとめ、これに相応する濃縮コストを表-11に示す。

今回の評価コストで唯一最大の不確定因子は、Nitrox交換反応の条件下における充填材のH E T Pである。実際に採用可能なH E T P値は実験的に得るほかはないが、現在のところ実際上未知の値である。本評価は、全く“short in the dark（無知なために不十分）”な推定H E T P値に基づくものである。H E T P値が25%増加すると、90.0%, 99.0%, 99.9%濃縮¹⁵Nのコストは減価償却期間10年の場合で0.26ドル/g、15年の場合で0.23ドル/g増加する。

本評価で変動する可能性のある他の因子は唯一つ、コンプレッサP-13（図-1）の価格であり、採用した10万ドルより安くなる場合である。他の全機器及び薬品コストは1992年夏現在の実際の見積価格に基づくものである。結論としてこれら2つの不確定因子が存在しない場合で、なおかつ合衆国内の薬品価格が日本国内の価格と同じであるとするならば、表-11に示す濃縮コストの精度は±0.25ドル以内となる。

加えて、本評価は以下に述べる仮定の下に実施したものであることを再度指摘しておく。

- (a) 原料としての硝酸購入費と減損廃棄物硝酸の売却収入は考慮しない。
- (b) プラント建設地の土地代、サイト整備費は含まない。
- (c) 運転員の人工費は考慮しない。
- (d) 金利を8%とし、プラントその他の投資資本の年減価償却率の70%に適用される。

最後に、¹⁵Nの濃縮コストについて更に深く研究する場合、次の二点に重点を置くべきことを指摘しておく。

第一は、繰り返しになるが、Nitrox交換反応の条件下における充填材のH E T Pを実験的に求めることである。必要なのは、流量及び望むらしく異なる塔径の関数としてのH E T Pのデータである。塔径のサイズを製造規模以上にする必要はないが、H E T P vs 塔径のプロットを外挿するために何点かのデータが必要となる。

第二の点は、主として製品還流器についての新しい設計である。現時点における最も高価な機器は製品還流器であり、年間変動コスト中で最も高い因子は二酸化硫黄の購入費である。本

評価に用いた還流器は既に大規模なものとなっており、100kg/年の製造規模においてユニットが10～12基必要である。しかし、4,500kg/年にスケールアップした場合に、このユニットを500基使用するというのは論外であるので、この点については別の検討が不可欠となる。

表-10 推奨カスケードパラメータのまとめ

パラメータ	90.0%	99.0%	99.9%	
濃縮度	原料(天然) テーパポイント 製品 減損廃棄物	0.00366 0.050 0.900 0.00037	0.00366 0.050 0.990 0.00037	0.00366 0.050 0.999 0.00037
還流比	第1部 第2部	11.470(1.10)* 411.6(1.20)	11.388(1.10) 456.0(1.20)	11.165(1.10) 468.6(1.20)
交換塔				
第1交換塔	充填材 塔内径 カスクード段数 充填床高さ	IMTP-15 6インチ 92段 68 m	IMTP-15 6インチ 92段 68 m	IMTP-15 6インチ 90段 67 m
第2交換塔	充填材 塔内径 カスクード段数 充填床高さ	PrpPak-0.16 3インチ 137段 13 m	PrpPak-0.16 3インチ 188段 19 m	PrpPak-0.16 3インチ 246段 25 m
回収塔	充填材 塔内径 カスクード段数 充填床高さ	IMTP-15 6インチ 29段 22 m	IMTP-15 6インチ 29段 22 m	IMTP-15 6インチ 29段 22 m
製品還流部				
第1部	還流モジュール数	10	11	11
第2部	還流モジュール数	1	1	1
流量(㎥/日)				
原 料		4,996	5,496	5,546
製 品		18.27	18.27	18.27
減損廃棄物		4,978	5,477	5,527
第1部	液相 気相	94,004 93,985	103,428 103,410	104,370 104,350
第2部	液相 気相	7,538 7,520	8,349 8,331	8,580 8,561
回 収 塔	液相 気相	89,007 93,985	97,933 103,410	98,823 104,350

* 括弧内の数字はK₁に相当する値である。

表-11 ^{15}N 濃縮窒素の単価コストのまとめ

濃縮度	全濃縮コスト (米ドル/g ^{15}N)			
	減価償却期間10年		減価償却期間15年	
	硫酸壳却無	壳却有	壳却無	壳却有
90.0%	19.75	15.60	18.60	14.45
99.0%	20.95	16.40	19.80	15.25
99.9%	21.10	16.50	19.90	15.30

* : “硫酸壳却”の有無とは、副生成物である硫酸の壳却収入を考慮

したか否かを示す。なお、コストは0又は5セントに近似した。

Appendix for Report No. 3

1992年8月

ニューヨーク州立大学Stony Brook校

石田 孝信

Senior Consultant, National Academy of Sciences

William Spindel

Appendix for Report No.3 は、以下のパートA及びBから成る。

A. 計算プログラム “50kg2S” の出力

A - 1 : 濃縮度99.0%, 減価償却期間10年 (100kg/年)

A - 2 : 濃縮度99.0%, 減価償却期間15年 (100kg/年)

A - 3 : 濃縮度99.9%, 減価償却期間10年 (100kg/年)

A - 4 : 濃縮度99.9%, 減価償却期間15年 (100kg/年)

A - 5 : 濃縮度90.0%, 減価償却期間10年 (100kg/年)

A - 6 : 濃縮度90.0%, 減価償却期間15年 (100kg/年)

B. 製品還流器の基本設計図面

**Appendix A for Report No. 3
(Representative Printouts of Program 50Kg2S)**

**Prepared for
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation
by
T. Ishida and Wm. Spindel**

August, 1992

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript - 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript - 2)

All flowrates in moles/day

L = moles HNO₃/day G = moles NO/day
 P = moles product/day R = moles refluxed/day/G

Subscripts: f = feed p = product w = waste
 N-15 atom fractions: Y = HNO₃ X = NO

alpha = 1.055 Y_f = .00366 Y_w = .00037
 Y_{p2} = .999 P₂ = 18.2700 moles (N15+N14)/day @ 99.90% N-15
 R(min) of one-section cascade = 5236.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing = \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor = \$ 1000. each
 Liquid redistributor = \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc) = \$ 450. per set
 Pipe for the column = \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak = \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak = \$ 275. per liter
 Liquid distributor = \$ 200. each
 Liquid redistributor = \$ 55. each
 Others = \$ 200. per set
 Pipe for the column = \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column = \$ 20000. per unit
 Reflux splitter = \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) = \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 = \$ 9000. Tank 2 = \$ 27600. Tank 3 = \$ 4300. Tank 4 = \$ 2900.
 Tank 5 = \$ 2100. Tank 6 = \$ 46500. Tank 7 = \$ 4300. Tank 8 = \$ 9600.

Pumps: Pump1 = \$ 2400. Pump2 = \$ 4500. Pump3 = \$ 3000. Pump4 = \$ 5000. Pump5 = \$ 3000.
 Pump6 = \$ 1700. Pump7 = \$ 2000. Pump8 = \$ 3200. Pump9 = \$ 3000.
 Pump17 = \$ 1380. Pump18 = \$ 3600. Pump19 = \$ 4500. Pump21 = \$ 2000.

Compressors: P10 = \$ 6800. P13 = \$100000. P14 = \$ 3050. P15 = \$ 3050.
 P16 = \$13300. P20 = \$ 7000.

Heat exchangers: HX 1 = \$ 10000. HX 2 = \$ 3000. HX 3 = \$ 14000.
 HX 4 = \$ 8000. HX 5 = \$ 5000. HX

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fchem1 = 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP = 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 = 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP = 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP = 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max = 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax = 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax = 5,910 moles HNO₃/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO₃ flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
* Amortization period = 10yrs      Annual interest rate = 8.00 % *
* Atom fraction @ taper = .0450   *
* R2(min) = 426.      N2(min) = 181      N1(min) = 46   *
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	Rlmin	Fac1	R1	L1	G1	N1	Rflow1	Ns	Waste	Feed
1.01	430.3	7879	7861	240	11.141	1.01	11.253	96540	96521	96	88660	26	5527	5546
						1.10	12.255	104440	104422	82	96561	27	5527	5546
						1.20	13.369	113218	113200	75	105339	27	5527	5546
						1.30	14.484	121997	121978	70	114117	28	5527	5546
1.10	468.6	8580	8561	224	10.150	1.01	10.251	96533	96514	96	87953	26	5527	5546
						1.10	11.165	104370	104352	82	95790	27	5527	5546
						1.20	12.180	113078	113060	75	104499	27	5527	5546
						1.30	13.195	121786	121768	70	113207	28	5527	5546
1.20	511.2	9358	9340	216	9.223	1.01	9.315	96525	96506	96	87167	26	5527	5546
						1.10	10.145	104292	104274	82	94934	27	5527	5546
						1.20	11.067	112922	112904	75	103565	27	5527	5546
						1.30	11.989	121553	121535	70	112195	28	5527	5546
1.30	553.8	10136	10118	211	8.438	1.01	8.522	96517	96499	96	86381	26	5527	5546

1.10	9.281	104214	104196	82	94078	27	5527	5546						
1.20	10.125	112767	112749	75	102631	27	5527	5546						
1.30	10.969	121319	121301	70	111183	28	5527	5546						
1.40	596.4	10914	10896	207	7.765	1.01	7.842	96509	96491	96	85595	26	5527	5546
						1.10	8.541	104136	104118	83	93222	27	5527	5546
						1.20	9.318	112611	112593	75	101697	27	5527	5546
						1.30	10.094	121086	121068	71	110171	28	5527	5546

**** Actual Column Dimensions Follow ****

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section					
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflux units	Fac1	Dia1 inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflux units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter		
1.01	3.00	10.	264	25.	1	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8		
1.10	3.00	10.	246	25.	1	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8		
1.20	3.00	11.	237	25.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8		
1.30	3.00	11.	232	26.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	77	57.	12	6.00	74.	30	22.8		
1.40	3.00	12.	227	26.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	91	68.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	82	61.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	78	58.	12	6.00	74.	30	22.8		

**** Cost Analysis Outputs Follow ****

*** Fac2 = 1.01 Reflux ratio of Section 2 = 430.3 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	11.253	12.255	13.369	14.484

A-column 382525. 398336. 417465. 438253.

ExColl	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13561.	13561.	13561.	13561.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.

A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.

A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.

A-heatax 40000. 40000. 40000. 40000.

A-total 701305. 717116. 736245. 757033.

B 420783. 430270. 441747. 454220.

C 98183. 100396. 103074. 105985.

D 210391. 215135. 220874. 227110.

E 21039. 21513. 22087. 22711.

F 210391. 215135. 220874. 227110.

G 1662092.1699565.1744901.1794169.

H 664837. 679826. 697960. 717667.

I 0. 0. 0. 0.

J 664837. 679826. 697960. 717667.

K 415523. 424891. 436225. 448542.

L 171210. 179890. 189723. 199754.

M 3578498.3663998.3766769.3877800.

N-SO2 857681. 927883.1005887.1083889.

N-HNO3 64755. 70055. 75944. 81834.

N-Air 8380. 9065. 9828. 10590.

N-H2O 11922. 12898. 13982. 15066.

N-total 942737.1019902.1105640.1191379.

O 0. 0. 0. 0.

P 99726. 101974. 104694. 107650.

Q 83105. 84978. 87245. 89708.

R 8310. 8498. 8725. 8971.

S 47137. 50995. 55282. 59569.

T 1181014.1266347.1361586.1457277.

U 340729. 348411. 357705. 367805.

V 190808. 195110. 200315. 205971.

W 9588. 10074. 10624. 11186.

X 190808. 195110. 200315. 205971.

Y 91415. 93476. 95970. 98679.

Z 823348. 842181. 864928. 889611.

\$N15_w/o	20.04	21.08	22.26	23.46
\$N15with	15.80	16.49	17.28	18.10

*** Fac2 - 1.10 Reflux ratio of Section 2 - 468.6 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30							
	10.251	11.165	12.180	13.195							
<hr/>											
A-column	382230.	398041.	417170.	437958.							
ExCol1	53086.	45344.	41473.	38708.							
ExCol2	13267.	13267.	13267.	13267.							
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.							
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.							
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.							
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.							
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.							
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.							
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.							
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.							
A-total	701010.	716821.	735950.	756739.							
B	420606.	430093.	441570.	454043.							
C	98141.	100355.	103033.	105943.							
D	210303.	215046.	220785.	227022.							
E	21030.	21505.	22079.	22702.							
F	210303.	215046.	220785.	227022.							
G	1661393.	1698866.	1744203.	1793470.							
H	664557.	679547.	697681.	717388.							
I	0.	0.	0.	0.							
J	664557.	679547.	697681.	717388.							
K	415348.	424717.	436051.	448368.							
L	171169.	179795.	189567.	199538.							
M	3577025.	3662471.	3765182.	3876152.							
N-SO2	857619.	927261.	1004642.	1082022.							
N-HNO3	64750.	70008.	75850.	81693.							
N-Air	8379.	9059.	9815.	10571.							
N-H2O	11921.	12889.	13965.	15040.							
N-total	942669.	1019218.	1104272.	1189326.							
O	0.	0.	0.	0.							
P	99684.	101932.	104652.	107608.							
Q	83070.	84943.	87210.	89674.							
R	8307.	8494.	8721.	8967.							
S	47133.	50961.	55214.	59466.							
T	1180862.	1265548.	1360069.	1455042.							
U	340586.	348268.	357562.	367661.							

V	190728.	195030.	200234.	205890.
W	9585.	10069.	10616.	11174.
X	190728.	195030.	200234.	205890.
Y	91377.	93438.	95931.	98641.
Z	823004.	841833.	864577.	889257.
\$N15_w/o	20.03	21.07	22.24	23.44
\$N15with	15.79	16.48	17.27	18.09

*** Fac2 - 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 511.2 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
9.315	10.145	11.067	11.989

A-column 403909. 419720. 438850. 459638.

ExColl	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13446.	13446.	13446.	13446.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	722689.	738500.	757630.	778418.
B	433613.	443100.	454578.	467051.
C	101176.	103390.	106068.	108978.
D	216807.	221550.	227289.	233525.
E	21681.	22155.	22729.	23353.
F	216807.	221550.	227289.	233525.

G	1712773.	1750246.	1795582.	1844850.
---	----------	----------	----------	----------

H	685109.	700098.	718233.	737940.
I	0.	0.	0.	0.
J	685109.	700098.	718233.	737940.
K	428193.	437562.	448896.	461212.
L	173763.	182329.	192034.	201938.

M	3684948.	3770334.	3872977.	3983880.
---	----------	----------	----------	----------

N-SO2	857550.	926570.	1003258.	1079947.
N-HNO3	64745.	69956.	75746.	81536.
N-Air	8378.	9053.	9802.	10551.
N-H2O	11920.	12879.	13945.	15011.

N-total	942593.	1018457.	1102752.	1187046.
O	0.	0.	0.	0.
P	102766.	105015.	107735.	110691.

Q	85639.	87512.	89779.	92242.
R	8564.	8751.	8978.	9224.
S	47130.	50923.	55138.	59352.
T	1186691.1270659.1364381.1458556.			
U	351119.	358800.	368094.	378194.
V	196626.	200928.	206133.	211789.
W	9731.	10210.	10754.	11309.
X	196626.	200928.	206133.	211789.
Y	94203.	96264.	98757.	101467.
Z	848304.	867131.	889871.	914547.
\$N15_w/o	20.35	21.37	22.54	23.73
\$N15with	16.10	16.79	17.57	18.38

*** Fac2 = 1.30 Reflux ratio of Section 2 = 553.8 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	8.522	9.281	10.125	10.969

A-column 404236. 420047. 439176. 436964.

ExCol1	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13773.	13773.	13773.	13773.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	723016.	738827.	757956.	755744.
B	433809.	443296.	454774.	453447.
C	101222.	103436.	106114.	105804.
D	216905.	221648.	227387.	226723.
E	21690.	22165.	22739.	22672.
F	216905.	221648.	227387.	226723.

G	1713547.	1751020.	1796356.	1791114.
---	----------	----------	----------	----------

H	685419.	700408.	718542.	716446.
I	0.	0.	0.	0.
J	685419.	700408.	718542.	716446.
K	428387.	437755.	449089.	447778.
L	173795.	182301.	191940.	199018.

M	3686567.	3771892.	3874470.	3870801.
---	----------	----------	----------	----------

N-SO2	857480.	925878.	1001875.	1077873.
-------	---------	---------	----------	----------

N-HNO3	64740.	69904.	75642.	81379.
N-Air	8378.	9046.	9788.	10531.
N-H2O	11919.	12870.	13926.	14982.
 N-total	942517.	1017697.	1101231.	1184765.
O	0.	0.	0.	0.
P	102813.	105061.	107781.	107467.
Q	85677.	87551.	89818.	89556.
R	8568.	8755.	8982.	8956.
S	47126.	50885.	55062.	59238.
 T	1186700.	1269949.	1362874.	1449982.
U	351277.	358959.	368253.	367178.
V	196715.	201017.	206222.	205620.
W	9733.	10209.	10749.	11145.
X	196715.	201017.	206222.	205620.
Y	94245.	96306.	98800.	98511.
 Z	848685.	867508.	890245.	888074.
\$N15_w/o	20.35	21.37	22.53	23.38
\$N15with	16.11	16.79	17.57	18.04

*** Fac2 - 1.40 Reflux ratio of Section 2 - 596.4 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
7.842	8.541	9.318	10.094

A-column	404600.	420965.	416541.	437882.
ExColl	53086.	45897.	41473.	39261.
ExCol2	14137.	14137.	14137.	14137.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	253000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
 A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
 A-total	723380.	739745.	735321.	756662.
B	434028.	443847.	441193.	453997.
C	101273.	103564.	102945.	105933.
D	217014.	221923.	220596.	226999.
E	21701.	22192.	22060.	22700.
F	217014.	221923.	220596.	226999.
 G	1714412.	1753195.	1742711.	1793289.
H	685765.	701278.	697084.	717316.
I	0.	0.	0.	0.

J	685765.	701278.	697084.	717316.
K	428603.	438299.	435678.	448322.
L	173832.	182345.	189090.	198927.
M	3688376.	3776394.	3761647.	3875170.
N-SO2	857411.	925186.	1000492.	1075798.
N-HNO3	64735.	69852.	75537.	81223.
N-Air	8377.	9039.	9775.	10511.
N-H2O	11918.	12860.	13907.	14954.
N-total	942441.	1016937.	1099711.	1182485.
O	0.	0.	0.	0.
P	102865.	105192.	104563.	107597.
Q	85721.	87660.	87136.	89664.
R	8572.	8766.	8714.	8966.
S	47122.	50847.	54986.	59124.
T	1186720.	1269401.	1355108.	1447837.
U	351454.	359405.	357256.	367624.
V	196814.	201267.	200063.	205870.
W	9735.	10211.	10589.	11140.
X	196814.	201267.	200063.	205870.
Y	94293.	96426.	95849.	98631.
Z	849110.	868576.	863820.	889134.
\$N15_w/o	20.35	21.38	22.18	23.36
\$N15with	16.11	16.80	17.24	18.04

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript = 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript = 2)

All flowrates in moles/day

L = moles HNO₃/day G = moles NO/day
 P = moles product/day R = moles refluxed/day/G

Subscripts: f = feed p = product w = waste
 N-15 atom fractions: Y = HNO₃ X = NO

alpha = 1.055 Yf = .00366 Yw = .00037
 Yp₂ = .999 P₂ = 18.2700 moles (N15+N14)/day @ 99.90% N-15
 R(min) of one-section cascade = 5236.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing - \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor - \$ 1000. each
 Liquid redistributor - \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc)- \$ 450. per set
 Pipe for the column - \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak - \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak - \$ 275. per liter
 Liquid distributor - \$ 200. each
 Liquid redistributor - \$ 55. each
 Others - \$ 200. per set
 Pipe for the column - \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column - \$ 20000. per unit
 Reflux splitter - \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) - \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 - \$ 9000. Tank 2 - \$ 27600. Tank 3 - \$ 4300. Tank 4 - \$ 2900.
 Tank 5 - \$ 2100. Tank 6 - \$ 46500. Tank 7 - \$ 4300. Tank 8 - \$ 9600.

Pumps: Pump1 - \$ 2400. Pump2 - \$ 4500. Pump3 - \$ 3000. Pump4 - \$ 5000. Pump5 - \$ 3000.
 Pump6 - \$ 1700. Pump7 - \$ 2000. Pump8 - \$ 3200. Pump9 - \$ 3000.
 Pump17 - \$ 1380. Pump18 - \$ 3600. Pump19 - \$ 4500. Pump21 - \$ 2000.

Compressors: P10 - \$ 6800. P13 - \$100000. P14 - \$ 3050. P15 - \$ 3050.
 P16 - \$13300. P20 - \$ 7000.

Heat exchangers: HX 1 - \$ 10000. HX 2 - \$ 3000. HX 3 - \$ 14000.
 HX 4 - \$ 8000. HX 5 - \$ 5000. HX

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fchem1 - 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP - 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 - 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP - 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP - 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max - 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax - 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax - 5,910 moles HNO₃/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO₃ flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
* Amortization period - 15yrs      Annual interest rate - 8.00 % *
* Atom fraction @ taper - .0450   *
* R2(min) - 426.      N2(min) - 181      N1(min) - 46   *
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	R1min	Fac1	R1	L1	G1	N1	Rflow1	Ns	Waste	Feed
1.01	430.3	7879	7861	240	11.141	1.01	11.253	96540	96521	96	88660	26	5527	5546
						1.10	12.255	104440	104422	82	96561	27	5527	5546
						1.20	13.369	113218	113200	75	105339	27	5527	5546
						1.30	14.484	121997	121978	70	114117	28	5527	5546
1.10	468.6	8580	8561	224	10.150	1.01	10.251	96533	96514	96	87953	26	5527	5546
						1.10	11.165	104370	104352	82	95790	27	5527	5546
						1.20	12.180	113078	113060	75	104499	27	5527	5546
						1.30	13.195	121786	121768	70	113207	28	5527	5546
1.20	511.2	9358	9340	216	9.223	1.01	9.315	96525	96506	96	87167	26	5527	5546
						1.10	10.145	104292	104274	82	94934	27	5527	5546
						1.20	11.067	112922	112904	75	103565	27	5527	5546
						1.30	11.989	121553	121535	70	112195	28	5527	5546
1.30	553.8	10136	10118	211	8.438	1.01	8.522	96517	96499	96	86381	26	5527	5546

1.10	9.281	104214	104196	82	94078	27	5527	5546						
1.20	10.125	112767	112749	75	102631	27	5527	5546						
1.30	10.969	121319	121301	70	111183	28	5527	5546						
1.40	596.4	10914	10896	207	7.765	1.01	7.842	96509	96491	96	85595	26	5527	5546
						1.10	8.541	104136	104118	83	93222	27	5527	5546
						1.20	9.318	112611	112593	75	101697	27	5527	5546
						1.30	10.094	121086	121068	71	110171	28	5527	5546

*** Actual Column Dimensions Follow ***

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section			
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflx units	Fac1	Dial inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflx units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter
1.01	3.00	10.	264	25.	1	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8
1.10	3.00	10.	246	25.	1	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8
1.20	3.00	11.	237	25.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	77	57.	13	6.00	74.	30	22.8
1.30	3.00	11.	232	26.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	90	67.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	82	61.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	77	57.	12	6.00	74.	30	22.8
1.40	3.00	12.	227	26.	2	1.01	6.00	74.	105	78.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	91	68.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	82	61.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	78	58.	12	6.00	74.	30	22.8

*** Cost Analysis Outputs Follow ***

*** Fac2 = 1.01 Reflux ratio of Section 2 = 430.3 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	11.253	12.255	13.369	14.484

A-column 382525. 398336. 417465. 438253.

ExCol1	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13561.	13561.	13561.	13561.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	701305.	717116.	736245.	757033.
B	420783.	430270.	441747.	454220.
C	98183.	100396.	103074.	105985.
D	210391.	215135.	220874.	227110.
E	21039.	21513.	22087.	22711.
F	210391.	215135.	220874.	227110.

