

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017 年 3 月 2 日(02.03.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/033217 A1

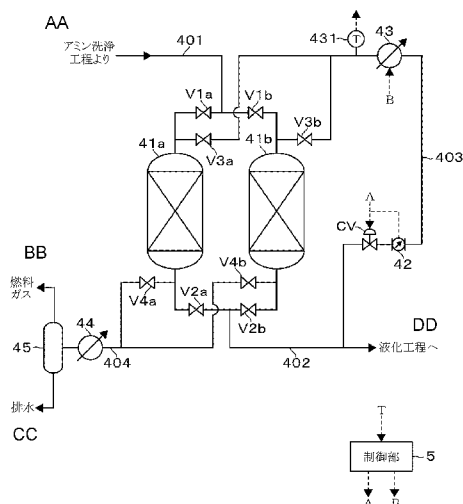
- (51) 国際特許分類:
B01D 53/26 (2006.01) **C10L 3/10** (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/004315
- (22) 国際出願日: 2015 年 8 月 27 日(27.08.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人: 日揮株式会社 (JGC CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町 2 丁目
2 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 村岡 智英 (MURAOKA, Tomohide); 〒
2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい 2 丁
目 3 番 1 号日揮株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 井上 俊夫, 外 (INOUE, Toshio et al.); 〒
2310058 神奈川県横浜市中区弥生町 2 丁目 1 5
番 1 号ストークタワー大通り公園 3 6 0 1 号
Kanagawa (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ロシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: PRETREATMENT EQUIPMENT FOR HYDROCARBON GAS TO BE LIQUEFIED AND SHIPPING BASE EQUIPMENT

(54) 発明の名称: 炭化水素ガスの液化前処理設備及び出荷基地設備



- 5 Control unit
AA From amine cleaning step
BB Fuel gas
CC Discharge water
DD To liquefaction step

(57) Abstract: [Problem] To provide pretreatment equipment for a hydrocarbon gas to be liquefied, wherein the hydrocarbon gas containing water, hydrogen sulfide, and oxygen can be pretreated before liquefaction while reducing influences of the inclusion of hydrogen sulfide and oxygen on the pretreatment for liquefaction. [Solution] Pretreatment equipment 101 for a hydrocarbon gas to be liquefied, wherein adsorption towers 41a and 41b have been connected to a raw-gas line 401 for supplying a hydrocarbon gas containing water, hydrogen sulfide, and oxygen and have been packed with a synthetic zeolite for adsorptively removing the water from the hydrocarbon gas. A heated regeneration gas is supplied to the adsorption tower 41a or 41b through a regeneration gas line 403 to heat and regenerate the synthetic zeolite having water adsorbed thereonto. A temperature control mechanism 43 controls the temperature to which the regeneration gas is heated, so that the temperature inside the adsorption tower during the regeneration of the synthetic zeolite is a set temperature below 230°C.

(57) 要約: 【課題】水分と硫化水素と酸素を含む炭化水素ガスの液化前処理を行うにあたり、硫化水素や酸素が含まれることに伴う液化前処理への影響を低減することが可能な炭化水素ガスの液化前処理設備などを提供する。【解決手段】炭化水素ガスの液化前処理設備 101 において、吸着塔 41a、41b は、水分と硫化水素と酸素とを含む炭化水素ガスを供給する処理ガスライン 401 に接続され、炭化水素ガス中の水分を吸着除去するための合成ゼオライトが充填されている。再生ガスライン 403 は、前記吸着塔 41a、41b に加熱された再生ガスを供給して、水分を吸着した合成ゼオライトを加熱して再生する。温度調節機構 43 は、合成ゼオライトの再生時における吸着塔内の温度が設定温度である 230°C 未満となるように、前記再生ガスの加熱温度を調節する。

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：炭化水素ガスの液化前処理設備及び出荷基地設備 技術分野

[0001] 本発明は、液化される前の炭化水素ガスの前処理を行う液化前処理設備に関する。

背景技術

[0002] 井戸元より産出された炭化水素ガスである天然ガスを液化して出荷するための出荷基地設備には、液化する前の天然ガスから各種の不純物を除去する前処理を行う液化前処理設備と、前処理後の天然ガスを液化してLNG（Liquidized Natural Gas）を得る液化設備とが設けられている。

液化前処理設備においては、 -150°C 以下にまで冷却される天然ガスの液化設備内での閉塞などを防止するため、水分や二酸化炭素の除去が行われる他、硫化水素の除去などが行われる。

[0003] 液化前処理設備の一例として、特許文献1には、天然ガスをアミン吸収液と接触させて、硫化水素や二酸化炭素を吸収して除去し、次いで、分子ふるいとして用いられる合成ゼオライトを充填した吸着塔に天然ガスを通流させて、水分などを吸着する技術が記載されている。合成ゼオライトに対しては、水分除去後の天然ガスを $230\sim 300^{\circ}\text{C}$ 程度まで昇温した後、吸着塔に通流させて、吸着した水分などを脱着させる再生操作が、所定の時間間隔で実施される。

[0004] 一方で天然ガスには予め、または輸送配管や各種機器からの空気の漏れ込みなどに起因して酸素が含まれる場合がある。天然ガス中の酸素は、出荷基地設備や輸送設備に係る配管機器の腐食原因となったり、液化前処理設備内における各不純物の処理効率を低下させる原因となったりすることがある。

この点、特許文献1に記載の技術は、酸素を含む天然ガスを処理する際の液化前処理設備への影響は考慮されていない（表2における、処理対象の天然ガス組成参照）。

[0005] ここで、特許文献2には、担体粒子に還元銅などの還元状態の金属を担持させた粒子の充填層に対し、液化前処理設備に供給される前の大気温度の天然ガスを通流させて酸素を除去する技術が記載されている。また特許文献3には、気体輸送されるランドフィルガス（ゴミ埋立地で発生するメタンガスを主成分とするガス）や低品位の天然ガスから、膜分離により酸素を除去する技術が記載されている。

ところが、特許文献2、3は、含有酸素を天然ガスから除去する技術であって、酸素を含んだまま天然ガスを処理することを前提とした液化前処理設備は記載されていない。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2010-174191号公報：段落0002、0027～0028、0040～0041、図6

特許文献2：国際公開第2008/107709号公報：8頁15行目～9頁17行目、図1、2

特許文献3：米国公開第2011/0094378号公報：段落0003、0029～0030、図2

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、このような背景の下になされたものであり、水分と硫化水素と酸素とを含む炭化水素ガスの液化前処理を行うにあたり、硫化水素や酸素が含まれることに伴う液化前処理への影響を低減することが可能な炭化水素ガスの液化前処理設備、及びこれを備えた出荷基地設備を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、炭化水素ガスの液化前処理設備であって、水分と硫化水素と酸素とを含む炭化水素ガスを供給する処理ガスラインに

接続され、前記処理ガスラインから供給された炭化水素ガス中の水分を吸着除去するための合成ゼオライトが充填された吸着塔と、

水分を吸着した前記合成ゼオライトを加熱して再生するために、前記吸着塔に予め加熱された再生ガスを供給する再生ガスラインと、

前記合成ゼオライトの再生時における吸着塔内の温度が予め設定された設定温度となるように、前記再生ガスの加熱温度を調節する温度調節機構と、を備え、

前記設定温度が230℃未満であることを特徴とする。

[0009] 前記炭化水素ガスの液化前処理設備は以下の特徴を備えていてもよい。

(a) 前記合成ゼオライトは、平均細孔径が3オングストローム以下であること。

(b) 前記再生ガスは、前記吸着塔にて水分を除去された後の炭化水素ガスであること。

(c) 前記吸着塔である第1の吸着塔と第2の吸着塔とを備え、一方側の吸着塔内の合成ゼオライトの再生時には、前記処理ガスラインから他方側の吸着塔に炭化水素ガスを供給して、水分の吸着除去を行うこと。

