

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号
特許第4445261号
(P4445261)

(45) 発行日 平成22年4月7日 (2010.4.7)

(24) 登録日 平成22年1月22日 (2010.1.22)

(51) Int. Cl.	F I
C 1 0 J 3/00 (2006.01)	C 1 0 J 3/00 Z A B K
B 0 9 B 3/00 (2006.01)	B 0 9 B 3/00 3 0 2 A
C 0 8 J 11/12 (2006.01)	B 0 9 B 3/00 3 0 2 Z
F 2 3 C 10/02 (2006.01)	C 0 8 J 11/12
	F 2 3 C 10/02

請求項の数 19 (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2003-532613 (P2003-532613)	(73) 特許権者	595154041
(86) (22) 出願日	平成14年10月1日 (2002.10.1)		ヴァルシオン テクニッリネン トウトキ
(65) 公表番号	特表2005-504167 (P2005-504167A)		ムスケスクス
(43) 公表日	平成17年2月10日 (2005.2.10)		フィンランド国、02150 エスポー、
(86) 国際出願番号	PCT/FI2002/000775		ヴォリミエヘンティエ 5
(87) 国際公開番号	W02003/029389	(74) 代理人	100080791
(87) 国際公開日	平成15年4月10日 (2003.4.10)		弁理士 高島 一
審査請求日	平成17年9月20日 (2005.9.20)	(72) 発明者	カーケラ、エサ
(31) 優先権主張番号	20011925		フィンランド国、エフイーエヌー0221
(32) 優先日	平成13年10月2日 (2001.10.2)		0 エスポー、パイヴァンキロンティエ
(33) 優先権主張国	フィンランド (FI)		8アー
		(72) 発明者	ニーミネン、マッティ
			フィンランド国、エフイーエヌー0294
			0 エスポー、タミハーンティエ 15-
			17アー1

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 流動床リアクターにおける燃料のガス化のための方法および装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

固体流動材料粒子を含んでいる流動床リアクター（1）内で上昇するガス流中の燃料をガス化するための方法であって、

当該方法は、燃料（8）をリアクター底部に供給し、形成した生成物ガス（10）をリアクター上部からセパレーター（11）に送ることを含み、これによって、固体粒子をガスから分離しかつリアクター（1）に戻し、

前記セパレーター（11）はサイクロンであり、該サイクロンにおける固体粒子の分離限界は50～70 μmの範囲となっており、

より粗い流動材料粒子を含む気泡流動床（7）をリアクター（1）内に維持するように、かつ、その上方により微細に分割された流動材料粒子を含む循環床を維持するように、ガス流を用い、かつ、

循環のために生成物ガスから分離された粒子を、リアクターの気泡流動床の最上部に戻すか、またはその上方に戻すことを含む、前記方法。

【請求項2】

気泡流動床（7）が、0.2 mmを超えるサイズを有する流動材料粒子を含むことを特徴とする、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

気泡流動床（7）が、0.3～1.5 mmの範囲のサイズを有する流動材料粒子を含む

ことを特徴とする、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

循環床が、 $50 \sim 300 \mu\text{m}$ の範囲のサイズを有する循環流動材料粒子を含むことを特徴とする、請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

セパレーター (11) から取り出された生成物ガス (17) が、 $10 \sim 70 \mu\text{m}$ の範囲のサイズを有する固体粒子を含むことを特徴とする、前記請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 6】

循環床におけるガス流量が、気泡床のガス流量と等しいか、またはこれよりも低いことを特徴とする、前記請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

【請求項 7】

循環床におけるガス流量が $1 \sim 1.5 \text{ m/s}$ の範囲であることを特徴とする、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】

リアクターには、より粗い流動材料粒子 (13) と、より微細に分割された流動材料粒子 (14) とが供給され、より粗い流動材料粒子が気泡流動床になり、より微細に分割された流動材料粒子が循環流動床になることを特徴とする、前記請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

20

【請求項 9】

リアクター (1) には、 $0.3 \sim 1.5 \text{ mm}$ の範囲のサイズを有する流動材料粒子と、砕けやすい材料とが供給され、その結果、粒子の分解によって、気泡流動床から循環流動床へと通過する粒子が生じることを特徴とする、請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

流動材料粒子が石灰粒子であることを特徴とする、請求項 9 に記載の方法。

【請求項 11】

燃料 (8) が気泡流動床 (7) に供給されることを特徴とする、前記請求項 1 ～ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

30

セパレーター (11) から取り出された生成物ガス (17) が熱交換器 (19) に送られ、ここで該ガスは $600 \sim 720^\circ\text{C}$ の温度範囲に冷却され、続いて別の熱交換器 (20) に送られ、ここで該ガスは 450°C 以下の温度にさらに冷却され、該生成物ガスのろ過 (23) が続くことを特徴とする、前記請求項 1 ～ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

