(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
2022年9月15日(15.09.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/190938 A1

(51) 国際特許分類:
B01D 63/00 (2006.01)　*B01D 71/52* (2006.01)
B01D 63/10 (2006.01)　*B01D 71/56* (2006.01)
B01D 65/10 (2006.01)　*G01M 3/26* (2006.01)
B01D 69/06 (2006.01)　*B01D 53/22* (2006.01)
B01D 69/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2022/008373

(22) 国際出願日：　2022年2月28日(28.02.2022)

(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 2021-037655　2021年3月9日(09.03.2021)　JP

(71) 出願人: 日東電工株式会社 (**NITTO DENKO CORPORATION**) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 片桐　慎 (**KATAGIRI Makoto**); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号日東電工株式会社内 Osaka (JP). 中村 吉宏 (**NAKAMURA Yoshihiro**); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号日東電工株式会社内 Osaka (JP). 西山 真哉(**NISHIYAMA Shinya**); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積１丁目１番２号日東電工株式会社内 Osaka (JP).

(54) **Title:** SPIRAL MEMBRANE ELEMENT AND MEMBRANE SEPARATION SYSTEM

(54) 発明の名称： スパイラル型膜エレメント及び膜分離システム

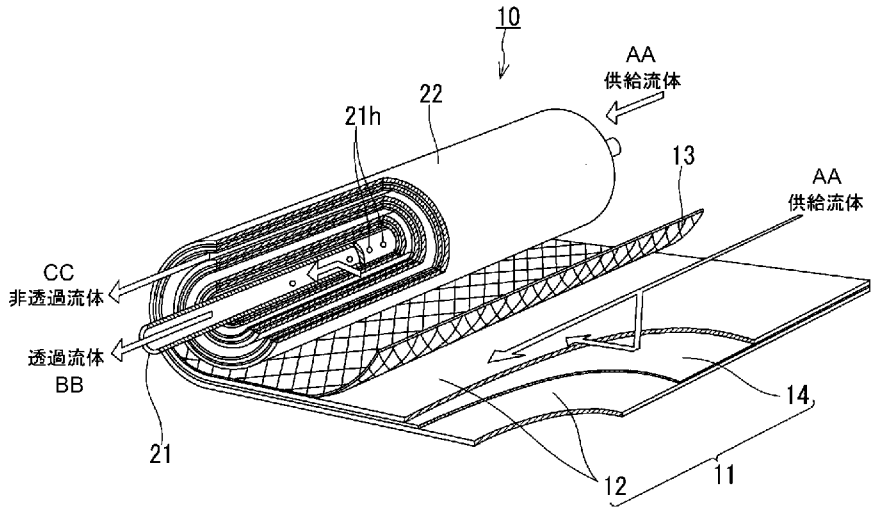


FIG.1

AA　Supplied fluid
BB　Permeated fluid
CC　Not-permeated fluid

(57) **Abstract:** The present invention provides a spiral membrane element that is suited to suppressing reductions in the permeation speed (or the permeation flux) of a permeated fluid from a separation membrane. This spiral membrane element 10 comprises a center tube 21, a membrane leaf 11 that has a separation membrane 12 and a permeation spacer 14 and is wound around the center tube 21, and a channel spacer 15 that is connected to the permeation spacer 14 and is wound around the center tube 21 closer to the center tube 21 side than the membrane leaf 11. The pressure loss P1 of the channel spacer 15 as measured by means of a prescribed test is lower than the pressure loss P2 of the permeation spacer 14.

WO 2022/190938 A1

［続葉有］

(74) 代理人：鎌田 耕一，外(**KAMADA Koichi** et al.)；〒5300047 大阪府大阪市北区西天満４丁目３番２５号梅田プラザビル別館８階 Osaka (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, IT, JM, 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.

(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：本発明は、分離膜からの透過流体の透過速度（又は透過流束）の低下を抑制することに適したスパイラル型膜エレメントを提供する。本発明のスパイラル型膜エレメント１０は、中心管２１と、分離膜１２及び透過スペーサ１４を有し、中心管２１に巻き付けられた膜リーフ１１と、透過スペーサ１４に接続され、膜リーフ１１よりも中心管２１側で中心管２１に巻き付けられた流路スペーサ１５と、を備える。所定の試験によって測定された流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１は、透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２よりも小さい。

明　細　書

発明の名称 ： スパイラル型膜エレメント及び膜分離システム

技術分野

[0001]　本発明は、スパイラル型膜エレメント及び膜分離システムに関する。

背景技術

[0002]　二酸化炭素などの酸性ガスを含む混合気体から酸性ガスを分離する方法として、膜分離法が開発されている。膜分離法は、混合気体に含まれる酸性ガスを吸収剤に吸収させて分離する吸収法と比べて、運転コストを抑えながら酸性ガスを効率的に分離することができる。

[0003]　膜分離法には、例えば、スパイラル型膜エレメントが用いられる。スパイラル型膜エレメントは、中心管と、中心管に巻き付けられた膜リーフとを備えている。膜リーフは、分離膜及び透過スペーサを有する。スパイラル型膜エレメントは、膜エレメントにおける分離膜の膜面積を増加させることに適している。

[0004]　スパイラル型膜エレメントは、例えば、膜リーフよりも中心管側で中心管に巻き付けられた流路スペーサをさらに有する（例えば、特許文献１）。流路スペーサによれば、膜リーフからの透過流体を中心管に容易に送ることができる。スパイラル型膜エレメントを作製するときに流路スペーサが存在すると、膜リーフを中心管に容易に巻き付けることができる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許第４６５０９２１号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006]　スパイラル型膜エレメントでは、分離膜からの透過流体の透過速度が、平膜状の同じ分離膜からの透過流体の透過速度よりも小さい傾向がある。すなわち、分離膜をスパイラル型膜エレメントに適用すると、分離膜からの透過

流体の透過速度が低下する傾向がある。この傾向は、中心管の内部を減圧してスパイラル型膜エレメントを運転する方式（減圧方式）で特に顕著である。

[0007] そこで本発明は、分離膜からの透過流体の透過速度（又は透過流束）の低下を抑制することに適したスパイラル型膜エレメントを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、鋭意検討の結果、スパイラル型膜エレメントにおける透過流体の透過速度の低下がスペーサ、特に流路スペーサ、での圧力損失に起因していることを新たに見出した。本発明者らは、この知見に基づいてさらに検討を進め、本発明を完成するに至った。

[0009] 本発明は、

中心管と、

分離膜及び透過スペーサを有し、前記中心管に巻き付けられた膜リーフと、

前記透過スペーサに接続され、前記膜リーフよりも前記中心管側で前記中心管に巻き付けられた流路スペーサと、

を備え、

下記試験により測定された前記流路スペーサの圧力損失Ｐ１が、下記試験により測定された前記透過スペーサの圧力損失Ｐ２よりも小さい、スパイラル型膜エレメントを提供する。

試験：縦１５０ｍｍ×横４７ｍｍの短冊状のスペーサ（前記流路スペーサ又は前記透過スペーサ）をポリエチレンテレフタレート製のフィルムに積層させた試験片を準備する。前記試験片の前記フィルムに隣接する空間の圧力が０．１ＭＰａとなるように窒素ガスを前記空間に送るとともに、２．５Ｌ／ｍｉｎの流量で前記スペーサに窒素ガスを送る。前記スペーサ内で、窒素ガスが前記スペーサの長手方向に移動することによって生じた圧力損失を測定する。

[0010] さらに、本発明は、

上記のスパイラル型膜エレメントと、

前記中心管の内部を減圧する減圧装置と、

を備えた、膜分離システムを提供する。

[0011] さらに、本発明は、

中心管と、

分離膜及び透過スペーサを有し、前記中心管に巻き付けられた膜リーフと、

前記透過スペーサに接続され、前記膜リーフよりも前記中心管側で前記中心管に巻き付けられた流路スペーサと、

を備え、

下記試験により測定された前記流路スペーサの圧力損失Ｐ１が３０ｋＰａ以下である、スパイラル型膜エレメントを提供する。

試験：縦１５０ｍｍ×横４７ｍｍの短冊状の前記流路スペーサをポリエチレンテレフタレート製のフィルムに積層させた試験片を準備する。前記試験片の前記フィルムに隣接する空間の圧力が０．１ＭＰａとなるように窒素ガスを前記空間に送るとともに、２．５Ｌ／ｍｉｎの流量で前記流路スペーサに窒素ガスを送る。前記流路スペーサ内で、窒素ガスが前記流路スペーサの長手方向に移動することによって生じた圧力損失を測定する。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、分離膜からの透過流体の透過速度（又は透過流束）の低下を抑制することに適したスパイラル型膜エレメントを提供できる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]本発明の一実施形態にかかるスパイラル型膜エレメントを模式的に示す展開斜視図である。

[図2]スパイラル型膜エレメントの概略断面図である。

[図3]スペーサの圧力損失を測定するための測定装置の一例を示す概略断面図である。

[図4A]スパイラル型膜エレメントが備える分離膜の一例を示す概略断面図である。

[図4B]スパイラル型膜エレメントが備える分離膜の変形例を示す概略断面図である。

[図5]スパイラル型膜エレメントの製造方法を説明するための図である。

[図6]スパイラル型膜エレメントの製造方法を説明するための図である。

[図7]スパイラル型膜エレメントを備える膜分離システムの構成図である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明の詳細を説明するが、以下の説明は、本発明を特定の実施形態に制限する趣旨ではない。

[0015] ＜スパイラル型膜エレメントの実施形態＞

図１及び２は、本発明の一実施形態にかかるスパイラル型膜エレメント１０（以下、「分離膜エレメント１０」と称する）を示している。分離膜エレメント１０は、中心管２１及び積層体２２を備えている。積層体２２は、中心管２１に巻き付けられ、中心管２１の周囲に配置されている。積層体２２の内部には、供給流体流路と透過流体流路とが形成されている。

[0016] 供給流体は、積層体２２の一方の端面から分離膜エレメント１０の内部に供給され、中心管２１の長手方向に平行に供給流体流路を流れる。分離膜エレメント１０において、供給流体が分離されて透過流体と非透過流体とが生成される。透過流体は、中心管２１を通じて外部に導かれる。非透過流体は、積層体２２の他方の端面から分離膜エレメント１０の外部に排出される。

[0017] 分離膜エレメント１０によって処理されるべき供給流体は、気体であってもよく、液体であってもよい。一例として、供給流体は、酸性ガスを含む混合気体、特に二酸化炭素及び窒素を含む混合気体、である。他の例として、供給流体は、揮発性の有機化合物を含む混合液体、特にアルコール（例えばイソプロパノール）及び水を含む混合液体、である。

[0018] 分離膜エレメント１０は、流路スペーサ１５をさらに備えている。流路スペーサ１５は、中心管２１と積層体２２との間に位置し、積層体２２よりも

中心管２１側で中心管２１に巻き付けられている。流路スペーサ１５は、積層体２２と中心管２１との間に透過流体流路としての空間を確保している。

[0019] 分離膜エレメント１０は、積層体２２を包囲するシェルをさらに備えていてもよい。シェルは、ＦＲＰ（fiber reinforced plastic）によって作られていてもよい。積層体２２の端面を保護するとともに、積層体２２がテレスコピック状に伸張することを防止するために、積層体２２の両側に端面部材が配置されていてもよい。

[0020] 図１及び２に示すとおり、積層体２２は、複数の膜リーフ１１を有する。各膜リーフ１１は、分離膜１２及び透過スペーサ１４を有する。詳細には、膜リーフ１１は、２つの分離膜１２を有する。２つの分離膜１２が互いに重ね合わされ、袋状の構造を有するように３辺において封止されている。２つの分離膜１２の封止には、例えば、接着剤を含む接着剤層２６が利用される。袋状の構造の内部に位置するように、２つの分離膜１２の間に透過スペーサ１４が配置されている。膜リーフ１１の開口端は、流路スペーサ１５に接続されており、これにより、透過スペーサ１４が流路スペーサ１５に接続されている。透過スペーサ１４は、２つの分離膜１２の間に透過流体流路としての空間を確保している。積層体２２における膜リーフ１１の数は、特に限定されず、例えば２～３０である。

[0021] 積層体２２は、供給スペーサ１３をさらに有する。供給スペーサ１３は、上述の袋状の構造の外部に位置するとともに、膜リーフ１１に積層されている。詳細には、積層体２２が複数の供給スペーサ１３を有し、積層体２２において、複数の供給スペーサ１３と複数の膜リーフ１１とが交互に積層されている。供給スペーサ１３は、膜リーフ１１と膜リーフ１１との間に供給流体流路としての空間を確保している。