(d) 前記炭化水素ガスはさらに二酸化炭素を含み、前記吸着塔の上流側に設けられ、前記炭化水素ガスとアミン化合物を含む吸収液とを接触させて、当該炭化水素ガスに含まれる二酸化炭素と硫化水素とを吸収する吸収塔と、

前記吸収塔にて炭化水素ガスと接触させた吸収液を加熱し、二酸化炭素と硫化水素とを放散させて吸収液を再生する再生塔と、を備えたこと。

(e) 前記炭化水素ガスはさらに水銀を含み、前記吸着塔の上流側に設けられると共に、当該炭化水素ガスと、活性炭に硫黄を担持した水銀除去剤とを接触させ、前記炭化水素ガスに含まれる水銀を除去する水銀除去部を備えたこと。

[0010] また、他の発明に係る出荷基地設備は、上述の炭化水素ガスの液化前処理設備と、前記液化前処理設備にて処理された炭化水素ガスを液化する液化設備と、を備えたことを特徴とする。

発明の効果

[0011] 本発明は、炭化水素ガス中に含まれる水分の吸着を行う合成ゼオライトの再生時の吸着塔内の温度が230℃未満となるように温度調節を行うので、酸素と炭化水素との反応に伴う水分の生成などが抑えられ、効率的な再生を行うことができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]天然ガスの出荷基地設備にて実施される各種処理工程を示す工程図である。

[図2]前記液化前処理設備に設けられている水銀除去部、及び天然ガスのアミン洗浄を行う設備の構成図である。

[図3]前記液化前処理設備に設けられ、天然ガス中の水分を除去する吸着塔の構成図である。

[図4]前記吸着塔の作用を示す説明図である。

発明を実施するための形態

[0013] 初めに、図1を参照しながら液化天然ガス（LNG）の出荷設備基地100にて実施される天然ガスの処理の流れについて説明する。

本例の出荷設備基地100にて取り扱われる天然ガスには、少なくとも水分、硫化水素、及び酸素が含まれ、さらに、二酸化炭素や水銀が含まれている。

[0014] 図1に示すように、気液分離工程11にて天然ガス中に含まれる液体が分離された後、水銀除去工程12にて水銀が除去される。続くアミン洗浄工程13では、二酸化炭素や硫化水素など（これらをまとめて「酸性ガス」と呼ぶ場合がある）の除去が行われ、天然ガスから分離された硫化水素は焼却工程14にて焼却される。

[0015] さらに、水分除去工程15にて天然ガス中の水分が除去されることにより、液化前の不純物の除去が完了する。後述するように、天然ガス中の水分の除去は、例えば2基の吸着塔41a、41bを用いて行われる。

気液分離工程11、水銀除去工程12、アミン洗浄工程13及び水分除去

工程 15 は、液化前処理設備 101 にて実施される。

[0016] 液化前処理設備 101 にて不純物が除去された天然ガスは、液化工程 17 にて液化されて液化天然ガス (LNG) となる。液化工程 17 は、液化設備 102 にて実施される。液化設備 102 は、予冷用冷媒 (プロパンを主成分とする) により天然ガスを例えば -40°C 付近まで予備冷却する予冷熱交換部や、予冷後の天然ガスを主冷媒 (メタン、エタン、プロパン及び窒素の混合冷媒) により例えば -155°C から -158°C に冷却して液化する主熱交換部、予冷用冷媒や主冷媒の圧縮を行う各種圧縮機などを備えているが、その詳細な説明は省略する。

液化設備 102 にて液化された LNG は、LNG タンク 103 内における貯蔵工程 18 を経て LNG タンカーやパイプラインへと出荷される。

[0017] 上述の出荷設備基地 100 に設けられている液化前処理設備 101 は、不純物として少なくとも水分、硫化水素、酸素を含み、さらに二酸化炭素や水銀を含む天然ガスから、これらの不純物を除去する前処理を行う。ところが、天然ガス中に 20 モル ppm 程度以上の酸素が含まれている場合には、酸素が水銀除去工程 12、アミン洗浄工程 13、水分除去工程 15 / 吸着塔再生工程 16 の各工程に種々の影響を及ぼして不純物の除去効率を低下させてしまうおそれがあることが分かった。

[0018] そこで本例の液化前処理設備 101 は、天然ガス中に含まれる酸素の影響を低減しつつ各不純物の除去を実施することが可能な構成を備えている。以下、図 2 ~ 図 4 を参照しながら、液化前処理設備 101 の詳細について説明する。

[0019] 図 2 は、水銀除去工程 12、及びアミン洗浄工程 13 を実施するための設備構成を示している。

水銀除去工程 12 が実施される水銀除去部 21 は、気液分離工程 11 を成す不図示の気液分離ドラムの後段に設けられる。水銀除去部 21 は、充填塔内に水銀除去剤が充填された構成となっており、水銀除去剤の充填層中に天然ガスを通流させることにより水銀を吸着する。例えば水銀除去部 21 には

、およそ10～100マイクログラム／Nm³の水銀を含む天然ガスが供給され、水銀除去部21の出口部にて例えば5ナノグラム／Nm³以下まで水銀が除去される。

[0020] 一般に、天然ガス中の水銀を除去する水銀除去剤としては、活性炭に硫黄を担持した活性炭系の水銀除去剤と、担体に銅や亜鉛の硫化物を担持した金属系の水銀除去剤とが知られている。これらの水銀除去剤を比較したとき、酸素を含む天然ガスの処理を行う観点では、活性炭系の水銀除去剤の方が、金属系の水銀除去剤よりも、酸素の存在に伴う除去能力の低下が発生しにくいことが分かった。

そこで、本例の水銀除去部21は、硫黄が担持された活性炭系の水銀除去剤を用いて水銀の除去を行う。

[0021] 一方で、上述のように活性炭系の水銀除去剤にて、酸素を含む天然ガスを処理すると、酸素が硫黄や炭化水素と反応して、硫黄化合物（例えば硫化水素など）の副生成物及び水が発生する可能性があることも分かった。

酸素の含有を考慮しない一般的な天然ガスの液化前処理設備においては、水銀除去工程12は、気液分離工程11とアミン洗浄工程13との間に設ける場合の他、水分除去工程15と液化工程17との間に設けられる場合もある。

[0022] しかしながら、酸素を含む天然ガスの液化前処理においては、液化工程17の直前に水銀除去工程12を設けると、硫黄化合物の副生成物や水が下流側へ供給されてしまい、液化設備102内などで機器の閉塞が発生したり、製品LNG中の硫黄化合物濃度が高くなったりする原因となる。

これらの理由から、活性炭系の水銀除去剤を用いて酸素を含む天然ガスの処理を行う場合には、水銀除去工程12は硫黄化合物の除去が可能なアミン洗浄工程13、及び水分の除去を行う水分除去工程15の上流に設置することが必要となる。

[0023] さらに図2に示すように、水銀除去部21の後段には、アミン洗浄工程13を実施するための吸収塔31が設けられている。吸収塔31においては、

塔頂側からアミン化合物を含む吸収液を、例えば液滴の状態分散供給する一方、塔底側から水銀除去後の天然ガスを供給する。この結果、吸収塔 31 内では吸収液と天然ガスとが向流接触し、液化の際に LNG 中で固化するおそれのある酸性ガスである二酸化炭素が、天然ガスから吸収液へと吸収、除去される。