灰粒子を結合するための吸着剤 (21) が、第 1 の熱交換器 (19) において、生成物ガスに添加されることを特徴とする、請求項 12 に記載の方法。

【請求項 14】

ガス化される燃料 (8) が、木材パルプのような微細に分割されたバイオマスであることを特徴とする、前記請求項 1 ～ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

40

【請求項 15】

ガス化される燃料 (8) がプラスチックを含むことを特徴とする、請求項 1 ～ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】

ガス化される燃料 (8) が塩素を含むことを特徴とする、請求項 1 ～ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 17】

前記請求項 1 ～ 16 のいずれか 1 項に記載の方法を行うためのガス化装置であって、当該装置は、流動床リアクター (1) と、固体粒子からなる流動材料と、リアクターにおいて上昇するガス流を生成するための供給インレット (6) と、燃料供給インレット (

50

8) と、流動材料をリアクターに添加するための供給インレット (13、14) と、リアクター上部から始まるガス排気ダクト (10) と、リアクターから取り出された生成物ガスから固体粒子を分離するためのセパレーター (11) と、分離した粒子をリアクターに戻すための戻りライン (12) とを有し、

前記セパレーター (11) はサイクロンであり、該サイクロンにおける固体粒子の分離限界は 50 ～ 70 μm の範囲となっており、

より粗い流動材料粒子を含む気泡流動床 (7) がリアクター (1) 内に生じ得、かつ、この上方に、より微細に分割された流動材料粒子を含む循環床が生じ得、セパレーターからリアクターに戻る粒子のための戻りライン (12) が、気泡流動床の上部のレベルにおいて、あるいはこの気泡流動床の上方において終止していることを特徴とする、
前記装置。

10

【請求項 18】

リアクターが、気泡流動床 (7) のための下方部分 (2) と、循環流動床のための断面がより大きな上方部分 (4) とを有することを特徴とする、請求項 17 に記載の装置。

【請求項 19】

セパレーター (11) から送られた生成物ガスを徐々に冷却するために、該生成物ガスが送られて行く方向に連続して設けられた 2 つの熱交換器 (19、20) と、

冷却した生成物ガスをろ過するためのフィルター (23) とを有することを特徴とする、請求項 17 または 18 に記載の装置。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体流動材料粒子を含む流動床リアクター内において上昇するガス流中の燃料をガス化するための方法に関し、当該方法は、リアクター底部に燃料を供給すること、および、生成した生成物ガスをリアクター上部からセパレーターに送ることを有しており、これによって、固体粒子はガスから分離され、リアクターに戻される。さらに、本発明は、当該方法を実施するためのガス化装置に関する。

【背景技術】

【0002】

ガス化に適した燃料は、微細に分割された生物燃料および廃棄物（例えば、鋸切断物 (saw cuttings)、都市廃棄物、包装材料およびプラスチック廃棄物) を含む。得られる生成物ガスは、プラント燃料（例えば、木炭、オイルまたは天然ガス）に代用することによって、発電所で利用することができる。

30

【0003】

流動床リアクターには 2 つの主要なタイプがあり、その 1 つは、固定気泡流動床に主として基づくものである。比較的粗く分割された流動粒子からなる気泡流動床 (bubbling fluidised bed) は、リアクター空間に吹き込む上昇する気流によって所定の位置に支持された状態にある。気流の速度は、典型的には 1 m/s のオーダーである。固体物質の濃度は、明確に制限された気泡流動床の上方のガス流中では低い。気泡流動床リアクターにおける流動床の上方でのリアクター空間の温度は、追加の給気によって上昇させることもでき、ガス流中に冷却水を注入することによって降下させることもできる。木炭の変換を増大させるために、ガス流中に存在するダスト粒子を別個のサイクロンを用いて分離することができ、ここで、粒子はリアクター空間の底部に戻され、このタイプの「Winkler ガス化炉」は DE 特許明細書 19548324 および 2751911 に記載されている。

40

【0004】

流動床リアクターの第 2 の主要なタイプは、循環流動床であり、ここで、固体流動粒子は、気流と共に上昇してリアクターに吹き込む。気流の速度は高く（典型的には 5 m/s のオーダーである）、流動粒子のサイズは、流動床リアクターのものよりも小さい。流動粒子は、生成物ガスによってサイクロンに混入し、ここで、粒子と燃料由来の炭化残渣とは分離され、リアクター空間の底部に戻される。ガス化反応に必要とされる保持時間を得

50

るために、循環流動床リアクターは、気泡流動床リアクターの高さよりも実質的に高い高さを与えられていた。循環流動床の典型的な他の特性は、気泡流動床の特徴である明確に制限された流動床を有することなく、リアクター空間における固体物質懸濁物の均一な温度および比較的均一な粘度を有している。循環流動床リアクターに基づく典型的な燃料ガス化プロセスは、F I レイアウトプリント 6 2 5 5 4 に開示されている。

