

⑫ 公開特許公報 (A)

昭60-147230

⑮ Int. Cl.⁴
B 01 J 8/18

識別記号 庁内整理番号
6602-4G

⑯ 公開 昭和60年(1985)8月3日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全7頁)

- ⑰ 発明の名称 沸騰床反応器などの三相流動反応装置に於ける液面検知装置
- ⑱ 特 願 昭59-1363
- ⑲ 出 願 昭59(1984)1月10日
- ⑳ 発 明 者 金子 雅 人 広島市西区観音新町4丁目6番22号 三菱重工業株式会社
広島研究所内
- ㉑ 発 明 者 堀 添 浩 俊 広島市西区観音新町4丁目6番22号 三菱重工業株式会社
広島研究所内
- ㉒ 発 明 者 梶 本 彦 久 寿 広島市西区観音新町4丁目6番22号 三菱重工業株式会社
広島研究所内
- ㉓ 発 明 者 嶋 田 隆 文 広島市西区観音新町4丁目6番22号 三菱重工業株式会社
広島研究所内
- ㉔ 出 願 人 三菱重工業株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目5番1号
- ㉕ 復 代 理 人 弁 理 士 内 田 明 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

沸騰床反応器などの三相流動反応装置に於ける液面検知装置

2. 特許請求の範囲

反応器内に充填した触媒固体粒子が下方から供給される原料気体及び液体流により一定層高さに膨脹しつつ維持される沸騰床反応器などの三相流動反応装置に於いて、該反応装置内部に形成される液面を検知するための液溜め槽を付設し、反応装置内の液相部と液溜め槽とを連結するノズルクリーナー内蔵のノズルを設けると共に反応装置内のガス層部と液溜め槽のガス層部とを連結するガス均圧管を配設し、上記ノズル及び液溜め槽の少なくとも上半分をジャケット構造とし、液溜め槽に液面計を具えたことを特徴とする三相流動反応装置に於ける液面検知装置。

3. 発明の詳細な説明

[本発明の技術分野]

本発明は、気体、液体及び固体の三相流動反応装置に於ける液面検知装置に関する。更に詳しくは、本発明は、反応器内に充填した触媒固体粒子が下方から供給される原料気体及び液体流により、一定層高さに膨脹しつつ維持される沸騰床反応器などの三相流動反応装置に於ける液面検知装置に関する。

[従来三相流動反応装置]

一般に、気体、液体、固体の三相流動反応装置は、三相の接触効率が良好であり且気、液、固相の混合がよいことから、反応装置として使用されている。特に固相として触媒を用いる重質炭化水素の水素化分解反応や水素化精製反応に有効であり、この反応で脱窒素、脱硫黄、その他きよ雑物の除去が達成される。重質炭化水素としては残渣油、軽油、タールサンド、ピチューメン、天然アスファルト、シエールオイル、石炭液化油及びリグニン、油脂等があり、これらのきよ雑物としてバナジウム、ニッケル等の重金属や窒素、硫黄及び酸素化合物等及

びシリカ、アルミナ等を主体とする砂や灰分がある。

またこの反応に使用される触媒は、アルミナ担体及び／又はアルミナ、シリカ担体に担持されたVI族及びVII族の担持金属より構成されており、これらの反応条件としては、反応温度300～450℃、反応圧力40～300気圧、LHSVとして0.25 hr⁻¹以上であり、これらの反応においては大きな発熱反応であり、また反応物質が重質であつて、しかもきよう雑物を多く含む為、下記する三相流動反応装置としての特徴が際立つてくるものである。

i) 沸騰相内温度の均一化

三相流動反応装置の沸騰相においては、沸騰相内を上昇する気体による逆混合及び沸騰相内外を多量に循環する液体により沸騰相内の温度分布の偏差はほとんどなく、沸騰相下部と上部との温度差は数℃である。

他方、同一の操作条件下における固定相反応器における温度差は数10℃であり、明ら

命が短い。

また三相流動層反応装置は運転期間中に触媒の出し入れが可能（固定相反応器では触媒の出し入れは運転を休止しないとできない）であり、触媒寿命がつかた際に触媒を連続的に入れ換えることにより運転休止なく連続運転ができるといつた特長がある。

