(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第4426007号
(P4426007)

(45)発行日　平成22年3月3日(2010.3.3)　(24)登録日　平成21年12月18日(2009.12.18)

(51)Int.Cl.			F I		
F25J	3/00	(2006.01)	F25J	3/00	
F25J	3/04	(2006.01)	F25J	3/04	104

請求項の数 11　(全 15 頁)

(21)出願番号　特願平10-364376
(22)出願日　平成10年12月22日(1998.12.22)
(65)公開番号　特開平11-248346
(43)公開日　平成11年9月14日(1999.9.14)
審査請求日　平成17年11月30日(2005.11.30)
(31)優先権主張番号　97/16275
(32)優先日　平成9年12月22日(1997.12.22)
(33)優先権主張国　フランス(FR)

(73)特許権者　591007826
イエフペ
フランス国　９２８５２　リュエイユ　マルメゾン　セデックス　アヴニュ　ド　ボワープレオ　１エ４
(74)代理人　100123788
弁理士　宮崎　昭夫
(74)代理人　100088328
弁理士　金田　暢之
(74)代理人　100106138
弁理士　石橋　政幸
(74)代理人　100106297
弁理士　伊藤　克博

最終頁に続く

(54)【発明の名称】ガスの液化方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
少なくとも化合物Ａとその化合物Ａより低い沸点をそれぞれ有する一種または二種以上の化合物Ｂとを含む圧力Ｐ１で入手される混合物から化合物Ａを液化する方法であって、
該混合物を膨張させてＰ１より低い圧力Ｐ２の混合物を製造する第１の膨張工程、
少なくとも一種の化合物Ｂと化合物Ａとのうちの少なくとも一つを圧力Ｐ２において蒸留によって分離して、化合物Ａを含む液体の流れと化合物Ｂの過半を含む気体の流れとを製造する分離工程、
化合物Ａを含む液体の流れを膨張させて、化合物Ａの過半を含み化合物Ｂが枯渇したＰ２より低い圧力Ｐ３の液化流出物を製造する第２の膨張工程
を含み、
前記蒸留を蒸留塔で行い、蒸留塔頂からの流れＦ２と、第２の膨張工程から得られた液化流出物の少なくとも一部との間の熱交換により還流を発生させる
液化方法。
【請求項２】
蒸留を塔内で行い、前記化合物Ｂと化合物Ａの一部とを含む蒸留塔から出てくる流れＦ２を凝縮して、化合物Ａを多く含む流れＦ３および流れＦ４を得、流れＦ３の少なくとも一部を還流として用いる請求項１に記載の方法。
【請求項３】
第２の膨張工程から得られた液化流出物の前記少なくとも一部が、泡立ち点にある請求

項１または２に記載の方法。
【請求項４】
第１の膨張前に圧力が３～１５ＭＰａであり、この第１の膨張後に１～５ＭＰａである請求項１～３のいずれか１項に記載の方法。
【請求項５】
第１の膨張を－１００℃～０℃の範囲の温度で行う請求項１～４のいずれか１項に記載の方法。
【請求項６】
膨張工程のためにターボ膨張器を用いる請求項１～５のいずれか１項に記載の方法。
【請求項７】
膨張工程の前および／または後に冷却混合物を用いることにより前記混合物を冷却する請求項１～６のいずれか１項に記載の方法。
【請求項８】
少なくとも抽出された化合物Ｂの一部を冷却方法のための冷却剤として用いる請求項１～７のいずれか１項に記載の方法。
【請求項９】
液化方法が、二つ～四つの膨張工程を含む請求項１～８のいずれか１項に記載の方法。
【請求項１０】
メタンを主成分として含み窒素および／またはヘリウムを抽出すべき化合物Ｂとして含む天然ガスのようなガスを液化する方法中に窒素および／またはヘリウムを抽出するための請求項１～９のいずれか１項に記載の方法の使用。
【請求項１１】
酸素が化合物Ａでありアルゴンおよび／または窒素が抽出されるべき化合物Ｂであり、酸素を製造するために、空気を液化する方法中にアルゴンおよび／または窒素を抽出するための請求項１～９のいずれか１項に記載の方法の使用。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】
本発明は、化合物Ａとその化合物Ａより低い沸点をそれぞれ有する一種または二種以上の化合物Ｂとを含む混合物から化合物Ａを液化する方法および装置に関する。
【０００２】
本発明の方法は、特に、主にメタンからなる天然ガスの液化中における窒素および／またはヘリウムの抽出に適用される。
【０００３】
【従来の技術】
従来技術において、天然ガスを液化するための種々の方法が記載されている。これらの方法の大部分、例えば、米国特許第４，４９０，８６７号および同第４，４４５，９１６号に記載の方法において、液化は、冷却工程およびガソリン抽出工程を含み、その後に、閉鎖ループ内において循環する冷媒の混合物を用いるガソリン非含有ガスの冷却による液化工程が続く。液化工程後、窒素および／またはヘリウムのような不必要な非燃焼性化合物を冷却工程後の膨張により抽出する。膨張後に配置される低温分離器からのフラッシュガスは、原料中に存在するこれら非燃焼性化合物の大部分を含む。それは、通常、最初から存在している燃焼性化合物の大部分を含んでいるので、燃料ガスとして用いることができる。低温分離器から出てくる液体は、市販のＬＮＧを構成する。液化天然ガスは再循環されない。
【０００４】
「不必要な非燃焼性化合物」という表現は、ガスの熱量を低げると共に、市販の天然ガス中での割合が制限される化合物を意味する。
【０００５】
もう一つの原理によれば、一部の権利者は、米国特許第５，３６３，６５５号に記載のよ

