

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2011-529843

(P2011-529843A)

(43) 公表日 平成23年12月15日(2011.12.15)

(51) Int. Cl.	F 1	テーマコード (参考)
CO1B 31/22 (2006.01)	CO1B 31/22	4D047
F25J 3/00 (2006.01)	F25J 3/00	4G146

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2011-520439 (P2011-520439)  
 (86) (22) 出願日 平成21年7月24日 (2009.7.24)  
 (85) 翻訳文提出日 平成23年3月17日 (2011.3.17)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2009/059568  
 (87) 国際公開番号 W02010/012658  
 (87) 国際公開日 平成22年2月4日 (2010.2.4)  
 (31) 優先権主張番号 61/085,611  
 (32) 優先日 平成20年8月1日 (2008.8.1)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 61/085,624  
 (32) 優先日 平成20年8月1日 (2008.8.1)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 12/503,342  
 (32) 優先日 平成21年7月15日 (2009.7.15)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 503416353  
 アルストム テクノロジー リミテッド  
 ALSTOM Technology Ltd  
 スイス国 バーデン ブラウン ボヴェリ  
 シュトラッセ 7  
 Brown Boveri Strasse 7, CH-5401 Baden, Switzerland  
 (74) 代理人 100077861  
 弁理士 朝倉 勝三  
 (72) 発明者 ヒース ウォルフガング ゲオルク  
 スウェーデン国 エス-211 37 マ  
 ルメ ファブリクスガタン 8

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高圧におけるアンチサブリーメーションによる二酸化炭素の抽出法

(57) 【要約】

【要約】 アンチサブリーメーションによってガストリームからCO<sub>2</sub>を除去する方法は、a) CO<sub>2</sub>を含有するガストリームを凍結容器に導入する工程；b) 凍結容器において、少なくとも一部のガストリームの温度を、アンチサブリーメーションによって固体CO<sub>2</sub>が生ずる温度に低下させる工程；c) CO<sub>2</sub>が奪われたガストリームを凍結容器から排出する工程；及びd) 生じた固体CO<sub>2</sub>を回収する工程を含んでなり、工程b)におけるガストリームの圧力が大気圧よりも高いことを特徴とする。ガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するためのアンチサブリーメーションシステムは、ガストリームを受け取るように構成された凍結容器(101)であって、凍結容器における少なくとも一部のガストリームの温度を、アンチサブリーメーションによって固体CO<sub>2</sub>が生ずる温度に低下させるように構成された低温冷凍装置(107)を含んでなる凍結容器；及び凍結容器に供給されるガストリームの圧力を上昇させるように構成された圧縮器(108)を含んでなる。

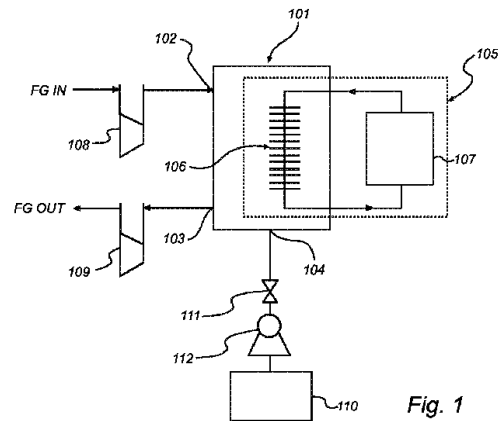


Fig. 1

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

アンチサブレーションによってガストリームからCO<sub>2</sub>を除去する方法であって、

- a) CO<sub>2</sub>を含有するガストリームを凍結容器に導入する工程；
  - b) 前記凍結容器において、少なくとも一部のガストリームの温度を、アンチサブレーションによって固体CO<sub>2</sub>が生ずる温度に低下させる工程；
  - c) CO<sub>2</sub>が奪われたガストリームを凍結容器から排出する工程；及び
  - d) 堆積した固体CO<sub>2</sub>を回収する工程
- を含んでなり、工程 b) におけるガストリームの圧力が大気圧よりも高いことを特徴とする、CO<sub>2</sub>の除去法。

10

**【請求項 2】**

工程 b) におけるガストリームの圧力が 1.5 パール以上である、請求項 1 記載の方法。

**【請求項 3】**

工程 b) におけるガストリームの圧力が 2.0 パール以上である、請求項 2 記載の方法。

**【請求項 4】**

工程 b) におけるガストリームの圧力が 10.0 パール以下である、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の方法。

**【請求項 5】**

ガストリームの圧力を、ガストリームを凍結容器に導入する前に、圧縮器によって上昇させる、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の方法。

20

**【請求項 6】**

ガストリームの圧力を、工程 b) を行った後に低下させる、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の方法。

**【請求項 7】**

圧力の低減を、機械的又は電気的エネルギーに転化する、請求項 6 記載の方法。

**【請求項 8】**

機械的又は電気的エネルギーを、少なくとも部分的に、圧縮器に再循環する、請求項 7 記載の方法。

30

**【請求項 9】**

ガストリームの温度を、ガストリームを凍結容器に導入する前に、1 以上のプレ冷却工程において低下させる、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の方法。

**【請求項 10】**

ガストリームの温度が、ガストリームが凍結容器導入される際、- 80 ~ - 100 の範囲である、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の方法。

**【請求項 11】**

堆積した固体CO<sub>2</sub>の回収が、堆積した固体CO<sub>2</sub>を液化させ；及び液化したCO<sub>2</sub>を凍結容器から排出することを含む、請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の方法。

