



(12) **Veröffentlichung**

der internationalen Anmeldung mit der  
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2022/255055**  
in der deutschen Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2  
IntPatÜbkG)  
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2022 002 077.6**  
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP2022/020070**  
(86) PCT-Anmeldetag: **12.05.2022**  
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **08.12.2022**  
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung  
in deutscher Übersetzung: **18.01.2024**

(51) Int Cl.: **B01D 53/22 (2006.01)**  
**B01D 63/06 (2006.01)**  
**B01D 69/00 (2006.01)**  
**B01D 69/04 (2006.01)**  
**B01D 71/02 (2006.01)**

(30) Unionspriorität:  
**2021-093576 03.06.2021 JP**

(71) Anmelder:  
**NGK INSULATORS, LTD., Nagoya-shi, Aichi-ken,  
JP**

(74) Vertreter:  
**Müller-Boré & Partner Patentanwälte PartG mbB,  
80639 München, DE**

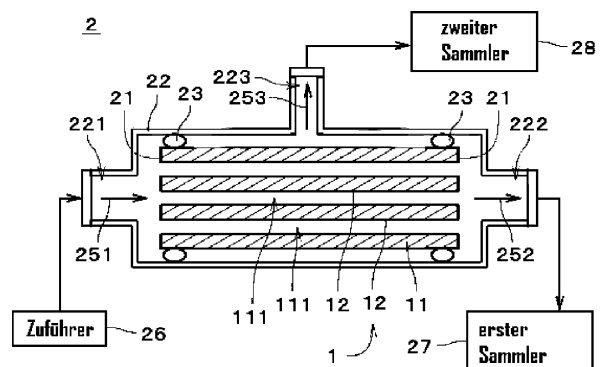
(72) Erfinder:  
**Kobayashi, Koh, Nagoya-shi, Aichi, JP; Shimizu,  
Katsuya, Nagoya-shi, Aichi, JP; Miura, Aya,  
Nagoya-shi, Aichi, JP; Noda, Kenichi, Nagoya-shi,  
Aichi, JP**

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.**

(54) Bezeichnung: **Mischgastrennverfahren und Mischgastrenneinrichtung**

(57) Zusammenfassung: Ein Mischgastrennverfahren enthält einen Schritt der Herstellung einer Trennmembran (12) (Schritt S11) und einen Schritt der Zufuhr eines Mischgases, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, zu der Trennmembran (12) und des Bewirkens, dass ein hochpermeables Gas in dem Mischgas durch die Trennmembran permeiert, um das hochpermeable Gas von dem Mischgas zu trennen (Schritt S12). Wenn in Schritt S12  $\Delta P$  eine Differenz zwischen einem Gasdruck auf der Primärseite der Trennmembran (12), d.h. einem Zufuhrdruck, und einem Gasdruck auf der Sekundärseite der Trennmembran (12), d.h. einem Permeatdruck, ist und  $A$  ein Joule-Thomson-Koeffizient ist, wird eine Differenz  $\Delta T$  zwischen einer Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran (12), d.h. zwischen einer Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran (12), d.h. einer Zufuhrtemperatur, und einer Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran (12), d.h. einer Permeattemperatur, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  eingestellt, indem die Nu-Zahl im Mischgas auf einen Wert größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird. Dadurch wird eine Abnahme der Permeanz für das permeierte Gas unterdrückt.



**Beschreibung**

## TECHNISCHES GEBIET

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft ein Mischgastrennverfahren und eine Mischgastrenneinrichtung.

## HINWEIS AUF ZUGEHÖRIGE ANMELDUNGEN

**[0002]** Diese Anmeldung genießt die Priorität der japanischen Patentanmeldung Nr. JP2021-093576, die am 3. Juli 2021 beim japanischen Patentamt eingereicht wurde und deren gesamte Offenbarung hier durch Bezugnahme aufgenommen ist.

## TECHNISCHER HINTERGRUND

**[0003]** Derzeit laufen verschiedene Studien und Entwicklungen zur Abtrennung, Adsorption oder dergleichen spezieller Moleküle unter Verwendung einer Trennmembran wie einer Zeolithmembran.

**[0004]** Beispielsweise wird in der internationalen Veröffentlichung Nr. 2017/150737 (Dokument 1) eine Technik vorgeschlagen, die in Fällen verwendet wird, in denen ein Mischgas einem Trennmembranmodul zugeführt wird, um Kohlendioxid aus dem Mischgas abzutrennen, wobei das Mischgas mit einer hohen linearen Geschwindigkeit (in einem turbulenten Zustand) dem Trennmembranmodul zugeführt wird, um das Mischgas in der Nähe der Trennmembran ausreichend zu mischen und Kohlendioxid aus dem Mischgas effizient abzutrennen.

**[0005]** Das japanische Patent Nr. 4711425 (Dokument 2) schlägt eine Technik vor, die in einer Abgasreinigungssteuervorrichtung verwendet wird, die ein von einem Verbrennungsmotor ausgestoßenes Abgas reinigt, wobei die Technik verwendet wird, um Komponenten mit einem hohen Reduktionsvermögen, wie n-Paraffin, von Kohlenwasserstoff, der in einem Kraftstoff, wie Leichtöl, enthalten ist, durch eine Trennmembran abzutrennen und die abgetrennten Komponenten mit hohem Reduktionsvermögen einem Katalysator zur Klärung von Stickoxiden zuzuführen. Die Abgasreinigungssteuervorrichtung ermöglicht eine effiziente Abtrennung von Komponenten mit hohem Reduktionsvermögen durch Erwärmung der vorstehend genannten Trennmembran.

**[0006]** Eine Trennmembran, die ein hochpermeables Gas (d.h. ein Gas mit hoher Permeabilität) von einem Mischgas trennt, wird häufig unter hohen Differenzdruckbedingungen eingesetzt, um die Permeanz des hochpermeablen Gases zu erhöhen, wobei die hohen Differenzdruckbedingungen Bedingungen sind, unter denen eine große Differenz zwischen einem Gasdruck auf der Primärseite (d.h. Zufuhrdruck), der das Mischgas zugeführt wird, und einem Gasdruck auf der Sekundärseite (d.h. Permeatdruck) nach Durchgang des hochpermeablen Gases besteht.

**[0007]** Wird eine Trennmembran unter hohen Differenzdruckbedingungen verwendet, kann die Temperatur eines Gases, das durch die Trennmembran permeiert, aufgrund des verminderten Drucks sinken und dies kann zu einer Verschlechterung der Gasdiffusionseigenschaften der Trennmembran und einer Abnahme der Permeanz führen. Es besteht auch die Gefahr einer Verringerung der Permeanz als Folge der Kondensation des Gases, dessen Temperatur während der Permeation des Gases durch die Trennmembran gesunken ist, und der daraus resultierenden Verstopfung der Poren in der Trennmembran. Wird das Gasgemisch auf eine hohe Temperatur erhitzt, um eine Gaskondensation in der Trennmembran zu verhindern, kann indes das hochpermeable Gas eine geringere Adsorptionsfähigkeit an der Oberfläche der Trennmembran aufweisen und dies kann zu einer Verringerung der Permeation führen.

## KURZDARSTELLUNG DER ERFINDUNG

**[0008]** Die vorliegende Erfindung ist für ein Mischgastrennverfahren bestimmt und es ist eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Abnahme der Permeanz für ein permeiertes Gas zu unterdrücken.

**[0009]** Ein Mischgastrennverfahren gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung beinhaltet a) das Herstellen einer Trennmembran und b) das Zuführen eines Mischgases, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, zu der Trennmembran und Bewirken, dass ein hochpermeables Gas in dem Mischgas durch die Trennmembran permeiert, um das hochpermeable Gas von dem Mischgas zu trennen. Wenn bei dem Vorgang b)  $\Delta P$  eine Differenz zwischen einem Zufuhrdruck und einem Permeatdruck ist, wobei der

Zufuhrdruck ein Gasdruck auf einer Primärseite der Trennmembran ist, der Permeatdruck ein Gasdruck auf einer Sekundärseite der Trennmembran ist und  $A$  ein Joule-Thomson-Koeffizient ist, wird eine Differenz  $\Delta T$  zwischen einer Zufuhrtemperatur und einer Permeattemperatur, wobei die Zufuhrtemperatur eine Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran ist, die Permeattemperatur eine Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  gebracht, indem eine Nu-Zahl in dem Mischgas auf größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird.

**[0010]** Nach dem vorstehend beschriebenen Mischgastrennverfahren ist es möglich, eine Abnahme der Permeanz des permeierten Gases zu unterdrücken.

**[0011]** Vorzugsweise ist bei dem Vorgang b) die Differenz  $\Delta P$  zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck größer als oder gleich 3,0 MPa.

**[0012]** Vorzugsweise ist ein Gradient eines Nu-Plots relativ zu  $U$  größer als oder gleich 1 und kleiner als oder gleich 5, wobei  $Nu$  die Nu-Zahl im Mischgas und  $U$  eine lineare Geschwindigkeit (m/s) des Mischgases ist.

**[0013]** Vorzugsweise wird die Trennmembran im Vorgang b) von einer Permeatseite aus beheizt.

**[0014]** Vorzugsweise wird bei dem Vorgang b) ein Raum auf der Permeatseite der Trennmembran von einer Umgebungsatmosphäre isoliert, die eine niedrigere Temperatur als der Raum auf der Permeatseite aufweist.

**[0015]** Vorzugsweise beträgt die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur kleiner als 60 % von  $A \cdot \Delta P$ .

**[0016]** Vorzugsweise weist die Trennmembran eine rohrartige Form auf und die Trennmembran weist einen äquivalenten Durchmesser von mehr als oder gleich 2 mm und kleiner als oder gleich 5 mm auf.

**[0017]** Vorzugsweise weist die Trennmembran eine zylinderartige Form auf, in die das Mischgas eingeleitet wird, und der äquivalente Durchmesser ist ein Innendurchmesser der Trennmembran.

**[0018]** Vorzugsweise ist die Trennmembran eine Zeolithmembran.

**[0019]** Bevorzugter ist die Zeolithmembran aus einem Zeolithen aufgebaut, der einen maximal 8-gliedrigen Ring aufweist.

**[0020]** Vorzugsweise enthält das durch die Trennmembran permeierte Gas ein kondensierbares Gas.

**[0021]** Vorzugsweise enthält das Mischgas eine oder mehrere Arten von Substanzen, ausgewählt aus einer Gruppe, bestehend aus Wasserstoff, Helium, Stickstoff, Sauerstoff, Wasser, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, Stickstoffoxiden, Ammoniak, Schwefeloxiden, Schwefelwasserstoffen, Schwefelfluoriden, Quecksilber, Arsin, Cyanwasserstoffen, Carbonylsulfiden, C1- bis C8-Kohlenwasserstoffen, organischen Säuren, Alkohol, Mercaptanen, Ester, Ether, Keton und Aldehyd.

**[0022]** Die vorliegende Erfindung ist auch für eine Mischgastrenneinrichtung bestimmt. Eine Mischgastrenneinrichtung gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält eine Trennmembran und einen Zuführer, der der Trennmembran ein Mischgas zuführt, das eine Vielzahl von Gasarten enthält. Die Trennmembran trennt ein hochpermeables Gas in dem Mischgas von dem Mischgas, indem das hochpermeable Gas durch sie hindurch geleitet wird, und wenn  $\Delta P$  eine Differenz zwischen einem Zufuhrdruck und einem Permeatdruck ist, wobei der Zufuhrdruck ein Gasdruck auf einer Primärseite der Trennmembran ist, der Permeatdruck ein Gasdruck auf einer Sekundärseite der Trennmembran ist, und  $A$  ein Joule-Thomson-Koeffizient ist, wird eine Differenz  $\Delta T$  zwischen einer Zufuhrtemperatur und einer Permeattemperatur, wobei die Zufuhrtemperatur eine Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran ist, die Permeattemperatur eine Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  gebracht, indem eine Nu-Zahl in dem Mischgas auf größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird.

**[0023]** Diese und andere Aufgaben, Merkmale, Aspekte und Vorteile der vorliegenden Erfindung werden aus der folgenden Beschreibung im Einzelnen der vorliegenden Erfindung in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen deutlicher.

## KURZBESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

**Fig. 1** ist eine Schnittdarstellung eines Trennmembrankomplexes gemäß einer Ausführungsform.

**Fig. 2** ist eine Schnittdarstellung, die einen Teil des Trennmembrankomplexes in vergrößerten Abmessungen zeigt.

**Fig. 3** zeigt eine Trenneinrichtung.

**Fig. 4** ist ein Flussdiagramm, das einen Vorgang zur Abtrennung eines Mischgases zeigt.

**Fig. 5** ist eine schematische Darstellung der Trenneinrichtung.

**Fig. 6** ist eine schematische Darstellung der Trenneinrichtung.

## BESCHREIBUNG DER AUSFÜHRUNGSFORMEN

**[0024]** **Fig. 1** ist eine Schnittdarstellung eines Trennmembrankomplexes 1 gemäß einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung. **Fig. 2** ist eine Schnittdarstellung, die einen Teil des Trennmembrankomplexes 1 in vergrößerten Abmessungen zeigt. Der Trennmembrankomplex 1 enthält einen Träger 11 und eine Trennmembran 12. In **Fig. 1** ist die Trennmembran 12 mit dicken Linien veranschaulicht. In **Fig. 2** ist die Trennmembran 12 schraffiert und die Dicke der Trennmembran 12 ist größer als die tatsächliche Dicke der Trennmembran veranschaulicht.

**[0025]** Der Träger 11 ist ein poröses Bauteil, das für Gas und Flüssigkeit durchlässig ist. In dem in **Fig. 1** gezeigten Beispiel ist der Träger 11 ein einstückig gegossenes, annähernd säulenartiges Bauteil. Der Träger 11 weist eine Vielzahl von Durchgangslöchern 111 auf, die sich jeweils in der Längsrichtung des Trägers erstrecken. Das heißt, der Träger 11 ist ein sogenanntes Monolithbauteil. Die äußere Form des Trägers 11 kann beispielsweise eine annähernd säulenartige Form aufweisen. Jedes Durchgangsloch 111 (d.h. jede Zelle) kann einen annähernd kreisartigen Querschnitt senkrecht zur Längsrichtung aufweisen. In **Fig. 1** ist der Durchmesser der Durchgangslöcher 111 größer dargestellt als der tatsächliche Durchmesser der Durchgangslöcher und die Anzahl der Durchgangslöcher 111 ist kleiner dargestellt als die tatsächliche Anzahl der Durchgangslöcher.

**[0026]** Der Träger 11 kann eine Länge (d.h. Länge in Rechts-Links-Richtung in **Fig. 1**) von z.B. 10 cm bis 200 cm aufweisen. Der Außendurchmesser des Trägers 11 kann z.B. im Bereich von 0,5 cm und 30 cm liegen. Der Abstand zwischen den Mittelachsen jedes Paares benachbarter Durchgangslöcher 111 kann z.B. im Bereich von 0,3 mm bis 10 mm liegen. Die Oberflächenrauheit ( $R_a$ ) des Trägers 11 kann z.B. im Bereich von 0,1  $\mu\text{m}$  bis 5,0  $\mu\text{m}$  und vorzugsweise von 0,2  $\mu\text{m}$  bis 2,0  $\mu\text{m}$  liegen. Es ist zu beachten, dass der Träger 11 jede andere Form aufweisen kann, wie eine Wabenform, eine flache plattenartige Form, eine rohrartige Form, eine zylinderartige Form, eine säulenartige Form oder eine Prismenform. Wenn der Träger 11 eine rohr- oder zylinderartige Form aufweist, kann die Dicke des Trägers 11 beispielsweise im Bereich von 0,1 mm bis 10 mm liegen.

**[0027]** Das Material für den Träger 11 kann aus verschiedenen Substanzen (z.B. Keramik oder Metall) aufgebaut sein, solange die Substanz während des Vorgangs der Bildung der Trennmembran 12 auf der Oberfläche chemisch stabil ist. In der vorliegenden Ausführungsform wird der Träger 11 aus einem keramischen Sinterkörper gebildet. Beispiele für keramische Sinterkörper, die als Material für den Träger 11 ausgewählt werden, sind Aluminiumoxid, Siliziumdioxid, Mullit, Zirkoniumdioxid, Titandioxid, Yttriumoxid, Siliziumnitrid und Siliziumkarbid. In der vorliegenden Ausführungsform enthält der Träger 11 mindestens eine Art von Substanzen, ausgewählt aus der Gruppe, die aus Aluminiumoxid, Siliziumdioxid und Mullit besteht.

**[0028]** Der Träger 11 kann ein anorganisches Bindematerial enthalten. Bei dem anorganischen Bindematerial kann es sich beispielsweise um mindestens eines handeln, ausgewählt aus der Gruppe, die aus Titandioxid, Mullit, leicht sinterbarem Aluminiumoxid, Siliziumdioxid, Glasfritte, Tonmineralien und leicht sinterbarem Cordierit besteht.

**[0029]** Der Träger 11 kann einen mittleren Porendurchmesser von z.B. 0,01  $\mu\text{m}$  bis 70  $\mu\text{m}$  und vorzugsweise 0,05  $\mu\text{m}$  bis 25  $\mu\text{m}$  aufweisen. Der mittlere Porendurchmesser des Trägers 11 in der Nähe der Oberfläche, auf der die Trennmembran 12 gebildet wird, kann im Bereich von 0,01  $\mu\text{m}$  bis 1  $\mu\text{m}$  und vorzugsweise 0,05  $\mu\text{m}$  bis 0,5  $\mu\text{m}$  liegen. Der mittlere Porendurchmesser kann z.B. mit einem Quecksilberporosimeter, einem Perm-Porometer oder einem Nano-Perm-Porometer gemessen werden. In Bezug auf die Porengrößenverteilung des Trägers 11 insgesamt, einschließlich der Oberfläche und des Inneren, kann  $D_5$  beispielsweise im

Bereich von 0,01 µm bis 50 µm liegen, D50 kann beispielsweise im Bereich von 0,05 µm bis 70 µm liegen und D95 kann beispielsweise im Bereich von 0,1 µm bis 2000 µm liegen. Der Träger 11 kann in der Nähe der Oberfläche, auf der die Trennmembran 12 gebildet wird, eine Porosität von z.B. 20 % bis 60 % aufweisen.

**[0030]** Der Träger 11 kann beispielsweise eine Mehrschichtstruktur aufweisen, bei der eine Vielzahl von Schichten mit unterschiedlichen mittleren Porendurchmessern in Dickenrichtung übereinander geschichtet sind. Der mittlere Porendurchmesser und die Größe der gesinterten Teilchen in einer Oberflächenschicht, die die Oberfläche enthält, auf der die Trennmembran 12 gebildet wird, sind kleiner als jene in Schichten, die von der Oberflächenschicht verschieden sind. Der mittlere Porendurchmesser in der Oberflächenschicht des Trägers 11 kann z.B. im Bereich von 0,01 µm bis 1 µm und vorzugsweise von 0,05 µm bis 0,5 µm liegen. Weist der Träger 11 eine Mehrschichtstruktur auf, so kann das Material für jede Schicht aus einer der vorstehend beschriebenen Substanzen aufgebaut sein. Die Schichten, die die Mehrschichtstruktur bilden, können aus demselben Material oder aus verschiedenen Materialien aufgebaut sein.

**[0031]** Die Trennmembran 12 ist eine annähernd zylinderartige dünne Membran, die annähernd auf den gesamten Innenoberflächen der Durchgangslöcher 111 des Trägers 11 ausgebildet ist. Die Trennmembran 12 ist eine dichte, poröse Membran mit Mikroporen. Die Trennmembran 12 ist in der Lage, ein bestimmtes Gas von einem Mischgas aus einer Vielzahl von Gasarten durch Verwendung einer Molekularsiebfunktion zu trennen.

**[0032]** In der vorliegenden Ausführungsform ist die Trennmembran 12 eine Zeolithmembran. Die Zeolithmembran bezieht sich auf mindestens einen Zeolith, der auf der Oberfläche des Trägers 11 zu einer Membran geformt ist, und nicht auf Zeolithteilchen, die lediglich in einer organischen Membran dispergiert sind. Wie vorstehend beschrieben, kann die Zeolithmembran als Trennmembran zur Trennung einer bestimmten Substanz aus einem Mischgas verwendet werden. Die Zeolithmembran ist weniger durchlässig für andere Gase als das bestimmte Gas. Mit anderen Worten, die Permeanz der Zeolithmembran für die anderen Gase ist geringer als die Permeanz der Zeolithmembran für das vorstehend genannte bestimmte Gas. Es ist zu beachten, dass die Zeolithmembran zwei oder mehr Arten von Zeolithen mit unterschiedlichen Strukturen oder Zusammensetzungen enthalten kann.

**[0033]** Der Innendurchmesser einer annähernd zylinderartigen Trennmembran 12, die in jedem Durchgangslöcher 111 angeordnet ist (d.h. der Innendurchmesser der Durchgangslöcher 11), kann beispielsweise größer als oder gleich 2 mm und vorzugsweise größer als oder gleich 2,5 mm sein. Es gibt keine besonderen Beschränkungen für die Obergrenze des Innendurchmessers der Trennmembran 12, aber der obere Grenzwert kann z.B. kleiner als oder gleich 5 mm und vorzugsweise kleiner als oder gleich 4 mm sein.

**[0034]** Obwohl in der vorliegenden Ausführungsform die Trennmembran 12 eine annähernd zylinderartige Form aufweist, wie vorstehend beschrieben, kann die Querschnittsform der Trennmembran 12 senkrecht zur Längsrichtung eine nicht kreisartige, rohrartige Form sein (z.B. eine annähernd elliptische oder rechteckige Form). Auf diese Weise kann der äquivalente Durchmesser der Trennmembran 12 in dem Fall, dass die Trennmembran 12 eine rohrartige Form aufweist, beispielsweise größer als oder gleich 2 mm und vorzugsweise größer als oder gleich 2,5 mm sein. Der äquivalente Durchmesser kann beispielsweise auch kleiner als oder gleich 5 mm und vorzugsweise kleiner als oder gleich 4 mm sein. Der äquivalente Durchmesser ergibt sich aus dem Vierfachen der inneren Querschnittsfläche der Trennmembran 12 geteilt durch den benetzten Umfang der Trennmembran 12 (in diesem Fall der innere Umfang) in einem Teilabschnitt senkrecht zur Längsrichtung der Trennmembran 12. Da die Trennmembran 12 in der vorliegenden Ausführungsform eine annähernd zylinderartige Form aufweist, entspricht der vorgenannte äquivalente Durchmesser dem Innendurchmesser der Trennmembran 12.

**[0035]** Die Dicke der Trennmembran 12 kann beispielsweise im Bereich von 0,05 µm bis 30 µm, vorzugsweise 0,1 µm bis 20 µm und bevorzugter 0,5 µm bis 10 µm liegen. Eine Vergrößerung der Dicke der Trennmembran 12 verbessert die Trennleistung. Eine Verringerung der Dicke der Trennmembran 12 erhöht die Permeanz. Die Oberflächenrauigkeit (Ra) der Trennmembran 12 kann beispielsweise kleiner als oder gleich 5 µm, vorzugsweise kleiner als oder gleich 2 µm, bevorzugter kleiner als oder gleich 1 µm und noch bevorzugter kleiner als oder gleich 0,5 µm betragen.

**[0036]** Die Porengrößen der in der Trennmembran 12 enthaltenen Zeolithkristalle (im Folgenden auch einfach als „Porengrößen in der Trennmembran 12“ bezeichnet) sind größer als oder gleich 0,2 nm und kleiner als oder gleich 0,8 nm, bevorzugter größer als oder gleich 0,3 nm und kleiner als oder gleich 0,7 nm und noch weiter bevorzugter größer als oder gleich 0,3 nm und kleiner als oder gleich 0,45 nm. Sind die Porengrößen

ßen in der Trennmembran 12 kleiner als 0,2 nm, so kann die Menge des durch die Trennmembran 12 hindurchtretenden Gases vermindert sein, während die Trennmembran 12 in dem Fall, in dem die Porengrößen in der Trennmembran 12 größer als 0,8 nm sind, eine unzureichende Gasselektivität aufweisen kann. Die Porengrößen in der Trennmembran 12 beziehen sich auf die Durchmesser (Nebenachsen) der kleinen Poren in einer Richtung, die ungefähr senkrecht zum maximalen Durchmesser der kleinen Poren in den Zeolithkristallen der Trennmembran 12 verläuft (d.h. Hauptachsen, die den maximalen Wert für den Abstand zwischen Sauerstoffatomen annehmen). Die Porengrößen in der Trennmembran 12 sind kleiner als der mittlere Porendurchmesser in der Oberfläche des Trägers 11, auf dem die Trennmembran 12 gebildet ist.

