

# カーボンニュートラルに向けた アンモニアの直接燃焼利用に関する研究

大阪大学 大学院工学研究科

赤松 史光

## Study on use of direct combustion of the ammonia for the carbon neutral

Fumiteru Akamatsu

Department of Mechanical Engineering, Osaka University

### 1. まえがき

私たちが利用しているエネルギーの約85%は、石油、天然ガス、石炭などの化石燃料を燃焼させることによって生み出されている<sup>1)</sup>。しかしながら、近年、化石燃料の大量消費により、地球温暖化など図1に示すように地球規模の環境問題が起こっている。

資源小国の日本にとって、エネルギー安全保障の観点から海外からの化石燃料依存を低減する必要がある。同時に地球温暖化防止に貢献するためCO<sub>2</sub>の排出量を削減することが求められている。パリ協定の批准により、2030年度に2013年度比で-26.0%の水準(約10億4,200万t-CO<sub>2</sub>)、2050年度に-80%の水準を達成することが掲げられた。このような状況において、

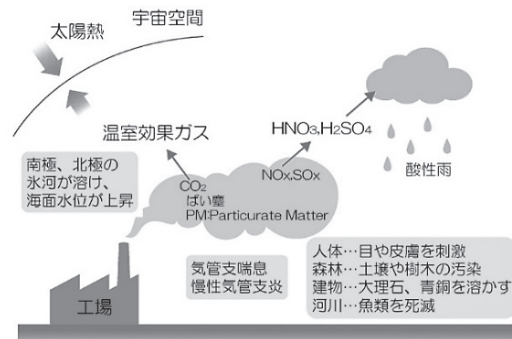


図1 化石燃料の燃焼に伴う環境問題

2018年6月に刊行されたエネルギー白書では、低炭素、脱炭素を進めるにあたって、太陽光・風力や、水素エネルギーの活用に重点が置かれている。

その後、2020年10月26日に、菅首相の所信表明演説にて、温室効果ガスの排出量を2050年までに実質ゼロにする目標が掲げられ、また、2021年4月22日に、菅首相が気候変動サミットにて、2030年度までの二酸化炭素排出量の削減目標を、2013年度比で-46.0%に大きく割り

〒565-0871

大阪府吹田市山田丘2-1

TEL 06-6879-7252

FAX 06-6879-7254

E-mail: akamatsu@mech.eng.osaka-u.ac.jp

増しすることが表明された。

このように、我が国のみならず国際的にも水素利用に関する研究開発は重要なアイテムとなっている。水素の利用はCO<sub>2</sub>を排出しないクリーンなエネルギーであることに加え、化石燃料や再生可能エネルギーから製造が可能でエネルギー供給源の安全保障にも寄与する。多くの水素を海外から調達する必要がある我が国は、水素の貯蔵や輸送に関して純水素の貯蔵・輸送の方式以外に、エネルギーを水素として含む化学物質（エネルギーキャリア）に変換し、これを消費地まで運搬・貯蔵し、必要な時に最適な形でエネルギー変換する方式が、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム（SIP）「エネルギーキャリア」（管理人：国立研究開発法人 科学技術振興機構）にて研究開発された。

## 2. エネルギーキャリアとしての水素・アンモニア

前述のように、化石燃料の代替燃料としてのエネルギーキャリアとして水素が注目を集めている。将来的には、地球上に大量に賦存する再生可能エネルギーである太陽光発電や風力発電によって安価に生み出された電気を用いて水を電気分解することにより、低コストで水素を大量生産することが可能であると考えられている。

例えば、太陽光発電であれば、全世界のエネルギー需要は、アフリカのサハラ砂漠の1/3の面積に太陽光発電パネルを敷き詰めることで満たすことができる。また、風力発電の場合、全世界の潜在的風力量は電力量にして年間9兆6700億kWh（日本の年間使用電力量の8倍）のポテンシャルを持つ。もし世界中の風力を有効利用する技術を我が国が保有すれば、日本が世界屈指のエネルギー輸出国となることも夢ではない。