**【請求項 12】**

ガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するためのアンチサブレーションシステムであって、ガストリームを受け取るように構成された凍結容器であって、凍結容器における少なくとも一部のガストリームの温度を、アンチサブレーションによって、固体CO<sub>2</sub>が堆積する温度に低下させるように構成された低温冷凍装置を含んでなる凍結容器；及び凍結容器に供給されるガストリームの圧力を上昇させるように構成された圧縮器を含んでなる、アンチサブレーションシステム。

40

**【請求項 13】**

低温冷凍装置が、ガスサイクル冷凍システム、カスケード冷凍システム又は一体化したカスケード冷凍システムを含んでなる、請求項 12 記載のアンチサブレーションシステム。

50

**【請求項 14】**

さらに、凍結容器から高圧で排出されるガストリームを受け取り、圧力を機械的又は電氣的エネルギーに転化するように構成されたエネルギーコンバーターを含んでなる、請求項 12 又は 13 記載のアンチサブレーションシステム。

**【請求項 15】**

さらに、追加の凍結容器を含んでなり、2つの凍結容器が並列に配置され、これにより、2つの凍結容器を稼動 - 待機サイクルで作動することができる、請求項 12 ~ 14 のいずれかに記載のアンチサブレーションシステム。

**【請求項 16】**

さらに、凍結容器の上流に配置され、ガストリームを 0 ~ 10 の範囲の温度に冷却するように構成された第 1 のプレ冷却装置を含んでなる、請求項 12 ~ 15 のいずれかに記載のアンチサブレーションシステム。

10

**【請求項 17】**

第 1 のプレ冷却装置が冷却塔を含んでなる、請求項 16 記載のアンチサブレーションシステム。

**【請求項 18】**

さらに、凍結容器の上流に配置され、ガストリームを - 20 ~ - 60 の範囲の温度に冷却するように構成された第 2 のプレ冷却装置を含んでなる、請求項 16 又は 17 記載のアンチサブレーションシステム。

**【請求項 19】**

第 2 のプレ冷却装置が工業用冷凍装置を含んでなる、請求項 18 記載のアンチサブレーションシステム。

20

**【請求項 20】**

さらに、凍結容器から排出される冷たいガストリームを受け取り、この冷たいガストリームを、凍結容器に導入されるガストリームの温度を低下させるために使用するように構成された熱交換器を含んでなる、請求項 12 ~ 19 のいずれかに記載のアンチサブレーションシステム。

**【請求項 21】**

圧縮器が熱交換器の上流に配置されている、請求項 20 記載のアンチサブレーションシステム。

30

**【請求項 22】**

エネルギーコンバーターが熱交換器の下流に配置されている、請求項 20 記載のアンチサブレーションシステム。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本願は、2008年8月1日出願の米国仮出願第61/085,611号及び2008年8月1日出願の米国仮出願第61/065,624号の優先権を主張するものであり、その記載のすべてを参照することにより本書に含める。

**【0002】**

本発明は、アンチサブレーションによってガストリームからCO<sub>2</sub>を除去する方法及びガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するアンチサブレーションシステムに係り、前記アンチサブレーションシステムは、少なくとも1つの凍結容器を含んでなる。

40

**【背景技術】****【0003】**

公知のアンチサブレーションシステムにおける二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)の捕捉は、1以上の凍結容器内の冷たい表面においてCO<sub>2</sub>アイス凍結させ、続いて、これら表面を温めることによってCO<sub>2</sub>を解凍することによって行われる。

**【0004】**

米国特許第7,073,348号は、特に、機械的エネルギーの生産用に構成された装置におい

50

て、炭化水素の燃焼に由来する煙霧から二酸化炭素を抽出する方法及びシステムに係る。当該方法は、前記煙霧を、大気圧にほぼ等しい圧力において、アンチサブレーションプロセスを介して、二酸化炭素が蒸気状態から固体状態に直接移行するような温度に冷却する工程を含んでなる。アンチサブレーションフェーズの間に、CO<sub>2</sub>フロストがアンチサブレーションエバポレーターにおいて形成される。煙霧内に含有されるCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションの次のサイクルのためにアンチサブレーションエバポレーターを準備する手順は次のように要約される。固体CO<sub>2</sub>が、圧力5.2バールにおいて、融解し、すなわち、固体状態から液体状態に移行する。CO<sub>2</sub>が完全に液体状態になると、ポンプによって、これを断熱リザーバーに移す。

【0005】

米国特許出願公開第2006/0277942号は、米国特許第7,073,348号と概ね同様の開示を提供するが、二酸化炭素と共に、二酸化イオウを抽出することに関する。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、CO<sub>2</sub>除去用のアンチサブレーションシステムのCO<sub>2</sub>捕捉効率を増大させることにある。

【0007】

本発明の他の目的は、ガストリームからCO<sub>2</sub>を捕捉するためのアンチサブレーションシステムの全体のエネルギー消費量を低減することにある。

【0008】

当該分野において一般的になっているように、用語「アンチサブレーション」は、当該ガスの温度がその三重点の温度以下である場合に生ずる直接のガス/固体相変化をいう。用語「昇華」は、従来どおり、直接の固体/ガス相変化をいう。

【課題を解決するための手段】

【0009】

上述の目的及び他の目的（下記の記載を検討した後に、当業者には、明白になるであろう）は、第1の態様において、アンチサブレーションによって、ガストリームからCO<sub>2</sub>を除去する方法であって、

a) CO<sub>2</sub>を含有するガストリームを凍結容器に導入する工程；

b) 凍結容器において、少なくとも一部のガストリームの温度を、アンチサブレーションによって固体CO<sub>2</sub>が生ずる温度に低下させる工程；

c) CO<sub>2</sub>が奪われたガストリームを凍結容器から排出する工程；及び

d) 堆積した固体CO<sub>2</sub>を回収する工程

を含んでなり、工程b)におけるガストリームの圧力が大気圧よりも高いことを特徴とするCO<sub>2</sub>の除去法によって達成される。

【0010】

ガストリームにおけるCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションのための従来技術による方法及びシステム（例えば、米国特許第7,073,348号に記載のシステム）では、CO<sub>2</sub>のアンチサブレーション又は「凍結」は、大気圧にほぼ等しい圧力下で行われる。

