(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2012-144628
(P2012-144628A)
(43)公開日　平成24年8月2日(2012.8.2)

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
C10L 3/10	(2006.01)	C10L 3/00	B	4D012
B01D 53/04	(2006.01)	B01D 53/04	B	

審査請求 未請求　請求項の数 8　OL　（全 19 頁）

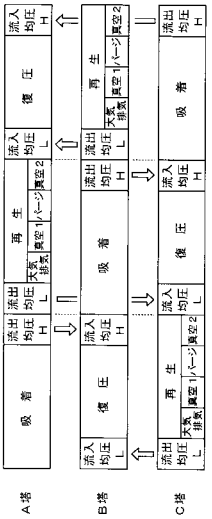
(21)出願番号　特願2011-3511(P2011-3511)
(22)出願日　平成23年1月12日(2011.1.12)

(71)出願人　000126115
エア・ウォーター株式会社
北海道札幌市中央区北３条西１丁目２番地
(74)代理人　100109472
弁理士　森本　直之
(72)発明者　奥村　真也
大阪府堺市西区築港新町２丁６番地４０
エア・ウォーター株式会社堺事業所内
(72)発明者　安田　貴彦
大阪府堺市西区築港新町２丁６番地４０
エア・ウォーター株式会社堺事業所内

Fターム(参考)　4D012 BA02 BA04 CA07 CB18 CD07 CE01 CE02 CF03 CG01 CJ01 CJ03 CJ07

(54)【発明の名称】メタンを主成分とするガスの窒素除去方法および装置

(57)【要約】
【課題】メタンを主成分とするガス中の窒素を除去して再液化の効率化を実現するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法を提供する。
【解決手段】窒素を吸着分離する吸着剤が充填された３以上の吸着塔を準備し、所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程と、上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程と、減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程とを、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去する方法であって、吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施する。
【選択図】図７



【特許請求の範囲】
【請求項１】
メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を準備し、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施することを特徴とするメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項２】
上記第１段階の回収動作と第２段階の回収動作とでは、異なる吸着塔にガスを移動する請求項１記載のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項３】
上記第１段階の回収動作では復圧工程後の吸着塔にガスを移動し、上記第２段階の回収動作では復圧工程前の吸着塔にガスを移動する請求項１または２記載のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項４】
上記復圧工程前の吸着塔に第２の回収動作によるガスの移動を行ない、上記復圧工程後の吸着塔に第１の回収動作によるガスの移動を行なう請求項１～３のいずれか一項に記載のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項５】
上記回収動作では、流出させたガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させる請求項１～４のいずれか一項に記載のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項６】
メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を備え、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着搭によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去装置であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施することを特徴とするメタンを主成分とするガスの窒素除去装置。
【請求項７】
メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を準備し、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔において

は各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、流出させたガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させることを特徴とするメタンを主成分とするガスの窒素除去方法。
【請求項８】
メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を備え、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去装置であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、流出させたガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させることを特徴とするメタンを主成分とするガスの窒素除去装置。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、メタンを主成分とするガス中に不純物として含まれる窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法および装置に関するものである。
【背景技術】
【０００２】
地中から産出されるメタンを主成分とするガスである天然ガスには、様々な不純物（NO_X、SO_X、H_2O、N_2、CO_2等）が含まれている。これらの不純物は、主として沸点差を利用した深冷分離などにより取り除かれ、製品グレードのメタン（CH_4）として精製されて液化され、液化天然ガス（ＬＮＧ）としてＬＮＧ基地間を移送される。
【０００３】
天然ガス中の窒素除去方法としては、上述したように沸点差を利用した深冷分離を用いた方法が一般的である。これは、メタン、窒素、二酸化炭素などが明らかに異なる沸点を持っているため、天然ガスの分離精製方法として極めて適した方法だからである。ところが、このような深冷分離を用いた方法は、大規模操業プラントを対象としており、中小規模の操業には向いていない。
【０００４】
そこで、中小規模プラントでのガス分離には、圧力スイング吸着（Ｐｒｅｓｓｕｒｅ Ｓｗｉｎｇ Ａｄｓｏｒｐｔｉｏｎ；ＰＳＡ）を用いた方法の採用が模索されている。
【０００５】
近年では、メタン純度の高い天然ガスを採掘できるガス田は徐々に減ってきており、純度が低いところや規模の小さなところも利用しなければならなくなってきている。このため、採掘箇所も多岐に渡ってきているうえ、かつてにくらべて中小規模での操業も増えつつあるのが現状である。そこで、中小規模プラントにおける天然ガスのガス分離に対してＰＳＡを適用するニーズが、より高まりを見せている。
【０００６】
一方、ＬＮＧプラントやＬＮＧ基地では、貯蔵タンク内で、外部からの自然入熱などにより気化したガス、すなわちボイルオフガス（ＢＯＧ）が多く発生する。これらのガスには低沸点成分である窒素が多く含まれている。これらのＢＯＧは、余剰ガスを燃焼させて無害化するフレアスタックで処理されるか、工場内の燃料ガスとして利用されるのが一般

的である。ＢＯＧを燃料ガスとして利用する場合、不燃成分である窒素濃度を管理してカロリー調整をする必要があり、窒素濃度が高いときは窒素除去設備を設けて処理しなければならない。

【０００７】

またＢＯＧを、燃焼させるのではなく、再液化して製品ガスとして回収することも検討されている。しかしながら、ＢＯＧを液化するためには、圧縮機で加圧したうえで冷却する必要があり、窒素の沸点がメタンに比べて低いことから、窒素濃度が高いと液化のために要する動力が過大になってしまい、エネルギー効率が悪くなる。

【０００８】

このようなＢＯＧの窒素除去設備としては、規模的に深冷分離は適用できず、ＰＳＡを用いた方法を模索しなければならない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００９】

【特許文献１】特開２０１０－０１３５９４号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【００１０】

天然ガスの脱窒素プロセスでは、分離対象となるガスの分子径の差が微小である。このため、従来、ＰＳＡのような、分子径の違いを利用したガスの吸着分離は困難であるとされていた。最近になって、分子径ではなく、吸着速度の差を利用した吸着剤の開発が進み、例えば分子ふるい炭素（ＭＳＣ）や、バリウムを置換したＥＴＳ－４と呼ばれるゼオライト等の吸着剤が提案されている。これらの吸着剤を使用することにより、天然ガスの脱窒素プロセスに対してＰＳＡを利用することの可能性が、現実味を帯びてきている。

