

明 細 書

発明の名称： アンモニア分解装置

技術分野

[0001] 本開示は、アンモニア分解装置に関する。

本願は、2021年1月14日に日本国特許庁に出願された特願2021-004399号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 特許文献1には、アンモニアを通過させながら触媒層を外部から加熱することで、アンモニアを水素と窒素とに分解するアンモニア分解装置が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2019-167265号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、アンモニア100%の原料を使用する場合のようにアンモニア濃度が高い環境下において、アンモニアを分解する温度である500～600℃では、アンモニアと鉄系材料とが反応して鉄系材料が窒化し、機械的強度が低下する。そうすると、例えば触媒を充填している管が鉄系材料の場合には、管の機械的強度が低下して、管の破断につながるおそれがあった。

[0005] 上述の事情に鑑みて、本開示の少なくとも1つの実施形態は、アンモニアの分解が行われる反応器の材料の窒化を抑制できるアンモニア分解装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記目的を達成するため、本開示に係るアンモニア分解装置は、原料であるアンモニアを水素と窒素とに分解する分解反応の触媒が充填された反応器

と、前記原料が前記触媒に流入する前に、アンモニア濃度が前記原料よりも低い希釈ガスと前記原料とが混合するように、前記希釈ガスを供給するための希釈ガス供給ラインと、前記アンモニアの一部を燃焼させるアンモニア燃焼器とを備え、前記反応器は、前記触媒を収容する触媒収容部を備え、前記反応器の内部は、前記原料が供給される第1室と、前記原料が流通する方向において前記第1室よりも下流側の第2室とに仕切られており、前記触媒収容部は、前記第1室及び前記第2室のそれぞれに連通するとともに前記第2室内を延びるように設けられ、前記分解反応によって前記原料から生成した粗分解ガスが流出ガスとして前記反応器から流出後に流通する流出ガスラインは、前記触媒収容部が前記第2室と連通する連通部分よりも上流側で前記第2室に連通し、前記アンモニア燃焼器からの燃焼ガスは前記第2室に供給される。

発明の効果

[0007] 本開示のアンモニア分解装置によれば、反応器内のアンモニア濃度が希釈ガスによって低下するので、アンモニアの分解が行われる反応器を構成する材料の窒化を抑制できる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]本開示の実施形態1に係るアンモニア分解装置の構成図である。

[図2]本開示の実施形態1に係るアンモニア分解装置の反応器の断面図である。

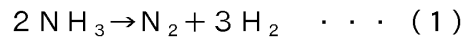
[図3]本開示の実施形態1に係るアンモニア分解装置の反応器の変形例の部分断面図である。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本開示の実施の形態によるアンモニア分解装置について、図面に基づいて説明する。かかる実施の形態は、本開示の一態様を示すものであり、この開示を限定するものではなく、本開示の技術的思想の範囲内で任意に変更可能である。

[0010] <本開示の実施形態1に係るアンモニア分解装置の構成>

図 1 に示されるように、本開示の実施形態 1 に係るアンモニア分解装置 1 は、原料であるアンモニアを、下記反応式 (1) で示される反応によって水素と窒素とに分解する装置である。アンモニア分解装置 1 は、反応式 (1) で示されるアンモニアの分解反応の触媒 3 が充填された反応器 2 を備えている。



[0011] 反応器 2 には、原料を反応器に供給する原料供給ライン 4 が接続されている。原料供給ライン 4 には、液体アンモニアを貯蔵する図示しない貯蔵設備から供給された液体アンモニアを蒸発させて気体のアンモニアに蒸発させる蒸発器 5 が設けられている。また、反応器 2 には、反応器 2 から流出した流出ガスが流通する流出ガスライン 6 の一端が接続されている。流出ガスは、反応式 (1) によれば、窒素と水素と未反応のアンモニアとを含んでいる。

[0012] 流出ガスライン 6 の他端は、アンモニア回収装置 7 に接続されている。アンモニア回収装置 7 の構成は特に限定するものではなく、例えば水スクラバーや圧力変動吸着 (PSA) 装置等であってもよい。流出ガスライン 6 には、アンモニア回収装置 7 よりも上流側に、流出ガスを冷却するための冷却器 8 が設けられている。冷却器 8 は例えば、蒸発器 5 に流入する前の液体アンモニアと流出ガスとを熱交換する熱交換器であってもよい。この構成によれば、流出ガスが冷却されるとともに液体アンモニアが昇温されるので、蒸発器 5 で液体アンモニアを昇温するためのエネルギーを低減することが可能になる。

