

(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10月8日(08.10.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/203994 A1

(51) 国際特許分類:
C10L 3/10 (2006.01) *B01D 53/22* (2006.01)

口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 宇
部興産株式会社内 Yamaguchi (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/014656

(22) 国際出願日: 2020年3月30日(30.03.2020)

(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 2019-068933 2019年3月29日(29.03.2019) JP

(71) 出願人: 宇部興産株式会社(**UBE INDUSTRIES, LTD.**) [JP/JP]; 〒7558633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 Yamaguchi (JP).

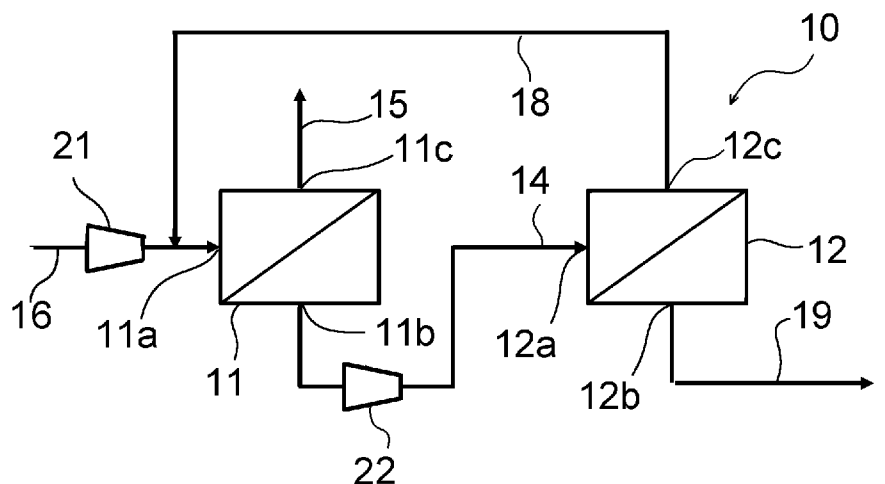
(72) 発明者: 中村 智英(**NAKAMURA, Tomohide**); 〒7558633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 6 宇部興産株式会社内 Yamaguchi (JP).
福田 叙彦(**FUKUDA, Nobuhiko**); 〒7558633 山

(74) 代理人: 特許業務法人 翔和国際特許事務所 (**SHOWA INTERNATIONAL PATENT FIRM**); 〒1070052 東京都港区赤坂二丁目 5 番 7 号 N I K K E N 赤坂ビル 7 階 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, 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.

(54) Title: GAS SEPARATION SYSTEM

(54) 発明の名称: ガス分離システム



(57) **Abstract:** This gas separation system (10) has: a first gas separation membrane unit (11) and a second gas separation membrane unit (12); a stock gas feed line (16) which is connected to a gas inlet (11a) of the unit (11); a first compression means (21) interposed in the line (16); a first connection line (14) for connecting a permeated gas discharge port (11b) of the unit (11), and a gas inlet port (12a) of the unit (12); and a second connection line (18) for connecting a non-permeated gas discharge port (12c) of the unit (12) and the line (16). The units (11, 12) have a gas separation selectivity (P'_{CO_2}/P'_{CH_4}) of at least 30 and a CH_4 recovery rate of at least 98%. The CO_2 content in the non-permeated gas within the unit (11) is at most 5 mol%. The flow rate of gas fed to the unit (12) is at most 60% of that of the stock gas fed to the unit (11).

(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:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: ガス分離システム (10) は、第1ガス分離膜ユニット (11) 及び第2ガス分離膜ユニット (12) と、該ユニット (11) のガス入口 (11a) に連結する原料ガス供給ライン (16) と、該ライン (16) に介在配置した第1圧縮手段 (21) とユニット (11) の透過ガス排出口 (11b) とユニット (12) のガス入口 (12a) とを連結する第1連結ライン (14) と、ユニット (12) の非透過ガス排出口 (12c) とライン (16) とを連結する第2連結ライン (18) とを有し、ユニット (11) 及びユニット (12) のガス分離選択性 (P'_{CO_2}/P'_{CH_4}) が30以上、 CH_4 回収率が98%以上、ユニット (11) の非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下、ユニット (12) に供給されるガス流量が、ユニット (11) に供給される原料ガス流量の60%以下である。

明 細 書

発明の名称： ガス分離システム

技術分野

[0001] 本発明は、二酸化炭素（ CO_2 ）及びメタン（ CH_4 ）を含む原料ガスから、複数のガス分離膜ユニットを用いて CH_4 富化ガスを製造するガス分離システムに関する。

背景技術

[0002] CO_2 及び CH_4 を含む原料ガスを各ガスに分離する方法として、膜に対するこれらのガスの透過速度の差を利用した膜分離法が知られている。この方法では通常、非透過ガスを回収することにより、目的ガスである高純度の CH_4 富化ガスを得ることができる。原料ガスに含まれる CO_2 及び CH_4 の膜に対する単位膜面積・単位時間・単位分圧差あたりの透過体積である透過速度は、 P'_{CO_2} 及び P'_{CH_4} （単位は、 $\times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ ）で表すことができる。また、 CO_2 及び CH_4 の膜のガス分離選択性はこれら透過速度の比、 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ （高透過性ガスの透過速度／低透過性ガスの透過速度）で表すことができる。

[0003] 一般に、ガス分離膜は、ガス選択透過性を有するガス分離膜を、少なくともガス入口、透過ガス排出口、非透過ガス排出口が備えられている容器内に収容してなるガス分離膜モジュールとして使用されている。ガス分離膜は、そのガス供給側とガス透過側の空間が隔離されるように、容器内に装着されている。ガス分離システムにおいては、所要の膜面積とするために、一般に複数のガス分離膜モジュールを並列に組み合わせたガス分離膜ユニットとして使用される。ガス分離膜ユニットを構成する複数のガス分離膜モジュールは、ガス入口、非透過ガス排出口、透過ガス排出口を共用するため、ガス分離膜ユニットは、実質的に膜面積が大きいガス分離膜モジュールとして作用する。

[0004] 目的とする CH_4 を高純度かつ高回収率で回収するために、ガス分離膜ユニ

ットを多段階に備えたガス分離システムを用いる方法として、例えば図3に示すような2段の分離システム10'が従来用いられている。図3のシステム10'は、2つのガス分離膜ユニット11'、12'を備えたガス分離システムである。このガス分離システム10'では、原料となる混合ガスが第1ガス分離膜ユニット11'に供給され、該第1ガス分離膜ユニット11'からの非透過ガスが第2ガス分離膜ユニット12'に供給され、第2ガス分離膜ユニット12'からの非透過ガスが製品ガスとして回収される。第2ガス分離膜ユニット12'からの透過ガスは再度原料ガスと合流して第1ガス分離膜ユニット11'に供給される。

一方、 CH_4 分離とは異なり、透過ガスを製品ガスとして取り出す用途において、第1ガス分離膜ユニットの透過ガスを2段目において分離する2段のガス分離システムも提案されている（特許文献1）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：US5482539A

発明の概要

[0006] 非透過ガスを2段目に送る図3のガス分離システム10'では、 CH_4 回収率を高めながら製品ガスである CH_4 富化ガス中の CO_2 濃度を低減させようとする、原料ガス流量に対する第2ガス分離膜ユニット12'からの戻りガス流量（つまり第2ガス分離膜ユニット12'からの透過ガス流量）の割合が増加してしまい、結果としてシステム10'全体のガス流量が増加するために、システム10'全体として圧縮動力を高める必要があった。これに対し、原料ガス流量に対する第2ガス分離膜ユニット12'からの透過ガス流量の割合を低減させようとする、第1ガス分離膜ユニット11'及び第2ガス分離膜ユニット12'の膜面積を増大させざるを得なかった。このために、図3に示す従来の CH_4 分離用ガス分離システム10'では、膜面積を低減させようとする場合、圧縮動力を増加させざるを得ず、圧縮動力の抑制と膜面積の低減とを両立させることが困難であった。

[0007] したがって本発明の課題は、前述した従来技術が有する欠点を解消し得るガス分離システムを提供することにある。

[0008] 本発明は、第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットを備え、 CO_2 及び CH_4 を含む原料ガスから CH_4 富化ガスを製造するために用いられるガス分離システムであって、

各ガス分離膜ユニットは、ガス入口、透過ガス排出口及び非透過ガス排出口を少なくとも備え、

第1ガス分離膜ユニットのガス入口に連結する原料ガス供給ラインと、原料ガス供給ラインに介在配置した圧縮手段と、

第1ガス分離膜ユニットの透過ガス排出口と第2ガス分離膜ユニットのガス入口とを連結する第1連結ラインと、

第2ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口と原料ガス供給ラインとを連結する第2連結ラインと、を有し、

