

2021年度会長就任挨拶 —コロナ禍での学会活動の発展を目指して—

Message from the President

— Development of Academic Society Activities under COVID-19 Pandemic —



太田 有^{*1}
OHTA Yutaka

このたび2021年度日本ガスタービン学会会長を拝命することになりました太田 有です。1987年10月に五反田“ゆうほうと”で開催された国際会議IGTC1987での研究発表が本会との最初の出会になります。その前年1986年の入会ですので、今年で在会35年になりました。多くの諸先輩方を差し置いて、ガスタービンが専門ではない私が会長という重責を担うことを考えたとき、自己の力不足は否めませんが、会員の皆様にご指導・ご鞭撻を賜りながら、微力ですが本会発展のために尽力する所存です。何卒、よろしくお願い申し上げます。

新型コロナウイルスの世界的な感染爆発から約一年が経過しましたが、この間、緊急事態宣言の度重なる発令や外出・移動自粛など、公私ともに今まで経験したことのない一年になりました。楽しみにしていた東京オリンピックは延期になり、通勤を控えた在宅勤務という新しい労働形態が定着すると共に、会議や集会行事のあり方もWebを利用したオンライン開催へと移行してきました。現在でもまだ予断を許さない状況が続いております。

本会の各種事業もこの新型コロナウイルスの影響を強く受け、理事会や各委員会はほとんどがオンライン開催となり、顔を突き合わせての議論や情報交換の重要性を再認識する契機にもなりました。数多くの集会行事が中止または延期を余儀なくされた状況下においても、理事や委員の皆様のご尽力により、学会誌や英文論文集などの定期刊行物は粛々と刊行され、オンライン開催となりましたが定期講演会や市民フォーラム、ガスタービンセミナーなどの集会行事も継続して参りました。また、新しい試みとして本年1月に開催された学生フォーラムには、全国の大学から140名を越える参加者がありました。参加費を無料に設定したことが幸いとなった可能性もありますが、ガスタービン学会やその関連分野の学術・技術に興味を持っている学生が数多くいることを再認識すると共に、今後の学会活動を担う若手会員の増強に向けて大きなヒントが得られたように感じています。

さて、学会の外に目を転じますと、昨年10月に菅首相

が臨時国会で行った“2050年カーボンニュートラル宣言”が本会と関連する大きなニュースになりました。先月開催された気候変動サミットでは、温室効果ガスの新たな削減目標として2013年度比で46%削減という挑戦的な目標値が設定されました。政府が発表している主な施策の中には、再生可能エネルギーの最大限の活用や、CO₂の回収・再利用を前提とした火力発電の高効率化と技術開発、安全を担保した原子力政策の推進、水素やアンモニアを始めとする新燃料に関する技術革新など、本会と密接に関連する数多くの技術課題が列挙されており、2050年に向けて本会の果たす役割の大きさと重要性、責任の重さを痛感します。既に本会が端緒となってNEDOの基盤技術開発プロジェクトとして研究開発が進んでいる「機動性に優れた広負荷帯高効率GTの開発」や、調査研究委員会が昨年度からSIP事業として実施している「材料データベースの構築に向けたプロジェクト」、本年度より新規NEDO事業として開始予定の「航空機エンジン向け材料開発・評価システム基盤整備事業」など、本会は当該分野の技術開発に多くの貢献を行って参りました。これからの約30年間は、ガスタービンや関連するエネルギー分野を統括的に扱う学術団体としての当学会の責務が問われることになります。会員の皆様により一層のご協力を仰ぎ、公益社団法人としての役割も果たしながら、脱炭素化に向けた世界規模の大きな動きの中で本会が貢献できることを模索していく一年にしたいと考えております。特に、ガスタービン関連学術・技術分野で多くの会員の方々が参画できる研究・開発が企画立案できるように尽力したいと思っております。

本会は来年の2022年に創立50周年という節目の年を迎えると共に、2023年には次期国際会議IGTC2023が関西地区で開催される予定です。既に50周年記念事業実行委員会やIGTC準備委員会が組織されて準備が着々と進んでおります。新型コロナウイルスの影響で集会行事の多くは制限を受けることが予想されますが、学術・技術情報の交換のみならず、当該分野に携わる人の交流も本会の大きな使命と役割です。福泉靖史副会長をはじめ、理事、委員、事務局の皆様とこの難局を乗り越え、ポストコロナに向けた学会の運営方針を模索する一年間になると思いますので、会員の皆様にはご支援とご協力を賜りますよう、宜しく申し上げます。

原稿受付 2021年4月26日

* 1 早稲田大学 基幹理工学部 機械科学・航空宇宙学科
〒169-8555 新宿区大久保三丁目4-1
E-mail: yutaka@waseda.jp

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

カーボンニュートラル化へ向かう日本 II

The Carbon Neutralization of Japan II



古谷 博秀^{*1}
FURUTANI Hirohide

キーワード：カーボンニュートラル化, ガスタービン, 水素, アンモニア

Key Words: Carbon Neutralization, Gas-turbines, Hydrogen, Ammonia

2021年3月号に続き、5月号も水素・脱炭素燃料の最新動向の特集となることから、引き続き巻頭言を担当させていただくことになった。前回の特集では、水素に重みを置いて特集が組まれたが、今回の特集は、もう少し幅を広げたカーボンニュートラル燃料と、その利用技術についての特集となる。具体的には、自動車の水素やカーボンニュートラル燃料とその利用、次に航空機用の燃料のカーボンニュートラル化、二酸化炭素のリサイクルとして注目されるメタネーションやメタノール製造、最後に、国の多くの産業が電化によって二酸化炭素排出抑制を図ろうとする中、発電でのカーボンニュートラル化に必須な、発電用燃料としてのアンモニアとその利用技術が紹介される。

前回紹介した成長戦略のシナリオでは、多くのセクターで電化がカーボンニュートラルのキーワードとなる中、発電もゼロエミッション化が求められる。発電で再生可能エネルギーの割合を増やすことは必須と思われるが、太陽光や風力などの主力となる再生可能エネルギーは変動性を持ち、これを調整し、安定して使いやすくするためには、将来においてもガスタービンや蒸気タービンなどの発電技術は必要と考えられる。これらをカーボンニュートラル化するためには、発電時に排ガスから二酸化炭素を除去してこれを貯留または利用する方法か、空気中から直接集めた二酸化炭素やバイオマスからの二酸化炭素で合成したカーボンニュートラルな燃料もしくは、もともと二酸化炭素の発生しない燃料を利用することが必要になる。

二酸化炭素を発生しない発電用燃料としては、前回中心に紹介した水素（液体水素やMCH）のほか、アンモニアが注目されており、アンモニアを燃料に利用する技術開発は、7年前に開始された内閣府のSIPでの研究開発が国内では核になっていると認識している。研究を始めたころは、燃焼速度の極端に遅いアンモニアを燃料にして、かつ、窒素酸化物を抑えることは至難の業と思えたが、実際に挑戦をしてみると、その実験結果から、アンモニア燃料の特徴が明らかとなり、その特徴を活かして、石炭火力への混焼や、ガスタービン燃料としての応用が可能になることが示唆された。産総研での実験で小型のガスタービンでも思ったよりも簡単に燃料として使えること、電中研での石炭火力への混焼実験で予測に反して窒素酸化物の量がそれほど多くならないことが分かったのは、いい意味での衝撃的結果だった。

日本にとってカーボンニュートラル化は容易ではないかもしれないが、世界がそれを目指している中、将来の産業競争力のためには、これを実現する必要がある。これを支える技術として、多くの燃料に対応が可能なガスタービン技術は必ず必要になり、これまで培ってきた技術がさらに重要度を増すと考えられる。

前回に引き続き、今回の特集が、ガスタービン学会の皆様がカーボンニュートラルに対する意識向上につながるとともに、将来の日本の糧を生む技術開発のヒントになることを祈念して巻頭言としたい。

原稿受付 2021年4月6日

* 1 産業技術総合研究所再生可能エネルギー研究所
〒963-0298 郡山市待池台2-2-9
E-mail: furutani.h@aist.go.jp

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

Hondaにおける脱炭素へ向けた燃料の取組み

Honda's Approach for Decarbonization of Fuel

橋本 公太郎^{*1}

HASHIMOTO Kohtarō

キーワード：脱炭素，燃料，ハイブリッド，電動化，水素

Key Words：Decarbonization, Fuel, Hybrid, Electrification, Hydrogen

1. はじめに

2018年，IPCC（気候変動に関する政府間パネル）は，地球温暖化による生活への影響を最小限に抑えるために，気温の上昇を1.5℃に保つ必要があるという警告を出している。産業革命以降，約1℃の気温上昇が人為的にもたらされたと考えられている。そのため，気温の上昇を今後1.5℃に抑えるためには，2050年までに，二酸化炭素（CO₂）の排出を正味ゼロにする必要がある。日本国においては，2020年に，菅義偉首相が，国内の地球温暖化ガスの排出を2050年までに「実質ゼロ」とする方針を表明した。このように，地球温暖化ガス排出をゼロとするためには，運輸部門においても，化石燃料から再生可能エネルギーへの転換を進める必要がある。

Hondaは二輪，四輪，マリン，パワープロダクト，空の商品群を有する会社である。2019年には，全世界に約3200万台のパワーユニットをお客様に提供している。Hondaは「2030年ビジョン」として，「すべての人に『生活の可能性が広がる喜び』を提供する」を2017年に策定している（Fig. 1）⁽¹⁾。

Fig. 1 Honda vision 2030 and Honda's responsibility for customers ⁽¹⁾

原稿受付 2021年3月4日

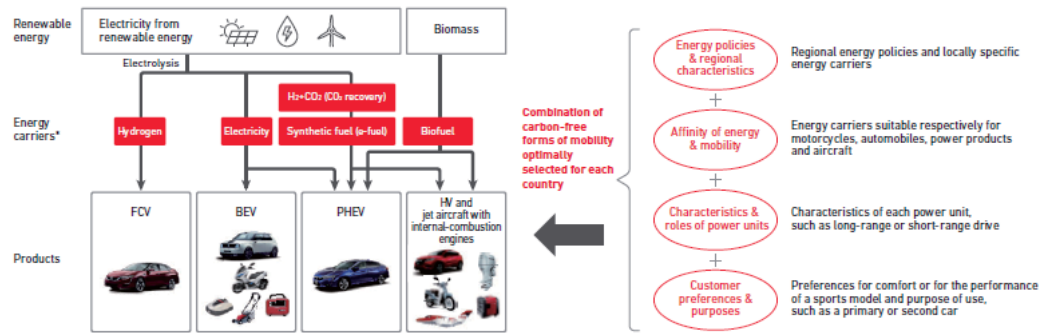
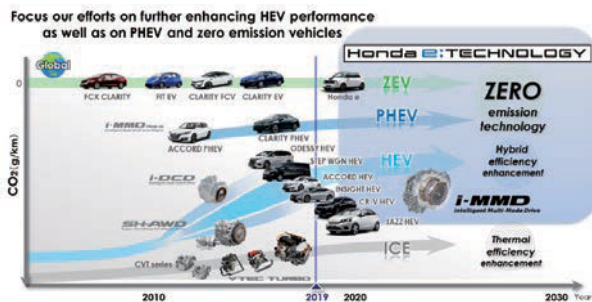
* 1 (株)本田技術研究所 先進パワーユニット・エネルギー研究所
〒351-0193 和光市中央1-4-1
E-mail: Kohtarō_hashimoto@honda.jp

Honda は脱炭素に向けてFig. 2に示す，「マルチパスウェイ（複数の経路）で再生可能エネルギーの利用を促進する」というシナリオを描いている⁽²⁾。再生可能エネルギーを使って発電した電気は，そのままバッテリーEV（BEV）およびプラグインハイブリッド車（PHEV）に提供することも可能である。そして，電気を水素に変えて燃料電池自動車（FCV）に供給することもできる。また，水素とCO₂から合成燃料を製造し（e-fuel），ハイブリッド車や航空機に供給することもできる。このように，再生可能エネルギーを運ぶ道筋は，必ずしも電気だけではない。マルチパスウェイとは，最もエネルギー効率が高くなるよう，全方位で技術の可能性を模索し，複数の経路でカーボンフリー社会をめざすという考え方である。

本稿では，まず，Hondaの主力商品である自動車における，脱炭素化に向けたパワーユニットの電動化のパスを示し，それぞれのパワーユニットからのCO₂排出について比較検討結果を示し，マルチパスウェイの必要性を示す。次に，マルチパスウェイの一つの柱である，水素を燃料とするFCVおよび水素製造についてのHondaの取り組みを説明する。そして，内燃機関の脱炭素として注目されているe-fuelについて解説する。最後に，航空機の脱炭素に必要とされる，航空機用再生可能燃料（Sustainable Aviation Fuel）について説明を行う。

2. 自動車のパワーユニットの電動化パスとCO₂排出比較

Fig. 3にマルチパスウェイコンセプトに基づく，Hondaの自動車のパワーユニット電動化の様々なパスを示す⁽¹⁾。Hondaは，FCV，BEV，PHEVでゼロエミッション技術を強化する一方で，搭載する内燃機関（ICE）の熱効率とクリーンな排出ガス性能をさらに高めた独自の2モーターハイブリッドシステム「i-MMD」を中心としたハイブリッド自動車（HEV）への進化を推進している。これら，Hondaの電動化製品は「Honda

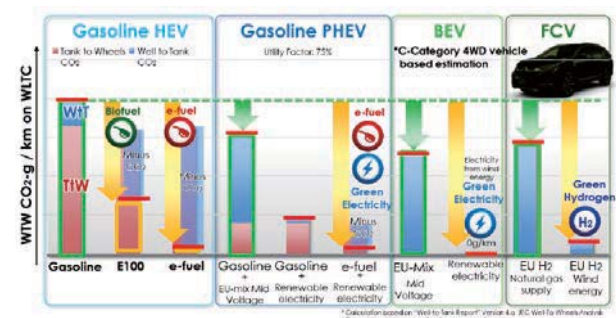
Fig. 2 Image of multi-pathway strategy ⁽²⁾Fig. 3 Honda "e:Technology" : Honda automotive electrification paths ⁽¹⁾

e:Technology」と名付けられている。

Fig. 4に、i-MMDのシステムと走行パターンを示す⁽³⁾。バッテリーに蓄えられた電気でモーターを駆動するEVモード、エンジンによって生成された電気エネルギーによってモーターを駆動するハイブリッドモード、エンジンの出力を使用して直接駆動するエンジン走行モードである。

それぞれのパワーユニットを搭載した車両についてのCO₂排出の比較については、燃料製造や発電時から自動車に使用して排出するまでの合計（Well to Wheel）で比較する必要がある。Fig. 5に、ガソリンHEV、ガソリンPHEV、BEV、FCVを同一車両に搭載した場合の、欧州におけるエネルギー環境下でのWell to WheelでのCO₂排出の比較を示す⁽¹⁾。PHEV、BEV、FCVは、HEVと比較するとCO₂排出量は小さい。一方で、HEVにバイオエタノールや再生可能電力からのe-fuelを使用した場合は、CO₂排出が大きく減少することを示して

いる。このことから、地域でのエネルギー事情に応じて、CO₂削減に最適なパワーユニットを供給することが重要であると言える。

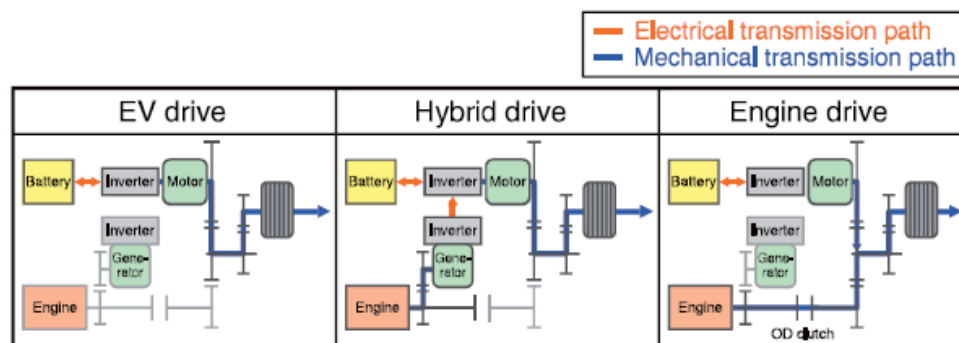
Fig. 5 Well to Wheel analysis of SUV for WLTC on Europe energy background ⁽¹⁾

3. FCVおよび水素

3.1 FCV

多様なエネルギー源、特に再生可能電力から製造できる水素を燃料とする燃料電池自動車（FCV）については、Hondaでは、1980年代から基礎研究を開始し、1999年には、実験車を公開した⁽⁴⁾。2002年にはFCXを開発し、世界で初めて米国認可を取得し、日米でリース販売を開始した⁽⁴⁾。2003年には世界で初めて氷点下始動を可能にした燃料電池スタックを自社開発し⁽⁵⁾、2008年には、セダントタイプのFCX CLARITYを市場に導入した。そして、2016年には、世界初の5人乗りセダントタイプのCLARITY FUEL CELLを市場に導入している⁽⁶⁾。

CLARITY FUEL CELLは、燃料電池パワートレイン

Fig. 4 i-MMD system operations ⁽³⁾

の小型化により、セダンのフロントフード内への搭載を実現している⁽⁶⁾。Fig. 6に燃料電池パワートレインを示す。小型化は、(1)燃料電池 (FC) スタックの小型化、(2)電動ターボ型エアコンプレッサの採用、(3)FC昇圧コンバータ (FCVCU) の採用、(4)駆動ユニットの小型化の四つのキーとなる技術によって実現している。

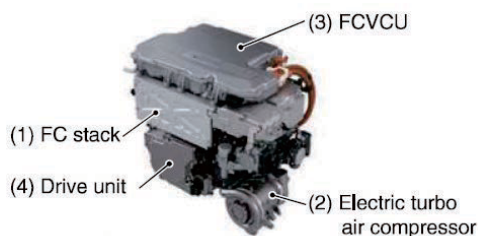


Fig. 6 Downsized fuel cell powertrain⁽⁶⁾

FCスタックの小型化のために、電流密度を1.5倍に引き上げてセル数を約30%削減した。セルの構造をFig. 7に示す。2セルごとの冷却構造を維持しながらの1セルあたり1mmの薄型化と、膜電極接合体 (MEA) のガス拡散性の向上によるセパレーターのガス流路幅と高さの低減を実現した。その結果、Fig. 8に示す通り、出力密度3.1kW/Lを実現し、従来スタック比33%の小型化を実現している⁽⁶⁾。

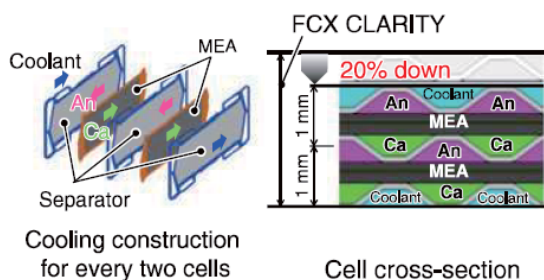


Fig. 7 FC structure of CLARITY FUEL CELL⁽⁶⁾

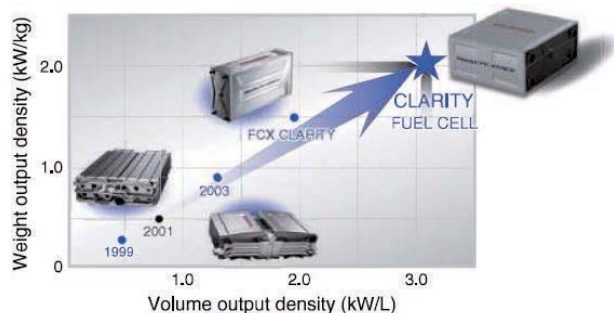


Fig. 8 Evolution of power density of FC stack⁽⁶⁾

3.2 水素製造技術

FCVの燃料として用いられる水素は、再生可能エネルギーを利用して製造することが望まれている。一方で、太陽光発電のような再生可能エネルギーからの電力は変動電力となるため、入力される電力の変動に対して高効率運転できる水素製造システムが要求される。

Hondaでは、変動電力に対応できる小型水素ステーションの開発に取り組んできた。2002年には米国カリフォルニア州ロサンゼルスに常圧水電解型ソーラー水素ステーション (Solar Hydrogen Station: SHS 1) を設置し、太陽光発電からの水素製造の実証実験を行ってきた⁽⁷⁾。SHS 1はシステムの高効率化を行った後、4年以上の実証試験を行い、太陽光発電の電力のみで年間水素製造効率 $53.1 \pm 1\%$ 、年間水素製造量 1500Nm^3 を達成している⁽⁸⁾。

SHS 1の実証試験では、機械式コンプレッサの消費電力がシステム補機の4割を占めており、さらなる小型化と高効率化には機械式コンプレッサの削減が有効である。2010年より、固体高分子型差圧式水電解セルを用いた水電解技術を利用したソーラー水素ステーション (SHS 2) へ更新して実証試験を行った⁽⁹⁾。Fig. 9に差圧式水電解セルの模式図を示す⁽¹⁰⁾。製造水素を閉空間に貯蔵し続けることで高圧水素が得られ、水素極のみが高圧となる。そのため、電解質膜 (PEM) の水素極と酸素極との差圧を保持できるようにすることが課題となる。表面開口を緻密化し、強度を向上させた粉末焼結体を酸素極側給電体として用いることで、電解質膜での35MPaの差圧を達成している。

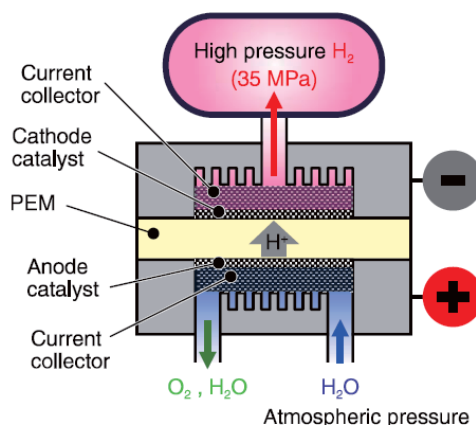


Fig. 9 Schematic of high differential pressure water electrolysis⁽¹⁰⁾

Fig. 10にSHS 2の電解ユニットのシステム構成を示す⁽⁹⁾。水道水から製造された純水を差圧式水電解スタックで水電解し、高圧水素中の水分を気液分離器、熱交換器、ペルチェ冷却器、吸着剤を通して除去し、ドライ水素を供給する。

2014年には、世界で初めて高圧水電解システムをパッケージ型に収納したプロトタイプ「スマート水素ステーション」を開発し、さいたま市と北九州市にて稼働を開始した。2015年には、差圧式高圧水電解システムに「Power Creator」と命名し、市販モデルの「スマート水素ステーション (SHS)」の接地稼働を開始した。Fig. 11にSHSの内部構成を示す⁽¹¹⁾。この構成により、同様の水素製造能力と水素貯蔵量を有する実証試験機と比較して設置面積を約4分の1に削減できた。2021年3月

時点で、SHSは日本国内で20台設置されている。

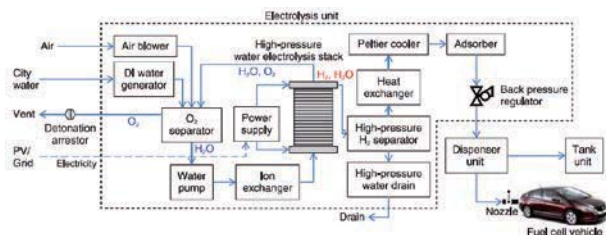


Fig. 10 Electrolysis unit configuration diagram of SHS2 ⁽⁹⁾

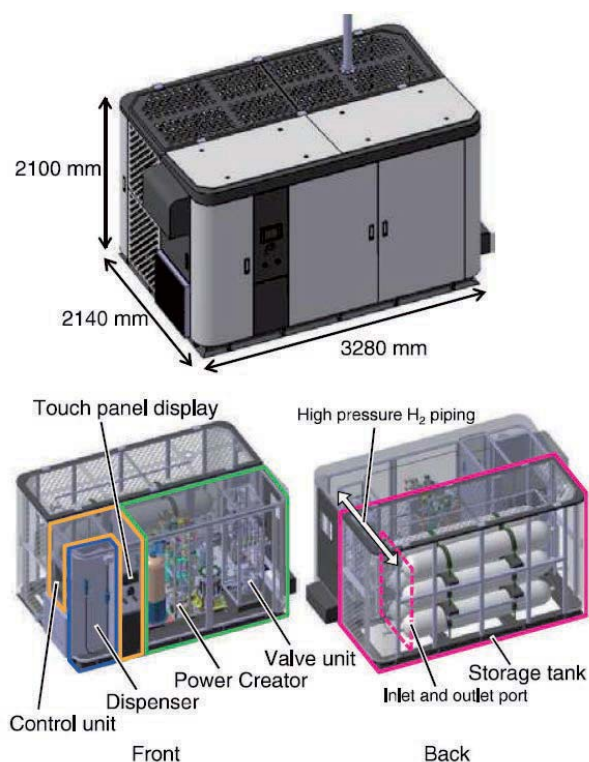


Fig. 11 Inner configuration of SHS ⁽¹¹⁾

4. e-fuel

e-fuelとは再生可能電力からの水素とCO₂から製造された燃料である。Fig. 12にe-fuel製造プロセス概要を示す⁽¹²⁾。e-fuelの中でも、液体燃料についてはPtL (Power to Liquid) と呼ばれており、PtLが自動車用燃料として

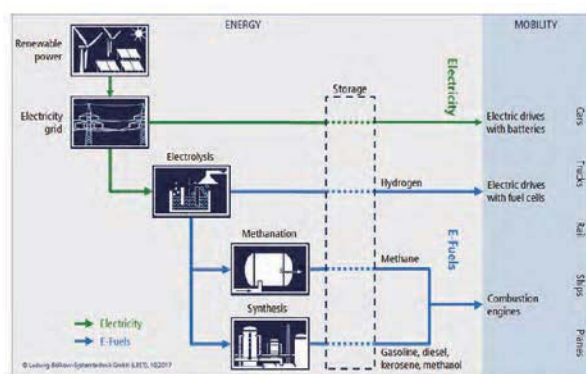


Fig. 12 e-fuel production process and overview ⁽¹²⁾

注目されている。2章で示した通り、e-fuelを使用した場合は、HEVからのCO₂排出が大きく減少する。従って、e-fuelの普及は重要である。

再生可能電力からの液体燃料であるPtLはFig. 13に示す、Fischer-Tropsch合成と、Fig. 14に示すメタノールを経由した合成の二つが主に検討されている⁽¹³⁾。Fischer-Tropsch合成からは、ディーゼルとJet燃料が主に製造される。一方で、メタノールを経由した合成では、ガソリンとJet燃料が主に製造される。また、水素とCO₂から製造されたメタノールの火花点火 (SI) エンジンへの利用も検討されている。

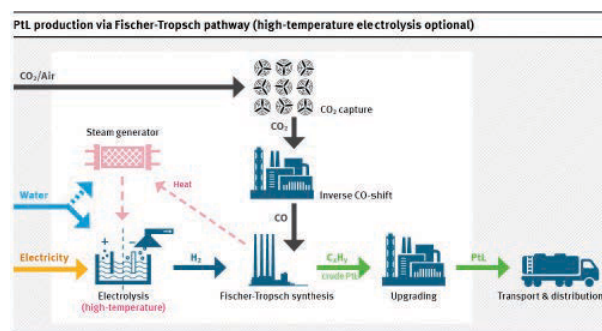


Fig. 13 PtL production via Fischer-Tropsch pathway ⁽¹³⁾

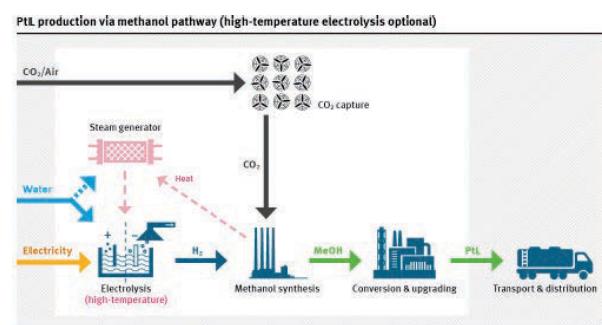
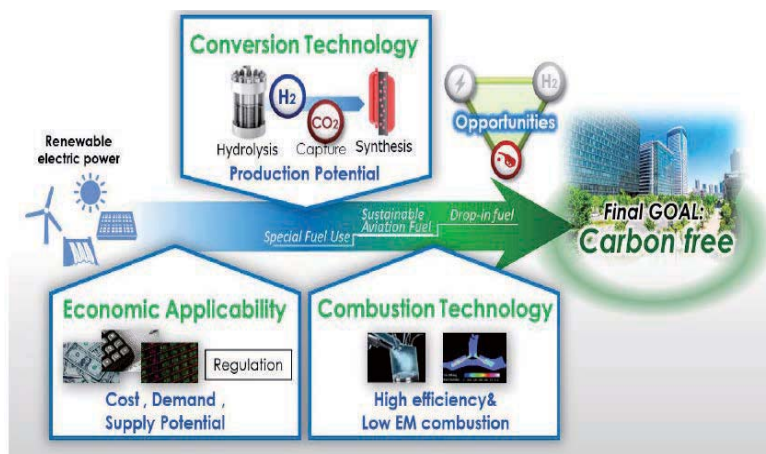


Fig. 14 PtL production via methanol pathway ⁽¹³⁾

Hondaは、e-fuelも脱炭素社会に向けて、地域別、用途別の選択肢の一つとして大きな役割を果たすと考えている。e-fuelの普及のためには、経済性検討、燃料製造技術開発、燃焼技術開発の三つの領域からなる研究を進め、高効率化低EM燃焼を目指した燃料設計を行う必要がある (Fig. 15) ⁽¹⁾。e-fuelの市場投入は、レース用途などの特殊燃料から、Sustainable Aviation Fuel, 陸上輸送用の燃料へと段階的に進めていくことになる。Hondaは、これらの研究活動をマルチパスウェイシナリオの中で進めている。

5. Sustainable Aviation Fuel

航空機の分野の脱炭素は、国際民間航空機関 (ICAO) では、CORSIA (Carbon Offsetting and Reduction Scheme for International Aviation) の枠組みで進められている。Hondaが製造・販売しているビジネスジェットのような一般航空 (General Aviation, GA) についても、

Fig. 15 Research area for e-fuel utilization ⁽¹⁾

General Aviation Manufacturer's Association (GAMA) より、2020年からCO₂排出増加をゼロにし、2050年にはCO₂排出を2005年から半減させると言うコミットメントが出されている⁽¹⁴⁾。

航空機の分野の脱炭素は、電動化では難しく、Sustainable Aviation Fuel (SAF) と言われている再生可能燃料導入が必要となる。石油由来以外の合成燃料を航空機用燃料として利用する場合、FAAの認証を受け、ASTM D7566のAnnexに追加される必要がある。2021年3月時点で、Annex 7まで認証されている。その中でも、Annex 2に規定されている、油脂を水素化して製造するHEFA (Hydroprocessed Esters and Fatty Acids) が、現在のSAFの主流である。これは、植物油を水素化してディーゼル燃料を製造するHVO (Hydrotreated Vegetable Oil) と同一プロセスで製造されるため、プロセスや原料が普及していることと、プロセスが他のSAF製造プロセスと比較してシンプルであることが挙げられる。

一方で、SAFのCO₂削減率は、その炭素強度から算出される。ICAOは、2019年に、CORSIA Eligible Fuel (CORSIAでCO₂削減が認められる燃料) に関するSAFの炭素強度の基準値をLife Cycle Analysis (LCA) をもとに、Life Cycle Emission Valueとして定めている⁽¹⁵⁾。炭素強度が低いほど、CO₂削減効果が大きいとみなされる。Table 1に示す通り、HEFAの場合は、廃食油由来のもの以外は比較的高い炭素強度となっている。従って、CO₂削減効果を考えると、HEFAは廃食油由来が使われることになる。一方、Fischer-Tropsch合成 (FT) の燃料の炭素強度は低く、今後の普及が期待されている。

SAFの普及の課題は、原料、コスト、認証・保証を含めた流通と考えられている。バイオ由来で、炭素強度が低い原料は量が限られており、今後は4章で示した、e-fuelのSAFへの適用が期待されている。Hondaとしては、SAFの普及への使う側からの貢献を含めて、空の脱炭素社会に向けての取り組みを進めていく。

Table 1 CORSIA Default Life Cycle Emission Values for CORSIA Eligible Fuel ⁽¹⁵⁾

Fuel Conversion Process	Region	Fuel Feedstock	Core LCA Value	ILUC LCA Value	LS ₁ (gCO ₂ e/MJ)
Fischer-Tropsch (FT)	Global	Agricultural residues	7.7	0.0	7.7
	Global	Forestry residues	8.3		8.3
	Global	Municipal solid waste (MSW), 0% non-biogenic carbon (NBC)	5.2		5.2
	Global	Municipal solid waste (MSW) (NBC given as a percentage of the non-biogenic carbon content)	NBC*170.5 + 5.2		NBC*170.5 + 5.2
	USA	Poplar (short-rotation woody crops)	12.2		7.0
	USA	Miscanthus (herbaceous energy crops)	10.4		-32.5
	EU	Miscanthus (herbaceous energy crops)	10.4		-22.0
	USA	Switchgrass (herbaceous energy crops)	10.4		-3.6
Hydroprocessed esters and fatty acids (HEFA)	Global	Tallow	22.5	0.0	22.5
	Global	Used cooking oil	13.9		13.9
	Global	Palm fatty acid distillate	20.7		20.7
	Global	Corn oil (from dry mill ethanol plant)	17.2		17.2
	USA	Soybean oil	40.4		64.9
	Brazil	Soybean oil	40.4		67.4
	EU	Rapeseed oil	47.4		71.5
	Malaysia & Indonesia	Palm oil - closed pond	37.4		76.5
Alcohol (isobutanol) to jet (A1J)	Global	Agricultural residues	29.3	0.0	29.3
	Global	Forestry residues	23.8		23.8
	Brazil	Sugarcane	24.0		31.3
	USA	Corn grain	55.8		77.9
	USA	Miscanthus (herbaceous energy crops)	43.4		-54.1
	EU	Miscanthus (herbaceous energy crops)	43.4		-31.0
	USA	Switchgrass (herbaceous energy crops)	43.4		-14.5
	Brazil	Sugarcane	74.1		11.8
Alcohol (ethanol) to jet (A1J)	USA	Corn grain	63.7	23.1	90.8
	Brazil	Sugarcane	32.8		44.1
	EU	Sugar beet	32.4		52.6

6. まとめ

本稿においては、自動車における、脱炭素化に向けたパワーユニットの各方式の解説とCO₂排出について比較検討結果から、マルチパスウェイの必要性を示した。燃料の取り組みとして、FCVおよび水素製造についての取り組み、e-fuelについての取り組みを示した。そして、航空機の脱炭素に必要とされる、SAFの説明を行った。

運輸部門の脱炭素に向けた燃料の取り組みは、様々な業界との連携が必要となる。Hondaとしても、社外の各機関と協力して、脱炭素に向けた動きを加速させていきたい。

参考文献

- (1) Kimura, E., Aikawa, K., Yasuda, D., Saeki, H., Brachmann, T., Barth, S., Challenge for Sustainable Carbon Free Mobility and Society: Honda's Multi-Pathway Approaching Concept with Electrified Power Unit Technologies, 41st International Vienna Motor Symposium Volume1 (2020), pp. 151-170.
- (2) Honda サステナビリティレポート2020 <<https://www.honda.co.jp/sustainability/report/>> (参照日 2021年 3月 1日).
- (3) 若松健, 坂口元康, 赤石伸行, 久保田賢司, 吉本康時, 石神佳治, 泉慎介, 中村賢治, 新型アコード ハイブリッド用2.0 Lエンジンの開発, Honda R&D Technical Review, Vol. 30, No. 1 (2018), pp. 35-40.
- (4) 川崎聡志, 小野徹, 小椋正巳, 加美陽三, 世界初の燃料電池乗用車Honda FCXの開発, Honda R&D Technical Review, Vol. 15, No. 1 (2003), pp. 1-6.
- (5) 川崎聡志, 内堀憲治, 清水潔, 藤本幸人, 次世代燃料電池スタックを搭載したNew Honda FCXの開発, Honda R&D Technical Review, Vol. 18, No. 1 (2006), pp. 45-50.
- (6) 木村顕一郎, 河崎輝明, 大村孝之, 渥美淑弘, 清水潔, 新型燃料電池自動車CLARITY FUEL CELLの開発, Honda R&D Technical Review, Vol. 28, No. 1 (2016), pp. 1-7.
- (7) 上山雅樹, 喜多真佐人, 田口聡, 中沢孝治, 長岡久史, 荒川慎一, 太陽電池を使った水素ステーションの紹介, Honda R&D Technical Review, Vol. 15, No. 2 (2003), pp. 31-38.
- (8) 岡部昌規, 中沢孝治, 樽家憲司, 判田圭, 太陽電池を使った水素ステーション (SHS) の実証試験, Honda R&D Technical Review, Vol. 20, No. 1 (2008), pp. 67-73.
- (9) 長岡久史, 吉田喜祐, Cun, D., 山下郁也, 岡部昌規, 差圧式高圧水電解型ソーラー水素ステーション (SHS 2) の実証試験, Honda R&D Technical Review, Vol. 24, No. 2 (2012), pp. 72-78.
- (10) 針生栄次, 中沢孝治, 樽家憲司, 石川博之, 岡部昌規, 差圧式高圧水電解セルの構造とその性能評価, Honda R&D Technical Review, Vol. 23, No. 2 (2011), pp. 90-97.
- (11) 吉田哲也, 武内淳, 浅野裕次, ワンパッケージ型スマート水素ステーションの開発, Honda R&D Technical Review, Vol. 29, No. 2 (2017), pp. 43-49.
- (12) Siegemund, S., 《E-FUELS》STUDY - The potential of electricity-based fuels for low-emission transport in the EU, (2017), p. 9, Deutsche Energie-Agentur GmbH (dena).
- (13) Schmidt, P., Weindorf, W., Roth, A., Batteiger, V., Riegel, F., Power-to-Liquids — Potentials and Perspectives for the Future Supply of Renewable Aviation Fuel, (2016), p. 12-13, Umweltbundesamt.
- (14) Global Business Aviation Community Announces Commitment On Climate Change, <<https://gama.aero/news-and-events/press-releases/global-business-aviation-community-announces-commitment-on-climate-change/>> (accessed on 1 March, 2021).
- (15) CORSIA Life Cycle Emissions Values for CORSIA Eligible Fuel, <<https://www.icao.int/environmental-protection/CORSIA/Documents/ICAO%20document%2006%20-%20Default%20Life%20Cycle%20Emissions.pdf>> (accessed on 1 March, 2021).

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

JAXAにおけるバイオジェット燃料の燃焼研究

Combustion Research using Sustainable Aviation Fuel (SAF) at JAXA



藤原 仁志^{*1} 水野 拓哉^{*1} 岡井 敬一^{*1}
FUJIWARA Hitoshi MIZUNO Takuya OKAI Keiichi

キーワード：再生可能代替航空燃料，HEFA燃料，FT-SPK燃料，バイオマス，燃焼，排気，煤

Key Words：Sustainable Aviation Fuel (SAF)，Hydro-treated Ester and Fatty Acid (HEFA) fuel, Fischer-Tropsch Synthetic Paraffinic Kerosene (FT-SPK) fuel, Biomass, Combustion, Emission, Particulate Matter

1. はじめに

地球環境問題に鑑み、二酸化炭素の排出量抑制が多くの産業分野で重要課題として取り組まれつつある。航空分野でも、国際航空運送協会（IATA）が二酸化炭素排出量に関するロードマップを掲げている。これによれば、2005年比で2050年までに二酸化炭素排出量を半減させるが、この目標は、現状の技術進展・運航方法の改善・インフラの改善では増大傾向を止めることは出来ず、目標との乖離を埋めるためには、低炭素燃料の導入や革新技术の投入が必要である（なお、現下のCovid-19状況を踏まえた排出予測見直しや排出ゼロに向けた見直し議論が進んでいるものの本稿では現時点で明らかにされている従来の目標設定を用いている）。こうした観点で、燃料消費低減、ひいては二酸化炭素排出低減に寄与し得る技

術としてエンジン関連で有望視されているのが再生可能代替航空燃料（SAF）・水素燃料の導入・エンジン電動化である。Fig. 1にはIATAのロードマップを元に、適用分野の導入や効果を検討した例^[1]を示す。ここから、SAF、水素燃料の導入・電動化が重要であることが見て取れる。本稿では、現時点で利用可能で当面の導入拡大を見込むことが出来るSAFについての動向を、JAXAでの取り組みの紹介を交えながらまとめる。

2. 再生可能代替航空燃料（SAF）の特性

現時点で新しい低炭素化の取り組みとして実施し得る有効な方法は、バイオ燃料や再生可能エネルギーを利用した合成燃料といった航空用代替燃料（再生可能代替航空燃料（SAF））の適用である。認証されている航空用代替燃料は、ドロップイン（継ぎ足し）燃料とされ、従来の原油由来のジェット燃料と一定上限混合することで、エンジン・機体や地上設備の更新を要しないものである。

旅客機等に用いられる航空用燃料としては、従来のジェット燃料がASTM-D1655で規定されるのに対し、SAF等航空用代替燃料はASTM-D7566 “Standard Specification for Aviation Turbine Fuel Containing Synthesized Hydrocarbons”^[2]で規定される。その付属書（Annex）において、化学・物理的性質のみならず燃料の製造過程も定められている。JAXAでは、これまで牛脂由来のHEFA（Hydro-Treated Ester and Fatty Acid）燃料（ASTM-D7566 Annex-2で規定）を用いた燃焼試験を実施し、従来のジェット燃料（ベースライン）との排気特性などの比較を行ってきた。

バイオ燃料等代替燃料が普及するためのカギは、製造に係る原料の入手と製造コストの低減であると言われている。こうした観点で、国内の製造技術向上の一環

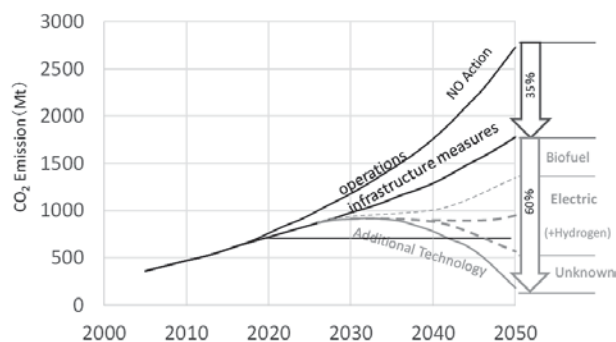


Fig. 1 Roadmap for the emission of carbon dioxide (commercial aviation, international)

原稿受付 2021年3月19日

*1 宇宙航空研究開発機構 航空技術部門 推進技術研究ユニット 再生可能エネルギーセクション
E-mail: fujiwara.hitoshi@jaxa.jp
E-mail: mizuno.takuya@jaxa.jp
E-mail: okai.keiichi@jaxa.jp

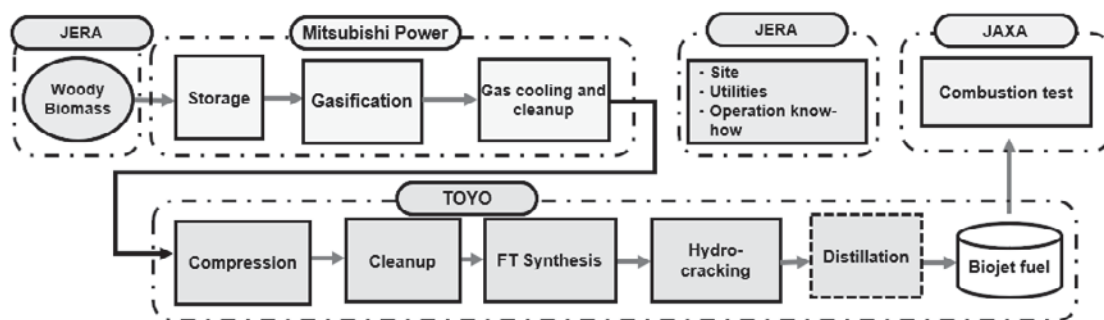


Fig. 2 Test plant operational flow

として、NEDO事業「バイオ燃料生産技術開発事業」⁽³⁾が行われている。その事業内容の一つとして「高性能噴流床ガス化とFT（Fischer-Tropsch）合成による純バイオジェット燃料製造パイロットプラントの研究開発」（以下、本事業）（参画企業：三菱パワー（株）、（株）JERA、東洋エンジニアリング（株）、JAXA）があり、JAXAは本事業に燃焼評価を実施する役割で参画している。また、もう一つの事業内容として、「高速増殖型ボツリオコックスを使った純バイオジェット燃料生産一貫プロセスの開発」（（株）IHI）も行われている。

本事業は、木質バイオマスを原料として、ガス化プロセスを経てFT法（ASTM-D7566 Annex-1にて規定）にてSAFを生産する設備開発と燃料製造を実施するものであり、製造された燃料がASTM-D7566 Annex-1の認証条件に適合することが確認されている。また、後述するように、燃焼試験の実施結果、バイオ燃料特有の傾向として、主要な排気特性がベースライン燃料と同様で、煤の排出は大きく減少することが確認されている。燃料製造のプロセスおよび各開発・実証の分担をFig. 2に、実証プラントの主要部写真をFig. 3に示す。こうした製造過程のコスト低減策検討を含めた開発検討が国内で加速されることが期待される。

JAXAにおいては、主として上述の牛脂由来のHEFA燃料（市販燃料）と木質バイオマス由来のFT-SPK（Fischer-Tropsch Synthesized Paraffinic Kerosene）燃料（本事業にてFig. 3のプラントにて製造した燃料）を用いた燃焼試験を実施している。それらを合わせて

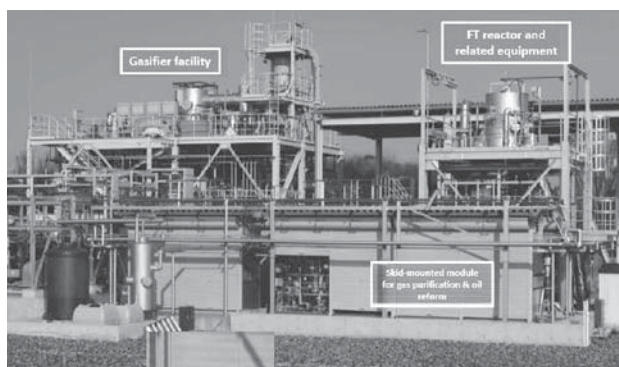


Fig. 3 Pilot plant

SAFとし、それぞれHEFA、FT-SPKと呼ぶこととする。

Table 1には、JetA-1（従来から使用されているASTM-D1655規格のケロシン燃料）とHEFA、これらの50:50混合燃料についておこなった物理的性状および化学成分の分析結果の概要を示す。同表のD7566 Table A2.1-2はASTM-D7566 Annex-2燃料単体で満たすべき規

Table 1 Chemical and physical analyses of the fuels

Properties	HEFA	D7566 Table A2.1-2	JetA-1	JetA-1: HEFA =50:50	D7566 Table 1
Freezing point [°C]	-58.5	< -40	-48	-51.5	<-47
Dynamic viscosity [mm ² /s] @15 °C	1.963	N/A	1.655	1.786	<8 (-20 °C)
Surface tension [mN/m]	22.5	N/A	23.6	23.1	N/A
Density [g/cm ³] @15 °C	0.7554	0.73-0.77	0.7886	0.7732	0.775-0.840
Net heat of combustion [MJ/kg]	44.14	N/A	43.38	43.73	>42.8
Physical Distillation					
Initial boiling point [°C]	146.5	N/A	148.5	148.5	N/A
10% recovered temp. [°C]	165.0	<205	164.5	165.0	<205
50% recovered temp. [°C]	208.0	Report	193.5	198.5	Report
90% recovered temp. [°C]	253.5	Report	237.5	247.0	Report
Final boiling point [°C]	269.0	<300	259.0	262.0	<300
Lubricity (BOCLE) [mm]	1.04	N/A	0.83	0.87	<0.85
Carbon [mass %]	84.7	N/A	86.1	85.4	N/A
Hydrogen [mass %]	15.2	N/A	13.8	14.5	N/A
Sulfur [mass %]	<0.0001	<0.0015	0.0006	0.0003	<0.3
Composition					
Paraffin [vol. %]	98.4	Report	79.1	89.1	N/A
Olefin [vol. %]	0.9	N/A	3.0	1.6	N/A
Total aromatics [vol. %]	0.7	N/A	17.9	9.3	8-25
Aromatics					
Benzenes [mass. %]	<0.1	N/A	21.3	11.6	N/A
Naphthalenes [mass. %]	<0.1	N/A	0.2	0.1	N/A
Total aromatics [mass. %]	0.1	N/A	21.5	11.8	N/A

定値であり、D7566 Table 1はASTM-D7566で規定されるSAFをJetA-1と混合した際に満たすべき規定値である。同表を見ると、純粋燃料の比較（JetA-1とHEFA）では、動粘度と表面張力に大きな差はない。ただしこれらわずかな差であっても噴霧特性等に影響を与える可能性がある。密度はHEFAの方が小さく、この差が後述のように混合燃料の混合比条件を定める制約条件の一つとなっている。また、蒸発性状もわずかが違いがある。潤滑性（BOLCE値：小さい方が潤滑性が高い）を見ると、ベースライン（JetA-1）に比べHEFAは潤滑性に劣ることが分かる。これには硫黄含有量の差（HEFAには含まれない）が関係していると考えられる。最も顕著な差は芳香族成分であり、ベースラインで2割程度含まれる芳香族成分がHEFAではほとんどなく、不飽和分も少ない。これらにより、HEFAはベースライン燃料にくらべ、熱安定度が高くコーキングしにくい、また、HEFAは析出点が非常に低いことから、高度に異性化したパラフィンが主成分であることが分かる。

現状では、民間航空機へのSAF混合はベースラインへの混合比で最大体積比50%までに制限されており、混合後の芳香族成分については、技術的な根拠については今後の課題と注記しつつ⁽²⁾、体積比で8%以上とするよう規定されている。その根拠の一つとして、燃料配管のOリングのシール性不足が生じる懸念が指摘されている⁽⁴⁾。

Table 2 Impacts of fuels on O-rings

		Initial value	Jet-A1 70 hrs sink test	HEFA 70 hrs sink test
Fluorocarbon	Hardness IRHD-M	71	+0%	+0%
	Tensile strength[MPa]	14.7	+2%	-4%
	Elongation [%]	199	+4%	-4%
	Volume expansion [%]		+0.3%	+0.4%
Nitrile rubber	Hardness IRHD-M	62	-12%	-5%
	Tensile strength[MPa]	14.1	-49%	-16%
	Elongation [%]	329	-26%	-6%
	Volume expansion [%]		+24.8%	+6.5%

Table 1で用いた燃料内の純粋燃料を用いて、2種のOリング（フッ素ゴムのOリングとニトリルゴムのOリング）の70時間含浸した性状変化の確認試験を実施した。Table 2にはその結果を示す。Table 2より、フッ素ゴムのOリングでは燃料による変化が小さく、ニトリルゴムのOリングでは強度の低下がある一方で大きく膨張していることが見て取れる。文献⁽⁴⁾でも指摘されているニトリルゴムにおけるOリングの体積増加傾向は、従来のジェット燃料が持つ膨潤性によるシール効果として機能し、既存の配管等ではこの膨潤性を前提としたものも多い。

SAFのASTMにおける利用認証化に先立ち行われた飛行試験結果をまとめた文献⁽⁵⁾では、100% SAFでは密度と発熱量が既定値からはずれ、50%混合で規定を満足する結果が示されている。

以上から、現状のSAF利用においては、（若干の性状の違いからSAF単独では困難な）主として密度・発熱量などの既定値を満足させるためと、既存の燃料配管のシールにOリングの膨潤性を適合させるために、最大体積比50%が定められているといえる。一方、最近では上記最大体積比を超えた混合比の燃料を使用した飛行試験などの取り組みが行われている。

2021年1月には、ボーイング社により2030年までに、航空機が100% SAFに適合するようになるという取組み方針⁽⁶⁾が明らかにされた。また、AirbusはA350を用いた100% SAF飛行試験⁽⁷⁾を実施している。これらは上記の事実を踏まえ、SAFを利用した低炭素化の拡大に向けた取組と考えることが出来る。こうした観点から、本項で示す100% SAFの燃焼試験結果は実際にSAFを適用し実現しうる効果として見積もることが可能である。

なお、NEDO事業にて生産したFT-SPKも同様に、ASTM-D7566 Annex-1規格に適合する燃料であることが確認されている。

3. 試験設備と試験条件

本稿では、主にJAXA燃焼試験設備にて実施したシングルセクタ燃焼器モデルにおける燃焼・排気特性取得を示す。JAXAが外部機関と共同で実施したSAF利用エンジン運転試験結果については参考文献^{(8),(9)}を掲げながら結果概要を5章にて概説する。本章においては、燃焼試験に用いた試験設備と試験条件をまとめる。

燃焼試験は、JAXA調布航空宇宙センター内高温高圧燃焼試験設備⁽¹⁰⁾にて行われた。高温高圧燃焼試験設備は、高圧A系、高圧B系、中圧系の3系統の試験用リグを備えている。試験用リグ内に燃焼器を配し、入口空気環境を設定の上試験を実施する。後述するCase 1を中圧系、Case 2を高圧B系にて行った。燃焼器出口排気のサンプリングは、ライナ出口部に配したφ0.8孔のサンプルプローブにより導入している。導入された排気ガスの排気成分計測は、Fig. 4に示すように、成分計測装置にて計測された。NO_x濃度はchemiluminescence detector (CLD)、CO と CO₂ 濃度はnondispersive infrared detectors (NDIR)、全炭化水素（THC）濃度はflame ionization detector (FID)であるHoriba MEXA ONEを用いて計測された。煤（不揮発成分粒子状物質）（nvPM）の質量密度はphoto acoustic soot sensor (PASS)であるAVL MSS 483にて計測された。煤の数密度はcondensation particle counter (CPC)にて計測された。

