

(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  
2019年11月14日(14.11.2019)



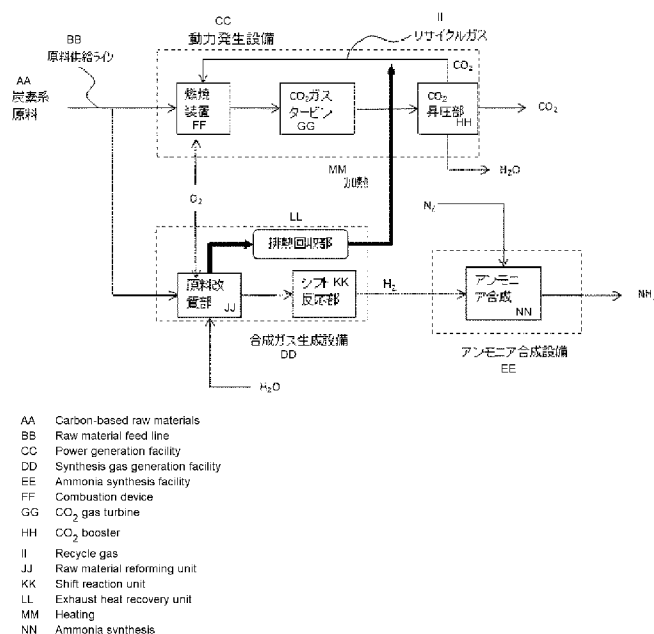
(10) 国際公開番号

WO 2019/215925 A1

- (51) 国際特許分類:  
*C01C 1/04* (2006.01) *C01B 3/48* (2006.01)  
*B01D 53/62* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/018384
- (22) 国際出願日: 2018年5月11日(11.05.2018)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人: 日揮グローバル株式会社 (JGC CORPORATION) [JP/JP]; 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい2-3-1 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者: 加藤 桃子 (KATO Momoko); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい2-3-1
- 1 日揮株式会社内 Kanagawa (JP). 藤村 靖 (FUJIMURA Yasushi); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい2-3-1 日揮株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 S S I N P A T, 外 (SSINPAT PATENT FIRM et al.); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6階 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, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: AMMONIA PRODUCTION PLANT AND METHOD FOR PRODUCING AMMONIA

(54) 発明の名称: アンモニア製造プラントおよびアンモニアの製造方法



(57) Abstract: Provided is an ammonia production plant for producing ammonia from carbon-based raw materials, the ammonia production plant comprising: an ammonia synthesis facility for synthesizing ammonia; a synthesis gas generation facility for generating synthesis gas for ammonia synthesis from carbon-based raw materials; and a power generation facility for generating power. The synthesis gas generation facility has an exhaust heat recovery unit for recovering exhaust heat generated during synthesis gas generation. The power generation facility has: a combustion device for burning oxygen and fuel; and a gas turbine which generates power by using, as a power source, a combustion gas containing CO<sub>2</sub> gas obtained from the combustion device. The power generation facility is

[続葉有]

KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,  
MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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,  
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
UG, US, UZ, VC, VN, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, 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：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

---

configured to supply CO<sub>2</sub> gas discharged from the gas turbine to the combustion device as a recycle gas. The power obtained from the power generation facility is used as power for at least the ammonia synthesis facility. The exhaust heat recovered in the exhaust heat recovery unit is used to heat the recycle gas.

(57) 要約：本発明のアンモニア製造プラントは、炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備とを備え、合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られたCO<sub>2</sub>ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動することにより動力を発生するガスタービンとを有し、且つガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスをリサイクルガスとして燃焼装置に供給するように構成され、動力発生設備で得られた動力は、少なくともアンモニア合成設備の動力として使用され、排熱回収部で回収された排熱は、リサイクルガスを加熱するために使用される。

## 明 細 書

発明の名称：

アンモニア製造プラントおよびアンモニアの製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、省エネルギー性および環境性の高いアンモニア製造プラントおよびアンモニアの製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 新しいエネルギーキャリアとしてアンモニアが認知されるようになり、最近のサプライチェーン評価ではその優位性が示されている。また、アンモニアは燃焼時に $\text{CO}_2$ の排出がないため、有望な燃料として期待されている。

[0003] 従来、アンモニアは、例えば天然ガスなどの炭素系原料の改質反応により製造した水素と、空気中の窒素とを原料として触媒反応により製造されている。

[0004] アンモニア製造プラントは、大きな動力を必要とするプラントである。アンモニア製造プラントの主な必要動力としては、空気を酸素と窒素とに分離する深冷分離装置のコンプレッサー、アンモニアの原料ガスを反応圧力まで昇圧する原料ガスコンプレッサー、合成したアンモニアを冷却分離するための冷熱を作る冷凍コンプレッサー等が挙げられる。従来のアンモニア製造プラントでは、プロセスから出る排熱を回収して作ったスチームにより動力を発生させている。しかし、所要動力にスチーム量が満たない場合には別途燃料を加熱炉にて燃やし、得られた熱によってスチームを発生させスチーム量を増やすか、ガスタービンを併用するか、または外部から電力を供給することで所要動力を供給している。

[0005] 省エネルギー性を課題とした従来のアンモニア製造プラントとして、特許文献1（WO2015/193108号）には、天然ガス供給原料からアンモニアおよびアンモニアの誘導体を製造する方法が記載されている。特許文献1では、ガス圧縮機のような大きな電力を消費するパワーユーザーで必要

となる動力の少なくとも一部をガスタービンによって供給することが提案されている。特許文献1には、天然ガス供給原料の一部をガスタービンに燃料供給し、前記ガスタービンによって生成された動力は、前記パワーユーザーの動力需要の少なくとも一部に使用されることが記載されている。また、特許文献1には、ガスタービン排熱の少なくとも一部は、アンモニア製造プラントの熱ユーザーの低品位の熱として回収されることも開示されている。

[0006] また、特許文献1に記載のアンモニア製造プラント等の従来のアンモニア製造プラントでは、アンモニアの原料となる水素は、炭素系原料を水蒸気によって改質（リフォーム）して製造されていた。

[0007] アンモニア製造プラントから排出される $\text{CO}_2$ は、化学吸収法等を使用してプロセスガス中から酸性ガスを分離する装置（例えば、*Acid Gas Removal*、*AGR*とも言う）により回収するプロセス $\text{CO}_2$ と、リフォーマーやボイラーなどの空気燃焼による燃焼炉から排出される排ガスに含まれる煙道 $\text{CO}_2$ とに分類することができる。一般に空気燃焼による排ガス（以降、煙道排ガス）中の $\text{CO}_2$ 分圧は低く、 $\text{CO}_2$ 回収を行う場合、 $2.5 \sim 3.0 \text{ GJ} / \text{ton-CO}_2$ という大きなエネルギーが必要となり、プラントの熱効率を著しく下げる要因となる。また経済性を考えると煙道排ガスからの $\text{CO}_2$ の回収率として90%程度が上限となっておりこれ以上の回収は難しいという問題がある。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0008] 特許文献1：WO2015/193108号

## 発明の概要

## 発明が解決しようとする課題

[0009] アンモニア製造プラントでは、アンモニア需要の拡大に伴い、スケールメリットによるコストダウンのためのプラントキャパシティの大型化が求められると共に、環境性への要求の高まりに伴い、省エネルギー化、 $\text{CO}_2$ ガス排