【0005】

現在の方法および装置を用いて行われる、微細に分割されたバイオマスおよびプラスチック含有廃棄物のガス化は、タール状化合物が多量に形成されるという問題を含んでいる。発電所での燃焼前に、生成物ガスは、灰および重金属を除去するために、200～450℃の範囲の操作温度を有するフィルターを用いてろ過される。この目的のために、800～1000℃の範囲の温度におけるリアクター由来のガスは、熱交換器で冷却される必要があり、次いで、タールはガスダクトの表面で凝縮され、熱交換器およびフィルターが詰まるようになる。現在のガス化プロセスにおける問題の第2の原因は、燃料に含まれる塩素であり、このような塩素は、特にプラスチック廃棄物または類似の廃棄燃料に豊富に存在する。塩素は、流動粒子として使用されるかまたは燃料によって混入するカルシウムと反応し、化合物を形成し、この化合物はまたガスダクトおよび熱交換器に付着し、これらの詰まりを引き起こす。このプロセスは、冷却生成物ガスが約720～780℃の温度範囲にある場合、最高に達することが観察された。

【0006】

上記問題は、木材残渣（例えば、鋸切断物）およびプラスチックを多量に含む廃棄物に関して、気泡流動床リアクターによって本出願人が行ったガス化試験において注目されている。両方のタイプの燃料を用いた場合、燃料が気泡流動床に供給されたという事実にも関わらず、タールが多量に形成された。微細に分割された燃料の一部は、ガス化されることなく、気流と共に上昇してリアクター空間の最上部（top part）に入り、これはほとんど流動粒子を含んでいなかった。プラスチック含有燃料を用いた場合、熱分解により大量の重炭化水素が生じ、これら重炭化水素は、比較的低い流動床において分解するのに十分な時間を与えられない。これらの化合物は、リアクター中の固体物質から上昇してほとんど空の最上部に入り、ここで、触媒粒子表面の欠如はこれらの化合物の分解を妨げる。この理由のために、多くの公知の流動床ガス化炉において実施されるガス化炉最上部の流動断面の拡張および大きなリアクター高さは、タールの問題を何ら解決するものではない。本出願人によって行われた試験では、900℃、10秒の遅延でのリアクター空間の空の上部における流動粒子中のタール濃度の減少は5%未満であり、凝縮したタールおよび微細に分割されたダスト中に存在するカルシウム／塩素化合物の両方のせいで、生成物ガスダクトは詰まった。

【0007】

本出願人は、同様に、従来の循環流動床リアクターを用いて同じ燃料のガス化を調査した。これらの試験では、鋸切断物におけるタールの問題は、流動粒子として石灰石またはドロマイト（これらは、酸化カルシウムに焼成された後にタール分解を触媒する）を用いることによって軽減された。しかし、高い流量のせいで砕かれた石灰と、結果生じる高い石灰消費と、ダスト量の増加とによって生じる問題がまだある。塩素含有燃料を用いる場合、石灰は、おそらくは放出されたHClと石灰粒子との反応のせいで、いかなる顕著な援助もせず、そのことが燃料を不活性化する。同様に、粘着性のあるカルシウム／塩素化合物のせいでガスダクトが詰まるという問題がまだ残っている。廃棄物燃料を用いて行った試験では、生成物ガスダクトは、30時間の運転でほとんど完全に詰まった。堆積物はカルシウムおよび塩素を豊富に含んでいることが認められた。このような廃棄物燃料はガスダクトが詰まるのに十分な石灰を含んでいるので、使用した流動材料による問題も残っている。US特許明細書5,658,359では、粗い掃き出し材料（例えば、砂）を生成物ガスに別個に供給することによって問題を解決しているが、これは、追加の装置ならびにガスダクトおよび熱交換器に対する粗い砂の摩耗作用によって被るコストの不都合を含んでいる。

10

20

30

40

50

【0008】

本出願人の以前のF I特許出願981817は、循環流動床リアクターを用いたガス化方法を記載しており、ここで、床材料は、硬くかつ粗い材料と容易に碎かれかつ多孔性の材料との混合物からなる。この目的は、灰中の粘着性のあるアルカリ金属が微細に分割されたカルシウム粒子に結合し、迅速に循環サイクロンを通過してガス化炉の外に出るという状況を達成するためである。本出願の実施例では、上昇するガス流は、5 m/sの速度を有し、これは循環流動床ガス化炉にとって通常であり、有効循環サイクロンによって分離されたダストは、床底部で粗い砂床に再循環される。このように、循環される炭素を含む固体物質はリアクター底部で酸化ゾーンに戻されるので、循環された石灰の迅速な粉砕が促進され、比較的低温でさえも、良好な炭素変換が達成される。記載した方法は、アルカリが豊富な材料に適しており、ここで、塩素は燃料中のナトリウムまたはカリウムに結合している。対照的に、本出願人が行った試験は、ナトリウムおよびカリウムに対して余分の塩素を含む材料が、廃棄物燃料にはよくあることであり、サイクロンに続くガスパイプにカルシウムと塩素とを含む堆積物が強力に形成されることを示している。