第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が30以上であって、

CH_4 の回収率が98%以上であり、第1ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口から排出された非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下であり、且つ、第2ガス分離膜ユニットに供給される時間当たりガス量が、第1ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり原料ガス量に対し、60%以下となるようになされている、ガス分離システムを提供するものである。

[0009] また本発明は、ガス分離システムを用いて CO_2 及び CH_4 を含む原料ガスから CH_4 富化ガスを製造する方法であって、

ガス分離システムとして、

第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットを備え、

各ガス分離膜ユニットは、ガス入口、透過ガス排出口及び非透過ガス排出口を少なくとも備え、

第1ガス分離膜ユニットのガス入口に連結する原料ガス供給ラインと、原料ガスの供給ラインに介在配置した圧縮手段と、

第1 ガス分離膜ユニットの透過ガス排出口と第2 ガス分離膜ユニットのガス入口とを連結する第1 連結ラインと、

第2 ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口と原料ガス供給ラインとを連結する第2 連結ラインと、を有し、

第1 ガス分離膜ユニット及び第2 ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 P'_{CO_2} / P'_{CH_4} が30以上であるガス分離システムを用い、

CH_4 の回収率が98%以上であり、第1 ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口から排出される非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下であり、且つ、第1 ガス分離膜ユニットの時間当たり透過ガス量が、第1 ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり原料ガス量に対し、60%以下となるようにガス分離システムを運転する、 CH_4 富化ガスの製造方法を提供するものである。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図1は、本発明の一の実施形態であるメタン分離用ガス分離システムの構成を示す概略図である。

[図2]図2は、本発明のガス分離システムに用いられるガス分離膜ユニットを構成するモジュールの一例の構造を示す模式図である。

[図3]図3は、従来のメタン分離用ガス分離システムの構成を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下本発明を、その好ましい実施形態に基づき図面を参照しながら説明する。まず、図1及び図2に基づき、本発明の好ましい実施形態であるガス分離システム10及びこれを用いて CH_4 富化ガスを製造する本発明の好ましい実施態様について説明する。図1に示すように、本実施形態のガス分離システム10は、2つのガス分離膜ユニットである第1 ガス分離膜ユニット11及び第2 ガス分離膜ユニット12を備えている。各ガス分離膜ユニット11, 12としては、例えば、図2に示すとおり、中空糸膜等からなり、ガス選択透過性を有するガス分離膜30をケーシング31内に収容してなるモジュ

ール40を用いることができる。ガス分離膜ユニット11, 12におけるガス分離膜はいずれも、 CO_2 の透過速度 P'_{CO_2} (cm^3 (STP) / ($\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$)) が CH_4 の透過速度 P'_{CH_4} (cm^3 (STP) / ($\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg}$)) よりも高いものである。

[0012] 本実施形態の各ガス分離膜ユニット11及び12は、図2に示すガス分離膜モジュール40を1本用いたものであるか、或いは、このモジュール40を複数本並列してなるものである。モジュール40におけるケーシング31は、対向する二面が開口して開口部32を形成している。この開口部32は、ガス分離膜30をケーシング31内に挿入するためのものであり、ガス分離膜30の開口部ではない点に留意すべきである。ガス分離膜30は、この開口部32を通じてケーシング31内に收容される。ガス分離膜30が多数本の中空糸膜が長手方向を一致するように束ねてなる中空糸膜束から構成される場合、該ガス分離膜30はその收容状態において、ケーシング31の各開口部32の付近において中空糸膜の各端部が開口するように、ケーシング31内に收容される。

[0013] ガス分離膜30がケーシング31内に收容された状態においては、中空糸膜の延びる方向であるY方向の両端部の位置において、ガス分離膜30が管板33, 34によってケーシング31の内壁に固定されている。ケーシング31の各開口部32は、蓋体35, 36によって閉塞されている。蓋体35にはガス入口37が設けられている。一方、蓋体36には非透過ガス排出口38が設けられている。分離対象となる混合ガスは、蓋体35のガス入口37からモジュール内（すなわちユニット内）に導入される。導入されたガスのうち、ガス分離膜30を透過したガスは、ケーシング31に設けられた透過ガス排出口39からモジュール外（すなわちユニット外）に排出される。一方、ガス分離膜30を透過しなかった非透過ガスは、蓋体36の非透過ガス排出口38からモジュール外（すなわちユニット外）に排出される。また、場合によっては、ケーシング31にパージガスの供給口（図示せず）を設けてもよい。以上、図2の分離膜モジュールを例に挙げて説明したが、当然

ながら、本発明は他の構成の分離膜モジュールにも応用可能であり、例えば、シェルフード型のモジュールやスパイラル型モジュールにも応用できる。

[0014] 図1に戻ると、同図に示す通り、第1ガス分離膜ユニット11と、第2ガス分離膜ユニット12とが直列に接続されている。具体的には、第1ガス分離膜ユニット11と、第2ガス分離膜ユニット12とは、第1ガス分離膜ユニット11の透過ガス排出口11bと、第2ガス分離膜ユニット12のガス入口12aとを第1連結ライン14によって連結することで接続されている。

[0015] また第1ガス分離膜ユニット11のガス入口11aには、原料である混合ガス源（図示せず）からの原料ガスを第1ガス分離膜ユニット11へ供給するための原料ガス供給ライン16が連結されている。一方、第2ガス分離膜ユニット12の非透過ガス排出口12cには、第2ガス分離膜ユニット12の非透過ガスを第1ガス分離膜ユニット11へ供給するための第2連結ライン18が連結されている。第2連結ライン18は、原料ガス供給ライン16における第1圧縮手段21の吐出し側及び吸込み側のいずれに連結していてもよいが、システムの所要圧縮動力を抑制させる観点から、吐出側に連結していることが好ましい。

[0016] 第1圧縮手段21が原料ガス供給ライン16の途中に介在配置されている。第1圧縮手段21は、原料ガスを加圧して、第1ガス分離膜ユニット11に供給する目的で設置されている。但し、ガス分離システムが原料ガスとして油田などから送出される等して圧力を有するガスを分離する場合は、第1ガス分離膜ユニット11に供給される原料ガスを加圧するための第1圧縮手段21を原料ガス供給ライン16に設けなくとも、原料ガスの分離を行うことが可能である。

また第2圧縮手段22が第1連結ライン14の途中に介在配置されている。第2手段22は、第1ガス分離膜ユニット11の透過ガス排出口11bから排出された透過ガスを加圧して、第2ガス分離膜ユニット12に供給する

目的で設置されている。第1圧縮手段21及び第2圧縮手段22としては圧縮機を用いることができる。

[0017] システム10は、第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガス排出口11cに連結し、該排出口11cから非透過ガスをシステム外に取り出すための第1取り出しライン15と、第2ガス分離膜ユニット12の透過ガス排出口12bに連結し、該排出口12bから透過ガスをシステム外に取り出すための第2取り出しライン19と、をそれぞれ有している。

[0018] 以上の構成を有する本実施形態のガス分離システム10の動作について説明する。分離対象となる原料ガスは、混合ガス源（図示せず）から原料ガス供給ライン16を通じて第1ガス分離膜ユニット11に供給される。

[0019] 原料ガスは、分離対象となる CO_2 及び CH_4 を少なくとも含むものである。加圧された状態の原料ガスが第1ガス分離膜ユニット11に供給されると、ガス分離膜に対する透過速度の相違に起因して、ガス分離膜を透過したガスである透過ガスと、ガス分離膜を透過しなかったガスである非透過ガスとに分離される。上述したように、第1ガス分離膜ユニット11及び第2ガス分離膜ユニット12におけるガス分離膜はいずれも、 CH_4 の透過速度 P'_{CH_4} に比して CO_2 の透過速度 P'_{CO_2} が大きい。第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガス排出口11cから排出される非透過ガスは、原料ガスに比べて CH_4 が濃縮されたものである。該非透過ガスは、非透過ガス排出口11cから排出され、第1取り出しガスライン15を通じてシステム外へ取り出される。一方、第1ガス分離膜ユニット11からの透過ガスは、原料ガスに比べて CO_2 が濃縮されたものである。該透過ガスは、透過ガス排出口11bから排出され、第1連結ライン14を通じて第2ガス分離膜ユニット12に供給され、第2ガス分離膜ユニット12の透過ガス排出口12bから排出された更に二酸化炭素が濃縮されたガスがシステム外に取り出される。また、第2ガス分離膜ユニット12の非透過ガスは、再度非透過ガス排出口12cから第2連結ライン18を通り、原料ガス供給ライン16に導入されて、原料ガスと合流して第1ガス分離膜ユニット11に供給される。