【００１１】

ここで、天然ガスの貯蔵タンク内で気化したボイルオフガス中の窒素除去にＰＳＡを用いること自体は、上記特許文献１に記載されている。しかしながら、上記特許文献１には、ＰＳＡの運転条件について一切の言及が無く、天然ガス中の窒素除去方法として最適なＰＳＡの運転パターンを提供するものではない。上記のような最新の吸着剤を用いたとしても、ある程度のガス分離はできるものの、単純に吸着筒にガスを通過させるだけでは、回収率や窒素濃度の点で十分に満足できる分離性能が得られるものではない。

【００１２】

本発明は、上記のような問題を解決するためになされたものであり、ＰＳＡの運転パターンを最適化することにより、メタンを主成分とするガス中の不純物である窒素を除去し、再液化と製品化の効率を向上させるメタンを主成分とするガスの窒素除去方法および装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【００１３】

上記目的を達成するため、本発明の第１のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法は、メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を準備し、

所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、

上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、

減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、

これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法であって、

吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、

上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低

圧のガスを回収する第２段階とを実施することを要旨とする。
【００１４】
上記目的を達成するため、本発明の第１のメタンを主成分とするガスの窒素除去装置は、メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を備え、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去装置であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施することを要旨とする。
【００１５】
上記目的を達成するため、本発明の第２のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法は、メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を準備し、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去方法であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入することを要旨とする。
【００１６】
上記目的を達成するため、本発明の第２のメタンを主成分とするガスの窒素除去装置は、メタンを主成分とするガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３以上の吸着塔を備え、
所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、
上記吸着圧力よりも減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、
減圧状態の吸着塔を吸着圧力まで復帰させる復圧工程、
これら各工程を、各吸着塔によって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔においては各工程を順次切り替えて実施することにより、メタンを主成分とするガスから窒素を除去するメタンを主成分とするガスの窒素除去装置であって、
吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、
上記回収動作は、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入することを要旨とする。
【発明の効果】
【００１７】
本発明の第１のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法および装置は、吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施する。
回収動作は、ガスを排出する吸着塔とそのガスを導入する吸着塔の圧力を均一化する均

圧により実施する。回収動作を１回の均圧で行うと、均圧後に排出側の吸着塔に残ったガスを廃棄することになる。そこで、回収動作を、比較的高圧のガスを回収する第１段階の均圧動作と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階の均圧動作とにわけて行うようにした。このように均圧動作を２段階で行うことにより、廃棄するガスを少なくして回収できるガス量を増やし、回収率を向上することができる。

【００１８】

本発明において、上記第１段階の回収動作と第２段階の回収動作とでは、異なる吸着塔にガスを移動する場合には、

比較的高圧の第１段階の均圧動作と比較的低圧の第２段階の均圧動作を異なる吸着塔との間で行い、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００１９】

本発明において、上記第１段階の回収動作では復圧工程後の吸着塔にガスを移動し、上記第２段階の回収動作では復圧工程前の吸着塔にガスを移動する場合には、

復圧工程後の比較的高圧の第１段階の均圧動作と、復圧工程前の比較的低圧の第２段階の均圧動作と、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００２０】

本発明において、上記復圧工程前の吸着塔に第２の回収動作によるガスの移動を行ない、上記復圧工程後の吸着塔に第１の回収動作によるガスの移動を行なう場合には、

復圧工程後の比較的高圧の第１段階の均圧動作と、復圧工程前の比較的低圧の第２段階の均圧動作と、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００２１】

本発明において、上記回収動作では、流出させたガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させる場合には、

上記第２段階の回収動作では、窒素分の濃度が高い残留ガスが流出される傾向にあることから、そのガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させて吸着剤と接触させることにより窒素分を吸着し、窒素除去率を向上させることができる。

【００２２】

本発明の第２のメタンを主成分とするガスの窒素除去方法および装置は、吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔から排出されるガスを、復圧段階の吸着塔に導入する回収動作を実施し、上記回収動作は、流出させたガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させる。

上記回収動作では、窒素分の濃度の高い残留ガスが流出される傾向にあることから、そのガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に流入させて吸着剤と接触させることにより窒素分を吸着し、窒素除去率を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【００２３】

【図１】従来の窒素除去装置の全体構成を示す図である。

【図２】上記従来例における運転工程を説明する図である。

【図３】上記従来例における運転工程を説明する図である。

【図４】第１実施形態を実施するための窒素除去装置の全体構成を示す図である。

【図５】上記窒素除去装置を用いた運転工程の一例を説明する図である。

【図６】上記窒素除去装置を用いた運転工程の一例を説明する図である。

【図７】第１実施形態の窒素除去方法の運転工程を説明する図である。

【図８】第１実施形態の作用を説明するための図である。

【図９】第１実施形態の窒素除去方法の運転工程を説明する図である。

【図１０】第２実施形態を実施するための窒素除去装置の全体構成を示す図である。

【図１１】第２実施形態の窒素除去方法の運転工程を説明する図である。

【図１２】第２実施形態の窒素除去方法の運転工程を説明する図である。
【図１３】第３実施形態の窒素除去方法の運転工程を説明する図である。
【発明を実施するための形態】
【００２４】
つぎに、本発明を実施するための形態を説明する。
【００２５】
図１は、本発明の前提となるメタンを主成分とするガスの窒素除去装置を説明する図である。この例は、メタンを主成分とするガスとして天然ガスを適用した例である。特に、天然ガスの貯蔵タンクで気化したボイルオフガスを好適に適用することができる。
【００２６】
この例では、天然ガスから窒素を吸着分離するための吸着剤が充填された３つの吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃを備えている。上記各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃには、塔下部から原料ガス（この例では天然ガス）が導入され、内部の吸着剤に窒素ガスを吸着させ、窒素濃度を低下させたガスが製品ガスとして塔上部から取り出される。
【００２７】
上記各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃに充填される吸着剤としては、例えば、吸着速度の差によってメタンと窒素を分離する速度分離を行う吸着剤や、吸着量の差によってメタンと窒素を分離する平衡分離を行う吸着剤を好適に用いることができる。具体的には、速度分離の吸着剤として分子ふるい炭素（ＭＳＣ）等を、平衡分離の吸着剤としてバリウムを置換したＥＴＳ－４と呼ばれるゼオライト等を使用することができる。
【００２８】
各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの下部には、原料ガスを導入するための原料導入路１Ａ，１Ｂ，１Ｃが連通している。また、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの下部には、吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃ内のガスを大気排気するための大気排気路２Ａ，２Ｂ，２Ｃが連通している。
【００２９】
一方、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部には、製品ガスを取り出すための製品取出路３Ａ，３Ｂ，３Ｃが連通している。また、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部には、上記製品取出路３Ａ，３Ｂ，３Ｃから取り出した製品ガスを減圧状態の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃ内に還流させて復圧するための復圧路４Ａ，４Ｂ，４Ｃが連通している。また、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部には、上記製品取出路３Ａ，３Ｂ，３Ｃから取り出した製品ガスを吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃ内に還流させてパージするためのパージ路５Ａ，５Ｂ，５Ｃが連通している。さらに、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部には、吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部同士を連通させることにより、高圧側から低圧側にガスを移して均圧する均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃが連通している。符号７は、製品ガスを一時的に貯留するバッファタンク７である。
【００３０】
上記原料導入路１Ａ，１Ｂ，１Ｃ、大気排気路２Ａ，２Ｂ，２Ｃ、製品取出路３Ａ，３Ｂ，３Ｃ、復圧路４Ａ，４Ｂ，４Ｃ、パージ路５Ａ，５Ｂ，５Ｃ、均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃには、それぞれ図示しない開閉弁が設けられており、各開閉弁の開閉制御によって各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃへのガスの導出と排出を制御する。
【００３１】
上記各開閉弁の開閉制御により、大気圧を超える所定の吸着圧力に加圧した状態で窒素を吸着剤に吸着させる吸着工程、上記吸着圧力より低い大気圧に減圧した状態で吸着剤から窒素を脱離させて再生する再生工程、減圧状態の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃを吸着圧力まで復帰させる復圧工程を制御する。また、これら各工程を、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃによって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃにおいては各工程を順次切り替えて実施することにより、連続的に天然ガスから窒素を除去するようになっている。
【００３２】
さらに、上記各開閉弁の開閉制御により、吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃから排出されるガスを、復圧段階の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃに導入する回収動作を実施するようになっている。この回収動作は、均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃを通し