G	1662092.	1699565.	1744901.	1794169.
---	----------	----------	----------	----------

H	664837.	679826.	697960.	717667.
I	0.	0.	0.	0.
J	664837.	679826.	697960.	717667.
K	415523.	424891.	436225.	448542.
L	161701.	170167.	179740.	189489.

M	3568989.	3654274.	3756786.	3867535.
---	----------	----------	----------	----------

N-SO2	857681.	927883.	1005887.	1083889.
N-HN03	64755.	70055.	75944.	81834.
N-Air	8380.	9065.	9828.	10590.
N-H20	11922.	12898.	13982.	15066.

N-total	942737.	1019902.	1105640.	1191379.
O	0.	0.	0.	0.
P	99726.	101974.	104694.	107650.
Q	83105.	84978.	87245.	89708.
R	8310.	8498.	8725.	8971.
S	47137.	50995.	55282.	59569.

T	1181014.	1266347.	1361586.	1457277.
---	----------	----------	----------	----------

U	227153.	232274.	238470.	245203.
V	190808.	195110.	200315.	205971.
W	9055.	9529.	10065.	10611.
X	190808.	195110.	200315.	205971.
Y	91415.	93476.	95970.	98679.

Z	709239.	725499.	745134.	766435.
---	---------	---------	---------	---------

\$N15_w/o	18.90	19.91	21.06	22.23
\$N15with	14.66	15.32	16.09	16.87

*** Fac2 = 1.10 Reflux ratio of Section 2 = 468.6 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
10.251	11.165	12.180	13.195

A-column 382230. 398041. 417170. 437958.

ExColl	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13267.	13267.	13267.	13267.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	701010.	716821.	735950.	756739.
B	420606.	430093.	441570.	454043.
C	98141.	100355.	103033.	105943.
D	210303.	215046.	220785.	227022.
E	21030.	21505.	22079.	22702.
F	210303.	215046.	220785.	227022.

G	1661393.	1698866.	1744203.	1793470.
H	664557.	679547.	697681.	717388.
I	0.	0.	0.	0.
J	664557.	679547.	697681.	717388.
K	415348.	424717.	436051.	448368.
L	161664.	170075.	179588.	189277.

M	3567520.	3652751.	3755203.	3865891.
N-SO2	857619.	927261.	1004642.	1082022.
N-HNO3	64750.	70008.	75850.	81693.
N-Air	8379.	9059.	9815.	10571.
N-H2O	11921.	12889.	13965.	15040.

N-total	942669.	1019218.	1104272.	1189326.
O	0.	0.	0.	0.
P	99684.	101932.	104652.	107608.
Q	83070.	84943.	87210.	89674.
R	8307.	8494.	8721.	8967.
S	47133.	50961.	55214.	59466.

T	1180862.	1265548.	1360069.	1455042.
U	227057.	232178.	238374.	245108.

V	190728.	195030.	200234.	205890.
W	9053.	9524.	10057.	10600.
X	190728.	195030.	200234.	205890.
Y	91377.	93438.	95931.	98641.
Z	708943.	725200.	744831.	766129.
\$N15 w/o	18.89	19.90	21.04	22.21
\$N15with	14.65	15.32	16.07	16.85

*** Fac2 = 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 511.2 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
9.315	10.145	11.067	11.989

A-column 403909. 419720. 438850. 459638.

ExColl	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13446.	13446.	13446.	13446.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-compres	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heateax	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	722689.	738500.	757630.	778418.
B	433613.	443100.	454578.	467051.
C	101176.	103390.	106068.	108978.
D	216807.	221550.	227289.	233525.
E	21681.	22155.	22729.	23353.
F	216807.	221550.	227289.	233525.

G	1712773.	1750246.	1795582.	1844850.
H	685109.	700098.	718233.	737940.
I	0.	0.	0.	0.
J	685109.	700098.	718233.	737940.
K	428193.	437562.	448896.	461212.
L	163964.	172315.	181761.	191384.

M 3675149.3760320.3862704.3973326.

N-SO2	857550.	926570.	1003258.	1079947.
N-HNO3	64745.	69956.	75746.	81536.
N-Air	8378.	9053.	9802.	10551.
N-H2O	11920.	12879.	13945.	15011.

N-total	942593.	1018457.	1102752.	1187046.
O	0.	0.	0.	0.
P	102766.	105015.	107735.	110691.

Q	85639.	87512.	89779.	92242.
R	8564.	8751.	8978.	9224.
S	47130.	50923.	55138.	59352.
T	1186691.1270659.1364381.1458556.			
U	234079.	239200.	245396.	252129.
V	196626.	200928.	206133.	211789.
W	9182.	9650.	10179.	10717.
X	196626.	200928.	206133.	211789.
Y	94203.	96264.	98757.	101467.
Z	730716.	746970.	766597.	787891.
\$N15_w/o	19.17	20.17	21.31	22.46
\$N15with	14.93	15.59	16.34	17.12

*** Fac2 = 1.30 Reflux ratio of Section 2 = 553.8 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	8.522	9.281	10.125	10.969

A-column 404236. 420047. 439176. 436964.

ExCol1	53086.	45344.	41473.	38708.
ExCol2	13773.	13773.	13773.	13773.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	723016.	738827.	757956.	755744.
B	433809.	443296.	454774.	453447.
C	101222.	103436.	106114.	105804.
D	216905.	221648.	227387.	226723.
E	21690.	22165.	22739.	22672.
F	216905.	221648.	227387.	226723.
G	1713547.	1751020.	1796356.	1791114.
H	685419.	700408.	718542.	716446.
I	0.	0.	0.	0.
J	685419.	700408.	718542.	716446.
K	428387.	437755.	449089.	447778.
L	163992.	172283.	181662.	188771.
M	3676764.	3761875.	3864193.	3860554.
N-SO2	857480.	925878.	1001875.	1077873.

N-HNO3	64740.	69904.	75642.	81379.
N-Air	8378.	9046.	9788.	10531.
N-H2O	11919.	12870.	13926.	14982.
N-total	942517.	1017697.	1101231.	1184765.
O	0.	0.	0.	0.
P	102813.	105061.	107781.	107467.
Q	85677.	87551.	89818.	89556.
R	8568.	8755.	8982.	8956.
S	47126.	50885.	55062.	59238.
T	1186700.	1269949.	1362874.	1449982.
U	234185.	239306.	245502.	244786.
V	196715.	201017.	206222.	205620.
W	9184.	9648.	10173.	10571.
X	196715.	201017.	206222.	205620.
Y	94245.	96306.	98800.	98511.
Z	731044.	747294.	766918.	765108.
\$N15_w/o	19.17	20.17	21.29	22.15
\$N15with	14.93	15.59	16.34	16.81

*** Fac2 - 1.40 Reflux ratio of Section 2 - 596.4 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
7.842	8.541	9.318	10.094

A-column 404600. 420965. 416541. 437882.

ExCol1	53086.	45897.	41473.	39261.
ExCol2	14137.	14137.	14137.	14137.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	253000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	723380.	739745.	735321.	756662.
B	434028.	443847.	441193.	453997.
C	101273.	103564.	102945.	105933.
D	217014.	221923.	220596.	226999.
E	21701.	22192.	22060.	22700.
F	217014.	221923.	220596.	226999.
G	1714412.	1753195.	1742711.	1793289.
H	685765.	701278.	697084.	717316.
I	0.	0.	0.	0.

PNC PN8410 93-065

J	685765.	701278.	697084.	717316.
K	428603.	438299.	435678.	448322.
L	164024.	172314.	179120.	188668.
M	3678568.	3766364.	3751677.	3864910.
N-SO2	857411.	925186.	1000492.	1075798.
N-HN03	64735.	69852.	75537.	81223.
N-Air	8377.	9039.	9775.	10511.
N-H2O	11918.	12860.	13907.	14954.
N-total	942441.	1016937.	1099711.	1182485.
O	0.	0.	0.	0.
P	102865.	105192.	104563.	107597.
Q	85721.	87660.	87136.	89664.
R	8572.	8766.	8714.	8966.
S	47122.	50847.	54986.	59124.
T	1186720.	1269401.	1355108.	1447837.
U	234303.	239603.	238170.	245083.
V	196814.	201267.	200063.	205870.
W	9185.	9650.	10031.	10565.
X	196814.	201267.	200063.	205870.
Y	94293.	96426.	95849.	98631.
Z	731410.	748212.	744177.	766018.
\$N15 w/o	19.18	20.17	20.99	22.13
\$N15with	14.94	15.60	16.04	16.81

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript = 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript = 2)

All flowrates in moles/day

L = moles HNO₃/day G = moles NO/day
 P = moles product/day R = moles refluxed/day/G

Subscripts: f = feed p = product w = waste
 N-15 atom fractions: Y = HNO₃ X = NO

$\alpha = 1.055$ $Y_f = .00366$ $Y_w = .00037$
 $Y_{P2} = .990$ $P_2 = 18.2700$ moles (N15+N14)/day @ 99.00% N-15
 R(min) of one-section cascade = 5188.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing - \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor - \$ 1000. each
 Liquid redistributor - \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc)- \$ 450. per set
 Pipe for the column - \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak - \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak - \$ 275. per liter
 Liquid distributor - \$ 200. each
 Liquid redistributor - \$ 55. each
 Others - \$ 200. per set
 Pipe for the column - \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column - \$ 20000. per unit
 Reflux splitter - \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) - \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 - \$ 9000. Tank 2 - \$ 27600. Tank 3 - \$ 4300. Tank 4 - \$ 2900.
 Tank 5 - \$ 2100. Tank 6 - \$ 46500. Tank 7 - \$ 4300. Tank 8 - \$ 9600.

Pumps: Pump1 - \$ 2400. Pump2 - \$ 4500. Pump3 - \$ 3000. Pump4 - \$ 5000. Pump5 - \$ 3000.
 Pump6 - \$ 1700. Pump7 - \$ 2000. Pump8 - \$ 3200. Pump9 - \$ 3000.
 Pump17 - \$ 1380. Pump18 - \$ 3600. Pump19 - \$ 4500. Pump21 - \$ 2000.

Compressors: P10 - \$ 6800. P13 - \$100000. P14 - \$ 3050. P15 - \$ 3050.
 P16 - \$13300. P20 - \$ 7000.

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fcheml - 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP - 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 - 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP - 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP - 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max = 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax = 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax = 5,910 moles HNO3/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO3 flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
*   Amortization period - 10yrs      Annual interest rate - 8.00 % *
*   Atom fraction @ taper - .0500   *
*   R2(min) - 380.      N2(min) - 137      N1(min) - 48   *
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	Rlmin	Facl	R1	L1	G1	N1	Rflow1	Ns	Waste	Feed
1.01	383.8	7030	7012	195	12.482	1.01	12.607	95662	95644	98	88632	26	5477	5496
						1.10	13.731	103560	103542	84	96530	27	5477	5496
						1.20	14.979	112336	112317	77	105305	27	5477	5496
						1.30	16.227	121111	121093	72	114081	28	5477	5496
1.20	456.0	8349	8331	171	10.352	1.01	10.456	95649	95631	98	87300	26	5477	5496
						1.10	11.388	103428	103410	84	95079	27	5477	5496
						1.20	12.423	112072	112054	77	103722	27	5477	5496
						1.30	13.458	120715	120697	72	112366	28	5477	5496
1.40	532.0	9738	9720	162	8.734	1.01	8.821	95635	95617	98	85897	26	5477	5496
						1.10	9.607	103289	103271	85	93552	27	5477	5496
						1.20	10.480	111794	111776	77	102056	27	5477	5496
						1.30	11.354	120299	120281	73	110561	28	5477	5496

```
*****
**** Actual Column Dimensions Follow ****
*****
```

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section			
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflx units	Fac1	Dial inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflx units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter
1.01	3.00	9.	214	19.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	13	6.00	74.	30	22.8
1.20	3.00	10.	188	19.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	12	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	13	6.00	74.	30	22.8
1.40	3.00	11.	178	19.	2	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	93	69.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	80	59.	12	6.00	74.	30	22.8

 ***** Cost Analysis Outputs Follow *****

 *** Fac2 = 1.01 Reflux ratio of Section 2 = 383.8 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
12.607	13.731	14.979	16.227

A-column 380445. 396256. 415385. 436173.

ExColl 54192. 46450. 42579. 39814.
 ExCol2 10376. 10376. 10376. 10376.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 230000. 253000. 276000. 299000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.
 WastRf 50000. 50000. 50000. 50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.

A-total 699225. 715036. 734165. 754953.
 B 419535. 429022. 440499. 452972.

C	97891.	100105.	102783.	105693.
D	209767.	214511.	220250.	226486.
E	20977.	21451.	22025.	22649.
F	209767.	214511.	220250.	226486.
G	1657163.1694636.1739972.1789240.			
H	662865.	677854.	695989.	715696.
I	0.	0.	0.	0.
J	662865.	677854.	695989.	715696.
K	414291.	423659.	434993.	447310.
L	170207.	178885.	188715.	198744.
M	3567391.3652888.3755657.3866685.			
N-SO2	849886.	920066.	998044.	1076022.
N-HNO3	64166.	69465.	75352.	81240.
N-Air	8303.	8989.	9751.	10513.
N-H2O	11813.	12789.	13873.	14957.
N-total	934169.	1011309.	1097020.	1182731.
O	0.	0.	0.	0.
P	99430.	101678.	104398.	107354.
Q	82858.	84732.	86999.	89462.
R	8286.	8473.	8700.	8946.
S	46708.	50565.	54851.	59137.
T	1171451.1256757.1351968.1447630.			
U	339718.	347400.	356694.	366794.
V	190242.	194544.	199749.	205405.
W	9532.	10018.	10568.	11130.
X	190242.	194544.	199749.	205405.
Y	91144.	93205.	95698.	98408.
Z	820879.	839711.	862458.	887141.
\$N15_w/o	19.93	20.97	22.15	23.36
\$N15with	15.72	16.42	17.21	18.03

*** Fac2 = 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 456.0 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1; and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	10.456	11.388	12.423	13.458

A-column 380044. 395855. 414984. 435772.

ExCol1	54192.	46450.	42579.	39814.
ExCol2	9975.	9975.	9975.	9975.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	698824.	714635.	733764.	754553.
B	419294.	428781.	440259.	452732.
C	97835.	100049.	102727.	105637.
D	209647.	214391.	220129.	226366.
E	20965.	21439.	22013.	22637.
F	209647.	214391.	220129.	226366.
G	1656213.	1693685.	1739022.	1788290.
H	662485.	677474.	695609.	715316.
I	0.	0.	0.	0.
J	662485.	677474.	695609.	715316.
K	414053.	423421.	434755.	447072.
L	170148.	178724.	188441.	198356.
M	3565384.	3650779.	3753435.	3864350.
N-SO2	849769.	918894.	995700.	1072505.
N-HNO3	64158.	69376.	75175.	80974.
N-Air	8302.	8978.	9728.	10478.
N-H2O	11812.	12773.	13840.	14908.
N-total	934040.	1010020.	1094443.	1178866.
O	0.	0.	0.	0.
P	99373.	101621.	104341.	107297.
Q	82811.	84684.	86951.	89414.
R	8281.	8468.	8695.	8941.
S	46702.	50501.	54722.	58943.
T	1171207.	1255295.	1349153.	1443462.
U	339524.	347206.	356499.	366599.
V	190133.	194435.	199640.	205296.
W	9528.	10009.	10553.	11108.
X	190133.	194435.	199640.	205296.
Y	91092.	93153.	95646.	98356.
Z	820410.	839237.	861978.	886654.
\$N15_w/o	19.92	20.95	22.12	23.31
\$N15with	15.72	16.41	17.19	18.00

*** Fac2 = 1.40 Reflux ratio of Section 2 = 532.0 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
8.821	9.607	10.480	11.354

A-column 401893. 418257. 413833. 435174.

ExColl	54192.	47003.	42579.	40367.
ExCol2	10324.	10324.	10324.	10324.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	253000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	720673.	737037.	732613.	753954.
B	432404.	442222.	439568.	452373.
C	100894.	103185.	102566.	105554.
D	216202.	221111.	219784.	226186.
E	21620.	22111.	21978.	22619.
F	216202.	221111.	219784.	226186.
G	1707994.	1746778.	1736293.	1786872.
H	683198.	698711.	694517.	714749.
I	0.	0.	0.	0.
J	683198.	698711.	694517.	714749.
K	426999.	436694.	434073.	446718.
L	172757.	181292.	188064.	197927.
M	3674145.	3762187.	3747465.	3861013.
N-SO2	849645.	917660.	993232.	1068804.
N-HNO3	64148.	69283.	74989.	80695.
N-Air	8301.	8966.	9704.	10442.
N-H2O	11810.	12755.	13806.	14856.
N-total	933904.	1008664.	1091731.	1174797.
O	0.	0.	0.	0.
P	102480.	104807.	104178.	107212.
Q	85400.	87339.	86815.	89344.
R	8540.	8734.	8681.	8934.
S	46695.	50433.	54587.	58740.
T	1177019.	1259977.	1345991.	1439027.
U	350139.	358089.	355940.	366309.
V	196078.	200530.	199326.	205133.
W	9674.	10152.	10532.	11084.
X	196078.	200530.	199326.	205133.
Y	93940.	96073.	95496.	98278.
Z	845908.	865375.	860621.	885936.
\$N15_w/o	20.24	21.26	22.07	23.26
\$N15with	16.03	16.72	17.16	17.97

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript = 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript = 2)

All flowrates in moles/day

L - moles HNO₃/day G - moles NO/day
 P - moles product/day R - moles refluxed/day/G

Subscripts: f - feed p - product w - waste
 N-15 atom fractions: Y - HNO₃ X - NO

alpha = 1.055 Yf = .00366 Yw = .00037
 Yp2 = .990 P2 = 18.2700 moles (N15+N14)/day @ 99.00% N-15
 R(min) of one-section cascade = 5188.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing = \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor = \$ 1000. each
 Liquid redistributor = \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc) = \$ 450. per set
 Pipe for the column = \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak = \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak = \$ 275. per liter
 Liquid distributor = \$ 200. each
 Liquid redistributor = \$ 55. each
 Others = \$ 200. per set
 Pipe for the column = \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column = \$ 20000. per unit
 Reflux splitter = \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) = \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 = \$ 9000. Tank 2 = \$ 27600. Tank 3 = \$ 4300. Tank 4 = \$ 2900.
 Tank 5 = \$ 2100. Tank 6 = \$ 46500. Tank 7 = \$ 4300. Tank 8 = \$ 9600.

Pumps: Pump1 = \$ 2400. Pump2 = \$ 4500. Pump3 = \$ 3000. Pump4 = \$ 5000. Pump5 = \$ 3000.
 Pump6 = \$ 1700. Pump7 = \$ 2000. Pump8 = \$ 3200. Pump9 = \$ 3000.
 Pump17 = \$ 1380. Pump18 = \$ 3600. Pump19 = \$ 4500. Pump21 = \$ 2000.

Compressors: P10 = \$ 6800. P13 = \$100000. P14 = \$ 3050. P15 = \$ 3050.
 P16 = \$13300. P20 = \$ 7000.

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fchem1 = 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP = 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 = 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP = 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP = 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max = 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax = 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax = 5,910 moles HNO₃/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO₃ flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
*   Amortization period - 15yrs      Annual interest rate - 8.00 %
*   Atom fraction @ taper - .0500
*   R2(min) - 380.      N2(min) - 137      N1(min) - 48
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	R1min	Fac1	R1	L1	G1	N1	Rflowl	Ns	Waste	Feed
1.01	383.8	7030	7012	195	12.482	1.01	12.607	95662	95644	98	88632	26	5477	5496
						1.10	13.731	103560	103542	84	96530	27	5477	5496
						1.20	14.979	112336	112317	77	105305	27	5477	5496
						1.30	16.227	121111	121093	72	114081	28	5477	5496
1.20	456.0	8349	8331	171	10.352	1.01	10.456	95649	95631	98	87300	26	5477	5496
						1.10	11.388	103428	103410	84	95079	27	5477	5496
						1.20	12.423	112072	112054	77	103722	27	5477	5496
						1.30	13.458	120715	120697	72	112366	28	5477	5496
1.40	532.0	9738	9720	162	8.734	1.01	8.821	95635	95617	98	85897	26	5477	5496
						1.10	9.607	103289	103271	85	93552	27	5477	5496
						1.20	10.480	111794	111776	77	102056	27	5477	5496
						1.30	11.354	120299	120281	73	110561	28	5477	5496

```
*****
**** Actual Column Dimensions Follow ****
*****
```

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section					
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflx units	Fac1	Dial inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflx units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter		
1.01	3.00	9.	214	19.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	92	68.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	84	63.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	79	59.	13	6.00	74.	30	22.8		
1.20	3.00	10.	188	19.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	92	68.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	84	63.	12	6.00	74.	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	79	59.	13	6.00	74.	30	22.8		
1.40	3.00	11.	178	19.	2	1.01	6.00	74.	107	80.	10	6.00	74.	28	21.2		
						1.10	6.00	74.	93	69.	11	6.00	74.	29	22.0		
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74..	29	22.0		
						1.30	6.00	74.	80	59.	12	6.00	74.	30	22.8		

 ***** Cost Analysis Outputs Follow *****

 *** Fac2 - 1.01 Reflux ratio of Section 2 - 383.8 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
12.607	13.731	14.979	16.227

A-column 380445. 396256. 415385. 436173.

ExCol1 54192. 46450. 42579. 39814.
 ExCol2 10376. 10376. 10376. 10376.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 230000. 253000. 276000. 299000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.
 WastRf 50000. 50000. 50000. 50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.

A-total 699225. 715036. 734165. 754953.
 B 419535. 429022. 440499. 452972.

C	97891.	100105.	102783.	105693.
D	209767.	214511.	220250.	226486.
E	20977.	21451.	22025.	22649.
F	209767.	214511.	220250.	226486.
G	1657163.1694636.1739972.1789240.			
H	662865.	677854.	695989.	715696.
I	0.	0.	0.	0.
J	662865.	677854.	695989.	715696.
K	414291.	423659.	434993.	447310.
L	160726.	169190.	178761.	188508.
M	3557910.3643193.3745703.3856449.			
N-SO2	849886.	920066.	998044.	1076022.
N-HNO3	64166.	69465.	75352.	81240.
N-Air	8303.	8989.	9751.	10513.
N-H2O	11813.	12789.	13873.	14957.
N-total	934169.	1011309.	1097020.	1182731.
O	0.	0.	0.	0.
P	99430.	101678.	104398.	107354.
Q	82858.	84732.	86999.	89462.
R	8286.	8473.	8700.	8946.
S	46708.	50565.	54851.	59137.
T	1171451.1256757.1351968.1447630.			
U	226479.	231600.	237796.	244529.
V	190242.	194544.	199749.	205405.
W	9001.	9475.	10011.	10556.
X	190242.	194544.	199749.	205405.
Y	91144.	93205.	95698.	98408.
Z	707108.	723368.	743003.	764303.
\$N15_w/o	18.79	19.81	20.96	22.13
\$N15with	14.59	15.25	16.02	16.80

*** Fac2 = 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 456.0 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	10.456	11.388	12.423	13.458

A-column 380044. 395855. 414984. 435772.

ExCol1	54192.	46450.	42579.	39814.
ExCol2	9975.	9975.	9975.	9975.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	276000.	299000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.

 A-total 698824. 714635. 733764. 754553.
 B 419294. 428781. 440259. 452732.
 C 97835. 100049. 102727. 105637.
 D 209647. 214391. 220129. 226366.
 E 20965. 21439. 22013. 22637.
 F 209647. 214391. 220129. 226366.

 G 1656213.1693685.1739022.1788290.

 H 662485. 677474. 695609. 715316.
 I 0. 0. 0. 0.
 J 662485. 677474. 695609. 715316.
 K 414053. 423421. 434755. 447072.
 L 160672. 169034. 178491. 188125.

 M 3555909.3641089.3743486.3854119.

 N-SO2 849769. 918894. 995700.1072505.
 N-HNO3 64158. 69376. 75175. 80974.
 N-Air 8302. 8978. 9728. 10478.
 N-H2O 11812. 12773. 13840. 14908.