【0011】

本発明は、凍結容器において凍結を行う温度、及び凍結容器の冷たい冷媒において要求されるこのような温度が、アンチサブレーションシステムの全体的なエネルギーの消費量の制御における重要なファクターであるとの認識に基づくものである。冷たい冷媒の温度のわずかな増大でも、アンチサブレーションシステムの全体的なエネルギーの消費量の顕著な低減をもたらす。

【0012】

本発明によれば、凍結工程を、大気圧と比べて上昇させた圧力で行う。これにより、凍結容器のCO<sub>2</sub>の捕捉効率を維持したままで、冷たい冷媒の温度を上昇させることができる。例として、図2に示すようなCO<sub>2</sub>除去システムの具体例では、ガストリーム中のCO<sub>2</sub>の

10

20

30

40

50

90%を除去するために要求される温度は、大気圧（すなわち、1.0バール）で凍結を行う場合の-121 から、上昇させた圧力2.0バールで凍結を行う場合の-115 に上昇される。冷却能には、ほとんど変化はない。しかし、より温かい温度において同じ凍結を生ずるために要求されるインプット電力は、大気圧で操作するプロセスにかかる電力の消費量と比べて約6%低減される。インプット電力におけるかかる低減は、CO<sub>2</sub>除去プロセスに関する操作コストの顕著な低減に相当する。

【0013】

工程b)におけるガストリームの圧力は、好ましくは、大気圧（すなわち、約1.0バール）よりも明らかに高い圧力、好ましくは、約1.2バール以上、さらに好ましくは、約1.5バール以上又は2.0バール以上である。上昇した圧力は、例えば、1.2~30.0バールの範囲であり、例えば、1.5~30.0バールの範囲又は2.0~30.0バールの範囲である。実用的理由のため、圧力は10.0バール以下に維持される。これは、この圧力であれば、例えば、1.5~10.0バール又は2.0~10.0バールの範囲のような1.2~10.0バールの範囲では、大気圧での作動用に構成された既存のシステムを、圧縮器の挿入以外に、わずかな変更を加えたのみで又は変更なしで使用できるからである。

10

【0014】

1具体例では、工程b)におけるガストリームの圧力は、1.5バールよりも高く、好ましくは、2.0バールよりも高い。1具体例では、工程b)におけるガストリームの圧力は、10.0バールよりも低い。

【0015】

1具体例では、ガストリームの圧力を、ガストリームを凍結容器に導入する前に上昇させる。

20

【0016】

1具体例では、ガストリームの圧力を、工程b)を行った後に低下させる。圧力の減少は、好ましくは、機械的又は電氣的エネルギーに転化される。エネルギーの転化は、例えば、タービン膨張器又はガス圧を機械的及び/又は電氣的エネルギーに転化できる装置によって行われる。

【0017】

ガストリームの圧力が圧縮器によって上昇され、ガストリームの圧力が機械的又は電氣的エネルギーに転化される具体例では、生産された機械的又は電氣的エネルギーは少なくとも部分的に圧縮器に再循環される。

30

【0018】

1具体例では、ガストリームの温度は、凍結容器に導入される前に、1以上のプレ冷却工程において低下される。

【0019】

凍結容器において使用される、例えば、温度-115 のような低温でのガストリームの冷却は多量のエネルギーを消費する。従って、凍結容器に導入する前に、ガストリームをより高い温度でプレ冷却することが好ましい。プレ冷却は、例えば、ガストリームの温度を約0~10 の範囲に低下させる水冷却を含む1以上のプレ冷却工程、及びガストリームの温度を約-20~-60 の範囲に低下させる1以上の一般的な冷凍工程において行われる。ガストリームの温度をさらに低下させるためには、凍結容器から排出される冷たいガストリームを熱交換器において使用して、凍結容器に導入されるガストリームの温度を低下させることができる。熱交換器では、ガストリームの温度は、好ましくは、約-80~-100 の範囲の温度に低下される。

40

【0020】

1具体例では、ガストリームの温度は、凍結容器に導入される際、-80~-100 の範囲である。

【0021】

本発明の第2の態様では、ガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するためのアンチサブリーメーションシステムであって、

50

ガスストリームを受取るように構成された凍結容器であって、凍結容器における少なくとも一部は、ガスストリームの温度を、アンチサブレーションによって、固体CO<sub>2</sub>が生ずる温度に低下させるように構成された低温冷凍装置を含んでなるものである凍結容器；及び凍結容器に供給されるガスストリームの圧力を増大させるように構成された圧縮器を含んでなるCO<sub>2</sub>除去のためのアンチサブレーションシステムが提供される。

