# GXの加速化に向けた炉内アンモニア火炎可視化技術の開発に関する基礎検討

㈱四国総合研究所<br/>(株四国総合研究所<br/>(株四国総合研究所<br/>(株四国総合研究所<br/>(株四国総合研究所<br/>(株四国総合研究所<br/>(ま子アグリ技術部<br/>(株四国総合研究所<br/>(ま子アグリ技術部<br/>(株四国総合研究所<br/>(ま子アグリ技術部<br/>(株四国総合研究所<br/>(ま子アグリ技術部横井 清人<br/>杉本 幸代<br/>市川 祐嗣<br/>荻田 将一<br/>大井 信彦<br/>株四国総合研究所<br/>電子アグリ技術部

キーワード: アンモニア燃焼炉 Key Words: Amr

アンモニア火炎 可視化

受動紫外·赤外分光法

Key Words: Ammonia combustion furnace

Ammonia flame Visualization

Passive UV/IR spectroscopy

# Fundamental study on development of ammonia flame visualization technology in furnace for acceleration of GX

Shikoku Research Institute, Inc., Electronics and Agricultural technology Department Kiyohito Yokoi, Sachiyo Sugimoto, Yuji Ichikawa Masakazu Ogita, Nobuhiko Ooi, Ippei Asahi

# Abstract

Currently, many companies are actively working to convert existing fuel combustion furnaces into ammonia only or co-firing furnaces in order to put ammonia, which is attracting attention as one of the carbon-free fuels that can be used to combat climate change, into practical use in society. In the process, a new issue has arisen: the difficulty of observing ammonia flames in high-temperature furnaces. To solve this issue, we evaluated the feasibility of visualizing ammonia flames in furnaces using the principle of passive ultraviolet and infrared spectroscopy based on the results of basic experiments. As a result, we concluded that ammonia flames can be visualized in high-temperature furnace environments by selectively capturing the emission of ammonia flames in the range of 240 to 290 nm, assuming that the factors inhibiting visualization are radiation, the emission of the co-firing fuel flame, and light absorption by combustion products.

#### 1. 序論

アンモニアは、天然ガス、石油等の既存燃料や再生可能エネルギー等から製造することが可能であり、また、燃焼に伴う  $CO_2$  の排出が無いことから、気候変動対策に有効なカーボンフリー燃料の一つとして注目されている。同じく注目されている水素と比較して、既存インフラでの利用が可能であることから、安価に製造・利用することができる点が特徴とされている $^{1)}$ 。我が国においても、第6次エネルギー基本計画にも明記される $^{2)}$ など、グリーン成長戦略における重要分野の1つとして位置づけられており、主に専焼・混焼火力発電、同各種工業炉、船舶用燃料を中心に、技術開発や社会実装の加速化が進められている。



図1 燃料アンモニアの重要性1)

このような社会情勢を背景として、現在、多くの企業が既存燃料のバーナや燃焼炉からアンモニアバーナやアンモニア専焼・混焼炉への転換に向けた取組みを活発化している中、アンモニアの燃焼に係る課題が明らかになっている。例えば、アンモニアは、メタン等の炭化水素系燃料と比較して燃焼性が低く、着火及び保炎が難しい。また、燃焼生成物として大気汚染の原因物質である  $NO_x$  が発生する $^{3}$ 。したがって、安定的かつ  $NO_x$  生成が抑制できる燃焼方法を見出す必要があるが、その解決に向けた技術開発の中で、特に炉内においてアンモニア火炎の観測が困難であるという問題が新たに浮上した。

したがって,ここでは光学的計測技術を応用することにより,高温炉内におけるアンモニア火炎可視化を実現するための基礎検討を行ったので,基礎実験結果及び実験データに基づく実現の見通し等について述べる。

#### 2. 原理

著者らはこれまでに、水素を燃料とした際に生じる人の目に見えない火炎を可視化する技術を確立し、一部社会実装に至っている<sup>4),5)</sup>。

本技術は、受動紫外・赤外分光法を原理として 動作するものであり、目に見えない発光体を対象 として、可視波長域外の対象の自発光から可視化 に適した波長域を選択し、特殊なカメラを用いて 同波長域の発光を画像化した後に、背景画像と重 ね合わせることで、モニター上で対象を可視化す るものである。

