



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 116670070 A

(43) 申请公布日 2023. 08. 29

(21) 申请号 202180086833.2

(22) 申请日 2021.12.08

(30) 优先权数据

2020-214563 2020.12.24 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2023.06.21

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2021/045097 2021.12.08

(87) PCT国际申请的公布数据

W02022/138162 JA 2022.06.30

(71) 申请人 大阳日酸株式会社

地址 日本东京

(72) 发明人 樱井勇斗 神边贵史

(74) 专利代理机构 北京德琦知识产权代理有限公司 11018

专利代理师 辛雪花 周艳玲

(51) Int.Cl.

C01B 21/24 (2006.01)

权利要求书1页 说明书17页 附图5页

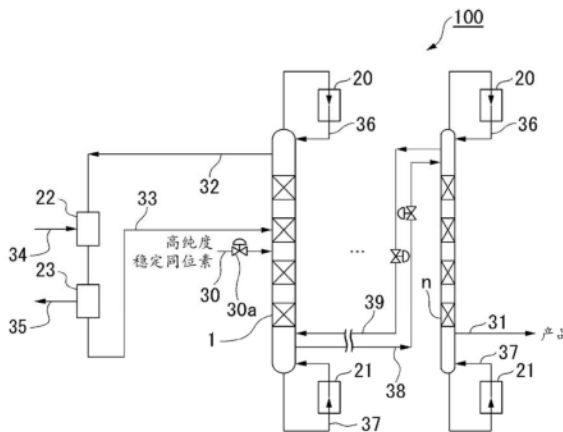
(54) 发明名称

稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法

(57) 摘要

本发明的目的是提供一种能够降低具有毒性和可燃性的物质或在大气中产生环境负荷的物质的排出量且能够降低原料的使用量的稳定同位素浓缩装置及浓缩方法。本发明提供一种稳定同位素浓缩装置,具备:蒸馏塔组,级联连接有多个蒸馏塔;原料供给线路(30),向第一蒸馏塔(1)供给原料;产品导出线路(31),从位于比第一蒸馏塔(1)靠二次侧的其他蒸馏塔导出产品;同位素减损流体抽出线路(32),从第一蒸馏塔(1)或位于比第一蒸馏塔(1)靠一次侧的其他蒸馏塔抽出同位素减损气体或同位素减损液;同位素交换反应器(22),通过使同位素减损气体或同位素减损液进行同位素交换反应,从而以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液;以及同位素再生流体送回线路

(33),将同位素再生气体或同位素再生液再供给到第一蒸馏塔(1)中。



1. 一种稳定同位素浓缩装置,通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素,其特征在于,具备:

蒸馏塔组,级联连接有多个蒸馏塔;

原料供给线路,向所述蒸馏塔组中的一个蒸馏塔供给原料;

产品导出线路,从所述蒸馏塔组中的位于比所述一个蒸馏塔靠二次侧的其他蒸馏塔导出产品;

同位素减损流体抽出线路,从所述蒸馏塔组中的所述一个蒸馏塔或位于比所述一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔,抽出期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液;

同位素交换反应器,通过使从所述同位素减损流体抽出线路导入的所述同位素减损气体或所述同位素减损液与具有与所述稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而使所述同位素减损气体或所述同位素减损液中的所述稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对所述同位素减损气体或所述同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液;以及

同位素再生流体送回线路,将在所述同位素交换反应器中再生的所述同位素再生气体或所述同位素再生液再供给到所述一个蒸馏塔中。

2. 根据权利要求1所述的稳定同位素浓缩装置,其特征在于,

所述同位素交换反应器中的所述同位素交换反应为催化加热反应、放电反应、离子交换反应或光化学反应中的任一种。

3. 一种稳定同位素浓缩方法,通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素,其特征在于,

包括再供给工序,所述再供给工序通过将从级联连接有多个蒸馏塔的蒸馏塔组中的一个蒸馏塔或位于比所述一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔中抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与所述稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而使所述同位素减损气体或所述同位素减损液中的所述稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对所述同位素减损气体或所述同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向所述一个蒸馏塔再供给所述同位素再生气体或所述同位素再生液。

4. 根据权利要求3所述的稳定同位素浓缩装置,其特征在于,

所述同位素交换反应为催化加热反应、放电反应、离子交换反应或光化学反应中的任一种。

## 稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及对包含稳定同位素原子的稳定同位素进行浓缩的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法。

### 背景技术

[0002] 稳定同位素是为了在有机化学及生物化学领域中得到与有机物或生物物质的各种反应、结构和功能有关的信息而被使用。具体而言，稳定同位素作为自然科学或医疗领域的示踪剂而被用于NMR分析中，并且被用于利用了反应速度因同位素置换而变化的速度论同位素效果的制药及有机合成中，并且还被用于利用了光谱学性质差异的红外和拉曼光谱法等中。

[0003] 作为用于分离稳定同位素的方法，例如有热扩散分离法、离心分离法、激光分离法、化学交换分离法和蒸馏分离法等各种方法。在这些方法之中，蒸馏分离法适合于轻元素的同位素的大量生产。因此，例如作为工业性的氧稳定同位素分离方法，采用水的蒸馏分离、氧的蒸馏分离等方法。

[0004] 例如，专利文献1公开了组合氧蒸馏和水蒸馏而成的重氧水的制造方法及制造装置。如专利文献1所公开的那样，期望的同位素重成分（包含<sup>17</sup>O或<sup>18</sup>O的氧分子）的浓度减少的氧气和水蒸气从蒸馏塔的塔顶排出到体系外。由于这些物质都是无害的物质，因此氧气被散发到大气中，水蒸气作为排水被进行处理。

[0005] 但是，用作示踪剂的稳定同位素以及在有机合成及制药中使用的稳定同位素要求为95~99%以上的高浓度。由于<sup>18</sup>O的天然存在比为约2000ppm，因此在如专利文献1所记载的用蒸馏分离法进行高浓度浓缩时，产生大量的排气及排液。然而，如专利文献1所记载的那样，在这些排气及排液为无害的氧或水的情况下，在环境负荷等方面不会成为问题。

[0006] 另外，作为用于浓缩碳稳定同位素的方法，也可以举出蒸馏分离一氧化碳、甲烷、四氟化碳等的方法。例如，专利文献2公开了用于浓缩<sup>13</sup>CO的一氧化碳稳定同位素浓缩装置及浓缩方法。

[0007] 即使在使用专利文献2所公开的技术来浓缩碳稳定同位素的情况下，也与上述专利文献1的情况同样，<sup>13</sup>CO的浓度比天然存在比减少的CO气体从第一蒸馏塔的塔顶大量排放到体系外（以下，有时将从稳定同位素浓缩装置排出的期望的稳定同位素的浓度比天然存在比减少的排气或排液称为“同位素减损气体”或“同位素减损液”）。在该情况下，由于一氧化碳具有可燃性和毒性，因此不能直接排放到大气中，需要实施除害处理。

[0008] 作为除害处理的工业性方法，例如可以举出利用火炬烟囱的方法、使用利用催化反应的氧化处理的方法等。

[0009] 例如，专利文献3公开了一氧化碳去除单元及去除方法，其作为利用催化反应的氧化处理的方法而通过催化反应来将一氧化碳转换为二氧化碳。

[0010] 上述任何方法都通过使一氧化碳氧化而转换为二氧化碳。其结果将大量的二氧化碳排放到大气中，会带来环境负荷。

[0011] 另外,对于上述除害处理而言,即使在通过蒸馏分离甲烷来浓缩碳稳定同位素的情况下,与上述同样,也会将大量的二氧化碳排放到大气中。

[0012] 此外,在四氟化碳的情况下,没有可燃性和毒性,不需要实施除害处理,但由于四氟化碳的全球变暖系数非常大,为约7400,因此也存在对环境的负荷变得更大这种问题。全球变暖系数是几个表示环境负荷的指标之一。

[0013] 另外,关于其他的稳定同位素,如以下说明的那样,也考虑产生与上述同样的问题点。

[0014] 例如,作为用于浓缩氮稳定同位素的方法,可以举出一氧化氮蒸馏。该方法是同时得到氮同位素和氧同位素的便利性高的方法。如非专利文献1所记载的那样,已知在美国存在同时生产95%以上的高浓度的氧和氮的重成分的设备。然而,一氧化氮作为氮氧化物被认为是引起酸雨和光化学烟雾的原因,具有毒性。因此,与一氧化碳同样,由于不能直接排放到大气中,因此需要利用氨接触还原法等进行除害处理。

[0015] 专利文献1:日本专利第4327287号公报

[0016] 专利文献2:日本专利公开2018-164884号公报

[0017] 专利文献3:日本专利第4309162号公报

[0018] 非专利文献1:磯村昌平,殿岡康彦,嘉悦早人,「一酸化窒素低温蒸留法による窒素および酸素同位体の分離 (RADIOISOTOPES:36巻2号)」,公益社団法人日本アイソトープ協会,1987年2月15日,P57-63(磯村昌平,殿岡康彦,嘉悦早人,《利用一氧化氮低温蒸馏法分离氮及氧同位素(RADIOISOTOPES:36巻2号)》,公益社団法人日本同位素协会,1987年2月15日,P57-63)