#### 【0022】

低温冷凍システムは、好ましくは、ガスストリームと接触するように配置された凍結容器における表面において、-110 以下、-115 以下又は-120 以下のようなCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションが生ずる温度を提供できるものである。低温冷凍システムは、好ましくは、適切な低温冷媒にて、独立したユニットとして作動するように構成される。アンチサブレーションシステムとの併用に適する低温冷凍システムの例としては、ガスサイクル冷凍システムに限定されず、カスケード冷凍システム及び一体化したカスケード冷凍システムがある。1 具体例では、低温冷凍装置は、ガスサイクル冷凍システム、カスケード冷凍システム又は一体化したカスケード冷凍システムを含んでなる。ガスサイクル冷凍システム、カスケード冷凍システム又は一体化したカスケード冷凍システムから選ばれる低温冷凍装置を、凍結容器におけるガスストリームの高圧と組み合わせる具体例は、このような冷凍装置の電力消費が、要求される温度に高度に依存するものであるため有利である。ガスサイクル冷凍システム、カスケード冷凍システム又は一体化したカスケード冷凍システムから選ばれる低温冷凍装置が、凍結容器におけるガスストリームの高圧と組み合わせられた具体例は、従って、アンチサブレーションシステム全体の操作コストの顕著な低減を提供できる。

10

20

#### 【0023】

圧縮器は、好ましくは、ガスストリームの圧力を、大気圧（すなわち、約1.0バール）以上、好ましくは1.2バール以上、さらに好ましくは1.5バール以上又は2.0バール以上に上昇させることができるように構成される。圧縮器は、ガスストリームの圧力を、例えば、1.5~30.0バール又は2.0~30.0バールの範囲のような1.2~30.0バールの範囲に上昇させることができる。実用的理由から、圧力は、10.0バール以下、例えば、1.5~10.0バール又は2.0~10.0バールの範囲のような1.2~10.0バールの範囲に維持されるが、これは、大気圧での作動用に構成された既存のシステムを、圧縮器の挿入以外に、わずかな変更を加えたのみで又は変更なしで使用できるからである。

30

#### 【0024】

1 具体例では、アンチサブレーションシステムは、さらに、高圧で凍結容器から排出されるガスストリームを受け取り、圧力を機械的又は電気的エネルギーに転化するように構成されたエネルギーコンバーターを含んでなる。

#### 【0025】

エネルギーコンバーターは、例えば、タービン膨張器又はガス圧を機械的及び/又は電気的エネルギーに転化できる他の装置を含んでなる。エネルギーコンバーターを含んでなる具体例では、エネルギーコンバーター及び圧縮器は、エネルギーコンバーターで生産された機械的又は電気的エネルギーが、少なくとも部分的に圧縮器に再循環されるように、機械的又は電気的に導通している。

40

#### 【0026】

アンチサブレーションシステムは、並列の2以上の凍結容器を含むことができる。これにより、1以上の凍結容器が解凍モードで作動している間に、1以上の他の凍結容器が凍結モードで作動することが可能になる。このように、2つ以上の凍結容器を含んでなるアンチサブレーションシステムは、解凍のための休止期間なしで、稼動-待機サイクルで連続して作動するように構成される。このように、1 具体例では、アンチサブレーションシステムは、さらに、追加の凍結容器を含んでなり、2つの凍結容器が稼動-待機サイクルで作動できるように、2つの凍結容器が並列に配置される。

#### 【0027】

上述のように、第1の態様について、ガスストリームの温度は、好ましくは、凍結装置

50

への導入前に低下される。従って、アンチサブレーションシステムは、凍結容器の上流に配置され、ガストリームを、凍結容器への導入に適した温度に冷却できるように構成された1以上のプレ冷却装置を含んでなる。

【0028】

1具体例では、アンチサブレーションシステムは、さらに、凍結容器の上流に配置され、ガストリームを、0～10の範囲の温度に冷却するように構成された第1のプレ冷却装置を含んでなる。

【0029】

アンチサブレーションシステムは、さらに、凍結容器の上流に配置され、ガストリームを、-20～-60の範囲の温度に冷却するように構成された第2のプレ冷却装置を含んでなる。第2のプレ冷却装置は、例えば、工業用冷凍装置を含むことができる。

10

【0030】

凍結容器から排出されるCO<sub>2</sub>が奪われた冷たいガスは、有利には、凍結容器に導入されるガストリームを冷却するために使用される。

【0031】

1具体例では、アンチサブレーションシステムは、さらに、凍結容器から排出される冷たいガストリームを受け取り、これを、凍結容器に導入されるガストリームの温度を低下させるために使用するように構成された熱交換器を含んでなる。

【0032】

凍結容器の上流の圧縮器の位置、及び凍結容器の下流のエネルギーコンバーターの位置は、例えば、熱交換器における冷却効率を最大にするか、又はエネルギーコンバーターによって生産される機械的又は電気的エネルギーを最大にするかに応じて選択される。

20

【0033】

1具体例では、圧縮器は熱交換器の上流に配置される。

【0034】

1具体例では、エネルギーコンバーターは熱交換器の下流に配置される。

【0035】

本発明の全ての態様の全ての特徴は、可能ないかなる組み合わせの形においても、このような組合せが、当業者により過度の実験を行うことなく決定されるように実施不能でない限り使用される。

30

【0036】

本明細書において、用語「ガストリーム」は、CO<sub>2</sub>を含んでなる各種のガス混合物のストリームを意味する。しかし、「ガストリーム」は、代表的には、再生可能な又は再生不能の燃料のような有機物質の燃焼から生ずる煙道ガスのストリームである。本発明に従って処理されるガストリームが、アンチサブレーションシステムには適さない、又は本発明の他の特徴に適さない化学種又は粒子を含んでなるものである場合には、このような化学種又は粒子は、初めに、当業者に公知の分離技術によって除去される。

【0037】

用語「解凍」は、アイスの他の状態への変化を意味する。特に、CO<sub>2</sub>アイス、すなわち、固体CO<sub>2</sub>の他の状態への変化を意味する。