10

【0009】

本発明の目的は、上記で説明した問題に対する解決法を提供することであり、それによって、固体流動材料の消費を、プロセスの間、適度に維持しつつ、タール、および／または、カルシウム／塩素化合物による、ガスダクトおよび熱交換器の汚れや詰まりの問題を防止するか実質的に軽減することが可能となる。本発明の方法は、粗い流動材料粒子を含む気泡流動床が、ガス流によってリアクターに維持されており、そしてこの気泡流動床の上方に循環床が維持されており、この循環床がより微細な流動材料粒子を含んでいるという事実、および、生成物ガスから分離された循環粒子が、リアクターにおける気泡流動床の上部またはこの上方に戻されるという事実によって特徴付けられる。結果として、本発明の中心的概念は、プロセスにおいて気泡流動床と循環流動床とを同時に維持し、これらの床を混合することなく実質的に別個に操作することである。これは、2つの基本的な解決法、気泡流動床ガス化と循環流動床ガス化、の利点を組み合わせた最適プロセスを達成する。

20

【0010】

本発明におけるリアクター底部での気泡流動床は、比較的低い流速を必要とし、それでリアクター中での十分な保持時間が達成され、これは、現在の循環流動床リアクターよりも実質的に低い。燃料は気泡流動床でガス化され、ガスはここから上方の循環床へと通過し、ここで、循環する微細に分割された流動粒子は、タール分解のために触媒作用を示す粒子表面を有する。流動させるべき微細に分割された循環粒子のためには、気泡床の低い流速は、十分な保持時間を提供するのに十分であり、かつ、粒子衝突によって生じる分解およびダスト形成を低減するのに十分である。循環した粒子を、気泡流動床の上端部のレベルへと、またはその上方へと、再循環させることによって、気泡床の50～200 mbarのオーダーの高い圧力損失を補償する必要があるという、特に粒子にとっての利益が生じる。前記圧力損失を補償することは、従来の気泡流動床リアクターの場合であり、その場合、気泡床の底部へと、またはリアクター空間の底部へと、再循環が起きている。

30

【0011】

プラスチックおよび多数の生物燃料を含む廃棄物は、典型的には蒸発物質が豊富であり、および／または、これらによって形成される炭化残渣は、極度に反応性が高い。これが、必要とされる95%炭素変換を流動床ガス化が容易に超える理由であり、従って、最大限の精度でサイクロンダストを分離することおよびサイクロンダストを流動床に戻すことは、上述の従来のWinklerガス化炉におけるほど重要ではない。これによって、生成物ガス中のより小さな固体粒子が、リアクターにおける循環床の一部を形成するために戻されるのではなく、冷却されるべき生成物ガス流中に残っているように、セパレーターの分離限界を調整することが可能となり、ここで、粒子は、カルシウム／塩素化合物によって生じる詰まりの問題を実質的に軽減するよう働く。セパレーターにおける固体粒子の分離限界が約50～70 μmの範囲である場合、生成物ガス流において10～70 μmの

40

50

サイズの固体粒子が得られ、これは、ガスの固体物質中の粘着性のある付着成分を結合してこれらの割合を減少させ、かつ、粘着性を有する物質がガスダクト、熱交換器およびガスフィルターに付着するのを防止する。気泡流動床は、例えば0.3～1.5mmの範囲の粒子サイズを有していてもよく、上述のセパレーターの分離限界で、フラクシオンを流動床（その粒子サイズは、50～300μmの範囲である）に戻すことができる。後者のオーダーの粒子は、ガス流中を上昇し、これは、気泡床の速度と同じかまたはこれよりも低い速度、好ましくは、例えば、1～1.5m/sの範囲の速度を有する。循環床を含むリアクター空間上部には、拡張部分がガス化によって発生するガス流の増加を補償しかつ流れの加速を防止するように、気泡床を含む下方部分の幅よりも大きな幅を与えることができる。

10

【0012】

リアクターに供給された流動材料は、粒状の無機材料であり、これは不活性であっても反応性であってもよく、燃料が形成するような燃焼性生成物ガスを形成しない。

【0013】

本発明によれば、リアクターは、2つの異なる流動粒子サイズが供給され得、それによって、粗い粒子は、リアクターにおいて気泡流動床を形成し、より微細に分割された粒子は、循環床を形成する。添加されるべき流動材料粒子は、例えば、砂からなっているとしてもよく、好ましくは、気泡床と循環床との間で上述の変動範囲になる。任意な選択として、供給材料は、例えば、0.3～1.5mmのオーダーの粗く分割された固体粒子（その材料は砕けやすい）から専らなっているとしてもよく、それによって、その材料は、気泡床において粉砕された後、上昇する気流と合流し、従って、循環床において流動材料を形成する。気泡床および循環床において、継続する固体物質フラクシオンが、形成されたより微細なフラクシオンからさらに得られ、セパレーターから生成物ガス流へと通過し、このフラクシオンは、粘着性のある灰によって生じるガスダクトおよび熱交換器の詰まりを防止するよう働く。石灰は特に適した粉末化流動材料であるが、酸化マグネシウムおよびカオリンもまた使用できる。