[0024] このとき、二酸化炭素に加え、硫化水素や水銀除去工程 12 にて生成した既述の硫黄化合物の吸収も行うことが可能な吸収液の選定（例えば MDEA (Methyldiethanolamine)）、液負荷（単位時間当たりの吸収塔 31 への吸収液供給量）、吸収塔の段数の調節を行うことにより、これらの酸性ガスも吸収除去される。この結果、後段の水分除去工程 15、液化工程 17 を実施する設備に対する硫化水素の影響や、製品 LNG 中の硫黄化合物濃度も低減される。

[0025] 吸収塔 31 にて二酸化炭素や硫化水素などを吸収した吸収液は送液ポンプ 311 により再生塔 32 へ移送される。再生塔 32 においては、塔頂側から酸性ガスを吸収した吸収液が、例えば液滴の状態分散供給される一方、塔底側に設けられたリボイラー 321 により塔内の吸収液を加熱することにより、吸収液に吸収された酸性ガスを放散させる。

[0026] 吸収液から放散された酸性ガス（二酸化炭素、硫化水素、硫黄化合物）は、クーラー 323 にて冷却され、分離ドラム 324 にて気液分離された後、焼却工程 14 へと送られる。焼却工程 14 にて硫化水素や硫黄化合物が焼却された酸性ガスは、必要な排ガス処理を経て大気へと排出される。

また、再生塔 32 の塔頂から蒸気の状態排出された吸収液の一部は、クーラー 323 により冷却されて凝縮し、分離ドラム 324 内で酸性ガスと気液分離された後、循環ドラム 325 によって再生塔 32 に戻される。

[0027] 再生塔 32 内で再生された吸収液は、再生塔 32 の塔底部から抜き出され、吸収塔 31 へと戻される。このとき図 2 に示すように、熱交換器 312 を用いて、各々吸収塔 31、再生塔 32 から抜き出された吸収液間の熱交換を行い、再生塔 32 へ供給される前の吸収液の予熱を行ってもよい。

[0028] 以上に説明した吸収塔 3 1 を用い、例えば吸収塔 3 1 の入口部にて二酸化炭素を 0.5 ～ 5 モル%程度、硫化水素や硫黄化合物を 1 ～ 5 モル%程度含む天然ガスは、吸収塔 3 1 の出口部にて例えば二酸化炭素が 50 モル p p m 以下、硫化水素や硫黄化合物が 3 モル p p m 以下まで除去される。

[0029] ここで、酸素を含む天然ガスの前処理の観点では、天然ガス中に予め含まれる二酸化炭素や硫化水素に加え、水銀除去工程 1 2 にて発生する硫黄化合物までも除去されるように吸収液の選定や吸収塔 3 1、再生塔 3 2 の運転条件の設定が行われている。後述するように、特に酸素を含む天然ガスに対して水分除去工程 1 5 を実施する場合には、天然ガス中の硫化水素やその他の硫黄化合物の存在は、水分除去工程 1 5 における水分除去性能を阻害する要因ともなる。このとき、液化前処理処理設備 1 0 1 内で発生する硫黄化合物も踏まえてアミン洗浄工程 1 3 を実施することにより、これらの物質の水分除去工程 1 5 への影響を低減することができる。

[0030] さらに、吸収塔 3 1 における二酸化炭素や硫化水素などの吸収、及び再生塔 3 2 における吸収液の再生が繰り返されるアミン洗浄工程 1 3 では、天然ガス中に含まれる酸素と吸収液との反応により熱安定性塩が生成しやすく、酸素を含まない天然ガスの処理と比較して、吸収液の劣化が促進されるおそれがある。そこで吸収塔 3 1 と再生塔 3 2 との間を循環する吸収液の一部を抜き出し、吸収液に含まれる熱安定性塩を除去するリクレーマ 3 3 を設けてもよい。リクレーマ 3 3 の方式に特段の限定はないが、吸収液を中和して熱安定性塩を分解する手法やイオン交換樹脂を用いて熱安定性塩を形成する原因となる各種イオンを除去する手法を挙げることができる。

[0031] 図 3 は、水分除去工程 1 5 を実施するための設備構成を示している。アミン洗浄工程 1 3 にて酸性ガスの除去が行われた天然ガスは、水分の吸着除去を行う吸着塔 4 1 a、4 1 b に供給される。吸着塔 4 1 a、4 1 b には分子ふるいである合成ゼオライトが充填されている。図 3 に示す例では第 1 の吸着塔 4 1 a と、第 2 の吸着塔 4 1 b とを用い、一方側の吸着塔 4 1 a、4 1 b にて水分除去工程 1 5 を実施している期間中に、他方側の吸着塔 4 1 b、

4 1 a では吸着塔再生工程 1 6 が実施される。

[0032] 図 3 に示すように、アミン洗浄工程 1 3 からの天然ガスの供給ライン（処理ガスライン）4 0 1 は分岐して各吸着塔 4 1 a、4 1 b の入口部に接続されている。さらに、これら入口部には、水分を吸着した合成ゼオライトを加熱して再生するための再生ガスを供給するための再生ガスライン 4 0 3 が接続されている。本例では、吸着塔 4 1 a、4 1 b にて水分を除去した後の乾燥天然ガスが再生ガスとして用いられる。

[0033] 各吸着塔 4 1 a、4 1 b に接続された分岐後の供給ライン 4 0 1 には、開閉バルブ V 1 a、V 1 b が設けられている一方、同じく分岐後の再生ガスライン 4 0 3 には開閉バルブ V 3 a、V 3 b が設けられている。この構成により、各吸着塔 4 1 a、4 1 b は、入口部に接続される配管ラインを、供給ライン 4 0 1 と再生ガスライン 4 0 3 とで切り替えることができる。

[0034] 一方で、各吸着塔 4 1 a、4 1 b の出口部には、乾燥天然ガスの払出しライン 4 0 2 が接続されている。これらの払出しライン 4 0 2 は、下流側で合流して液化工程 1 7 を実施する液化設備 1 0 2 へと接続されている。

さらに、前記合流位置の下流側の払出しライン 4 0 2 からは、乾燥天然ガスを再生ガスとして吸着塔 4 1 a、4 1 b の入口部へ供給するための既述の再生ガスライン 4 0 3 が分岐している。

[0035] 払出しライン 4 0 2 から分岐した再生ガスライン 4 0 3 には、流量調節弁 C V や再生ガス（乾燥天然ガス）の加熱を行う熱交換器などの加熱部 4 3 が設けられている。加熱部 4 3 は、例えば加熱炉により構成してもよい。流量調節弁 C V は、その下流側に設けられた流量計 4 2 の流量検出値に基づき、吸着塔 4 1 a、4 1 b に供給される再生ガスの流量が予め設定された値となるように流量調節を行う。また加熱部 4 3 は、その下流側に設けられた温度計 4 3 1 の温度検出値に基づき、吸着塔 4 1 a、4 1 b に供給される再生ガスの温度が予め設定された値となるように温度調節を行う。これらの流量設定値、温度設定値の設定は、出荷設備基地 1 0 0 の制御室などに設けられた制御コンピュータである制御部 5 により行われる。

[0036] これらに加え、各吸着塔41a、41bの出口部には、合成ゼオライトの再生を行った後の再生ガス（排ガス）を排出するための排ガスライン404が接続されている。これらの排ガスライン404は、下流側で合流し排ガスを冷却するためのクーラー44を経て、凝縮した水分などと排ガスとを分離する分離ドラム45に接続されている。分離ドラム45で排ガスから分離された水分は、必要な排水処理を行った後、外部へ排出される。一方で遊離水分を除去された排ガス（天然ガス）は、出荷設備基地100内の燃料ガスとして活用される。