しかし、高压送電線を用いた電気の輸送距離は数百km程度が限度であり、再生可能エネルギー起源の電気を全世界へ供給するためには、図2に示すような水素をはじめとするエネル

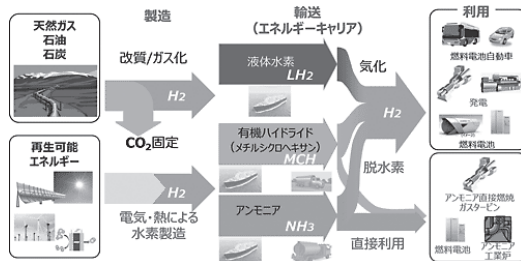


図2 CO<sub>2</sub>フリー水素バリューチェーンの構築<sup>2)</sup>

ギーキャリアに関する技術とインフラを社会に実装する必要がある。

水素は燃焼しても二酸化炭素を排出しないために、化石燃料に混合して燃焼（混焼）させれば、その分だけ二酸化炭素の排出量を削減することができ、地球温暖化防止に対して即効性がある。しかし、水素を大量に輸送・貯蔵するためには、-253℃の極低温にして液化するか、もしくは常温であれば700気圧の超高压ポンペに充填する必要がある。

そのような中、水素のキャリア（分子内に多くの水素を含む物質）として、アンモニア（NH<sub>3</sub>）が着目されている。アンモニアは、燃焼過程において二酸化炭素の排出を伴わないCO<sub>2</sub>フリーの燃料である。このことは、アンモニアの燃焼際の化学反応式が、次式で表されることから理解できる。



アンモニアは約100年前に、空気中から分離された窒素と、炭化水素などから得られる水素によるアンモニア合成法（ハーバー・ボッシュ法）が開発されたことで大量工業生産が可能となり、全世界で1年間に約1億9000万トンが生産されている。製造コストは水素1m<sup>3</sup>あたり36円から40円である。また、アンモニアは重量割合で17.8%の水素を含有しており、常温で8.5気圧程度の圧力で容易に液化することが可能であり、輸送・貯蔵に関する技術と社会インフラが既に確立されている。

アンモニアの直接燃焼に展開可能な分野としてガスタービン、レシプロエンジン、工業炉お

よび工業用バーナーがある。また火力発電所や工業事業所には一定規模のアンモニア輸送、貯蔵インフラがすでにあるので、それぞれの技術開発の成果を実用燃焼システムに速やかに応用できる位置にある。

その中で、燃焼式の工業炉からの二酸化炭素排出量は国内総排出量の約 6.2% を占めており、その CO<sub>2</sub> の排出量は年間 6600 万トンになるため、発電システムと同様にアンモニア燃焼による CO<sub>2</sub> 排出削減のインパクトは大きい。また工業炉は様々な規模の炉が存在し、小型炉から導入し、順次大型炉に展開するリスクマネジメントが可能な分野である。

しかしながら、アンモニアを燃料として使用する際には、燃焼性が低いことその他、燃料中の窒素 (N) 由来の窒素酸化物である NO<sub>x</sub> (Fuel-NO<sub>x</sub>) が多量に生成されることが懸念されていた。当研究室では、燃料を燃焼させるための酸化剤として利用される空気中の酸素濃度を高める“酸素富化燃焼”によりアンモニアの低燃焼性を克服し、また、二段燃焼技術や燃焼装置内の排気ガスの再循環技術によって、NO<sub>x</sub> 排出濃度を環境基準以下とする燃焼を実現することに成功している<sup>(3-8)</sup>。

### 3. 工業炉におけるアンモニア直接燃焼利用

アンモニアを燃料として工業炉に利用する際、従来の炭化水素系燃料に比べて、(1) 燃焼性が低い、(2) 高濃度の NO<sub>x</sub> の発生、(3) 燃料に炭素を含まないことによる輻射強度の低下、などの課題があった。以下では、上記の 3 つの課題解決に向けた研究について述べる。