**[0037]** Wenn die Zeolithmembran 12 aus einem Zeolith aufgebaut ist, in dem ein n-gliedriger Ring maximal ist, wird die Nebenachse der n-gliedrigen Ringpore als Porengröße in der Zeolithmembran 12 angenommen. In dem Fall, dass der Zeolith eine Vielzahl von Arten von n-gliedrigen Ringporen aufweist, wobei n die gleiche Zahl ist, wird die Nebenachse der n-gliedrigen Ringporen, die die größten Nebenachsen aufweisen, als Porengröße in der Zeolithmembran 12 angenommen. Man beachte, dass der n-gliedrige Ring sich auf einen Ring bezieht, in dem die Anzahl der Sauerstoffatome, die das Gerüst einer Pore bilden, n ist und jedes Sauerstoffatom an ein später beschriebenes T-Atom gebunden ist, um eine cyclische Struktur zu bilden. Der n-gliedrige Ring bezieht sich auch auf einen Ring, der ein Durchgangsloch (Kanal) bildet, und nicht auf einen Ring, der kein Durchgangsloch bildet. Die n-gliedrige Ringpore bezieht sich auf eine kleine Pore, die aus einem n-gliedrigen Ring besteht. Unter dem Gesichtspunkt der Verbesserung der Selektivität kann die vorstehend beschriebene Zeolithmembran 12 vorzugsweise einen Zeolith enthalten, der maximal 8- oder kleiner Ringglieder aufweist (z.B. Zeolith mit 6 oder 8 +Ringgliedern).

**[0038]** Die Porengrößen in der Trennmembran 12, bei der es sich um eine Zeolithmembran handelt, werden eindeutig durch die Gerüststruktur des Zeoliths bestimmt und aus den in der „Database of Zeolite Structures“ [online], von der International Zeolite Association, Internet <URL:<http://www.iza-structure.org/databases/>> offengelegten Werten erhalten.

**[0039]** Es gibt keine besonderen Beschränkungen hinsichtlich der Art des Zeoliths der Zeolithmembran 12 und Beispiele für den Zeolith enthalten AEI-, AEN-, AFN-, AFV-, AFX-, BEA-, CHA-, DDR-, ERI-, ETL-, FAU- (X-Typ, Y-Typ), GIS-, IHW-, LEV-, LTA-, LTJ-, MEL-, MFI-, MOR-, PAU-, RHO-, SOD- und SAT-Zeolithen. Handelt es sich bei dem Zeolithen um einen Zeolithen mit 8 Ringen, so gehören zu den Zeolithen beispielsweise AEI-, AFN-, AFV-, AFX-, CHA-, DDR-, ERI-, ETL-, GIS-, IHW-, LEV-, LTA-, LTJ-, RHO- und SAT-Zeolithe.

**[0040]** Der Zeolith der Trennmembran 12 kann beispielsweise mindestens eines von Silizium (Si), Aluminium (Al) und Phosphor (P) als T-Atome enthalten (d.h. Atome, die sich im Zentrum eines Sauerstofftetraeders (TO<sub>4</sub>) befinden, das den Zeolith bildet). Der Zeolith der Trennmembran 12 kann zum Beispiel ein Zeolith sein, der nur Silizium (Si) als T-Atome enthält oder der Si und Al als T-Atome enthält, ein Zeolith vom AIPO-Typ, der Al und P als T-Atome enthält, ein Zeolith vom SAPO-Typ, der Si, Al und P als T-Atome enthält, ein Zeolith vom MAPSO-Typ, der Magnesium (Mg), Si, Al und P als T-Atome enthält, oder ein Zeolith vom ZnAPSO-Typ, der Zink (Zn), Si, Al und P als T-Atome enthält. Einige der T-Atome können durch andere Elemente ersetzt werden.

**[0041]** Die Zeolithmembran 12 kann z.B. Si enthalten. Beispielsweise kann die Zeolithmembran 12 zwei oder mehr von Si, Al und P enthalten. Die Zeolithmembran 12 kann Alkalimetall enthalten. Das Alkalimetall kann z.B. Natrium (Na) oder Kalium (K) sein. Wenn die Zeolithmembran 12 Si- und Al-Atome enthält, kann das Si/Al-Verhältnis in der Zeolithmembran 12 beispielsweise größer als oder gleich eins und kleiner als oder gleich hunderttausend sein. Das Si/Al-Verhältnis bezieht sich auf das Molverhältnis der in der Zeolithmembran 12 enthaltenen Si- und Al-Elemente. Das Si/Al-Verhältnis kann vorzugsweise höher als oder gleich 5, bevorzugter höher als oder gleich 20 und noch bevorzugter höher als oder gleich 100 sein. Ein höheres Si/Al-Verhältnis ist bevorzugter. Das Si/Al-Verhältnis in der Zeolithmembran 12 kann z.B. durch Anpassung des Compoundierungsverhältnisses zwischen einer Si- und einer Al-Quelle in einer Ausgangsmateriallösung eingestellt werden, die später beschrieben wird.

**[0042]** In dem Trennmembrankomplex 1 kann die Trennmembran 12 zusätzlich zu der Zeolithmembran eine andere Membran als die Zeolithmembran enthalten. Alternativ kann die Trennmembran 12 auch eine andere Membran als die Zeolithmembran sein.

**[0043]** Nachfolgend wird die Trennung eines Mischgases unter Verwendung des Trennmembrankomplexes 1 unter Bezugnahme auf die **Fig. 3** und **Fig. 4** beschrieben. **Fig. 3** ist ein Diagramm, das eine Mischgastren-

neinrichtung 2 zeigt (im Folgenden einfach als „Trenneinrichtung 2“ bezeichnet). **Fig. 4** ist ein Flussdiagramm, das den Vorgang zur Trennung eines Mischgases durch die Trenneinrichtung 2 zeigt.

**[0044]** Die Trenneinrichtung 2 führt dem Trennmembrankomplex 1 ein Mischgas zu, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, und veranlasst ein hochpermeables Gas im Mischgas, durch den Trennmembrankomplex 1 zu permeieren, um das hochpermeable Gas vom Mischgas zu trennen. Die Trennung durch die Trenneinrichtung 2 kann zum Zweck der Extraktion eines Gases mit hoher Permeabilität (im Folgenden auch als „hochpermeables Gas“ bezeichnet) aus dem Mischgas oder zum Zweck der Kondensation eines Gases mit niedriger Permeabilität (im Folgenden als „niedrigerpermeables Gas“ bezeichnet) durchgeführt werden. Die Trenneinrichtung 2 kann beispielsweise zur Trennung eines Abgases verwendet werden, das bei der integrierten Kohlevergasung mit kombinierter Stromerzeugung (IGCC) ausgestoßen wird.

**[0045]** Das Mischgas kann beispielsweise eine oder mehrere Arten von Substanzen enthalten, ausgewählt aus der Gruppe, die aus Wasserstoff ( $H_2$ ), Helium (He), Stickstoff ( $N_2$ ), Sauerstoff ( $O_2$ ), Wasser ( $H_2O$ ), Wasserdampf ( $H_2O$ ), Kohlenmonoxid (CO), Kohlendioxid ( $CO_2$ ), Stickoxiden, Ammoniak ( $NH_3$ ), Schwefeloxiden, Schwefelwasserstoffen ( $H_2S$ ), Schwefelfluoriden, Quecksilber (Hg), Arsin ( $AsH_3$ ), Cyanwasserstoffen (HCN), Carbonylsulfiden (COS), C1- bis C8-Kohlenwasserstoffen, organischen Säuren, Alkohol, Mercaptanen, Ester, Ether, Ketonen und Aldehyden besteht. Bei der vorstehend genannten hochpermeablen Substanz kann es sich beispielsweise um eine oder mehrere Arten von Substanzen handeln, ausgewählt aus der Gruppe, die aus  $H_2$ , He,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NH_3$  und  $H_2S$  besteht.

**[0046]** Stickstoffoxide sind Verbindungen aus Stickstoff und Sauerstoff. Bei den genannten Stickstoffoxiden kann es sich beispielsweise um Gas mit der Bezeichnung  $NO_x$  wie Stickstoffmonoxid (NO), Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ), Distickstoffoxid (auch als Distickstoffmonoxid bezeichnet) ( $N_2O$ ), Distickstofftrioxid ( $N_2O_3$ ), Distickstofftetroxid ( $N_2O_4$ ) oder Distickstoffpentoxid ( $N_2O_5$ ) handeln.

**[0047]** Schwefeloxide sind Verbindungen aus Schwefel und Sauerstoff. Bei den genannten Schwefeloxiden kann es sich beispielsweise um Gas mit der Bezeichnung  $SO_x$  wie Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) oder Schwefeltrioxid ( $SO_3$ ) handeln.

**[0048]** Schwefelfluoride sind Verbindungen aus Fluor und Schwefel. Bei den genannten Schwefelfluoriden kann es sich beispielsweise um Dischwefeldifluorid (F-S-S-F,  $S=SF_2$ ), Schwefeldifluorid ( $SF_2$ ), Schwefeltetrafluorid ( $SF_4$ ), Schwefelhexafluorid ( $SF_6$ ) oder Dischwefeldekafluorid ( $S_2F_{10}$ ) handeln.

**[0049]** C1- bis C8-Kohlenwasserstoffe sind Kohlenwasserstoffe, die ein oder mehrere und acht oder weniger Kohlenstoffatome enthalten. Bei den C3- bis C8-Kohlenwasserstoffen kann es sich jeweils um eine geradkettige Verbindung, eine Seitenkettenverbindung oder eine cyclische Verbindung handeln. C2- bis C8-Kohlenwasserstoffe können sowohl gesättigte Kohlenwasserstoffe (d.h. ohne Doppelbindungen und Dreifachbindungen in den Molekülen) als auch ungesättigte Kohlenwasserstoffe (d.h. mit Doppelbindungen und/oder Dreifachbindungen in den Molekülen) sein. C1- bis C4-Kohlenwasserstoffe können beispielsweise Methan ( $CH_4$ ), Ethan ( $C_2H_6$ ), Ethylen ( $C_2H_4$ ), Propan ( $C_3H_8$ ), Propylen ( $C_3H_6$ ), Normalbutan ( $CH_3(CH_2)_2CH_3$ ), Isobuten ( $CH(CH_3)_3$ ), 1-Buten ( $CH_2=CHCH_2CH_3$ ), 2-Buten ( $CH_3CH=CHCH_3$ ) oder Isobuten ( $CH_2=C(CH_3)_2$ ) sein.

**[0050]** Bei den vorgenannten organischen Säuren kann es sich beispielsweise um Carbonsäure oder Sulfonsäure handeln. Die Carbonsäure kann z.B. Ameisensäure ( $CH_2O_2$ ), Essigsäure ( $C_2H_4O_2$ ), Oxalsäure ( $C_2H_2O_4$ ), Acrylsäure ( $C_3H_4O_2$ ) oder Benzoesäure ( $C_6H_5COOH$ ) sein. Bei der Sulfonsäure kann es sich zum Beispiel um Ethansulfonsäure ( $C_2H_6O_3S$ ) handeln. Bei der organischen Säure kann es sich um eine Kettenverbindung oder um eine cyclische Verbindung handeln.

**[0051]** Bei dem genannten Alkohol kann es sich beispielsweise um Methanol ( $CH_3OH$ ), Ethanol ( $C_2H_5OH$ ), Isopropanol (2-Propanol) ( $CH_3CH(OH)CH_3$ ), Ethylenglykol ( $CH_2(OH)CH_2(OH)$ ) oder Butanol ( $C_4H_9OH$ ) handeln.

**[0052]** Mercaptane sind organische Verbindungen mit endständigen Schwefelhydriden (SH) und werden auch als Thiol oder Thioalkohol bezeichnet. Bei den genannten Mercaptanen kann es sich beispielsweise um Methylmercaptan ( $CH_3SH$ ), Ethylmercaptan ( $C_2H_5SH$ ) oder 1-Propanthiol ( $C_3H_7SH$ ) handeln.

**[0053]** Bei dem vorgenannten Ester kann es sich beispielsweise um Ameisensäureester oder Essigsäureester handeln.

**[0054]** Bei dem vorgenannten Ether kann es sich beispielsweise um Dimethylether ((CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>O), Methylethylether (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OCH<sub>3</sub>) oder Diethylether ((C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>O) handeln.