うに通常、閉鎖ループ内における冷媒の混合物による予備的外部冷却工程と組み合わされる天然ガスの膨張、再圧縮および再循環工程を用いる。

【０００６】

これらの液化工程において、通常第１の外部サイクルにより予備冷却された天然ガスがガソリン抽出後に一連のタービンにより膨張され、再圧縮され再循環される。これらの方法は、窒素またはヘリウム含量の多い天然ガスを用いることができない。実際、たとえ低くとも所定の含量を超えると、窒素またはヘリウムが再循環ループ内に堆積し、方法が非経済的になる、または技術的に実行不可能になる。

【０００７】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、液化工程中に不必要な化合物を抽出することにより従来技術の欠点を克服しようとするものである。不必要な化合物は、液化工程の第１の膨張工程後に、すなわち平均圧力において抽出される。

【０００８】

【課題を解決するための手段】

本発明の方法は、化合物Ａとその化合物Ａより低い沸点を有する不必要な化合物Ｂとの混合物から化合物Ａを液化するいかなる方法にも有利に適用することができる。

【０００９】

本発明は、少なくとも化合物Ａ（メタン）とその化合物Ａより低い沸点をそれぞれ有する一種または二種以上の化合物Ｂ（窒素および／またはヘリウム）とを含む圧力Ｐ１で入手される混合物から化合物Ａ（メタン）を液化する方法であって、

該混合物を膨張させてＰ１より低い圧力Ｐ２の混合物を製造する第１の膨張工程、

少なくとも一種の化合物Ｂと化合物Ａとのうちの少なくとも一つを圧力Ｐ２において蒸留によって分離して、化合物Ａを含む液体の流れと化合物Ｂの過半を含む気体の流れとを製造する分離工程、

化合物Ａを含む液体の流れを膨張させて、化合物Ａの過半を含み化合物Ｂが枯渇したＰ２より低い圧力Ｐ３の液化流出物を製造する第２の膨張工程

を含む液化方法である。

【００１０】

以下、第２の膨張工程が第１の膨張工程より後に行なわれることから、第２の膨張工程を指すために「後期」という語を用いることがある。

【００１１】

蒸留は蒸留塔で行われ、蒸留塔頂からの流れＦ２と、第２の膨張工程から得られた液化流出物の少なくとも一部との間の熱交換により塔からの還流が得られる。

【００１２】

例えば、第２膨張工程後に製造される液体の一部を用いる。

【００１３】

第１の膨張前の圧力は、例えば、３～１５ＭＰａであり、この第１膨張後は、例えば、１～５ＭＰａである。

【００１４】

第１の膨張は、－１００℃～０℃の温度で行うことができる。

【００１５】

一つの手順は、膨張操作のためにターボ膨張器を用いることからなる。

【００１６】

方法の一つの態様によれば、抽出される成分（Ｂ）の少なくとも一つを液化方法のための冷却剤として用いる。

【００１７】

液化方法は、少なくとも二つの膨張工程、好ましくは二つ～四つの膨張工程を含み得る。

【００１８】

本発明の方法は、特に、メタン（化合物Ａ）を含む天然ガスのようなガスの液化のための

方法中における窒素および／またはヘリウム（化合物Ｂ）の抽出に特に好適である。
【００１９】
また、特に酸素を製造するための空気液化方法中におけるアルゴンおよび／または窒素の抽出にも適用される。
【００２０】
従来技術に対して、本発明の方法は、開放サイクルにおいて窒素および／またはヘリウムを多く含む天然ガスを、これらの化合物の堆積を防止しつつ、平均圧力３ＭＰａの水準で、ガスタービンに供給し得る中間圧ドレン流を製造することにより、液化する利点を有する。中間圧ドレン流は、抽出すべき不必要な化合物と、調節可能な量の燃焼性ガスとからなる。
【００２１】
【発明の実施の形態】
本発明の他の特徴および利点は、本発明の方法の態様の記載を添付の図面を参照しつつ読むことにより明らかとなる。
【００２２】
図１（Ａ）および１（Ｂ）は、天然ガスの液化方法中に適用される本発明の方法の原理を説明する図である。
【００２３】
図２、３、４および５は所定の数値例に用いられる図である。
【００２４】
図１（Ａ）は、主にメタンからなる天然ガス中に顕著な割合（１～１０％の水準、少なくとも１％）で存在する窒素および／またはヘリウムを抽出する本発明の方法を実施するための装置の一例を示す図である。抽出工程は、中間圧力で、液化方法の第１工程後に行われる。
【００２５】
本発明の範囲から離れることなく、この方法は、主成分Ａおよび、泡立ち点において成分Ａより揮発性の高いことを特有の特徴とする不必要な成分Ｂとを含むもう一つ１の流体に広げることができる。
【００２６】
メタンより揮発性の低い天然ガス中に存在する成分は、例えば、図４に記載され当業者に知られているガソリン抽出工程中に抽出される（Chen Hwa Chiu の文献「基本負荷LNGプラントにおけるLPG回収（LPG recovery in baseload LNG plant）」，GASTECH96ウィーン，１９９６年１２月３～６日，会報第２巻，セッション１０）。
【００２７】
天然ガスは、ライン１を通って、冷却サイクル３と組み合わさった冷却装置２に入る。冷却された天然ガスは、ライン４を通って圧力Ｐ１および温度Ｔ１で排出され、次に、膨張器５または膨張弁を通って、（液化方法後に）ライン１３を通って排出される液化天然ガスの圧力Ｐ３より高い圧力水準Ｐ２まで膨張する。膨張された天然ガスは、ライン６を通って、還流送達ライン７（第３の流れＦ３）の頂上において、主にメタンからなる天然ガスの第１の流れＦ１のための排出ライン８が設けられると共に、ライン１を通して導入される天然ガス中に最初に存在する窒素および／またはヘリウムの大部分と、メタンとからなる第２の流れＦ２のための排出ライン９が設けられている接触器Ｃ１中に供給される。
【００２８】
第２の流れＦ２は、凝縮器１０を通して冷却され分離器Ｓに送られる。この分離器の出口において、分離された窒素および／またはヘリウムが、種々の量のメタンと共に項上においてライン１１を通して排出され、接触器Ｃ１において還流として用いられる主にメタンからなる第３の流れＦ３がライン７を通して排出される。窒素および／またはヘリウムとメタンとの混合物は、ドレンまたは流れＦ４を構成する。
【００２９】
ライン８を通して抽出され主にメタンからなる第１の流れＦ１は、図において１２の参照