- [0020] 本実施形態のガス分離システム10は、第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガス排出口11cから排出される非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下である。更に非透過ガス中の CH_4 純度を高めるため、非透過ガス中の CO_2 含量は3モル%以下であることが特に好ましい。非透過ガス中の CH_4 純度は95モル%以上であることが好ましく、97モル%以上であることがより好ましい。
- [0021] 更に、本実施形態においては、 CH_4 の回収率が98%以上であり、98.5%以上であることが特に好ましい。 CH_4 の回収率は第1ガス分離膜ユニット11に導入される単位時間当たりの原料ガス中の CH_4 の量に対する第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガス排出口11cから単位時間当たり排出される非透過ガス中の CH_4 の量として算出される。回収率は標準状態における体積を基準とした割合である。 CH_4 の回収率を高めることは、温室効果ガスである CH_4 のシステム外への排出量を低減させることによる温暖化防止の点からも好ましい。回収率は、膜面積や消費エネルギーの観点からは低い方が好ましいが、 CH_4 ガスのロスを抑えるために高回収率が要望される。
- [0022] 本実施形態において、第2ガス分離膜ユニット12に供給されるガスの流量(F_2) (時間当たりのガス量、単位 Nm^3/h)の、第1ガス分離膜ユニット11に供給されるガスの流量(F_1)に対する比率(以下「供給流量比(F_2/F_1)」ともいう)が、60%以下となるようになされている。これにより、本実施形態のシステム10では、第2ガス分離膜ユニット12の供給流量を一定以下のものとして、この流量に依存するシステム全体の流量を抑制し、当該流量に依存するシステム全体の圧縮動力を抑制できる。特に本実施形態のように第1連結ライン14の途中に介在配置されている第2圧縮手段22を用いている場合にはこの第2圧縮手段22の圧縮動力を大きく削減できる。システムの所要圧縮動力をより一層抑制する観点から、より好ましくは、供給流量比(F_2/F_1)は50%以下である。供給流量比(F_2/F_1)は低ければ低いほどよいが、通常は、10%以上又は20%以上である。

- [0023] 本実施形態では、第1ガス分離膜ユニット11及び第2ガス分離膜ユニット12それぞれについて、ガス分離選択性 P'_{CO_2} / P'_{CH_4} が特定値であることを特徴の一つとしている。具体的には第1ガス分離膜ユニット11のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^2$ はいずれも30以上であり、これにより第2圧縮手段22の圧縮動力を削減でき、製品ガス中のCO₂ガス量を低減しつつ膜面積の低減と圧縮動力の抑制とを両立させることができるという利点がある。第1ガス分離膜ユニット11のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^2$ は35以上であることがより好ましい。第1ガス分離膜ユニット11のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^2$ は、通常120以下であることがガス分離膜ユニットの製造容易性の点で好ましい。
- [0024] 第1ガス分離膜ユニット11の膜面積S1と第2ガス分離膜ユニットとの膜面積S2の比率はS1/S2が1以上14以下であることがF2/F1を上記の範囲としやすいために好ましく、2以上12以下であることがより好ましい。
- [0025] 本実施形態において、2つのユニットを構成する第1ガス分離膜ユニット11のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離選択性 $(P'_{CO_2} / P'_{CH_4})^2$ は同一であってもよく異なってもよい。また第1ガス分離膜ユニット11のCO₂の透過速度 $P'_{CO_2}{}^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のCO₂の透過速度 $P'_{CH_4}{}^2$ は、同一であってもよく異なってもよい。
- [0026] 逆に、第1ガス分離膜ユニットのCO₂の透過速度 $P'_{CO_2}{}^1$ が、第2ガス分離膜ユニットで用いるガス分離膜のCO₂の透過速度 $P'_{CO_2}{}^2$ に比べて高いことは、システム全体の効率を大きく損なわず膜モジュール本数を低減できる点で好ましい。
- [0027] 第1ガス分離膜ユニットのCO₂の透過速度 $P'_{CO_2}{}^1$ が、第2ガス分離膜ユニットで用いるガス分離膜のCO₂の透過速度 $P'_{CO_2}{}^2$ に比べて高い場合、上記の

観点から、両者の透過速度の比 $P'_{CO_2^2} / P'_{CO_2^1}$ は0.7以下が好ましく、0.5以下がより好ましい。

[0028] 上述したガス分離選択性 P'_{CO_2} / P'_{CH_4} ($P'_{CO_2} / P'_{CH_4^1}$ 及び $P'_{CO_2} / P'_{CH_4^2}$)並びに CO_2 の透過速度 P'_{CO_2} ($P'_{CO_2^1}$ 及び $P'_{CO_2^2}$)は、それぞれ、運転時の各ガス分離膜ユニットにおける温度条件におけるガス分離選択性 P'_{CO_2} / P'_{CH_4} 及び CO_2 の透過速度 P'_{CO_2} であればよい。

[0029] 運転時においてユニット間でガス透過速度及び／又はガス分離選択性を異ならせる方法としては、ユニット間で使用するガス分離膜の種類を異ならせる方法が挙げられる。ユニット間でガス分離膜の種類を異ならせるには、ユニット間で（１）異なる化学組成を有する分離膜を用いる（２）同一の化学組成を有する分離膜であるが、製膜の条件、熱処理の温度といった製造条件が異なる分離膜を用いる（３）同一の化学組成および製造条件の分離膜であるが、コーティングその他の表面処理の条件が異なる分離膜を用いる等を行えばよい。

[0030] なお、同一のガス分離膜を用いた場合であっても、その運転温度を相対的に低く設定した場合には運転温度を相対的に高く設定した場合に比べ、ガス透過速度が低くなることが、一般的に知られている。

このことに基づき、各ユニットの運転温度を異ならせて、２つのユニット間の透過速度を上記の関係としてもよい。例えば、第１ガス分離膜ユニット１１よりも第２ガス分離膜ユニット１２の運転温度を高くして、第１ガス分離膜ユニット１１の CO_2 の透過速度 $P'_{CO_2^1}$ よりも第２ガス分離膜ユニット１２の $P'_{CO_2^2}$ を高めてもよい。また、第２ガス分離膜ユニット１２よりも第１ガス分離膜ユニット１１の運転温度を高くして、第２ガス分離膜ユニット１２の CO_2 の透過速度 $P'_{CO_2^2}$ よりも第１ガス分離膜ユニット１１の $P'_{CO_2^1}$ を高めてもよい。２つのユニットの運転温度を異ならせる場合、運転温度の差は５℃以上であることが好ましく、２０℃以上であることがより好ましく、４０℃以上であることが特に好ましい。

[0031] なお第１ガス分離膜ユニット１１及び第２ガス分離膜ユニットの運転温度

は、特に限定されず、例えば室温以上80℃以下である。

[0032] 第1ガス分離膜ユニット11のガス分離選択性 $(P'_{CO_2}/P'_{CH_4})^1$ 及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離選択性 $(P'_{CO_2}/P'_{CH_4})^2$ の比率 $(P'_{CO_2}/P'_{CH_4})^1 / (P'_{CO_2}/P'_{CH_4})^2$ は、モジュール本数を抑えながらCH₄回収率を高くするために、例えば0.2以上1.1以下であることが好ましく、0.2以上1以下であることがより好ましい。

[0033] 原料ガスにおけるCH₄及びCO₂の割合としては限定されるものではないが、本発明のガス分離システム及びガス分離方法は例えば、CH₄及びCO₂の合計100体積%中、CH₄が40体積%以上80体積%以下、またCO₂が20体積%以上60体積%以下程度の原料ガス等の分離に利用できる。原料ガス中、二酸化炭素(CO₂)及びメタン(CH₄)は、二酸化炭素(CO₂)の体積割合がメタン(CH₄)よりも大きいてもよく、二酸化炭素(CO₂)の体積割合がメタン(CH₄)よりも小さくてもよい。原料ガス中のCH₄及びCO₂の合計割合としては、95体積%以上であることが好ましく、98体積%以上であることがより好ましい。このような原料ガスとしてはバイオガスが挙げられる。バイオガスとは、有機性廃棄物が嫌気性微生物の働きによってメタン発酵することで発生するガスをいう。バイオガスには、下水汚泥の嫌気性発酵により発生する消化ガス、及び、ごみの埋立処分場から発生するランドフィルガスが挙げられる。前記の有機性廃棄物としては、前記の下水汚泥や埋め立てごみのほか、乳牛や豚などの糞尿や、食品残渣などが挙げられる。原料ガスが天然ガスであることも本発明のガス分離システムが好適に使用できる点で好ましい。