**[0055]** Bei dem vorgenannten Keton kann es sich beispielsweise um Aceton ((CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CO), Methylethylketon (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>COCH<sub>3</sub>) oder Diethylketon ((C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>CO) handeln.

**[0056]** Bei dem genannten Aldehyd kann es sich zum Beispiel um Acetaldehyd (CH<sub>3</sub>CHO), Propionaldehyd (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>CHO) oder Butanal (Butyraldehyd) (C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>CHO) handeln.

**[0057]** Die Trenneinrichtung 2 enthält den Trennmembrankomplex 1, eine Versiegelungsvorrichtung 21, ein Gehäuse 22, zwei Versiegelungsbauteile 23, einen Zuführer 26, einen ersten Sammler 27 und einen zweiten Sammler 28. Der Trennmembrankomplex 1, die Versiegelungsvorrichtung 21 und die Versiegelungsbauteile 23 befinden sich in dem Gehäuse 22. Der Zuführer 26, der erste Sammler 27 und der zweite Sammler 28 sind außerhalb des Gehäuses 22 angeordnet und mit dem Gehäuse 22 verbunden.

**[0058]** Die Versiegelungsvorrichtung 21 ist ein Bauteil, das an beiden Enden des Trägers 11 in der Längsrichtung (d.h. in der Links-Rechts-Richtung in **Fig. 3**) angebracht ist, um beide Endflächen des Trägers 11 in der Längsrichtung und die Außenoberfläche des Trägers 11 in der Nähe der beiden Endflächen abzudecken und abzudichten. Die Versiegelungsvorrichtung 21 verhindert das Ein- und Ausströmen von Gas und Flüssigkeit aus den beiden Endflächen des Trägers 11. Die Versiegelungsvorrichtung 21 kann zum Beispiel ein plattenartiges oder membranartiges Bauteil aus Glas oder einem Harz sein. Material und Form der Versiegelungsvorrichtung 21 können in geeigneter Weise geändert werden. Zu beachten ist, dass die Versiegelungsvorrichtung 21 eine Vielzahl von Öffnungen aufweist, die die Vielzahl von Durchgangslöchern 111 des Trägers 11 überlappen, so dass beide Enden in Längsrichtung jedes Durchgangslochs 111 des Trägers 11 nicht mit der Versiegelungsvorrichtung 21 bedeckt sind. Dies ermöglicht das Einströmen und Ausströmen von Gas und Flüssigkeit von den beiden Enden jedes Durchgangslochs 111 in das und aus dem Durchgangsloch.

**[0059]** Die Form des Gehäuses 22 unterliegt keinen besonderen Beschränkungen und das Gehäuse 22 kann beispielsweise ein annähernd zylinderartiges, rohrartiges Bauteil sein. Das Gehäuse 22 kann zum Beispiel aus rostfreiem Stahl oder Kohlenstoffstahl aufgebaut sein. Die Längsrichtung des Gehäuses 22 ist ungefähr parallel zur Längsrichtung des Trennmembrankomplexes 1. Ein Ende in Längsrichtung des Gehäuses 22 (d.h. das Ende auf der linken Seite in **Fig. 3**) ist mit einer Zufuhröffnung 221 versehen und das andere Ende ist mit einer ersten Auslassöffnung 222 versehen. Die Seitenfläche des Gehäuses 22 ist mit einer zweiten Auslassöffnung 223 versehen. Die Zufuhröffnung 221 ist mit dem Zuführer 26 verbunden. Die erste Auslassöffnung 222 ist mit dem ersten Sammler 27 verbunden. Die zweite Auslassöffnung 223 ist mit dem zweiten Sammler 28 verbunden. Der Innenraum des Gehäuses 22 ist ein geschlossener Raum, der von dem das Gehäuse 22 umgebenden Raum isoliert ist.

**[0060]** Die beiden Versiegelungsbauteile 23 sind entlang des gesamten Umfangs zwischen der Außenfläche des Trennmembrankomplexes 1 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 in der Nähe der beiden Enden des Trennmembrankomplexes 1 in Längsrichtung angeordnet. Jedes Versiegelungsbauteil 23 ist ein annähernd ringartiges Bauteil, das aus einem für Gas und Flüssigkeit undurchlässigen Material aufgebaut ist. Bei den Versiegelungsbauteilen 23 kann es sich zum Beispiel um O-Ringe handeln, die aus einem flexiblen Harz aufgebaut sind. Die Versiegelungsbauteile 23 stehen in engem Kontakt mit der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 entlang des gesamten Umfangs. In dem in **Fig. 3** gezeigten Beispiel stehen die Versiegelungsbauteile 23 in engem Kontakt mit der Außenoberfläche der Versiegelungsvorrichtung 21 und in indirektem engem Kontakt mit der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 über die Versiegelungsvorrichtung 21. Der Teil zwischen den Versiegelungsbauteilen 23 und der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 sowie der Teil zwischen den Versiegelungsbauteilen 23 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 sind so abgedichtet, dass die Permeation von Gas und Flüssigkeit nahezu oder vollständig verhindert wird.

**[0061]** Der Zuführer 26 führt dem Innenraum des Gehäuses 22 über die Zufuhröffnung 221 ein Mischgas zu. Der Zuführer 26 kann beispielsweise einen Pumpmechanismus wie ein Gebläse oder eine Pumpe enthalten, der das Mischgas in das Gehäuse 22 pumpt. Der Pumpmechanismus kann beispielsweise einen Temperaturregler und einen Druckregulator enthalten, die die Temperatur bzw. den Druck des dem Gehäuse 22 zuzuführenden Mischgases steuern. Der erste Sammler 27 und der zweite Sammler 28 können z.B. ein Reservoir für das vom Gehäuse 22 gelieferte Gas oder ein Gebläse oder eine Pumpe zur Förderung dieses Gases enthalten.

**[0062]** Bei der Trennung des Mischgases wird zunächst der Trennmembrankomplex 1 hergestellt (Schritt S11 in Fig. 4). Insbesondere wird der Trennmembrankomplex 1 an der Innenseite des Gehäuses 22 angebracht. Dann wird das Mischgas, das eine Vielzahl von Gasarten mit unterschiedlicher Permeabilität in der Zeolithmembran 12 enthält, vom Zuführer 26 in das Innere des Gehäuses 22 geleitet, wie durch einen Pfeil 251 angezeigt. Das Mischgas kann beispielsweise hauptsächlich aus  $\text{CO}_2$  und  $\text{N}_2$  aufgebaut sein. Das Mischgas kann auch ein anderes Gas als  $\text{CO}_2$  und  $\text{N}_2$  enthalten. Der Druck des vom Zuführer 26 in das Innere des Gehäuses 22 zugeführten Mischgases (d.h. der Zufuhrdruck, der ein Gasdruck auf der Primärseite der Trennmembran 12 ist) kann beispielsweise im Bereich von 0,1 MPaG bis 20,0 MPaG liegen. Die Temperatur des vom Zuführer 26 gelieferten Mischgases kann z.B. im Bereich von 10°C bis 250°C und vorzugsweise 20°C bis 150°C liegen.

**[0063]** Das vom Zuführer 26 dem Gehäuse 22 zugeführte Mischgas wird vom linken Ende des Trennmembrankomplexes 1 in der Zeichnung in jedes Durchgangsloch 111 des Trägers 11 (d.h. in die Innenseite der etwa zylinderartigen Trennmembran 12) eingeleitet. Ein hochpermeables Gas im Mischgas, d.h. ein hochpermeables Gas, wird von der Außenoberfläche des Trägers 11 durch die Trennmembran 12 abgeleitet, die an der Innenoberfläche jedes Durchgangslochs 111 und des Trägers 11 ausgebildet ist. Dementsprechend wird das hochpermeable Gas (z.B.  $\text{CO}_2$ ) von einem niedrigpermeablen Gas im Mischgas, d.h. einem Gas mit niedriger Permeabilität (z.B.  $\text{N}_2$ ), getrennt (Schritt S12).

**[0064]** Das von der Außenoberfläche des Trägers 11 abgeleitete Gas (im Folgenden auch als „permeiertes Gas“ bezeichnet) wird über die zweite Auslassöffnung 223 zum zweiten Sammler 28 geleitet, wie durch einen Pfeil 253 angezeigt, und vom zweiten Sammler 28 aufgefangen. Der Druck des vom zweiten Sammler 28 gesammelten Gases (d.h. der Permeatdruck, der ein Gasdruck auf der Sekundärseite der Trennmembran 12 ist) kann beispielsweise 0,0 MPaG betragen. Mit anderen Worten, die Differenz zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck kann z.B. im Bereich von 0,1 MPa bis 20,0 MPa liegen. Vorzugsweise kann die Differenz zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck größer als oder gleich 3,0 MPa sein. Das permeierte Gas kann zusätzlich zu dem vorstehend erwähnten hochpermeablen Gas ein niedrigpermeables Gas enthalten, das durch die Trennmembran 12 permeiert ist.

**[0065]** Im Mischgas dringt ein anderes Gas als das Gas, das durch die Trennmembran 12 und den Träger 11 hindurchgetreten ist (im Folgenden auch als „nichtpermeiertes Gas“ bezeichnet), durch jedes Durchgangsloch 111 des Trägers 11 von der linken Seite zur rechten Seite in der Zeichnung und wird durch den ersten Sammler 27 über die erste Auslassöffnung 222 gesammelt, wie durch einen Pfeil 252 angezeigt. Der Druck des vom ersten Sammler 27 gesammelten Gases kann beispielsweise ungefähr gleich dem Zufuhrdruck sein. Das nicht-permeierte Gas kann zusätzlich zu dem vorstehend erwähnten niedrigpermeablen Gas auch ein hochpermeables Gas enthalten, das nicht durch die Trennmembran 12 permeiert ist. Beispielsweise kann das vom ersten Sammler 27 gesammelte nicht-permeierte Gas vom Zuführer 26 umgewälzt und dem Inneren des Gehäuses 22 wieder zugeführt werden.

**[0066]** Wie vorstehend beschrieben, wird bei der Trennung des Mischgases unter hohen Differenzdruckbedingungen, bei denen eine große Differenz zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck besteht, die Temperatur des Gases, das die Trennmembran durchdrungen hat, üblicherweise durch den Joule-Thomson-Effekt (auch JT-Effekt genannt) vermindert. Dadurch wird die Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran, d.h. die Permeattemperatur (d.h. die Temperatur des permeierten Gases), niedriger als die Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran, d.h. die Zufuhrtemperatur (d.h. die Temperatur des Mischgases). Mit anderen Worten, die Temperatur des permeierten Gases wird durch den Joule-Thomson-Effekt niedriger als die Temperatur des Mischgases.

**[0067]** Auf diese Weise besteht bei einem Temperaturabfall des durch die Trennmembran permeierenden Gases die Gefahr einer Verschlechterung der Gasdiffusionseigenschaften der Trennmembran und einer Abnahme der Permeabilität. Wenn das Mischgas ein kondensierbares Gas enthält, besteht auch die Gefahr einer Verringerung der Permeanz als Folge der Kondensation des Gases, dessen Temperatur während der Permeation des Gases durch die Trennmembran gesunken ist, und der daraus resultierenden Verstopfung der Poren in der Trennmembran. Das hier verwendete kondensierbare Gas bezieht sich auf ein Gas, dessen Siedepunkt oder Sublimationspunkt bei normalem atmosphärischem Druck höher als oder gleich minus 80°C ist (z.B.  $\text{CO}_2$  oder Kohlenwasserstoff). Wird hingegen die Temperatur des Mischgases erhöht, um die Gaskondensation oder dergleichen zu unterdrücken, wird das hochpermeable Gas im Allgemeinen weniger in den Poren der Oberfläche der Trennmembran adsorbierbar. Die Permeation des hochpermeablen Gases durch die Poren wird durch Diffusion des hochpermeablen Gases innerhalb der Poren nach der Adsorption

in den Poren auf der Oberfläche der Trennmembran erreicht. Auch in diesem Fall besteht die Gefahr einer Abnahme der Permeanz.