番号を付されている一つまたは二つ以上の後期加工工程に送られて、圧力Ｐ３で液状の天然ガスを得る。次に、この液化ガスを、ライン１３を通して、例えば、貯蔵タンクに排出する、または供給器に送る。

【００３０】

天然ガスから窒素および／またはヘリウムを抽出するための本発明の中間圧法は以下の工程を含む：

第１の膨張工程（タービン５）：例えば、この膨張工程前に天然ガスは３～１５ＭＰａの圧力であり、膨張後は１～５ＭＰａの圧力である。天然ガスの温度は－１００～０℃である；

天然ガスからの窒素および／またはヘリウムの抽出のためにメタンを含む還流が用いられる、膨張した天然ガスの蒸留工程（Ｃ１）；

蒸留工程の最後に、殆どメタンを含んでなる第１の流れＦ１およびメタンおよび窒素および／またはヘリウムを含んでなる第２の流れＦ２が得られ；

蒸留工程に続く分離工程の最後に、窒素および／またはヘリウムおよび種々の割合のメタンからなる流れＦ４またはドレン流が生成される。

【００３１】

一つの態様によれば、凝縮器１０で用いられる冷却剤は、液化方法の後期工程において抽出された天然ガスフラクションからなることができ、それは、ライン１４を通して凝縮器１０に送られ、第２の流れＦ２との熱交換後、液化方法の後期加工工程へライン１５を通して再循環される。有利なことに、このフラクションは液状である。

【００３２】

冷媒の注入速度を有利に調節することにより、ドラム５の頂上で抽出される流れＦ４の組成が制御されると共に、その熱量特性値がＬＮＧプラントの燃料ガスの要求に対応している液体が得られる。

【００３３】

膨張液化方法の場合、後期工程において、気体フラクションが液相と共に生成されてLNGすなわち液化天然ガスが製造される。この気体フラクションは、ライン１７を通して排出される前にライン１６を通して冷却装置２に再循環され、ライン４を通して排出される冷却された天然ガスと混合される。

【００３４】

図１（Ｂ）は、図１（Ａ）のＣ１、１０およびＳに相当する単一系内の接触、凝縮および分離工程を含む実際の態様を示す。

例えば、図１（Ａ）で示されるライン６、ライン８およびライン１１が設けられたデフレグメーター交換器Ｄ１が用いられる。

【００３５】

ライン１４および１５により、デフレグメーター交換器Ｄ１中でのメタンの凝縮に必要な冷却混合物が循環される。

【００３６】

デフレグメーター交換器中でのメタンは少なくとも部分的に凝縮し、下流方向に流れ、メタンの不必要な非燃焼化合物を分離させる還流として作用する。

【００３７】

冷却混合物の循環は、デフレグメーターの頂上の領域で濃縮され得るデフレグメーターの一部において、またはその長さの殆ど全体において達成され得る。

【００３８】

本発明の範細から離れることなく、冷媒混合物をデフレグメーターを備える任意の冷却手段に取り換えることができる。

【００３９】

天然ガス液化法への本発明の方法の適用を説明するために図２、３、４および５において数値例を提供する。

【００４０】

窒素および／またはヘリウム抽出工程は、例えば、明確化のために二つに分けている図２と３のパターンによる第１の膨張工程後に行われ、図４および５は、凝縮ガソリン抽出および安定化工程を示す。

【００４１】

天然ガスの組成のモル分率を以下に示す：

Ｃ１	８９．４２％（モル）
Ｎ２	４．１９
Ｃ２	５．２３
Ｃ３	１．８１
ｉＣ４	０．３５
ｎＣ４	０．５５
ｉＣ５	０．１９
ｎＣ５	０．１５
ｎＣ６	０．１１

液化する前に、天然ガスを、水および／または酸性ガスの除去のために加工する。

【００４２】

この適用例において、冷却装置２（図２）は一列に並んだ三つの熱交換器Ｅ１、Ｅ２およびＥ３を含む。

【００４３】

天然ガスは、ライン１を通って、１０ＭＰａに近い圧力および４５℃の温度で第１の熱交換器Ｅ１に供給される。それはライン２０を通って流出して約１１℃に冷却され、図４に記載され以下に説明されるパターンに従って行われるガソリン抽出工程に送られる。

【００４４】

次に、ガソリン抽出工程後に重質フラクションを含まなくなった天然ガスを、ライン２１を通して交換器Ｅ３に送り、そこで約－７０℃に冷却する。それを、ライン４を通して圧力９ＭＰａで成分Ｂ抽出工程に送るが、ここでは窒素および／またはヘリウムである。

【００４５】

この抽出は、図３に記載の工程により、図１に記載のものと実質的に同じパターンにより行われる。

【００４６】

ライン４を通して抽出される天然ガスは、膨張装置Ｘ１（図１において参照番号５）、例えば、入り口の液状タービンおよび出口の２相気-液タービンを通して、大部分の窒素が蒸発するのに充分低い圧力になるまで膨張する。次に、膨張天然ガスをライン６を通して接触器Ｃ１に送り、その出口において、泡立ち点で液状の大部分がメタンからなる第１の流れＦ１がライン８を通して排出され、少なくともメタン、窒素および／またはヘリウムからなる第２の流れＦ２がライン９を通して排出される。