[0037] 各吸着塔41a、41bに接続された払出しライン402には、開閉バルブV2a、V2bが設けられている一方、同じく排ガスライン404には開閉バルブV4a、V4bが設けられている。この構成により、各吸着塔41a、41bは、出口部に接続される配管ラインを、払出しライン402と排ガスライン404とで切り替えることができる。

[0038] 上述の構成を備える吸着塔41a、41bについて、酸素を含む天然ガスの処理を行う観点では以下の特徴がある。

既述のように、水分吸着用の分子ふるいとして用いられる合成ゼオライトが充填された吸着塔41a、41bにおいては、水分吸着量の増大に伴って吸着能力が低下すると吸着塔再生工程16が実施される。吸着塔再生工程16は、予め加熱された、水分含有量の少ない再生ガス（本例では乾燥天然ガス）と接触させることにより、合成ゼオライトから再生ガス中に水分を放出させる操作である。

[0039] ここで、合成ゼオライトの平均細孔径に着目すると、水分の吸着除去には4オングストローム以下の平均細孔径を持つ合成ゼオライトが適している。また、合成ゼオライトの平均細孔径が大きいほど、単位体積当たりの合成ゼオライトの水分の吸着除去量は増大する一方、吸着塔41a、41b内の温度（再生温度）は高くなる傾向がある。例えば4オングストロームの合成ゼオライトでは、290℃程度の再生温度が必要となることが分かっている。

[0040] 一方で、再生温度が290℃程度まで高温になると、天然ガス中の炭化水

素と酸素との酸化反応が進行し、再生ガス中に水分が発生してしまう。再生ガス中の水分濃度が高くなると、合成ゼオライトから再生ガスへの水分の放出が十分に進行せず、合成ゼオライトの再生に影響（再生時間の長時間化、再生後の合成ゼオライトへの水分残存量の増大）を及ぼすおそれがある。

[0041] また、290℃程度の高温下では、アミン洗浄工程13にて除去しきれなかった天然ガス中の微量な硫化水素が酸素と反応して硫黄や硫化物などの固体となって合成ゼオライトの細孔を閉塞させ、水分の吸着能力を低下させるおそれもある。特に、炭化水素と酸素とが反応する際の反応熱により吸着塔41a、41b内の温度がさらに上昇すると、これら固体による最高の閉塞は一層発生しやすくなる。

[0042] そこで、本例の吸着塔41a、41bにおいては、平均細孔径が3オングストローム以下（例えば3オングストローム）の合成ゼオライトを用い、且つ、230℃未満の再生温度にて吸着塔再生工程16を実施する。

既述のように、平均細孔径が3オングストローム以下の合成ゼオライトにおいても、再生温度が高いほど、吸着された水分を多く放出することができる。一方で、230℃以上の再生温度では、天然ガス中の炭化水素と酸素との酸化反応に伴う水分発生量も増大し、吸着塔再生工程16に対する影響が大きくなってくる。

[0043] これに対して、再生温度を例えば200℃まで低下させると、前記酸化反応は殆ど進行せず、水分発生の影響もみられない。しかしながら、再生温度を低下させるに連れて、吸着された水分の放出量が低下してしまい、合成ゼオライトの再生を十分に進行させることができないおそれもある。

[0044] これらの観点から、吸着塔再生工程16における吸着塔41a、41bの最適な再生温度は200～230℃の範囲内に存在すると言える。実際には、最適な再生温度は、天然ガスの組成、水分や酸素の含有量によっても変化するが、より好適には205～225℃の温度範囲内に存在する。

温度調節機構である加熱部43は、加熱部43の出口側の加熱部43の温度検出値に基づき、再生温度（吸着塔41a、41b内の温度）が、制御部

5によって設定された所定の設定温度（但し、230℃未満）となるように、吸着塔41a、41bに供給される再生ガスの温度調節を実施する。

[0045] 以下、図4を参照しながら、2つの吸着塔41a、41aの一方側（第1の吸着塔41a）にて水分除去工程15を実施しながら、他方側（第2の吸着塔41b）にて吸着塔再生工程16を実施する動作の例について説明する。

図4に示すように、水分除去工程15を実施する第1の吸着塔41aの入口部側においては、開閉バルブV1aを開いて（図4中に「O」と記してある。以下同じ）天然ガスの供給ライン401を接続する一方、開閉バルブV3aを閉じて（図4中に「S」と記してある。以下同じ）再生ガスライン403から切り離す。また、出口側では、開閉バルブV2aを開いて払出しライン402と接続する一方、開閉バルブV4aを閉じて排ガスライン404から切り離す。

[0046] これに対し、吸着塔再生工程16を実施する第2の吸着塔41bの入口部側においては、開閉バルブV1bを閉じて供給ライン401から切り離す一方、開閉バルブV3bを開いて再生ガスライン403に接続する。また、出口側では、開閉バルブV2bを開いて払出しライン402から切り離す一方、開閉バルブV4bを開いて排ガスライン404と接続する。

[0047] 上述のバルブセットにより、アミン洗浄工程13工程にて処理された天然ガスは、第1の吸着塔41a側に導入され、合成ゼオライトと接触して水分が除去される。

接触塔41a、41bの入口部での天然ガス中の水分濃度は、一般的に飽和状態であり、水分除去工程15にて例えば1モルppm以下まで水分が除去される。水分除去工程15における接触塔41a、41b内の温度は処理される天然ガスの温度や合成ゼオライトへの水分の吸着時の発熱に応じて決まる。

[0048] 水分が除去された天然ガスは、第1の吸着塔41aの出口部より払出しライン402へと流出し、液化工程17へ向けて払い出される。第1の吸着塔

4 1 aにて水分が除去された天然ガス（乾燥天然ガス）の一部は、再生ガスライン4 0 3へ向けて分流し、第2の吸着塔の吸着塔再生工程1 6に用いられる。

[0049] 再生ガスは、加熱部4 3にて加熱され、第2の吸着塔4 1 bが2 3 0℃未満の所定の再生温度となるように温度調節された後、第2の吸着塔4 1 bへと供給される。

再生ガスの温度調節は、加熱部4 3に供給される熱媒、例えばスチームの供給量を増減することで調整される。

[0050] ここで合成ゼオライトからの水分の放出は吸熱反応であるが、吸着塔4 1 a、4 1 b内の合成ゼオライトや再生ガスの熱容量と比較して、吸着されている水分量は相対的に少量であるため、吸熱反応による吸熱量は小さい。従って、吸着塔再生工程1 6において吸着塔4 1 a、4 1 bに対し、加熱部4 3にて加熱された再生ガスの供給を開始して十分な時間が経過した後は、吸着塔4 1 a、4 1 b内の温度は、加熱部4 3の出口の再生ガスの温度とほぼ一致すると考えて差し支えない。そこで、本例においては、加熱部4 3の出口温度の検出結果に基づいて再生温度の調節を行っている。なお、吸着塔4 1 a、4 1 bに設けた温度計の検出値に基づいて、再生温度の調節を行ってもよいことは勿論である。

[0051] 第2の吸着塔4 1 bにおいては、再生ガスの供給により合成ゼオライトから水分が放出され、吸着塔再生工程1 6が実施される。このとき、再生温度が2 3 0℃未満に抑えられていることにより、天然ガス中の炭化水素と酸素との酸化反応に伴う水分発生が抑制され、吸着塔再生工程1 6に対する影響も低減される。