40

【0038】

本明細書で使用する用語「上流」及び「下流」は、ガストリームの流れに沿った位置を意味する。

【0039】

本明細書におけるガス圧力は、他に明示しない限り、単位「パール」で示されている。ここで使用するように単位「パール」は、絶対圧力、すなわち、完全真空におけるような絶対ゼロ圧力に対する圧力を意味する。

【図面の簡単な説明】

【0040】

【図1】高圧において作動するように構成されたアンチサブレーションシステムの1具

50

体例の概略図である。

【図2】高圧において作動するように構成されたアンチサブレーションシステムの1具体例の概略図である。

【発明を実施するための形態】

【0041】

一般に、ガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するためのアンチサブレーションシステムは、プレ冷却システム、及び低温冷凍システムを含んでなる凍結容器を含んでなる。プレ冷却システムは、一般に、凍結容器への導入前に、ガストリームの温度を低下するように構成された多数の冷却ステージを含んでなる。このプレ冷却により、凍結容器の冷却能力を最小とすることができる。プレ冷却されたガストリームの温度は、凍結容器に導入される際には、一般に、-80~-100の範囲である。凍結容器では、ガストリームの温度は低温冷凍システムによって、さらに、CO<sub>2</sub>のアンチサブレーションが生ずる温度に低下される。アンチサブレーションの間に、ガストリーム中に存在するCO<sub>2</sub>が析出し、凍結容器の冷たい表面に堆積する。固体CO<sub>2</sub>の層が堆積して、凍結容器の負荷能力に達した時点で、ガスの導入を停止し、堆積した二酸化炭素を、低温冷凍システムからの温かい冷媒ストリームによって加熱し、融解エネルギー及び昇華エネルギーを冷凍プロセスによって回収しながら、加圧し、液化させる。ついで、液化した二酸化炭素を貯蔵タンクに排出する。

10

【0042】

ガストリームを、凍結容器への導入前に、他の前処理、例えば、水蒸気の凝縮、及び/又はスクラビング又は濾過に供して、ガストリームに含有される粒状物質及び他の汚染物を除去することもできる。

20

【0043】

以下に、図面を参照して、CO<sub>2</sub>のアンチサブレーションを実施するように構成されたアンチサブレーションシステムの具体例について詳述する。

【0044】

図1は、高圧で作動するように構成されたアンチサブレーションシステムの1具体例を示す。図1に示す具体例では、アンチサブレーションシステムは、ガストリームを受け取るように構成されたガス入口102、ガス出口103、液体出口104を含んでなる凍結容器101を含んでなる。凍結容器は、さらに、低温冷媒を受け取り、凍結容器を通過するガストリームから熱を吸収するように構成された熱交換器106をもつ低温冷凍システム105を含んでなる。低温冷凍システム105は、好ましくは、ガストリームと接触するように配置された熱交換器106の表面(ここでは、「冷表面」という)において、-110以下、又は-115以下、又は-120以下の温度のようなCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションが生ずる温度を提供できるものである。低温冷凍システム105は、好ましくは、十分に低い温度を提供できる工業用冷凍システム107を含んでなることができる。アンチサブレーションシステムとの併用に適する工業用冷凍システムの例としては、ガスサイクル冷凍システムに限定されず、カスケード冷凍システム及び一体化したカスケード冷凍システムがある。熱交換器106は、好ましくは、ガス入口からガス出口まで凍結容器を通過するガストリームとの接触を容易なものとして、ガストリームとの接触に曝される冷表面の大きい表面積を提供できるように構成される。

30

40

【0045】

図1に示すアンチサブレーションシステムの具体例は、さらに、ガストリームのガス圧を上昇させるように構成された装置(ここでは、「圧縮器」という)108を含んでなる。圧縮器108は、凍結容器の上流のガストリームに沿った好適ないずれかの位置に配置されか、又は凍結容器のガス入口102に直接接続して配置される。圧縮器108は、好ましくは、ガストリームの圧力を大気圧(すなわち、約1.0バール)以上、好ましくは、約1.2バール以上、さらに好ましくは、約1.5バール以上又は2.0バール以上に上昇させることができるように構成される。圧縮器は、ガストリームの圧力を、例えば、1.5~30.0バール又は2.0~30.0バールの範囲のような1.2~30.0バールの範囲に上昇さ

50

せることができる。実用的理由から、圧力は、10.0バール以下、例えば、1.5～10.0バール又は2.0～10.0バールの範囲のような1.2～10.0バールの範囲に維持されるが、これは、大気圧での作動用に構成された既存のシステムを、圧縮器の挿入以外に、わずかな変更を加えたのみで又は変更なしで使用できるからである。当業者であれば、アンチサブリメーションシステムの各種の特別な具体例における使用について好適な圧縮器を選定することができるであろう。

【0046】

図1に示すアンチサブリメーションシステムの具体例は、さらに、凍結容器からガス出口103を介して、高圧及び低温で排出されるガスストリームを受け取り、ガスがより低い圧力及び上昇された温度に膨張する際に圧力を機械的又は電氣的エネルギーに転化するように構成されたエネルギーコンバーター109を含んでなる。エネルギーコンバーター109は、例えば、タービン膨張器（ここで、ガスストリームがより低い圧力に膨張し、機械力又は、例えば、オルタネーターを介して電力を発生する）である。機械力及び/又は電力は、圧縮器108における圧縮の仕事に相殺するために回収される。さらに、ガスは膨張プロセスを介して冷却し、さらに、システム全体の冷凍要求を低減する。

10

【0047】

エネルギーコンバーター109は、凍結容器101の下流のガスストリームに沿った各種の好適な位置に配置されるか、又は凍結容器のガス出口103に直接接続して配置される。当業者であれば、アンチサブリメーションシステムの各種の特別な具体例における使用について好適なエネルギーコンバーターを選定することができるであろう。

