(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
2020年9月24日(24.09.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/189109 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 18/08 (2006.01) *B09B 3/00* (2006.01)
B07B 7/00 (2006.01) *B09B 5/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2020/005521

(22) 国際出願日： 2020年2月13日(13.02.2020)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2019-050270 2019年3月18日(18.03.2019) JP

(71) 出願人: 株式会社トクヤマ (**TOKUYAMA CORPORATION**) [JP/JP]; 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 Yamaguchi (JP).

(72) 発明者: 大村 昂平(**OMURA, Kohei**); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP). 関 卓哉(**SEKI, Takuya**); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP).

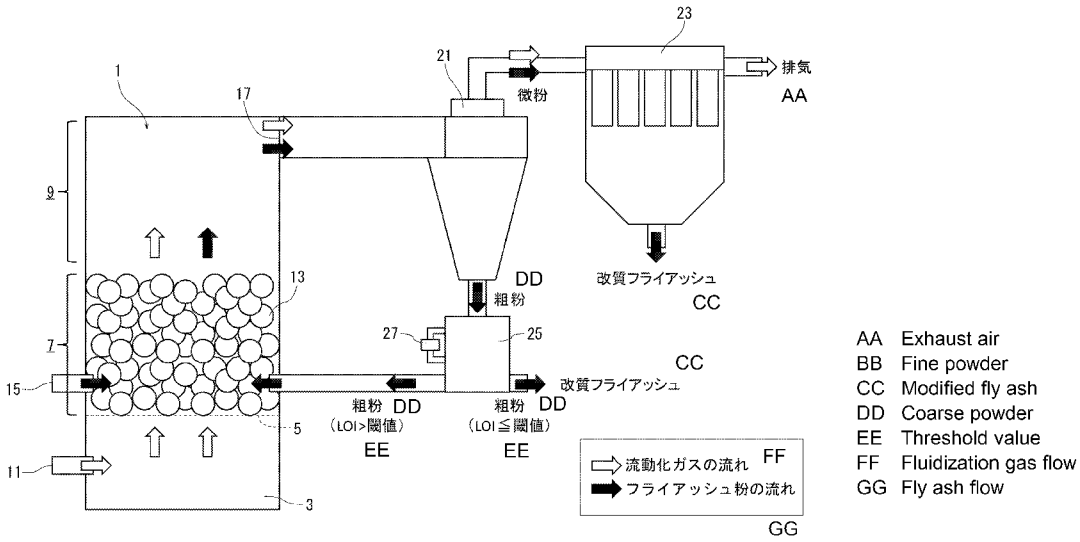
(74) 代理人: 小野 尚純, 外 (**ONO, Hisazumi** et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋三丁目5番2号 西新橋第一法規ビル Tokyo (JP).

(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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) **Title:** FLY ASH MODIFICATION METHOD

(54) 発明の名称： フライアッシュの改質方法

[図1]



(57) **Abstract:** The invention is a fly ash modification method, whereby a fly ash raw powder containing unburnt carbon is heated to reduce the unburnt carbon content, characterized by: (a) using a heating device as a means for heating the fly ash raw powder, wherein heating is performed by passing the fly ash raw powder through a heated medium fluidized bed; (b) passing a high temperature gas flow through the inside of the heating device, thereby forming the heated medium fluidized bed and performing fluid transport of the fly ash raw powder introduced into the medium fluidized bed; (c) setting the flow rate of the high temperature gas flow in such a manner that the entire amount of the fly ash raw powder

WO 2020/189109 A1

[続葉有]

KN, KP, KR, KW, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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), ユーラシア (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).

添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

introduced into the heating device is heated by the medium fluidized bed and collected from a collection port provided in an upper portion of the heating device, while the medium particles forming the medium fluidized bed are not discharged from the collection port; (d) introducing, into an air classifier, the heated fly ash powder discharged from the collection port of the heating device so as to separate the fly ash powder into a fine powder and a coarse powder; (e) recovering as modified fly ash the fine powder recovered by the air classifier; and (f) measuring the unburnt carbon content in the coarse powder recovered by the air classifier, re-introducing the coarse powder into the heating device and re-heating if the measured value is greater than a preset threshold value, and recovering the coarse powder as modified fly ash if the measured value is smaller than the threshold value.