出量の削減、およびCO<sub>2</sub>ガスの回収が課題となっている。

- [0010] このため、アンモニア合成のための原料の消費量を抑え、CO<sub>2</sub>ガスの排出を少なくすると共に、排出されたCO<sub>2</sub>ガスを高効率で回収できる省エネルギー性の高いアンモニア製造プラントを構築することが求められていた。

### 課題を解決するための手段

- [0011] そこで、本発明者らは、プラントの省エネルギー性を高くするとともにCO<sub>2</sub>排出を少なくすることの優位性の観点で検討したところ、以下の第1の態様および第2の態様により上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

- [0012] 本発明にかかるアンモニア製造プラントの第1の態様は、  
炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、

アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備と、を備え、

前記合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、

前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られたCO<sub>2</sub>ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動することにより動力を発生するガスタービンと、を有し、且つ前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成され、

前記動力発生設備で得られた動力は、少なくとも前記アンモニア合成設備の動力として使用され、

前記排熱回収部で回収された排熱は、前記リサイクルガスを加熱するために使用されることを特徴とする。

- [0013] また、本発明にかかるアンモニア製造プラントの第2の態様は、  
炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、

アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備と、を備え、

前記合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、

前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガス中の排熱により水蒸気を発生する水蒸気発生装置と、当該水蒸気発生装置で発生した水蒸気を動力として駆動することにより動力を発生するスチームタービンと、を有し、且つ前記水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成され、

前記動力発生設備で得られた動力は、少なくとも前記アンモニア合成設備の動力として使用され、

前記排熱回収部で回収された排熱は、前記水蒸気発生装置における水蒸気の発生に使用されることを特徴とする。

### 発明の効果

[0014] 本発明によれば、従来のアンモニア製造プラントよりも遥かに少ないエネルギーで $\text{CO}_2$ 排出量が少ないアンモニアを製造することができるアンモニア製造プラントおよびアンモニアの製造方法を構築できる。

### 図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第1の態様の概略模式図を示す。

[図2]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第1の態様の概略模式図を示す。

[図3]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第1の態様の他の概略模式図を示す。

[図4]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第2の態様の概略模式図を示す。

[図5]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第2の態様の他の概略模式図を示す。

[図6]本発明にかかるアンモニア製造プラントの第2の態様の概略模式図を示す。

### 発明を実施するための形態

[0016] 以下、本発明の具体的態様について図面を参照しながら説明するが、本発明は図面の態様に限定されるものではない。以下の説明において、ガス等の流体の流れる方向を基準として、装置および設備の位置関係を「上流」、「下流」と表現する場合がある。また、以下の説明において、便宜上二酸化炭素を $\text{CO}$ 、二酸化炭素を $\text{CO}_2$ 、水素を $\text{H}_2$ と表現する場合がある。

#### [0017] 第1の態様

図1は、本実施形態にかかるアンモニア製造プラントの第1の態様の概略模式図を示す。

[0018] 本発明にかかるアンモニア製造プラントの態様は、炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、

アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備と、を備える。

[0019] 前記合成ガス生成設備は、炭素系原料から、 $\text{H}_2$ を主成分とする合成ガスを生成する設備である。合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有する。排熱回収部で回収された排熱は、後述するリサイクルガスを加熱するために使用される。なお、合成ガスには、 $\text{H}_2$ の他に、合成ガス生成の過程で発生する $\text{CO}$ 、 $\text{CO}_2$ やメタンが含まれていてもよい。

[0020] 炭素系原料には天然ガス、または石炭（石炭をガス化した石炭ガス）が使用される。これらの原料には、炭素数1以上の炭化水素が含まれる。

[0021] 炭素系原料として天然ガスを使用する場合には、合成ガス生成設備は、天

然ガスを改質して合成ガスを生成する。排熱回収部は、天然ガスの改質反応後の排熱を回収する。一方、炭素系原料として石炭を使用する場合には、合成ガス生成設備は、石炭をガス化して合成ガスを生成する。排熱回収部は、石炭のガス化反応後の排熱を回収する。石炭のガス化反応では、酸素と石炭とを反応させて合成ガスを生成する。

[0022] 本実施形態では、炭素系原料として天然ガスを使用する場合について説明する。

[0023] 本実施形態の合成ガス生成設備は、合成ガス中に含まれる $\text{CO}_2$ ガスを回収するように構成されている。具体的には、合成ガス生成設備は、改質反応により得られた合成ガス中の一酸化炭素と水蒸気とを反応させて（シフト反応）、水素および二酸化炭素を生成するシフト反応部を有していてもよい。そして、合成ガス生成設備は、シフト反応により得られた二酸化炭素を回収する $\text{CO}_2$ 回収部を有してもよい（詳しくは後述する図2参照）。

[0024] 天然ガス改質後の排熱は、排熱回収部で回収される。またシフト反応は発熱反応であるため、この発熱も合わせて排熱回収部で回収することができる。

[0025] シフト反応により得られたガスから $\text{CO}_2$ ガスが分離されて得られた水素は、アンモニア合成反応の原料ガスとして、圧縮機などによってアンモニア合成設備に送られる。アンモニア合成設備では、合成ガス生成設備で生成された水素と後述する分離装置（図2参照）から供給される窒素とを反応させてアンモニアが合成される。

[0026] 前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動することにより動力を発生するガスタービンとを有し、且つ前記ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成されている。本実施形態の動力発生設備は、ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するための昇圧部をさらに有する。

[0027] 動力発生設備で得られた動力は、少なくともアンモニア合成設備の動力として使用される。具体的には、アンモニア合成設備は大きな動力を必要とする設備であり、動力発生設備で得られた動力は、アンモニアの原料ガス（窒素および水素の混合ガス）を反応圧力まで昇圧する原料ガスコンプレッサーおよび合成したアンモニアを冷却分離するための冷熱を作る冷凍コンプレッサー等の動力に使用される。また、動力発生設備で得られた動力は、図2に示す分離装置（深冷分離装置）に設置されたエアーコンプレッサーの動力として使用されてもよい。また、動力発生設備で得られた動力は、合成ガス生成設備内で使用されてもよく、動力発生設備内で使用されてもよい。

[0028] 燃焼装置は、酸素と天然ガスとを燃焼させ、当該燃焼反応により $\text{CO}_2$ ガスおよび水蒸気を含む燃焼ガスを得るための装置である。本実施形態の燃焼装置は、高純度の酸素と天然ガスとを燃焼する。本実施形態の燃焼装置は、空気を供給して天然ガスを燃焼する場合と比較して、得られた燃焼ガス中の $\text{CO}_2$ 濃度が高くなる（燃焼ガス中の $\text{CO}_2$ 分圧が高くなる）。そのため、 $\text{CO}_2$ ガスの回収に必要なエネルギーを低減することができ、且つ $\text{CO}_2$ ガスの回収率を高めることができる。

[0029] ガスタービンは、燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動する。ガスタービンには、 $15\text{ bar} \sim 300\text{ bar}$ 、 $800^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$ の燃焼ガスが供給され、動力発生のための仕事を終えた燃焼ガスは、 $1\text{ bar} \sim 80\text{ bar}$ 、 $500^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ 程度まで圧力および温度が下がった状態でガスタービンより排出される。

[0030] 昇圧部は、ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスを昇圧する。昇圧部によって昇圧された $\text{CO}_2$ は、リサイクルガスとして燃焼装置に送られる。昇圧部によって昇圧された $\text{CO}_2$ は、運転圧力および運転温度によって状態が定まるため、昇圧部の出口における $\text{CO}_2$ は、気体、液体または気液混合体である。本実施形態では、昇圧して燃焼装置に送られる $\text{CO}_2$ を、前記排熱回収部で回収された排熱によって加熱する。この加熱により、燃焼装置の更なる熱効率の向上を図ることができ、従来の方法よりも遥かに少ないエネルギーでアン