20

【0014】

ガスダクトの詰まりを最小限にするために、2つの別個の熱交換器を用いて2つの後続工程において生成物ガスの冷却を提供することがさらに有利であり、第1の工程は、ガスを600～720℃の温度範囲に冷却し、第2の工程は、450℃以下の温度にさらに冷却する。第1の熱交換器は、720～780℃の温度範囲でガスを通過させ、これは、詰まりに関して重要であり、それによって、カルシウムおよび塩素を含む灰成分はそれらの粘着性を失い、従って、より低い温度で操作する第2の熱交換器およびガスフィルターにおける詰まりの危険が除去される。第1の熱交換器には、好ましくは、幅広い寸法が与えられ、それによって、そのガス流量は低く、ガスパイプは垂直に配置してもよく、従って、付着の危険は最小限になる。

30

【0015】

さらに詰まりを回避するための追加の手段は、灰粒子を結合するために、熱交換器において、あるいはその前に、吸着剤（例えば、適切なナトリウム、カリウムまたはカルシウム化合物）を生成物ガス流に供給することである。

40

【0016】

上記方法を実施する本発明のガス化装置は、自体公知のエレメントとして、流動床リアクターと、固体粒子からなる流動材料と、リアクターにおいて上昇するガス流を生成するための供給インレットと、燃料供給インレットと、流動材料をリアクターに導入するための供給インレットと、リアクター上部から始まるガス排気ダクトと、リアクターを離れた生成物ガスから固体材料粒子を分離するためのセパレーターと、分離した粒子をリアクターに戻すための戻りラインとを有する。本発明によれば、当該装置は、粗い流動材料粒子を含む気泡流動床をリアクター中に設けることができ、およびこの気泡流動床の上方に、より微細な流動材料粒子を含む循環床を設けることができ、それによって、セパレーターからリアクターまで戻る粒子のための戻りラインは、気泡流動床の上部レベルにてまたは

50

この上方にて終止するという事実によって特徴付けられる。

【0017】

リアクター空間は、好ましくは、気泡流動床のための下方部分と、流動床のための断面がより幅広い上方部分とを有する。下方部分の直径に対する上方部分の直径の比は、最も適切には1.15～1.5の範囲である。これらの部分は、円錐形に拡張する部分によって間隔を置いて配置されていてもよく、リアクター空間の垂直軸に対するこの円錐角は、鈍角であり、好ましくは、10°未満であり、最も好ましくは7°未満である。この拡張部分は、循環床におけるガス流量が気泡床におけるガス流量を超えることを防止する。

【0018】

リアクター循環床に戻る固体粒子を、ガス流中に残っているより微細な粒子から分離するためのセパレーターは、サイクロンからなる。低い流速（好ましくは15 m/s以下）用に寸法決めされた幅広いサイクロンを使用することができ、このサイクロンは、低い圧力損失（好ましくは、15 mbar未満）を生じる。これによって、循環床からリアクターへの粒子の戻りが容易になり、生成物ガスは、ダストをガスダクトの壁部から掃き出すこと（sweep）ができかつ粘着性のある粘着性灰成分を結合することができる固体粒子を保持するであろう。

【0019】

本発明を、添付の図面を参照して以下により詳細に説明する。この図面は、気泡流動床と上部循環床とを有する本発明のガス化装置を例示する。

【0020】

図面に示すガス化装置は、流動床リアクター1を有し、これは、円筒状下方部分2と、上方円錐形拡張部分3と、円筒状上部4とからなり、この上部4は、下方部分2よりも大きな断面積を有する。リアクター1には、その底部の近傍にグリル5があり、このグリルの下方に、供給インレット6からガス化空気または蒸気が供給される。該下方リアクター部分2では、固定気泡流動床7が上昇する気流によって支持された状態にあり、この流動床は、0.2 mmを超えるサイズ、好ましくは約0.3～1.5 mmの範囲のサイズを有する固体の微細に分割された流動粒子からなる。ガス化されるべき微細に分割された燃料は、バイオマス（例えば、鋸切断物あるいは都市または工業の廃棄物（例えば、プラスチック廃棄物））からなっているとしてもよく、燃料供給インレット8を介してリアクター底部2に供給され、流動床7に入る。燃料は気泡流動床7においてガス化され、それによって、形成したガスは、リアクター空間において上昇するガス流中を通過し、一方、灰9はリアクター底部から除去される。