(57) 要約:未燃カーボンを含むフライアッシュ原粉を加熱して未燃カーボン含量を低減させるフライアッシュの改質方法において、(a)前記フライアッシュ原粉を加熱する手段として、加熱された媒体流動層を通すことにより加熱が行われる加熱装置を使用し、(b)前記加熱装置内に高温ガス流を通すことにより、加熱された前記媒体流動層の形成と該媒体流動層内に投入された前記フライアッシュ原粉の流動搬送とを行い、(c)前記加熱装置に投入された前記フライアッシュ原粉の全量が、前記媒体流動層で加熱され且つ該加熱装置上部に設けられた取出口から取り出されるが、前記媒体流動層を形成している媒体粒子は該取出口から排出されないように、前記高温ガス流の流量を設定し、(d)前記加熱装置の取出口から排出された加熱後のフライアッシュ粉を、空気分級機に導入して微粉と粗粉とに分離し、(e)前記空気分級機により回収された微粉を改質フライアッシュとして回収し、(f)前記空気分級機により回収された粗粉は、未燃カーボン含有量を測定し、該測定値が予め設定した閾値よりも大きい場合には、前記加熱装置に再度導入して再加熱を行い、該測定値が閾値よりも小さい場合には、改質フライアッシュとして回収すること、を特徴とする。

明　細　書

発明の名称 ： フライアッシュの改質方法

技術分野

[0001] 本発明は、フライアッシュの未燃カーボン含有量を低減させるフライアッシュの改質方法に関する。

背景技術

[0002] フライアッシュをセメント混合材またはコンクリート混合材（以下、あわせて混合材と記す）として使用する場合、一般にフライアッシュに含まれる未燃カーボンが少ないものが好適とされる。

[0003] しかし、一般に石炭火力発電所から発生したフライアッシュの未燃カーボン含有量は様々であり、多いもので１５質量％ほど存在し、混合材として好適なものは一部に限られるのが現状である。

[0004] フライアッシュに含まれる未燃カーボンを減らす方法は種々提案されており、未燃カーボンの燃焼性を利用した燃焼法、粒子の大きさや密度差を利用した分級法、粒子の帯電極性を利用した静電分離法などがある。

[0005] 例えば、燃焼法ではロータリーキルンを使用する方法（特許文献１）やサイクロンを使用する方法（特許文献２）、流動層加熱（ｆｌｕｉｄｉｚｅｄ　ｂｅｄ　ｈｅａｔｉｎｇ）を使用した方法（特許文献３）などがある。

[0006] 流動層加熱では、加熱された流動媒体（例えば粒径の大きなアルミナ）により形成されている媒体流動層（以下、単に流動層と呼ぶ）にフライアッシュを供給することによりフライアッシュを加熱し、その未燃カーボン含量を低減させる。特許文献３の実施例に示されているように、この方法によれば、流動媒体を多く充填して流動層を形成することにより、フライアッシュが流動層内に滞留する時間を長くし、未燃カーボンの除去効率を高めることができる。また、流動媒体を加熱すると同時に、フライアッシュを流動させて流動層から排出させるための高温のガス（流動化ガス）の流速（空塔速度）を大きくすると、処理するフライアッシュ粉の回収率が増加するが、反面、

未燃カーボンの除去効率は低下することとなる。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特許第６０３８５４８号

特許文献2：特許第３２０５７７０号

特許文献3：特開２０００－２１３７０９号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 上記の説明から理解されるように、流動層加熱によりフライアッシュの未燃カーボン含量を低減させる方法では、未燃カーボンの除去効率を高めることができ、また、フライアッシュの処理効率を高めることもできるのであるが、未燃カーボンの除去効率とフライアッシュの処理効率とを両立させることが困難であった。即ち、流動層内でのフライアッシュの滞留時間を長くすれば、当然、フライアッシュの処理効率が低下してしまい、流動化ガスの空塔速度を大きくしてフライアッシュの処理効率を高めれば、流動層内でのフライアッシュの滞留時間が短くなり、未燃カーボンの除去効率が低下してしまうこととなる。

[0009] また、流動層を形成している流動媒体の充填量を多くすることにより、フライアッシュの流動層内での滞留時間を長くすることができるが、流動媒体の充填量にも限界があり、必要以上に充填量を多くすると、この流動媒体が流動層外に溢れ出て、処理されたフライアッシュ粉に混入してしまったり、流動層内での流動媒体の流動化が正常に行われなかったりするという問題が生じる。

[0010] 従って、本発明の目的は、フライアッシュに含まれる未燃カーボンを効率よく低減させることが可能なフライアッシュの改質方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、フライアッシュに含まれる未燃カーボンは大小様々な粒子として存在し、その中で径の小さなものは比較的短時間で燃焼し、径の大きなものほど燃焼するのに長い時間を要することに着目し、効率よくフライアッシュに含まれる未燃カーボン量を低減することに成功した。

[0012] 本発明によれば、未燃カーボンを含むフライアッシュ原粉を加熱して未燃カーボン含量を低減させるフライアッシュの改質方法において、

ａ：前記フライアッシュ原粉を加熱する手段として、加熱された媒体流動層（ｍｅｄｉａ－ｆｌｕｉｄｉｚｅｄ　ｂｅｄ）を通すことにより加熱が行われる加熱装置を使用し、

ｂ：前記加熱装置内に高温ガス流を通すことにより、加熱された前記媒体流動層の形成と該媒体流動層内に投入された前記フライアッシュ原粉の流動搬送とを行い、

ｃ：前記加熱装置に投入された前記フライアッシュ原粉の全量が、前記媒体流動層で加熱され且つ該加熱装置上部に設けられた取出口から取り出されるが、前記媒体流動層を形成している媒体粒子は該取出口から排出されないように、前記高温ガス流の流量を設定し、