 N-total 934040.1010020.1094443.1178866.
 O 0. 0. 0. 0.
 P 99373. 101621. 104341. 107297.
 Q 82811. 84684. 86951. 89414.
 R 8281. 8468. 8695. 8941.
 S 46702. 50501. 54722. 58943.

 T 1171207.1255295.1349153.1443462.

 U 226349. 231470. 237666. 244400.
 V 190133. 194435. 199640. 205296.
 W 8998. 9466. 9996. 10535.
 X 190133. 194435. 199640. 205296.
 Y 91092. 93153. 95646. 98356.

 Z 706705. 722959. 742587. 763882.

 \$N15_w/o 18.79 19.79 20.93 22.08
 \$N15with 14.58 15.24 16.00 16.77

 *** Fac2 = 1.40 Reflux ratio of Section 2 = 532.0 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30							
8.821	9.607	10.480	11.354							

A-column 401893. 418257. 413833. 435174.

ExColl	54192.	47003.	42579.	40367.
ExCol2	10324.	10324.	10324.	10324.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	230000.	253000.	253000.	276000.
Reflx2	43000.	43000.	43000.	43000.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	720673.	737037.	732613.	753954.
B	432404.	442222.	439568.	452373.
C	100894.	103185.	102566.	105554.
D	216202.	221111.	219784.	226186.
E	21620.	22111.	21978.	22619.
F	216202.	221111.	219784.	226186.
G	1707994.	1746778.	1736293.	1786872.
H	683198.	698711.	694517.	714749.
I	0.	0.	0.	0.
J	683198.	698711.	694517.	714749.
K	426999.	436694.	434073.	446718.
L	162985.	171299.	178131.	187704.
M	3664374.	3752193.	3737532.	3850790.
N-SO2	849645.	917660.	993232.	1068804.
N-HNO3	64148.	69283.	74989.	80695.
N-Air	8301.	8966.	9704.	10442.
N-H2O	11810.	12755.	13806.	14856.
N-total	933904.	1008664.	1091731.	1174797.
O	0.	0.	0.	0.
P	102480.	104807.	104178.	107212.
Q	85400.	87339.	86815.	89344.
R	8540.	8734.	8681.	8934.
S	46695.	50433.	54587.	58740.
T	1177019.	1259977.	1345991.	1439027.
U	233426.	238726.	237293.	244206.
V	196078.	200530.	199326.	205133.
W	9127.	9593.	9975.	10511.
X	196078.	200530.	199326.	205133.
Y	93940.	96073.	95496.	98278.
Z	728648.	745452.	741418.	763261.
\$N15_w/o	19.06	20.06	20.88	22.03
\$N15with	14.86	15.52	15.97	16.74

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript - 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript - 2)

All flowrates in moles/day

L = moles HNO₃/day G = moles NO/day
 P = moles product/day R = moles refluxed/day/G

Subscripts: f = feed p = product w = waste
 N-15 atom fractions: Y = HNO₃ X = NO

alpha = 1.055 Yf = .00366 Yw = .00037
 Yp2 = .900 P2 = 18.2700 moles (N15+N14)/day @ 90.00% N-15
 R(min) of one-section cascade = 4715.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing = \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor = \$ 1000. each
 Liquid redistributor = \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc) = \$ 450. per set
 Pipe for the column = \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak = \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak = \$ 275. per liter
 Liquid distributor = \$ 200. each
 Liquid redistributor = \$ 55. each
 Others = \$ 200. per set
 Pipe for the column = \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column = \$ 20000. per unit
 Reflux splitter = \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) = \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 = \$ 9000. Tank 2 = \$ 27600. Tank 3 = \$ 4300. Tank 4 = \$ 2900.
 Tank 5 = \$ 2100. Tank 6 = \$ 46500. Tank 7 = \$ 4300. Tank 8 = \$ 9600.

Pumps: Pump1 = \$ 2400. Pump2 = \$ 4500. Pump3 = \$ 3000. Pump4 = \$ 5000. Pump5 = \$ 3000.
 Pump6 = \$ 1700. Pump7 = \$ 2000. Pump8 = \$ 3200. Pump9 = \$ 3000.
 Pump17 = \$ 1380. Pump18 = \$ 3600. Pump19 = \$ 4500. Pump21 = \$ 2000.

Compressors: P10 = \$ 6800. P13 = \$100000. P14 = \$ 3050. P15 = \$ 3050.
 P16 = \$13300. P20 = \$ 7000.

Heat exchangers: HX 1 = \$ 10000. HX 2 = \$ 3000. HX 3 = \$ 14000.
 HX 4 = \$ 8000. HX 5 = \$ 5000. HX

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fchem1 - 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP - 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 - 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP - 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP - 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max - 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax - 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax - 5,910 moles HNO₃/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO₃ flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
*          Amortization period = 10yrs      Annual interest rate = 8.00 %
*          Atom fraction @ taper = .0500
*          R2(min) = 343.      N2(min) = 93      N1(min) = 48
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	Rlmin	Facl	R1	L1	G1	N1	Rflow1	Ns	Waste	Feed
1.01	346.4	6348	6329	149	12.571	1.01	12.697	86941	86923	98	80593	26	4978	4996
						1.10	13.828	94123	94104	84	87775	27	4978	4996
						1.20	15.085	102102	102084	77	95755	27	4978	4996
						1.30	16.342	110082	110063	72	103734	28	4978	4996

1.20	411.6	7538	7520	125	10.428	1.01	10.532	86929	86911	98	79391	26	4978	4996
						1.10	11.470	94004	93985	84	86465	27	4978	4996
						1.20	12.513	101864	101846	77	94326	27	4978	4996
						1.30	13.556	109724	109706	72	102186	28	4978	4996

1.40	480.2	8792	8773	116	8.798	1.01	8.886	86917	86898	98	78125	26	4978	4996
						1.10	9.678	93878	93860	85	85087	27	4978	4996
						1.20	10.558	101613	101595	77	92822	27	4978	4996
						1.30	11.438	109349	109330	73	100557	28	4978	4996

 **** Actual Column Dimensions Follow ****

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section			
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflux units	Fac1	Dial inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflux units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter
1.01	3.00	9.	163	14.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	12	6.00	74.	30	22.8
1.20	3.00	9.	137	13.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	11	6.00	74.	30	22.8
1.40	3.00	10.	127	13.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	93	69.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	80	59.	11	6.00	74.	30	22.8

 ***** Cost Analysis Outputs Follow *****

 *** Fac2 = 1.01 Reflux ratio of Section 2 = 346.4 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
12.697	13.828	15.085	16.342

A-column 354602. 370413. 389542. 410331.

ExCol1 54192. 46450. 42579. 39814.
 ExCol2 7533. 7533. 7533. 7533.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 207000. 230000. 253000. 276000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.

WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.
A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.
A-total	673382.	689193.	708323.	729111.
B	404029.	413516.	424994.	437466.
C	94273.	96487.	99165.	102075.
D	202015.	206758.	212497.	218733.
E	20201.	20676.	21250.	21873.
F	202015.	206758.	212497.	218733.
G	1595915.	1633388.	1678724.	1727992.
H	638366.	653355.	671490.	691197.
I	0.	0.	0.	0.
J	638366.	653355.	671490.	691197.
K	398979.	408347.	419681.	431998.
L	159619.	167682.	176828.	186174.
M	3431245.	3516128.	3618213.	3728557.
N-SO2	772389.	836204.	907110.	978015.
N-HNO3	58315.	63133.	68487.	73840.
N-Air	7546.	8170.	8862.	9555.
N-H2O	10736.	11623.	12609.	13594.
N-total	848987.	919130.	997068.	1075005.
O	0.	0.	0.	0.
P	95755.	98003.	100723.	103680.
Q	79796.	81669.	83936.	86400.
R	7980.	8167.	8394.	8640.
S	42449.	45957.	49853.	53750.
T	1074966.	1152927.	1239975.	1327474.
U	327163.	334845.	344139.	354238.
V	183211.	187513.	192718.	198373.
W	8939.	9390.	9902.	10426.
X	183211.	187513.	192718.	198373.
Y	87775.	89836.	92330.	95040.
Z	790299.	809097.	831806.	856451.
SN15_w/o	18.77	19.75	20.85	21.98
SN15with	14.93	15.58	16.33	17.11

*** Fac2 = 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 411.6 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
10.532	11.470	12.513	13.556

A-column 353967. 369778. 388907. 386695.

ExCol1	54192.	46450.	42579.	39814.
ExCol2	6898.	6898.	6898.	6898.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	207000.	230000.	253000.	253000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	672747.	688558.	707687.	705475.
B	403648.	413135.	424612.	423285.
C	94185.	96398.	99076.	98767.
D	201824.	206567.	212306.	211643.
E	20182.	20657.	21231.	21164.
F	201824.	206567.	212306.	211643.

G 1594410.1631883.1677219.1671977.

H	637764.	652753.	670888.	668791.
I	0.	0.	0.	0.
J	637764.	652753.	670888.	668791.
K	398602.	407971.	419305.	417994.
L	159532.	167503.	176547.	183031.

M 3428072.3512862.3614846.3610583.

N-SO2	772283.	835146.	904994.	974841.
N-HNO3	58307.	63054.	68327.	73601.
N-Air	7545.	8159.	8842.	9524.
N-H2O	10735.	11609.	12579.	13550.

N-total	848870.	917967.	994742.	1071516.
O	0.	0.	0.	0.
P	95665.	97913.	100633.	100319.
Q	79720.	81594.	83861.	83599.
R	7972.	8159.	8386.	8360.
S	42444.	45898.	49737.	53576.

T 1074671.1151532.1237359.1317370.

U	326854.	334536.	343830.	342755.
V	183038.	187340.	192545.	191943.
W	8934.	9380.	9887.	10250.
X	183038.	187340.	192545.	191943.
Y	87693.	89754.	92247.	91959.

Z 789557. 808350. 831053. 828849.

\$N15_w/o	18.76	19.72	20.82	21.60
\$N15with	14.92	15.57	16.31	16.75

*** Fac2 = 1.40 Reflux ratio of Section 2 = 480.2 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of R1.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	8.886	9.678	10.558	11.438

A-column 354035. 370399. 365975. 387316.

ExColl 54192. 47003. 42579. 40367.
 ExCol2 6966. 6966. 6966. 6966.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 207000. 230000. 230000. 253000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.
 WastRf 50000. 50000. 50000. 50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.

A-total 672815. 689179. 684755. 706096.
 B 403689. 413508. 410853. 423658.
 C 94194. 96485. 95866. 98853.
 D 201844. 206754. 205427. 211829.
 E 20184. 20675. 20543. 21183.
 F 201844. 206754. 205427. 211829.

G 1594571.1633355.1622870.1673449.

H 637828. 653342. 649148. 669379.
 I 0. 0. 0. 0.
 J 637828. 653342. 649148. 669379.
 K 398643. 408339. 405718. 418362.
 L 159530. 167470. 173581. 182783.

M 3428400.3515847.3500465.3613353.

N-SO2 772172. 834032. 902766. 971500.
 N-HNO3 58299. 62969. 68159. 73348.
 N-Air 7544. 8148. 8820. 9492.
 N-H2O 10733. 11593. 12548. 13504.

N-total 848748. 916743. 992294.1067844.
 O 0. 0. 0. 0.
 P 95674. 98001. 97372. 100407.
 Q 79729. 81668. 81144. 83672.
 R 7973. 8167. 8114. 8367.
 S 42437. 45837. 49615. 53392.

T 1074561.1150416.1228538.1313683.

U 326887. 334838. 332688. 343057.
 V 183057. 187509. 186305. 192112.
 W 8934. 9378. 9721. 10236.
 X 183057. 187509. 186305. 192112.
 Y 87701. 89835. 89258. 92040.

Z 789636. 809069. 804278. 829556.

\$N15_w/o 18.76 19.72 20.46 21.57
 \$N15with 14.92 15.57 15.96 16.73

***** Output of Program 50Kg2S *****

Section #1 is lower enrichment column (subscript = 1)
 Section #2 is upper enrichment column (subscript = 2)

All flowrates in moles/day

L - moles HNO₃/day G - moles NO/day
 P - moles product/day R - moles refluxed/day/G

Subscripts: f - feed p - product w - waste
 N-15 atom fractions: Y - HNO₃ X - NO

alpha = 1.055 Yf = .00366 Yw = .00037
 Y_{P2} = .900 P₂ = 18.2700 moles (N₁₅+N₁₄)/day @ 90.00% N-15
 R(min) of one-section cascade = 4715.

UNIT COST PARAMETERS FOLLOW:

Enrichment Col. Section 1: Packing - \$ 5820. per cubic meter
 Liquid distributor - \$ 1000. each
 Liquid redistributor - \$ 450. each
 Others (packing support, collector, etc)- \$ 450. per set
 Pipe for the column - \$ 75.00 per foot

Enrichment Col. Section 2: Packing; ProPak - \$ 38. per liter
 Packing; HeliPak - \$ 275. per liter
 Liquid distributor - \$ 200. each
 Liquid redistributor - \$ 55. each
 Others - \$ 200. per set
 Pipe for the column - \$ 25.00 per foot

Product refluxer, both sections: Column - \$ 20000. per unit
 Reflux splitter - \$ 1000. per unit
 Others (NO₂-scrubber, etc) - \$ 2000. per unit

Waste-end refluxer: \$ 50000.

Tanks: Tank 1 - \$ 9000. Tank 2 - \$ 27600. Tank 3 - \$ 4300. Tank 4 - \$ 2900.
 Tank 5 - \$ 2100. Tank 6 - \$ 46500. Tank 7 - \$ 4300. Tank 8 - \$ 9600.

Pumps: Pump1 - \$ 2400. Pump2 - \$ 4500. Pump3 - \$ 3000. Pump4 - \$ 5000. Pump5 - \$ 3000.
 Pump6 - \$ 1700. Pump7 - \$ 2000. Pump8 - \$ 3200. Pump9 - \$ 3000.
 Pump17 - \$ 1380. Pump18 - \$ 3600. Pump19 - \$ 4500. Pump21 - \$ 2000.

Compressors: P10 - \$ 6800. P13 - \$100000. P14 - \$ 3050. P15 - \$ 3050.
 P16 - \$13300. P20 - \$ 7000.

Heat exchangers: HX 1 - \$ 10000. HX 2 - \$ 3000. HX 3 - \$ 14000.
 HX 4 - \$ 8000. HX 5 - \$ 5000. HX

SO₂ : \$.016230 per mole
 H₂SO₄: \$.008030 per mole in 9.6 M H₂SO₄

PROCESS-CAPACITY AND SAFETY FACTORS DEFINED BY USER

Fchem1 = 2.00: Multiplier for HETP of Section-1 enrichment column
 FchemPP = 2.00: Multiplier for HETP of Section-2 enrichment column packed with ProPak
 Fht1 = 1.10: Multiplier for Section-1 enrichment column height
 Fht2PP = 1.10: Multiplier for ProPak-packed column height
 Fht2HP = 1.10: Multiplier for HeliPak-packed column height

Packing used for Section-2 enrichment column is Pro-Pak.

FLOODING LIMITS OF THE PACKINGS

G1max = 126,000 moles NO/day for Section-1 exchange column
 (- 85% of flooding flowrate in the 6" I.D. column)
 G2PPmax = 12,000 moles NO/day for ProPak (Size 0.16")
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 L2HPmax = 5,910 moles HNO3/day for HeliPak (Size C)
 (- 90% of flooding rate in the 3" I.D. column)
 When HNO3 flowrate exceeds 5,910 mole/day in the Heli-Pak packed column,
 the column I.D. is increased to 3.5".

MAJOR OPTIMIZATION PARAMETERS AND THEIR DEPENDENT VARIABLES FOLLOW:

```
*****
*          Amortization period = 15yrs      Annual interest rate = 8.00 % *
*          Atom fraction @ taper = .0500   *
*          R2(min) = 343.      N2(min) = 93      N1(min) = 48   *
*****
```

```
*****
** Theoretical Flow Parameters Follow **
*****
```

Fac2	R2	L2-P1	G2	N2	Rlmin	Fac1	R1	L1	G1	N1	Rflowl	Ns	Waste	Feed
1.01	346.4	6348	6329	149	12.571	1.01	12.697	86941	86923	98	80593	26	4978	4996
						1.10	13.828	94123	94104	84	87775	27	4978	4996
						1.20	15.085	102102	102084	77	95755	27	4978	4996
						1.30	16.342	110082	110063	72	103734	28	4978	4996
1.20	411.6	7538	7520	125	10.428	1.01	10.532	86929	86911	98	79391	26	4978	4996
						1.10	11.470	94004	93985	84	86465	27	4978	4996
						1.20	12.513	101864	101846	77	94326	27	4978	4996
						1.30	13.556	109724	109706	72	102186	28	4978	4996
1.40	480.2	8792	8773	116	8.798	1.01	8.886	86917	86898	98	78125	26	4978	4996
						1.10	9.678	93878	93860	85	85087	27	4978	4996
						1.20	10.558	101613	101595	77	92822	27	4978	4996
						1.30	11.438	109349	109330	73	100557	28	4978	4996

 **** Actual Column Dimensions Follow ****

Fchem1 = 2.00 FchemPP = 2.00 Fht1 = 1.10 Fht2PP = 1.10 Fht2HP = 1.10

Section 2						Section 1						Stripping Section			
Fac2	Dia2 inch	HETP cm	N2 used	Ht2 m	Reflx units	Fac1	Dial inch	HETP cm	N1 used	Ht1 m	Reflx units	Dia in	HETP cm	Ns used	HtS meter
1.01	3.00	9.	163	14.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	12	6.00	74.	30	22.8
1.20	3.00	9.	137	13.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	92	68.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	11	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	79	59.	11	6.00	74.	30	22.8
1.40	3.00	10.	127	13.	1	1.01	6.00	74.	107	80.	9	6.00	74.	28	21.2
						1.10	6.00	74.	93	69.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.20	6.00	74.	84	63.	10	6.00	74.	29	22.0
						1.30	6.00	74.	80	59.	11	6.00	74.	30	22.8

 **** Cost Analysis Outputs Follow ****

 *** Fac2 = 1.01 Reflux ratio of Section 2 = 346.4 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
12.697	13.828	15.085	16.342

A-column 354602. 370413. 389542. 410331.

ExCol1 54192. 46450. 42579. 39814.
 ExCol2 7533. 7533. 7533. 7533.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 207000. 230000. 253000. 276000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.

WastRf 50000. 50000. 50000. 50000.
 A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.
 A-total 673382. 689193. 708323. 729111.
 B 404029. 413516. 424994. 437466.
 C 94273. 96487. 99165. 102075.
 D 202015. 206758. 212497. 218733.
 E 20201. 20676. 21250. 21873.
 F 202015. 206758. 212497. 218733.
 G 1595915.1633388.1678724.1727992.
 H 638366. 653355. 671490. 691197.
 I 0. 0. 0. 0.
 J 638366. 653355. 671490. 691197.
 K 398979. 408347. 419681. 431998.
 L 150488. 158337. 167224. 176287.
 M 3422115.3506783.3608609.3718671.
 N-SO2 772389. 836204. 907110. 978015.
 N-HNO3 58315. 63133. 68487. 73840.
 N-Air 7546. 8170. 8862. 9555.
 N-H2O 10736. 11623. 12609. 13594.
 N-total 848987. 919130. 997068.1075005.
 O 0. 0. 0. 0.
 P 95755. 98003. 100723. 103680.
 Q 79796. 81669. 83936. 86400.
 R 7980. 8167. 8394. 8640.
 S 42449. 45957. 49853. 53750.
 T 1074966.1152927.1239975.1327474.
 U 218108. 223230. 229426. 236159.
 V 183211. 187513. 192718. 198373.
 W 8427. 8867. 9365. 9872.
 X 183211. 187513. 192718. 198373.
 Y 87775. 89836. 92330. 95040.
 Z 680733. 696959. 716555. 737818.
 \$N15_w/o 17.67 18.62 19.69 20.79
 \$N15with 13.82 14.45 15.17 15.92

 *** Fac2 = 1.20 Reflux ratio of Section 2 = 411.6 **

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
 * the second row lists the corresponding values of R1.

1.01	1.10	1.20	1.30
10.532	11.470	12.513	13.556

A-column 353967. 369778. 388907. 386695.

ExCol1	54192.	46450.	42579.	39814.
ExCol2	6898.	6898.	6898.	6898.
Strip	14377.	14930.	14930.	15483.
Reflx1	207000.	230000.	253000.	253000.
Reflx2	21500.	21500.	21500.	21500.
WastRf	50000.	50000.	50000.	50000.

A-pumps	39280.	39280.	39280.	39280.
A-comprs	133200.	133200.	133200.	133200.
A-tanks	106300.	106300.	106300.	106300.
A-heatex	40000.	40000.	40000.	40000.

A-total	672747.	688558.	707687.	705475.
B	403648.	413135.	424612.	423285.
C	94185.	96398.	99076.	98767.
D	201824.	206567.	212306.	211643.
E	20182.	20657.	21231.	21164.
F	201824.	206567.	212306.	211643.

G	1594410.	1631883.	1677219.	1671977.
---	----------	----------	----------	----------

H	637764.	652753.	670888.	668791.
I	0.	0.	0.	0.
J	637764.	652753.	670888.	668791.
K	398602.	407971.	419305.	417994.
L	150410.	158167.	166952.	173466.

M	3418951.	3503526.	3605251.	3601018.
---	----------	----------	----------	----------

N-SO2	772283.	835146.	904994.	974841.
N-HNO3	58307.	63054.	68327.	73601.
N-Air	7545.	8159.	8842.	9524.
N-H2O	10735.	11609.	12579.	13550.

N-total	848870.	917967.	994742.	1071516.
O	0.	0.	0.	0.
P	95665.	97913.	100633.	100319.
Q	79720.	81594.	83861.	83599.
R	7972.	8159.	8386.	8360.
S	42444.	45898.	49737.	53576.

T	1074671.	1151532.	1237359.	1317370.
---	----------	----------	----------	----------

U	217903.	223024.	229220.	228503.
V	183038.	187340.	192545.	191943.
W	8423.	8857.	9349.	9714.
X	183038.	187340.	192545.	191943.
Y	87693.	89754.	92247.	91959.

Z	680095.	696315.	715906.	714062.
---	---------	---------	---------	---------

\$N15_w/o	17.66	18.60	19.66	20.44
\$N15with	13.81	14.44	15.15	15.59

*** Fac2 = 1.40 Reflux ratio of Section 2 = 480.2 ***

* In the following table, the headings for Column 2 to 11 are values of Fac1, and
* the second row lists the corresponding values of Rl.

	1.01	1.10	1.20	1.30
	8.886	9.678	10.558	11.438

A-column 354035. 370399. 365975. 387316.

ExColl 54192. 47003. 42579. 40367.
 ExCol2 6966. 6966. 6966. 6966.
 Strip 14377. 14930. 14930. 15483.
 Reflx1 207000. 230000. 230000. 253000.
 Reflx2 21500. 21500. 21500. 21500.
 WastRf 50000. 50000. 50000. 50000.

A-pumps 39280. 39280. 39280. 39280.
 A-comprs 133200. 133200. 133200. 133200.
 A-tanks 106300. 106300. 106300. 106300.
 A-heatex 40000. 40000. 40000. 40000.

A-total 672815. 689179. 684755. 706096.
 B 403689. 413508. 410853. 423658.
 C 94194. 96485. 95866. 98853.
 D 201844. 206754. 205427. 211829.
 E 20184. 20675. 20543. 21183.
 F 201844. 206754. 205427. 211829.

G 1594571.1633355.1622870.1673449.
 H 637828. 653342. 649148. 669379.
 I 0. 0. 0. 0.
 J 637828. 653342. 649148. 669379.
 K 398643. 408339. 405718. 418362.
 L 150407. 158126. 164296. 173209.

M 3419278.3506503.3491180.3603779.
 N-SO2 772172. 834032. 902766. 971500.
 N-HNO3 58299. 62969. 68159. 73348.
 N-Air 7544. 8148. 8820. 9492.
 N-H2O 10733. 11593. 12548. 13504.

N-total 848748. 916743. 992294.1067844.
 O 0. 0. 0. 0.
 P 95674. 98001. 97372. 100407.
 Q 79729. 81668. 81144. 83672.
 R 7973. 8167. 8114. 8367.
 S 42437. 45837. 49615. 53392.