【0021】

循環床は、流動床リアクター1の円錐形拡張部分3において、および上方円筒形部分4において、ガス流で維持されており、この循環床における流動固体粒子は、下方の気泡流動床7のものよりも小さく、好ましくは50～300 μmのサイズを有する。リアクター空間の円錐形拡張部分3は、好ましくは、空間の断面積が増加するよう寸法決めされており、この増加は、燃料ガス化によって生じるガス量の増加に対応しており、それによって、リアクターのより狭い下方部分2における気泡床における上昇するガス流の速度は、リアクターの上方部分4における循環流動床における速度と同じであり、1～1.5 m/sのオーダーである。これらの操作パラメーターは、ガス化空気および燃料供給によって調整することができ、循環床におけるガス流速が気泡床におけるガス流速よりも低いことさえも考えられる。

【0022】

生成物ガス流は、リアクター空間1の上部からガス排気ダクト10を通過して分離サイクロン11に案内され、この分離サイクロンは、流動粒子を循環流から分離し、ダクト12を通して流動床リアクター1に戻す。戻りダクト12は、図に示すように、気泡流動床7の上端部のレベルにてリアクター空間に合流する。従って、気泡床および循環床は、床間での流動粒子の混合がなく、互いに分離されるであろう。しかし、実施においては、気泡床7の高さは、ある程度変化してもよく、換言すれば、床の上端部は、戻りダクト12の

端部のわずかに上方に絶えず上がっていてもよく、あるいはこの端部のわずかに下方に下がっていてもよい。しかし、リアクター1に戻る循環粒子が、循環床およびサイクロンにおいて生じる圧力損失のみ（気泡床において生じる顕著に大きな圧力損失ではない）をダクト12におけるそれらの重量で補償するということが必須であって、そのような場合、循環粒子は気泡床中に、あるいはその下方に供給されるべきである。

【0023】

図は、プロセスに導入されるべき流動粒子のための2つの供給インレット13、14を示し、それによって、気泡床7のより粗い粒子は、燃料供給インレット8に導入され得、循環床のより微細な粒子は、循環流の戻りインレット12に導入され得る。導入されるべき粒子は、例えば、砂フラクションであってもよく、その粒子径は、気泡床および循環床において異なる。一方、石灰のような砕けやすい流動材料もまた使用することができ、これは、気泡床7において細かく砕かれると、循環床においてより微細に分割された流動粒子を生成する。この場合、流動材料が供給インレット13を通して気泡床7のみに供給されるならば、十分であろう。循環床には、必要に応じて、リアクター空間の上部の近傍にて、その温度を上昇させる第2の空気をインレット15を通して供給することができ、あるいは、その温度を降下させる冷却水または蒸気をインレット16を通して供給することができる。

【0024】

サイクロン11は、リアクター1に戻る循環床の流動粒子を生成物ガス流から分離するという仕事を有し、この生成物ガス流は、ダクト17、18に通されて2つの連続した熱交換器19、20において冷却される。サイクロン11から取り出されてダクト17に入るガス流は、典型的には、800～1000℃のオーダーの温度を有し、流動方向において第1の熱交換器19で600～720℃の温度範囲に冷却される。従って、約720～780℃の温度範囲以下への冷却（これは、このことによって生じる灰粒子の付着および詰まりの点から問題がある）が熱交換器19の配管において生じ、この配管は、適切に垂直方向に位置決めされており、かつ十分に幅広い寸法が与えられており、ここで、ガス流速は低い（例えば、約4m/s）。サイクロン11における粒子分離限界が約50～70μmである場合、10～70μmのサイズの固体粒子が生成物ガス流中に残留しており、これら粒子は、灰を結合することおよび詰まりを防止することに、必須の影響（impact）を有している。さらに、吸着剤（例えば、塩素と反応するカルシウム、ナトリウムまたはカリウム化合物）を、インレット21を通して熱交換器19に供給することができる。必要であれば、冷却水または蒸気を、熱交換器19のガス流に供給することもできる。熱交換器19は、同時に、フライアッシュをアウトレット22へと除去するためのセパレーターとして作用する。

【0025】

流動方向において第2の熱交換器20では、ガス流は450℃以下の温度に冷却される。冷却された生成物ガスはフィルター23へと続き、フィルターの操作温度は200～450℃の範囲であり、このフィルターから最終の精製された生成物ガスがダクト24に排出され、分離された最も微細なダストフラクションは排出アウトレット25へと除去される。

【0026】

本発明の出願は、上記で例として挙げた実施に限定されるものではなく、添付の特許請求の範囲内で変化してもよいことは、当業者に自明である。従って、例えば、循環流のための戻りダクト12は、図面に示すよりも高い地点でリアクター空間に合流し、循環粒子は、リアクターの円錐形に拡張する部分3に供給されるか、あるいはリアクターの上部4にさえも供給されることが考えられる。次いで、気泡床2および循環床は、床の界面で粒子が瞬間的でさえも混合されることなく、互いに完全に独立して作動するであろう。

