(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年9月21日(21.09.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/176921 A1

(51) 国際特許分類:
C07C 273/10 (2006.01) *C07C 275/00* (2006.01)
C01C 1/04 (2006.01) *C25B 1/04* (2021.01)
C07C 273/04 (2006.01) *C25B 9/00* (2021.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/010278

(22) 国際出願日： 2023年3月16日(16.03.2023)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2022-041381 2022年3月16日(16.03.2022) JP

(71) 出願人: 東洋エンジニアリング株式会社 (**TOYO ENGINEERING CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目１番１号 Tokyo (JP).

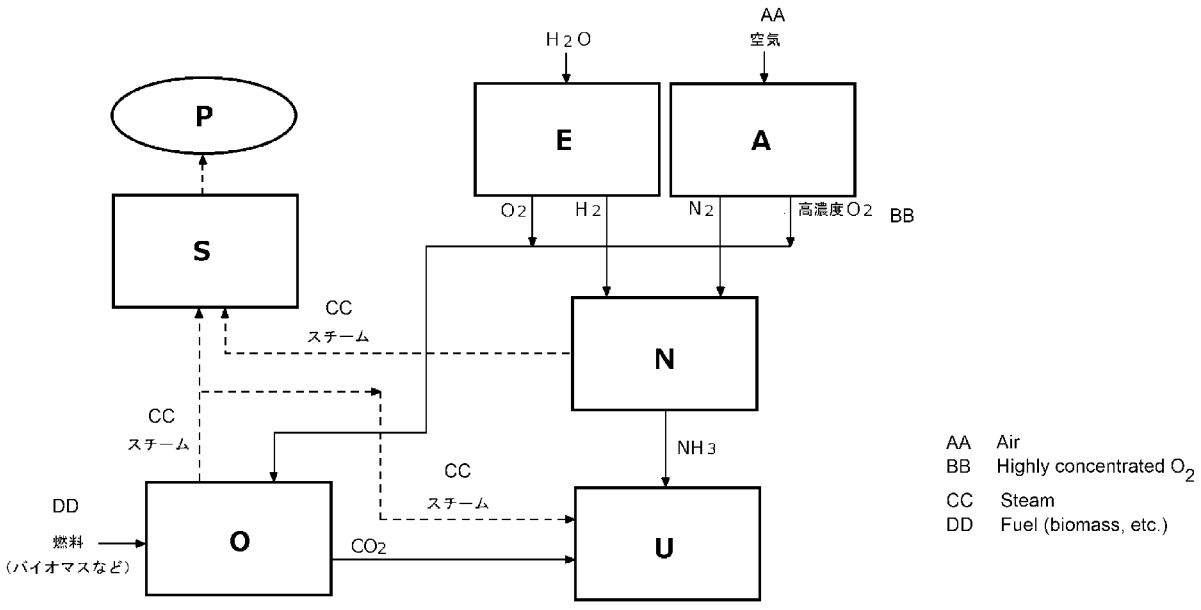
(72) 発明者: 柳川 貴弘 (**YANAGAWA, Takahiro**); 〒2750024 千葉県習志野市茜浜２丁目８番１号 東洋エンジニアリング株式会社内 Chiba (JP). 小嶋 保彦(**KOJIMA, Yasuhiko**); 〒2750024 千葉県習志野市茜浜２丁目８番１号 東洋エンジニアリング株式会社内 Chiba (JP). 佐野 恵二 (**SANO, Keiji**); 〒2750024 千葉県習志野市茜浜２丁目８番１号 東洋エンジニアリング株式会社内 Chiba (JP). 河田 将伍(**KAWATA, Shogo**); 〒2750024 千葉県習志野市茜浜２丁目８番１号 東洋エンジニアリング株式会社内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 石橋 政幸 (**ISHIBASHI, Masayuki**); 〒1610033 東京都新宿区下落合１丁目２番１６号 大堀ビル５０１ Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,

(54) **Title:** UREA PRODUCTION METHOD AND UREA PRODUCTION APPARATUS

(54) 発明の名称： 尿素製造方法及び尿素製造装置



(57) **Abstract:** Disclosed is a urea production method and a urea production apparatus with which hydrogen and oxygen are generated by electrolysis of water in an electrolysis unit (E), nitrogen is separated from air and recovered in an air separation unit (A), ammonia is synthesized in an ammonia synthesis unit (N) using the hydrogen from the electrolysis unit (E) and the nitrogen from the air separation unit (A) as starting materials, carbon dioxide is generated by combusting fuel in an oxygen combustion unit (O) using at least the oxygen from the electrolysis unit (E), and urea is synthesized in a urea synthesis unit (U) using the carbon dioxide and ammonia as starting materials.

WO 2023/176921 A1

［続葉有］

BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能):ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正を受理した際には再公開される。(規則48.2(h))

(57) 要約:電気分解ユニット(E)において水の電気分解により水素と酸素を生産し、空気分離ユニット(A)において空気から窒素を分離回収し、電気分解ユニット(E)からの水素と空気分離ユニット(A)からの窒素とを原料としてアンモニア合成ユニット(N)においてアンモニアを合成し、少なくとも電気分解ユニット(E)からの酸素を使用して酸素燃焼ユニット(O)において燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産し、この二酸化炭素とアンモニアを原料として使用して尿素合成ユニット(U)で尿素を合成する尿素製造方法及び尿素製造装置が開示される。

明　細　書

発明の名称 ： 尿素製造方法及び尿素製造装置

技術分野

[0001] 本発明は尿素を製造する尿素製造方法及び尿素製造装置に関し、より詳しくは水の電気分解により生成される酸素を燃焼装置に供して、その燃焼排気ガスである二酸化炭素を原料として用いる尿素製造方法及び尿素製造装置に関する。

背景技術

[0002] 尿素プラントにおいて尿素を製造する為には、その原料としてアンモニアと二酸化炭素が必要となる。これら原料のうち、アンモニアは窒素と水素から合成できることが知られている。また二酸化炭素は、例えば燃料を燃焼させることにより得られる。

[0003] 特許文献１には、空気から窒素を分離回収し、この窒素を水素と反応させてアンモニア合成する方法が記載されている。また、窒素を分離した後のガス、すなわち高濃度の酸素を含むガスを使用して燃料を燃焼させて二酸化炭素を生成し、この二酸化炭素とアンモニアを原料として使用して尿素を製造する方法も記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特表2017-504778号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、特許文献１に記載される方法は、単にアンモニアの合成を伴う酸素燃焼システムの改善を主目的とする方法であり、尿素の製造を主目的とする方法ではない。そして、特許文献１に記載に従ってアンモニアと二酸化炭素を原料として尿素を製造する場合は、生成する二酸化炭素の量が少ないのでアンモニアの余剰量が非常に多くなる。したがって、特許文献１に

記載される方法は、尿素を製造する為の物質収支が必ずしも十分でない。

[0006] すなわち本発明の目的は、物質収支が改善された尿素製造方法及び尿素製造装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者は、上記目的を達成する為に鋭意検討した結果、水の電気分解により得られる酸素を酸素燃焼工程に使用し、この工程で得た二酸化炭素を原料として尿素を製造することが非常に有効であることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0008] 本発明は、水の電気分解により水素と酸素を生産する電気分解工程と、

空気から窒素を分離回収する空気分離工程と、

前記電気分解工程で生産した水素の少なくとも一部と、前記空気分離工程で分離回収した窒素の少なくとも一部とを原料として使用してアンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

少なくとも、前記電気分解工程で生産した酸素の少なくとも一部を使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する酸素燃焼工程と、

前記酸素燃焼工程で生産した二酸化炭素の少なくとも一部と、前記アンモニア合成工程で生産したアンモニアの少なくとも一部とを原料として使用して尿素を合成する尿素合成工程とを有する尿素製造方法である。

[0009] さらに本発明は、水の電気分解により水素と酸素を生産する電気分解ユニット（Ｅ）と、

空気から窒素を分離回収する空気分離ユニット（Ａ）と、

前記電気分解ユニット（Ｅ）で生産した水素の少なくとも一部と、前記空気分離ユニット（Ａ）で分離回収した窒素の少なくとも一部とを原料として使用してアンモニアを合成するアンモニア合成ユニット（Ｎ）と、