[0013] アンモニア回収装置 7 で回収された液体アンモニアを蒸発器 5 よりも上流側で原料供給ライン 4 に戻すために、回収アンモニアライン 9 が設けられている。アンモニア回収装置 7 で流出ガスからアンモニアを除去して生成した精製分解ガスを、例えば水素ステーションのような分解ガス消費設備に供給するための精製分解ガスライン 10 の一端がアンモニア回収装置 7 に接続されている。冷却器 8 とアンモニア回収装置 7 との間で流出ガスライン 6 に一端が接続されるとともに他端が原料供給ライン 4 に接続される流出ガスリサ

イクルライン 1 1 が設けられている。流出ガスリサイクルライン 1 1 には、圧縮機 1 2 が設けられている。

[0014] 図 2 に示されるように、反応器 2 の内部は、仕切部材 3 1 によって、第 1 室 2 3 と、反応器 2 内を原料が流通する方向において第 1 室 2 3 よりも下流側の第 2 室 2 4 とに仕切られている。原料供給ライン 4 は第 1 室 2 3 に連通し、流出ガスライン 6 は第 2 室 2 4 に連通している。第 2 室 2 4 内には、複数の管状の収容管 2 6 a を含む触媒収容部 2 6 が、それぞれの一端 2 6 b が仕切部材 3 1 に固定されるとともに一端 2 6 b 側から他端 2 6 c 側に向かって第 2 室 2 4 内を延びるようにして設けられている。触媒 3 が収容された収容管 2 6 a のそれぞれは、一端 2 6 b 側が第 1 室 2 3 に連通するとともに他端 2 6 c 側が第 2 室 2 4 に連通している。流出ガスライン 6 は、各収容管 2 6 a が第 2 室 2 4 と連通する連通部分である他端 2 6 c よりも上流側で第 2 室 2 4 に連通している。

[0015] 蒸発器 5 の上流側において原料供給ライン 4 からアンモニア分岐ライン 1 3 が分岐しており、アンモニア分岐ライン 1 3 は反応器 2 の第 2 室 2 4 に連通している。アンモニア分岐ライン 1 3 には、アンモニアを燃焼するためのアンモニア燃焼器 1 4 が設けられ、アンモニア燃焼器 1 4 には、アンモニア燃焼器 1 4 に空気を供給するための圧縮機 1 5 が連通している。

[0016] <本開示の実施形態 1 に係るアンモニア分解装置の動作>

次に、図 1 及び図 2 を参照しながら本開示の実施形態 1 に係るアンモニア分解装置 1 の動作を説明する。原料供給ライン 4 を流通する液体アンモニアの一部はアンモニア分岐ライン 1 3 に流入し、残りは蒸発器 5 に流入する。蒸発器 5 に流入した液体アンモニアは、蒸発してアンモニアガスとなった後、流出ガスリサイクルライン 1 1 を介して原料供給ライン 4 に供給された流出ガスと混合されて、混合ガスとして反応器 2 の第 1 室 2 3 内に流入する。第 1 室 2 3 内に流入した混合ガスは、収容管 2 6 a に流入し、収容管 2 6 a 内を流通して、収容管 2 6 a の他端 2 6 c から第 2 室 2 4 へ粗分解ガスとして流出する。