**[0068]** Im Ergebnis sorgfältiger Untersuchungen haben die Erfinder der vorliegenden Anmeldung herausgefunden, dass es möglich ist, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts während der Permeation durch die Trennmembran 12 zu verringern und dadurch eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas zu unterdrücken, ohne einen übermäßigen Temperaturanstieg im Mischgas zu verursachen, wenn die Voraussetzungen so bestimmt werden, dass die Nusselt-Zahl (Nu-Zahl) im Mischgas in einem geeigneten Bereich liegt. Um eine Abnahme der Permeanz zu unterdrücken, muss die Nu-Zahl im Mischgas größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 sein. In diesem Fall wird die Differenz  $\Delta T$  (°C) zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  (°C). Dabei steht A für den Joule-Thomson-Koeffizienten und  $\Delta P$  für den Wert, den man durch Subtraktion des Permeatdrucks vom Zufuhrdruck erhält.

**[0069]** Die Nu-Zahl ist ein Indikator, der den Grad der Zunahme der Wärmeübertragungsfähigkeit eines Fluids im Vergleich zum stationären Zustand angibt. Je höher die Nu-Zahl in dem der Trennmembran 12 zugeführten Mischgas ist, desto größer ist die Wärmeübertragungsfähigkeit des Mischgases. Wenn die Strömung des der Trennmembran 12 zugeführten Mischgases turbulent ist, kann die Nu-Zahl wie folgt ausgedrückt werden:

$$Nu = 0,023Re^{4/5}Pr^{1/3} \quad (\text{Ausdruck 1})$$

$$Re = U \cdot d/v \quad (\text{Ausdruck 2})$$

$$Pr = v/k \quad (\text{Ausdruck 3})$$

**[0070]** In den Ausdrücken 1 bis 3 steht Nu für die Nu-Zahl, Re für die Reynolds-Zahl (Re-Zahl) und Pr für die Prandtl-Zahl (Pr-Zahl). Außerdem steht U für die lineare Geschwindigkeit (m/s) des der Trennmembran 12 zugeführten Mischgases und d steht für den Innendurchmesser (m) der annähernd zylinderartigen Trennmembran 12, der eine Bezugslänge ist. Wenn die Trennmembran 12 eine nicht kreisartige, rohrartige Querschnittsform senkrecht zur Längsrichtung aufweist, gibt die Bezugslänge d den vorstehend beschriebenen äquivalenten Durchmesser (m) der Trennmembran 12 an, wie vorstehend erwähnt. Darüber hinaus steht v für die kinematische Viskosität (m<sup>2</sup>/s) des Mischgases und k für die Wärmeleitfähigkeit (J/(s-m-k)) des Mischgases.

**[0071]** Bei der Abtrennung des Mischgases durch den vorgenannten Trennmembrankomplex 1 kann die Differenz  $\Delta T$  (°C) zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur vorzugsweise kleiner als 60 % von  $A \cdot \Delta P$  (°C) und bevorzugter kleiner als 10 % von  $A \cdot \Delta P$  (°C) unter dem Gesichtspunkt der weiteren Unterdrückung einer Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas betragen.

**[0072]** Bei der Trennung des Mischgases durch den vorstehend erwähnten Trennmembrankomplex 1 kann der Gradient, wenn Nu unter Verwendung von U als horizontaler Achse aufgetragen wird (d.h. der Gradient einer durch die Methode der kleinsten Quadrate erhaltenen Näherungsgeraden: im Folgenden auch als „Gradient des Nu(gegen)U-Plots“ bezeichnet), vorzugsweise größer als oder gleich 1 und bevorzugter größer als oder gleich 1,2 sein. Wenn der Gradient des Nu(gegen)U-Plots größer als oder gleich 1 ist, ist es möglich, die Nu-Zahl durch eine nur geringfügige Änderung der linearen Geschwindigkeit (d.h. der Zufuhrgeschwindigkeit) des der Trennmembran 12 zugeführten Mischgases stark zu verändern. Die Steigung des Nu(gegen)U-Plots kann vorzugsweise kleiner als oder gleich 5 und bevorzugter kleiner als oder gleich 4 sein. Durch die Einstellung des Gradienten des Nu-(gegen)U-Plots auf kleiner als oder gleich 5 ist es möglich, übermäßige Variationen der Nu-Zahl als Reaktion auf Variationen der Zufuhrgeschwindigkeit des Mischgases zu unterdrücken und eine hochpräzise Steuerung der Nu-Zahl zu erleichtern. Man beachte, dass der Gradient des Nu (gegen)U-Plots auch als „Gradient des Nu-Plots relativ zu U“ bezeichnet wird.

**[0073]** Wie in Fig. 5 gezeigt, kann die vorstehend beschriebene Trenneinrichtung 2 weiterhin ein Heizteil 241 enthalten, das die Trennmembran 12 von der Permeatseite des permeierten Gases aus beheizt (d.h. die Trennmembran 12 von der Seite des Trägers 11 aus beheizt). Dadurch wird das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des vorstehend beschriebenen Joule-Thomson-Effekts weiter vermindert. In dem in Fig. 5 gezeigten Beispiel bedeckt das Heizteil 241 ungefähr die gesamte Außenoberfläche des Gehäuses 22. Bei dem Heizteil 241 kann es sich beispielsweise um einen elektrothermischen Flächen-

heizer oder um einen Heizer handeln, der einen Strömungspfad aufweist, um ein erwärmtes Fluid entlang der Außenoberfläche des Gehäuses 22 zu leiten.

**[0074]** Die Temperatur des Heizteils 241 kann beispielsweise die gleiche sein wie die Temperatur des Mischgases, das der Trennmembran 12 zugeführt wird (d.h. die Zufuhrtemperatur). Die Temperatur des Heizteils 241 kann auch höher als oder niedriger als die Zufuhrtemperatur sein. Ist die Temperatur des Heizteils 241 niedriger als die Zufuhrtemperatur, kann die Differenz zwischen der Zufuhrtemperatur und der Temperatur des Heizteils 241 beispielsweise kleiner als oder gleich  $5^{\circ}\text{C}$  sein. Die Temperatur des Heizteils 241 ist höher als die Temperatur des permeierten Gases, das durch die Trennmembran 12 hindurchgetreten ist, ohne durch das Heizteil 241 erwärmt zu werden, und die Differenz zwischen der Temperatur des Heizteils 241 und der Temperatur des permeierten Gases kann beispielsweise größer als oder gleich  $10^{\circ}\text{C}$  sein.

**[0075]** Wie in **Fig. 6** gezeigt, kann die vorstehend beschriebene Trenneinrichtung 2 weiterhin einen Wärmeisulator 242 enthalten, der den Raum auf der Permeatseite der Trennmembran 12 (d.h. den Raum, der sich radial außerhalb der Außenoberfläche des Trägers 11 innerhalb des Gehäuses 22 befindet) von der umgebenden Atmosphäre isoliert, die eine niedrigere Temperatur aufweist als der Raum auf der Permeatseite (d.h. die Atmosphäre außerhalb des Gehäuses 22). Auch in diesem Fall ist es möglich, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des vorstehend beschriebenen Joule-Thomson-Effekts weiter zu vermindern. In dem in **Fig. 6** gezeigten Beispiel bedeckt der Wärmeisulator 242 etwa die gesamte Außenoberfläche des Gehäuses 22. Der Wärmeisulator 242 kann zum Beispiel aus einem wärmeisolierenden Material aufgebaut sein. Es ist zu beachten, dass der Wärmeisulator 242 und das vorgenannte Heizteil 241 zusammen in der Trenneinrichtung 2 vorgesehen sein können. In diesem Fall kann z.B. ein Teil der Außenoberfläche des Gehäuses 22 mit dem Heizteil 241 und das verbleibende Teil der Außenoberfläche mit dem Wärmeisulator 242 bedeckt sein.

**[0076]** Nachfolgend wird die Beziehung zwischen der Nu-Zahl im Mischgas und einem Temperaturabfall im permeierten Gas unter Bezugnahme auf die Tabellen 1 und 2 beschrieben. In den Beispielen 1 bis 7 und den Vergleichsbeispielen 1 bis 3 wurde ein Mischgas, das 50 Volumenprozent  $\text{CO}_2$  und 50 Volumenprozent  $\text{N}_2$  enthält, der Trenneinrichtung 2 zugeführt. Ein hochpermeables Gas im Mischgas war  $\text{CO}_2$  und ein niedrigpermeables Gas war  $\text{N}_2$ .

Tabelle 1

	Differenzdruck $\Delta P$	Heizen	Wärmeisolation	Nu-Zahl	Umgebungstemperatur	Zufuhrtemperatur	Permeattemperatur
	(MPa)				( $^{\circ}\text{C}$ )	( $^{\circ}\text{C}$ )	( $^{\circ}\text{C}$ )
Beispiel 1	8	gemacht	gemacht	9	0	60	57
Beispiel 2	8	gemacht	gemacht	5	0	60	55
Beispiel 3	8	-	-	5	0	60	40
Beispiel 4	8	gemacht	gemacht	2	0	60	30
Beispiel 5	8	-	gemacht	2	0	60	25
Beispiel 6	4	gemacht	gemacht	5	0	40	35
Vergleichsbeispiel 1	8	-	-	1,5	0	60	2
Vergleichsbeispiel 2	4	-	-	1,5	0	40	5

Tabelle 2

	Permeanz	$A \cdot \Delta P$	Temperaturdifferenz $\Delta T$	$\Delta T / (A \cdot \Delta P)$
	( $\text{nMol/m}^2\text{s} \cdot \text{Pa}$ )	( $^{\circ}\text{C}$ )	( $^{\circ}\text{C}$ )	(%)
Beispiel 1	102	64	3	5
Beispiel 2	100	64	5	8
Beispiel 3	80	64	20	31

	Permeanz	A·ΔP	Temperaturdifferenz ΔT	ΔT/(A·ΔP)
	(nMol/m <sup>2</sup> ·s·Pa)	(°C)	(°C)	(%)
Beispiel 4	70	64	30	47
Beispiel 5	60	64	35	55
Beispiel 6	75	38	5	13
Vergleichsbeispiel 1	30	64	58	91
Vergleichsbeispiel 2	35	38	35	92

Tabelle 3

Beispiel 7		Vergleichsbeispiel 3	
Lineare Geschwindigkeit U (m/s)	Nu	Lineare Geschwindigkeit U (m/s)	Nu
1	2,3	1	1,3
2	3,7	2	2,1
3	5,6	3	3,2

**[0077]** In Tabelle 1 stellt der „Differenzdruck ΔP“ die Differenz zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck in der Trenneinrichtung 2 dar, wie vorstehend beschrieben. Im Feld „Heizen“ zeigt „gemacht“ an, dass das Heizteil 241 ein Heizen durchgeführt hat (siehe **Fig. 5**), und „-“ zeigt an, dass das Heizteil 241 kein Heizen durchgeführt hat. Im Feld „Wärmeisolation“ zeigt „gemacht“ an, dass der Wärmeisolator 242 eine Wärmeisolation durchgeführt hat (siehe **Fig. 6**), und „-“ zeigt an, dass der Wärmeisolator 242 keine Wärmeisolation durchgeführt hat. Die Erwärmungstemperatur durch das Heizteil 241 betrug 60°C. Als Wärmeisolator 242 wurde ein wärmeisolierendes Material mit einer Dicke von 20 mm und Wärmeisolationseigenschaften (Wärmeleitfähigkeit) von 0,05 W/(m·K) verwendet. Die Temperatur um die Trenneinrichtung 2 (im Folgenden auch als „Umgebungstemperatur“ bezeichnet) betrug 0°C. In Tabelle 1 wurde die „Nu-Zahl“ anhand der vorstehend beschriebenen Ausdrücke 1 bis 3 ermittelt.

**[0078]** In Tabelle 2 stellt „Permeanz“ die Permeanz für das hochpermeable Gas (d.h. CO<sub>2</sub>) dar, die durch Messung des permeierten Gases mit einem Massendurchflussmesser (MFM) und einem Gaschromatographen ermittelt wurde. „Temperaturdifferenz ΔT“ ist die Differenz zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur in Tabelle 1.

**[0079]** In Beispiel 1 betrug der Differenzdruck ΔP 8,0 MPa und das Heizen und die Wärmeisolation wurden durch das Heizteil 241 bzw. den Wärmeisolator 242 durchgeführt. Die Nu-Zahl des Mischgases wurde auf 9 und die Zufuhrtemperatur auf 60°C eingestellt. Infolgedessen betrug die Permeattemperatur 57°C und ΔT war 3°C. Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten A war 8, A·ΔP war 64°C und ΔT war 5% von A·ΔP. Mit anderen Worten: ΔT/(A·ΔP) betrug 5%. Die Permeanz betrug 102 nMol/(m<sup>2</sup>·s·Pa) und war hoch.