[0022] 中心管２１は、各分離膜１２を透過した透過流体を集めて分離膜エレメント１０の外部に導く役割を担っている。中心管２１には、中心管２１の内部空間と外部空間とを連通する開口部２１ｈが設けられている。開口部２１ｈは、例えば、中心管２１の壁面に形成された貫通孔である。詳細には、中心

管２１には、中心管２１が延びる方向に沿って複数の開口部２１ｈが所定間隔で設けられている。中心管２１が延びる方向に沿って設けられた複数の開口部２１ｈの列の数は、特に限定されず、例えば１又は２である。中心管２１には、複数の開口部２１ｈの２つの列が互いに対向するように設けられていてもよい。複数の開口部２１ｈのそれぞれには、流路スペーサ１５が接している。これにより、透過流体は、複数の開口部２１ｈを通じて、流路スペーサ１５から中心管２１の内部に流入することができる。中心管２１の外径は、例えば１０～１００ｍｍであり、好ましくは１２～５０ｍｍである。

[0023] 本実施形態では、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１（ｋＰａ）が透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２（ｋＰａ）よりも小さい。圧力損失Ｐ１は、図３に示す測定装置３０を用いて、以下の方法によって測定することができる。まず、縦１５０ｍｍ×横４７ｍｍの短冊状のスペーサ１５ａを準備する。スペーサ１５ａは、縦及び横の長さを除き、中心管２１に巻き付けられる前の流路スペーサ１５と同じ形状を有する。スペーサ１５ａの長手方向は、流路スペーサ１５が中心管２１に巻き付けられる方向と一致する。次に、スペーサ１５ａに、ポリエチレンテレフタレート製のフィルム４１を積層させ、試験片４０を作製する。フィルム４１は、例えば、パナック社製のＰＥＴ１００ＳＧ２である。

[0024] 次に、試験片４０を測定装置３０にセットする。測定装置３０は、例えば、ホルダ３１、蓋部材３５及びシール部材３４を備えている。試験片４０は、詳細には、試験片４０のスペーサ１５ａがフィルム４１よりも下方に位置するように、測定装置３０のホルダ３１にセットされる。ホルダ３１の壁面には、開口３２及び３３が形成されている。開口３２及び３３のそれぞれは、試験片４０のスペーサ１５ａに連通している。開口３２及び３３は、一方の開口３２からホルダ３１の内部に窒素ガスを導入したときに、窒素ガスが、スペーサ１５ａの長手方向Ｘに移動して、他方の開口３３から排出されるように位置している。開口３２及び３３は、互いに対向していてもよく、対向していなくてもよい。

[0025] 蓋部材３５は、締結具（図示せず）を用いて、ホルダ３１の上方でホルダ３１に締結されている。蓋部材３５には、試験片４０のフィルム４１に隣接する空間３７に窒素ガスを送るための開口３６が形成されている。シール部材３４は、ホルダ３１及び蓋部材３５の間に位置し、開口３２、３３及び３６以外の部分における測定装置３０の内外の通気を防ぐ。シール部材３４は、例えば、弾性材料から構成される円形断面のシールリング（Ｏリング）である。図３には、シールリングであるシール部材３４が押しつぶされた状態が描かれている。

[0026] 次に、蓋部材３５の開口３６を通じて、試験片４０のフィルム４１に隣接する空間３７の圧力が０．１ＭＰａとなるように窒素ガスを空間３７に送るとともに、ホルダ３１の開口３２を通じて、２．５Ｌ／ｍｉｎの流量でスペーサ１５ａに窒素ガスを送る。測定装置３０内に送られる窒素ガスの温度は、例えば２３℃である。開口３２を通じて送られた窒素ガスは、スペーサ１５ａ内で、スペーサ１５ａの長手方向Ｘに移動して開口３３から排出される。開口３２に送られた窒素ガスの圧力と、開口３３から排出された窒素ガスの圧力との差（差圧Ｄ１）を測定する。次に、スペーサ１５ａが存在しないことを除き、差圧Ｄ１を測定する方法と同じ方法で差圧Ｄ０を測定する。差圧Ｄ０及びＤ１に基づいて、スペーサ１５ａによる圧力損失を算出する。算出された値は、スペーサ１５ａ内で、窒素ガスがスペーサ１５ａの長手方向Ｘに移動することによって生じた圧力損失Ｐ１とみなすことができる。

[0027] 圧力損失Ｐ２は、スペーサ１５ａに代えて、透過スペーサ１４に相当するスペーサ１４ａを用いることを除き、圧力損失Ｐ１と同じ方法によって測定することができる。スペーサ１４ａは、縦及び横の長さを除き、中心管２１に巻き付けられる前の透過スペーサ１４と同じ形状を有する。

[0028] 上記の試験方法によって測定された圧力損失Ｐ１及びＰ２の関係は、分離膜エレメント１０の運転時における流路スペーサ１５での圧力損失及び透過スペーサ１４での圧力損失の関係とよく一致する。

[0029] 分離膜エレメント１０は、通常、複数の透過スペーサ１４を有する。本実

施形態において、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１は、複数の透過スペーサ１４から選ばれる少なくとも１つの透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２よりも小さければよい。この条件を満たす限り、分離膜エレメント１０は、圧力損失Ｐ１と同じ値、又は、圧力損失Ｐ１よりも小さい値の圧力損失Ｐ２を示す透過スペーサ１４を含んでいてもよい。一例として、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１は、複数の透過スペーサ１４のうちの１つの透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２と同じ値であり、かつ、他の全ての透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２より小さくてもよい。流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１は、好ましくは、全ての透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２より小さい。

[0030] 圧力損失Ｐ２から圧力損失Ｐ１を差し引いた値（Ｐ２－Ｐ１）は、特に限定されず、例えば５ｋＰａ以上であり、好ましくは１０ｋＰａ以上であり、より好ましくは２０ｋＰａ以上である。値（Ｐ２－Ｐ１）の上限値は、特に限定されず、例えば５０ｋＰａである。圧力損失Ｐ２に対する圧力損失Ｐ１の比（Ｐ１／Ｐ２）は、特に限定されず、例えば０．８以下であり、好ましくは０．５以下であり、より好ましくは０．２以下である。比（Ｐ１／Ｐ２）の下限値は、特に限定されず、例えば０．０１である。

[0031] 圧力損失Ｐ１は、例えば３０ｋＰａ以下であり、好ましくは２０ｋＰａ以下であり、より好ましくは１０ｋＰａ以下であり、さらに好ましくは６ｋＰａ以下である。圧力損失Ｐ１の下限値は、特に限定されず、例えば０．１ｋＰａである。圧力損失Ｐ１は、場合によっては、３０ｋＰａより大きくてもよい。

[0032] 本発明は、その別の側面から、

中心管２１と、

分離膜１２及び透過スペーサ１４を有し、中心管２１に巻き付けられた膜リーフ１１と、

透過スペーサ１４に接続され、膜リーフ１１よりも中心管２１側で中心管２１に巻き付けられた流路スペーサ１５と、

を備え、

上記の試験により測定された流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１が３０ｋＰａ以下である、スパイラル型膜エレメント１０を提供する。

[0033] 圧力損失Ｐ２は、例えば３０ｋＰａより大きく、５０ｋＰａ以下である。圧力損失Ｐ２は、場合によっては、３０ｋＰａ以下であってもよい。

[0034] 流路スペーサ１５としては、例えば、ネット、メッシュ、線材織物、繊維織物、不織布、溝付きシート、波形シートなどが挙げられる。流路スペーサ１５の材料としては、例えば、ポリプロピレン（ＰＰ）、ポリエチレン（ＰＥ）、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、ポリアミド、ポリフェニレンサルファイド（ＰＰＳ）、エチレン－クロロトリフルオロエチレン共重合体（ＥＣＴＦＥ）、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂などの樹脂材料；天然高分子；ゴム；金属などが挙げられる。

[0035] 流路スペーサ１５の厚さは、特に限定されず、例えば３００μｍ以上であり、好ましくは４００μｍ以上であり、より好ましくは５００μｍ以上であり、さらに好ましくは６００μｍ以上である。流路スペーサ１５の厚さが大きければ大きいほど、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１が低下する傾向がある。流路スペーサ１５の厚さの上限値は、特に限定されないが、分離膜エレメント１０内における分離膜１２の膜面積を十分に確保する観点から、例えば２０００μｍである。

[0036] 流路スペーサ１５の開口率は、特に限定されず、例えば３０％以上であり、好ましくは４０％以上であり、より好ましくは５０％以上である。流路スペーサ１５の開口率が高ければ高いほど、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１が低下する傾向がある。流路スペーサ１５の開口率の上限値は、特に限定されず、例えば８０％である。

[0037] 流路スペーサ１５の開口率は、次の方法によって特定できる。まず、流路スペーサ１５をフィルムの上に配置し、流路スペーサ１５の表面を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）で観察する。得られた電子顕微鏡像から、画像処理によって、流路スペーサ１５の表面の面積Ａ１と、流路スペーサ１５を通じてフィルムが確認できる面積Ａ２（流路スペーサ１５に形成された隙間の面積）

とを算出する。面積Ａ１に対する面積Ａ２の比率を流路スペーサ１５の開口率として特定できる。

[0038] 以下の表１は、流路スペーサ１５の具体例を示している。流路スペーサ１５は、ＰＥ３０であることが好ましい。

[0039] [表1]

品番	材料	開口率 (%)	厚さ (μm)	圧力損失Ｐ１ (ｋＰａ)
Ｔ－９０	ＰＥＴ	７０	４５０	１２．３
Ｔ－１４０	ＰＥＴ	６４	３４０	１５．８
ＰＥ３０	ＰＥ	５０	６５０	５．６
ＰＥ１４	ＰＥ	５４	１３５０	１．０
１３ｍｉｌ	ＰＰ	５１	３２０	２４．１
３４ｍｉｌ	ＰＰ	６９	７６０	０．７

[0040] 透過スペーサ１４としては、例えば、ネット、メッシュ、線材織物、繊維織物、不織布、溝付きシート、波形シートなどが挙げられる。透過スペーサ１４の材料としては、流路スペーサ１５について上述したものが挙げられる。

[0041] 透過スペーサ１４の厚さは、特に限定されず、例えば３００μｍ未満であり、好ましくは２５０μｍ以下である。透過スペーサ１４の厚さが小さければ小さいほど、分離膜エレメント１０内において、十分な数の膜リーフ１１を容易に配置できる。言い換えると、分離膜エレメント１０内の分離膜１２について、十分な膜面積を容易に確保できる。透過スペーサ１４の厚さの下限値は、特に限定されず、例えば１００μｍである。透過スペーサ１４の厚さは、場合によっては、３００μｍ以上であってもよい。

[0042] 透過スペーサ１４の開口率は、特に限定されず、例えば３０％未満であり、好ましくは２５％以下であり、より好ましくは２０％以下である。透過スペーサ１４の開口率が低ければ低いほど、分離膜エレメント１０の運転時に、分離膜１２の一部が透過スペーサ１４の隙間に入り込むことによる分離膜１２の性能の低下を抑制できる傾向がある。透過スペーサ１４の開口率の下

限値は、特に限定されず、例えば１０％である。透過スペーサ１４の開口率は、場合によっては、３０％以上であってもよい。透過スペーサ１４の開口率は、流路スペーサ１５について上述した方法によって特定することができる。

[0043] 透過スペーサ１４の具体例としては、＃１０００Ｅ（材料：ＰＥＴ、開口率：２２％、厚さ：２５０μｍ、圧力損失Ｐ２：３３．６ｋＰａ）が挙げられる。透過スペーサ１４は、場合によっては、表１で例示されたものであってもよい。

[0044] 本実施形態において、透過スペーサ１４は、基本的には流路スペーサ１５と異なる。ただし、分離膜エレメント１０において、複数の透過スペーサ１４から選ばれる少なくとも１つの透過スペーサ１４が流路スペーサ１５と同じであってもよい。一例として、複数の透過スペーサ１４のうちの１つの透過スペーサ１４が流路スペーサ１５と同じであり、他の全ての透過スペーサ１４が流路スペーサ１５と異なっていてもよい。詳細には、複数の透過スペーサ１４のうちの１つの透過スペーサ１４がＰＥ３０であり、他の全ての透過スペーサ１４が＃１０００Ｅであってもよい。

[0045] 供給スペーサ１３は、特に限定されず、例えば、透過スペーサ１４又は流路スペーサ１５について上述したものを適宜利用することができる。

[0046] ［分離膜］

分離膜１２は、混合気体に含まれる酸性ガスを優先的に透過させることができる分離膜（ガス分離膜）であってもよく、混合液体に含まれる揮発性の有機化合物を優先的に透過させることができる分離膜（液体分離膜）であってもよい。以下では、ガス分離膜としての分離膜１２について説明する。