- [0017] 一方、アンモニア分岐ライン 13 に流入した液体アンモニアは、アンモニア燃焼器 14 において、圧縮機 15 から供給された空気によって燃焼されて、主成分として窒素及び水を含む高温の燃焼ガスとなり、反応器 2 の第 2 室 24 に流入する。第 2 室 24 に流入した燃焼ガスは、収容管 26 a の他端 26 c から第 2 室 24 へ流出した粗分解ガスとともに第 1 室 23 側に向かって移動する。ここで、燃焼ガスと粗分解ガスとが混合された状態で 500～700℃になるように、アンモニア燃焼器 14 におけるアンモニアの燃焼条件を調整することが好ましい。
- [0018] 燃焼ガス及び粗分解ガスが第 2 室 24 内を第 1 室 23 側に向かって移動する際に、触媒 3 及び混合ガスが加熱される。この際、各収容管 26 a 内の混合ガスの流れる方向と燃焼ガス及び粗分解ガスの流れる方向とは対向流の関係にあるので、混合ガスの加熱効率が低い。収容管 26 a 内に流入した混合ガス中のアンモニアの少なくとも一部は、触媒 3 による触媒作用によって反応式 (1) で示されるアンモニアの分解反応が生じることで、水素及び窒素に分解され、粗分解ガスとして各触媒収容部 26 から第 2 室 24 に流出する。触媒 3 を加熱した燃焼ガス及び粗分解ガスは、流出ガスとして第 2 室 24 から流出し、流出ガスライン 6 を流通する。
- [0019] 流出ガスライン 6 を流通する流出ガスは、冷却器 8 で冷却された後、一部が流出ガスリサイクルライン 11 に流入し、残りはアンモニア回収装置 7 に流入する。アンモニア回収装置 7 では、流出ガスからアンモニアが回収され、水素と窒素と回収されなかった微量のアンモニアとアンモニア回収装置 7 が水スクラバーの場合には少量の水とを含む精製分解ガスは、精製分解ガスライン 10 を介して分解ガス消費設備に供給され、回収されたアンモニアは、回収アンモニアライン 9 を介して蒸発器 5 よりも上流側で原料供給ライン 4 に供給される。
- [0020] 流出ガスリサイクルライン 11 に流入した流出ガスは、圧縮機 12 によって昇圧されて、原料供給ライン 4 に流入する。原料供給ライン 4 内においてアンモニアガスと流出ガスとが混合するが、アンモニアガスが 100% のア

ンモニアの場合、流出ガスにはアンモニアの他に水素及び窒素が含まれているから、前者のアンモニア濃度よりも後者のアンモニア濃度の方が低いので、アンモニアガスと流出ガスとの混合ガス中のアンモニア濃度は、原料として供給されるアンモニアガスのアンモニア濃度よりも低くなる。すなわち、流出ガスリサイクルライン 11 を介して原料供給ライン 4 内に流入する流出ガスは、第 1 室 23 内に流入するアンモニアガスを希釈する希釈ガスとして機能する。

[0021] 一般に、アンモニア濃度が高くなるほど、及び、温度が高くなるほど、アンモニアによる窒化反応が起きやすくなるが、本開示の実施形態 1 に係るアンモニア分解装置 1 では、反応器 2 内のアンモニア濃度が、流出ガスリサイクルライン 11 を介して供給される流出ガスによって低下するので、反応器 2 を構成する材料の窒化を抑制することができる。また、混合ガスが触媒 3 を通過して生成した粗分解ガス及び燃焼ガスの熱によって触媒 3 が加熱されるので、触媒 3 を加熱するための装置を不要とすることができる。

[0022] <本開示の実施形態 1 に係るアンモニア分解装置の変形例>

実施形態 1 では、希釈ガスとして、アンモニア回収装置 7 に流入する前の流出ガスを使用しているが、この形態に限定するものではない。アンモニア回収装置 7 から流出した精製分解ガスを希釈ガスとして使用してもよい。精製分解ガスも流出ガスからアンモニアを回収したガスであるので、反応器 2 から流出した流出ガスであると言える。また、実施形態 1 では、図示しない貯蔵設備に貯蔵された濃度 100% の液体アンモニアを蒸発器 5 において気体のアンモニアに蒸発させていたが、濃度 100% の液体アンモニアを蒸発器 5 に供給することに限定するものではなく、少量の混合物が混合した主成分がアンモニアの液体を蒸発器 5 に供給するようにしてもよい。

[0023] 実施形態 1 では、アンモニア燃焼器 14 において、原料供給ライン 4 を流通する液体アンモニアの一部のみを燃焼しているが、この形態に限定するものではない。液体アンモニアの一部と反応器 2 から流出した流出ガス（精製分解ガスでもよい）の一部とがアンモニア燃焼器 14 において燃焼されるよ