**[0080]** Beispiel 2 war das gleiche wie Beispiel 1, außer, dass die Nu-Zahl auf 5 gesetzt wurde. Die Permeattemperatur betrug 55°C und ΔT war 5°C. Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten A war 8, A·ΔP war 64°C und ΔT war 8% von A·ΔP. Die Permeanz betrug 100 nMol/(m<sup>2</sup>·s·Pa) und war hoch.

**[0081]** Beispiel 3 war das gleiche wie Beispiel 2, außer, dass weder das vorstehend beschriebene Heizen noch die Wärmeisolation durchgeführt wurden. Die Permeattemperatur betrug 40°C und ΔT war 20°C. Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten A war 8, A·ΔP war 64°C und ΔT war 31% von A·ΔP. Die Permeanz betrug 80 nMol/(m<sup>2</sup>·s·Pa) und war hoch.

**[0082]** Beispiel 4 war das gleiche wie Beispiel 1, außer, dass die Nu-Zahl auf 2 gesetzt wurde. Die Permeattemperatur betrug 30°C und ΔT war 30°C. Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten A war 8, A·ΔP war 64°C und ΔT war 47% von A·ΔP. Die Permeanz betrug 70 nMol/(m<sup>2</sup>·s·Pa) und war hoch.

**[0083]** Beispiel 5 war das gleiche wie Beispiel 4, außer, dass das vorstehend beschriebene Heizen nicht durchgeführt wurde. Die Permeattemperatur betrug 25°C und ΔT war 35°C. Der Wert des Joule-Thomson-

Koeffizienten  $A$  war 8,  $A \cdot \Delta P$  war  $64^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war 55% von  $A \cdot \Delta P$ . Die Permeanz betrug  $60 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$  und war hoch.

**[0084]** Beispiel 6 war das gleiche wie Beispiel 2, außer, dass der Differenzdruck  $\Delta P$  auf  $4,0 \text{ MPa}$  und die Zufuhrtemperatur auf  $40^\circ\text{C}$  eingestellt wurde. Die Permeattemperatur betrug  $35^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war  $5^\circ\text{C}$ . Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten  $A$  war 9,5,  $A \cdot \Delta P$  war  $38^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war 13% von  $A \cdot \Delta P$ . Die Permeanz betrug  $75 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$  und war hoch.

**[0085]** Vergleichsbeispiel 1 war das gleiche wie Beispiel 3, außer, dass die Nu-Zahl auf 1,5 gesetzt wurde. Die Permeattemperatur betrug  $2^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war  $58^\circ\text{C}$ . Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten  $A$  war 8,  $A \cdot \Delta P$  war  $64^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war 91% von  $A \cdot \Delta P$ . Die Permeanz war  $30 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$  und niedrig.

**[0086]** Vergleichsbeispiel 2 war das gleiche wie Beispiel 6, außer, dass weder das vorstehend beschriebene Heizen noch die Wärmeisolation durchgeführt wurden und dass die Nu-Zahl auf 1,5 gesetzt wurde. Die Permeattemperatur betrug  $5^\circ\text{C}$  und  $\Delta T$  war  $35^\circ\text{C}$ . Der Wert des Joule-Thomson-Koeffizienten  $A$  war 9,5,  $A \cdot \Delta P$  war 38 und  $\Delta T$  war 92% von  $A \cdot \Delta P$ . Die Permeanz betrug  $35 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$  und war niedriger als in Beispiel 6.

**[0087]** In den Beispielen 1 bis 6 wurde  $\Delta T$  kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  erreicht, indem die Nu-Zahl auf größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wurde. Somit kann eine Abnahme der Permeanz im Vergleich zu den Vergleichsbeispielen 1 und 2 (die Nu-Zahl war kleiner als 2) unterdrückt werden, bei denen  $\Delta T$  höher als oder gleich 90 % von  $A \cdot \Delta P$  war. In den Beispielen 1 bis 6 betrug  $\Delta T$  außerdem kleiner als 60 % von  $A \cdot \Delta P$ . Somit kann eine Abnahme der Permeanz im Vergleich zu den Vergleichsbeispielen 1 und 2 stark unterdrückt werden.

**[0088]** Mit Blick auf die Beispiele 1 bis 5, in denen der Differenzdruck  $\Delta P$   $8 \text{ MPa}$  betrug, war die Permeanz in den Beispielen 1 und 2, in denen  $\Delta T$  kleiner als 10 %  $A \cdot \Delta P$  war, war höher als oder gleich  $100 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$  und höher als die Permeanz in den Beispielen 3 bis 5 ( $60 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$ ) bis  $80 \text{ nMol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa})$ ), in denen  $\Delta T$  10% mehr als  $A \cdot \Delta P$  war. Dementsprechend kann eine Abnahme der Permeanz weiter unterdrückt werden, indem  $\Delta T$  auf kleiner als 10 % von  $A \cdot \Delta P$  eingestellt wird.

**[0089]** In Beispiel 2 unterdrückte das Heizen durch das Heizteil 241 und die Wärmeisolation durch den Wärmeisolator 242 weiter eine Abnahme der Permeanz im Vergleich zu Beispiel 3 (in dem weder das vorstehend beschriebene Heizen noch die Wärmeisolation durchgeführt wurde). In Beispiel 4 unterdrückte das Heizen durch das Heizteil 241 weiter eine Abnahme der Permeanz im Vergleich zu Beispiel 5 (in dem die vorstehend beschriebene Erwärmung nicht durchgeführt wurde).

**[0090]** In Beispiel 7 wurde der Innendurchmesser der Trennmembran 12 auf  $2 \text{ mm}$  eingestellt und die lineare Geschwindigkeit  $U$  des der Trennmembran 12 zugeführten Mischgases wurde im Bereich von  $1,0 \text{ m/s}$  bis  $3,0 \text{ m/s}$  variiert. Der Differenzdruck  $\Delta P$  wurde auf  $4,0 \text{ MPa}$  eingestellt. In Fällen, in denen die lineare Geschwindigkeit  $U$   $1,0 \text{ m/s}$ ,  $2,0 \text{ m/s}$  und  $3,0 \text{ m/s}$  betrug, lag die Nu-Zahl bei 2,3, 3,7 bzw. 5,6. Der Gradient des Nu (gegen)U-Plots (d.h. der Gradient des Nu-Plots relativ zu  $U$ ) war 1,5 und größer als oder gleich 1 und kleiner als oder gleich 5.

**[0091]** Das Vergleichsbeispiel 3 war das gleiche wie Beispiel 7, außer, dass der Innendurchmesser der Trennmembran 12 auf  $1 \text{ mm}$  festgelegt wurde. In Fällen, in denen die lineare Geschwindigkeit  $U$   $1,0 \text{ m/s}$ ,  $2,0 \text{ m/s}$  und  $3,0 \text{ m/s}$  betrug, war die Nu-Zahl 1,3, 2,1 bzw. 3,2. Der Gradient des Nu (gegen) U-Plots (d.h. der Gradient des Nu-Plots relativ zu  $U$ ) war 0,85 und kleiner als 1.

**[0092]** In Beispiel 7 ist es möglich, die Nu-Zahl durch Einstellen des Gradienten des Nu(gegen)U-Plots im Bereich von 1 bis 5 effizient zu erhöhen, indem die lineare Geschwindigkeit leicht erhöht wird, verglichen mit Vergleichsbeispiel 3, bei dem der Gradient des Nu(gegen)U-Plots kleiner als 1 war. Dementsprechend ist es selbst im Falle der Abtrennung eines großen Mischgasstroms möglich, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts durch eine nur geringfügige Erhöhung der linearen Geschwindigkeit des Mischgases zu verringern.

**[0093]** Obwohl bei dem vorstehend beschriebenen Mischgastrennverfahren das Mischgas der Innenseite der Trennmembran 12 zugeführt wird, kann das Mischgas beispielsweise von der Außenseite der rohrartigen Trennmembran 12 zugeführt werden, die auf der Außenoberfläche eines rohrartigen Trägers ausgebildet ist. In diesem Fall wird der äquivalente Durchmesser eines Strömungsweges des Mischgases außerhalb der

Trennmembran 12 als die vorstehend beschriebene Bezugslänge  $d$  (m) verwendet, die zur Ermittlung der Nu-Zahl eingesetzt wird. Der äquivalente Durchmesser ergibt sich aus der Division der vierfachen Querschnittsfläche des Strömungsweges des Mischgases außerhalb der Trennmembran 12 durch den benetzten Umfang der Trennmembran 12 (in diesem Fall die Summe des äußeren Umfangs der Trennmembran 12 und des inneren Umfangs des Gehäuses 22) in einem Teilabschnitt senkrecht zur Längsrichtung der Trennmembran 12. In beiden Fällen, in denen das Mischgas von der Innenseite oder der Außenseite der Trennmembran 12 zugeführt wird, wird das Mischgas der Oberflächenseite auf der dem Träger 11 der Trennmembran 12 gegenüberliegenden Seite zugeführt und durchdringt den Träger 11, nachdem es die Trennmembran 12 durchdrungen hat.

**[0094]** Wie vorstehend beschrieben, enthält das Mischgastrennverfahren den Schritt des Herstellens der Trennmembran 12 (Schritt S11) und den Schritt des Zuführens eines Mischgases, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, zu der Trennmembran 12 und des Bewirkens, dass ein Gas mit höherer Permeabilität (d.h. hochpermeables Gas) in dem Mischgas durch die Trennmembran 12 permeiert, um das hochpermeable Gas von dem Mischgas zu trennen (Schritt S12). Wenn in Schritt S12,  $\Delta P$  die Differenz zwischen dem Zufuhrdruck, d.h. dem Gasdruck auf der Primärseite der Trennmembran 12, und dem Permeatdruck, d.h. dem Gasdruck auf der Sekundärseite der Trennmembran 12, ist, und  $A$  der Joule-Thomson-Koeffizient ist, wird die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur, die die Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran 12 ist, und der Permeattemperatur, die die Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran 12 ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  gebracht, indem die Nu-Zahl im Mischgas größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird.

**[0095]** Auf diese Weise kann bei dem Mischgastrennverfahren das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts während der Permeation der Trennmembran 12 vermindert werden, indem die Nu-Zahl größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird, ohne einen übermäßigen Anstieg der Zufuhrtemperatur des Mischgases zu verursachen. Mit anderen Worten, die Temperaturdifferenz  $\Delta T$ , d.h. die Differenz zwischen der Zufuhrtemperatur und der vorstehend beschriebenen Permeattemperatur, wird verringert. Dadurch wird die Verschlechterung der Diffusionseigenschaften des permeierten Gases in den Poren der Trennmembran 12 unterdrückt, wodurch gleichzeitig die Wahrscheinlichkeit verringert wird, dass die Adsorption des hochpermeablen Gases an der Trennmembran 12 gehemmt wird. Dadurch wird auch das Schließen der Poren in der Trennmembran 12 aufgrund von Gaskondensation unterdrückt. Infolgedessen ist es möglich, eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas zu unterdrücken.

**[0096]** Vorzugsweise kann in Schritt S12 die Differenz (d.h. der Differenzdruck)  $\Delta P$  zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck höher als oder gleich 3,0 MPa sein. Bei dem vorstehend beschriebenen Mischgastrennverfahren ist es möglich, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts zu verringern und eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas zu unterdrücken. Daher eignet sich dieses Verfahren insbesondere für die Abtrennung eines Mischgases unter hohen Differenzdruckbedingungen, bei denen ein relativ großer Temperaturabfall durch den Joule-Thomson-Effekt wahrscheinlich ist.

**[0097]** Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass der Gradient des Nu-Plots relativ zu  $U$  größer als oder gleich 1 und kleiner als oder gleich 5 ist, wobei  $Nu$  die Nu-Zahl im Mischgas und  $U$  die lineare Geschwindigkeit (m/s) des Mischgases ist. Auf diese Weise kann die Nu-Zahl durch eine leichte Erhöhung der linearen Geschwindigkeit effizient erhöht werden. Dementsprechend ist es selbst bei der Abscheidung eines großen Mischgasstroms möglich, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts durch eine nur geringfügige Erhöhung der linearen Geschwindigkeit des Mischgases günstiger zu gestalten. Infolgedessen ist es möglich, eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas zu unterdrücken und eine schnelle Trennung eines großen Mischgasstroms zu ermöglichen.