[0052] また、再生温度が2 3 0℃未満に抑えられ、前記酸化反応の進行に伴う第2の吸着塔4 1 b内部の温度上昇も避けられる。この結果、天然ガス中の微量な硫化水素が酸素と反応して硫黄や硫化物などの固体となって合成ゼオライトの細孔を閉塞させ、水分の吸着能力を低下させるトラブルが発生するおそれも小さくなる。

[0053] 第2の吸着塔41bを通過し、合成ゼオライトから放出された水分を含む再生ガスは、出口部より排ガスライン404へ排出され、クーラー44にて冷却されて水分などを凝縮させた後、分離ドラム45にて気液分離される。

上述の吸着塔再生工程16を予め設定した時間だけ実施し第2の吸着塔41b内の合成ゼオライトの再生が完了したら、過熱部43を停止し、又は過熱部43の迂回路（不図示）に再生ガスを通流させて温度の低いガスを流すことにより内部の温度を低下させる。温度が低下したのち開閉バルブV3bを閉じて第2の吸着塔41bを再生ガスライン403から切り離す。

[0054] そして、第1の吸着塔41a側の合成ゼオライトを再生するタイミングになったら、第2の吸着塔41a側を排ガスライン404から切り離すと共に、供給ライン401、及び払出しライン402を接続して第1、第2の吸着塔41a、41bにて並列して水分除去工程15を実施する状態とする。次いで第1の吸着塔41aを供給ライン401、及び払出しライン402から切り離した後、第1の吸着塔41aを再生ガスライン403、排ガスライン404に接続して、再生ガスの供給を開始して吸着塔再生工程16を実行する。

[0055] 本実施の形態に係る液化前処理処理設備101によれば以下の効果がある。天然ガス（炭化水素ガス）中に含まれる水分の吸着を行う合成ゼオライトの再生時の吸着塔41a、41b内の温度が230℃未満となるように温度調節を行うので、酸素と炭化水素との反応に伴う水分の生成などが抑えられ、効率的な再生を行うことができる。

[0056] この他、以下に列挙するように、水銀除去工程12やアミン洗浄工程13においても、酸素を含む天然ガスの処理を考慮した各種の対策が採られている。

(i) 水銀除去部12における活性炭系の水銀吸着剤の選定

(i i) 水銀吸着剤からの硫黄化合物の流出を考慮した水銀除去部12の設置位置の選定

(i i i) 水銀除去部12にて生成した硫黄化合物の除去も考慮した吸収

塔 3 1 による酸性ガスの除去

(i v) 吸収液に対する酸素の影響を踏まえた再生塔 3 2 へのリクレーマ
3 3 の設置

この結果、例えば液化前処理処理設備 1 0 1 の入口側に、天然ガス中に含まれる酸素を除去するための酸素除去設備を設けるといった大掛かりな対応を行わなくても酸素を含む天然ガスの液化前処理可能となる。特に、酸素が 2 0 モル p p m 以上程度含まれている天然ガスの前処理において、本発明は有効である。

[0057] ここで、液化前処理処理設備 1 0 1 に水銀除去工程 1 2 やアミン洗浄工程 1 3 を設けることは必須の要件ではなく、天然ガス中の水銀、二酸化炭素、硫化水素などの含有量に応じて、いずれか、または双方の工程 1 2、1 3 を省略してもよい。

[0058] さらに、吸着塔 4 1 a、4 1 b の数も図 3、図 4 に示した 2 基に限定されるものではなく、3 基以上設けてもよい。この場合には、例えば水分除去工程 1 5 を実施している一方側の吸着塔を第 1 の吸着塔、吸着塔再生工程 1 6 を実施、または待機している他方側の吸着塔を第 2 の吸着塔と捉えればよい。

符号の説明

- [0059] 1 0 0 出荷設備基地
1 0 1 液化前処理処理設備
1 0 2 液化設備
1 0 3 L N G タンク
2 1 水銀除去部
3 1 吸収塔
3 2 再生塔
4 1 a、4 1 b 吸着塔（第 1 の吸着塔、第 2 の吸着塔）
4 3 加熱部

請求の範囲

- [請求項1] 炭化水素ガスの液化前処理設備であって、
水分と硫化水素と酸素とを含む炭化水素ガスを供給する処理ガスラインに接続され、前記処理ガスラインから供給された炭化水素ガス中の水分を吸着除去するための合成ゼオライトが充填された吸着塔と、
水分を吸着した前記合成ゼオライトを加熱して再生するために、前記吸着塔に予め加熱された再生ガスを供給する再生ガスラインと、
前記合成ゼオライトの再生時における吸着塔内の温度が予め設定された設定温度となるように、前記再生ガスの加熱温度を調節する温度調節機構と、を備え、
前記設定温度が230℃未満であることを特徴とする炭化水素ガスの液化前処理設備。
- [請求項2] 前記合成ゼオライトは、平均細孔径が3オングストローム以下であることを特徴とする請求項1に記載の炭化水素ガスの液化前処理設備。
- [請求項3] 前記再生ガスは、前記吸着塔にて水分を除去された後の炭化水素ガスであることを特徴とする請求項1に記載の炭化水素ガスの液化前処理設備。
- [請求項4] 前記吸着塔である第1の吸着塔と第2の吸着塔とを備え、一方側の吸着塔内の合成ゼオライトの再生時には、前記処理ガスラインから他方側の吸着塔に炭化水素ガスを供給して、水分の吸着除去を行うことを特徴とする請求項1に記載の炭化水素ガスの液化前処理設備。
- [請求項5] 前記炭化水素ガスはさらに二酸化炭素を含み、前記吸着塔の上流側に設けられ、前記炭化水素ガスとアミン化合物を含む吸収液とを接触させて、当該炭化水素ガスに含まれる二酸化炭素と硫化水素とを吸収する吸収塔と、
前記吸収塔にて炭化水素ガスと接触させた吸収液を加熱し、二酸化炭素と硫化水素とを放散させて吸収液を再生する再生塔と、を備えた