モニアを製造できるプロセスを構築できる。

[0031] また、本実施形態では、昇圧部は、ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスと合成ガス生成設備で回収された $\text{CO}_2$ ガスとを昇圧する。即ち、合成ガス生成設備から分離回収された $\text{CO}_2$ ガスを昇圧部に合流させ、リサイクルガスとして、燃焼装置に送ることも可能である。この場合、合成ガス生成設備から分離回収された $\text{CO}_2$ ガスを昇圧するために昇圧部を共用することができるので、合成ガス生成設備に昇圧設備を別途設ける必要がなく、設備コストを抑制することができる。合成ガス生成設備は、アミンなどの溶剤を用いた化学吸収法などで酸性ガスを分離する装置、PSA（圧力スイング吸着）法、深冷分離装置等の $\text{CO}_2$ 回収部を備え（詳しくは後述する図2参照）、 $\text{CO}_2$ を分離回収することも可能である。

[0032] ガスタービンの排ガス中の水蒸気は、 $\text{CO}_2$ を昇圧する前に水として分離回収される（図1の昇圧部から排出される $\text{H}_2\text{O}$ ）。また、設備内のマテリアルバランスから、燃焼装置に導入される炭素系原料の炭素量に相当する $\text{CO}_2$ は、動力発生設備外に排出される。排出された $\text{CO}_2$ は、例えばCCS（Carbon Dioxide Capture and Storage）、EOR（Enhanced Oil Recovery）等の技術を介して回収利用されてもよい。

[0033] 合成ガス生成設備およびアンモニア合成設備（以下、総称してアンモニア製造設備とする場合がある）における排熱を動力発生設備で使用することで、動力発生設備の効率をさらに向上させることが可能で、排熱の有効利用による省エネルギー性の向上が可能になる。

[0034] また、高純度の酸素による燃焼装置を使用することで、今まで経済的な制約で、 $\text{CO}_2$ の回収率は90%程度に留まっていたが、経済的に大きな制約なく全量に近い量の $\text{CO}_2$ を回収することが可能になる。

[0035] 図2の態様は、図1の第1の態様のより好ましい一態様を示す。

[0036] 図2の態様では、合成ガス生成設備は、合成ガス中に含まれる $\text{CO}_2$ ガスを回収する $\text{CO}_2$ 回収部を備える。また、本実施形態のアンモニア製造プラント

は、空気を酸素と窒素とに分離する分離装置をさらに備える。分離装置としては、酸素と窒素を分離できれば特に制限されないが、P S A法や、深冷分離などを特に制限なく使用できる。大型のアンモニア装置であり、高濃度の酸素が必要である場合は、深冷分離方式の分離装置が好ましい。深冷分離では、空気を、 $-180^{\circ}\text{C}$ レベルまで冷却して液化、蒸留して窒素と酸素を分離し、冷熱を作るコンプレッサーの動力に動力発生設備で得られた動力が使用される。分離した窒素はアンモニア合成設備で使用される。

[0037] 前記合成ガス生成設備は、前記炭素系原料を改質する第1改質部と前記第1改質部で改質されなかった炭素系原料を改質する第2改質部とを備える。また、合成ガス生成設備は、第1改質部及び第2改質部における改質反応により生成したCOをCO<sub>2</sub>に転換するシフト反応部を備えてもよい。シフト反応部は、図1に示す態様で示したものと同一である。

[0038] 前記第1改質部は、水蒸気改質反応により前記炭素系原料を改質するように構成されている。前記第2改質部は、部分酸化反応を利用して前記炭素系原料を改質するように構成されている。前記分離装置は、前記燃焼装置及び前記第2改質部に酸素を供給するように構成されている。本実施形態では、第1改質部は、主に炭素数2以上の炭化水素（メタンより重い成分、以下、C2プラス成分と表現する場合がある）を改質する。また、第2改質部は、主にメタンを改質する。

[0039] 本実施形態では、第1改質部は、第2改質部の上流に設けられている。第1改質部を第2改質部の上流に設けることで、C2プラス成分が改質された炭素系原料を第2改質部へ供給し、第1改質部で改質されなかった炭素系原料（即ち、主にメタン）を第2改質部で改質することができる。即ち、第2改質部内で改質する炭素系原料中に含まれる重質分が少なくなるため、未燃カーボンの発生等が抑えられ、高温で運転される第2改質部の触媒および装置の寿命を長くすることが可能となる。

[0040] 第1改質部で行われる水蒸気改質は吸熱反応であり、C2プラス成分が改質されて、COとH<sub>2</sub>とが得られる。また第2改質部で行われる部分酸化反応

は発熱反応であり、メタンが部分酸化される。当該部分酸化反応により、吸熱反応である水蒸気改質反応に必要な熱を供給し、合成ガスであるCOとH<sub>2</sub>とが得られる。第2改質部からはCO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>および未反応のメタンの混合ガスが得られる。

[0041] 本実施形態では、第2改質部から排出される排熱を排熱回収部で回収し、その一部を第1改質部の加熱に利用するとともに、燃焼装置に送られるリサイクルガスを加熱する。

[0042] 第2改質部の出口では800℃～1100℃の高温の排熱が出る。従来、この熱は300℃～400℃のスチームを作ることにより使用されており高温排熱を有効に利用できていなかった。本実施形態では、高温排熱は燃焼装置に送られるリサイクルガスの加熱および第1改質部の加熱に使用され、更なる熱効率の向上を図ることが可能となる。

[0043] このような第2改質部には、オートサーマルリフォーマーを使用してもよく、プラントの大型化が可能となる。オートサーマルリフォーマーでは酸素による部分酸化反応で発生する反応熱によって自己加熱し、外部からの熱供給を不要とするもので、断熱型反応器が用いられる。また、この自己加熱によって水蒸気改質も同時に進行する。

[0044] 本実施形態では、排熱回収部は、所定の温度を有する高温排熱を回収する高温熱交換器と、前記高温排熱よりも低温の低温排熱を回収する低温熱交換器と、を備える。高温熱交換器は、前記第2改質部で発生した高温排熱を回収し、前記低温熱交換器は、前記シフト反応部で発生した低温排熱を回収する。

[0045] 高温熱交換器は、500℃～1100℃の熱を回収し、低温熱交換器は、高温排熱より低く、シフト反応により発生した熱を回収する。

[0046] 前記排熱回収部で回収された排熱、特に高温排熱の一部は、昇圧部により昇圧されたりサイクルガスを加熱するために使用される。このように高温排熱をリサイクルガスの加熱に使用すると、効率的に熱を使用できる上に、燃焼装置に高温のCO<sub>2</sub>ガスを供給できるので、その分燃焼装置に供給する燃料

を削減することができる。そのため、高温排熱によってリサイクルガスを加熱しない場合と比較して、高効率で動力発生設備を運転することができる。

[0047] 前記低温熱交換器で回収された低温排熱の一部は、少なくとも前記水蒸気改質反応に必要な水蒸気を発生させるために使用される。具体的には、前記低温排熱の一部は、水を昇温するために使用されてもよく、または水を気化するための熱として使用されてもよい。