[0034] 各ガス分離膜ユニット11, 12におけるガス分離膜は、供給される混合ガスや目的とする製品ガスの種類に応じて適宜選択できる。ガス分離膜としては、当該技術分野においてこれまで用いられているものと同様のものを特に制限なく用いることができる。例えばシリコーン樹脂、ポリブタジエン樹脂などのゴム状ポリマー材料、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリアミド、ポリアミドイミド、ポリスルホン、ポリカーボネート、セルロースなど

のガラス状ポリマー材料、及びゼオライトなどのセラミックス材料が挙げられる。またガス分離膜は、均質膜、均質層と多孔質層とからなる非対称膜、微多孔質膜などいずれであってもよい。ガス分離膜のケーシング内への収納形態も、プレートアンドフレーム型、スパイラル型、中空糸型などいずれであってもよい。特に好適に用いられるガス分離膜は、芳香族ポリイミドの中空糸ガス分離膜である。中空糸ガス分離膜は均質層の厚さが10nm以上200nm以下であり、多孔質層の厚さが20μm以上200μm以下の非対称構造を有することが好ましい。中空糸膜の内径は30μm以上500μm以下程度であることが好ましい。

[0035] 1つのガス分離膜ユニット内に備えられているガス分離膜モジュールは1本であってもよく、あるいは複数本であってもよい。1つのガス分離膜ユニット内に2本以上のガス分離膜モジュールが備えられているときは、これらがユニット内で並列に接続されていることが好ましい。各ガス分離膜ユニットがガス分離膜モジュールを複数本備えている場合、該ガス分離膜モジュールの本数を変更することでユニット内の膜面積を容易に調整することができる。

[0036] 更に、エネルギー効率等の点から、一般に、中空糸膜からなる第1ガス分離膜ユニット11及び第2ガス分離膜ユニット12に送り込むガスの圧力は0.2MPaG~2.0MPaGであることが好ましく、第2ガス分離膜ユニット12に送り込むガスの圧力が、第1ガス分離膜ユニット11に送り込むガスの圧力より若干(0~0.3MPaG程度)高い方が好ましい。

[0037] 以上、本発明をその好ましい実施形態に基づき説明したが、本発明は前記実施形態に制限されない。例えば前記実施形態においては、第1連結ライン14に第2圧縮手段22を介在配置させていた。しかし、第2圧縮手段22を配置する代わりに、又はそれに加えて、真空ポンプ等により第2ガス分離膜ユニット12の透過側空間を大気圧以下に設定すると、圧縮動力を更に低減できる点等から好ましい。

[0038] また、上記各実施形態では各ガス分離膜ユニットの一例として、中空糸膜

を有するガス分離膜ユニットを用いたが、これに代えて他の形態のガス分離膜ユニットを用いてもよい。

実施例

[0039] 以下、実施例により本発明を更に詳細に説明する。しかしながら本発明の範囲は、かかる実施例に制限されない。

[0040] [実施例 1 – 1 ~ 1 – 5]

図 1 に示すガス分離システム 10 を用いて、二酸化炭素及びメタンを含む混合ガスの分離を行った。同システム 10 における第 1 圧縮手段 21 としては圧縮機を用いた。混合ガスは、組成は CO_2 40 体積%、 CH_4 60 体積%のものをを用いた。第 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 11, 12 を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $9.62 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が 61.91 である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に收容するガス分離膜モジュールを複数本並列に接続して用いた。第 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 11, 12 の運転温度は 35℃であった。

[0041] 第 1 ガス分離膜ユニット 11 を構成するガス分離膜モジュールの本数を 70 本に設定し、第 2 ガス分離膜ユニット 12 を構成するガス分離膜モジュールの本数を表 1 に示す値に設定した。混合ガスは、流量 $500 \text{ Nm}^3/\text{h}$ 、圧力 1 MPa G の状態で第 1 ガス分離膜ユニット 11 に供給させ、第 1 ガス分離膜ユニット 11 の透過ガスを圧力 1.1 MPa G の状態で、第 2 ガス分離膜ユニット 12 に供給し、第 2 ガス分離膜ユニット 12 の非透過ガスを第 1 ガス分離膜ユニット 11 に帰還させた。第 1 ガス分離膜ユニット 11 の透過ガス排出口における透過ガス圧力及び第 2 ガス分離膜ユニット 12 の透過ガス排出口における透過ガス圧力は 0.03 MPa G であった。この条件で、各ユニットへの供給流量を表 1 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 11 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比 (F_2/F_1) 並びに第 2 圧縮手段 22

の圧縮動力、総圧縮動力（圧縮手段 2 1、2 2 の圧縮動力の和）を表 1 に示す。

[0042] [実施例 2-1～2-5]

第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 のガス分離膜モジュールの本数を 80 本に設定し、第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 を構成するガス分離膜モジュールの本数を表 1 に示す値に設定した以外は実施例 1-1 と同様にした。各ユニットへの供給流量を表 1 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率（ R_{cv} 、%）、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比（ F_2/F_1 ）、第 2 圧縮手段 2 2 の圧縮動力並びに総圧縮動力を表 1 に示す。

[0043] [実施例 3-1～3-6]

第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $8.49 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が 54.63 である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に収容するガス分離膜モジュールを複数本並列に接続して用いた。これらの点以外は、実施例 2-1 と同様にした。第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率（ R_{cv} 、%）、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比（ F_2/F_1 ）、第 2 圧縮手段 2 2 の圧縮動力並びに総圧縮動力を表 1 に示す。

[0044] [比較例 1-1～1-5、2-1～2-5、3-1～3-6、4-1～4-4、5-1～5-2]

第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $4.51 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が 29.00 である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に収容するガス分離膜モ

ジュールを複数本並列に接続して用いた。また、第1ガス分離膜ユニット11及び第2ガス分離膜ユニット12のガス分離膜モジュールの本数を表2に記載の本数に設定した。それらの点以外は実施例1-1と同様とした。各ユニットへの供給流量を表2に示す。また、第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比 (F_2/F_1)、第2圧縮手段22の圧縮動力並びに総圧縮動力を表2に示す。

[0045] [比較例6-1～6-5]

図3に示すガス分離システム10'を用いた。第1及び第2ガス分離膜ユニット11'、12'を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $9.62 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が61.91である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に収容するガス分離膜モジュールを複数本並列に接続して用いた。第1ガス分離膜ユニット11'を構成するガス分離膜モジュールの本数を表3に示す値に設定した。第2ガス分離膜ユニット12'を構成するガス分離膜モジュールの本数は70本とした。混合ガスは、流量 $500 \text{ Nm}^3/\text{h}$ 、圧力1MPaGの状態第1ガス分離膜ユニット11'に供給させ、第1ガス分離膜ユニット11'の非透過ガスを、第2ガス分離膜ユニット12'に供給し、第2ガス分離膜ユニット12'の透過ガスを第1ガス分離膜ユニット11'に帰還させた。第1ガス分離膜ユニット11'の透過ガス排出口における透過ガス圧力及び第2ガス分離膜ユニット12の透過ガス排出口における透過ガス圧力は0.03MPaGであった。各ユニットへの供給流量を表3に示す。また、第2ガス分離膜ユニット12の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス、非透過ガスの流量並びに第1圧縮手段21'の圧縮動力を表3に示す。

[0046] [比較例7-1～7-5]

第1ガス分離膜ユニット11'のガス分離膜モジュールの本数を80本に

設定し、第2ガス分離膜ユニット12'のモジュール本数を表3に示す値とした以外は比較例6-1と同様にした。各ユニットへの供給流量を表3に示す。また、第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガスの組成、CH₄の回収率(Rcv.、%)、並びに、第1圧縮手段21'の圧縮動力を表3に示す。

[0047] [比較例8-1～8-2]

第1及び第2ガス分離膜ユニット11'、12'を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $8.49 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 P'_{CO_2} / P'_{CH_4} が54.63である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に収容するガス分離膜モジュールを複数本並列に接続して用いた。第1ガス分離膜ユニット11'及び第2ガス分離膜ユニット12'のモジュール本数を表3に示す値とした。これらの点以外は、比較例6-1と同様にした。第2ガス分離膜ユニット12の非透過ガスの組成、CH₄の回収率(Rcv.、%)、並びに、第1圧縮手段21'の圧縮動力を表3に示す。

[0048]

[表1]