## 发明内容

[0019] 本发明是鉴于上述问题而完成的,其目的是提供一种能够降低具有毒性和可燃性的物质或在大气中产生环境负荷的物质的排出量且能够降低原料的使用量的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法。

[0020] 本发明人为了解决上述问题而反复进行了深入的研究。其结果发现在浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素时,通过同位素交换反应来将期望的稳定同位素的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液再生为接近天然存在比的浓度,从而能够将它们作为原料再利用。由此,发现能够降低在大气中产生环境负荷的物质的排出量的同时降低原料的使用量,从而完成了本发明。

[0021] 即,本发明提供以下的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法。

[0022] (1) 一种稳定同位素浓缩装置,通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素,其特征在于,具备:

[0023] 蒸馏塔组,级联连接有多个蒸馏塔;

[0024] 原料供给线路,向所述蒸馏塔组中的一个蒸馏塔供给原料;

[0025] 产品导出线路,从所述蒸馏塔组中的位于比所述一个蒸馏塔靠二次侧的其他蒸馏塔导出产品;

[0026] 同位素减损流体抽出线路,从所述蒸馏塔组中的所述一个蒸馏塔或位于比所述一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔,抽出期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的

同位素减损气体或同位素减损液；

[0027] 同位素交换反应器,通过使从所述同位素减损流体抽出线路导入的所述同位素减损气体或所述同位素减损液与具有与所述稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使所述同位素减损气体或所述同位素减损液中的所述稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对所述同位素减损气体或所述同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液;以及

[0028] 同位素再生流体送回线路,将在所述同位素交换反应器中再生的所述同位素再生气体或所述同位素再生液再供给到所述一个蒸馏塔中。

[0029] (2) 根据(1)所述的稳定同位素浓缩装置,其特征在于,所述同位素交换反应器中的所述同位素交换反应为催化加热反应、放电反应、离子交换法或光化学反应中的任一种。

[0030] (3) 一种稳定同位素浓缩方法,通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素,其特征在于,

[0031] 包括再供给工序,所述再供给工序通过将级联连接有多个蒸馏塔的蒸馏塔组中的一个蒸馏塔或位于比所述一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔中抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与所述稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使所述同位素减损气体或所述同位素减损液中的所述稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向所述一个蒸馏塔再供给所述同位素再生气体或所述同位素再生液。

[0032] (4) 根据(3)所述的稳定同位素浓缩方法,其特征在于,所述同位素交换反应为催化加热反应、放电反应、离子交换法或光化学反应中的任一种。

[0033] 本发明所涉及的稳定同位素浓缩装置具备同位素交换反应器,该同位素交换反应器通过使从一个蒸馏塔或位于比一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液。

[0034] 根据本发明的稳定同位素浓缩装置,具备上述同位素交换反应器,因此能够降低包含具有毒性和可燃性的物质或在大气中产生环境负荷的物质的同位素减损气体或同位素减损液的排出量,并且能够将这些物质作为原料再利用。

[0035] 因此,由于能够降低稳定同位素浓缩工艺中的环境负荷的同时降低原料的使用量,因此能够维持良好的工艺环境的同时,以低成本高效地得到包含期望的浓度的稳定同位素分子的高纯度的稳定同位素。

[0036] 另外,本发明所涉及的稳定同位素浓缩方法具备再供给工序,该再供给工序通过使从一个蒸馏塔或位于比所述一个蒸馏塔靠一次侧的其他蒸馏塔中抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向一个蒸馏塔再供给同位素再生气体或同位素再生液。

[0037] 本发明的稳定同位素浓缩方法由于具备进行上述同位素交换反应的再供给工序，因此能够降低稳定同位素浓缩工艺中的环境负荷的同时降低原料的使用量。因此，能够维持良好的工艺环境的同时，以低成本高效地得到包含期望的浓度的稳定同位素分子的高纯度的稳定同位素。

#### 附图说明

[0038] 图1是示意性地说明本发明的一实施方式的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法的图，是表示稳定同位素浓缩装置的主要部分的系统图。

[0039] 图2是示意性地说明在本发明的实施例中使用的稳定同位素浓缩装置的图，是表示在实施例1中的一氧化氮稳定同位素的浓缩中使用的稳定同位素浓缩装置的主要部分的系统图。

[0040] 图3是示意性地说明在本发明的比较例中使用的稳定同位素浓缩装置的图，是表示在比较例1中的一氧化氮稳定同位素的浓缩中使用的稳定同位素浓缩装置的主要部分的系统图。

[0041] 图4是示意性地说明在本发明的实施例中使用的稳定同位素浓缩装置的图，是表示在实施例2中的四氟化碳稳定同位素的浓缩中使用的稳定同位素浓缩装置的主要部分的系统图。

[0042] 图5是示意性地说明在本发明的比较例中使用的稳定同位素浓缩装置的图，是表示在比较例2中的四氟化碳稳定同位素的浓缩中使用的稳定同位素浓缩装置的主要部分的系统图。

#### 具体实施方式

[0043] 下面，主要参照图1对本发明的一实施方式的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法进行说明(根据需要还参照图2)。

[0044] 此外，为了便于理解特征，在以下说明中使用的附图中为了方便起见有时候放大或简化表示特征部分。另外，以下说明中例示的材料等为一例，本发明并不限定于它们，在不变更其主旨的范围内可以适当进行变更来实施。

[0045] 本说明书中使用的“同位素减损气体”或“同位素减损液”是指从蒸馏塔排出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的气体或液化气体。

[0046] “同位素再生气体”或“同位素再生液”是指上述“同位素减损气体”或“同位素减损液”作为通过同位素交换反应能够再使用的原料而再生的气体或液化气体。

[0047] <稳定同位素浓缩装置>

[0048] 下面，对本实施方式的稳定同位素浓缩装置进行详细描述。

[0049] 图1是表示本实施方式的稳定同位素浓缩装置100的主要部分的系统图。

[0050] 本实施方式的稳定同位素浓缩装置100通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素。稳定同位素浓缩装置100大致构成为具备级联连接有多个蒸馏塔的蒸馏塔组、原料供给线路30、产品导出线路31、同位素减损流体抽出线路32、同位素交换反应器22、同位素再生流体纯化器23和同位素再生流体送回线路33。

[0051] 另外，图示例的稳定同位素浓缩装置100进一步具备多个冷凝器20、多个再沸器

21、同位素交换反应原料供给线路34和同位素交换反应器排流体线路35。

[0052] 本实施方式的稳定同位素浓缩装置100例如为通过蒸馏来浓缩氢、碳、氧或氮的稳定同位素的装置。

[0053] 另外,本实施方式的稳定同位素浓缩装置100优选例如应用到以下(1)~(3)所示的情况中。

[0054] (1)作为原料的物质具有毒性和可燃性或者作为原料的物质排出到大气中而有可能产生环境负荷的情况。

[0055] (2)通过对作为原料的具有毒性的物质进行除害处理而转换的物质在排出到大气中时有可能产生环境负荷的情况。

[0056] (3)市场供给量少或稀少有价值等与供给不稳定相关的物质为原料的情况。

[0057] 作为在本实施方式的稳定同位素浓缩装置100中使用的原料的物质,没有特别限定,例如可以例示 $\text{CO}$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{CF}_4$ 、 $\text{CHF}_3$ 、 $\text{NO}$ 、 $\text{NH}_3$ 、 $\text{NF}_3$ 、 $\text{BF}_3$ 等。

[0058] 如上所述,蒸馏塔组为级联连接有多个蒸馏塔的设备。

[0059] 在以下说明中,将从蒸馏塔组的上游侧末端起的第 $n$ 个蒸馏塔称为第 $n$ 蒸馏塔。

[0060] 在图1所示的例子中,仅图示了在第一蒸馏塔1~第 $n$ 蒸馏塔 $n$ 中被供给作为原料的稳定同位素分子的第一蒸馏塔1和第 $n$ 蒸馏塔 $n$ 。

[0061] 另一方面,参照图2所示的后述的实施例中使用的稳定同位素浓缩装置200进行说明,第一蒸馏塔1~第 $n$ 蒸馏塔 $n$ 按照塔编号的顺序级联连接,在图示例中,级联连接有第一蒸馏塔1~第六蒸馏塔6。

[0062] 第一蒸馏塔1~第 $n$ 蒸馏塔 $n$ 被构成为,通过在低温或极低温下对冷却后的稳定同位素分子进行蒸馏,从而在塔顶侧浓缩蒸气压高的稳定同位素分子,在塔底侧浓缩蒸气压低的稳定同位素分子。

[0063] 在级联连接有多个蒸馏塔的情况下,上述“ $n$ ”为2以上的数量。

[0064] 与此相对,例如作为原料使用接近产品纯度的稳定同位素,在能够用一个蒸馏塔浓缩到产品浓度的情况下, $n$ 可以为1(即,一个蒸馏塔)。在该情况下,用于供给原料的塔和用于采集产品的塔为同一个塔。