Fig. 5には試験で用いたRQL (Rich Quick-quench Lean) 燃焼器⁽¹¹⁾を示す。Fig. 6には、燃料ノズルを示す。

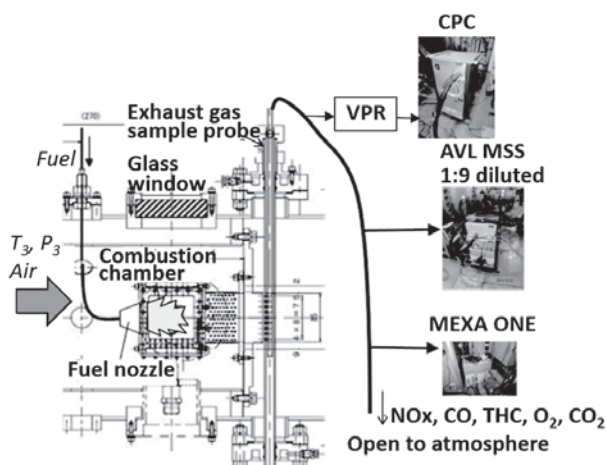


Fig. 4 Combustion test pressure casing overview

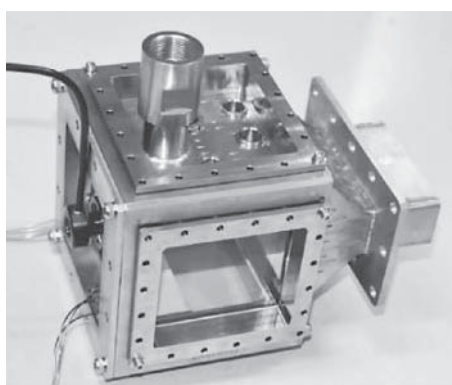


Fig. 5 RQL combustor

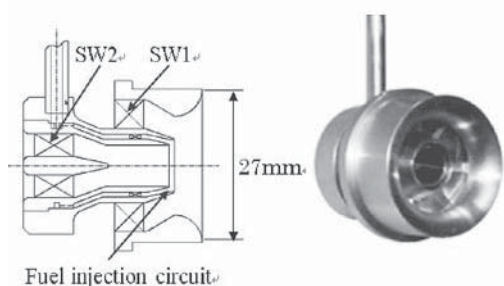


Fig. 6 Parker-Hannifin type air blast fuel nozzle

Table 3 Test conditions

Case #	Inlet temperature	Inlet pressure	Pressure loss ratio
Case 1	450 K	350 kPa	4.0%
Case 2-1	644 K	1350 kPa	4.6%
Case 2-2	739 K	1350 kPa	4.1%
Case 2-3	803 K	1350 kPa	4.2%

Table 4 Test cases and fuels used

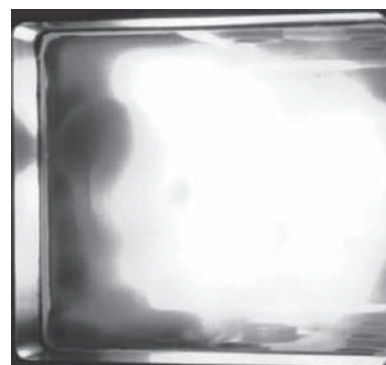
Case #	Fuels
Case 1	Kerosene/HEFA, Kerosene/FT-SPK
Case 2-1, 2, 3	Kerosene/HEFA

試験条件をTable 3に示すと共に、Table 4に各試験条件で使用した燃料の組合せを示す。ただし、以降の試験結果等で示すベースラインとは、100%ケロシンで試験を行った時のものである。4章で示すCase1試験は、比較的低負荷の条件であり、可視化窓での直接画像取得を含む。5章で示すCase 2試験は、入口圧を固定して入口温度を変化させた条件であり、JAXAグリーンエンジン研究開発におけるモデルエンジンの飛行環境における作動状態を踏まえて設定した燃焼器入口圧力条件での試験結果⁽¹²⁾の一部で構成されている。

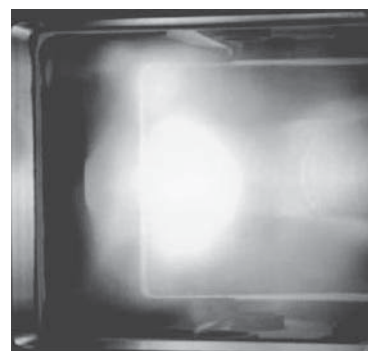
4. バイオ燃料の燃焼排気特性

本章では、SAF (HEFAとFT-SPK) を用いた燃焼試験において得られる代表的な傾向を概説する。Fig. 7は、RQL燃焼器を用いた燃焼試験における、ベースライン (a) とHEFA (b) の火炎像を比較したものであり、後で示す煤の排出量が多い空燃比 (AFR) 条件で比較している。火炎の直接像からHEFA 100%の条件ではベースラインに比べて輝度が暗いことから、煤の排出が大きく低減していることが見て取れる。また、同様の試験形態にて実施した、二色法を用いたKLファクタによる煤分布計測からも、HEFA使用時の煤の排出低減が確認された⁽¹³⁾。

Fig. 8には、ベースラインと2種のSAF (FT-SPKとHEFA) に対して、Case 1試験条件において空燃比 (AFR) を変化させたときの (a) CO, (b) NOx, (c)

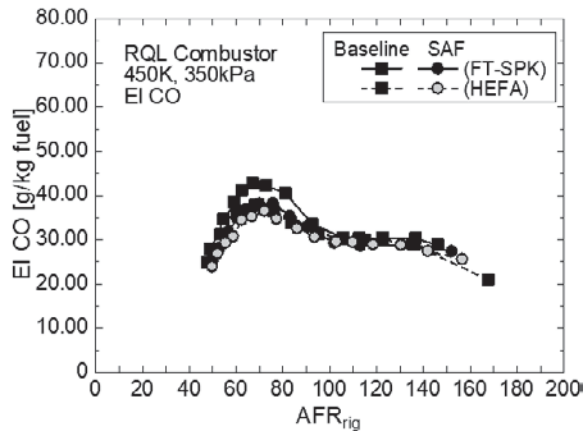


(a) Baseline fuel case

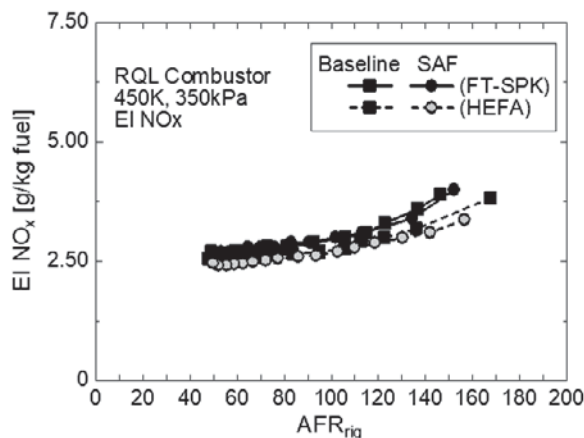


(b) HEFA fuel case

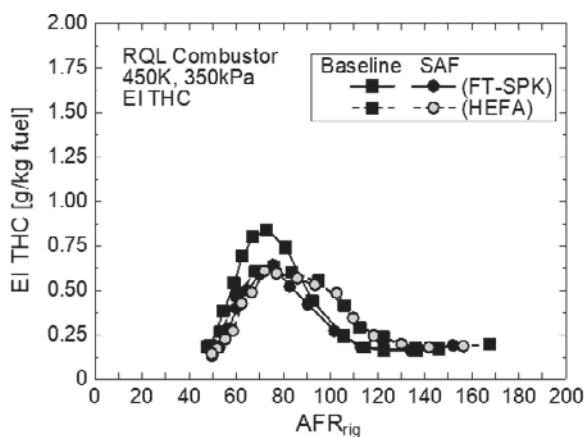
Fig. 7 Comparison of direct flame images
(Inlet condition, Case 1 (450 K, 350 kPa) , AFR = 75)



(a) EI CO



(b) EI NOx

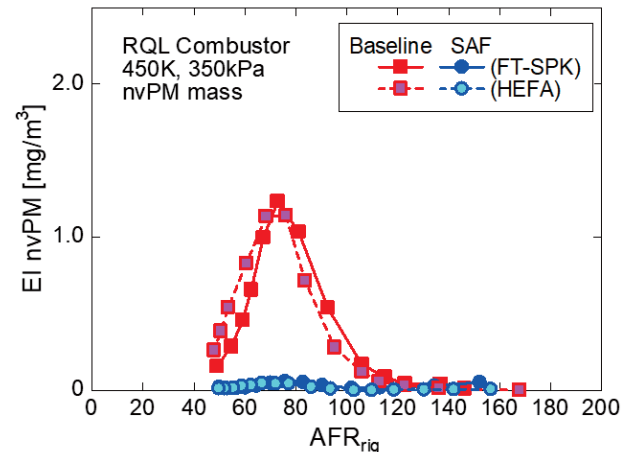


(c) EI THC

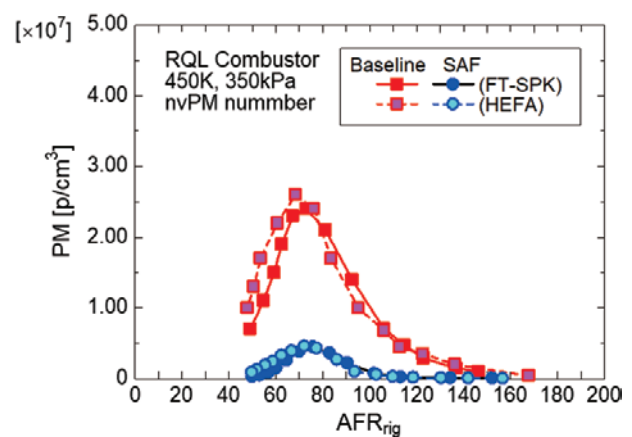
Fig. 8 Emission characteristics in RQL combustor testing (Case1)

THC排出特性を示す。ベースライン燃料はここではケロシンであり、各々のSAF試験毎の同じ試験期間に実施した比較対象である。試験毎のベースラインケロシン試験結果は若干の相違がある。Fig. 8から、いずれの燃料の排気特性 (EI) にも差はほとんどないことが見て取れる。

Fig. 9には、Fig. 8と同様の燃料種・条件における煤 (nvPM) を (a) 質量密度、(b) 数密度に対して示している。Fig. 9から、煤の生成量がベースラインとSAFで



(a) nvPM mass



(b) nvPM number

Fig. 9 Comparison of nvPM mass and number (RQL combustor, Case1)

際立って異なっていることが見て取れる。2種のSAFの間の差はほとんど見られない。nvPMの質量・数密度とも、ベースラインに比べてSAFは大きく減少していることがわかる。100% SAFを用いると、ベースラインに比べて、数密度の減少度の方が質量密度の減少度より小さいことから、比較的小さい粒径分布の煤が生成されることが示唆される。なお、Case 1の条件においては、ベースラインとSAFの混合燃料試験も実施しており、EI CO、EI NOx、EI THCが変化しないこと、煤排気特性は混合割合に応じて単調に変化することを確認している¹³⁾。

HEFAに対してリーンバーン燃焼器を用いた試験¹³⁾では、パイロットのみの条件では火炎像ならびに排気特性の傾向はRQL燃焼器で示したものに類似していたが、パイロットとメイン燃料を導入した条件では、ベースライン・HEFAとも煤の生成は少なく、排気特性も煤 (nvPM) も大差がないことが示されている。加えて、同条件においては、ベースラインにおいては見受けられた顕著な圧力振動が、HEFAの場合には見受けられない、などの挙動の違いも見られている。文献¹³⁾では、この圧

力振動の抑制傾向や、吹き消え限界特性の分析を行っている（東京大学との共同研究として実施）。試験の条件の制約の範囲内では、

噴霧特性 ベースライン>HEFA

蒸発特性 ベースライン<HEFA

反応特性 ベースライン<HEFA

との傾向がみられた。これらはTable 1に示す燃料間のわずかな性状差に起因するものと考えられる。燃焼器に依存するものの、これらの特性を踏まえると、100% SAFを用いることを前提にすると、従来燃料（ベースライン）の場合に比べ、希薄限界の拡大・リーンバーン燃焼器の適用拡大の可能性が見込まれる。

5. 実環境条件下におけるバイオジェット燃料の燃焼・排気特性とエンジン運転試験

前章で示した結果は大気圧・温度よりも高い圧力・温度環境下の試験結果ではあるが、よりエンジンの飛行時環境を想定した条件で検証する必要がある。こうした観点から、RQL燃焼器、リーンバーン燃焼器に対して、JAXAグリーンエンジン研究開発での想定エンジンモデルにおける飛行条件・燃焼器入口環境を模擬した排気特性の取得を行ってきた^{(9), (12)}。この内、RQL燃焼器試験における一定圧力下で入口温度を変化させた場合の排気特性を代表例として紹介する。

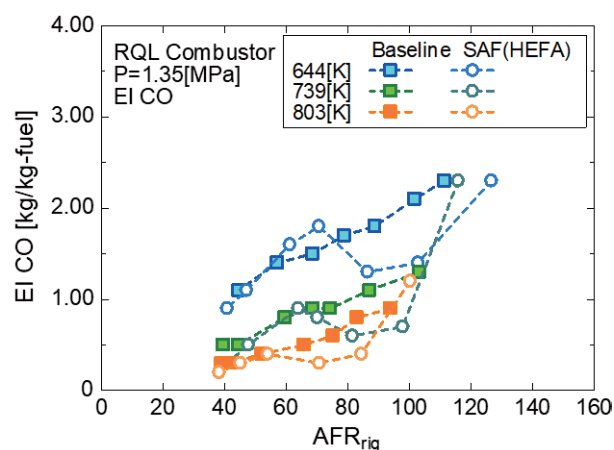
Fig. 10には、ベースラインとHEFAに対して、Case 2試験条件において空燃比（AFR）を変化させたときの、(a) CO, (b) NO_x, (c) THC排出特性を示す。Fig. 10から、前章で示した傾向と同様、ベースラインとSAF（HEFA燃料）の間には、CO, NO_x及びTHCの排気特性（EI）に差が殆ど無いことが見て取れる。EI COは温度の上昇より大きく低減している⁽¹⁴⁾。入口温度の上昇により、NO⁽¹⁴⁾（ならびにNO₂）の生成量は飛躍的に増大する。

EI THCは、模擬運転条件内では低負荷条件で排出が大きい（Fig. 8 (c) 参照）のに対して、Fig. 10 (c) の試験条件下では相対的に小さい値であり、温度条件による変化が小さい。

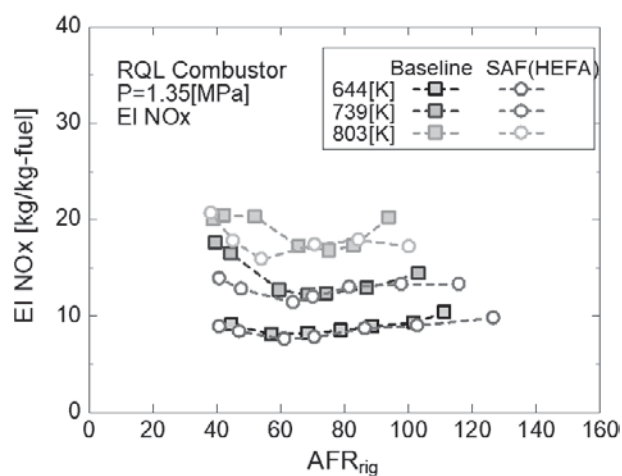
Fig. 11には、Fig. 10と同じ燃料種・条件における煤（nvPM）の生成を、(a) 質量密度、(b) 数密度に対して示している。

Fig. 11から、ベースラインにおいて、質量密度の温度依存性は明確ではないが、数密度は温度の増大に従って低減する傾向が見て取れる。ベースラインに対するSAF（HEFA燃料）の変化の観点では、前章におけるCase 1で見られた傾向と同様の傾向が見られ、nvPMの質量・数密度とも、ベースラインに比べてSAFでは大きく減少した。また、前章のCase 1での傾向と同様に、ベースラインに比べ、100% SAFでは数密度の減少度の方が質量密度の減少度より小さかった。

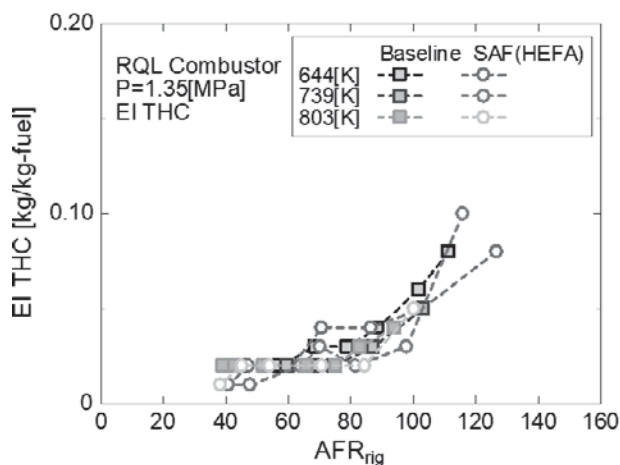
実飛行環境相当の高温・高圧下における排気特性の圧



(a) EI CO



(b) EI NO_x



(c) EI THC

Fig. 10 Temperature effects on emission characteristics (Case 2)

力依存性については文献⁽¹⁵⁾に示してある。

以上から、これまで見た排気特性については、運転環境（温度・圧力）の依存性が大きいものの、ベースラインを基準としたSAFの特性傾向は同様であることが分かる。なお、エンジン運転時には燃料を変更しても運転諸特性が顕著に変化しないことが望まれる。JAXAにお

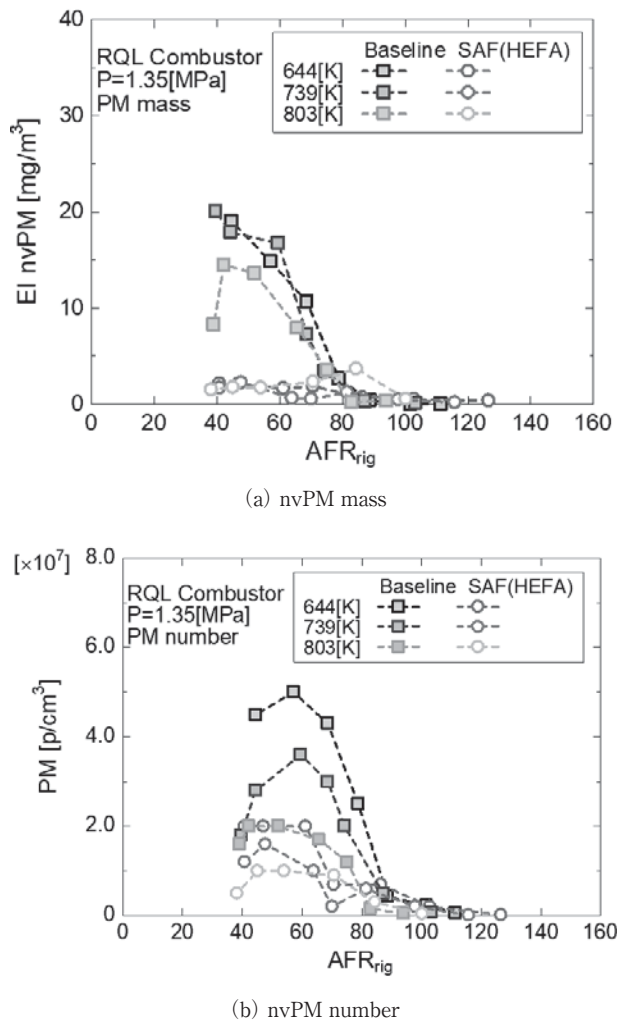


Fig. 11 Temperature effects on emission characteristics of PM mass and number (Case 2)

いては、「小型ガスタービン」^[8] (SAFとしてHEFA) と「模型用ターボジェットエンジン」^[9] (SAFとしてNEDO事業で製造したFT-SPK) に対して、SAFを用いたエンジン運転試験を実施している。いずれにおいても、運転監視項目の範囲でベースライン、SAFおよびそれらの混合燃料間で顕著な差が見られないことを確認している。

以上のように、SAFを適用する際に既存のエンジン等機器をそのまま用いてもエンジン運転特性が変化しないことが第一に重要であり、その上で環境適合性が向上することが好ましい。これまで見てきたように、SAFを用いた試験においては、主要な排気成分が変化せず、煤の生成が大幅に低減する。このことは、飛行機雲の生成抑制に寄与する^[7]ことも報告されており、SAFの使用とその割合増加（総使用量の拡大）が温暖化抑制に寄与することが期待される。

さらに、100% SAFを利用することを前提とすれば、燃料特性のわずかな違いを利用して、より環境適合性の高い燃焼器を設計することも可能と考えられる。SAFが利用可能となって5年以上経つが、本年（2021年）になって100% SAF適用の道が拓けてきた。NEDO事業におけるようなSAF生産のコスト低減検討を踏まえた道

筋を確保しつつ、SAFによる航空機の温暖化抑制をはじめとした環境負荷低減の促進が着実に進むことを期待したい。

6. まとめ

JAXAにおいて行ってきたSAF燃焼試験を通じて得られた知見等を踏まえ、SAFを利用したエンジン運転で期待される事項をまとめた。

現状のASTMで規定される特性ならびにその100%利用への拡大の範囲であれば、航空用エンジンの運転特性の顕著な差は見られず、むしろ若干の燃焼特性改善を期待することが出来る。特に煤の排出量の低減は温暖化効果が指摘される飛行機雲の生成抑制に寄与することから、SAFの製造時の従来燃料（化石燃料からバイオ燃料・再生可能エネルギー利用への移行によるCO₂排出低減）と、飛行機雲生成の抑制という大きく2つの温暖化抑制効果を期待できることは特筆すべき事項である。

現在のASTM規格に定められる50%未満の混合率では限られた温暖化抑制効果しか期待できなかったものの、100% SAF利用の道筋が拓けた現在、改めて航空用代替燃料としての価値が高まっており、関連の研究開発が国内でも進むことが期待される。

謝辞

この成果の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務（P17005）の結果得られたものであり、エンジン運転試験結果は上記事業の中で高知工科大学の野崎研究室が取得されたものである。また、本稿で示した研究成果の一部は科研費16H04586の成果であり、東京大学津江光洋教授・中谷辰爾准教授に不安定性評価等についてご指南頂いた。

本研究を通じてご協力・ご指南を頂いた、関係各位に記して謝意を表します。

参考文献

- (1) 航空機電動化 将来ビジョン, JAXAホームページ, <http://www.aero.jaxa.jp/about/hub/eclair/pdf/eclair_vision.pdf> (参照日2021年3月18日)。
- (2) ASTM D7566-18, Standard Specification for Aviation Turbine Fuels Containing Synthesized Hydrocarbons, ASTM International, West Conshohocken, PA (2018)。
- (3) NEDOホームページ, バイオジェット燃料生産技術開発事業, <https://www.nedo.go.jp/activities/ZZJP_100127.html> (参照日2021年3月18日)。
- (4) “Honeywell CLEEN Program”, CLEEN Consortium Meeting, November 2012, No. 21-15207。
- (5) Rahmes T.F., Kinder, J. D., Henry, T. M., Crenfeldt, G., LeDuc, G. F., Zombanakis, G. P., Abe, Y., Lambert, D. M., Lewis, C., Juenger, J. A., Andac, M. G., Reilly, K. R., Holmgren, J. R., McCall, M. J., Bozzano, A. G., Sustainable Bio-Derived Synthetic Paraffinic Kerosene (Bio-SPK) Jet Fuel Flights and Engine Tests Program

- Results, AIAA 2009-7002, 9th AIAA Aviation Technology, Integration, and Operations Conference (ATIO).
- (6) Boeingプレスリリース, Boeing will deliver commercial airplanes ready to fly on 100% sustainable fuel, January 22, 2021, <<http://www.boeing.com/company/about-bca/washington/boeing-will-deliver-commercial-airplanes-ready-to-fly-on-100-sustainable-fuel.page>> (参照日2021年3月18日).
- (7) Airbusプレスリリース, An A350 fuelled by 100% SAF just took off - Innovation - Airbus, March 18, 2021, <<https://www.airbus.com/newsroom/stories/A350-fuelled-by-100-percent-SAF-just-took-off.html>> (参照日2021年3月18日).
- (8) 藤原仁志, 中村将治, 冷水陵馬, 山田秀志, 下平一雄, 廣田雅, 岡井敬一, バイオジェット燃料を用いた小型ガスタービンのエンジン試験, 日本ガスタービン学会誌, Vol. 44, No. 3 (2016), pp. 182-188.
- (9) Okai, K., Fujiwara, H., Yoshida, S., Yamamoto, T., Effect of Fuel Change from Petroleum Kerosene to HEFA Alternative Jet Fuel on the Emission of a Concentric Lean-Burn Burner under High-Pressure and High-Temperature Conditions, AIAA2021-1807, AIAA SciTech Forum 2021.
- (10) JAXA-HP, JAXA航空技術部門, 試験設備 航空エンジン試験設備 高温高圧燃焼試験設備, <<https://www.aero.jaxa.jp/facilities/aeroengine/facility04.html>> (参照日2021年3月18日).
- (11) Makida, M., Yamada, H. and Shimodaira, K., Detailed Research on Rich-Lean Type Single Sector and full annular combustor for small aircraft engine, ICAS2014-0628, 2014.
- (12) Okai, K., Fujiwara, H., Makida, M., Shimodaira, K., Effects of fuel change from petroleum kerosene to HEFA alternative jet fuel on the emission of a RQL gas-turbine combustor under high-pressure and high-pressure conditions, AIAA 2020-1220, AIAA SciTech 2020.
- (13) Fujiwara, H., Salman, P., Ando, S., Ishikawa, H., Nakaya, S., Tsue, M., Okai, K., Emission Characteristics and Flame Stability in HEFA Fueled Gas Turbine Combustors, Sustainable Development for Energy, Power, and Propulsion (Green Energy and Technology), De, A. Gupta, A. K., Springer (2020) .
- (14) Lefebvre, A. H., Ballal, D. R., Gas Turbine Combustion: alternative fuels and emissions, 3rd edition, CRC press, Taylor & Francis, 2010.
- (15) Fujiwara, H., Okai, K., Emission Characteristics on Combustion of HEFA Alternative-Aviation Fuel Under In-Flight Conditions, pp. 55-64, Advances in IC Engines and Combustion Technology: Select Proceedings of NCICEC 2019 (Lecture Notes in Mechanical Engineering) (English Edition), Gupta, A. K., Mongia, H. C., Chandna, P., Springer, (2020).
- (16) Okai, K., Fujiwara, H., Nagai, K., Oinuma, H., Makida, M., Shimodaira, K., Mizuno, T., Shinoda, K., Fujii, A., Kojima, Y., Sakai, K., Shibahara, Y., Combustion Tests using a Single Combustor Model and a Jet Engine of Bio-Derived Aviation Fuel Produced through Integrated Process of Woody Biomass Gasification and Fischer-Tropsch Synthesis, AIAA2021-2036, AIAA SciTech Forum 2021.
- (17) DLR news release, DLR/NASA flight experiment confirms Bio-fuels reduce soot emissions from aircraft, March 15, 2017, <https://www.dlr.de/content/en/articles/news/2017/20170315_biofuels-reduce-soot-emissions-from-aircraft_21749.html> (参照日2021年3月18日).

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

日本航空における代替航空燃料（SAF）の導入に向けた取り組み

Sustainable Aviation Fuel (SAF) Development Activities in Japan Airlines



熊倉 賢^{*1}
KUMAKURA Ken

キーワード：代替航空燃料（Sustainable Aviation Fuel, SAF）、CO₂排出量削減、日本航空（JAL）、燃料規格
Key Words：Sustainable Aviation Fuel (SAF), CO₂ Reduction, Japan Airlines (JAL), Fuel Specification

1. 緒言

航空業界ではこれまで、使用する航空燃料を削減して燃費向上を目指す観点でCO₂の排出量削減に取り組んできた。近年は地球環境を守る観点から、日本を含めた世界各国が「2050年にカーボンニュートラルの達成」を宣言する中、当社も「2050年にCO₂排出量実質ゼロを達成する」と宣言し、更なるCO₂の排出量削減に向け取り組みを推進している。その手段のひとつとして、欧米諸国を中心に代替航空燃料（Sustainable Aviation Fuel；以下、「SAF」。国際航空運送協会（IATA）により「バイオジェット燃料」から呼称を変更されたもの）の開発や実用化が進められており、2030年以降の本格的な普及が予想される。当社はSAF利用のリーディングエアラインとなるべく、定期便での利用、積極的な投資、開発への協力を行っているので、以下に当社の取り組みを紹介するとともに、SAFに必要な規格・認証について述べる。

2. 当社におけるSAF活用の取り組み

2.1 当社の長期的目標とSAFの位置付け

航空業界では、国際民間航空機関（International Civil Aviation Organization；以下、「ICAO」）の総会において、2010年に「燃料効率を毎年2%改善すること」および「2020年以降国際線のCO₂総排出量を増加させないこと」、また2016年に、「2021年以降、国際線を運航する航空会社に対して、2019年のCO₂排出量を超過した分についてCO₂排出権の購入などを義務付ける国際航空のためのカーボンオフセットおよび削減スキーム（Carbon Offsetting and Reduction Scheme for International Aviation，以下「CORSIA」）制度を導入すること」を採択し、気候変動への対応を進めている。また、航空業界関係者にて構成されたAir Transport Action Group

（以下、「ATAG」）において、2050年に向けたCO₂排出量削減のための具体的な取り組みが定められた（Fig. 1参照。複数の前提を元に試算したシナリオのうちのひとつを示す）。ここに示されるように、今後SAFの利用によるCO₂排出量削減効果が非常に大きいと期待されていることが分かる。

当社においても、「2050年にCO₂排出量実質ゼロを達成する」という目標に向け、「省燃費機材への更新」、「SAFの開発促進と活用」、「日々の運航での工夫」、「排出量取引への対応」の4つを大きな柱とし、CO₂排出量の削減に取り組んでいる（Fig. 2参照）。その中でも前述のATAGの予測にある通り、「SAFの開発促進と活用」が目標達成に貢献する割合は大きく、今後の当社の重要なテーマとなっている。

2.2 当社便への使用

当社では2009年に初めてSAFを導入して以来、Table 1に示す通り、航空機にSAFを搭載して運航してきた。

2.3 国産SAF開発の取り組み

日本政府は、「2020年東京オリンピック・パラリンピック競技大会に向けたバイオジェット燃料の導入までの道筋検討委員会」（通称：道筋検討委員会）を設置し、東京2020オリンピック・パラリンピック競技大会をマイルストーンとして、国産SAFの生産に取り組んできた。当社は道筋検討委員会のメンバーとして、国産SAFで運航するとともに、政府の掲げる2030年の国産SAF普及の達成に向けて、さまざまなステークホルダーをつなぎ、製造から使用までのサプライ・チェーンの構築に、オールジャパンの一員として貢献している。

その一環として、2018年10月から、全国から集めた衣料品（綿）を原料とし、国産SAFの製造に挑戦するプロジェクト、「10万着で飛ばそう！JALバイオジェット燃料フライト」を実施した。4か月間で約50社の企業によるご協力のもと、全国から約25万着の衣料品を回収した。2019年1月より、Green Earth Institute株式会社の技術サポートのもと、公益財団法人地球環境産業技術研

原稿受付 2021年3月8日

*1 日本航空(株) 総合調達部 燃料グループ
〒140-8637 品川区東品川2-4-11
E-mail: kumakura.wawn@jal.com

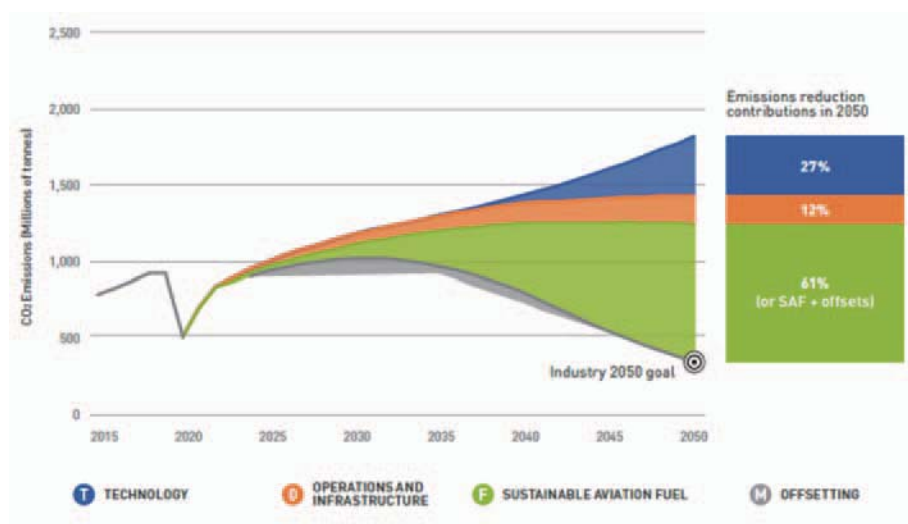
Fig. 1 ATAG's CO₂ Reduction Scenario ⁽¹⁾Fig. 2 CO₂ Emissions Reduction Targets and Progress for JAL

Table 1 JAL's Operation with SAF

時期	飛行区間	特記事項
1 2009年1月	国内での試験飛行	アジア初の非可食原料（主原料：カメラナ）
2 2017年11月	シカゴ・オヘア国際空港～成田空港	燃料の5%がSAF
3 2019年1月	サンフランシスコ国際空港～羽田空港	
4 2019年6月～	フランス・トゥールーズのエアバスの工場～羽田空港	エアバスA350型機の受領時のデリバリーフライト（複数回）
5 2021年2月	羽田空港～福岡空港	国産初のSAF（2.3章にて詳述）

究機構（以下、RITE）が開発したバイオプロセスを使用してSAFの製造に着手し、2020年3月に、無事SAFを製造することに成功した。世界的にはSAFの実用化が進んでいるものの、国産SAFの完成は国内で初めてのことであり、この成功により国内の技術力でSAFが製造可能であることを立証できた。そして、2021年2月4日、当社定期便（羽田発福岡行）に当該SAFを搭載し、無事に一連のプロジェクトを遂行した。

以下にSAF製造のプロセスを示す（Fig. 3参照）⁽²⁾。

(1) 回収した古着の糖化

衣料品（綿）をアルカリ処理したうえで、糖化酵素

を用いて綿の成分であるセルロースを糖に変換する。

(2) バイオイソブタノールの生産

RITEが開発したコリネ型細菌を使用し、これまでにない革新的なバイオプロセスであるRITE Bioprocess[®]を経ることによって、糖をイソブタノールに変換する。

(3) イソブタノール溶液の濃縮

複数の蒸留装置を用いて、99%以上の純度のイソブタノールに濃縮する。

(4) イソブタノールの脱水・オリゴマー化

最適な触媒を用いて、イソブタノールからイソブチレン（C4オレフィン）を作り（脱水）、そのイソブチ

レン同士を反応させてC8, C12, C16オレフィンを作る (オリゴマー化)。

(5) オリゴマーの水素化

オレフィン是不安定な物質なので、水素を用いて不安定な二重結合のないパラフィンに変換する。

(6) 分留

ジェット燃料の沸点範囲の規格を満足するように、蒸留装置で分留して沸点範囲を調整する。

(7) 酸化防止剤の添加

ジェット燃料の保管・輸送時の酸化劣化を防ぐために規定量の酸化防止剤を添加する。



Fig. 3 Process to Produce SAF made from Cotton Clothes

2.4 SAF製造会社への出資

当社は2018年9月、株式会社海外交通・都市開発事業支援機構および丸紅株式会社と共同で、米国カリフォル

ニア州にあるFulcrum BioEnergy, Inc. (以下、「フルクラム社」)の株式の一部を取得した。SAF製造事業への出資としては、日本企業で初めての案件である。フルクラム社は、通常は埋め立てて廃棄される一般廃棄物を原料としてSAFを製造するプロセスの開発に取り組んでおり、製造技術は国際標準化・規格設定機関であるASTM Internationalによる燃料規格(3.1章にて詳述)も取得している。現在、ネバダ州に第1号プラントを建設中であり、2021年中に稼働予定である(Fig. 4参照)。さらにインディアナ州での建設計画を発表するなど、今後も複数のプラントの展開を予定しており、SAFの大量生産について、実現性が最も高い企業の一つである。そのため、当社はフルクラム社との関係を強化し、北米発便を中心に同社から供給されるSAFの搭載を進め、CO₂排出量削減を実現していく。



Fig. 4 Fulcrum's SAF Production Plant under Construction (as of Dec 2020)

2.5 国産SAFの商用化に向けた取り組み

当社は2020年2月より、丸紅株式会社、ENEOS株式会社、日揮株式会社と、国内におけるSAFの製造・販売事業に関する事業性調査を開始した(Fig. 5参照)。これは、一般バイオマス廃棄物に加え、廃棄プラスチックを含む産業廃棄物を原料とし、SAFを製造、販売するサプライ・チェーンの実現性、事業性を評価するものであり、本調査の結果を踏まえ、2020年代前半に実証設備の導入および試験の実施、2025年頃に商用のSAF製造設備着工を目指している。

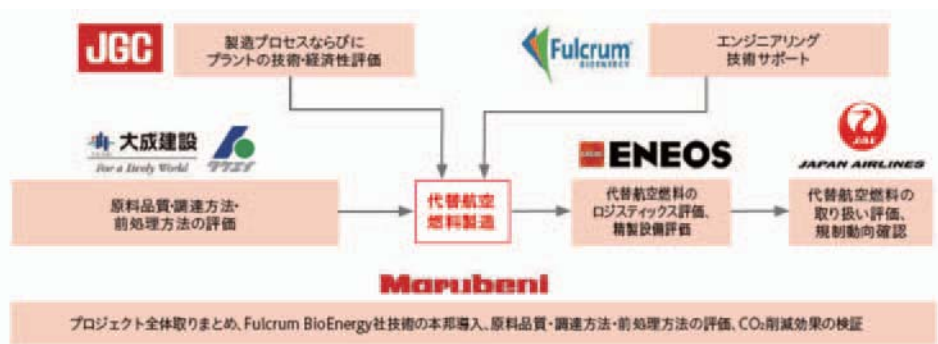


Fig. 5 Feasibility Study of SAF Production in Japan

3. SAFに必要な規格・認証

本章では航空機に搭載するSAFが満たすべき規格・認証等について述べる（以下では、製造された合成燃料を「ニートSAF」、従来のジェット燃料と混合された燃料を「混合SAF」とし、特に区別をつける必要がない場合には「SAF」とする）。

3.1 ASTM

航空機に搭載する従来のジェット燃料は、世界最大の民間の国際標準化・規格設定機関であるASTM (American Society for Testing and Materials) Internationalの策定・発行する国際規格であるASTM D1655を満たすものと規定されている。一方、SAFを航空機に搭載するには、ASTM D7566を満たす必要があり、製造方法・原料毎に規格のAnnexが規定され（2021年2月現在、Annexは7つ）、従来のジェット燃料との混合比の上限も定められている（Table 2参照）。国土交通省航空局のサーキュラー No.6-015「航空機に搭載する代替ジェット燃料（ASTM D7566規格）の取扱いについて」（令和2年2月3日一部改正（国空機第1718号））にて、ASTM D7566に適合する混合SAFがASTM D1655として取り扱われれば、航空機およびエンジンの燃料規格に関する運用限界の範囲内で使用してよいと定められている。ニートSAF製造・従来のジェット燃料との混合・航空機への給油に至るSAFのサプライ・チェーン、および必要

な認証をFig. 6に示す。

なお、ジェット燃料に適用される規格はASTM以外にも、英国防衛省が定めるDef Stan 91-091があり、ニートSAFのAnnexを規定しているが、ASTM D7566を追認しており、実質的にはASTM D7566規格を燃料規格として用いればよいこととなっている。

3.2 CORSIA適格燃料

CORSIA制度に基づき、SAFの使用によりCO₂排出削減を計上するためには、CORSIAが定める2つの持続可能性基準、「ライフサイクルベースで炭素排出量を削減すること」「炭素ストックの高い土地から生産されたバイオマスではないこと」等を満たす必要がある⁽⁵⁾。前者の削減率の計算には、CORSIAで定められた方法に基づき計算するか⁽⁶⁾、ジェット燃料のベースラインの値（89g-CO₂/MJ）に対する各SAFのライフサイクルでの温室効果ガス排出削減率の規定値を用いて計算する方法⁽⁷⁾がある。持続可能性基準の遵守の確認は、ICAOが指定する持続可能性認証スキームが定める要件に従い、認証機関がSAF製造者に対し実施する。

3.3 100% SAF実現に向けた動き

2020年11月に、ロールス・ロイス社は、従来のジェット燃料を混合しない100% SAFの状態ではエンジンテストを実施し、ガスタービンエンジンの環境性能改善に寄与することを確認していくことを発表し⁽⁸⁾、2021年2

Table 2 ASTM D7566 Annex ⁽³⁾

D7566における Annex No.	略語	製造方法	原料	混合比 上限
Annex 1	FT-SPK	ガス化・FT (Fischer-Tropsch) 合成	木質バイオマス、都市ごみ等	50%
Annex 2	HEFA-SPK	水素化処理	廃食油、動植物油脂等	50%
Annex 3	SIP	糖の直接還元	バイオマス糖	10%
Annex 4	SPK/A	ガス化FT合成 + 合成芳香族	木質バイオマス等	50%
Annex 5	ATJ-SPK	アルコール触媒反応	バイオマス糖	50%
Annex 6	CHJ	触媒水熱分解	微細藻類の油脂及び廃食油	50%
Annex 7	HC-HEFA SPK	水素化処理（ボツリオコッカスに限る）	微細藻類の炭化水素	10%

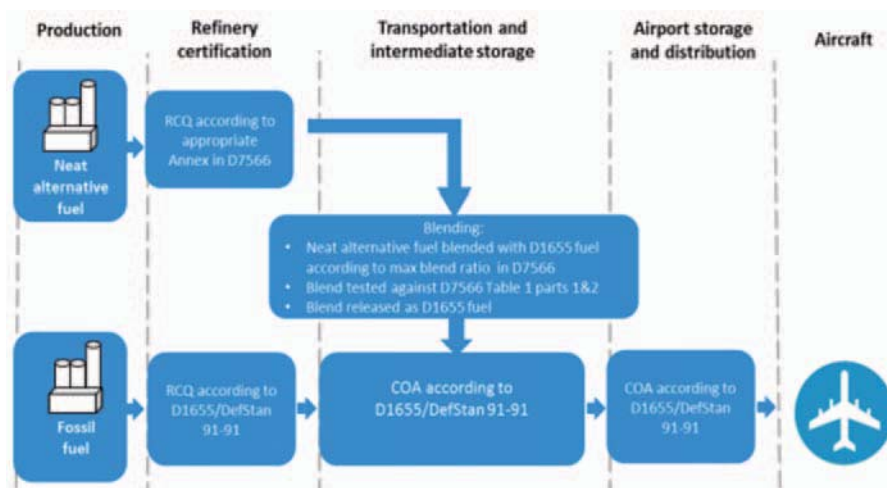


Fig. 6 Main steps in the supply chain of aviation fuel⁽⁴⁾

月にビジネスジェット用エンジン (Pearl 700) にて初めてのテストを実施した⁽⁹⁾。また、2021年3月にTrent XWBエンジンを搭載したエアバス社A350-900型機のテスト機に、廃食油を原料としたSAFを搭載した初めての100% SAF飛行試験を実施し、初便はエンジン性能に影響がないことが確認された⁽¹⁰⁾。

また、2021年1月、ボーイング社は2030年までに全ての民間機に100% SAFを使用できることを保証することをコミットする旨を発表した⁽¹¹⁾。現在の規定上はSAFの混合率は50% (一部は10%, Table 2参照) を上限としているが、同社は規制当局・エンジン会社・その他の主要なステークホルダーと協力し、SAFの混合比率の上限の引き上げや使用の拡大を目指すとしている。

これらの取り組みは、2050年にCO₂排出量実質ゼロを目指す上で、今後も注目すべき動きである。

4. 結言

カーボンニュートラルの実現に向け、欧米諸国を中心にSAF混合の義務化やインセンティブの活用といったSAF活用施策のもと開発・使用が進んでいるが、現時点では製造者が限られているため市場規模はまだ小さく、開発費や新たな施設設備への投資がかさんでいるため、SAFの価格が高いのが現状である。目標とするCO₂排出量削減の取り組みを加速するためには、SAFが既存のジェット燃料と比較して適正な価格であり安定して供給されることが望ましいため、当社は引き続き関係者と協働してSAFの使用を普及する体制を構築する所存である。

参考文献

- (1) ATAG Waypoint 2050 <https://aviationbenefits.org/media/167187/w2050_full.pdf> (参照日: 2021年3月2日)。
- (2) Green Earth Institute株式会社「古着から製造した国産バイオジェット燃料を搭載した初フライトが実現」 <http://gei.co.jp/ja/img/newsrelease/news_20210128.pdf> (参照日: 2021年1月28日)。
- (3) ASTM D7566-20b
- (4) IATA Guidance Material on Sustainable Aviation Fuel Management <<https://www.iata.org/contentassets/d13875e9ed784f75bac90f000760e998/iata20guidance20material20for20saf.pdf>> (参照日: 2021年3月2日)。
- (5) CORSIA Sustainability Criteria for CORSIA Eligible Fuels <<https://www.icao.int/environmental-protection/CORSIA/Documents/ICAO%20document%2005%20-%20Sustainability%20Criteria.pdf>> (参照日: 2021年3月2日)。
- (6) CORSIA Eligible Fuels-Life Cycle Assessment Methodology <https://www.icao.int/environmental-protection/CORSIA/Documents/CORSIA%20Supporting%20Document_CORSIA%20Eligible%20Fuels_LCA%20Methodology.pdf> (参照日: 2021年3月2日)。
- (7) CORSIA Default Life Cycle Emissions Values for CORSIA Eligible Fuels <<https://www.icao.int/environmental-protection/CORSIA/Documents/ICAO%20document%2006%20-%20Default%20Life%20Cycle%20Emissions.pdf>> (参照日: 2021年3月2日)。
- (8) Rolls-Royce to test 100% Sustainable Aviation Fuel in next generation engine demonstrator <<https://www.rolls-royce.com/media/press-releases/2020/12-11-2020-rr-to-test-100-percent-sustainable-aviation-fuel-in-next-generation-engine-demonstrator.aspx>> (参照日: 2020年11月12日)。
- (9) Rolls-Royce conducts first tests of 100% sustainable aviation fuel for use in business jets <<https://www.rolls-royce.com/media/press-releases/2021/01-02-2021-business-aviation-rr-conducts-first-tests-of-100-percent-sustainable-aviation-fuel.aspx>> (参照日: 2021年2月5日)。
- (10) Aviation leaders launch first in-flight 100% sustainable-fuel emissions study on commercial passenger jet <<https://www.rolls-royce.com/media/press-releases/2021/18-03-2021-aviation-leaders-launch-first-in-flight-100-percent-sustainable-fuel-emissions.aspx>> (参照日: 2021年3月18日)。
- (11) Boeing Commits to Deliver Commercial Airplanes Ready to Fly on 100% Sustainable Fuels <<https://boeing.mediaroom.com/2021-01-22-Boeing-Commits-to-Deliver-Commercial-Airplanes-Ready-to-Fly-on-100-Sustainable-Fuels>> (参照日: 2021年1月23日)。

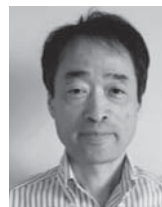
特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

二酸化炭素の有価物変換技術～メタネーションプロセスの開発～

Technology to Convert Carbon Dioxide into Valuable Materials - Development of Methanation Process-



成相 健太郎^{*1}
NARIAI Kentaro



鎌田 博之^{*2}
KAMATA Hiroyuki



遠藤 巧^{*3}
ENDO Takumi

キーワード：CO₂回収，H₂，メタネーション，触媒，CCU，有価物変換

Key Words：CO₂ Capture, H₂, Methanation, Catalyst, CO₂ Capture & Utilization, Convert to valuable materials

1. 緒言

地球温暖化ガス（GHG：Green House Gas）である大気中のCO₂を削減し、炭素循環型社会を実現するためには、再生可能エネルギー・資源を活用すること、および排出されたCO₂を炭素源として、我々が利用している炭素含有物質（燃料や化成品）へ変換することが必要となる。IHIが取り組んでいるCO₂回収分離技術・有価転化技術（メタネーション）の融合により、炭素循環型社会の実現を目指す。

2. 初めに

世界的な脱CO₂・低炭素化に向けた流れが進んでいる。日本国内においても、2050年までに地球温暖化ガスの排出実質ゼロを目指す方針が出されており、この流れは加速していくものと考えている。

脱CO₂・低炭素化に向けた対策の一つとして、発電所や工場からの排ガスや空気中から回収したCO₂を炭素源として、水素（H₂）と反応させることにより様々な有価物（炭化水素）に変換するカーボンリサイクル・炭素循環技術が注目されている。

IHIグループでは、CO₂の回収技術（CO₂ Capture）だけでなく、水素を効率的に製造する技術、またCO₂と水素との反応により有価物に変換する技術（Utilization）

の開発を行なっている。これら技術の融合であるCCU技術（CO₂ Capture & Utilization）により、究極的には、化石資源など地中から炭素を地表に放出するのではなく、既に地表にある炭素源（バイオマスや大気中CO₂）を利用することで、大気中のCO₂が増加しない炭素循環型社会を実現することが可能となる。IHIが行なっているCCU技術の研究開発ロードマップをFig. 1に示す。右上側にCO₂の分離・回収技術を、左下側にCO₂の利用技術を示している。これらのCO₂分離・回収および利用技術を組み合わせることで、炭素を循環させ、CO₂排出量の削減につなげることができると考えている。

3. CO₂分離・回収技術

多くのCO₂分離・回収技術が研究・開発されているが、その中で、CO₂の化学吸収法は、アミンなどのアルカリ性水溶液を吸収液とし、化学的な吸収・放出反応を利用してCO₂を燃焼排ガスなどから分離・回収する技術である。

化学吸収法によるCO₂回収プロセスのイメージ図をFig. 2に示す。具体的には、発電所や工場・製鉄所からのCO₂を含む燃焼排ガスを「吸収塔（Absorber）」に誘引し、CO₂がほとんど含まれていない（リーンな）吸収液と気液接触させ、排ガス中のCO₂を選択的に吸収液に取り込ませる。そしてCO₂が回収された排ガスは、吸収塔上部から放出される。

次いで、CO₂が多く取り込まれた（リッチな）吸収液を「放散塔（Stripper）」に送る。放散塔では、吸収液に取り込まれたCO₂を加熱することで、気体として分離して上部から放出後、冷却・圧縮させることで、99%以上の高純度なCO₂を回収することができる。またCO₂を放出した（再生した）吸収液は再度吸収塔に供給・循環する。気液接触の効率を上げるため、吸収塔および放散

原稿受付 2021年3月8日

*1 (株)IHI 技術開発本部 技術基盤センター
物理・化学グループ (CFE-PJ担当)
E-mail: nariai5751@ihi-g.com

*2 (株)IHI 技術開発本部 技術基盤センター
物理・化学グループ (物質・エネルギー変換担当)
E-mail: kamata6703@ihi-g.com

*3 (株)IHI 資源・エネルギー・環境事業領域
カーボンソリューションSBU 技術センター 基本設計部
基本計画グループ
E-mail: endo8597@ihi-g.com

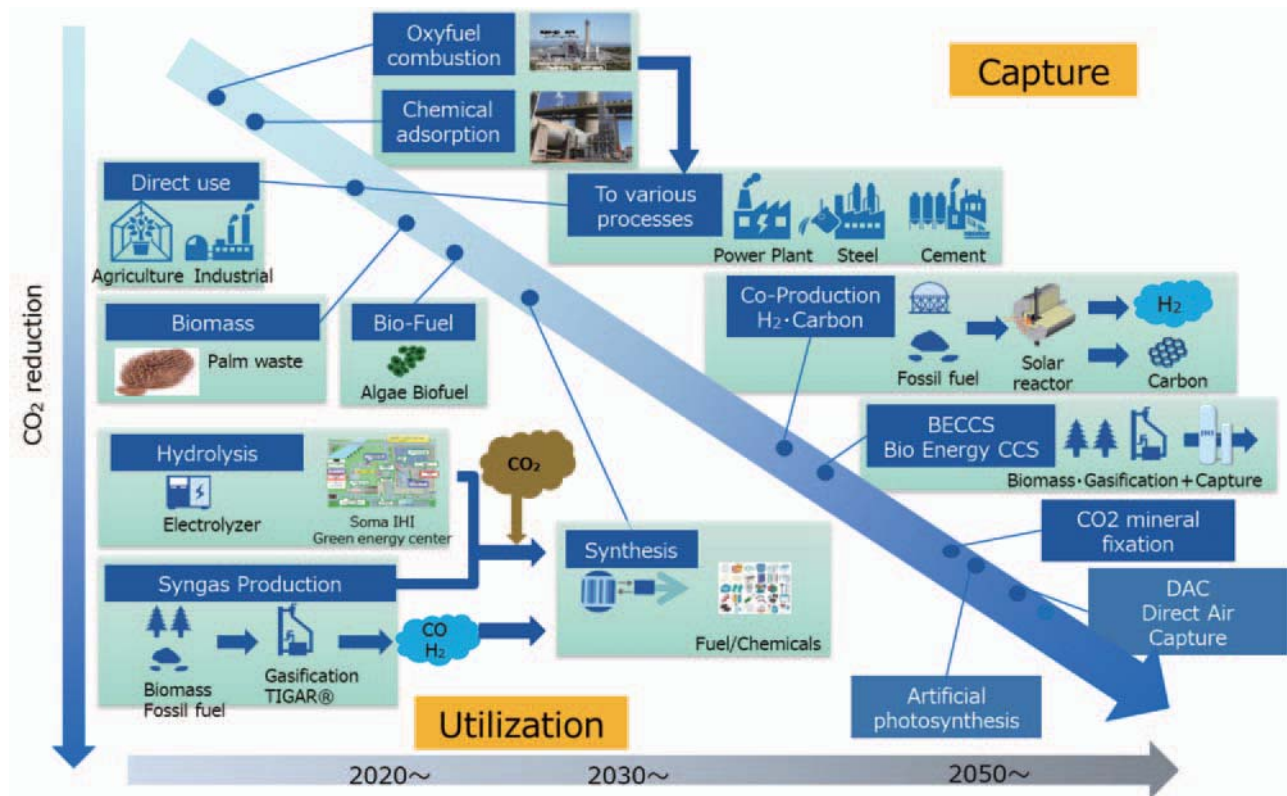
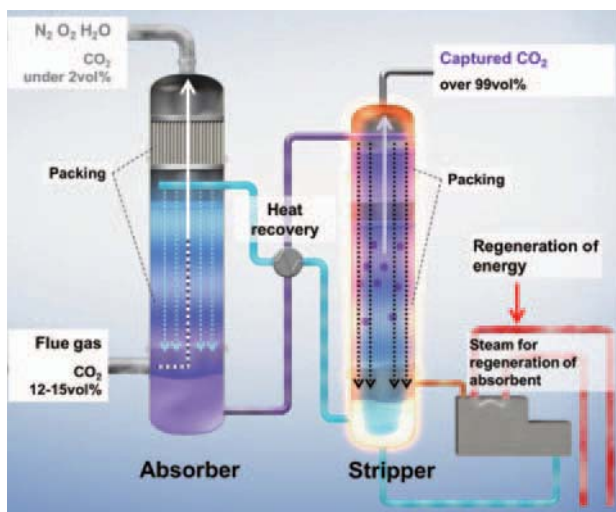
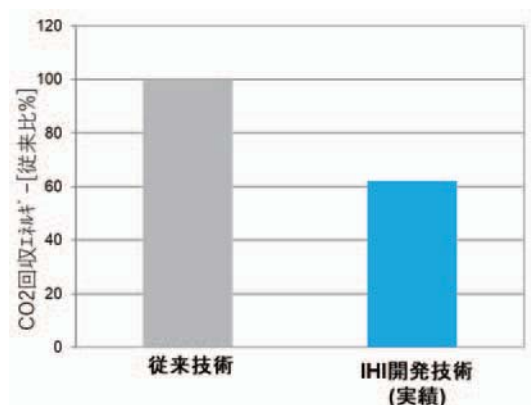