ｄ：前記加熱装置の取出口から排出された加熱後のフライアッシュ粉を、空気分級機に導入して微粉と粗粉とに分離し、

ｅ：前記空気分級機により回収された微粉を改質フライアッシュとして回収し、

ｆ：前記空気分級機により回収された粗粉は、未燃カーボン含有量を測定し、該測定値が予め設定した閾値よりも大きい場合には、前記加熱装置に再度導入して再加熱を行い、該測定値が閾値よりも小さい場合には、改質フライアッシュとして回収すること、

を特徴とするフライアッシュの改質方法が提供される。

[0013] 本発明においては、

（１）未燃カーボン含有量の測定値が予め設定した閾値よりも小さい粗粉を、前記空気分級により回収された微粉と混合して回収すること、

（２）未燃カーボン含有量の前記閾値が０．５～４質量％の範囲内に設定されていること、

（３）前記空気分級機の分級点は、５０～１５０μｍの範囲に設定されること、

（４）前記フライアッシュ原粉は、前記媒体流動層で６００～１１００℃の温度に加熱されること、

が好適である。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、フライアッシュに含まれる未燃カーボンを十分に低減しつつ、低減化処理に供したフライアッシュ原粉の全量を連続的に回収することが可能である。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明のフライアッシュの改質方法のフローの概略を示す図である。

[図2]空塔速度と流動層加熱装置外への排出率（取り出し率）の関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0016] 本発明において、未燃カーボン量の低減化処理に供するフライアッシュ原粉は、石炭火力発電所などの石炭を燃焼する設備において発生する一般的なフライアッシュを指す。また、石炭と併せて、石炭以外の燃料や可燃系廃棄物が混焼され発生したフライアッシュも含む。かかるフライアッシュは、一般に、シリカ（SiO_2）とアルミナ（Al_2O_3）を主成分とし（これら無機成分が全体の７０～８０％を占める）、その他の成分として、酸化第二鉄（Fe_2O_3）、酸化カルシウム（ＣａＯ）、酸化マグネシウム（ＭｇＯ）などを含んでいる。

[0017] このようなフライアッシュは、炭素分の燃え残りとされる未燃カーボンを含有しており、その含有量は多いもので１５質量％ほどである。この未燃カーボン量（以下、ＬＯＩと記す場合がある）が多いと、フライアッシュを混合材として使用した場合に問題を生じる。例えば、モルタルやコンクリート

に混合したとき、これらの表面に未燃カーボンが浮き出し、黒色部が発生する可能性が高い。さらに、化学混和剤などの薬剤が未燃カーボンに吸着すると言った問題も生じる可能性がある。

[0018] 本発明においては、このような未燃カーボン量を、媒体流動層を有する流動層加熱装置を用いての加熱により行い、得られた改質フライアッシュ、即ち、未燃カーボン量が低減されたフライアッシュを、効率よく回収する。

なお、未燃カーボン量の測定方法としては、種々の方法が知られており、例えば、燃焼させて発生したCO_2・ＣＯガスを赤外線検出する方法、強熱減量を測定し、該強熱減量から未燃カーボン量を推定する方法；メチレンブルー吸着量に基づいて算出する方法；密かさ比重試験；マイクロ波を照射して未燃カーボン量を推定する方法等が知られており、本発明においては、何れの方法も採用することができる。

このような未燃カーボン量は、以下、ＬＯＩ（Ｌｏｓｓ　ｏｎ　Ｉｇｎｉｔｉｏｎ）と呼ぶことがある。

[0019] 図１には、流動層加熱装置を用いた本発明方法の一例が示されている。

図１において、全体として１で示す流動層加熱装置は、直立した筒状形態を有しており、下から上方に向かって、燃焼室３、分散板５によって燃焼室３と仕切られている媒体流動層７（以下、流動層と呼ぶ）及び空頭部９が形成されている。

[0020] 燃焼室３は、炭化水素などの燃料をバーナー１１で燃焼させて高温ガスを生成する領域である。燃料を完全燃焼させるに必要な理論酸素量とフライアッシュ原粉に含まれる未燃カーボンを燃焼させる酸素量を含むガス（一般には空気）が燃料と共に燃焼室３に供給され、バーナー１１での燃焼により高温ガスが生成する。この高温ガスの上昇流によって、所定の温度に加熱された流動層７が形成され、さらに、この加熱装置１に供給されたフライアッシュ原粉の加熱と流動搬送とが行われる。この高温ガスを、以下、流動化ガスと呼ぶ。

例えば、この実施態様においては、燃料を完全に燃焼させるに必要な理論

酸素量の１．０５～５．０倍の酸素を供給することが好ましい。１．０５倍未満だと、燃料の燃焼にほとんどすべての酸素が消費されてしまい、その後の未燃カーボンの燃焼に必要な酸素を残すことができない。