T 1074561.1150416.1228538.1313683.
 U 217925. 223225. 221792. 228705.
 V 183057. 187509. 186305. 192112.
 W 8423. 8855. 9201. 9700.
 X 183057. 187509. 186305. 192112.
 Y 87701. 89835. 89258. 92040.

Z 680162. 696933. 692862. 714668.

\$N15 w/o 17.66 18.59 19.34 20.41
 \$N15with 13.81 14.44 14.84 15.58

Appendix B for Report No. 3

(Drawings of Essential Parts of Product Refluxer Module)

Prepared for

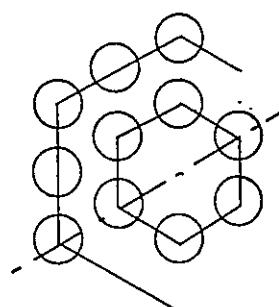
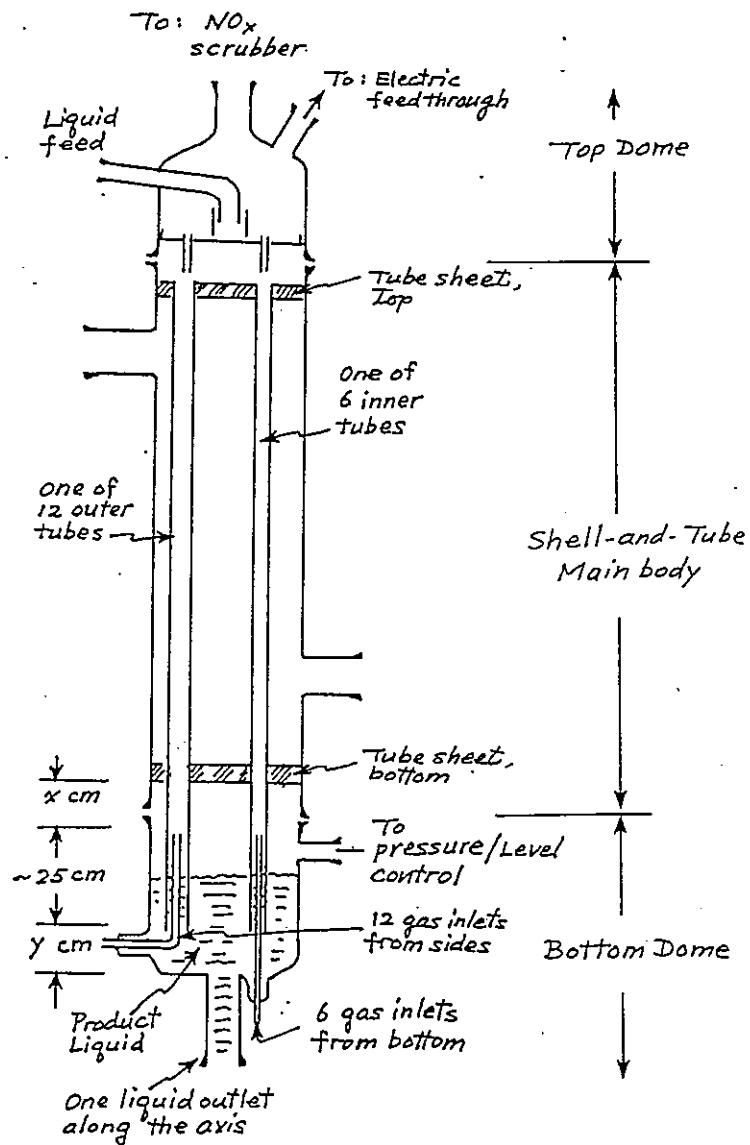
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

by

T. Ishida and Wm. Spindel

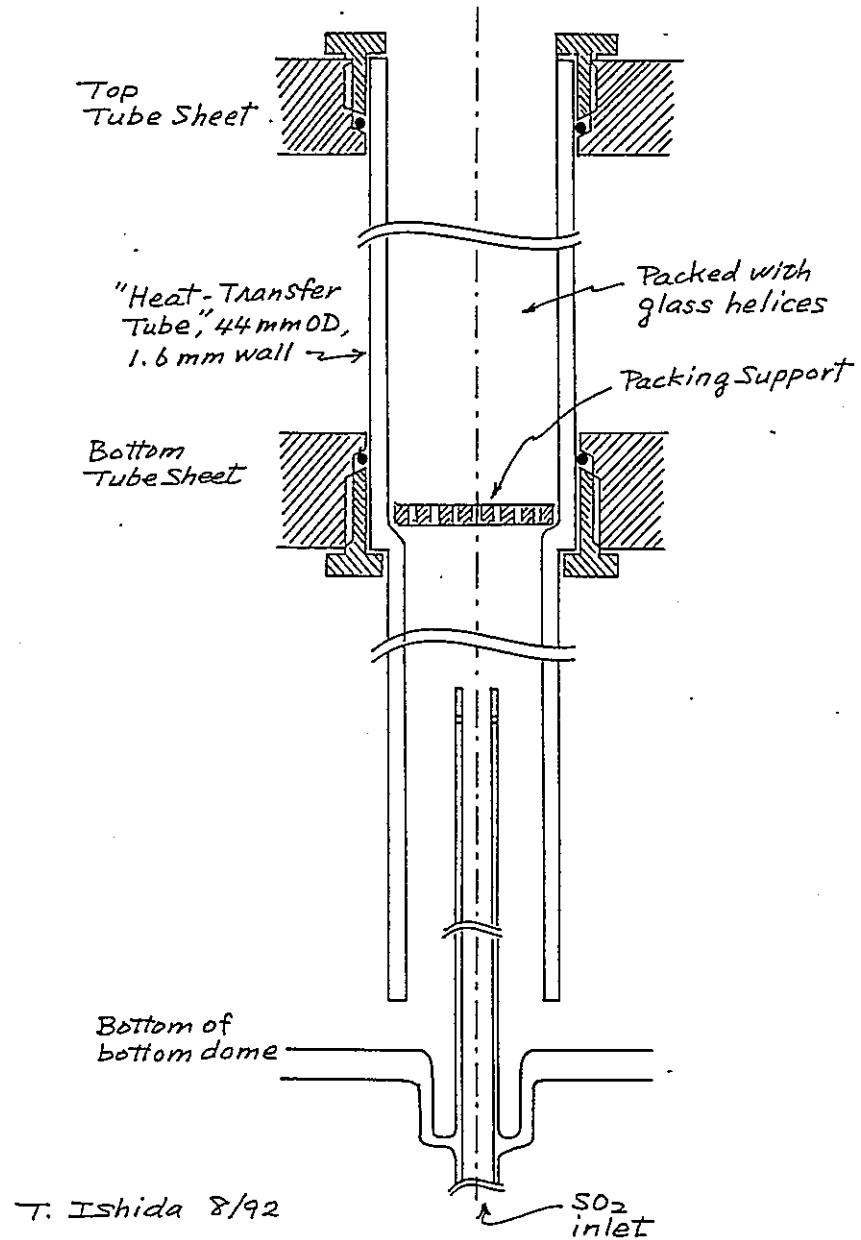
August, 1992

Modular Unit of Product Refluxer:
Size View of Assembly



Modular Unit of Product Refluxer:
Top View of Tube Arrangement

T. Ishida
8/92



Modular Unit of Product Refluxer:
Detail of Each Tube

付録 1

PREPARATION OF HIGHLY ENRICHED NITROGEN-15

BY CHEMICAL EXCHANGE OF NO WITH HNO₃(NOとHNO₃の化学交換法による高濃縮された窒素-15の調製)

BY T. I. TAYLOR & W. SPINDEL

1. 概 要

窒素-15は、種々の方法により濃縮されるが、実際に高濃縮の製品を生産するためには、表1に要約したような方法が用いられる。

表1 窒素-15を高濃縮した製品を製造するために用いられる手段

反応系	著 者	単位段係数, α	% ¹⁵ N
NH ₃ -NH ₄ ⁺ 交換	Thode and Urey(1939) ²⁾	1.023	72.8
N ₂ 熱拡散	Clusius(1950) ³⁾	—	99.8
NH ₃ -NH ₄ Rイオン交換	Spedding, Powell and Svec (1955) ⁴⁾	1.026	99.7
NO-HNO ₃ 交換	Spindel and Taylor(1956) ⁵⁾	1.055	99.9

上でリストアップした方法に加え、他の交換システム、蒸留法、ガス拡散法、ガス遠心法、電気分解等を利用することができます。それらの方法を行った実験の参考文献は、Capman, Broida, Begum, Allenらが編集したものの中に見出せる。

もし、化学物質間で速い交換反応を与えるに十分高い単位ステージ分離係数があるならば、適当な還流反応を起こすものがある二相化学交換システムが、軽元素の同位体分離に他の方法よりも一般的に好まれる。例えば、窒素-15は、永年にわたってEastman Kodak 社によって、ThodeとUreyによって開発されたアンモニアガスと硝酸アンモニウムの溶液との間の交換法により60% N¹⁵まで濃縮された製品が得られている。ここで議論する一酸化窒素(NO)と硝酸との交換反応は、アンモニアガスと硝酸アンモニウムの溶液との間の交換法より、主に単位段当たりの分離係数が高く、有望な還流反応があるという点で利点がある。

2. NO-HNO₃交換プロセス

熱拡散カラムの中での化学交換効果によるかつて行われた実験は、NOとNO₂の間の向流による交換を利用することで、かなり窒素-15の濃縮がされる結果を示した。その系の中で、熱拡散カラムの中心に熱いワイヤーを入れてNO₂からNOとO₂を分解することで、ある種から他の種への化学的転換を行う必要はなかった。それらの実験の結果と Leifer¹⁰⁾ らのさらに以前の研究は、

NOとNO₂の間の交換は速いということを示している。

硝酸と一酸化窒素が接触して平衡に達すると、気相はNO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄, H₂O, HNO₃とHNO₂を含む。液相は、硝酸と水に加えてNO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄とHNO₂を含んでいる。表2は、Abel, Schmid, Stein-Wein¹¹⁾ らの結果をもとに算出した気相の構成を要約してある。種々の化学種間の平衡状態は可変であり、その中に主な構成物質である一酸化窒素、硝酸さらに窒素イオン間の高速同位体交換のメカニズムがあると考えられた。後で示すが、このことは高い酸濃度では真実であることが判明した。

表2 25°C大気圧の硝酸と平衡状態にある気相のおよそのモル%で示した組成¹¹⁾

平衡状態の 硝酸濃度 (mol/l)	NO	NO ₂	N ₂ O ₄	H ₂ O	HNO ₃	HNO ₂
13	50.1	20.3	28.4	1.0	0.16	—
11	68.2	15.1	15.4	1.3	0.05	—
10	77.9	11.6	9.0	1.5	0.03	—
8	92.1	4.5	1.4	1.9	—	—
6	95.8	1.5	0.2	2.3	—	0.2
4	95.6	0.5	0.02	2.6	—	1.3
2	96.1	0.2	0.004	2.9	—	0.8

主な技術的課題は、適当な還流反応を見つけることに関するものであった。可能性のある多くの反応を試した後、それは発見され、硝酸と二酸化硫黄(SO₂)ガスとの反応が申し分のないものであった。最終的に開発された、このプロセスに必要な主な反応を表3にまとめた。

表3 NO-HNO₃プロセスの主な反応

反応	反応式
交換	$\text{N}^{15}\text{O} + \text{HN}^{14}\text{O}_3 \rightleftharpoons \text{N}^{14}\text{O} + \text{HN}^{15}\text{O}_3$
生成物還流	$3\text{SO}_2 + 2\text{HNO}_3 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{H}_2\text{SO}_4 + 2\text{NO}$
	$\text{SO}_2 + 2\text{HNO}_3 \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4 + 2\text{NO}_2$
廃棄物還流	$2\text{NO} + \text{O}_2(\text{air}) \rightarrow 2\text{NO}_2$
	$3\text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{HNO}_3 + \text{NO}$

3. NO-HNO₃交換システム

実験室での主な交換システムの略図を図1に示す。硝酸は、充填カラムの上部より蒸留カラムと同じように流される。硝酸がカラムから生成物還流器へ入っていったとき、それは二酸化硫黄(SO₂)との反応により、NOといくらかのNO₂に転換される。硫酸は、プロセスの中において形成され、生成物還流器の底から副産物として取り出される。二酸化硫黄(SO₂)の流れは、光電子リレーとバイパス電磁バルブによって自動的にコントロールされる。熱電対、電位計、電気分極等の方法も同じ目的に用いられてきた。

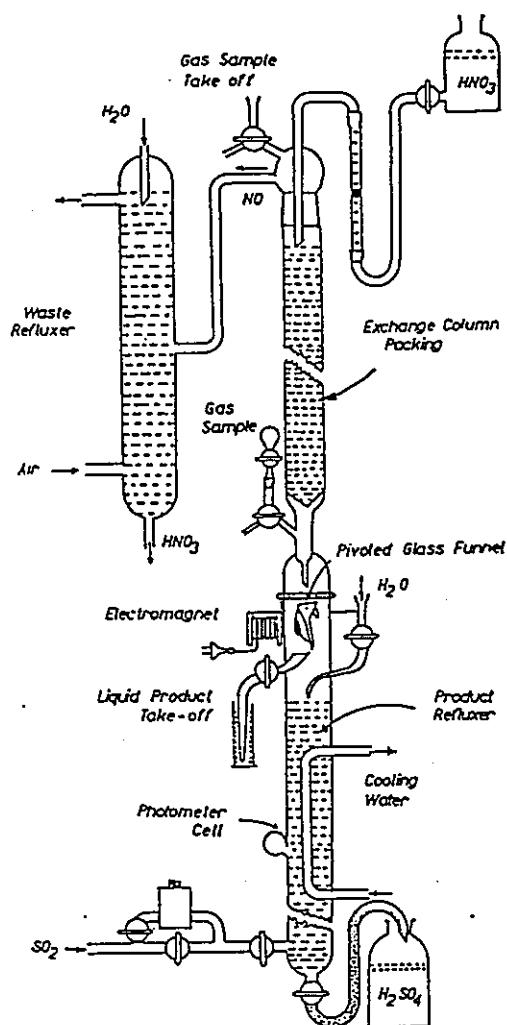


Fig. 1. Laboratory exchange column for studying the effect of operating conditions on the separation of nitrogen-15 by the exchange of nitric oxide with nitric acid.

図 1

反応熱のため生成物還流器を冷却する手段が供された。しかし、NO中のNO₂の濃度は、カラム中の硝酸と平衡状態にあるそれよりもやや高い。NO₂の適切な濃度は、還流器の上部から少量の水を流入することによって得られた。それによって幾らかの余剰なNO₂を $3\text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{HNO}_3 + \text{NO}$ によって硝酸とNOに転換した。適当な温度への冷却もまた、交換カラムへ戻るガス流中のNO₂の濃度コントロールとして用いられる。

カラムを上昇する窒素酸化物は、選択的に窒素-15を保持しようとする硝酸と反応して同位体交換を行う。それゆえに、窒素-15は底部において濃縮され、NO+NO₂ガスと同じように、もしくは硝酸と同じようにじょうごを振動させて取り除かれるであろう。

ガスがカラムの上部を出た後、それらは廃棄物還流器に入り、酸素（空気中の）と水と反応して硝酸となる。このように、少量の回収された生成物を除いては、回収された硝酸は工程に戻して使用することができる。一般に、商業システムでは、廃棄物還流器からの硝酸の一部分は、交換カラムのストリッピング部分に戻されることになるであろう。

窒素-15が高濃度に濃縮された生成物を得るために装置の設計を行うためには、分離全体に及ぼす多くの変数の効果は、先に記述したカラムに類似した短いカラムの中で決定された。単一ステージでの分離係数の決定に沿ったそれらの実験は、以下の章で記述される。

4. 単一ステージでの分離係数

NO-HNO₃交換系での最も注目すべき特徴は、その大変大きな单一ステージ分離係数である。この係数； α は、平衡状態にある（液相中のN¹⁵/N¹⁴比）対（ガス相中のN¹⁵/N¹⁴比）によって定義される。我々は、約10M-HNO₃の α の値を2つの異なる方法で決定した^{1,2)}。一つの方法は、約10ミルモルの一酸化窒素（大気圧下で250cc）を10MHNO₃10mlと平衡させて单一ステージバッチによる決定である。15回の結果の平均の α の値は1.055 ± 0.005であった。この方法は、むしろ正確な同位体存在比、転換した量、サンプルの純度の測定に大きく依存する。2つめの方法は、Dr. J. S. Drury¹⁴⁾によって我々に提案された方法であるが、製品回収率を関数としたカラム内における定状態での分離の値に基づくものである。カラムの中のプレートの数は、Cohen¹⁴⁾もしくはShacterとGarrett¹⁵⁾の式を用いて、それぞれの回収率における α の値を推定するために計算された。 α とステージ数をプロットしたこの曲線は、nと α がこれらの実験のシリーズにおいて定数であるという条件のもとで、ある点において交差する。我々の曲線は、1つの点において交差しなかったが、曲線は $\alpha = 1.053 \pm 0.005$ と $n = 48 \pm 3$ に該当する領域と交差した。この結果は、单一ステージ実験を確実なものとした。

5. α に対する硝酸濃度の影響

幾つかの予備実験の測定により单一ステージ分離係数における初めの硝酸濃度の影響は以下の結果¹²⁾ を与えた, 1M-HNO₃; $\alpha = 1.062$, 6M-HNO₃; $\alpha = 1.060$, 10M-HNO₃; $\alpha = 1.055$, 12M-HNO₃; $\alpha = 1.044$ 。これらの結果から、硝酸の濃度が10モル/l以上においては、 α がより急速に小さくなるように見える。Spindel¹³⁾ の分光器によるデータをもとにした計算は、上で示した組合せにおける α の値を以下のようにあたえる, N₀-N₀₃₋=1.096, N₀₂-N₀₃₋=1.053, N₀-N₀₂₋=1.006, N₀₂-N₀₂₋=0.966, N₀-N₀₂₋=1.040。最も希釈した硝酸溶液でさえも、 α の値はN₀とN₀₃₋の理論化された系の計算値よりも小さい。硝酸濃度が増加すると、N₀とN₀₃₋以外の種類の濃度が増加し、他の化学種での計算では小さい値になったことから示されるように、 α の値は予想するよりも、さらに低くなるであろう。

6. 高濃度窒素-15の製造における α の重要性

高濃度窒素-15の製造における α の重要性は、表4に説明されている。設定された¹⁵Nのモル分率を生産するために必要な全分離Sは、供給物質のN¹⁵/N¹⁴比に対して生成物質のN¹⁵/N¹⁴比である。この分離のために要求される最小ステージ数; nは、 $S = \alpha^n$ （ここで α は単一ステージ分離数である）によって与えられる。たいてい、生産のためには理論上の最少プレート数の1.5~2倍のプレート数のカラムを作る。そのため、99.9%の窒素-15の生産には、 $\alpha = 1.02$ で1262段、 $\alpha = 1.05$ で512段が必要である。

ここで用いられるようなストリッピング部分を持たない系では、生成物に対する最少の供給量の比は、式

$$\frac{L \text{ (min)}}{P} = \frac{N_0 \left[1 + (\alpha - 1) (1 - N_0) \right] - N_0}{(\alpha - 1) N_0 (1 - N_0)}$$

で計算できる。ここで、Lは最少の硝酸供給量（モル/日）、N₀は¹⁵Nの供給原料中のモル分率、N_pは¹⁵Nの製品中のモル分率、 α は単一ステージ分離係数である。¹⁵Nが天然の存在比0.365%の硝酸を α が1.05の工程で、99.9%含む製品にするために要求される供給量は、製品回収率の少なくとも5750倍である。これは、無限のプレート数をとったときの最大の輸送量である。

表4 高濃度窒素-15のために要求される製品に対する供給量とステージ数

% ¹⁵ N	全体の分離	単一ステージ分離係数 α	ステージ数の最小値	製品に対する供給の最小比
60	400	1.02	303	8360
		1.05	123	3440
95	5100	1.02	431	13270
		1.05	175	5460
99.9	269000	1.02	631	13960
		1.05	256	5750

最小プレート数のたったの2倍が使われるという事実を勘案して、また、損失や変動を補うために、流量は計算した最小値よりも20~40%余分に設計することが要求される。つまり、L/P比が約6900となるであろう。すなわち、回収する流量の割合が、 $\alpha = 1.05$ について約145ppm、 $\alpha = 1.02$ について約60ppmとなるであろう。結果として、製品還流器からの硫酸に10ppm以上の硝酸が含まれる、もしくは還流器のなかで同様の非交換的なガス種が多量に発生すると、これはかなりの製品の割合となることを示す。より高い α の値であれば、それらの損失はさほど重要ではなくなるであろう。それらの損失の影響は、2または3部分の次第に少なくなるカスケードが長い一段のカラムの代わりに用いられると、おそらく相当に低減されるであろう。

α の値に関するもう一つの重要な考察は、ある設定された量を生産するためのシステムの大きさが、濃度が一定でさらに他の項目も同じ場合、 $1 / (\alpha - 1)^2$ に従って変化するということである。これは、カラムの長さ、移動に必要とされる流れ（もしくは領域）は、 $1 / (\alpha - 1)$ によっているためである。そのため、もし $(\alpha - 1)$ が0.02のときプラントは、 $(\alpha - 1)$ が0.05のときの約6倍の規模が必要となる。

7. 全体の分離係数に対する交換速度と濃度の効果

α の大きな値の重要性は、前節で強調された。硝酸の濃度がより低いときに α がより大きいため、希釈な溶液の方が利点があるという結論に達するであろう。硝酸の必要なモル流量を得るために、大きな体積の原料がカラムの中を通過するという事実はさておき、2つの別の困難が発生する。そのどちらも反応率と関係している。1つ目は、酸濃度が低いと交換速度はゆっくりとなること、そして2つ目は、二酸化硫黄(SO_2)と硝酸との間での還流反応が高い酸濃度において急速に、そして完全に起こることである。そして、前に言及したように、低酸化状態の化学種が N^{15} の交換反応において N_2 と $HNO_3 + NO_3^-$ の間の主な中間生成物として生成されるのは疑いない。我々の研究は、交換挙動とメカニズムについては完了していないが、我々の酸濃度を関数としたときの小さなカラムでの全体の分離係数に関する結果は、適当な硝酸のモル濃度を選択するため必要な情報を与えてくれる。

内径1.0cm、長さ1.5mで1/16inのガラス製のらせん状物を充填したカラムの多くの試験結果は、表5にまとめられている。明らかに、8~10M-HNO₃の領域において、幅広く最大値をとる。我々の結果は、約10M-HNO₃が最適の分離条件であることを示している。これは、多分温度、圧力、流量、充填材のタイプによって変化し、交換速度もしくは膜拡散のどちらが交換速度をコントロールしているかによって決まる。明らかに、たとえ α が2M-HNO₃において高いとしても、それはゆっくりとした交換速度であるために満足できる濃度ではない。10M-HNO₃以上の濃度では、NO₂濃度が高くなり、そして硝酸とそれとの交換の α が、N₂と硝酸とのそれよりも小さいため、系の全体の α の値は低くなる。結果として、例え交換速度がとても速かったとしても、高い酸濃度においては、 α の値が小さくなるために全体の分離係数は小さくなる。いろいろな化学種の濃度の変化が、温度、圧力によるため、最適濃度は操作条件とともに変化するであろう。

表5 室温、大気圧における硝酸濃度の全体の分離への影響

硝酸濃度	流量 $m\ell/\text{cm}^2\cdot\text{min}$	全体の分離係数
2M	0.8	1.2
6M	1.3	2.0
8M	1.5	2.3
10M	1.5	2.5
12M	1.3	1.7 - 2.0 ¹⁾

1) 全体の分離は、還流器からのNO中のNO₂濃度に敏感であった。

8. 圧力と流量の影響

高濃度の窒素-15の製品をつくるために、有効なカラム長さでの要求される全体の分離係数を与えるような最も高い流量において操作されることが望ましい。高い流量においては、ステージの高さは多分極端なものになるであろう。しかしながら、より高い流量では、安定した状態になるために要求される時間は短くなるであろうし、また、供給カラムにおいて濃縮された原料の輸送量は多くなるであろう。