Fig. 1 Roadmap for Research & Development of CCU technology in IHI

Fig. 2 CO₂ capture process by chemical adsorptionFig. 3 Cost composition ratio of CO₂ capture process

塔の内部には充填材が入っている。

CO₂の分離・回収技術において、「放散塔における吸収液の加温エネルギー（再生エネルギー）の消費」が、全体コストの約半分を占め、経済的に大きなインパクトを与えていることが課題であった。CO₂回収コストの構成比^{*1}をFig. 2に示す。そこで、IHIでは、吸収液・充填材・プロセスを改良し、再生エネルギーの低減技術を開発した。その結果、従来プロセスから約40%のエネルギー低減ができること、約2.5GJ/ton-CO₂にまで低減可能であることを示した（Fig. 4）。



NEDO「省エネ技術革新プログラム」の支援のもと、更なる省エネ技術の開発を推進(2015～2017年度)

Fig. 4 Comparison of energy in CO₂ capture process

4. 再生可能エネルギーによるH₂製造技術

CO₂を有価物である炭化水素に変換するためには、H₂が必要である。従来のH₂製造プロセスでは、主に天然ガス（CH₄）などの化石資源の改質（以下に示す反応）により製造されており、「水素利用≒CO₂の排出」につながることが懸念されていた。



この対策として、太陽光発電や風力発電などの再生可能エネルギー（再エネ）由来の電力で、水の電気分解（水電解）を行なうことでCO₂フリーのH₂を製造する技術が期待されている。



IHIでは、地域の再エネ最大利用を目指し、太陽光発電・蓄電池・水電解による水素製造装置、燃料電池などを整備した「そうまIHIグリーンエネルギーセンター」を開設し、再エネ利用および水素利用の実証研究を行っている。そうまIHIグリーンエネルギーセンターのイメージ図をFig. 5に示す。太陽光発電による電力は地域の下水処理場に供給・地産地消されており、余剰の電力は蓄電池およびH₂製造に回すことで、天候によって変動する電力を最大限に活用する実証研究、水素利用の研究開発を行っている。

5. CO₂の有価物合成～メタネーション技術～

分離・回収したCO₂の利用技術の一つとして、CO₂を触媒の存在下でH₂と反応させて、燃料であるメタン

（CH₄）を製造する技術がメタネーション（CO₂メタネーション）である。反応式を以下に示す。



$$\Delta_r H_{298}^0 = -165 \text{ kJ/mol}$$

化石燃料利用（例えば火力発電所や製鉄所、工場など）により発生したCO₂を、再エネ由来のH₂と反応させることでメタンガスに変換し、既存の都市ガスパイプラインへ導入すれば、一般家庭や工場などで広くCO₂を削減することが可能となり、炭素循環に一步近づくことが可能となる。

この研究・開発を加速するため、2011年よりシンガポールA*STAR（科学技術研究庁）傘下の化学工学研究所ICES（Institute of Chemical and Engineering Sciences）と共同研究を始め、高活性で長寿命な触媒を開発した*2,3。

メタネーション反応は前述した反応式に示すように、発熱反応である。従来のメタネーション反応は、反応により触媒層が高温になり、高温の条件において触媒が急激に劣化・活性低下することが課題であった。

そこで、ICES-IHIでは、活性金属であるNiをSiO₂の担体内に高分散させたコアシェル型触媒を開発し、高温下による触媒劣化に耐性を持った触媒を開発した。

開発した触媒の電子顕微鏡写真およびイメージ図をFig. 6に示す。数nm程度の細かいNi金属の粒子がSiO₂の担体に保持された構造となっている。メタネーション反応後の触媒の電子顕微鏡（TEM）写真をFig. 7に示す。

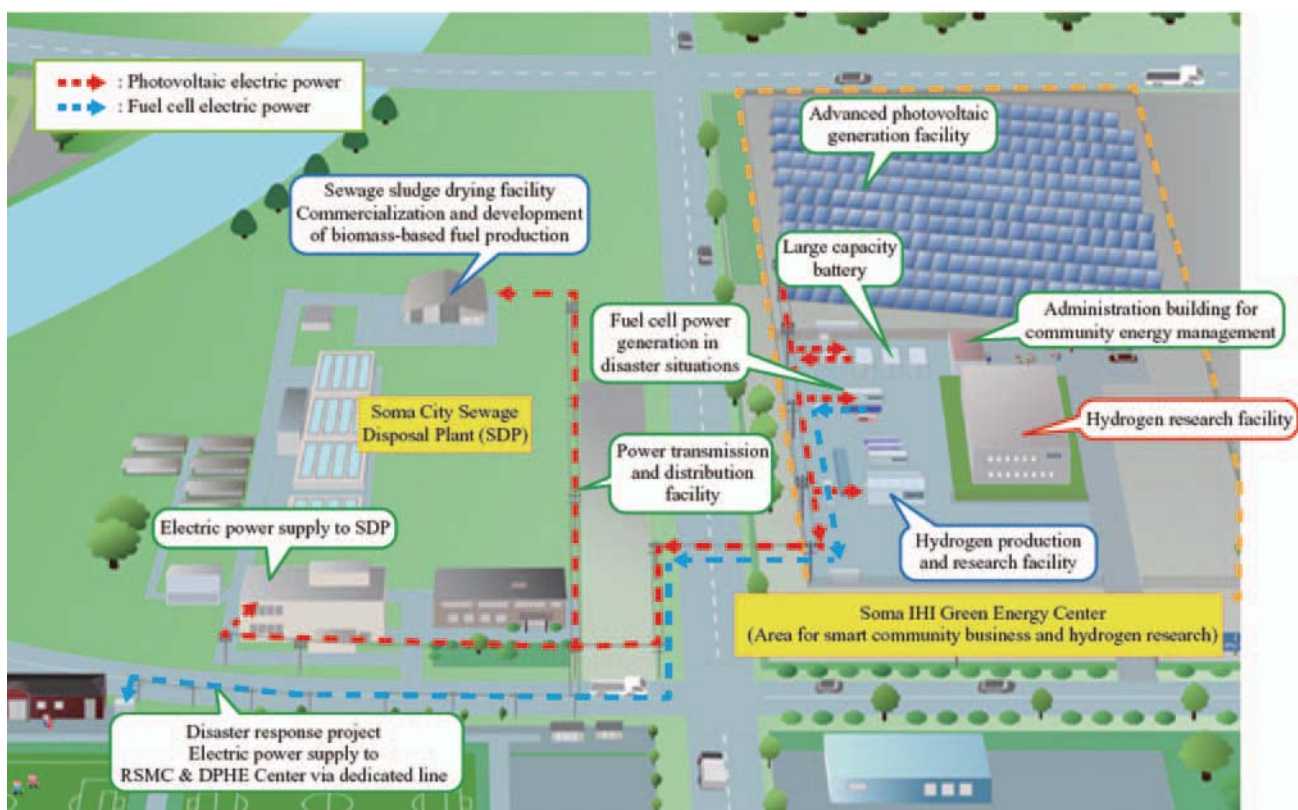


Fig. 5 The Soma IHI Green Energy Center

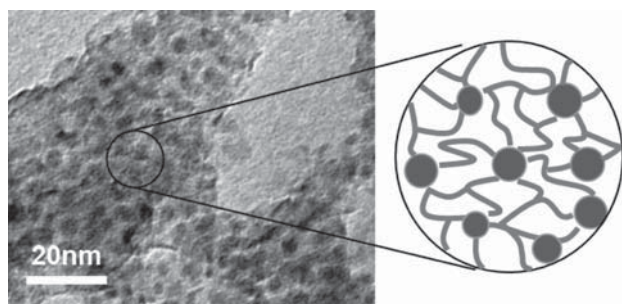


Fig. 6 ICES-IHI methanation catalyst

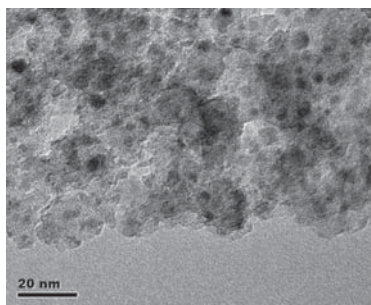


Fig. 7 ICES-IHI methanation catalyst (After reaction)

メタネーション反応後もNi金属粒子は細かい状態を維持しており、高温条件におけるNi粒子の凝集・シンタリングを抑制することができたと考えている。

本触媒を用いたメタネーション反応の連続反応試験結果をFig. 8に示す。小型の電気炉に本触媒を充填し、長時間のメタネーション試験を行なった結果、本触媒は3000hの間、ほとんど劣化が見られず、安定した活性を示すことを確認した。

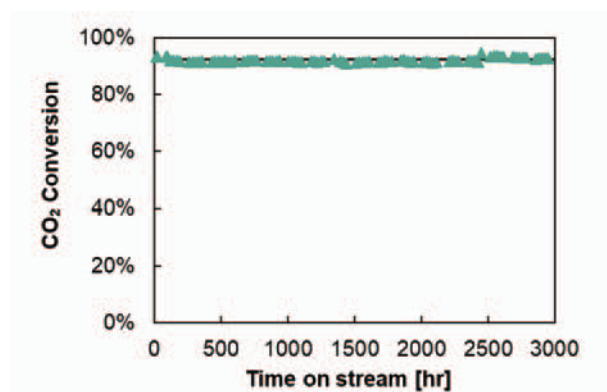


Fig. 8 Continuous test of methanation catalyst

また反応ガス中に被毒物質である硫黄成分（硫化水素：H₂S）を添加した被毒試験の結果をFig. 9に示す。比較として、メタネーションの商用触媒の結果を併記する。比較的高濃度 1 ppmのH₂Sを供給した試験であり、市販触媒は、急激な劣化が見られたのに対し、ICES-IHI触媒は、市販の触媒と比較して、触媒活性が維持されていることを確認した。Ni金属の粒子が高分散される

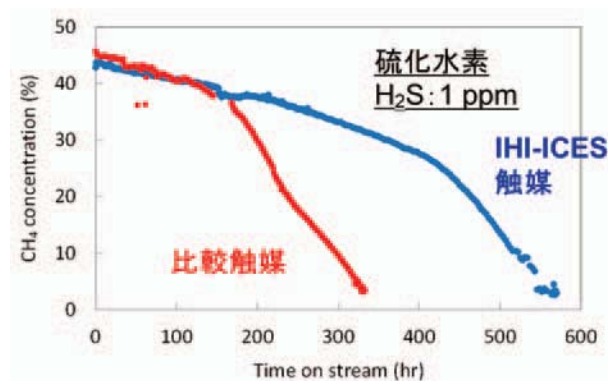


Fig. 9 Poisoning test of methanation catalyst

ことで、被毒物質である硫黄成分による劣化を抑制できたためと考えている。

メタネーション技術は、IHI横浜工場内の試験装置でこの触媒のさらなる評価を終え、2020年度にCO₂フリー水素を活用した研究を推進している「そうまIHIグリーンエネルギーセンター」にて、実証試験（Fig. 10）を行なっている。太陽光発電由来の電気によるCO₂フリー水素を利用したメタネーション実証は、国内最大級の規模である。本試験装置で装置の性能・スケールアップ技術を確立し、お客さまに脱CO₂ソリューションの提案を行なっていく。

6. CO₂の有価物合成～オレフィン合成技術～

IHIではCO₂とH₂を利用した次の有価物合成技術として、オレフィン合成技術の研究開発も行なっている。

エチレンやプロピレンなどの二重結合を持った直鎖の炭化水素（低級オレフィン）はプラスチックやフィルムなどの化学製品の原料である。

現在のプラスチックの原料であるオレフィン（重油）を分留して得られるナフサ（軽質油）をナフサクラッカーで分解することで製造され、それぞれの化学工場に供給されている。いわゆる化石資源由来の物質である。

本技術により、排ガスから回収したCO₂から合成したオレフィンを、化石原料由来のオレフィンの代替として、利用することができる。つまり、オレフィン化技術もメタネーション技術と同様に、既存のインフラを大幅に改造することなく、製品のCO₂フットプリントを下げるのが可能であり、トータルのCO₂削減に貢献できる。

CO₂からオレフィン類を製造する方法について、Fig. 11に示す。①水性逆シフト反応を利用して反応性の低いCO₂を一旦COに変換してから使用する方法（FT方式）、②メタノールやジメチルエーテル（DME）を経由して、それらを脱水する方法（MTO法）、③CO₂を直接水素化する方法などが挙げられる。IHIでは、③CO₂を直接水素化する方法に属する技術として、Fe系ナノ触媒を使いCO₂を一段で水素化して低級オレフィンを合成する方法（CO₂-FTO:フィッシャー・トロプシュ オレフィン化反応）の開発を進めている。この方式では、COやメ



Fig. 10 Methanation bench test facilities

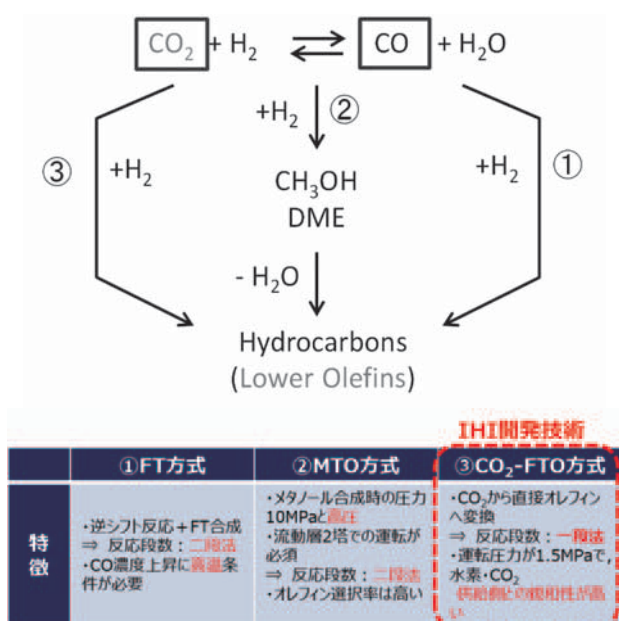


Fig. 11 Olefin Production Process and Characteristics

タノール等を経由することなく、CO₂から直接低級オレフィンを合成することで、設備や運転費用を大幅に低減することが可能であると考えている。なお本触媒についても、メタネーション触媒同様にICESと共同で開発を進めている。

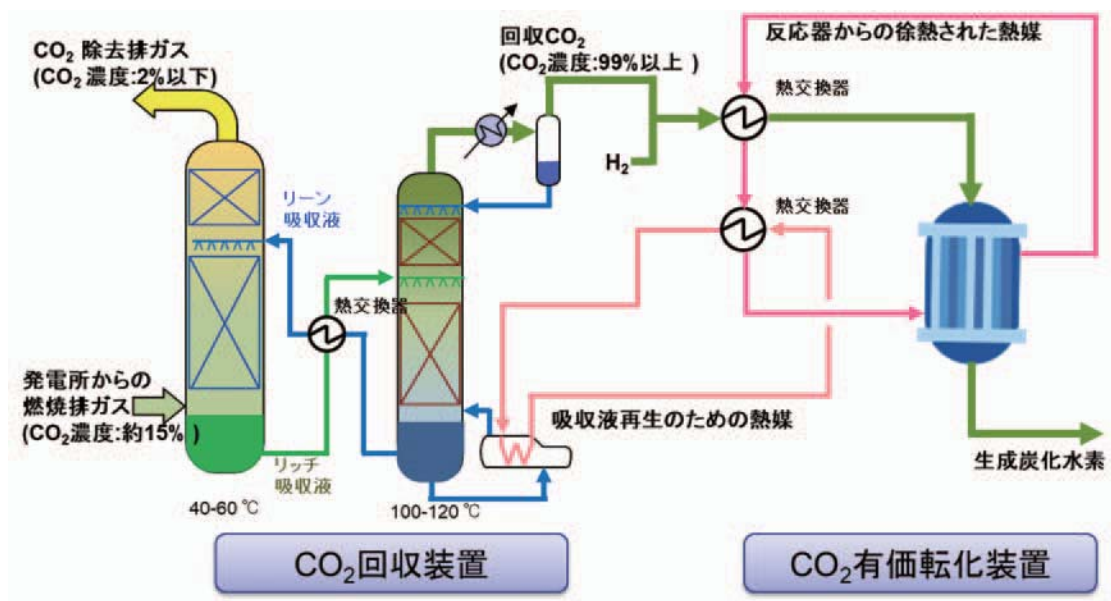
7. CO₂回収とメタネーションの組合せ

CO₂分離回収システムとメタネーションシステムの組合せによる熱利用について以下に述べる。

前述したIHIのCO₂分離回収システムでの再生に必要なエネルギーは2.5GJ/ton-CO₂であり、これをCO₂ 1 molあたりに換算すると110kJ/mol-CO₂に相当する。一方、メタネーション反応の反応熱は、CO₂ 1 molあたり165 kJの熱が発生する。

従って、IHIのCO₂回収装置とメタネーション装置を融合させることで、実質的に外部からの熱（蒸気）を必要としないプロセスが可能となり、プロセス全体の効率化、大幅な運転コストの低減が可能となる。CO₂回収プロセスと有価物変換プロセスを組み合わせたシステムをFig. 12に示す。熱利用を最適化することで、更なる省エネ・CO₂の削減に貢献できると考えている。

なお、水素製造にも熱エネルギーを利用するプロセスがある。CO₂回収・水素製造・有価物変換の全体プロセスの中で熱エネルギーを効率的に利用することで、さらなる低コスト化も期待できる。

Fig. 12 Combination of CO₂ capture and conversion technologies

8. まとめ

IHIグループでは、CO₂の回収技術（CO₂ Capture）だけでなく、水素を効率的に製造する技術、またCO₂と水素との反応により有価物に変換する技術（Utilization）の開発を行なっている。CO₂回収・水素製造・有価物変換を組み合わせたCCU技術を用いることで、従来排出されていたCO₂を有価物に変換することが可能となり、炭素循環型社会への実現に繋がると考えている。これらの技術を用いて、社会およびお客さまに脱CO₂ソリューションの提案を行なっていく。

参考文献

- (1) 新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）平成14年度調査報告書「地球温暖化対策技術開発に関する調査 二酸化炭素分離・回収技術に関する調査研究」
- (2) H. Kamata et al., Dispersed and high loading Ni catalyst stabilized in porous SiO₂ matrix for substituted natural gas production, Catalysis Today, Vol. 299, (2018.1), pp. 193-200.
- (3) Methanation Catalyst, US 9,802,872

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

カーボンリサイクル技術によるメタノール合成

Methanol Synthesis by Carbon Recycling Technology



中村 功^{*1} 藤谷 忠博^{*1}
NAKAMURA Isao FUJITANI Tadahiro

キーワード：カーボンリサイクル，二酸化炭素，水素化，メタノール合成，触媒

Key Words：Carbon recycling, Carbon dioxide, Hydrogenation, Methanol synthesis, Catalyst

1. 緒言

近年，世界各地で熱波や集中豪雨といった異常気象といわれる自然災害が頻発しているが，これらは地球温暖化と密接な関係があると考えられている。地球温暖化の原因となっているガスには，二酸化炭素（CO₂），メタン，一酸化二窒素など様々なものがあるが，中でもCO₂は最も温暖化への影響度が大きいガスとなっている。

そのため，CO₂排出量の削減を目指し，低炭素燃料の使用，省エネルギー化，再生可能エネルギーの導入，CO₂を地下に固定化するCO₂回収・貯蔵（Carbon dioxide Capture and Storage: CCS）およびCO₂の回収・有効利用（Carbon dioxide Capture and Utilization: CCU）など様々な取り組みが行われているが，中でも我々は，炭素循環型社会の構築につながるCCUに着目し，現在研究に取り組んでいる。

CCUは，大きく「直接利用」と「カーボンリサイクル」の二つに分けられる。直接利用としては，主に液化炭酸ガスやドライアイスとして使用される。一方，カーボンリサイクルでは，CO₂を回収し，多様な炭素化合物として再利用する。すなわち，カーボンリサイクルでは，CO₂を炭素資源として再利用することで，資源の安定的な確保につなげるとともに，大気中に存在するCO₂が，今以上に増えも減りもせずに，CO₂の循環バランスがとれた，いわゆるカーボンニュートラルな状態を実現することが可能となる。

本報では，CCUの根幹を成す「カーボンリサイクル」の技術についてまとめるとともに，カーボンリサイクルを推進する上で，需要が多く，大幅なCO₂削減が期待できる基礎化学品製造技術の一つであるCO₂の水素化によるメタノール合成に関して，これまでに我々が取り組んできた研究開発の内容について紹介する。

2. カーボンリサイクル技術

資源エネルギー庁は，CO₂の分離・回収の効率化，燃料や化学品としての再利用，植物工場での活用などを通じて，大気中へのCO₂排出の抑制を効果的に推進するために，2019年2月にカーボンリサイクル室を設置した。同年6月には，経済産業省を中心にカーボンリサイクル技術のロードマップ⁽¹⁾が取りまとめられ，日本は，CCUに本格的に取り組んでいくことになった。このロードマップでは，以下に示す技術の研究開発を効率的に推進し，新しいエコシステムを構築するための方針を示している。

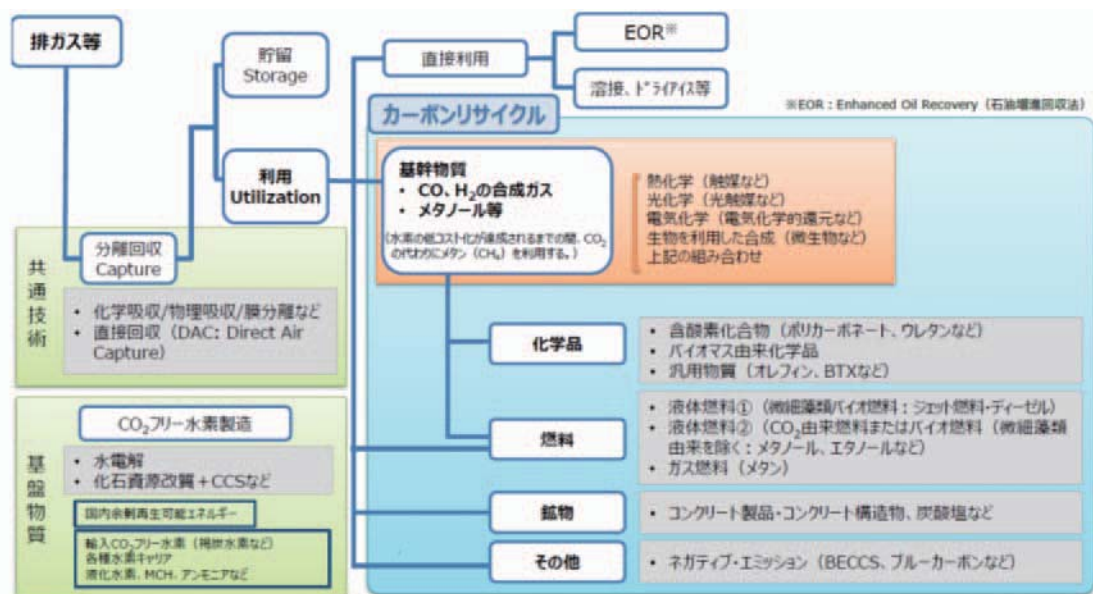
- ・CO₂の回収コストの低減
- ・CO₂を素材・資源に転換する技術の開発（化学品，燃料，鉱物等）
- ・炭素由来の化学品・資源等の用途開発

具体的に，カーボンリサイクルの要素技術としてまとめられたものをFig. 1に示す。カーボンリサイクルの主要技術としては，まず始めに触媒や電気化学を利用して，CO₂を合成ガス（CO+H₂）やメタノールなどの基幹物質を合成し，その後，様々な化学品や燃料に変換する方法が示されている。その他には，基幹物質を経由せずに直接燃料を合成する方法やCO₂を吸収させたコンクリートの製造などの技術が示されている。

カーボンリサイクル技術ロードマップの中で提示されているCO₂変換に対する詳細なフローをFig. 2に示す。炭酸塩への直接変換やポリカーボネート・ポリウレタンなどの機能性化学品の製造に加え，水素と反応させることにより，メタンやメタノールを合成し，そこからさらにディーゼルやガソリン，ジメチルエーテル（DME）の燃料やベンゼン・トルエン・キシレン（BTX）など様々な化学品に変換されるルートが示されている。特に，CO₂の水素化により生成させるメタノールは，CO₂を多岐にわたる化学品や燃料に変換する利用技術の一つと

原稿受付 2021年3月5日

*1 国立研究開発法人 産業技術総合研究所
〒305-8565 つくば市東1-1-1
E-mail: t-fujitani@aist.go.jp

Fig. 1 Elemental technology for effective use of CO₂⁽¹⁾

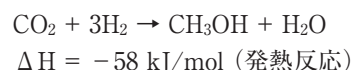
なっており、大量のCO₂の削減が期待できる重要な基幹物質として位置づけられていることがわかる。

3. 二酸化炭素の水素化によるメタノール合成

約30年前の1990年に、NEDO事業「石油代替エネルギー等の輸送技術に関する調査」が実施された。ここでは、「エネルギー源の多様化による安定構造の供給」および「地球環境問題への最大限の対応」という2つの目標のもと、海外クリーンエネルギー輸送という構想が検討された。この中に、カーボンリサイクルの構想がすでに検討されている。すなわち、国内で排気ガスからCO₂を分離・回収し、再生可能エネルギーの豊かな国にCO₂を輸送する。そこで、再生可能エネルギー電力を利用した水素から、エネルギー輸送媒体として一番経済性に優れているとされるメタノールを合成し、その後、メタ

ノールを国内に輸送して利用するエネルギーサイクルシステム (Fig. 3) である。これは、メタノールを介して、海外の再生可能エネルギーを輸入しているともいえる。また、Olahらは、メタノールを基幹物質としたカーボンリサイクルを推進すべく、「Beyond Oil and Gas: The Methanol Economy」を2006年に著している⁽²⁾。これもまた基本構想は同じである。

このエネルギーサイクルシステムの中で、重要なプロセスの一つが、CO₂と水素からメタノールを合成する過程である。この反応は次式で示される。



この反応式より、熱力学的には、低温・高圧のほうが有利であるが、現在では、触媒を用いて反応速度を考慮し、一般的には、温度200–300℃、圧力5–12 MPaで行われている。次章では、この反応に用いる固体触媒の開発を行ってきた我々の研究成果の一部を紹介する。

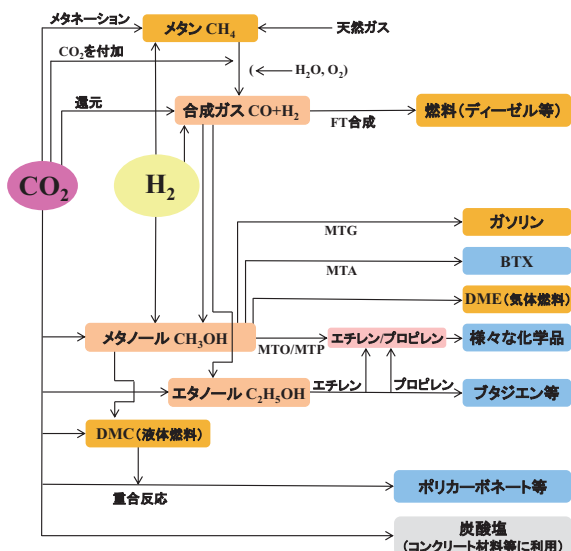
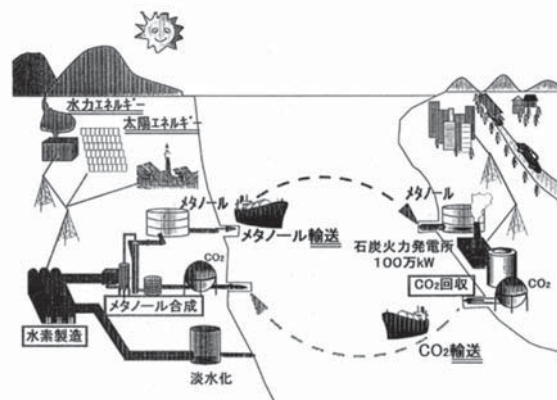
Fig. 2 Route of CO₂ conversion⁽¹⁾

Fig. 3 Concept of carbon recycling by utilizing methanol

4. メタノール合成触媒の開発と実証試験

CO₂の水素化によるメタノール合成反応に対して、Cu/ZnO系触媒が優れた特性を示すことがよく知られている。この反応は、触媒表面上でのCO₂の活性化と水素化の素反応を含むが、活性部位と反応機構に関してはまだ不明な点がある。

本章では、Cu/ZnO系触媒上でのCO₂水素化によるメタノール合成反応の活性サイトに関する我々のこれまでの研究結果の一部を示すとともに、得られた基礎的知見に基づいて行われた、触媒性能の改善および触媒プロセスの開発に関する研究成果を述べる。

4.1 触媒作用機構の解明

これまでに、メタノール合成の触媒作用機構に関する広範な研究が行われてきたが、活性サイトとZnOの役割については完全には理解されていない。これらの課題を明らかにすることを目的として、我々はまず始めに、物理的に混合したCu/SiO₂触媒とZnO/SiO₂触媒中のZnOがメタノール合成活性に及ぼす影響を調べた⁽³⁾。具体的には、Fig. 4に示すように、粒子径の異なるCu/SiO₂（小粒子）とZnO/SiO₂（大粒子）を様々な比率で物理混合して、種々の温度で水素還元処理を行った後、ZnO/SiO₂をふるい分けにより取り除き、Cu/SiO₂の触媒活性を測定した。

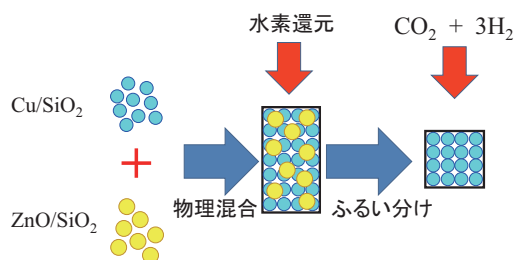


Fig. 4 Preparation of physically-mixed catalyst

Cu/SiO₂のみ、および種々の比率で物理混合したCu/SiO₂とZnO/SiO₂を573–723 Kで還元してCO₂の水素化を行ったときのメタノール合成活性をFig. 5に示す。なお、メタノール以外の主な生成物は、逆水性ガスシフト反応により生成するCOとH₂Oであった。Cu/SiO₂触媒の活性は還元温度に関係なく一定であったが、物理混合触媒の活性は還元温度の上昇とともに増加した。また、活性の増加はZnO/SiO₂の含有割合が大きいほど顕著であった。723 Kで還元した物理混合触媒の活性は、Cu/SiO₂の活性よりも3倍高い活性となり、より高い還元温度がCuとZnOの間の相乗効果を高めることが示された。

還元温度による活性上昇の原因を調べるために、Cu/SiO₂と種々の温度で還元した物理混合触媒の結晶構造をX線回折法（XRD）により分析した。Fig. 6にCu/SiO₂および物理混合触媒中のCuの格子定数を還元温度に対してプロットしたものを示す。格子定数は、Braggの式を用いて、Cu(111)面のピーク位置から決定した。物理

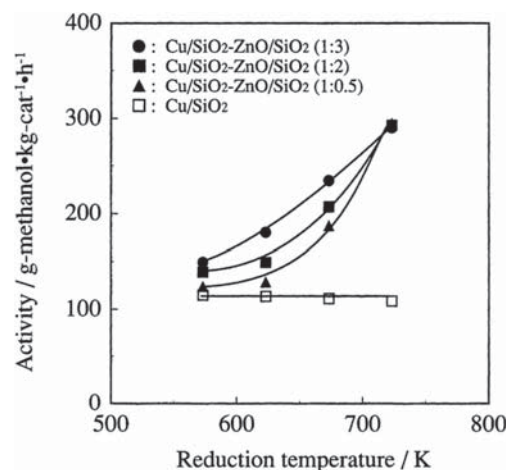


Fig. 5 Methanol synthesis activities of Cu/SiO₂ and Cu/SiO₂ + ZnO/SiO₂ catalysts as a function of reduction temperature⁽³⁾. Reaction conditions: 523 K, 5 MPa, H₂/CO₂ = 3, SV = 33,000 h⁻¹

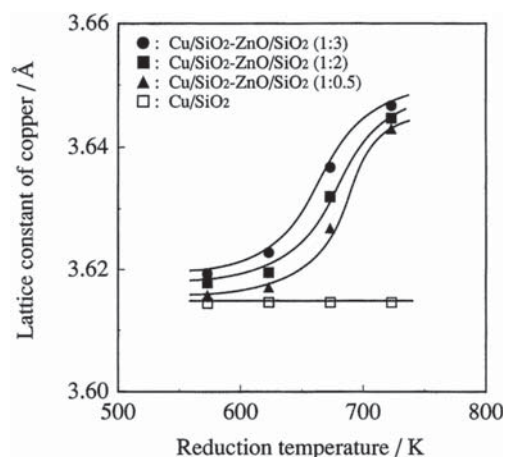


Fig. 6 Lattice constant of metallic copper in Cu/SiO₂ and Cu/SiO₂ + ZnO/SiO₂ catalysts as a function of reduction temperature⁽³⁾

混合触媒の格子定数は高温で還元することにより3.62から3.64 Åに増加したが、Cu/SiO₂中のCuの格子定数は変化しなかった。また、物理混合触媒に対する格子定数の増加はZnO/SiO₂の含有割合が大きいほど大きかった。これらの結果から、573 K以上の高温で物理混合触媒を還元することで、ZnOの還元によって形成されたZnがCuの表面上に移動し、その後、Cu粒子中に溶解することによってCu-Zn合金が形成したものと考えられる。723 Kで還元した物理混合触媒におけるCu粒子中のZnの平均含有量は、Cuの格子定数の値から、約13～15%と見積もられた。

これらのXRDの結果から強く示唆されたCu粒子上へのZnの移動を直接確認するために、物理混合触媒に対する元素分析を透過型電子顕微鏡（TEM）とエネルギー分散X線分光法（EDX）を組み合わせて行い、100 Åの分解能で局所サイトを調べた。Fig. 7およびFig. 8に、それぞれ混合前後に723 Kで還元したCu/SiO₂+ZnO/

SiO₂ (1 : 0.5) 物理混合触媒に対するTEM写真を示す。EDXによるスポットA-Gの元素分析の結果もあわせて載せた。Cu/SiO₂およびZnO/SiO₂粒子の分析は、各TEM測定に対して10サイト以上をEDXで測定することにより行った。

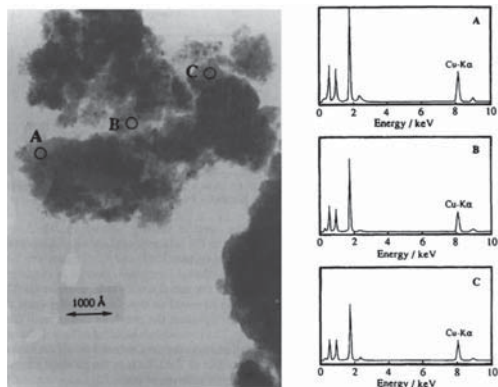


Fig. 7 TEM micrograph of physically mixed Cu/SiO₂ + ZnO/SiO₂ (1 : 0.5) after reduction at 723 K for 5 h, and EDX spectra of local points labeled A, B, and C on the micrograph⁽³⁾

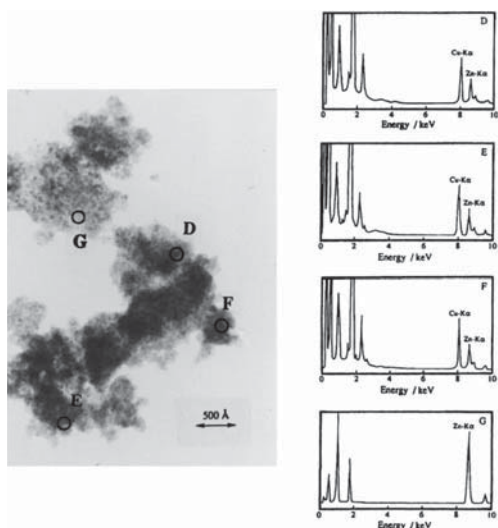


Fig. 8 TEM micrograph of physically mixed Cu/SiO₂ + ZnO/SiO₂ (1 : 0.5) reduced at 723 K for 5 h, and EDX spectra of local points labeled D, E, F, and G on the micrograph⁽³⁾

Cu/SiO₂とZnO/SiO₂を別々に還元した後に物理混合した触媒 (Fig. 7) では、スポットA, BおよびCにおいてCuは検出されたが、Znは検出されなかった。このことから、スポットA, BおよびCはCu/SiO₂粒子に相当し、Cu粒子上へのZnの移動は起こっていないことがわかる。また、ZnはZnO/SiO₂粒子上の異なる点で検出されたが、Znと結合するCuは検出されなかった。一方、Cu/SiO₂とZnO/SiO₂を物理混合した後、還元処理を行った触媒 (Fig. 8) では、スポットD, EおよびFにおいてCuとZnが観察された。この結果は、物理混合触媒の還元中にCu上へのZnのマイグレーションが進行している

ことを明確に示している。XRD, TEMおよびEDXを組み合わせた分析の結果、高温でのZnO還元により生成したZnがCu粒子の表面に移動し、ZnがCuのバルクに溶解してCu - Zn合金を形成し、それがメタノール合成の活性サイトを形成することが明らかとなった。Cu - Zn合金活性点の形成モデルをFig. 9に示した。

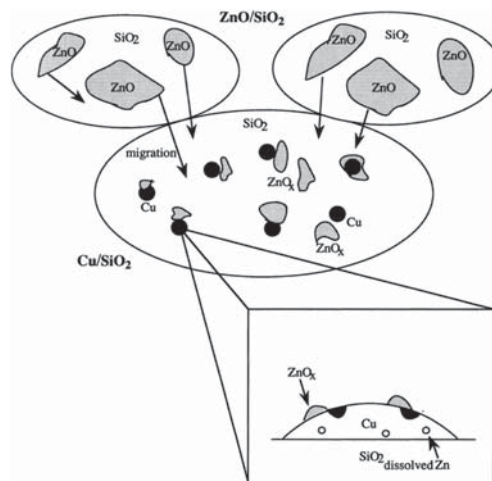


Fig. 9 Model of the active site for methanol synthesis over a physical mixture of Cu/SiO₂ + ZnO/SiO₂

4.2 高性能触媒の開発

得られた触媒活性点や反応機構に関する基礎的知見に基づいて、Cu/ZnO系触媒の性能を向上させるための検討を行った⁽⁴⁾。まず始めに、CO₂の水素化によるメタノール合成活性に及ぼすCu/ZnO系三元触媒 (Cu/ZnO/MxOy) に含まれる金属酸化物の種類の影響を調べた。その結果、Al₂O₃, Ga₂O₃, ZrO₂およびCr₂O₃がCu/ZnO触媒の活性を増加させることを見いだした。Fig. 10にCuの表面積に対する5-40 wt%のAl₂O₃, Ga₂O₃, ZrO₂, Cr₂O₃を含むCu/ZnO系三元触媒上でのメタノール合成活性を示す。Al₂O₃またはZrO₂を添加した触媒のプロットはCu/ZnO触媒のプロットと同一直線上に存在していることがわかる。したがって、Cu/ZnOへのAl₂O₃またはZrO₂の添加は、Cuの表面積、すなわち触媒中のCu粒子の分散性を向上させる効果があることがわかる。これに対して、Ga₂O₃またはCr₂O₃を添加した触媒の活性は、Cu/ZnO触媒の活性の延長線上にはないことから、これらの添加はメタノール合成の比活性、すなわちCu表面積当たりの活性を増加させる役割があることが明らかとなった。そこで次に、これらの知見に基づき最適な金属酸化物を選択することによって、Cu/ZnO系多成分触媒の設計を試みた。

調製された多成分触媒 (Cu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃およびCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃/Ga₂O₃)、Cu/ZnO/Al₂O₃触媒およびCu/ZnO触媒の活性を水素還元処理温度に対してプロットしたものをFig. 11に示す。この結果は、多成分触媒が三元または二元触媒よりも活性であることを明確

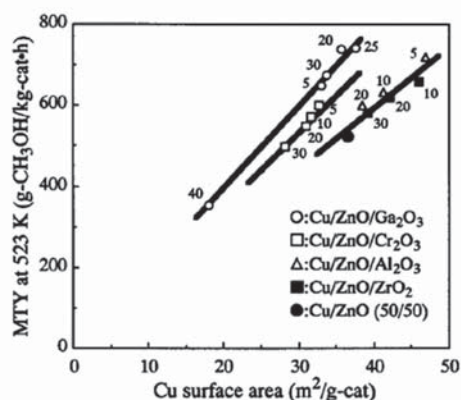


Fig. 10 Methanol synthesis activity (MTY) of various Cu/ZnO-based ternary catalysts as a function of copper surface area⁽⁴⁾. Catalysts and contents of metal oxides are indicated in the figure. Copper content of the catalysts was 50 wt%. Reaction conditions: 523 K, 5 MPa, $H_2/CO_2 = 3$, $F/W = 18,000$ ml-feed (g-cat h)⁻¹

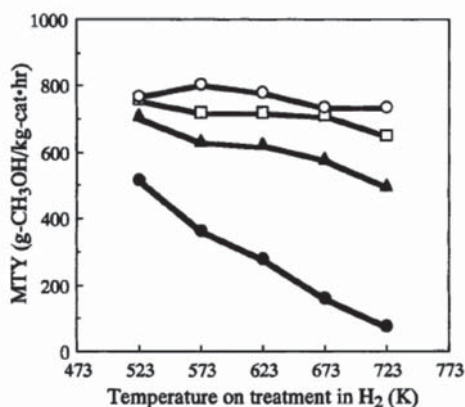


Fig. 11 Activities of various Cu/ZnO-based catalysts as a function of treatment temperature in the stream of hydrogen⁽⁴⁾. Catalyst: (○) Cu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃/Ga₂O₃, (□) Cu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃, (▲) Cu(50)/ZnO(45)/Al₂O₃⁽⁵⁾, (●) Cu(50)/ZnO(50). Reaction conditions as shown in Fig. 10

に示している。さらに、三元または二元触媒は還元温度が高温になるにつれて活性は低下するが、多成分触媒は723 Kで水素還元処理した後でも高い活性を維持し、その熱安定性が極めて高いことが示された。

メタノール合成反応中のCu/ZnO系多成分触媒の長期安定性を改善するために多くの研究が行われてきている。我々は、共沈法で調製した沈殿物にコロイダルシリカを吸着させて触媒中に少量のシリカを導入すると、長期安定性が大きく改善されることを見いだした (Fig. 12)。触媒を873 K付近の高温で触媒を焼成することは安定な活性を得るために重要である。873 Kで焼成したCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒 (シリカなし, Fig. 12の△) の活性は単調に減少し、500時間後でも安定にならなかった。これに対して、0.6 wt%のシリカを含むCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒を873 Kで焼成すると、メタノール合成反応開始後40時間で初期活性に対して10%低下したが、その後500時間まで活性の減少は観察されなかった (Fig. 12の○)。

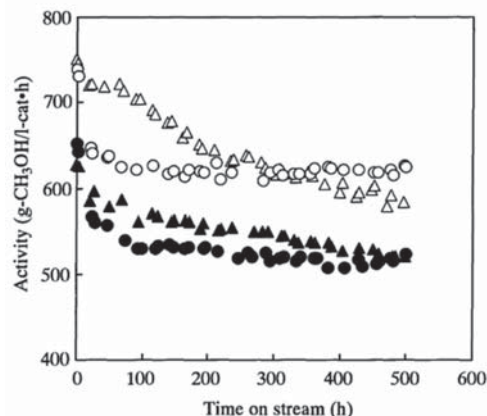


Fig. 12 Effect of small amount of silica added to a Cu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃ catalyst on long-term stability during methanol synthesis⁽⁴⁾. Catalyst: (△) without SiO₂, calcined at 873 K; (▲) without SiO₂, calcined at 623 K; (○) with 0.6 wt% SiO₂, calcined at 873 K; (●) with 0.6 wt% SiO₂, calcined at 623 K. Reaction conditions: 523 K, 5 MPa, $CO_2/CO/H_2 = 22/3/75$, $SV = 10,000$ h⁻¹

シリカを含まないCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒とシリカを0.6 wt%含む同触媒のXRDピークを調べた結果、シリカを含まない触媒ではZnOに帰属されるXRDピークは長時間の反応により大きく増加したが、シリカを0.6 wt%含む触媒ではほとんど変化しなかった。さらに、Cu/ZnO/Al₂O₃触媒の安定性に対するシリカの効果はCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒の場合と同様であったが、Cu/ZnO/Al₂O₃触媒の活性はCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒よりも約20%低かった。これらの結果は、メタノール合成における触媒の活性劣化は、触媒中に含まれる金属酸化物 (特にZnO) の結晶化による触媒表面積と露出Cu表面積の低下に起因することを強く示唆している。すなわち、触媒に添加したシリカが触媒中のZnOの結晶化を抑制し、CO₂と水素からのメタノール合成中の触媒の長期安定性を改善できることを明確に示している。

しかし、多量のシリカを添加すると、異なる結果が得られた。2.2 wt%のシリカを含むCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒の活性の初期低下は、0.6 wt%のシリカを含む触媒の場合よりもはるかに大きかった。さらに、2.2 wt%のシリカを含む触媒表面積は160時間のメタノール合成反応中に変化しなかったが、Cu表面積と活性は各々31%と38%減少した。これらの結果は、シリカがCu表面上に移動し、活性サイトをブロックすることにより、触媒の表面積は変化しないまま活性を大きく減少させたことを示唆している。触媒中のシリカの最適量を調べた結果、0.5から0.9 wt%であると求められた⁽⁵⁾。最終的に、0.6 wt%のSiO₂を含むCu/ZnO/ZrO₂/Al₂O₃触媒が少量の水とCH₃OHを含む供給ガスからのメタノール合成に対して、長期 (約1年) の運転に非常に安定であることを明らかにした。

4.3 ベンチプラントによる実証試験

共同研究先である地球環境産業技術研究機構の施設内に、開発された多成分触媒 ($\text{Cu}/\text{ZnO}/\text{ZrO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$) を用いた CO_2 と H_2 からの気相合成に対して、一日に約50 kgのメタノールが製造可能なベンチプラントが建設された (Fig. 13)。またFig. 13には併せて、固定床反応器を用いたプロセスの概略図も載せた。開発した多成分触媒の性能を実際の反応条件下で試験した結果、約9,000時間もの間、約600 ($\text{g-CH}_3\text{OH}/\text{l-cat h}$) の活性を維持できることが示され (Fig. 14)、高い活性と安定性を確認することができた。この結果は後に、民間企業において、 CO_2 からのメタノール合成プロセスの実証パイロットプラント (メタノール生産能力：約100トン/年) の建設につながった。

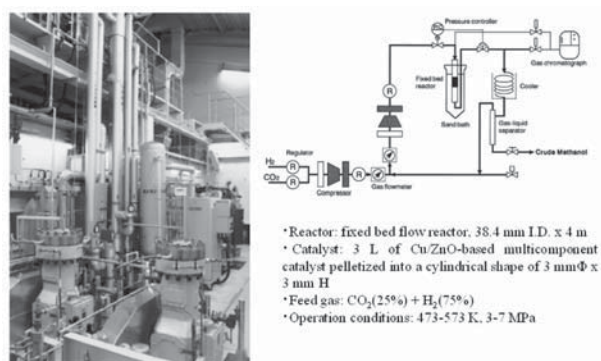


Fig. 13 Bench plant with a capacity of 50 $\text{kg-CH}_3\text{OH}/\text{day}$ for gas-phase methanol synthesis from CO_2 and H_2

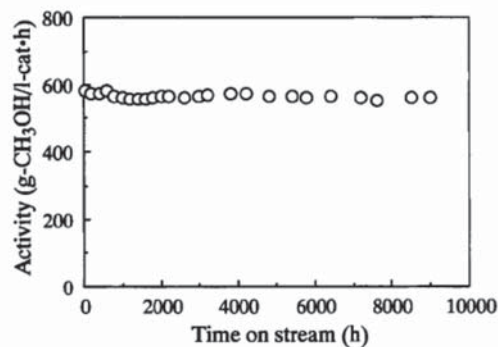


Fig. 14 The long-term stability of a $\text{Cu}/\text{ZnO}/\text{ZrO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ catalyst during methanol synthesis from a feed gas containing CH_3OH and H_2O ⁽⁴⁾. Reaction conditions: 523 K, 5 MPa, $\text{SV} = 10,000 \text{ h}^{-1}$, $\text{CO}_2/\text{CO}/\text{H}_2 = 22/3/75$, partial pressure of $\text{CH}_3\text{OH} = 11 \text{ kPa}$, partial pressure of $\text{H}_2\text{O} = 6 \text{ kPa}$

5. 今後について

CCUの根幹を成すカーボンリサイクル技術は、地球温暖化ガスとして問題視されている CO_2 の排出量を抑え、多くの資源を輸入に頼る日本にとって CO_2 を活用して、エネルギー・資源を循環させる未来につながる不可欠な技術である。その中で、主要技術の一つとして位置付けられる、触媒を活用した CO_2 の水素化によるメタノール合成プロセスの確立は重要である。

今後さらなる反応効率の向上を目指すためには、メタノール合成反応における熱力学的平衡の制約を受けにくい条件で反応を効果的に進行させる必要がある。そのため現在、平衡転化率の高い低温でのメタノール合成反応に対する新規触媒の開発⁽⁶⁾やメンブレンリアクターを用いて反応生成物を反応場から選択的に取り除き、平衡状態を変化させることによるメタノール収率の向上⁽⁷⁾などの検討が行われ始めている。

参考文献

- (1) 経済産業省, カーボンリサイクル技術ロードマップ <<https://www.meti.go.jp/press/2019/06/20190607002/20190607002-1.pdf>> (参照日2019年6月7日).
- (2) Olah G.A. et al., Beyond Oil and Gas: The Methanol Economy, Wiley-VCH (2006).
- (3) Kanai, Y. et al., The Synthesis between Cu and ZnO in Methanol Synthesis Catalysts, Catal. Lett., Vol. 38 (1996), pp. 157-163.
- (4) Saito, M. et al., Advances in Joint Research between NIRE and RITE for Developing a Novel Technology, Appl. Organometal. Chem., Vol. 14 (2000), pp. 763-772.
- (5) Wu, J. et al., Optimization of Preparation Conditions and Improvement of Stability of Cu/ZnO -based Multicomponent Catalysts for Methanol Synthesis from CO_2 and H_2 , Catal. Today, Vol. 45 (1998), pp. 215-220.
- (6) Shimizu K. et al., Heterogeneous Pt and MoO_x Co-Loaded TiO_2 Catalysts for Low-Temperature CO_2 Hydrogenation to Form CH_3OH , ACS Catal., Vol. 9 (2019), pp. 8187-8196.
- (7) 松方正彦, ゼオライト膜を用いたメタノール合成用膜反応器, ペトロテック, Vol. 40, No. 9 (2017), pp. 751-757.