[0065] 此外,对于蒸馏塔组而言,通常被供给原料的第一蒸馏塔1的塔径最大,随着朝向末端而塔径逐渐变小。蒸馏塔组之所以采用这样的设计是因为一般在上游侧的第一蒸馏塔1中蒸馏负荷较大,在下游侧的第 $n$ 蒸馏塔 $n$ 中蒸馏负荷比第一蒸馏塔1的蒸馏负荷小。

[0066] 另外,构成蒸馏塔组的各蒸馏塔例如可以是内部填充有规则填充物的填充塔、内部填充有不规则填充物的填充塔或具备精馏段(板)的板式塔等中的任一种。

[0067] 对各蒸馏塔(第一蒸馏塔1~第 $n$ 蒸馏塔 $n$ )分别设置一个冷凝器20。冷凝器20设置在循环线路36上,该循环线路36的两端与各蒸馏塔的塔顶部的不同位置连接。冷凝器20具有通过对在蒸馏塔内上升的气体进行热交换而使其液化并使其再次在蒸馏塔内下降的功能。

[0068] 此外,冷凝器20也可以是对于各蒸馏塔(第一蒸馏塔1~第 $n$ 蒸馏塔 $n$ )而言每隔几个塔设置一个的结构。

[0069] 对各蒸馏塔分别设置有一个再沸器21。再沸器21设置在循环线路37上,该循环线路37的两端与各蒸馏塔的塔底部的不同位置连接。再沸器21具有通过对在蒸馏塔内下降的

液体进行热交换而使其气化并使其再次在蒸馏塔内上升的功能。

[0070] 此外,再沸器21也可以是对于各蒸馏塔(第一蒸馏塔1~第n蒸馏塔n)而言每隔几个塔设置一个的结构。

[0071] 原料供给线路30的一端与第一蒸馏塔1的中间部连接。原料供给线路30是用于将作为原料的稳定同位素导入到蒸馏塔组中的第一蒸馏塔(一个蒸馏塔)1的中间部的路径。

[0072] 蒸馏塔的中间部是指蒸馏塔的塔顶部和塔底部以外的位置。

[0073] 此外,向第一蒸馏塔1导入原料的位置(高度)并不限定于中间部,优选为第一蒸馏塔1的稳定状态下的接近原料的稳定同位素浓度的位置。

[0074] 另外,如图1所示,在原料供给线路30上可以设置阀30a。

[0075] 此外,原料供给线路30的一端不一定与第一蒸馏塔1连接,在供给原料的蒸馏塔的一次侧有其他蒸馏塔的情况下,原料供给线路30的一端与第二蒸馏塔2以后的蒸馏塔连接。

[0076] 作为原料的稳定同位素优选为99.999%以上的高纯度的稳定同位素。

[0077] 同位素减损流体抽出线路32的一端与第一蒸馏塔1连接,另一端与在后面详细叙述的同位素交换反应器22连接。作为同位素减损流体抽出线路32的在第一蒸馏塔1中的连接部位,依据期望的稳定同位素分子而不同,有塔顶的情况和塔底的情况。同位素减损流体抽出线路32从蒸馏塔组中的第一蒸馏塔(一个蒸馏塔)1中抽出期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液,导入到同位素交换反应器22中。

[0078] 同位素再生流体送回线路33的一端与在后面详细叙述的同位素再生流体纯化器23连接,另一端与第一蒸馏塔1的中间部连接。同位素再生流体送回线路33用于将在同位素交换反应器22中再生且由同位素再生流体纯化器23纯化的同位素再生气体或同位素再生液再供给到第一蒸馏塔1中。

[0079] 关于同位素再生流体送回线路33的在第一蒸馏塔1中的连接部位,例如在作为期望的稳定同位素分子为蒸气压低的成分的情况下,优选连接在原料供给线路30的上侧。在期望的稳定同位素分子为蒸气压高的成分的情况下,同位素再生流体送回线路33优选连接在原料供给线路30的下侧。此外,同位素再生流体送回线路33不必连接到与原料供给线路30相同的蒸馏塔,在原料供给线路30与第二蒸馏塔2以后的蒸馏塔连接的情况下,同位素再生流体送回线路33也会与连接有原料供给线路30的蒸馏塔的一次侧的蒸馏塔连接。

[0080] 同位素交换反应原料供给线路34的一端与同位素交换反应器22连接。同位素交换反应原料供给线路34为用于将以下物质供给到同位素交换反应器22的线路,该物质具有与同位素减损气体或同位素减损液相同的稳定同位素原子,并且无毒、无环境负荷或环境负荷极小,或者与同位素减损气体或同位素减损液相比环境负荷小。

[0081] 利用同位素减损流体抽出线路32从第一蒸馏塔1导入的同位素减损气体或同位素减损液通过同位素交换反应原料供给线路34供给到同位素交换反应器22中,在同位素交换反应器22中,使从第一蒸馏塔1导入的稳定同位素与具有相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应。同位素交换反应器22通过上述同位素交换反应,以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液。

[0082] 作为同位素交换反应器22中的同位素交换反应,例如可以例示催化加热反应、放电反应、离子交换法以及光化学反应等。



[0083] 此外,也可以在同位素交换反应器22的内部填充与同位素减损气体或同位素减损液进行同位素交换反应的省略图示的物质。在采用这样的结构的情况下,有时省略上述同位素交换反应原料供给线路34。

[0084] 同位素再生流体纯化器23通过对由同位素交换反应器22生成的同位素再生气体或同位素再生液进行纯化,从而将这些同位素再生气体或同位素再生液分离为作为原料的稳定同位素分子和除此以外的物质。

[0085] 作为同位素再生流体纯化器23中的同位素再生气体或同位素再生液的纯化方法,没有特别限定,例如可以例示固化纯化、吸附、膜分离或蒸馏等方法。

[0086] 除了最终塔以外的蒸汽压力低的稳定同位素分子的浓度提高的各蒸馏塔中的塔底的蒸汽的一部分经由路径38供给到下一塔的塔顶中。此时的蒸汽流动的推进力是某蒸馏塔的塔底与其下一塔的塔顶之间的压力差。供给到下一塔的塔顶中的蒸汽与该塔内的上升蒸汽一起在冷凝器20中被液化,并且回流到该塔的塔顶中。

[0087] 另外,除了第一蒸馏塔1以外的蒸汽压高的稳定同位素分子的浓度提高的各蒸馏塔中的塔顶附近的回流液的一部分经由路径39供给到前一塔的塔底中。此时的回流液流动的推进力是回流液的液体排出压力(液頭压)。

[0088] 此外,也可以使用压缩机作为回流液流动的推进力。在使用压缩机的情况下,也可以将塔顶的气体压缩后供给到前一塔中。

[0089] 供给到前一塔的塔底中的回流液与该塔内的回流液一起在再沸器21中被气化,并且回流到该塔的塔底中。

[0090] 产品导出线路31是用于将浓缩后的稳定同位素成分作为产品从第n蒸馏塔n导出的路径。产品导出线路31的一端连接到第n蒸馏塔(其他蒸馏塔)n的靠近塔底部的位置,该第n蒸馏塔(其他蒸馏塔)n位于比第一蒸馏塔(一个蒸馏塔)1靠二次侧处。利用产品导出线路31从蒸馏塔导出的产品是浓缩到高浓度(例如99.9原子%以上)的稳定同位素成分。

[0091] 此外,不必向第一蒸馏塔1供给原料。作为回收部的蒸馏塔可以位于供给原料的塔的前段。在该情况下,同位素减损流体抽出线路32的一端侧与作为回收部的蒸馏塔的末端连接。另外,采集产品的塔也不一定是最终塔(第n蒸馏塔n),也可以是位于蒸馏塔组的中间的蒸馏塔。

[0092] 下面,对通过本发明得到的作用进行更详细说明。

[0093] 一般来说,同位素减损气体或同位素减损液由于期望的稳定同位素的浓度比天然存在比下降,因此不能直接作为原料再利用。如果可以以使同位素减损气体或同位素减损液中的期望的稳定同位素的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,则能够将再生的“同位素再生气体”或“同位素再生液”作为原料再利用。

[0094] 作为实现原料的再利用的方法,可以举出如本发明中采用的利用同位素交换反应的方法。同位素交换反应是指分子(或离子)中的原子(或原子团)与其他分子(或离子)中的同位素(或包含同位素的原子团)交换的反应。

[0095] 在此,在将交换的原子(或原子团)设为X,对标记的原子(或原子团)标注\*记号,并且将参与交换的分子(或离子)用A或B表示时,同位素交换反应通常为由下述式(1)表示的关系。在从左边到右边的反应期间,可以存在作为中间体的物质(例如 $ABX_2$ )。

[0096]  $AX+BX^* \rightarrow AX^*+BX$  (1)