て２つの吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃを連通することにより行う。
【００３３】
図２は、図１の装置を用いて行う窒素ガス除去方法の工程を説明する図である。
【００３４】
吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃそれぞれにおいて、吸着工程→再生工程→復圧工程を実行する。吸着工程では、塔の下部に導入された原料ガスを大気圧を超える所定の吸着圧力で吸着剤と接触させ、窒素を吸着剤に吸着させて窒素を除去し、メタンの純度を上げて精製する。再生工程では、吸着工程後の塔内から残留ガスを排出して上記吸着圧力より低い大気圧に減圧し、製品ガスを流してパージすることにより、吸着剤から窒素を脱離させて再生する。復圧工程では、再生工程後の塔内に、再び原料ガスを導入して吸着圧力まで復帰させる。
【００３５】
Ａ塔で吸着工程を行う間、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程を行う。ついで、Ａ塔で再生工程を行う間、Ｂ塔では吸着工程、Ｃ塔で復圧工程を行う。つぎに、Ａ塔で復圧工程を行う間、Ｂ塔では再生工程、Ｃ塔で吸着工程を行う。このサイクルと切り替えを繰り返すことにより、吸着工程、再生工程、復圧工程を、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃによって並行して実施しながら、それぞれの吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃにおいて各工程を順次切り替えて実施し、連続的に製品ガスを得るようになっている。
【００３６】
このとき、吸着工程から再生工程に移行するときの減圧段階で吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃから排出されるガスを、復圧段階の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃに導入する回収動作を実施する。具体的には、吸着工程後で再生工程前の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃと、再生工程後で復圧工程前の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃとを、均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃを介して連通させる。これにより、吸着工程後で再生工程前の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃ（吸着圧力であり比較的高圧である）の塔内ガスを、再生工程後で復圧工程前の吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃ（再生圧力であり比較的低圧である）に移動させて回収するのである。
【００３７】
図３は、図１の装置により図２の工程を実施する際のガスの流れを説明する図である。
【００３８】
図３（Ａ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔およびＣ塔で回収動作である均圧動作を行っている状態を示す。Ａ塔では、原料導入路１Ａから塔下部に原料ガスが導入され、製品取出路３Ａにより塔上部から製品ガスが取り出される。Ｂ塔およびＣ塔では、それぞれの塔上部の均圧路６Ｂ，６Ｃ同士が連通する。これにより、それまで吸着工程を実施して比較的高圧の吸着圧力であったＣ塔から、それまで再生工程を実施して比較的低圧の再生圧力であったＢ塔にガスを移動させて回収する。この動作により、Ｂ塔とＣ塔は均圧化される。図ではこの動作について、Ｃ塔を「流出均圧」、Ｂ塔を「流入均圧」と記載している。
【００３９】
図３（Ｂ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの大気排気動作を行っている状態を示す。Ａ塔の状態は上述した説明と同様である。Ｂ塔では、再生工程後にガスの流入で均圧されたところへ、復圧路４Ｂにより塔上部へ製品ガスを送り込み、塔内圧力を吸着圧力まで上昇させる。Ｃ塔では、吸着工程後に塔内ガスの流出で均圧された後、大気排気路２Ｃにより塔下部から塔内ガスをさらに排出して大気圧まで減圧する。
【００４０】
図３（Ｃ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちのパージ動作を行っている状態を示す。Ａ塔およびＢ塔の状態は上述した説明と同様である。Ｃ塔では、大気排気後、パージ路５Ｃにより塔上部へ製品ガスをパージガスとして送り込みながら、大気排気路２Ｃにより塔下部からパージガスを排出する、このような大気圧でのパージを行うことにより、吸着剤に吸着された窒素を脱離させる。
【００４１】
図４は、第１実施形態の前提となる天然ガスの窒素除去装置を説明する図である。