[0047] 図４Ａに示すとおり、ガス分離膜としての分離膜１２Ａは、例えば、分離機能層１及び分離機能層１を支持する多孔性支持体３を備えており、分離機能層１と多孔性支持体３との間に配置されている中間層２をさらに備えていてもよい。中間層２は、例えば、分離機能層１及び多孔性支持体３のそれぞれに直接接している。

[0048]（分離機能層）

分離機能層１は、例えば、混合気体に含まれる酸性ガスを優先的に透過させることができる層である。好ましい一形態では、分離機能層１は、樹脂を含む。分離機能層１に含まれる樹脂としては、例えば、ポリエーテルブロックアミド樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリイミド樹脂、酢酸セルロース樹脂、シリコーン樹脂及びフッ素樹脂が挙げられる。分離機能層１は、好ましくはポリエーテルブロックアミド樹脂を含む。この形態において、分離機能層１は、好ましくは、実質的に樹脂からなる。本明細書において、「実質的に～からなる」は、言及された材料の本質的特徴を変更する他の成分を排除することを意味し、例えば９５ｗｔ％以上、さらには９９ｗｔ％以上が当該材料により構成されていることを意味する。

[0049] 別の好ましい一形態では、分離機能層１は、イオン液体を含む。分離機能層１は、例えば、イオン液体を含むダブルネットワークゲルを有する。ダブルネットワークゲルは、互いに独立した２種類の網目構造を備えるゲルである。ダブルネットワークゲルは、例えば、主として有機材料により構成された第１網目構造、主として無機材料により構成された第２網目構造、及び、イオン液体を含む。本明細書において、「主として構成された」は、５０ｗｔ％以上、さらには７０ｗｔ％以上が当該材料により構成されていることを意味する。

[0050] 第１網目構造を構成するための有機材料は、例えば、ポリアクリルアミド（特に、ポリジメチルアクリルアミドなどのポリジアルキルアクリルアミド）などの重合体を含む。有機材料に含まれる重合体は、アクリルアミド誘導体に由来する構造単位を有し、さらに架橋構造を含んでいてもよい。架橋構造を含む重合体は、公知の方法によって作製することができる。例えば、まず、Ｎ－ヒドロキシスクシンイミドエステル基を有する構造単位を有するプレポリマーを準備する。Ｎ－ヒドロキシスクシンイミドエステル基を有する構造単位は、例えば、Ｎ－アクリルオキシスクシンイミドに由来する。次に、プレポリマーとアミン系架橋剤とを反応させることによって、架橋構造を

含む重合体を得ることができる。アミン系架橋剤は、２つ以上の第一級アミノ基を有する化合物であり、例えばエチレングリコールビス（３－アミノプロピル）エーテルである。

[0051] 第２網目構造は、複数の粒子のネットワークを含んでいてもよい。複数の粒子のネットワークは、例えば、複数の粒子が水素結合によって互いに結合することによって形成されている。第２網目構造に含まれる粒子は、後述するナノ粒子として例示する粒子であってもよい。一例として、第２網目構造に含まれる粒子は、シリカ粒子である。

[0052] 本実施形態において、具体的なイオン液体としては、例えば、イミダゾリウム、ピリジニウム、アンモニウム又はホスホニウムと、炭素数１以上の置換基とを有するイオン液体等が挙げられる。

[0053] イミダゾリウムと炭素数１以上の置換基とを有するイオン液体において、炭素数１以上の置換基としては、炭素数１以上２０以下のアルキル基、炭素数３以上１４以下のシクロアルキル基、炭素数６以上２０以下のアリール基等が挙げられ、これらは更にヒドロキシ基、シアノ基、アミノ基、一価のエーテル基等で置換されていてもよい（例えば、炭素数１以上２０以下のヒドロキシアルキル基等）。

[0054] 炭素数１以上２０以下のアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、ｎ－オクチル基、ｎ－ノニル基、ｎ－デシル基、ｎ－ウンデシル基、ｎ－ドデシル基、ｎ－トリデシル基、ｎ－テトラデシル基、ｎ－ペンタデシル基、ｎ－ヘキサデシル基、ｎ－ヘプタデシル基、ｎ－オクタデシル基、ｎ－ノナデシル基、ｎ－エイコサデシル基、ｉ－プロピル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｉ－ブチル基、１－メチルブチル基、１－エチルプロピル基、２－メチルブチル基、ｉ－ペンチル基、ネオペンチル基、１，２－ジメチルプロピル基、１，１－ジメチルプロピル基、ｔ－ペンチル基、２－エチルヘキシル基、１，５－ジメチルヘキシル基等が挙げられ、これらは更にヒドロキシ基、シアノ基、アミノ基、一価のエーテル基等で置換されていてもよい。

[0055] 上述のアルキル基は、シクロアルキル基によって置換されていてもよい。シクロアルキル基によって置換されたアルキル基の炭素数は、例えば、１以上２０以下である。シクロアルキル基によって置換されたアルキル基としては、シクロプロピルメチル基、シクロブチルメチル基、シクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルプロピル基等が挙げられ、これらは更にヒドロキシ基、シアノ基、アミノ基、一価のエーテル基等で置換されていてもよい。

[0056] 炭素数３以上１４以下のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロドデシル基、ノルボルニル基、ボルニル基、アダマンチル基等が挙げられ、これらは更にヒドロキシ基、シアノ基、アミノ基、一価のエーテル基等で置換されていてもよい。

[0057] 炭素数６以上２０以下のアリール基としては、フェニル基、トルイル基、キシリル基、メシチル基、アニシル基、ナフチル基、ベンジル基等が挙げられ、これらは更にヒドロキシ基、シアノ基、アミノ基、一価のエーテル基等で置換されていてもよい。

[0058] イミダゾリウムおよび炭素数１以上の置換基を有する化合物は、さらに、アルキル基等の置換基を有してもよく、対アニオンと塩を形成してもよい。対アニオンとしては、アルキルスルフェート、トシレート、メタンスルホネート、アセテート、ビス（フルオロスルホニル）イミド、ビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、チオシアネート、ジシアンアミド、トリシアノメタニド、テトラシアノボレート、ヘキサフルオロホスフェート、テトラフルオロボレート、ハライド等が挙げられ、ガス分離性能の観点から、ビス（フルオロスルホニル）イミド、ビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、ジシアンアミド、トリシアノメタニド、テトラシアノボレートが好ましい。

[0059] イミダゾリウム及び炭素数１以上の置換基を有するイオン液体としては、具体的には、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムビス（フルオロスルホニル）イミド、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムジシアンアミド、１

－ブチル－３－メチルイミダゾリウムブロミド、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムクロライド、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスフェート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスホネート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムテトラクロロフェレート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムヨーダイド、１－ブチル－２，３－ジメチルイミダゾリウムクロリド、１－ブチル－２，３－ジメチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスフェート、１－ブチル－２，３－ジメチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、１－ブチル－２，３－ジメチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、１－ブチル－２，３－ジメチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムトリフルオロ（トリフルオロメチル）ボレート、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムトリブロミド、１，３－ジメシチルイミダゾリウムクロライド、１，３－ビス（２，６－ジイソプロピルフェニル）イミダゾリウムクロライド、１，３－ジイソプロピルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１，３－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１，３－ジシクロヘキシルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１，３－ジシクロヘキシルイミダゾリウムクロライド、１，２－ジメチル－３－プロピルイミダゾリウムヨーダイド、１－ヘキシル－３－メチルイミダゾリウムクロライド、１－ヘキシル－３－メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスフェート、１－ヘキシル－３－メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、１－ヘキシル－３－メチルイミダゾリウムブロミド、１－メチル－３－プロピルイミダゾリウムヨーダイド、１－メチル－３－ｎ－オクチルイミダゾリウムブロミド、１－メチル－３－ｎ－オクチルイミダゾリウムクロライド、１－メチル－３－ｎ－オクチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスフェート、１－メチル－３－[６－（メチルスルフィニル）ヘキシル]イミダゾリウムｐ－トルエンスル

ホネート、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムトリシアノメタニド、１－（２－ヒドロキシエチル）－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド等が挙げられる。

[0060] なかでも、ガス分離性能の観点から、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムビス（フルオロスルホニル）イミド（［ＥＭＩ］［ＦＳＩ］）、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムジシアンアミド（［ＥＭＩ］［ＤＣＡ］）、１－エチル－３－メチルイミダゾリウムトリシアノメタニド（［ＥＭＩ］［ＴＣＭ］）、１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド（［C_4ｍｉｍ］［TF_2N］）、１－（２－ヒドロキシエチル）－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド（［C_2ＯＨｉｍ］［TF_2N］）が特に好ましい。

[0061] ダブルネットワークゲルを作製する方法は、特に限定されず、例えば、E.Kamio et al.,Adv.Mater,29,1704118(2017)に開示された方法を利用することができる。

[0062] ダブルネットワークゲルにおけるイオン液体の含有率は、例えば５０ｗｔ％以上であり、好ましくは６０ｗｔ％以上であり、より好ましくは７０ｗｔ％以上であり、さらに好ましくは８０ｗｔ％以上である。イオン液体の含有率が高ければ高いほど、分離機能層１は、混合気体に含まれる酸性ガスを優先的に透過させることができる。イオン液体の含有率の上限値は、特に限定されず、例えば９５ｗｔ％である。

[0063] ダブルネットワークゲルにおける主として有機材料により構成された第１網目構造の含有率は、例えば１ｗｔ％以上であり、好ましくは５ｗｔ％以上であり、より好ましくは１０ｗｔ％以上である。第１網目構造の含有率の上限値は、例えば１５ｗｔ％である。ダブルネットワークゲルにおける主として無機材料により構成された第２網目構造の含有率は、ダブルネットワークゲルの強度を向上させる観点から、例えば１ｗｔ％以上である。第２網目構造の含有率の上限値は、例えば５ｗｔ％である。ダブルネットワークゲルの重量に対する第１網目構造の重量と第２網目構造の重量との合計値の比率は

、例えば２ｗｔ％以上であり、好ましくは５ｗｔ％以上であり、より好ましくは１０ｗｔ％以上である。この比率は、好ましくは２０ｗｔ％以下である。この形態において、分離機能層１は、好ましくは、実質的にダブルネットワークゲルからなる。

[0064] 分離機能層１の厚さは、例えば５０μｍ以下であり、好ましくは２５μｍ以下であり、より好ましくは１５μｍ以下である。分離機能層１の厚さは、場合によっては、１０μｍ以下であってもよく、５．０μｍ以下であってもよく、２．０μｍ以下であってもよい。分離機能層１の厚さは、０．０５μｍ以上であってもよく、０．１μｍ以上であってもよい。

[0065] （中間層）

中間層２は、例えば、樹脂を含み、樹脂（マトリクス）に分散したナノ粒子をさらに含んでいてもよい。ナノ粒子は、マトリクス内で互いに離間していてもよく、部分的に凝集していてもよい。マトリクスの材料は、特に限定されず、例えば、ポリジメチルシロキサンなどのシリコーン樹脂；ポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素樹脂；ポリエチレンオキシドなどのエポキシ樹脂；ポリイミド樹脂；ポリスルホン樹脂；ポリトリメチルシリルプロピン、ポリジフェニルアセチレンなどのポリアセチレン樹脂；ポリメチルペンテンなどのポリオレフィン樹脂；ポリウレタン樹脂が挙げられる。マトリクスは、シリコーン樹脂及びポリウレタン樹脂からなる群より選ばれる少なくとも１つを含むことが好ましく、シリコーン樹脂及びポリウレタン樹脂の両方を含むことがより好ましい。

[0066] ナノ粒子は、無機材料を含んでいてもよく、有機材料を含んでいてもよい。ナノ粒子に含まれる無機材料としては、例えば、シリカ、チタニア及びアルミナが挙げられる。ナノ粒子は、シリカを含むことが好ましい。

[0067] 中間層２の厚さは、特に限定されず、例えば５０μｍ未満であり、好ましくは４０μｍ以下であり、より好ましくは３０μｍ以下である。中間層２の厚さの下限値は、特に限定されず、例えば１μｍである。中間層２は、例えば、５０μｍ未満の厚さを有する層である。

[0068]（多孔性支持体）

多孔性支持体３は、中間層２を介して分離機能層１を支持する。多孔性支持体３としては、例えば、不織布；多孔質ポリテトラフルオロエチレン；芳香族ポリアミド繊維；多孔質金属；焼結金属；多孔質セラミック；多孔質ポリエステル；多孔質ナイロン；活性化炭素繊維；ラテックス；シリコーン；シリコーンゴム；ポリフッ化ビニル、ポリフッ化ビニリデン、ポリウレタン、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアクリロニトリル、ポリイミド及びポリフェニレンオキシドからなる群より選ばれる少なくとも１つを含む透過性（多孔質）ポリマー；連続気泡又は独立気泡を有する金属発泡体；連続気泡又は独立気泡を有するポリマー発泡体；シリカ；多孔質ガラス；メッシュスクリーンなどが挙げられる。多孔性支持体３は、これらのうちの２種以上を組み合わせたものであってもよい。