[0048] 本実施形態の燃焼装置には、分離装置で得られた酸素が供給される。燃焼装置は、当該酸素と天然ガスとを燃焼する。即ち、本実施形態の燃焼装置は、略純粋な酸素と天然ガスとを燃焼する。しかしながら、燃焼装置に供給される酸素は高純度であればよく、例えば、酸素濃度として95%以上の高濃度酸素ガスが燃焼に使用されてもよい。

[0049] 本発明の第1の態様の他の態様として、前記排熱回収部で回収された排熱は、前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスであって前記昇圧部に供給される前のCO<sub>2</sub>ガスの加熱に使用され、前記加熱されたCO<sub>2</sub>ガスにより前記リサイクルガスが加熱されてもよい。具体的には、図3に示すように、動力発生装置は、ガスタービンと昇圧部との間に、ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスとリサイクルガス（CO<sub>2</sub>ガス）との熱交換を行う熱交換部を備えていてもよい。そして、排熱回収部（高温熱交換器）で回収された高温排熱がガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスを加熱し、熱交換部は、当該加熱されたCO<sub>2</sub>ガスでリサイクルガスを加熱してもよい。

[0050] 上記のように、ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスを加熱することでリサイクルガスを間接的に加熱すると、高温熱交換器の設計条件を緩和することができ、高温熱交換器のコストを低減することができる。即ち、リサイクルガスを当該熱交換部の出口で直接加熱する場合（図3の破線およびAの位置でリサイクルガスを加熱する場合）には、高圧の（昇圧後の）リサイクルガスに基づいて高温熱交換器を設計するため、高温熱交換器の設計圧力が高くなってしまう。これに対して、比較的圧力の低い位置でCO<sub>2</sub>ガスを加熱することで、低圧のリサイクルガスに基づいて高温熱交換器を設計することが

でき、機器コストを低減することができる。

[0051] 第2の態様

図4は、本発明にかかるアンモニア製造プラントの別の一態様の概略模式図を示す。尚、第1の態様と共通する構成については同じ名称を付し、説明は繰り返さない。

[0052] 本実施形態にかかるアンモニア製造プラントの態様は、

前記合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、

前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガス中の排熱により水蒸気を発生する水蒸気発生装置と、当該水蒸気発生装置で発生した水蒸気を動力として駆動することにより動力を発生するスチームタービンと、を有し、且つ前記水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成され、

前記動力発生設備で得られた動力は、少なくとも前記アンモニア合成設備の動力として使用され、前記排熱回収部で回収された排熱は、前記水蒸気発生装置における水蒸気の発生に使用される。

[0053] 図4の態様では、動力発生設備は、燃焼により得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動するガスタービンを有し、前記水蒸気発生装置は、前記ガスタービンの排熱により水蒸気を発生する。

[0054] 図4の態様は、ガスタービンコンバインドサイクル発電の概念を利用したものである。本実施形態では、ガスタービンから排出される排ガス中の排熱を、水蒸気発生装置の熱源として使用するとともに、排熱回収部により回収された排熱を熱源として水蒸気を発生させる。水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガス及び水蒸気を含むガスは、昇圧部により昇圧されてリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給される。

[0055] 図4の態様では、ガスタービンからの高温排ガス（700℃程度）を排熱回収部により回収された熱によって加熱し、加熱された排ガスを、例えば水

蒸気発生装置としての排熱回収ボイラーに供給する。前記加熱された排ガスを、水蒸気を発生させる熱源として使用し、発生した水蒸気を利用して、スチームタービンを駆動する。

[0056] 上記図4の態様では、動力発生装置がガスタービンを有する場合について説明したが、動力発生装置はガスタービンを備えていなくてもよい。具体的には、図5に示すように、動力発生装置は、燃焼装置と水蒸気発生装置とを有し、水蒸気発生装置から排出されたCO<sub>2</sub>ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成されていてもよい。この構成であっても、全体としてCO<sub>2</sub>ガスの排出を削減し、且つ高効率でCO<sub>2</sub>ガスを回収できる省エネルギー性の高いアンモニア製造プラントを提供することができる。

[0057] 図6に、図4に示す第2の態様のより好ましい一態様を示す。

[0058] 図6の態様では、動力発生設備は、スチームタービンの駆動に使用された後凝縮した凝縮水を、外部からの水とともに水蒸気発生装置に移送する圧送装置を有する。凝縮水は、水蒸気発生装置内で再度水蒸気となり、スチームタービンの駆動に使用される。このように、凝縮水は、水蒸気発生装置と圧送装置との間を循環する。

[0059] 合成ガス生成設備は、合成ガス中に含まれるCO<sub>2</sub>ガスを回収するように構成され、昇圧部は、前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスと前記回収されたCO<sub>2</sub>ガスとを昇圧する態様となる。前記合成ガス生成設備は、図2の態様と同様に、前記炭素系原料を改質する第1改質部と前記第1改質部で改質されなかった炭素系原料を改質する第2改質部と、を備える。前記第2改質部は、部分酸化反応を利用して前記炭素系原料を改質するように構成され、前記分離装置は、前記燃焼装置及び前記第2改質部に酸素を供給するように構成されている。このような第1改質部および第2改質部は、図2の態様と同様であり、第2改質部にオートサーマルリフォーマーを使用してもよい。

[0060] 前記排熱回収部は、所定の温度を有する高温排熱を回収する高温熱交換器と、前記高温排熱よりも低温の低温排熱を回収する低温熱交換器とを備える。前記高温熱交換器は、前記第2改質部で発生した高温排熱を回収し、前記

低温熱交換器は、前記シフト反応部で発生した低温排熱を回収するように構成される。

[0061] 本実施形態では、高温熱交換器で回収された高温排熱は、その一部が第1改質部の加熱に利用される。また、高温熱交換器で回収された高温排熱および低温熱交換器で回収された低温排熱は、水蒸気発生装置における水蒸気の発生のために使用される。具体的には、高温熱交換器で回収された高温排熱は、水蒸気発生装置内で水を気化し、水蒸気を発生するために使用される。一方、低温熱交換器で回収された低温排熱は、スチームタービンの駆動後に得られた凝縮水の加熱に使用される。例えば、低温熱交換器は、圧送装置の下流に設置される。このように排熱を使用すると、効率的に熱を使用できる。

[0062] アンモニア合成の触媒毒となる二酸化炭素が除去された合成ガスは、必要に応じて窒素洗浄装置（図示しない）に送られ、深冷分離により不活性ガス成分（イナート分ともいう）が除去された上でアンモニア合成設備に送られる。または、二酸化炭素が除去された合成ガスは、メタネーション装置に送られ、合成ガス中に微量に残存する一酸化炭素及び二酸化炭素がメタン化反応によってアンモニア合成触媒に対して不活性となるメタンに変換された上でアンモニア合成設備に送られてもよい。

[0063] 合成ガス生成設備および分離装置で得られた水素および窒素は、圧縮機（図示しない）にてアンモニア合成の合成圧力（15 bar～80 bar）まで昇圧され、アンモニア合成反応開始温度（400℃～500℃程度）まで昇温されてアンモニア合成反応に供せられる。得られたアンモニアは、冷凍コンプレッサーを利用した冷却分離などの公知の分離設備を介して、アンモニア製品として分離・回収される。