【００４２】
基本的には図１に示す装置と同様であり、同様の部分には同じ符号を付している。この装置では、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの下部に、真空ポンプ９により塔内を真空排気するための真空排気路８Ａ，８Ｂ，８Ｃが連通している。これにより、再生工程において、大気排気に加えて真空排気を行い、大気圧でのパージでなく真空排気しながらの減圧パージを行ないうるようになっている。
【００４３】
図５は、図４の装置を用いて行う窒素ガス除去方法の工程を説明する図である。
【００４４】
基本的には図２に示す工程と同様であるが、再生工程の動作を、大気排気→真空排気１→パージ→真空排気２としている。
【００４５】
図６は、図４の装置により図５の工程を実施する際のガスの流れを説明する図である。
【００４６】
図６（Ａ）（Ｂ）は、図３（Ａ）（Ｂ）と同様であるので、重複する説明は一部省略した。
図６（Ａ）は、図３（Ａ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔およびＣ塔で回収動作である均圧動作を行っている状態を示す。
図６（Ｂ）は、図３（Ｂ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの大気排気動作を行っている状態を示す。
【００４７】
図６（Ｃ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気１動作を行っている状態を示す。Ａ塔およびＢ塔の状態は上述した説明と同様である。Ｃ塔では、大気排気後、真空排気路８Ｃにより塔下部から塔内ガスをさらに真空ポンプで排出して減圧する。
【００４８】
図６（Ｄ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの減圧パージ動作を行っている状態を示す。Ａ塔およびＢ塔の状態は上述した説明と同様である。Ｃ塔では、真空排気１後、真空排気路８Ｃにより塔下部から塔内ガスをさらに真空ポンプで排出して減圧しながら、塔上部へ製品ガスをパージガスとして送り込み、減圧パージを行うことにより、吸着剤に吸着された窒素を脱離させる。
【００４９】
図６（Ｅ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気２動作を行っている状態を示す。Ａ塔およびＢ塔の状態は上述した説明と同様である。Ｃ塔では、減圧パージ後、塔上部へのパージガスの導入を停止して、真空排気路８Ｃにより塔下部から塔内ガスをさらに真空ポンプで排出する。
【００５０】
＜第１実施形態＞
図７は、本発明の第１実施形態の窒素ガス除去方法の工程を説明する図である。この第１実施形態の方法は、図４に示した装置とほぼ同様の装置において、開閉弁を開閉制御することにより実現することができる。
【００５１】
この実施形態は、基本的には図５に示す工程と同様であるが、回収動作を、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施するようにしている。
【００５２】
２段階の回収動作について、例えばＡ塔を例にとってより詳しく説明する。
【００５３】
Ａ塔の塔内ガスを他の吸着塔Ｂ，Ｃに移す回収動作を説明する。この場合、Ａ塔の吸着工程と再生工程の間に、Ａ塔の塔内ガスを他の吸着塔Ｂ，Ｃに流出させる（図では流出均

圧と記している）。この流出均圧動作は、Ａ塔の吸着工程直後の比較的高圧のガスを復圧工程後の吸着塔（この例ではＢ塔である）に移して回収する第１段階（図では流出均圧Ｈと表示している）と、上記第１段階でのガス流出により少し低圧になったＡ塔の塔内ガスを復圧工程前の吸着塔（この例ではＣ塔である）に移して回収する第２段階（図では流出均圧Ｌと表示している）との２段階を行う。

【００５４】

Ａ塔において他の吸着塔Ｂ，Ｃの塔内ガスを受け入れる回収動作を説明する。Ａ塔の再生工程終了後、復圧工程の段階で、他の吸着塔Ｂ，Ｃから塔内ガスを流入させる（図では流入均圧と記している）。この流入均圧動作は、Ａ塔の復圧工程前、再生工程で真空排気されて低圧状態のところに、上述した第２段階の比較的低圧の塔内ガスをこの例ではＢ塔から移して回収する（図では流入均圧Ｌと表示している）。また、Ａ塔の復圧工程後、ある程度の高圧まで復圧されたところに、上述した第１段階の比較的高圧の塔内ガスをこの例ではＣ塔から移して回収する（図では流入均圧Ｈと表示している）。

【００５５】

図８は、１段階で行う回収動作（１段回収）と２段階で行う回収動作（２段回収）において、塔内ガスを流出する吸着塔（この例ではＡ塔）の塔内圧力の変化と動作との関係を表した図である。

【００５６】

まず、１段回収の場合（図５で説明した工程である）を説明する。

【００５７】

回収動作（流出均圧）は、吸着工程後の吸着圧力の吸着塔（この例ではＡ塔）と、復圧工程前の再生工程で真空排気された真空排気圧力の吸着塔（この例ではＣ塔）を、均圧路６Ａ，６Ｃにより連通して均圧化する。この均圧化により、吸着圧力を保っていたＡ塔の塔内ガスを真空排気圧力のＣ塔に移動させて回収する。このとき、吸着圧力であったＡ塔の塔内圧力は、Ａ塔の吸着圧力とＣ塔の真空排気圧力との平均圧力まで降下する。その後Ａ塔では、再生工程の大気排気および真空排気１により、塔内の残留ガスが排出される。ここで排出された残留ガスが廃棄されることになる。

【００５８】

つぎに、２段回収の場合（図７で説明した工程である）を説明する。

【００５９】

第１段階の回収動作（流出均圧Ｈ）は、吸着工程後の吸着圧力の吸着塔（この例ではＡ塔）と、復圧工程により吸着圧力近くまで圧力を戻した吸着塔（この例ではＢ塔）を、均圧路６Ａ，６Ｂにより連通して均圧化する。この均圧化により、吸着圧力を保っていたＡ塔の塔内ガスをある程度復圧されたＢ塔に移動させて回収する。このとき、吸着圧力であったＡ塔の塔内圧力は、Ａ塔の吸着圧力とＢ塔の圧力との平均圧力まで降下する。降下の程度は上述した１段回収での均圧のときよりも小さい。

【００６０】

第２段階の回収動作（流出均圧Ｌ）は、上記第１段階の均圧が行なわれた後の吸着塔（この例ではＡ塔）と、復圧工程前の再生工程で真空排気された真空排気圧力の吸着塔（この例ではＣ塔）を、均圧路６Ａ，６Ｃにより連通して均圧化する。この均圧化により、第１段階での均圧圧力まで降下したＡ塔の塔内ガスを、真空排気圧力のＣ塔に移動させて回収する。このとき、Ａ塔の塔内圧力は、第１段階での均圧圧力とＣ塔の真空排気圧力との平均圧力まで降下する。このとき、第１段階（流出均圧Ｈ）で一旦低下した圧力と真空排気圧力との平均圧力まで下がるので、上述した１段階回収における均圧圧力よりも低い圧力まで降下させることができる。その後Ａ塔では、再生工程の大気排気および真空排気１により、塔内の残留ガスが排出され廃棄されるが、回収動作を終了したときの到達圧力が１段回収のときよりも低くなるため、廃棄するガスを少なくすることができる。

【００６１】

このように、上記回収動作は、吸着後の比較的高圧のガスを回収する第１段階と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階とを実施する。

回収動作は、ガスを排出する吸着塔（この例ではＢ塔，Ｃ塔）とそのガスを導入する吸着塔（この例ではＡ塔）の圧力を均一化する均圧により実施する。回収動作を１回の均圧で行うと、均圧後に排出側の吸着塔（この例ではＢ塔，Ｃ塔）に残ったガスを廃棄することになる。そこで、回収動作を、比較的高圧のガスを回収する第１段階の均圧動作と、その後の比較的低圧のガスを回収する第２段階の均圧動作とにわけて行うようにした。このように均圧動作を２段階で行うことにより、廃棄するガスを少なくして回収できるガス量を増やし、回収率を向上することができる。

【００６２】

このように、Ａ塔に着目すると、上記第１段階の回収動作と第２段階の回収動作とでは、異なる吸着塔Ｂ，Ｃに対してガスを移動する。

これにより、比較的高圧の第１段階の均圧動作と比較的低圧の第２段階の均圧動作を異なる吸着塔との間で行い、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００６３】