【0027】

本発明のプロセスの操作性は、約600kWのパイロット設備で確証され、この設備は、家庭のごみから調製したリサイクル燃料に対して、おおよびリサイクル燃料と木材との混

10

20

30

40

50

合物に対して、合計460時間のガス化試験を行った。パイロット装置は、本発明の全ての必須のコンポーネントを有していた。粗い床材料からなる固体流動床は、流動床ガス化炉の底部にて維持され、この固体流動床の上方に、より微細な砂、石灰および灰粒子からなる循環床が維持された。生成物ガスは、幅広く寸法決めされたサイクロンに通され、ここで、インレットパイプ中のガスは15m/s未満の流速を有し、サイクロンによって分離された床材料は、戻りインレットを通過して、ガス化炉の流動床の上方に位置するパイプに戻った。サイクロンと循環ラインとの間の圧力の差は低く、5mbar未満であり、循環は、試験運転の間、高い信頼性で作用し、ガス化試験の間、サイクロン灰のための戻りダクトの詰まりによって起きるいかなる問題（これは、従来の気泡流動床に典型的である）も1度でさえも生じることはなかった。

10

【0028】

サイクロン後、生成物ガスおよび典型的には0~70μmのサイズを有する粒子は、ガスによってサイクロンに混入し、まず最初に第1の熱交換器を通過した。この熱交換器は、垂直熱交換器パイプを含んでおり、上部から底部へとガスが流動した。この熱交換器において、ガスは約550℃の温度に冷却され、この熱交換器は、詰まりの防止の観点から正確に設計されていた。熱交換器の設計、生成物ガスの適切な粒子負荷および適当な温度レベル（600℃以下）のせいで、ガスラインの詰まり（これは、本出願人が従来の気泡流動床および循環流動床ガス化炉を用いて以前に実施した試験において問題を生じた）は完全に回避された。第1の熱交換器後、ガスは、従来の熱交換器ユニットにおいてフィルター操作温度に冷却され、この従来の熱交換器ユニットは、水平熱交換器配管を有していた。ある期間において、燃料に含まれる床石灰およびアルカリ金属の援助によって生じた塩素保持を促進するために、フィルターの前に、微細に分割された水酸化カルシウムを生成物ガスに注入した。フィルターは、セラミックで補強したファイバフィルターを有しており、約500℃の温度に耐えた。フィルターは、約400℃の温度で使用した。

20

【0029】

実施例1および2のリサイクル燃料は、品質の悪いリサイクル燃料物質を表し、専ら家庭のごみ由来のものである。実施では、店舗および商取引からの木材および包装廃棄物は、通常ガス化プラントでも利用可能であり、この廃棄物は、家庭の廃棄物よりも良好な組成品質を有しており、従って、進歩的なガス化プロセスに適している。本発明の実施は例示した燃料に限定されず、その代わりに、本発明は種々の廃棄物および生物燃料を利用してもよく、これら廃棄物および生物燃料は、大量の蒸発物質、および塩素または他の粘着性のある堆積物を発生する物質の存在という共通の特徴を有することは、当業者に自明である。

30

【0030】

実施例1

家庭のごみから調製した切り刻んだリサイクル燃料をガス化するために、パイロット設備を使用した。この燃料は、26%の湿度および以下の乾燥物質の元素組成を有する。C: 50.2%、H: 6.8%、N: 1.1%、S: 0.2%、Cl: 0.70%、O: 26.2%および灰14.8%。燃料を20mm以下の粒子サイズに分解した。ガス化炉における床材料は、砂と石灰石との混合物からなっていた。フィルターの前に、塩素除去吸着剤を生成物ガスダクトに注入しなかった。塩素保持は、燃料プロパー(proper)のアルカリ金属および床カルシウムに基づく。砂の粒子サイズは、下方の床および部分に残存する砂の一部が床の上方で循環流に捕捉されるように、選択した。石灰石が砂と共に床に供給され、焼成され、粉碎され、循環流に取り込まれ、そして最終的に、微細に粉末化された状態で生成物ガスと共にガスダクトに到達した。

40

【0031】

ガス化条件およびその結果を以下の表に示す。ガス化の炭素変換は98%を超え、燃料中の塩素の96.3%が主としてフライダストに保持されていた。水銀を除く全ての重金属は、ガス化炉の灰流において99%を超える分離度で保持されていた。

【0032】

50

実施例 2

家庭のごみから調製したリサイクル燃料の平均湿度が 23 % であり、乾燥物質の元素組成が以下であったこと以外は、実施例 1 と同様にして実施例 2 を行った。C : 49.0 %、H : 6.6 %、N : 1.1 %、S : 0.2 %、Cl : 0.61 %、O : 26.6 % および灰 15.9 %。ガス化炉における床材料は、実施例 1 と同じ混合物からなっていた。塩素保持を促進するために、フィルターの前に、塩素除去吸着剤を生成物ガスダクトに注入した。このガス化も、良好な結果で行え、これは以下の表から明らかである。炭素変換は 98 % を超え、塩素保持度は 96.9 % であり、重金属の分離の効率は 99 % を超えていた。熱交換器とガスダクトとの間の圧力の差は、一定のままであった。

