世界知的所有権機関
国際事務局

PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類6 **C07C 9/04, 7/144, C10L 3/00, B01D 61/58, 53/22**	**A1**	(11) 国際公開番号	**WO97/16399**
		(43) 国際公開日	1997年5月9日(09.05.97)

(21) 国際出願番号 PCT/JP96/03050

(22) 国際出願日 1996年10月18日(18.10.96)

(30) 優先権データ
特願平7/284918 1995年11月1日(01.11.95) JP

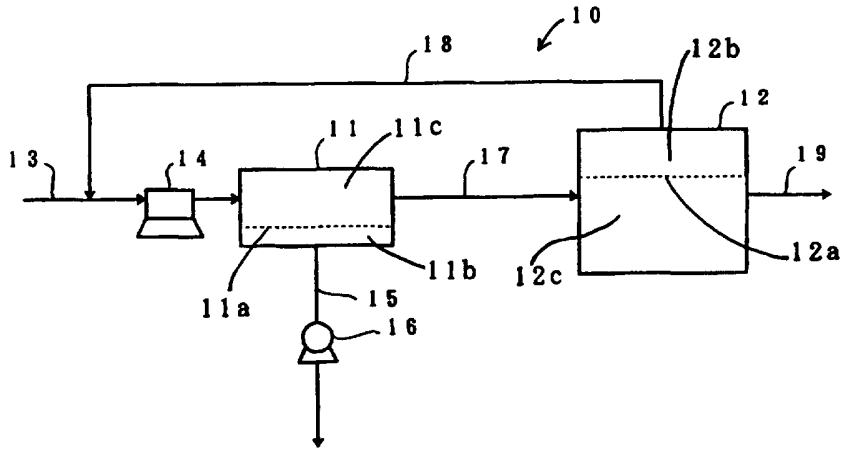
(71) 出願人（米国を除くすべての指定国について）
住友精化株式会社
(SUMITOMO SEIKA CHEMICALS CO., LTD.)[JP/JP]
〒675-01 兵庫県加古郡播磨町宮西346番地の1 Hyogo, (JP)
(72) 発明者；および
(75) 発明者／出願人（米国についてのみ）
井上雅裕(INOUE, Masahiro)[JP/JP]
春名一生(HARUNA, Kazuo)[JP/JP]
〒675-01 兵庫県加古郡播磨町宮西346番地の1
住友精化株式会社 化工機事業部内 Hyogo, (JP)
(74) 代理人
弁理士 吉田 稔, 外(YOSHIDA, Minoru et al.)
〒543 大阪府大阪市天王寺区玉造元町2-32-1301 Osaka, (JP)

(81) 指定国 AU, CA, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類
国際調査報告書

(54)Title: **METHOD AND APPARATUS FOR CONCENTRATING METHANE IN ANAEROBIC DIGESTIVE FERMENTATION GAS**

(54)発明の名称 嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮方法および装置



(57) **Abstract**

A methane concentration method for removing carbonic acid gas from an anaerobic digestive fermentation gas and concentrating and recovering methane by using an apparatus (10) including a pre-stage module (11) with a membrane (11a) and a post-stage module (12) with a membrane (12a) connected in series. According to this method, an anaerobic digestive fermentation gas is supplied under pressure to the pre-stage module (11) through a compressor (14). The gas passing through the pre-stage module (11) is discharged by a vacuum pump (16), while the gas remaining in the pre-stage module is supplied by a residual pressure to the post-stage module (12). The gas passing through the post-stage module is returned to the pre-stage module (11) through a recycling pipe (18), and the gas remaining in the post-stage module (12) is recovered as concentrated methane gas having a concentration of at least 90 % at a methane yield of at least 85 %.