【００４７】

第２の流れＦ２が凝縮器１０を通して流れることによりメタンが凝縮され、それがその後、分離ドラムＳ中において窒素および／またはヘリウムから分離される。

【００４８】

分離されたメタンを多く含むドラムＳからの液体フラクションが、ライン７を通して接触器Ｃ１に送られて、還流（流れＦ３）として用いられ、そこで窒素および／またはヘリウムを多く含む気体フラクション（流れ４）がライン１１を通して排出され、系のドレン流を構成し、それは、例えば冷媒１４の流量を変えることによりメタン組成を必要により制御および調節し得る燃料ガスとして用いることができる。ライン１１を通して排出された流れＦ４は、熱交換器Ｅ５に送られ、そこで液化方法に再循環されることなく排出されるのに先立って冷媒として用いられる。

【００４９】

液状の天然ガスの第１の流れＦ１は、ライン８を通して、膨張器Ｘ２を含む液化方法の第２工程に送られ、そこを通して、第１の流れＦ１が１ＭＰａに近い圧力まで膨張されて気

相および液相が形成される。これらの二つの相は、ドラムＤＸ２において分離され、その出口において、液相がライン２３を通して排出され、気相はライン２４を通して排出される。

【００５０】

液相は、ライン１４を通して凝縮器１０に送られ冷媒として用いられる第１の液体フラクションＬ１と、ライン２５を通して液化方法の第３工程に送られそこで膨張器Ｘ３を通して０．３ＭＰａの圧力まで膨張されることによりライン２６を通してドラムＤＸ３に送られる液相と気相を生成する第２の液体フラクションＬ２とに分けることができる。

【００５１】

ドラムＤＸ３の出口において、液相がライン２７を通して抽出され、気相がライン２８を通して抽出される。

【００５２】

液相がタービンＸ４（第４工程）において、液化天然ガスすなわちＬＮＧの貯蔵圧力において液相と気相を得るように選択された０．１ＭＰａ程度の圧力に膨張される。これらの２相は、ライン３０を通して排出され、ドラムＤＸ４において分離され、その出口において、液化天然ガスがライン１３を通して抽出（図１）され、気相がライン３１を通して抽出される。

【００５３】

図示しないがＬＮＧ貯蔵タンク内で生成された沸騰分は、ライン３１ｂを通して導入されてライン３１からの気相と混合することができる。

【００５４】

この混合物から生じる気相は、膨張器Ｘ４により駆動される圧縮器ＫＸ４を通して圧縮され、ライン３２を通して圧縮器Ｋ４に送られて、そこで、約０．３ＭＰａのライン２８から排出される気相の圧力に実質的に近い圧力まで圧縮される。これら二つの気相は混合され、タービンＸ３により駆動される圧縮器ＫＸ３において圧縮され、次にライン３３を通して圧縮器Ｋ３に送られ、ライン２４を通して排出される気相の圧力に実質的に近い圧力まで圧縮される。これら二つの気相を、冷媒１４の蒸発から生じる流れ５２と混合し、タービンＸ２により駆動される圧縮機ＫＸ２により圧縮され、ライン３４を通して圧縮器Ｋ２に送り、そこで３ＭＰａの程度の圧力に圧縮される。

【００５５】

Ｋ２からの気相は、タービンＸ１により駆動される圧縮器ＫＸ１に送られて気相が得られ、それはライン３６を通して圧縮器Ｋ１に送られる。これは、脱エタン機および脱メタン機（図４および５）から得られる気体フラクションと予め混合して、ライン３７、３８を通して導入することができる。三つの気相の混合物を、ライン２１を通して交換器Ｅ３（図２）に送られる気体流の圧力よりも僅かに高い圧力に圧縮する。この気体フラクションを、装置３９中で冷却後、ライン１６を通して交換器Ｅ１に少なくとも部分的に再循環する。圧力は、交換器Ｅ１、Ｅ２およびＥ３により生じる圧力低下を少なくとも補うように決められ、それによりライン１を通して導入される天然ガスの主な流れと、ライン１６を通して導入される再循環流れが、交換器Ｅ３の出口において実質的な同じ圧力となり温度は－７０℃程度となる。

【００５６】

再循環流（１６および４０）は、例えば、水、空気または任意の他の冷却剤のような外部熱源３９を用いて冷却される。これは、種々の交換器Ｅ１、Ｅ２およびＥ３を通って流れ、ライン１７を通って排出されて、ライン４からの天然ガスと混合される（図１）。

【００５７】

これらの種々の交換器を通して、再循環流は連続的に１１℃、－２９℃および－７０℃に冷却される。再循環天然ガスの流れと、天然ガスの主な流れとの排出ライン４中での混合は、－７０℃および９ＭＰａで行われる。

【００５８】

再循環流のより少ないフラクションはライン４０を通して抽出し、次に熱交換器Ｅ５中で

冷却することができ、その出口において、例えば膨張弁４１を通して膨張してから、膨張器Ｘ１から出てくる流れと混合される。有利なことに、交換器Ｅ５中での冷却を確保するために、ライン１１から出てくる窒素および／またはヘリウムを多く含む冷たいドレン流の少なくとも一部が用いられる。

【００５９】

凝縮器１０内で用いられる冷媒は、例えば第２膨張工程（Ｘ２）の水準において液化方法中に抽出される液体の一部からなることができる。メタンを含みライン２３を通して排出される液体フラクションの一部が引き出され、ライン１４と通して送られて、凝縮器１０内で冷媒として用いることができる。このフラクションは、メタン、窒素および／またはヘリウムを含む流れＦ２との熱交換後、ライン５０を通して分離装置５１に送られ、その出口において、気相が、ライン５２を通して項上において排出され、圧縮器ＫＸ２の水準でライン２４に送られると共に、液相がライン５３を通して排出され、ポンプ５４に送られて、メタンを含む液相（流れＦ１）と混合され、ライン８を通して抽出され、その混合物が膨張器Ｘ２に送られる。