[0097] 在上述式(1)中,假设AX相当于X\*小于天然存在比的浓度的同位素减损气体或同位素减损液,BX\*相当于包含天然存在比的X\*的物质的情况下,同位素交换反应后的AX\*中的X\*的浓度接近天然存在比。进一步而言,在BX\*与AX的混合比足够大的情况下,AX\*中的X\*的浓度为大致与天然存在比同等的值。

[0098] 通过由上述式(1)表示的同位素交换反应,能够将再生至期望的稳定同位素的浓度接近天然存在比的同位素再生气体或同位素再生液作为原料再次供给到蒸馏塔中。在该情况下,排出到体系外的物质相当于BX。因此,相当于同位素交换反应中使用的BX\*的物质可以是无毒且无环境负荷或环境负荷极小或者与AX相比环境负荷小的物质,能够抑制同位素减损气体或同位素减损液对环境造成的影响。

[0099] 例如,在通过一氧化氮的蒸馏来得到<sup>15</sup>N稳定同位素的浓缩装置中,考虑使从蒸馏塔排出的<sup>15</sup>N的浓度比天然存在比下降的NO气体和一般的N<sub>2</sub>气体进行同位素交换反应等。在该情况下,<sup>15</sup>N的浓度大致与天然存在比同等的NO气体被再供给到蒸馏塔中。另外,在该情况下,虽然N<sub>2</sub>气体被大量排出,但由于N<sub>2</sub>是空气中存在的物质,因此对环境造成的影响较小。

[0100] 也就是,本发明通过使同位素减损气体或同位素减损液与具有相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,将由此得到的同位素再生气体或同位素再生液作为原料再供给到蒸馏部中。由此,能够降低毒性及可燃性或因排出到大气中而具有环境负荷的同位素减损气体或同位素减损液的排出。

[0101] 另外,本发明在使用因市场流通量少、稀有价值高等情况而存在供给不稳定的物质作为原料来浓缩稳定同位素的目的方面也非常有用。在本发明中,供给的原料的大部分是以使期望的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式进行再生后再供给的原料。因此,需要新供给的原料的量与作为产品抽出的量大致相同,因此即使考虑由因同位素交换反应而产生的副产物带来的一部分损失成分,也能够大幅削减使用的原料的总使用量。

[0102] <稳定同位素浓缩方法>

[0103] 接着,对本实施方式的稳定同位素浓缩方法(以下,有时简称为“浓缩方法”)进行说明。

[0104] 此外,在本实施方式中,与上述同样,参照图1对使用上述本实施方式的稳定同位素浓缩装置100来浓缩稳定同位素的方法进行说明。

[0105] 本实施方式的浓缩方法是通过蒸馏来浓缩包含稳定同位素原子的稳定同位素的方法。即,本实施方式的浓缩方法为使用稳定同位素浓缩装置100,来使从级联连接有多个蒸馏塔的蒸馏塔组中的第一蒸馏塔(一个蒸馏塔)1中抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应的方法。

[0106] 而且,本实施方式的浓缩方法包括再供给工序,该再供给工序通过以使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向第一蒸馏塔1再供给同位素再生气体或同位素再生液。

[0107] 具体而言,首先将原料(稳定同位素)以气体或液体的状态从原料供给线路30供给

到第一蒸馏塔1内。

[0108] 此时,例如向冷凝器20供给冷热源,冷却稳定同位素并使其液化,将液体积存在各蒸馏塔的底部。

[0109] 在再沸器21的运转所需的液量积存在各蒸馏塔的底部之后,向再沸器21供给加热源。

[0110] 然后,在确认各蒸馏塔处于稳定状态之后,开始从原料供给线路30向第一蒸馏塔1连续导入原料(稳定同位素),开始稳定同位素浓缩装置100的浓缩运转。

[0111] 即,在稳定同位素浓缩装置100的起动完成之后,通过产品导出线路31从第n蒸馏塔n导出产品。

[0112] 然而,如上所述,在对稳定同位素进行蒸馏的浓缩装置中,在将期望的同位素重成分的浓度减少的同位素减损气体或同位素减损液排出到体系外的情况下,如果同位素减损气体或同位素减损液为具有可燃性和毒性的气体或排放到大气中时产生环境负荷的物质,则有可能对环境产生不良影响。

[0113] 与此相对,使用上述稳定同位素浓缩装置100的本实施方式的浓缩方法包括再供给工序,该再供给工序通过使从第一蒸馏塔1抽出的同位素减损气体或同位素减损液与具有相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而以使稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对从第一蒸馏塔1抽出的同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向第一蒸馏塔1再供给同位素再生气体或同位素再生液。

[0114] 由此,能够降低稳定同位素的浓缩工艺中的环境负荷的同时降低原料的使用量,因此能够维持良好的工艺环境的同时,以低成本高效地得到包含期望的浓度的稳定同位素分子的高纯度的稳定同位素。

[0115] 进一步地,根据本实施方式的浓缩方法,通过以使同位素减损气体或同位素减损液中的期望的稳定同位素的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,能够将再生的“同位素再生气体”或“同位素再生液”作为原料再利用。

[0116] 此外,在本实施方式的浓缩方法中,作为上述同位素交换反应,能够采用催化加热反应、放电反应、离子交换反应或光化学反应中的任一种。

[0117] <其他实施方式>

[0118] 以上,通过实施方式对本发明所涉及的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法的一例进行了说明,但本发明并不限于上述实施方式。上述实施方式中的各结构及它们的组合等为一例,在不脱离本发明的主旨的范围内可以进行结构的附加、省略、置换及其他变更。

[0119] 例如,上述冷凝器20及再沸器21并不是分别对各蒸馏塔绝对必要的结构,也可以在通过前后的蒸馏塔的压力差、泵、鼓风机等气体上升充分的情况下不设置上述冷凝器20及再沸器21。另外,路径38和路径39对蒸馏塔的连接位置可以相反,也可以构成为塔顶附近的回流液的一部分经由路径38供给到下一塔的塔底中,或者塔底的蒸汽的一部分经由路径39供给到前一塔的塔顶中。

[0120] <作用效果>

[0121] 如上所述,本实施方式的稳定同位素浓缩装置100具备同位素交换反应器22,该同

位素交换反应器22通过使从第一蒸馏塔1抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度接近天然存在比的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液。

[0122] 本实施方式的稳定同位素浓缩装置100通过具备上述同位素交换反应器22,能够降低包含具有毒性和可燃性的物质或在大气中产生环境负荷的物质的同位素减损气体或同位素减损液的排出量,并且能够将这些物质作为原料再利用。

[0123] 因此,由于能够降低稳定同位素的浓缩工艺中的环境负荷的同时降低原料的使用量,因此能够维持良好的工艺环境的同时,以低成本高效地得到包含期望的浓度的稳定同位素分子的高纯度的稳定同位素。

[0124] 另外,本实施方式的稳定同位素浓缩方法具备再供给工序,该再供给工序通过使从一个蒸馏塔抽出的期望的稳定同位素分子的浓度比天然存在比下降的同位素减损气体或同位素减损液与具有与稳定同位素相同的稳定同位素原子的其他物质进行同位素交换反应,从而使同位素减损气体或同位素减损液中的稳定同位素分子的浓度达到与天然存在比同等的浓度的方式对同位素减损气体或同位素减损液进行再生,生成同位素再生气体或同位素再生液,并且向一个蒸馏塔再供给同位素再生气体或同位素再生液。

[0125] 根据本发明,通过具备进行上述同位素交换反应的工序,与上述同样,能够降低稳定同位素的浓缩工序中的环境负荷的同时降低原料的使用量。因此,能够维持良好的工艺环境的同时,以低成本高效地得到包含期望的浓度的稳定同位素分子的高纯度的稳定同位素。

[0126] 实施例

[0127] 下面,对本发明的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法示出实施例进行更详细说明,但本发明并不限于以下的实施例,在不变更其主旨的范围内可以适当进行变更来实施。

[0128] <实施例1>

[0129] 在实施例1中,使用具备图2所示的本发明所涉及的结构的一氧化氮的稳定同位素浓缩装置200进行 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 的浓缩。实施例1中使用的稳定同位素浓缩装置200基本上具有与图1所示的稳定同位素浓缩装置100同样的结构,不同点在于蒸馏塔组由六个蒸馏塔构成。第一蒸馏塔1~第六蒸馏塔6是内部填充有规则填充物的蒸馏塔。

[0130] 将对第一蒸馏塔1供给的原料一氧化氮的同位素比组成示于下述表1中。

[0131] 另外,向同位素交换反应器22供给以体积比1比1混合氧和氮而成的气体。将所供给的氧和氮的同位素比组成示于下述表2和表3中。

[0132] 另外,在实施例1中,从第六蒸馏塔6的塔底抽出 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 的产品,从第三蒸馏塔3的塔底抽出一部分副产品。