（５７）要約

各々ガス分離膜（１１ａまたは１２ａ）を備える前段モジュール（１１）と後段モジュール（１２）とを２段直列に配置された装置（１０）を用いて、嫌気性消化醗酵ガスから炭酸ガスを除去してメタンを濃縮回収するメタン濃縮方法が提供される。この方法では、嫌気性消化醗酵ガスを前段モジュール（１１）へコンプレッサ（１４）を介して加圧供給するとともに、前段モジュール（１１）からの透過ガスを減圧ポンプ（１６）減圧排気し、前段モジュールからの非透過ガスを残圧によって後段モジュール（１２）へ供給するとともに、後段モジュールの透過ガスをリサイクル管（１８）を介して前段モジュール（１１）へリサイクルし、後段モジュール（１２）の非透過ガスをメタン濃度が９０％以上のメタン濃縮ガスとしてメタン収率８５％以上で回収する。

情報としての用途のみ

ＰＣＴに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にＰＣＴ加盟国を同定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	SD	スーダン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SE	スウェーデン
AU	オーストラリア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LV	ラトヴィア	SI	スロヴェニア
BB	バルバドス	GB	イギリス	MC	モナコ	SK	スロヴァキア共和国
BE	ベルギー	GE	グルジア	MD	モルドバ	SN	セネガル
BF	ブルギナ・ファソ	GH	ガーナ	MG	マダガスカル	SZ	スワジランド
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TD	チャード
BJ	ベナン	GR	ギリシャ	ML	マリ	TG	トーゴ
BR	ブラジル	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	TJ	タジキスタン
BY	ベラルーシ	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	IL	イスラエル	MW	マラウイ	TR	トルコ
CF	中央アフリカ共和国	IS	アイスランド	MX	メキシコ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴー	IT	イタリー	NE	ニジェール	UA	ウクライナ
CH	スイス	JP	日本	NL	オランダ	UG	ウガンダ
CI	コート・ジボアール	KE	ケニア	NO	ノルウェー	US	米国
CM	カメルーン	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	UZ	ウズベキスタン共和国
CN	中国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	PL	ポーランド	VN	ヴィエトナム
CS	チェッコ共和国	KR	大韓民国	PT	ポルトガル	YU	ユーゴスラビア
CZ	チェッコ	KZ	カザフスタン	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	LC	セントルシア				
DK	デンマーク	LK	スリランカ				

明細書

発明の名称

嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮方法および装置

技術分野

本発明は、嫌気性消化醗酵ガス等のメタンと炭酸ガスを主成分とする混合ガスから炭酸ガスを除去してメタンを濃縮回収する技術に関する。

背景技術

廃棄物からエネルギーを回収する方法として、たとえば下水汚泥や屎尿汚泥等の嫌気性消化醗酵によって発生する炭化水素含有ガスを原料とし、燃料電池によって発電を行うことが考えられる。すなわち、このような嫌気性消化醗酵ガスは、メタンと炭酸ガスを主成分とする混合ガスであり、この混合ガス中のメタンを簡便に分離することができれば、このメタンをさらに分解して水素ガスを得、燃料電池においてこの水素ガスを燃料として発電を行うことができる。

嫌気性消化醗酵ガス中のメタンの濃縮回収において炭酸ガスを除去する場合、たとえば化学吸収法、物理吸収法、ＰＳＡ法（圧力スイング吸着法）、ガス分離膜を使用した分離法等を採用することができる。これらの炭酸ガス除去法のうち、ガス分離膜を使用した分離法が、システムを簡単に構成できること、装置が比較的小規模で実現できる点において有利である。

このような観点から、特開昭６１－５３９９４号公報（文献１）、特開平４－１７７０１３号公報（文献２）、特公平６－８９３４９号公報（文献３）は、ガス分離膜を利用して、メタン・炭酸ガス混合ガス中の炭酸ガスを除去して、メタンを濃縮する方法を開示している。すなわち、文献１の方法においては、ごみ埋め立て地からメタンを回収するために、嫌気性消化醗酵ガスを炭酸ガスを通しやすいガス分離膜に通している。また、文献２の方法においても、嫌気性排水処理装置から発生するメタン・炭酸ガス混合ガスからメタンを回収するために、膜分離装置が用いられている。さらに、文献３においては、水添脱硫した炭化水素を低温水蒸気改質し