[0021] 本発明において、コストや安全性の観点から、流動化ガスとして空気もしくは窒素を用いることが好ましいが、この場合、この流動化ガスには、上記燃料の燃焼により生じた燃焼ガス（二酸化炭素等）、燃焼では消費されなかった過剰の酸素ガス（過剰酸素ガス）に加えて、窒素が含まれる。

[0022] なお、図１において、流動化ガスの流れは、白矢印で示され、加熱装置１に供給されたフライアッシュ粉の流れは黒矢印で示されている。

[0023] また、流動化ガス（高温ガス）は、上述した方法以外で生成することも可能であり、例えば、燃焼以外の方法で流すガスを昇温させたり、あるいは加熱装置の外周部から電気ヒーターや火炎を使用して加熱する方式（外熱式）を採用したりすることも可能である。

[0024] 流動層７は、加熱され且つ流動している媒体粒子１３により形成されているものであり、流動層７の下部に形成されている原料供給口１５からフライアッシュ原粉が供給される。即ち、上記の流動化ガスにより、分散板５上に保持された固体の媒体粒子を加熱し且つ浮遊させることにより、流動層７が形成される。また、流動化ガスによってフライアッシュ原粉の流動搬送が行われるが、流動層７の下部に原料供給口１５が形成されているため、この原料供給口１５から導入されたフライアッシュ原粉が流動化ガス及び流動層７によって十分に加熱される。

さらに、上記の流動層７の上部には、媒体粒子１３が浮遊していない空塔部９が形成されている。即ち、流動層７を形成している媒体粒子１３は、流動化ガスによって加熱装置１外に排出されないように設定されている。

[0025] 上記の媒体粒子１３としては、フライアッシュに混入したと場合にもフライアッシュの特性低下を生じさせないように、その化学組成がフライアッシュに類似したもの、例えば、SiO_2、Al_2O_3、Fe_2O_3、ＣａＯなどの酸化物粒子や、これら酸化物を主成分として含む粒子などが好適に使用される

。

[0026] また、媒体粒子１３の粒子径は、原料供給口１５から導入されるフライアッシュ原粉よりも大きいことが必要である。この粒子径がフライアッシュ原粉の粒径以下であると、流動化ガスの流れに同伴して、媒体粒子１３も装置外に排出されてしまうからである。即ち、空頭部７は形成されないこととなる。一般に、フライアッシュ原粉の粒径は、その最大径が約３００μｍ以下であり、媒体粒子１３の好ましい粒子径は、０．５～５ｍｍ程度である。

[0027] 本発明においては、流動層７に導入されたフライアッシュ原粉は、この流動層７を形成している媒体粒子１３及び流動化ガスと接触して加熱されるが、この加熱温度は未燃カーボンが燃焼する温度であり、一般的には６００℃～１１００℃、好ましくは７５０℃～１０００℃である。この加熱温度が低いと、未燃カーボンを十分に燃焼除去することが困難となり、必要以上に加熱温度が高いと、フライアッシュが溶融する可能性がある。従って、このような加熱温度にフライアッシュ原粉が加熱されるように、流動化ガスの温度を高温に調整することとなる。

なお、フライアッシュ原粉の加熱温度は、流動層７（或いは空頭部９）に熱電対を挿入して測定することができる。

[0028] 本発明では、上記のようにして供給される高温の流動化ガス（及び流動層７）によって、フライアッシュ原粉が加熱され、該フライアッシュ原粉中の未燃カーボン量（ＬＯＩ）が低減され、加熱されたフライアッシュは、流動化ガスと共に、加熱装置１の塔頂部に形成されている取出口１７から排出される。即ち、流動化ガスの流量、流速は、加熱装置１に導入されたフライアッシュ原粉の実質的に全量が、取出口１７から取り出されるように設定される。要するに、加熱装置１に投入されるフライアッシュ原粉と、取出口１７から取り出される加熱後のフライアッシュ量が均衡した状態に維持されるということである。この場合、加熱装置１の構造等の事情により、装置内に一定量のフライアッシュが滞留すること等を排除するものではない。

なお質量で比較すると、取出口１７から取り出される加熱後のフライアッ

シュは、少なくとも燃焼したカーボン量分は、フライアッシュ原粉よりも質量が小さくなっている。

[0029] フライアッシュの全量が取り出されるようにするには、用いる加熱装置１の形態等に応じて適宜設定を行えば良いが、一般的には、加熱装置１内（燃焼室３）に供給する流動化ガス量を、空塔速度が０．５ｍ／秒以上となるように設定すればよい。なお空塔速度とは、流動化ガス量（m^3／秒）を、媒体流動層加熱装置の内径最大部における断面積（m^2）で除した値である。流動化ガス量は、前述した加熱温度での値を用いて算出する。

[0030] 本発明者らの知見によれば、空塔速度を０．５ｍ／秒以上、好ましくは０．６ｍ／秒以上とすることで、フライアッシュの全量を加熱装置１外へ排出可能であり、フライアッシュ原粉を連続供給しても、該加熱装置１内に溜まり続けることなく、連続排出することができる（図２の実験結果参照）。