[0133] 将下述(1)~(6)所示的流量分别示于下述表4中。

[0134] (1)原料一氧化氮流量

[0135] (2) $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 产品一氧化氮抽出流量

[0136] (3)从第一蒸馏塔1向同位素交换反应器22供给的一氧化氮的流量

- [0137] (4)从同位素交换反应原料供给线路34供给氧和氮的混合气体的流量
- [0138] (5)从同位素再生流体纯化器23向第一蒸馏塔1的中间部送回的一氧化氮的流量
- [0139] (6)副产品的流量
- [0140] 在同位素交换反应器22中,利用紫外光照射的光化学反应。
- [0141] 将同位素交换反应器22中的流动方向前后的一氧化氮的同位素比组成示于下述表5中。
- [0142] 另外,在同位素再生流体纯化器23中,利用吸附法和蒸馏法来分离成一氧化氮和除此以外的物质。
- [0143] 一氧化氮的稳定同位素浓缩装置200具备同位素混杂器24。该同位素混杂器24是产生随机重组原子的交换反应即同位素混杂的装置。
- [0144] 另外,在稳定同位素浓缩装置200中,同位素浓缩气体抽出线路40的一端与第四蒸馏塔4的塔底部分连接,另一端与同位素混杂器24连接。将一氧化氮的一部分或全部从第四蒸馏塔4中抽出,供给到同位素混杂器24中。
- [0145] 在同位素混杂器24中经过同位素交换反应的一氧化氮通过同位素浓缩气体送回线路41送回到第五蒸馏塔5的塔顶部分。
- [0146] 冷凝器20的冷源使用液化甲烷,从液化甲烷供给线路42向各冷凝器供给液化甲烷。
- [0147] 再沸器21的热源使用电加热器。
- [0148] 浓缩装置整体稳定时的从作为最终级的第六蒸馏塔6送出的 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 产品的稳定同位素分子的存在比率如下述表6和表7所示。
- [0149] 另外,冷凝器20和再沸器21所需的热交换量的总量为160kW。

[0150] [表1]

稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
$^{14}\text{N}^{16}\text{O}$	30	99.4
$^{14}\text{N}^{17}\text{O}$	31	0.0
$^{14}\text{N}^{18}\text{O}$	32	0.2
$^{15}\text{N}^{16}\text{O}$	31	0.4
$^{15}\text{N}^{17}\text{O}$	32	0.0
$^{15}\text{N}^{18}\text{O}$	33	0.0

[0152] [表2]

稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
$^{16}\text{O}_2$	32	99.5
$^{16}\text{O}^{17}\text{O}$	33	0.1
$^{16}\text{O}^{18}\text{O}$	34	0.4
$^{17}\text{O}_2$	34	0.0
$^{17}\text{O}^{18}\text{O}$	35	0.0
$^{18}\text{O}_2$	36	0.0

[0154] [表3]

[0155]	稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
	$^{14}\text{N}_2$	328	99.3
	$^{14}\text{N} \ ^{15}\text{N}$	29	0.7
	$^{15}\text{N}_2$	30	0.0

[0156] [表4]

[0157]	编号	流量
	(1)	$2\text{Nm}^3/\text{hr}$
	(2)	7NL/hr
	(3)	$20\text{Nm}^3/\text{hr}$
	(4)	$2,000\text{Nm}^3/\text{hr}$
	(5)	$18\text{Nm}^3/\text{hr}$
	(6)	9NL/hr

[0158] [表5]

[0159]	稳定同位素分子	分子量	反应前[%]	反应后[%]
	$^{14}\text{N} \ ^{16}\text{O}$	30	99.5	99.4
	$^{14}\text{N} \ ^{17}\text{O}$	31	0.0	0.0
	$^{14}\text{N} \ ^{18}\text{O}$	32	0.2	0.2
	$^{15}\text{N} \ ^{16}\text{O}$	31	0.3	0.4
	$^{15}\text{N} \ ^{17}\text{O}$	32	0.0	0.0
	$^{15}\text{N} \ ^{18}\text{O}$	33	0.0	0.0

[0160] [表6]

[0161]	稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
	$^{14}\text{N} \ ^{16}\text{O}$	30	0.0
	$^{14}\text{N} \ ^{17}\text{O}$	31	0.0
	$^{14}\text{N} \ ^{18}\text{O}$	32	0.7
	$^{15}\text{N} \ ^{16}\text{O}$	31	0.0
	$^{15}\text{N} \ ^{17}\text{O}$	32	0.0
	$^{15}\text{N} \ ^{18}\text{O}$	33	99.3

[0162] [表7]

[0163]	稳定同位素原子	原子量	存在比率[%]
	$^{15}\text{N}$	15	99.3
	$^{18}\text{O}$	18	100.0

[0164] &lt;比较例1&gt;

[0165] 在比较例1中,使用图3所示的一氧化氮的稳定同位素浓缩装置300进行 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 的浓缩。图3所示的稳定同位素浓缩装置300与图2所示的本发明的稳定同位素浓缩装置200的不同点在于,不具备同位素交换反应器22、同位素再生流体纯化器23及其前后的线路。

[0166] 另外,稳定同位素浓缩装置300与稳定同位素浓缩装置200同样,蒸馏塔组由六个蒸馏塔构成,第一蒸馏塔1~第六蒸馏塔6是内部填充有规则填充物的蒸馏塔。

[0167] 对第一蒸馏塔1供给的原料一氧化氮的同位素比组成如上述表1中所示。

[0168] 另外,在比较例1中,从第六蒸馏塔6的塔底抽出 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 的产品,另外,从第三蒸馏塔3的塔底抽出一部分副产品。

[0169] 下述(1)~(3)所示的流量分别示于下述表8中。

[0170] (1)原料一氧化氮流量

[0171] (2) $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 产品一氧化氮抽出流量

[0172] (3)副产品的流量

[0173] 图3所示的稳定同位素浓缩装置300与图2所示的稳定同位素浓缩装置200同样,具有同位素混杂器24。

[0174] 另外,在稳定同位素浓缩装置300中,同位素浓缩气体抽出线路40的一端与第四蒸馏塔4的塔底部分连接,另一端与同位素混杂器24连接。将一氧化氮的一部分或全部从第四蒸馏塔4中抽出,供给到同位素混杂器24中。

[0175] 在同位素混杂器24中实施同位素交换反应的一氧化氮通过同位素浓缩气体送回线路41送回到第5蒸馏塔5的塔顶部分。

[0176] 冷凝器20的冷源使用液化甲烷,从液化甲烷供给线路42向各冷凝器供给液化甲烷。

[0177] 再沸器21的热源使用电加热器。

[0178] 并且,将浓缩装置整体稳定时的从作为最终段的第6蒸馏塔6送出的 $^{15}\text{N}^{18}\text{O}$ 产品的稳定同位素分子的存在比率如下述表9和表10所示。

[0179] 另外,冷凝器20和再沸器21所需的热交换量的总量为160kW。

[0180] [表8]

编号	流量
(1)	20Nm <sup>3</sup> /hr
(2)	8NL/hr
(3)	9NL/hr

[0182] [表9]

稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
$^{14}\text{N}^{16}\text{O}$	30	0.0
$^{14}\text{N}^{17}\text{O}$	31	0.0
$^{14}\text{N}^{18}\text{O}$	32	0.7
$^{15}\text{N}^{16}\text{O}$	31	0.0
$^{15}\text{N}^{17}\text{O}$	32	0.0
$^{15}\text{N}^{18}\text{O}$	33	99.3

[0184] [表10]

稳定同位素原子	原子量	存在比率[%]
$^{15}\text{N}$	15	99.3
$^{18}\text{O}$	18	100.0

[0186] 在比较例1中,由于在原料20Nm<sup>3</sup>/hr中产品总量为17NL/hr,因此需要对流量与从

第一塔的塔顶排出的原料的流量大致同量的一氧化氮进行除害处理。在氨接触还原法中，需要添加与一氧化氮同量以上的氨，由于毒性气体的处理量增加，因此伴随安全对策的实施等而制造成本变大。

[0187] 另一方面，在实施例1中，添加气体为氧和氮，排气的大部分也为由同位素再生流体纯化器23分离的氧和氮。因此，不需要进行除害处理，能够以低成本制造。另外，作为原料所需的新的一氧化氮的量也可以降低到十分之一。

[0188] 另外，实施例1和比较例1各自所需的热交换量、产品浓度、产品量大致同等。

[0189] <实施例2>

[0190] 在实施例2中，如图4所示，使用具备本发明所涉及的结构的四氟化碳的稳定同位素浓缩装置400进行 $^{13}\text{CF}_4$ 的浓缩。实施例2中使用的稳定同位素浓缩装置400与稳定同位素浓缩装置100的不同点在于，蒸馏塔组由14个蒸馏塔构成。第一蒸馏塔1~第14蒸馏塔14是内部填充有规则填充物的蒸馏塔。