実施例No.	P'CO ₂ / P'CH ₄	第1 ユニット モジュール 本数	第2 ユニット モジュール 本数	第1ユニットの 非透過ガス組成		CH ₄ 回収率 Rev. [%]	原料 Nm ³ /h	第1ユニット			第2ユニット			F ₂ /F ₁	圧縮手段22 の 圧縮動力		総圧縮動力 kW
				CO ₂	[mol%] CH ₄			供給(F1) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	供給(F2) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h		kW		
61.91	1-1	70	11	2.86	97.14	98.39	500.0	540.4	236.5	303.9	236.5	196.1	40.4	44%	19	63	
	1-2	70	10	2.88	97.12	98.64	500.0	542.3	237.6	304.7	237.6	195.3	42.3	44%	19	63	
	1-3	70	9	2.91	97.09	98.88	500.0	544.9	239.4	305.5	239.4	194.5	44.9	44%	19	63	
	1-4	70	8	2.95	97.05	99.12	500.0	549.7	243.3	306.4	243.3	193.6	49.7	44%	19	63	
	1-5	70	7	3.04	96.96	99.36	500.0	561.0	253.6	307.4	253.6	192.6	61.0	45%	20	64	
54.63	2-1	80	11	2.05	97.95	98.41	500.0	548.4	247.0	301.4	247.0	198.6	48.4	45%	20	63	
	2-2	80	10	2.08	97.92	98.65	500.0	550.8	248.5	302.2	248.5	197.8	50.8	45%	20	64	
	2-3	80	9	2.10	97.90	98.89	500.0	554.5	251.4	303.0	251.4	197.0	54.5	45%	20	64	
	2-4	80	8	2.14	97.86	99.14	500.0	561.4	257.5	303.9	257.5	196.1	61.4	46%	21	64	
	2-5	80	7	2.24	97.76	99.38	500.0	577.6	272.6	305.0	272.6	195.0	77.6	47%	22	65	
54.63	3-1	80	13	2.48	97.52	98.05	500.0	546.0	244.3	301.7	244.3	198.3	46.0	45%	20	63	
	3-2	80	12	2.50	97.50	98.30	500.0	547.8	245.3	302.5	245.3	197.5	47.8	45%	20	63	
	3-3	80	11	2.53	97.47	98.54	500.0	550.2	246.9	303.3	246.9	196.7	50.2	45%	20	63	
	3-4	80	10	2.56	97.44	98.78	500.0	553.8	249.7	304.1	249.7	195.9	53.8	45%	20	64	
	3-5	80	9	2.61	97.39	99.02	500.0	560.1	255.1	305.0	255.1	195.0	60.1	46%	20	64	
	3-6	80	8	2.71	97.29	99.27	500.0	573.2	267.1	306.1	267.1	193.9	73.2	47%	21	65	

[0049]

[表2]

比較例No.	P'CO ₂ / P'CH ₄	第1 ユニット モジュール 本数	第2 ユニット モジュール 本数	第1ユニットの 非透過ガス組成		CH ₄ 回収率 Rev. [%]	原料	第1ユニット				第2ユニット				F ₂ /F ₁	圧縮手段2 の 圧縮動力		総圧縮動力 kW
				CO ₂	CH ₄			供給(F1) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	供給(F2) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	kW					
1-1		70	11	9.73	90.27	99.30	500.0	590.1	260.1	330.0	260.1	170.0	90.1	44%	21	64			
1-2		70	10	10.84	89.16	99.50	500.0	625.2	290.4	334.8	290.4	165.2	125.2	46%	23	67			
1-3	29.00	70	9	12.71	87.29	99.67	500.0	681.9	339.3	342.5	339.3	157.5	181.9	50%	27	71			
1-4		70	8	15.56	84.44	99.79	500.0	761.1	406.6	354.5	406.6	145.5	261.1	53%	33	76			
1-5		70	7	19.13	80.87	99.87	500.0	849.4	478.9	370.5	478.9	129.5	349.4	56%	38	82			
2-1		80	11	8.48	91.52	99.36	500.0	623.9	298.2	325.7	298.2	174.3	123.9	48%	24	67			
2-2		80	10	9.76	90.24	99.56	500.0	673.9	343.0	331.0	343.0	169.0	173.9	51%	27	71			
2-3	29.00	80	9	11.95	88.05	99.72	500.0	753.7	413.9	339.8	413.9	160.2	253.7	55%	33	77			
2-4		80	8	15.22	84.78	99.83	500.0	858.6	505.3	353.2	505.3	146.8	358.6	59%	40	84			
2-5		80	7	19.12	80.88	99.89	500.0	965.3	594.8	370.5	594.8	129.5	485.3	62%	48	91			
3-1		140	16	2.06	97.94	98.40	500.0	638.8	337.4	301.4	337.4	198.6	138.8	53%	27	71			
3-2		140	15	2.20	97.80	98.64	500.0	657.4	354.8	302.6	354.8	197.4	157.4	54%	28	72			
3-3	29.00	140	14	2.40	97.60	98.88	500.0	683.9	380.0	303.9	380.0	196.1	183.9	56%	30	74			
3-4		140	13	2.70	97.30	99.12	500.0	724.2	418.6	305.6	418.6	194.4	224.2	58%	34	77			
3-5		140	12	3.22	96.78	99.35	500.0	790.5	482.5	308.0	482.5	192.0	290.5	61%	39	82			
3-6		140	11	4.23	95.77	99.58	500.0	911.8	599.9	311.9	599.9	188.1	411.8	66%	48	92			
4-1		150	14	2.00	98.00	98.90	500.0	706.4	403.6	302.8	403.6	197.2	206.4	57%	32	76			
4-2	29.00	150	13	2.29	97.71	99.14	500.0	752.3	447.9	304.4	447.9	195.6	252.3	60%	36	79			
4-3		150	12	2.79	97.21	99.38	500.0	829.1	522.5	306.7	522.5	193.3	329.1	63%	42	85			
4-4		150	11	3.83	96.17	99.61	500.0	974.7	664.0	310.7	664.0	189.3	474.7	68%	53	97			
5-1	29.00	160	12	2.41	97.59	99.40	500.0	869.2	563.6	305.6	563.6	194.4	369.2	65%	45	89			
5-2		160	11	3.48	96.52	99.63	500.0	1043.0	733.3	309.7	733.3	190.3	543.0	70%	59	102			

[0050] [表3]

比較例No.	P'CO ₂ / P'CH ₄	第1 ユニット モジュール 本数	第2 ユニット モジュール 本数	第2ユニットの 非透過ガス組成 [mol%]		CH ₄ 回収率 Rev.[%]	原料 Nm ³ /h	第1ユニット			第2ユニット			圧縮手段2'の 圧縮動力 kW
				CO ₂	CH ₄			供給 Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	供給 Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	
6-1		11	70	4.76	95.24	98.71	500.0	779.5	189.0	590.5	590.5	279.5	311.0	68
6-2		10	70	5.66	94.34	98.93	500.0	827.4	185.4	642.0	642.0	327.4	314.6	72
6-3		9	70	7.05	92.95	99.14	500.0	892.3	180.0	712.3	712.3	392.3	320.0	78
6-4		8	70	9.38	90.62	99.33	500.0	976.8	171.2	805.6	805.6	476.8	328.8	85
6-5		7	70	13.22	86.78	99.49	500.0	1065.0	156.1	908.9	908.9	565.0	343.9	93
7-1	61.91	11	80	3.80	96.20	98.73	500.0	802.3	192.1	610.2	610.2	302.3	307.9	70
7-2		10	80	4.62	95.38	98.95	500.0	855.4	188.8	666.6	666.6	355.4	311.2	75
7-3		9	80	5.94	94.06	99.16	500.0	929.1	183.7	745.4	745.4	429.1	316.3	81
7-4		8	80	8.28	91.72	99.36	500.0	1028.1	175.0	853.1	853.1	528.1	325.0	90
7-5		7	80	12.38	87.62	99.52	500.0	1132.1	159.3	972.9	972.9	632.1	340.7	99
8-1	54.63	13	80	3.90	96.10	98.42	500.0	774.5	192.8	581.8	581.8	274.5	307.2	68
8-2		7	80	16.35	83.65	99.55	500.0	1159.5	143.0	1016.5	1016.5	659.5	357.0	101

[0051] 表1に示すように、各実施例では、第1ガス分離膜ユニット11の非透過

ガスにおける CO_2 濃度が5 mol %以下であり、 CH_4 の回収率が98%以上であり第2ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり透過ガス量(F_2)が、第1ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり原料ガス量(F_1)に対し、60%以下となるようになされている。表1の各実施例のガス分離システムでは、第1及び第2ガス分離膜ユニットモジュールの合計モジュール本数が少なくなっても、圧縮動力の増加が抑制されていることが判る。