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

2 MW級ガスタービンにおける液体アンモニア直接噴霧燃焼技術の開発 Development of Liquid Ammonia Direct Spray Combustion Technology for 2 MW-class gas turbine



内田 正宏^{*1}
UCHIDA Masahiro



伊藤 慎太郎^{*1}
ITO Shintaro



須田 俊之^{*2}
SUDA Toshiyuki

キーワード：アンモニア，ガスタービン，噴霧燃焼，窒素酸化物

Key Words：Ammonia, Gas Turbine, Spray Combustion, NO_x

1. 緒言

産業革命以降の温室効果ガス排出の増加による地球温暖化の影響により，温室効果ガスの削減が強く要求されている。電力供給に関連する分野では，太陽光や風力に代表される再生可能エネルギーの導入が急速に進んでおり，CO₂排出量の削減に貢献している。一方で，電力系統は常に需要と供給を一致させる調整が必要であり，系統の安定化には発電機等の回転体を接続し，慣性力により周波数を安定させる必要がある。このため火力発電は電力の安定供給に不可欠であるが，その中でもガスタービンは負荷変動への追従性に優れた特性を有していることから，今後も継続して利用されることが想定される。このガスタービンの燃料をカーボンニュートラルな燃料に転換することは，CO₂排出量の削減と電力系統の安定化に同時に貢献することとなる。

カーボンニュートラルな燃料の代表としては，水素が挙げられる。しかし，水素は燃焼性に優れたものの，その熱物性に起因して輸送・貯蔵が困難な特徴がある。そこで内閣府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⁽¹⁾では，水素を輸送するエネルギーキャリアとして，液体水素，メチルシクロヘキサン，アンモニアの三種類に着目し，有用性や課題の比較検討，関連する技術開発が実施された。この中でアンモニアは液化が容易で輸送や貯蔵に適しており，その技術が既に確立されている点に利点がある。また，アンモニアは可燃性があり直接燃焼可能であるため，脱水素化せずに炭化水素の代替燃料として燃焼させることができる利点もある。その一方で，アンモニアは有毒で燃焼性が低く，

燃焼時に窒素原子由来のFuel-NO_xを生成する特徴もある。これらアンモニア利用の課題を克服し，その利点を生かして燃料としての利用を促進するため，基礎燃焼特性の解明や燃焼技術の開発が進められている⁽²⁾。

アンモニアを発電用ガスタービンで利用する技術開発については，サイズの異なるガスタービンを対象として並行して開発が実施されている^{(3),(4)}。当社では，2 MW級ガスタービンを対象とした技術開発を実施しており，これまでにアンモニアを気化したアンモニアガスを天然ガスに20%混焼する技術開発を実施してきた⁽⁵⁾。しかし，CO₂排出量の削減に更に貢献するためには，より高いアンモニア混焼比率を達成する必要がある。そこで液体アンモニアを燃焼器内に直接噴霧して燃焼させる技術開発を実施している。本稿では，液体アンモニアおよびアンモニアガスによる燃焼方式の特徴や燃焼試験結果について紹介する。

2. 試験装置

2.1 アンモニア供給方式の特徴

アンモニアは常温の条件では約0.8MPaで相変化するため，燃焼器圧力が大気圧程度であれば，アンモニアガスを燃焼させることが通常となる。一方で，ガスタービンは加圧機関であり，燃焼器圧力は高压となる。一般的に，中大型ガスタービンでは燃焼器圧力が8気圧以上となるため，アンモニアを液体のまま安定して噴霧できると考えられる。このため，ガスタービンでアンモニアを直接燃焼する際の主要な供給方法としては，アンモニアガス方式と液体アンモニア直接噴霧方式の二つの方法が想定される。アンモニアガス方式では，アンモニアは比較的低温で容易に気化できる点に特徴がある。また，燃焼挙動に関しては蒸発潜熱の影響を受けないため，基礎燃焼特性の解明やガスタービンでの利用に向けた燃焼技

原稿受付 2021年3月8日

*1 (株)IHI 技術開発本部 技術基盤センター
E-mail: uchida7785@ihi-g.com

*2 (株)IHI 資源・エネルギー・環境事業領域 事業開発部

術開発が比較的容易であるという利点がある。一方で、気化設備等が必要であるため、混焼比率に応じてスケールアップや並列化等の設備増強が必要となる。また、設備の暖気に時間が必要であり、DSS (Daily Startup and Shutdown) 等の運用には不向きとなる。負荷変動への対応では、調整能力は気化器やアキュムレータの容量に依存するため、負荷変動応答性を求める場合には大型の設備が必要となる。これに対し、液体アンモニア直接噴霧方式では、供給能力はポンプサイズのみに依存するため、混焼比率に応じた流量調整が容易である。更に暖気が不要で起動時間が短いことやポンプの制御のみで負荷変動に対応できる特徴もあり、DSS運用や負荷変動調整で使用されるガスタービンに適した供給方法であると考えられる。一方で、燃焼器内で液体アンモニアが蒸発するため、局所的な火炎温度の低下による失火が懸念される。更に蒸発潜熱の影響によりタービンに流入する燃焼ガスの温度が低下し、ガスタービンの発電端効率が低下する可能性がある。

2.2 実証試験設備

ガスタービンを利用した実証試験設備のシステムフロー概略図をFig. 1に示す。本設備は、2MW級ガスタービン、都市ガスコンプレッサ、アンモニア供給装置、脱硝装置から構成される。アンモニア供給装置については、比較のためアンモニアガス供給系統、液体アンモニア供給系統を併記した。

アンモニア供給装置は、液体アンモニアを貯蔵するアンモニアタンク、液体アンモニアを昇圧するためのポンプ、アンモニア気化器およびアキュムレータから構成される。液体アンモニア昇圧用ポンプは、アンモニアガス供給系統、液体アンモニア供給系統で共用しているが、

液体のまま圧縮を行うことにより少ない圧縮動力で作動できる利点がある。アンモニアガス供給系統では、液体アンモニアを昇圧し、流量調整を行って気化器に供給し、液体アンモニアを気化させる。気化後のアンモニアは、供給圧力を安定させるためのアキュムレータを通してガスタービンに供給される。アンモニアガス供給系統では、アンモニアを気化させるための熱源が必要である。本装置では約2 MPaに昇圧した液体アンモニアを気化するため約350Kの温水を利用している。また、気化器下流のアンモニアガスは高温、高圧であるため、周囲への熱損失により温度が低下すると、再液化する可能性がある。そこで気化器下流の配管およびアキュムレータでは電気ヒータを利用して保温を行っている。ガスタービンにおけるアンモニアガス混焼の実証試験では、混焼率25%までの性能を取得した。この数値は気化器やアキュムレータの容量による供給量の上限によるものである。より高い混焼率を実現するためには、気化器やアキュムレータのスケールアップもしくは並列化による供給能力の増強が必要となる。この課題を克服するため、昇圧した液体アンモニアを直接燃焼器に供給し噴霧を行う液体アンモニア直接噴霧方式を採用した。この方法では、アンモニアガス方式で必要となる気化器、アキュムレータや保温が不要であり、よりシンプルな供給系となっている。液体アンモニア直接噴霧方式では、供給能力はポンプの能力のみに依存するため、大幅に混焼率を向上させることが可能となり、ガスタービン実証試験で混焼率70%までの条件における性能を取得した。アンモニアガスおよび液体アンモニアの流量調整系統については、気体および液体用のサーボ弁を使用した。アンモニアの利用では、シール構造や材質に注意が必要であるが、それぞれ既存

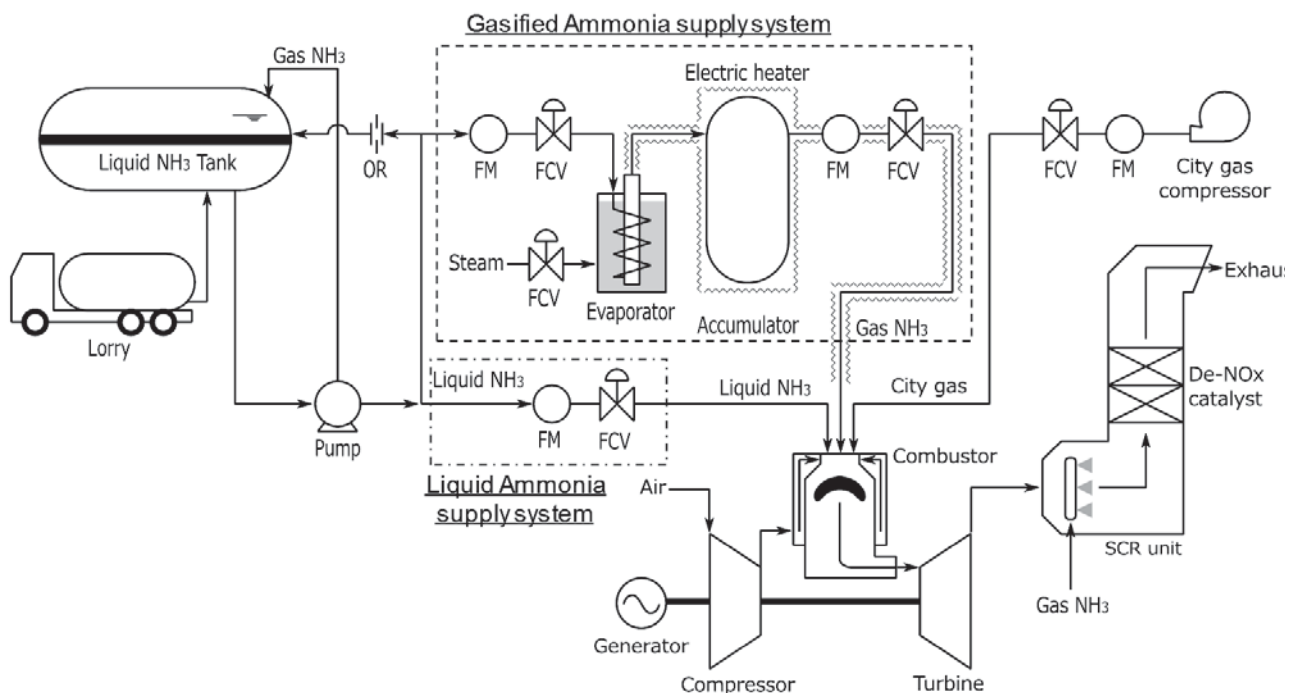


Fig. 1 System flow diagram

の商用バルブで対応が可能である。

実証試験に使用したガスタービンは2 MW級の(株)IHI製IM270ガスタービンである。ガスタービン本体については、新規開発要素となるのは燃焼器のみであり、コンプレッサおよびタービンは既存の商用機と同じものを使用している。燃焼器開発については、アンモニアは都市ガスと比較して燃焼性が低いこと、アンモニア中の窒素原子からFuel-NO_xが発生することから、安定燃焼の実現とNO_x排出量の低減を両立する燃焼器設計が要求される。このような条件を満たす燃焼方法としてリッチ・リーン二段燃焼方式が有効であることが確認されており⁽²⁾、この燃焼方式を2 MW級ガスタービン用燃焼器へ適用した。Fig. 2に燃焼器の概略図を示す。このガスタービンでは、ターンフロー型の単缶型燃焼器を採用しており、コンプレッサで圧縮された燃焼用空気はライナ外側の流路から供給される。この燃焼用空気のバーナとライナ希釈孔への流量配分を調整することにより、燃焼器の上流と下流での混合比を調整し二段燃焼を行う。燃料はすべて一段燃焼領域に供給しており、バーナの燃料ノズルから天然ガスを供給し、二次燃料ノズルからアンモニアを供給する構成とした。燃料供給方法の切り替えは、二次燃料ノズルの変更により実施し、液体アンモニア直接噴霧燃焼では二次ノズルの先端部を圧力噴射弁に変更し、液体アンモニアを微粒化して燃焼器内に噴霧した。液体アンモニア直接噴霧燃焼に固有の課題としては、アンモニアの発熱量が低いことに加え、蒸発潜熱の影響により局所的に火炎温度が低下する可能性がある点が挙げられる。特にアンモニアを液体燃料として利用すると、その重量あたりの蒸発潜熱と発熱量の比が灯油等の炭化水素系液体燃料に比べて大きいこと、火炎温度低下の影響が顕著になる可能性がある。このような条件でも安定燃焼を行い未燃アンモニアの排出を抑制する燃焼器設計が必要となる。このため燃焼器設計においてはアンモニアガス燃焼と液体アンモニア直接噴霧燃焼では最適な燃焼器設計が異なる可能性があるが、本報では、アンモニア供給方式の差異比較のため、同じ燃焼器構成で試験を行った結果について紹介する。燃焼器の開発では、ガスタービンに燃焼器を搭載して性能確認試験を行う前

に燃焼器試験リグを使用して性能確認試験を実施するのが一般的である。本開発においても、アンモニアガス燃焼と液体アンモニア直接噴霧燃焼について、それぞれ大気圧条件におけるリグ燃焼試験とガスタービンを利用した実証試験を実施した。大気圧リグ燃焼試験の条件は2 MW級ガスタービン燃焼器における燃焼条件を圧力比でスケールした条件とし、燃焼器内の空気速度および温度、燃焼器出口における火炎温度が同等になるように条件を設定した。大気圧リグ試験におけるエミッションは、燃焼器出口で燃焼ガスをサンプリングして分析し評価した。ガスタービンを利用した実証試験については、発電出力を2 MWに固定した条件で天然ガスとアンモニアの混焼比率を変化させ、性能測定を行った。ガスタービン試験におけるエミッションは、タービン出口で燃焼ガスをサンプリングして評価した。

脱硝装置については、アンモニアの燃焼によるNO_x排出量増加および排ガス規制値への対応のため、通常の天然ガス専焼ガスタービンよりも大きな処理能力が要求される。本試験設備では、既存の商用触媒を採用したが、大型化により能力強化を行った。また、脱硝剤にはアンモニアガスを利用し、Fig. 1に示すアンモニアガス供給システムとは別の低圧アンモニアガス供給システムを設置し供給した。

アンモニア燃焼の性能評価では、一般的な排ガス分析計で計測される排ガス成分以外に、未燃アンモニアや亜酸化窒素(N₂O)が排出される可能性がある。未燃アンモニアは悪臭防止法等で排出が規制される物質であり、その排出濃度は重要な性能評価項目である。また、N₂Oは排出規制ではNO_xに含まれるが、二酸化炭素の約300倍の温暖化係数を持つ物質であるため、アンモニア燃焼ガスタービンの温室効果ガス(以下、GHGとする)の排出量削減効果を正確に計測するためには、濃度測定が必須となる。そこで排ガス成分の評価では、NDIR(non-dispersive infrared spectroscopy)方式の分析計とQCL-IR(quantum cascade-laser infrared spectroscopy)方式の分析計を同時に使用して濃度計測を実施した。前者ではO₂、CO、CO₂、THC(Total Hydro Carbon)の濃度を計測し、後者ではNO、NO₂、N₂O、NH₃の濃度を計測した。

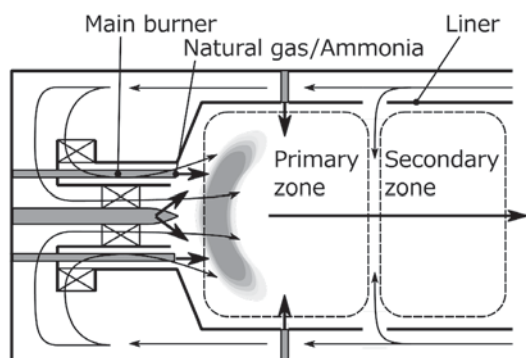


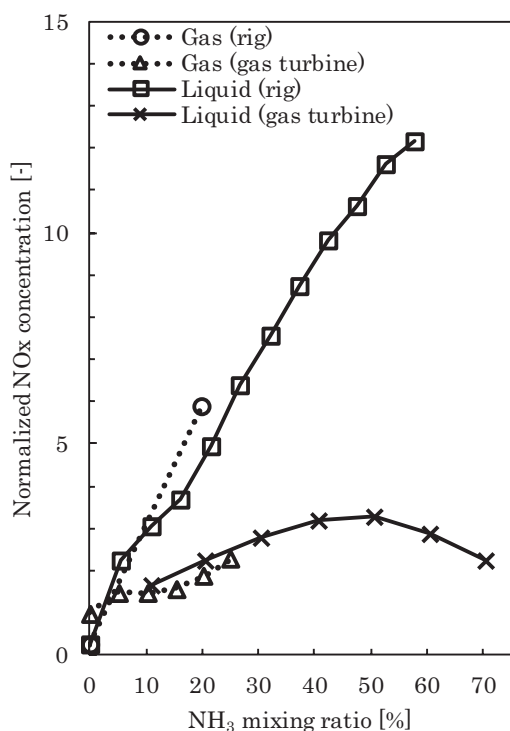
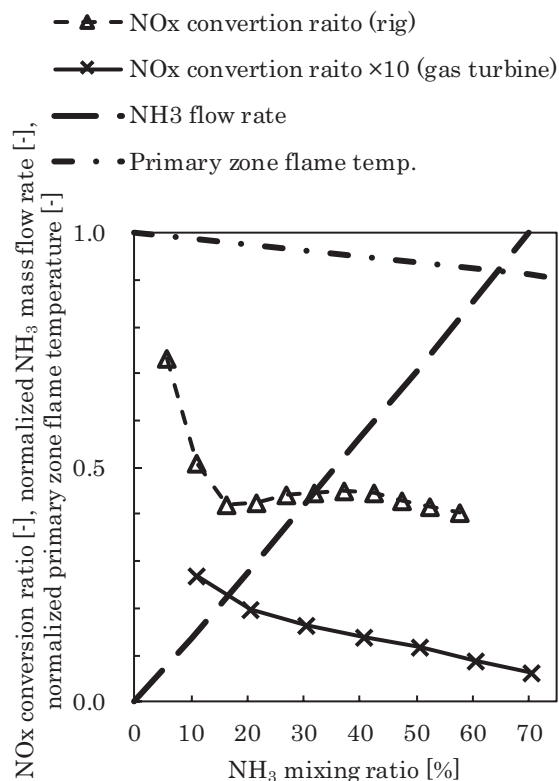
Fig. 2 Schematics of combustor

3. 試験結果

大気圧リグ試験およびガスタービン試験で得られたアンモニア混焼率と排ガス中のNO_x濃度の関係をFig. 3に示す。NO_x濃度は、NO、NO₂およびN₂O濃度の和であり、ガスタービン試験における天然ガス専焼条件、すなわちアンモニア混焼率0%の条件における排ガス中のNO_x濃度を基準として正規化して示した。ここでアンモニア混焼率は、低位発熱量から算出したアンモニアの投入熱量の全燃料(アンモニア+天然ガス)の投入熱量に対する比率として定義した。NO_x濃度は、全ての試

験条件において、アンモニア混焼率の増加により上昇する傾向にある。アンモニアガス燃焼と液体アンモニア直接噴霧燃焼の比較では、大気圧リグ試験、ガスタービン試験の両方でNOx濃度の差異は小さく、燃焼挙動に大きな違いは無いと考えられる。また、大気圧リグ試験とガスタービン試験の結果を比較すると、どちらのアンモニア供給方法においても、大気圧リグ試験のNOx濃度が高い傾向にある。大気圧リグ試験よりも燃焼器の圧力が高いガスタービン試験でNOx濃度が相対的に低いのは、先行研究⁽²⁾で確認されている反応経路の影響であり、高圧力条件ほど衝突失活等の影響によりラジカルや活性種の濃度が低下するためである。低混焼率の条件においては、アンモニアの供給方法が異なっても、リグ燃焼試験及びガスタービン試験におけるNOx濃度の変化は共通の傾向を示す。一方で、より高混焼率条件における液体アンモニア直接噴霧燃焼では、大気圧リグ試験では混焼率の増加によりNOx濃度が単調に増加するのに対し、ガスタービン試験ではNOx濃度が極大となった後に減少する傾向にあり、混焼率に対するNOx濃度の変化の傾向が異なっている。このような傾向の違いを分析するため、アンモニア混焼率とアンモニア供給量、NOx転換率、一次領域火炎温度を比較した結果をFig. 4に示す。それぞれの傾向比較のため、アンモニア供給量では100%アンモニア専焼における想定流量を基準とし、一次領域火炎温度は天然ガス専焼の条件を基準として無次元化して示した。また、NOx転換率は、燃焼器に供給したアンモニアからNOxに転換される量の割合として定義した。ここで実際に燃焼試験において排出されるNOxには、アンモニア由来のfuel-NOxと主に火炎の高

温部から排出されるThermal NOxがあるが、fuel-NOxが支配的であると考えてThermal NOxは無視している。大気圧リグ試験とガスタービン試験におけるNOx転換率を比較すると、二つの相違点がある。第一にNOx転換率は高圧条件となるガスタービン試験で低くなる。第二に、アンモニア混焼率に対するNOx転換率の変化は、ガスタービン試験では単調に減少する傾向にあるが、大気圧リグ試験では混焼率20%以上ではほぼ一定となる。NOx転換率が高圧条件で小さくなるのは、先述の圧力の影響によるものである。アンモニア混焼率に対するNOx転換率の変化は、燃焼器一次領域における火炎温度の影響を強く受ける。アンモニアの断熱火炎温度は天然ガスよりも低いため、一次領域火炎温度はアンモニア混焼率の増加により単調に低下し、火炎温度が低下するとアンモニア燃焼反応挙動の変化により、NOx転換率は低下する傾向にある。しかし、試験結果を比較すると、この火炎温度の影響は燃焼器圧力により異なり、低圧の大気圧リグ試験では燃焼器内のラジカルやNOxの濃度が非常に高く、温度の影響が小さくなっている。燃焼器へのアンモニア供給量はアンモニア混焼率に比例して増加するため、NOx転換率が混焼率20%以上で大きく変化しない大気圧リグ試験ではNOx濃度は単調に増加する。一方で、ガスタービン試験ではNOx転換率が単調に減少するため、NOx濃度が極大となる条件が発生する。このように大気圧リグ試験とガスタービン試験でアンモニア混焼率に対するNOx濃度の変化が異なる原因は、燃焼器圧力の違いによるものと考えられる。

Fig. 3 Effect of NH₃ mixing ration on NOx emissionFig. 4 Effect of NH₃ mixing ration on NOx conversion ratio and flame temperature

アンモニア燃焼の性能評価で重要となる未燃 NH_3 の排出の傾向を確認したところ、ガスタービンの高圧燃焼条件では未燃 NH_3 の排出が抑制されており、アンモニアガス燃焼の混焼率25%までの条件、液体アンモニア直接噴霧燃焼の混焼率60%までの条件では、計測下限以下の濃度であった。液体アンモニア直接噴霧燃焼では、混焼率70%の条件で少量の未燃 NH_3 の排出が確認されたが、その濃度は環境基準値以下であり、ガスタービン性能への影響は軽微であった。しかし、混焼率70%以上の更に高い混焼率条件で試験を実施した場合、燃焼挙動が悪化して未燃 NH_3 が急激に増加し、さらには失火する可能性もある。今後より高い混焼比率を達成し、最終的に100%アンモニア専焼を達成するためには、未燃 NH_3 の排出を抑制する燃焼器の開発が必要となる。

GHG排出量の低減効果をより定量的に評価するため重要となる N_2O 濃度の計測結果をFig. 5に示す。 N_2O 濃度は、最も高い結果となった液体アンモニア直接噴霧燃焼の混焼率70%の条件で正規化して示す。アンモニアガス燃焼の混焼率25%までの条件では、濃度は計測下限以下であった。一方で、液体アンモニア直接噴霧燃焼では、混焼率10%付近から微量の N_2O の排出が確認され、混焼率70%まで単調に増加する傾向が確認された。混焼率が低い条件で液体アンモニア直接噴霧燃焼の N_2O 排出量がアンモニアガス燃焼よりも大きくなるのは、燃焼器内で液体アンモニアが蒸発することにより火炎温度が低下し、 N_2O の生成しやすい火炎温度となる領域があることが原因であると考えられる。 N_2O 濃度は混焼率70%の条件で最大となるが、この N_2O 濃度の上昇によるGHG削減効果への影響は小さく、混焼率70%において68%以上のGHG削減効果が得られる結果となった。しかし、前述した未燃 NH_3 の排出と同様に、混焼率70%以上の条件における N_2O 濃度の増加の程度によっては、100%アンモニア専焼の達成に向け、 N_2O の排出を抑制する燃焼器の開発が必要となる可能性がある。

4. まとめ

ガスタービンにおけるアンモニアの燃料利用の拡大によるGHG削減への貢献を目標として、液体アンモニアを燃焼器内に直接噴霧燃焼する技術の開発を実施した。液体アンモニア直接噴霧方式では、アンモニアガス供給方式よりも供給系が簡略化でき、制御性が良い点がメリットとなる。ガスタービンを使用した実証試験の結果、アンモニア混焼率25%までの条件では、液体アンモニアの直接噴霧燃焼によっても、アンモニアガス燃焼とほぼ同等のエミッションで運転できることを確認した。液体アンモニア直接噴霧燃焼については、混焼率70%までの条件で性能確認を実施し、燃焼状態は良好であった。エミッションについては、高混焼率条件で僅かに未燃

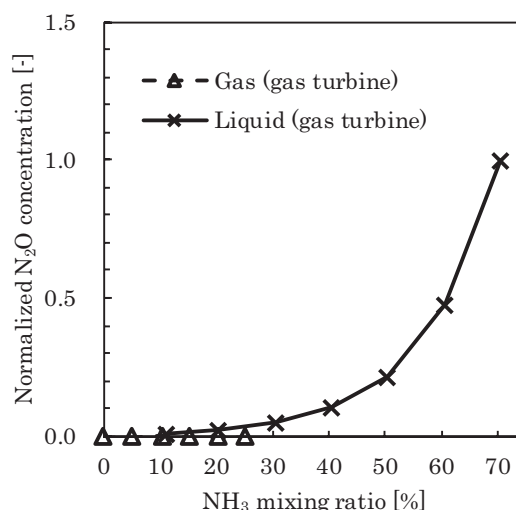


Fig. 5 Effect of NH_3 mixing ratio on N_2O emission

NH_3 と N_2O の排出が認められるが、排出基準値以下の濃度であり、環境への影響、ガスタービン運用への影響は軽微である。一方で、GHG削減に対する社会的要求はさらに強まりつつあり、ガスタービンからのGHG排出を0とする100%アンモニア専焼ガスタービンが将来的に求められる。このためには液体アンモニアをより安定に燃焼させ、エミッションを抑制する燃焼器が必要となる。今後は100%液体アンモニア専焼ガスタービンの実現を目指して更に開発を進めていく所存である。

謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務（JPNP16002）の結果得られたものです。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- (1) 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 終了報告書ウェブサイト、<<https://www.jst.go.jp/sip/k04.html>>（参照日2021年2月22日）。
- (2) Kobayashi, H., Hayakawa, A., Somarathne, K.D.K.A., Okafor, E.C., 37th Proc. Combust. Inst. (2019), pp. 109-133.
- (3) 新井啓介, 河野雅人, 久富直樹, 杉浦寛史, 安井芳則, 石脇史猛, 300kWアンモニア燃焼マイクロガスタービンの開発, 第47回日本ガスタービン学会定期講演会講演論文集, B-8 (2019).
- (4) 野勢正和, 荒木秀文, 仙波範明, 古市裕之, 谷村聡, 発電用大型ガスタービンにおけるアンモニア利用技術の開発, 日本燃焼学会誌, Vol. 61, No. 198 (2019), pp. 293-298.
- (5) 伊藤慎太郎, 内田正宏, 須田俊之, 藤森俊郎, 2 MW 級ガスタービンによるアンモニア/天然ガス混焼発電実証試験, 日本燃焼学会誌, Vol. 61, No. 198 (2019), pp. 289-292.

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

微粉炭火力におけるアンモニア混焼技術 – 電中研における取り組み – Ammonia Co-firing Technology in Pulverized Coal-fired Power Plant - Research Activities at CRIEPI -



本本 政義*¹
KIMOTO Masayoshi



小沢 靖*¹
OZAWA Yasushi



白井 裕三*¹
SHIRAI Hiromi

キーワード：微粉炭火力，アンモニア，混焼，窒素酸化物，二酸化炭素

Key Words：Pulverized Coal-fired Power Plant, Ammonia, Co-firing, Nitrogen Oxide, Carbon Dioxide

1. 緒言

次世代エネルギーとして期待される水素は，気体のままでは大量貯蔵や長距離輸送が難しいため，水素を含む化学物質（エネルギーキャリア）に変換して消費地まで運搬・貯蔵し，必要な時に最適な形でエネルギーに戻すシステムの構築が検討されている⁽¹⁾。エネルギーキャリアの一つであるアンモニアは，肥料原料や汎用化学品原料として大量に使用されており，水素と異なり極低温でなくても液化でき，輸送・貯蔵技術が確立されていることから，有望な候補となっている。このアンモニアを直接燃料として利用できれば，燃焼時にCO₂を排出しない「カーボンフリー」の燃料として取り扱え，日本国内のCO₂総排出量の約4割を占めるとされる火力発電からのCO₂排出量の削減に大きく貢献できる可能性がある。

火力発電におけるアンモニア利用の一つの手段として，既設微粉炭火力発電所での混焼利用が挙げられる。現在の火力発電所でのアンモニア利用は，排煙脱硝設備の脱硝剤としての利用に留まり，その量は少なく，燃料としての使用実績は無い。当所の約30年前の研究では，微粉炭燃焼火炎内にNO_x（窒素酸化物）の還元剤としてアンモニアを少量注入した混焼試験の実績はあるものの⁽²⁾，アンモニアを燃料として多量に注入して混焼させる検討は実施していなかった。

アンモニアを燃料として見た場合，炭化水素燃料や水素に比べて発熱量が低いため，燃焼性に劣ることが懸念される。さらに，アンモニアには，窒素分が含まれるため，燃焼に伴う激しい酸化反応が生じれば，大気汚染物

質であるNO_xに転換される可能性があり，NO_x濃度の大幅な増加を招くことも懸念される。

当所は，2014年度に開始された内閣府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」における「アンモニア直接燃焼チーム」に2015年度から参画し，2018年度までの4ヶ年にわたる研究を実施してきた。このプロジェクトの中では，2種の石炭燃焼試験設備を用い，微粉炭燃焼場へのアンモニアの混焼がNO_x排出量に及ぼす影響を実験的に明らかにするとともに，NO_x低減方策について検討した⁽³⁾。さらに，2019～2020年度においては，株式会社IHIと国立大学法人大阪大学と共同で国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の次世代火力発電技術推進事業／アンモニア混焼火力発電技術の先導研究⁽⁴⁾に従事しており，当所は複数段の燃焼バーナを持つ火炉に適したアンモニア注入方法について検討を実施してきている。

本稿では，これらの微粉炭火力を対象としたアンモニア混焼技術について，当所における開発状況の概要を紹介する。

2. 試験装置および試験方法

2.1 燃焼試験設備の概要

1) 単一バーナ炉

微粉炭バーナを1本のみ設置した単一バーナ炉の概略をFig. 1に示す。火炉本体は，横置き円筒型水冷炉であり，火炉の寸法は，長さ8.0m，内径1.0mである。火炉の内壁には75mm厚の耐火材が内張りしてあり，空間としての直径は0.85mである。火炉の横には炉内の温度やガス濃度を計測するためのプローブ挿入用ポートが約0.4m間隔で主流方向に17箇所設置されている。低NO_x燃焼法として二段燃焼が行えるようになっており，火炉後流側に設置されているプローブ挿入用ポートの一部は，

原稿受付 2021年3月8日

* 1 （一財）電力中央研究所エネルギー技術研究所
〒240-0196 横須賀市長坂2-6-1
E-mail: mkimoto@criepi.denken.or.jp

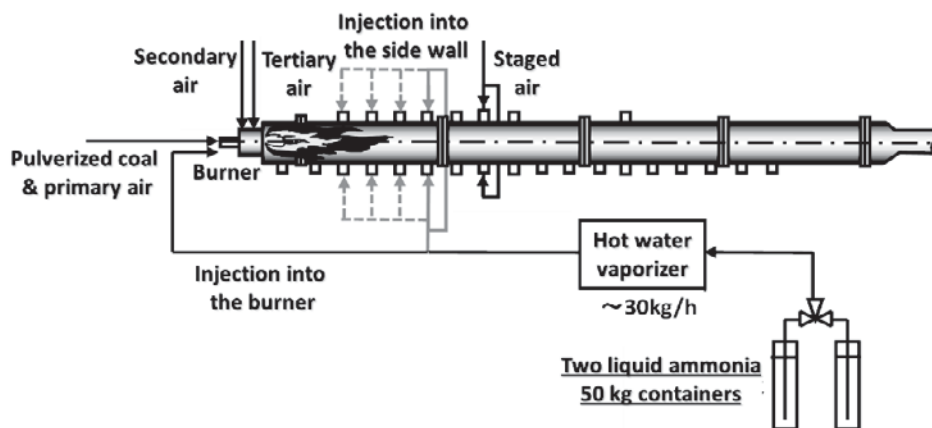


Fig. 1 Schematic diagram of single-burner furnace

二段燃焼用空気の注入ポートと兼用される構造になっている。本研究ではバーナ口から3 mの位置にあるポートを二段燃焼用空気の注入ポートとして使用した。火炉の定格負荷は、石炭の低位発熱量ベースで760kWであり、石炭燃焼量は約100kg/hである。微粉炭バーナをFig. 2に示す。当所と株式会社IHIが以前に共同開発した低NO_xバーナであるCI- α バーナ⁽⁵⁾を使用した。

アンモニアは、2本設置した50kg液化アンモニア容器のうちの1本から取り出され、減圧された後、温水式

気化器（気化能力：最大30kg/h）で気化される。アンモニアガスは再度減圧した後、火炉上流側で流量調整弁により流量を所定の量に調整した上で火炉内に注入される。液化アンモニアの消費に伴い、容器の切替を手動で行う。アンモニアの混焼率は、火炉の定格投入熱量760kWに対し、アンモニアの低位発熱量ベースで最大20%（152kW，29.6kg/h）まで設定可能である。火炉内へのアンモニア注入は、Fig. 3に示した微粉炭バーナの中心に挿入した供給管を通して注入する方式とFig. 4に示したバーナ後段部（二段燃焼用空気の注入位置より上流側）の火炉横のプロープ挿入用ポートを利用して微粉炭火炎の中に注入する方式の2方式で実施できるようになっている。

2) マルチバーナ炉

微粉炭バーナを縦型に3本設置したマルチバーナ炉⁽⁶⁾の概略をFig. 5に示す。火炉本体は、長さ1.9m、幅0.9m、高さ9.7mの鋼板製縦型水冷炉である。前面に単一バーナ炉と同一形式の微粉炭バーナが1 m間隔で縦型に3段で配置されている。火炉の定格負荷は2.39MWであり、石炭燃焼量は約300kg/h（バーナ1本あたり100kg/h）である。また、低NO_x燃焼法として二段燃焼が行えるようになっており、中段バーナから高さ3.0mの位置

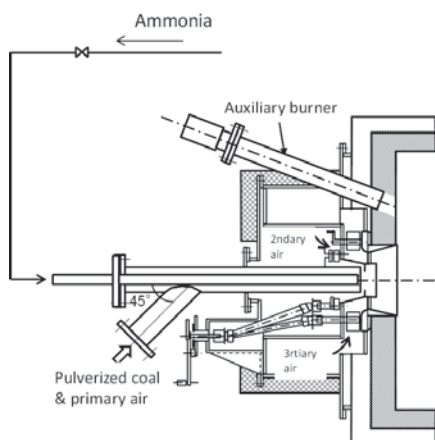
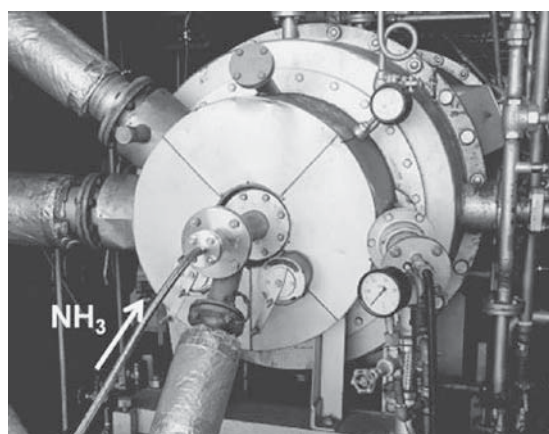
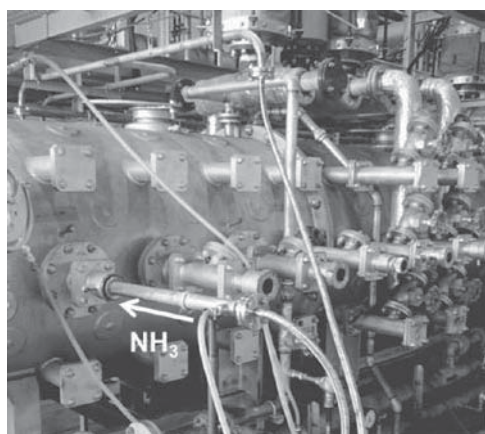


Fig. 2 Pulverized coal-fired burner

Fig. 3 NH₃ injection from burnerFig. 4 NH₃ injection from side ports of furnace

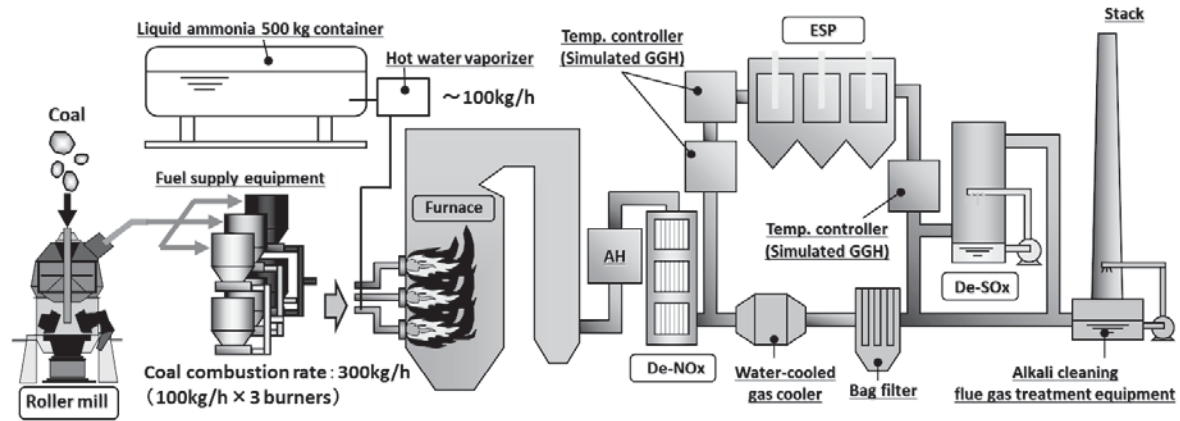


Fig. 5 Schematic diagram of multi-burner furnace

に二段燃焼用空気の注入ポートが設置されている。

アンモニアは、横置き500kg液化アンモニア容器から取り出され、減圧された後、温水式気化器（気化能力：最大100kg/h）により気化される。気化されたアンモニアガスは再度減圧された後、流量調整弁を介して3

本の各バーナへ供給できるようになっている。また、供給配管の切替により、3本に供給するアンモニアを1本に集中して注入することも可能である。火炉全体でのアンモニアの混焼率は、単一バーナ炉と同様、最大で20%（478kW、92.8kg/h）まで供給できる。火炉内へのアンモニア注入方式は、微粉炭バーナの中心に挿入した供給管を通して注入する1方式のみとなっている。

2.2 試験方法と燃焼条件

単一バーナ炉とマルチバーナ炉のいずれにおいても、アンモニア混焼時にはアンモニアの注入分だけ微粉炭の投入量を減らし、混焼率が変わっても火炉への投入熱量が一定になるように設定した。

燃焼条件として、火炉出口O₂濃度：4%，二段燃焼率：30%とした。測定項目は、火炉出口から排出される排ガス成分として、O₂、CO、CO₂、NO_x、SO₂、NH₃およびN₂Oを計測し、燃焼灰については有効利用時の重要な管理項目である灰中未燃分濃度を測定した。

3. 供試炭性状

供試炭の燃料性状をTable 1に示す。微粉炭火力発電所で一般的に使用される石炭のうち、燃料比（揮発分に対する固定炭素の重量比）が異なる5炭種（MO炭はロットが異なる4種類）を使用した。

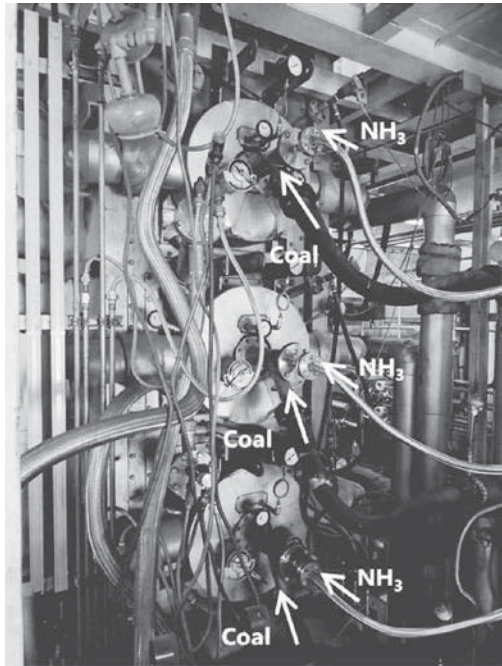


Fig. 6 NH₃ injection in multi-burner furnace

Table 1 Fuel properties of test coal

Coal			MW	AL	LM	MO1	MO2	MO3	MO4	NL
Proximate analysis	Ash	[wt%]	3.2	10.6	4.5	14.0	12.6	14.8	12.7	15.1
	Volatile matter	[wt%]	51.6	46.7	43.7	36.0	35.4	33.7	34.5	27.7
	Fixed carbon	[wt%]	45.2	42.7	51.8	50.0	52.0	51.5	52.8	57.2
	Fuel ratio	-	0.88	0.91	1.19	1.39	1.47	1.53	1.53	2.06
Ultimate analysis	C	[wt%]	68.4	68.4	75.9	70.1	73.0	71.2	73.9	71.8
	H	[wt%]	4.89	5.40	5.57	4.82	4.90	4.55	4.99	4.22
	N	[wt%]	1.33	1.20	1.29	1.64	1.74	1.72	1.73	1.47
	O	[wt%]	22.1	14.0	12.3	9.0	7.4	7.4	6.2	7.2
	S	[wt%]	0.19	0.66	0.43	0.49	0.44	0.44	0.50	0.31
Low heating value			[MJ/kg]	25.4	28.1	30.0	28.4	29.2	28.1	27.4

4. 試験結果

4.1 微粉炭バーナ部からアンモニアを注入した場合の燃焼特性

単一バーナ炉を用い、微粉炭バーナ部から注入するアンモニアの混焼率を増加させて、着火状態ならびに火炎の安定性を確認した。その結果、アンモニアを最大20%混焼した場合でも、安定した良好な火炎が形成されることがわかった。混焼率が高くなるとNO_x濃度は高くなる傾向を示したが、アンモニアを20%混焼した場合でも、微粉炭専焼時と比較して、約1.2倍の増加（MO2炭の場合、O₂ 6%換算値で約170ppmから約210ppmに増加）に収まった⁽⁷⁾。次に、マルチバーナ炉にてMO3炭を用い、同様の検討を実施した。3本の微粉炭バーナから均等にアンモニアを注入した場合、Fig. 7に示すように、アンモニア混焼率の上昇とともにNO_x濃度は増加し、石炭専焼時の約130ppmに対して、アンモニア混焼率20%では約250ppmとなり、約2倍の増加となった⁽⁸⁾。単一バーナ炉とマルチバーナ炉では、同一の形式のバーナが設置されているものの、マルチバーナ炉ではバーナを複数段に配置することで火炎の相互干渉等が生じ、かつ石炭のロットの違いによる性状変化も加わり、NO_x濃度の定量性に違いを生じたものと考えられる。

NO_x濃度の増加に対するアンモニアの寄与を調べるため、石炭中N分からNO_xへの転換率が石炭専焼時と変わらないと仮定し、アンモニア中N分のNO_xへの転換率を試算した。石炭中N分のNO_xへの転換率は5%程度であるのに対し、アンモニア中N分のNO_xへの転換率は0.2~0.3%程度であった。これより、アンモニア中のN分はほとんどがN₂となっており、NO_xへの転換は限定的であることがわかった。

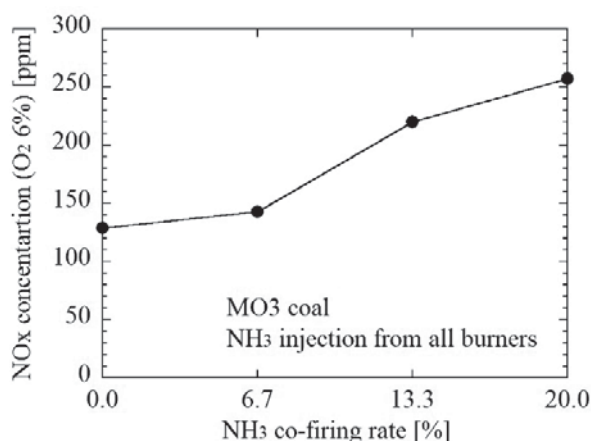


Fig. 7 Relationship between ammonia co-firing rate and NO_x concentration

4.2 微粉炭燃焼火炎内へのアンモニア注入による低NO_x燃焼

当所の過去の研究では、低NO_x燃焼技術の一つとして、微粉炭燃焼火炎内にNO_x還元用の二次燃料（メタン、プロパン、水素、揮発分の多い石炭など）を熱量基

準で最大25%の混焼率で注入する燃焼方法を開発している⁽⁹⁾。緒言でも触れたように、この研究では、火炎内へのアンモニア注入も実施したが、二次燃料としてではなくNO_xの還元剤として少量を注入しており、混焼率としては概ね1%以下と低いものであった⁽²⁾。

そこで、本研究では、単一バーナ炉を用い、アンモニアを燃料として微粉炭火炎中に多量に吹き込んだ場合のNO_x低減効果について検討を実施した。微粉炭燃焼火炎内のアンモニアの注入は、火炉の両側に設置されたプローブ挿入用ポート（後段部）から行った。Fig. 8には、アンモニア注入位置を変えた場合の火炉出口NO_x濃度の変化を示す。

アンモニアをバーナ部から0.6mあるいは1.0mの位置に注入した場合、バーナ部から注入した場合よりもNO_x濃度が低くなり、この特性は複数の炭種に共通していることがわかった。

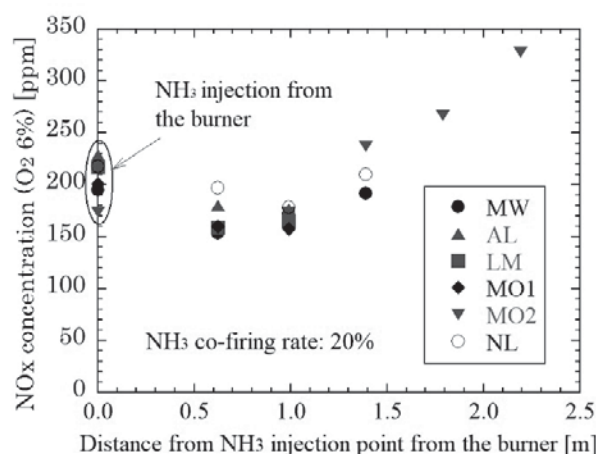


Fig. 8 Relationship between ammonia injection point and NO_x concentration

Fig. 9には、石炭専焼時、バーナ部へのアンモニア20%注入時、後段部へのアンモニア20%注入時の3条件で比較した3炭種の灰中未燃分濃度を示す。

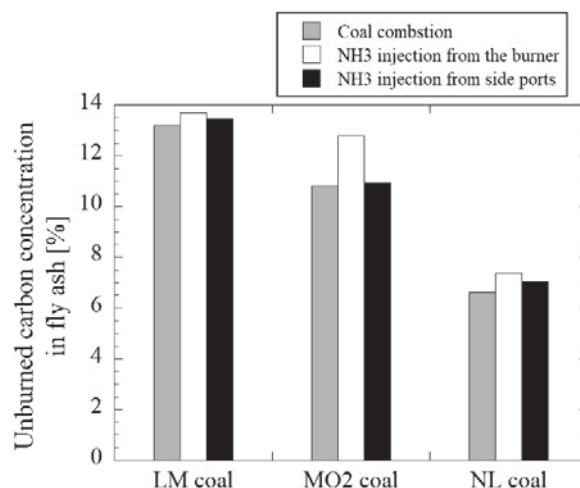


Fig. 9 Comparison of unburned carbon concentration in fly ash

いずれの炭種においてもバーナ部からのアンモニア注入時は石炭専焼時に比べて灰中未燃分濃度はやや高くなり、後段部からのアンモニア注入時には、灰中未燃分濃度は石炭専焼時と同程度になった⁽¹⁰⁾。バーナ部から0.6 mあるいは1.0 mの注入位置は、火炎内で生成しているNO_x濃度が高く、酸素濃度が低い還元領域である。このことから、微粉炭燃焼火炎の適切な位置にアンモニアを注入することで、NO_xおよび灰中未燃分の低減が可能であると考えられる。

4.3 アンモニアを注入するバーナ段の最適化ならびに集中注入によるNO_x低減

単一バーナ炉を用いた検討により、微粉炭燃焼火炎の適切な位置にアンモニアを注入することが望ましいとの結果を得たが、実機のような複数段のバーナが配置された火炉では、その方法の適用は容易ではない。そこで、複数段のバーナを有する火炉に適したアンモニア混焼方法について検討を行った。

当所のマルチバーナ炉を用いた既往の研究においては、異なる2種類の石炭を混炭燃焼させる場合、すべてのバーナに同じ混炭比率で燃焼させるよりも、2種類の内の燃えにくくNO_xが多く発生する石炭の方を下段側のバーナで燃焼させ、もう一方を上段側のバーナで燃焼させた方がNO_xを低減できることが確認されている⁽¹¹⁾。これは、NO_xが多く発生する石炭を下段のバーナで燃焼させることで、発生したNO_xの火炉内滞留時間が長くなり、NO_xの還元分解が作用する時間を長くできるためと考えられる。アンモニア混焼に当てはめた場合、単一バーナ炉での結果より、バーナ単体ではアンモニア混焼率が高くなるほど、NO_xの発生量は増加する方向になるため、アンモニアを注入するバーナ段を下段側にすることで、同様のNO_x低減効果が期待できる。

そこで、本研究では、マルチバーナ炉を用いて、火炉全体のアンモニア混焼率を最大20%とし、Fig. 10に示すように、バーナ1段当たり最大混焼率20%であったアンモニアのバーナ3段分を集合し、バーナ1段当たりのアンモニア混焼率を最大60%まで高めた場合について、アンモニアを注入するバーナ段の違いが燃焼特性に及ぼ

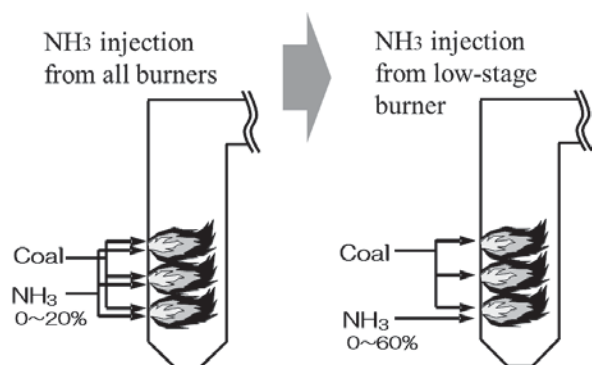


Fig. 10 Ammonia injection method in furnace with multiple burner stages

す影響について評価した⁽¹²⁾。なお、バーナ1段当たりのアンモニア供給量は、これまでの最大供給量の3倍となり、アンモニアの注入流速が高速化するため、アンモニア注入ノズルを大径化し、アンモニア注入流速を抑えるための改良が施してある。

燃焼試験の結果、アンモニア混焼率20%においては、バーナ単体でのアンモニア混焼率が60%と高い混焼率となるが、特に問題なく燃焼できることが確認された。

Fig. 11に、上段バーナに集中して注入した場合（上段集中注入）と下段バーナに集中して注入した場合（下段集中注入）のNO_x濃度の比較を示す。いずれのアンモニア混焼率でも下段集中注入よりも上段集中注入の方がNO_x濃度は高くなった。また、アンモニア混焼率が6.7%よりも高くなると、上段バーナ集中注入の方がNO_x濃度の増加傾向が強くなることが示された。下段バーナへのアンモニア集中注入により発生したNO_xの火炉内滞留時間を長くでき、NO_x還元が効果的に作用するためと考えられる。

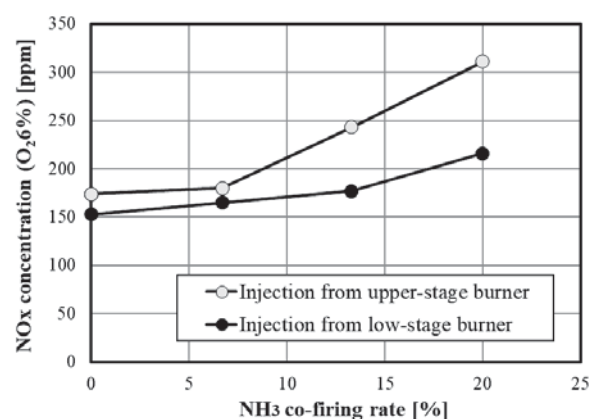


Fig. 11 Influence of NH₃ injection stage on NO_x concentration

Fig. 12に灰中未燃分濃度の比較を示す。上段集中注入と下段集中注入のいずれも、石炭専焼時（混焼率：0%）よりもアンモニア混焼率20%の方が灰中未燃分濃度は増加した。上段集中注入と下段集中注入を比較すると、石炭専焼時とアンモニア20%混焼時のいずれも下段集中注入の方が低くなった。これは、アンモニア混焼バーナが石炭専焼バーナより石炭の燃焼が悪く、上段よりも下段に設置した場合の方が、アンモニア混焼バーナの石炭の燃焼領域の滞留時間が長くなるためと考えられる。

Fig. 13に可燃分の燃焼率の比較を示す。火炉出口でのアンモニア濃度を測定した結果、残留したアンモニアは検出されなかったことから、注入したアンモニアは完全に燃焼していると考えられる。アンモニアを含めた可燃分（石炭+アンモニア）の燃焼率は、上段集中注入と下段集中注入のいずれも石炭専焼時よりも高くなる。また、上段集中注入に比べ、下段集中注入の方が可燃分（石炭+アンモニア）の燃焼率は高くなるが、これは微

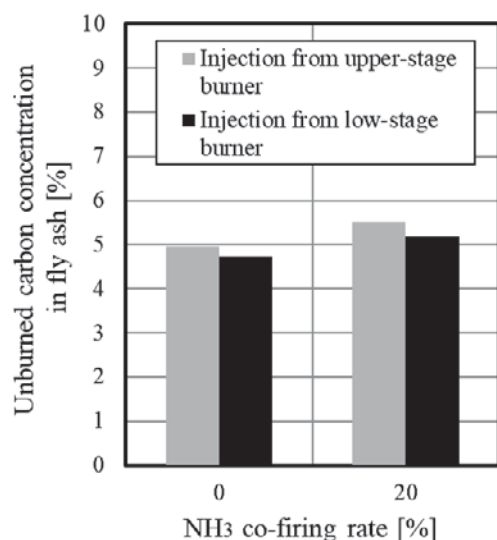


Fig. 12 Influence of NH₃ injection stage on unburned carbon concentration in fly ash

粉炭の燃焼率の違いによるものである。

本研究ではさらに、アンモニア混焼率20%時においても石炭専焼時と同等程度の燃焼特性を達成するため、アンモニア混焼に適した新規開発注入ノズル（共同実施先である株式会社IHIが開発）の導入と低NO_x燃焼条件の適正化を図っている。これらの成果については、本稿執筆時点では未公開のため、割愛させて頂くが、概ね目標を達成できていることを付記しておく。

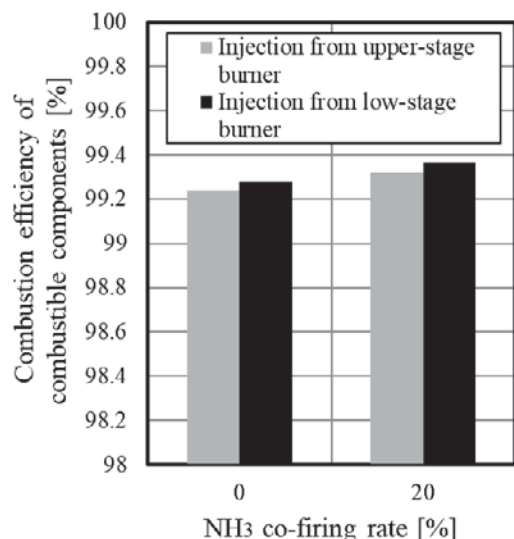


Fig. 13 Influence of NH₃ injection stage on combustion efficiency of combustible components

4.4 アンモニア混焼に伴う温室効果ガスの削減

アンモニア混焼試験においては、アンモニアが設定通りに注入できているかを確認するため、火炉出口排ガス中のCO₂濃度を監視している。これらの測定結果においては、アンモニアの注入量に応じて、ほぼ理論通りにCO₂排出量が削減された。

一方、CO₂の約300倍の温暖化係数をもつN₂Oについても濃度測定を実施している。微粉炭燃焼の温度領域ではN₂Oがほとんど生成しないと言われており^[3]、本測定結果においても、アンモニア混焼に伴う増加は見られなかった。

5. さいごに

本稿では、当所の石炭燃焼試験設備を用いて検討を進めてきたアンモニア混焼技術に関する成果を紹介した。

複数段のバーナを有する火炉においては、下段側バーナへアンモニアを集中して注入することがNO_x濃度および灰中未燃分濃度の低減に有効であることが明確になった。アンモニアを一部のバーナ段に集中させて供給することは、バーナ全段への供給設備の設置が不要となるため、設備費の軽減が図れ、運用面でも有利となる。本成果を踏まえると、アンモニア混焼技術の開発段階としては、微粉炭火力発電所へ適用できる燃焼方法の見通しが立った段階であると言える。

一方、既設微粉炭火力発電所でのアンモニア混焼の実現においては、解決すべき課題も多く残されている。まず、混焼利用するアンモニアの製造自体もカーボンフリーであることが必須であり、大量に安価に製造することは、最も大きな課題と考えられる。加えて、アンモニア混焼を実機で実現する上では、受入・貯蔵・供給設備や環境設備、プラント全体に関わる事項など様々な検討事項がある。SIPの「エネルギーキャリア」のプロジェクトでは、多数の参画機関により多岐にわたる検討が行われているので、是非これらを参照されたい^[14]。

今後の動きに関し、2020年12月に経済産業省より「2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略」が発表された^[15]。この戦略には、アンモニア混焼利用のロードマップが示されており、微粉炭火力でのアンモニア混焼については、2021年度から混焼率20%での実機実証試験が開始される計画となっている。試験炉を用いた検討では困難であった収熱面や運転・運用面等の課題について、今後、実機実証の中で明らかにされていくものと考えられる。また、実機実証と並行してアンモニア混焼率の向上、アンモニア専焼に向けた技術開発も進められる予定である。当所は、今後も微粉炭火力へのアンモニア利用拡大に関する技術開発を支援していく所存である。

謝辞

本研究の成果は、科学技術振興機構（JST）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」の支援、ならびに国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務により、得られたものです。ここに記し、深く謝意を表します。

参考文献

- (1) SIP (戦略的イノベーション創造プログラム)「エネルギーキャリア」研究課題の紹介.
<<https://www.jst.go.jp/sip/k04.html>> (参照日: 2021年3月8日).
- (2) 西田真二, 牧野尚夫, 木本政義, 田中隆, 電力中央研究所報告W90006 (1991).
- (3) SIP (戦略的イノベーション創造プログラム) 終了報告書「既設火力発電所におけるアンモニア利用に関する検討」.
<<https://www.jst.go.jp/sip/dl/k04/end/team6-8.pdf>> (参照日: 2021年3月8日).
- (4) 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構実施者募集 (公募).
<https://www.nedo.go.jp/koubo/EV3_100187.html> (参照日: 2021年3月8日).
- (5) 牧野尚夫, 木本政義, 気賀尚志, 遠藤喜彦, 火力原子力発電, Vol. 48, No. 6 (1997), pp. 64-72.
- (6) 白井裕三, 辻博文, 布川信, 池田道隆, 野田直希, 秋保広幸, 神田裕, 斉藤勝, 岸吉宏, 松田裕光, 石炭燃焼特性実証試験装置の機能と燃焼・排煙処理特性―微粉炭火力発電技術の高度化におけるその役割―, 電力中央研究所報告W03025 (2004).
- (7) 山本晃, 木本政義, 小沢靖, 原三郎, 第55回燃焼シンポジウム講演論文集:B342 (2017).
- (8) 木本政義, 2019年度火力原子力発電大会研究発表要旨集 (2019).
- (9) 牧野尚夫, 木本政義, 西田真二, 秋吉久士, 日本エネルギー学会誌, Vol. 71, No. 4 (1991), pp. 278-283.
- (10) 山本晃, 木本政義, 小沢靖, 原三郎, 第56回燃焼シンポジウム講演論文集: C315 (2018).
- (11) 池田道隆, 白井裕三, 炉内ブレンド法によるNO_x・灰中未燃分低減技術の開発, 電力中央研究所報告M07007 (2008).
- (12) 木本政義, 小沢靖, 泰中一樹, 橋本一輝, 白井裕三, 第29回エネルギー学会大会予稿集: 5-07 (2020).
- (13) P. Glarborg, A.D. Jensen, J.E. Johnsson, Fuel Nitrogen Conversion in Solid Fuel Fired Systems, Progress in Energy and Combustion Science Vol. 29 (2003), pp. 89-113.
- (14) SIP (戦略的イノベーション創造プログラム)「エネルギーキャリア」終了報告書.
<https://www.jst.go.jp/sip/k04_result.html> (参照日: 2021年3月8日).
- (15) 経済産業省ニュースリリース.
<https://www.meti.go.jp/press/2020/12/20201225012/20201225012.html> (参照日: 2021年3月8日).