このとき、Ａ塔に着目すると、上記第１段階の回収動作では復圧工程後の吸着塔（この例ではＢ塔）にガスを移動し、上記第２段階の回収動作では復圧工程前の吸着塔（この例ではＣ塔）にガスを移動する。

これにより、復圧工程後の比較的高圧の第１段階の均圧動作と、復圧工程前の比較的低圧の第２段階の均圧動作と、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００６４】

さらに、Ｂ塔およびＣ塔に着目すると、上記復圧工程前の吸着塔（この例ではＡ塔）にＢ塔における第２の回収動作によるガスの移動を行ない、上記復圧工程後の吸着塔（この例ではＡ塔）にＣ塔における第１の回収動作によるガスの移動を行なう。

これにより、復圧工程後の比較的高圧の第１段階の均圧動作と、復圧工程前の比較的低圧の第２段階の均圧動作と、２段階の均圧動作によって廃棄するガスを少なくして回収できるガス量が増え、回収率を向上することができる。

【００６５】

図９は、図４の装置により図７の工程を実施する際のガスの流れを説明する図である。

【００６６】

図９（Ａ）は、図３（Ａ）図６（Ａ）と基本的に同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔およびＣ塔で回収動作である均圧動作を行っている状態を示す。この均圧動作は、均圧路６Ｂ，６ＣによりＢ塔とＣ塔を連通させ、Ｃ塔の塔内ガスをＢ塔に移動させて均圧化するもので、上述した流出均圧Ｌおよび流入均圧Ｌに相当する（図７参照）。

【００６７】

図９（Ｂ）～（Ｅ）は、図６（Ｂ）～（Ｅ）と同様であるので、重複する説明は一部省略した。

図９（Ｂ）は、図３（Ｂ）図６（Ｂ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの大気排気動作を行っている状態を示す。

図９（Ｃ）は、図６（Ｃ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気１動作を行っている状態を示す。

図９（Ｄ）は、図６（Ｄ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの減圧パージ動作を行っている状態を示す。

図９（Ｅ）は、図６（Ｅ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気２動作を行っている状態を示す。

【００６８】

図９（Ｆ）は、Ａ塔およびＢ塔で回収動作である均圧動作を行い、Ｃ塔で真空排気２を行っている状態を示す。ここでの均圧動作は、均圧路６Ａ，６ＢによりＡ塔とＢ塔を連通させ、Ａ塔の塔内ガスをＢ塔に移動させて均圧化するもので、上述した流出均圧Ｈおよび流入均圧Ｈに相当する（図７参照）。

【００６９】
＜第２実施形態＞
図１０は、本発明の第２実施形態の窒素ガス除去方法を実現するための窒素除去装置を説明する図である。
【００７０】
基本的には図１および図４に示す装置と同様であり、同様の部分には同じ符号を付している。この装置では、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの上部に設けられた均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃと、各吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの下部である原料ガスの原料ガス導入側とを連通させる連通路１０が設けられている。
【００７１】
上記第１実施形態では、第２段階の回収動作を、吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの製品ガス排出側同士を均圧路６Ａ，６Ｂ，６Ｃで連通して均圧させている。これに対し、第２実施形態では、第２段階の回収動作を、吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの製品ガス排出側と、吸着塔Ａ，Ｂ，Ｃの原料ガスの導入側とを連通させて均圧するようにしている。これにより、第２実施形態では、上記回収動作は、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入するようになっている。
【００７２】
図１１は、第２実施形態の窒素ガス除去方法の工程を説明する図である。この第２実施形態の方法は、図１０に示した装置において、開閉弁を開閉制御することにより実現することができる。
【００７３】
この実施形態は、基本的には図７に示す工程と同様であるが、上記第２段階の回収動作では、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入する。すなわち、流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈと、流出均圧Ｌ／流入均圧Ｌとの２段階で行う回収動作のうち、第２段階の回収動作である流出均圧Ｌ／流入均圧Ｌの動作を、塔内ガス流出側の吸着塔の製品ガス排出側と、塔内ガス流入側の吸着塔の原料ガス導入側とを連通させて均圧させる。このときの均圧では、塔内ガス流出側の吸着塔の製品ガス排出側から、塔内ガス流入側の吸着塔の原料ガス導入側へガスが移動する。
【００７４】
この動作について、例えばＡ塔を例にとってより詳しく説明する。
【００７５】
Ａ塔の塔内ガスを他の吸着塔Ｂ，Ｃに移す回収動作を説明する。この場合、第１段階の流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈの回収動作は、図７での説明と同様である。上記第１段階でのガス流出により少し低圧になったＡ塔の塔内ガスを、復圧工程前の吸着塔（この例ではＣ塔である）に移して回収する第２段階（図では流出均圧Ｌと表示している）を行う。このとき、連通路１０を介してＡ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ｃ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ａ塔の塔内ガスをＡ塔の上部から流出させてＣ塔の下部へ導入する。
【００７６】
Ａ塔において他の吸着塔Ｂ，Ｃの塔内ガスを受け入れる回収動作を説明する。Ａ塔の再生工程終了後、復圧工程の段階で、他の吸着塔Ｂ，Ｃから塔内ガスを流入させる（図では流入均圧と記している）。この流入均圧動作は、Ａ塔の復圧工程前、再生工程で真空排気されて低圧状態のところに、上述した第２段階の比較的低圧の塔内ガスをこの例ではＢ塔から移して回収する（図では流入均圧Ｌと表示している）。このとき、連通路１０を介してＢ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ａ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ｂ塔の塔内ガスをＢ塔の上部から流出させてＡ塔の下部へ導入する。その後、復圧工程後の流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈの回収動作は、図７での説明と同様である。
【００７７】
上記第２段階の回収動作では、窒素分の濃度が高い残留ガスが排出される傾向にある。すなわち、吸着塔内部のガス組成は、原料ガス導入側の方がより窒素濃度が高く、製品ガス排出側の方がより窒素濃度が低くなっている。このため、２段階の回収動作のうち、１

回目の流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈでは、製品ガス排出側の窒素濃度が比較的低い塔内ガスを回収することができる。ところが、２回目の流出均圧Ｌ／流入均圧Ｌでは、原料ガス導入側の窒素濃度が比較的高い塔内ガスが流出することになる。そこで、この窒素濃度が比較的高い塔内ガスを、他の吸着塔の原料ガス導入側に回収して吸着剤と接触させることにより窒素分を吸着し、窒素除去率を向上させることができるのである。