また、三相流動反応装置では沸騰相内の温度分布が小さく、温度制御性が良好であるといつたことより、従来の固定相反応器では、反応の暴走や触媒のコーキングといつたトラブルの為に運転が不可能であつた400℃以上の高温域における運転が可能となつた為、より一層の触媒使用が可能となる。すなわち、重質油の水素化反応や重質油の直脱といつた反応操作において、触媒の劣化により反応率が低下すると反応温度を上昇させて反応率が一定となるように操作している。したがつて、より高温の運転が可能であればそれだけ見掛けの触媒寿命が長期化したこととなるから、三相流動層反応器においては触媒寿命の長期化と運転時間の

かに三相流動反応装置の方が固定相反応器に比べ反応器内の温度が均一であり、触媒層内のヒートスポットも現出しにくい為、触媒劣化が少ないといえる。

ii) 運転制御が容易

沸騰相内の温度分布がほとんどないことより、三相流動反応装置は温度制御すなわち運転制御性が良好である。つまり三相流動反応装置の昇、降温時（系のスタートアップ、シャットダウン）の運転が容易であり且定常運転時においても運転が容易である。

iii) 運転操作時間の延長、触媒寿命の長期化

固定相反応器においては、反応液体の偏流や反応熱の蓄積により触媒層内にヒートスポットが現出し、触媒寿命を短期化するコーキングが触媒表面にて生起する。また反応液体が重質炭化水素である為、これら流体に同伴される灰分が触媒層内に堆積し触媒の有効利用率の低下や偏流の原因となる為、触媒が流動化している三相流動反応装置に比べ触媒寿

延長が可能である。

以上述べた三相流動層反応装置においては、触媒層高が静止時の1.1～2.0倍に膨脹し維持されて、重質油炭化水素類の水素化分解や水素化精製反応が行なわれている。また三相流動層反応装置内では、沸騰相（触媒の濃厚相）とその上部に気液界面相が形成されることが不可欠となる。すなわち三相流動層反応装置においては沸騰相を形成する為の要素は、上方に流動化しつつ移動する気体及び液体流にあり、この気体及び液体流を効果的に流動化させることが不可欠となる。

この気体流及び液体流を形成させる手段としては、それぞれガスコンプレッサー及び液循環ポンプがあり、これらの機器の性能を十二分に発揮させる為には、気体にはミスト、凝縮性ガス、腐食性ガス等が混入していないものである必要があり、流体性状としては気体が混入していないものであつて且触媒等の混入がないものが好ましい。

すなわち、気体、液体、固体の各相を相互に分離しておくことが三相流動反応装置の運転上の鍵であるといわれており、これらの三相分離に関する特許文献（米国特許第3,677,716号、同第3,539,499号及び特公昭53-28140）に詳しく述べられている。また、同時にこれら三相の相分離を実施し且検知し制御してゆくことがこの三相流動反応器の運転においては重要である。

すなわち、沸騰相の維持管理は沸騰相内温度制御及び運転維持の一大因子であり、また沸騰相の異常変化は反応の暴走や触媒のキャリアーバといった非定常運転の際現出する現象でありこれら変化因子の検知が非常に重要である。また、気液界面（液界面）の維持管理も同様に、循環ポンプの安定運転、ガス抜出し口への溢流防止といった運転管理上不可欠のことであり、循環ポンプの運転停止は即刻、沸騰相の流動停止、反応暴走につながる為、非常に重要である。（従来の液面管理手段及びその欠点）

衰量が非常に大きい為、反応装置をスケールアップした際、上記観測点より非常に線源量の大きな r 線源を必要とすると同時に、反応器の軸芯を透過せず、軸芯以外の個所を透過することとなる。これを第1図に基づいて説明すると、第1図は反応器の横断面図であつて、 r 線の透過を説明するための図である。この図で1'は反応器壁を示し、Aは軸芯である。反応器の外部に配置した r 線液面計からの r 線は軸芯Aでは、反応器壁1'の透過が最低であり、一方内部液量の透過が最大である。したがつて、軸芯A以外の個所、例えば第1図のBの個所を透過させることとなる。この個所Bでは反応器壁1'の影響が相対的に増加する為、精度が落ちるといふ問題、すなわち、精度が悪いといふ問題があり、また、 r 線源を増大させることはコストの増大ばかりでなく、三相流動反応器運転従事者への r 線被曝の危険性増大といふ大きな問題があつた。