[0064] アンモニア合成は、公知のアンモニア合成プロセスによって行うことが可能である。

[0065] アンモニア合成プロセスとして、たとえば鉄系触媒を用いたハーバー・ボッシュ法を採用することも可能である。かかるハーバー・ボッシュ法では、

200 bar以上の高圧下で合成反応が行われ、高圧法とも呼ばれる。また、アンモニア合成プロセスとして、ルテニウム触媒を用いて低圧条件下でアンモニアを合成する方法（低圧法）も採用できる。ルテニウム触媒を用いるアンモニア合成プロセスでは、ルテニウム触媒を担体に担持させた触媒を使用することができる。ルテニウムを担持させる担体としては、触媒の担体としてアルミナや希土類酸化物を用いることができる。また、最近ではプロトン交換膜を介して供給された水素(イオン)と、窒素とを反応させるアンモニア合成方法が提案されている。

[0066] 以上の本実施形態で各合成反応中に使用される触媒については、公知のものを採用できる。

[0067] 上記実施形態では、第2改質部にオートサーマルリフォーマーを採用し、且つ燃焼装置に分離装置で得られた高純度の酸素を供給する。この構成により、煙道排ガスを無くし、燃焼装置より排出されるCO<sub>2</sub>ガスを省エネルギーで略全量回収することができる。

[0068] 上記実施形態では、主にアンモニア製造プラントに係る発明について説明したが、本発明は、アンモニアを製造するアンモニアの製造方法に係る発明としても捉えることができる。即ち、第1の態様に係るアンモニアの製造方法は、炭素系原料からアンモニアを製造するアンモニアの製造方法であって、

アンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成する合成ガス生成工程と、

動力を得るため動力発生工程と、を備え、

前記合成ガス生成工程は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する工程を有し、

前記動力発生工程は、酸素と燃料とを燃焼装置で燃焼させる工程と、当該燃焼により得られたCO<sub>2</sub>ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動するガスタービンにより動力を発生させる工程と、前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>

ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給する工程と、を有し、

少なくとも前記アンモニア合成工程では、前記動力発生工程で得られた動力がアンモニアを合成するための動力として使用され、

前記動力発生工程では、前記合成ガス生成工程で回収された排熱が、前記リサイクルガスを加熱するために使用される。

[0069] また、第2の態様に係るアンモニアの製造方法は、炭素系原料からアンモニアを製造するアンモニアの製造方法であって、

アンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成する合成ガス生成工程と、

動力を得るため動力発生工程と、を備え、

前記合成ガス生成工程は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する工程を有し、

前記動力発生工程は、酸素と燃料とを燃焼装置で燃焼させる工程と、当該燃焼により得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガス中の排熱により水蒸気発生装置で水蒸気を発生させる工程と、当該水蒸気を動力として駆動するスチームタービンにより動力を発生させる工程と、前記水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給する工程と、を有し、

少なくとも前記アンモニア合成工程では、前記動力発生工程で得られた動力がアンモニアを合成するための動力として使用され、

前記動力発生工程では、前記合成ガス生成工程で回収された排熱が、前記スチームタービンを駆動するための水蒸気の発生に使用される。

[0070] また、第2の態様に係るアンモニアの製造方法は、燃焼装置で得られた燃焼ガスを動力として駆動するガスタービンにより動力を発生させる工程を備え、ガスタービンの排熱が、水蒸気の発生に使用されてもよい。

[0071] 本実施形態によれば、高純度の酸素と燃料とを燃焼装置で燃焼させると共に、効率のよい動力発生設備を採用することで、アンモニア合成のための原料の消費量を抑え、 $\text{CO}_2$ ガスの排出を少なくすると共に、排出された $\text{CO}_2$ ガ

スを高効率で回収できる省エネルギー性の高いアンモニア製造プラントを構築することができる。また、オートサーマルリフォーマーを採用して煙道排ガスを排出しないプロセスを構築することで、煙道排ガス中の $\text{CO}_2$ を回収するための $\text{CO}_2$ 回収装置で使用する高価な溶剤のロスや溶剤からの $\text{CO}_2$ 分離にかかる大きなエネルギーを無くすることができる。以上のように、本実施形態によれば、空気を酸素と窒素とに分離する分離装置を使用してもなお、プラントのエネルギー消費量を20%程度削減することができる。

[0072] また、アンモニア製造プラントが当該分離装置を備えることで、合成ガス生成設備および動力発生設備で当該分離装置を共用することができる。そのため、設備コストを抑制することができる。さらに、当該分離装置はアンモニア合成設備に窒素を供給してもよく、この場合、合成ガス生成設備、動力発生設備およびアンモニア合成設備の3設備で当該分離装置を共用することもできる。

[0073] 合成ガス生成設備の排熱を動力発生設備で使用することで、動力発生設備の効率をさらに向上させることが可能で、排熱の有効利用による省エネルギー性の向上が可能になる。

[0074] 高純度の酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置を使用することで、今まで経済的な制約で $\text{CO}_2$ ガスを90%までしか回収できなかったが、経済的に大きな制約なく全量の $\text{CO}_2$ を回収することが可能になる。

[0075] また、合成ガス生成設備と動力発生設備を独立して立ち上げられるように設計することで、スタートアップに必要な最低限の電力の供給があれば、従来のスタートアップにしか使われないスタートアップ用燃焼装置を持つことなく、動力発生設備の排熱を使用して、 $\text{CO}_2$ 排出なくアンモニアプラントを立ち上げることが可能になる。具体的には、本実施形態では、燃焼装置を立ち上げることでガスタービンを駆動させ、アンモニア製造プラント内の動力を得ることができる。また、ガスタービンの排熱によって改質反応等に必要な水蒸気を発生させることができる。このように、本実施形態によれば、スタートアップ用燃焼装置を設ける必要がなく、全体として装置コストを削減

することができる。

[0076] 尚、本発明のアンモニア製造プラントは、上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々変更を加え得ることは勿論である。

[0077] 上記実施形態では特に言及するものではないが、第2の態様では、スチームタービンから抽気し、抽気された水蒸気を水蒸気改質反応で使用される水蒸気として第1改質部または第2改質部に供給してもよい。また、アンモニア合成設備から排出される排熱（アンモニア合成時の発熱）を熱回収する際に水蒸気を発生させ、当該水蒸気を水蒸気改質反応に使用される水蒸気として第1改質部または第2改質部に使用してもよい。

[0078] 上記実施形態では特に言及するものではないが、アンモニア製造プラントは、炭素系原料に含まれる硫黄分を除去する脱硫装置を備えていてもよい。例えば、脱硫装置は、図1に示す原料供給ラインに設けられ、脱硫後の炭素系原料が合成ガス生成設備および動力発生設備に供給されてもよい。この場合、合成ガス生成設備および動力発生設備において脱硫装置を共用することで動力発生設備からの排水処理コスト等を低減することができる。

[0079] 上記実施形態では、主に合成ガス生成設備で発生した排熱を動力発生設備で使用する場合について説明したがこれに限定されるものではない。アンモニア合成設備で発生した排熱を動力発生設備で使用して、省エネルギー性を高めるようにしてもよい。具体的には、図示するものではないが、アンモニア合成設備に設けられたアンモニア合成反応器の出口ガスを水蒸気発生装置による水蒸気発生に使用してもよく、またはリサイクルガスの加熱に使用してもよい。

[0080] 上記実施形態では特に言及するものではないが、炭素系原料として石炭を使用する場合、合成ガス生成設備は、第1改質部および第2改質部に代えて、石炭をガス化するためのガス化炉を有する。本態様では、排熱回収部は、ガス化炉における合成ガス生成時に発生する排熱を回収してもよい。ガス化炉で得られた合成ガスは、燃焼装置に燃料として供給される。具体的には、