特集：水素・脱炭素燃料の最新動向（その2）

アンモニア分解利用GTCCシステムと実圧燃焼試験

Ammonia Cracking GTCC System and Combustion Test at Practical Operating Pressure

石井 弘実^{*1}
ISHII Hiroimi荒木 秀文^{*1}
ARAKI Hidefumi野勢 正和^{*2}
NOSE Masakazu川上 朋^{*2}
KAWAKAMI Tomo谷村 聡^{*3}
TANIMURA Satoshi湯浅 厚志^{*4}
YUASA Atsushi斉藤 圭司郎^{*4}
SAITO Keijiro

キーワード：ガスタービン、水素、アンモニア、分解、燃焼器、コンバインドサイクル

Key Words : Gas Turbine, Hydrogen, Ammonia, Cracking, Combustor, Combined Cycle

1. 緒言

2015年12月にCOP21で地球温暖化防止の国際的な枠組み「パリ協定」が採択された結果、世界の金融機関や機関投資家、企業が次々と脱炭素化への取り組みを表明している。脱炭素化を実現するには、再生可能エネルギーの利用が有効であるが、太陽光や風力などは変動が大きく不安定な性質があり、再生可能エネルギーを水素に変換し貯蔵・輸送して利用することが検討されている。2017年12月にわが国で水素基本戦略が策定され、本戦略では、水素の運搬・貯蔵に関して、水素を液化して運搬・貯蔵する方法だけでなく、アンモニアや有機ハイドライド等のエネルギーキャリアを活用することが提示されている⁽¹⁾。

水素エネルギーキャリアにはいくつかの種類があるが、その中で液体水素、有機ハイドライド（MCH）、アンモニアに関して、水素の貯蔵密度を整理したものをFig. 1に示す。同図に示すように、貯蔵に必要な容積の目安となる体積当たりの水素密度に着目すると、アンモニアが液体水素よりも大きいことが判る。また、大気圧での貯蔵を想定した場合、液体水素は-253℃で貯蔵する必要があるがアンモニアは-33℃で貯蔵できるため、貯蔵容器の断熱設計、ボイルオフガスの処理が比較的容易で貯蔵の実績・ノウハウも確立されている。

アンモニアをガスタービンの燃料にする方法として、小型ガスタービンにアンモニアを供給して直接燃焼させる方法が研究^{(2),(3)}されている。一方、大型ガスタービ

ンでアンモニアを燃焼させる場合には、Table 1に示すような制約が加わることから、筆者らはアンモニアを水素と窒素に分解したものを水素燃焼ガスタービンで燃焼させる方式を検討^{(4),(5)}している。本稿では、アンモニアを水素と窒素に分解して水素燃焼ガスタービンで燃焼させるGTCC（ガスタービンコンバインドサイクル）の概要を説明するとともに、アンモニアを分解したガスを

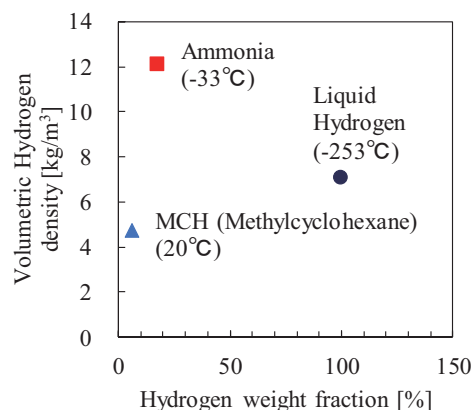


Fig. 1 Concept of ammonia cracking gas turbine

Table 1 Characteristics of Ammonia combustion and consideration for large gas turbines

Characteristics of ammonia combustion	Considerations for large gas turbines
Slow combustion speed (about 1/5 of that of methane)	- The size of the combustor increases to secure the time necessary for completing the combustion. - Since the large gas turbine is composed of a multi-can combustor, there is a restriction on the size expansion of the combustor.
Nitrogen contained in fuel	- There is little room to allow Fuel NOx because the combustion gas temperature of a large gas turbine has been increased to the extent permitted by Thermal NOx. - Lowering of NOx by two-stage combustion is considered, but in the case of a large gas turbine, there are many technical problems such as upsizing and complication of the combustor.

原稿受付 2021年3月12日

*1 三菱パワー(株) 電力計画部

〒220-8401 横浜市西区みなとみらい3-3-1

*2 三菱パワー(株) 大型ガスタービン技術部

〒676-8686 高砂市荒井町新浜2-1-1

*3 三菱重工業(株) 新エナジ部

〒220-8401 横浜市西区みなとみらい3-3-1

*4 三菱重工業(株) 総合研究所

〒676-8686 高砂市荒井町新浜2-1-1

LNG（液化天然ガス）と混合して大型ガスタービンの燃焼器で燃焼させた試験の結果について報告する。

2. アンモニア分解利用GTCCシステム

アンモニア利用GTCC（Gas Turbine Combined Cycle）システムの概念をFig. 2に示す。本システムはガスタービンの排ガスの熱を利用してアンモニアを水素と窒素に分解し、既に実用化されている水素混焼のガスタービン燃焼器、または現在開発中の水素専焼燃焼器により燃焼させるものである。アンモニア分解にはアンモニア1モルあたり約46 kJの熱が必要であるが、投入した熱はアンモニアが水素になることで燃料の発熱量の1.14倍の増加として化学再生される。したがって、GTCCサイクルとしてGT排ガス温度が従来機並みとなるまで排熱利用できれば原理的な熱効率低下は無い。

Table 2に、(a)アンモニア分解ガスと天然ガスを混焼した場合と、(b)アンモニア分解ガスを専焼とした場合の

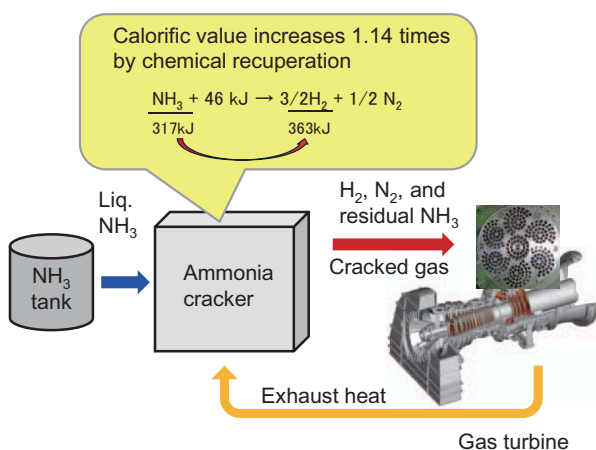


Fig. 2 Concept of ammonia cracking gas turbine

システムの比較を示す。混焼の場合は、分解ガスと天然ガスを混合し、燃焼器入口での燃料の組成において水素の体積割合が20%となるシステムを想定した。これは、開発済の予混合型ドライ低NO_x燃焼器で安定に燃焼可能な水素濃度の範囲である。水素の体積当たりの発熱量は天然ガスよりも小さいため、アンモニアの発熱量基準では約6.5%の混焼となる。アンモニアの分解に必要な熱として、ガスタービンの排ガスを熱源とする排熱回収ボイラで生成した水蒸気を利用する構成を検討しているが、特に混焼システムの場合には既存の排熱回収ボイラから水蒸気を分岐する構成でも成立する可能性があり、比較的开发要素が少ないことが特徴である。

一方、アンモニア分解ガスの専焼システムは、水素75%、窒素25%（いずれも体積割合）の分解ガスを燃料として燃焼させるため、現在開発中⁽⁶⁾のマルチクラスターバーナーを用いると、稼働率70%でガスタービン1台あたり年間約110万 tのCO₂削減効果が期待できる。専焼システムはCO₂削減効果が大きい特徴があるが、水素専焼の燃焼器以外にも比較的大きなアンモニア分解装置（アンモニア流量約170 t/h、GTCC出力約530 MWの場合）が必要となる。これらの開発には一定の時間を要すると考えられ、また、アンモニアの供給インフラの普及にも時間がかかると考えられることから、先に開発のハードルが低い混焼システムを開発し、より高度なシステムの実現に必要な技術と経験の蓄積を図っていくことが重要である。

Fig. 3に、アンモニア分解ガス専焼システムの概略系統図を、Table 3に同システムの性能を天然ガス焚きガスタービンと比較して示す。同表では、アンモニア分解温度と圧力の条件としてCase 1（500℃、3.0 MPaG）とCase 2（600℃、5.1 MPaG）を比較して記載した。

Table 2 Comparison of co-firing system and mono-firing system of the ammonia cracking gas turbine

Type of the system	(a) Co-firing system (power output: 430MW)	(b) Mono-firing system (power output: 530MW)
Composition of fuel at the combustor	Mixture of natural gas (almost methane) and ammonia cracked gas (H ₂ =75 vol.%, N ₂ =25 vol.%)	Ammonia cracked gas (H ₂ =75 vol.%, N ₂ =25 vol.%)
Ratio of calorific value of initial NH ₃	6.5% (when H ₂ = 20 vol.%)	100%
Required equipment	• Small NH₃ cracker (10 t/h) • Pre-mix combustor (state of the art) 	• Large NH₃ cracker (170 t/h) • Multi Cluster burner (under development) 
Reduction of CO ₂ emission	30,000 t/y/unit	1,100,000 t/y/unit
Utilization of H ₂	10,000 t/y/unit	180,000 t/y/unit
Remarks	• Modification of existing systems (retrofit) is possible • Fewer R&D is needed compared with mono firing system	Larger contribution for CO ₂ Reduction

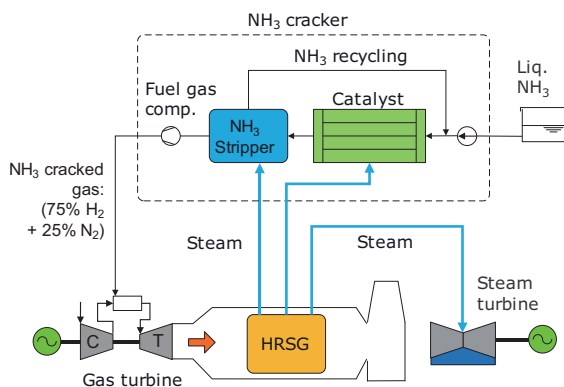


Fig. 3 Schematic of the ammonia cracking gas turbine (mono-firing system)

液体として貯蔵されたアンモニア燃料はポンプで加圧されてアンモニア分解装置へ供給される。アンモニア分解装置の中のアンモニア分解反応器には触媒が充填され、排熱回収ボイラで生成した高温の過熱水蒸気によりアンモニア (NH_3) が約75%の水素 (H_2) と約25%の窒素 (N_2) に熱分解される。熱分解されたガスの中には、未分解の残留アンモニアが混じっているためアンモニア回収塔により回収し、回収されたアンモニアはリサイクルラインにより原料アンモニアのラインに戻される。

分解ガスは水素を主体とした低カロリー燃料のため、タービン作動流体の体積流量が増大し、燃焼器入口での燃料の熱量は同体格の天然ガス焼きガスタービンの107.1%必要となる。しかしアンモニアの分解により発熱量が約1.14倍に増加していることから、システム入口でのアンモニアの必要な熱量は、天然ガス焼きガスタービンの約93.6%に削減される。ガスタービンの出力は、低カロリー燃料である分解ガスの投入によりタービン作動流体の体積流量が増加していることから、天然ガス焼きの場合の約1.18倍となる。

アンモニア分解反応は吸熱反応であるため、高温で分

解させた方が分解反応が促進される。また、反応の前後でモル数が増加する反応であることから、低圧で分解させた方が分解反応が促進される。Case-1ではCase-2よりも分解温度が低く、分解圧力も低いが、総合的には分解圧力が低い影響よりも分解温度が低い影響の方が大きく、アンモニア分解反応器出口の残留アンモニア濃度が高くなる。アンモニア分解反応器出口の残留アンモニア濃度が高くなると、アンモニア回収塔から原料アンモニア側へリサイクルするアンモニアの流量が増加して同表に示す分解反応に必要な熱量やアンモニア回収塔で必要な熱量が増加する。その結果、アンモニア分解装置で消費する蒸気量が大きくなり、発電用の蒸気タービンの出力が低下し、GTCCとしての発電端出力は、天然ガス焼きの時に557 MWだったものが505 MW (Case-1) および534 MW (Case-2) となる。

また、アンモニア分解圧力が低い場合には、分解ガスをガスタービンに供給する際、燃料ガス圧縮機による昇圧が必要となる。分解圧力が5.1 MPaGのCase-2では燃料ガス圧縮機は不要であるが、分解圧力が3.0 MPaGのCase-1では必要となり、アンモニア分解装置として必要な補機動力が大きくなる。その結果、送電端出力としては天然ガス焼きの時に546 MWだったものが460 MW (Case-1) および520 MW (Case-2) となった。

送電端効率としては、燃料の発熱量の増大効果、タービン作動流体の流量増加効果、蒸気タービンの出力低下影響や、分解装置の補機動力の影響をすべて考慮すると、天然ガス焼きの89.1% (Case-1) および101.7% (Case-2) となった。

このように、本システムでは、アンモニアを熱分解させるアンモニア分解装置の運転条件によって性能が左右され、アンモニア分解装置の仕様についての検討がなされている⁽⁷⁾。

Table 3 Performance prediction of the ammonia cracking gas turbine (mono-firing system)

Items	Unit	NG-fired GTCC	Ammonia cracking GTCC		Remarks
			Case-1	Case-2	
Ammonia cracking temperature	°C	-	500	600	
Ammonia cracking pressure	MPaG	-	3.0	5.1	
Heat of fuel before NH_3 cracking (relative)	%	100	93.6		
Heat of fuel after NH_3 cracking (relative)	%	100	107.1		Heat increases 1.14 times by chemical recuperation.
Heat for cracking reaction	MW	-	185	172	Cracking at the lower temperature case requires larger amount of NH_3 recycling.
Heat for NH_3 stripper	MW	-	68	56	
GT output	MW	381	448		Increased due to larger combustion gas flow.
ST output	MW	176	57	86	Decreased due to extraction of HP steam flow.
Gross power output	MW	557	505	534	
Gross efficiency (relative)	%	100	96.7	102.4	Auxiliary power for the cracking system is not considered.
Aux. power of NH_3 cracker	MW	-	35.4	3.4	Cracking at 500°C case requires a fuel gas compressor load.
Net power output	MW	546	460	520	
Net efficiency (relative)	%	100	89.1	101.7	

3. ガスタービン燃焼器について

3.1 水素混焼用Dry Low NO_x (DLN) 燃焼器

ガスタービンの高効率・高出力化に伴うタービン入口温度（燃焼温度）の上昇・NO_x排出量の増加に対応するため、天然ガス燃焼器は乾式予混合燃焼方式が採用されている⁽⁸⁾。1600℃級ガスタービンに続き、1650℃級が開発され、燃焼器は更なる低NO_x化技術と燃焼振動の抑制や逆火（フラッシュバック）の防止といった安定燃焼にかかわる技術開発・実用化が進められている。

アンモニアはメタンなど炭化水素の燃料と比べて燃焼しにくく、また、燃料由来のNO_xを生成しやすい特性がある。このため天然ガスが主燃料である大型ガスタービンの予混合燃焼器でアンモニアを燃焼させる際は、先述のTable 1に記載されている点を考慮する必要がある。従来の技術課題に加えて、さらに開発のハードルが高くなる。このため、アンモニア利用GTCCシステムでは、アンモニアを直接燃焼させずに、アンモニア分解により生成された水素と窒素を燃料とし、これまでに開発された水素混焼燃焼器、および開発中の水素専焼燃焼器を適用することを計画している。アンモニア分解ガスの75vol%を占める水素は、天然ガスに比べ燃焼速度が速く、最小着火エネルギーも低いいため予混合燃焼では逆火（フラッシュバック）のリスクが大きくなる。そのため、以下に示す対応を施している⁽⁹⁾。

従来のDLN燃焼器をベースとして新たに開発された水素混焼燃焼器の概要をFig. 4に示す。圧縮機から燃焼器内部に供給された空気は、旋回翼（スワラー）を通過して、旋回流となる。燃料はスワラーの表面に設けられた小さな孔より供給され、旋回流により周囲の空気と急速に混合される。一方、旋回流の中心部（以下渦芯）には、流速の低い領域が存在し、ここを火炎が遡上することで逆火が発生すると考えられる。そこで新型燃焼器ではノズルの先端から空気を噴射して渦芯の流速を上昇させ、渦芯の低流速領域を補うことで逆火の発生を防止している。新型燃焼器1缶を使用した実機圧力下での燃焼試験では、水素30vol%を混合した条件においてもNO_xは運用可能な範囲内にあり、逆火の発生や燃焼振動の著しい上昇を伴わずに運用できる目途を得ている。

3.2 水素専焼用マルチクラスタ燃焼器

水素が更に高濃度になると、前項の水素混焼燃焼器に採用される旋回流による燃料と空気の混合方式では、渦芯部の低流速域で発生する逆火のリスクが更に高くなる。そこで旋回流を利用せず、より小さなスケールで空気と水素を混合できる混合方式を考えて開発を進めている。

水素混焼燃焼器の燃料供給ノズル（8本）に対して、より数多くのノズルを有するFig. 5のマルチクラスタ燃焼器をベースとして、1本のノズルの孔を小さくし、空気を送るとともに、そこに水素を吹いて小さなスケールで混合させ、火炎を分散することで、高い逆火耐性と低NO_x燃焼が両立する可能性を有する。

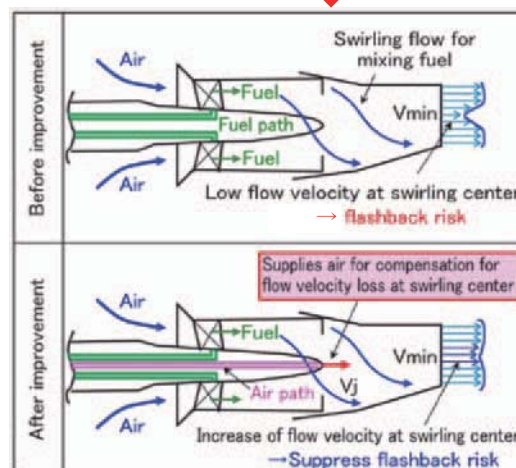
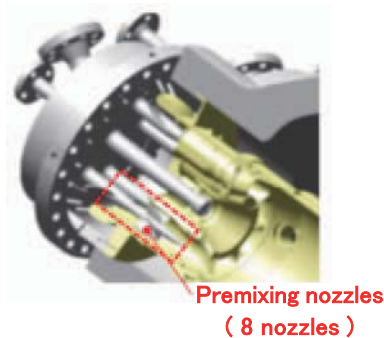


Fig. 4 Outline of new combustor for hydrogen co-firing



Fig. 5 Multi-cluster combustor (under development)

4. 実圧燃焼試験

4.1 実圧燃焼試験の目的と試験装置

これまでアンモニア分解ガスと天然ガスの混焼条件での大型ガスタービン燃焼器の運転実績は無く、燃焼の安定性や分解ガス中に微量含まれる残留アンモニアがNO_xに及ぼす影響について確認することを目的とし、実圧燃焼試験を行った。

想定するシステムの構成としては、天然ガスとアンモニア分解ガスの混焼システムとし、Fig. 6に示す系統構成により、混合燃料（水素：20%、窒素：6.7%、天然ガス：73.3%、微量のアンモニア）を供給可能とした。残留アンモニアの濃度の影響を調べるために添加するアンモニア濃度は定格負荷条件で0%～0.33%の範囲で変化可能とした。

供試体燃焼器は、1650℃級ガスタービンに用いる水素

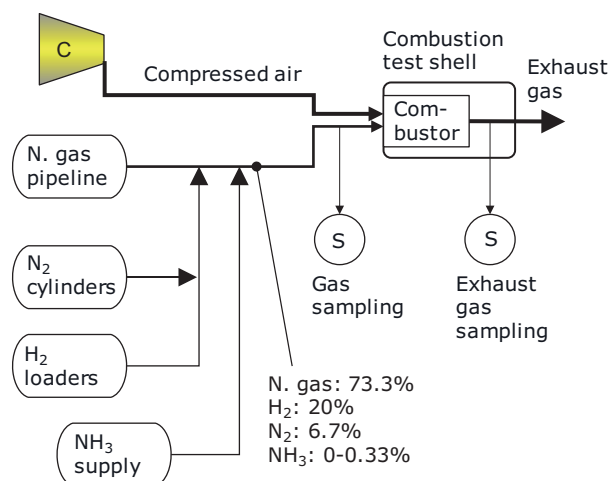


Fig. 6 Schematic of the practical pressure combustion test rig

混焼用DLN燃焼器を対象とした。燃焼器の燃料噴射ノズルについて、混合燃料のガスインデックス（Wobbe指数に相当）、ノズル差圧を天然ガス専焼の場合と比較するとともに、気流試験やCFDにより燃料と燃焼用空気の混合状況を確認した結果、燃料の温度を調整することにより天然ガス焚きと近い条件で運転できることが判った。

4.2 燃焼試験

アンモニア分解ガスと天然ガスの混焼試験を三菱パワー高砂工場のガスタービン要素試験設備（通称：実圧燃焼試験設備）にて実施した。燃焼試験時は、出力25MWのガスタービンにて空気源圧縮機とブースター圧縮機を駆動することにより、燃焼用空気を燃焼試験シェル（燃焼器1缶を収める圧力容器）に送気する。また、燃焼用燃料（天然ガス、水素、窒素、アンモニア）は供給設備から燃焼試験シェルに供給される。これらを燃焼試験シェル内に設置された供試体燃焼器にて混合し、実機と同等の運転条件（空気圧力、温度、風量、燃焼温度）にて燃焼させる。燃焼状態（温度、圧力、燃焼振動、排ガス性状等）は、設備および供試体燃焼器に設置された各種計測器にてモニタリングした。

試験は、1650℃級ガスタービンの、①実機定格負荷（タービン入口温度1650℃相当）の運転条件（空気圧力・温度・風量、燃料流量、燃焼温度を実機と同等に設定された試験条件）、ならびに、②部分負荷（タービン入口温度1450℃相当：約50%負荷相当）の運転条件にて実施した。

アンモニア分解ガスと天然ガスの混焼燃料の組成（体積%）は、水素20%、窒素6.7%、天然ガス73.3%をベースとしている、これにアンモニアを定格負荷条件では最大0.33vol%，部分負荷条件では最大0.525vol%まで添加した。

4.3 燃焼特性

アンモニア分解ガスと天然ガス混焼時において、燃料中のアンモニア添加量に対する燃焼特性を確認した。定格負荷（タービン入口温度1650℃）における燃料中のアンモニア濃度に対する、燃焼振動の圧力レベル、燃焼器温度をFig. 7およびFig. 8に示す。添加するアンモニア濃度を0%から0.33%まで変化させても、燃焼振動の圧力レベル、ガス温度に大きな変化はなく、管理値に対して十分な裕度を有することを確認した。

部分負荷（タービン入口温度1450℃）においても添加するアンモニア濃度を0%から0.525%まで変化させたが、定格負荷と同様に、燃焼振動の圧力レベル、ガス温度に大きな変化はなく、管理値に対して十分な裕度を有することを確認した。

以上より、アンモニア分解ガスと天然ガスの混合燃料（水素20%、窒素6.7%、天然ガス73.3%、微量のアンモニア）において、燃焼振動の発生やフラッシュバックの発生は確認されず、問題ないことを確認した。

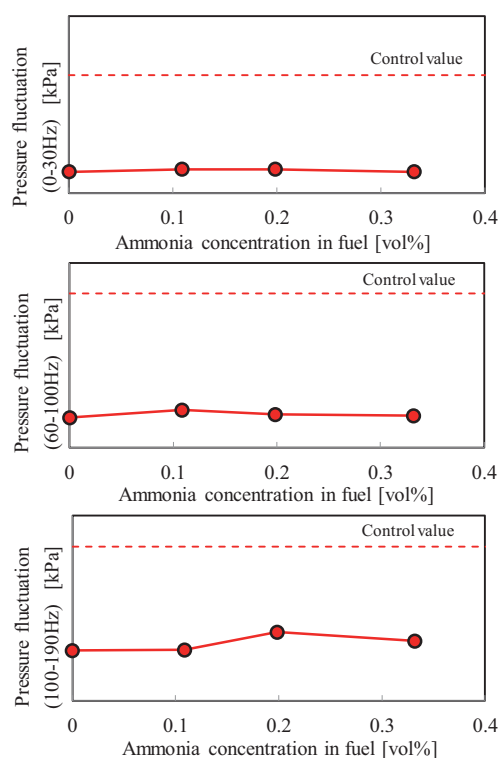


Fig. 7 Pressure fluctuation inside the 1650℃ class combustor at rated power output

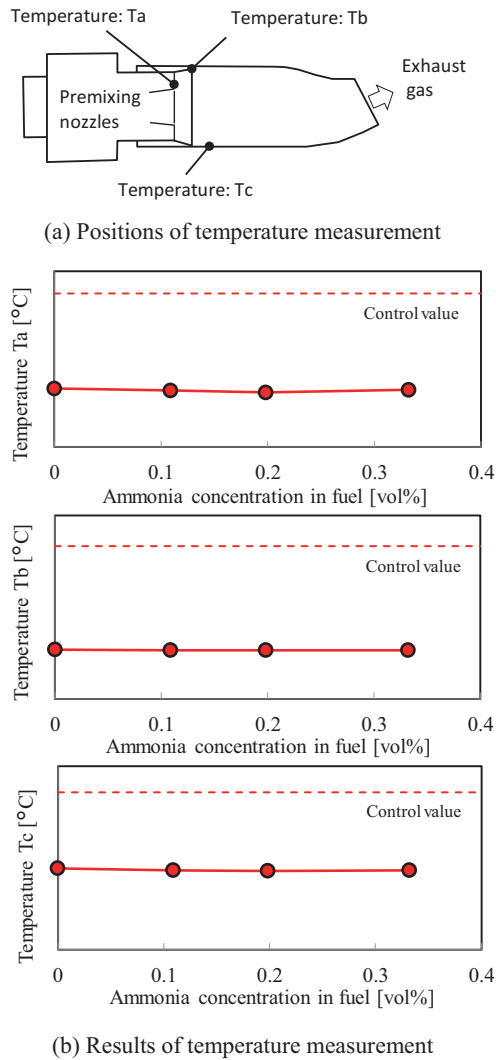


Fig. 8 Temperature of the 1650°C class combustor at rated power output

4.4 燃料中のアンモニア濃度とNO_x排出量の関係

定格負荷（タービン入口温度1650°C）における燃料中のアンモニア濃度と排ガス中のNO_x濃度の関係をFig. 9に示す。燃料中のアンモニア濃度が増加すると共にNO_x濃度が線形で増加する結果となった（図中●印）。図中にアンモニアのNO_xへの転換率（CR: Conversion ratio）を記載したが、転換率は約90%であった。

次に、部分負荷（タービン入口温度1450°C）における、燃料中のアンモニア濃度と排ガス中のNO_x濃度の関係をFig. 10に示す。定格負荷と同様に、燃料中のアンモニア濃度の増加と共にNO_x濃度が線形で増加する結果となった。アンモニアのNO_xへの転換率（CR）は約80%であった。

実圧燃焼試験のタービン入口温度1650°C（定格）、1450°C（部分負荷）の各条件に対する、非定常燃焼CFD解析の瞬時温度分布をFig. 11に示す。本解析結果から燃料中残留アンモニアのNO_x転換率を算出し、前記Fig. 9およびFig. 10に□印でプロットした。これらの図に示すように、いずれの燃焼ガス温度でもNO_x転換

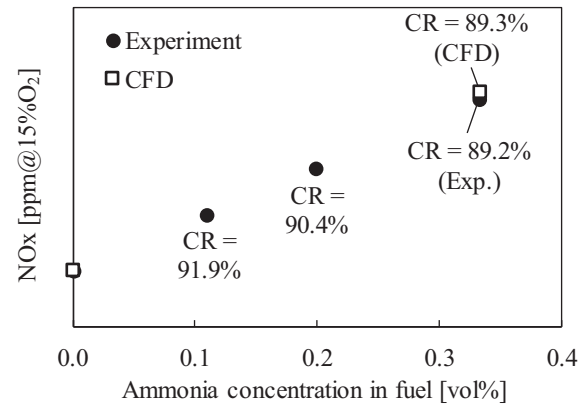


Fig. 9 Relationship between ammonia concentration in fuel and NO_x concentration in exhaust gas (at rated power condition, turbine inlet temperature: 1650°C)

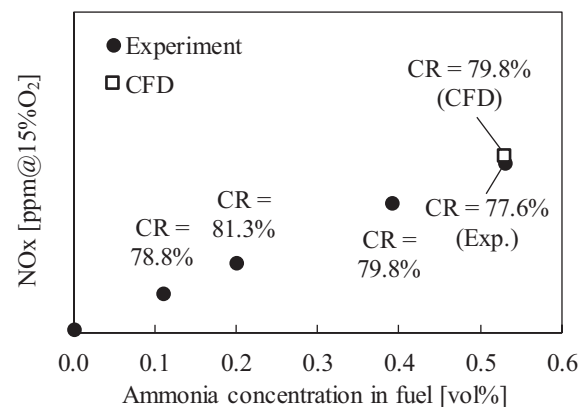


Fig. 10 Relationship between ammonia concentration in fuel and NO_x concentration in exhaust gas (at partial load condition, turbine inlet temperature: 1450°C)

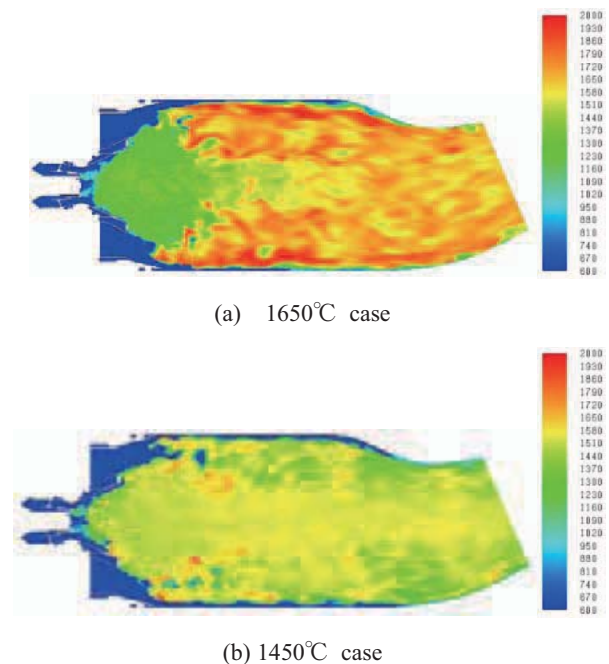


Fig. 11 Instantaneous temperature contour by transient combustion CFD Analysis

率の試験結果とCFDによる計算結果はほぼ合致する値となった。

このように、残留アンモニアのNO_xへの転換率が把握できたことから、アンモニア分解装置に許容される残留アンモニア濃度の要求仕様が決定でき、残留アンモニア濃度を規定すれば本システムのNO_x排出量が予測できるようになった。

5. 結言

本稿では、エネルギーキャリアであるアンモニアを水素と窒素に分解したガスを水素燃焼ガスタービンで燃焼させる発電用大型ガスタービンの検討状況について、GTCCシステム、ガスタービン燃焼器を中心に述べた。

本システムが実現すれば、CO₂削減量は非常に大きく、脱炭素化、地球環境保護に貢献することができる。

本システムの実現のためには、本稿で紹介したガスタービン本体以外にも、大量のアンモニアを熱分解可能なアンモニア分解装置の実現が必要である。また、CO₂フリーなアンモニアを大量に、安価に利用できることも大変重要であるため、再生可能エネルギーの変換技術、化石燃料からのCO₂回収/処分技術、高効率なアンモニア合成の技術等の開発も重要と考えている。

謝辞

本稿に記載した内容は、内閣府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：JST）の委託研究および国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の助成事業（水素社会構築技術開発事業：JPNP14026）の結果得られたものである。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- (1) 再生可能エネルギー・水素等関係閣僚会議，水素基本戦略，<<http://www.meti.go.jp/press/2017/12/20171226002/20171226002-1.pdf>>（参照日2021年3月1日）。
- (2) 壹岐典彦ほか，アンモニアの燃料利用と小型ガスタービン，日本ガスタービン学会誌，Vol. 48, No. 2（2020），pp. 113-118。
- (3) 株式会社IHI，SIPエネルギーキャリア終了報告書，アンモニアガスタービンコジェネレーションの技術開発，<<https://www.jst.go.jp/sip/dl/k04/end/team6-5.pdf>>（参照日2021年3月1日）。
- (4) 三菱日立パワーシステムズ株式会社，SIPエネルギーキャリア終了報告書，アンモニア利用ガスタービンの技術開発（システムおよび燃焼器），<<https://www.jst.go.jp/sip/dl/k04/end/team6-15.pdf>>（参照日2021年3月1日）。
- (5) 野勢正和ほか，発電用大型ガスタービンにおけるアンモニア利用技術の開発，日本燃焼学会誌，Vol. 61, No. 198（2019），pp. 293-298。
- (6) 市川雄一ほか，水素焚きガスタービン燃焼器の開発，日本燃焼学会誌，Vol. 61, No. 195（2019），pp. 15-23。
- (7) 三菱重工エンジニアリング株式会社，SIPエネルギーキャリア終了報告書，アンモニア利用ガスタービンの技術開発（アンモニア分解装置の検討），<<https://www.jst.go.jp/sip/dl/k04/end/team6-16.pdf>>（参照日2021年3月1日）。
- (8) 谷村聡，斉藤圭司郎，発電用ガスタービンの燃焼器の変遷と将来展望，日本機械学会誌，Vol. 119, No. 1173（2016），pp. 442-445。
- (9) 野勢正和ほか，CO₂フリー社会の実現に向けた水素燃焼ガスタービン，三菱重工技報，Vol. 55, No. 4（2018）。

タービンにおけるリーン翼のエロージョン特性と 空力性能の数値シミュレーション

Numerical Simulation of Erosion and Aerodynamic Performance of Lean Vane in Turbine

荒井 直己^{*1}
ARAI Naoki

福留 功二^{*1}
FUKUDOME Koji

山本 誠^{*1}
YAMAMOTO Makoto

鈴木 正也^{*2}
SUZUKI Masaya

大北 洋治^{*2}
OKITA Yoji

ABSTRACT

The turbine inlet temperature (TIT) has been increasing to develop the high-efficiency jet engines. Realization of the high TIT needs a higher-heat-resistant material. Ceramic matrix composite (CMC) is the most promising candidate, though it is weak for erosion. We have focused on an aerodynamic approach to reduce the erosion damage for the safety and long lifetime. In this study, we carry out multi-physics numerical simulations for lean vanes to evaluate the erosion damage and aerodynamic performance change. As a result, lean vanes improve aerodynamic performance, while they enhance the erosion damage of ductile material. The erosion increase is caused by the primary and secondary impingements with low impinging angle. Therefore, lean vanes made by brittle material such as CMC are expected to decrease the erosion damage.

キーワード：数値シミュレーション、タービン、ジェットエンジン、リーン、サンドエロージョン

Key words : Numerical simulation, Turbine, Jet engine, Lean, Sand erosion

1. 諸言

ガスタービンの高効率化に向けて、タービン入口温度 (TIT) の高温化が進んでいる。これまではNi基超合金や冷却技術の発展により、高温化を実現してきたが、近年ではTITが合金の融点に近づき、現状の材料による高温化の限界が近づいている。そこで、更に高い耐熱性を有するセラミックス基複合材料 (CMC) の利用が期待されている⁽¹⁾。しかし、CMCはNi基超合金に比べ、耐水蒸気性、耐エロージョン性に劣る。したがって、部材表面を保護し、長期利用を可能にする耐環境コーティング (EBC) が必要であり、EBCには耐エロージョン性が要求される。特に航空機用ジェットエンジンでは環境中の固体粒子の吸込みが想定され、EBCの損傷や剥離による安全性やメンテナンスコストへの影響が懸念されている。

宇宙航空研究開発機構 (JAXA) は、材料的アプロー

チに加え、空力的アプローチによる対策でEBCの長寿命化を検討している。しかしながら、この空力的アプローチを用いたエロージョン抑制に関する先行研究は少ない。Wenら⁽²⁾は、軸流ファンに対してスweepとリーンを適用し翼形状を変化させ、リーンはエロージョン量の低減効果が高いことを示した。しかし、タービンについては十分な知見が得られておらず、設計指針が得られていない。また、翼形状の変化による空力性能への影響も考慮し、悪影響がないことを確認する必要がある。

本研究は、タービン静翼のエロージョンを三次元数値解析により評価する。11種類のリーン形状を有する静翼のエロージョン量と空力性能を比較し、リーンによるタービン静翼の耐エロージョン性向上に関する設計指針を得ることを目的とする。

2. 数値計算手法と計算対象

2.1 数値計算手法

本研究では、JAXAが開発したCFD汎用化基盤プログラムUPACS^{(3),(4)} (Unified Platform for Aerospace Computational Simulation) を用いて、以下の手順で計算を行った。粒子の混入によって流体が受ける影響は小さいため、One-Way Couplingを採用し、弱連成法に

原稿受付 2019年11月25日

査読完了 2021年4月8日

*1 東京理科大学

〒125-8585 葛飾区新宿 6-3-1

*2 宇宙航空研究開発機構 (JAXA)

〒182-8522 調布市深大寺東町 7-44-1

よって計算を行った。計算の手順は以下の通りである。

- (1)流れ場計算：エロージョン前の流れ場の定常解を算出する。
- (2)粒子軌道計算：流れ場の情報を用いて粒子追跡を行い、壁面への衝突情報を取得する。
- (3)エロージョン計算：粒子の衝突情報から、エロージョン量を算出する。

流れ場は、三次元圧縮性乱流場を仮定した。支配方程式には、ファールブル平均した連続の式、ナビエ・ストークス方程式、エネルギー式を使用し、乱流モデルにはSpalart-Allmarasモデル⁽⁵⁾を採用した。離散化はセル中心有限体積法に基づき、対流項にはRoeの近似リーマン解法⁽⁶⁾と二次精度MUSCL法、粘性項には二次精度中心差分を使用した。時間進行にはMFGS陰解法⁽⁷⁾を適用した。

粒子軌道は、粒子をラグランジュ的に追跡して得た。粒子は球形で、変形・回転はなく、粒子への作用力は流体からの定常抗力のみとした。粒子濃度が希薄なため、粒子から流れ場への影響、粒子間衝突は無視した。

エロージョン計算にはNeilson-Gilchristモデル⁽⁸⁾を用いた。このモデルでは、粒子衝突による壁面材料のエロージョン量 W_T を変形エロージョン量 W_D と切削エロージョン量 W_C の和として考える。

$$W_T = W_D + W_C \quad (1)$$

変形エロージョン量と切削エロージョン量は、ヘルツの接触理論に基づいて、次式のように評価される。

$$W_D = \begin{cases} \frac{1}{2} m_p (V_p \sin \alpha - K)^2 & (V_p \sin \alpha > K) \\ \psi & \\ 0 & (V_p \sin \alpha \leq K) \end{cases} \quad (2)$$

$$W_C = \begin{cases} \frac{1}{2} m_p V_p^2 \cos^2 \alpha \sin n\alpha & (V_p \sin \alpha > K, \alpha \leq \alpha_0) \\ \frac{1}{2} m_p V_p^2 \cos^2 \alpha & (V_p \sin \alpha > K, \alpha \geq \alpha_0) \\ 0 & (V_p \sin \alpha \leq K) \end{cases} \quad (3)$$

$$\alpha_0 = \frac{\pi}{2n} \quad (4)$$

ここで、 m_p 、 V_p 、 α はそれぞれ粒子の質量、衝突速度、衝突角度である。 K は変形エロージョンが生じるか否かの閾値であり、衝突速度の壁面垂直方向成分が K よりも小さい場合、弾性変形のみが生じ、エロージョンは一切生じない。また、変形エロージョン量は衝突角度 90° で、

切削エロージョン量は衝突角度 α_0 でピークを持つ形式となっている。衝突角度が α_0 よりも大きい場合、衝突速度の接線方向成分のエネルギーは全て切削エロージョンにより消費され、跳ね返り速度の接線方向成分は0になる。Fig. 1に衝突角度の定義と跳ね返り速度の関係を示す。 ψ と ϕ はそれぞれ変形エロージョン、切削エロージョンにより壁面から単位質量の材料を除去するために要するエネルギーである。エロージョン痕の形状を線状に近似表現するエロージョンライン法⁽⁹⁾を用いて、式(1)から得られるエロージョン量を各セルに配分した。

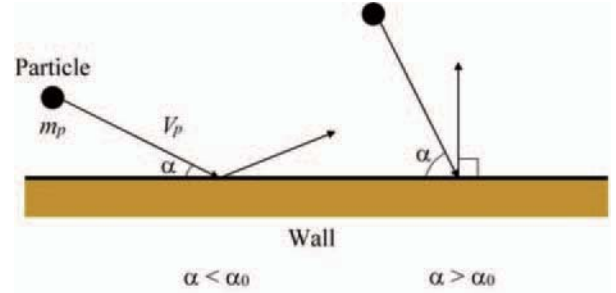


Fig. 1 Schematics of particle impingement and rebound

2.2 計算対象および計算条件

計算対象は、JAXAで行われた「グリーンエンジン技術の研究開発」⁽¹⁰⁾で設計された高圧タービン翼列である。この高圧タービンは推力20,000 lbsクラスの小型エンジン用ながら 1600°C クラスのタービン入口温度を狙ったもので、小型かつ高温のタービンでも成立する冷却技術の研究開発が行われた⁽¹¹⁾。計算領域と計算格子の概略をFig. 2, 3に示す。計算格子にはマルチブロック法を適用し、H-O-H型のトポロジーを採用した。ブロック数は27, 総格子点数は約180万点である。図中の色は各ブロック

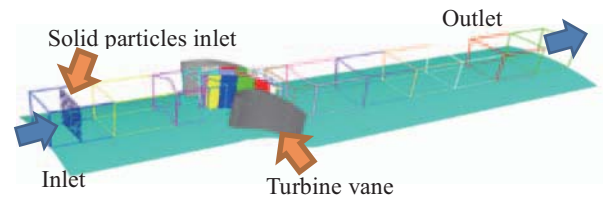


Fig. 2 Computational domain



Fig. 3 Grid around Original vane

を表す。リーン方法の概略をFig. 4に示す。リーン形状は、翼断面A, B, Cを周方向に回転させる角度を定義し、スタックラインをベジェ曲線で補間して与えた。回転角度 0° をOriginal, 回転角度が正のものをCompound Lean (CL), 負のものをReverse Compound Lean (RCL)と呼称する。本研究の対象としたリーンパラメータをTable 1に、翼の外形をFig. 5に示す。CL1-3はスパン方向比を変化させた形状, CL4-5はエンドウォール近傍の変化を抑えた形状, CL6-8はCL1, 3, 5の角度を抑えた形状, RCL1-3はCL1, 3, 5の逆角度の形状である。

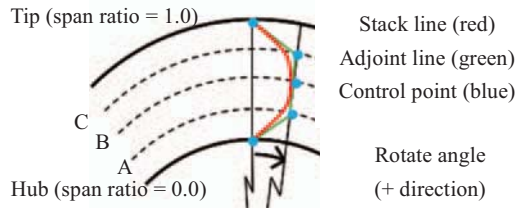


Fig. 4 Lean method (view from inlet)

Table 1 Details of lean parameters

	Control section	A	B	C
Original	Span ratio[-]	N/A	N/A	N/A
	Rotate angle[deg.]	N/A	N/A	N/A
CL1	Span ratio[-]	0.45	0.50	0.55
	Rotate angle[deg.]	1.0	1.0	1.0
CL2	Span ratio[-]	0.40	0.50	0.60
	Rotate angle[deg.]	1.0	1.0	1.0
CL3	Span ratio[-]	0.25	0.50	0.75
	Rotate angle[deg.]	1.0	1.0	1.0
CL4	Span ratio[-]	0.10	0.50	0.90
	Rotate angle[deg.]	0.0	1.0	0.0
CL5	Span ratio[-]	0.05	0.50	0.95
	Rotate angle[deg.]	0.0	1.0	0.0
CL6	Span ratio[-]	0.45	0.50	0.55
	Rotate angle[deg.]	0.5	0.5	0.5
CL7	Span ratio[-]	0.25	0.50	0.75
	Rotate angle[deg.]	0.5	0.5	0.5
CL8	Span ratio[-]	0.05	0.50	0.95
	Rotate angle[deg.]	0.0	0.5	0.0
RCL1	Span ratio[-]	0.45	0.50	0.55
	Rotate angle[deg.]	-1.0	-1.0	-1.0
RCL2	Span ratio[-]	0.25	0.50	0.75
	Rotate angle[deg.]	-1.0	-1.0	-1.0
RCL3	Span ratio[-]	0.05	0.50	0.95
	Rotate angle[deg.]	0.0	-1.0	0.0

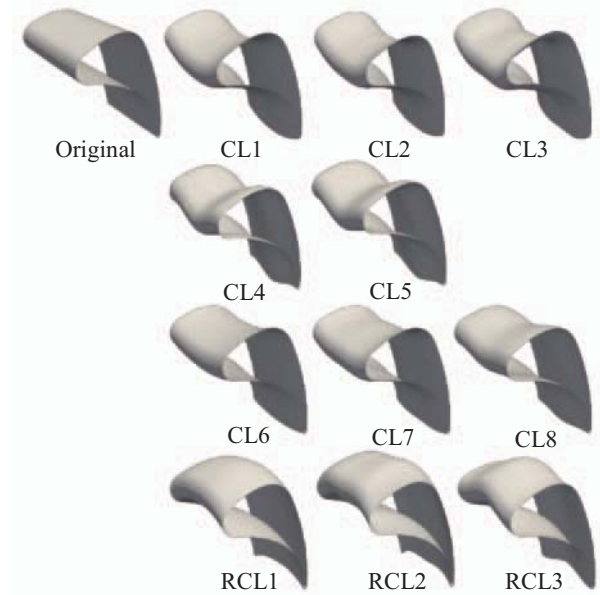


Fig. 5 Profiles of Original and leaned vanes

周期境界条件を周方向に用いて翼1枚のセクター計算を行った。流入境界はリーマン不変量を用いて全圧・全温・乱流粘性パラメータを固定し、流出境界は静圧を固定した。流入境界では一様な全温, 全圧を与え, 流入境界から翼までの計算領域によって境界層厚さが決定される。流入境界から翼まではコード長の3倍, 翼から流出境界まではコード長の9倍に設定した。固定する値は, 全ケースでOriginal翼の空力設計点のパラメータと同一である。壁面は滑りなし・断熱壁とした。壁材質はIN718であり, 密度は 8.19 g/cm^3 である。IN718は通常, 高圧タービンに適用される材料ではないが, 比較的高温の条件でのエロージョン試験データが公開されている⁽¹²⁾ため, 本研究ではIN718を採用した。粒子はアルミナとし, 密度は 3.89 g/cm^3 , 直径は $50 \mu\text{m}$ で均一とした。エロージョンパラメータは試験データ⁽¹²⁾にフィットするように与え, $\psi = 5.77 \times 10^6 \text{ m}^2/\text{s}^2$, $\phi = 2.97 \times 10^6 \text{ m}^2/\text{s}^2$, $n = 4.5$, $K = 2.72 \times 10^{-2} \text{ m/s}$ を用いた。衝突角度とエロージョン量の関係をFig. 6に示す。粒子投入量はMIL-E-5007D⁽¹³⁾に規定される砂吸込試験に相当する量とした。

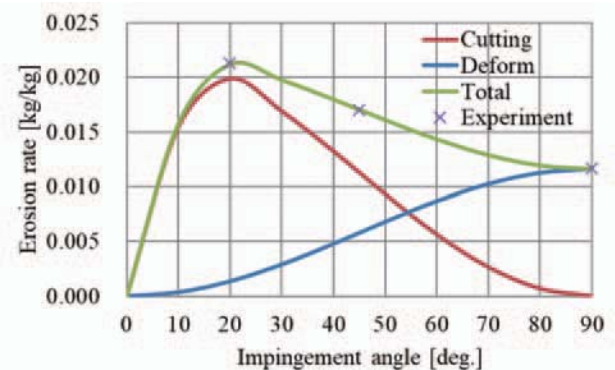


Fig. 6 Comparison of experiment and model prediction on impingement angle vs. erosion rate

なお、全粒子の追跡は計算コストが過大となるため、追跡粒子数は100万個とし、総量の収支から求めた係数を乗じて局所損失質量を補正した。粒子は流入境界に均一に配置し、流入速度と流入角度は周囲流体と同値とした。

3. 結果と考察

3.1 エロージョン前の流れ場

Original翼のエロージョン前のミッドスパン断面における流れ場をFig. 7に示す。静圧、全圧は流入全圧で無次元化している。流入マッハ数と流出マッハ数はそれぞれ約0.1, 0.8である。ノズルスロット部でマッハ数が1.0に近づく領域が確認できるが、チョークの発生は確認されなかった。マッハ数分布で確認できるように、翼間での加速に対応する膨張が静圧分布に現れている。また、後流の低速領域に対応して、全圧分布では低全圧領域が確認できる。なお、上述の通り、マッハ数は1未満のため、衝撃波に起因する損失は確認されていない。

負圧面の静圧分布をFig. 8、限界流線をFig. 9、翼後縁における軸方向断面の全圧分布をFig. 10に示す。リーン形状によってスパン方向に圧力勾配が生じ、スパン方

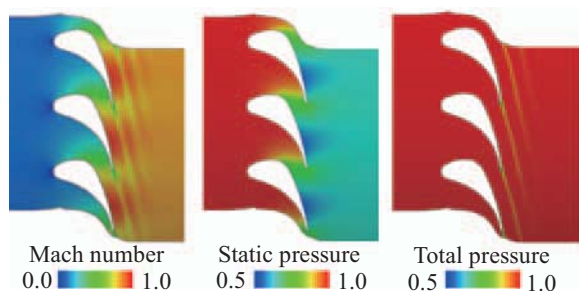


Fig. 7 Flow field at midspan before erosion (Original)