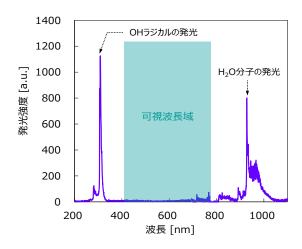


図2 水素火炎の発光スペクトル事例

原理の説明のために、図 2 に水素火炎の発光スペクトル事例を示す。水素火炎の場合、燃焼反応の過程において人の目に感度がある可視波長域に顕著な発光が生じない。したがって水素火炎は不可視である。一方で、紫外波長域や近赤外波長域において、燃焼生成物である OH ラジカルや  $H_2O$  分子の発光が生じており、受動紫外・赤外分光法では、これらの発光を選択的に捉え、必要に応じて画像処理を加えた上で、可視画像上に重畳し、可視化を行っている。

後に述べるとおり、アンモニア火炎はその燃焼 過程において可視波長域に発光を示し、環境条件 によっては視認することが十分可能である。本件 において、アンモニア火炎が観測できないとされ ているのは、炉内等の高温環境下においてであ り、黒体輻射による周辺の物質の強い発光がアン モニア火炎の発光のコントラストを大幅に低下さ せ、この点が主な要因となって観測を困難にして いるものと推定される。 したがって,アンモニア火炎の可視化にあたっては,水素火炎の可視化とは異なる概念,アプローチが必要となる。

#### 3. 原理検証

# 3.1 アンモニア火炎発生装置の製作

アンモニア火炎を発生させるために図3の装置 を作製した。アンモニアガスと酸素ガスを予混合 容器内に導入し、その後ノズルから放出した混合 ガスに点火することでアンモニア火炎を形成する。



図3 アンモニア火炎発生装置外観

図4はノズル部の拡大図で、アンモニアへの点火と燃焼を持続するために、水素火炎を種火として利用した。初めに水素用ノズルから水素ガス(100%)を放出させ、小型誘電コイルを用いて遠隔より火花放電によって水素を燃焼させた。この時、水素ガスの放出量は0.2L/min、火炎高約8mmである。その後、アンモニア用ノズルからアンモニア(100%)と酸素(100%)の混合ガスを放出し、アンモニアを燃焼させた(図5)。

計測中のアンモニア火炎の失火を防ぐため、ノズル (火炎口) の周りに直径 90mm, 厚み 2.5mm, 高さ 300mm の石英ガラス管で覆いをした。

本装置では火炎を発生させ,また腐食性と毒性 のあるガスも扱うため,安全にも配慮して設計し た。

火炎口からガスボンベに向けての逆火を防ぐために水素,酸素,アンモニアのそれぞれのガス管には逆火防止器(乾式)を火炎口側とボンベ側に設置した。

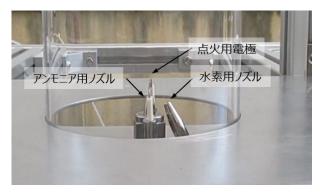


図4 ノズル部拡大図



図 5 燃焼中のアンモニア火炎

アンモニアは腐食性が非常に高い物質であるため、液化アンモニアのガスボンベとガス放出口までの供給経路の材料には耐腐食性のあるテフロンチューブとスウェージロックのステンレスチューブ、低リーク・耐食性フローメータ、ステンレスノズル及びステンレス製のガスセルを用いた。アンモニアのガス管は窒素ボンベにも分岐接続され、計測後は窒素ガスでアンモニアガスをパージできるようにした。

また、アンモニアは人体にとって有毒なガスでもあるため、外部への漏洩を防ぐ目的のために石 英ガラス管の上部を排気ダクトに接続し、石英ガ ラス管から吸気されたガスは塩酸を用いた中和排 気系に送られ、未燃焼アンモニアガスは無毒化される設計となっている。