ボイラーや燃焼炉での利用を想定した際に、アンモニア燃焼時の輻射が従来燃料よりも弱い場合には、輻射を強化するなどの対策が必要である。また、前節で述べた酸素富化燃焼によって、輻射能に影響を与える温度を上昇させることができれば、アンモニア燃焼時に課題となる輻射熱流束を強化できると考えられる。そこで、

燃焼炉、ボイラーを模擬した 10 kW 小型モデル工業炉を用いてアンモニア燃焼に酸素富化燃焼を適用し、アンモニア燃焼時の輻射熱流束およびスペクトル計測により、酸素富化による輻射強度の強化の可能性を実験的に明らかにした。

実験装置は、10 kW 小型モデル工業炉、輻射熱流束計測計、赤外領域スペクトル計測計 (FT-IR Rocket 2.5 - 12 μm, ARCOptix S.A.) からなるが、ここでは自作した 10kW 小型モデル工業炉について説明する。

10 kW 小型モデル工業炉の写真と構成を図 3 と図 4 に示す。

炉は全長が 1000 mm で、内部は断熱材に囲われている。炉の上部には 6 箇所熱電対設置用のポートが、炉の下部には輻射熱流束の計測や輻射スペクトルの計測を行うための 6 箇所ポートを設けている。

バーナーに取り付けられたノズルは 2 重管構造となっており、燃料は内側の管から、酸化剤は外側の管から燃焼場に供給され、同軸噴流拡散火炎を形成される。

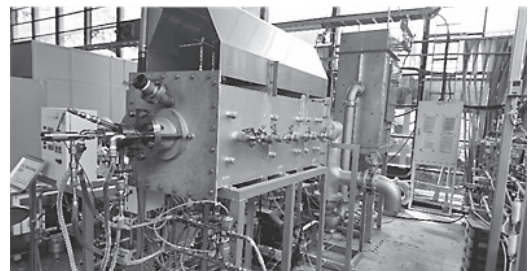


図 3 10 kW 小型モデル工業炉の写真

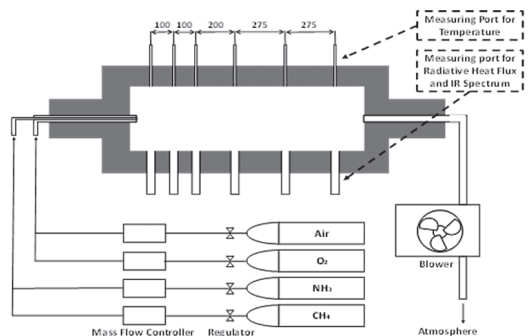


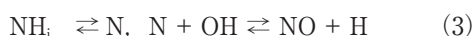
図 4 10 kW 小型モデル工業炉の構成

#### 4. 二段燃焼による NOx 低減

NOx の発生は炭化水素系燃料では、空気中の窒素が高温域 (1500 °C 以上) で生成される Thermal-NOx と呼ばれる式 (2) で表される反応が支配的である。



一方、アンモニアを燃料として利用した際に生成する NOx は、燃料由来の窒素が酸化されて NOx となる Fuel-NOx が支配的であり、その生成機構は、式 (3) で示される。



多くの工業炉の使用温度領域は 1000 °C ~ 1500 °C とガスタービンに比べ比較的低温である。従来の炭化水素系燃料用に設計された工業炉にてアンモニア燃焼させた場合、式 (3) で示した Fuel-NOx が支配的であるため、低温であるにもかかわらず大量の NOx が発生する。このような状況で、我々は二段燃焼法をアンモニア燃焼に適用し大幅な NOx 削減効果を得て、現行の工業炉に関する環境基準をクリアしたアンモニア燃焼を実現した。(図 5)