【００７８】

このように、第２実施形態では、上記第２段階の回収動作で、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入するため、上記第２段階の回収動作では、窒素分の濃度が高い残留ガスが排出される傾向にあることから、その排出ガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入して吸着剤と接触させることにより窒素分を吸着し、窒素除去率を向上させることができる。それ以外は、第１実施形態と同様の作用効果を奏する。

【００７９】

図１２は、図１０の装置により図１１の工程を実施する際のガスの流れを説明する図である。

【００８０】

図１２（Ａ）は、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔およびＣ塔で回収動作である均圧動作を行っている状態を示す。ここでの均圧動作は、均圧路６Ｃおよび連通路１０によりＢ塔とＣ塔を連通させ、Ｃ塔の塔内ガスを上部から取り出し、Ｂ塔の下部に移動させて均圧化するもので、上述した流出均圧Ｌおよび流入均圧Ｌに相当する（図１１参照）。

【００８１】

図１２（Ｂ）～（Ｆ）は、図９（Ｂ）～（Ｆ）と同様であるので、重複する説明は一部省略した。

図１２（Ｂ）は、図９（Ｂ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの大気排気動作を行っている状態を示す。

図１２（Ｃ）は、図９（Ｃ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気１動作を行っている状態を示す。

図１２（Ｄ）は、図９（Ｄ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの減圧パージ動作を行っている状態を示す。

図１２（Ｅ）は、図９（Ｅ）と同様であり、Ａ塔で吸着工程、Ｂ塔で復圧工程、Ｃ塔で再生工程のうちの真空排気２動作を行っている状態を示す。

図１２（Ｆ）は、図９（Ｆ）と同様であり、Ａ塔およびＢ塔で回収動作である均圧動作を行い、Ｃ塔で真空排気２を行っている状態を示す。

【００８２】

＜第３実施形態＞

図１３は、第３実施形態の窒素ガス除去方法の工程を説明する図である。この第３実施形態の方法は、図１０に示した装置において、開閉弁を開閉制御することにより実現することができる。

【００８３】

この実施形態は、基本的には図１１に示す工程と同様であるが、上記第２段階の回収動作において、それぞれ排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入する。すなわち、流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈと、流出均圧Ｌ／流入均圧Ｌとの２段階で行う回収動作の双方を、塔内ガス流出側の吸着塔の製品ガス排出側と、塔内ガス流入側の吸着塔の原料ガス導入側とを連通させて均圧させる。このときの均圧では、塔内ガス流出側の吸着塔の製品ガス排出側から、塔内ガス流入側の吸着塔の原料ガス導入側へガスが移動する。

【００８４】

この動作について、例えばＡ塔を例にとってより詳しく説明する。

【００８５】

Ａ塔の塔内ガスを他の吸着塔Ｂ，Ｃに移す回収動作を説明する。第１段階の流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈの回収動作の際、連通路１０を介してＡ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ｂ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ａ塔の塔内ガスをＡ塔の上部から流出させてＢ

塔の下部へ導入する。つぎに、上記第１段階でのガス流出により少し低圧になったＡ塔の塔内ガスを、復圧工程前の吸着塔（この例ではＣ塔である）に移して回収する第２段階（図では流出均圧Ｌと表示している）を行う。このとき、連通路１０を介してＡ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ｃ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ａ塔の塔内ガスをＡ塔の上部から流出させてＣ塔の下部へ導入する。

【００８６】

Ａ塔において他の吸着塔Ｂ，Ｃの塔内ガスを受け入れる回収動作を説明する。Ａ塔の再生工程終了後、復圧工程の段階で、他の吸着塔Ｂ，Ｃから塔内ガスを流入させる（図では流入均圧と記している）。この流入均圧動作は、Ａ塔の復圧工程前、再生工程で真空排気されて低圧状態のところに、上述した第２段階の比較的低圧の塔内ガスをこの例ではＢ塔から移して回収する（図では流入均圧Ｌと表示している）。このとき、連通路１０を介してＢ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ａ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ｂ塔の塔内ガスをＢ塔の上部から流出させてＡ塔の下部へ導入する。その後、復圧工程後の流出均圧Ｈ／流入均圧Ｈの回収動作の際、連通路１０を介してＣ塔の上部（製品ガス排出側）と、Ａ塔の下部（原料ガス導入側）を連通させ、Ｃ塔の塔内ガスをＣ塔の上部から流出させてＡ塔の下部へ導入する。

【００８７】

このように、第３実施形態では、上記回収動作で、排出したガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入するため、上記第２段階の回収動作では、窒素分の濃度が高い残留ガスが排出される傾向にあることから、その排出ガスを他の吸着塔の原料ガス導入側に導入して吸着剤と接触させることにより窒素分を吸着し、窒素除去率を向上させることができる。それ以外は、第１実施形態と同様の作用効果を奏する。

【００８８】

つぎに、実験例および実施例を説明する。

【実験例１】

【００８９】

図１に示す装置により、図２および図３で説明した大気圧再生プロセスを実施した。吸着剤は、モレキュラーシービングカーボン（分子ふるい炭素）を用いた。CH_4の回収率と、製品ガス中のN_2濃度を測定した。

その結果、CH_4の回収率は６５．０８％、製品ガス中のN_2濃度は２．９９０ｍｏｌ％であった。

【実験例２】

【００９０】

図４に示す装置により、図５および図６で説明した真空再生プロセスを実施した。吸着剤は同じものを用いた。

その結果、CH_4の回収率は６１．６１％、製品ガス中のN_2濃度は１．０５１ｍｏｌ％となった。

再生圧力を低下させたことにより、吸着剤の再生状態が向上し、実験例１に比べると分離性能が向上した。

【実施例１】

【００９１】

図４に示す装置により、図７および図９で説明した２段階回収プロセスを実施した。吸着剤は同じものを用いた。

その結果、CH_4の回収率は６０．０６％、製品ガス中のN_2濃度は１．２９２ｍｏｌ％となった。

実験例１に比べると分離性能が向上している。実験例２よりも製品ガス中の窒素濃度が低下している理由は、均圧動作を二回に分けて実施したため、その分回収ガス量が増加したことによるものである。

【実施例２】

【００９２】

図１０に示す装置により、図１１および図１２で説明した回収プロセスを実施した。吸着剤は同じものを用いた。

その結果、CH_4の回収率は６１．６１％、製品ガス中のN_2濃度は０．８７９ｍｏｌ％となった。

実験例１および２に比べ、製品ガス中の窒素濃度が低下している。

【実施例３】

【００９３】

図１０に示す装置により、図１３で説明した回収プロセスを実施した。吸着剤は同じものを用いた。

その結果、CH_4の回収率は６１．０５％、製品ガス中のN_2濃度は０．９７８ｍｏｌ％となった。

実験例１および２に比べ、製品ガス中の窒素濃度が低下している。

【００９４】

CH_4の回収率と製品ガス中のN_2濃度については、実用性を考慮してCH_4の回収率を６０.０％以上とし、製品ガス中のN_2濃度を１．０ｍｏｌ％未満とすることを目標とし、実施例２および実施例３において当該目標値を達成できた。