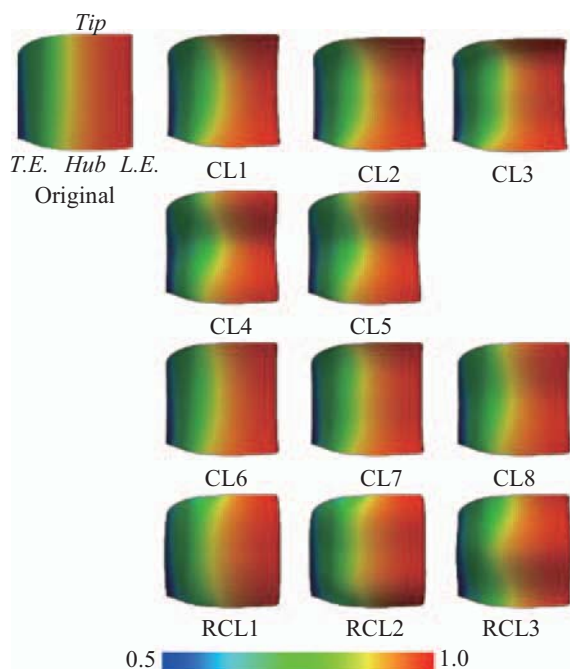


Fig. 8 Static pressure on suction surface before erosion

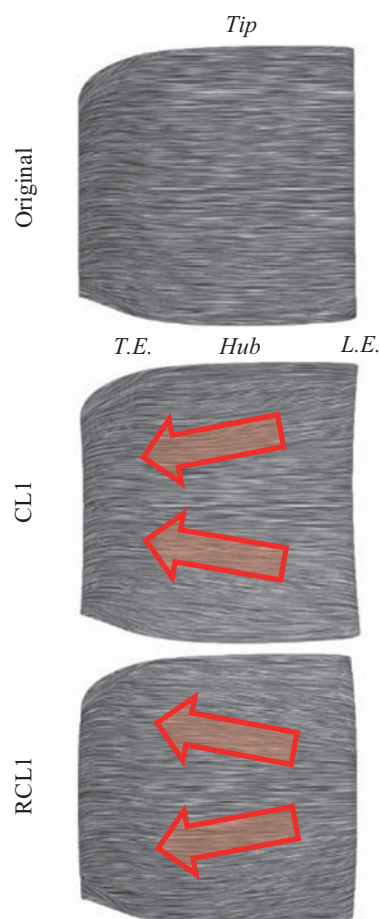


Fig. 9 Limiting streamlines on suction surface

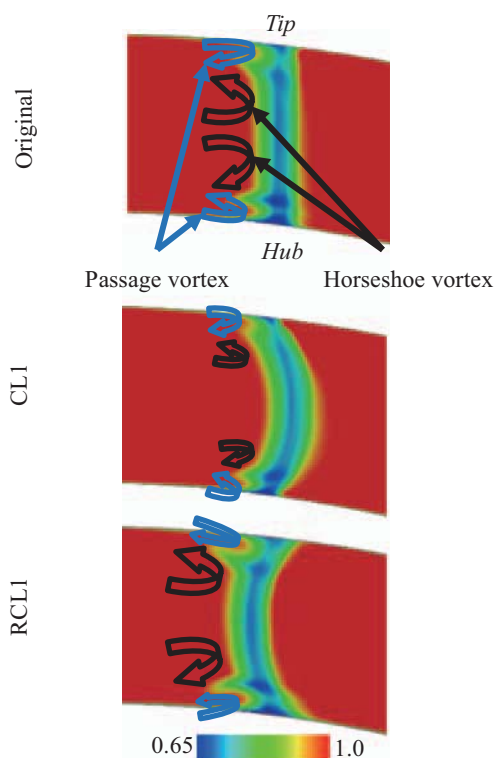


Fig. 10 Total pressure in axial section at trailing edge (view from inlet)

向の流れが誘起される。CLはミッドスパンに流れが集中し、主流が加速、二次流れが減速する。このため、二次流れ損失を抑制するが、主流の摩擦損失を増大させる傾向がある。RCLは逆の傾向が確認された。リーン角度が大きいほど、発生する圧力勾配も大きくなり、スパン方向の流れは強くなる。また、正圧面の静圧分布と限界流線の図は割愛するが、リーンによる圧力勾配は負圧面と逆向きとなり、損失に与える影響も逆転する。しかしながら、負圧面と比べて正圧面の流れは損失に与える影響が小さく、全体の性能にはほとんど影響しない。

空力性能を評価するために、全圧損失係数を導入する。全圧損失係数 ω は次式で定義される。

$$\omega = \frac{P_{\text{total,in}} - P_{\text{total,out}}}{\rho_{\text{in}} V_{\text{in}}^2 / 2} \quad (4)$$

ここで、 P_{total} 、 ρ 、 V はそれぞれ流体の全圧、密度、速度を示しており、添え字in, outはそれぞれ流入、流出を示している。全圧損失係数は小さいほど良い空力性能を有していることを意味する。本計算の条件では、静翼下流のスワールが残留し、下流のエンドウォール境界層の発達が過大となることから、評価断面は計算領域の両端ではなく、流入評価面を翼の1コード長上流、流出評価面を翼の0.3コード長下流とし、下流を狭く設定した。

各翼のエロージョン前の全圧損失係数をFig. 11に示す。CLはOriginal翼よりも良い空力性能を示している。スパン方向比の異なるCL1-3を比較すると、CL2、CL1、CL3の順に空力性能が向上した。Table 1に示すリーンパラメータより、CL1はミッドスパンから±5%スパン、CL2は±10%スパン、CL3は±25%スパンが傾斜していない。したがって、ミッドスパンから±10%スパンの範囲を傾斜させないようにリーンさせると損失低減効果が高くなると推測される。エンドウォール近傍の変形を抑制したCL4とCL5では、さらに損失低減効果が大きく、特にCL5は全ての翼の中で最も空力性能が優れている。また、CL1-5とCL6-8の比較より、リーン角度が大きいほど空力性能の向上が確認できる。RCLの効果は相対的にCLよりも小さいが、CL5と同じくエンドウォール近傍の変形を抑制したRCL3で、空力性能が最も向上した。また、CL3と同じくミッドスパンの傾斜を抑えた

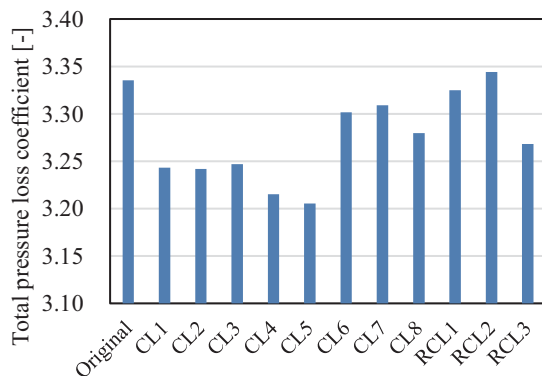


Fig. 11 Total pressure loss coefficient before erosion

RCL2のみOriginal翼よりも空力性能が低下した。

Original翼の速度勾配テンソルの第二不変量(Q値)の等値面をFig. 12に示す。渦は無次元ヘリシティで色付けしている。翼の前縁から馬蹄渦が発生しており、翼間では流路渦が発生している。これは一般的なタービン内で発生する渦と同じ傾向を示している⁽¹⁴⁾。

代表的な翼のQ値の等値面を負圧面側から見た図をFig. 13、チップ側から見た図をFig. 14に示す。Fig. 10やFig. 13, 14から確認できるように、CLの場合、正圧面の馬蹄渦と負圧面の流路渦は、リーンによるスパン方向の圧力勾配と逆方向に回転するため、Original翼より小さくなる。一方、負圧面の馬蹄渦はOriginal翼より大きくなるが、正圧面から負圧面に向かう圧力勾配により減衰する。このため、負圧面の馬蹄渦は相対的に影響が小さく、全体として二次流れ損失が低減される。RCLの場合はその逆である。このことから、渦の抑制が空力性能に大きな影響を与えていると考えられる。CL1とCL2の比較では、制御するスパン方向比の変化が小さいため、渦構造はさほど変化しない。空力性能が最も優れているCL5は、渦が縮小するとともに、ヘリシティの大きい領域(Fig. 13赤丸部)がミッドスパンに移動する。Fig. 14より、CL1とCL6を比較すると、リーン角度が大きいほど、渦構造の変化が大きいことが確認できる。

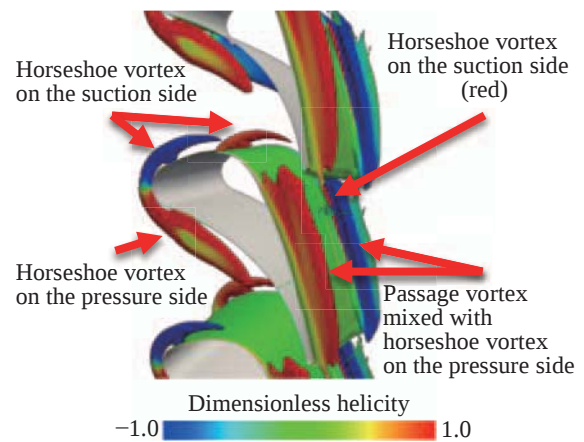


Fig. 12 Q-criterion of Original vane

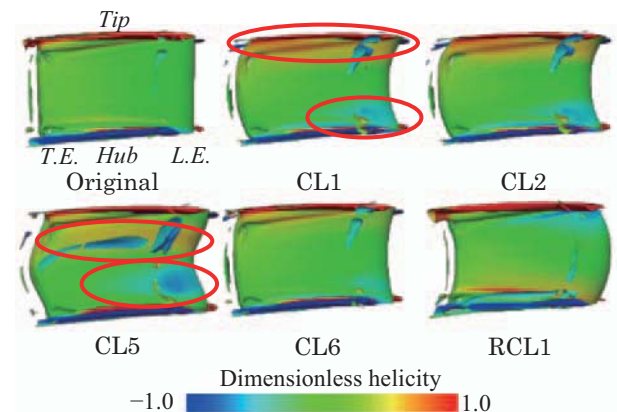


Fig. 13 Q-criterion on suction surface

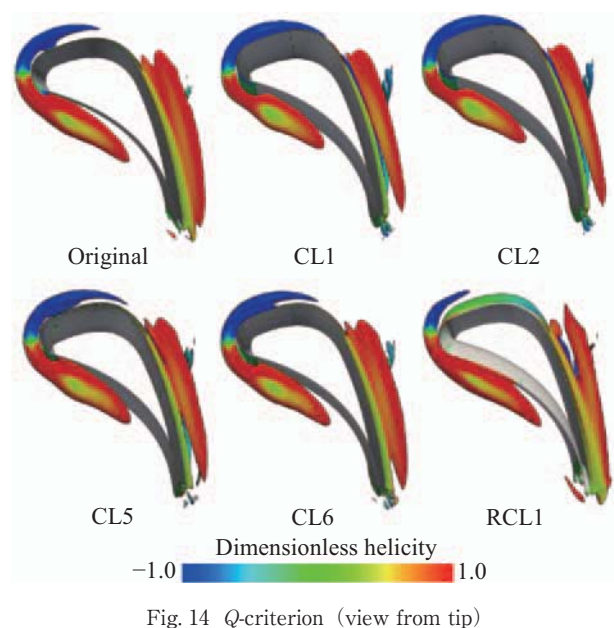


Fig. 14 Q-criterion (view from tip)

3.2 粒子軌道

50%スパンから流入させたOriginal翼の粒子軌道をFig. 15に、25%スパンから流入させたOriginal翼と代表的なリーン翼の粒子軌道をFig. 16に示す。また、Fig. 17と18にそれぞれ50%、25%スパンから流入させた代表的な粒子の速度と衝突角度の履歴を示す。図中の x は軸方向座標、 x_c は軸方向コード長である。粒子速度は流入速度で無次元化した。粒子は主に正圧面に衝突し、下流で正圧面に再び衝突する (Fig. 15, 16青矢印)。一方、前縁負圧面側に衝突した粒子は、隣接する翼の正圧面後縁付近に二次衝突する (Fig. 15, 16赤矢印)。この挙動を示す粒子は、隣接する翼に二次衝突するまでに加速され、一次衝突時と同程度の速度を有している。二次衝突した粒子は、その後、非常に小さい衝突角度で正圧面に衝突を繰り返しながら移動し、後縁から脱出する。これらの三次以降の衝突は衝突角度が著しく小さく、一回の衝突当たりの損傷は一次衝突および二次衝突と比べると小さい。50%スパンから流入させた粒子は、跳ね

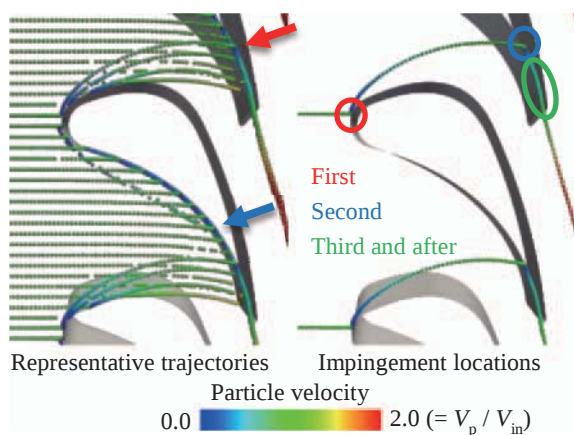


Fig. 15 Particle trajectories at midspan before erosion (Original)

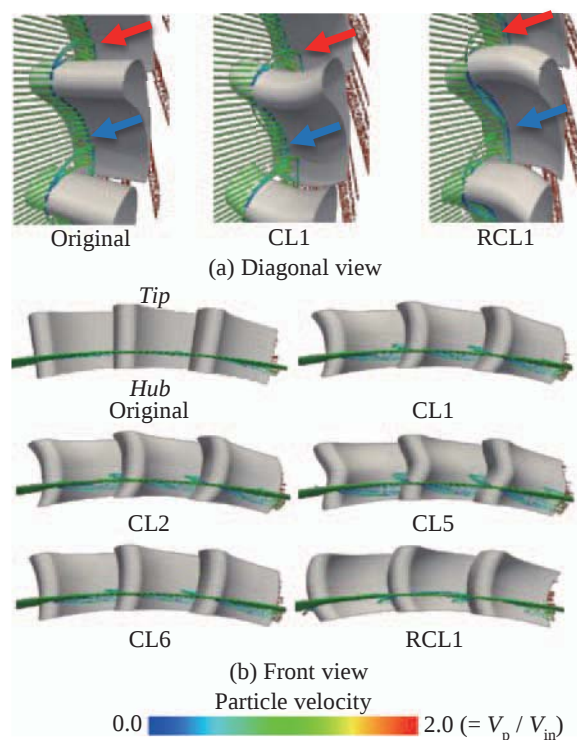


Fig. 16 Particle trajectories at 25% span before erosion

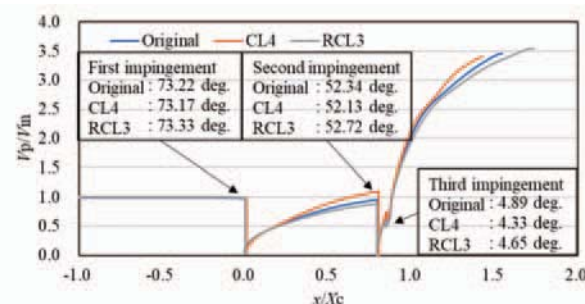


Fig. 17 Histories of particle velocity and impingement angle at midspan

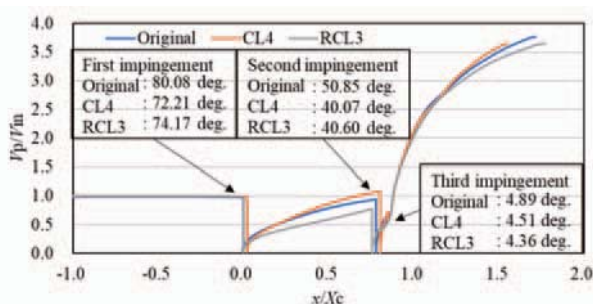


Fig. 18 Histories of particle velocity and impingement angle at 25% span

返りの際にスパン方向にほとんど移動しない。しかし、25%スパンから流入させた粒子は、リーンによる翼面の傾斜により、CLの場合、正圧面に衝突した粒子はハブ側に跳ね返り、負圧面に衝突した粒子はミッドスパン側に跳ね返る。RCLの場合はその逆である。

スパン方向比が異なるCL1とCL2を比較すると、制御

するスパン方向比がミッドスパンに集中しないCL2では、25%スパンの傾きが緩やかになり、粒子のスパン方向運動は小さくなる。空力性能の良いCL5は25%スパンにおける傾斜が大きいので、粒子のスパン方向運動が大きく、ミッドスパン近傍に再衝突する。リーン角度が異なるCL1とCL6を比較すると、リーン角度が小さいCL6では、粒子のスパン方向の運動が小さくなるため、衝突位置はOriginal翼に近づく。

一次衝突の衝突速度分布をFig. 19に示す。衝突速度は流入速度で無次元化した。衝突速度は、リーンによる流れ場の変化に影響を受ける。そのため、流れが集中する箇所、すなわち、CLではミッドスパン付近、RCLではエンドウォール付近でOriginal翼よりも大きくなる。逆に、CLではエンドウォール付近、RCLではミッドスパン付近の衝突速度が低下する。

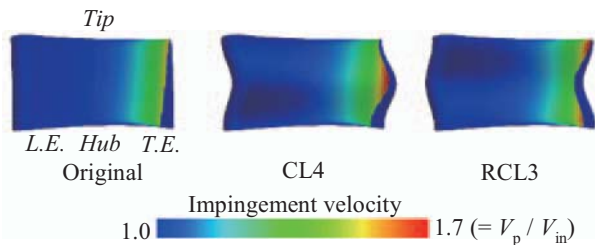


Fig. 19 Impingement velocity on pressure surface of first impingement

3.3 損傷パターン

各翼のエロージョン量をTable 2及びFig. 20に示す。エロージョン量はOriginal翼のエロージョン量で無次元化している。すべてのリーン翼はOriginal翼よりもエロージョン量が増加していることが確認できる。また、リーン角度が大きいほどエロージョン量が大きくなっている。一般に、延性材料は切削エロージョンが生じやすく、脆性材料は変形エロージョンが生じやすいことが知られている。切削エロージョンは衝突角度が小さいときに生じやすい現象である。

Fig. 21, 22にOriginal翼とCL, RCLで最も切削エロージョン量が増加したCL4, RCL3における衝突角度、衝

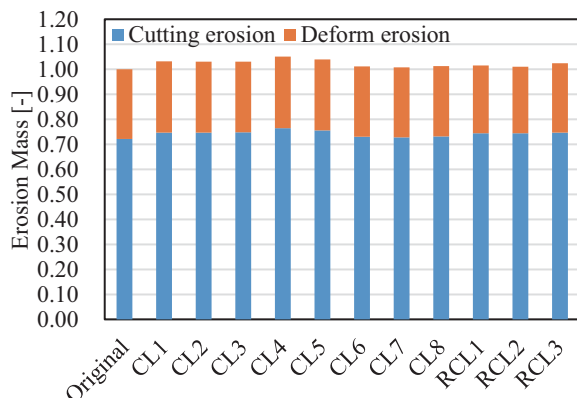


Fig. 20 Comparison of erosion mass

Table 2 Breakdown of erosion mass

	Cutting erosion [-]	Deform erosion [-]	Total erosion [-]
Original	0.722	0.278	1.000
CL1	0.747	0.284	1.032
CL2	0.747	0.284	1.031
CL3	0.748	0.283	1.031
CL4	0.764	0.286	1.050
CL5	0.755	0.284	1.039
CL6	0.730	0.282	1.012
CL7	0.727	0.281	1.008
CL8	0.731	0.281	1.013
RCL1	0.744	0.270	1.015
RCL2	0.745	0.266	1.010
RCL3	0.747	0.277	1.024

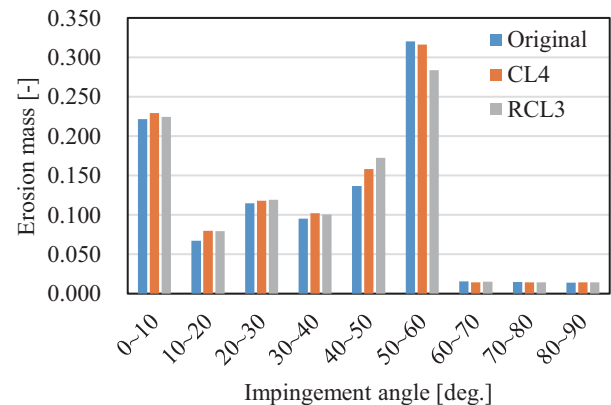


Fig. 21 Effect of impingement angle on erosion mass

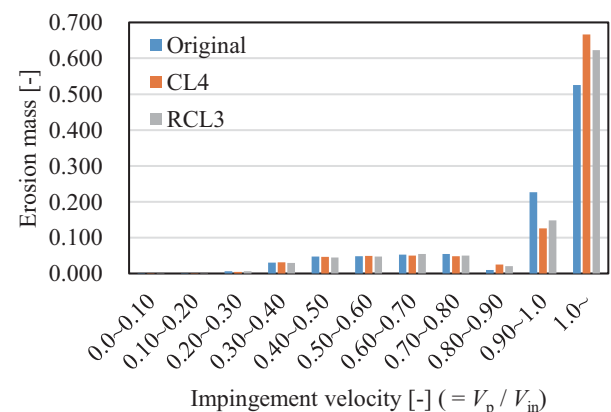


Fig. 22 Effect of impingement velocity on erosion mass

突速度ごとのエロージョン量を示す。エロージョン量はOriginal翼のエロージョン量、衝突速度は流入速度で無次元化した。一次衝突では、リーンの幾何形状により、Fig. 23のようにOriginal翼よりも衝突角度が小さくなる。その結果、衝突角度50°以下でエロージョン量が増加し、50°以上でエロージョン量が減少する。また、Fig. 19の通り、リーンによりスパン方向流れが誘起され、衝突速度はスパン方向の流量配分に応じた分布が生じる。二次

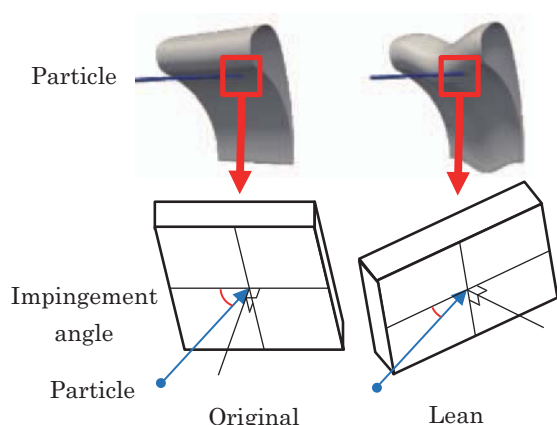


Fig. 23 Schematic diagram of difference in impingement angle between Original and leaned vanes

衝突では、一次衝突と同様のメカニズムで、衝突角度は全スパンに渡って小さくなり、衝突速度はスパン方向の流量配分に応じた分布が生じる。三次衝突以降では、正圧面を這うように移動するため、リーンによる衝突角度の差は生じない。衝突速度は一次衝突、二次衝突と同様である。

したがって、リーン翼では一次衝突および二次衝突の衝突角度の減少によってエロージョン量が増加する。衝突速度はスパン毎に増減があるため、全体として相殺される傾向にあり、リーン形状によって影響に相違がある。本研究では延性材料であるIN718が対象のため、エロージョン量の増加は、切削エロージョンの増加に起因すると考えられる。よって、脆性材料であるCMCが対象の場合はエロージョン量が減少すると推測される。

各翼のエロージョン深さ分布をFig. 24に示す。エロージョン深さはOriginal翼の最大エロージョン深さで無次

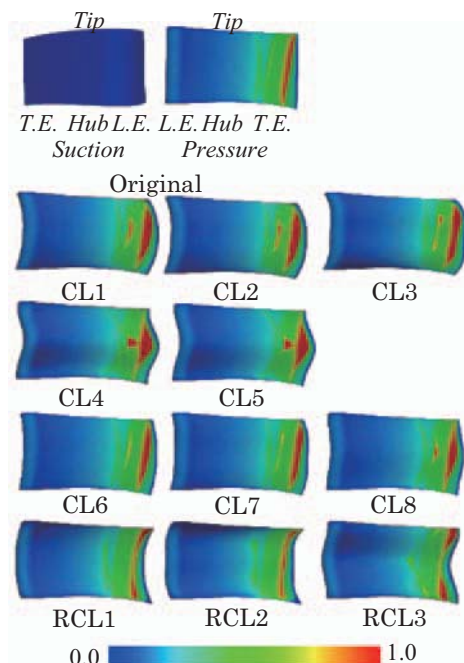


Fig. 24 Erosion depth on suction surface

元化している。正圧面後縁付近でエロージョンが激しくなっており、負圧面側でのエロージョンはほとんど見られない。正圧面後縁付近は一次衝突に加え、隣接翼前縁に衝突した粒子の二次衝突の影響によって、エロージョンが激しくなる。以上の傾向は全ケースで共通である。

CLの場合、二次衝突がミッドスパン側に集中するため、ミッドスパン側のエロージョンが激しくなり、RCLではエンドウォール側のエロージョンが激しくなる。CL1-3を比較すると、ミッドスパン付近の形状変化が穏やかなほど、二次衝突位置はスパン方向に広がるため、CL3では後縁付近のエロージョン深さの集中は比較的小さい。これはRCL1とRCL2の比較でも同様である。逆に、CL4, CL5, CL8のようなエンドウォール近傍の形状変化を抑えたケースでは、ミッドスパン付近の傾斜が急峻になり、粒子の二次衝突位置が著しくミッドスパンに集中し、エロージョンが激しくなる。特に、スタックラインの変曲点近傍では二次衝突が集中するため、顕著なエロージョンが発生する。同様にRCL1とRCL3の比較では、RCL3で二次衝突の集中による局所的なエロージョンが強められる。また、CL1-5とCL6-8の比較より、リーン角度が小さくなると、二次衝突位置がOriginal翼に近づくため、エロージョン深さもOriginal翼に近くなることが分かる。

4. 結言

リーンによるタービン静翼の耐エロージョン性向上に関する設計指針を得るため、11種類のリーン翼についてサンドエロージョン現象の数値シミュレーションを実施した。得られた知見は以下の通りである。

- ・本研究で対象としたタービン静翼では、Compound Leanで空力性能の向上、Reverse Compound Leanで空力性能が向上する場合と低下する場合が確認された。
- ・リーンを制御するスパン方向比によって空力性能に差が生じ、ミッドスパンから $\pm 10\%$ スパンの範囲を傾斜させないようにリーンさせる場合、エンドウォール近傍はリーンさせない場合において、損失低減効果が高い。
- ・本研究のリーン角度では、リーン角度が大きいほど、空力性能への影響が大きい。
- ・リーン翼ではOriginal翼よりも二次衝突の衝突角度が低くなるため、切削エロージョンの影響が大きくなる。延性材料であるIN718を材料とした場合、全てのリーン翼はOriginal翼よりもエロージョン量が増加した。
- ・リーン形状はエロージョン分布に大きく影響し、スタックラインの変曲点近傍にエロージョンが集中する。
- ・リーン角度が大きいほどエロージョン量の増加は大きくなる。

本研究では、エロージョンパラメータが既知のIN718を対象としたが、リーンによるエロージョン低減効果はCMCを想定しているため、今後は材料をCMCとした解析を行う。また、空力性能についてはリーン形状を有する複数の静翼についてエロージョン前の状態で比較を行ったが、エロージョン後については評価ができていない。リーン形状によってエロージョン分布が大きく異なるため、エロージョン後の空力性能の低下率にも影響を及ぼすことが予想される。エロージョン後の空力性能に関する比較については今後の課題としたい。

謝辞

本研究の一部は学術研究助成基金助成金：挑戦的萌芽研究16K14165，科学研究費補助金：若手研究（A）16H06067の助成を受けて行われた。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- (1) 科学技術振興機構，セラミックコーティング，https://www.jst.go.jp/sip/k03/sm4i/dl/pamph_c_j.pdf (accessed on 24 January, 2019)
- (2) Wen, S., Wang, J., Li, T., and Xi, G., Reducing Solid Particle Erosion of an Axial Fan with Sweep and Lean using Multidisciplinary Design Optimization, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C: Journal of Mechanical Engineering Science, Vol. 228, No. 14 (2014), pp. 2584-2603.
- (3) Yamane, T., Yamamoto, K., Enomoto, S., Yamazaki, H., Takaki, R., and Iwamiya, T., Development of a Common CFD Platform UPACS, Proceedings of the Parallel CFD 2000 Conference, (2000), pp. 257-264.
- (4) 畠谷尊明，鈴木正也，山本 誠，CFD共通基盤プログラムUPACSを用いたサンドエロージョンの数値計算，計算工学講演会論文集，Vol. 19, C-5-4 (2014), pp. 1-5.
- (5) Spalart, P. R. and Allmaras, S. R., A One-Equation Turbulence Model for Aerodynamic Flows, AIAA-1992-439 (1992), pp. 5-21.
- (6) Roe, P. L., Characteristic-Based Schemes for the Euler Equations, Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 18 (1986), pp. 337-365.
- (7) 嶋英志，構造/非構造CFDのための簡単な陰解法，第29回流体力学講演会講演集，(1997)，pp. 325-328.
- (8) Neilson, J. H. and Gilchrist, A., Erosion by a Stream of Solid Particle, Wear, Vol. 11, No. 2 (1968), pp. 111-122.
- (9) Suzuki, M., Inaba, K., and Yamamoto, M., Numerical Simulation of Sand Erosion in a Square-section 90-degree Bend, Journal of Fluid Science and Technology, Vol. 3, No. 7 (2008), pp. 868-880.
- (10) 宇宙航空研究開発機構，グリーンエンジン技術，<http://www.aero.jaxa.jp/research/ecat/greenengine/> (accessed on 21 January, 2019).
- (11) 田口秀之，田頭剛，石井達哉，山本武，山根敬，中村俊哉，次世代ジェットエンジンに適用するグリーンエンジン技術の研究開発，GTSJセミナー第46回資料集「ガスタービンおよびエネルギー関連技術の最新動向」，(2018)，pp.41-48.
- (12) Swar, R., Hamed, A., Shin, D., Woggon, N., and Miller, R., Deterioration of Thermal Barrier Coated Turbine Blades by Erosion, International Journal of Rotating Machinery, 601837 (2012), pp. 1-10.
- (13) MIL-E-5007D: Engine, Aircraft, Turbojet and Turbofan, General Specification For, US Military Specification (1973).
- (14) Sieverding, C.H., Recent Progress in the Understanding of Basic Aspects of Secondary Flows in Turbine Blade Passages, J. Eng. Gas Turbines Power, 107 (1985), pp. 248-257.

SiC/SiCセラミックス複合材料向け 耐環境・耐熱コーティング材の損傷挙動評価

Damage Analysis of Environmental/Thermal Barrier Coatings for SiC/SiC Ceramics Matrix Composites

根上 将大^{*1}
NEGAMI Masahiro

久間 康平^{*1}
KYUMA Kohei

井上 暢^{*1}
INOUE Toru

高木 健^{*1}
TAKAGI Takeshi

下村 育生^{*1}
SHIMOMURA Ikuo

東 誠^{*1}
AZUMA Makoto

小田 剛生^{*1}
ODA Takeo

井頭 賢一郎^{*1}
IGASHIRA Kenichiroh

ABSTRACT

SiC/SiC ceramics matrix composites (CMC) are considered to be promising materials for high temperature component in aero engines. Environmental/thermal barrier coatings (E/TBC) are used to prevent CMC from oxidation or recession. When sillous materials, which called CMAS (Calcium-Magnesium AluminoSilicate), are sucked into aero engines, it deposit on the surface of E/TBC and deteriorate E/TBC.

In this study, effects of CMAS on E/TBC at elevated temperature was investigated. Eight kinds of E/TBC samples including 8 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, 20 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, Gd₂Zr₂O₇, Yb₂Si₂O₇, Yb₂SiO₅ and Y₂Si₂O₇ were evaluated. For Gd₂Zr₂O₇, Yb₂SiO₅ and Y₂Si₂O₇, protective layer was formed, which prevent further penetration of CMAS. Yb₂SiO₅ exhibited the highest resistance to CMAS attack.

キーワード：ガスタービン，ジェットエンジン，CMC，耐環境コーティング，CMAS

Key words : Gas Turbine, Jet Engine, Ceramics Matrix Composites, Environmental Barrier Coatings, CMAS

1. はじめに

航空エンジンに対しては近年一層の環境性能，燃費性能の向上が求められており，キーパーツであるホットセクションの高温材料への要求も厳しくなっている。その解決策として，従来のNi基耐熱合金に対して軽量かつ耐熱温度を大幅に向上可能な次世代の構造材料として，SiC/SiCセラミックス複合材料（Ceramics Matrix Composites; CMC）の開発が進められている⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾。

SiC/SiC-CMCは，高流速の水蒸気環境においては酸化減肉が発生するため，燃焼雰囲気の水蒸気からSiC/SiC-CMCを保護するために耐環境コーティング（Environmental Barrier Coatings, EBC）や遮熱コーティング（Thermal Barrier Coatings, TBC）が適用される。これらコーティング材は実運用環境下で様々な要因による損傷を受けるが，近年特に問題となっているのが，吸入した無機不純物による損傷である⁽⁶⁾。無機不

純物は主としてCaO, MgO, Al₂O₃, SiO₂などの土壌成分を含み，これらを総称してCMAS（Calcium-Magnesium AlminoSilicate）と呼ばれている。CMASは1200℃前後の融点であるため，エンジン内で熔融し，高温部材のコーティング表面に付着する。付着したCMASはコーティングと反応したり，あるいはコーティング内に浸潤し，種々の損傷を引き起こす。近年では，各種のEBC, TBC材料のCMASとの反応挙動やそのメカニズムの報告が多数なされており⁽⁷⁾⁻⁽¹⁴⁾，一部のEBC, TBC材料ではCMASと添加希土類元素の反応で生じたアパタイトが効果的にCMAS侵入を抑制することなどが報告されている^{(11),(14),(15),(17)}。一方で，各種の材料を横断的に評価した例は少ない。そこで本研究では各種EBC, TBC材料のCMAS損傷挙動について調査した結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 コーティング試験片

試験用の基材には30 mm×20 mm×3 mmの多孔質アルミナの板を用いた。この基材に対して，各種EBC, TBC材料を大気プラズマ溶射（Atmospheric Plasma Spray, APS）法により施工した。施工膜厚は約0.2～0.3 mmと

原稿受付 2020年8月28日

査読完了 2021年4月8日

*1 川崎重工(株)

〒673-8666 明石市川崎町1-1

E-mail: negami_masahiro@khi.co.jp

した。Table 1に、今回の試験に供したコーティング試験片の一覧を示す。また、各試験片の溶射後の断面組織をFig. 1に示す。

Table 1 APS coating samples list

Symbol	Chemical Composition	Remarks
8YSZ	8 wt.%Y ₂ O ₃ -ZrO ₂	
20YSZ	20 wt.%Y ₂ O ₃ -ZrO ₂	
20YSZ-P	20 wt.%Y ₂ O ₃ -ZrO ₂	High porosity
GZO	Gd ₂ Zr ₂ O ₇	
GZO-P	Gd ₂ Zr ₂ O ₇	High porosity
YbDS	Yb ₂ Si ₂ O ₇	
YbMS	Yb ₂ SiO ₅	
YDS	Y ₂ Si ₂ O ₇	

2.2 CMAS

本試験では2種類の組成の異なるCMAS粉末を用いた。CMAS-Aは、33CaO-9MgO-13AlO_{1.5}-45SiO₂ mol%の組成のCMASであり、この組成は実際のターボシャフトエンジンから採取された試料の組成⁽⁷⁾をもとにしたものである。CMAS-Aは前述の組成の原料を秤量、混合したのち、1500℃で溶融し、粉碎して作製した。もう1つ

のCMAS材としてはAFRL-03 (Powder Technology Inc. 製)を用いた。AFRL-03は、米国空軍研究所が沿海環境におけるエンジン吸入物を想定して設計した粉末であり、その成分はTable 2に示す通りである⁽⁸⁾。

Fig. 2に各CMAS粉末のSEM像 (二次電子像) を示す。

2.3 CMAS反応試験

CMAS粉末をアセトンと混合してスラリー状にした後、コーティング試験片表面に塗布量が約40mg/cm²となるように均一に塗布した。

CMAS塗布後の試験片は大気雰囲気電気炉にて、1350℃で所定の時間の熱処理を行った。昇温、降温速度は約9℃/minとした。

2.4 反応後の評価

CMAS反応試験後、樹脂埋込後切断、研磨を行い、走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, SEM) による観察、及びEDX (Energy Dispersive X-ray spectroscopy) による組成分析を行った。なおSEM観察においては反射電子像を撮影した。

3. 実験結果と考察

コーティング試験片をCMAS-Aと1350℃/ 50 hの熱処理により反応させた試料の断面組織SEM像をFig. 3に、AFRL-03と1350℃/ 50 h反応させた試験片の断面組

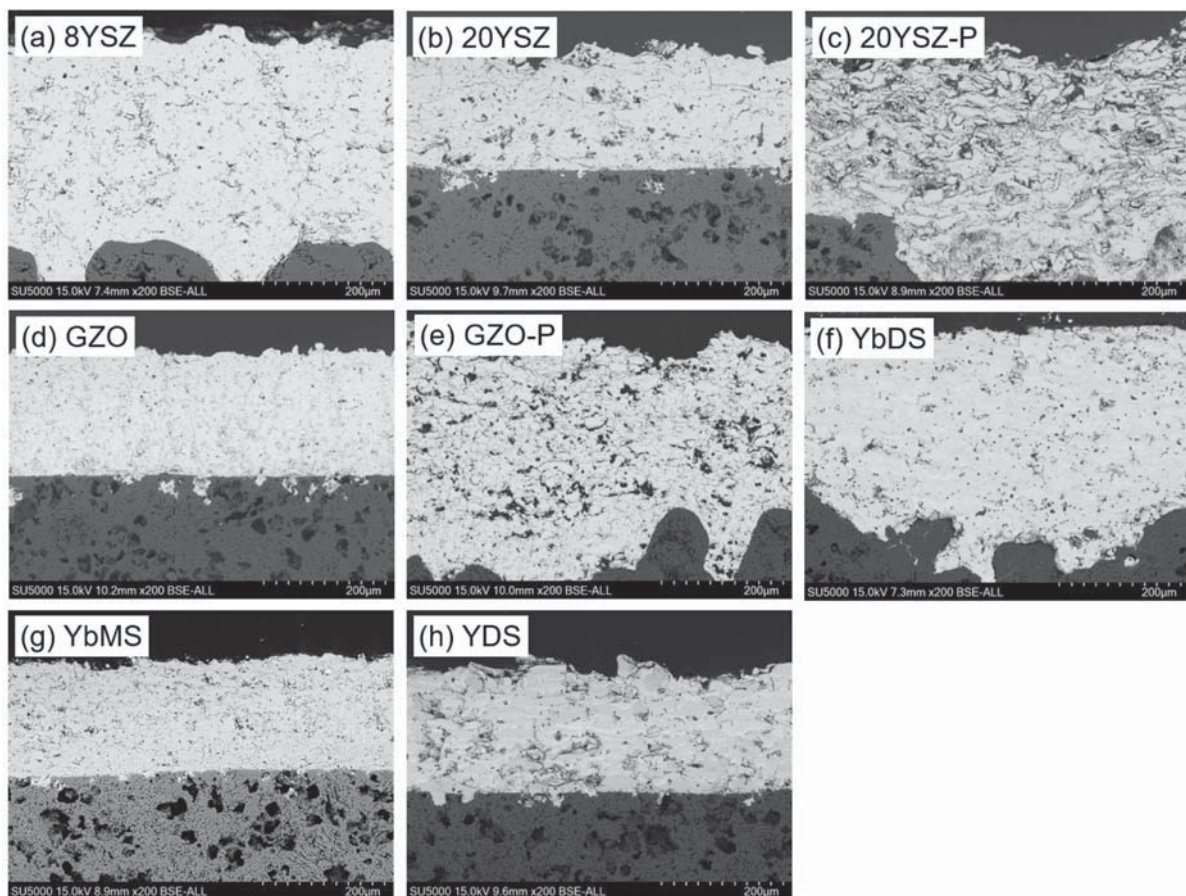


Fig. 1 Cross-sectional microstructure SEM images of APS coating samples, (a) 8 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, (b) 20 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, (c) 20 wt.%Y₂O₃-ZrO₂ (high porosity), (d) Gd₂Zr₂O₇, (e) Gd₂Zr₂O₇ (high porosity), (f) Yb₂Si₂O₇, (g) Yb₂SiO₅, (h) Y₂Si₂O₇

Table 2 Composition of AFRL-03 CMAS

Mineral	Chemical Composition	Amount [wt.%]
Quartz	SiO ₂	34
Gypsum	CaSO ₄ ·2H ₂ O	30
Aplite	NaAlSi ₃ O ₈	17
Dolomite	CaMg(CO ₃) ₂	14
Salt	NaCl	5

組織SEM像をFig. 4に示す。なお、CMAS-Aと反応させたYDS試験片、及びAFRL-03と反応させた20YSZ, GZO, YDS試験片においては皮膜の一部に剥離が生じたが、Fig. 3, Fig. 4では未剥離部の断面組織を示している。また、未剥離の試験片に関しては試験片中心付近の断面組織を評価した。以下では、材料種毎の反応の様相について述べる。

3.1 イットリア安定化ジルコニア

8YSZ, 20YSZ, 20YSZ-Pの試験片においては、下記のような変質が確認された。

8YSZでは、CMAS-A/AFRL-03のどちらのCMASとの反応後においても、皮膜全域が緻密化したほか、表層部に膨れ上がるような気孔が見られた。また、基材に垂

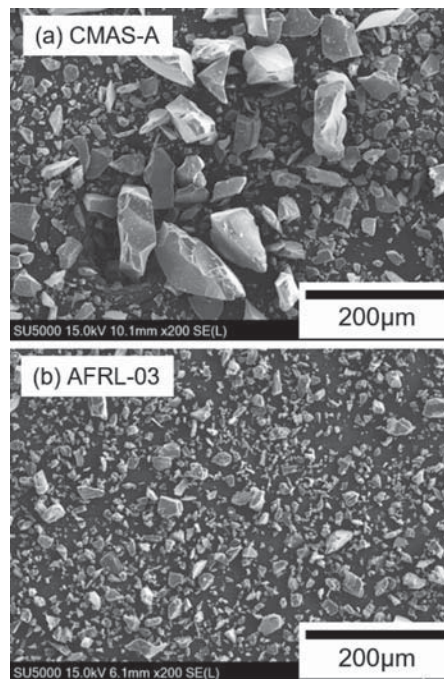


Fig. 2 SEM images of CMAS powders, (a) CMAS-A (33CaO-9MgO-13AlO_{1.5}-45SiO₂ mol%), (b) AFRL-03

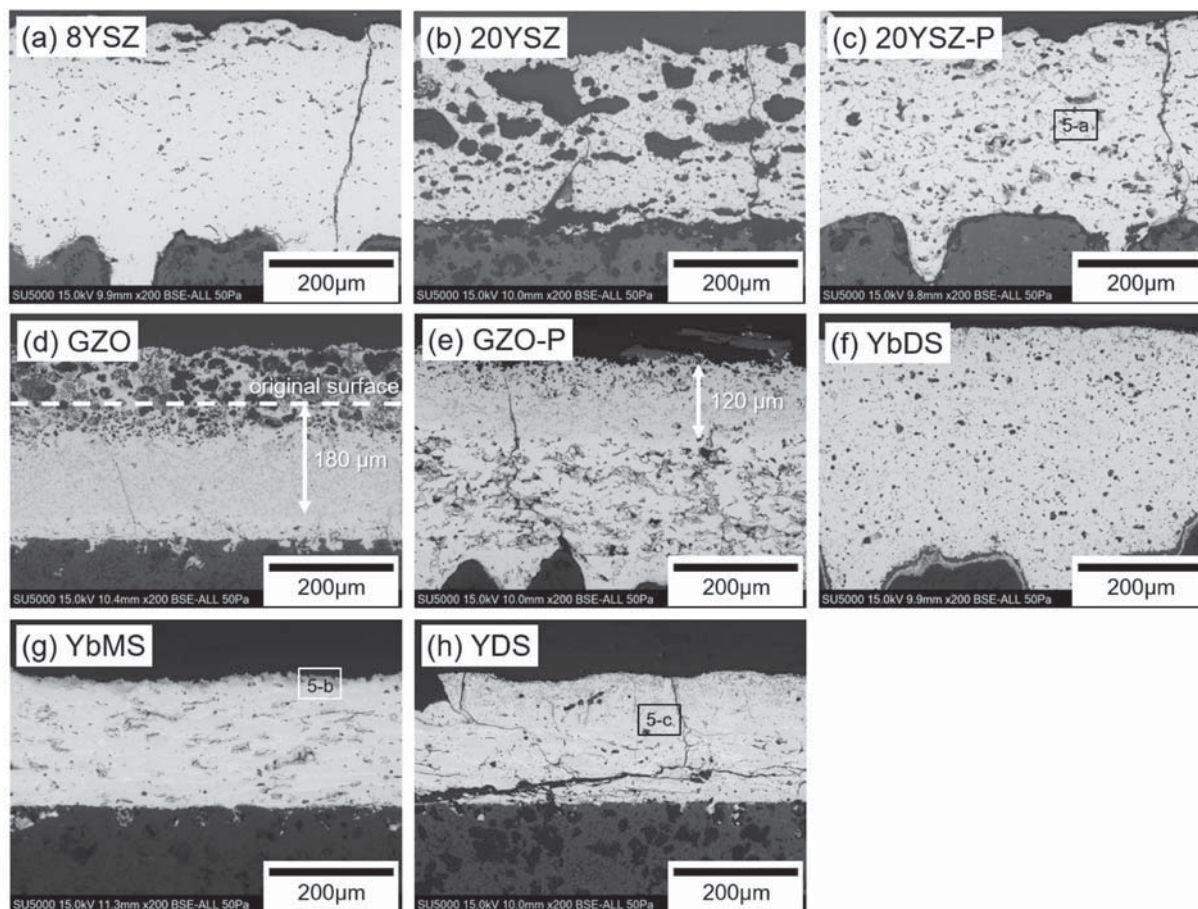


Fig. 3 Cross-sectional microstructure SEM images of APS coating samples reacted with CMAS-A (33CaO-9MgO-13AlO_{1.5}-45SiO₂) at 1350°C for 50 h, (a) 8 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, (b) 20 wt.%Y₂O₃-ZrO₂, (c) 20 wt.%Y₂O₃-ZrO₂ (high porosity), (d) Gd₂Zr₂O₇, (e) Gd₂Zr₂O₇ (high porosity), (f) Yb₂Si₂O₇, (g) Yb₂SiO₅, (h) Y₂Si₂O₇

直な方向のクラックも発生していた。20YSZ, 20YSZ-Pでは, CMAS-A/AFRL-03のどちらのCMASとの反応後においても, 皮膜全体に粗大な気孔が発生しており, またその程度は20YSZのほうが著しい。Fig. 5 (a)は20YSZP/CMAS-A試験片の膜厚中央付近の拡大SEM像(反射電子像)であり, 図中に示した点の元素分析の結果はTable 3に示している。EDXでの元素分析結果より, 反射電子像で暗く見える領域(①)はCMAS相, 明るく見える領域(②)は ZrO_2 相であると判断する。このような角のない ZrO_2 粒とその隙間に存在するCMAS相という組織は皮膜全体にわたって存在しており, アパタイトなどの他の結晶性反応物が生成している様子は膜のいずれの箇所でも確認されなかった。また, 20YSZ/CMAS-A, 20YSZ-P/AFRL-03, 20YSZ-P/AFRL-03でも同様の組織が観察された。

まず, 20YSZ, 20YSZ-Pに生じた粗大な気孔の発生原因について考察する。過去の研究において, イットリア安定化ジルコニア多孔体に侵入したCMASは比較的径の大きい気孔には充填しにくいことが実験的に示されている⁽⁹⁾。したがって, CMAS侵入後も一定量の気孔が未充填で残る可能性がある。また, Fig. 5 (a)に示す通りCMASはほとんどの ZrO_2 粒の間に入り込んでおり, 試

験温度下では皮膜全体が軟化, あるいは半溶融のような状態となっていた可能性がある。このような状態の皮膜内で, 残留気孔が表面エネルギーを下げるために合体していった結果, このような粗大な気孔が形成されたのではないかと考えている。

次に, Y_2O_3 安定化剤の添加量の影響について検討する。8 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 (8YSZ) と20 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 (20YSZ, 20YSZ-P)と比較すると, 8YSZでは皮膜表層付近でのみポーラス化が進展しているが, 20YSZ, 20YSZ-Pではともに皮膜全域にわたってポーラス化が生じている。また, CMAS相が皮膜全体にわたって存在しており, ZrO_2 がCMAS内に析出したような構造となっているなど, 変質の程度が激しい。

ZrO_2 への Y_2O_3 安定化剤の添加量について, Krauseらは48wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 が高いCMAS耐性を持つことを示しており, その要因として $Ca_2Y_8(SiO_4)_6O_2$ アパタイト形成によるCMAS侵入阻止効果を挙げている⁽¹¹⁾。一方Costaらは8 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 と12wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 のCMAS耐性を評価し, 12 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 のほうがCMAS侵入深さが大きかったと報告し, その原因として, 安定化剤による酸素空孔の増加を挙げている⁽¹²⁾。

以上の先行研究の結果を踏まえると, 今回の試験で評

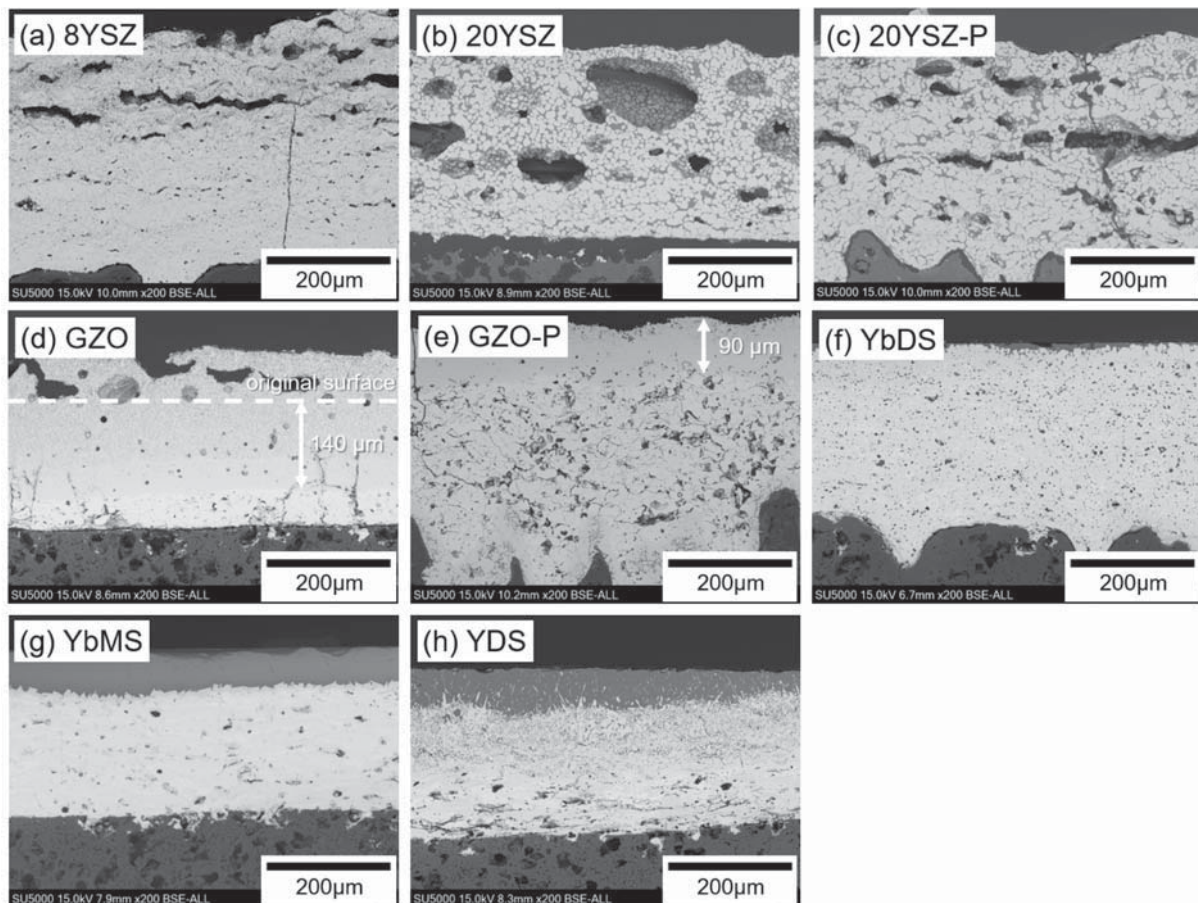


Fig. 4 Cross-sectional microstructure SEM images of APS coating samples reacted with AFRL-03 CMAS at 1350°C for 50 h (a) 8 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 , (b) 20 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 , (c) 20 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 (high porosity), (d) $Gd_2Zr_2O_7$, (e) $Gd_2Zr_2O_7$ (high porosity), (f) $Yb_2Si_2O_7$, (g) Yb_2SiO_5 , (h) $Y_2Si_2O_7$

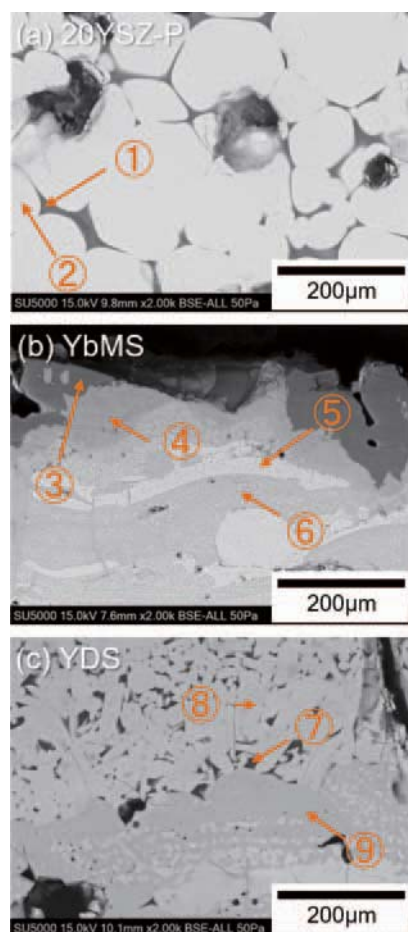


Fig. 5 Higher magnification cross-sectional microstructure SEM images of APS coating samples reacted with CMAS-A at 1350°C for 50 h. (a) 20YSZ-P sample (Fig. 3 (c) 5-a), (b) YbMS sample (Fig. 3 (g) 5-b), (c) YDS samples (Fig. 3 (h) 5-c)

価した20wt.%程度の Y_2O_3 の添加はアパタイト形成には不十分であり、CMAS侵入抑制効果がないと推定される。さらに安定化材の増加はCMAS拡散を促進し、より急速なCMAS侵入を生じさせたと考えられる。

3.2 ガドリニウムジルコネート ($Gd_2Zr_2O_7$)

Fig. 3 (d), Fig. 4 (d) に示す通り、GZO試験片ではCMASの侵入による緻密化、変質は初期の表面位置から140～180 μm で止まっている。また、Fig. 3 (e), Fig. 4 (e) に示す通り、高気孔率のGZO-P試験片では、90～120 μm と、より侵入深さは小さい。一般的なTBC材料である8 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2 では気孔率が低いほうがCMAS侵入に対する耐性が高いと報告されている⁽¹³⁾が、異なる結果となった。この原因は、アパタイトの形成挙動との関連が推測される。 $Gd_2Zr_2O_7$ はCMASとの反応により $Ca_2Gd_8(SiO_4)_6O_2$ アパタイトを形成し、この緻密質のアパタイトによりCMAS侵入に対し高い耐性を持つとされている⁽¹⁴⁾。気孔率の高いGZO-Pの試験片においては、CMASがより容易に皮膜内に侵入すると考えられるが、これにより急速にアパタイトを形成することにより、CMAS侵入がかえって抑えられたのではないかと推測される。

また、 $Gd_2Zr_2O_7$ に対するCMAS侵入性は、CMAS組成のCa/Si比の影響を受けるとの報告がある。Dengらは、本試験のCMAS-Aと同じ組成のCMAS材と、CaOを減らしたCMAS材の $Gd_2Zr_2O_7$ に対するCMAS侵入性を比較し、CaOを減らしたCMAS材のほうが侵入性が高いことを示している⁽¹⁵⁾。一方、今回の試験においてCMAS-AのCa/Siモル比は0.74に対し、AFRL-03のCa/Siモル比は0.41であるが、侵入深さは小さくなっている。この差異の原因であるが、この原因は、両者の融点の差に起因すると推定される。すなわち、CMAS-Aの融点1240°C⁽¹⁴⁾に対し、AFRL-03の融点は1140°C⁽¹⁶⁾と低く、試験温度の1350°CではAFRL-03のほうがより粘度が低く容易に皮膜気孔内に侵入することができ積極的にアパタイトを形成したことにより、CMAS侵入が抑えられた可能性がある。

Table 3 Elemental composition analyzed by EDX (at.%), Region number corresponding to the number in Fig. 5

Sample	Region	Ca	Mg	Al	Si	Y	Yb	Zr	Estimated phase
20YSZ-P	①	19	4	33	22	5	-	17	CMAS glass
	②	-	-	28	5	16	-	52	ZrO_2
YbMS	③	17	20	-	28	-	34	-	CMAS glass
	④	15	-	-	36	-	49	-	Yb-Ca-Si apatite
	⑤	-	-	-	9	-	91	-	Yb_2O_3
	⑥	-	-	-	28	-	72	-	Yb_2SiO_5
YDS	⑦	6	3	25	50	16	-	-	CMAS glass
	⑧	8	3	11	39	39	-	-	Y-Ca-Si apatite
	⑨	1	-	10	50	39	-	-	$Y_2Si_2O_7$

※EDX quantitative analysis values are corrected to that sum of all cations concentration should be 100 at.%.