**[0098]** Wie vorstehend beschrieben, kann die Trennmembran 12 in Schritt S12 vorzugsweise von der Permeatseite aus beheizt werden. Dadurch wird das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts weiter vermindert.

**[0099]** In Schritt S12 kann der Raum auf der Permeatseite der Trennmembran 12 vorzugsweise von der Umgebungsatmosphäre isoliert werden, die eine niedrigere Temperatur als der Raum auf der Permeatseite aufweist. Auch in diesem Fall ist es möglich, das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts weiter zu vermindern.

**[0100]** Wie vorstehend beschrieben, kann die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur vorzugsweise kleiner als 60 % von  $A \cdot \Delta P$  betragen. Dadurch wird eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas weiter unterdrückt.

**[0101]** Vorzugsweise kann die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur kleiner als 10 % von  $A \cdot \Delta P$  betragen. Dadurch wird eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas, wie in den Beispielen 1 und 2 gezeigt, weiter unterdrückt.

**[0102]** Wie vorstehend beschrieben, kann die Trennmembran 12 vorzugsweise eine rohrartige Form aufweisen und einen äquivalenten Durchmesser von mehr als oder gleich 2 mm und kleiner als oder gleich 5 mm aufweisen. Dadurch kann das Mischgas, das der Innen- oder Außenseite der Trennmembran 12 zugeführt wird, leicht eine turbulente Strömung bilden und stellt die Nu-Zahl im Mischgas leicht größer als oder gleich 2 ein.

**[0103]** Bevorzugter kann die Trennmembran 12 eine zylinderartige Form aufweisen, in die das Mischgas eingeleitet wird, und der vorstehend beschriebene äquivalente Durchmesser kann dem Innendurchmesser der Trennmembran 12 entsprechen. Dadurch kann das der Innenseite der Trennmembran 12 zugeführte Mischgas leicht eine turbulente Strömung bilden und die Nu-Zahl im Mischgas leicht größer als oder gleich 2 werden.

**[0104]** Wie vorstehend beschrieben, kann die Trennmembran 12 vorzugsweise eine Zeolithmembran sein. Durch die Konfiguration der Trennmembran 12 aus Zeolithkristallen mit einheitlichen Molekülgrößen kann eine selektive Permeation einer zu permeierenden Substanz vorteilhaft erreicht werden. Dadurch ist es möglich, die zu permeierende Substanz effizient aus dem Mischgas abzutrennen.

**[0105]** Bevorzugter kann die Trennmembran 12 aus einem Zeolithen aufgebaut sein, der einen maximal 8-gliedrigen Ring aufweist. Dadurch wird vorteilhaft eine selektive Permeation einer zu permeierenden Substanz mit relativ kleinen Molekülgrößen, wie  $H_2$  oder  $CO_2$ , erreicht und eine effiziente Abtrennung der zu permeierenden Substanz aus einem Substanzgemisch ermöglicht.

**[0106]** Das vorstehend beschriebene Gastrennverfahren kann das Auftreten eines Temperaturabfalls im permeierten Gas aufgrund des Joule-Thomson-Effekts verringern. Daher eignet sich dieses Verfahren insbesondere für den Fall, dass das durch die Trennmembran 12 permeierte Gas ein kondensierbares Gas enthält (d.h. für den Fall, dass die Poren der Trennmembran 12 aufgrund der Kondensation des permeierten Gases geschlossen sein können).

**[0107]** Das vorstehend beschriebene Verfahren zur Gastrennung eignet sich insbesondere für Fälle, in denen das Mischgas eine oder mehrere Arten von Substanzen enthält, ausgewählt aus der Gruppe, die aus Wasserstoff, Helium, Stickstoff, Sauerstoff, Wasser, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, Stickstoffoxiden, Ammoniak, Schwefeloxiden, Schwefelwasserstoffen, Schwefelfluoriden, Quecksilber, Arsin, Cyanwasserstoffen, Carbonylsulfiden, C1- bis C8-Kohlenwasserstoffen, organischen Säuren, Alkohol, Mercaptanen, Ester, Ether, Keton und Aldehyd besteht.

**[0108]** Die vorstehend beschriebene Trenneinrichtung 2 enthält die Trennmembran 12 und den Zuführer 26, der der Trennmembran 12 ein Mischgas zuführt, das eine Vielzahl von Gasarten enthält. Die Trennmembran 12 trennt ein hochpermeables Gas (d.h. ein Gas mit hoher Permeabilität) im Mischgas vom Mischgas, indem sie das hochpermeable Gas durchlässt. Wenn  $\Delta P$  die Differenz zwischen dem Zufuhrdruck, d.h. dem Gasdruck auf der Primärseite der Trennmembran 12, und dem Permeatdruck, d.h. dem Gasdruck auf der Sekundärseite der Trennmembran 12, und  $A$  der Joule-Thomson-Koeffizient ist, wird die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur, die die Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran 12 ist, und der Permeattemperatur, die die Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran 12 ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  eingestellt, indem die Nu-Zahl im Mischgas größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 ist. Dadurch wird eine Abnahme der Permeanz für das hochpermeable Gas in der gleichen Weise wie vorstehend beschrieben unterdrückt.

**[0109]** Das vorstehend beschriebene Mischgastrennverfahren und die Trenneinrichtung 2 können auf verschiedene Weise modifiziert werden.

**[0110]** Wenn die Trennmembran 12 beispielsweise eine rohrartige Form aufweist, kann der äquivalente Durchmesser der Trennmembran 12 kleiner als 2 mm betragen oder größer als 5 mm sein. Wenn also die

Trennmembran 12 eine annähernd zylinderartige Form aufweist, in die das Mischgas eingeleitet wird, kann der Innendurchmesser der Trennmembran 12 kleiner als 2 mm oder mehr als 5 mm betragen. Es ist zu beachten, dass die Form der Trennmembran 12 nicht auf eine rohrartige Form beschränkt ist und jede andere Form aufweisen kann (z.B. eine flache, plattenartige Form).

**[0111]** In der Trenneinrichtung 2 sind Struktur, Form und Anordnung des Wärmeisolators 242 nicht auf das vorstehend beschriebene Beispiel beschränkt und können auf verschiedene Weise modifiziert werden. Alternativ kann der Wärmeisolator 242 in der Trenneinrichtung 2 auch weggelassen werden.

**[0112]** In der Trenneinrichtung 2 sind die Struktur, die Form und die Anordnung des Heizteils 241 nicht auf das vorstehend beschriebene Beispiel beschränkt und können auf verschiedene Weise modifiziert werden. In dem Fall, in dem der Trennmembrankomplex 1 den annähernd zylinderartigen Träger 11 und die Trennmembran 12, die die Außenoberfläche des Trägers 11 bedeckt, enthält, kann das Heizteil 241 beispielsweise ein annähernd stabartiges elektrothermisches Heizelement sein, das in den Innenraum des Trägers 11 eingesetzt ist. Alternativ dazu kann das Heizteil 241 in der Trenneinrichtung 2 weggelassen werden.

**[0113]** Bei dem vorstehend beschriebenen Mischgastrennverfahren kann der Wert, der sich aus der Division der Nu-Zahl im Mischgas durch die lineare Geschwindigkeit (m/s) des Mischgases ergibt, kleiner als 1 oder größer als 5 sein.

**[0114]** Bei dem vorstehend beschriebenen Mischgastrennverfahren kann die Differenz  $\Delta P$  zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck kleiner als 3 MPa betragen.

**[0115]** Das durch das vorstehend beschriebene Mischgastrennverfahren durch die Trennmembran 12 permeierende Gas enthält nicht immer ein kondensierbares Gas.

**[0116]** Der Trennmembrankomplex 1 kann zusätzlich zu dem Träger 11 und der Trennmembran 12 eine Funktionsmembran oder eine Schutzmembran enthalten, die auf die Trennmembran 12 laminiert sind. Bei einer solchen Funktions- oder Schutzmembran kann es sich um eine Zeolithmembran, eine anorganische Membran wie eine Siliziumdioxidmembran oder eine Kohlenstoffmembran oder eine organische Membran wie eine Polyimidmembran oder eine Silikonmembran handeln.

**[0117]** Die Zeolithmembran 12 kann aus einem Zeolith aufgebaut sein, in dem ein mehr als 8-gliedriger Ring maximal ist. Die Trennmembran 12 kann auch eine andere Membran als eine Zeolithmembran sein (z.B. eine vorstehend beschriebene anorganische oder organische Membran).

**[0118]** In der vorstehend beschriebenen Trenneinrichtung 2 und dem Mischgastrennverfahren können auch andere als die in der vorstehenden Beschreibung genannten Substanzen aus einem Mischgas abgetrennt werden. Der Aufbau der Trenneinrichtung 2 ist nicht auf das vorstehend beschriebene Beispiel beschränkt und kann auf verschiedene Weise modifiziert werden.

**[0119]** Die Konfigurationen der vorstehend beschriebenen bevorzugten Ausführungsform und der Variationen können in geeigneter Weise kombiniert werden, solange es keine gegenseitigen Widersprüche gibt.

**[0120]** Obwohl die Erfindung im Einzelnen gezeigt und beschrieben wurde, ist die vorangehende Beschreibung in jeder Hinsicht erläuternd und nicht einschränkend. Es wird daher davon ausgegangen, dass zahlreiche Modifizierungen und Variationen ohne Abweichung von dem Umfang der Erfindung entwickelt werden können.

## INDUSTRIELLE ANWENDBARKEIT

**[0121]** Die vorliegende Erfindung ist für die Verwendung bei der Abtrennung eines Mischgases, wie eines Abgases, das bei der integrierten Kohlevergasungs-Kombikraftwerkserzeugung (IGCC) emittiert wird, oder jedes anderen Abgases anwendbar oder kann für die Verwendung bei der Abtrennung einer Vielzahl von Mischgasen, die kein Abgas sind, anwendbar sein.

### Bezugszeichenliste

2	Trenneinrichtung
12	Trennmembran

26

Zuführer

S11 bis S12

Schritt

**ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG**

*Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.*

**Zitierte Patentliteratur**

- JP 2021093576 [0002]
- JP 4711425 [0005]

**Patentansprüche**

1. Mischgastrennverfahren, umfassend:
  - a) Herstellung einer Trennmembran; und
  - b) Zuführen eines Mischgases, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, zu der Trennmembran und Bewirken, dass ein hochpermeables Gas in dem Mischgas durch die Trennmembran permeiert, um das hochpermeable Gas von dem Mischgas zu trennen, wobei in dem Vorgang b), wenn  $\Delta P$  eine Differenz zwischen einem Zufuhrdruck und einem Permeatdruck ist, wobei der Zufuhrdruck ein Gasdruck auf einer Primärseite der Trennmembran ist, der Permeatdruck ein Gasdruck auf einer Sekundärseite der Trennmembran ist und  $A$  ein Joule-Thomson-Koeffizient ist, eine Differenz  $\Delta T$  zwischen einer Zufuhrtemperatur und einer Permeattemperatur, wobei die Zufuhrtemperatur eine Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran ist, die Permeattemperatur eine Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  gebracht wird, indem eine Nu-Zahl in dem Mischgas auf größer als oder gleich 2 und kleiner als gleich 10 eingestellt wird.
2. Mischgastrennverfahren nach Anspruch 1, wobei bei dem Vorgang b) die Differenz  $\Delta P$  zwischen dem Zufuhrdruck und dem Permeatdruck größer als oder gleich 3,0 MPa ist.
3. Mischgastrennverfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei ein Gradient eines Nu-Plots relativ zu  $U$  größer als oder gleich 1 und kleiner als oder gleich 5 ist, wobei  $Nu$  die Nu-Zahl in dem Mischgas ist und  $U$  eine lineare Geschwindigkeit (m/s) des Mischgases ist.
4. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei bei dem Vorgang b) die Trennmembran von der Permeatseite her beheizt wird.
5. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei bei dem Vorgang b) ein Raum auf der Permeatseite der Trennmembran von einer Umgebungsatmosphäre isoliert wird, die eine niedrigere Temperatur als der Raum auf der Permeatseite aufweist.
6. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei die Differenz  $\Delta T$  zwischen der Zufuhrtemperatur und der Permeattemperatur kleiner als 60 % von  $A \cdot \Delta P$  beträgt.
7. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei die Trennmembran eine rohrartige Form aufweist, und die Trennmembran einen äquivalenten Durchmesser von größer als oder gleich 2 mm und kleiner als oder gleich 5 mm aufweist.
8. Mischgastrennverfahren nach Anspruch 7, wobei die Trennmembran eine zylinderartige Form aufweist, in die das Mischgas eingeleitet wird, und der äquivalente Durchmesser ein Innendurchmesser der Trennmembran ist.
9. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei die Trennmembran eine Zeolithmembran ist.
10. Mischgastrennverfahren nach Anspruch 9, wobei die Zeolithmembran aus einem Zeolith aufgebaut ist, der einen maximal 8-gliedrigen Ring aufweist.
11. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei ein permeiertes Gas, das durch die Trennmembran permeiert, ein kondensierbares Gas enthält.
12. Mischgastrennverfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, wobei das Mischgas eine oder mehrere Arten von Substanzen enthält, ausgewählt aus einer Gruppe, bestehend aus Wasserstoff, Helium, Stickstoff, Sauerstoff, Wasser, Wasserdampf, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, Stickstoffoxiden, Ammoniak, Schwefeloxiden, Schwefelwasserstoffen, Schwefelfluoriden, Quecksilber, Arsin, Cyanwasserstoffen, Carbonylsulfiden, C1- bis C8-Kohlenwasserstoffen, organischen Säuren, Alkohol, Mercaptanen, Ester, Ether, Keton und Aldehyd.
13. Mischgastrenneinrichtung, umfassend:  
eine Trennmembran; und  
einen Zuführer, der der Trennmembran ein Mischgas zuführt, das eine Vielzahl von Gasarten enthält,