少なくとも、前記電気分解ユニット（Ｅ）で生産した酸素の少なくとも一部を使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する酸素燃焼ユニット（Ｏ）と、

前記酸素燃焼ユニット（Ｏ）で生産した二酸化炭素の少なくとも一部と、

前記アンモニア合成ユニット（Ｎ）で生産したアンモニアの少なくとも一部とを原料として使用して尿素を合成する尿素合成ユニット（Ｕ）とを有する尿素製造装置である。

発明の効果

[0010] 工業的な水素の供給法としては、軽質炭化水素（軽質ナフサ、天然ガスなど）の水蒸気改質法や、石油精製における重質ナフサの接触改質法などが知られている。一方、水を電気分解することにより水素を製造する電気分解法も知られている。この電気分解法では水を原料とし、水素と酸素が生成する。そして、電気分解法で生成した酸素は、通常、大気に放散される。本発明者らは、この電気分解法により得た水素をアンモニア合成の原料として使用すると共に、通常は大気に放散されていた酸素も同時に利用することが非常に有効である点に着目した。すなわち本発明においては、水の電気分解により得た酸素を酸素燃焼工程に使用し、この工程で得た二酸化炭素を原料として尿素を製造するので、酸素燃焼工程で使用できる酸素量が格段に増加する。その結果、アンモニアの余剰量が低減し、尿素を製造する為の物質収支が改善される。

[0011] また、本発明においては、酸素燃焼工程で使用できる酸素量が格段に増加するので、酸素燃焼工程で得られる熱量が増加し、生産されるスチーム量が増加し、尿素合成工程が要求するスチーム量を十分賄うことができる。さらに余剰のスチームは、例えば熱源として使用でき、あるいは発電に使用できる。

[0012] また、通常の酸素燃焼工程において利用されている、空気分離工程により得られる酸素には、少量の窒素、アルゴンが含まれている。この少量の窒素、アルゴンを含む酸素のみを酸素燃焼工程で使用すると、酸素燃焼工程により得られる二酸化炭素の純度が下がってしまう。その結果、得られた二酸化炭素を尿素合成に使用する場合は、二酸化炭素の精製工程が必要となる場合がある。一方、本発明においては、水の電気分解により得られる酸素を酸素燃焼工程に使用し、その酸素は窒素、アルゴンをほとんど含まないので、二

酸化炭素の精製工程が必要となる場合が少なくなり、工程を簡略化することもできる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]本発明における尿素製造方法を用いた尿素製造装置のプロセスフロー図である。

[図2]実施例１のプロセスフロー図である。

[図3]実施例２のプロセスフロー図である。

[図4]実施例３のプロセスフロー図である。

[図5]比較例１のプロセスフロー図である。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明において、アンモニアの余剰量が低減する理由を以下に説明する。

[0015] まず、特許文献１に記載のような方法、すなわち酸素燃焼工程に使用する酸素は、空気分離工程によって得た酸素のみであり、本発明のような電気分解工程は行わない方法では、アンモニアの余剰量が多くなる。例えば、この方法において酸素燃焼工程にバイオマス燃料（セルロース$C_6H_{10}O_5$で代表する）を使用した場合、その反応式は以下の式１のようになる。

[0016] [化1]

$$3H_2+N_2+1/4\,O_2+1/24\,C_6H_{10}O_5 \rightarrow 2NH_3+1/4\,CO_2+5/24\,H_2O$$
$$\rightarrow 1/4\,H_2NCONH_2(\text{尿素})+3/2\,NH_3+11/24\,H_2O \qquad \text{式１}$$

[0017] 式１の左辺（原料系）においては、窒素（N_2）１当量を基準として各成分の比率を定めた。水素（H_2）については、アンモニア合成の理論当量（H_2：N_2＝３：１）の当量比「３」を比率として採用した。酸素（O_2）については、空気分離工程において使用する空気の組成はO_2＝２０．９％、N_2＝７８．１％であるが、単純化のため窒素（N_2）に対する酸素（O_2）の比率を「１／４」と見なし、これを当量として採用した。

[0018] 式１の右辺（生成系）に示すように、バイオマス燃料（セルロース$C_6H_{10}O_5$）を使用した場合は、空気分離工程から窒素の１／４当量の酸素しか得ら

れないため、酸素燃焼工程において１／４当量の二酸化炭素（CO_2）しか得られない。一方、アンモニア合成工程においては２当量のアンモニア（NH_3）が生成する。したがって、両者の当量比（NH_3／CO_2）は８である。

[0019] 以下の式２に示すように、尿素合成のアンモニアと二酸化炭素の理論当量比は２である。したがって、特許文献１に記載のような方法（NH_3／CO_2＝８）においては二酸化炭素が不足し、消費しきれない余剰アンモニアが大量に発生してしまう。

[0020] [化2]

$$2NH_3 + CO_2 \rightarrow H_2NCONH_2\text{（尿素）} + H_2O \quad \text{式２}$$

[0021] 一方、本発明のように電気分解工程によって得た酸素を酸素燃焼工程に使用すれば、アンモニアの余剰量は減少する。例えば、本発明の方法において酸素燃焼工程にバイオマス燃料（セルロース$C_6H_{10}O_5$で代表する）を使用した場合、その反応式は以下の式３のようになる。

[0022] [化3]

$$3H_2 + N_2 + 3/2O_2 + 1/6C_6H_{10}O_5 \rightarrow 2NH_3 + CO_2 + 5/6H_2O + 1/2O_2$$
$$\rightarrow H_2NCONH_2\text{(尿素)} + 11/6\,H_2O + 1/2\,O_2 \quad \text{式３}$$

[0023] 式３の左辺（原料系）においては、窒素（N_2）１当量を基準として各成分の比率を定めた。水素（H_2）については、アンモニア合成の理論当量（H_2：N_2＝３：１）の当量比「３」を比率として採用した。酸素（O_2）については、水（H_2O）を電気分解する際の生成比率（H_2：O_2＝２：１）を基準として、３当量の水素（H_2）を得る際に生成する酸素（O_2）の当量比「３／２」を比率として採用した。

[0024] 式３の右辺（生成系）に示すように、本発明においてバイオマス燃料（セルロース$C_6H_{10}O_5$）を使用した場合は、電気分解工程から３／２当量の酸素が得られ、酸素燃焼工程において１当量の二酸化炭素（CO_2）が得られ、アンモニア合成工程において２当量のアンモニア（NH_3）が得られる。した

がって、両者の当量比（NH_3／CO_2）は２である。尿素合成の理論当量は先に述べたとおり２である。したがって、この場合の本発明の方法においては二酸化炭素は不足せず、余剰アンモニアは発生しない。

[0025] 次に、本発明の方法において酸素燃焼工程に化石燃料（メタンCH_4で代表する）を使用した場合について説明する。その場合の反応式は以下の式４のようになる。

[0026] [化4]

$$3H_2+N_2+3/2O_2+3/4CH_4 \rightarrow 2NH_3+3/4CO_2+3/2H_2O$$
$$\rightarrow 3/4H_2NCONH_2(\text{尿素})+1/4NH_3+5/2H_2O \quad \text{式4}$$

[0027] 式４の左辺（原料系）の窒素（N_2）、水素（H_2）及び酸素（O_2）の各当量比は式３と同様である。

[0028] 式４の右辺（生成系）に示すように、本発明において化石燃料（メタンCH_4）を使用した場合は、電気分解工程から３／２当量の酸素が得られ、酸素燃焼工程において３／４当量の二酸化炭素（CO_2）が得られ、アンモニア合成工程において２当量のアンモニア（NH_3）が得られる。したがって、両者の当量比（NH_3／CO_2）は８/３＝約２．７である。一方、尿素合成の理論当量は先に述べたとおり２である。したがって、この場合の本発明の方法においては二酸化炭素が若干不足し、余剰アンモニアが若干発生する。ただし、特許文献１に記載のような方法（NH_3／CO_2＝８）と比較すると、余剰アンモニアの量は著しく低減できたと言うことができる。