なお、流動化ガスの空塔速度が過度に大きくなると、空頭部９が形成されず、媒体粒子１３がフライアッシュと共に取出口１７から排出されてしまう。このような不都合を回避するため、流動化ガスの空塔速度は、通常、大きくとも３ｍ／秒程度とすることが好ましい。

[0031] ところで、本発明においては、加熱装置１の取出口１７から排出されたフライアッシュ粉（加熱後のフライアッシュ）は、流動化ガスによって空気分級機２１に導入され、微粉と粗粉とに分けられる。

[0032] 即ち、上述したフライアッシュ原粉の加熱過程で未燃カーボン粒子は酸素と反応して燃焼し消失するか、燃焼しきらなかった未燃カーボン粒子は灰分と加熱後のフライアッシュ粉と共に取出口１７排出される。

本発明者らの研究によれば、未燃カーボン粒子の内、比較的大きな粒子については、前述した加熱条件では燃焼が十分に進行しないおそれがあり、この加熱装置１から燃焼することなく排出される可能性がある。一方で小さな未燃カーボン粒子は、上記加熱条件下でほとんどが燃焼してしまう。

このため、本発明では、加熱装置１から取り出されたフライアッシュを空気分級機２１に導入し、微粉と粗粉とに分離する。

[0033] 即ち、微粉では未燃カーボンが燃焼により十分に除去されている。従って、空気分級機２１で分離された微粉は、流動ガスと共に集塵機２３に供給され、ここで、流動化ガスは廃棄され、微粉は、改質フライアッシュとして回収される。

一方、粗粉には、燃焼不十分な大粒径の未燃カーボン粒子が多く含まれている恐れがあるため、上記の微粉と分離する。分離された粗粉は、一時貯蔵サイロ２５に供給され、このサイロ２５に取り付けられているＬＯＩ測定器２７により、未燃カーボン量（ＬＯＩ）が測定され、ＬＯＩがあらかじめ設定された閾値以下である場合には（ＬＯＩ≦閾値）、改質フライアッシュとして回収する。また、ＬＯＩがあらかじめ設定された閾値を超えている場合には（ＬＯＩ＞閾値）、加熱装置１（流動層７）に戻し、再び加熱してＬＯＩの低減を図るものとする。勿論、この場合、ＬＯＩが閾値と同じであったとき（ＬＯＩ＝閾値）、その粗粉を加熱装置１に戻して再度熱処理することもできる。

[0034] 上記閾値は、セメントやコンクリートの混合材などとして使用されるフライアッシュに求められるＬＯＩに応じて適宜設定すればよい。例えば、０．５～４質量％、特に０．５～３質量％の範囲で設定することが好ましい。

[0035] なお、ＬＯＩが低いため、一時貯蔵サイロ２５から改質フライアッシュとして回収される粗粉は、当然のことながら、前述した集塵機２３から回収された改質フライアッシュ（微粉）と混合して回収することもできる。

[0036] 従来、未燃カーボンを含むフライアッシュに含まれる未燃カーボンは粒子径が大きいことを利用し、空気分級により該大粒径の未燃カーボンを除去することが検討されている。しかし、未燃カーボン粒子は比重が軽いために微粉側にも多量に分配され、実質的に空気分級により未燃カーボン含有量の異なる粗粒と微粒に分けることはできなかったのが実情である。しかるに、本発明では、フライアッシュを一旦加熱したのちに、空気分級を行っているため、大粒径の未燃カーボンは粗粒側へ分配されることとなり、該粗粒のＬＯＩに応じて再度加熱装置１内に導入して熱処理を行うことにより、効率的に

未燃カーボン含有量を減らすことが可能となる。

[0037] 上述した本発明において、空気分級における分級点は、５０～１５０μｍ、特に１００～１５０μｍの範囲も設定することがより好ましい。分級点を小さくするほど粗粉として回収される未燃カーボンの割合が多くなるが、一方で、分級点が小さいほど粗粉として回収する必要のない粒子までも回収してしまう傾向が高まる。よって、効率的な運転という観点から上記範囲とすることが好適である。

[0038] 空気分級機２１は特に限定されず、例えば、遠心力場を利用した気流分級機、重力場を利用した分級機、慣性力場を利用した分級機などが使用可能である。

[0039] また、空気分級機２１で分級された微粉の捕集に使用される集塵機２３としては、特に制限されず、電気集塵機、重力式集塵機、遠心力式集塵機など、様々なタイプのものを使用することができる。