20

【0048】

アンチサブリメーションシステムは、半連続モード又はバッチモードで作動するように設定される。半連続モードでは、ガスストリームは、凍結の間、凍結容器のCO<sub>2</sub>負荷能力に達するまで、凍結容器を連続して流動できる。凍結容器がCO<sub>2</sub>負荷能力に達した時点で、入口を介するガスの導入を停止し、凍結容器内において堆積したCO<sub>2</sub>を回収する。バッチモードでは、ガス入口を介して所定量のガスを凍結容器に導入し、CO<sub>2</sub>の凍結に供し、続いて、ガス出口を介して放出する。例えば、凍結容器のCO<sub>2</sub>負荷能力に達するまで、サイクルを繰り返し、その後、凍結容器内に堆積したCO<sub>2</sub>を、例えば、CO<sub>2</sub>を解凍し、液体状又は圧縮ガスの形の二酸化炭素を集めることによって回収する。

30

【0049】

低温冷凍システム105、例えば、凍結容器101内に堆積した固体CO<sub>2</sub>の融解又は昇華を促進するために、温かい低温冷媒又は他の好適な熱交換媒体を熱交換器106に提供するように構成することによって、アンチサブリメーションシステムの解凍モードにおいて有用なものとなるように構成される。解凍されたCO<sub>2</sub>は、好ましくは、液体出口104を介して排出され、例えば、弁111及びポンプ112を介して、液体CO<sub>2</sub>収集タンク110において、液体の形で集められる。

【0050】

図2は、本発明によるアンチサブリメーションシステムの他の具体例を示す。図2に示す具体例では、アンチサブリメーションシステムは、第1及び第2の凍結容器201a及び201b、第1及び第2の冷却ステージ213及び214、及び熱交換器215を含んでなる。第1及び第2の冷却ステージ213及び214、及び熱交換器215は、ガスストリームを、第1及び第2の凍結容器201a又は201bへの導入前に、プレ冷却するように構成されている。

40

【0051】

第1及び第2の冷却ステージ213及び214は、ガスストリームの温度を低下させるように構成されている熱交換器を含んでなる。第1の冷却ステージ213は、例えば、ガスストリームを約25～50から約0～10に冷却するように構成され、第2の冷却ステージ214は、例えば、ガスストリームを約0～10から約-20～-60に冷却するように構成される。第1の冷却ステージ213は、例えば、冷却塔を含んでなる。第2の冷却ステージ214は、例えば、一般的な工業用冷凍ユニットを含んでなる。第1及び第2の冷却ステージ213及び214は、凍結容器に導入されるガスストリームの温度をさらに低下させる

50

ために、第1又は第2の凍結容器から排出される冷たいガストリームを使用するように構成される。第1及び第2の冷却ステージは、カスケード冷凍システム、ガスサイクル冷凍システム又は他のタイプの冷凍システムの一部であってもよい。

【0052】

熱交換器215は、ガストリームを第1又は第2の凍結容器201a又は201bに導入する前に、ガストリームを、第1又は第2の凍結容器から排出される冷たいガストリームとの熱交換のために接触させることによって、ガストリームの温度をさらに低下させるために配置される。第1又は第2の凍結容器から排出される冷たいガストリームの温度は、一般に - 80 以下である。熱交換器は、例えば、ガストリームの温度を、約 - 20 ~ - 60 から約 - 80 ~ - 100 に低下させるように構成される。

10

【0053】

第1及び第2の凍結容器201a及び201bは、それぞれ、熱交換器215からのプレ冷却されたガストリームを受け取るように構成されたガス入口202a, 202b、ガス出口203a, 203b、液体出口204a, 204bを含んでなる。凍結容器は、さらに、低温冷媒を受け取り、凍結容器を通過するガストリームから熱を吸収するように構成された熱交換器206a, 206bをもつ低温冷凍システム205を含んでなる。低温冷凍システム205は、好ましくは、ガストリームとの接触のために配置された熱交換器206a及び206bの表面（「冷たい表面」という）において、- 120 以下の温度のようなCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションが生ずる温度を提供することができる。熱交換器206a, 206bは、好ましくは、ガス入口からガス出口まで凍結容器201a, 201bを通過するガストリームとの接触を容易なものとし、ガストリームと接触する冷表面の大きい表面積を提供するように構成される。

20

【0054】

アンチサブレーションシステムは、さらに、解凍の間に凍結容器から液体CO<sub>2</sub>を受け取るように配置された液体CO<sub>2</sub>収集タンク210を含んでなる。CO<sub>2</sub>収集タンクは、凍結容器201a及び201bの液体出口204a及び204bに流体導通している。流体導通は、好ましくは弁211a又は211b及びポンプ212を含んでなる。

【0055】

システムが凍結モードで作動している際には、熱交換器206a, 206bは低温冷凍システム205から低温冷媒を受け取り、凍結容器201a, 201bを通過するガストリームから熱を吸収するように構成される。低温冷凍システム205は、好ましくは、ガストリームとの接触のために配置された熱交換器206a, 206bの表面（「冷表面」という）において、- 120 以下の温度のようなCO<sub>2</sub>のアンチサブレーションが生ずる温度を提供することができる。熱交換器206a, 206bは、好ましくは、ガス入口202からガス出口203まで凍結容器を通過するガストリームとの接触を容易なものとし、ガストリームと接触する冷表面の大きい表面積を提供するように構成される。