本発明者らは、先に r 線計を用いた液面計シ

従来よりこれら高温高圧の反応装置の液面管理において種々の液面計が使用されてきている。すなわち、浮子式（ディスプレイメント）、差圧式及び r 線等の計測手段である。これらのうち、浮子式のもの本三相流動反応装置の如き重質油の高温高圧下における液面計として使用すると、三相流動反応装置内及びもしくは浮子挿入装置内の浮子へのコーキングにより、液面が誤指示されたり、浮子ガイドへのコーキングの為、浮子が動かなくなつたりなどする為、ほとんど使用されない。また、差圧式の液面計については、差圧検知部の触媒による磨耗、ガス、液流動時の動圧補正、温度、圧力変化時の差圧補正、導圧管へのコーキングといふ問題の為にほとんど実用化されていない。

一方、 r 線液面計は以上2つの液面計に比べ三相流動反応器外部から液面を r 線の透過量により測定できる為よく使用されているものである。しかしながらこの r 線計は、 r 線の減衰が透過距離に反比例し、且金属においてはその減

システム（三相流動反応装置の液界面下に連なる液溜め槽の液面計測を r 線計により実施する三相流動反応装置に於ける液面検知装置の発明）（以下先願という。）を提案している。以下第2図(A)に基づいて先願の発明を説明すると、先願においては、沸騰床反応器2'内の液面下と液溜め槽3'の液面下と連結するノズル4'を設け、当該ノズル4'内のコーキングを防止する為に当該ノズル4'の外側にスチーム及び/もしくは温水ジャケット5'を設け、コーキングを防止する350℃以下の温度としてあつた。しかしながら三相流動反応器2'の壁(1)とジャケット4'が被覆されはじめたノズル個所(向)及び完全にジャケットで冷却されたノズル部分(向)の温度分布は、第2図(B)に示すごとくであり、いかに冷却を行なつても反応温度が350℃以上であれば確実にコーキング領域が存在することとなる。

この対策として従来より、ノズル内の流速を一定値以上（例えば1.0 m/sec以上）に保持することで液流によるコーキングのエロージョン

作用を期待する手法が行なわれていた。しかしながら、この方法の欠点はコーキングの防止の効果があつても、一度ついたコーキング物を除去するだけの効めがなく且ノズル内の流速を一定値以上に保持する為には配管サイズの制限(小口径のものを使用して流速を確保する為)があるばかりか、流速が 0.5 m/sec をこえると先願の液溜め部の液面が攪乱される為 r 線計の指示が乱れたり、三相流動層液面位と液溜め槽中の液位が相違するといった欠点があつた。

[本発明の目的]

そこで、本発明は上記先願の発明の改良に係り、ノズル内部のコーキング防止に関し、物理的に該コーキング物を取除くことができる三相流動反応装置に於ける液面検知装置を提供することを目的とする。

[本発明の構成]

そして、本発明は、上記目的を達成する手段として、ノズルの内部にノズルクリーナーを配設し、また、反応装置内のガス層部と液溜め槽

ーとしては、回転駆動するものが好ましく、また、この回転駆動の動力源としては、空気圧や電動機が使用できる。しかしながら、本発明においては、この動力源として、反応装置内の反応液を引き出す際のエネルギーを有効に活用するのが最も好ましい。

また、本発明に於いては、三相流動反応装置のガス層部と液溜め槽のガス層部とをガス均圧管を介して連結するものであり、これによつて、反応装置内の液位と実質的に等しい液位を液溜め槽内に形成させることができるものである。したがつて、本発明では液溜め槽の液面を検知することによつて、反応装置内の液面を直ちに知ることができるものである。この液溜め槽の液面の検知手段として、本発明では従来から知られているすべての液面計が適用できるが、最も好適なものは、 r 線液位計である。