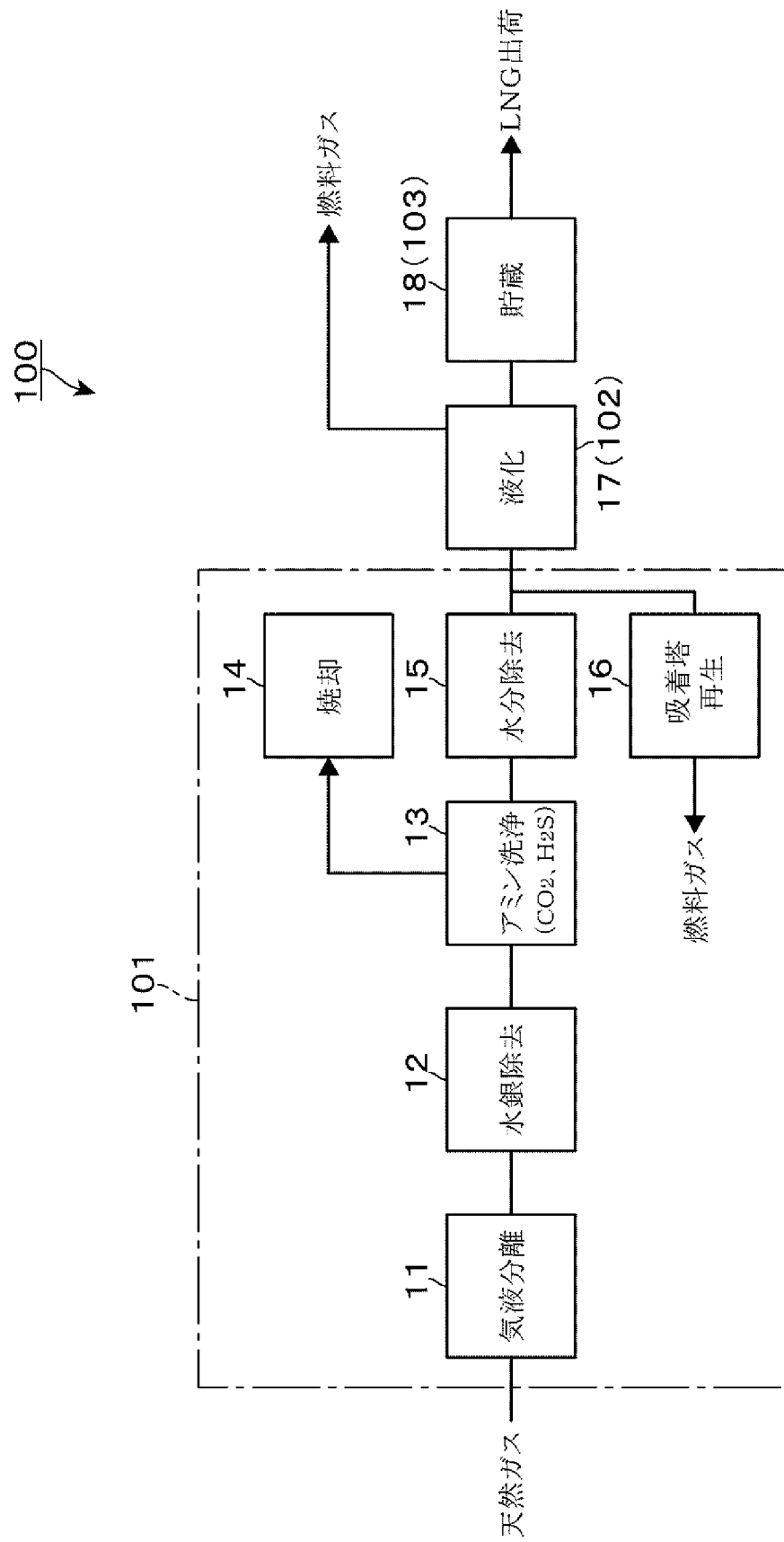
ことを特徴とする請求項 1 に記載の炭化水素ガスの液化前処理設備。

[請求項6] 前記炭化水素ガスはさらに水銀を含み、前記吸着塔の上流側に設けられると共に、当該炭化水素ガスと、活性炭に硫黄を担持した水銀除去剤とを接触させ、前記炭化水素ガスに含まれる水銀を除去する水銀除去部を備えたことを特徴とする請求項 1 に記載の炭化水素ガスの液化前処理設備。

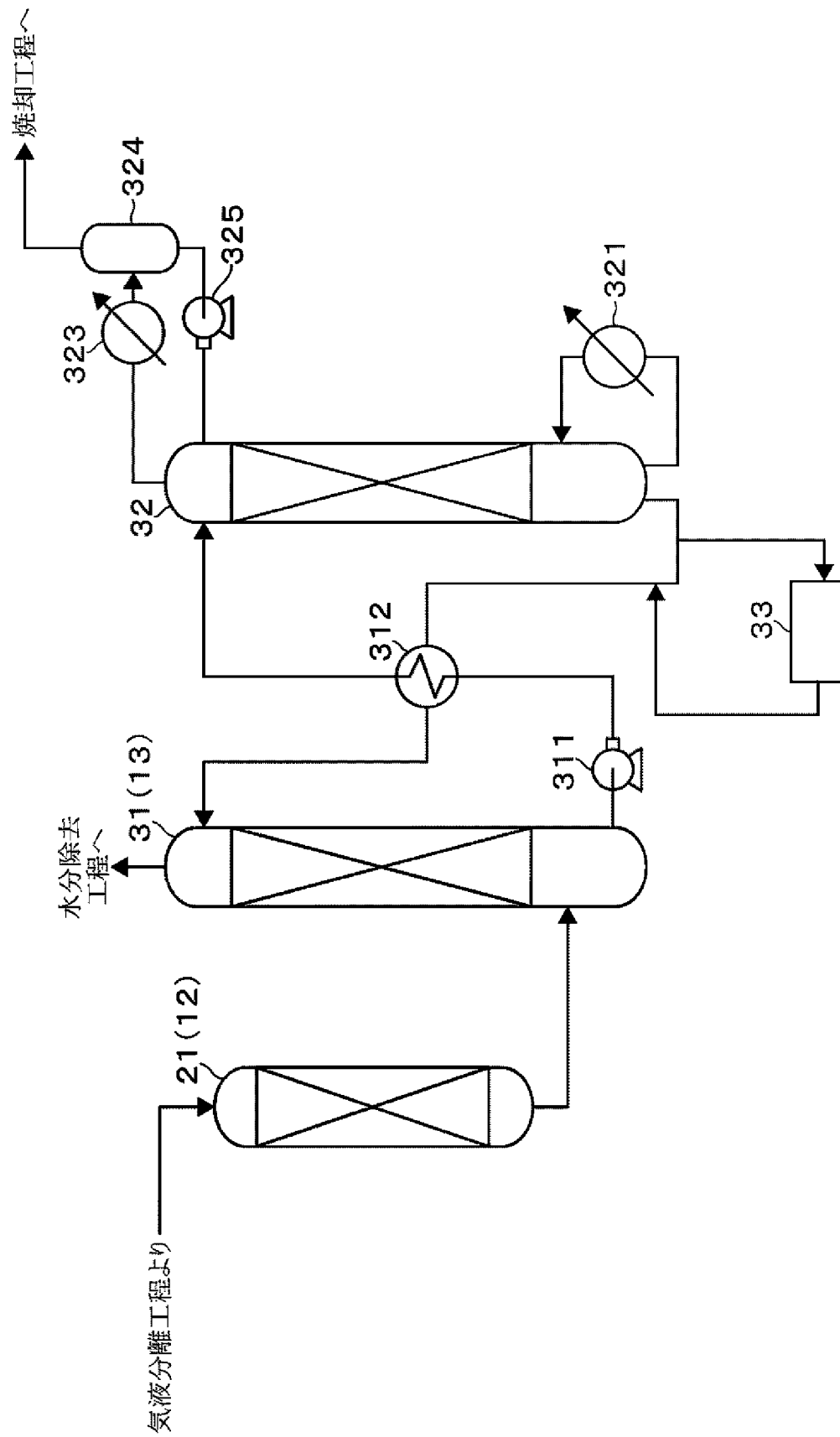
[請求項7] 請求項 1 ないし 6 のいずれか一つに記載の炭化水素ガスの液化前処理設備と、