[0029] 図１は、本発明の尿素製造方法を用いた尿素製造装置のプロセスフロー図である。以下、各工程及び各ユニットについて説明する。

[0030] [電気分解ユニット（Ｅ）]

図１に示す電気分解ユニット（Ｅ）は、水の電気分解により水素と酸素を生産する電気分解工程を行うユニットである。この電気分解工程における具体的な電気分解条件や電気分解ユニット（Ｅ）の構成については、水の電気分解技術に関する公知の条件及び構成を制限なく採用できる。

[0031] 図１に示すように、電気分解ユニット（Ｅ）には水を供給する。そして、この水を電気分解することにより、水素と酸素を生産する。得られた水素の少なくとも一部は、後述するアンモニア合成ユニット（Ｎ）に供給し、アンモニアを合成する為の原料として使用する。一方、得られた酸素の少なくとも一部は、後述する酸素燃焼ユニット（Ｏ））に供給し、二酸化炭素を生産する為の原料として使用する。

[0032] 電気分解工程を行う為には電力が必要である。使用する電力の種類は特に制限されない。ただし、再生可能エネルギーによって発電された電力を使用することが、環境保護の点から好ましい。再生可能エネルギーとは、バイオマス燃料、太陽光、風力、地熱、水力等の自然界に常に存在するエネルギーである。例えば、バイオマス燃料の燃焼熱を利用して発電する場合は、カーボン・ニュートラルである点で優れている。また、太陽光、風力、地熱又は水力により発電する場合は、発電の際に二酸化炭素を全く排出しない点で優れている。本発明においては、例えば、後述する酸素燃焼ユニット（Ｏ）において燃料としてバイオマス燃料を使用し、その燃焼熱により発電を行い、得られた電力の少なくとも一部を電気分解工程の為の電力として使用することも可能である。

[0033] [空気分離ユニット（Ａ）]

図１に示す空気分離ユニット（Ａ）は、空気から窒素を分離回収する空気分離工程を行うユニットである。さらに、この空気分離工程は、空気から窒素を分離回収し且つ高濃度の酸素を含むガスを生産する工程であっても良い。この空気分離工程における具体的な分離条件や空気分離ユニット（Ａ）の構成については、空気分離技術に関する公知の条件及び構成を制限なく採用できる。その具体例としては、深冷分離法、圧力スイング吸収技術（Pressure Swing Adsorption, ＰＳＡ）が挙げられる。

[0034] 図１に示すように、空気分離ユニット（Ａ）には空気を供給する。そして、この空気から窒素を分離回収し、高濃度の酸素を含むガス（ガス中の酸素濃度は通常９０体積％～１００体積％、以下「高濃度酸素」と称す）を生産

する。そして、分離回収した窒素の少なくとも一部は、後述するアンモニア合成ユニット（Ｎ）に供給し、アンモニアを合成する為の原料として使用する。一方、得られた高濃度酸素の少なくとも一部は、後述する酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給し、二酸化炭素を生産する為の原料として使用する。

[0035] なお、図１では空気分離ユニット（Ａ）において生産した高濃度酸素を酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給しているが、本発明はこれに限定されない。例えば、電気分解ユニット（Ｅ）において生産した酸素だけを酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給することで必要量の二酸化炭素を十分生産できる場合は、空気分離ユニット（Ａ）において生産した高濃度酸素は酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給せず、例えば系外に回収しても構わない。あるいは空気分離ユニット（Ａ）の構成として、空気から窒素を分離回収するが、高濃度酸素は特に生産しない構成を採用することにより、ユニットの構成を簡略化しても良い。

[0036] ［アンモニア合成ユニット（Ｎ）］

図１に示すアンモニア合成ユニット（Ｎ）は、電気分解工程で生産した水素の少なくとも一部と、空気分離工程で分離回収した窒素の少なくとも一部とを原料として使用してアンモニアを合成するアンモニア合成工程を行うユニットである。このアンモニア合成工程における具体的な合成条件やアンモニア合成ユニット（Ｎ）の構成については、アンモニア合成技術に関する公知の条件及び構成を制限なく採用できる。その具体例としては、ハーバー法やその他の工業用アンモニア合成法が挙げられる。

[0037] 図１に示すように、アンモニア合成ユニット（Ｎ）には、電気分解ユニット（Ｅ）から水素を供給し、空気分離ユニット（Ａ）から窒素を供給する。そして、この水素及び窒素を原料として使用してアンモニアを合成する。得られたアンモニアの少なくとも一部は、後述する尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素を製造する為の原料として使用する。

[0038] ［酸素燃焼ユニット（Ｏ）］

図１に示す酸素燃焼ユニット（Ｏ）は、少なくとも、電気分解工程で生産

した酸素の少なくとも一部を使用して燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する酸素燃焼工程を行うユニットである。この酸素燃焼工程における具体的な燃焼条件や酸素燃焼ユニット（Ｏ）の構成については、燃焼による二酸化炭素生産技術に関する公知の条件及び構成を制限なく採用できる。

[0039] 図１に示す態様は、電気分解工程で生産した酸素の少なくとも一部と、空気分離工程で生産した高濃度酸素の少なくとも一部とを使用して燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する態様である。このような態様は、例えば式４を用いて先に説明した場合（化石燃料を使用した場合）など、電気分解工程で生産した酸素の供給だけでは量が不足する場合に特に好ましい態様である。ただし、本発明はこの態様に限定されない。例えば式３を用いて先に説明した場合（バイオマス燃料を使用した場合）など、電気分解工程で生産した酸素の供給だけで十分な量を賄える場合は、空気分離ユニット（Ａ）からの高濃度酸素は供給しなくても構わない。

[0040] 図１に示すように、酸素燃焼ユニット（Ｏ）には、電気分解ユニット（Ｅ）から酸素を供給し、空気分離ユニット（Ａ）から高濃度酸素を供給する。そして、この酸素及び高濃度酸素を使用して燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する。得られた二酸化炭素の少なくとも一部は、後述する尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素を製造する為の原料として使用する。

[0041] 酸素燃焼工程に使用する燃料の種類は特に制限されない。その具体例としては、木質ペレット等のバイオマス燃料、都市ゴミなどの有機質廃棄物、天然ガス、石油、石炭等の化石燃料が挙げられる。特にバイオマス燃料は、化石燃料と比べてカーボン・ニュートラルである点から好ましい。

[0042] ［尿素合成ユニット（Ｕ）］

図１に示す尿素合成ユニット（Ｕ）は、酸素燃焼工程で生産した二酸化炭素の少なくとも一部と、アンモニア合成工程で生産したアンモニアの少なくとも一部とを原料として使用して尿素を合成する尿素合成工程を行うユニットである。この尿素合成工程における具体的な合成条件や尿素合成ユニット（Ｕ）の構成については、尿素合成技術に関する公知の条件及び構成を制限

なく採用できる。

[0043] 図１に示すように、尿素合成ユニット（Ｕ）には、酸素燃焼ユニット（Ｏ）から二酸化炭素を供給し、アンモニア合成ユニット（Ｎ）からアンモニアを供給する。そして、この二酸化炭素及びアンモニアを原料として使用して尿素を合成する。

[0044] ［発電ユニット（Ｓ）］

発電ユニット（Ｓ）は、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して発電する発電工程を行う発電ユニット、及び／又は、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して生産されたスチームの少なくとも一部を使用して発電する発電工程を行う発電ユニットである。この発電工程における具体的な発電条件や発電ユニット（Ｓ）の構成については、発電技術に関する公知の条件及び構成を制限なく採用できる。

[0045] 図１に示す態様において、発電ユニット（Ｓ）は、スチームにより発電するスチームタービン発電工程を行う発電ユニットである。図１に示すように、発電ユニット（Ｓ）には、酸素燃焼ユニット（Ｏ）及びアンモニア合成ユニット（Ｎ）からスチームを供給する。そして、このスチームを使用してタービン発電を行う。得られた電力（Ｐ）は、例えば、尿素合成工程、アンモニア合成工程及び電気分解工程からなる群より選ばれた一つ以上の工程において使用する事も出来る。