1.0と1.9気圧における流量の効果についての試験結果を表6に示す。

表6 10M-HNO₃の室温における圧力と流量の影響

カラム ¹⁾	流量の概数 $m\ell/\text{cm}^2\cdot\text{min}$	1.0気圧		1.9気圧	
		S	HETP cm	S	HETP cm
2	1.6	2.6	8.4	2.4	9.2
2	3.2	1.9	12.5	2.4	9.2
2	1.5	2.4	9.2	—	—
3	3.3	—	—	2.7	8.1
10	1.6	6.2	2.8	5.6	3.0
	3.0	3.6	4.0	3.9	3.7
	5.0	2.4	5.8	3.1	4.0

- 1) カラム2; 内径1cm, 長さ150cm, 充填材1/16inガラス製らせん状物
 カラム3; カラム2と同じで再充填したもの
 カラム10; 内径2.5cm, 長さ95cm, 充填材#3013ステンレス製“Helipak”, 0.050 in
 \times 0.100 in \times 0.100 inの長方形に巻いたらせん状物で, Podbielniak社
 [イリノイ州, シカゴ]より得られた。

これらの結果を考察すると、1気圧において流量が2倍になると、全体の分離に重大な影響をもたらすことが示されている。1.9気圧では、流量が増加したときの全体の分離係数の減少は、たいへん小さいものであった。高い圧力においてガス速度が遅いことは、操作効率の増加の主要な要因となるであろう。

高い圧力において性能が改善されることは、カラムの長さがわずかに長くなつても流量は増加するということから、大規模運転において意味のあるものとある。酸素（空気中の）と水の窒素酸化物との反応のための廃棄物還流器は、高い圧力においてより効率的に操作されるであろうことは、知られている。高い圧力での操作は、多分、カラムの制御、運転の複雑さが増加するため実験室での高濃度窒素-15の調整の正当な理由とはならないであろう。

9. 全体の分離効率における温度の影響

カラム10（表6）の流量が $1.6 \text{ ml/cm}^2\text{-min}$ 、 $10M-\text{HN}_3$ で温度が 25°C から -10°C に低下したとき、全体の分離係数は6.2から4.2へ低下した。カラムの温度が 25°C から 60°C に上昇すると、全体の分離係数は、約6.2から4.4へ低下した。2回目の実験シリーズは、最適温度をより正確に決定するために実施された。同じカラムであったが、計量ポンプと全自動制御系を付加した。交換カラムの中を還流してくるガス中の NO_2 濃度を、ガスが出発するカラム上部とほぼ同じ程度に維持することに注意が払われた。全体の分離係数は、 10°C では3.2、 25°C では6.9、 45°C では7.4、 70°C では6.3であった。

明らかに、 $25\sim50^\circ\text{C}$ の間に最適温度がある。この最適温度は、圧力、酸濃度、流量、カラム充填材の種類等によって決定されるであろう。これらの依存は、多分HETPが拡散による限界かそれとも交換速度による限界かの状態によって異なるであろう。より高い温度において、還流器からのガス中の NO_2 濃度は、重要な影響をもたらす。

温度の上昇はガス相中の NO_2 濃度の増加だけではなく、 α の値を小さくするであろう。そのため、例え交換速度が 70°C においてより速いとしても、 α の値が小さくなるために、全体の分離係数は低くなる。より低い温度においては、 α の値は 25°C における値よりも高くなると期待されたが、交換速度は明らかに低く、さらに液相の構成は好ましくないものとなった。

操作のための最適条件の決定には、種々の酸濃度での圧力、温度、流量等の影響についてより広範囲の実験が必要である事が判明した。しかしながら、ここに示した限られた実験によって、 $8\sim10M-\text{HN}_3$ を用い、室温、大気圧で流量が $1.5\sim2.0 \text{ ml/cm}^2\text{-min}$ が恐らく満足すべき運転条件であろう。

10. カラム充填材の影響

窒素-15の濃度を、0.365 %から99.9%に増加させるためには非常に多数の理論ステージ数が必要であるために、理論プレート等価高さ（HETP）が小さい値であるという結果を持つ充填材を使用することは重要である。種々のカラムと充填材の特性は、表7に要約されている。

表7 カラム充填材の影響

カラム	直径, 長さ cm	充填材	H E T P cm	ホールドアップ ml/cc	流量 ml/cm ² -min	HETP当たりの 処理時間 (分)
1	1.0×150	3/32in ガラス製らせん状物	10.8	0.16	0.75	2.3
2	1.0×150	1/16in ガラス製らせん状物	8.8	0.14	1.6	0.77
4	2.3×200	1/16in ガラス製らせん状物	8.7	0.13	1.4	0.81
5	1.6×110	41 バブルプレート	7.4	0.12	2.2	0.40
6	2.3×25	11 バブルキャップ	7.4	0.23	1.6	1.1
7	2.5×160	#3013 "Helipak"	3.4	0.11	1.6	0.23
10	25.0×95	#3013 "Helipak"	2.8	0.11	1.6	0.19

これらの値は、10M-HNO₃で α の値が1.055 のときに得られた全体の分離係数より計算して求められた。H E T Pの値は、直径1 cmのカラム中の充填材を3/32inから1/16in径のガラス製らせん状物に変えたとき、10.8 cmから8.8 cmに減少した。カラムの直径が1.0 cmから2.3 cmに増加しても、H E T Pの値に感知できるほどの変化は起こらなかった。ガラスの1/16inらせん状物の代わりに、"Helipak" #3013といわれるステンレス鋼のワイヤー充填物(Podbielniak社、シカゴ、イリノイ)を用いたとき、H E T Pの値は8.7から2.8 cmへと大きく減少する結果となった。ステンレス鋼充填材の硝酸溶液への溶解率は、非常に低いことが発見された。バブルプレートとバブルキャップカラムによるプレートの効率は、それぞれ36%と31%であった。バブルプレートカラムにともなう1つの困難な点は、相対的に幅の狭い流量の範囲でしか十分に操作されないことである。

バブルキャップカラムを除いては、操作中の単位体積(cc)当たりのホールドアップは、表7に示してあるすべてのカラムにおいて±20%以内ではほぼ同じであった。H E T P値と流量と一緒に、それらの値はステージ当たりの工程時間を用いて計算された。ステンレス鋼の"Helipak"充填材は、試された中で最も良く、これを用いるとカラムの長さに関してと、窒素-15の濃縮を行う時間の両方の面で有利であろう。

11. 製品還流器での損失の影響

製品還流器での損失の重要性は前に言及された。不完全な硝酸、亜硝酸の転換による損失の程度は、流出する硝酸の分析によってたやすく決定される。アルミニウムまたはDevarda's 合金が、改良されたKjeldahl装置において硝酸塩、亜硝酸塩をアンモニアに還元してNessler's 試薬を用いた比色分析法で決定するために苛性ソーダ液とともに用いられた。還元を始める前に、再現性のある結果を得るために過マンガン酸カリで NO_2 と H_2SO_4 を酸化する必要があることがわかった。3つの異なるカラムを用いた合計10試料の分析がなされ、流出する硫酸 1 ml中に平均 8.3 μ gの HNO_3 が含まれた。

我々の試験で使用した製品還流器のほとんどは、硝酸流量の約15~20%の割合の水の添加を必要とした。これは数ある中で、還流器の直径と長さ、冷却限界、合計流量等に依存する。分光器によって、カラムに還流するガス中の NO_2 の濃度は決定され、製品還流器への補助水の流れを変化させることで、たやすく適正な値に調整された。10M- HNO_3 を用いた通常の操作条件の下で、カラムに供給した硝酸 1 ml当たり、8.5 ~ 9.5 M- H_2SO_4 が約1.3 ~ 1.6 ml得られた。したがって、硫酸中の硝酸の損失は、交換カラムから還流器に流入する硝酸の約19ppmである。これらは、窒素-15の高濃度のものを生成するためにおいては、特に後で述べる2または3つの部分からなるカスケードにおいて、十分に低いものである。

上で言及した損失の他にも、 N_2 や N_2O のような非交換性のガスの還流器内での生成は、濃縮原料の損失の構成要素となるであろう。それらのガスの廃棄物流の含有についての分析は行わなかった。還流反応で知られている化学的知識によれば、それらのガスが多量生成することはない。もし、いくつかの原因による過剰の損失が還流器のなかで起こるとすれば、より高濃度の物質を作るという試みにおいて、それは明らかになるであろう。安定した状態になるまでの時間が長時間必要になるだけでなく、系において計算された輸送速度で濃縮された物質の回収は不可能になるであろう。

12. 高濃度窒素-15調整のためのカスケード

短いカラムの実験において得られた情報により、我々が、高濃度窒素-15を調整するために2セクションカスケード・システムの設計することが可能となった。システムの一般的な記述は、以前行われている⁵⁾ので、ここでは簡単な復習のために主要点のみを挙げておく。

システムのブロック・ダイヤグラムの略図を図2に示す。セクションIの交換カラムは、内径2.5cm、長さ5.2cmのパイレックスガラスであった。それには、ステンレス鋼の“Helipak” #3013が充填されており、図3に示すような製品還流器が準備されていた。セクションIIのカラムは、内径0.9cm、長さ550cmであったが、より小さいステンレス鋼の“Helipak” #3012が充填されていた。このセクションにおいて流れは小さいため、より小さな製品還流器を用いることができた。それは、図1に示したものと同様のものであるが、内径4.1 cm、長さ130 cm、3/32inのガラス製らせん物を充填してあった。光学用セルは、還流器の頂点に近く、濃縮された物質のホールドアップが減じる部分に設けられていた。

1つ目の交換カラムは、はじめに10M硝酸で完全に満たされ、そして操作流量の15ml/minになるように調整して、流出させておいた。二酸化硫黄(SO_2)は、還流器の底部よりフォトメータ

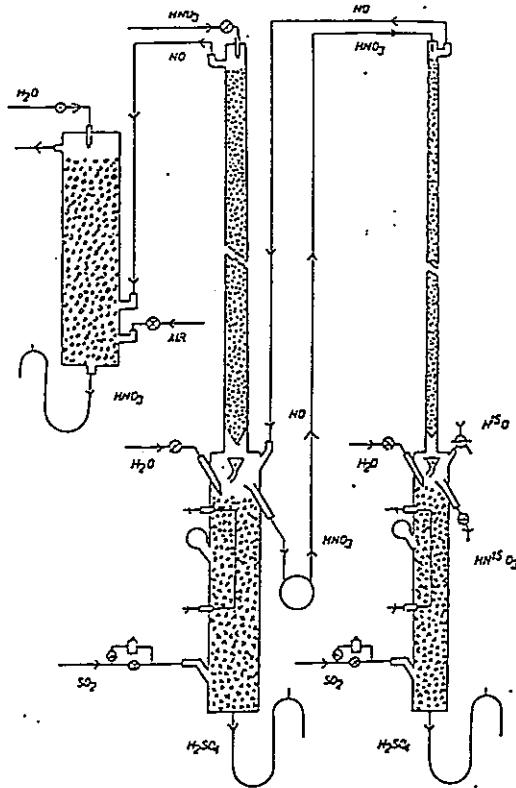


Fig. 2. Schematic diagram of a two section cascade for preparation of highly enriched nitrogen-15.

図 2

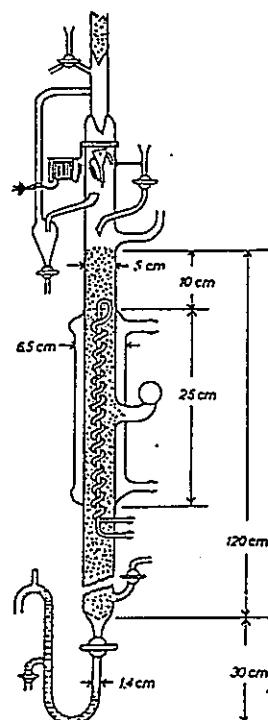


Fig. 3. Product refluxer for the first section of the cascade.

図 3

用セルのレベルに境界を保つのに必要な流量で注入された。この流れは、約10%にしばられ、そしてソレノイドバルブに連続してニードルバルブを開いて約20%増加させられた。このように自動運転の間は、光電子リレーが反応範囲がフォトメータの中間の位置に保持されるようにゆっくり上下させるために、ソレノイドバルブを開閉する。硝酸流量の15~20%にあたる水のわずかな流れは、交換カラムへ戻ってくるガス流中のNOとNO₂の比が適当な値に保たれるように製品還流器の頂部より流入される。

運転を始めて3日後、窒素-15の濃度は6.75%に上昇しており、このときスイングファネルは、液体流量の約4%をマイクロベローズポンプに迂回させるために、サイクルタイマーで操作された。このポンプは、部分的に濃縮された物質を小さなカラムの上部に移送する。このカラムから製品還流器への二酸化硫黄(SO₂)の流れは、最初の章で記述したのと同じ方法で調整された。ガスの還流ラインによって、小さなカラムからより大きなカラムの底部に窒素酸化物が戻ることができた。同位体分析のために必要なガスサンプルを除いた濃縮されていない製品は、次の11日間の運転期間の間に回収された。

図4は、分離の経過を時間とともに示したものである。下の曲線は、セクションIの底における窒素-15の濃度を示し、上の曲線はセクションIIから得られた窒素-15の濃度を示している。14日間の全時間の後、99.8%の濃度が達成され、また、製品は図4、表8に示したようなものが回収された。上にある曲線の7日目と9日目の大きな変動は、主としてポンピングの難しさによるものである。

表8 2セクションカスケードから回収された高濃縮窒素-15

製品	期間 (時間)	ガスまたは 9M-HNO ₃ の体積	¹⁵ Nの重量 (g)	% ¹⁵ N
P ₁ gas #1	2 0	90cc-atm	0.06	99.8
P ₂ gas #2	2 3	207cc-atm	0.13	99.8
liq. #1	—	0.3 ml	0.04	—
P ₃ liq. #2	2 3	1.8 ml	0.24	99.7
liq. #3	4 8	3.7 ml	0.50	99.8
liq. #4	4 4	3.7 ml	0.50	99.9
P ₄ liq. #5	4 4	7.4 ml	0.99	99.8
P ₅ liq. #6	2 4	7.6 ml	1.02	99.7
liq. #7	2 6	8.1 ml	1.09	99.5
liq. #8	2 2.5	7.5 ml	0.99	97.5

安定状態に達した後の窒素-15含有率の曲線で示される幾らかの変動は、ガスサンプルを質量分析のために窒素に転換するのに用いた装置の残留効果であることが調べられた。この転換は、

700 ～750 °Cの酸化銅と還元性酸化銅のワイヤーの混合物に窒素酸化物を通過させることで達成された。カラムの運転の間同じ還元反応のシステムは、窒素-15の高い濃度、低い濃度のどちらに対しても用いられた。そのあとの、液体の生成物のその装置による分析は、高い濃度のものだけに用い、残留効果が確認された。

以下の手順は、液体サンプルを分析するために用いられ、その結果は表 8 にまとめられている。サンプル中の硝酸は、Friedel¹⁷⁾ らによって述べられた水銀と硫酸との反応によって、はじめに一酸化窒素 (NO) に還元される。この一酸化窒素 (NO) は、加熱された銅-酸化銅混合物を詰めた石英管を通過し、その後液体窒素で冷却された小さな U 字管トラップを通過する。銅は、一酸化窒素 (NO) を窒素に還元し、酸化銅はサンプル中にわずかに存在する一酸化炭素を二酸化炭素に酸化する働きをする。いくらかの二酸化炭素は、わずかに残る未還元の一酸化窒素 (NO) と同じように形成され、トラップ中での凝縮によって除去された。

液体生成物 P 3 - # 4 から得られた窒素の質量分析計の記録は、バックグラウンドピークとタンクの窒素のスペクトルの記録と併せて図 5 に示されている。タンクに詰められた窒素の質量スペクトルにおいて、29 ($N^{14}N^{15}$) のピークの高さが、普通の窒素中の 0.365 % に相当する。バックグラウンドのスペクトルの 28 のピークとサンプル中の 28 のピークを比較すると、サンプル中には問題となるような量の窒素-14 の分子は含まれていないことを示している。記録より濃縮されたサンプルの 29 のピーク ($N^{14}N^{15}$) が、同じ圧力のタンクの窒素の 29 のピークの約 4 分の 1 であることが見て取れる。したがって、サンプルの窒素-14 の割合は普通の窒素中の窒素-15 の割合の約 4 分の 1、つまり約 0.1 % である。つまり、生成物は、99.9% の窒素-15 を含んでいる。より正確な計算は、99.91 ± 0.02% という結果を示した。

全部で約 5.5 g の窒素-15 が、11.5 日間の期間中に回収された、これは 1 日当たり平均約 0.48 g に相当する量である。計算では最大輸送は 10MHN₃ を 15 mL/min の割合で供給すること、そして α の値を 1.055 にすることによって達成でき、窒素-15 では 0.62 g/day が得られると計算できる。実際の輸送は、最大輸送は無限のステージ数の系においてのみ達成されるものであるために、これよりも多分約 20% ほど少なくなるであろう。この根拠で予想された輸送量は、1 日当たり約 0.50 g となったが、実際は 0.48 g/day であった。

前述の予想された輸送量と、実験での輸送量との差は、生成物還流器の中で考えられるすべての損失は、さほど大きくないことを示している。硫酸中の硝酸の損失は、深刻なものではないことは、すでに前の章の中で述べた実験からすでに知っていた。例えば、我々の 2 セクションカスケードを流れる硝酸の 19 ppm の損失は、窒素-15 の 1 日当たり 0.48 g の輸送を基礎にしたときの損失の約 1 % に過ぎない。もし、単一の長いカラムを用いたとすると、同じ輸送量に対して、損失の割合は 12.8 % になるであろう。この値でさえもそんなに大きくはないが、単一の長いカラムは、定常状態になるのに長い時間が必要になるという点において非現実的であろう。

13. 大規模生産への応用

普通の窒素 (1.8 バーン) に比べて、窒素-15 の低い熱中性子の吸収断面積 (2.4×10^{-5} バーン) であることより、原子炉に適用する上で高濃度に濃縮された窒素-15 を製造することは興味がある。相当な技術開発が要求されるが、今まで記述してきた方法は、実用的な化学交換系であ

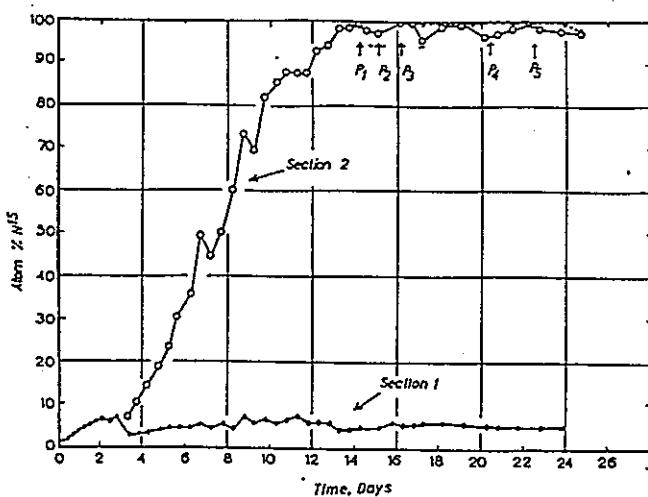


Fig. 4. Concentration of nitrogen-15 in gas samples taken during the operation of the two section cascade. The points connected by the dotted line show the concentration of nitrogen-15 in the liquid products withdrawn from the system as listed in Table 8.

図 4

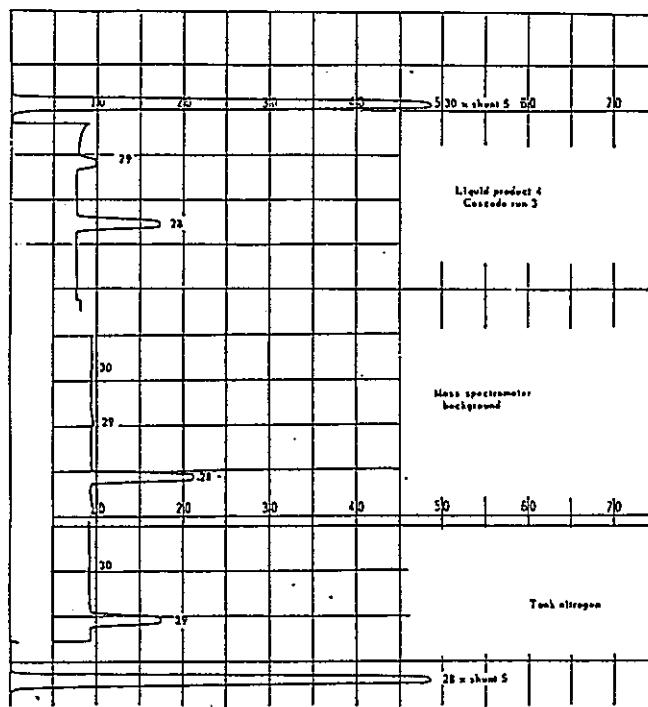


Fig. 5. Mass spectrometer record of the highly enriched nitrogen-15 obtained from the two section cascade.

図 5

ることに要求される多くの条件、つまり、十分に大きい濃縮係数、十分に速い交換速度、十分に高い処理量と低い残留液であることから単一ステージの効果の掛け合わせの手段が取れること、そして、交換コラムの両端での還流が比較的単純な系が行われ、そこでは、安価な化学物質を用いかつ売却可能な副産物を生み出す、という条件を満たすのは明らかである。

謝 辞

著者は、いろいろな場合において支援してくれ、可能な実験を援助してくれた、Dr. Lois Nash Kauder; Rudolph H. Froeder; Gleb Gashurov; Henry H. Kramer; C. David Miller; Heiko H. Ohlenbusch; Julia Barton; Maria E. Beyerle を含む研究室スタッフのメンバーに対して、多大な謝辞を贈る。質量分析計の保守・操作において支援してくれた Vincent G. Saltamach とカラムと生成物還流器の構成において支援してくれた Karl Schumann は、この研究の進歩に大きく寄与した。

参考文献

- ¹⁾ The work described here was supported in part by a grant from the U.S. Atomic Energy Commission, Contract AT (30-1) 755.
- ²⁾ H. G. Thode and H. C. Urey, J. Chem. Phys. 7 (1939) 34.
- ³⁾ K. Clusius, Helv. Chim. Acta 33 (1950) 2134.
- ⁴⁾ F. H. Spedding, J. E. Powell and H. J. Svec, J. Am. Chem. Soc. 77 (1955) 1393 and personal communication from H. J. Svec, (Dec. 17, 1956).
- ⁵⁾ W. Spindel and T. I. Taylor, J. Chem. Phys. 23 (1955) 981; 24 (1956) 626; Trans. N.Y. Acad. Sci. 19 (1956) 3.
- ⁶⁾ Margaret W. Chapman and H. P. Broida, Bibliography on Nitrogen-15 [National Bureau of Standards Circular 575, Oct. 1, 1956], Superintendent of Documents, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C.
- ⁷⁾ G. M. Begun and R. E. Allen, Isotope Separation and Isotope Exchange, A Bibliography of Unclassified Literature (U.S. Atomic Energy Commission, TID-3036 (Revised), June 1954), Office of Technical Services, Department of Commerce, Washington, D.C.
- ⁸⁾ D. W. Stewart, Nucleonics 9, No. 2 (1947) 25. The NO-HNO₃ method described in this report is now being used by Isomet Corp., Palisades Park, N. J. to produce 95% nitrogen-15. The method has also been used to produce better than 99% nitrogen-15 by J. S. Drury, G. M. Begun et al., of the Stable Isotope Separation Group at the Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn.
- ⁹⁾ T. I. Taylor and W. Spindel, J. Chem. Phys. 16 (1948) 635; W. Spindel and T. I. Taylor, J. Chem. Phys. 23 (1955) 1318.
- ¹⁰⁾ E. Leifer, J. Chem. Phys. 8 (1940) 301.
- ¹¹⁾ E. Abel, H. Schmid and M. Stein-Wein, Z. Elektrochem. 36 (1930) 692.
- ¹²⁾ Lois Nash Kauder, T. I. Taylor and W. Spindel; details of these experiments will be published elsewhere.
- ¹³⁾ Personal communication from J. S. Drury, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn.
- ¹⁴⁾ K. Cohen, J. Chem. Phys. 8 (1940) 588; K. Cohen, Theory of Isotope Separation (McGraw-Hill, New York, 1951).
- ¹⁵⁾ J. Shacter and G. A. Garrett, AECD-1940 (May 1948), Technical Information Service, U.S. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tenn.
- ¹⁶⁾ W. Spindel, J. Chem. Phys. 22 (1954) 1271.
- ¹⁷⁾ R. A. Friedel, A. G. Sharkey, Jr., J. L. Shultz and C. R. Humbert, Anal. Chem. 25 (1953) 1314.