前記液化前処理設備にて処理された炭化水素ガスを液化する液化設備と、を備えたことを特徴とする出荷基地設備。

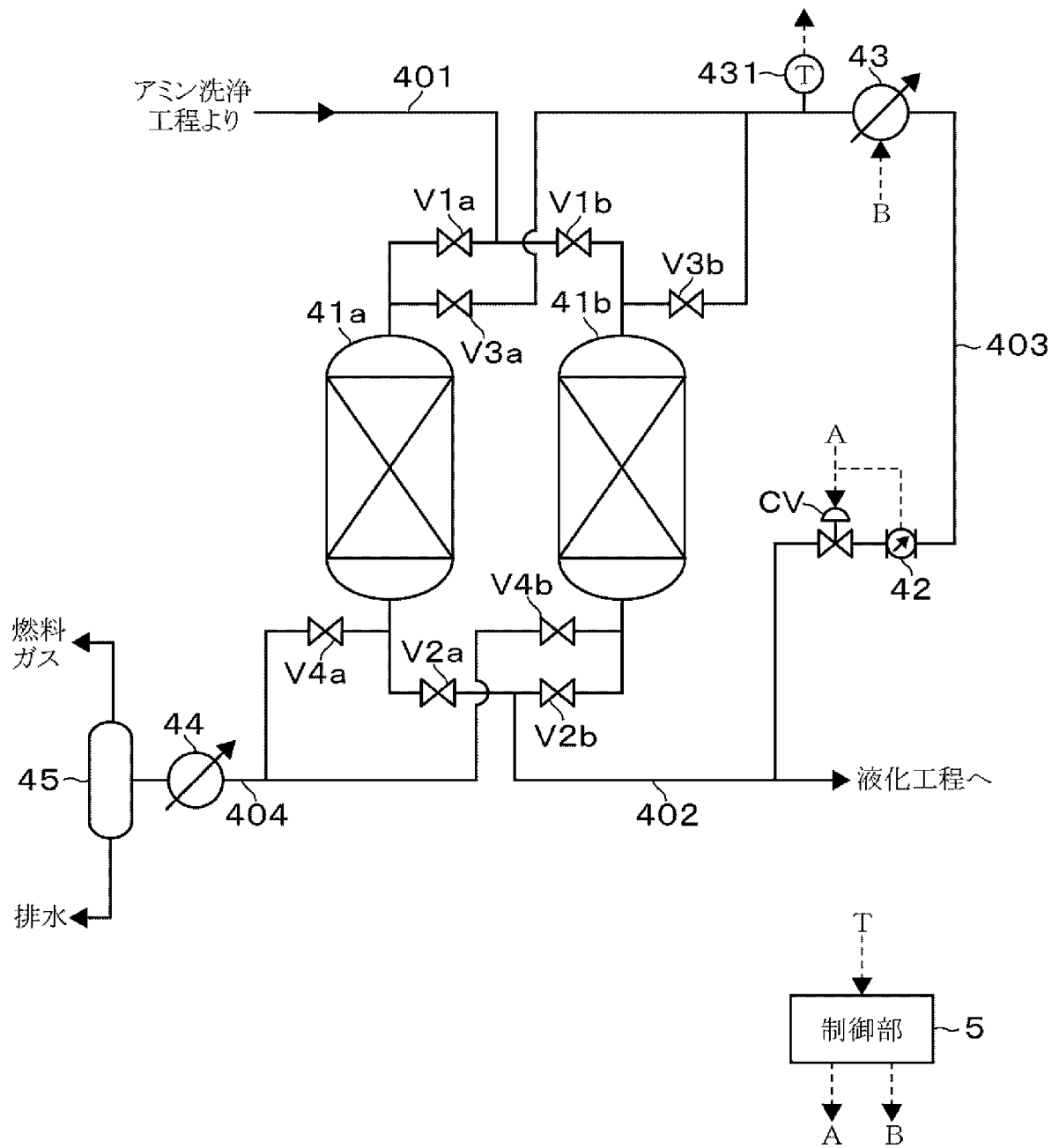
[図1]



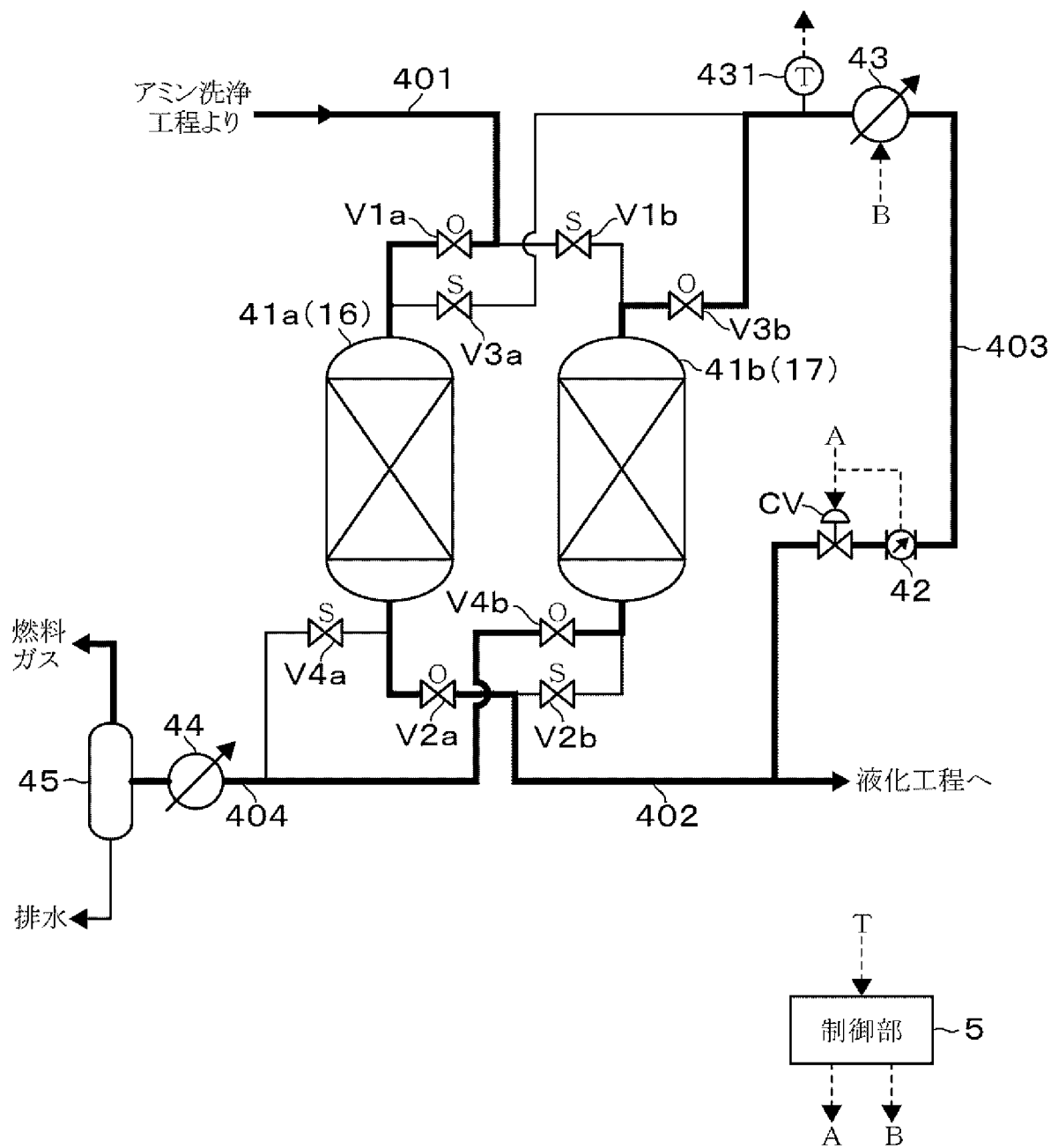
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/004315

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01D53/26(2006.01)i, C10L3/10(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01D53/00-53/96, C10L3/10, F25J1/00-5/00