[0046] 図１に示すような、発電ユニット（Ｓ）としてスチームタービン発電ユニットを有する態様は、本発明において好ましい態様である。この態様においては、スチームが、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における燃焼により生じる熱の少なくとも一部を使用して生産したスチームを含んでいる。図１に示す酸素燃焼ユニット（Ｏ）には比較的大量の酸素が供給されるので、燃焼により生じる熱量も多い。その結果、たとえ尿素合成ユニット（Ｕ）にスチームを供給しても、その余剰のスチームを発電に使用できる。

[0047] また、図１に示す態様においては、スチームが、酸素燃焼ユニット（Ｏ）

における燃焼により生じる熱の少なくとも一部を使用して生産したスチームだけでなく、アンモニア合成ユニット（Ｎ）におけるアンモニア合成の反応熱の少なくとも一部を使用して生産したスチーム（例えば、合成したアンモニアガスを冷却凝縮させる熱交換設備を使用して生産したスチーム）も含んでいる。したがって、その発電量はさらに増加する。

[0048] 本発明においては、以上説明した各ユニットに加えて他の設備を有していても良い。他の設備としては、例えば、燃焼熱でスチームを生産する熱交換設備、二酸化炭素の精製設備（例えば脱水や不純物除去などの為の設備）が挙げられる。

[0049] 本発明は、以上説明した図１に示す態様に限定されない。例えば、図１に示す態様においては、発電ユニット（Ｓ）としてスチームタービン発電ユニットを使用した。しかし、その他の発電ユニットをこれに追加しても構わないし、スチームタービン発電ユニットをその他の発電ユニットに置き換えても構わない。その他の発電ユニットは、例えば、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を直接使用して発電する発電工程を行うユニットである。その具体例としては、ガスタービン発電工程を行うユニット、超臨界CO_2サイクル発電工程を行うユニットが挙げられる。

実施例

[0050] 以下、本発明を実施例によって更に具体的に説明する。ただし本発明は実施例により制限されるものではない。

[0051] ＜実施例１（図２）＞

電気分解ユニット（Ｅ）において、電気分解により水１４４ｔ／ｈから水素１６ｔ／ｈ及び酸素１２８ｔ／ｈを生産した。また、空気分離ユニット（Ａ）において、空気９９ｔ／ｈから窒素７５ｔ／ｈを分離回収した。そして、この水素１６ｔ／ｈ及び窒素７５ｔ／ｈを原料として使用して、アンモニア合成ユニット（Ｎ）においてアンモニア９１ｔ／ｈを合成した。

[0052] 電気分解ユニット（Ｅ）において生産した酸素１２８ｔ／ｈのうちの８６ｔ／ｈの酸素と、燃料としてのバイオマス７２ｔ／ｈとを酸素燃焼ユニット

（Ｏ）に供給し、バイオマス（木質ペレット）を燃焼させた。そして、発生した燃焼ガスに対して冷却及び必要に応じて洗浄などの処理を行い、二酸化炭素１１８ｔ／ｈを得た。なお、残りの酸素４２ｔ／ｈは系外へ回収した。

[0053] 以上のようにして得た二酸化炭素１１８ｔ／ｈと、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生産したアンモニア９１ｔ／ｈとを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素１６１ｔ／ｈを生産した。

[0054] バイオマスの燃焼熱は２，８７３ｋｃａｌ／ｋｇであり、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における発熱量は約２４１ＭＷであった。この熱を回収してスチーム２６４ｔ／ｈを生産した。このスチーム２６４ｔ／ｈのうち、１３９ｔ／ｈのスチームを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して使用した。残りのスチームはスチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。さらに、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生じた反応熱を回収して生産したスチームも、スチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。そして、これらのスチームを使用して発電を行い、２４ＭＷの電力を得た。この電力の一部は尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して、必要となる電力７ＭＷを賄った。

[0055] ＜実施例２（図３）＞

電気分解ユニット（Ｅ）において、電気分解により水１４４ｔ／ｈから水素１６ｔ／ｈ及び酸素１２８ｔ／ｈを生産した。また、空気分離ユニット（Ａ）において、空気９９ｔ／ｈから窒素７５ｔ／ｈを分離回収し、高濃度の酸素を含むガス２３ｔ／ｈ（酸素濃度約９８％）を生産した。そして、この水素１６ｔ／ｈ及び窒素７５ｔ／ｈを原料として使用して、アンモニア合成ユニット（Ｎ）においてアンモニア９１ｔ／ｈを合成した。

[0056] 電気分解ユニット（Ｅ）において生産した酸素１２８ｔ／ｈ及び空気分離ユニット（Ａ）において生産した高濃度の酸素を含むガス２３ｔ／ｈ（合計１５１ｔ／ｈ）と、燃料としての天然ガス３８ｔ／ｈとを酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給し、天然ガスを燃焼させた。発生した燃焼ガスに対して冷却及び必要に応じて洗浄などの処理を行い、二酸化炭素１０４ｔ／ｈを得た。

[0057] 以上のようにして得た二酸化炭素１０４ｔ／ｈと、アンモニア合成ユニッ

ト（Ｎ）において生産したアンモニア９１ｔ／ｈのうち８０ｔ／ｈとを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素１４２ｔ／ｈを生産した。なお、残りのアンモニア１１ｔ／ｈは系外へ回収した。

[0058] 天然ガスの燃焼熱は１１，９５０ｋｃａｌ／ｋｇであり、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における発熱量は約５２９ＭＷであった。この熱を回収してスチーム５８０ｔ／ｈを生産した。このスチーム５８０ｔ／ｈのうち、１２３ｔ／ｈのスチームを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して使用した。残りのスチームはスチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。さらに、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生じた反応熱を回収して生産したスチームも、スチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。そして、これらのスチームを使用して発電を行い、８６ＭＷの電力を得た。この電力の一部は尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して、必要となる電力６ＭＷを賄った。

[0059] ＜実施例３（図４）＞

電気分解ユニット（Ｅ）において、電気分解により水１４４ｔ／ｈから水素１６ｔ／ｈ及び酸素１２８ｔ／ｈを生産した。また、空気分離ユニット（Ａ）において、空気１９０ｔ／ｈから窒素１４３ｔ／ｈを分離回収し、高濃度の酸素を含むガス４５ｔ／ｈ（酸素濃度約９８％）を生産した。そして、この水素１６ｔ／ｈと、窒素１４３ｔ／ｈのうち７５ｔ／ｈとを原料として使用して、アンモニア合成ユニット（Ｎ）においてアンモニア９１ｔ／ｈを合成した。なお、残りの窒素６８ｔ／ｈは系外へ回収した。

[0060] 電気分解ユニット（Ｅ）において生産した酸素１２８ｔ／ｈ及び空気分離ユニット（Ａ）において生産した高濃度の酸素を含むガス４５ｔ／ｈ（合計１７３ｔ／ｈ）と、燃料としての天然ガス４３ｔ／ｈとを酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給し、天然ガスを燃焼させた。発生した燃焼ガスに対して冷却及び必要に応じて洗浄などの処理を行い、二酸化炭素１１８ｔ／ｈを得た。

[0061] 以上のようにして得た二酸化炭素１１８ｔ／ｈと、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生産したアンモニア９１ｔ／ｈとを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素１６１ｔ／ｈを生産した。

[0062] 天然ガスの燃焼熱は１１，９５０ｋｃａｌ／ｋｇであり、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における発熱量は約５９４ＭＷであった。この熱を回収してスチーム６５２ｔ／ｈを生産した。このスチーム６５２ｔ／ｈのうち、１３９ｔ／ｈのスチームを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して使用した。残りのスチームはスチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。さらに、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生じた反応熱を回収して生産したスチームも、スチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。そして、これらのスチームを使用して発電を行い、９７ＭＷの電力を得た。この電力の一部は尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して、必要となる電力７ＭＷを賄った。

[0063] ＜比較例１（図５）＞

空気分離ユニット（Ａ）において、空気９９ｔ／ｈから窒素７５ｔ／ｈを分離回収し、高濃度の酸素を含むガス２３ｔ／ｈ（酸素濃度約９８％）を生産した。そして、別途用意した水素１６ｔ／ｈと、空気分離ユニット（Ａ）において回収した窒素７５ｔ／ｈとを原料として使用して、アンモニア合成ユニット（Ｎ）においてアンモニア９１ｔ／ｈを合成した。