【0033】

10

実施例 1 および 2 のガス化を、200 時間の延長試験運転の一部として実施し、これは、プロセスが信頼性高くかつ効率的に動作したこと、および生成物ガスライン上あるいは熱交換器中に堆積物が形成されなかったことを示した。熱交換器とガスダクトとの間の圧力の差は、2 mbar 以下の圧力において、試験の全体にわたって一定のままであった。

【0034】

実施例 3

実施例 3 では、ガス化炉を全期間で約 80 時間にわたって運転した。この実施例では、燃料は、乾燥木材と家庭のごみから調製したリサイクル燃料との混合物からなっており、ここで、木材の割合は約 30 重量 % であり、リサイクル燃料の割合は約 70 重量 % であり、混合物の平均湿度は 19 % であり、乾燥物質の元素組成は以下の通りであった。C : 49.4 %、H : 6.5 %、N : 0.8 %、S : 0.1 %、Cl : 0.57 %、O : 31.9 % および灰 10.7 %。ガス化炉における床材料は、砂と石灰との混合物からなっていた。生成物ガスダクトには塩素除去吸着剤を注入しなかった。塩素のいかなる測定も重金属のいかなる測定もせず、その代わりに、試験は、木材とリサイクル燃料との混合物を用いたガス化炉の性能の決定に焦点を合わせた。装置の操作は、同様にこの燃料混合物を用いて良好であり、リサイクル燃料と比較して木材のいくぶん低い反応性にもかかわらず、炭素変換は依然として 97.5 % であった。熱交換器またはガスダクトに堆積物は形成されず、圧力損失は一定のままであった。条件および結果を以下の表に示す。

20

【0035】

【表 1 - 1】

表

実施例	1	2	3
燃料	100%REF	100%REF	70%REF +30%木材
燃料湿度、m%	26	23	19
燃料供給、g/s	34.0	34.6	33.0
試験運転の長さ、h	54	29	10
下方の流動床の平均 温度、℃	835	849	858
上方の流動床の平均 温度、℃	868	871	874
第1の熱交換器後の ガス温度、℃	550	560	520
フィルターの操作温 度、℃	420	420	420
ガス化炉床材料、質 量流量、g/s	砂+石灰 4.5	砂+石灰, 5.1	砂+石灰 5.6
塩素除去吸着剤、質 量流量、g/s	—	Ca(OH) ₂ 0.4	—
給気、g/s	64.1	63.9	62.0
蒸気供給、g/s	4.3	4.3	4.9
生成物ガス流、 m ³ n/h	315	320	300
ガス流量、m/s	1.2	1.2	1.3
固体床底部にて ガス化炉上部にて	1.1	1.1	1.0

10

20

30

【0036】

【表 1 - 2】

ガス組成、 体積%			
CO	4.2	4.6	5.9
CO ₂	13.1	13.0	14.2
H ₂	4.8	4.9	6.5
N ₂ (+Ar)	48.6	48.0	45.8
CH ₄	2.9	2.9	3.0
C ₂ - C ₅ H _y	1.7	1.5	1.4
C ₆ H ₆ + タール	0.5	0.5	0.5
H ₂ S	0.02	0.02	nd
COS	0.001	0.001	nd
NH ₃	0.3	0.3	0.3
H ₂ O	23.9	24.1	22.1
生成物ガスの LHV 、MJ/m ³ n	3.9	3.9	4.3
燃料炭素の炭素変換 、重量%	98.4	98.4	97.5
底部の灰の炭素含量 、重量%	<0.5	<0.5	<0.5
フライアッシュの炭 素含量、重量%	6.1	7.9	10.9
物質バランスの品質 (アウトプット/イ ンプット)			
炭素	1.00	1.00	1.00
酸素	0.97	0.98	1.00
灰	1.02	0.97	0.91
塩素保持、燃料塩素 の%	96.3	96.9	nd
フィルター後の生成 物ガスの HCl 含量 、体積 ppm	70	40	nd

nd = 測定せず

【図面の簡単な説明】

【0037】

【図 1】図 1 は、気泡流動床と上部循環床とを有する本発明のガス化装置を例示している。

。

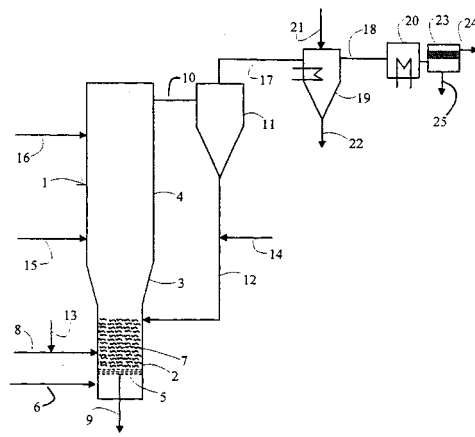
10

20

30

40

【図 1】



フロントページの続き

審査官 服部 智

(56)参考文献 特表昭63-501511 (JP, A)
特開昭63-132995 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C10J 1/00~3/86
B09B 3/00
F23C 10/02