30

【0056】

低温冷凍システム205は、例えば、凍結容器内に堆積した固体CO<sub>2</sub>の融解又は昇華を促進するために、温かい低温冷媒又は他の好適な熱交換媒体を、熱交換器206a, 206bに提供するように構成することによって、アンチサブレーションシステムの解凍モードにおいて有用なものとなるように構成される。解凍したCO<sub>2</sub>は、好ましくは、液体出口204a, 204bを介して排出され、液体CO<sub>2</sub>収集タンク210において液状で収集される。

40

【0057】

図2に示すアンチサブレーションシステムは、稼動 - 待機サイクルで作動される。これは、第1の凍結容器が凍結モードで使用され（稼動サイクル）、その間、第2の凍結容器が解凍モードで使用される（待機サイクル）ことを意味する。第1の容器における凍結操作及び/又は第2の容器における解凍操作が完了すると、操作が逆転する。これによって、各凍結容器における操作が半連続式であったとしても、システムを実質的に連続式で作動することができる。

【0058】

図2に示すアンチサブレーションシステムの具体例は、さらに、ガストリームのガ

50

ス圧を上昇させるように構成された装置（ここでは、「圧縮器」という）208を含んでなる。この具体例では、圧縮器は、凍結容器の上流の第2の冷却ステージ214と熱交換器215との間に配置されている。しかし、圧縮器208は、凍結容器の上流のガストリームに沿った好適ないずれかの位置に配置されか、又は凍結容器のガス入口に直接接続して配置される。圧縮器208は、好ましくは、ガストリームの圧力を大気圧（すなわち、約1.0バール）以上、好ましくは、約1.2バール以上、さらに好ましくは、約1.5バール以上又は2.0バール以上に上昇させることができるように構成される。圧縮器は、好ましくは、ガストリームの圧力を大気圧（すなわち、約1.0バール）以上、好ましくは、約1.2バール以上、さらに好ましくは、約1.5バール以上又は2.0バール以上に上昇させることができるように構成される。圧縮器は、ガストリームの圧力を、例えば、1.5～30.0バール又は2.0～30.0バールの範囲のような1.2～30.0バールの範囲に上昇させることができる。実用的理由から、圧力は、10.0バール以下、例えば、1.5～10.0バール又は2.0～10.0バールの範囲のような1.2～10.0バールの範囲に維持されるが、これは、大気圧での作動用に構成された既存のシステムを、圧縮器の挿入以外に、わずかな変更を加えたのみで又は変更なしで使用できるからである。当業者であれば、アンチサブレーションシステムの各種の特別な具体例における使用について好適な圧縮器を選定することができるであろう。

#### 【0059】

図2に示すアンチサブレーションシステムの具体例は、さらに、凍結容器から高压で排出されるガストリームを受け取り、圧力を機械的又は電気的エネルギーに転化するように構成されたエネルギーコンバーター209を含んでなる。エネルギーコンバーター209は、例えば、タービン膨張器（ここで、ガストリームがより低い圧力に膨張し、機械力を発生する）である。機械力は、圧縮器208における圧縮の仕事と相殺するために回収される。さらに、ガスは膨張プロセスを介して冷却され、さらに、システム全体の冷凍要求を低減する。この具体例では、エネルギーコンバーターは、凍結容器の下流の凍結容器201a、201bと熱交換器215との間に配置されている。しかし、エネルギーコンバーターは、凍結容器の下流のガストリームに沿った好適ないずれかの位置に配置されか、又は凍結容器のガス出口に直接接続して配置される。当業者は、例えば、機械力と冷凍との間の所望のバランスに応じて、エネルギーコンバーターの最も適した位置を決定できるであろう。当業者であれば、アンチサブレーションシステムの各種の特別な具体例における使用について好適なエネルギーコンバーターを選定できるであろう。

#### 【0060】

次に、図1に示すようなアンチサブレーションシステムを使用してガストリームからCO<sub>2</sub>を除去するプロセスを詳述する。CO<sub>2</sub>が除去されるガストリームを、任意に、水、粒子及び他の汚染物を除去した後、プレ冷却フェーズに供し、ここで、ガストリームの温度を、1以上の冷却工程において連続的に低下させる。ガストリームの温度は、例えば、第1の冷却工程において、例えば、冷却媒体として水を使用する冷却塔を使用して、約25～50の温度から約0～10の温度に低下され、第2の冷却工程において、例えば、一般的な冷凍方法を使用して、約0～10の温度から約-20～-60の温度に低下される。プレ冷却フェーズは、さらに、追加の冷却工程を含むことができ、ガストリームの温度を、熱交換器において、凍結が行われる凍結容器から排出される冷たいガストリームを使用して、さらに低下させる。熱交換器では、ガストリームの温度が、例えば、約-20～-60から約-80～-100に低下される。

#### 【0061】

さらに、ガストリームを圧縮フェーズに供し、ガストリームのガス圧を、例えば、圧縮器によって、大気圧を超える圧力に上昇させる。圧縮は、プレ冷却の前、その間、又はその後に行われるが、プレ冷却フェーズの後又は凍結容器から排出される冷たいガストリームとの熱交換の直前のプレ冷却フェーズの間に行うことが好適である。ガストリームの圧力は、好ましくは、大気圧（すなわち、約1.0バール）より明らかに高い圧力、好ましくは、約1.2バール以上、さらに好ましくは、約1.5バール以上又は2.0バ

ール以上に上昇される。上昇された圧力は、例えば、1.5~30.0バール又は2.0~30.0バールの範囲のような1.2~30.0バールの範囲である。実用的理由から、圧力は、10.0バール以下、例えば、1.5~10.0バール又は2.0~10.0バールの範囲のような1.2~10.0バールの範囲に維持される。