うに構成されてもよい。一般にアンモニアは燃焼しにくいので、アンモニアのみをアンモニア燃焼器 1 4 で燃焼させても、所望の温度の燃焼ガスを得難い場合がある。これに対し、上記構成によれば、流出ガスには燃焼しやすい水素が含まれていることから、アンモニア燃焼器 1 4 でアンモニアが燃焼しやすくなるので、所望の温度の燃焼ガスが得やすくなる。

[0024] 実施形態 1 では、流出ガスリサイクルライン 1 1 は、原料供給ライン 4 に接続されているが、この形態に限定するものではない。流出ガスリサイクルライン 1 1 は第 1 室 2 3 に連通するように反応器 2 に接続されてもよい。

[0025] 実施形態 1 では、流出ガスリサイクルライン 1 1 は、原料供給ライン 4 に接続されても、第 1 室 2 3 に連通するように反応器 2 に接続されてもよいが、以下の理由で前者の構成の方が好ましい。後者の構成では、第 1 室 2 3 内に原料供給ライン 4 からアンモニアガスが流入することにより、アンモニアガスの一部が仕切部材 3 1 や収容管 2 6 a の一端 2 6 b に吹きかかるので、それにより仕切部材 3 1 や収容管 2 6 a が窒化するおそれがある。これに対し、前者の構成では、原料供給ライン 4 内で予めアンモニアが希釈された状態で第 1 室 2 3 内に流入するので、後者の構成に比べて窒化のおそれを低減することができる。

[0026] 実施形態 1 において、反応器 2 の内面 2 a を煉瓦、耐火煉瓦、耐火セメント等のような耐火材で覆ってもよい。ただし、実施形態 1 ではアンモニアによる窒化が生じる可能性があるのは触媒収容部 2 6 内であるため、反応器 2 の内面 2 a の全面を耐火材で覆ってしまうと、作用効果の観点から不要なコスト増となってしまう。ただし、図 3 に示されるように、原料供給ライン 4 及び流出ガスリサイクルライン 1 1 が第 1 室 2 3 に連通するように反応器 2 に接続されている場合、反応器 2 の第 1 室 2 3 の内部の温度によっては、反応器 2 の内面 2 a のうち、原料供給ライン 4 と反応器 2 との接続部分 2 b が窒化してしまうおそれがある。これに対し、接続部分 2 b を取り囲むように内面 2 a を部分的に耐火材 4 4 で覆うようにすれば、接続部分 2 b の温度の上昇が耐火材 4 4 によって抑制されるので、必要以上のコストを要せずに、

接続部分 2 b が窒化してしまうおそれを低減することができる。

[0027] 実施形態 1 では、希釈ガスは、反応器 2 から流出した流出ガス（粗分解ガス又は精製分解ガス）であったが、流出ガスに限定するものではない。流出ガスとは異なる希釈ガスを別途用意し、希釈ガスの供給源と反応器 2 又は原料供給ライン 4 とを連通する希釈ガス供給ラインを設けてもよい。尚、希釈ガスとして流出ガスを使用する場合は、流出ガスリサイクルライン 11 が希釈ガス供給ラインを構成する。

[0028] 流出ガス以外の希釈ガスとしては、窒素ガス及び水素ガスを使用することができ、水素ガスとしては、水素パイプラインによる水素ガスを使用してもよい。その他には、（１）メタンやメタノールを水蒸気改質して得られた水素を含むガス、（２）石炭ガス化ガス、（３）高炉ガス、（４）コークス炉ガス、（５）上記（１）～（４）のガスに対して水性ガスシフト反応によって水素を増加させたガス、（６）上記（５）のガスから二酸化炭素を除去したガス、（７）上記（６）のガスから水分を除去したガス、（８）ナフサの接触改質により得られる水素を含むガス、（９）水の電気分解により得られる水素を含むガス、（１０）メタンの熱分解反応によって得られる水素を含むガスのように、他の水素製造プロセスで生成した水素を含むガスを使用することができる。さらにその他には、アンモニアを熱分解する外部のプラントで得られた水素を含むガスや、アンモニアをオートサーマル法で分解する外部のプラントで得られた水素を含むガスのように、外部のアンモニア分解プロセスで得られた水素を含むガスを使用することができる。