[0040] さらに、一時貯留サイロ２５に取り付けられているＬＯＩ測定器２７によるＬＯＩ測定は、既に述べたように、公知の如何なる方法によって行われてもよい。

実施例

[0041] 本発明を次の実験例で説明する。

[0042] ＜実験＞

ＬＯＩが１０．０質量％のフライアッシュ原粉を用意した。平均粒径は４４μｍ、最大粒径は約３００μｍであった。

図１に示されている加熱装置１にフライアッシュ原粉を供給し、空塔速度０．６４ｍ／秒、加熱温度８５０℃で流動化ガス（空気）を供給して熱処理を行い、空気分級機２１で粗粉と微粉に分級した。分級点をおよそ５０μｍに設定したところ、回収された微粉と粗粉の割合は、フライアッシュ原粉に対してそれぞれ６３質量％、３７質量％であり、微粉と粗粉の合計量は１００質量％となっていた。

[0043] また、上記微粉のＬＯＩが１．１質量％、粗粉のＬＯＩが５．０質量％で

あった。微粉のＬＯＩは充分に低く、そのまま改質フラアッシュとして使用可能である。一方、粗粉のＬＯＩは高く、多くの用途では再加熱に供する必要のあるレベルである。

なおＬＯＩは、ＪＩＳ　Ａ　６２０１に記載の強熱減量試験法にて測定した。

[0044] さらに、流動化ガスの空塔速度を種々変更して、上記フライアッシュ原粉の熱処理を行い、空塔速度と加熱装置１から排出されるフライアッシュの排出率（供給されるフライアッシュ原粉に対する割合）を測定した。その結果を図２に示す。

図２の結果から理解されるように、空塔速度を０．５ｍ／秒以上、特に０．６ｍ／秒以上とすることで、フライアッシュ原粉のほぼ全量を滞留させずに装置外に排出することができる。

符号の説明

[0045] １：加熱装置
３：燃焼室
５：分散板
７：流動層
９：空頭部
１１：バーナー
１３：媒体粒子
１５：原料供給口
１７：取出口
２１：空気分級機
２３：集塵機
２５：一時貯蔵サイロ
２７：ＬＯＩ測定器

請求の範囲

[請求項1] 未燃カーボンを含むフライアッシュ原粉を加熱して未燃カーボン含量を低減させるフライアッシュの改質方法において、

ａ：前記フライアッシュ原粉を加熱する手段として、加熱された媒体流動層を通すことにより加熱が行われる加熱装置を使用し、

ｂ：前記加熱装置内に高温ガス流を通すことにより、加熱された前記媒体流動層の形成と該媒体流動層内に投入された前記フライアッシュ原粉の流動搬送とを行い、

ｃ：前記加熱装置に投入された前記フライアッシュ原粉の全量が、前記媒体流動層で加熱され且つ該加熱装置上部に設けられた取出口から取り出されるが、前記媒体流動層を形成している媒体粒子は該取出口から排出されないように、前記高温ガス流の流量を設定し、

ｄ：前記加熱装置の取出口から排出された加熱後のフライアッシュ粉を、空気分級機に導入して微粉と粗粉とに分離し、

ｅ：前記空気分級機により回収された微粉を改質フライアッシュとして回収し、

ｆ：前記空気分級機により回収された粗粉は、未燃カーボン含有量を測定し、該測定値が予め設定した閾値よりも大きい場合には、前記加熱装置に再度導入して再加熱を行い、該測定値が閾値よりも小さい場合には、改質フライアッシュとして回収すること、