【００６０】

液化方法の一つの前工程から得られる液体を冷媒として用いることは、第２の冷却サイクルの使用を避ける利点がある。どのような冷却方法を用いても、本発明は、ドレン流の最適組成に相当する必要なメタンフラクション（ライン１１からの窒素および／またはヘリウムを含む気流）を凝縮する利点を有する。ドレン流の最適メタン組成は、例えば液化プラントの燃料ガス要求に必要なメタンの量により選択することができる。

【００６１】

図２に記載され図１において参照番号３を付されている外部冷却サイクルは、例えば、次のパターンを含む：冷源７０の温度を僅かに超える温度の液体加圧冷却混合物を、ライン６０を通して交換器Ｅ１に供給し、そこでそれは、ライン１を通して導入される天然ガスと、およびライン１６を通して導入される再循環天然ガスと同方向に流れながら循環する。

【００６２】

第１の交換器Ｅｌの出口において、冷却混合物が第１のフラクションＭ１と、第２のフラクションＭ２とに分けられ、第１のフラクションＭ１はライン６１ａを通して第２の交換器Ｅ２に送られ、第２のフラクションＭ２はライン６１ｂに配される膨張弁Ｖ１を通して膨張され、このラインを通して交換器Ｅ１に送られ、そこで天然ガスおよび冷却混合物流に逆流しながら循環してそれらを冷却する。熱交換後、この第２のフラクションをライン６２を通して圧縮器Ｋ１０に送る。

【００６３】

冷却混合物の第１のフラクションＭ１は、ライン６１ａを通して抽出され、ライン１８を通して交換器Ｅ２に供給される再循環された天然ガスフラクションと同方向に流れながら循環する。冷却混合物は、交換器Ｅ２を流通後、第３のフラクションＭ３と第４のフラクションＭ４との二つのフラクションに分離され、第３のフラクションＭ３はライン６３ａを通って第３の交換器Ｅ３に送られ、第４のフラクションＭ４はライン６３ｂを通して抽出され、膨張弁Ｖ２を通して膨張されてから交換器Ｅ２に供給され、そこで、交換器Ｅ２内で循環している冷却混合物フラクションおよび再循環天然ガスを冷却するために逆流しながら循環する。冷却混合物のもう一つのフラクションＭ５を、ライン６３ｃを通して抽出して、ガソリン抽出塔の頂上を冷却することができる（図４）。

【００６４】

交換器Ｅ２中での熱交換後に得られる第４の冷却混合物フラクションＭ４を、ライン６４を通して圧縮器Ｋ１１に送り、次に、装置７１中で冷却後、ライン６２からの第２のフラクションＭ２と混合してから圧縮器Ｋ１０に送る。

【００６５】

ライン６３ａを通して導入される第３の冷却混合物フラクションＭ３は、ライン１９を通って交換器Ｅ２から抽出される再循環ガスと、ライン２１を通って導入されガソリン抽出

工程から出てくる天然ガスと、交換器Ｅ３中で同方向に流れながら循環する（図４）。次にそれを、この交換器Ｅ３からライン６５を通して排出し、膨張弁Ｖ３を通して膨張させ、二つの天然ガス流と第３の冷媒フラクションを冷却するために逆流しながら循環する。熱交換後、冷却混合物をライン６６を通して排出し、圧縮器Ｋ１２に送り、次にライン６７を通して圧縮器Ｋ１１に送る。

【００６６】

ライン６６からの冷媒を、まず、ガソリン抽出凝縮器の頂上から出てくる冷却フラクションと混合し（図４）、それをライン６８を通して交換器Ｅ２に供給し、それはこの交換器中、冷却される流れと逆流しながら循環し、ライン６９を通して抽出される。二つの冷媒フラクションのこの混合物を圧縮器Ｅ１２および圧縮器Ｋ１１およびＫ１０において圧縮し、外部源７０および７１により冷却する。

【００６７】

化学工学分野で用いられるソフトウェアにより作られる完全なプロセス計算により、本発明の抽出方法の性能をチェックすることができる。

【００６８】

初期データ

予め脱水され脱酸性化された天然ガスが以下の条件で得られる。

【００６９】

化合物	モル分率
Ｃ１	０．８７４２
Ｎ２	０．０４１９
Ｃ２	０．０５２３
Ｃ３	０．０１８１
ｉＣ４	０．００３５
ｎＣ４	０．００５５
ｉＣ５	０．００１９
ｎＣ５	０．００１５
ｎＣ６	０．００１１
流量	１０，８５０ ｋｍｏｌ／ｈ
圧力	１０ＭＰａ
温度	４５℃

膨張前の予備冷却温度：－７０℃

性能：

エネルギー消費：製造されたＬＮＧｌ，１７５ｋＪ／ｋｇ（製造されたＬＮＧの流量に対する圧縮力の比）

圧縮力：５５，３５５ｋＷ

得られた生成物

液化方法の最後におけるＬＮＧ

化合物	モル分率
Ｃ１	０．９１８５
Ｎ２	０．０００５
Ｃ２	０．０５８５
Ｃ３	０．０１８０
ｉＣ４	０．００２２
ｎＣ４	０．００２３
ｉＣ５	０．０００００
ｎＣ５	０．０００００
ｎＣ６	０．０００００
流量	９，６６０ｋｍｏｌ／ｈ
圧力	０．１ＭＰａ

温度　－１６１．０℃
抽出すべき窒素および／またはヘリウムを含むドレン流：

化合物	モル分率
Ｃ１	０．５５０４
Ｎ２	０．４４９６
Ｃ２	０．００００
Ｃ３	０．００００
ｉＣ４	０．００００
ｎＣ４	０．００００
ｉＣ５	０．００００
ｎＣ５	０．００００
ｎＣ６	０．００００