【００９５】

なお、上述した説明は、本発明を３つの吸着塔で行った例を示したが、これに限定するものではなく、４つ以上の吸着塔で行うようにしてもよい。

【００９６】

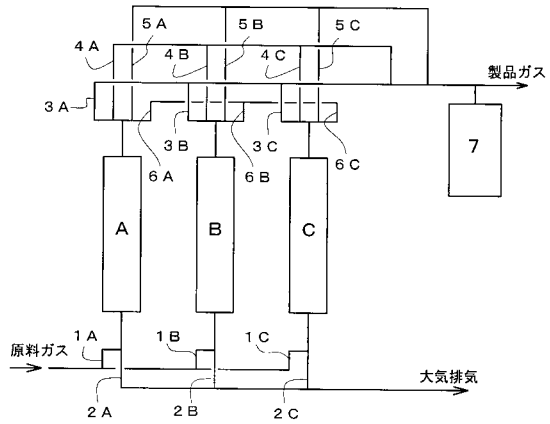
また、上記実施形態では、メタンを主成分とするガスが天然ガスである例を説明したが、本発明が適用される分野はこれに限定するものではない。メタンを主成分とするガスとして、例えば油田・ガス田以外から生産される天然ガスであるタイトサンドガス、炭層メタン、シェールガスや、バイオ系ガスである家畜由来のバイオガス、食品残渣由来のバイオガス等、各種のメタンを主成分とするガスから窒素分を除去することに適用することができる。

【符号の説明】

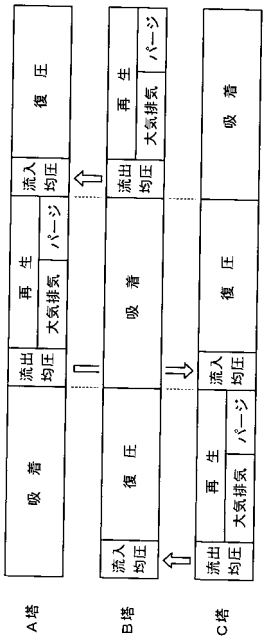
【００９７】

Ａ，Ｂ，Ｃ　吸着塔
１Ａ，１Ｂ，１Ｃ　原料導入路
２Ａ，２Ｂ，２Ｃ　大気排気路
３Ａ，３Ｂ，３Ｃ　製品取出路
４Ａ，４Ｂ，４Ｃ　復圧路
５Ａ，５Ｂ，５Ｃ　パージ路
６Ａ，６Ｂ，６Ｃ　均圧路
７　バッファタンク
８Ａ，８Ｂ，８Ｃ　真空排気路
９　真空ポンプ
１０　連通路

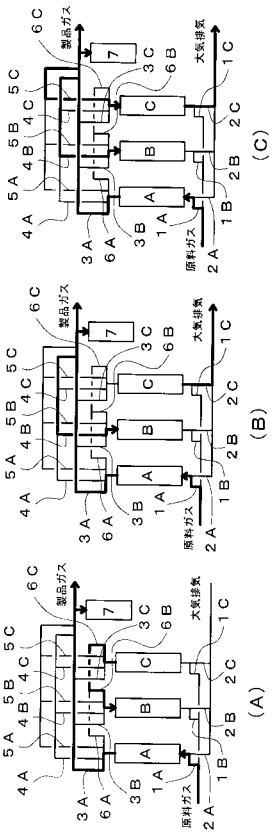
【図１】


5A
5B
5C
4A
4B
4C
製品ガス
3A
3B
3C
6A
6B
6C
7
A
B
C
原料ガス
1A
1B
1C
大気排気
2A
2B
2C

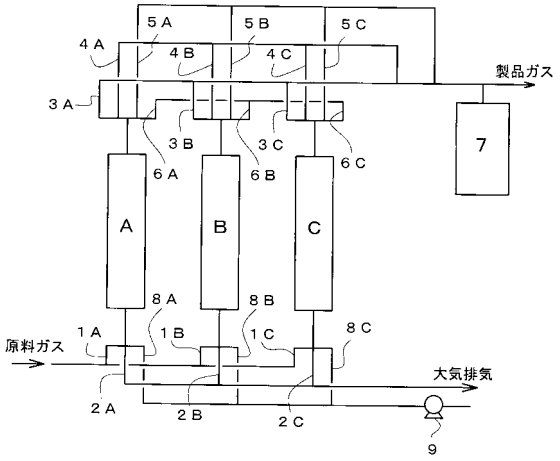
【図２】


吸着
復圧
流入均圧
再生
大気排気
パージ
流出均圧
A塔
B塔
C塔

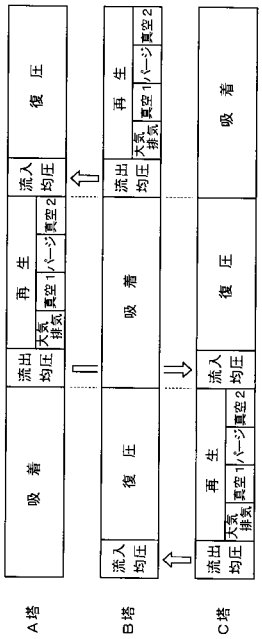
【図３】


(C)
(B)
(A)
製品ガス
大気排気
原料ガス

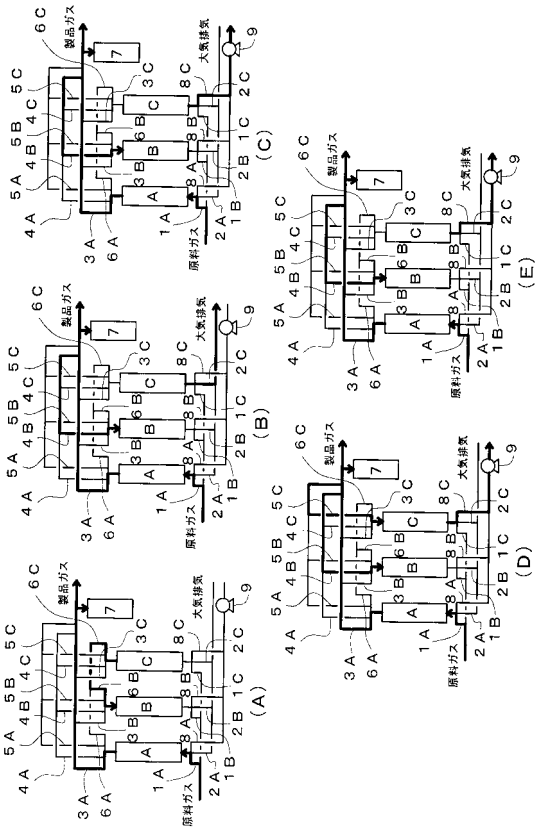
【図４】


5A
5B
5C
4A
4B
4C
製品ガス
3A
3B
3C
6A
6B
6C
7
A
B
C
8A
8B
8C
原料ガス
1A
1B
1C
大気排気
2A
2B
2C
9