てメタンを主成分とする都市ガス用の代替天然ガスを製造する方法において、低温水蒸気改質して得られるメタン・炭酸ガス含有改質ガスからメタンを主成分とするガスを得るために、膜分離装置が用いられている。

しかしながら、上記各文献に記載の方法では、ガス分離膜を使用したシステムにおける処理量、メタン濃度、収率等の分離性能に関する検討はいまだなされていない。また、いずれの方法でも、メタン・炭酸ガス混合ガスの膜分離は1段階で行われているため、現存するガス分離膜の性能からくる制約のために、十分満足のゆく高いメタン濃度を達成することはできなかった。

一方、燃料電池において効率的な発電を行うためには、燃料電池部に供給される原料ガス組成として、炭酸ガス濃度が１０%以下、メタン濃度が９０%以上であることが望ましい。また、メタンの収率としては、８５%、望ましくは９０%以上が期待されている。しかしながら、膜分離装置を使用した簡単なシステムにおいてこれほどのメタン分離性能および収率をもつものは、これまでに存在しない。

発明の開示

本発明は、このような事情のもとで考え出されたものであり、メタンおよび炭酸ガスを主成分とする嫌気性消化酸酵ガスから、ガス分離膜を利用した簡易なシステムにより、メタンの高濃度、高収率分離回収を実現することをその課題とする。

本発明の第１の側面によれば、ガス分離膜を使用して嫌気性消化酸酵ガスから炭酸ガスを除去してメタンを濃縮回収する方法であって、各々ガス分離膜を備える前段モジュールと後段モジュールとを２段直列に配置し、嫌気性消化酸酵ガスを前段モジュールへ加圧供給するとともに、前段モジュールからの透過ガスを減圧排気し、前段モジュールからの非透過ガスを残圧によって後段モジュールへ供給するとともに、後段モジュールの透過ガスを前段モジュールへリサイクルし、後段モジュールの非透過ガスをメタン濃度が９０%以上のメタン濃縮ガスとしてメタン収率８５%以上で回収することを特徴とする、嫌気性消化酸酵ガスのメタン濃縮方法が提供される。

本発明の好適な実施例では、前段モジュールへのガス供給圧力は２～４×１０^5 Paとし、前段モジュールの透過ガスの圧力は０．２～０．９×１０^5 Paとする。ま

た、後段モジュールの透過ガスの圧力は大気圧とする。

以上の本発明方法によれば、前段モジュールに供給する嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃度が５０～７０%である場合、前段モジュールの非透過ガスのメタン濃度は７５～８５%に上昇する。そして、後段モジュールへの供給ガス量の２０～４０%に相当する後段モジュールの透過ガスを前段モジュールへリサイクルさせる場合、後段モジュールの非透過ガスとして回収される製品ガス中のメタン濃度は、９０%以上となり、メタン収率は８５%以上となる。

本発明方法においては、後段モジュールの透過ガスを前段モジュールにリサイクルさせることによりメタン収率を高め、２段の膜モジュールを直列に使用することによりメタン濃度を著しく高め、これにより、高収率での高濃度メタン回収を可能としている。ただし、前段モジュールへの供給圧力および前段モジュールの透過側圧力を適切にバランスさせることが高収率かつ高濃度のメタン回収を行う上できわめて重要であることが見出されている。すなわち、前段モジュールへのガス供給圧力が2×10^5 Pa未満であり、透過側圧力が0.2×10^5 Pa未満であると、９０%以上のメタン濃度、８５%以上のメタン収率を得ることが困難となる。また、前段モジュールへの供給圧力が4×10^5 Paを越えると、前段モジュールでの透過ガス中に含まれるメタン量が増えるためにかえってメタン収率が悪化する。このような検討の結果、前段モジュールへの供給圧力の最適範囲が$2\sim4\times10^5$ Pa、前段モジュールの透過側圧力の最適範囲が$0.2\sim0.9\times10^5$ Paであることが見出されたのである。