【0062】

凍結フェーズでは、プレ冷却され、圧縮されたガストリームを、ガス入口を介して凍結容器に導入し、CO<sub>2</sub>のアンチサブレーションを行う。凍結容器では、ガストリームを、低温冷凍システムの冷表面と接触させる。冷たい表面は十分に冷たいため、ガストリームに存在するCO<sub>2</sub>ガスのアンチサブレーションが生じ、冷表面上に固体のCO<sub>2</sub>アイスが堆積する。冷表面の少なくとも一部は、-110以下、好ましくは-115以下、さらに好ましくは-120以下の表面温度を有する。ついで、CO<sub>2</sub>が奪われたガストリームを、ガス出口を介して、なお低温及び高圧の状態です排出する。

10

【0063】

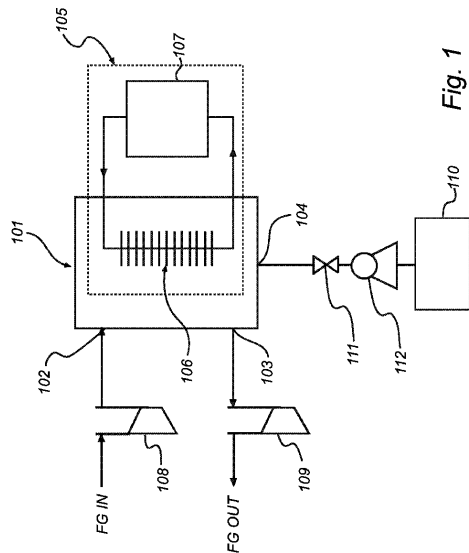
ついで、排出された、CO<sub>2</sub>が奪われた冷たいガストリームを膨張フェーズに供し、ガストリームのガス圧を、例えば、タービン膨張器において低下させる。膨張フェーズでは、ガストリームの温度が上昇し、ガストリームの圧力が、機械力及び/又は電力の生産の間に低下する。さらに、膨張フェーズにおいて、例えば、タービン膨張器によって生産された力は、圧縮フェーズにおいてガストリームを圧縮するために要求される力を相殺するために使用される。

20

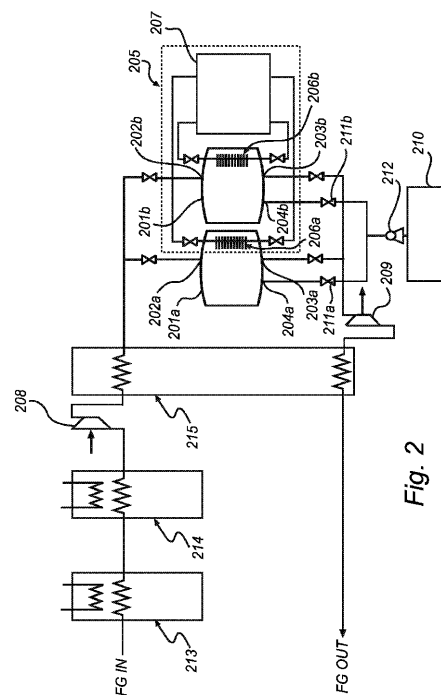
【0064】

凍結容器から排出された冷たいガスは、膨張フェーズの前又は後で、プレ冷却フェーズにおいて入来するガストリームを冷却するために有利に使用される。凍結容器から排出された冷たいガスは、例えば、熱交換器及びプレ冷却フェーズの1以上の冷却工程において漸次高くなる温度で冷凍を提供するために使用される。

【図1】



【図2】



## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2009/059568

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
INV. F25J3/02	C01B31/22	B01D53/00 B01D7/02 F17C9/00
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B01D F17C F25J C01B		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 1 992 486 A (HUNT FRANKLIN B) 26 February 1935 (1935-02-26) page 3, lines 23-34; claims 8,9; figure 1	1-22
A	WO 2005/105669 A (INST FRANCAIS DU PETROLE [FR]; MINKKINEN ARI [FR]; ODRU PIERRE [FR]) 10 November 2005 (2005-11-10) the whole document	1-22
A	US 2 738 658 A (BROUSON SAMUEL C) 20 March 1956 (1956-03-20) the whole document	1-22
A	FR 2 894 838 A (GAZ DE FRANCE SA [FR]) 22 June 2007 (2007-06-22) the whole document	1-22
	-/--	
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *B* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 2 November 2009		Date of mailing of the international search report 20/11/2009
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P. B. 5816 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer Gruber, Marco

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2009/059568

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2005/072186 A1 (AMIN ROBERT [AT] ET AL AMIN ROBERT [AU] ET AL) 7 April 2005 (2005-04-07)	1-22

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No  
PCT/EP2009/059568

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 1992486	A	26-02-1935	NONE
WO 2005105669	A	10-11-2005	FR 2869238 A1 28-10-2005
US 2738658	A	20-03-1956	NONE
FR 2894838	A	22-06-2007	EP 1979072 A2 15-10-2008 WO 2007074294 A2 05-07-2007 JP 2009520595 T 28-05-2009 KR 20080085148 A 23-09-2008 US 2008302133 A1 11-12-2008
US 2005072186	A1	07-04-2005	WO 03062725 A1 31-07-2003 CA 2473949 A1 31-07-2003 CN 1623074 A 01-06-2005 JP 2005515298 T 26-05-2005 NZ 534723 A 29-10-2004

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(72)発明者 モンロー チャールズ マルコム

イギリス国 グロスターシャー ジーエル5 6 1 エーキュー ボートン・オン・ザ・ヒル リデス  
デール

Fターム(参考) 4D047 AA07 AB00 BA03 BA06 CA06 CA11 CA19 DA10 DB00 EA00  
EA03  
4G146 JA03 JB09 LA05 LA07