流量　１，０００ｋｍｏｌ／ｈ
圧力　３．１６ＭＰａ
温度　３３℃
これらの性能は、沸騰分の再圧縮を考慮している。さらに、燃料ガス圧により、ガスタービンへの供給前の燃料ガス圧縮器を無しですますことができることが注目され得る。ドレン流は、メタンより重質産物を完全に含まない（燃焼器内での凝縮の危険性が無い）。
【００７０】
燃料ガス流量は、凝縮器内で循環する冷媒の流量を変えることにより制御することができる。
【００７１】
液化プラント内で必要な燃料ガス流量を１，０００ｋｍｏｌ／ｈではなく１，３００ｋｍｏｌ／ｈと考えると、設計の相違は以下のごとくである：
性能：
エネルギー消費：製造されたＬＮＧｌ，１７４ｋＪ／ｋｇ（製造されたＬＮＧの流量に対する圧縮力の比）
圧縮力：５３，７４０ｋＷ
得られた生成物
ＬＮＧ

化合物	モル分率
Ｃ１	０．９１５９
Ｎ２	０．０００５
Ｃ２	０．０６０４
Ｃ３	０．０１８６
ｉＣ４	０．００２３
ｎＣ４	０．００２３
ｉＣ５	０．００００
ｎＣ５	０．００００
ｎＣ６	０．００００

流量　９，３５９ｋｍｏｌ／ｈ
圧力　０．１ＭＰａ
温度　－１６１．０℃
抽出すべき窒素および／またはヘリウムを含むドレン流：

化合物	モル分率
Ｃ１	０．６５４０
Ｎ２	０．３４６０
Ｃ２	０．００００
Ｃ３	０．００００
ｉＣ４	０．００００

ｎＣ４	０．００００
ｉＣ５	０．００００
ｎＣ５	０．００００
ｎＣ６	０．００００
流量	１，３００ｋｍｏｌ／ｈ
圧力	３．１６ＭＰａ
温度	３３℃

ＬＮＧプラントは、良好な操作柔軟性を提供するドレン流量の大きな変化に殆ど感受性がない。

【００７２】

図４は、交換器Ｅ３内で予備冷却される天然ガスからのガソリン抽出の工程を実施させるパターンを簡単に記載している。

【００７３】

１１℃に予備冷却され、ライン２０を通して排出された天然ガスは、重質フラクションを含む。それは、タービンＸ０を通して、５．２ＭＰａの水準の圧力まで膨張し、このように形成される２層流は約－２８℃である。

【００７４】

２相流を、再沸騰器は用いないが凝縮器は用いて、ライン８０を通して塔Ｃ２に供給する。塔底において、凝縮物を含む流れをライン８２を通して抽出し、図５に記載の安定化工程に送る。２相流の蒸気フラクションが塔Ｃ２内で上方に循環し、そこで、ライン８３ａを通して導入される還流と逆流しながら接触する。この還流は、ライン８１を通して塔Ｃ２の頂上から出てくる流れを図２に記載の予備冷却サイクルから生じ得て、ライン６３ｃを通して導入され弁Ｖを通して膨張してからＥを流通する冷媒に逆流しながら循環させることにより部分的凝縮器Ｅ内で発生する。加熱された冷媒は、熱量交換後、交換器Ｅ２（図２）中の予備冷却サイクルに送り戻されることにより熱を放出し、次に、この交換器からライン６９を通して排出され、主な冷媒と混合後、交換器Ｋ１２（図２）中で再圧縮される。

【００７５】

Ｅ内で冷却された塔Ｃ２の頂上における流れは、分離ドラムＤに送られる２相液を生成し、分離ドラムＤの出口で、蒸気フラクションがライン８２を通して抽出されて圧縮器ＫＸ０に送られ、一方、液体フラクションが、二つのサブライン８３ａと８３ｂとに分かれるライン８３を通してドラムＤの底部において排出される。主要な液体フラクションをライン８３ａを通して送り、塔Ｃ２内で還流として用い、残りをライン８３ｂを通して図５に記載の安定化工程に送る。

【００７６】

主要蒸気フラクションを－１３℃程度の温度で約８．７ＭＰａの圧力に圧縮してから、交換器Ｅ３（図２）に送って冷却および凝縮する。

【００７７】

図５は、凝縮物の安定化を行わせる装置を示している。

【００７８】

ライン８２を通して抽出されるガソリン抽出塔Ｃ２の底部（図４）を４．８ＭＰａの圧力まで膨張させ、脱メタン化塔ＤＥＣ１に送る。この塔の還流は、膨張したライン８３ｂから出てくる液体により提供される。塔頂において、－４０℃でメタン、窒素およびエタンを主成分とする流れをライン９２を通して抽出し、ライン３７を通して図２に記載のプロセス再循環に送る（図３）。塔の底部の生成物はライン９３を通して排出され、装置ＲＥＣ１を通して冷却されてから、例えば弁を通して実質的に３．９ＭＰａの圧力まで膨張され、ライン９４を通して第２の脱エタン化塔ＤＥＣ２に送られる。ライン９５を通して塔ＤＥＣ２の頂上から流れ出てくる流れを、系の冷源（水、空気など）の温度より僅かに高い５０℃に近い温度で冷却手段により凝縮器ＥＣ２中で部分的に凝縮する。凝縮により生成された２相混合物を、ドラムＤＣ２内で分離し、その出口において、液相をライン９６

を通して抽出して、塔ＤＥＣ２内で還流として用い、主にエタンからなる気相をライン９７を通して抽出し、プロセス再循環（図３、ライン３８）に送る。この気相の重要でないフラクションを、主冷却サイクルのエタン損失を補うために周期的に抜き出し、例えば６０において導入する。

【００７９】

塔底分をライン９８を通して排出してから、ＲＥＣ２内で冷却し、弁を通して、実質的に１．５ＭＰａまで膨張させ、次に、ライン９９を通して脱プロパン化塔ＤＥＣ３に送る。ライン１００を通してこの塔の頂上から出てくる流れを、系の冷源（水、空気など）の温度より僅かに高い５０℃に於いて冷却手段により凝縮器ＥＣ３中で凝縮する。凝縮から得られる液体を、ドラムＤＣ３内で分離して、塔ＤＣ３中で還流として用いるためにライン１０１を通して排出される第１の液体フラクションと、ライン１０２を通して市販のプロパン貯蔵タンク中に排出される第２の液状フラクションとを生成する。この流れの重要でないフラクションを、主冷却サイクルのプロパン損失を補うために周期的に抜き出す。