3.3 希土類シリケート ($\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, Yb_2SiO_5 , $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$)

YbDS, YbMS, YDSの3種のサンプルのCMAS-Aとの50hr反応試験後の断面について、SEM-EDXによるSi, Caのマッピングを行った結果をFig. 6に示す。YbDSは皮膜とアルミナ基材の界面にCaが濃化しており、界面部までCMASが浸透したと考えられる。一方、Caの侵入深さから判断するとYDSのCMAS反応層厚さは約90 μm である。さらにYbMSの反応層厚さは約20 μm であり、今回試験した試験片の中ではYbMSが最もCMASの侵入深さが小さかった。

Turcerらは、焼結 $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ のCMAS侵入挙動を評価し、 $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ は $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ とは異なり、CMASとの反応によるアパタイトをほとんど形成せず、CMASが $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 粒界を通して拡散すること、またCMASが侵入した $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ には膨張が生じ、‘blister’ 亀裂を生じることを示している¹⁷⁾。今回の実験では‘blister’は確認されなかったが、YbDS/CMAS-Aの試験片は試験後に大きく湾曲しており、(Fig. 7) 皮膜の膨張による圧縮応力の発生によるものと推測できる。

YbMS, YDSの表面付近の拡大像をFig. 5 (b), (c)に、図中の各点のEDX元素分析結果をTable 3に示

す。元素分析の結果から、いずれの試験片においても $\text{Ca}_2\text{RE}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ (RE = Yb, Y) アパタイトが形成されていると考えられる。一方でその様相は異なり、YbMSでは皮膜表面に沿ってアパタイトが形成し、その上部にCMASが残っているのに対し、YDSではアパタイト粒子がCMAS中に分散した様な構造となっている。これは、モノシリケートであるYbMSのほうがCMASとの反応でアパタイト形成した際に残留するSiが少ないためと考えられる。形成したアパタイトのこのような形態の違いが、CMASの侵入深さの違いの要因と考えられる。

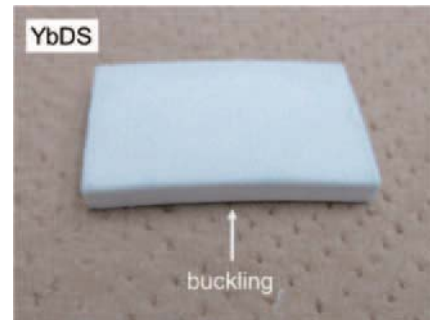


Fig. 7 A Photograph of YbDS samples reacted with CMAS A

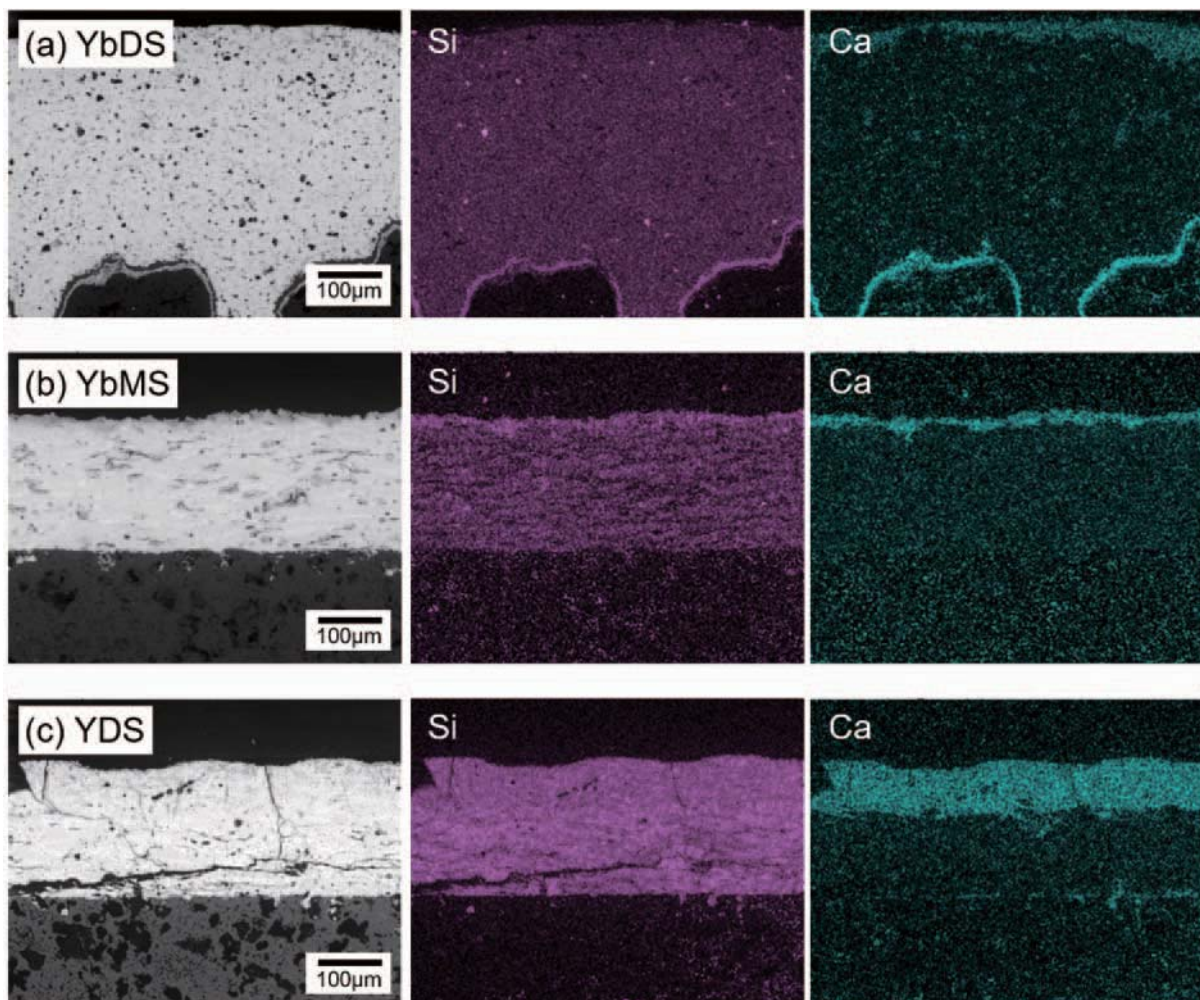


Fig. 6 EDX mapping results of Silicate coating samples reacted with CMAS-A ($33\text{CaO}-9\text{MgO}-13\text{Al}_2\text{O}_3-45\text{SiO}_2$) at 1350°C for 50 h.

4. まとめ

今回の実験結果から、CMASの侵入深さという観点で各種EBC, TBC材料の耐CMAS性を評価した場合、耐CMAS性が高いものから順に、

- ① Yb_2SiO_5
- ② $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$
- ③ $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, 8 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2
- ④ 20 wt.% Y_2O_3 - ZrO_2

という序列付けになると考えられる。①, ②のグループの材料ではアパタイト等の結晶性反応物の生成によりCMASの侵入が抑えられていることが確認された。一方で③, ④のグループの材料では結晶性反応物がまったく生成しないか、あるいはCMAS侵入を防ぐことができるだけの十分な量かつ連続的な結晶性反応物層が形成しないために、皮膜内部までCMASが浸透する挙動が見られた。

また、CMASの組成が皮膜への侵入挙動に与える影響については複雑であり、アパタイト形成の有無によっても異なる挙動を示すと考えられる。本報ではその現象の一部を考察するにとどめた。実際のCMASの組成についてはある程度の変動が予想され、この影響については個別の皮膜材料に対してより詳細に検討する必要があると考えられる。

なお、今回は侵入性という観点からのみ耐CMAS性を評価したが、CMAS侵入がEBC, TBCに与える損傷の程度はCMASの侵入深さだけに依存するとは考え難く、CMAS侵入が熱サイクルによる剥離特性にどのような影響を与えるかを評価することが、今後の課題である。

5. 謝辞

本研究の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務の結果得られたものであり、ここに記すとともに、謝意を表する。

参考文献

- (1) 若井史博, 水野賢一, 吉田克己, 北岡諭, エンジニアリングセラミックスの研究開発動向と将来展望, セラミックス, Vol. 51 (2016) pp. 826-829.
- (2) 井頭賢一郎, 松原剛, 今村亮, セラミック複合材料による高温部品の研究 (2) 燃焼器ライナの試作研究, 日本ガスタービン学会誌, Vol. 30 (2002) pp. 156-159.
- (3) 佐藤光彦, 中山裕敏, 関川貴洋, 井頭賢一郎, 中村武志, SiC/SiC複合材料の高効率ジェネレーターの展開に向けて, 材料, Vol. 57, (2008) pp. 959-964.
- (4) 井頭賢一郎, 西尾光司, 日野春樹, 岡崎章三, 繊維/マトリックス界面にCVD-SiC層を有するSi-Ti-C-O繊維/SiC複合材料の製作と強度特性, 日本金属学会誌, Vol. 62, (1998), pp. 766-773.
- (5) 井頭賢一郎, 西尾光司, 日野春樹, 岡崎章三, Si-Ti-C-O Fiber/SiC複合材料の高温強度の耐久性とその劣化機構, 日本金属学会誌, Vol. 60, (1996), pp. 1229-1235.
- (6) Levi, C. G., Hutchinson, J. W., Vidal-Sétif, M., Jonson, C. A., Environmental degradation of thermal barrier coatings by molten deposits, MRS Bulletin, Vol. 37 (2012), pp. 932-941.
- (7) Borom, P. M., Jonson, C. A., Peluso, L. A., Role of environment deposits and operating surface temperature in spallation of air plasma sprayed thermal barrier coating, Surface and Coatings Technology, Vol. 86-87 (1996), pp. 116-126.
- (8) Leonov, B. S., Wu, Y., Limbach, C. M., Characterization of Mineral Aerosol Dusts by Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, AIAA Aviation Meeting, (2019), pp. 2019-3247.
- (9) Shan, X., Zou, Z., Gu, L., Yang, L., Guo, F., Zhao, X., Xiao, P., Buckling failure in air-plasma sprayed thermal barrier coatings induced by molten silicate attack, Scripta Materialia, Vol. 113 (2016), pp. 71-74.
- (10) Shan, X., Luo, L., Chen, W., Zou, Z., Gu, F., He, L., Zhang, A., Zhao, X., Xiao, P., Pore filling behavior of YSZ under CMAS attack: Implications for designing corrosion-resistant thermal barrier coatings, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 101 (2018), pp. 5756-5770.
- (11) Krause, A. K., Garces, H. F., Herrmann, C. E., Padture, N. P., Resistance of $2\text{ZrO}_2 \cdot \text{Y}_2\text{O}_3$ top coat in thermal/environmental barrier coatings to calcia-magnesia-aluminosilicate attack at 1500 °C, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 100 (2017), pp. 3175-3187.
- (12) Costa, G. C. C., Zhu, D., Kulis, M. J., Acosta, W. A., Ghoshal, A., Reactivity between rare-earth oxides based thermal barrier coatings and a silicate melt, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 101 (2018), pp. 3674-3693.
- (13) 林勇貴, Lokachari, S., 山岸郷志, 岡崎正和, 深沼博隆, 大気プラズマ溶射遮熱コーティングのCMAS損傷発達挙動に及ぼすトップコート溶射条件の影響, 材料, Vol. 66, No. 2, (2017), pp. 80-85.
- (14) Kramer, S., Yang, J., Levi, C. G., Infiltration-Inhibiting Reaction of Gadlinium Zirconate Thermal Barrier Coatings with CMAS Melts, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 91 (2008), pp. 576-583.
- (15) Deng, W., Fergus, J. W., Effect of CMAS Composition on Hot Corrosion Behavior of Gadlinium Zirconate Thermal Barrier Coating Materials, J. Electrochem. Soc., Vol. 164 (2017), pp. C526-531.
- (16) Ghoshal, A., Walock, M. J., Murugan, M., Mock, C., Bravo, L., Pepi, M., Governing Parameters Influencing CMAS Adhesion and Infiltration into Environmental / Thermal Barrier Coatings in Gas Turbine Engines, Proceedings of ASME Turbo Expo 2019, GT2019-92000.
- (17) Turcer, L. R., Krause, A. R., Garces, H. F., Zhang, L., Padture, N. P., Environmental barrier coating ceramics for resistance against attack by molten calcia-magnesia-aluminosilicate (CMAS) glass: Part II, β - $\text{Yb}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ and β - $\text{Sc}_2\text{Si}_2\text{O}_7$, J. Euro. Ceram. Soc., Vol. 38 (2018), pp. 3914-3924.

静止フィンを用いた回転ラビリンスシールのフラッタ抑制に関する検討

A Study of Flutter Suppression of Rotating Labyrinth Seal Utilizing Stator Fin

三浦 聡允^{*1}
MIURA Toshimasa

阪井 直人^{*1}
SAKAI Naoto

今井 卓也^{*2}
IMAI Takuya

酒井 祐輔^{*2}
SAKAI Yusuke

ABSTRACT

In aero engines, a rotating labyrinth seal is commonly used to reduce the flow leakage. It is susceptible to flutter vibration since its lower stiffness. The aim of this study is to investigate the way to suppress it effectively while improving the flow leakage performance. To realize this, stator fin is introduced at upstream and downstream location of the rotor seal fins and its effects of the flutter suppression are evaluated utilizing one-way fluid-structure interaction (FSI) simulation. The simulation results show that upstream stator fin significantly improves the aeroelastic stability and the detailed mechanism to enhance the stability is revealed. Through this study, a new method to suppress the flutter with high leakage performance is established.

キーワード：ラビリンスシール，空力弾性，フラッタ，漏れ流れ，流体構造連成解析，受動制御

Key words : Labyrinth Seal, Flutter, Flow Leakage, Fluid Structure Interaction Simulation, Passive Control

1. はじめに

ターボ機械では回転部品と静止部品の間において，高圧領域から低圧領域にかけて漏れ流れが発生して機器の性能低下の一因となる。一般的には，この漏洩を抑制して高性能を確保するためにラビリンスシールが使用される。航空エンジンにおいては，燃費向上を目指してシール部品の軽量化が迫られるため，シール部品においてもフラッタによる振動問題が生じやすい⁽¹⁾⁻⁽³⁾。

ラビリンスシール部品で発生するフラッタは，Alford⁽¹⁾によって1960年代に初めて確認され，シールの支持位置によりフラッタの発生有無が決まることが報告された。より詳細なフラッタ発生条件は，Abbot⁽⁴⁾によって詳細に研究されており，シール固有振動数 f_m とキャビティ内部音響周波数 f_{ac} の比と支持位置の関係が大きく発生有無に影響を及ぼすことが示された。具体的には，シール固有振動数が音響周波数よりも高い場合は，高圧空気側で支持されたシールがフラッタを起こしやすい。逆に音響周波数の方が高い場合は，低圧側から支持されると不安定となりやすい。また，シールフィン先端部のクリアランス絶対値や各フィンにおけるクリアランス分布も安定性に大きな影響を及ぼす事が確認されている^{(3),(5),(6)}。

一般的にはシールクリアランスが小さくなるほどフラッタが発生しやすい。フラッタ発生条件だけでなく，発生の物理的メカニズムについても研究が行われてきており，実験的&理論的アプローチによる研究が多いが，近年ではコンピュータの計算能力の進歩に伴い，流体解析（CFD）と構造解析を連成させた数値解析によるアプローチが増えてきている⁽⁶⁾⁻⁽¹⁰⁾。

過去の研究によって，シールフラッタの発生条件や物理メカニズムについては多くの知見が得られている一方で，制御方法に関する研究は例が少ない。制御法の研究では主に回転シールを対象に形状の変更を行うことやダンパーを設置するなどの検討に限られている^{(6),(9)}。本検討では，回転シール部の前後領域静止壁にフィンを設定することによって，シールフラッタの抑制を試みた。検討対象のシールは，既に川崎重工業におけるシールフラッタ試験装置⁽⁶⁾にてフラッタ発生が確認されているシールを用いた。安定性評価には，流体解析と構造解析を連成させた連成解析手法を用い，フラッタ抑制効果と共に漏洩量についても評価を行った。

記号

A：シール表面積

B：振動振幅

G：質量流量

m：シール質量（Fig. 1 (a) に示す子午面部全体の質量）

T：振動1サイクル時間

原稿受付 2020年8月24日

査読完了 2021年4月8日

*1 川崎重工業(株) 技術研究所

*2 川崎重工業(株) 航空宇宙システムカンパニー
〒673-8666 明石市市川崎町1番1号

f : 振動周波数
 N : シール回転数
 ND : 節直径数 (Nodal Diameter)
 P : 圧力
 v : 流速
 t : 時間
 a : 音速
 π : シール圧力比 (出口圧力/入口圧力)
 E : 運動エネルギー
 δ : 対数減衰率
 u : 滑り速度
添え字
in : シール入口
out : シール出口
max : 最大値
F : Forward mode
B : Backward mode

2. 解析検討方法

2.1 検討を行うラビリンスシール

本稿で検討に用いたシール形状をTable 1, Fig. 1にまとめる。Fig. 1 (b)は、不安定となる振動モードの変位パターンを示している。シールはストレートタイプでフィン数4の形状となっている。当シールは、テストリグにおける評価試験にて2節直径 (Nodal Diameter, 以下ND) モードの進行波、後退波モードにてフラッタが発生することが確認されている⁽⁶⁾。本稿でフラッタ抑制を試みるために設けられた静止壁側のフィン形状をFig. 2に示す。回転シールの上流側 (Case A) 及び下流側 (Case B) に静止壁側からフィン設けることによって、2NDモードのフラッタ及び漏れ流れの抑制を試みた。

Table 1 Specification of tested Labyrinth seal

Number of fin	4
Fin clearance	200 μ m
Support location	Low pressure side

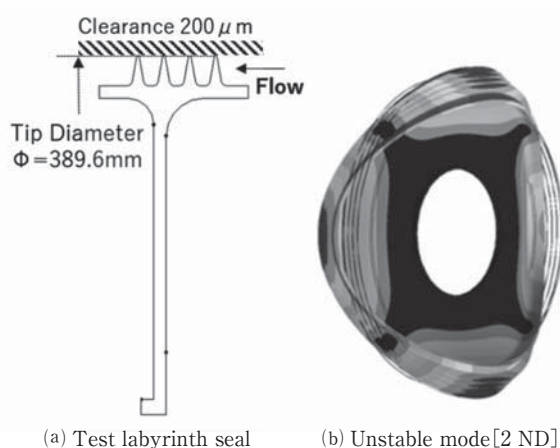


Fig. 1 Test Labyrinth seal and unstable vibration mode

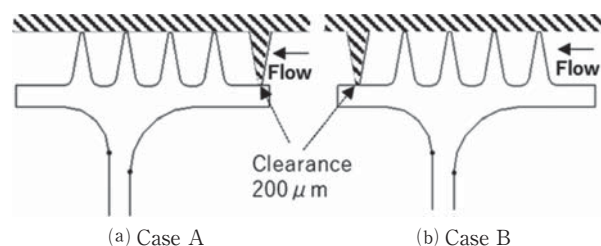


Fig. 2 Geometry of stator Fin

2.2 フラッタの解析評価手法

フラッタ解析評価に用いた解析評価フローをFig. 3に示す。解析時間と精度の関係から、流体解析と構造解析を組み合わせた1-way FSI解析によって評価を行った。解析検討には、ANSYS社のANSYS CFX及びANSYS Mechanical V.2019R3を使用した。解析では、まず初期段階としてプリストレスモーダル解析によって、対象となるモード変形パターンと初期変位、振動周波数などの情報を抽出する。抽出された変形パターンは前進波、後退波モードに変換して流体ソルバへインポートを行う。流体ソルバではインポートされた情報を元に、メッシュモーフィングを使用した非定常解析を行い、シールに作用する1振動サイクル当たりの空力仕事 W_{cyc} を式(1)から算出する。微小振動理論⁽¹⁾の線形仮定より、空力仕事 W_{cyc} と振動のエネルギー (E_{max}) の比から空力減衰を評価する手順となっている。

$$W_{cyc} = \int_{t_0}^{t_0+T} \int_{A_{su}} \rho v n \, dA dt \quad (1)$$

$$\delta = \frac{-W_{cyc}}{2E_{max}} \quad (2)$$

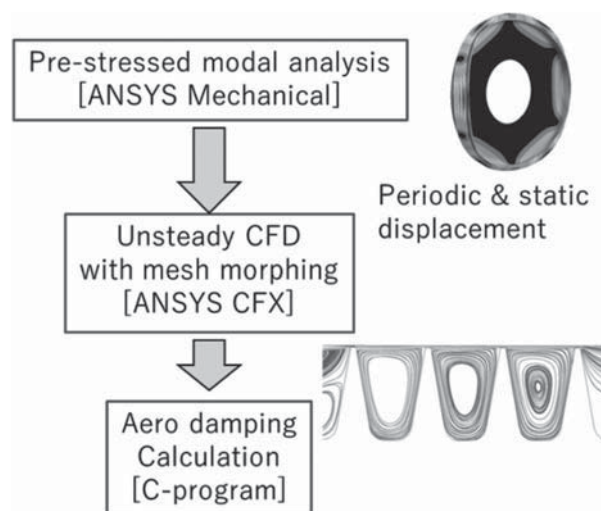
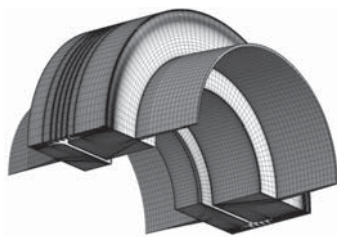


Fig. 3 Simulation of stability evaluation [one-way FSI]

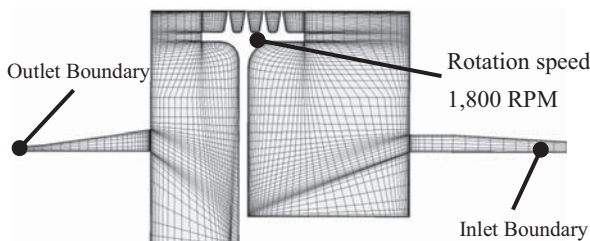
モーダル解析及び流体解析の解析領域及び条件をTable 2, Fig. 4～5に示す。試験でフラッタが確認されたシール前後の圧力比2.8, シール回転数1,800rpm条件で安定性評価を実施した。流体解析では, 解析負荷を低減させるために変形モードの周期対称性を利用して1/2モデルを採用している。フィン先端部の最小格子幅は $12.5\mu\text{m}$ としており, スパン方向に9nodeを設けている。乱流モデルはSSTモデルを使用しており, 壁関数は対数則ベースモデルを利用した。当手法で, 定量的に高い精度でシールの静特性と動特性の評価が可能であることが, 過去の研究で確認されている⁽⁶⁾。

Table 2 Boundary condition of CFD

Location	Item	Value
Inlet boundary	Total pressure	0.28[MPaA]
	Total temperature	297.15[K]
	Flow direction	Normal to boundary
Outlet boundary	Static pressure	0.10[MPaA]
Wall	Labyrinth seal	Rotation speed 1,800rpm Non-slip, Adiabatic
	Other walls	Non-slip, Adiabatic



(a) Overall View (1/2 model for 2 ND mode)



(b) Cross sectional view

Fig. 4 Computational domain of flow simulation

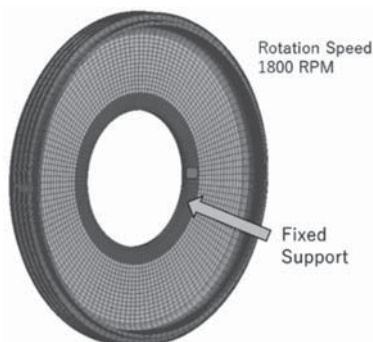


Fig. 5 Simulation settings[Modal analysis]

3. 解析評価の結果と考察

3.1 安定性の評価結果

FSI解析によって評価された空力減衰の比較をTable 3に示す。実験の静止時打撃試験で計測された2 NDモードの構造減衰は $\delta=0.0082$ 程度であったため, Original形状ではTotal減衰値が負となりフラッタの発生を計算で予測できている結果となった。振動周波数についても試験で計測された2 NDモードのフラッタ発生時振動周波数は335Hzとなり, 計算で予測された342Hzと比較的良好く一致する結果を得た。シール上流側にフィン設けたケースでは, 空力減衰の値が正の値になっており2 NDモードのフラッタを効果的に抑制することができている。一方で, 下流側にフィン設けたケースでは負減衰の程度がより強くなっており, より不安定化する結果となった。安定性が変化した要因を確認するために, シール各部位における無次元化された空力仕事 W_{norm} (式(3))の分布をFig. 6にまとめる。空力仕事の無次元化には, 最大変位量 B_{max} , シール質量 m を用いている。静止側壁からのフィンを設けたことによって, 新たにキャビティが形成される上下流の壁 (U-wall, D-wall) において, 空力仕事が大きく増減している様子を確認することができる。当部位の空力仕事変化によって系全体の安定性変化が生じていることを確認できた。

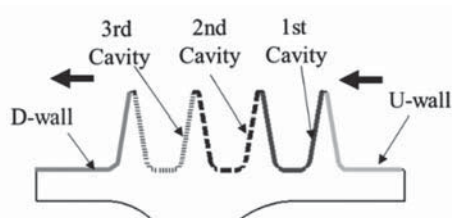
$$W_{\text{norm}} = \frac{W_{\text{cyc}}}{m(2\pi f_{B_{\text{max}}})^2} \quad (3)$$

過去に報告された制御手法⁽⁶⁾では, 特定のNDモードを制御によって安定化させると, 他のNDモードが不安定となるケースが報告されている。今回導入した上流側のフィンによって, 2 NDモード以外が不安定化していないかを同様の解析手法を用いて確認した。1～4 NDモードの進行波, 後退波それぞれのモードの空力減衰評価結果をFig. 7に示す。Case Aでは2 ND以外の全てのモードでも空力減衰が正の値を示しており, 安定性が悪化していない結果が得られた。特に3 ND以上の節直径モードについては, 静止フィン設置前と減衰の値が大きく変わらないことが確認された。5 ND以上のモードについては4 NDと同様の変形パターンと周波数比 f_m/f_{ac} を示す為, 同様の傾向を示すと考えられる。以上から, 当制御法によって全NDモードのフラッタを効果的に抑制できることが確認された。

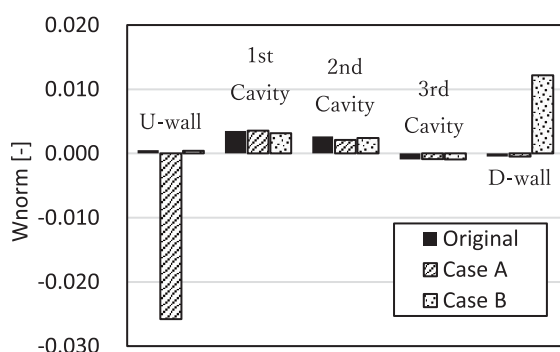
計算された空力減衰の値とシール固有振動数と音響周波数比 f_m/f_{ac} の関係をFig. 8に示す。シールキャビティ内部の音響周波数については, 以下の式(4)を用いて算出を行っている。ここでの滑り速度 u については, CFDの計算結果を用いて算出を行った。静止フィンが存在しないOriginal形状では, 周波数比が1より小さいモードは不安定となっている。一方で周波数比が1より大きいモードは全て安定となっており, 本シールは低圧側で支持されているため, Abbotの安定性判断基準に従う結果を示した。一方で, 静止フィンを設けたケースでは, 周波数

比と安定性に関する明確な傾向が見られない結果となった。特に音響周波数とシール固有振動数が近いモードでは、空力減衰の特性が大きく変化している。同様の傾向は過去に実施された研究でも報告されている⁽⁶⁾。以上の検討結果から、静止フィンがシール周りに存在するケースでは、Abbotの安定性判断法を適用することが難しいことが分かった。これは、Abbotの検討では安定性計算時に回転するフィン間のキャビティにおける空力仕事のみが考慮されており、今回のような静止フィンと回転フィン間のキャビティの仕事が加味されないためである。下流側にフィンを設けたケースは、安定性を大きく損なう結果を示したため、フラッタ抑制の観点からは静止フィン設置位置は設計時に十分に配慮する必要があることが判明した。

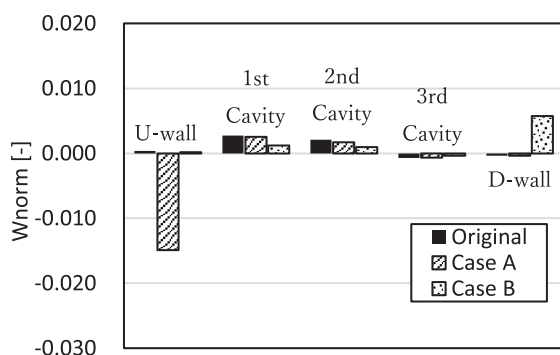
$$f_{ac} = \frac{ND(a \pm u)}{2\pi R} \quad (4)$$



[a] Surface to evaluate aerodynamic work



[b] 2 ND forward mode



[c] 2 ND backward mode

Fig. 6 Distribution of W_{norm}

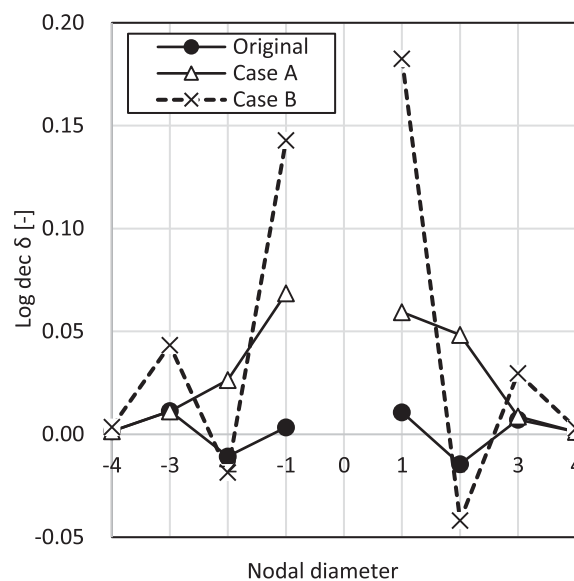


Fig. 7 Aerodynamic damping

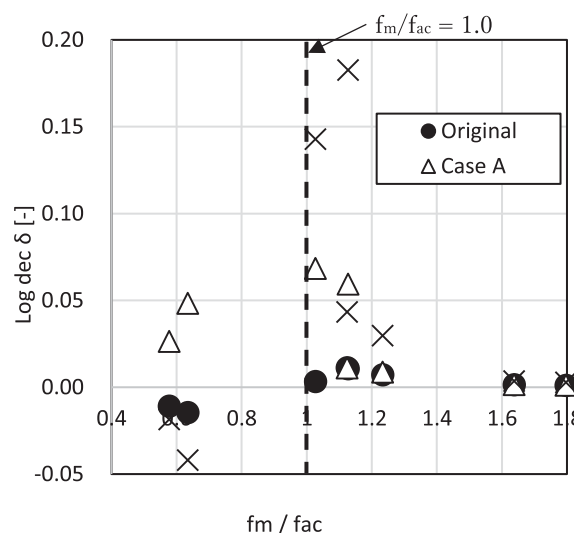


Fig. 8 Relationship between δ and f_m / f_{ac}

Table 3 Simulated aerodynamic damping (Log-dec)

Mode	Original	Case A	Case B
2 ND forward	-0.0145	0.0484	-0.0419
2 ND backward	-0.0107	0.0264	-0.0185

3.2 安定性向上のメカニズム分析

静止フィンの設置によって安定性が変化したメカニズムをより詳細に分析するため、各フィン前後の圧力変動レベル、及びシール変位とシール内部圧力の位相差をFig. 9にまとめる。フィンを設けたケースでは、回転フィンと静止フィンの間に新たなキャビティが形成されるため（図中のUp、Downの部分）、シール変位に伴って比較的高レベルの圧力変動が生じている。上流側に静止フィンを設けた場合は、回転シールの初段フィン上流部に働く軸方向の力が変位に対して約90°遅れた位相となるため、この部位にて正の減衰力を発生させることが

分かった。一方で下流側にフィンを設置した場合は、回転シールの最下流フィンに作用する軸方向の力の向きが前者とは逆になるため、力と変位の位相差が -90° となり負の減衰力を発生させる。このため、Case AとBでは真逆の特性を示すことが分かった。シール周りのマッハ数分布をFig. 10に示す。何れのケースも最下流のフィン Tip部でマッハ数が最大となっており、最大マッハ数は1を下回っている。Cavity内部マッハ数の分布が大きい場合は、複雑な仕事分布を示すことが報告されている⁽⁸⁾が、本検討ではキャビティ内部で比較的一様なマッハ数分布となっており、周方向圧力場の伝播にキャビティ内部で大きな分布が生じない条件となっている。

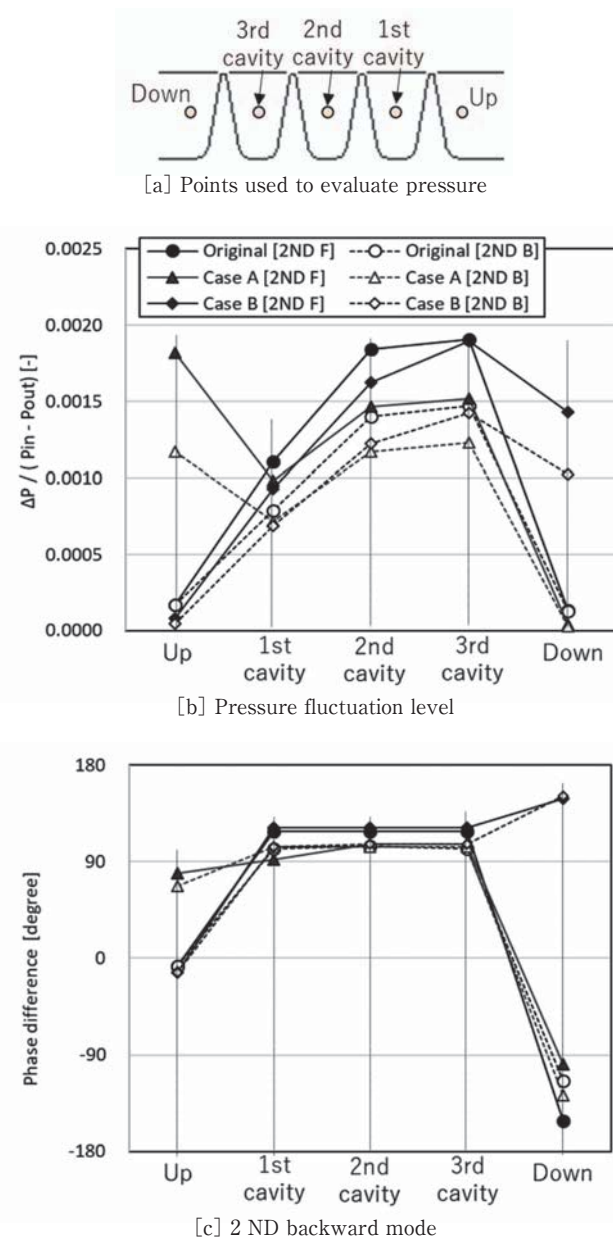


Fig. 9 Pressure fluctuation level and phase difference

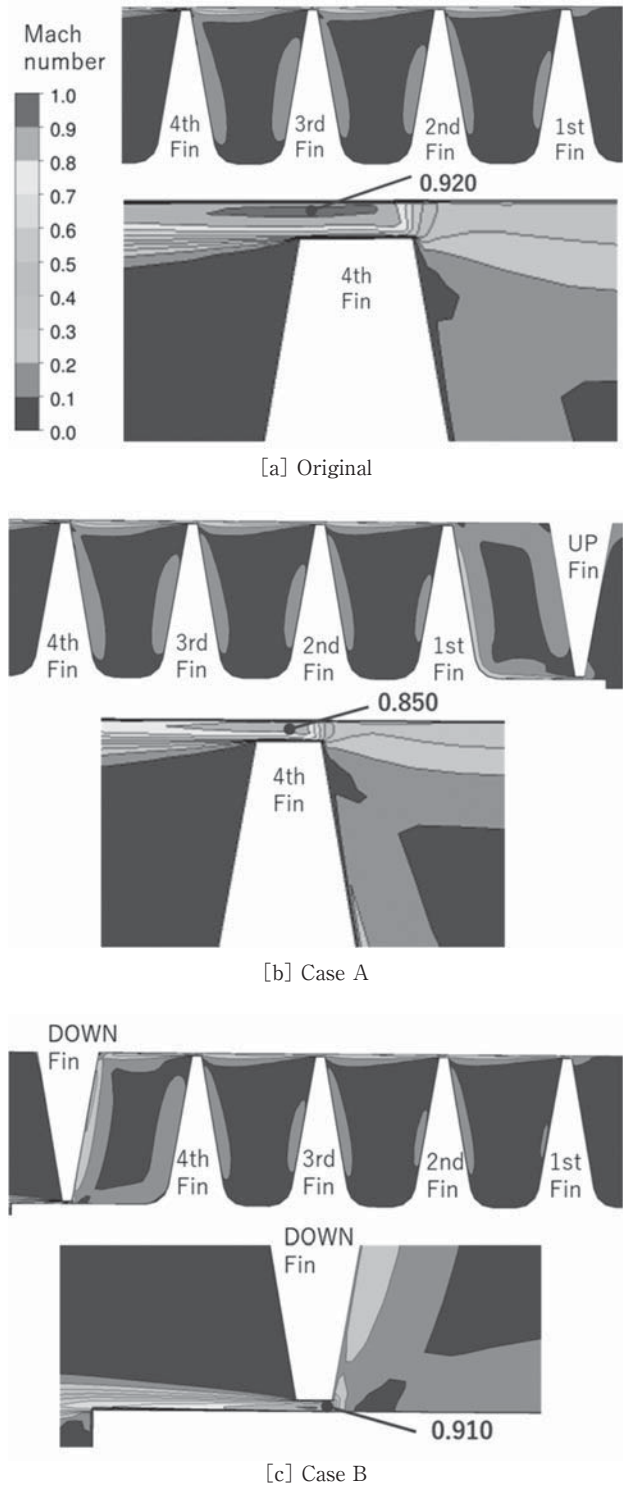


Fig. 10 Mach number distribution around the cavity

3.3 シールの漏洩性能

本制御によるシール性能変化を確認するために、漏洩量の計算結果をFig. 11に示す。隙間部の最小クリアランスは全ケース同一の $200\mu\text{m}$ であるが、最小隙間部環状面積がFig. 12のようにCase AやBでは5%程度小さくなっている。更に過去の研究で報告されているように⁽¹²⁾、フィン数増加と食い違いstep形状効果の導入によって、総漏洩量は12%程度低減することが確認できた。本制御

手法によって、漏洩量を効果的に低減させつつ同時にフラッタも効果的に抑制できることが確認できた。

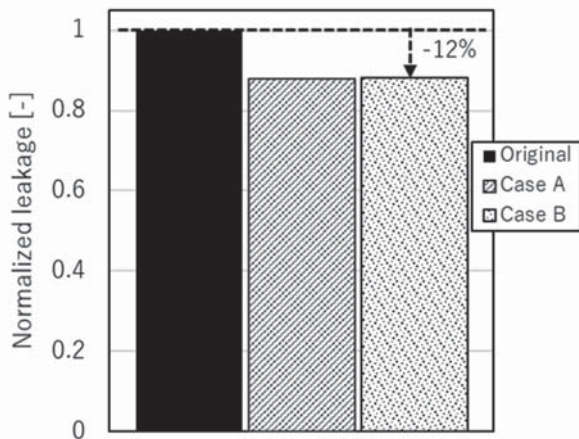


Fig. 11 Leakage performance

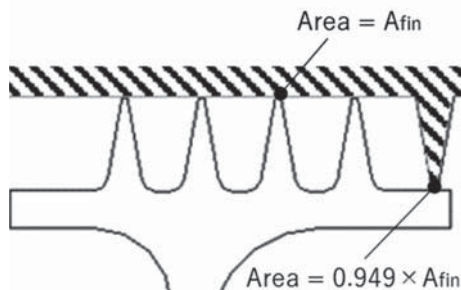


Fig. 12 Area of fin tip

4. 結論

本研究では、回転ラビリンスシールを対象にフラッタ及び漏洩量を同時に抑制する手法の検討を行った。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 回転シールのフィン前後に静止壁側からフィン进行ることによって、空力弾性の安定性が大きく変化することを確認することができた。
- (2) Originalシールにおいて不安定となっていた2 NDモードについては、シール上流側に設けた静止フィンにて安定性を大幅に向上できることが分かった。下流側に設けたフィンについては、逆に不安定を助長させる結果となった。空力仕事の分布を分析することによって、安定性を向上させることができるメカニズムを確認することができた。
- (3) 静止フィンによる制御によって、もともと安定であった振動モードが不安定にならないことが確認できた。本制御手法は漏洩量とフラッタを同時に抑制することができるため、機器の高性能化のために有効な手法であると考えられる。

今後の課題として、フラッタ安定性を保ちつつ更に軽量化や漏洩性能を向上できるシール形状や静止壁形状を、自動最適化システムを導入するなどによって模索していきたい。

参考文献

- (1) Alford, J., "Protection of Labyrinth Seals From Flexural Vibration". Journal of Engineering for Power, 86, pp. 141-147. Paper No. 63-AHGT-9 (1964).
- (2) Ehrich, F., "Aeroelastic Instability in Labyrinth Seals". ASME J. Eng. Gas Turbines Power, 90 (4), PP. 369-374 (1968).
- (3) Lewis, D., Platt, C., and Smith, E., "Aeroelastic Instability in F100 Labyrinth Air Seals". Journal of Aircraft, 16 (7), pp. 484-490. AIAA Paper 78-1087 (1979).
- (4) Abbot, D. R., "Advances in Labyrinth Seal Aeroelastic Instability Prediction and Prevention". ASME J. Eng. Gas Turbines Power, 103 (2), pp. 308-312.
- (5) Vega, A., Corral, R., "Conceptual Flutter Analysis of Labyrinth Seals Using Analytical Models. Part2: Physical Interpretation". Journal of Turbomachinery, Vol. 140, P. 121007.
- (6) Toshimasa, M., Naoto, S., "Numerical and Experimental Studies of Labyrinth Seal Aeroelastic Instability". Journal of Engineering for Gas Turbines and Power Vol. 141 (11), P. 111005. (2019).
- (7) Sayma, A. I., Breard, C., Vahdati, M., and Imregun, M., "Aeroelasticity analysis of air-riding seals for aeroengine applications". Journal of Tribology, 124 (3), PP. 607-616. (2002).
- (8) Phibel, R., Mare, L. D., Green, J. S., and Imregun, M., "Numerical Investigation of Labyrinth Seal Aeroelastic Stability". ASME Turbo Expo 2009 Power for Land, Sea and Air, Orland, GT2009-60017.
- (9) Mare, L. D., Imregun, M., Green, J. S., and Sayma A. I., "A Numerical Study of Labyrinth Seal Flutter". Journal of Tribology, 132, pp. 022201-7. (2010).
- (10) Zhanng, Q., "Parametric Study on the Aeroelastic Stability of Rotor Seals" Master's thesis, Royal Institute of Technology 2012.
- (11) Carta, F. O., "Aeroelastic Coupling - An Elementary Approach" AGARD Manual on Aeroelasticity in Axial Flow Turbomachines, Volume 2, Structural Dynamics and Aeroelasticity, Chapter 18, AGARD0AG-298 (1988).
- (12) 小茂鳥和生., "非接触シール論: ラビリンスシールの研究と応用" コロナ社. 1973. ISBN-10: 4339042443

超耐環境性高強度酸化物系セラミック複合材料用強化繊維の開発

Development of Continuous Zirconia Fiber as a Reinforcement for Super Environment Resistant and High Strength Oxide/Oxide Composites

長谷川 良雄^{*1}
HASEGAWA Yoshio秦 青^{*1}
QIN Qing鉄井 利光^{*1}
TETSUI Toshimitsu

ABSTRACT

Development of the ceramics matrix composites (CMC) which can be used at higher temperature than SiC/SiC composites is being advanced. It is expected that oxide/oxide composites bring performance improvements of a jet engine. In this research, continuous zirconia fibers restrained crystal growth as reinforcements indispensable to CMC was synthesized by dry-spinning method using molecular designed zirconia precursor polymers. Then, C-coating on fibers surface by bubble-flow method with hexane vapor was formed and the fiber bundle was fabricated into zirconia fibers uni-directional reinforced composite with zirconia matrix. Finally, the gap-interphase formed at fiber/matrix interface by burnout of C-coating caused pull-out of fibers when CMC fractured. So, basic processes for mass production of continuous zirconia fibers and carbon coating appropriate for the fiber/matrix interface have been developed.