[0069] 多孔性支持体３は、例えば０．０１～０．４μｍの平均孔径を有する。多孔性支持体３の厚さは、特に限定されず、例えば１０μｍ以上であり、好ましくは２０μｍ以上であり、より好ましくは５０μｍ以上である。多孔性支持体３の厚さは、例えば３００μｍ以下であり、好ましくは２００μｍ以下であり、より好ましくは１５０μｍ以下である。

[0070]［分離膜の製造方法］

分離膜１２Ａは、例えば、次の方法によって作製することができる。まず、中間層２の材料を含む塗布液を調製する。次に、多孔性支持体３の上に、中間層２の材料を含む塗布液を塗布し、塗布膜を形成する。塗布液の塗布方法は、特に限定されず、例えばスピンコート法、ディップコート法、グラビアコート法などを利用できる。ワイヤーバーなどを利用して塗布液を塗布してもよい。塗布液における中間層２の材料の濃度などを調整することによって、形成される中間層２の厚さを調整することができる。次に、塗布膜を乾燥し、中間層２を形成する。塗布膜の乾燥は、例えば、加熱条件下で行うことができる。塗布膜の加熱温度は、例えば５０℃以上である。塗布膜の加熱

時間は、例えば１分以上であり、５分以上であってもよい。

[0071] 中間層２の表面には必要に応じて易接着処理を施すことができる。易接着処理として、下塗り剤の塗布、コロナ放電処理、プラズマ処理などの表面処理が施されてもよい。

[0072] 次に、分離機能層１の材料を含む塗布液を調整する。中間層２の上に分離機能層１の材料を含む塗布液を塗布し、塗布膜を得る。この塗布膜を乾燥し、分離機能層１を形成する。塗布液の塗工方法、及び乾燥条件は、中間層２について上述した方法及び条件を用いることができる。これにより、分離膜１２Ａが得られる。

[0073] 分離膜１２Ａの作製方法は、上記の方法に限定されない。例えば、次の方法によっても分離膜１２Ａを作製することができる。例えば、分離機能層１の材料を含む塗布液を転写フィルムの上に塗布して塗布膜を得る。塗布膜を乾燥することによって分離機能層１が形成される。次に、中間層２の材料を含む塗布液を分離機能層１の上に塗工して乾燥することによって、中間層２を形成する。中間層２及び分離機能層１の積層体を多孔性支持体３に転写する。これにより、分離膜１２Ａが得られる。

[0074] ［分離膜の変形例］

上述のとおり、分離膜１２は、混合液体に含まれる揮発性の有機化合物を優先的に透過させることができる分離膜（液体分離膜）であってもよい。液体分離膜としての分離膜１２は、例えば、浸透気化法によって、上記の有機化合物を含む気体の透過流体を生じさせる浸透気化膜である。以下では、液体分離膜としての分離膜１２について説明する。

[0075] 図４Ｂに示すとおり、液体分離膜としての分離膜１２Ｂは、例えば、分離機能層５、及び、分離機能層５を支持する多孔性支持体６を備えている。分離膜１２Ｂは、分離機能層５を保護する保護層（図示せず）をさらに備えていてもよい。分離機能層５は、例えば、多孔性支持体６と直接接している。

[0076] （分離機能層）

分離機能層５は、例えば、混合液体に含まれる揮発性の有機化合物を優先

的に透過させることができる層である。分離機能層５は、例えば、ポリジメチルシロキサン（ＰＤＭＳ）などのシリコーン樹脂；ポリプロピレンなどのポリオレフィン樹脂などの疎水性材料を含む。分離機能層５は、疎水性材料としてシリコーン樹脂を含むことが好ましい。分離機能層５は、疎水性材料を主成分として含んでいてもよく、実質的に疎水性材料のみから構成されていてもよい。「主成分」は、分離機能層５に重量比で最も多く含まれる成分を意味する。

[0077] 分離機能層５は、疎水性材料を含むマトリクスと、マトリクスに分散したフィラーとを含んでいてもよい。フィラーは、マトリクス内に埋め込まれている。マトリクス内において、全てのフィラーが互いに離間していてもよく、部分的に凝集していてもよい。

[0078] フィラーは、例えば、ゼオライトなどの無機材料を含む。フィラーに含まれるゼオライトは、アルミナに対するシリカの比率が高いハイシリカゼオライトであることが好ましい。ハイシリカゼオライトは、耐加水分解性に優れているため、水を含む液体を分離する用途に適している。ハイシリカゼオライトとしては、東ソー社製のＨＳＺ（登録商標）、ユニオン昭和社製のＨｉＳｉｖ（登録商標）、ユニオン昭和社製のＵＳＫＹ及び中村超硬社製のＺｅｏａｌ（登録商標）を用いることができる。

[0079] フィラーの形状は、例えば、粒子状である。本明細書において、「粒子状」には、球状、楕円体状、鱗片状及び繊維状が含まれる。フィラーの平均粒径は、特に限定されず、例えば５０μｍ以下であり、好ましくは２０μｍ以下であり、より好ましくは１０μｍ以下である。フィラーの平均粒径の下限値は、例えば０．０１μｍである。フィラーの平均粒径は、例えば、次の方法によって特定することができる。まず、分離機能層５の断面を透過電子顕微鏡で観察する。得られた電子顕微鏡像において、特定のフィラーの面積を画像処理によって算出する。算出された面積と同じ面積を有する円の直径をその特定のフィラーの粒径（粒子の直径）とみなす。任意の個数（少なくとも５０個）のフィラーの粒径をそれぞれ算出し、算出値の平均値をフィラー

の平均粒径とみなす。

[0080] 分離機能層５におけるフィラーの含有率は、例えば１０ｗｔ％以上であり、好ましくは２０ｗｔ％以上である。分離機能層５におけるフィラーの含有率の上限値は、特に限定されず、例えば７０ｗｔ％である。分離機能層５におけるマトリクスの含有率は、特に限定されず、例えば３０ｗｔ％～９０ｗｔ％である。

[0081] 分離機能層５の厚さは、例えば２００μｍ以下であり、好ましくは１００μｍ以下であり、より好ましくは８０μｍ以下である。分離機能層５の厚さは、１．０μｍ以上であってもよく、１０μｍ以上であってもよく、３０μｍ以上であってもよい。

[0082] 分離機能層５は、平均孔径が０．０１μｍ未満の微孔構造を有していてもよいが、表面に孔を有さない緻密層であってもよい。

[0083]（多孔性支持体）

多孔性支持体６としては、分離膜１２Ａについて上述したものを用いることができる。

[0084]（保護層）

保護層は、例えば、分離機能層５の表面を被覆している。保護層の材料としては、特に限定されず、例えばシリコーン樹脂が挙げられる。保護層の材料は、分離機能層５のマトリクスの材料と同じであってもよい。保護層の厚さは、特に限定されず、例えば５μｍ以上であり、好ましくは１０μｍ以上であり、より好ましくは２０μｍ以上である。保護層の厚さは、例えば１００μｍ以下であり、好ましくは５０μｍ以下である。

[0085]［分離膜の製造方法］

分離膜１２Ｂは、例えば、多孔性支持体６の上に分離機能層５を形成することによって作製することができる。詳細には、まず、分離機能層５の材料を含む塗布液を調製する。塗布液は、フィラーとともにフィラーを塗布液中に分散させるための分散剤を含んでいてもよい。塗布液がシリコーン樹脂を含む場合、塗布液は、シリコーン樹脂を硬化させるための触媒をさらに含ん

でいてもよい。次に、塗布液を多孔性支持体６の上に塗布することによって塗布膜を得る。塗布膜を乾燥させることによって、分離機能層５が形成される。

[0086] ［スパイラル型膜エレメントの製造方法］

次に、図５及び６を参照して分離膜エレメント１０の製造方法の一例を説明する。まず、図５に示すように、分離膜１２の分離機能層１が内側に位置するように、分離膜１２を２つに折り畳む。２つに折り畳まれた分離膜１２の間に供給スペーサ１３を配置し、分離膜１２の上に透過スペーサ１４を配置する。さらに、透過スペーサ１４の外周部の３辺に接着剤２６ａを塗布する。これにより、分離膜ユニットＵが得られる。接着剤２６ａは、この時点では、未硬化の状態である。

[0087] 次に、図６に示すように、中心管２１、スペーサ１６、及び複数の分離膜ユニットＵを準備する。スペーサ１６は、例えば、中心管２１に直接巻き付けられる第１部分１６ａと、分離膜ユニットＵと積層される第２部分１６ｂと、を有する。スペーサ１６の第１部分１６ａが流路スペーサ１５に相当し、第２部分１６ｂが透過スペーサ１４に相当する。第１部分１６ａの材料、厚さなどは、第２部分１６ｂと同じであってもよく、異なっていてもよい。複数の分離膜ユニットＵは、スペーサ１６の第２部分１６ｂの上において、階段状に配置される。複数の分離膜ユニットＵの数は、特に限定されず、例えば２～３０である。なお、最も上方に位置する分離膜ユニットＵは、透過スペーサ１４を有していなくてもよい。

[0088] 次に、中心管２１に、スペーサ１６の第１部分１６ａを巻き付ける。第１部分１６ａの巻き数は、特に限定されず、例えば１～１５であり、好ましくは２～１０である。

[0089] 次に、中心管２１に、複数の分離膜ユニットＵを巻き付ける。このとき、最も上方に位置していた分離膜ユニットＵは、スペーサ１６の第２部分１６ｂと積層される。中心管２１に分離膜ユニットＵが巻き付けられたのち、接着剤２６ａが硬化して接着剤層２６が形成されるとともに、袋状の膜リーフ

１１が形成される。これにより、中心管２１及び積層体２２を含む組立体が得られる。

[0090] なお、スペーサ１６は、図６に示す形状に限定されない。例えば、スペーサ１６は、第２部分１６ｂに接続され、第２部分１６ｂから中心管２１とは反対側に延びる第３部分（図示せず）をさらに有していてもよい。第３部分は、中心管２１に分離膜ユニットＵが巻き付けられて形成された積層体２２の外側において、中心管２１に巻き付けられる。すなわち、第３部分は、積層体２２の外側において、積層体２２を覆うことができる。積層体２２の供給スペーサ１３と第３部分とが接触しないように、積層体２２と第３部分との間には、フィルム（例えば、パナック株式会社製のルミラー３８Ｅ２０）が配置されていてもよい。第３部分の材料、厚さなどは、第１部分１６ａと同じであってもよく、異なっていてもよい。

[0091] ［スパイラル型膜エレメントの特性］

分離膜エレメント１０では、供給流体の圧力と透過流体の圧力との差（圧力差）を駆動力として、分離膜１２による供給流体の膜分離が進行する。そのため、分離膜エレメント１０内で圧力損失が生じると、上記の圧力差が減少し、分離膜１２からの透過流体の透過速度や透過流束が低下する。特に、中心管２１の内部を減圧して分離膜エレメント１０を運転する方式（減圧方式）では、供給流体を加圧して分離膜エレメント１０を運転する方式（加圧方式）に比べて圧力差が小さい傾向があるため、圧力損失による圧力差の減少の影響が大きい。

[0092] 本発明者らの検討によれば、圧力損失は、各膜リーフ１１からの透過流体が集中する流路スペーサ１５において、特に顕著に生じる傾向がある。本実施形態の分離膜エレメント１０では、流路スペーサ１５の圧力損失Ｐ１を透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２よりも小さく設定することによって、上記の圧力差の減少を効率的に抑制している。本実施形態の分離膜エレメント１０によれば、圧力差の減少が抑制されることによって、分離膜１２からの透過流体の透過速度や透過流束の低下を十分に抑制することができる。

[0093]（二酸化炭素に対するスパイラル型膜エレメントの特性）

一例として、二酸化炭素を供給流体として用いて、分離膜１２（詳細には分離膜１２Ａ）を備えた分離膜エレメント１０、及び平膜状の分離膜１２（詳細には分離膜１２Ａ）のそれぞれを加圧方式で運転した場合、平膜状の分離膜１２からの二酸化炭素の透過速度Ｔ（ＧＰＵ）に対する、分離膜エレメント１０からの二酸化炭素の透過速度Ｔ２（ＧＰＵ）の比率Ｒは、例えば９０％以上であり、好ましくは９５％以上である。ここで、比率Ｒを特定するための加圧方式の運転において、分離膜エレメント１０、又は平膜状の分離膜１２に供給される供給流体は、温度が２３℃であり、圧力が０．２ＭＰａである。加圧方式では、透過流体が得られる空間（透過流体流路内の空間）の圧力は、測定環境における大気圧（例えば１０１ｋＰａ）と一致する。なお、ＧＰＵは、10^{-6}・cm^3(STP)/(sec・cm^2・cmHg)を意味する。cm^3(STP)は、１気圧、０℃での二酸化炭素の体積を意味する。