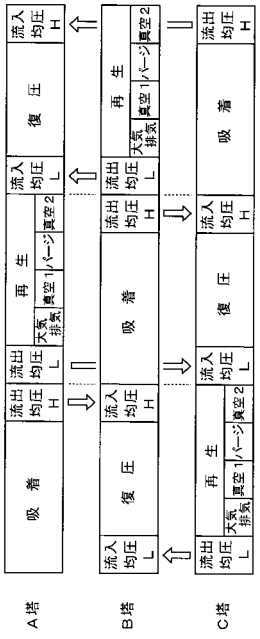
【図５】


吸着
流出均圧
再生
大気排気
真空1
パージ
真空2
流入均圧
復圧
A塔
B塔
C塔

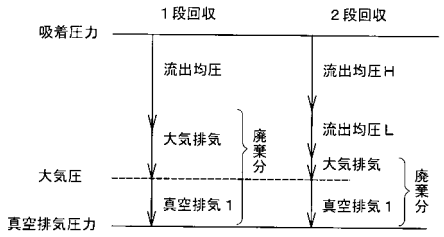
【図６】


製品ガス
大気排気
原料ガス
(A)
(B)
(C)
(D)
(E)

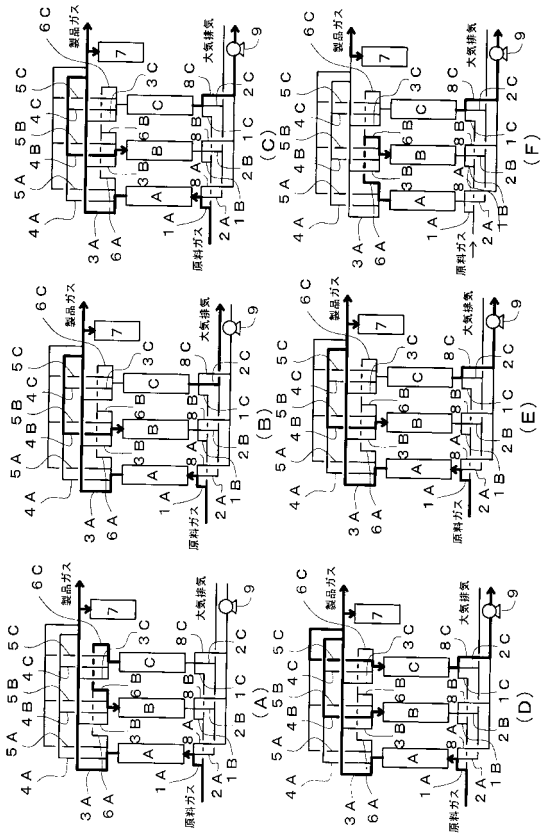
【図７】


吸着
流出均圧H
流出均圧L
再生
大気排気
真空1
パージ
真空2
流入均圧L
復圧
流入均圧H
A塔
B塔
C塔

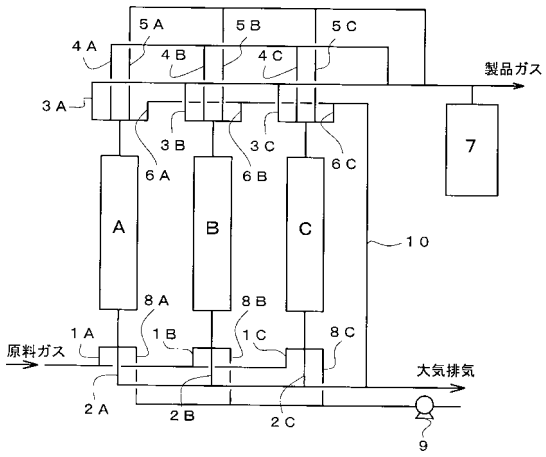
【図８】


1段回収
2段回収
吸着圧力
流出均圧
流出均圧Ｈ
大気排気
廃液分離
流出均圧Ｌ
大気圧
真空排気1
真空排気圧力
原液分離

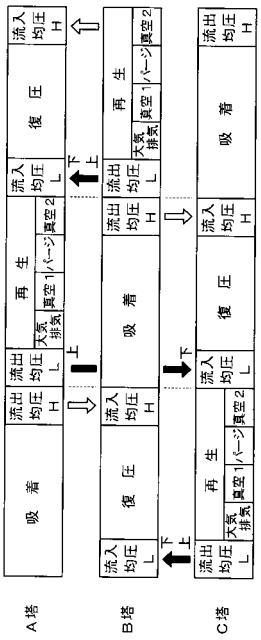
【図９】



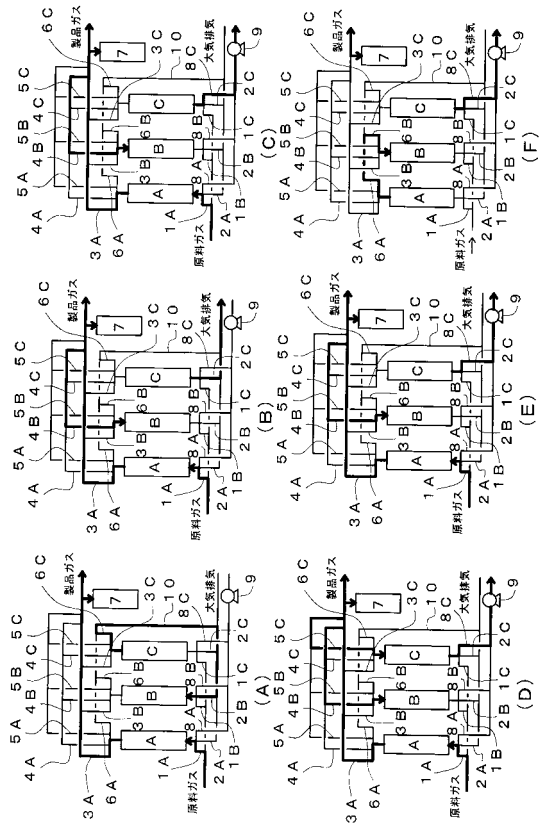
【図１０】



【図１１】



【図１２】



【図１３】