キーワード：乾式紡糸，ジルコニア連続繊維，界面層，酸化物系複合材料，ジェットエンジン

Key words : Dry-Spinning, Continuous Zirconia Fiber, Fiber/Matrix Interface, Oxide/Oxide Composites, Jet Engine

1. はじめに

金属材料が使用困難な高温部位用の耐熱材料としてセラミックス基複合材料 (CMC) が注目を集めており、近年ジェットエンジンにSiC/SiC複合材料が使用されはじめた^{(1),(2)}。しかしながら、この材料は、高温強度は良好であるものの、耐環境性に限界がある (酸化する) ため、最高使用温度は1400℃程度にとどまっている。従って、更なるジェットエンジンの性能向上をもたらすためにはより高温で利用できるセラミック複合材料が必要である。

1400℃を超える超高温域においては、本質的に耐環境性が良好な酸化物系材料の適用を考慮する必要がある。しかしながら、アルミナ系^{(3),(4)}などの従来の酸化物系複合材料はSiC/SiCに較べると高温強度や耐熱衝撃性が大幅に低いため、超高温部位への使用は考慮されていなかった。

この状況を鑑み、本研究の提案者らは先の研究において、新材料であるBaZrO₃の超高温強度は従来の酸化物と較べると著しく高いことを見出した⁽⁵⁾⁻⁽⁷⁾。また、このBaZrO₃を複合材料のマトリックスとした場合、超高温

温においてもマトリックスと融合しにくい繊維用材料としてジルコニアが有望なことを見出すとともに、実験室レベルで少量ではあるがジルコニア連続繊維の基本的な製造技術を開発した⁽⁵⁾。さらに、BaZrO₃マトリックスとジルコニア繊維を複合化するとともに、試験的にジルコニア短繊維に界面層を導入して試作した新酸化物系セラミック複合材料⁽⁵⁾は、1700℃での大気酸化試験で酸化増量が0であるなど、耐環境性はSiC/SiC複合材料より著しく優れるとともに、室温において一定の塑性変形的な挙動を示すことを確認した。

本研究はこれまでの研究成果をベースとして、実用的セラミック複合材料の大幅な耐熱性向上を酸化物系複合材料で目指すものであり、具体的には、その第一歩として、強化繊維として期待されているにもかかわらず、いまだ工業的に生産されていないジルコニア連続繊維の開発を目指す。ジルコニア連続繊維が工業的に生産されていない理由は、繊維前駆体ポリマーの紡糸性の低さによる連続繊維の製造が困難なことや、ジルコニア繊維は高温で結晶成長が進展し、少なくとも1300℃程度以上では強度の著しい低下が起こることなどであると考えられる。

本研究では、これらの課題を克服して、ジルコニア連続繊維および量産化のための基本プロセスの開発、さらに、複合化に必須の、ジルコニア連続繊維に最適なコーティング技術を開発した結果について報告する。特に、高温強度に優れたジルコニア系連続繊維の開発のために、

原稿受付 2020年10月30日

査読完了 2021年4月8日

*1 国立研究開発法人物質・材料研究機構 構造材料研究拠点
〒305-0047 つくば市千現1丁目2-1
E-mail: hasegawa.yoshio@nims.go.jp

前駆体の分子設計を行い、高温での結晶成長を抑制する添加物の効果を検証した。さらにアルミナ系複合材料で実証されている炭素コーティングによるC界面層から、最終的にこれを焼失させて生成させるギャップを利用する界面層の効果を、ミニコンポジットを作製し検証した。

2. 実験方法

2.1 ジルコニア連続繊維の前駆体の合成

ジルコニア繊維は、前駆体の乾式紡糸法により製造することができる⁽⁸⁾⁻⁽¹⁰⁾が、1400℃以上でも結晶成長が抑制され、引張強度2 GPa以上の高強度を維持する連続繊維は実現していない。

本研究では、ジルコニア連続繊維を実現するため、高温でも結晶成長を抑制する成分の探索と紡糸可能な無機高分子が得られる分子設計を以下の方法で行った。

まず、ジルコニアの出発原料は、ジルコニウムテトラ-n-ブトキシド、 $Zr(OC_4H_9)_4$ を用い、Zr-O結合から形成されるポリジルコノキサンとした。ジルコニウムテトラ-n-ブトキシドには、鎖状高分子構造ユニットを発達させるため、n-ブトキシ基の1部を3-オキシブタン酸エチルでキレート化し、部分的に耐加水分解性を付与して用いた。こうすることにより、後の加水分解縮合で紡糸性を低下させる過度な分岐によるポリマーの三次元化を抑制した。

ポリジルコノキサン中には、焼成後、部分安定化あるいは安定化ジルコニアを生成させるため、 Y_2O_3 を生成するイットリウムトリ-n-ブトキシド、 $Y(OC_4H_9)_3$ を原料としたY-O結合からなる構造ユニットを組み込んだ。

また、従来、繊維内の強度低下の原因となる過度な結晶成長を抑制する成分として、アルミナ系繊維での SiO_2 や B_2O_3 など酸化物の添加効果⁽¹¹⁾、ジルコニア系繊維での結晶粒の焼結助剤としての SiO_2 や B_2O_3 の添加の効果⁽¹²⁾が示されている。本研究では、1400℃以上での焼成での結晶成長を抑制成分として SiO_2 、 Al_2O_3 、 B_2O_3 をジルコニア中に分散させる目的で、ALCH（アルミニウムエチルアセトアセテートジイソプロピレート）、 $Cl_2H_{23}AlO_5$ 、テトラエトキシシラン、 $Si(OC_2H_5)_4$ 、トリエトキシボレート、 $B(OC_2H_5)_3$ 、からのAl-O、Si-O、B-O結合からなる構造ユニットを所定の割合で組み込んだ。

前駆体の合成は、これら金属アルコキシドの混合物にイソプロピルアルコールで希釈した水を滴下混合し、加水分解縮合させる方法で、所定時間、室温で攪拌しながら放置し、最終的に、ロータリーエバポレーターを用いて、減圧下で95℃まで加熱し、反応生成物であるアルコールを除去して、固体の前駆体無機高分子を得た。

各構造ユニットをポリジルコノキサン構造中に均一に分布させる場合は、全原料アルコキシドの混合物を加水分解し、ブロックポリマー化したい場合は、それぞれの成分を加水分解縮合した後混合し、さらに加水分解縮合を行った。

前駆体ポリマーは、添加元素(M)の種類と合成Lot No.を用いて、Zr-M1・M2・M3-Lot No.と表記する。また、必要に応じて各元素のZrに対する原子数比を()内に記載して、Zr-M1(M1/Zr)・M2(M2/Zr)・M3(M3/Zr)-Lot No.と表記した。

繊維の前駆体としてのキャラクターゼーションは、大気中、1000℃以上で焼成して得られたセラミックス(酸化物)の収率(以後セラミック収率とする)、結晶構造と結晶子サイズの測定、以下で述べる、モノホールノズルでの紡糸性評価、そして、得られたジルコニア系連続繊維のモノフィラメント引張試験で行った。

2.2 前駆体の紡糸、ジルコニア系繊維への転換

得られた前駆体から、2 GPa以上の引張強度を有するジルコニア系連続繊維を実現するために、繊維径を10 μm程度とすることを目標に、以下の方法でモノホールノズルによる乾式紡糸の検討を行った。

まず合成した前駆体の紡糸溶液を調製し、手曳き(フラスコ内に調製した紡糸溶液表面からスパチュラなど棒状物を浸し引き上げる方法)により繊維化できることを確認した。紡糸溶液は、溶媒はトルエンとし、濃度はまず手曳きで予備検討を行い、曳糸性が発現する濃度を見出した後、所定の濃度で調製した。これらの紡糸溶液を用い紡糸装置によりモノホールノズルによる乾式紡糸を実施した(Fig. 1に装置の概念図を示す)。

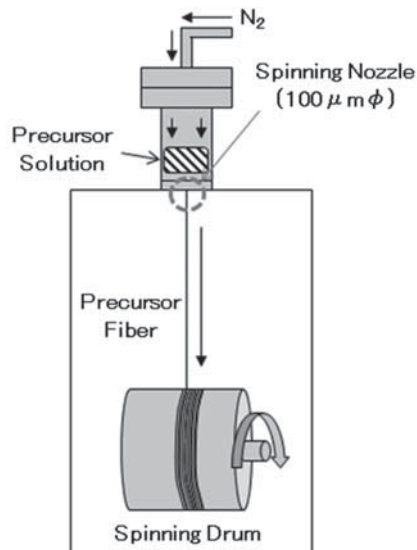


Fig. 1 Concept of apparatus for dry-spinning

紡糸は、紡糸ノズル径が100 μmの突起ノズルを用い、紡糸筒内を加圧(最大2 MPaで加圧可能)し、ノズルから前駆体繊維を吐出させ、ノズル下部に設置した回転速度可変のドラム(ドラム直径:2300mm)上に連続的に巻き取って行った。

この方法による各前駆体のモノホールノズルによる乾式紡糸のしやすさを、以下に示す紡糸性値(Spinnability)を定義し、評価した。紡糸性値は、すでに第4世代SiC

繊維前駆体の超高分子量ポリカルボシランの乾式紡糸で導入した、紡糸性の良否を評価する値で、数値が大きいほど前駆体は連続繊維化が容易で、工業的に実現性があるかどうかの目安となる¹³⁾。

紡糸性値＝巻き取りドラム回転数(rpm)×連続巻き取り時間(min)÷押し出し圧力(MPa)

巻き取られた繊維束は4分割し、水蒸気不融化、焼成工程を経てジルコニア系繊維へと転換された。

不融化はのちの焼成工程で繊維が溶融し互いに融着しないようにするための工程で、飽和蒸気圧の水蒸気雰囲気中で所定時間保持する方法(ウォーターバス上で所定温度で所定時間保持)で行った。不融化後の繊維束は、65℃の乾燥機中で所定時間乾燥した。

焼成は、不融化した繊維束を管状炉(アルミナ炉心管の内径は50mm)を用い、大気雰囲気中で実施した。

得られた繊維のキャラクタリゼーションは、モノフィラメント引張試験、結晶構造と結晶子サイズの測定、SEM、FE-SEM観察で行った。モノフィラメント引張試験はJIS R 7606に準拠して繊維長10mmで実施した。

2.3 ミニコンポジットの作製

一般に、セラミックス連続繊維を複合材料用強化繊維として用いるためには、マトリックスと繊維表面との強固な結合を起こさないようにすることが重要であり、例えばアルミナ系連続繊維を用いたアルミナ系複合材料では、炭素コーティングによる界面層から、炭素を焼失させて得られるギャップを利用する界面層の効果を確認している⁴⁾。そこで、ジルコニア系繊維について繊維表面への炭素コーティングの適用を試み、その有効性について以下の方法で検討した。

まず、繊維表面への炭素コーティングは、ヘキサンバブル法で行った。Fig. 2に示した方法で、管状炉中のジルコニア系繊維束を1200℃まで加熱昇温しながら、窒素ガスを100mL・min⁻¹でヘキサン中にバブリングさせ発生させた飽和ヘキサン蒸気を、管状炉中に導入し、1200℃で1時間保持した。C層の生成の有無はSEM観察により確認した。

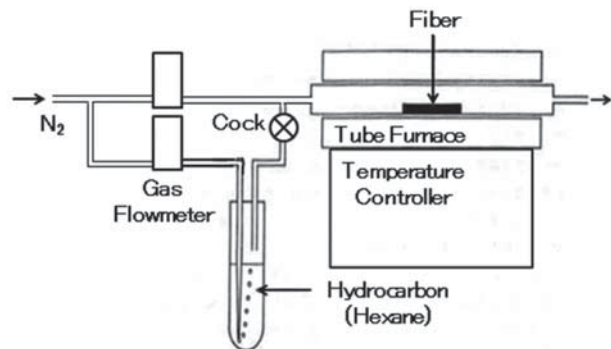


Fig. 2 Formation of C-coating on fibers surface by bubble flow method

次に、C界面層を付与したジルコニア系繊維束を用い、ジルコニア微粉末スラリーを繊維束に塗布し、これをフィルム(バギングフィルム)で包装し、真空バッグとして密閉された状態で真空引きする、すなわち外部から1気圧に近い圧をかける方法で、繊維束積層体を得た。その後、これを乾燥し、Arガス雰囲気中で1000℃で焼成してプリフォームを作製した。バギング法によりスラリーが繊維束内部に含浸され、以後のPIP法を併用することによりマトリックスが緻密化される。ジルコニア微粉末スラリーは、市販のジルコニアスラリー(8mol%Y₂O₃-ZrO₂, スターファイヤー社製, SL-455)にポリビニルアルコールを添加し、8mol%Y₂O₃-ZrO₂(以後8YSZと略記する)濃度が75wt%になるよう調製した水系スラリーとした。

その後、8mol%Y₂O₃を含有するように分子設計して合成した8YSZ前駆体ポリマーのトルエン溶液を用いて、前駆体の含浸と焼成によりマトリックスをさらに緻密化するPIP(Polymer Infiltration and Pyrolysis)法を実施し一次元強化CMCであるミニコンポジットを作製した。PIPは、減圧下で前駆体溶液を含浸させた後、85℃の飽和水蒸気雰囲気中で1時間前駆体のゲル化を促進させた後乾燥し、さらに含浸を3回繰り返す方法でミニコンポジット内部に8YSZ前駆体を十分乾燥させ、最後に1000℃で焼成する方法とした。得られたミニコンポジットを最終的には大気中で1500℃で焼成し、C界面層を焼失させて得られるギャップを界面層とするミニコンポジットを作製した。

得られたミニコンポジットの評価は断面のSEM観察で繊維の引き抜けの有無を確認することで行った。緻密なマトリックスからの繊維の引き抜けが確認できればギャップ界面層の効果がより明確に実証できる。

3. 実験結果および考察

3.1 ジルコニア連続繊維前駆体

前駆体の合成は、前駆体分子中に含有させるための各成分のアルコキシドを所定の割合で混合し、加水分解に必要なイソプロピルアルコールで希釈した水(H₂O)を所定量滴下混合し、1時間程度室温および65℃で攪拌しながら放置し、その後95℃まで加熱しながら減圧下で加水分解縮合を行う方法で行った。

紡糸性が高い鎖状高分子を形成する構造ユニットを発達させるため、ジルコニウムテトラ-n-ブトキシドは、n-ブトキシ基の1部を3-オキシブタン酸エチルでキレート化し、部分的に耐加水分解性を付与して用いた。すなわちジルコニウムテトラ-n-ブトキシドはZrに対して0.8倍molから2倍molの3-オキシブタン酸エチルを加えてキレート化して用いた。

混合原料の加水分解縮合で得られたジルコニア系無機高分子の収率と、セラミック収率から、本合成方法による合成スキームを、分子構造はほぼ鎖状構造を仮定し、

Fig. 3のような構造ユニットからなるランダム共重合体であると仮定することができた。

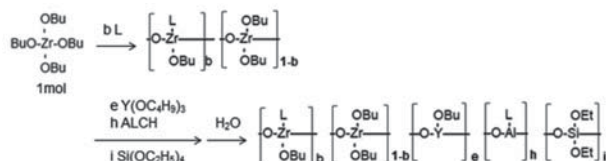


Fig. 3 Possible structural units in zirconia ceramics precursor polymer. (L : Ethyl 3-Oxobutanate, b, e, h, i : Mol fraction to Zr)

得られたそれぞれの前駆体の熱重量分析の結果を、Fig. 4に示す。セラミック化前の前駆体の無機化過程が繊維特性に大きく影響することは、従来から指摘されている^{(8)~(10)}。熱重量分析は、前駆体を所定温度まで200℃・h⁻¹で加熱し、1時間保持した後のセラミック収率を測定する方法で行った。前駆体の熱分解によるセラミック化は1000℃以上では質量減少がないことからほぼ完全に終了していることが分かった。それに対して、500℃までは急激な質量減少が起き、激しい分解反応による有機物の放出が起こることを示している。

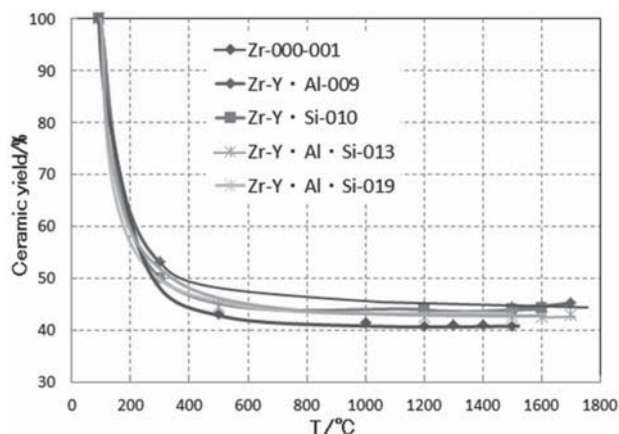


Fig. 4 Thermogravimetric curves of various zirconia precursor polymers

種々の温度でセラミック化して得られたジルコニア系前駆体の結晶構造解析をXRD測定で行った。Fig. 5に、Zr-Y・Al・Si系前駆体を1500℃で1時間保持して得られた焼成物のXRD測定結果を示す。この結果から、ジルコニア結晶相はTetragonal相（系によってはCubic相）が室温でも保持されていることを確認した。

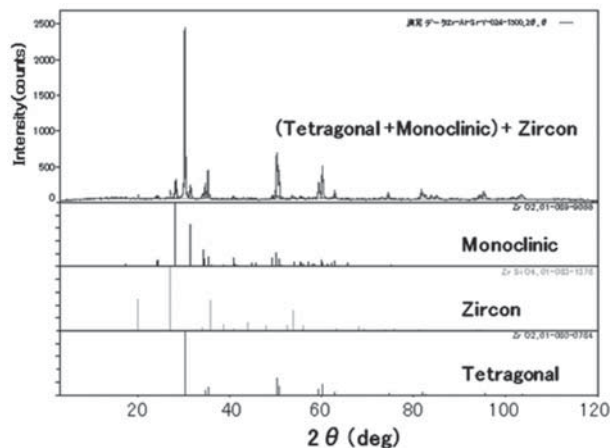


Fig. 5 XRD pattern of precursor polymer Zr-Y-Al-Si heat-treated at 1500℃ in air

各前駆体焼成物のXRD測定結果に対して、結晶子サイズの計算をWilliamson-Hall法で行った。ホウ素を添加した系では結晶成長抑制効果が観測されず、本報告ではホウ素添加系は除外した。Fig. 6に、Zr-Y, Zr-Y-Al, Zr-Y-Al-Si系焼成物の焼成温度（保持時間は1時間）と結晶子サイズの関係を示す。

これらの結果から、結晶子サイズが高温焼成でも10nm程度以下になる特異的な組成を確認することができた。すなわち、Y₂O₃添加系でAlおよびSiの特異な添加量と組み合わせがジルコニアの結晶成長を抑制することが見出せた。ジルコニアの結晶成長を抑制する組成としては、Zr-Y(0.1), Zr-Y-Al(0.1)系, Zr-Y(0.1)-Al-Si系であり、Zr-Y系は、Y₂O₃がZrO₂に対して5 mol%添加(Zr-Y(0.1)に相当)で結晶子サイズが極小になり、Zr-Y-Al系ではAl/Zrが0.1で極小になり、また、Zr-Y-Al-Si系ではY₂O₃がZrO₂に対して5 mol%添加で極小になることが示唆された。

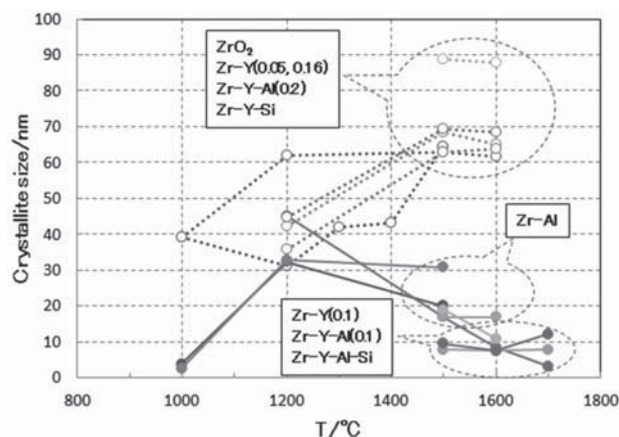


Fig. 6 Relation between zirconia crystallite sizes of various zirconia precursor polymers heat-treated and heat-treatment temperature

現在SiC/SiCに用いられているNGSアドバンストファイバー(株製SiC連続繊維Hi-Nicalon Type Sは、短時間ながら1500℃焼成されており、XRD測定結果から、その結晶子サイズは6.9nmであった。本研究で合成した前駆体のうち、Fig. 6に示すように、1500℃以上の焼成で結晶子サイズが10nm以下を保持できたのは、Zr-Y-Al-Si系であることが確認できたので、この系で繊維合成を行った。

3.2 ジルコニア連続繊維

(1) 乾式紡糸プロセス

まず、添加元素の含有量を変えて分子設計したZr-Y-Al-Si系前駆体のモノホールノズルによる乾式紡糸を行った。Table 1にそれぞれの前駆体に対する乾式紡糸結果を示す。比較のために現在開発が行われている超高分子量で不融性のポリカルボシラン (PCS-UUH) の乾式紡糸データも示した。ポリカルボシランは現在実用化が進められているSiC/SiC 複合材料の繊維およびマトリックスの原料である^{(13),(14)}。表中、紡糸性値欄の数値の後の (Adhesion) と記載されているものは、紡糸後の繊維束内のフィラメント間で接着が起きてしまったものである。

Table 1 Dry-spinning conditions and the spinnability

Precursor	L/Zr	Concentration /wt%	Temperature /℃	Spinnability
Zr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.1)-025	0.8	85.9	<32	~ 42
		83.9	(RT)	~ 89
Zr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.1)-026	0.8	87.1	(RT)	~ 192 (Adhesion)
Zr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.2)-027	0.8	88.0	(RT)	150 (Adhesion)
		89.0	~ 60	~ 312 (Adhesion)
Zr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.2)-028	0.8	88.1	(RT)	~ 100 (Adhesion)
Zr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.1)-041	2.0	82.9	(RT)	295
PCS-UUH-46	-	56	(RT)	168

PCS-UUHは数平均分子量が7000以上と無機高分子としては非常に大きいため乾式紡糸用溶液濃度が56wt%であるのに対して、ジルコニア系前駆体の紡糸用溶液の濃度は、83wt%以上と高い。このことは、前駆体の分子量がPCS-UUHと比べはるかに小さいことを示している。分子量が小さいために、高濃度で紡糸をしても前駆体繊維中にわずかに残存する溶媒のため前駆体繊維は液体状態と考えられ、溶着が起ると推定される。溶着が起らなかったZr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.1)-025と041は他の前駆体に比し低濃度で紡糸が可能であり、比較的高分子量の前駆体が合成できたと考えられる。紡糸性値は

PCS-UUHに匹敵あるいはそれ以上の値が得られており、ジルコニア系前駆体の乾式紡糸が量産可能なプロセスであることが確認できた。

(2) 不融化・焼成プロセス

次に、溶着が起らなかったZr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.1)-025と041の紡糸繊維 (以後生糸と称する) を不融化、焼成し、ジルコニア系繊維に転換した。また、溶着が起きた前駆体028は、紡糸性は低いが生糸の量を多く回収できたため、不融化した前駆体繊維の熱分解過程評価のための熱重量分析に用いた。

生糸はそのまま焼成すると前駆体が軟化し生糸の溶融や繊維間の融着が起きるため、焼成前に、45 ~ 95℃の飽和水蒸気雰囲気中で所定時間保持し、生糸中で前駆体の加水分解縮合を促進し、ゲル化させ不融性とする必要がある。Zr-Y · Al · Si系前駆体の不融化とセラミック化プロセスをFig. 7に示す。

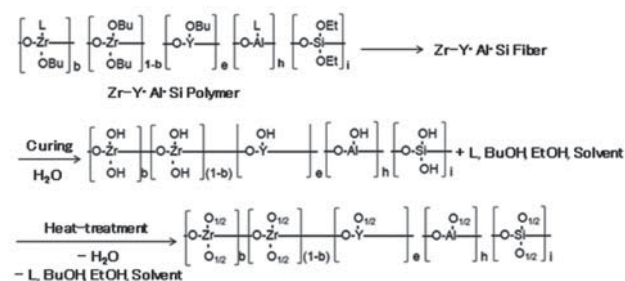


Fig. 7 Curing and Ceramization process of Zr-Y · Al · Si polymer

これらのプロセスは、不融化した前駆体の熱重量分析の結果から支持された。Fig. 8に、95℃の飽和水蒸気雰囲気中で4時間保持して不融化したZr-Y (0.1) · Al (0.1) · Si (0.2)-028の熱重量分析結果を示す。不融化された前駆体のセラミック収率は700℃以上で一定となり、しかも67%程度で、Fig. 4で示した、不融化なしの前駆体のセラミック収率よりはるかに大きくなっている。この理由は、Fig. 7の不融化、セラミック化メカニズムで明らかのように、前駆体が一不融化工程での加水分解により-OH基を生成するプロセスで低分子量有機物を大部分放出するからである。

一方、700℃以下での焼成プロセスでは重量減少が2段階で起きている。まだ詳細は明らかではないが、300℃程度までは生成した-OH基間の脱水縮合、300℃以上では加水分解されず残留した有機配位子などの有機基が熱分解し、放出されるためと考えられる。したがって、不融化プロセスは最終的に得られるジルコニア系繊維の構造、特性に何らかの影響をおよぼすと考えられる。

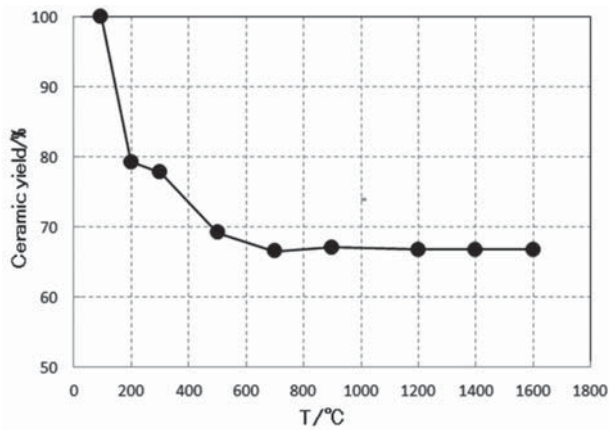


Fig. 8 Thermogravimetric curve of Zr-Y(0.1)·Al(0.1)·Si(0.2)-028 cured at 95°C for 4 hours in saturated water vapor atmosphere

本検討では、ジルコニア系繊維への転換に際し、45°Cで7時間あるいは48時間、および95°Cで2時間保持する不融化方法のいずれかを選択して不融化した生糸を、1000°Cまで60°C・h⁻¹で加熱し、1時間保持して、いわゆる一次焼成系に転換した。一次焼成系は、各不融化条件について再現性を確認するため数ロット作製した。一次焼成系とは、強度の大きい繊維に転換した後、張力下でより高温で焼成しさらに繊維強度を上げることを目的に行われる二次焼成に供するための繊維である⁽¹⁴⁾。

Fig. 9に、不融化糸と1000°Cで焼成して得られた繊維の外観写真を示す。不融化糸は淡褐色に着色しており、まだ有機物が残留していることを示しているが、モノフィラメント引張試験の結果、引張強度は0.32GPaあり、量産時に必要な繊維のハンドリングには耐えられると推定される。

(3) 繊維特性

こうして得られた3種類のジルコニア系連続繊維のモノフィラメント引張試験を行った。Fig. 10に、飽和水蒸気雰囲気中で95°C、2時間保持して不融化し、1000°Cまで60°C・h⁻¹で加熱し、1時間保持して得られた繊維の引張強度とYoung率（装置コンプライアンスによる補正は行っていない）の繊維径との関係を、モノフィラメント引張強度が3 GPa以上の最高強度を示したロットについて示す。他のロットも含め、繊維径10±3 μm程度で引張強度2 GPa以上を有するモノフィラメントの存在が確認できた。

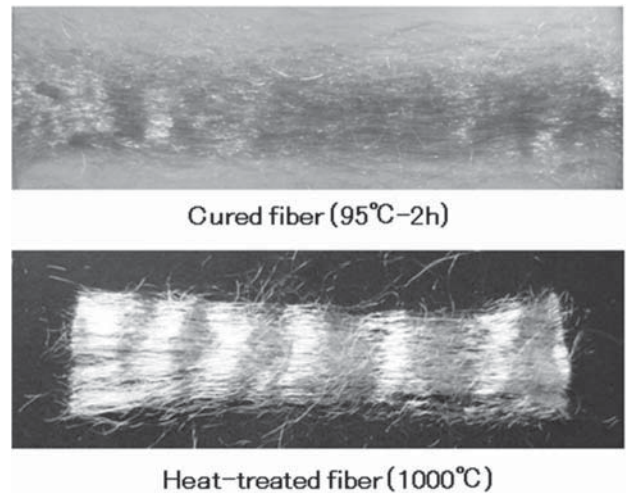


Fig. 9 Photographs of Zr-Y·Al·Si-025 fibers cured and heat-treated at 1000°C

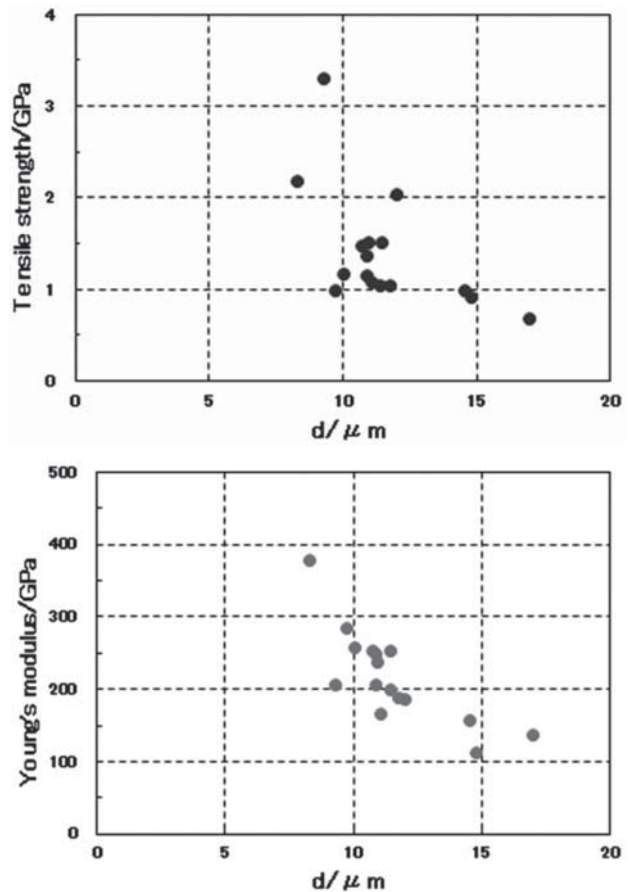


Fig. 10 Fiber diameter dependence of tensile strength and Young's modulus of zirconia fibers heat-treated at 1000°C

以上の結果から、ジルコニア系前駆体の乾式紡糸の紡糸性は良好で、一次焼成系のモノフィラメント引張試験では2 GPa程度の強度を示す連続繊維が製造可能であることを確認できた。すでに明らかにしたように、高温での繊維強度の低下の原因となる結晶成長は、このZr-Y(0.1)·Al(0.1)·Si(0.1)系前駆体では1700°Cまでほとんど起こらないことから、強度低下もないことが期待できる。

このことについては後ほど議論する。

Fig. 11には、繊維径 $10\pm 3\mu\text{m}$ 程度での不融化条件と引張強度の関係を、各条件で得られた数ロットの平均で示した。45℃の飽和水蒸気雰囲気中での不融化でも生糸の不融化は達成されていると考えられるが、95℃での短時間不融化の方が強度が高い。長時間の不融化は好ましくないことが示唆された。

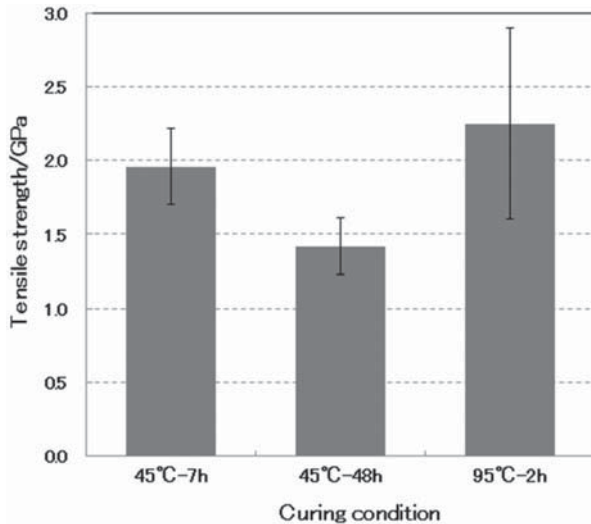


Fig. 11 Relation between tensile strength of fibers heat-treated at 1000℃ and curing conditions

3.3 界面層とミニコンポジット

ギャップを利用する界面層とは、繊維表面にまずC層をコーティングし、CMC化した後、酸化焼失させて得られる繊維表面とマトリックス間に形成されるギャップ（空隙）を界面層として機能させるという概念（Fig. 12）である。

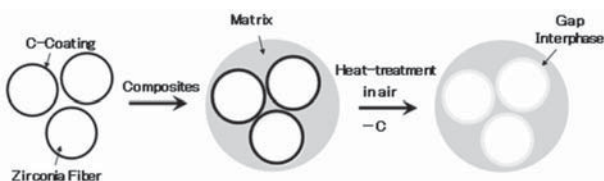


Fig. 12 Concept of gap-interphase formed at fiber/matrix interface

本研究では、強化繊維としてのジルコニア系繊維の開発ができたので、1000℃で焼成して得られた繊維に、Fig. 2に示した装置と方法で、Fig. 11の、45℃-7h不融化処理して得られた繊維束の繊維表面に1200℃でCをコーティングした。Cコーティングした繊維のSEM写真を、Fig. 13に示す。およそ0.5～0.8 μm の厚みのCコーティングが生成している。

繊維の断面は結晶成長および粒成長による欠陥の生成を示しておらず、本繊維の高温での結晶成長が抑制されていることも確認できた。Cコーティングした繊維のモノフィラメント引張試験による平均引張強度は、1.84GPaであった。この値はFig. 11の1000℃焼成の1.96GPaと比べほとんど低下していない。

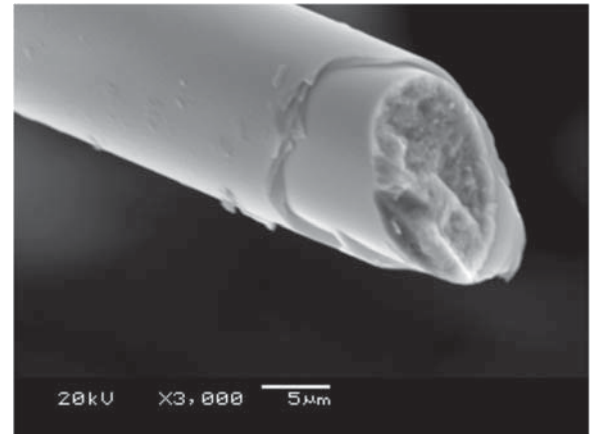


Fig. 13 SEM photograph of C-coated zirconia fiber

以上の結果から、ジルコニア系繊維はCコーティングでも強度低下は起こさず、より高温焼成で強度向上が期待できることが分かった。

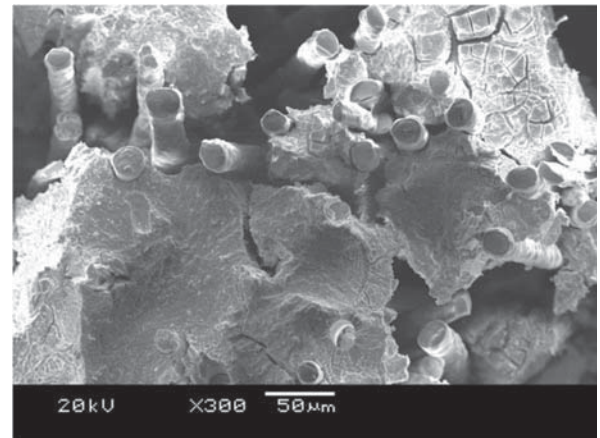


Fig. 14 SEM photograph of fracture surface of zirconia fibers uni-directional reinforced composite

このC層コーティング繊維を用い、ミニコンポジットを作製した。ミニコンポジットの破断面のSEM写真を、Fig. 14に示す。繊維の引き抜けが観測され、ギャップ界面層が機能していることを示している。

また、バギング法とPIP法により、マトリックスの緻密化も確認できた。同様の作製方法で、1250℃という高温で最終焼成されたアルミナ系CMCは、平均曲げ強度250MPa以上を達成している⁽⁴⁾ので、本コンポジットも高強度が期待できる。

4. まとめ

CMCに必須の酸化物系強化繊維として、乾式紡糸によるジルコニア系連続繊維を、前駆体の分子設計により結晶成長を抑制することで合成できた。

さらに、繊維表面とマトリックス間の結合を抑制するためにギャップの形成が有効であることを、繊維表面に炭素コーティングによるC界面層を形成させた後、ミニコンポジットを作製し、最終的にこれを焼失させる方法で、破断時に繊維の引き抜けが起こることで確認した。

今後は、結晶成長抑制メカニズムを解明し、抑制剤をさらに探索し最適化するとともに、前駆体の紡糸性も改良し、マルチホールノズルでの紡糸で繊維を量産するプロセス開発を実施する。また、開発した繊維を用いた複合材料の特性評価、実用性評価も行う予定である。

謝辞

本研究は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度JPJ004596の支援を受けたものである。

参考文献

- (1) 倉持将史, 大田祐太郎, 小谷正浩, 南大基, ジェットエンジン用高性能材料の開発, IHI技報, Vol. 60, No. 2 (2020), pp. 29-34
- (2) 新井優太郎, 香川豊, Siボンドコート層の融解・凝固現象に基づくSiを含むセラミックス基材上の耐環境コーティング組織の変化, 日本ガスタービン学会誌, Vol. 46, No. 1 (2018), pp. 57-61.
- (3) 戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)「革新的構造材料」研究開発成果報告書, C45 酸化物系軽量耐熱部材の開発, (2019), pp. 139-142.
- (4) 長谷川良雄, 越坂亜希子, 新関智文, 牛田正紀, 西川絃介, 糸田和弘, 垣澤英樹, ポリアルミノキサン系無機高分子PIP法によるアルミナ系繊維強化CMCの開発 (3), 第37回無機高分子研究討論会講演要旨集 (2018), pp. 77-78.
- (5) 鉄井利光, 原田広史, 長谷川良雄, A-12 超高温用酸化物系CMCの開発, 第43回日本ガスタービン学会定期講演会(米子)講演論文集 (2015) 75-78.
- (6) 鉄井利光, 原田広史, 超耐環境性高強度酸化物系セラミック複合材料の開発, 第46回日本ガスタービン学会定期講演会講演論文集 (2018), A-7.
- (7) 鉄井利光, 原田広史, ジルコニア連続繊維と酸化物系セラミックスからなる複合材料とその製造方法, 特許6327512号.
- (8) 郡司天博, メタロキサン化合物の合成とその酸化物系セラミックス前駆体としての性質に関する研究, 東京理科大学学位論文 (1992), pp. 62-86.
- (9) He-Yi Liu, Xian-Qin Hou, Xin-Qiang Wang, Yan-Ling Wang, Dong Xu, Chen Wang, Wei Du, Meng-Kai Lü, and Duo-Rong Yuan, Fabrication of High-Strength Continuous Zirconia Fibers and Their Formation Mechanism Study, J. Amer. Ceram. Soc., Vol. 87, No. 12 (2004), pp. 2237-2241.
- (10) Lin Wang, Benxue Liu, Yongshuai Xie, Dehua Ma, Luyi Zhu, and Xinqiang Wang, Effect of high-pressure vapor pretreatment on the microstructure evolution and tensile strength of zirconia fibers, J. Amer. Ceram. Soc., Vol. 102, No. 8 (2019), pp. 4450-4458.
- (11) 糸田和弘, 鍋井栄二, 田中伸, アルミナ系酸化物連続繊維及びその製造方法, 特開2017-179619号.
- (12) 川中朝一, 杉下高昭, 鍋井栄二, ジルコニア連続繊維の製造方法, 特開平4-91227号.
- (13) 長谷川良雄, 鈴木将, 小堀武夫, 非電子線不融化による第4世代SiC繊維 (2), 第39回無機高分子研究討論会講演要旨集 (2020), pp. 31-32.
- (14) 市川宏, ポリカルボシランを前駆物質とする炭化ケイ素繊維の製造に関する研究, 大阪大学学位論文 (1986), pp. 125-143.

2020年度通常総会報告

公益社団法人 日本ガスタービン学会2020年度通常総会は、2021年4月16日(金)15時より、(株)IHI本社低層棟3階001大会議室において開催された。出席者は委任状提出者、議決権行使者を含めて1,114名であり、定款に定められた成立要件である総正会員数の過半数906名を満たし、総会は成立した。

報告事項

2020年度事業報告・監査結果報告
2021年度事業計画および収支予算
以上について担当理事より報告された。

決議事項

第1号議案：計算書類および財産目録の件 承認
第2号議案：理事選任の件 10名の候補者全員を承認
第3号議案：監事選任の件 2名の候補者全員を承認

第4号議案：名誉会員候補者の件 承認

第5号議案：終身会員候補者の件 承認

以上の通り、いずれの議案も原案通り承認された。

総会終了後、第1回臨時理事会が開催された。出席理事の互選により太田有君が新会長に、副会長には福泉靖史君が選定され、また法人管理及び公益事業担当の執行理事13名が決定された。その後、新役員体制が太田有新会長から報告され、新旧会長から挨拶があった。

なお、2020年度通常総会添付書類（2020年度事業報告、計算書類および財産目録、2021年度事業計画・収支予算）は、学会ホームページの会員ページに掲載されている。



2021年度役員

会長	太田 有（早稲田大）
副会長	福泉 靖史（三菱重工）
法人管理担当執行理事	大石 勉（IHI）、黒木 英俊（三菱パワー）（兼務）、鈴木 雅人（産総研）、辻田 星歩（法政大）、笠 正憲（川崎重工）
公益目的事業担当執行理事	石坂 浩一（三菱重工）、及部 朋紀（防衛装備庁）、黒木 英俊（三菱パワー）、鈴木 伸寿（東芝エネルギーシステムズ）、鈴木 雅人（産総研）（兼務）、高橋 徹（電中研）、新関 良樹（徳島文理大）、姫野 武洋（東大）、渡邊 裕章（九州大）、渡邊 啓悦（荏原）
理事	岩井 裕（京大）、桂田 健（JALエンジニアリング）、清野 幸典（東北電力）、福谷 正幸（本田技術研究所）、藤原 仁志（JAXA）
監事	今成 邦之（IHI）、二村 尚夫（JAXA）

公益社団法人日本ガスタービン学会終身会員の紹介

公益社団法人日本ガスタービン学会では、永年にわたり本学会に在籍し、本学会に対して特に功労のあった者のうちから理事会の推薦により総会において承認された方が終身会員となります。去る4月16日に開催されました2020年度通常総会において次の方が新たに本学会の終身会員になりました。

石井 進 氏

小島 民生 氏

谷東 芳雄 氏

塚本 時弘 氏

土屋 利明 氏

西脇 一字 氏

橋本 良作 氏

第8回日本ガスタービン学会男女共同参画推進イベント開催報告

川岸 京子

KAWAGISHI Kyoko

日本ガスタービン学会では、ガスタービンおよび関連技術に携わる女性技術者同士のネットワークと、共に成長していける場を提供することを主な目的として、2016年度から活動が続けています。2019年度からは、その委員会名称を「女性参画推進委員会」から「男女共同参画推進委員会」と改め、より充実した活動をめざしております。昨年度は新型コロナウイルスの影響によりイベントの開催が困難となっておりましたが、テーマを「コロナ禍での製造業における新しい働き方」として、2021年2月18日(木)オンラインによるイベント開催を試みました。初のオンライン開催でしたが、56名の方に参加いただきました。

昨年の緊急事態宣言をきっかけに、育児/介護者だけではなく多くの人が在宅勤務を行うようになりましたが、家庭と仕事の両立に大変さを感じているということが本委員会の実施したアンケートにより分かりました。また、製造業では現場での業務が必要となるケースが多く、在宅勤務に完全移行できないという現状もあります。様々な状況下での新しい働き方が求められている現在、本イベントにより各社の在宅/現場勤務への対応や評価方法を知ることにより各人の課題解決を図るヒントを得て、コロナ禍でのよりよい働き方を提案できる機会にしたいと考えました。

まず基調講演として、(株)日立製作所 片山絵里香氏、東芝エネルギーシステムズ(株)鈴木伸寿氏、(株)IHI 呉宏堯氏、山上舞氏に、各社の取り組みについてご紹介いただきました。なかでも、ピンチをチャンスに変える、ノウハウのルール化/デジタル化により誰でも同じ精度で仕

事を引き継げるようにする、気づき支援CADの開発など、前向きな取り組みは興味深く、今までなかった働き方の加速が起きていることを認識させられました。一方、在宅勤務が増える中でのコミュニケーションの不足は共通の課題であるということもわかりました。

講演後、講演者を交えたグループディスカッションの時間を設けました。5-6名ずつのグループに分かれ、自己紹介後それぞれの勤務形態や抱えている問題について意見交換を行いました。イベント後に行ったアンケート調査では、ほとんどの回答者が「今回のイベントを通じてコロナ禍の働き方に関するヒントや知見を得られた」と回答くださいましたことから、多少なりとも意味のある時間となったのではないかと思います。

イベントの形式に関しては概ね良かったとの回答が多数でしたが、ディスカッションの時間や内容、グループ分けなどに改善が必要との意見もありました。参加者の機材により、マイクやカメラが使用できなかった場合や、またZoomのブレイクアウトセッションの出入りの際にイベント自体から退出してしまうなどの例もあったようです。今後オンラインイベントが増えていく可能性もあるため、運営する委員の方でもシステムに慣れ、より参加しやすい工夫をしていく重要性を感じました。

男女共同参画推進イベントは、今後も会社の枠を超えた技術者のネットワークを作っていけるよう、委員会にて企画・検討していきたいと考えております。

最後に、講師の皆様およびイベント参加者の皆様に深く感謝いたします。

(男女共同参画推進委員会委員)

第49回日本ガスタービン学会定期講演会・講演募集

下記の日程で、第49回日本ガスタービン学会定期講演会を、福岡県福岡市で開催いたします。講演をご希望の方は、期日までに学会ホームページより講演の申し込みをお願いします。

主 催 公益社団法人 日本ガスタービン学会
協 賛 協賛団体は学会ホームページ
 (http://www.gtsj.org/) をご覧ください。
開 催 日 2021年10月13日(水)、14日(木)
講演会場 パピヨン24
 〒812-0044 福岡市博多区千代1-17-1
 http://papillon24.jp
 電話番号：092-633-2222
見 学 会 2021年10月15日(金)

※ 会期中のご宿泊は各自で手配ください。

講演関連日程

講演申込締切 2021年6月18日(金)
 講演採否連絡 2021年7月16日(金)
 論文原稿締切 2021年8月27日(金)

募集講演

「研究報告」および「技術紹介」に関する講演を募集いたします。「研究報告」の対象は、ガスタービン及びエネルギー関連技術に関する未発表の研究とします。一部既発表部分を含む場合には未発表部分が主体となるものに限ります。「技術紹介」は、既発表の研究のレビューや関連情報（例えば、試験設備、設備運転実績）の紹介などとなります。講演論文集では「研究報告」と「技術紹介」の別を明示いたします。

ガスタービン本体およびその構成要素、補機・付属品、補修技術、ガスタービンを含むシステムやユーザーの計画・運用および保守実績に関する講演、ターボチャージャー、蒸気タービンなどに関する講演に加え、ガスタービン関連の技術（材料、製造、溶射など）に関する講演も歓迎します。

講演時間

論文1件につき、講演15分、討論5分、合計20分です。

登壇者の資格

原則として、本会会員もしくは協賛団体会員に限りません。（1人1題目の制限はありません。）

講演申込方法と採否の決定

学会ホームページ (http://www.gtsj.org/) で講演題

目・著者・登壇者・概要（200文字以内）などを登録してください。講演申し込み後すぐに、受付完了をお知らせするEメールが自動返送されますので、申し込み内容をご確認ください。学会ホームページからの申し込みができない場合には事務局にお知らせください。

締切後の申し込みは受け付けません。

講演採否は、7月16日(金)までにEメールで連絡します。

公益社団法人 日本ガスタービン学会事務局
 電話番号：03-3365-0095
 FAX番号：03-3365-0387
 Eメールアドレス：gtsj-office@gtsj.org

講演論文原稿の提出

講演会に先立ち、講演論文原稿をご提出いただきます。原稿は講演論文集原稿執筆要領（学会ホームページに掲載）に従って、A4用紙2～8ページで作成し、所定の講演論文原稿表紙を付して、期限までにEメールに添付した電子データ（PDF形式）として提出してください。原稿執筆要領および原稿表紙用紙は、講演採否の連絡時にお届けします。

技術論文としての学会誌への投稿

原稿執筆要領に記載の要件を満たす「研究報告」の講演原稿は、著者の希望により、講演会終了後に通常の技術論文として投稿されたものとして受理されます。技術論文としての投稿を希望される場合は、講演論文原稿提出時に原稿表紙の所定欄に希望ありと記入し、さらに技術論文原稿表紙を添付していただきます。詳細は原稿執筆要領をご覧ください。

日本ガスタービン学会学生優秀講演賞

学生による「研究報告」の内、特に優秀な発表に対して表彰を行います。表彰された発表に対しては表彰状および副賞が授与されます。エントリー希望者は、申込時に所定欄の「エントリーする」に印をつけてください。

学生講演会参加旅費支援

学生が登壇者として講演会に参加する際の旅費の一部を補助する予定です。申請方法や審査方法については、7月上旬までに学会ホームページなどでお知らせします。

コロナ対応について

福岡市における開催計画は現時点のものです。感染状況により、オンライン参加併用のハイブリッド開催や、前回同様の完全オンライン開催とする等、柔軟に対応いたします。最新の情報は学会ホームページをご確認ください。

○ 本会協賛行事 ○

主催学協会	会合名	協賛	開催日	詳細問合せ先
日本実験力学会	日本実験力学会2021年度年次講演会	協賛	2021/8/25-27	新潟大学医学部保健学科内 日本実験力学会事務局 TEL: 025-368-9310
日本流体力学会	日本流体力学会 年会2021	協賛	2021/9/21-23	URL: https://www2.nagare.or.jp/nenkai2021/



▷ 入 会 者 名 簿 ◁

〔正会員〕

今泉 貴博 (IHI)

飯田 勘 (IHI回転機械エンジニアリング)

木村 匡志 (AGC)

次号予告 日本ガスタービン学会誌2021年7月号 (Vol. 49 No. 4)

特集 ガスタービンにおけるセラミック材料・コーティング技術

論説・解説

巻頭言

CMCの特性発現機構と高温構造材料としての使い方 香川 豊 (東京工科大学)

Ybシリケート耐環境コーティングの自己治癒性と組織安定性に及ぼすSiC添加の効果 小川 和洋, 三谷 健斗 (東北大学)

エアロゾルデポジション法による環境遮蔽コーティングの形成技術 長谷川 誠 (横浜国立大学)

次世代EBCに向けた微粒子コーティング技術 篠田 健太郎, 鈴木 雅人, 他 (産業技術総合研究所)

先進環境遮蔽コーティングシステムにおける材料設計 北岡 論, 松平 恒昭, 山口 哲央 (ファインセラミックスセンター)

自己治癒セラミックスの設計: 航空機エンジン部材への適用を目指して 長田 俊郎 (物質・材料研究機構)

CMC, EBC開発動向の紹介 (仮) 中村 武志 (IHI)

発電用ガスタービン用先進遮熱コーティングの開発と実用化状況 鳥越 泰治, 岡島 芳史 (三菱重工業)

耐熱コーティング技術およびセラミックス複合材料開発の紹介 根上 将大, 久間 康平, 田中 拓磨, 高木 健, 井頭 賢一郎 (川崎重工業)

東西南北地水火風

ホンダエアロインクの設立と運営 藁谷 篤邦

※タイトル, 執筆者は変更する可能性があります。

編集
後記

新しい年度が始まりました。昨年度は新型コロナウイルスの初めての緊急事態宣言が2020/4/7に発令され、会員の皆様も年間を通じて未曾有の状況を過ごされたことかと思えます。今年度（本稿の執筆時点である4月末）は第3回目の緊急事態宣言が出されている状況は昨年度と同じですが、マスクやトイレトペーパーが容易に入手できること、職場や学校でテレワークの環境が整ってきていること、そして何より、我が国でもワクチンの接種が開始されていることが昨年度との大きな違いだと思います。

本学会誌編集委員会に関しては、リモート会議で期日通りに開催することが可能になっていますが、対面の会議と比較して相手の表情が判りにくいため、深い議論をすることが難しくなっていると個人的には感じています。特に、本学会誌の毎号の特集企画を絞り出すことが（対面の会議でも）大変なので、早く新型コロナが終息して、少しでも特集企画の案を議論しやすくなることを願ってやみません。

さて、本号では「水素・脱炭素燃料の最新動向(その2)」と題し、3月号と同じテーマのシリーズ特集の後編として記事の執筆をお願いしました。実は、3月号と5月号は初めからシリーズ特集として企画されたわけではなく、昨年10月の委員会で類似のテーマの企画が偶然同じタイミングで提案されたため、シリーズ特集となった経緯があります。このテーマの重複の偶然は、ガスタービン関係者にとっても脱炭素への関心が高まっていることの現れだと感じさせられます。

我が国の二酸化炭素の排出量は、発電所をはじめとするエネルギー転換部門、製鉄所などの産業部門、自動車などの運輸部門の順に多いとされています。本号では、火力発電（IHI、電中研、三菱パワー）、自動車（本田技術研究所）および航空（JAXA、JAL）の脱炭素燃料技

術、産業用や発電用の燃料として使えるメタネーション技術（IHI）およびメタノール合成技術（産総研）に関する記事の執筆をお願いしました。個々の内容については、それぞれの記事をぜひ読んで頂きたいと思いますが、どの記事も本学会誌のために最新の興味深い技術内容を記載頂いております。また、巻頭言は、シリーズ前編の3月号に引き続き、産総研の古谷様に執筆頂きました。ご多忙の中、執筆を引き受けて頂いた方々に改めて感謝申し上げます。

（荒木 秀文）

- 5月号アソシエイトエディタ
荒木 秀文（三菱パワー）
- 5月号担当委員
野原 弘康（ダイハツディーゼル）
八田 直樹（三井E&Sマシナリー）
村上 秀之（物質・材料研究機構）
山下 一憲（荏原製作所）

（表紙写真）

今回の表紙については、【論説・解説】の著者より流用およびお借りしています。

詳細については、下記記事をご参照ください。

- ・「Hondaにおける脱炭素へ向けた燃料の取組み」
..... (P129 ~ 134)
- ・「日本航空における代替航空燃料（SAF）の導入に向けた取組み」..... (P143 ~ 147)
- ・「2MW級ガスタービンにおける液体アンモニア直接噴霧燃焼技術の開発」..... (P160 ~ 164)
- ・「アンモニア分解利用GTCCシステムと実圧燃焼試験」
..... (P172 ~ 178)

だより
♣事務局 ☒ ♣

吹く風がさわやかな時季となりましたが、コロナ蔓延のさなかに今年も何かと制約が多い毎日ですね。事務局でも感染対策として、テレワークを使いながら業務を続けています。発送やお電話対応など、ご不便をおかけするタイミングが増えて申し訳ございません。

皆様にも投票をお願いしました今年の総会を4月16日に終え、今年度の体制をスタートすることとなりました。総会は今年も限られた人員にて対面方式とWeb方式のハイブリットで行われ、2年連続して会員各位に広く参加をお願いすることが難しい状況で行われたのは残念です。来年こそはと思っておりますが、どうなることでしょうか。

話は変わりますが、ワシントン条約で絶滅の危機にある生物の中でラッコがリストに挙がっているそうですが、近年絶滅したといわれていた日本の中で北海道沿岸を生息域にする

個体が出てきたそうです。SDGsなどといった全世界的環境保護活動も盛んに取り上げられている中、自然環境の改善の機運が高まっているのでしょうか。しかし、沿岸に生息する貝やウニ漁の影響を早くも心配する声が出ているようです。環境と経済活動を両立させることは難しいですね。

我が家でもスーパーの袋の代わりにマイバスケッ、マイバックを持参して買い物に出かけることが格段に増えてきました。また、今まではそれほど考えていませんでしたが、プラ容器もリサイクル品に回せるものはどんどんリサイクル回収場所に持参するようになり、一個人のささやかな行動ですが、もしこの行動で何かが変わる一助になれば良いと考えています。

（田頭 味和）

学会誌編集および発行要領（抜粋）

2018年7月13日改定

1. 本会誌の原稿はつぎの3区分とする。
 - A. 依頼原稿：学会誌編集委員会（以下、編集委員会）がテーマを定めて特定の人に執筆を依頼する原稿。執筆者は本学会会員（以下、会員）外でもよい。
 - B. 投稿原稿：会員から自由に随時投稿される原稿。執筆者は会員に限る。
 - C. 学会原稿：本学会の運営・活動に関する記事（報告、会告等）および会員による調査・研究活動の成果等の報告。
- 1.2. 技術論文の投稿については、「技術論文投稿要領」による。
- 1.3. 英文技術論文の投稿については、Instruction to Authors, JGPP (International Journal of Gas Turbine, Propulsion and Power Systems) による。
2. 依頼原稿および投稿原稿は、論説・解説、講義、技術論文、寄書（研究だより、見聞記、新製品・新設備紹介）、随筆、書評、情報欄記事に掲載することとし、刷り上がりページ数は原則として以下のとおりとする。

論説・解説、講義	6ページ以内
技術論文	「技術論文投稿要領」による
寄書、随筆	3ページ以内
書評	1ページ以内
情報欄記事	1/2ページ以内
3. 原稿の執筆者は、本会誌の「学会誌原稿執筆要領」に従って原稿を執筆し、編集委員会事務局（以下、編集事務局）まで原稿を提出する。編集事務局の所在は付記1に示す。
4. 依頼原稿は、編集委員会の担当委員が、原稿の構成、理解の容易さ等の観点および図表や参考文献の書式の観点から査読を行う。編集事務局は査読結果に基づいて、執筆者への照会、修正依頼を行う。
5. 投稿原稿のうち技術論文以外のものは、編集委員会が審査し、本会誌への掲載可否を決定する。
6. 投稿原稿のうち技術論文の審査、掲載については、「技術論文投稿要領」に従う。
7. 依頼原稿の執筆者には、学会事務局から原則として「学会誌の執筆謝礼に関する内規」第2条に定めた謝礼を贈呈する。
8. 非会員の第一著者には掲載号学会誌1部を贈呈する。
9. 本会誌に掲載された著作物の著作権は原則として本学会に帰属する。本学会での著作権の取扱いについては別途定める「日本ガスタービン学会著作権規程」による。
10. 他者論文から引用を行う場合、本会誌に掲載するために必要な事務処理及び費用分担は著者に負うところとする。

付記1 原稿提出先および原稿執筆要領請求先（編集事務局）
 ニッセイエブプロ(株) 企画制作部
 学会誌担当：高橋 邦和
 〒105-0003 東京都港区西新橋1-18-17 明産西新橋ビル
 TEL：03-5157-1277
 FAX：03-5157-1273
 E-mail：eblo_h3@eblo.co.jp

技術論文投稿要領（抜粋）

2018年7月13日改定

1. 本学会誌に技術論文として投稿する原稿は次の条件を満たすものであること。
 - 1) 主たる著者は本学会会員であること。
 - 2) ガスタービン及びエネルギー関連技術に関連するものであること。
 - 3) 「学会誌原稿執筆要領」に従って執筆された、日本語原稿であること。
 - 4) 一般に公表されている刊行物に未投稿であること。ただし、以下に掲載されたものは未投稿と認め技術論文に投稿することができる。
 - 本学会主催の学術講演会・国際会議のプロシーディングス
 - 特許および実用新案の公報、科学研究費補助金等にかかわる成果報告書
 - 他学協会の講演要旨前刷、社内報・技報、官公庁の紀要等の要旨または抄録
2. 原則として刷り上がり8ページ以内とする。ただし、「学会誌の掲載料に関する内規」第2条に定めた金額の著者負担で4ページ以内の増ページをすることができる。
3. カラー図は電子版と本学会ホームページ上の「技術論文掲載欄」に掲載し、冊子体にはモノクロ変換した図を掲載する。著者が「学会誌の掲載料に関する内規」第3条に定めた金額を負担する場合には、冊子体もカラー印刷とすることができる。
4. 投稿者は、「学会誌原稿執筆要領」に従って作成された印刷原稿または原稿電子データを、技術論文原稿表紙とともに学会誌編集事務局に提出する。
5. 投稿された論文は、論文委員会が「論文査読に関する内規」に従って査読を行い、掲載可否を決定する。
6. 論文内容についての責任は、すべて著者が負う。
7. 本技術論文の著作権に関しては、「学会誌編集および発行要領（抜粋）」9.および10.を適用する。

日本ガスタービン学会誌
 Vol. 49 No. 3 2021.5

発行日 2021年5月20日
 発行所 公益社団法人日本ガスタービン学会
 編集者 新関 良樹
 発行者 太田 有
 〒160-0023 東京都新宿区西新宿7-5-13
 第3工新ビル402
 Tel. 03-3365-0095 Fax. 03-3365-0387
 郵便振替 00170-9-179578
 銀行振込 みずほ銀行 新宿西口支店
 (普) 1703707
 印刷所 ニッセイエブプロ(株)
 〒105-0003 東京都港区西新橋1-18-17
 明産西新橋ビル
 Tel. 03-5157-1277 Fax. 03-5157-1273

©2021, 公益社団法人日本ガスタービン学会

複写複製をご希望の方へ

公益社団法人日本ガスタービン学会では、複写複製に係る著作権を一般社団法人学術著作権協会に委託しています。当該利用をご希望の方は、学術著作権協会（<https://www.jaacc.org/>）が提供している複製利用許諾システムを通じて申請ください。