[0094] 二酸化炭素を供給流体として用いて、平膜状の分離膜１２を減圧方式で運転した場合における平膜状の分離膜１２からの二酸化炭素の透過速度Ｔ１（ＧＰＵ）に対する、分離膜エレメント１０を加圧方式で運転した場合における分離膜エレメント１０からの二酸化炭素の透過速度Ｔ２（ＧＰＵ）の比率Ｒ１は、例えば８５％以上であり、好ましくは９０％以上であり、より好ましくは９５％以上である。透過速度Ｔ１は、後述する条件で測定することができる。透過速度Ｔ２は、比率Ｒについて上述したものと同じである。

[0095] 二酸化炭素を供給流体として用いて、分離膜エレメント１０、及び平膜状の分離膜１２のそれぞれを減圧方式で運転した場合、平膜状の分離膜１２からの二酸化炭素の透過速度Ｔ１（ＧＰＵ）に対する、分離膜エレメント１０からの二酸化炭素の透過速度Ｔ３（ＧＰＵ）の比率Ｒ２は、例えば８０％以上であり、好ましくは８５％以上である。ここで、比率Ｒ２を特定するための減圧方式の運転において、分離膜エレメント１０、又は平膜状の分離膜１２に供給される供給流体は、温度が２３℃であり、圧力が０．１ＭＰａである。減圧方式では、真空ポンプを用いて、透過流体が得られる空間（透過流

体流路内の空間）を１０ｋＰａ程度以下まで減圧する。

[0096] （ＩＰＡ及び水からなる混合液体に対するスパイラル型膜エレメントの特性）

他の例として、イソプロパノール（ＩＰＡ）及び水からなる混合液体を供給流体として用いて、分離膜１２（詳細には分離膜１２Ｂ）を備えた分離膜エレメント１０、及び平膜状の分離膜１２（詳細には分離膜１２Ｂ）のそれぞれを減圧方式で運転した場合、平膜状の分離膜１２からのＩＰＡの透過流束Ｆ１（ｋｇ／m^2／ｈｒ）に対する、分離膜エレメント１０からのＩＰＡの透過流束Ｆ２（ｋｇ／m^2／ｈｒ）の比率Ｌは、例えば６０％以上である。比率Ｌの上限値は、特に限定されず、例えば９０％である。ここで、比率Ｌを特定するための減圧方式の運転において、分離膜エレメント１０、又は平膜状の分離膜１２に供給される供給流体は、温度が４０℃である。供給流体の量は、透過流束Ｆ１及びＦ２の測定に影響が生じない範囲で適切に設定する。一例として、透過流束Ｆ２の測定では、分離膜エレメント１０に送られる供給流体の供給流量を４０ｇ／ｍｉｎに設定してもよい。供給流体におけるＩＰＡの濃度は５ｗｔ％である。減圧方式では、真空ポンプを用いて、透過流体が得られる空間（透過流体流路内の空間）を１．５ｋＰａまで減圧する。減圧方式では、通常、気体の透過流体が得られる。気体の透過流体を凝縮し、得られた液体の透過流体の組成を分析することによって、透過流束Ｆ１及びＦ２を特定することができる。

[0097] なお、本実施形態の分離膜エレメント１０では、透過スペーサ１４の圧力損失Ｐ２を従来よりも減少させる必要がない。すなわち、圧力損失Ｐ２を減少させるために、例えば、透過スペーサ１４の厚さを増加させる必要がない。そのため、本実施形態の分離膜エレメント１０によれば、分離膜エレメント１０内における膜リーフ１１の数を維持でき、これにより、分離膜１２の膜面積を十分に確保できる利点がある。ただし、本実施形態の分離膜エレメント１０では、従来よりも小さい圧力損失Ｐ２を示す透過スペーサ１４が用いられてもよい。

[0098] ［分離膜エレメントの用途］

本実施形態の分離膜エレメント１０の用途の一例としては、酸性ガスを含む混合気体から酸性ガスを分離する用途が挙げられる。混合気体の酸性ガスとしては、二酸化炭素、硫化水素、硫化カルボニル、硫黄酸化物（ＳＯｘ）、シアン化水素、窒素酸化物（ＮＯｘ）などが挙げられ、好ましくは二酸化炭素である。混合気体は、酸性ガス以外の他のガスを含んでいる。他のガスとしては、例えば、水素、窒素などの非極性ガス、及び、ヘリウムなどの不活性ガスが挙げられ、好ましくは窒素である。上記の分離膜１２Ａを備えた分離膜エレメント１０は、二酸化炭素及び窒素を含む混合気体から二酸化炭素を分離する用途に適している。

[0099] 分離膜エレメント１０の用途の他の例としては、揮発性の有機化合物を含む混合液体から当該有機化合物を分離する用途が挙げられる。揮発性の有機化合物としては、例えば、アルコール、典型的には低級アルコール、が挙げられる。低級アルコールは、例えば、炭素数５以下のアルコールである。低級アルコールは、一価アルコールであってもよく、多価アルコールであってもよい。低級アルコールは、直鎖状であってもよく、分岐鎖状であってもよい。低級アルコールとしては、例えば、メタノール、エタノール、ｎ－プロパノール、イソプロパノール（ＩＰＡ）、ｎ－ブタノール、２－ブタノール、イソブタノール、ｔ－ブタノール及びｎ－ペンタノールが挙げられ、好ましくはＩＰＡである。揮発性の有機化合物は、低級アルコール以外のアルコール、例えばフェノール、であってもよい。混合液体は、揮発性の有機化合物以外の他の液体を含んでいる。他の液体は、典型的には水である。上記の分離膜１２Ｂを備えた分離膜エレメント１０は、アルコール及び水を含む混合液体からアルコールを分離する用途に適している。

[0100] 本実施形態の分離膜エレメント１０は、（ｉ）二酸化炭素及び窒素を含む混合気体から二酸化炭素を分離するために用いられる、並びに、（ｉｉ）アルコール及び水を含む混合液体からアルコールを分離するために用いられる、の少なくとも１つが成立することが好ましい。ただし、分離膜エレメント

１０の用途は、上記（ｉ）又は（ｉｉ）の用途に限定されない。

[0101] ＜膜分離システムの実施形態＞

図７に示すとおり、本実施形態の膜分離システム１００は、上述の分離膜エレメント１０及び減圧装置６０を備える。減圧装置６０は、分離膜エレメント１０の中心管２１の内部を減圧することができる。言い換えると、減圧装置６０によって、分離膜エレメント１０の供給流体流路内の空間と透過流体流路内の空間との間において、差圧を生じさせる、又は、差圧を増加させることができる。減圧装置６０の具体例は、真空ポンプなどの真空装置である。膜分離システム１００は、２つの分離膜エレメント１０ａ及び１０ｂと、２つの減圧装置６０ａ及び６０ｂとを備えていてもよい。膜分離システム１００は、酸性ガスを含む混合気体から酸性ガスを分離する用途に適している。

[0102] 膜分離システム１００は、混合流体供給経路５０をさらに備えている。混合流体供給経路５０は、分離膜エレメント１０ａの混合流体入口に接続されており、混合流体を貯蔵しているタンク（図示せず）などから分離膜エレメント１０ａに混合流体を供給するための経路である。混合流体供給経路５０には、分離膜エレメント１０ａの供給流体経路内の空間を加圧する加圧装置６４が配置されていてもよく、配置されていなくてもよい。加圧装置６４としては、例えば、コンプレッサ、ブロワー及び背圧弁が挙げられる。加圧装置６４は、例えば、分離膜エレメント１０ａに供給される混合流体を昇圧することによって、分離膜エレメント１０ａの供給流体経路内の空間を加圧することができる。

[0103] 膜分離システム１００は、透過流体供給経路５２をさらに備えている。透過流体供給経路５２は、分離膜エレメント１０ａの透過流体出口及び分離膜エレメント１０ｂの透過流体入口に接続され、分離膜エレメント１０ａから分離膜エレメント１０ｂに、分離膜エレメント１０ａからの透過流体を供給するための経路である。分離膜エレメント１０ａからの透過流体は、分離膜エレメント１０ｂでさらに処理される。透過流体供給経路５２には、減圧装

置６０ａが配置されている。

[0104] 透過流体供給経路５２は、分離膜エレメント１０ａから減圧装置６０ａまで延びている第１部分５２ａと、減圧装置６０ａから分離膜エレメント１０ｂまで延びている第２部分５２ｂとを有する。減圧装置６０ａは、第１部分５２ａを通じて、分離膜エレメント１０ａの透過流体経路内の空間を減圧することができる。減圧装置６０ａは、例えば、第１部分５２ａを通過した透過流体を吸引し、当該透過流体を第２部分５２ｂに排出する。第２部分５２ｂには、減圧装置６０ａから排出された透過流体を昇圧する加圧装置（図示せず）が配置されていてもよく、配置されていなくてもよい。この加圧装置によれば、分離膜エレメント１０ｂの供給流体経路内の空間を加圧することができる。加圧装置としては、例えば、コンプレッサ、ブロワー及び背圧弁が挙げられる。

[0105] 膜分離システム１００は、第１排出経路５４をさらに備えている。第１排出経路５４は、分離膜エレメント１０ａの非透過流体出口に接続されており、分離膜エレメント１０ａから非透過流体を排出するための経路である。第１排出経路５４には、第１排出経路５４から非透過流体を排出するための開口（排出口７２）が形成されている。膜分離システム１００が非透過流体を貯蔵するタンク（図示せず）をさらに備えており、第１排出経路５４が当該タンクに接続されていてもよい。

[0106] 膜分離システム１００は、第２排出経路５６及びタンク７０をさらに備えている。第２排出経路５６は、分離膜エレメント１０ｂの透過流体出口及びタンク７０の入口に接続されており、分離膜エレメント１０ｂからタンク７０に透過流体を送るための経路である。タンク７０は、分離膜エレメント１０ｂから送られた透過流体を貯蔵することができる。第２排出経路５６には、減圧装置６０ｂが配置されている。

[0107] 第２排出経路５６は、分離膜エレメント１０ｂから減圧装置６０ｂまで延びている第１部分５６ａと、減圧装置６０ｂからタンク７０まで延びている第２部分５６ｂとを有する。減圧装置６０は、第１部分５６ａを通じて、分

離膜エレメント１０ｂの透過流体経路内の空間を減圧することができる。減圧装置６０ｂは、例えば、第１部分５６ａを通過した透過流体を吸引し、当該透過流体を第２部分５６ｂに排出する。

[0108] 膜分離システム１００は、第３排出経路５８をさらに備えている。第３排出経路５８は、分離膜エレメント１０ｂの非透過流体出口に接続されており、分離膜エレメント１０ｂから非透過流体を排出するための経路である。第３排出経路５８は、混合流体供給経路５０に合流していてもよい。図７において、第３排出経路５８は、加圧装置６４に接続されており、加圧装置６４において混合流体供給経路５０に合流している。第３排出経路５８が混合流体供給経路５０に合流していることによって、例えば、分離膜エレメント１０ｂで分離しきれなかった酸性ガスを含む非透過流体を再利用することができる。

[0109] 膜分離システム１００の経路のそれぞれは、例えば、金属製又は樹脂製の配管で構成されている。

[0110] 本実施形態の膜分離システム１００によれば、減圧装置６０によって、分離膜エレメント１０の透過流体経路内の空間を減圧して分離操作を行うことができる。このような減圧方式による分離操作は、加圧方式に比べて、混合流体を分離するために必要なエネルギーを低減することに適している。

実施例

[0111] 以下に、実施例及び比較例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0112] （実施例１）

［分離膜の作製］

まず、シリコーン樹脂及びポリウレタン樹脂を９：１の重量比で含む塗布液を調製した。塗布液は、溶媒として水を含んでいた。次に、グラビアコート法によって、塗布液を多孔性支持体の上に塗布することによって塗布膜を得た。多孔性支持体としては、日東電工社製のＵＦ膜（限外ろ過膜）ＲＳ－５０（ＰＶＤＦ多孔質層とＰＥＴ不織布との積層体）を用いた。得られた塗