本発明方法では、後段モジュールのガス分離膜の面積を前段モジュールのガス分離膜の面積の２～４倍とするのが有利であることも分かっている。後段モジュールの膜面積が前段モジュールの膜面積の２倍より小さいと、炭酸ガスの透過が不十分となって所期のメタン濃度を得ることができない。また、後段モジュールの膜面積が前段モジュールの膜面積の４倍より大きいと透過量が多くなってリサイクル量が増え、その結果、装置が大型化するので経済的ではなくなる。

本発明方法において、各モジュールに組み込まれるガス分離膜は、メタンを透過しにくく、炭酸ガスを透過しやすい特性を有しておればよい。このような特性を有する膜材料としては、たとえば、酢酸セルロース、ポリスルホン、ポリアミド、ポ

リイミド等を挙げることができる。

本発明の第２の側面によれば、コンプレッサが介装されるとともに嫌気性消化醗酵ガスが供給される供給管と、この供給管に入口が接続された前段分離膜モジュールと、この前段分離膜モジュールの透過ガス出口に接続されかつ減圧ポンプを有する排気管と、上記前段分離膜モジュールの非透過ガス出口に一端が接続された非透過ガス管と、この非透過ガス管の他端に入口が接続された後段分離膜モジュールと、この後段分離膜モジュールの透過ガス出口に一端が接続され、上記供給管の上記コンプレッサよりも上流側に他端が接続されたリサイクル管と、上記後段分離膜モジュールの非透過ガス出口に接続された製品ガス管と、を備えることを特徴とする、嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮装置が提供される。

本発明のその他の特徴および利点は、図面を参照して以下に行う詳細な説明よりさらに明らかとなろう。

図面の簡単な説明

図１は、本発明の一実施例に係るメタン濃縮回収装置の一形態を示す模式図である。

発明を実施するための最良の形態

〔装置の構成〕

図１は、本発明に一実施例に係るメタン濃縮回収装置の構成の一形態を示す。このメタン濃縮回収装置１０は、主として、直列配置された２段のガス分離膜モジュール１１，１２を備えている。

前段分離膜モジュール１１の内部は分離膜１１ａにより透過側１１ｂと非透過側１１ｃとに区画されており、非透過側１１ｃの入口には、嫌気性消化醗酵ガスが供給されるコンプレッサ１４が介装された供給ガス管１３が接続されている。また、透過側１１ｂの出口は真空ポンプ等の減圧ポンプ１６が介装されて排気管１５に接続される一方、非透過側１１ｃの出口は非透過ガス管１７の一端に接続されている。

後段分離膜モジュール１２の内部も分離膜１２ａによって透過側１２ｂと非透過側１２ｃとに区画されており、非透過側１２ｃの入口には、上記非透過ガス管１７

の他端が接続されている。後段分離膜モジュール１２における透過側１２ｂの出口は、リサイクル管１８の一端に接続されている。このリサイクル管１８の他端は、上記供給ガス管１３における上記コンプレッサ１４よりも上流側に接続されている。また、この後段分離膜モジュール１２における非透過側１２ｃの出口は、製品ガス管１９に至っている。

コンプレッサ１４による前段分離膜モジュール１１へのガス供給圧力は、好ましくは２～４×１０^5 Paに設定される。減圧ポンプ１６によって、上記分離膜モジュール１１の透過側１１ｂの圧力が好ましくは０．２～０．９×１０^5 Paに減圧される。また、後段モジュール１２における分離膜１２ａの面積は、前段モジュール１１における分離膜１１ａの面積よりも大に設定される。好ましくは、後段モジュール１２における分離膜１２ａの面積は、前段モジュール１１における分離膜１１ａの面積の２～４倍に設定される。さらに、両モジュール１１、１２の各々における分離膜１１ａ，１２ａは、例えば、ポリイミド中空糸膜とすることができる。

〔装置の動作〕

次に、上記装置を用いて嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮回収を行う方法の一例を説明する。

供給ガス管１３からは、たとえばメタン濃度が６０％の嫌気性消化醗酵ガスが供給される。この嫌気性消化醗酵ガスは、リサイクル管１８から合流するリサイクルガスと合わせて、コンプレッサ１４によってたとえば２～４×１０^5 Paに加圧されて前段分離膜モジュール１１に供給される。上述のように、この前段モジュール１１における透過側１１ｂは減圧ポンプ１６によって０．２～０．９×１０^5 Paに減圧されているため、炭酸ガスが効率的に除去され、排気される。