#### 3.2 アンモニア火炎可視化実験

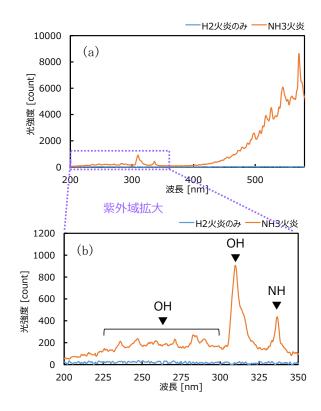
### (1) アンモニア火炎発光スペクトル計測

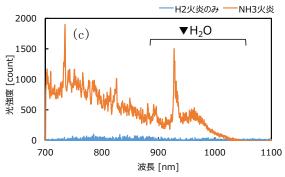
前節に示した火炎発生装置を用いて,アンモニ ア火炎可視化実験を行った。 可視化実験に先立ち、炉内アンモニア火炎可視化において最適な観測波長を検討するために、アンモニア火炎の発光スペクトルの計測を行った。集光したアンモニア火炎の発光を光ファイバに結合し、分光器へ導入した。使用した分光器は、波長域ごとにそれぞれ、Ocearn Optics 社製 Qe65Pro(紫外~可視域:200~580nm)、HR4000(近赤外域:700~1100nm)、NIRQuest(近赤外域:1100~1700nm)である。得られた各波長域の発光スペクトルを図6(a)~(d)に示す。前節に述べたように、本火炎発生装置では水素火炎を種火としてアンモニア火炎を生成している。したがって、それぞれのグラフは燃料のアンモニア転換前後、すなわち水素火炎のみの場合とアンモニア火炎発生後の場合を比較する形で示している。

図 6(a)に示す紫外~可視域のスペクトルを見ると、350nm 以下の紫外域と 400nm 以上の可視域の発光が確認できる。紫外域の発光は幾つかのピークを示しており、これらは 0H ラジカルや NH ラジカルといった、アンモニアの燃焼過程で生じる中間体による発光である。400nm 付近から長波長側に生じるブロードなベースラインに複数のピークを有するスペクトルは、燃焼過程で生じるNH<sub>2</sub>アンモニアの $\alpha$ バンド由来の発光 $^{6}$ )に、高温状態の  $H_{2}$ 0 による発光が重畳した結果として観測されるスペクトルであり $^{7}$ 、これらの発光が主要因となって、アンモニア火炎は図 5 に示したような橙色の発光として人の目で捉えることができる。図 6(c) (d) に示した近赤外域の発光は、いずれも主に  $H_{2}$ 0 由来のスペクトルである。

#### (2) アンモニア火炎可視化実験

前述のアンモニア火炎の実測データに基づき,炉内アンモニア火炎の可視化に適した波長域を選定した。高温環境下における火炎の可視化において,明らかな阻害要因として考えられるのは,高温状態となった周囲の物体からの熱放射に伴う発光である。黒体輻射,すなわち温度によって物体の放射する光の色が変化する現象は,一般的に高温になるほど発光領域が短波長側にシフトする。可視波長域への干渉は概ね 600℃程度から生じ,1500℃程度では約 300nm まで発光の始点がシフトする。また,他の燃料との混焼を行う場合は,アンモニア以外の燃料由来の発光も考慮する必要がある。





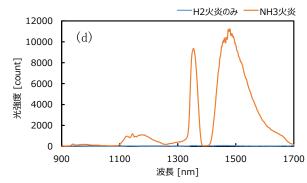


図6 アンモニア火炎の発光スペクトル

(a) 紫外~可視域:200~580nm

(b) 紫外領域拡大

(c) 近赤外域:700~1100nm(d) 近赤外域:1100~1700nm

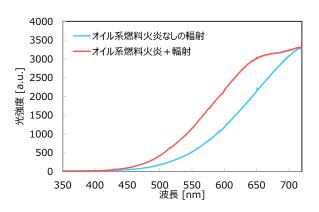


図 7 オイル系燃料燃焼炉内の背景光スペクトル 事例

図7は、オイル系燃料を使用する炉内の背景光スペクトル計測結果事例である。このように、他の燃料由来の火炎の有無にかかわらず、いずれの場合も概ね400nm付近から長波長側に向けて、ブロードな発光が生じることがわかる。これらの発光は、燃料あるいは高温になった物体の総量が多ければ多いほど強く生じ、図6(a)に示した、同じ波長域に生じるアンモニア火炎由来の可視領域の発光のコントラストを著しく低下させるものと考えられる。したがって、高温炉内の条件下においては、図6(b)に示した紫外域の発光を用いてアミえる。