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2015-507523 A (Cameron International Corp.), 12 March 2015 (12.03.2015), claims 1, 10; paragraphs [0001], [0019]; fig. 1 to 3 & US 2013/0139526 A1 claims 1, 10; paragraphs [0003], [0040]; fig. 1 to 3 & GB 2510783 A & WO 2013/086194 A1 & NO 20140727 A & AU 2012347752 A1	1-7
Y	JP 9-188886 A (Institut Francais du Petrole), 22 July 1997 (22.07.1997), claims 1 to 4; examples; fig. 1 to 2 & US 5803953 A claims 1, 6 to 7; examples; fig. 1 to 2 & EP 0781832 A1 & DE 69621575 T2 & FR 2743082 A1 & ES 2179920 T3	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
11 November 2015 (11.11.15)

Date of mailing of the international search report
24 November 2015 (24.11.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/004315

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-175324 A (Toyo Engineering Corp.), 06 July 2006 (06.07.2006), claim 1; paragraphs [0004], [0019]; fig. 1 (Family: none)	2
Y	JP 2006-136885 A (Institut Francais du Petrole), 01 June 2006 (01.06.2006), claims 1 to 2, 10; paragraphs [0070], [0090] to [0092]; fig. 1, 4 & US 2006/0104877 A1 claims 1 to 2, 10; paragraph [0099]; fig. 1, 4 & EP 1656983 A1 & FR 2877858 A1 & NO 20055258 A	5
Y	WO 2008/146773 A1 (Kuraray Chemical Co., Ltd.), 04 December 2008 (04.12.2008), claim 1; paragraph [0008] & US 2010/0113266 A1 claim 1; paragraph [0012]	6
A	JP 8-155242 A (Chiyoda Corp.), 18 June 1996 (18.06.1996), claim 1; paragraph [0020]; fig. 1 (Family: none)	1-7
A	JP 2004-154761 A (Air Products and Chemicals, Inc.), 03 June 2004 (03.06.2004), claims 1 to 5, 9; examples & JP 2009-241068 A & US 2004/0118279 A1 claims 1 to 5, 9; examples & EP 1382375 A1 & CN 1475296 A & AT 411843 T & AR 53957 A1 & ZA 200305526 A & AU 2003213519 A1	1-7
A	JP 11-50069 A (Tosoh Corp.), 23 February 1999 (23.02.1999), claims 1, 6; paragraph [0026] (Family: none)	1-7

Claim 1 includes a specified feature wherein a hydrocarbon gas containing water, hydrogen sulfide, and oxygen is introduced into an adsorption column packed with a synthetic zeolite, thereby adsorptively removing the water and thereafter a heated regenerating gas is supplied to the adsorption column to revive the adsorption column, and wherein during the supply, the temperature inside the adsorption column is made lower than 230°C. However, the composition of the regenerating gas is unspecified therein.

Meanwhile, the description (see paragraphs [0007]-[0011]) indicates that as the regenerating gas to be supplied to the adsorption column, use is made of the hydrocarbon gas from which the water has been removed in the adsorption column and that since the hydrocarbon gas contains oxygen, the temperature inside the adsorption column is made lower than 230°C in order to prevent the oxygen from reacting with the hydrocarbon(s) and thereby yielding water to reduce the regeneration efficiency.

However, the composition of the regenerating gas is unspecified in claim 1. Namely, the regenerating gas may be one which contains neither oxygen nor any hydrocarbon, although oxygen and hydrocarbons are causative of the decrease in regeneration efficiency. Consequently, the disclosure of the description, which is for mitigating a decrease in regeneration efficiency, cannot be extended or generalized to the case of using any regenerating gas.

Consequently, claims 1-2 and 4-7 exceed the range set forth in the description, and therefore does not comply with the requirement of the support prescribed under PCT Article 6.

Therefore, with respect to claims 1-2 and 4-7, no search was made for the case where the regenerating gas is not the hydrocarbon gas from which the water has been removed in the adsorption column, because a meaningful search is impossible.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B01D53/26(2006.01)i, C10L3/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B01D53/00-53/96, C10L3/10, F25J1/00-5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2015-507523 A (キャメロン インターナショナル コーポレイ ション) 2015.03.12, 請求項 1, 10, [0001], [0019], 図 1-3 & US 2013/0139526 A1, 請求項 1, 10, [0003], [0040], 図 1-3 & GB 2510783 A & WO 2013/086194 A1 & NO 20140727 A & AU 2012347752 A1	1-7

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 1 . 1 1 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

2 4 . 1 1 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

松本 直子

4 D

5 3 7 5

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 2 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 9-188886 A (アンスティテュ フランセ デュ ペトロール) 1997. 07. 22, 請求項 1-4, 実施例, 図 1-2 & US 5803953 A, 請求項 1, 6-7, 実施例, 図 1-2 & EP 0781832 A1 & DE 69621575 T2 & FR 2743082 A1 & ES 2179920 T3	1-7
Y	JP 2006-175324 A (東洋エンジニアリング株式会社) 2006. 07. 06, 請求項 1, [0004], [0019], 図 1 (ファミリーなし)	2
Y	JP 2006-136885 A (アンスティテュ フランセ デュ ペトロール) 2006. 06. 01, 請求項 1-2, 10, [0070], [0090]-[0092], 図 1, 4 & US 2006/0104877 A1, 請求項 1-2, 10, [0099], 図 1, 4 & EP 1656983 A1 & FR 2877858 A1 & NO 20055258 A	5
Y	WO 2008/146773 A1 (クラレケミカル株式会社) 2008. 12. 04, 請求項 1, [0008] & US 2010/0113266 A1, 請求項 1, [0012]	6
A	JP 8-155242 A (千代田化工建設株式会社) 1996. 06. 18, 請求項 1, [0020], 図 1 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2004-154761 A (エア プロダクツ アンド ケミカルズ イン コーポレイテッド) 2004. 06. 03, 請求項 1-5, 9, 実施例 & JP 2009-241068 A & US 2004/0118279 A1, 請求項 1-5, 9, 実施例 & EP 1382375 A1 & CN 1475296 A & AT 411843 T & AR 53957 A1 & ZA 200305526 A & AU 2003213519 A1	1-7
A	JP 11-50069 A (東ソー株式会社) 1999. 02. 23, 請求項 1, 6, [0026] (ファミリーなし)	1-7

請求項 1 は、水分と硫化水素と酸素とを含む炭化水素ガスを、合成ゼオライトを充填した吸着塔に流入させることにより、水分を吸着除去し、その後、前記吸着塔に、加熱した再生ガスを供給して、吸着塔を再生させること、及び、その際の吸着塔内の温度を 230℃未満とすることが特定されているが、再生ガスの組成を特定しないものである。

一方、明細書には、吸着塔に供給する再生ガスとして、前記吸着塔にて水分を除去された後の炭化水素ガスを用いること、及び、当該炭化水素ガスが酸素を含有することから、酸素と炭化水素との反応により、水分が生成して、再生効率が低下することを防ぐために、吸着塔内の温度を 230℃未満とすることが記載されている（[0007]－[0011]を参照）。

しかしながら、請求項 1 においては、再生ガスの組成が特定されておらず、これは、上記再生効率低下の原因物質である酸素や炭化水素が含有されないものも含むものであるから、再生効率低下の解決を前提とする明細書に開示された内容を、任意の再生ガスを用いる場合についてまで、拡張ないし一般化できるとはいえない。

したがって、請求項 1－2、4－7 は、明細書に記載した範囲を超えるものであるから、PCT 第 6 条に規定された裏付けに関する要件を満たしていない。

よって、請求項 1－2、4－7 において、再生ガスが吸着塔にて水分を除去された後の炭化水素ガスであるもの以外については、有意義な調査を行うことができないため、調査を行わなかった。