[0052] 一方、表2に示すように、第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が30未満である場合、例えば実施例1-1と比較例1-1との比較や実施例2-1と比較例2-1との比較からわかる通り、実施例1-1及び実施例2-1とそれぞれ同じモジュール本数を用いても、これらの比較例1-1及び比較例2-1では第1ガス分離膜ユニット11の非透過ガス中の CO_2 濃度が5 mol %超と高くなっていることが判る。

また表2の比較例1-1～1-5では、モジュール本数の低減に伴って第1ガス分離膜ユニットの非透過ガス中の CH_4 ガス純度が大幅に低下し、 F_2 / F_1 （第2圧縮手段22の圧縮動力）が増加している。これに対し、表1の実施例1-1～1-5では、モジュール本数の低減に伴う第1ガス分離膜ユニットの非透過ガス中の CH_4 ガス純度の低下や、 F_2 / F_1 （第2圧縮手段22の圧縮動力）の増加が大幅に抑制されている。表1の実施例2-1～2-5と表2の比較例2-1～2-5との比較からも同様のことが判る。

また、表2の比較例3-1～5-2の結果から、第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が30未満である場合、モジュール本数を大幅に増加させることで第1ガス分離膜ユニットの非透過ガス中の CH_4 ガス純度は高めることができるが、 F_2 / F_1 が高くなり、それにより第2圧縮手段22の圧縮動力が大きくなってしまふことが判る。

[0053] また表3に示す結果から明らかなとおり、図3のシステムでは、例えば実施例1-1～1-5に対応するガス分離膜の分離選択性及び膜面積条件を採

用した各比較例 6-1 ~ 6-5 では、第 2 ガス分離膜ユニット 12 の非透過ガスにおける CO_2 濃度が大きく、製品である第 2 ガス分離膜ユニット 12 の非透過ガス中の CH_4 純度が低下することが判る。また比較例 6-1 ~ 6-5 の条件において、第 1 ガス分離膜ユニット 11 の膜面積を小さくすると、圧縮動力が大きくなり、製品純度が下がることが判る。

更に、例えば実施例 2-1 ~ 2-5 と同様のガス分離膜の分離選択性及び膜面積条件を採用した各比較例 7-2 ~ 7-5、及び、実施例 3-1 ~ 3-6 と同様のガス分離膜の分離選択性及び膜面積条件を採用した各比較例 8-1 及び 8-2 でも同様に、第 1 ガス分離膜ユニット 11 の膜面積を小さくすると、圧縮動力が大きくなり、製品純度が下がることが判る。

[0054] 〔実施例 4-1 ~ 4-17〕

CO_2/CH_4 の体積比を下記表 4 に示すように変更し、また各ユニットのモジュール本数を表 4 に示すように変更した以外は実施例 1-1 と同様にした。各ユニットへの供給流量を表 4 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 11 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比 (F_2/F_1)、第 2 圧縮手段 22 の圧縮動力並びに総圧縮動力を表 4 に示す。

[0055]

[表4]

実施例No.	CO ₂ /CH ₄	P'CO ₂ / P'CH ₄	第1 ユニット モジュール 本数	第2 ユニット モジュール 本数	第1ユニットの 非透過ガス組成		CH ₄ 回収率 Rev. [%]	原料	第1ユニット				第2ユニット			F ₂ /F ₁	圧縮手段22の 圧縮動力		総圧縮動力
					CO ₂	CH ₄			[mol%]	Nm ³ /h	供給(F ₁) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	供給(F ₂) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h		非透過 Nm ³ /h	kW	
4-1	50/50	61.91	70	12	2.22	97.78	98.13	500.0	539.9	289.0	250.9	289.0	249.1	39.9	54%	23	67		
4-2			70	11	2.24	97.76	98.42	500.0	542.0	290.3	251.7	290.3	248.3	42.0	54%	23	67		
4-3			70	10	2.27	97.73	98.71	500.0	545.2	292.7	252.5	292.7	247.5	45.2	54%	23	67		
4-4			70	9	2.32	97.68	99.01	500.0	551.6	298.2	253.4	298.2	246.6	51.6	54%	24	67		
4-5	30/70		70	12	3.18	96.82	98.17	500.0	538.2	183.4	354.9	183.4	145.1	38.2	34%	15	58		
4-6			70	11	3.20	96.80	98.37	500.0	539.4	183.8	355.7	183.8	144.3	39.4	34%	15	58		
4-7			70	10	3.21	96.79	98.58	500.0	540.8	184.3	356.5	184.3	143.5	40.8	34%	15	58		
4-8			70	9	3.23	96.77	98.79	500.0	542.5	185.2	357.3	185.2	142.7	42.5	34%	15	58		
4-9			70	8	3.26	96.74	99.00	500.0	544.8	186.6	358.2	186.6	141.8	44.8	34%	15	59		
4-10			70	7	3.30	96.70	99.20	500.0	548.4	189.3	359.1	189.3	140.9	48.4	35%	15	59		
4-11			74	8	2.92	97.08	99.00	500.0	548.3	191.3	356.9	191.3	143.1	48.3	35%	15	59		
4-12			76	9	2.74	97.26	98.80	500.0	547.4	191.9	355.5	191.9	144.5	47.4	35%	15	59		
4-13			72	8	3.09	96.91	99.00	500.0	546.5	189.0	357.5	189.0	142.5	46.5	35%	15	59		
4-14			76	8	2.77	97.23	99.01	500.0	550.1	193.7	356.4	193.7	143.6	50.1	35%	16	59		
4-15			70	9	3.23	96.77	98.79	500.0	542.5	185.2	357.3	185.2	142.7	42.5	34%	15	58		
4-16			72	9	3.06	96.94	98.79	500.0	544.1	187.4	356.7	187.4	143.3	44.1	34%	15	59		
4-17			74	9	2.90	97.10	98.80	500.0	545.8	189.7	356.1	189.7	143.9	45.8	35%	15	59		

[0056] 表4に示すように、原料のCO₂/CH₄の体積比に関わらず、本発明によ

り、 CH_4 の高回収率及び高純度を達成しつつ、従来のガス分離システムに比べて膜面積を低減する場合に所要圧縮動力の増加が抑制されていることが判る。

[0057] 〔実施例 5－1～5－6〕

第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 のガス分離膜モジュールの本数を表 5 に記載の本数に設定した以外は実施例 1－1 と同様とした。各ユニットへの供給流量を表 5 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比 (F_2/F_1)、第 2 圧縮手段 2 2 の圧縮動力並びに総圧縮動力を表 5 に示す。

[0058] 〔実施例 6－1～6－7、7－1～7－7〕

第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 のガス分離膜モジュールの本数を表 5 に記載の本数に設定した以外は実施例 3－1 と同様とした。各ユニットへの供給流量を表 5 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流量比 (F_2/F_1)、第 2 圧縮手段 2 2 の圧縮動力並びに総圧縮動力を表 5 に示す。

[0059] 〔実施例 8－1～8－1 1〕

第 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 1, 1 2 を構成するモジュールとして、 P'_{CO_2} が $6.79 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、 P'_{CH_4} が $0.16 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 (\text{STP}) / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{cmHg})$ 、ガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が 43.70 である、ポリイミド中空糸膜から構成されるガス分離膜をケース内に収容するガス分離膜モジュールを複数本並列に接続して用いた。第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 及び第 2 ガス分離膜ユニット 1 2 のガス分離膜モジュールの本数を表 5 に記載の本数に設定した。その点以外は実施例 1－1 と同様にした。各ユニットへの供給流量を表 5 に示す。また、第 1 ガス分離膜ユニット 1 1 の非透過ガスの組成、 CH_4 の回収率 (R_{cv} 、%)、各ユニットの透過ガス及び非透過ガスの流量、供給流

量比 (F 2 / F 1)、第2圧縮手段22の圧縮動力並びに総圧縮動力を表5に示す。

[0060] [表5]