[0029] 実施形態 1 におけるアンモニアの分解反応では、水素及び窒素のみが生成されるため、二酸化炭素を排出しない。また、実施形態 1 のアンモニア燃焼器 14 及び実施形態 4 の燃焼器 51 では、アンモニア及び水素が燃焼されるので、二酸化炭素を排出しない。このように、実施形態 1 で化石燃料を使用せず、希釈ガスとして流出ガスを使用する限りでは、アンモニア分解装置 1 の原料がアンモニアのみで完結し、二酸化炭素を排出しないので、アンモニア分解装置 1 はカーボンフリーのプロセスとして好ましい形態である。

[0030] 上記各実施形態に記載の内容は、例えば以下のように把握される。

[0031] [1] 一の態様に係るアンモニア分解装置は、

原料であるアンモニアを水素と窒素とに分解する分解反応の触媒（３）が充填された反応器（２）と、

前記原料が前記触媒（３）に流入する前に、アンモニア濃度が前記原料よりも低い希釈ガスと前記原料とが混合するように、前記希釈ガスを供給するための希釈ガス供給ライン（１１）と、

前記アンモニアの一部を燃焼させるアンモニア燃焼器（１４）とを備え、

前記反応器（２）は、前記触媒（３）を収容する触媒収容部（２６）を備え、

前記反応器（２）の内部は、第１室（２３）と、前記原料が流通する方向において前記第１室（２３）よりも下流側の第２室（２４）とに仕切られており、

前記触媒収容部（２６）は、前記第１室（２３）及び前記第２室（２４）のそれぞれに連通するとともに前記第２室（２４）内を延びるように設けられ、

前記分解反応によって前記原料から生成した粗分解ガスが流出ガスとして前記反応器（２）から流出後に流通する流出ガスライン（６）は、前記触媒収容部（２６）が前記第２室（２４）と連通する連通部分（収容管２６aの他端２６c）よりも上流側で前記第２室（２４）に連通し、前記アンモニア燃焼器（１４）からの燃焼ガスは前記第２室（２４）に供給される。

[0032] 本開示のアンモニア分解装置によれば、反応器内のアンモニア濃度が希釈ガスによって低下するので、アンモニアの分解が行われる反応器を構成する材料の窒化を抑制できる。また、アンモニアが触媒を通過して生成した粗分解ガス及び燃焼ガスの熱によって触媒が加熱されるので、触媒を加熱するための装置を不要とすることができる。

[0033] [2] 別の態様に係るアンモニア分解装置は、[1]のアンモニア分解装置

であって、

前記希釈ガスは、前記反応器（２）から流出した流出ガスの一部である。

[0034] このような構成によれば、希釈ガスを別途用意する場合に比べて、アンモニア分解装置の運転コストを低下することができる。

[0035] [３] さらに別の態様に係るアンモニア分解装置は、[１] または[２] のアンモニア分解装置であって、

前記原料の一部と前記反応器（２）から流出した流出ガスの一部とが前記アンモニア燃焼器（１４）において燃焼されるように構成されている。

[0036] 一般にアンモニアは燃焼しにくいので、アンモニアのみをアンモニア燃焼器で燃焼させても、所望の温度の燃焼ガスを得難い場合がある。これに対し、上記[３] の構成によれば、流出ガスには燃焼しやすい水素が含まれていることから、アンモニア燃焼器でアンモニアが燃焼しやすくなるので、所望の温度の燃焼ガスが得やすくなる。

[0037] [４] さらに別の態様に係るアンモニア分解装置は、[１] ～[３] のアンモニア分解装置であって、

前記原料を前記反応器（２）に供給する原料供給ライン（４）を備え、

前記希釈ガス供給ライン（１１）の下流端は前記原料供給ライン（４）に接続されている。

[0038] このような構成によれば、反応器に流入する前にアンモニア濃度を低下することができるので、アンモニアの分解が行われる反応器を構成する材料の窒化をさらに抑制できる。