【００８０】

塔底分をライン１０３を通して排出して、装置ＲＥＣ３により冷却し、弁を通して、０．５ＭＰａ近くまで膨張させてから、ライン１０４を通して脱ブタン化塔ＤＥＣ４に送る。この塔の頂上から出てくる流れをライン１０５を通して抽出し、次に、系の冷源（水、空気など）の温度より僅かに高い５０℃に近い温度で冷却手段により凝縮器ＥＣ４中で凝縮する。次に、液体をドラムＤＣ４内で分離して、塔ＤＣ４中で還流として用いるためにライン１０６を通して送られる第１の液体フラクションと、市販のブタン貯蔵タンクに送られるライン１０７を通して抽出される第２の液状フラクションとを得る。

【００８１】

この流れの重要でないフラクションを、主冷却サイクルのブタン損失を補うために周期的に抜き出す。ライン１０８を通して抽出される脱ブタン塔の底分をＲＥＣ４を通して冷却し、凝縮物貯蔵タンク（軽質ガソリン）に送ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図１】図１（Ａ）および１（Ｂ）は、天然ガスの液化方法中に適用される本発明の方法の原理を説明する図。

【図２】図２は、所定の数値例に用いられる本発明方法の図。

【図３】図３は、所定の数値例に用いられる本発明方法の図。

【図４】図４は、所定の数値例に用いられる本発明方法の図。

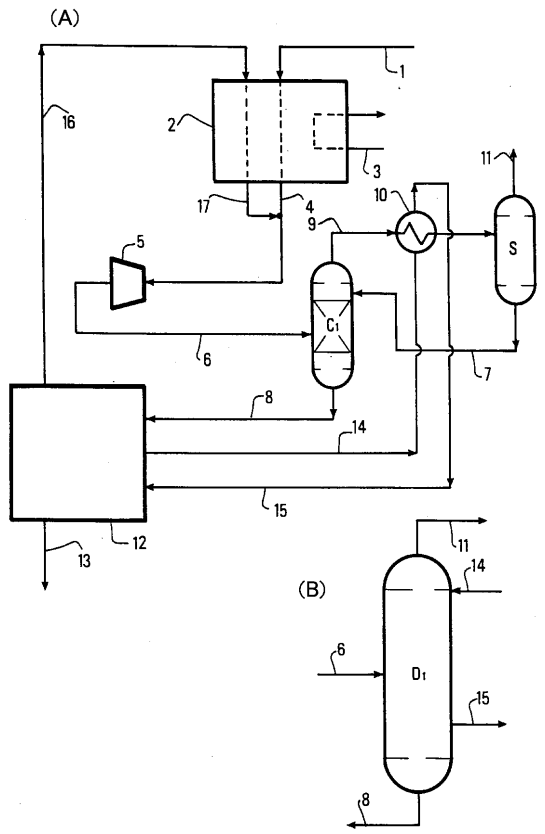
【図５】図５は、所定の数値例に用いられる本発明方法の図。

【符号の説明】

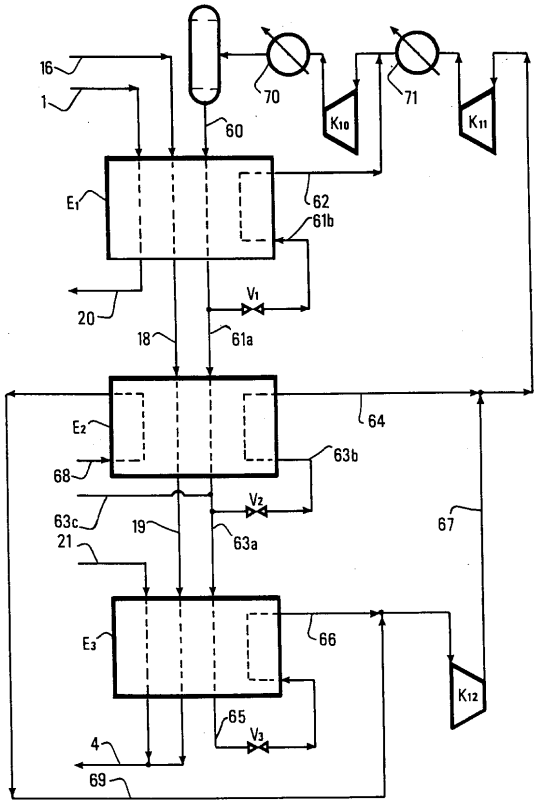
２　冷却装置
５　膨張器
１０　凝縮器
１２　後期加工工程
５１　分離装置
５４　ポンプ
Ｄ　分離ドラム
Ｓ　分離器
Ｖ　弁
Ｃ１　接触器
Ｄ１　デフレグメーター交換器
Ｘ０　タービン
Ｃ２　ガソリン抽出塔
Ｅ１，Ｅ２，Ｅ３，Ｅ５　熱交換機
Ｖ１，Ｖ２，Ｖ３　膨張弁
Ｘ１，Ｘ２，Ｘ３，Ｘ４　膨張装置
Ｋ１，Ｋ２，Ｋ３，Ｋ４，Ｋ１０，Ｋ１１　圧縮器

ＤＸ２，ＤＸ３，ＤＸ４	ドラム
ＫＸ０，ＫＸ１，ＫＸ２，ＫＸ３，ＫＸ４	圧縮器
ＤＣ２，ＤＣ３，ＤＣ４	ドラム
ＥＣ２，ＥＣ３，ＥＣ４	凝縮器
ＲＥＣ１，ＲＥＣ２，ＲＥＣ３，ＲＥＣ４	装置
ＤＥＣ１	脱メタン化塔
ＤＥＣ２	脱エタン化塔
ＤＥＣ３	脱プロパン化塔
ＤＥＣ４	脱ブタン化塔