[0064] 空気分離ユニット（Ａ）において生産した高濃度の酸素を含むガス２３ｔ／ｈと、燃料としての天然ガス６ｔ／ｈとを酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給し、天然ガスを燃焼させた。発生した燃焼ガスに対して冷却及び洗浄などの処理を行い、二酸化炭素１６ｔ／ｈを得た。

[0065] 以上のようにして得た二酸化炭素１６ｔ／ｈと、アンモニア合成ユニット（Ｎ）において生産したアンモニア９１ｔ／ｈのうち１２ｔ／ｈとを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給し、尿素２２ｔ／ｈを生産した。なお、残りのアンモニア７９ｔ／ｈは系外へ回収した。

[0066] 天然ガスの燃焼熱は１１，９５０ｋｃａｌ／ｋｇであり、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における発熱量は約８３ＭＷであった。この熱を回収してスチーム９１ｔ／ｈを生産した。このスチーム９１ｔ／ｈのうち、１９ｔ／ｈのスチームを尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して使用した。残りのスチームはスチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。さらに、アンモニア合成ユニッ

ト（Ｎ）において生じた反応熱を回収して生産したスチームも、スチームタービン発電ユニット（Ｓ）に供給した。そして、これらのスチームを使用して発電を行い、１４ＭＷの電力を得た。この電力の一部は尿素合成ユニット（Ｕ）に供給して、必要となる電力１ＭＷを賄った。

[0067] 以上の実施例及び比較例の結果をまとめて表１に記載する。なお、表１中の原料原単位は尿素生産量当たりの原料消費量（t/t-urea）を表しているが、窒素および酸素については尿素生産量当たりの中間製造量として計算している。

[0068] [表1]

表１

		実施例１	実施例２	実施例３	比較例１
最終製品製造量					
尿素	t/h	161	142	161	22
NH_3	t/h		11		79
中間製造量					
CO_2	t/h	118	104	118	16
O_2（注1）	t/h	128	151	173	23
NH_3	t/h	91	91	91	91
H_2	t/h	16	16	16	
N_2	t/h	75	75	143	75
供給量（消費量）					
CO_2 for (U)	t/h	118	104	118	16
燃料	t/h	72	38	43	6
O_2 for (O)(注1)	t/h	86	151	173	23
NH_3 for (U)	t/h	91	80	91	12
H_2 for (N)	t/h	16	16	16	16
N_2 for (N)	t/h	75	75	75	75
原料原単位					
（尿素生産量当たり）					
N_2（注2）	t/t-urea	0.47	0.53	0.89	3.41
H_2	t/t-urea	0.10	0.11	0.10	0.73
燃料	t/t-urea	0.45	0.27	0.27	0.27
O_2（注2）	t/t-urea	0.80	1.06	1.07	1.05
発熱量	MW	241	529	594	83
スチーム発生量 at(O)	t/h	264	580	652	91
発電量 at(S)	MW	24	86	97	14

（注1）：O_2＋高濃度O_2　（注2）：中間製造量ベース

[0069] 表１に示すように、実施例１～３においては電気分解工程（及びスチームタービン発電工程）を実施したので、物質収支に関して優れた結果が得られた。一方、比較例１においては電気分解工程を実施しなかったので、実施例１～３よりも物質収支が劣っていた。具体的には以下のとおりである。

[0070] 実施例１は、燃料としてバイオマスを使用した例である。この実施例１においては、酸素燃焼ユニット（Ｏ）に必要な酸素を、電気分解ユニット（Ｅ）で生産された酸素により全て賄うことができた。その結果、空気分離ユニット（Ａ）の構成を簡略化することができ、しかも生産されたアンモニア全量を尿素合成に使用でき、余剰アンモニアの発生をゼロにできた。その結果、窒素および水素の原料原単位が四例中で最小値となる０．４７及び０．１０を達成できた。また、燃焼等により発生する熱を用いてスチームを生成して有効利用した。したがって実施例１は、尿素製造の観点から無駄が無く、設備構成、物質収支の点で非常に優れている。

[0071] 実施例２は、燃料として天然ガスを使用した例である。燃料として天然ガスを使用する場合は、バイオマスを使用する場合よりも酸素燃焼に必要な酸素量が多い。したがって、この実施例２においては、電気分解ユニット（Ｅ）及び空気分離ユニット（Ａ）で生産される酸素を併せて酸素燃焼ユニット（Ｏ）に供給した。しかし、それでも酸素が不足、すなわち生成する二酸化炭素が不足となり、尿素製品は実施例１と比べて減り（実施例２の尿素製造量＝１４２ｔ／ｈ、実施例１の尿素製造量＝１６０ｔ／ｈ）、余剰アンモニアが１１ｔ／ｈ生じた。その結果、窒素及び水素の原料原単位が０．５３及び０．１１となった。ただし、この実施例２は、比較例１よりも尿素製造の物質収支の点で優れている。また、余剰アンモニアは副生製品として出荷できる。

[0072] 実施例３は、燃料として天然ガスを使用し、かつ実施例１と同等の尿素製造量（１６０ｔ／ｈ）を達成する為に酸素の生成量を多くした例である。具体的には、この実施例３においては、実施例１及び２で使用した空気分離ユニット（Ａ）よりも約二倍の生産能力を有する空気分離ユニット（Ａ）を使

用した。その結果、実施例１と同様に余剰アンモニアの発生をゼロにできた。その結果、窒素及び水素の原料原単位が０．８９及び０．１０となった。また、実施例１及び２よりもスチーム発生量やスチームタービン発電ユニット（Ｓ）で得られる電力量が増した。ただし、空気分離ユニット（Ａ）の容量の低減化の点では実施例１の方が優れている。

[0073] 比較例１は、電気分解ユニット（Ｅ）を使用しなかった例である。この比較例１においては、空気分離ユニット（Ａ）のみからの酸素を使用したので、その酸素量は少なく、酸素燃焼ユニット（Ｏ）から得られる二酸化炭素が少なかった。その結果、尿素生産量は２２ｔ／ｈと少なく、７８ｔ／ｈの余剰アンモニアが発生してしまい、窒素及び水素の原料原単位は四例中で最も悪い３．４１および０．７３となった。

産業上の利用可能性

[0074] 本発明によれば、尿素を製造する際の物質収支が改善されるので、工業的な尿素製造方法及び尿素製造装置として非常に有用である。

符号の説明

[0075] Ｐ　電力

Ｓ　発電ユニット

Ｏ　酸素燃焼ユニット

Ｅ　電気分解ユニット

Ａ　空気分離ユニット

Ｎ　アンモニア合成ユニット

Ｕ　尿素合成ユニット

請求の範囲

[請求項1] 水の電気分解により水素と酸素を生産する電気分解工程と、

空気から窒素を分離回収する空気分離工程と、

前記電気分解工程で生産した水素の少なくとも一部と、前記空気分離工程で分離回収した窒素の少なくとも一部とを原料として使用してアンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

少なくとも、前記電気分解工程で生産した酸素の少なくとも一部を使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する酸素燃焼工程と、

前記酸素燃焼工程で生産した二酸化炭素の少なくとも一部と、前記アンモニア合成工程で生産したアンモニアの少なくとも一部とを原料として使用して尿素を合成する尿素合成工程とを有する尿素製造方法。

[請求項2] 空気分離工程が、空気から窒素を分離回収し且つ高濃度の酸素を含むガスを生産する工程であり、

酸素燃焼工程において、電気分解工程で生産した酸素の少なくとも一部と、空気分離工程で生産した高濃度の酸素を含むガスの少なくとも一部とを使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する請求項１に記載の尿素製造方法。

[請求項3] 発電工程を有し、該発電工程が、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して発電する発電工程、及び／又は、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して生産されたスチームの少なくとも一部を使用して発電する発電工程である請求項１に記載の尿素製造方法。

[請求項4] 発電工程において得た電力の少なくとも一部を、尿素合成工程、アンモニア合成工程及び電気分解工程からなる群より選ばれた一つ以上の工程において使用する請求項３に記載の尿素製造方法。

[請求項5] 発電工程が、酸素燃焼工程における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して生産されたスチーム、及び、アンモニア