実施例No.	PCO ₂ / P'CH ₄	第1 ユニット モジュール 本数	第2 ユニット モジュール 本数	第1ユニットの 非透過ガス組成		CH ₄ 回収率 Rec. [%]	原料	第1ユニット				第2ユニット				F ₂ /F ₁	圧縮手段22 の 圧縮動力		総圧縮動力
				CO ₂	CH ₄			供給(F ₁) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h	供給(F ₂) Nm ³ /h	透過 Nm ³ /h	非透過 Nm ³ /h						
5-1	61.91	60	12	3.93	96.07	98.13	500.0	531.5	225.1	306.4	225.1	193.6	31.5	42%	18	62	62	62	
5-2		60	11	3.95	96.05	98.37	500.0	532.7	225.4	307.3	225.4	192.7	32.7	42%	18	62	62	62	
5-3		60	10	3.97	96.03	98.61	500.0	534.2	226.1	308.1	226.1	191.9	34.2	42%	18	62	62	62	
5-4		60	9	4.00	96.00	98.86	500.0	536.1	227.1	308.9	227.2	191.1	36.1	42%	18	62	62	62	
5-5		60	8	4.03	95.97	99.10	500.0	539.2	229.4	309.8	229.4	190.2	39.2	43%	18	62	62	62	
5-6		60	7	4.11	95.89	99.34	500.0	548.2	235.4	310.8	235.4	189.2	46.2	43%	19	62	62	62	
6-1	54.63	60	13	4.60	95.40	98.01	500.0	530.8	222.5	308.2	222.5	191.8	30.8	42%	18	61	61	61	
6-2		60	12	4.62	95.38	98.25	500.0	532.0	222.9	309.0	222.9	191.0	32.0	42%	18	61	61	61	
6-3		60	11	4.65	95.35	98.49	500.0	533.4	223.5	309.9	223.5	190.1	33.4	42%	18	62	62	62	
6-4		60	10	4.67	95.33	98.74	500.0	535.3	224.5	310.7	224.5	189.3	35.3	42%	18	62	62	62	
6-5		60	9	4.72	95.28	98.98	500.0	538.1	226.4	311.6	226.4	188.4	38.1	42%	18	62	62	62	
6-6		60	8	4.79	95.21	99.22	500.0	543.7	231.0	312.6	231.0	187.4	43.7	42%	18	62	62	62	
6-7	43.70	60	7	4.98	95.02	99.46	500.0	558.4	244.3	314.0	244.3	188.0	58.4	44%	20	63	63	63	
7-1		70	13	3.39	96.61	98.04	500.0	538.2	233.8	304.4	233.8	195.6	38.2	43%	19	62	62	62	
7-2		70	12	3.41	96.59	98.28	500.0	539.7	234.5	305.2	234.5	194.8	39.7	43%	19	62	62	62	
7-3		70	11	3.43	96.57	98.52	500.0	541.6	235.5	306.1	235.5	193.9	41.6	43%	19	62	62	62	
7-4		70	10	3.46	96.54	98.76	500.0	544.2	237.2	306.9	237.2	193.1	44.2	44%	19	63	63	63	
7-5		70	9	3.51	96.49	99.01	500.0	548.5	240.7	307.8	240.7	192.2	48.5	44%	19	63	63	63	
7-6	43.70	70	8	3.60	96.40	99.25	500.0	557.5	248.7	308.9	248.7	191.1	57.5	45%	20	64	64	64	
7-7		70	7	3.82	96.18	99.49	500.0	580.4	270.1	310.3	270.1	189.7	80.4	47%	22	65	65	65	
8-1		70	14	4.65	95.35	98.05	500.0	538.3	229.8	308.5	229.8	191.5	38.3	43%	18	62	62	62	
8-2		70	13	4.68	95.32	98.29	500.0	540.2	230.8	309.4	230.8	190.6	40.2	43%	18	62	62	62	
8-3		70	12	4.72	95.28	98.54	500.0	542.6	232.3	310.3	232.3	189.7	42.6	43%	19	62	62	62	
8-4		70	11	4.78	95.22	98.78	500.0	546.3	235.1	311.2	235.1	188.8	46.3	43%	19	62	62	62	
8-5	43.70	70	10	4.88	95.12	99.02	500.0	552.9	240.6	312.3	240.6	187.7	52.9	44%	19	63	63	63	
8-6		80	14	3.54	96.46	98.08	500.0	546.7	241.6	305.1	241.6	194.9	46.7	44%	19	63	63	63	
8-7		80	13	3.58	96.42	98.32	500.0	549.1	243.2	305.9	243.2	194.1	49.1	44%	19	63	63	63	
8-8		80	12	3.62	96.38	98.57	500.0	552.5	245.7	306.8	245.7	193.2	52.5	44%	20	63	63	63	
8-9		80	11	3.69	96.31	98.81	500.0	558.0	250.2	307.8	250.2	192.2	58.0	45%	20	64	64	64	
8-10		80	10	3.80	96.20	99.05	500.0	567.6	258.8	308.9	258.8	191.1	67.6	46%	21	64	64	64	
8-11		80	9	4.01	95.99	99.29	500.0	586.5	276.2	310.3	276.2	189.7	86.5	47%	22	66	66	66	

産業上の利用可能性

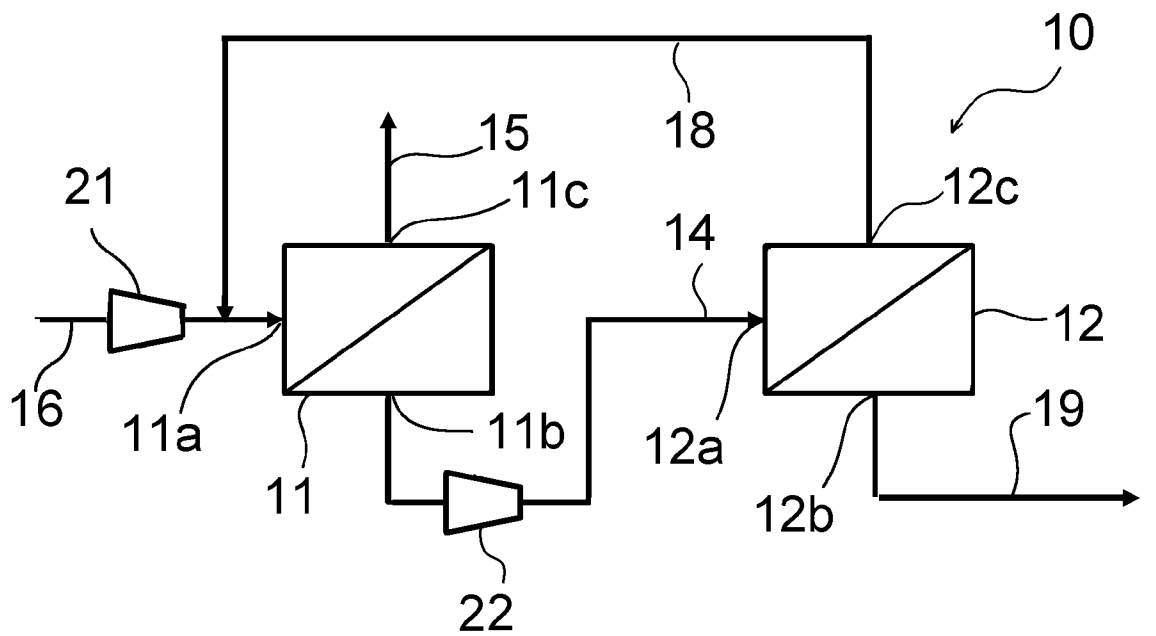
[0061] 本発明によれば CH_4 の高回収率及び高純度を達成しつつ、従来のガス分離システムに比べて所要圧縮動力を抑制しながら膜面積を低減できる、メタン分離用ガス分離システム及びメタン富化ガスの製造方法が提供される。

請求の範囲

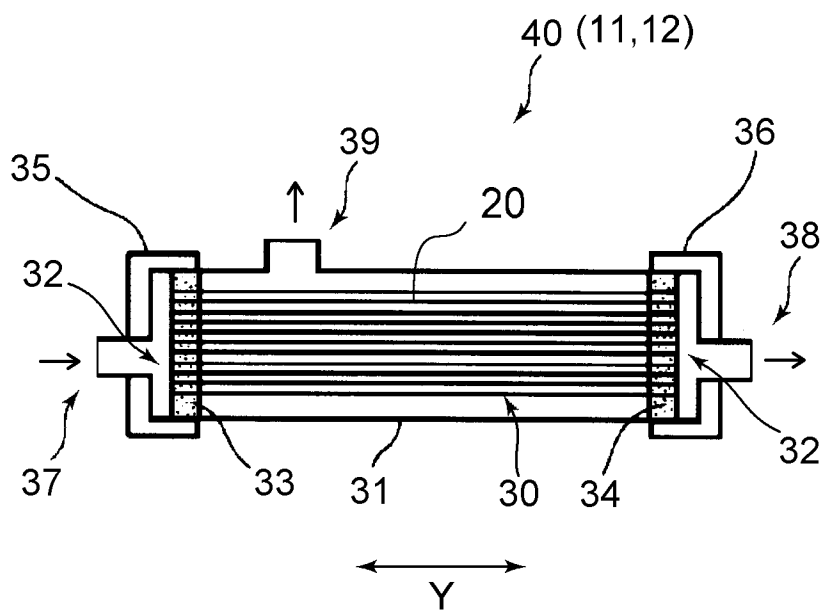
- [請求項1] 第1 ガス分離膜ユニット及び第2 ガス分離膜ユニットを備え、 CO_2 及び CH_4 を含む原料ガスから CH_4 富化ガスを製造するために用いられるガス分離システムであって、
- 各ガス分離膜ユニットは、ガス入口、透過ガス排出口及び非透過ガス排出口を少なくとも備え、
- 第1 ガス分離膜ユニットのガス入口に連結する原料ガス供給ラインと、
- 原料ガス供給ラインに介在配置した圧縮手段と、
- 第1 ガス分離膜ユニットの透過ガス排出口と第2 ガス分離膜ユニットのガス入口とを連結する第1 連結ラインと、
- 第2 ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口と原料ガス供給ラインとを連結する第2 連結ラインと、を有し、
- 第1 ガス分離膜ユニット及び第2 ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が30以上であって、
- CH_4 の回収率が98%以上であり、第1 ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口から排出された非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下であり、且つ、第2 ガス分離膜ユニットに供給される時間当たりガス量が、第1 ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり原料ガス量に対し、60%以下となるようになされている、ガス分離システム。
- [請求項2] 第1 ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口に連結し、該排出口から非透過ガスをシステム外に取り出すための第1 取り出しラインと、第2 ガス分離膜ユニットの透過ガス排出口に連結し、該排出口から透過ガスをシステム外に取り出すための第2 取り出しラインと、を有している、請求項1 に記載のガス分離システム。
- [請求項3] 原料ガスがバイオガスである、請求項1 又は2 に記載のガス分離システム。