[0191] 对第一蒸馏塔1供给的原料四氟化碳的同位素比组成如下述表11中所示。

[0192] 在同位素交换反应器22中填充承载有钯的碳催化剂。

[0193] 另外，作为承载到碳载体的金属，除了上述钯以外，例如也可以使用锌、镍、铯、钴、钒、钙、锰、镁、钨、钛、铂或铜等。

[0194] 另外，作为催化剂的载体，除了上述碳以外，也可以使用例如磷酸铝、氧化铝、氧化铝与氧化锆的复合体等。

[0195] 填充在同位素交换反应器22中的催化剂的量为约30kg，碳载体中的碳的同位素比组成如下述表12所示。

[0196] 另外，在实施例2中，从第14蒸馏塔14的塔底抽出 $^{13}\text{CF}_4$ 的产品。

[0197] 下述(1)~(4)所示的流量分别示于下述表13中。

[0198] (1)原料四氟化碳流量

[0199] (2) $^{13}\text{CF}_4$ 产品四氟化碳抽出流量

[0200] (3)从第一蒸馏塔1向同位素交换反应器22供给的四氟化碳的流量

[0201] (4)从同位素再生流体纯化器23向第一蒸馏塔1的中间部送回的四氟化碳的流量

[0202] 在同位素交换反应器22中，利用催化加热反应。

[0203] 同位素交换反应器22中的流动方向前后的四氟化碳的同位素比组成如下述表14所示。

[0204] 另外，在同位素再生流体纯化器23中，利用蒸馏法分离为四氟化碳和除此以外的物质。

[0205] 冷凝器20的冷源使用液化四氟化碳，从液化四氟化碳供给线路42A向各冷凝器供给液化四氟化碳。

[0206] 再沸器21的热源使用气体四氟化碳，从气体四氟化碳供给线路43向各再沸器21供给气体四氟化碳。

[0207] 浓缩装置整体稳定时的从作为最终段的第14蒸馏塔14送出的 $^{13}\text{CF}_4$ 产品的稳定同位素分子的存在比率如下述表15和表16所示。

[0208] 另外，冷凝器20和再沸器21所需的热交换量的总量为1180kW。

[0209] [表11]



[0210]	稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
	$^{12}\text{CF}_4$	88	98.9
	$^{13}\text{CF}_4$	89	1.1

[0211] [表12]

[0212]	稳定同位素原子	原子量	存在比率[%]
	$^{12}\text{C}$	12	98.9
	$^{13}\text{C}$	13	1.1

[0213] [表13]

[0214]	编号	流量
	(1)	1Nm <sup>3</sup> /hr
	(2)	59NL/hr
	(3)	20Nm <sup>3</sup> /hr
	(4)	19Nm <sup>3</sup> /hr

[0215] [表14]

[0216]	稳定同位素分子	分子量	反应前[%]	反应后[%]
	$^{12}\text{CF}_4$	88	99.3	99.0
	$^{13}\text{CF}_4$	89	0.7	1.0

[0217] [表15]

[0218]	稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
	$^{12}\text{CF}_4$	88	0.5
	$^{13}\text{CF}_4$	89	99.5

[0219] [表16]

[0220]	稳定同位素原子	原子量	存在比率[%]
	$^{13}\text{C}$	13	99.5

[0221] <比较例2>

[0222] 在比较例2中,使用图5所示的四氟化碳的稳定同位素浓缩装置500进行 $^{13}\text{CF}_4$ 的浓缩。

[0223] 图5所示的稳定同位素浓缩装置500与图4所示的本发明的稳定同位素浓缩装置400不同点在于,不具备同位素交换反应器22、同位素再生流体纯化器23及其前后的线路。

[0224] 另外,稳定同位素浓缩装置500与稳定同位素浓缩装置400同样,蒸馏塔组由14个蒸馏塔构成,第一蒸馏塔1~第14蒸馏塔14是内部填充有规则填充物的蒸馏塔。

[0225] 对第一蒸馏塔1供给的原料四氟化碳的同位素比组成如上述表11中所示。

[0226] 另外,在比较例2中,也从第14蒸馏塔14的塔底抽出 $^{13}\text{CF}_4$ 产品。

[0227] 下述(1)、(2)所示的流量分别示于下述表17中。

[0228] (1) 原料四氟化碳流量

[0229] (2)  $^{13}\text{CF}_4$ 产品四氟化碳抽出流量

[0230] 冷凝器20的冷源使用液化四氟化碳,从液化四氟化碳供给线路42A向各冷凝器供给液化四氟化碳。

[0231] 再沸器21的热源使用气体四氟化碳,从气体四氟化碳供给线路43向各再沸器21供给气体四氟化碳。

[0232] 浓缩装置整体稳定时的从作为最终段的第14蒸馏塔14送出的 $^{13}\text{CF}_4$ 产品的稳定同位素分子的存在比率如下述表18和表19所示。

[0233] 另外,冷凝器20和再沸器21所需的热交换量的总量为1170kW。

[0234] [表17]

[0235]	编号	流量
	(1)	20Nm <sup>3</sup> /hr
	(2)	59NL/hr

[0236] [表18]

[0237]	稳定同位素分子	分子量	存在比率[%]
	$^{12}\text{CF}_4$	88	0.4
	$^{13}\text{CF}_4$	89	99.6

[0238] [表19]

[0239]	稳定同位素原子	原子量	存在比率[%]
	$^{13}\text{C}$	13	99.6

[0240] 在比较例2中,需要流量为20Nm<sup>3</sup>/hr的原料四氟化碳。在该情况下,以质量换算每年需要约690吨的原料。根据“气体西洋景2020(ガスジオラマ2020)”(Gas review Co., Ltd,2020年,P88),四氟化碳在日本国内的销售量每年约为650吨,占世界整体的需求的约25%。即,在现实中,很难在一个工厂中使用世界需求的约27%的原料,工厂的规模受到限制。

[0241] 与此相对,在实施例2中,作为原料所需的四氟化碳每年约为38吨,能够大幅降低原料的使用量,是能够充分供给的原料的量。

[0242] 进一步地,在比较例2中,每年向大气中排出约680吨的四氟化碳,换算成CO<sub>2</sub>量则相当于约500万吨的排出,对环境造成的影响非常大。因此,在比较例2的情况下,需要转换为对环境的影响小的物质来排出,还增加了这部分成本。

[0243] 另一方面,在实施例2中,虽然在同位素交换反应器22中局部发现作为副产物产生的CO<sub>2</sub>等的排出,但其排出量相对于比较例2中的CO<sub>2</sub>换算非常小。

[0244] 上述结果不限于实施例1、2中的稳定同位素分子,在将本发明适用于其他稳定同位素分子的情况下也同样。即,例如,通过将本发明适用于CO、CH<sub>4</sub>、CF<sub>4</sub>、CHF<sub>3</sub>、NH<sub>3</sub>、NF<sub>3</sub>、BF<sub>3</sub>等稳定同位素的浓缩,能够降低具有毒性和可燃性的物质或因排出到大气中而产生环境负荷的排气或排液的排出量。另外,在以具有供给不稳定的物质为原料的情况下,能够降低其使用量。

[0245] 产业上的可利用性

[0246] 根据本发明的稳定同位素浓缩装置及稳定同位素浓缩方法,能够降低具有毒性和可燃性的物质或在大气中产生环境负荷的物质的排出量,并且能够降低原料的使用量。

[0247] 因此,本发明除了例如用作自然科学或医疗领域中的示踪剂的稳定同位素以外,对于提供在制药及有机合成中使用的稳定同位素、在利用了光谱学性质差异的红外和拉曼

光谱法中使用的稳定同位素也非常有用。

- [0248] 附图标记说明
- [0249] 100、200、400…稳定同位素浓缩装置
- [0250] 1、2、3、4、5、6~14、(n) …蒸馏塔(第一蒸馏塔1~第n蒸馏塔n;蒸馏塔组)
- [0251] 20…冷凝器
- [0252] 21…再沸器
- [0253] 22…同位素交换反应器
- [0254] 23…同位素再生流体纯化器
- [0255] 24…同位素混杂器
- [0256] 30…原料供给线路
- [0257] 30a…阀
- [0258] 31…产品导出线路
- [0259] 32…同位素减损流体抽出线路
- [0260] 33…同位素再生流体送回线路
- [0261] 34…同位素交换反应原料供给线路
- [0262] 35…同位素交换反应器排流体线路
- [0263] 36、37…循环线路
- [0264] 38、39…路径
- [0265] 40…同位素浓缩气体抽出线路
- [0266] 41…同位素浓缩气体送回线路
- [0267] 42…液化甲烷供给线路
- [0268] 42A…液化四氟化碳供给线路
- [0269] 43…气体四氟化碳供给线路