この前段分離膜モジュール１１の非透過側１１ｃでメタン濃縮されたガスは、非透過ガス管１７を介して後段分離膜モジュール１２に供給され、その非透過側１２ｃにおいてさらにメタン濃縮される。後段分離膜モジュール１２の透過側１２ｂは、好ましくは大気圧とされ、後段分離膜モジュール１２への供給ガス量の２０～４０％がリサイクル管１８を介して供給ガス管１３にリサイクルされる。すなわち、この後段分離膜モジュール１２の透過ガスに残存するメタンがそのまま排気されることなく、再濃縮のためにリサイクルされる。その結果、前段分離膜モジュール１１

の非透過側１１ｃの出口におけるメタン濃度は７５～８５％となり、後段分離膜モジュール１２の非透過側１２ｃの出口における製品ガスのメタン濃度は９０％以上となる。また、メタン収率は、８５％以上となる。

〔実施例および比較例〕

以下に、本発明に係る嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮回収方法の有利性を示すために、いくつかの実施例を比較例とともに説明する。

《実施例１》

図１に示す装置において、前段モジュール１１（直径２５㎜×長さ２１４㎜）と後段モジュール１２（直径２５㎜×長さ６４２㎜）におけるそれぞれの分離膜１１ａ、１２ａをポリイミド中空糸膜（宇部興産株式会社製）とし、膜面積比を１：３とした。メタン濃度６０％、炭酸ガス濃度４０％の混合ガスをコンプレッサ１４により供給圧力３×１０^5 Paに加圧し、供給量４００ℓ／Hrで供給した。前段モジュール１１の透過側１１ｂは減圧ポンプ１６により０．６×１０^5 Paに減圧して、透過ガスを吸引排気した。また、後段モジュール１２への供給ガス量の３０％にあたる透過ガスをリサイクル管１８を介して大気圧で供給ガス管１３にリサイクルした。その結果、前段モジュール１１の非透過ガス中のメタン濃度は８０％であり、リサイクルガス中のメタン濃度は５５％であった。後段モジュール１２の非透過ガスとしての製品ガス中のメタン濃度は９２％であり、メタン収率は９０％であった。

《実施例２》

図１に示す装置において、前段モジュール１１（直径２５㎜×長さ２１４㎜）と後段モジュール１２（直径２５㎜×長さ４２８㎜）におけるそれぞれの分離膜１１ａ、１２ａとしてポリイミド中空糸膜を用い、膜面積比を１：２とした。メタン濃度６０％、炭酸ガス濃度４０％の混合ガスをコンプレッサ１４により供給圧力４×１０^5 Paに加圧し、供給量４００ℓ／Hrで供給した。前段モジュール１１の透過側１１ｂは減圧ポンプ１６により０．９×１０^5 Paに減圧して、透過ガスを吸引排気した。また、後段モジュール１２への供給ガス量の２３％にあたる透過ガスをリサイクル管１８を介して大気圧で供給ガス管１３にリサイクルした。その結果、前段モジュール１１の非透過ガス中のメタン濃度は７７％であり、リサイクルガス中のメタン濃度は５０％であった。後段モジュール１２の非透過ガスとしての製品ガス

中のメタン濃度は９０％であり、メタン収率は８６％であった。

《実施例３》

図１に示す装置において、前段モジュール１１（直径２５㎜×長さ２１４㎜）と後段モジュール１２（直径５０㎜×長さ２１４㎜）におけるそれぞれの分離膜１１ａ、１２ａとしてポリイミド中空糸膜を用い、膜面積比を１：４とした。メタン濃度６０％、炭酸ガス濃度４０％の混合ガスをコンプレッサ１４により供給圧力２×10^5 Paに加圧して供給した。前段モジュール１１の透過側１１ｂは減圧ポンプ１６により０．２×10^5 Paに減圧し、透過ガスを吸引排気した。後段モジュール１２への供給ガス量の３８％にあたる透過ガスをリサイクル管１８を介して大気圧で供給ガス管１３にリサイクルした。その結果、前段モジュール１１の非透過ガス中のメタン濃度は８２％であり、リサイクルガス中のメタン濃度は５９％であった。後段モジュール１２の非透過ガスとしての製品ガス中のメタン濃度は９０％であり、メタン収率は８９％であった。