また、本発明では、ノズルと液溜め槽の少なくとも上半分とをジャケット構造とし、このジャケットに冷却用流体を流すことによつて、そ

のガス層部とをガス均圧管で連結した点にある。すなわち、本発明は、反応器内に充填した触媒固体粒子が下方から供給される原料気体及び液体流により一定層高さに膨脹しつつ維持される沸騰床反応器などの三相流動反応装置に於いて、該反応装置内部に形成される液面を検知するための液溜め槽を付設し、反応装置内の液相部と液溜め槽とを連結するノズルクリーナー内蔵のノズルを設けると共に反応装置内のガス層部と液溜め槽のガス層部とを連結するガス均圧管を配設し、上記ノズル及び液溜め槽の少なくとも上半分をジャケット構造とし、液溜め槽に液面計を具えたことを特徴とする三相流動反応装置に於ける液面検知装置である。

本発明に於いては、三相流動反応装置の液相部と液溜め槽とをノズルを介して連結するようにしたものであり、そして、このノズルの内部にノズルクリーナーが配設されているものである。これは、ノズル内のコーキングを物理的に取除くためのものである。このノズルクリーナ

の内部温度を、例えば 350°C 未満となるようにし、ノズル内のコーキングを防止するものである。

なお、本発明の液面検知装置は、三相流動反応装置に適用するものであるが、さらに、その他の塔槽類に於ける液面計としても適用可能なものである。

以下第3～6図に基づいて本発明を詳細に説明する。第3図は本発明の実施例である三相流動反応器及びその液面検知装置の縦断面図であり、第4図は第3図中の液面検知装置部分の拡大詳細縦断面図であり、第5図は第4図A-A線断面図であり、第6図は第4図B-B線断面図である。

第3～6図において、三相流動反応器1内は、濃厚触媒層12及び希薄触媒層13、ガス層14及び濃厚触媒層12と希薄触媒層13の境界相6(以下触媒界面6と呼ぶ)、及び希薄触媒層13とガス層14の境界相7(以下液界面7と呼ぶ)より構成されている。濃厚触媒層

12は主体的に触媒粒子(20~325メッシュ)が自由に流動化し、原料油が水添処理される領域であり、希薄触媒層13はほとんどが反応液体とガスより構成され、これら流体に一部のキャリアーした触媒粒子が浮遊している領域であり、ガス層14は反应用ガスの水素ガス、反応生成ガスの軽質炭化水素ガス、硫化水素、アンモニア、水蒸気の混合物で構成される領域である。

また、三相流動反応器1では触媒のキャリアーバを防止する目的で触媒界面6を明りようにするよう運転条件を決定している。

本三相流動反応器1は、ノズル8より供給される原料油及び水素ガス及び循環ポンプ3よりノズル2をへて循環される多量の液体が触媒流動化を効率よく行なわせる為の流動化板11より上昇流となり濃厚触媒層12が自由に流動化され触媒は触媒界面6を構成させるように循環ポンプ3流量が決定される。また、循環ポンプに供給される液体は触媒、ガス相分離器5(以

350℃の範囲となるようにスチーム及び/もしくは温水の流速、温度を制御するようにしている。この理由はノズル10及び液溜め15内の温度が350℃以上であるとコーキングの発生が懸念され、ノズル10の流路を閉塞させたり、液溜め15内の液滞留量の減少による液位17制御性の低下及び液溜め15のr線液位計16付近のコーキングではr線量の異常減衰により設定液位に比べ実際の液界面7、17が低下し安定運転が不可能となるためである。また液溜め15をスチーム及び/もしくは温水ジャケット20を設けることにより液溜め15内部にリフラックスを積極的に発生させ液界面17部への付着を防止する効果がある。

また、液溜め15温度を350℃以下とすることにより液溜め15の肉厚を減少させることが可能となり、液溜め15製作コスト及びr線液位計16の線源強度を小さくできる為のコスト低減が可能である。かかる観点より液溜め15の直径は100~220mmが好ましいとい