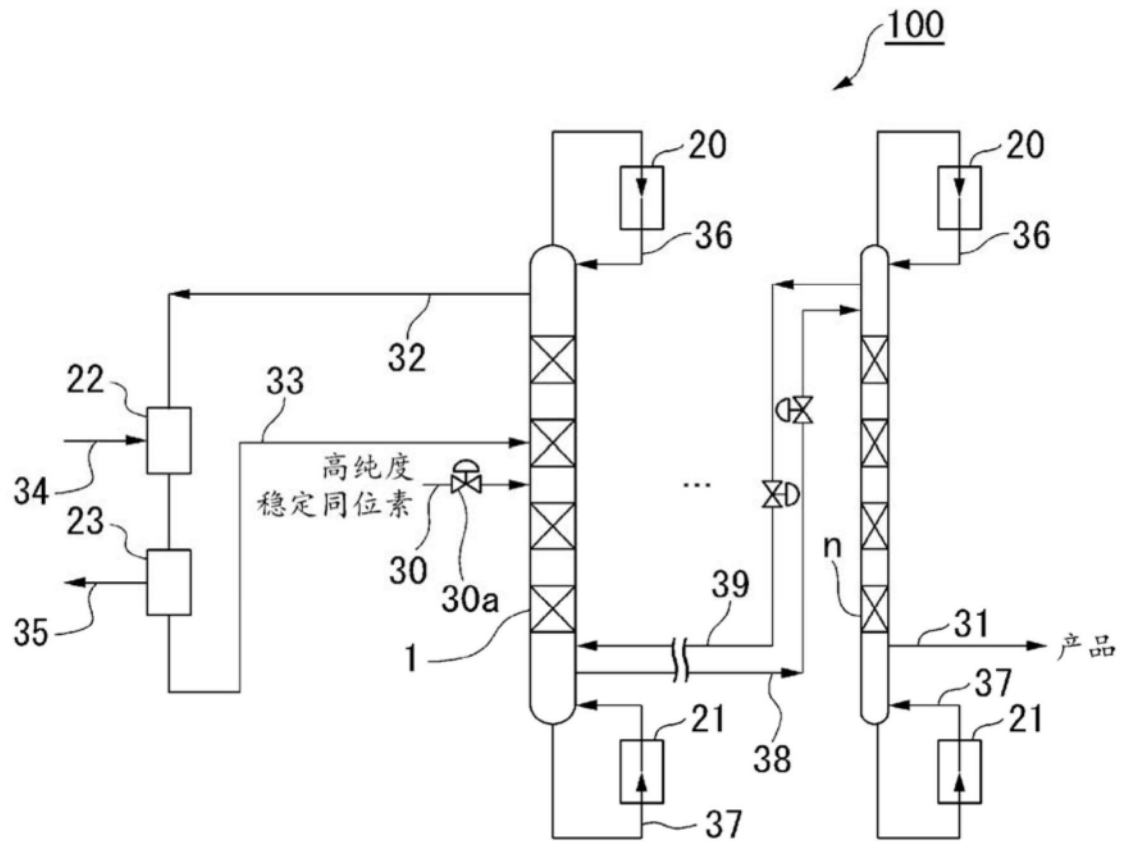


图1

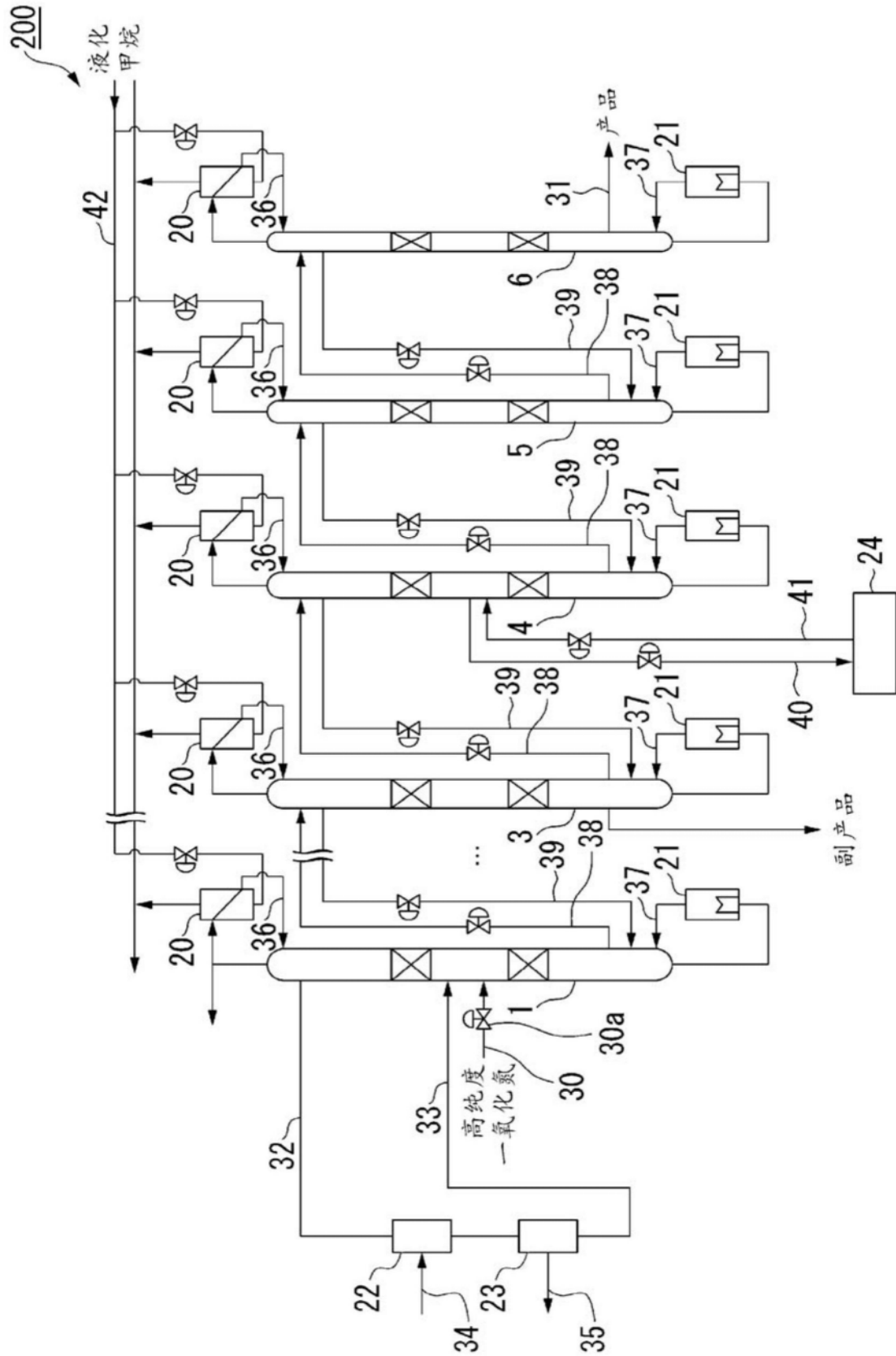


图2

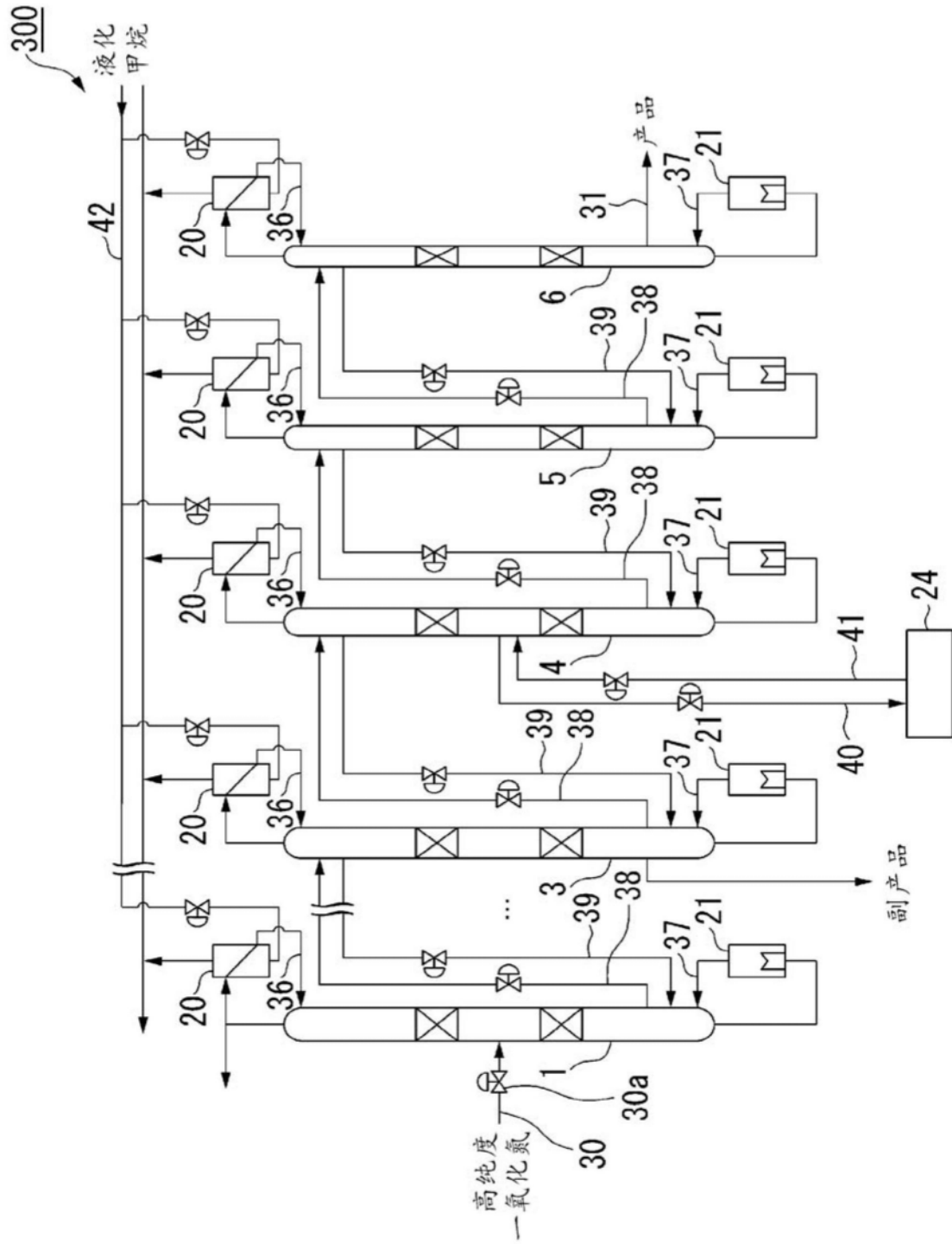