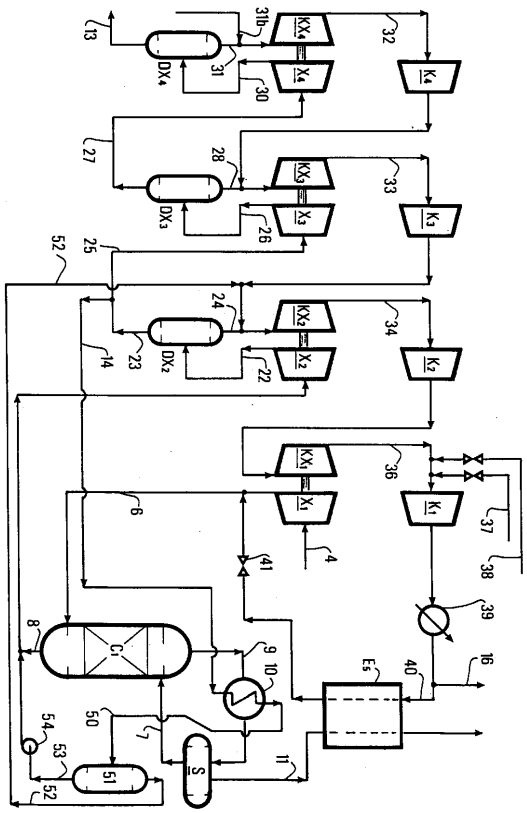
【図１】



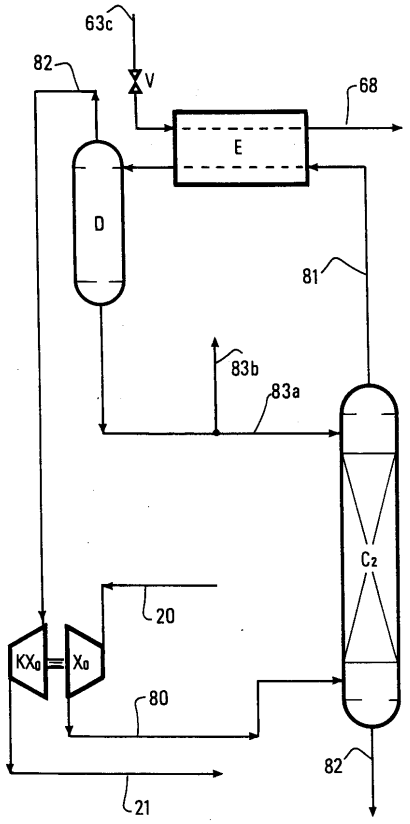
【図２】



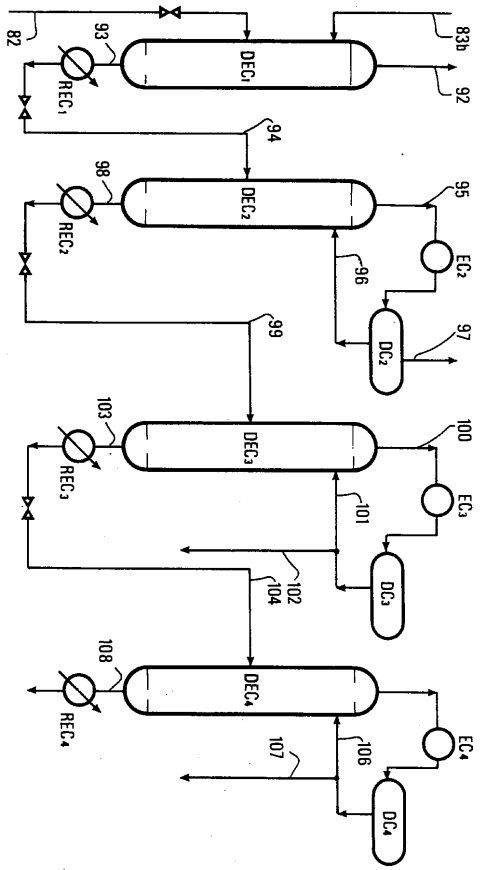
【図３】


13
31b
KX4
X4
DX4
31
30
32
K4
27
28
KX3
X3
DX3
26
33
K3
52
25
24
KX2
X2
DX2
23
22
14
34
K2
KX1
X1
36
K1
37
38
6
41
4
39
8
C1
9
10
E5
40
16
54
50
7
53
51
52
S
11

【図４】


63c
V
82
68
E
D
81
83b
83a
C2
20
KX0
X0
80
82
21

【図５】


82
93
DEC1
83b
REC1
92
94
98
DEC2
95
REC2
EC2
96
99
DC2
97
103
DEC3
100
REC3
EC3
101
102
104
DC3
108
DEC4
REC4
EC4
107
106
DC4

フロントページの続き

(72)発明者　ピエール　カプロン
フランス国　９２５００　リュエーユ　マルメゾン　アヴニュ　ダルサス　ロレーヌ　６

審査官　山本　吾一

(56)参考文献　特開平０５－３４６２８７（ＪＰ，Ａ）
米国特許第０５６０２２９３（ＵＳ，Ａ）
特表平０２－５０３３４８（ＪＰ，Ａ）
特開昭４８－０６２１８４（ＪＰ，Ａ）
特公昭４９－０２６６８２（ＪＰ，Ｂ１）
特表平０８－５０７３６４（ＪＰ，Ａ）
特表平１１－５０８０２７（ＪＰ，Ａ）
特公昭３４－００２３０７（ＪＰ，Ｂ１）
特開昭５９－０８１４８３（ＪＰ，Ａ）
特開平０５－２４０５７６（ＪＰ，Ａ）
特開昭６１－０２９６７１（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
F25J　1/00 - 5/00