合成工程におけるアンモニア合成の反応熱の少なくとも一部を使用して生産されたスチームを使用して発電する発電工程である請求項３に記載の尿素製造方法。

[請求項6] 水の電気分解により水素と酸素を生産する電気分解ユニット（Ｅ）と、

空気から窒素を分離回収する空気分離ユニット（Ａ）と、

前記電気分解ユニット（Ｅ）で生産した水素の少なくとも一部と、前記空気分離ユニット（Ａ）で分離回収した窒素の少なくとも一部とを原料として使用してアンモニアを合成するアンモニア合成ユニット（Ｎ）と、

少なくとも、前記電気分解ユニット（Ｅ）で生産した酸素の少なくとも一部を使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する酸素燃焼ユニット（Ｏ）と、

前記酸素燃焼ユニット（Ｏ）で生産した二酸化炭素の少なくとも一部と、前記アンモニア合成ユニット（Ｎ）で生産したアンモニアの少なくとも一部とを原料として使用して尿素を合成する尿素合成ユニット（Ｕ）とを有する尿素製造装置。

[請求項7] 空気分離ユニット（Ａ）が、空気から窒素を分離回収し且つ高濃度の酸素を含むガスを生産するユニットであり、

酸素燃焼ユニット（Ｏ）において、電気分解工程で生産した酸素の少なくとも一部と、空気分離工程で生産した高濃度の酸素を含むガスの少なくとも一部とを使用して、燃料を燃焼させて二酸化炭素を生産する請求項６に記載の尿素製造装置。

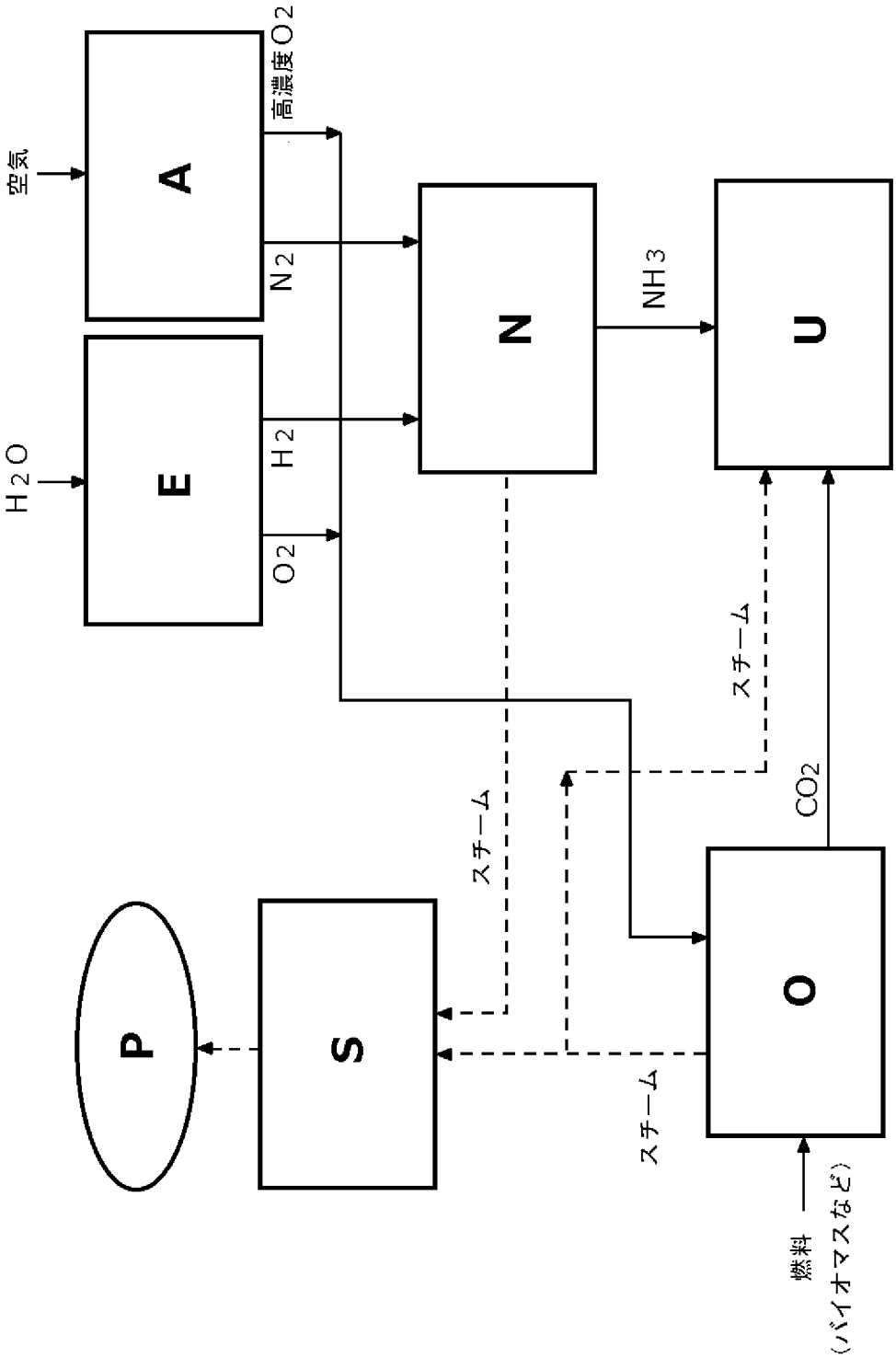
[請求項8] 発電ユニット（Ｓ）を有し、該発電ユニット（Ｓ）が、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して発電する発電ユニット、及び／又は、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して生産されたスチームの少なくとも一部を使用して発電する発電

ユニットである請求項６に記載の尿素製造装置。

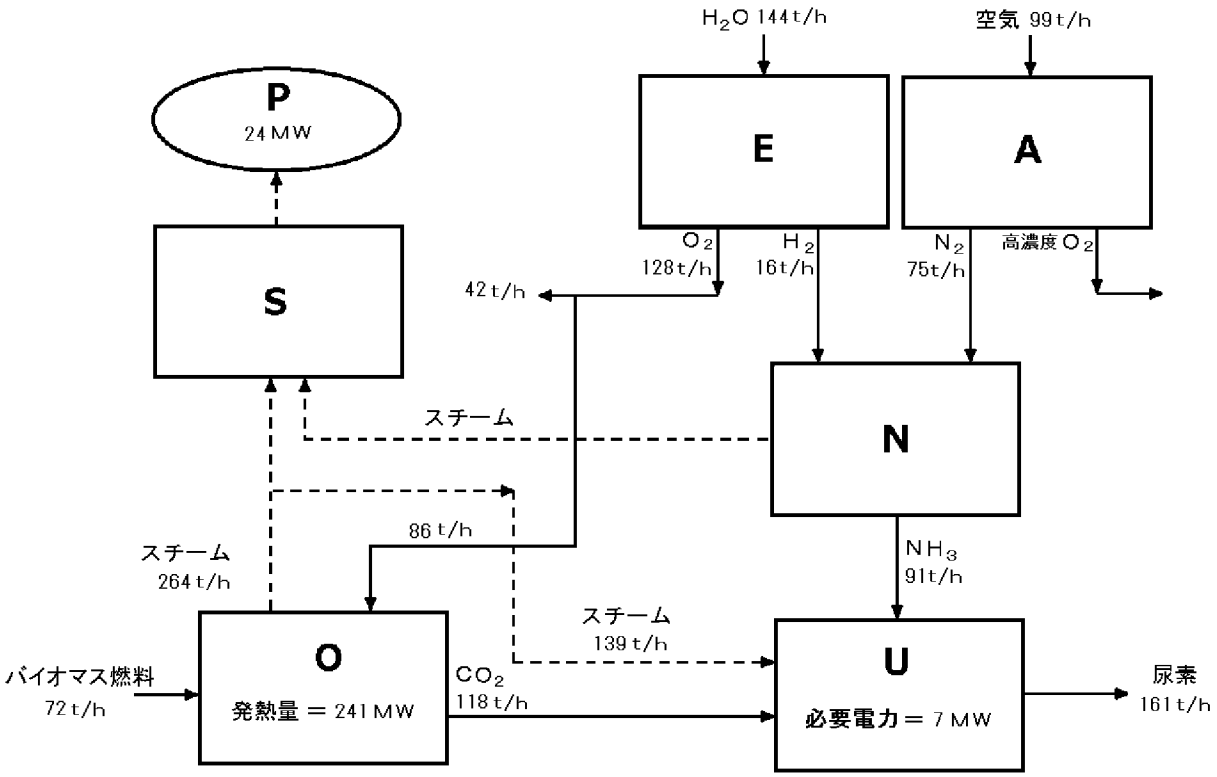
[請求項9] 発電ユニット（Ｓ）において得た電力の少なくとも一部を、尿素合成ユニット（Ｕ）、アンモニア合成ユニット（Ｎ）及び電気分解ユニット（Ｅ）からなる群より選ばれた一つ以上のユニットにおいて使用する請求項８に記載の尿素製造装置。