CHAPTER 10

PREPARATION OF HIGHLY ENRICHED NITROGEN-15
BY CHEMICAL EXCHANGE OF NO WITH HNO₃⁽¹⁾

BY

T. I. TAYLOR AND W. SPINDEL

*Department of Chemistry, Columbia University,
New York City, N.Y.*

1. Introduction

Nitrogen-15 has been concentrated by a variety of methods, but those that have been used to produce relatively high concentrations are summarized in Table 1.

TABLE 1
Methods used for producing high concentrations of nitrogen-15

System	Authors	Single Stage factor, α	% N ¹⁵
NH ₃ -NH ₄ ⁺ exchange	Thode and Urey (1939) ²	1.023	72.8
N ₂ thermal diffusion	Clusius (1950) ³	—	99.8
NH ₃ -NH ₄ R ion exchange	Spedding, Powell and Svec (1955) ⁴	1.026	99.7
NO-HNO ₃ exchange	Spindel and Taylor (1956) ⁵	1.055	99.9

In addition to the methods listed, one could use other exchange systems, distillation, gaseous diffusion, gas centrifugation, electrolysis, etc. References to experiments that have been done by such methods may be found in the compilations of Chapman and Broida⁶ and Begun and Allen⁷.

Provided there is a reasonably high single stage separation factor with rapid exchange between chemical forms, the two phase chemical exchange systems for which suitable reflux reactions can be devised, are, in general, more favorable than other methods for separating the isotopes of the lighter elements. Nitrogen-15, for example, has been produced at concentrations of 60% N¹⁵ for many years by the Eastman Kodak Co.⁸ using the exchange

between ammonia gas and a solution of ammonium nitrate developed by Thode and Urey²). The nitric oxide-nitric acid exchange process described here has some advantages over the ammonia-ammonium ion system principally because of its higher single stage separation factor and favorable reflux reactions.

2. The NO-HNO₃ Exchange Process

Previous experiments on chemical exchange effects in thermal diffusion columns⁹) showed that exchange between counterflowing streams of NO and NO₂ resulted in appreciable concentration of nitrogen-15. No chemical conversion of one species to the other was required in that system since the hot wire in the centre of the thermal diffusion column dissociates the NO₂ to NO and O₂. The results of those experiments and the earlier work of Leifer¹⁰) showed that the exchange between NO and NO₂ was rapid.

When nitric acid and nitric oxide are contacted and allowed to come to equilibrium the gas phase contains NO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄, H₂O, HNO₃, and HNO₂. The liquid phase, in addition to nitric acid and water, contains NO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄ and HNO₂. Table 2 summarizes the composition of the gas phase as calculated from the results of Abel, Schmid and Stein-Wein¹¹). It was felt that a mobile equilibrium among the various species would provide a mechanism for rapid isotope exchange between the major

TABLE 2
Approximate composition of gas phase in equilibrium with nitric acid at 25° C¹¹) and atmospheric pressure expressed as mole percent

HNO ₃ moles/l at equil.	NO	NO ₂	N ₂ O ₄	H ₂ O	HNO ₃	HNO ₂
13	50.1	20.3	28.4	1.0	0.16	—
11	68.2	15.1	15.4	1.3	0.05	—
10	77.9	11.6	9.0	1.5	0.03	—
8	92.1	4.5	1.4	1.9	—	—
6	95.8	1.5	0.2	2.3	—	0.2
4	95.6	0.5	0.02	2.6	—	1.3
2	96.1	0.2	0.004	2.9	—	0.8

components, nitric oxide and nitric acid plus nitrate ion. This turned out to be true for the higher acid concentrations as will be shown later.

The major technical problem was concerned with finding a suitable

product reflux reaction. After trying a number of possible reactions, it was found that the reaction of nitric acid with sulfur dioxide gas was satisfactory. The principal reactions involved in the process finally developed are summarized in Table 3.

TABLE 3
Principal reactions in the NO-HNO₃ process

Reaction	Equations
Exchange	N ¹⁵ O + HN ¹⁴ O \rightleftharpoons N ¹⁴ O + HN ¹⁵ O,
Product reflux	3 SO ₂ + 2 HNO ₃ + 2 H ₂ O \rightarrow 3 H ₂ SO ₄ + 2 NO
	SO ₂ + 2 HNO ₃ \rightarrow H ₂ SO ₄ + 2 NO ₂
Waste reflux	2 NO + O ₂ (air \rightarrow 2 NO ₂)
	3 NO ₂ + H ₂ O \rightarrow 2 HNO ₃ + NO

3. The NO-HNO₃ Exchange System

A typical laboratory exchange system is illustrated in Fig. 1. Nitric acid is flowed in at the top of a packed column similar to a distillation column. When the nitric acid runs from the column into the product refluxer it is converted to NO with some NO₂ by reaction with sulfur dioxide. Sulfuric acid is formed in the process and flows from the bottom of the product refluxer as a by-product. The flow of sulfur dioxide was controlled automatically by means of a photoelectric relay and a by-pass solenoid valve. Other methods involving the use of thermocouples, electrode potentials and polarized electrodes have also been used for this purpose.

Because of the heat of the reaction, a means of cooling the product refluxer was provided, but even then the concentration of NO₂ in the NO was usually somewhat higher than that in equilibrium with the nitric acid in the column. The proper concentration of NO₂ was obtained by introducing a small flow of water at the top of the refluxer. This converted some of the excess NO₂ to nitric acid and NO by the reaction: 3 NO₂ + H₂O \rightarrow 2 HNO₃ + NO. Refrigeration to the appropriate temperature has also been used to control the concentration of NO₂ in the gas stream returning to the exchange column.

The oxides of nitrogen rising in the column undergo isotope exchange with the nitric acid which preferentially retains the nitrogen-15. Thus the nitrogen-15 is concentrated at the lower end of the column and may be removed either as NO plus NO₂ gas, or by means of the swinging funnel, as nitric acid.

After the gases leave the top of the column, they enter a waste refluxer where they react with oxygen (from air) and water to form nitric acid. Thus, except for the small amount of product withdrawn one can get back

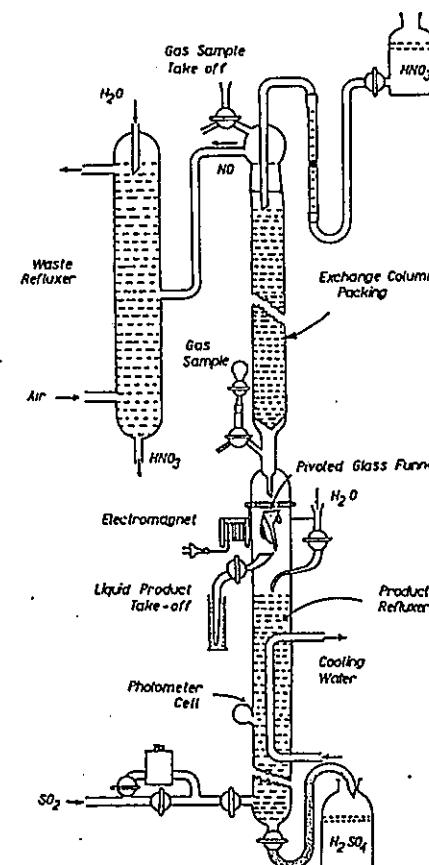


Fig. 1. Laboratory exchange column for studying the effect of operating conditions on the separation of nitrogen-15 by the exchange of nitric oxide with nitric acid.

the nitric acid used in the process. Normally, in a commercial system, part of the nitric acid from the waste refluxer would be returned to a stripping section of the exchange column.

In order to design a system for preparation of highly enriched nitrogen-15, the effect of a number of variables on the overall separation was de-

terminated in short columns similar to the one described above. These experiments along with the determination of the single stage separation factor are described in the following sections.

4. The Single Stage Separation Factor

One of the most noteworthy features of the $\text{NO}-\text{HNO}_3$ exchange system is its rather large single stage separation factor. This factor, α , is defined as the ratio of $\text{N}^{15}/\text{N}^{14}$ in the liquid phase to $\text{N}^{15}/\text{N}^{14}$ in the gas phase at equilibrium. We have determined the value of α for approximately 10 M HNO_3 in two different ways¹²). One method involved single stage batch determinations in which approximately 10 millimoles of nitric oxide (250 cc at atmospheric pressure) was equilibrated with 10 ml of 10 M nitric acid. The average of 15 runs resulted in a value of 1.055 ± 0.005 for α . This method relies on rather precise measurement of isotope abundance, quantitative conversions, and purity of samples. A second method, suggested to us by Dr. J. S. Drury¹³, is based upon the value of the steady state separation in a column as a function of the rate of withdrawal of product. Values of the number of plates in the column are calculated for assumed values of α at each withdrawal rate using the equations of Cohen¹⁴ or Shacter and Garrett¹⁵). The curves for plots of α versus the number of plates intersect at a point provided n and α are constant for the series of experiments. Although our curves did not intersect at one point, the curves crossed in a region corresponding to $\alpha = 1.053 \pm 0.005$ and $n = 48 \pm 3$. This result confirms the single stage experiments.

5. Effect of Nitric Acid Concentration on α

Some preliminary measurements gave the following results¹² for the effect of initial nitric acid concentration on the single stage separation factor: 1 M HNO_3 , $\alpha = 1.062$; 6 M HNO_3 , $\alpha = 1.060$; 10 M HNO_3 , $\alpha = 1.055$; 12 M HNO_3 , $\alpha = 1.044$. It is seen from these results that α falls off rather rapidly at concentrations of nitric acid higher than 10 moles per liter. Calculations from spectroscopic data by Spindel¹⁰) gave the following values of α for the pairs indicated: $\text{NO}-\text{NO}_3^- = 1.096$; $\text{NO}_2-\text{NO}_3^- = 1.053$; $\text{NO}-\text{NO}_2^- = 1.006$; $\text{NO}_2-\text{NO}_2^- = 0.966$; $\text{NO}-\text{NO}_2^- = 1.040$. Even in the most dilute solution of nitric acid, the value of α is lower than that calculated for an idealized system of NO and NO_3^- . As the concentration of nitric acid increases, the concentration of species other than NO and NO_3^- increases and the value of α would be expected to be lower as indicated from the lower calculated values for the other chemical species.

6. Significance of α in Producing High Concentrations of Nitrogen-15

The significance of α with respect to the production of high concentrations of nitrogen-15 is illustrated in Table 4. To produce a given mole fraction of N^{15} , the overall separation S required is the ratio of $\text{N}^{15}/\text{N}^{14}$ in the product to $\text{N}^{15}/\text{N}^{14}$ in the feed. The minimum number of stages, n , required for this separation is given by $S = \alpha^n$, where α is the single stage separation factor. For production, one usually builds a column with 1.5 to 2 times this minimum number of theoretical plates. Thus, to produce 99.9% nitrogen-15, one would use 1262 plates for $\alpha = 1.02$ and 512 plates for $\alpha = 1.05$.

In a system without a stripping section such as the one used here, the minimum feed to product ratio can be calculated from the equation

$$\frac{L_{(\text{min.})}}{P} = \frac{N_p [1 + (\alpha - 1)(1 - N_0)] - N_0}{(\alpha - 1) \cdot N_0 (1 - N_0)}$$

where L is the minimum feed rate in moles per day of nitric acid, P is the withdrawal rate of products in moles of nitric acid per day, N_0 is the mole fraction of N^{15} in the feed material, N_p is the mole fraction of N^{15} in the product, and α is the single stage separation factor. To produce a product with 99.9% nitrogen-15 from nitric acid with the normal abundance of 0.365% nitrogen-15 by a process in which α is 1.05, the feed rate required is at least 5750 times the product withdrawal rate. This is for maximum transport which would be obtained only with an infinite number of plates.

TABLE 4
Number of stages and feed to product ratios required for high concentrations of nitrogen-15

% N^{15}	Overall separation	Single stage factor, α	Minimum No. of stages	Minimum feed to product ratio
60	400	1.02	303	8360
		1.05	123	3440
95	5100	1.02	431	13270
		1.05	175	5460
99.9	269000	1.02	631	13960
		1.05	256	5750

To take care of the fact that only twice the minimum number of plates is used and to provide for losses, fluctuations, etc., the flow is usually made 20 to 40% greater than the calculated minimum. That is, the L/P

ratio would be about 6900, or the fraction of the flow withdrawn would be about 145 parts per million for $\alpha = 1.05$ and about 60 parts per million for $\alpha = 1.02$. Consequently, if the sulfuric acid from the product refluxer contains as much as 10 parts per million of nitric acid, or if an equivalent quantity of a non-exchangeable gas species is produced in the refluxer, this would represent an appreciable fraction of the product. The higher the value of α , the less significant these losses will be. The effect of such losses is also considerably reduced if a two or three section tapered cascade is used instead of a single long column.

Another important consideration with respect to the magnitude of α is that the size of a system to produce a given quantity of material, at a specified concentration, other things being equal, varies about as $1/(\alpha - 1)^2$. This is because both the length of column, and the flow (or area) for the required transport depend on $1/(\alpha - 1)$. Thus, a plant about 6 times larger would be required if $(\alpha - 1)$ is 0.02 as compared to an $(\alpha - 1)$ of 0.05.

7. Rate of Exchange and Effect of Concentration on Overall Separation

The importance of a large value of α has been stressed in the previous section. Since α is larger for the lower concentrations of nitric acid, it might be concluded that the more dilute solutions would have some advantage. Aside from the fact that larger volumes of material must be passed through the columns to obtain the required flow in moles of nitric acid, two other difficulties arise. Both are concerned with rates of reactions. In the first place, the rate of exchange becomes slow at the lower acid concentrations, and in the second place, the reflux reaction between sulfur dioxide and nitric acid occurs more rapidly and completely at the higher acidities. As mentioned previously, species of lower oxidation states undoubtedly serve as intermediates in the exchange of N^{15} between the principal species, NO and HNO_3 plus NO_3^- . Although our studies are not complete on the kinetics and mechanism of the exchange, our results on the overall separation in small columns as a function of the acid concentration gives the information needed for selecting a suitable molarity for the nitric acid.

The results of a number of experiments with a column 1.0 cm inside diameter, and 1.5 metres long, packed with 1/16 in. glass helices are summarized in Table 5. Apparently, there is a rather broad maximum in the region from 8 to 10 M HNO_3 . Our results indicated that about 10 M HNO_3 gave the optimum separation. This may vary with temperature, pressure, flow rate and type of packing, depending on whether exchange rate or

TABLE 5
Effect of nitric acid concentration on overall separation at atmospheric pressure and room temperature

Nitric acid concentration	Flow rate ml/cm ² -min	Overall separation
2 M	0.8	1.2
6 M	1.3	2.0
8 M	1.5	2.3
10 M	1.5	2.5
12 M	1.3	1.7-2.0 ¹⁾

¹⁾ The overall separation was sensitive to the concentration of NO_2 in the NO from the refluxer.

film diffusion is rate controlling. Obviously, even though α is higher for 2 M HNO_3 , it is not a satisfactory concentration because of the slow exchange rate. At concentrations above 10 M HNO_3 , the concentration of NO_2 becomes high and since the α for its exchange with nitric acid is lower than that for NO with nitric acid, the overall value of α for the system is lower.¹⁾ Consequently, even though the rate of exchange may be very rapid, the overall separation decreases at high acid concentrations because of this lower value for α . Since the concentration of the various species changes with temperature and pressure, the optimum concentration may vary with the operating conditions.

8. Effect of Pressure and Flow Rate

For the production of a high concentration of nitrogen-15 it is desirable to operate at the highest flow rate that will give the required overall separation in the available length of column. At high flow rates, the stage height may become excessive. However, the higher the flow rate, the shorter will be the time required to reach a steady state and the greater will be the transport of enriched material in a given column.

The results of experiments on the effect of flow rate at 1.0 and 1.9 atmospheres are given in Table 6. Examination of these results shows that doubling the flow rate at 1.0 atmosphere pressure has a significant effect on the overall separation. At two atmospheres pressure, the reduction in overall separation at increased flow rate was considerably less. The lower linear gas velocity at the higher pressures may account for the increased operating efficiency.

TABLE 6
Effect of pressure and flow rate for 10 M HNO₃ at room temperature

Column ¹⁾	Approx. flow rate ml/cm ² -min	1.0 Atmosphere		1.9 Atmospheres	
		S	HETP, cm	S	HETP, cm
2	1.6	2.6	8.4	2.4	9.2
2	3.2	1.9	12.5	2.4	9.2
2	1.5	2.4	9.2	—	—
3	3.3	—	—	2.7	8.1
10	1.6	6.2	2.8	5.6	3.0
	3.0	3.6	4.0	3.9	3.7
	5.0	2.4	5.8	3.1	4.5

¹⁾ Column 2: 1.0 cm I.D.; 150 cm long; packing 1/16" glass helices. Column 3: Same as 2 but repacked. Column 10: 2.5 cm I.D.; 95 cm long; packing #3013 stainless steel "Helipak", 0.050" x 0.100" x 0.100", rectangular spiral wound sections, obtained from Podbielniak Corp., Chicago, Ill.

The improved performance at the higher pressure is significant for large scale operation because it would allow greater flow rates with a smaller increase in the length of the column. It is also known that the waste refluxer for the reaction of oxygen (of the air) and water with the oxides of nitrogen would operate more efficiently at the higher pressures. Operation at higher pressures probably would not be justified for laboratory preparation of high concentrations of nitrogen-15 because of the increase in complexity of the operation and control of the columns.

9. Effect of Temperature on Overall Separation

When the temperature of column 10 (Table 6) was decreased from 25°C to -10°C, the overall separation decreased from about 6.2 to 4.2 for a flow of 1.6 ml/cm²-min of 10 M HNO₃. Increasing the temperature of the column from 25°C to 60°C also reduced the overall separation from about 6.2 to 4.4. A second series of experiments was carried out to determine more closely the optimum temperature. The same column was used but it was provided with metering pumps and fully automatic controls. Care was also taken to maintain the concentration of NO₂ in the gases returning to the exchange column nearly the same as that in the gases leaving the top of the column. The overall separations were as follows: 3.2 at 10°C; 6.9 at 25°C; 7.4 at 45°C; 6.3 at 70°C.

Apparently there is an optimum in the temperature between 25°C and 50°C. This optimum temperature may depend upon the pressure, acid concentration, flow rate, type of column packing, etc. These dependencies will probably also differ for conditions under which HETP is limited by diffusion or by exchange rate. At the higher temperatures, the concentration of the NO₂ in the gases from the refluxer has a significant effect.

An increase in temperature not only increases the concentration of NO₂ in the gas phase but also reduces the value of α . Thus, even though the rate of exchange is more rapid at 70°C, the decrease in α results in a lower overall separation. At the lower temperatures, the value of α would be expected to be higher than at 25°C, but apparently the rate of exchange is lower, or the composition of the liquid phase is unfavorable.

It can be seen that the determination of the optimum conditions of operation would involve a rather extended series of experiments on the effect of pressure, temperature and flow rate for several acid concentrations. However, the limited number of experiments reported here indicates that the use of 8 M to 10 M HNO₃ at room temperatures and atmospheric pressure with flow rates of the order of 1.5 to 2.0 ml/cm²-min would be satisfactory conditions of operation.

10. Effect of Column Packing

Because a rather large number of theoretical stages are required to increase the concentration of nitrogen-15 from 0.365% to 99.9%, it is important to use a packing that results in a small value for the height equivalent to a theoretical plate (HETP). The characteristics of several types of columns and packings are summarized in Table 7. These values were calculated from the overall separations obtained with 10 M HNO₃ and a value of 1.055 for α . The value of HETP decreased from 10.8 to 8.8 cm when the packing in a 1.0 cm diameter column was changed from 3/32 in. to 1/16 in. diameter glass helices. Increasing the column diameter from 1.0 to 2.3 cm caused no appreciable change in HETP. A marked decrease in HETP from 8.7 to 2.8 cm resulted when "Helipak" #3013 stainless steel wire packing (Podbielniak, Inc., Chicago, Ill.) was used instead of 1/16 in. glass helices. The rate of dissolution of the stainless steel packing was found to be very low in the nitric acid solutions. Plate efficiencies for the bubble plate and bubble cap columns were 36 and 31%, respectively. One difficulty with the bubble plate column was that it operated satisfactorily only for a relatively narrow range of flow rates.

Except for the bubble cap column, the hold-up per cc during operation was about the same within $\pm 20\%$ for all of the columns listed in Table 7.

TABLE 7
Effect of column packing

Column	Diameter and length, cm	Packing	HETP cm	Hold-up ml/cc	Flow ml/cm ² . min	Processing time per HETP, min
1	1.0 × 150	3/32" glass helices	10.8	0.16	0.75	2.3
2	1.0 × 150	1/16" glass helices	8.8	0.14	1.6	0.77
4	2.3 × 200	1/16" glass helices	8.7	0.13	1.4	0.81
5	1.6 × 110	41 bubble plates	7.4	0.12	2.2	0.40
6	2.3 × 25	11 bubble caps	7.4	0.23	1.6	1.1
7	2.5 × 160	#3013 "Helipak"	3.4	0.11	1.6	0.23
10	25 × 95	#3013 "Helipak"	2.8	0.11	1.6	0.19

These values along with the HETP values and flow rates were used to calculate the processing time per stage. The stainless steel "Helipak" packing was the best of the packings tried and its use would be advantageous both with respect to length of column and time to build up the nitrogen-15 concentration.

11. Effect of Losses from the Product Refluxer

The significance of losses from the product refluxer has been mentioned previously. The magnitude of the losses resulting from incomplete conversion of nitric and nitrous acid could readily be determined by analyzing the effluent sulfuric acid. Aluminium or Devarda's alloy was used with sodium hydroxide solution in a modified Kjeldahl apparatus to reduce the nitrate and nitrite to ammonia for a colorimetric determination with Nessler's reagent. Before starting the reduction, it was found necessary to oxidize the sulfur dioxide and sulfurous acid with potassium permanganate to obtain reproducible results. A total of ten samples from three different columns were analyzed, giving an average of 8.3 micrograms of HNO_3 per ml of effluent sulfuric acid.

Most of the product refluxers used in our experiments required the addition of water at a rate of about 15 to 25 % of the flow of nitric acid. This depended, among other things, on the diameter and length of the refluxer, the extent of cooling, total flow rate, etc. By means of a spectrophotometer, the concentration of NO_2 in the gas returning to the column was determined and it could readily be adjusted to the proper value by varying the flow of auxiliary water to the product refluxer. Under the usual operating conditions with 10 M HNO_3 , about 1.3 to 1.6 ml of 8.5 to 9.5 M H_2SO_4 was obtained per ml of nitric acid fed to the column. Consequently, the loss of nitric acid in the sulfuric acid was about 19 parts per million of the nitric acid flow from the exchange column into the refluxer. This is sufficiently low for production of high concentration nitrogen-15, especially in a two or three section cascade as will be shown in a later section.

Besides the losses referred to above, the production in the refluxer of a non-exchangeable gas such as N_2 or N_2O would constitute a loss of enriched material. Analysis of the waste stream for traces of such gases was not undertaken. What is known of the chemistry of the reflux reaction did not indicate the formation of significant quantities of these gases. If excessive losses from any source occur in the refluxer, it would become evident in attempts to produce highly enriched material. Not only would the time to reach a steady state be excessively long, but it would not be possible to withdraw enriched material at the calculated transport rate for the system.

12. Cascade for Preparation of Highly Concentrated Nitrogen-15

The information obtained from the experiments on short columns enabled us to design a two section cascade system for preparation of highly enriched nitrogen-15. A general description of the system has been given previously⁵) so that only a brief review of its general features will be given here.