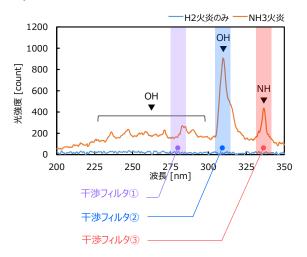


図 8 紫外域におけるアンモニア火炎の発光スペクトルと使用する干渉フィルタの透過波長域

図8は図6(b)に示したアンモニア火炎の紫外域 の発光スペクトルに,可視化に使用する干渉フィ ルタの透過波長域を図示したものである。それぞ ħ,

干渉フィルタ①:中心波長 280nm, 半値全幅 10nm 干渉フィルタ②:中心波長 310nm, 半値全幅 10nm 干渉フィルタ③:中心波長 337nm, 半値全幅 10nm である。一般的には,発光の強度が強い波長域を 用いるが,輻射の影響は短波長ほど受けにくいこ とから,ここではこれら3つの波長域において可 視化実験を行い,比較することとした。

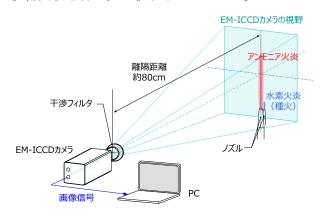


図 9 アンモニア火炎可視化実験装置構成

図9にアンモニア火炎可視化実験装置構成を示す。アンモニア火炎の画像は、電子増幅機能が付加されたイメージインテンシファイア付CCDカメラ(EM-ICCDカメラ)を用いて撮像した。カメラレンズは紫外光を透過するものを使用し、同カメラレンズの前段に干渉フィルタ①~③を順に配置し、それぞれの条件で火炎画像を取得した。可視化実験の結果を図10に示す。

図 10 の各画像に示すように、3種の干渉フィルタいずれを用いても、アンモニア火炎の可視化が可能であった。本実験は常温環境下で実施したが、輻射や混焼燃料火炎の影響のみに注目した場合、特に干渉フィルタ①を使用することで概ね1500℃程度まではアンモニア火炎の可視化が可能であると推察される。また、火炎画像のコントラストも干渉フィルタ①を使用した場合が最も良好であった。これは我々の活動環境下における背景光が短波長ほど少なくなることに起因しているものと考えられる。

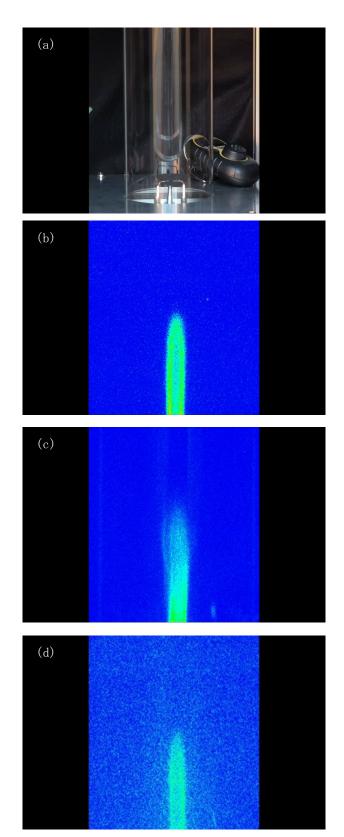


図 10 アンモニア火炎可視化実験結果事例

(a) 可視画像

(b) 干渉フィルタ①:中心波長 280nm

(c) 干渉フィルタ②:中心波長 310nm

(d) 干渉フィルタ③:中心波長 337nm

# (3) アンモニア燃焼生成物の影響に関する考察

アンモニア火炎の可視化においては、その阻害要因として、アンモニアの燃焼に伴い生成される物質による光吸収の影響も考慮する必要があると考えられる。図 11 に示すように特に、 $NO_x$  (ここでは  $NO_2$ ,  $N_2O$ , NO) は、紫外域において比較的強い光吸収を示すことが知られており  $^8$ )、生成される  $NO_x$  の量次第では、アンモニア火炎の発光が吸収され、大幅に減衰する、あるいは撮像素子まで到達しない可能性がある。ここでは一例として、最も影響が大きいと考えられる  $NO_2$  について、アンモニア火炎可視化への影響を机上検討により評価した。

図 12 は、アンモニア火炎と撮像素子の間に 100cm の空間が存在し、同空間に NO<sub>2</sub> が存在する場合の光の透過率について、その波長依存性及び NO<sub>2</sub> 濃度依存性を示すものである。