- [請求項4] 原料ガス中の CH_4 が40体積%以上80体積%以下であり、 CO_2 が20体積%以上60体積%以下である、請求項1～3の何れか1項に記載のガス分離システム。
- [請求項5] 第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットにおけるガス分離膜が、ポリイミドからなる中空糸膜である、請求項1～4の何れか1項に記載のガス分離システム。
- [請求項6] ガス分離システムを用いて CO_2 及び CH_4 を含む原料ガスから CH_4 富化ガスを製造する方法であって、
- ガス分離システムとして、
- 第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットを備え、
- 各ガス分離膜ユニットは、ガス入口、透過ガス排出口及び非透過ガス排出口を少なくとも備え、
- 第1ガス分離膜ユニットのガス入口に連結する原料ガス供給ラインと、
- 原料ガスの供給ラインに介在配置した圧縮手段と、
- 第1ガス分離膜ユニットの透過ガス排出口と第2ガス分離膜ユニットのガス入口とを連結する第1連結ラインと、
- 第2ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口と原料ガス供給ラインとを連結する第2連結ラインと、を有し、
- 第1ガス分離膜ユニット及び第2ガス分離膜ユニットのガス分離選択性 $P'_{\text{CO}_2} / P'_{\text{CH}_4}$ が30以上であるガス分離システムを用い、
- CH_4 の回収率が98%以上であり、第1ガス分離膜ユニットの非透過ガス排出口から排出される非透過ガス中の CO_2 含量が5モル%以下であり、且つ、第1ガス分離膜ユニットの時間当たり透過ガス量が、第1ガス分離膜ユニットに供給される時間当たり原料ガス量に対し、60%以下となるようにガス分離システムを運転する、 CH_4 富化ガスの製造方法。

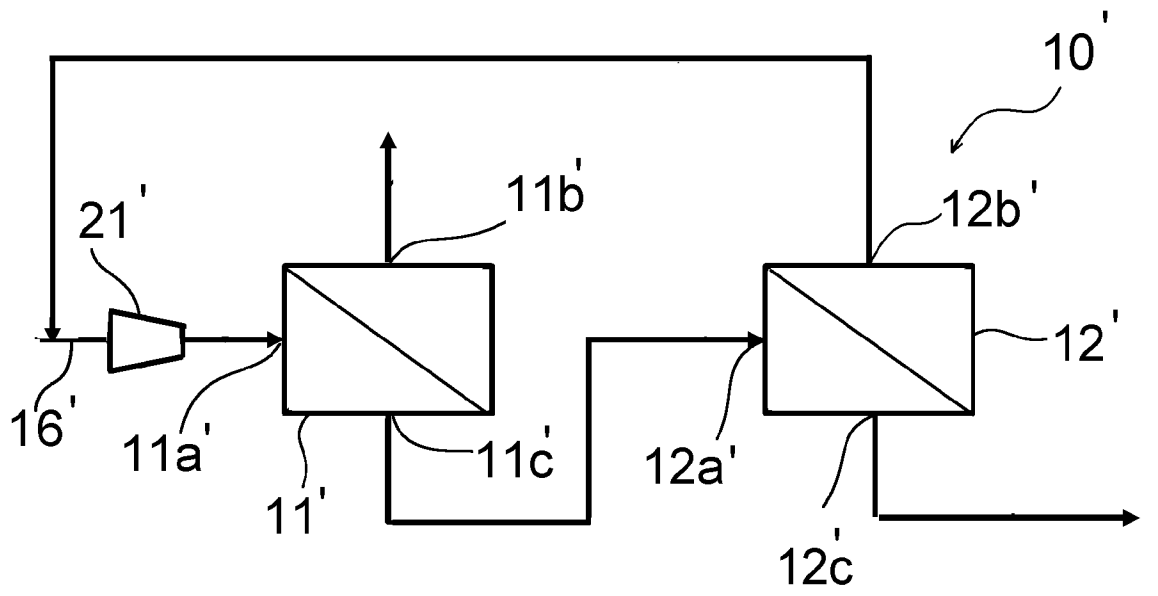
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/014656

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C10L3/10 (2006.01) i, B01D53/22 (2006.01) i
FI: B01D53/22, C10L3/10

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)

Int. Cl. G10L3/10, B01D53/22

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.
Y	JP 2001-000949 A (MITSUBISHI KAKOKI KK) 09 January 2001, claims 1, 3, paragraphs [0016], [0029], table 1, fig. 1	1-6
Y	JP 2018-126729 A (CENTRAL GLASS CO., LTD.) 16 August 2018, claims 1, 13-15, paragraph [0117], table 1	1-6
Y	JP 2015-066484 A (FUJIFILM CORP.) 13 April 2015, claims 1, 6, 8, paragraphs [0002], [0059]-[0061], table 1	1-6
Y	JP 2013-534863 A (EVONIK FIBRES GMBH) 09 September 2013, claims 1, 13-14, paragraphs [0074], [0075]	1-6

☐ 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
29.05.2020

Date of mailing of the international search report
09.06.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/014656

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2001-000949 A	09.01.2001	(Family: none)	
JP 2018-126729 A	16.08.2018	(Family: none)	
JP 2015-066484 A	13.04.2015	WO 2015/046141 A1	
JP 2013-534863 A	09.09.2013	US 2013/0098242 A1	
		claims 1, 13-14,	
		paragraphs [0077],	
		[0078]	
		WO 2012/000727 A1	
		EP 2588217 A1	
		CN 103068466 A	
		KR 10-2014-0005846 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C10L 3/10(2006.01)i; B01D 53/22(2006.01)i FI: B01D53/22; C10L3/10														
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）） C10L3/10; B01D53/22														
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														
<table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table>			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				
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												
Y	JP 2001-000949 A（三菱化工機株式会社）09.01.2001（2001-01-09） 請求項1, 3, [0016], [0029], 表1, 図1	1-6												
Y	JP 2018-126729 A（セントラル硝子株式会社）16.08.2018（2018-08-16） 請求項1, 13-15, [0117], 表1	1-6												
Y	JP 2015-066484 A（富士フイルム株式会社）13.04.2015（2015-04-13） 請求項1, 6, 8, [0002], [0059]-[0061], 表1	1-6												
Y	JP 2013-534863 A（エボニック ファイバース ゲゼルシャフト ミット ベシュレンク テル ハフツング）09.09.2013（2013-09-09） 請求項1, 13-14, [0074]-[0075]	1-6												
☐ 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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 参考文献のカテゴリー</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 参考文献のカテゴリー	“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	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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	
* 参考文献のカテゴリー	“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													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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														
国際調査を完了した日 29.05.2020	国際調査報告の発送日 09.06.2020													
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） 松井 一泰 4D 5805 電話番号 03-3581-1101 内線 3421													

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/JP2020/014656

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2001-000949	A	09.01.2001	(ファミリーなし)			
JP	2018-126729	A	16.08.2018	(ファミリーなし)			
JP	2015-066484	A	13.04.2015	WO	2015/046141	A1	
JP	2013-534863	A	09.09.2013	US	2013/0098242	A1	
				Claims1, 13-14, [0077]-[0078]			
				WO	2012/000727	A1	
				EP	2588217	A1	
				CN	103068466	A	
				KR	10-2014-0005846	A	