布膜を乾燥させることによって、中間層を形成した。これにより、多孔性支持体及び中間層の積層体を作製した。

[0113] 次に、ポリエーテルブロックアミド（アルケマ社製のPebax MH1657）２ｇを７０ｗｔ％のイソプロパノール水溶液９８ｇに投入し、８０℃で３時間攪拌することで、２ｗｔ％のPebax溶液を作製した。次に、グラビアコート法によって、作製した溶液を中間層の上に塗布した。次に、得られた塗布膜を乾燥させることで分離機能層が形成された。これにより、分離膜を得た。

[0114] ［スパイラル型膜エレメントの作製］

図６のスペーサ１６としてＮＢＣメッシュテック社製のＰＥ３０を用い、他の透過スペーサ１４としてＫＢセーレン社製の＃１０００Ｅを用い、さらに、供給スペーサ１３として東京インキ社製の３４ｍｉｌを用いて、図６を参照して説明した方法によって実施例１のスパイラル型膜エレメントを作製した。なお、スペーサ１６の第１部分１６ａは、中心管に巻き付けられる方向における長さが９０ｍｍであり、中心管が延びる方向における長さが２８０ｍｍであった。透過スペーサ１４は、中心管に巻き付けられる方向における長さが２９０ｍｍであり、中心管が延びる方向における長さが２８０ｍｍであった。スペーサ１６及び透過スペーサ１４は、中心管に巻き付けられたのち端部が切断された。スパイラル型膜エレメントにおいて、中心管が延びる方向について、これらのスペーサが有効に機能する長さは、１８０ｍｍであった。中心管２１の外径は１７．３ｍｍであり、スパイラル型膜エレメントの外径は約２インチであった。

[0115] （実施例２及び３）

スペーサ１６を表２のように変更したことを除き、実施例１と同じ方法によって、実施例２及び３のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0116] （実施例４）

分離膜として、多孔性支持体及び中間層の積層体（分離機能層を作製する前の積層体）を用いたことを除き、実施例１と同じ方法によって、実施例４のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0117]（実施例５）

スペーサ１６の第１部分１６ａ、及び透過スペーサ１４について、中心管が延びる方向における長さを１ｍに変更したこと、透過スペーサ１４について、中心管に巻き付けられる方向における長さを４００ｍｍに変更したこと、スペーサ１６の第１部分１６ａについて、中心管に巻き付けられる方向における長さを１３６ｍｍに変更したこと、及び、スパイラル型膜エレメントの外径を約４インチに変更したことを除き、実施例１と同じ方法によって、実施例５のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0118]（比較例１）

スペーサ１６としてＫＢセーレン社製の＃１０００Ｅを用いたことを除き、実施例１と同じ方法によって、比較例１のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0119]（比較例２）

スペーサ１６としてＫＢセーレン社製の＃１０００Ｅを用いたことを除き、実施例４と同じ方法によって、比較例２のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0120][平膜状の分離膜の評価]

実施例１～５及び比較例１～２のスパイラル型膜エレメントに用いた分離膜について、平膜の状態での二酸化炭素の透過速度Ｔ１（ＧＰＵ）を測定した。透過速度Ｔ１の測定は、差圧式ガス透過率測定装置（ＧＴＲテック社製のＧＴＲ－３１ＡＨＮＤ）を用いて、以下の方法によって行った。まず、分離膜を平膜の状態で金属セル中にセットし、リークが発生しないようにＯリングでシールした。分離膜の膜面積は、３．１４ｃｍ^{2}であった。次に、分離膜の分離機能層（又は中間層）側の主面に供給流体が接触するように、金属セル内に供給流体（二酸化炭素）を注入した。金属セル内に注入された供給流体は、温度が２３℃であり、圧力が０．１ＭＰａであった。次に、真空ポンプを用いて、分離膜の多孔性支持体側の主面に隣接する空間を１０ｋＰａ程度以下まで減圧した。これにより、分離膜の多孔性支持体側の主面から透

過流体が得られた。得られた透過流体の組成、透過流体の重量などに基づいて、二酸化炭素の透過速度Ｔ１を算出した。なお、透過流体の組成などは、ガスクロマトグラフィー（ヤナコテクニカルサイエンス社製のＧ２７００Ｔ）を用いて測定した。

[0121] 実施例１で用いた分離膜の透過速度Ｔ１は、１００ＧＰＵであった。実施例４で用いた分離膜（多孔性支持体及び中間層の積層体）の透過速度Ｔ１は、１５００ＧＰＵであった。

[0122] ［スパイラル型膜エレメントの評価］

次に、実施例１～５及び比較例１～２のスパイラル型膜エレメントを加圧方式で運転したときの二酸化炭素の透過速度Ｔ２（ＧＰＵ）、及び、当該スパイラル型膜エレメントを減圧方式で運転したときの二酸化炭素の透過速度Ｔ３（ＧＰＵ）を測定した。

[0123] 透過速度Ｔ２は、以下の方法によって測定した。まず、スパイラル型膜エレメントの供給流体流路に供給流体（二酸化炭素）を供給した。供給流体は、温度が２３℃であり、圧力が０．２ＭＰａであった。これにより、スパイラル型膜エレメントの中心管を通じて、透過流体が得られた。得られた透過流体の流量などに基づいて、二酸化炭素の透過速度Ｔ２を算出した。なお、透過流体の流量は、石鹸膜流量計（ＨＯＲＩＢＡ社製）を用いて測定した。

[0124] 透過速度Ｔ３は、供給流体流路に供給した供給流体（二酸化炭素）の圧力を０．１ＭＰａに変更したこと、及び、真空ポンプを用いて、スパイラル型膜エレメントの中心管内を１０ｋＰａ程度以下まで減圧したことを除き、透過速度Ｔ２と同じ方法によって測定した。

[0125] 次に、透過速度Ｔ１に対する透過速度Ｔ２の比率Ｒ１、及び、透過速度Ｔ１に対する透過速度Ｔ３の比率Ｒ２を算出した。結果を表２に示す。

[0126]

[表2]

	分離膜	膜エレメント	透過スペーサ					流路スペーサ				運転方式	比率R1(%)
	透過速度T1(GPU)	外径(inch)	品番	開口率(%)	厚さ(μm)	長さ(mm)*1	圧力損失P2(kPa)	品番	開口率(%)	厚さ(μm)	長さ(mm)*1	圧力損失P1(kPa)		比率R2(%)
実施例1	100	約2	#1000E	22	250	290	33.6	PE-30	50	650	90	5.6	加圧	98.5
													減圧	89.9
実施例2	100	約2	#1000E	22	250	290	33.6	T-90	70	450	90	12.3	加圧	91.0
													減圧	86.4
実施例3	100	約2	#1000E	22	250	290	33.6	13mil	51	320	90	24.1	加圧	84.4
													減圧	79.9
実施例4	1500	約2	#1000E	22	250	290	33.6	PE-30	50	650	90	5.6	加圧	86.9
													減圧	79.8
実施例5	100	約4	#1000E	22	250	400	33.6	PE-30	50	650	136	5.6	加圧	100
													減圧	87
比較例1	100	約2	#1000E	22	250	290	33.6	#1000E	22	250	90	33.6	加圧	82.5
													減圧	77.4
比較例2	1500	約2	#1000E	22	250	290	33.6	#1000E	22	250	90	33.6	加圧	76.4
													減圧	67.8

(*1)中心管に巻き付けられる方向における長さ

[0127] 表２からわかるとおり、流路スペーサの圧力損失Ｐ１が透過スペーサの圧力損失Ｐ２よりも小さい実施例１～５のスパイラル型膜エレメントでは、比率Ｒ１及びＲ２が、それぞれ、比較例１及び２と比べて高い値であった。詳細には、実施例１～５のスパイラル型膜エレメントでは、比率Ｒ１が、いずれも８３％以上であり、比較例１及び２の比率Ｒ１よりも高い値であった。さらに、実施例１～５のスパイラル型膜エレメントでは、比率Ｒ２が、いずれも７８％以上であり、比較例１及び２の比率Ｒ２よりも高い値であった。この結果から、本実施形態のスパイラル型膜エレメントは、分離膜からの透過流体の透過速度の低下を抑制することに適していることがわかる。

[0128] （実施例６）

［分離膜の作製］

まず、シリコーン樹脂（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製のＹＳＲ３０２２）、シリコーン硬化触媒（モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製のＹＣ６８３１）、及びハイシリカゼオライト（ユニオン昭和社製のＨｉＳｉｖ３０００）を混合して塗布液を調製した。次に、塗布液を多孔性支持体（日東電工社製のＲＳ－５０）の上に塗布することによって塗布膜を得た。塗布膜を乾燥させることによって、分離機能層を作製した。これにより、分離膜を得た。分離機能層において、シリコーン樹脂とハイシリカゼオライトとの重量比は、５０：５０であった。

[0129] ［スパイラル型膜エレメントの作製］

図６のスペーサ１６としてＮＢＣメッシュテック社製のＰＥ３０を用い、他の透過スペーサ１４としてＫＢセーレン社製の＃１０００Ｅを用い、さらに、供給スペーサ１３として東京インキ社製の３４ｍｉｌを用いて、図６を参照して説明した方法によって実施例６のスパイラル型膜エレメントを作製した。なお、スペーサ１６の第１部分１６ａは、中心管に巻き付けられる方向における長さが９０ｍｍであり、中心管が延びる方向における長さが２８０ｍｍであった。透過スペーサ１４は、中心管に巻き付けられる方向におけ

る長さが１４０ｍｍであり、中心管が延びる方向における長さが２８０ｍｍであった。スペーサ１６及び透過スペーサ１４は、中心管に巻き付けられたのち端部が切断された。スパイラル型膜エレメントにおいて、中心管が延びる方向について、これらのスペーサが有効に機能する長さは、１８０ｍｍであった。中心管２１の外径は１７．３ｍｍであり、スパイラル型膜エレメントの外径は約２インチであった。

[0130]（実施例７）

スペーサ１６を表３のように変更したことを除き、実施例６と同じ方法によって、実施例７のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0131]（比較例３）

スペーサ１６としてＫＢセーレン社製の＃１０００Ｅを用いたことを除き、実施例６と同じ方法によって、比較例３のスパイラル型膜エレメントを作製した。

[0132][平膜状の分離膜の評価]

実施例６～７及び比較例３のスパイラル型膜エレメントに用いた分離膜について、平膜の状態でのイソプロパノール（ＩＰＡ）の透過流束Ｆ１（ｋｇ／m^2／ｈｒ）を測定した。透過流束Ｆ１の測定は、以下の方法によって行った。まず、分離膜を平膜の状態で金属セル中にセットし、リークが発生しないようにＯリングでシールした。分離膜の膜面積は、３４．２cm^2であった。次に、分離膜の分離機能層側の主面に供給流体が接触するように、金属セル内に供給流体を充填した。供給流体は、実質的にＩＰＡ及び水から構成されていた。供給流体におけるＩＰＡの濃度は５ｗｔ％であった。金属セル内に供給された供給流体は、温度が４０℃であった。次に、真空ポンプを用いて、分離膜の多孔性支持体側の主面に隣接する空間を１．５ｋＰａまで減圧した。これにより、分離膜の多孔性支持体側の主面から気体の透過流体が得られた。すなわち、減圧方式の運転により、浸透気化法（ＰＶ）による分離が進行した。－１９６℃の液体窒素を用いて、気体の透過流体を冷却することによって、透過流体を液化した。ガスクロマトグラフィーを用いて、液体

の透過流体の組成を分析した。得られた透過流体の組成、透過流体の重量などに基づいて、ＩＰＡの透過流束Ｆ１を算出した。

[0133] ［スパイラル型膜エレメントの評価］

次に、実施例６～７及び比較例３のスパイラル型膜エレメントを減圧方式で運転したときのＩＰＡの透過流束Ｆ２（ｋｇ／m^2／ｈｒ）を測定した。

[0134] 透過流束Ｆ２は、以下の方法によって測定した。まず、スパイラル型膜エレメントの供給流体流路に供給流体を供給した。供給流体は、実質的にＩＰＡ及び水から構成されていた。供給流体におけるＩＰＡの濃度は５ｗｔ％であった。供給流体は、温度が４０℃であった。供給流体の供給流量は、４０ｇ／ｍｉｎであった。次に、真空ポンプを用いて、スパイラル型膜エレメントの中心管内を１．５ｋＰａまで減圧した。これにより、スパイラル型膜エレメントの中心管を通じて、気体の透過流体が得られた。すなわち、減圧方式の運転により、浸透気化法（ＰＶ）による分離が進行した。－１９６℃の液体窒素を用いて、気体の透過流体を冷却することによって、透過流体を液化した。ガスクロマトグラフィーを用いて、液体の透過流体の組成を分析した。得られた透過流体の組成、透過流体の重量などに基づいて、ＩＰＡの透過流束Ｆ２を算出した。