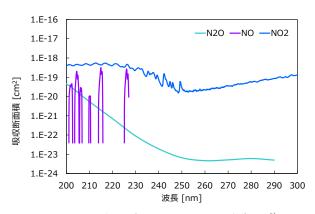


図 11 NO<sub>x</sub> 主要成分の吸収断面積事例 <sup>8)</sup> (波長 200~300nm)

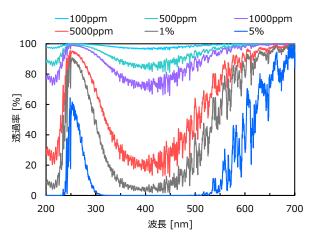


図 12 紫外~可視波長域における光の透過率の NO<sub>2</sub>濃度依存性

図 12 に示すように、NO<sub>2</sub> 濃度が 100ppm 程度であれば大きな影響はないと言えるが、数千 ppm レベルになると可視波長域及び深紫外波長域において光の透過率が 20%程度まで低下することが分かる。これをクリアする方法としては、図 13 に示す波長域を用いる手法が考えられる。

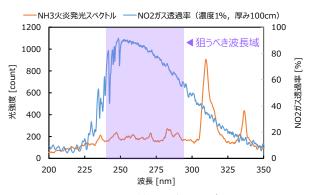


図 13 NO<sub>2</sub> の吸収の影響が強い場合のアンモニア 火炎可視化に適した観測波長域

図 13 は図 6(b)に示したアンモニア火炎の紫外域の発光スペクトルに  $NO_2$  ガス透過率の波長依存性を重ねたものである。 $NO_2$  の吸収の影響は 300nm以下の領域において弱まり,240nm 付近から再度強まる傾向にある。したがって,図 13 の紫色で示した概ね  $240\sim290$ nm における発光を用いて可視化を行う,すなわち図 10 における(b) の条件を採用することで,高濃度  $NO_2$  が存在する環境下においてもアンモニア火炎を可視化することが可能であると考えられる。

このような検討は、各種条件下で生成されるアンモニア火炎の個別の燃焼生成物、特に高濃度になる可能性がある物質について、実施する必要がある。

#### 4. 結論

高温炉内環境におけるアンモニア火炎可視化について、基礎実験に基づく実現可能性評価を行った。阻害要因として、輻射や混焼燃料火炎の発光及び燃焼生成物による光吸収を仮定した場合、240~290nm付近のアンモニア火炎の発光を選択的に捉えることで可視化が可能であるとの結論を得た。

今後は、実環境での実証試験を行い、アンモニ ア混焼・専焼炉の開発過程や、実際に稼働してい るアンモニア燃焼炉内の火炎モニタリング等の用 途での応用展開を目指す予定である。

# [参考文献]

- 1) 資源エネルギー庁:「我が国の燃料アンモニア 導入・拡大について」, 2022 年 12 月, https://www.meti.go.jp/shingikai/sankoshin /green\_innovation/energy\_structure/pdf/01 2\_04\_00.pdf
- 経済産業省:「エネルギー基本計画」、令和3 年10月、https://www.meti.go.jp/press/2021 /10/20211022005/20211022005-1.pdf
- 3) 仁木洋一:「ディーゼル機関によるアンモニア /軽油混焼技術」, ㈱エヌ・ティー・エス グリー ンアンモニア合成・利用の新展開, pp.79-91 (2023)
- 4) 朝日一平,杉本幸代,星野礼香:「受動紫外・ 赤外リモートセンシングによる水素火炎可視 化」,日本燃焼学会誌,Vol61, No.195, pp.37-42 (2019)
- 5) 荻田将一,田中武海:「受動赤外分光による水 素火炎可視化ウェアラブルデバイスの開発」, 四国電力,四国電力送配電,四国総合研究所 研究期報 118, pp.11-19 (2023)
- 6) R. W. B. Pearse, A. G. Gaydon, "THE IDENTIFICATION OF MOLECULAR SPECTRA", Jhon Wiley & Sons, New York, pp.232-235 (1976)
- 7) 小林秀昭, 早川晃弘: 「カーボンフリーアンモニア燃焼」, 日本燃焼学会誌, Vol.58, No.183, pp.41-48 (2016)
- 8) Keller-Rudek, H., Moortgat, G. K., Sander, R., and Sörensen, R.: The MPI-Mainz UV/VIS spectral atlas of gaseous molecules of atmospheric interest, Earth Syst. Sci. Data, 5, 365–373, (2013), DOI: 10.5194/essd-5-365-2013