A block diagram illustrating the system is shown in Fig. 2. The exchange column in section I was a pyrex glass tube 2.5 cm inside diameter and 5.2 meters long. It was packed with stainless steel "Helipak" # 3013 and provided with a product refluxer as illustrated in Fig. 3. The column for section II was 0.9 cm inside diameter and 550 cm long, but was packed with a smaller size stainless steel packing, "Helipak" # 3012. Since the flow is smaller in this section, a smaller product refluxer could be used. It was similar to that illustrated in Fig. 1 but 4.1 cm in diameter and 130 cm long packed with 3/32 in. glass helices. The optical cell was also placed

nearer the top of the refluxer to reduce the hold-up of enriched material.

Initially the first exchange column was completely flooded with 10 M HNO₃ and then allowed to drain with the flow adjusted to the operating

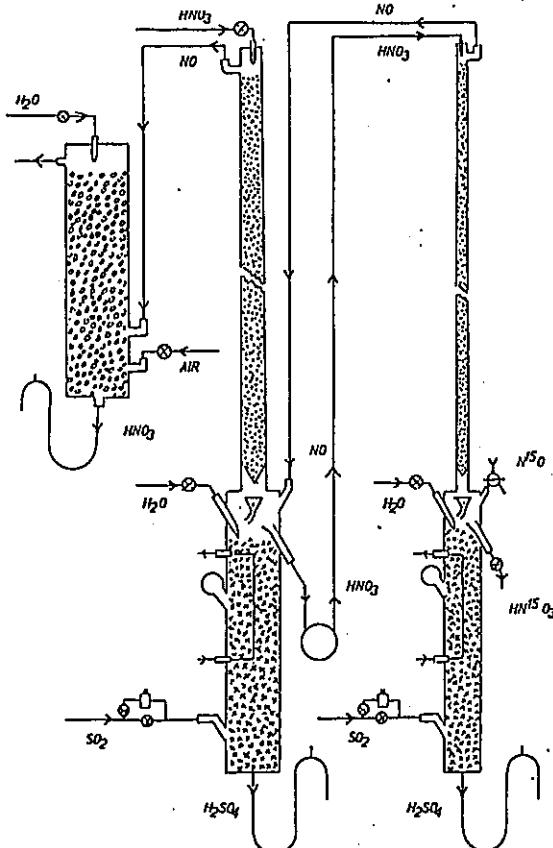


Fig. 2. Schematic diagram of a two section cascade for preparation of highly enriched nitrogen-15.

rate of 15 ml/min. Sulfur dioxide was passed into the lower end of the refluxer at the rate required to maintain the boundary at the level of the photometer cell. This flow was reduced by about 10% and a needle valve in series with the solenoid valve was then opened to increase this flow by about 20%. Thus, during automatic operation, the photoelectric relay opened and closed the solenoid valve causing the reaction zone to

rise and fall slowly with a median position at the photometer cell. A small flow of water, 15 to 25% of the nitric acid flow, was run in at the top of the product refluxer to maintain the appropriate ratio of NO₂ to NO in the gas stream returning to the exchange column.

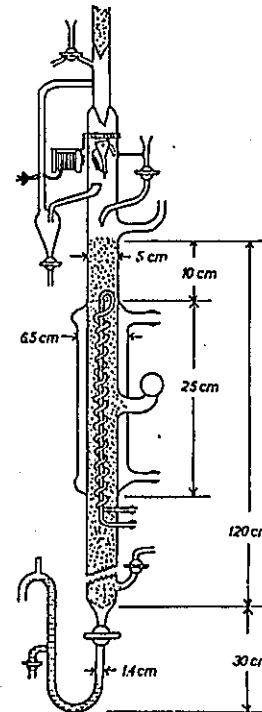


Fig. 3. Product refluxer for the first section of the cascade.

After three days of operation when the concentration of nitrogen-15 had increased to 6.75%, the swinging funnel was operated with a cycle timer to divert about 4% of the liquid flow to a microbellows pump. This pump transferred the partially enriched material to the top of the smaller column. The sulfur dioxide flow to the product refluxer for this column was adjusted in the same way as described for the first section. A gas return line allowed the oxides of nitrogen from the small column to return to the bottom of the larger column. No enriched product except the gas samples needed for isotope analysis was withdrawn during the next eleven days of operation.

Fig. 4 shows the progress of the separation with time. The lower curve gives the concentration of nitrogen-15 at the bottom of section I and the upper one refers to the concentration of nitrogen-15 obtained from section

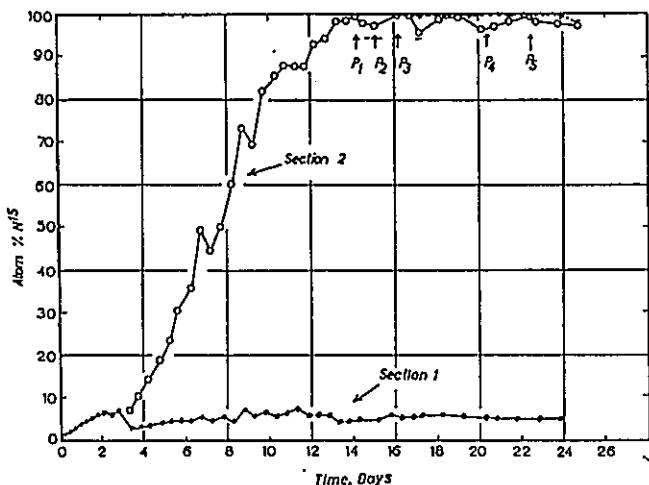


Fig. 4. Concentration of nitrogen-15 in gas samples taken during the operation of the two section cascade. The points connected by the dotted line show the concentration of nitrogen-15 in the liquid products withdrawn from the system as listed in Table 8.

TABLE 8
Highly concentrated nitrogen-15 withdrawn from the two-section cascade

Product	Period h	Volume of gas or of $\sim 9 M HNO_3$	g of N^{15}	% N^{15}
P_1 gas #1	20	90 cc-atm	0.06	99.8
P_2 gas #2	23	207 cc-atm	0.13	99.8
liq. #1	—	0.3 ml	0.04	—
P_3 liq. #2	23	1.8 ml	0.24	99.7
liq. #3	48	3.7 ml	0.50	99.8
liq. #4	44	3.7 ml	0.50	99.9
P_4 liq. #5	44	7.4 ml	0.99	99.8
P_5 liq. #6	24	7.6 ml	1.02	99.7
liq. #7	26	8.1 ml	1.09	99.5
liq. #8	22.5	7.5 ml	0.99	97.5

II. After a total time of fourteen days, a concentration of 99.8% was attained and product was withdrawn as indicated on Fig. 4 and tabulated in Table 8. The large irregularity in the upper curve after seven and nine days resulted primarily from difficulties in pumping.

Some of the variations in the nitrogen-15 abundance indicated on the curve after steady state had been reached were traced to a memory effect in the equipment used to convert the gas samples to nitrogen for mass spectrometer analysis. This conversion was accomplished by passing the oxides of nitrogen through a mixture of copper oxide and reduced copper oxide wire at 700 to 750°C. During the operation of the columns the same reduction system was used for both high and low concentrations of nitrogen-15. Subsequent analyses of the liquid products in equipment used for high concentrations only, confirmed the memory effect.

The following procedure was used to analyze the liquid samples, the results of which are summarized in Table 8. The nitric acid in the samples was first reduced to nitric oxide by reaction with mercury and sulfuric acid as described by Friedel *et al.*¹⁷. This nitric oxide was then passed through a quartz tube containing the heated copper-copper oxide mixture followed by a small U-tube trap immersed in liquid nitrogen. The copper reduced the nitric oxide to nitrogen and the cupric oxide served to oxidize traces of carbon monoxide in the sample to carbon dioxide. Any carbon dioxide formed as well as traces of unreduced nitric oxide were removed by condensation in the trap.

A mass spectrometer record of the nitrogen obtained from liquid product P_3 -#4 is shown in Fig. 5 along with a record of the background peaks and a spectrum of tank nitrogen. The mass spectrum of tank nitrogen shows the height of the 29 peak ($N^{14} N^{15}$) corresponding to 0.365% nitrogen-15 in ordinary nitrogen. Comparison of the 28 peak in the background spectrum with the 28 peak in the sample indicates that the sample contains no significant quantity of N_2^{14} molecules. Visual examination of the records shows that the height of the 29 peak ($N^{14} N^{15}$) in the enriched sample is about one quarter of the height of the 29 peak from the same pressure of tank nitrogen. Thus, the percent of nitrogen-14 in our sample is about one quarter of the percent of nitrogen-15 in ordinary nitrogen or about 0.1%. That is, the product is 99.9% nitrogen-15. More precise calculations show it to be $99.91 \pm 0.02\%$.

A total of about 5.5 g of nitrogen-15 was withdrawn during a period of 11.5 days corresponding to an average of about 0.48 grams per day. The maximum transport calculated for a feed rate of 15 ml per min of 10 M HNO_3 and a value of α of 1.055 is 0.62 g of nitrogen-15 per day. The actual transport should be somewhat less than this, perhaps by about

20%, because the maximum transport is obtained only in a system with an infinite number of stages. On this basis, the expected transport would be about 0.50 g of nitrogen-15 per day rather than the 0.48 g per day found.

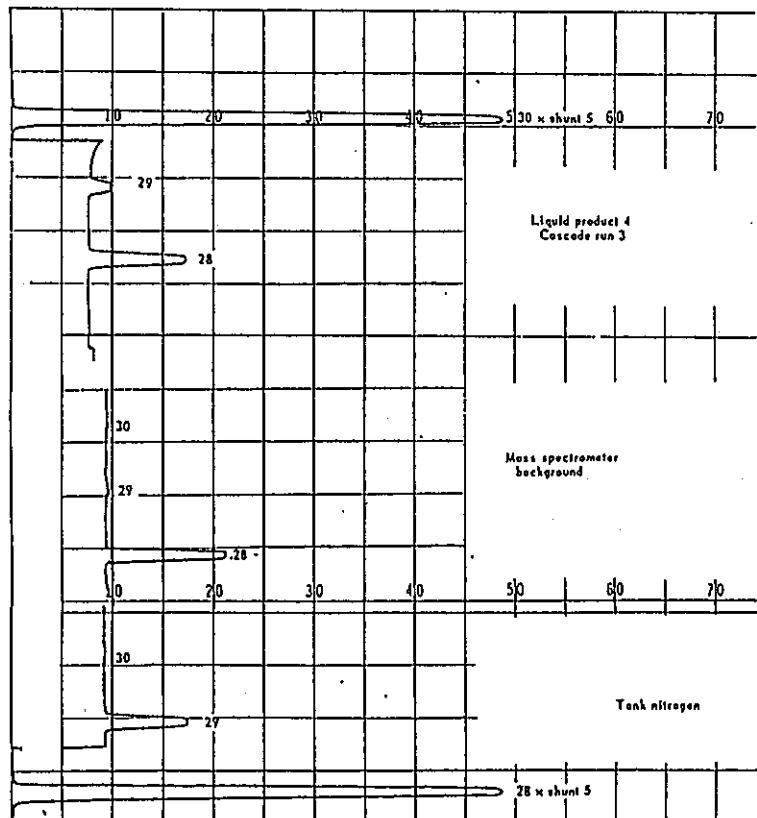


Fig. 5. Mass spectrometer record of the highly enriched nitrogen-15 obtained from the two section cascade.

The above comparison of the experimental with the expected transport shows that losses in the product refluxer from all possible sources are not large. It was already known from the experiments quoted in a previous section that the losses of nitric acid in the sulfuric acid would not be serious. For example, a loss of 19 parts per million of the nitric acid flow in our two section cascade would amount to a loss of about 1.0% based

on a transport of 0.48 g of nitrogen-15 per day. If a single long column had been used, the percentage loss would have been 12.8% for the same transport. Although even this is not large, a single long column would be impractical because of the long time required to reach a steady state.

13. Application to Large Scale Production

The low thermal neutron absorption cross section of nitrogen-15 (2.4×10^{-5} barns) as compared to ordinary nitrogen (1.8 barns) may make highly enriched nitrogen-15 of interest for nuclear reactor applications. Although considerable engineering development would be required, the method described here apparently possesses most of the requirements of a practical chemical exchange system: a reasonably large single stage enrichment factor, a reasonably rapid exchange rate, a means of multiplying the single stage effect with sufficiently high throughput and low hold-up, and relatively simple systems for providing reflux at both ends of the exchange column which use inexpensive chemicals and produce marketable by-products.

Acknowledgments

The authors gratefully acknowledge the assistance at various times of the members of the laboratory staff whose aid made the experiments possible, including: Dr. Lois Nash Kauder; Rudolph H. Froeder; Gleb Gashurov; Henry H. Kramer; Ronald Kent; C. David Miller; Heiko H. Ohlenbusch; Julia Barton, and Maria E. Beyerle. The assistance of Vincent G. Saltamach in maintaining and operating the mass spectrometers, and of Karl Schumann in constructing the columns and product refluxers contributed considerably to the progress of the work.

References

- ¹) The work described here was supported in part by a grant from the U.S. Atomic Energy Commission, Contract AT (30-1) 755.
- ²) H. G. Thode and H. C. Urey, *J. Chem. Phys.* 7 (1939) 34.
- ³) K. Clusius, *Helv. Chim. Acta* 33 (1950) 2134.
- ⁴) F. H. Spedding, J. E. Powell and H. J. Svec, *J. Am. Chem. Soc.* 77 (1955) 1393 and personal communication from H. J. Svec, (Dec. 17, 1956).
- ⁵) W. Spindel and T. I. Taylor, *J. Chem. Phys.* 23 (1955) 981; 24 (1956) 626; *Trans. N.Y. Acad. Sci.* 19 (1956) 3.
- ⁶) Margaret W. Chapman and H. P. Broida, *Bibliography on Nitrogen-15* (National Bureau of Standards Circular 575, Oct. 1, 1956), Superintendent of Documents, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C.
- ⁷) G. M. Begun and R. E. Allen, *Isotope Separation and Isotope Exchange, A Bibliography of Unclassified Literature* (U.S. Atomic Energy Commission,

- TID-3036 (Revised), June 1954, Office of Technical Services, Department of Commerce, Washington, D.C.
- ¹⁰) D. W. Stewart, Nucleonics 9, No. 2 (1947) 25. The NO-HNO₃ method described in this report is now being used by Isonet Corp., Palisades Park, N. J. to produce 95% nitrogen-15. The method has also been used to produce better than 99% nitrogen-15 by J. S. Drury, G. M. Begun *et al.*, of the Stable Isotope Separation Group at the Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn.
 - ¹¹) T. I. Taylor and W. Spindel, J. Chem. Phys. 16 (1948) 635; W. Spindel and T. I. Taylor, J. Chem. Phys. 23 (1955) 1318.
 - ¹²) E. Leiser, J. Chem. Phys. 8 (1940) 301.
 - ¹³) E. Abel, H. Schmid and M. Stein-Wein, Z. Elektrochem. 36 (1930) 692.
 - ¹⁴) Lois Nash Kauder, T. I. Taylor and W. Spindel; details of these experiments will be published elsewhere.
 - ¹⁵) Personal communication from J. S. Drury, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn.
 - ¹⁶) K. Cohen, J. Chem. Phys. 8 (1940) 588; K. Cohen, Theory of Isotope Separation (McGraw-Hill, New York, 1951).
 - ¹⁷) J. Shacter and G. A. Garrett, AECD-1940 (May 1948), Technical Information Service, U.S. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tenn.
 - ¹⁸) W. Spindel, J. Chem. Phys. 22 (1954) 1271.
 - ¹⁹) R. A. Friedel, A. G. Sharkey, Jr., J. L. Shultz and C. R. Humbert, Anal. Chem. 25 (1953) 1314.

Discussions

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Name of questioner: E. GLURCKAUF

Question: How is the overall equilibrium affected by the presence of NO₂ in the system?

Answer by Taylor: The NO₂ in the system is important in the kinetics of the exchange because at low nitric acid concentrations the rate is rather low and at these low concentrations the concentration of NO₂ in the gas phase is low. At higher acid concentrations, say 12 molar, the NO₂ concentration increases rather markedly and the single stage separation factor also decreases.

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Name of questioner: G. A. GARRETT

Comment: Dr. Taylor mentioned the advantages of using 10 molar nitric acid and also using SO₂ from sulphur burned in O₂ rather than in air. In our cost estimates we penalized the use of 7 molar nitric acid for the cost of concentrating the resulting sulfuric acid, and also attempted to make adequate cost penalties for the excess nitrogen in the SO₂ obtained from burning SO₂ in air.

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Remark of K. Clusius: Just when Dr. Taylor's first paper appeared Mr. Vecchi and I were carrying out some experiments on equilibria where nitrosylsulphuric acid was involved. We found exchange factors as high as 1.10.

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Name of questioner: J. BIGELEISEN

Question: I would like to ask Prof. Clusius about the experiment he mentioned on nitrosyl sulphuric acid.

Answer by K. Clusius: We took a concentrated solution of labelled sodium nitrite and added sulphuric acid diluted with water 1:1. After shaking the mixture for a certain time about half the amount of the present nitrogen was removed as nitric oxide and analyzed with the rest of the nitrogen in the liquid phase. This gave the said factor 1.10.

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Name of questioner: T. F. JOHNS

Question: Has Dr. Taylor done only one experiment at temperatures above room temperature?

Answer: Yes, a series of experiments for only one acid concentration and one flow rate.

Johns: We have done some similar experiments at Harwell (and I must say at this point that we have found this a most attractive process) and we got appreciably better separations at about 60° C. Presumably this is because the exchange rate is increased.

Name of lecturer: T. I. TAYLOR and W. SPINDEL

Name of questioner: H. LONDON

Remark: The improvement of the process with increasing temperature seems to indicate that in the particular contacting system used the rate determining process is the diffusion in the liquid phase. This is understandable because in a solution the mass diffusion of the solute is smaller than in a pure liquid. It will be worthwhile in an industrial plant based on this process to use a type of column in which the mixing in the liquid phase is good.

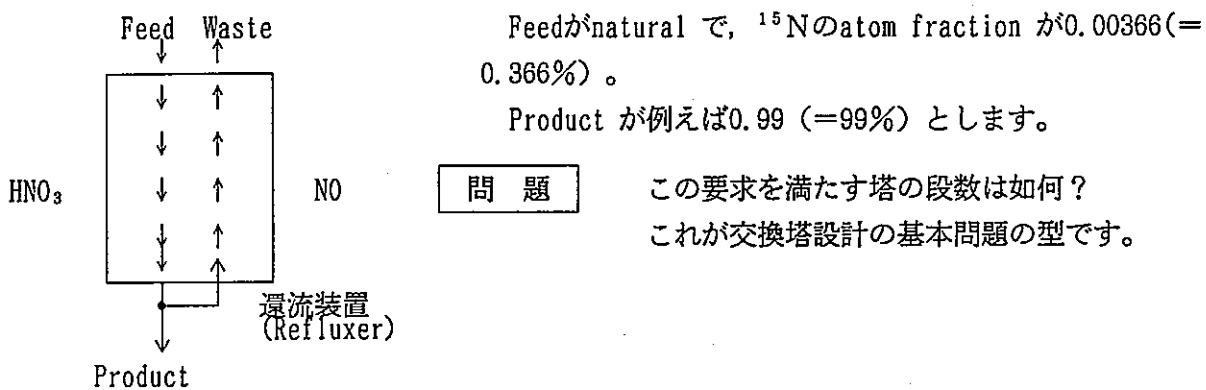
付録 2

NITROX法を理解するための平易な解説

Report No.2でNitrox法の2段カスケード理論を説明しているが、これを理解するには化学工学、同位体分離工学の基礎知識が必要であり、プルトニウム燃料開発を担当している者にとっては非常に難解である。そのため、本委託研究の動燃側担当より石田教授に種々の質問をしたところ、教授から懇切丁寧なる回答をいただいた。回答はNitrox法を理解する上で格好な解説書にもなるものであるため、以下に記載する。

2-section systemによる ^{15}N 濃縮度の分析手法の要点は、Report No.2の2-1ページ～2-11ページに纏めておきました。（そこに掲げた式のなかには、本コスト評価によって開発した新しい式も沢山あります。）

これらの式を理解するために、まず、2-sectionの濃縮系のかわりに、1-section(塔一つ)だけで濃縮する場合を考えてみます。



*硝酸中の ^{15}N の濃縮度(atom fraction)をy、一酸化窒素中の ^{15}N の濃縮度(atom fraction)をxとする。

*塔の上端では(y, x)ともに低い値。

下端に向うに従って(y, x)ともに上昇する。

*（仮想の）段番号を、上端がNo.1、次がNo.2……途中にNo.iがあって、下端がNo.nとする。

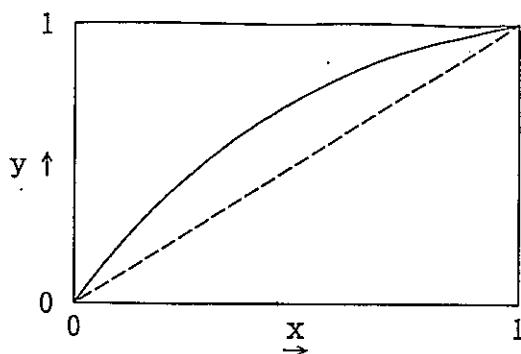
*ここで、i番目の段について平衡状態と物質収支を考える。

*平衡関係：

$$\alpha = \frac{\left(\frac{y_i}{1-y_i}\right)}{\left(\frac{x_i}{1-x_i}\right)} = \frac{\left(\frac{y}{1-y}\right)}{\left(\frac{x}{1-x}\right)}$$

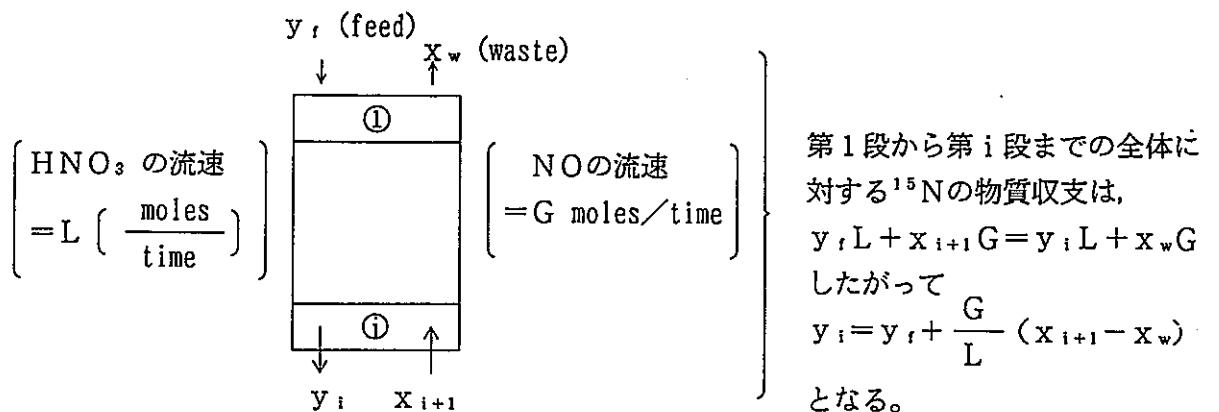
(α が濃縮度に無関係と考える)

この式をyについて解き、xの関数としてプロットすると、



このように上に凸となる。 $(\because \alpha > 1)$
これを“equilibrium line”と呼ぶ。

*物質収支 (material balance)

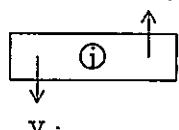


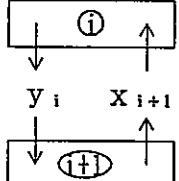
この y_i は、 x_{i+1} の一次関数である。

直線の勾配は

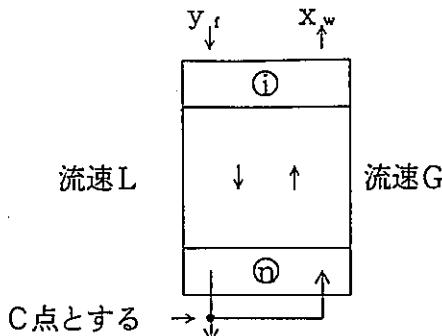
$$\text{Slope} = \frac{G}{L} \quad (\text{夫々の流速が一定だから Slope = constant})$$