下サクシオンマクス5と呼ぶ)により効率的にガス、触媒が分離され、ノズル4をへて循環ポンプ3に循環される。また、ガスはノズル9をへて系外へ抜出され、反応生成油10は液界面7が一定となるようノズル10をへて一定量抜出される。ノズル10をへて三相流動反応器1に連なる液溜め15には、均圧管18が三相流動反応器1のノズル9と連結されており、圧力レベルが均一となるようになつている。すなわち、液溜め15の液界面17は三相流動反応器1の液界面7と同一液位を示めすことになる。

またr線液位計16は液溜め15の液界面17が検知できる範囲に設置されており、r線液位計16にて検知された液位を一定とするようノズル19より液が系外へ流出し、すなわち三相流動反応器1の液界面7が一定に制御可能となつた。

液溜め15及びノズル10にはスチーム及び/もしくは温水ジャケット20を設け、ノズル10及び液溜め15内の流体温度が200~

える。またノズル21は液溜め内に堆積するコーキング物、触媒、灰分等を系外へ排出する設備である。

ノズル10、ノズル19、及びノズル24は同芯として同一水平面もしくは三相流動反応器1側より勾配をつける形にて配置し、当該ノズル10、19、24内部に回転軸26を支持し且回転の軸振れを防止する為の軸受け25a、25b、25c、25dを設置し、ノズル10内部には同時にノズルクリーナ22を設け回転軸26の回転によりノズル10内が機械的にクリーニング可能となるように考えられている。

また、ノズルクリーナ22の動力源は、回転軸26に連なる減圧弁室27内のタービン翼23が流体の減圧により発生する動力により回転し賄なわれる。なお、この動力源として電動機及び空気源とすることはもちろん可能である。すなわち、三相流動反応器1の流体はノズル10内を流れると同時に流体の流れにより減圧弁室27内で生ずる動力をタービン翼23内に

設けられたタービンプレード28内より回転動力に変換され、この回転力は回転軸26によりノズルクリーナ22に伝達される。すなわち液溜め15内の液位17を定位に保持する為に漸次反応液が系外へ排出され、その度毎にノズル10がクリーニングされる為ノズル10内のコーキングは防止できる訳である。また、減圧弁室27より液はノズル24により系外の貯槽へ排出されることとなる。

〔本発明の効果〕

以上本発明により従来コーキングの発生の恐れがあつたノズル内のコーキングが防止されると同時に、液溜め槽に設置された液面計により三相流動反応装置の液位が液溜め槽の液位として検知できることにより、三相流動反応装置の液位を円滑に制御することができる効果が生ずるものである。特に、本発明では、ノズル内にノズルクリーナーを配設したものであるから、ノズル内のコーキングを物理的に取除くことができ、その結果、該コーキング生成に伴なりト

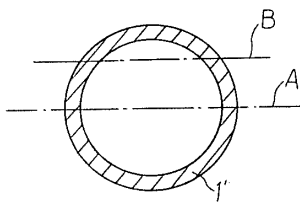
ラブルがすべて解消できる顕著な効果が生ずるものである。

4. 図面の簡単な説明

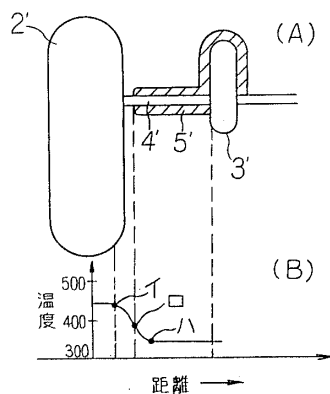
第1図は反応器の横断面図であつて、r線の透過を説明するための図であり、第2図(A)は本発明者が先に提案した液面計を備えた沸騰床反応器の略図であり、第2図(B)は第2図(A)の沸騰床反応器の各部分の温度分布を示す図である。第3～6図は本発明の実施例である三相流動反応器に於ける液面検知装置であつて、その内第3図は三相流動反応器及びその液面検知装置の縦断面図であり、第4図は第3図中の液面検知装置部分の拡大詳細縦断面図であり、第5図は第4図A-A線断面図であり、第6図は第4図B-B線断面図である。

復代理人 内田 明
復代理人 萩原 亮一

第1図



第2図



第3図