《比較例１》

図１に示す装置において、前段モジュール１１（直径２５㎜×長さ２１４㎜）と後段モジュール１２（直径２５㎜×長さ６４２㎜）におけるそれぞれの分離膜１１ａ、１２ａをポリイミド中空糸膜とし、膜面積比を１：３とした。メタン濃度６０％、炭酸ガス濃度４０％の混合ガスを供給圧力１．２×10^5 Paに加圧し、供給量４００ℓ／Hrで供給した。前段モジュール１１の透過側１１ｂは減圧ポンプ１６により０．１５×10^5 Paに減圧して、透過ガスを吸引排気した。また、後段モジュール１２への供給ガス量の１６％にあたる透過ガスをリサイクル管１８を介して大気圧で供給ガス管１３にリサイクルした。その結果、後段モジュール１２の非透過ガスとしての製品ガス中のメタン濃度は８６％であり、メタン収率は８０％であった。なお、本比較例では、前段モジュール１１へのガス供給圧が１．２×10^5 Paと低いため、図１におけるコンプレッサ１４に代えてブロアを用いた。

《比較例２》

図１に示す装置において、前段モジュール１１（直径２５㎜×長さ２１４㎜）と後段モジュール１２（直径２５㎜×長さ６４２㎜）におけるそれぞれの分離膜１１ａ、１２ａをポリイミド中空糸膜とし、膜面積比を１：３とした。メタン濃度６０

%、炭酸ガス濃度４０%の混合ガスを供給圧力４．５×１０^5 Paに加圧し、供給量４００ℓ／Hrで供給した。前段モジュール１１からの透過ガスは大気圧で排気した。後段モジュール１２への供給ガス量の５０%にあたる透過ガスをリサイクル管１８を介して供給ガス管１３に大気圧でリサイクルした。その結果、後段モジュール１２の非透過ガスとしての製品ガス中のメタン濃度は９０%であり、メタン収率は８１%であった。なお、本比較例では、前段モジュール１１からの透過ガスは大気圧で排気するため、図１における減圧ポンプ１６は設けられなかった。

《評価》

以上の実施例１～３では、２段のガス分離膜モジュール１１、１２を用い、装置の操作条件を所定の範囲内に設定しているので、いずれも目標とするメタン濃度９０%以上、メタン収率８５%以上を達成できている。

これに対して、比較例１では、前段モジュール１１へのガス供給圧が２×１０^5 Paよりも低く、しかも前段モジュール１１からの透過ガス圧が０．２×１０^5 Paよりも低いため、製品ガス中のメタン濃度が９０%未満となるばかりでなく、メタン収率が８５%未満となっている。また、比較例２では、前段モジュール１１へのガス供給圧が４×１０^5 Paを超えており、前段モジュール１１からの透過ガス圧（大気圧）が０．９×１０^5 Paよりも高いため、メタン濃度は９０%を達成しているものの、メタン収率が８１%と低くなっている。

なお、上記比較例１および２は、操作条件（ガス供給圧等）がメタン濃度およびメタン収率に与える影響を示すためのものであり、従来技術との比較を示すものではない。事実、比較例１および２で用いられた装置は、直列接続された２段のガス分離モジュール１１、１２を用いている点では、実施例１～３と同様であり、単一段のガス分離膜モジュールしか用いていない従来技術とは異なるものである。

また、上記実施例１～３において、前段モジュール１１からの非透過ガス中におけるメタン濃度は、単一段のガス分離膜モジュールを採用する従来技術が達成できるメタン濃度に対応すると解される。これによると、いずれの実施例においても、直列２段のガス分離膜モジュール１１、１２を採用することにより、製品ガス中のメタン濃度を高め得ることが分かる。