一般に二段燃焼法は、「酸化剤を複数位置から供給することにより燃焼領域を燃料過濃領域と燃料希薄領域 2 つの領域に分けて局所的な高温領域の形成を回避させることで NOx の生成を抑制する」燃焼手法である。

本研究には前述した 10 kW 級モデル燃焼炉 (図 4) を用いた。二段燃焼を行うにあたり、図 6 に示すように燃料と 1 次酸化剤が同軸 2 重管となったバーナーと、その左右に 2 次酸化剤導入のためのノズルを有している。

前述の図 5 に示すように、本バーナー構成、燃料及び 2 次酸化剤導入条件によって NOx 排出量 (O<sub>2</sub> 11% 換算) が大きく変化することが明らかとなった。メタン燃焼時と比較するとアンモニア燃焼に本研究で開発した二段燃焼を採用することで大幅に NOx を削減可能である。本研究での 10 kW 級モデル燃料炉の炉内温度は、メタン燃焼時に比べて、約 50 ~ 100 °C しか低下

しておらず、従来の二段燃焼の考え方である局所的な高温域の形成を回避させ燃焼を緩慢にした現象だけでは、このアンモニア燃焼時の NOx の低減は説明がつかない。

工業炉におけるアンモニア燃焼時の NOx 削減のメカニズムは、以下のように考えている。燃焼炉の上流域で、酸化剤の供給を 1 次側と 2 次側に分割している。燃料と 1 次酸化剤が供給された火炎近傍の燃焼領域は燃料過濃な状態であり、意図的に未燃アンモニアあるいは、アンモニアの中間生成物の生成を可能とした。生成された未燃アンモニアもしくは中間生成物を炉下流まで流動させ、NOx を式 (4)、式 (5) で表される反応により還元している。



中間生成物を Lindstedt のメカニズムに基づき次元自由伝搬火災モデルを適用して詳細素反応経路図の導出を行った。図 7 にその結果を示す。アンモニアの中間生成物として、NH<sub>2</sub>、NH、HNO などが挙げられる。図 7 に示すよう

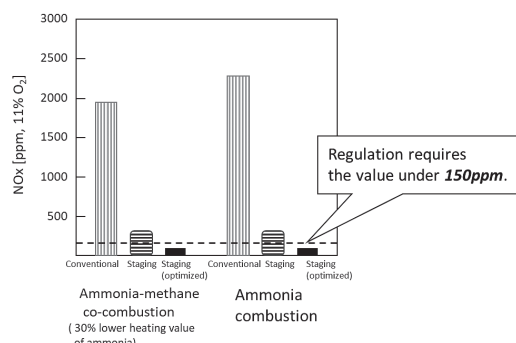


図 5 二段燃焼による NOx 排出量の低減

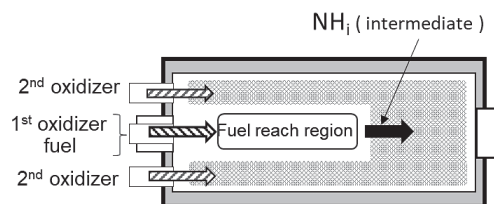


図 6 10 kW 小型モデル工業炉の構成 (二段燃焼用)



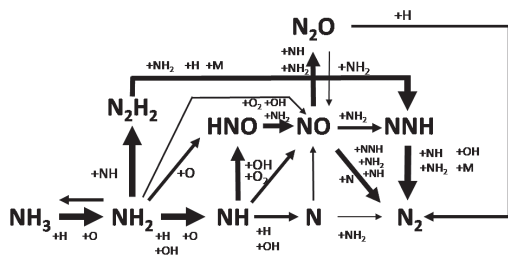


図7 詳細素反応の経路図

に、生成されたNOは、式(4)、式(5)の反応により、 $N_2$ に還元される反応経路が存在する。

なお、10kW工業炉で実証した結果を、実働する工業炉のバーナー規模に近い100kW級モデル工業炉において同等の効果が再現することを確認した。

## 5. 結言

工業炉において、アンモニアを燃料として直接燃焼させる場合の課題であった(1)低燃焼速度による燃焼の不安定性、(2)輻射強度の低下、(3)多量のNO<sub>x</sub>の発生について、(1)、(2)に関しては酸素富化燃焼により、(3)に関しては二段燃焼法を適用することで解決されることを明らかにした。