图3

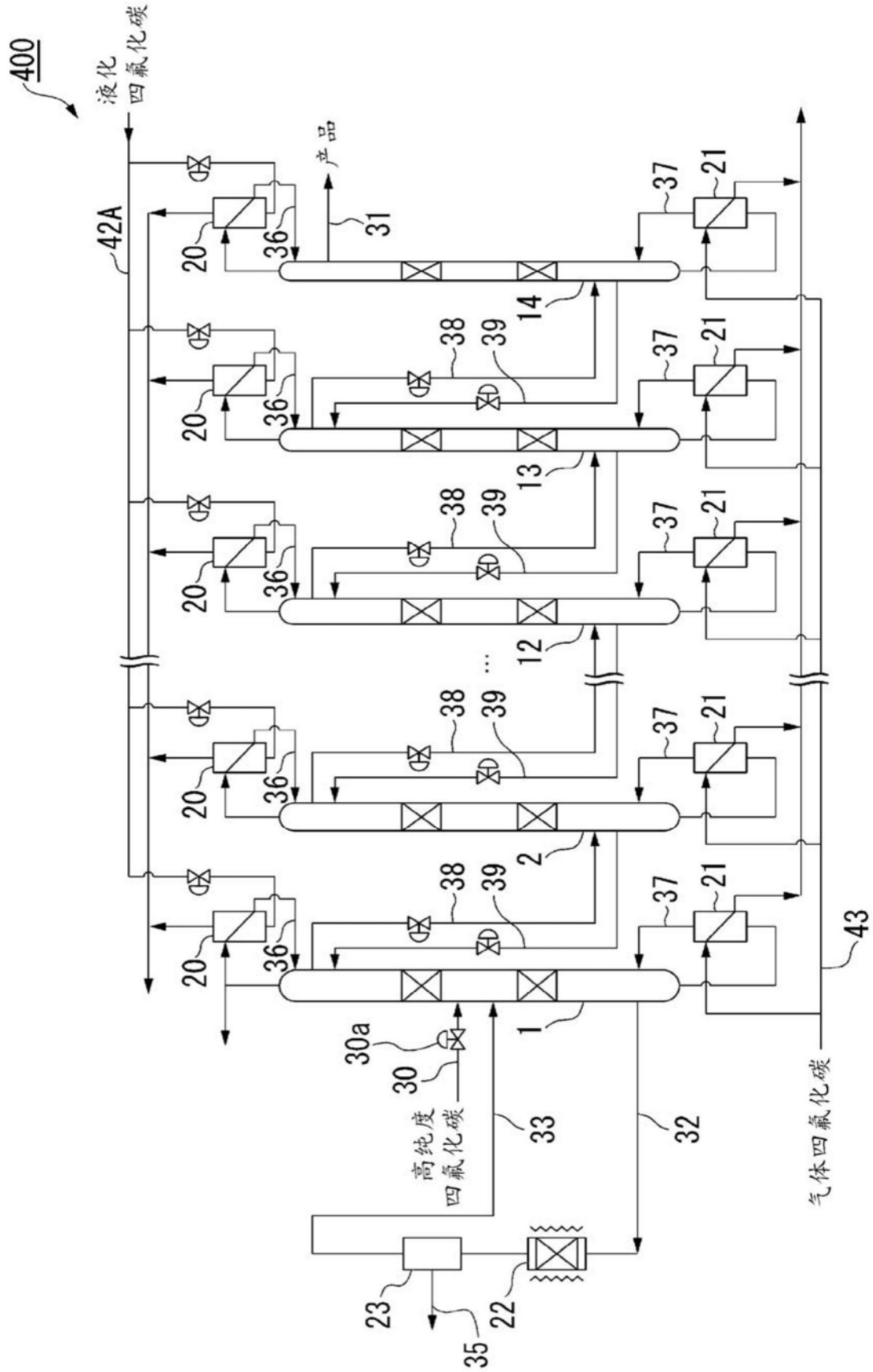


图4

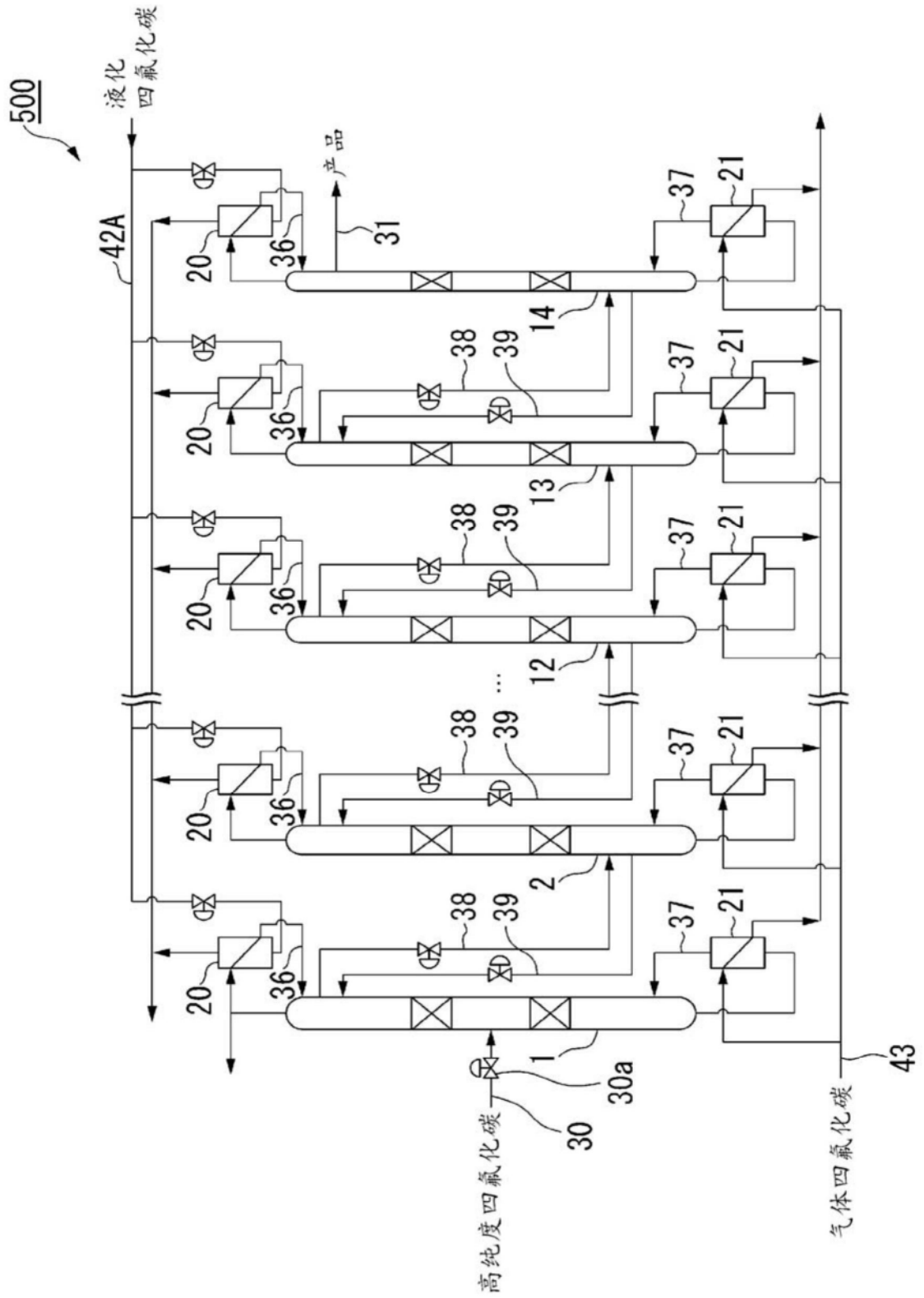


图5