[請求項10] 発電ユニット（Ｓ）が、酸素燃焼ユニット（Ｏ）における燃焼により生じた熱エネルギーの少なくとも一部を使用して生産されたスチーム、及び、アンモニア合成ユニット（Ｎ）におけるアンモニア合成の反応熱の少なくとも一部を使用して生産されたスチームを使用して発電する発電ユニットである請求項８に記載の尿素製造装置。

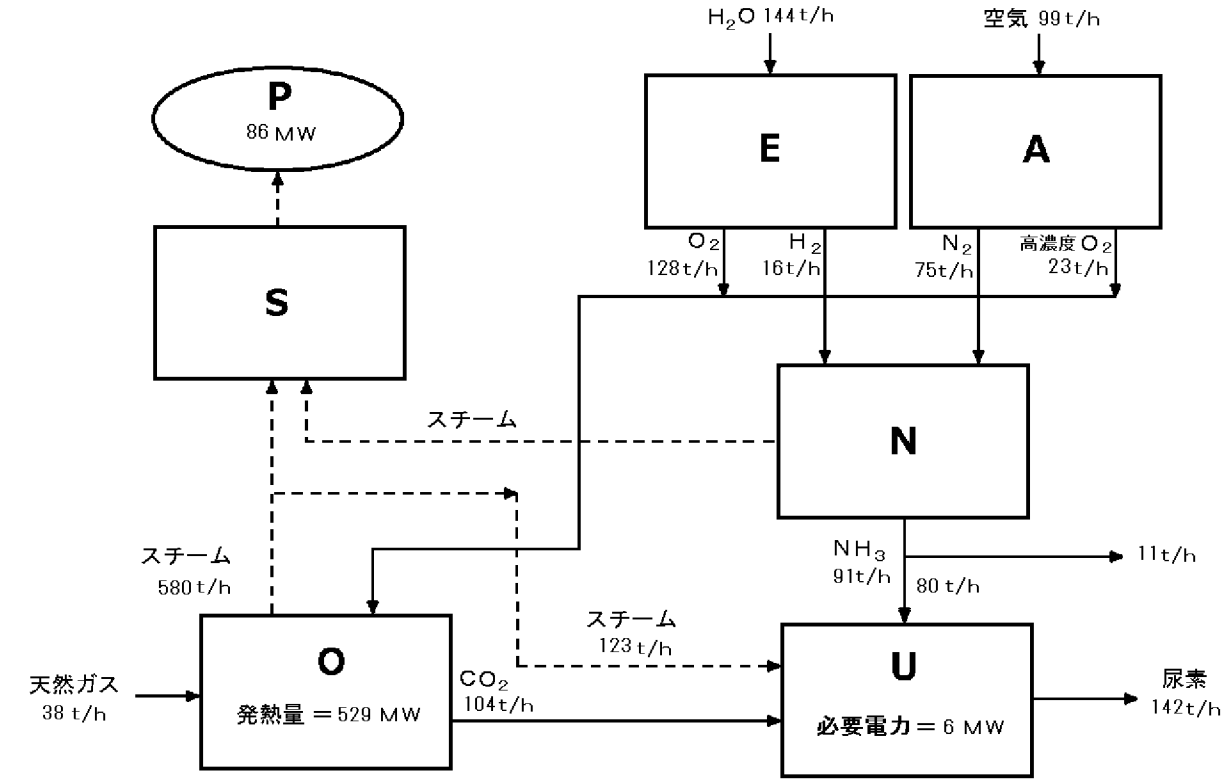
[図1]


空気
A
高濃度O2
N2
H2O
E
H2
O2
N
NH3
U
スチーム
CO2
スチーム
O
スチーム
S
P
燃料
(バイオマスなど)

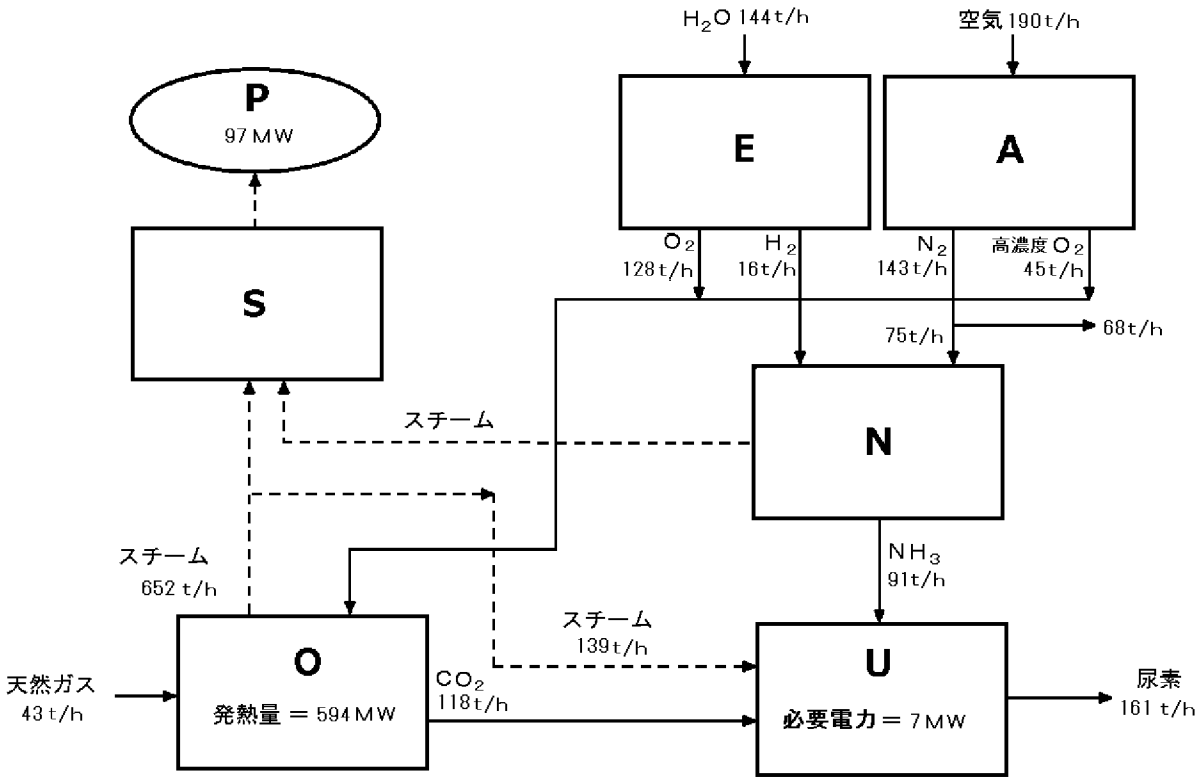
[図2]


H2O 144t/h
空気 99t/h
P
24MW
E
A
S
O2
128t/h
H2
16t/h
N2
75t/h
高濃度O2
42t/h
ステーム
N
86t/h
ステーム
264t/h
NH3
91t/h
ステーム
139t/h
バイオマス燃料
72t/h
O
発熱量＝241MW
CO2
118t/h
U
必要電力＝7MW
尿素
161t/h