## 6. おわりに

昨今、シェールガスやシェールオイルをはじめとする非在来型の化石燃料の生産技術が確立され、数十年のオーダーでは、現在のように化石燃料が安価で安定的に供給されることが予測されているが、自国に化石資源がほとんどない日本が、水素社会が到来した後も工業国として生き残っているためには、現時点での目先の利便性や利益を求めめるだけではなく、水素やアンモニアといったエネルギーキャリアのバリューチェーンの構築を世界に先んじて成し遂げ、これらの非化石燃料の燃焼技術でも世界をリードするための先行投資が求められていると言える。

謝辞：本研究は国立研究開発法人科学技術振興

機構戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)により行われた。本研究の遂行にあたり、大陽日酸株式会社(株)、大阪大学 燃焼工学研究室の関係各位にご尽力をいただいた。

## 文献

- 1) 資源エネルギー庁；“令和2年度エネルギーに関する年次報告”(エネルギー白書2021), <https://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2021/pdf/>, (参照2021-11-19)。
- 2) 村木 茂；“水素社会に向けた取り組み”, (国研)科学技術振興機構, [https://scienceportal.jst.go.jp/columns/opinion/20150522\\_02.html](https://scienceportal.jst.go.jp/columns/opinion/20150522_02.html) (参照2021-11-19)。
- 3) 大阪大学, (国研)科学技術振興機構；“世界初！アンモニアと混焼する微粉炭の詳細燃焼挙動を明らかに～再生可能エネルギーの利用拡大につながる新たな知見～”, 科学技術振興機構, <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20161031/index.html>, (参照2000-00-00)。
- 4) 大陽日酸(株), 大阪大学, (国研)科学技術振興機構；“工業炉分野で化石燃料の代替燃料, アンモニアの社会実装に一步近づく—NO<sub>x</sub>の発生量を抑制する「アンモニア燃焼技術」を開発”, 科学技術振興機構, <http://www.jst.go.jp/pr/announce/20161031-2/index.html>, (参照2000-00-00)。
- 5) 大陽日酸(株), 日新製鋼(株), 大阪大学, (国研)科学技術振興機構；“工業炉におけるCO<sub>2</sub>排出量削減に向けた, アンモニア燃焼利用技術を開発～連続垂鉛めっき銅板製造工程における実証評価に目途～”, <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20170626/index.html>, (参照2000-00-00)。
- 6) Hiroyuki Takeishi, Jun Hayashi, Masashi Suzuki, Kimio Iino, Fumiteru Akamatsu; Measurement of Ammonia/N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> Laminar Burning Velocity Under Oxygen-enriched Air Condition, Proc. Grand Renewable Energy 2014, (2014.7.27)。
- 7) Hiroyuki Takeishi, Jun Hayashi, Kimio Iino and Fumiteru Akamatsu; Combustion Characteristics of Ammonia/N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> Mixture in Oxygen-enriched Air Condition, INFUB2015, (2015.04.08)。
- 8) Ryuichi Murai, Ryohei Omori, Ryuki Kano, Yuji Tada, Hidetaka Higashino, Noriaki Nakatsuka, Jun Hayashi, Fumiteru Akamatsu, Kimio Iino, Yasuyuki Yamamoto; The radiative characteristics of NH<sub>3</sub>/N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> non-premixed flame on a 10 kW test furnace, Energy Procedia, Vol. 120 pp. 325-332 (2017)。