請求の範囲

1．ガス分離膜を使用して嫌気性消化醗酵ガスから炭酸ガスを除去してメタンを濃縮回収する方法であって、各々ガス分離膜を備える前段モジュールと後段モジュールとを２段直列に配置し、嫌気性消化醗酵ガスを前段モジュールへ加圧供給するとともに、前段モジュールからの透過ガスを減圧排気し、前段モジュールからの非透過ガスを残圧によって後段モジュールへ供給するとともに、後段モジュールの透過ガスを前段モジュールへリサイクルし、後段モジュールの非透過ガスをメタン濃度が９０％以上のメタン濃縮ガスとしてメタン収率８５％以上で回収することを特徴とする、嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃縮方法。

2．前段モジュールへのガス供給圧力を２～４×１０^5 Paとし、前段モジュールの透過ガスの圧力を０．２～０．９×１０^5 Paとする、請求項１に記載の方法。

3．後段モジュールの透過ガスの圧力を大気圧とする、請求項１に記載の方法。

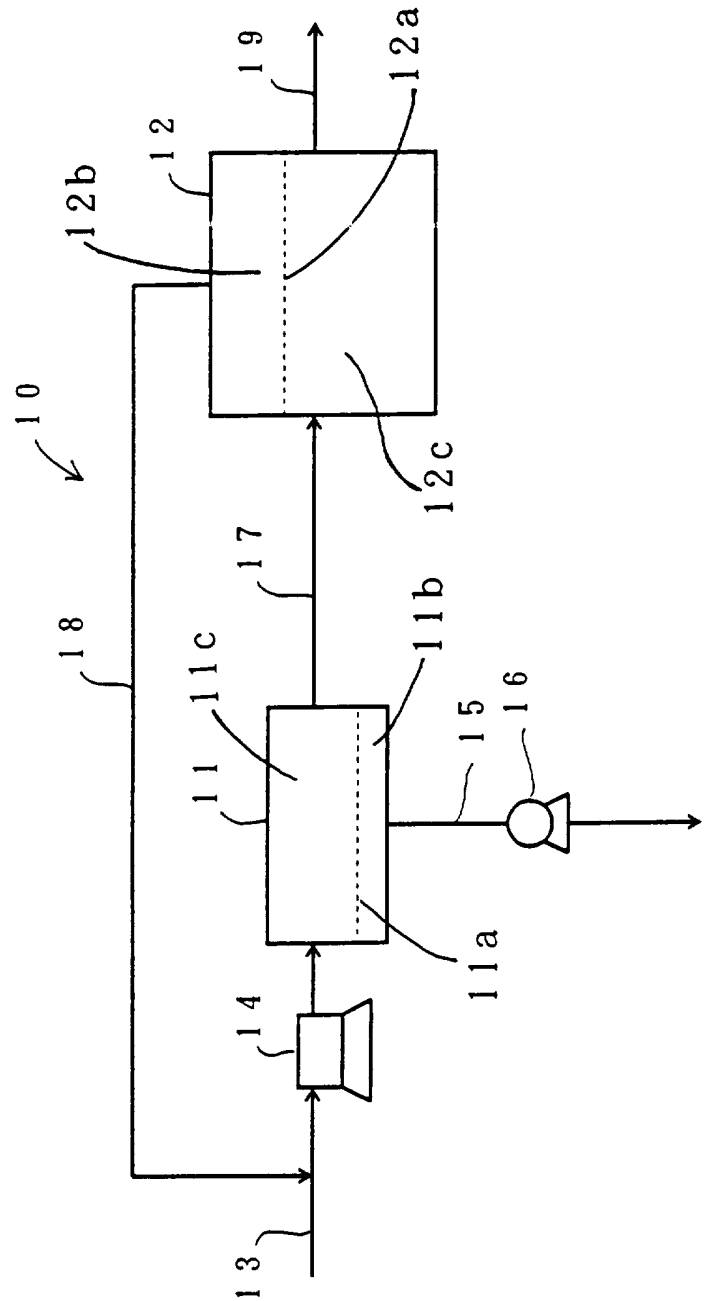
4．後段モジュールのガス分離膜の面積を前段モジュールのガス分離膜の面積の２～４倍とする、請求項１に記載の方法。