ガス化炉で得られた合成ガスは重金属が除去された後にシフト反応部に送られ、当該シフト反応部で得られた合成ガスが、燃料として燃焼装置に供給されてもよい。また、分離装置で得られた酸素がガス化炉に供給され、石炭のガス化に使用されてもよい。

## 請求の範囲

[請求項1] 炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、

アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備と、を備え、

前記合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、

前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動することにより動力を発生するガスタービンと、を有し、且つ前記ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成され、

前記動力発生設備で得られた動力は、少なくとも前記アンモニア合成設備の動力として使用され、

前記排熱回収部で回収された排熱は、前記リサイクルガスを加熱するために使用されることを特徴とするアンモニア製造プラント。

[請求項2] 炭素系原料からアンモニアを製造するためのアンモニア製造プラントであって、

アンモニアを合成するためのアンモニア合成設備と、前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成するための合成ガス生成設備と、動力を得るための動力発生設備と、を備え、

前記合成ガス生成設備は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する排熱回収部を有し、

前記動力発生設備は、酸素と燃料とを燃焼させる燃焼装置と、当該燃焼装置で得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガス中の排熱により水蒸気を発生する水蒸気発生装置と、当該水蒸気発生装置で発生した水蒸気を動力として駆動することにより動力を発生するスチームタービンと

、を有し、且つ前記水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するように構成され、

前記動力発生設備で得られた動力は、少なくとも前記アンモニア合成設備の動力として使用され、

前記排熱回収部で回収された排熱は、前記水蒸気発生装置における水蒸気の発生に使用されることを特徴とするアンモニア製造プラント。

[請求項3] 前記動力発生設備は、前記燃焼ガスを動力として駆動することにより動力を発生するガスタービンを含み、前記水蒸気発生装置は、前記ガスタービンの排熱により水蒸気を発生する請求項2に記載のアンモニア製造プラント。

[請求項4] 前記動力発生設備は、前記ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスを前記リサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するための昇圧部を含み、  
前記合成ガス生成設備は、合成ガス中に含まれる $\text{CO}_2$ ガスを回収するように構成され、  
前記昇圧部は、前記ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスと前記回収された $\text{CO}_2$ ガスとを昇圧する請求項1または3に記載のアンモニア製造プラント。

[請求項5] 空気を酸素と窒素とに分離する分離装置をさらに含み、  
前記合成ガス生成設備は、前記炭素系原料を改質する第1改質部と前記第1改質部で改質されなかった炭素系原料を改質する第2改質部とを含み、  
前記第2改質部は、部分酸化反応を利用して前記炭素系原料を改質するように構成され、  
前記分離装置は、前記燃焼装置及び前記第2改質部に酸素を供給するように構成されている請求項1～3のいずれかに記載のアンモニア製造プラント。

[請求項6] 前記排熱回収部は、所定の温度を有する高温排熱を回収する高温熱交換器と、前記高温排熱よりも低温の低温排熱を回収する低温熱交換器と、を備え、

前記合成ガス生成設備は、前記炭素系原料を改質する第1改質部と前記第1改質部で改質されなかった炭素系原料を改質する第2改質部と、前記第1改質部及び前記第2改質部における改質反応により生成したCOをCO<sub>2</sub>に転換するシフト反応部と、を備え、

前記高温熱交換器は、前記第2改質部で発生した高温排熱を回収し、前記低温熱交換器は、前記シフト反応部で発生した低温排熱を回収する請求項1～5のいずれかに記載のアンモニア製造プラント。

[請求項7] 前記第1改質部は、水蒸気改質反応により前記炭素系原料を改質するように構成され、

前記高温熱交換器で回収された高温排熱の一部は、前記第1改質部における改質反応のために使用される請求項6に記載のアンモニア製造プラント。

[請求項8] 前記第1改質部は、水蒸気改質反応により前記炭素系原料を改質するように構成され、

前記低温熱交換器で回収された低温排熱の一部は、少なくとも前記水蒸気改質反応に必要な水蒸気を発生させるために使用されることを特徴とする請求項6または7に記載のアンモニア製造プラント。

[請求項9] 前記動力発生設備は、前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスを前記リサイクルガスとして前記燃焼装置に供給するための昇圧部を備え、

前記排熱回収部で回収された排熱は、前記ガスタービンから排出されたCO<sub>2</sub>ガスであって前記昇圧部に供給される前のCO<sub>2</sub>ガスの加熱に使用され、

前記加熱されたCO<sub>2</sub>ガスにより前記リサイクルガスが加熱される請求項1に記載のアンモニア製造プラント。

[請求項10] 炭素系原料が、天然ガスまたは石炭である請求項1～9のいずれかに記載のアンモニア製造プラント。

[請求項11] 炭素系原料からアンモニアを製造するアンモニアの製造方法であって、

アンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成する合成ガス生成工程と、

動力を得るため動力発生工程と、を備え、

前記合成ガス生成工程は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する工程を有し、

前記動力発生工程は、酸素と燃料とを燃焼装置で燃焼させる工程と、当該燃焼により得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガスを動力として駆動するガスタービンにより動力を発生させる工程と、前記ガスタービンから排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給する工程と、を有し、

少なくとも前記アンモニア合成工程では、前記動力発生工程で得られた動力がアンモニアを合成するための動力として使用され、

前記動力発生工程では、前記合成ガス生成工程で回収された排熱が、前記リサイクルガスを加熱するために使用されることを特徴とするアンモニアの製造方法。

[請求項12] 炭素系原料からアンモニアを製造するアンモニアの製造方法であって、

アンモニアを合成するアンモニア合成工程と、

前記炭素系原料からアンモニア合成用の合成ガスを生成する合成ガス生成工程と、

動力を得るため動力発生工程と、を備え、

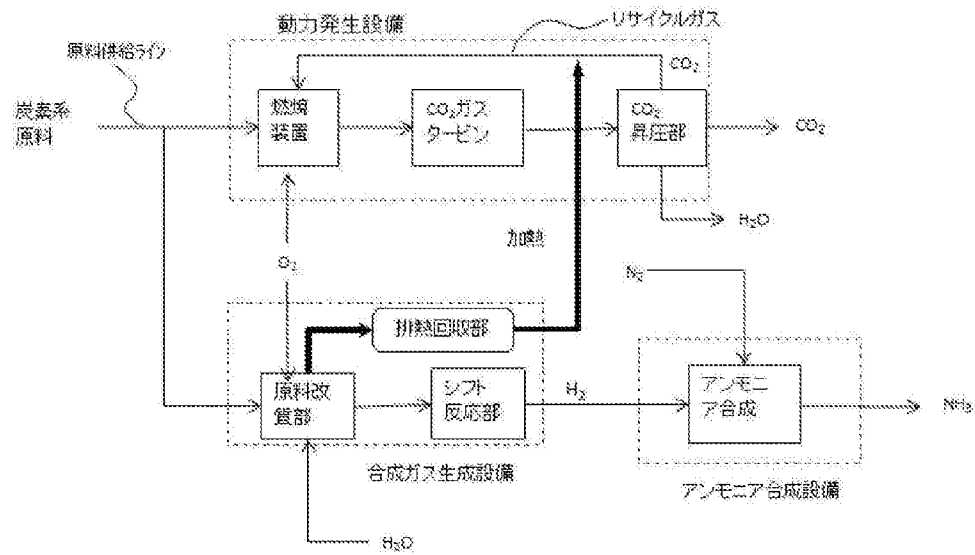
前記合成ガス生成工程は、合成ガス生成時に発生する排熱を回収する工程を有し、

前記動力発生工程は、酸素と燃料とを燃焼装置で燃焼させる工程と、当該燃焼により得られた $\text{CO}_2$ ガスを含む燃焼ガス中の排熱により水蒸気発生装置で水蒸気を発生させる工程と、当該水蒸気を動力として駆動するスチームタービンにより動力を発生させる工程と、前記水蒸気発生装置から排出された $\text{CO}_2$ ガスをリサイクルガスとして前記燃焼装置に供給する工程と、を有し、