を特徴とするフライアッシュの改質方法。

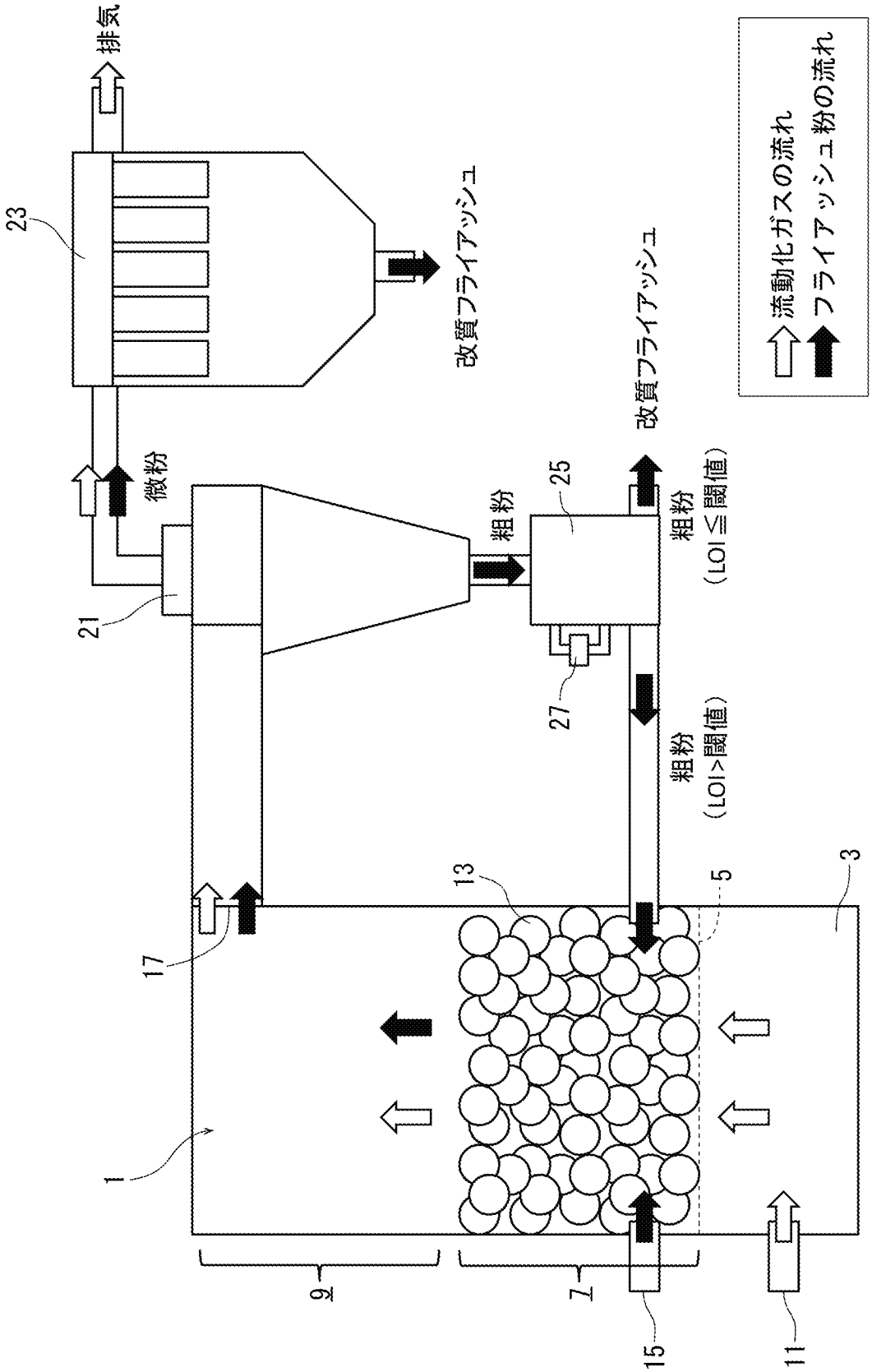
[請求項2] 未燃カーボン含有量の測定値が予め設定した閾値よりも小さい粗粉を、前記空気分級により回収された微粉と混合して回収する請求項１に記載のフライアッシュの改質方法。

[請求項3] 未燃カーボン含有量の前記閾値が０．５～４質量％の範囲内に設定されている請求項１に記載のフライアッシュの改質方法。

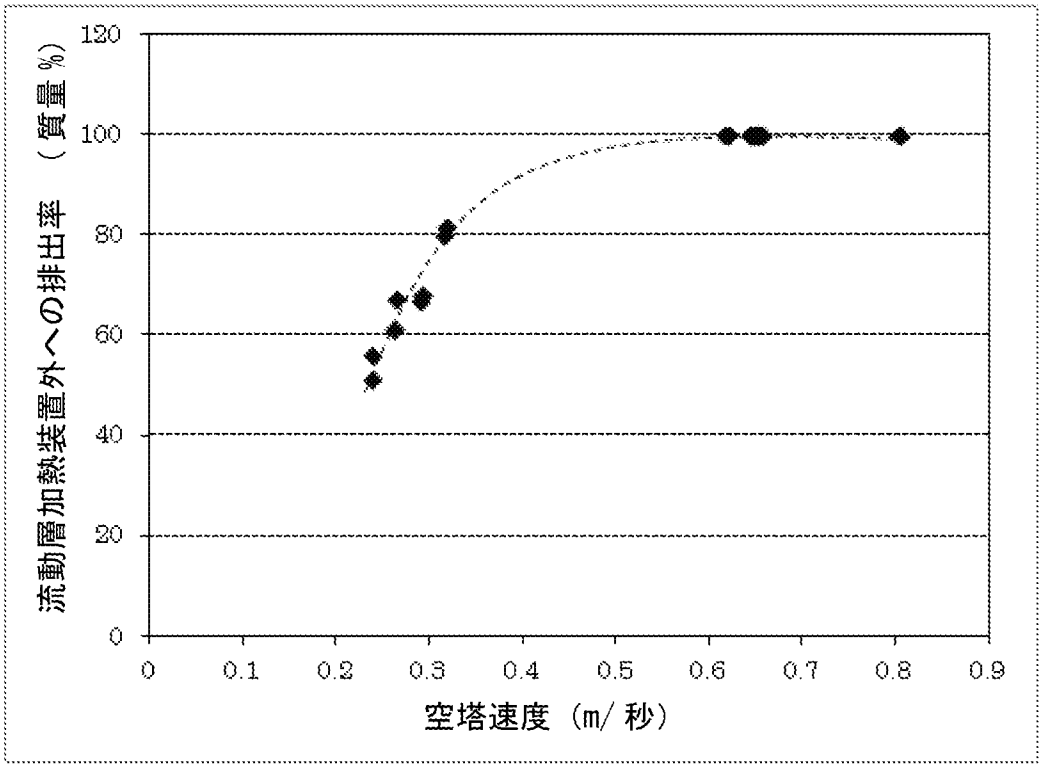
[請求項4] 前記空気分級機の分級点は、５０～１５０μｍの範囲に設定される請求項１に記載のフライアッシュの改質方法。