この直線を“operating line”，略してop-lineと呼ぶ。

*Equil. lineは、  任意の段からのoutput stream中の ^{15}N 濃縮度の関係をあらわし

op-lineは  i 段と、その次の $(i+1)$ 段との界面上における硝酸中の ^{15}N の濃度 (y_i) とNO中の ^{15}N の濃度 (x_{i+1}) との関係を示す。

*ここで塔全体について、equil lineとop-lineを考える。

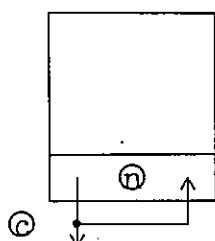


$y_p \leftarrow$ Productの流速(生産速度)は、P moles/timeとする。

C点における ^{15}N の濃縮度は y_p 。

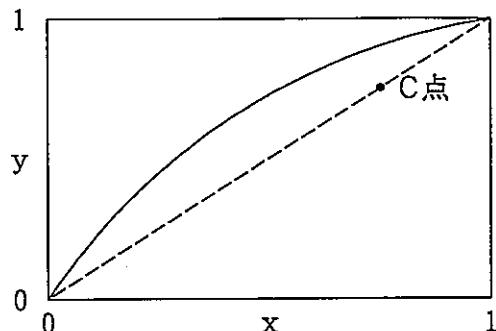
y_p はProductとしての硝酸中の ^{15}N 濃縮度であると同時に、この硝酸を(還流器中の化学反応により)還元して作られた一酸化窒素中の ^{15}N の濃縮度でもある。何故ならば y_p のレベルまで濃縮された ^{15}N 以外の窒素は、還流器中に入ってこないからである。

*従って、



第n段に上ってくるNO中の ^{15}N の濃縮度は y_p である。

したがって、op-lineの上端は、45°の対角線上にある。

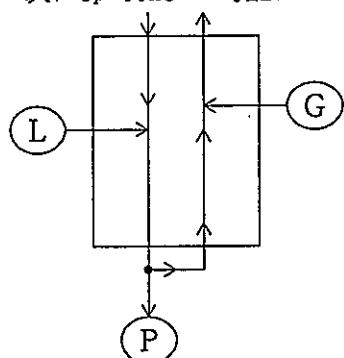


Report No.2では、この点をP点と呼んでいる。

例えば、

[本論のC点は、Report 2, page 2のFig. 3] 中のP点に相当する。

*次にop-lineの勾配について考察する。



$$\text{Slope} = \frac{G}{L}$$

$$\text{ただし}, \quad L = P + G$$

したがって、

$$\text{Slope} = \frac{G}{P+G}$$

$\frac{G}{P} \equiv R$ (=reflux ratio) とおくと

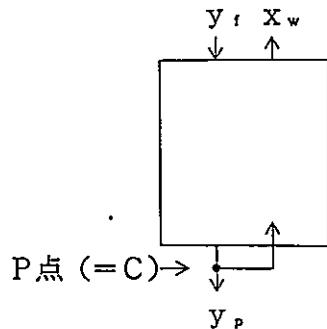
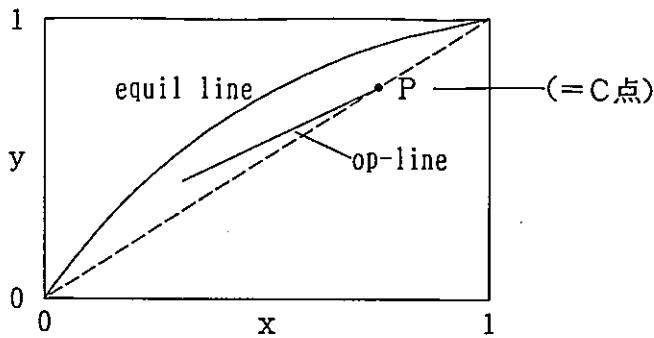
$$\text{Slope} = \frac{R}{1+R}$$

したがって

$$\text{Slope} < 1$$

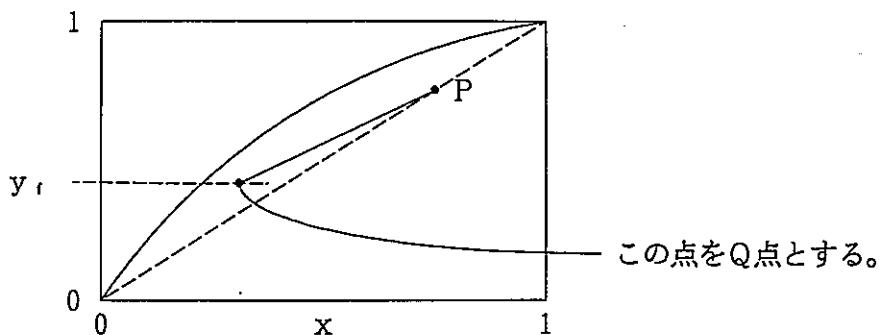
となり、op-lineは45°の対角線の上方に位置する。

*これまでの諸点をまとめると、



設問：op-line の下端は何処か。

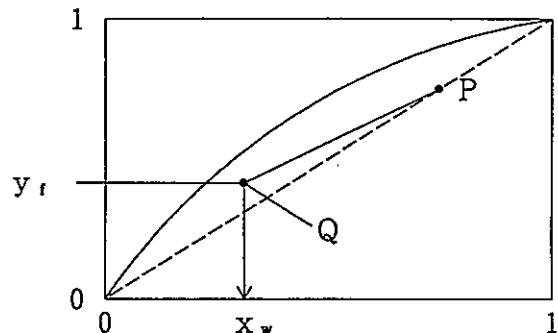
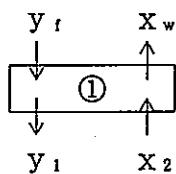
答：op-line が $y = y_t$ の線に交わる所。



これが基本の図型です。

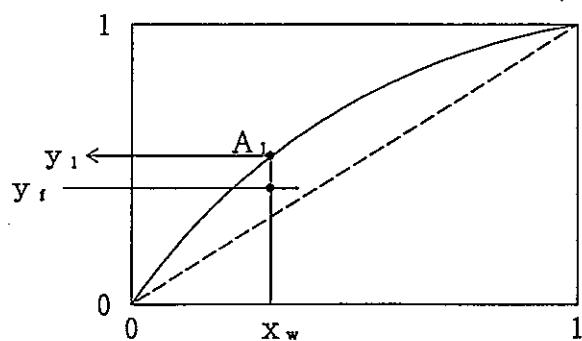
この図形をもとに、 ^{15}N の濃縮度が第1段から第2段、第2段から第3段と上昇して行く現象を追跡してみる。

*まず第1段：① x_w と y_t とは、同じ水平界面上にあるから、 (y_t, x_w) は op-line 上の一点である。



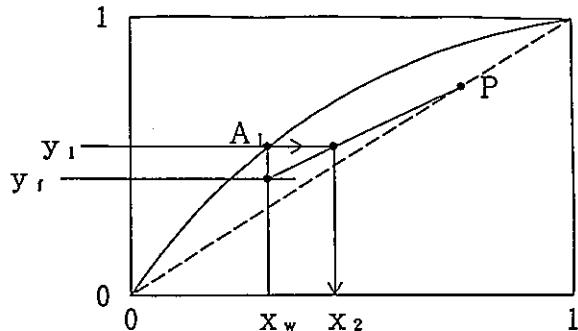
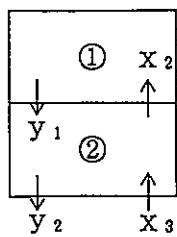
⑤ y_t の流れは、 x_w の流れと会合し、平衡に達する。

y_1 と x_w とは相互に平衡の関係にあり、したがって、点 (y_1, x_w) は equil line 上の一点である。したがって、

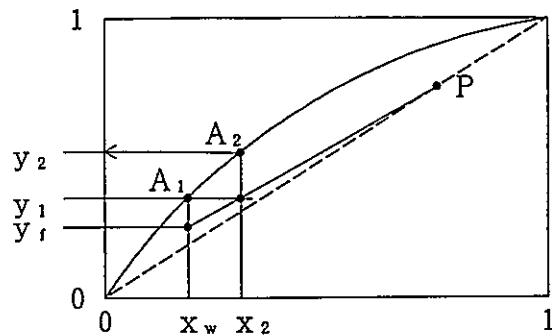


点 A_1 は (y_1, x_w) 。

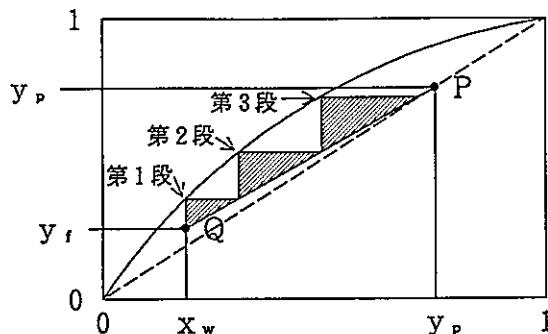
*次に第2段: ② y_1 と x_2 とは同じ水平界面上にあるから、 (y_1, x_2) はop-line 上の一点である。



⑤ y_1 の流れと、 x_3 の流れとが合流し、平衡に達して (y_1, x_2) となる。
したがって、点 (y_2, x_2) は、equil line上的一点である。



*以上の手法を繰り返すと



となり、この段階がP点に達するまで積み重ねて行けば、 y_f (=feed) から y_p (=product) に達するのに要する段数が得られる。以上的方法は、化学工学上McCabe-Thieleの図形として知られている。

我々の報告には、この図形を数式化したものを用いた。

付 記

y_f と y_p とが与えられた場合、

- ② 勾配が小さいほど、したがってReflux ratioが小さいほど必要段数が大きくなることを McCabe-Thiele図によりたしかめて下さい。したがって、
- ① Product rate (=P moles/time) を大きくしようとするとReflux ratioが小になり、必要段数が増大する。

⑩ Reflux ratioには下限がある。すなわち、Q点がequil line上に乗ると、必要段数が無限大になる。

$n \rightarrow \infty$ は、塔高が無限大になることを意味し、この状態に相当するreflux ratioを“minimum reflux ratio”と呼ぶ。

*我々の報告書では、

$$\text{Reflux ratio (R)} = R_{\min} \times (\text{factor})$$

factor > 1 例えば、1.05, 1.10等々

と置いて、Rが R_{\min} に近づくことを避けた。

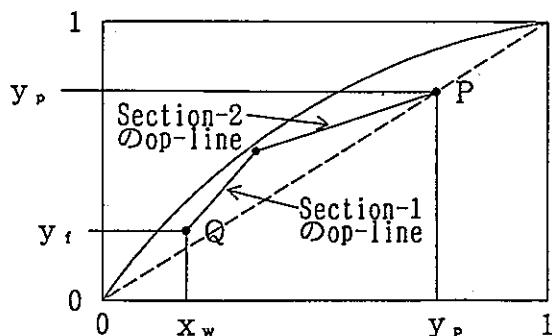
⑪ α が1に近づくと、equil lineが対角線に接近し、したがって、

① R_{\min} が増大するから、Pを大きくとれない。

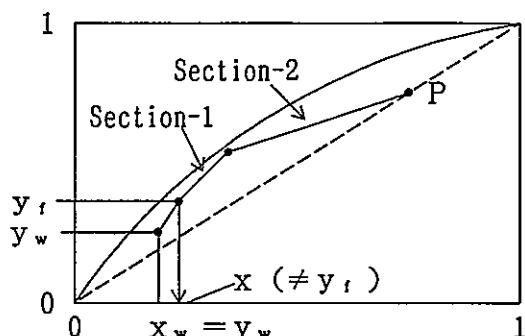
② 段数が急激に増大する。

統いて、Stripping section を付加した2-section systemについて説明する。

2-section systemをMc Cabe-Thieleで示すと次のようにになります。



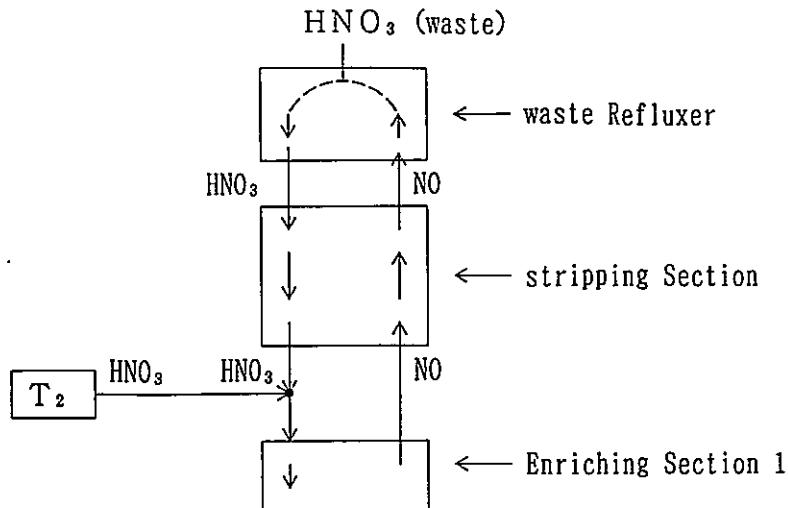
さらに、Stripping section を付けると次のようにになります。



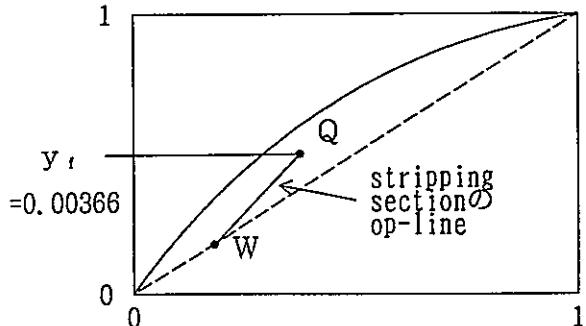
要点 Stripping section の有無は enriching section の設計に無関係。Stripping section をつけた時の y_t に相当する x と、Stripping-sectionがない時の y_t に対する x とは同じです。

Stripping section を「T-8からの HNO_3 の ^{15}N を濃縮する」ものという考えは、一つの見方として間違いではありません。そこで、Stripping Section からEnrichment Section 1に供給される HNO_3 の ^{15}N は、つねに0.0037又はそれ以上になるように設計されているのか、と言う御質問ですが、答えは「条件つきでそのとおり」です。説明します。

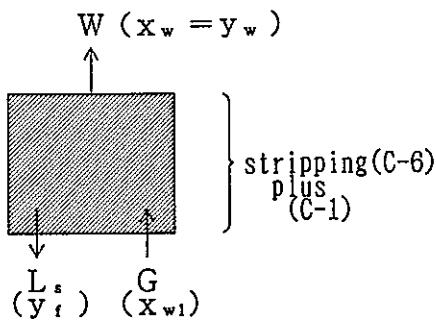
Stripping Section でやっていることを大局からみると、次図のようになります。



したがって、waste refluxerに入つて行くNO中の ^{15}N の濃縮度（正確には希釈度と呼ぶべきです—後述）とrefluxerから出てくるHNO₃中の「濃縮度」は、自動的に同じです。前ページの下の図を見て下さい。

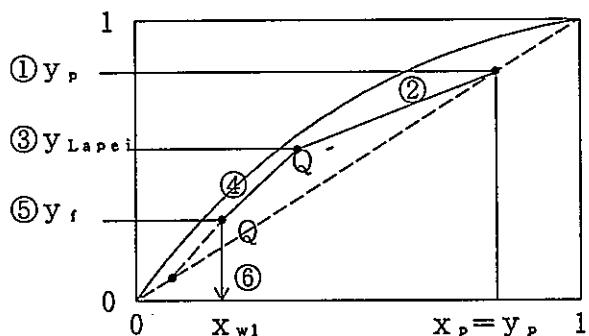


Report 2, page2-10と同じように、ここではNaturalのfeedがQ点、stripping の最後がW点とします。Q～W間を更に纏めると、



ここでGは、C-2からのNOの流速、L_sはP-21とP-19を通るHNO₃の流速 x_{w1} がEnriching Section 1から流出するNO中の ^{15}N の「濃縮度」です。ここでは、 y_t は一応0.00366としておきましょう。すると、斜線の箱に入りする流れが3つ、夫々の流れの中の ^{15}N の濃縮度が1つづつで全部で3つ、計6つのparameterで、この箱全体を定義できます。

これから、物質収支の関係を2つ差引いて、残りの変数の数は4。このうち、 x_{w1} は、前に示したようにEnriching Section 1とEnriching Section 2との設計から自動的に決つて来ます。これを更に復習する。



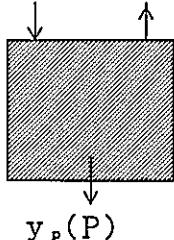
- ① y_p を決めるこことによりP点がきまる。
- ② Section-2のreflux ratioを決めるこことによりSection-2のop-lineの勾配がきまる。
- ③ Taper pointにおけるHNO₃中の ^{15}N の濃縮度を決めるこことによりQ'点がきまる。
- ④ Section-1のreflux ratioを決めるこことによりSection-1のop-lineの勾配がきまる。

⑤ $y_f = 0.00366$ と取ることによりQ点がきまる。

⑥ したがって、C-2からC-1に向って流れるNO中の ^{15}N の「濃縮度」が決まる。と言う順序になります。これを更に簡単に説明すると、

Enriching Section-1とEnriching Section-2とを、まとめて考えると、

$$y_f(F) \quad x_{w1}(G)$$



→ となり、この斜線の箱に入り出する流れの物質収支を考えると、(主に $y_w > y_f$ の理由で) $x_{w1} < y_f$ が導けます。

これで前ページの最後のところ、変数の数をかぞえていた所に戻ります。

以上の理由で前ページの斜線に対する変数の数は3つまで、へりました。その上、GはNOの流速で、これはC-2の中のNOの流速に等しいから、これも上のMcCabe Thiele diagram 中、step④により決定済みだから、変数の数は2。

さらに y_f を0.00366に取ると、設計上で自由にできる変数の数は1。

その変数としては、いくつかの可能性があります。このうち、

ⓐ $x_w (= y_w)$ を固定する。

ⓑ Waste refluxer中のreflux ratioを固定する。

の二つが常識的です。いずれの場合も、一つが決れば他がきまり、更にWとL_wも決まります。

我々のレポートではⓐを採用しました (Report 2, page 2-10~11を参照)

Report 3にかけた設計結果は、 y_f が丁度0.00366になるようにしました。

ただし、これではギリギリの設計なので、どこかが完全に作動しなかった場合、前ページの斜線から出てくるHNO₃中の y_f の値が勿論変動します。上の場合もあり、下る場合もあり、です。夫々の場合の対応は簡単です。例えば y_f が0.00366以下に下れば、

$$(\text{Slope})\text{stripping} = \frac{G}{L_w}$$

だから (Rep-2, p 2-10, Eq(35)) reflux ratio を下げて (Eq. (39d)とEq. (35)), 勾配を上げればよく、これはポンプP-21の調節一つでできます。

普通は、だから安全係数を見積って設計します。この場合は、stripping section の段数を丁度より何パーセント多く取ります。(同様のことはenriching columnについても言えます。)ただし、安全係数を一旦組入れてしまうと、それ相当の建設費の増加以外に運転上の初期非定常状態にかかる時間とか、いろいろの負担が増大します。Report 3では、安全係数を組入ると、トータルのコストにどれ程ひびくかを表-4 (3-30ページ)で示してあります。stripping section は、相当大きな安全係数を組入れても、コストに対する影響はわずかです。

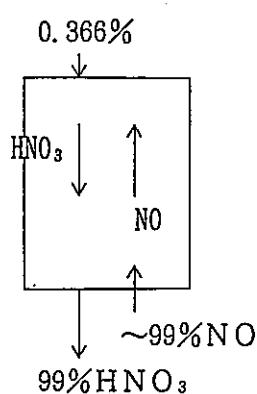
次にstripping sectionの有無のenrichment section設計に対する影響についてお答えします。

これは無関係です。前ページの設計の順序をみれば、一番わかり良いと思いますが、それに対して、例えばpage前ページの順序に従うかわりに逆にW点から出発して、P点に達する方法をとれば如何と言うような議論が出そうですね。答えは、「それはやってもよいが、plant のコストの重点がenrichment sectionにずっと片寄っているから、労多くして益なし、の結果になる」と

言うことです。

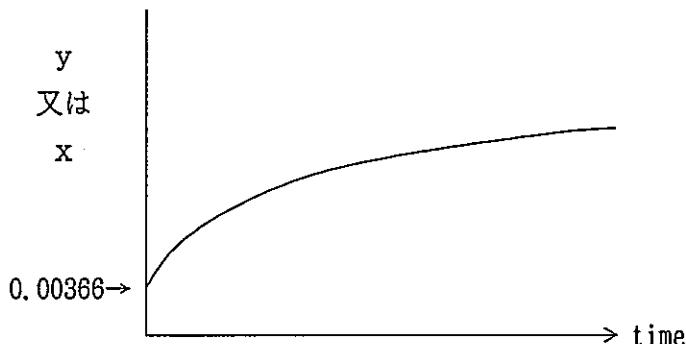
Stripping section をつける理由は、あくまでも硝酸のfeedが少ないコストでもって激減できることにつきます。

最後に、サイクルと言う考え方を化学交換塔や蒸溜塔にあてはめることはできません。理由は、例えば下図の場合、約99%のNO自体を、productの99%HNO₃から作る必要があるからです。



したがって、たとえば 1 mole の 0.366 % の HNO₃ を下方に一度流すとすると、それに対して下から上ってくる NO 中の ¹⁵N の濃縮度は、どう取りますか、無から有は生じません。NO を塔の下端で 0.366 % と取りますか。だとしたら、NO が HNO₃ の足を引っぱっている形になり、実用になる傾向さえつかめません。この結論は塔の下端での NO の中の ¹⁵N の濃縮度を如何にとっても同様です。塔の下端での HNO₃ 中の ¹⁵N の atom fraction は、NO 中の ¹⁵N の atom fraction に左右され、NO 中の ¹⁵N の atom fraction は HNO₃ 中の ¹⁵N の atom fraction に左右されるからです。

したがって、このようなプラントを運転するときは、HNO₃ も NO もまず Natural から始め、total reflux (reflux ratio → ∞) の条件下で運転をつづけます。この間、たとえば塔の下端（更にたとえば C-2 の下端）での HNO₃ と NO の中の ¹⁵N の atom fraction は非定常で、下図のようになります。



定常値に達するに要する時間は、いろいろなパラメーターの関数になりますが、とくに大きくひびくのが product reflux の中と、塔の主に下端近くに貯えられた ¹⁵N の量です。この量が大きいほど時間がかかります。プラントによってちがいますが、10日、1ヶ月、2ヶ月……等、いろいろです。大規模なプラントほど start-up の transient period が長くなります。

定常状態に達してから初めて product を少しずつ、とり出し始めます。ここで初めて Reflux ratio が無限大でなくなるわけです。

start-up の plant 作動の解析は 2 年度の計画の中に入っています。

ここで、質問の最後の行にある「……それぞれ何サイクル必要なのでしょうか。」の代りに設問し、自問自答しておきましょう。

90%, 99%, 99.9% と atom fraction を上げて行くと、どの parameter にひびいてくるか。

答

- ① 定常状態に達する時間が大きくなる。どれ位大きくなるかは、プラントの規模によって異なる。
- ② Product refluxerのreflux ratioの下限が増大する。つまりproductとして取り出せる濃縮された H^{15}NO_3 の量が限られてくる。

Report 3のTables 2, 6, 8を参照：

90% : $R_{2, \text{min}} = 343$

99% : 380

99.9% : 426

例えば、90%の場合、1 moleの ^{15}N をproductとして取出せるためには、その343倍の343 moleの HNO_3 が塔の中をグルグル回っていると言うことです。

謝 辞

本委託研究は、核燃料技術開発部新型濃縮技術開発室の村田雅人副主研（現人形崎事業所環境資源開発部転換技術開発課）がニューヨーク州立大学の石田教授の下に留学されていたのが縁で可能となった。また、委託研究契約に際し、同氏の他同室矢戸弓雄室長（現本社核燃料施設計画部）に多大なる御協力をいただいた。両氏に対して心より御礼申し上げる。