[0039] [５] さらに別の態様に係るアンモニア分解装置は、[１] ～[３] のアンモニア分解装置であって、

前記希釈ガス供給ライン（１１）の下流端は前記反応器（２）に接続されている。

[0040] 前記希釈ガス供給ラインを流通する間に希釈ガスが昇温される場合には、原料供給ラインに希釈ガスが供給されると、その熱によってアンモニアと原料供給ラインの材料とが反応して、原料供給ラインの材料が窒化してしまう

おそれがある。これに対し、上記〔５〕の構成によれば、アンモニアと希釈ガスとは別々に反応器に流入するので、原料供給ラインの材料が窒化してしまうおそれを低減することができる。

[0041] 〔６〕さらに別の態様に係るアンモニア分解装置は、〔５〕のアンモニア分解装置であって、

前記原料を前記反応器（２）に供給する原料供給ライン（４）を備え、

前記反応器（２）の内面（２ a）は、前記原料供給ライン（４）と前記反応器（２）との接続部分（２ b）を取り囲むように、少なくとも部分的に耐火材（４ ４）で覆われている。

[0042] 上記〔５〕の構成によれば、原料供給ラインの材料が窒化してしまうおそれを低減することができるものの、反応器の内部の温度によっては、原料供給ラインと反応器との接続部分が窒化してしまうおそれがある。これに対し、上記〔６〕の構成によれば、上記接続部分の温度の上昇が耐火材によって抑制されるので、上記接続部分が窒化してしまうおそれを低減することができる。

符号の説明

- [0043] １ アンモニア分解装置
- ２ 反応器
- ２ a （反応器の）内面
- ２ b 接続部分
- ３ 触媒
- ４ 原料供給ライン
- ６ 流出ガスライン
- １ １ 流出ガスリサイクルライン（希釈ガス供給ライン）
- １ ４ アンモニア燃焼器
- ２ ３ 第１室
- ２ ４ 第２室
- ２ ５ 第３室

2 6 触媒収容部

2 6 a 収容管（触媒収容部）

2 6 c （収容管の）他端（連通部分）

4 1 加熱器（昇温装置）

4 4 耐火材

5 1 燃焼器（昇温装置）

請求の範囲

- [請求項1] 原料であるアンモニアを水素と窒素とに分解する分解反応の触媒が充填された反応器と、
- 前記原料が前記触媒に流入する前に、アンモニア濃度が前記原料よりも低い希釈ガスと前記原料とが混合するように、前記希釈ガスを供給するための希釈ガス供給ラインと、
- 前記アンモニアの一部を燃焼させるアンモニア燃焼器とを備え、
- 前記反応器は、前記触媒を収容する触媒収容部を備え、
- 前記反応器の内部は、前記原料が供給される第1室と、前記原料が流通する方向において前記第1室よりも下流側の第2室とに仕切られており、
- 前記触媒収容部は、前記第1室及び前記第2室のそれぞれに連通するとともに前記第2室内を延びるように設けられ、
- 前記分解反応によって前記原料から生成した粗分解ガスが流出ガスとして前記反応器から流出後に流通する流出ガスラインは、前記触媒収容部が前記第2室と連通する連通部分よりも上流側で前記第2室に連通し、前記アンモニア燃焼器からの燃焼ガスは前記第2室に供給されるアンモニア分解装置。
- [請求項2] 前記希釈ガスは、前記反応器から流出した流出ガスの一部である、請求項1に記載のアンモニア分解装置。
- [請求項3] 前記原料の一部と前記反応器から流出した流出ガスの一部とが前記アンモニア燃焼器において燃焼されるように構成されている、請求項1または2に記載のアンモニア分解装置。
- [請求項4] 前記原料を前記反応器に供給する原料供給ラインを備え、
- 前記希釈ガス供給ラインの下流端は前記原料供給ラインに接続されている、請求項1～3のいずれか一項に記載のアンモニア分解装置。
- [請求項5] 前記希釈ガス供給ラインの下流端は前記反応器に接続されている、

請求項 1 ～ 3 のいずれか一項に記載のアンモニア分解装置。

[請求項6]

前記原料を前記反応器に供給する原料供給ラインを備え、

前記反応器の内面は、前記原料供給ラインと前記反応器との接続部分を取り囲むように、少なくとも部分的に耐火材で覆われている、請求項 5 に記載のアンモニア分解装置。