[請求項5] 前記フライアッシュ原粉は、前記媒体流動層で６００～１１００℃の温度に加熱される請求項１に記載の改質方法。

[図1]


排気
23
改質フライアッシュ
改質フライアッシュ
流動化ガスの流れ
フライアッシュ粉の流れ
微粉
粗粉
25
粗粉
(LOI≦閾値)
21
27
粗粉
(LOI>閾値)
13
5
3
17
1
9
7
15
11

[図2]


流動層加熱装置外への排出率（質量％）
120
100
80
60
40
20
0
0
0.1
0.2
0.3
0.4
0.5
0.6
0.7
0.8
0.9
空塔速度（m/秒）

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/005521

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C04B 18/08(2006.01)i; B07B 7/00(2006.01)i; B09B 3/00(2006.01)i; B09B 5/00(2006.01)i
FI: C04B18/08 Z; B07B7/00 Z; B09B3/00 303L; B09B5/00 N ZAB
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)
C04B18/08; B07B7/00; B09B3/00; B09B5/00

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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.
A	JP 2000-213709 A (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 02.08.2000 (2000-08-02) entire text	1-5
A	WO 2018/180680 A1 (TOKUYAMA CORPORATION) 04.10.2018 (2018-10-04) entire text, all drawings	1-5
A	JP 7-155740 A (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD.) 20.06.1995 (1995-06-20) entire text, all drawings	1-5
A	JP 58-85011 A (SUMITOMO CEMENT CO., LTD.) 21.05.1983 (1983-05-21) entire text, all drawings	1-5
A	JP 2017-148762 A (TAIHEIYO CEMENT CORP.) 31.08.2017 (2017-08-31) entire text, all drawings	1-5
P, A	JP 2019-107619 A (TAIHEIYO CEMENT CORP.) 04.07.2019 (2019-07-04) entire text, all drawings	1-5
P, A	JP 2019-107620 A (TAIHEIYO CEMENT CORP.) 04.07.2019 (2019-07-04) entire text, all drawings	1-5

☐ 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	Date of mailing of the international search report
19 March 2020 (19.03.2020)	31 March 2020 (31.03.2020)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application no.
PCT/JP2020/005521

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2000-213709 A	02 Aug. 2000	(Family: none)	
WO 2018/180680 A1	04 Oct. 2018	CN 110461486 A KR 10-2019-0127737 A	
JP 7-155740 A	20 Jun. 1995	(Family: none)	
JP 58-85011 A	21 May 1983	(Family: none)	
JP 2017-148762 A	31 Aug. 2017	(Family: none)	
JP 2019-107619 A	04 Jul. 2019	(Family: none)	
JP 2019-107620 A	04 Jul. 2019	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/005521

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C04B 18/08(2006.01)i; B07B 7/00(2006.01)i; B09B 3/00(2006.01)i; B09B 5/00(2006.01)i
FI: C04B18/08 Z; B07B7/00 Z; B09B3/00 303L; B09B5/00 N ZAB

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（ＩＰＣ））

C04B18/08; B07B7/00; B09B3/00; B09B5/00

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０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
A	JP 2000-213709 A (出光興産株式会社) 02.08.2000 (2000-08-02) 全文	1-5
A	WO 2018/180680 A1 (株式会社トクヤマ) 04.10.2018 (2018-10-04) 全文,全図	1-5
A	JP 7-155740 A (三菱重工業株式会社) 20.06.1995 (1995-06-20) 全文,全図	1-5
A	JP 58-85011 A (住友セメント株式会社) 21.05.1983 (1983-05-21) 全文,全図	1-5
A	JP 2017-148762 A (太平洋セメント株式会社) 31.08.2017 (2017-08-31) 全文,全図	1-5
P, A	JP 2019-107619 A (太平洋セメント株式会社) 04.07.2019 (2019-07-04) 全文,全図	1-5
P, A	JP 2019-107620 A (太平洋セメント株式会社) 04.07.2019 (2019-07-04) 全文,全図	1-5

☐ 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抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日
19.03.2020	31.03.2020

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
田中　永一 4T 9539

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2020/005521

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2000-213709 A	02.08.2000	（ファミリーなし）	
WO 2018/180680 A1	04.10.2018	CN 110461486 A	
		KR 10-2019-0127737 A	
JP 7-155740 A	20.06.1995	（ファミリーなし）	
JP 58-85011 A	21.05.1983	（ファミリーなし）	
JP 2017-148762 A	31.08.2017	（ファミリーなし）	
JP 2019-107619 A	04.07.2019	（ファミリーなし）	
JP 2019-107620 A	04.07.2019	（ファミリーなし）	