5．後段モジュールからのリサイクルされる透過ガス量を後段モジュールに対する供給ガス量の２０～４０％とする、請求項１に記載の方法。

6．後段モジュールのガス分離膜の面積を前段モジュールのガス分離膜の面積の２～４倍とするとともに、後段モジュールからのリサイクルされる透過ガス量を後段モジュールに対する供給ガス量の２０～４０％とすることにより、前段モジュールに供給される嫌気性消化醗酵ガスのメタン濃度が５０～７０％である場合に、前段モジュールから後段モジュールへ供給される非透過ガス中のメタン濃度を７５～８５％とする、請求項１に記載の方法。

7．コンプレッサが介装されるとともに嫌気性消化酸酵ガスが供給される供給管と、この供給管に入口が接続された前段分離膜モジュールと、この前段分離膜モジュールの透過ガス出口に接続されかつ減圧ポンプを有する排気管と、上記前段分離膜モジュールの非透過ガス出口に一端が接続された非透過ガス管と、この非透過ガス管の他端に入口が接続された後段分離膜モジュールと、この後段分離膜モジュールの透過ガス出口に一端が接続され、上記供給管の上記コンプレッサよりも上流側に他端が接続されたリサイクル管と、上記後段分離膜モジュールの非透過ガス出口に接続された製品ガス管と、を備えることを特徴とする、嫌気性消化酸酵ガスのメタン濃縮装置。

Fig. 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP96/03050

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int. Cl^6 C07C9/04, C07C7/144, C10L3/00, B01D61/58, B01D53/22
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^6 C07C9/04, C07C7/144, C10L3/00, B01D61/58, B01D53/22

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

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, 61-53994, A (Monsanto Co.), March 18, 1986 (18. 03. 86), Page 2, upper left column, lines 1 to 5 & EP, 173667, A1 & US, 4518399, A & CA, 1219525, A	1 - 7
Y	JP, 5-25482, A (Mitsubishi Kakoki Co., Ltd.), February 2, 1993 (02. 02. 93), Page 3, right column, lines 1 to 14 (Family: none)	1 - 7
Y	JP, 51-147480, A (Toshiba Corp.), December 17, 1976 (17. 12. 76), Claim; page 3, upper right column, lines 6 to 8; Fig. 1 (Family: none)	1 - 7

☐ 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 document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
December 17, 1996 (17. 12. 96)	December 25, 1996 (25. 12. 96)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ９６／０３０５０

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））
Int.Cl⁶　C07C9/04, C07C7/144, C10L3/00, B01D61/58, B01D53/22

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））
Int.Cl⁶　C07C9/04, C07C7/144, C10L3/00, B01D61/58, 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

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	関連する請求の範囲の番号
Y	ＪＰ，６１－５３９９４，Ａ（モンサント　コンパニー）１８，３月，１９８６（１８．０３．８６），２頁左上欄１行～５行　＆　ＥＰ，１７３６６７，Ａ１　＆　ＵＳ，４５１８３９９，Ａ　＆　ＣＡ，１２１９５２５，Ａ	１～７
Y	ＪＰ，５－２５４８２，Ａ（三菱化工機株式会社）２，２月，１９９３（０２．０２．９３），３頁右欄１行～１４行（ファミリーなし）	１～７
Y	ＪＰ，５１－１４７４８０，Ａ（東京芝浦電気株式会社）１７，１２月，１９７６（１７．１２．７６），特許請求の範囲，３頁右上欄６行～８行，第１図（ファミリーなし）	１～７

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１７．１２．９６	25.12.96

国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官（権限のある職員）		
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	福井　悟　印	４Ｈ	９１６０
	電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線３４４４		

様式ＰＣＴ／ＩＳＡ／２１０（第２ページ）（１９９２年７月）