[0135] 次に、透過流束Ｆ１に対する透過流束Ｆ２の比率Ｌを算出した。結果を表３に示す。

[0136]

[表3]

	膜エレメント	透過スペーサ					流路スペーサ					運転方式	比率L (%)
	外径 (inch)	品番	開口率 (%)	厚さ (μm)	長さ (mm)*1	圧力損失 P2 (kPa)	品番	開口率 (%)	厚さ (μm)	長さ (mm)*1	圧力損失 P1 (kPa)		
実施例6	約2	#1000E	22	250	140	33.6	PE-30	50	650	90	5.6	PV	63.2
実施例7	約2	#1000E	22	250	140	33.6	PE-14	54	1350	90	1.0	PV	62.7
比較例3	約2	#1000E	22	250	140	33.6	#1000E	22	250	90	33.6	PV	59.6

(*1) 中心管に巻き付けられる方向における長さ

[0137] 表３からわかるとおり、流路スペーサの圧力損失Ｐ１が透過スペーサの圧力損失Ｐ２よりも小さい実施例６及び７のスパイラル型膜エレメントでは、

比率Ｌが比較例３と比べて高い値であった。詳細には、実施例６及び７のスパイラル型膜エレメントでは、いずれも比率Ｌが６３％程度であり、比較例３の比率Ｌよりも高い値であった。この結果から、本実施形態のスパイラル型膜エレメントは、供給流体として液体を用いた場合であっても、分離膜からの透過流体の透過流束の低下を抑制することに適していることがわかる。

産業上の利用可能性

[0138] 本実施形態のスパイラル型膜エレメントは、酸性ガスを含む混合気体から酸性ガスを分離することに適している。特に、本実施形態のスパイラル型膜エレメントは、化学プラント又は火力発電のオフガスから二酸化炭素を分離することに適している。本実施形態のスパイラル型膜エレメントは、揮発性の有機化合物を含む混合液体から当該有機化合物を分離する用途にも適している。

請求の範囲

[請求項1] 中心管と、

分離膜及び透過スペーサを有し、前記中心管に巻き付けられた膜リーフと、

前記透過スペーサに接続され、前記膜リーフよりも前記中心管側で前記中心管に巻き付けられた流路スペーサと、

を備え、

下記試験により測定された前記流路スペーサの圧力損失Ｐ１が、下記試験により測定された前記透過スペーサの圧力損失Ｐ２よりも小さい、スパイラル型膜エレメント。

試験：縦１５０ｍｍ×横４７ｍｍの短冊状のスペーサ（前記流路スペーサ又は前記透過スペーサ）をポリエチレンテレフタレート製のフィルムに積層させた試験片を準備する。前記試験片の前記フィルムに隣接する空間の圧力が０．１ＭＰａとなるように窒素ガスを前記空間に送るとともに、２．５Ｌ／ｍｉｎの流量で前記スペーサに窒素ガスを送る。前記スペーサ内で、窒素ガスが前記スペーサの長手方向に移動することによって生じた圧力損失を測定する。

[請求項2] 前記圧力損失Ｐ１が３０ｋＰａ以下である、請求項１に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項3] 前記流路スペーサの開口率が３０％以上である、請求項１又は２に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項4] 前記流路スペーサの厚さが３００μｍ以上である、請求項１～３のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項5] 前記膜リーフは、２つの前記分離膜を有し、

２つの前記分離膜は、互いに重ね合わされ、袋状の構造を有するように封止されている、請求項１～４のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項6] 前記透過スペーサは、２つの前記分離膜の間に配置されている、請

求項５に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項7] 前記膜リーフに積層された供給スペーサをさらに備えた、請求項１～６のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項8] 前記中心管には、開口部が設けられており、

前記流路スペーサが前記開口部に接している、請求項１～７のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項9] 前記分離膜は、

分離機能層と、

前記分離機能層を支持している多孔性支持体と、

を有する、請求項１～８のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項10] 前記分離機能層は、ポリエーテルブロックアミド樹脂を含む、請求項９に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項11] 前記分離機能層は、シリコーン樹脂を含む、請求項９に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項12] （ｉ）二酸化炭素及び窒素を含む混合気体から二酸化炭素を分離するために用いられる、並びに、（ｉｉ）アルコール及び水を含む混合液体からアルコールを分離するために用いられる、の少なくとも１つが成立する、請求項１～１１のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメント。

[請求項13] 請求項１～１２のいずれか１項に記載のスパイラル型膜エレメントと、

前記中心管の内部を減圧する減圧装置と、

を備えた、膜分離システム。

[請求項14] 中心管と、

分離膜及び透過スペーサを有し、前記中心管に巻き付けられた膜リーフと、

前記透過スペーサに接続され、前記膜リーフよりも前記中心管側で

前記中心管に巻き付けられた流路スペーサと、

を備え、

下記試験により測定された前記流路スペーサの圧力損失Ｐ１が３０ｋＰａ以下である、スパイラル型膜エレメント。

試験：縦１５０ｍｍ×横４７ｍｍの短冊状の前記流路スペーサをポリエチレンテレフタレート製のフィルムに積層させた試験片を準備する。前記試験片の前記フィルムに隣接する空間の圧力が０．１ＭＰａとなるように窒素ガスを前記空間に送るとともに、２．５Ｌ／ｍｉｎの流量で前記流路スペーサに窒素ガスを送る。前記流路スペーサ内で、窒素ガスが前記流路スペーサの長手方向に移動することによって生じた圧力損失を測定する。

[図1]

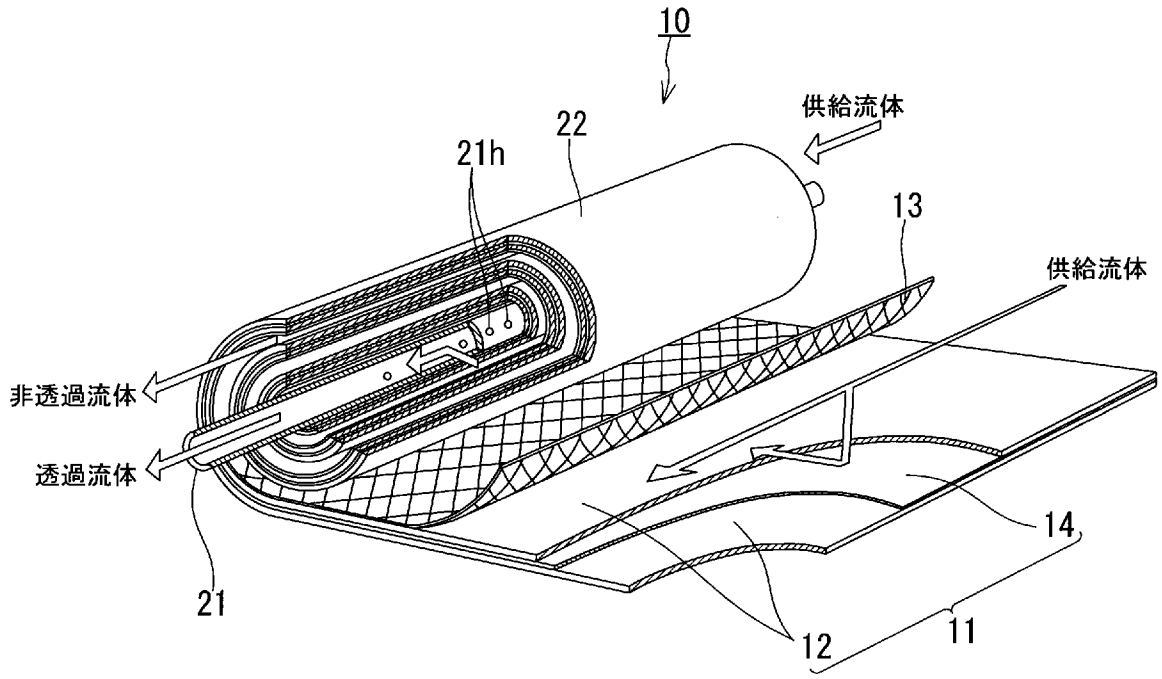


FIG.1

[図2]

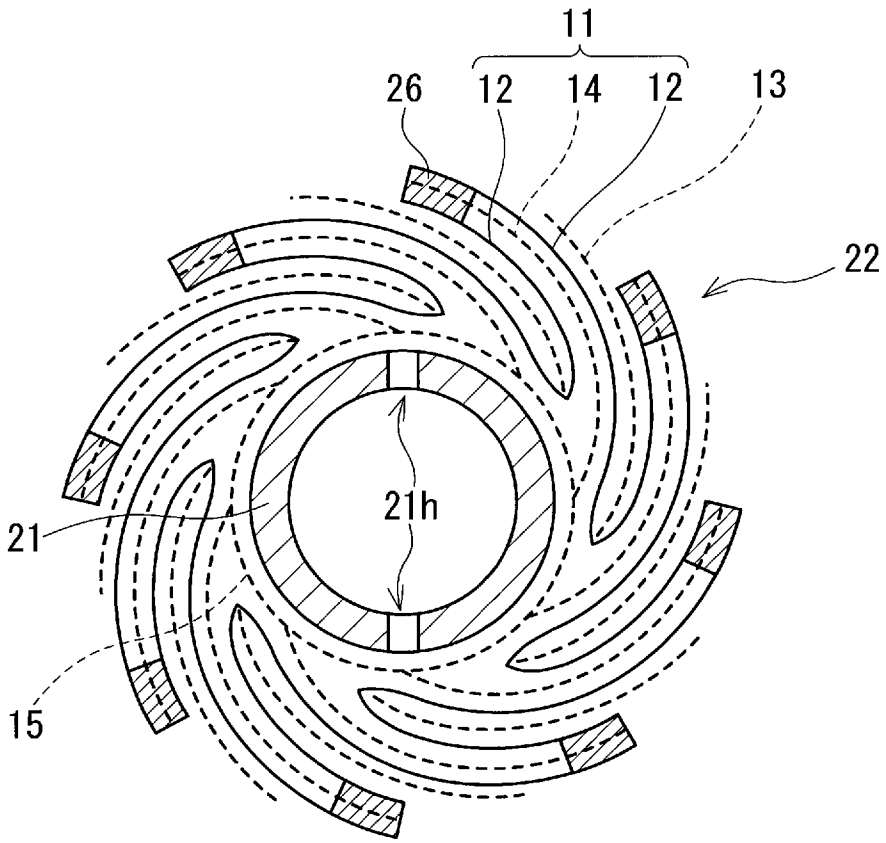


FIG.2

[図3]

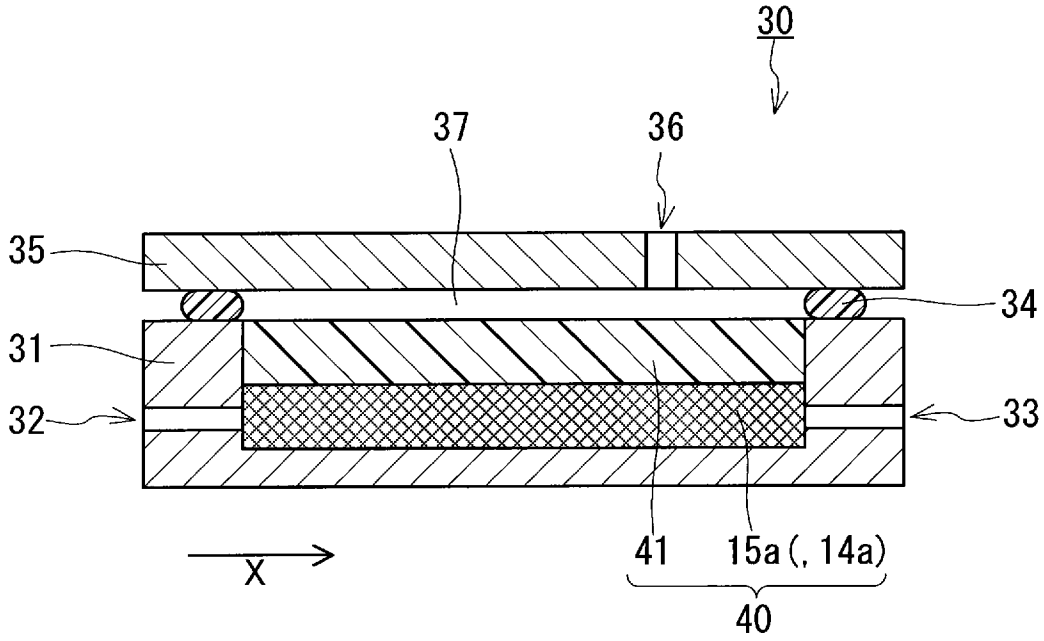


FIG.3

[図4A]