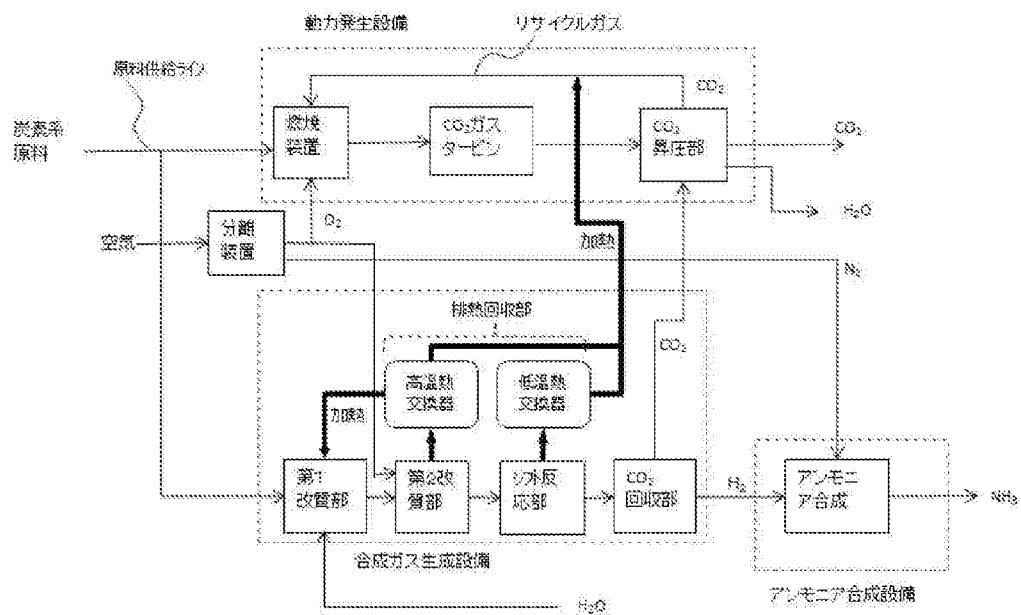
少なくとも前記アンモニア合成工程では、前記動力発生工程で得られた動力がアンモニアを合成するための動力として使用され、