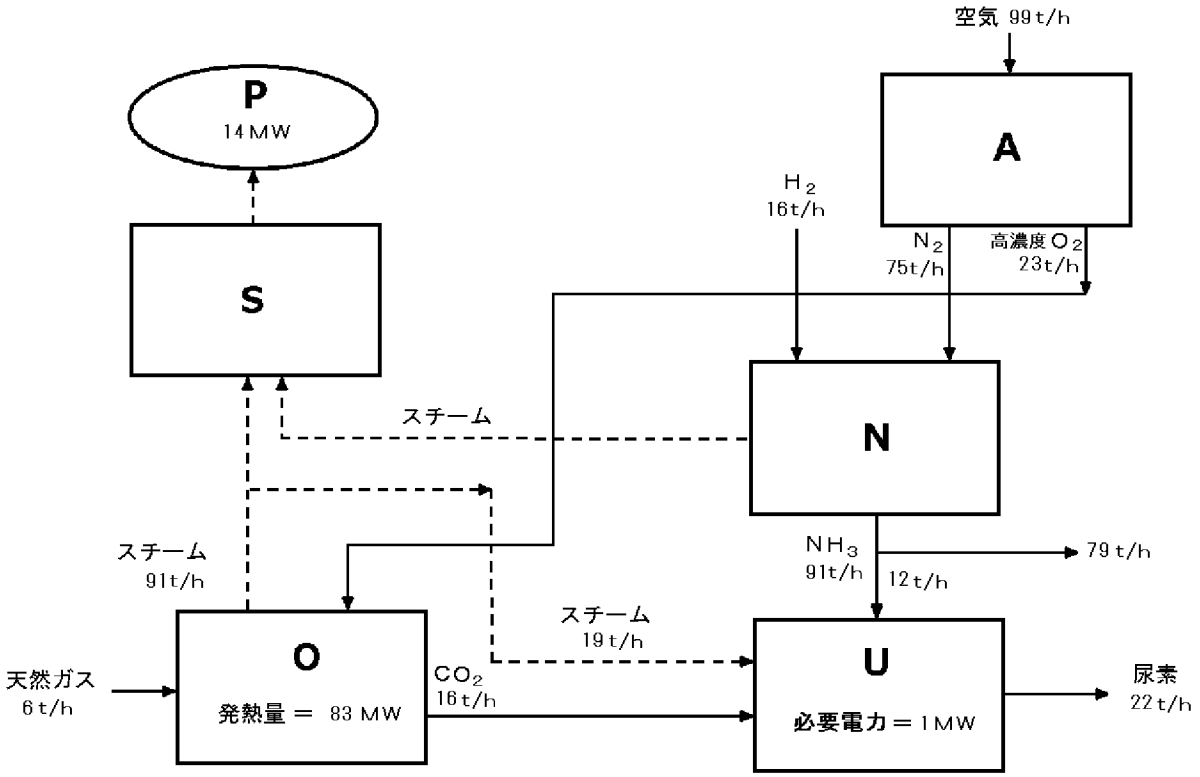
[図3]


H2O 144t/h
空気 99t/h
P
86MW
E
A
S
O2
128t/h
H2
16t/h
N2
75t/h
高濃度O2
23t/h
ステーム
N
ステーム
580t/h
NH3
91t/h
11t/h
80t/h
ステーム
123t/h
天然ガス
38t/h
O
発熱量＝529MW
CO2
104t/h
U
必要電力＝6MW
尿素
142t/h

[図4]


H2O 144t/h
空気 190t/h
P
97 MW
E
A
S
O2 128t/h
H2 16t/h
N2 143t/h
高濃度O2 45t/h
75t/h
68t/h
スチーム
N
スチーム 652 t/h
NH3 91t/h
スチーム 139t/h
天然ガス 43 t/h
O
発熱量 = 594 MW
CO2 118t/h
U
必要電力 = 7 MW
尿素 161 t/h

[図5]


空気 99t/h
P
14 MW
A
H2 16t/h
N2 75t/h
高濃度O2 23t/h
S
スチーム
N
スチーム 91t/h
NH3 91t/h
79 t/h
12 t/h
スチーム 19 t/h
天然ガス 6 t/h
O
発熱量 = 83 MW
CO2 16t/h
U
必要電力 = 1 MW
尿素 22 t/h

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/010278

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C 273/10(2006.01)i; ***C01C 1/04***(2006.01)i; ***C07C 273/04***(2006.01)i; ***C07C 275/00***(2006.01)i; ***C25B 1/04***(2021.01)i; ***C25B 9/00***(2021.01)i
FI: C07C273/10; C07C275/00; C07C273/04; C25B1/04; C25B9/00 A; C01C1/04 C

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07C273/10; C01C1/04; C07C273/04; C07C275/00; C25B1/04; C25B9/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2021-102532 A (MITSUBISHI HEAVY IND., LTD.) 15 July 2021 (2021-07-15) claims, claim 10, examples, figures	1, 3-6, 8-10
Y		2, 7
Y	JP 2017-504778 A (SAUDI ARABIAN OIL CO.) 09 February 2017 (2017-02-09) claims, examples, figures, etc.	2, 7
A	JP 2020-529981 A (SAIPEM S.P.A.) 15 October 2020 (2020-10-15) claims, examples, etc.	1-10
A	US 2021/0198104 A1 (HALDOR TOPSOE A/S) 01 July 2021 (2021-07-01) claims, examples	1-10
A	US 2012/0125062 A1 (BLANDY, Charles William Douglas) 24 May 2012 (2012-05-24) claims, examples	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
03 July 2023	**18 July 2023**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/010278

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2021-102532 A	15 July 2021	US 2022/0380224 A1 claims, examples, figures WO 2021/132126 A1	
JP 2017-504778 A	09 February 2017	US 2015/0183650 A1 claims, examples, figures WO 2015/102787 A1 KR 10-2016-0108397 A CN 105849045 A	
JP 2020-529981 A	15 October 2020	US 2021/0363100 A1 claims, examples WO 2019/026044 A1 CN 110997629 A	
US 2021/0198104 A1	01 July 2021	WO 2019/020376 A1 claims, examples CN 110869314 A KR 10-2020-0032671 A	
US 2012/0125062 A1	24 May 2012	WO 2010/139028 A1 claims, examples	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/010278

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C07C 273/10(2006.01)i; C01C 1/04(2006.01)i; C07C 273/04(2006.01)i; C07C 275/00(2006.01)i; C25B 1/04(2021.01)i; C25B 9/00(2021.01)i
FI: C07C273/10; C07C275/00; C07C273/04; C25B1/04; C25B9/00 A; C01C1/04 C

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C07C273/10; C01C1/04; C07C273/04; C07C275/00; C25B1/04; C25B9/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2021-102532 A (三菱重工業株式会社) 15.07.2021 (2021-07-15) 特許請求の範囲、請求項１０、実施例、図	1, 3-6, 8-10
Y		2, 7
Y	JP 2017-504778 A (サウジ アラビアン オイル カンパニー) 09.02.2017 (2017-02-09) 特許請求の範囲、実施例、図等	2, 7
A	JP 2020-529981 A (サイペム エスピーアー) 15.10.2020 (2020-10-15) 特許請求の範囲、実施例等	1-10
A	US 2021/0198104 A1 (HALDOR TOPSOE A/S) 01.07.2021 (2021-07-01) claims, examples	1-10
A	US 2012/0125062 A1 (BLANDY CHARLES WILLIAM DOUGLAS) 24.05.2012 (2012-05-24) claims, examples	1-10

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
03.07.2023	18.07.2023

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
神野　将志 4H 3345

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/010278

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2021-102532 A	15.07.2021	US 2022/0380224 A1 claims, examples, figures WO 2021/132126 A1	
JP 2017-504778 A	09.02.2017	US 2015/0183650 A1 claims, examples, figures WO 2015/102787 A1 KR 10-2016-0108397 A CN 105849045 A	
JP 2020-529981 A	15.10.2020	US 2021/0363100 A1 claims, examples WO 2019/026044 A1 CN 110997629 A	
US 2021/0198104 A1	01.07.2021	WO 2019/020376 A1 claims, examples CN 110869314 A KR 10-2020-0032671 A	
US 2012/0125062 A1	24.05.2012	WO 2010/139028 A1 claims, examples	