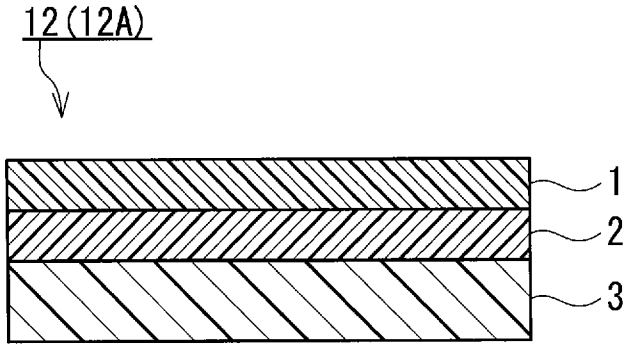


FIG.4A

[図4B]

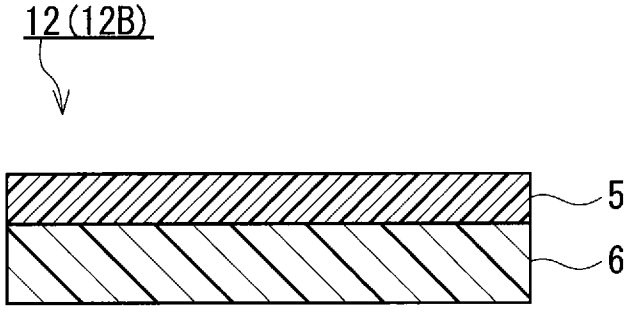


FIG.4B

[図5]

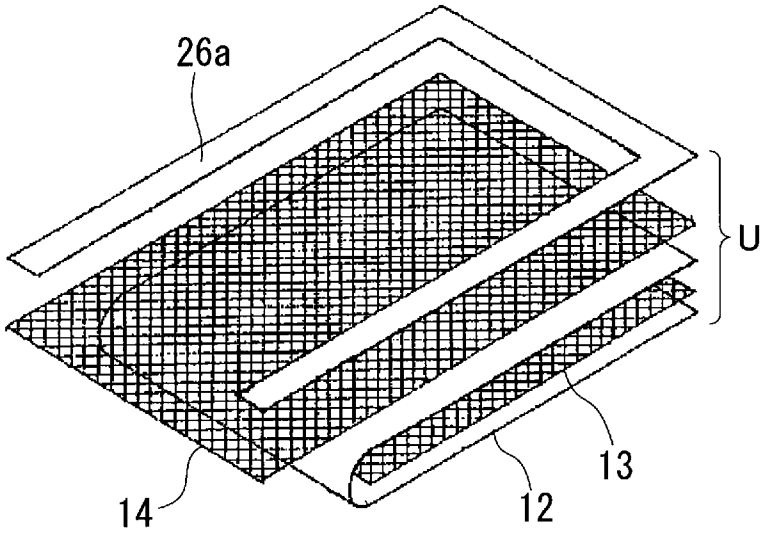


FIG.5

[図6]

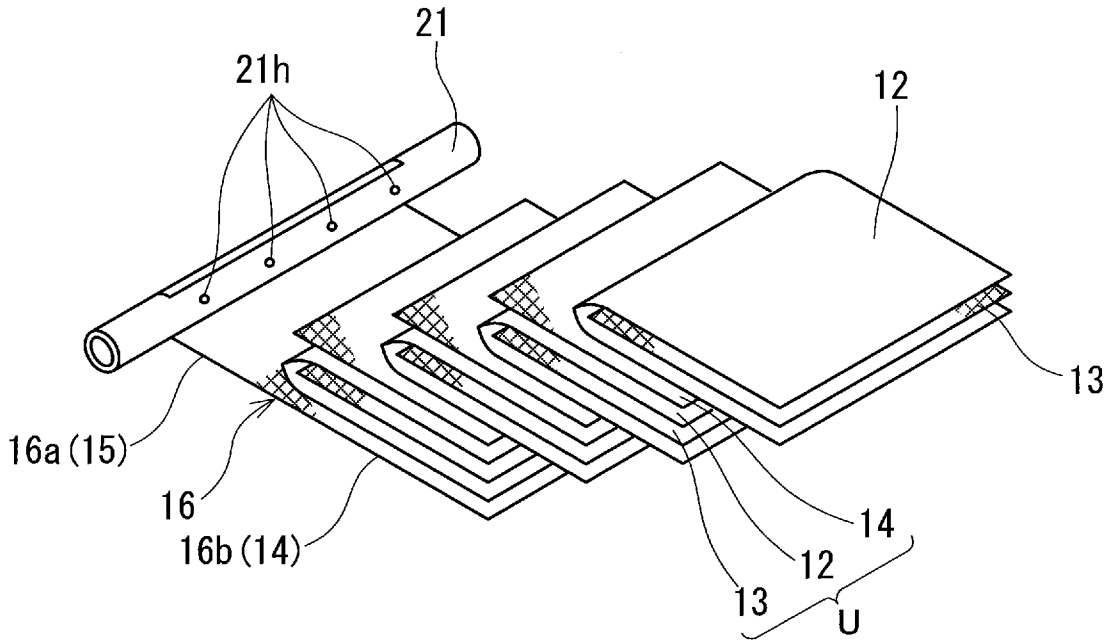


FIG.6

[図7]

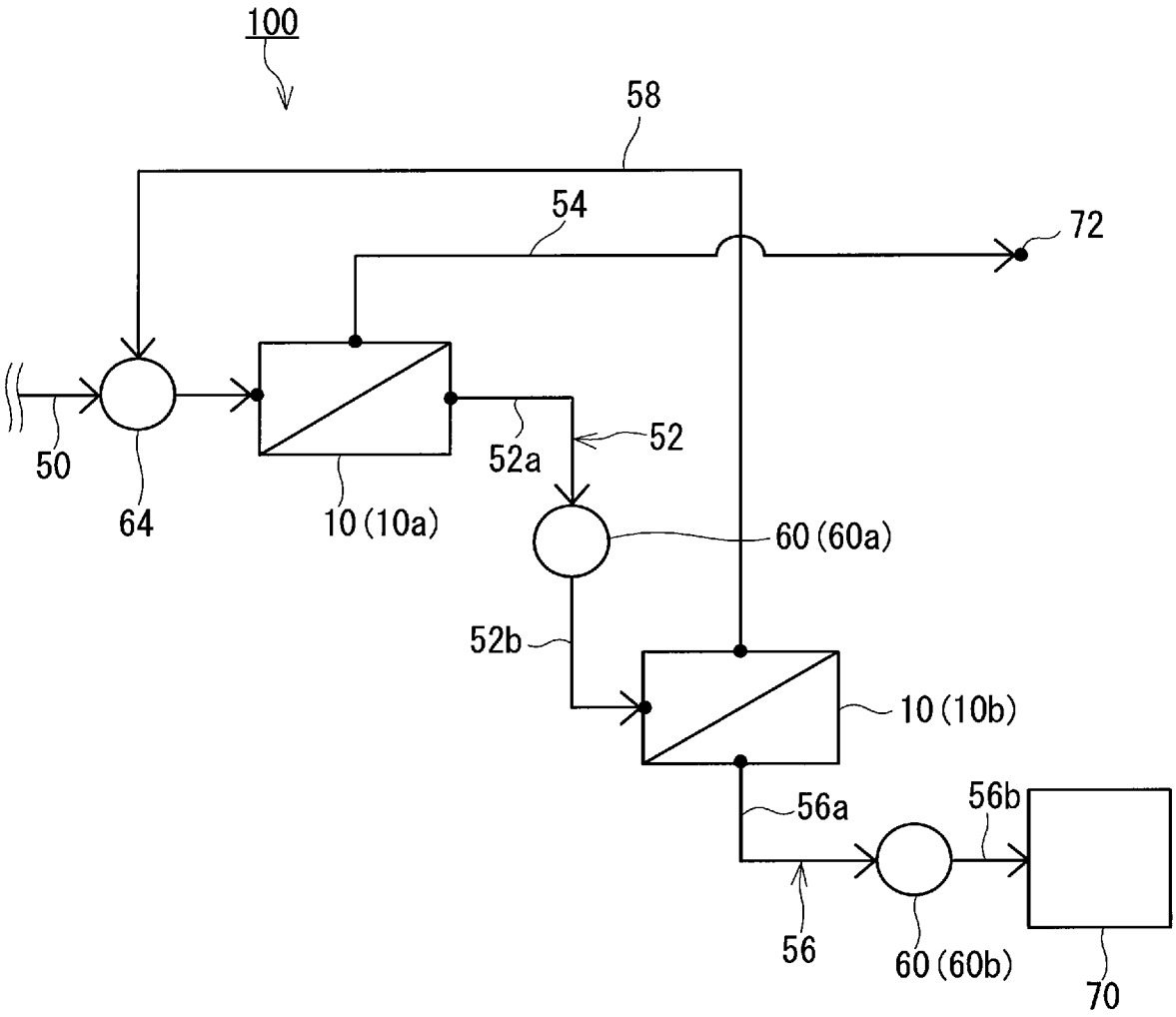

100
58
54
72
50
64
10 (10a)
52a
52
60 (60a)
52b
10 (10b)
56a
56b
56
60 (60b)
70

FIG.7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2022/008373

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01D 63/00(2006.01)i; ***B01D 63/10***(2006.01)i; ***B01D 65/10***(2006.01)i; ***B01D 69/06***(2006.01)i; ***B01D 69/12***(2006.01)i; ***B01D 71/52***(2006.01)i; ***B01D 71/56***(2006.01)i; ***G01M 3/26***(2006.01)i; ***B01D 53/22***(2006.01)i
FI: B01D63/00 510; B01D53/22; B01D63/10; B01D69/06; B01D69/12; B01D71/52; B01D71/56; B01D65/10; G01M3/26 A

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)

B01D63/00; B01D63/10; B01D65/10; B01D69/06; B01D69/12; B01D71/52; B01D71/56; G01M3/26; 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 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2015-85233 A (NITTO DENKO CORP) 07 May 2015 (2015-05-07) claims, fig. 7	1-14
A	JP 2012-20282 A (NITTO DENKO CORP) 02 February 2012 (2012-02-02) claims, fig. 3	1-14
A	JP 4650921 B2 (NITTO DENKO CORP) 16 March 2011 (2011-03-16) claims, fig. 1	1-14
A	JP 2010-82575 A (TORAY IND INC) 15 April 2010 (2010-04-15) claims, fig. 2	1-14

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
19 April 2022	**26 April 2022**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **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/JP2022/008373

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2015-85233 A	07 May 2015	US 2016/0279575 A1 claims, fig. 7	
JP 2012-20282 A	02 February 2012	US 2013/0087499 A1 claims, fig. 3 WO 2011/158518 A1 CN 102946978 A KR 10-2013-0031340 A	
JP 4650921 B2	16 March 2011	US 2004/0195164 A1 claims, fig. 1 EP 1464379 A1 KR 10-0626901 B1 CN 1539548 A	
JP 2010-82575 A	15 April 2010	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/008373

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B01D 63/00(2006.01)i; B01D 63/10(2006.01)i; B01D 65/10(2006.01)i; B01D 69/06(2006.01)i; B01D 69/12(2006.01)i; B01D 71/52(2006.01)i; B01D 71/56(2006.01)i; G01M 3/26(2006.01)i; B01D 53/22(2006.01)i

FI: B01D63/00 510; B01D53/22; B01D63/10; B01D69/06; B01D69/12; B01D71/52; B01D71/56; B01D65/10; G01M3/26 A

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））

B01D63/00; B01D63/10; B01D65/10; B01D69/06; B01D69/12; B01D71/52; B01D71/56; G01M3/26; 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

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2015-85233 A (日東電工株式会社) 07.05.2015 (2015-05-07) 特許請求の範囲、図7	1-14
A	JP 2012-20282 A (日東電工株式会社) 02.02.2012 (2012-02-02) 特許請求の範囲、図3	1-14
A	JP 4650921 B2 (日東電工株式会社) 16.03.2011 (2011-03-16) 特許請求の範囲、図1	1-14
A	JP 2010-82575 A (東レ株式会社) 15.04.2010 (2010-04-15) 特許請求の範囲、図2	1-14

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
19.04.2022	26.04.2022

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）
山崎　直也 4D 3234

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

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/JP2022/008373

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2015-85233 A	07.05.2015	US 2016/0279575 A1 特許請求の範囲、図7	
JP 2012-20282 A	02.02.2012	US 2013/0087499 A1 特許請求の範囲、図3 WO 2011/158518 A1 CN 102946978 A KR 10-2013-0031340 A	
JP 4650921 B2	16.03.2011	US 2004/0195164 A1 特許請求の範囲、図1 EP 1464379 A1 KR 10-0626901 B1 CN 1539548 A	
JP 2010-82575 A	15.04.2010	（ファミリーなし）	