前記動力発生工程では、前記合成ガス生成工程で回収された排熱が、前記スチームタービンを駆動するための水蒸気の発生に使用されることを特徴とするアンモニアの製造方法。

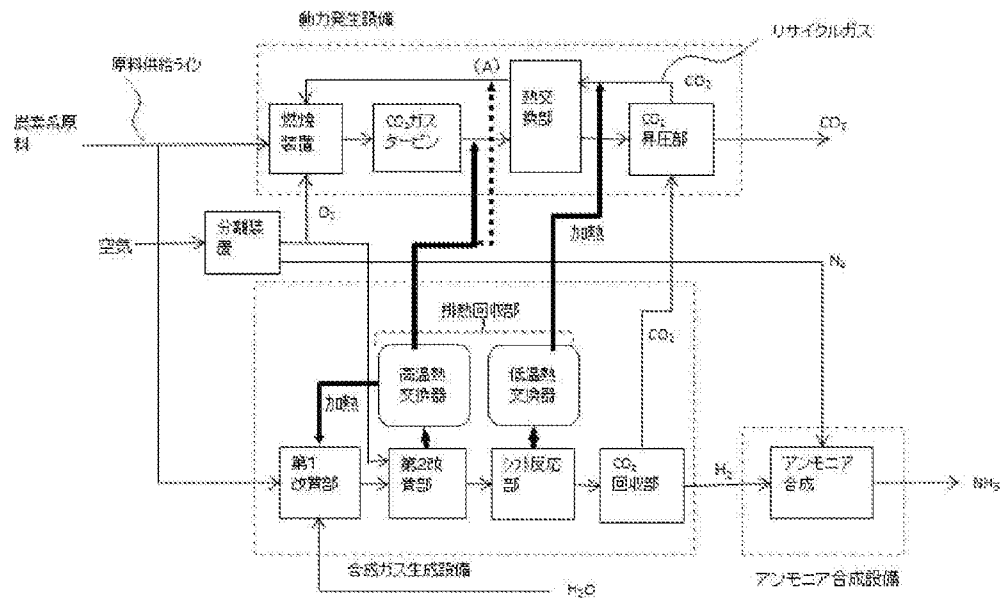
【図1】



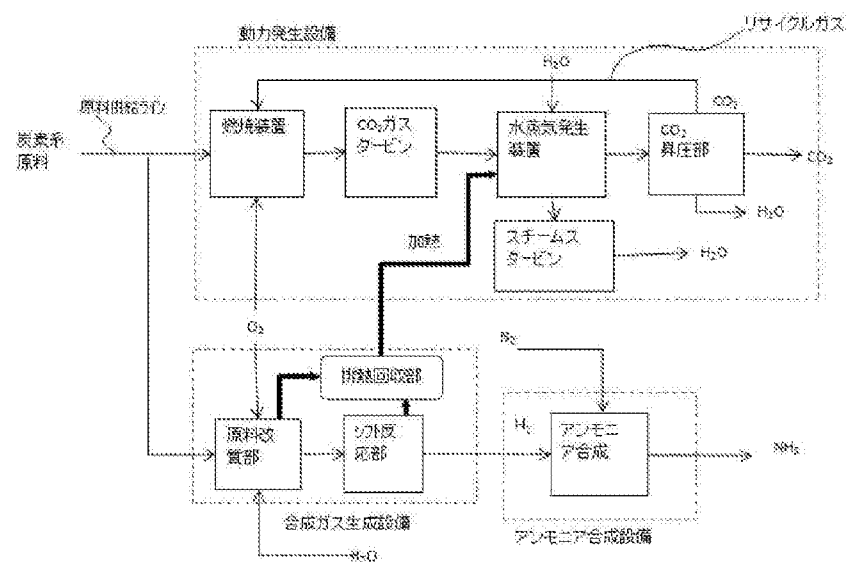
【図2】



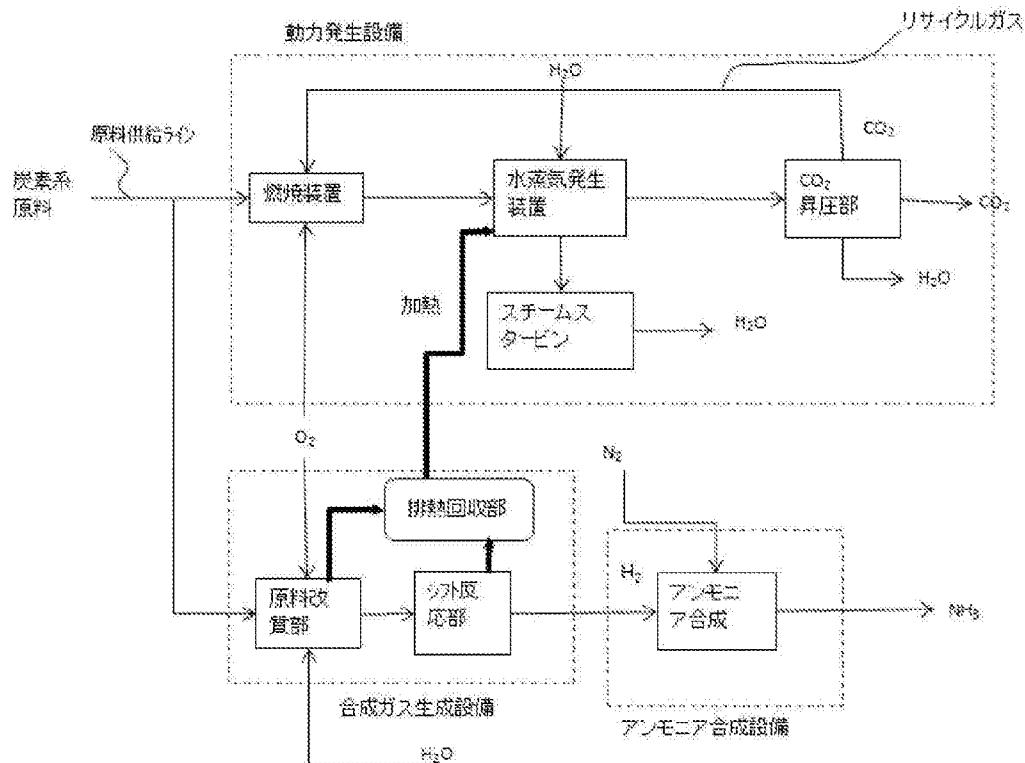
【図3】



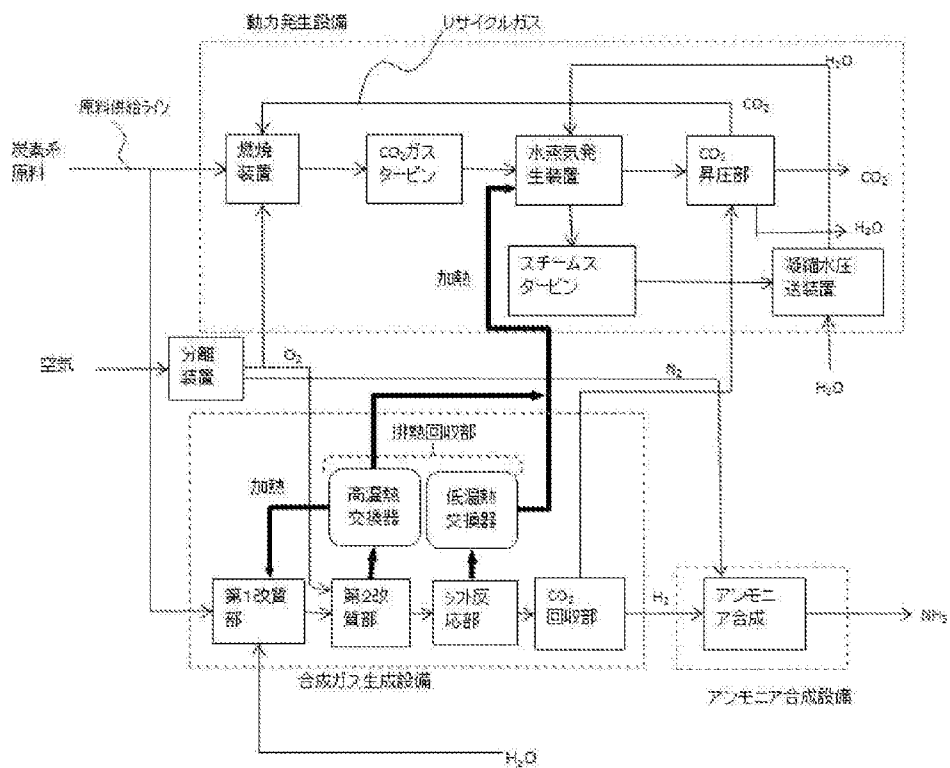
【図4】



【図5】



【図6】



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/018384

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C01C1/04 (2006.01) i, B01D53/62 (2006.01) i, C01B3/48 (2006.01) i

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)

Int.Cl. C01C1/04, B01D53/62, C01B3/48

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 | 1971-2018 |
| Registered utility model specifications of Japan         | 1996-2018 |
| Published registered utility model applications of Japan | 1994-2018 |

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. |
|-----------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2008-535768 A (EASTMAN CHEMICAL COMPANY) 04 September 2008, claims 1-28, paragraphs [0057]-[0065], fig. 1, 2<br>& US 2006/0228284 A1, claims 1-28, paragraphs [0099]-[0107], fig. 1, 2 & WO 2006/110422 A2 & EP 1877339 A2 | 1-12                  |
| A         | WO 2014/042042 A1 (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD.) 20 March 2014, claims 1-16, paragraphs [0025]-[0037], fig. 1, 11<br>& US 2015/0202589 A1, claims 1-16, paragraphs [0044]-[0054], fig. 1, 11 & EP 2896596 A1             | 1-12                  |



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

31.05.2018

Date of mailing of the international search report

12.06.2018

Name and mailing address of the ISA/

Japan Patent Office  
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,  
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/018384

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                               | Relevant to claim No. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2014-185583 A (CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF ELECTRIC POWER INDUSTRY) 02 October 2014, claims 1-8, paragraph [0039], fig. 1<br>(Family: none) | 1-12                  |
| A         | JP 2008-222480 A (IHI CORPORATION) 25 September 2008, claims 1-5, paragraphs [0029]-[0038], fig. 1<br>(Family: none)                             | 1-12                  |
| A         | WO 2017/149718 A1 (JGC CORPORATION) 08 September 2017, claims 1-4, fig. 10, 11<br>(Family: none)                                                 | 1-12                  |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C01C1/04(2006.01)i, B01D53/62(2006.01)i, C01B3/48(2006.01)i

## 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（I P C））

Int.Cl. C01C1/04, B01D53/62, C01B3/48

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 | 1971-2018年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2018年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2018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<br>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<br>請求項の番号 |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| A               | JP 2008-535768 A（イーストマン ケミカル カンパニー）<br>2008.09.04, 請求項 1-28, 段落[0057]-[0065], 図 1, 2 & US<br>2006/0228284 A1, 請求項 1-28, 段落[0099]-[0107], 図 1, 2 & WO<br>2006/110422 A2 & EP 1877339 A2 | 1-12           |
| A               | WO 2014/042042 A1（三菱重工業株式会社）2014.03.20, 請求の範囲<br>1-16, 段落[0025]-[0037], 図 1, 11 & US 2015/0202589 A1, 請求項 1-16,<br>段落[0044]-[0054], 図 1, 11 & EP 2896596 A1                            | 1-12           |

☒ 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矛盾するものではなく、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

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

31.05.2018

国際調査報告の発送日

12.06.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A/J P）

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官（権限のある職員）

森坂 英昭

4 G

4760

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                      |                |
|-----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>カテゴリ*        | 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<br>請求項の番号 |
| A                     | JP 2014-185583 A (一般財団法人電力中央研究所) 2014. 10. 02, 請求項 1-8, 段落[0039], 図 1 (ファミリーなし)      | 1-12           |
| A                     | JP 2008-222480 A (株式会社 I H I) 2008. 09. 25, 請求項 1-5, 段落 [0029]-[0038], 図 1 (ファミリーなし) | 1-12           |
| A                     | WO 2017/149718 A1 (日揮株式会社) 2017. 09. 08, 請求の範囲 1-4, 図 10, 11 (ファミリーなし)               | 1-12           |