wobei die Trennmembran ein hochpermeables Gas in dem Mischgas von dem Mischgas abtrennt, indem sie das hochpermeable Gas durch sie hindurch leitet, und wenn  $\Delta P$  eine Differenz zwischen einem Zufuhrdruck und einem Permeatdruck ist, wobei der Zufuhrdruck ein Gasdruck auf einer Primärseite der Trennmembran ist, der Permeatdruck ein Gasdruck auf einer Sekundärseite der Trennmembran ist und  $A$  ein Joule-Thomson-Koeffizient ist, eine Differenz  $\Delta T$  zwischen einer Zufuhrtemperatur und einer Permeattemperatur, wobei die Zufuhrtemperatur eine Gastemperatur auf der Primärseite der Trennmembran ist, die Permeattemperatur eine Gastemperatur auf der Sekundärseite der Trennmembran ist, auf kleiner als 90 % von  $A \cdot \Delta P$  gebracht wird, indem eine Nu-Zahl in dem Mischgas auf größer als oder gleich 2 und kleiner als oder gleich 10 eingestellt wird.

Es folgen 3 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

Fig. 1

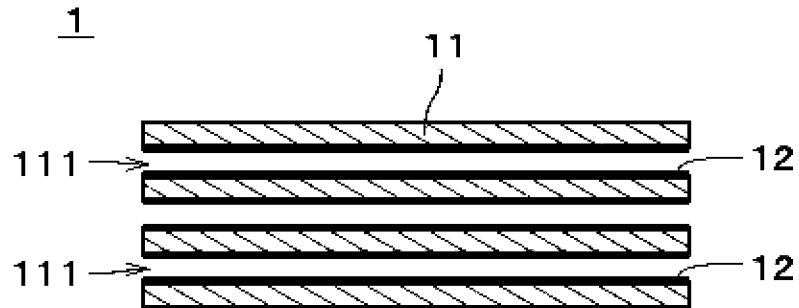


Fig. 2

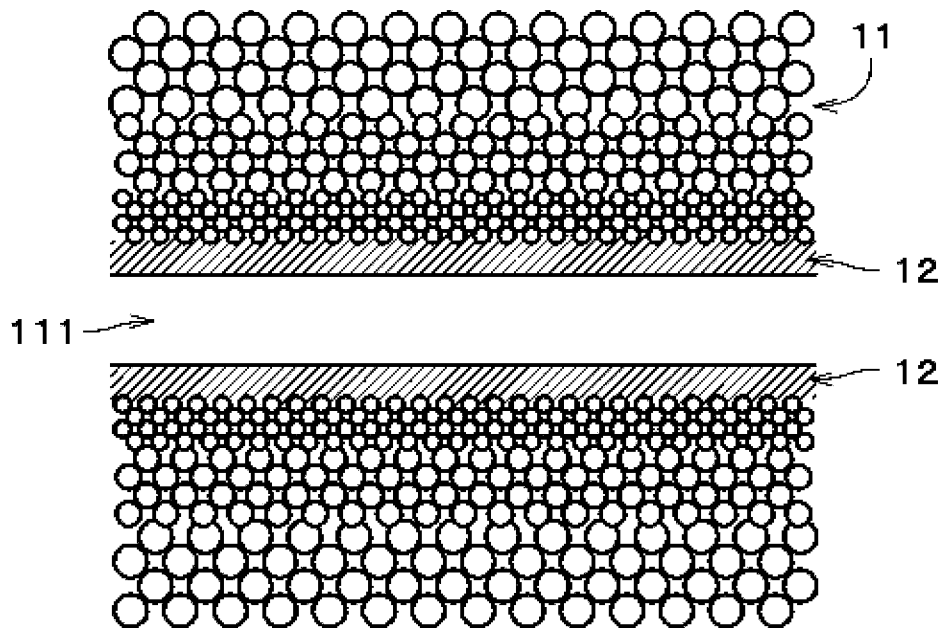


Fig. 3

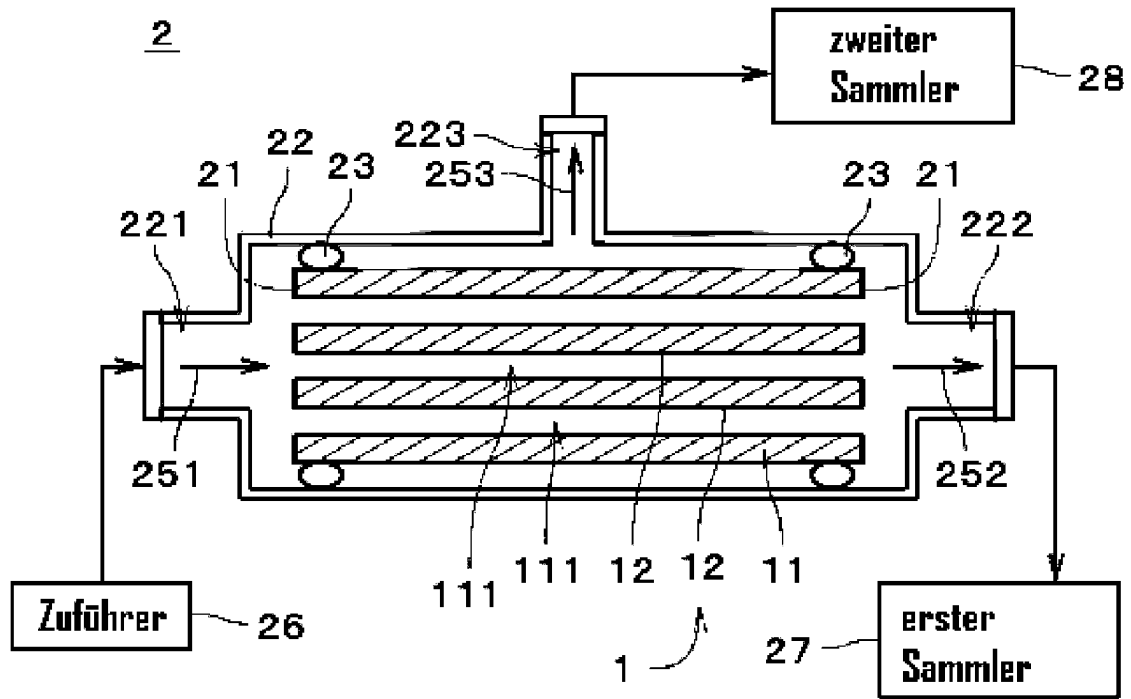


Fig. 4

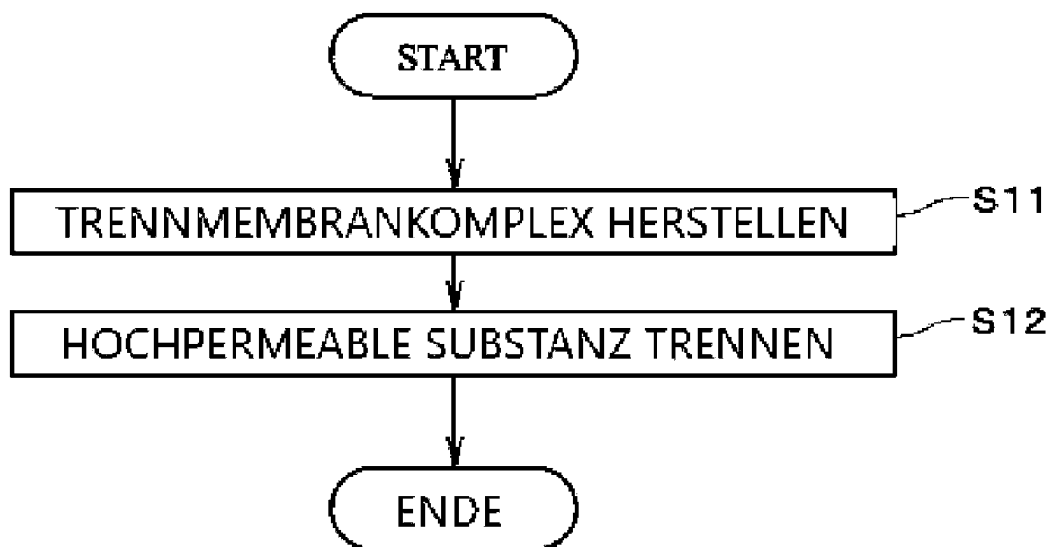


Fig. 5

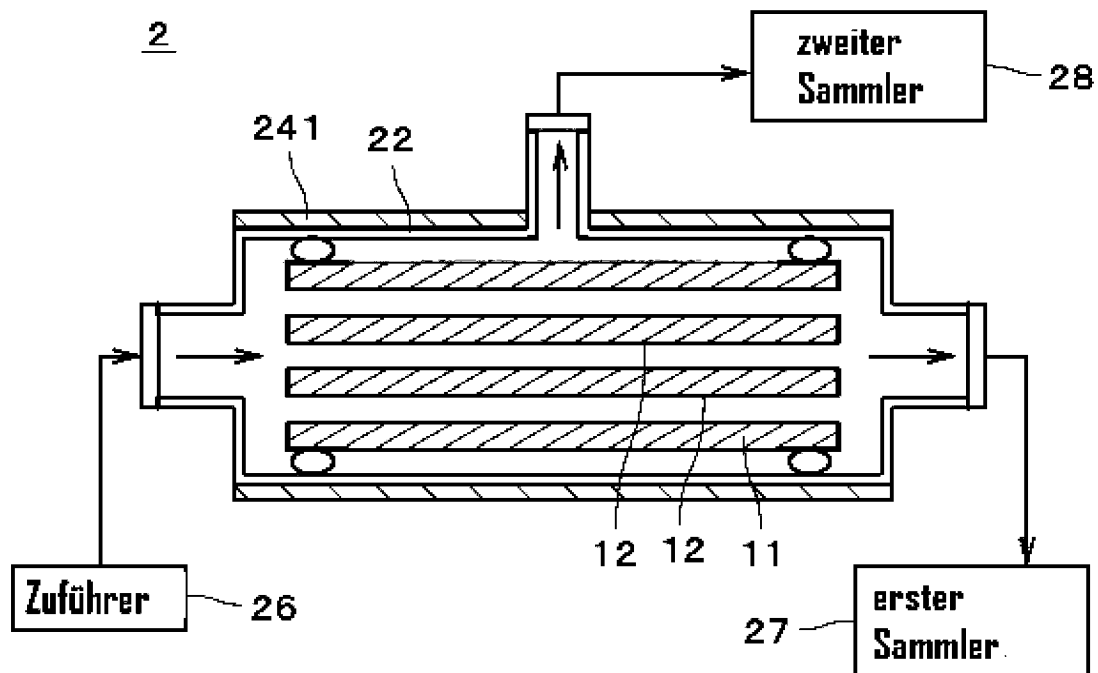


Fig. 6

