



(51) 国際特許分類:
B01D 53/22 (2006.01) **B01D 61/58** (2006.01)
(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/009898
(22) 国際出願日: 2024年3月13日(13.03.2024)
(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 2023-041659 2023年3月16日(16.03.2023) 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). 福村 卓哉(**FUKUMURA Takuya**); 〒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).
(74) 代理人: 弁理士法人青藍国際特許事務所 (**SEIRAN IP FIRM**); 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満四丁目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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR,

(54) **Title:** GAS SEPARATION SYSTEM, AND MIXED GAS SEPARATION METHOD

(54) 発明の名称: ガス分離システム及び混合ガスの分離方法

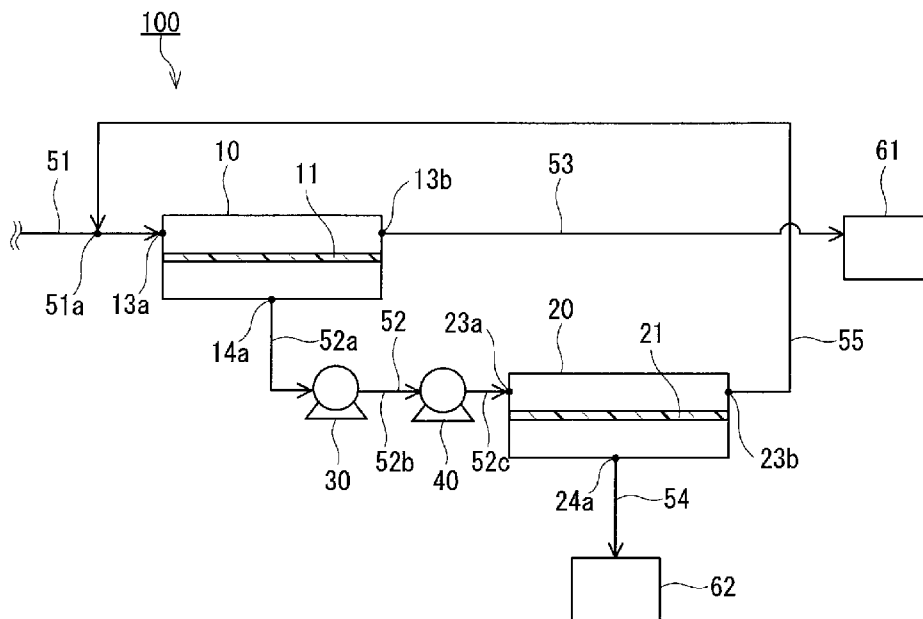


FIG. 1

(57) **Abstract:** The present invention provides a novel gas separation system and a novel mixed gas separation method which are suitable for achieving both the reduction of recycling power and the reduction of membrane area. A gas separation system (100) according to the present invention is provided with: a first separation membrane unit (10) in which a first separation membrane (11) for separating a mixed gas (S1) into a first permeated gas (S2) and a first non-permeated gas (S3) is accommodated; a second separation membrane unit (20) in which a second separation membrane (21) for separating the first permeated gas (S2) into a second permeated gas (S4) and a second

HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

non-permeated gas (S5) is accommodated; a pressure reduction device (30) which reduces the pressure in a permeation-side space in the first separation membrane unit (10); and a pressure application device (40) which increases the pressure in a feeding-side space in the second separation membrane unit (20). The mixed gas (S1) comprises a first gas and a second gas that is different from the first gas. The first separation membrane (11) and the second separation membrane (21) can preferentially transmit the second gas, and the separation coefficient α_1 of the first separation membrane (11) and the separation coefficient α_2 of the second separation membrane 21 satisfy the formula: $\alpha_1 < \alpha_2$.

(57) 要約: 本発明は、回収動力の低減と膜面積の低減との両立に適した新たなガス分離システム及び混合ガスの分離方法を提供する。本発明のガス分離システム(100)は、混合ガス(S1)を第1透過ガス(S2)と第1非透過ガス(S3)とに分離する第1分離膜(11)を収容した第1分離膜ユニット(10)と、第1透過ガス(S2)を第2透過ガス(S4)と第2非透過ガス(S5)とに分離する第2分離膜(21)を収容した第2分離膜ユニット(20)と、第1分離膜ユニット(10)の透過側空間を減圧する減圧装置(30)と、第2分離膜ユニット(20)の供給側空間を昇圧する加圧装置(40)と、を備える。混合ガス(S1)は、第1ガス及び第1ガスとは異なる第2ガスを含む。第1分離膜(11)及び第2分離膜(21)は、第2ガスを優先的に透過させることができ、第1分離膜(11)の分離係数 α_1 と第2分離膜21の分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。

明 細 書

発明の名称： ガス分離システム及び混合ガスの分離方法

技術分野

[0001] 本発明は、ガス分離システム及び混合ガスの分離方法に関する。

背景技術

[0002] 工場又は発電所などでは、例えば、燃焼装置から二酸化炭素及び窒素などを含む混合ガスが排出される。環境規制などの観点から、混合ガスから各成分を分離して回収することが望ましい。

[0003] 混合ガスから各成分を分離する方法として、膜分離法が開発されている。膜分離法によれば、混合ガスに含まれる特定の成分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各成分を効率的に分離することができる。

[0004] 膜分離法では、複数の分離膜ユニットを組み合わせたガス分離システムが利用されることがある。例えば、特許文献1には、2段に配置した減圧方式の分離膜ユニットを用いた2段階の分離膜システムが開示されている（特許文献1の図7）。第1段目の分離膜ユニットにおいてボイラの排ガスから CO_2 、 SO_2 、及び NO_x が除去され、次いで、第2段目の分離膜ユニットにおいて CO_2/SO_2 が分離される。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特表2020-501884号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献1に記載される2段階の分離膜システムは、ボイラの排ガスを分離するために、2段に配置した減圧方式の分離膜ユニットを採用している。特許文献1のシステム構成によれば、排ガスを分離するための回収動力が低減されうる。しかし、特許文献1のシステム構成では、必要な総膜面積が増

加するため、システム全体のコンパクト化の実現が難しい。

[0007] 本発明は、回収動力の低減と膜面積の低減との両立に適した新たなガス分離システム及び混合ガスの分離方法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、2つの分離膜ユニットを組み合わせた2段構成のガス分離システムの2段目の分離膜ユニットに加圧方式を採用することで、回収動力を低減しつつ必要な膜面積を低減することができないかについて検討した。その結果、2つの分離膜ユニットが備える分離膜の分離係数 α を調整することにより、回収動力の低減と膜面積の低減との両立が実現でき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検討をさらに進め、本発明を完成するに至った。

[0009] 本発明は、その一側面から、

混合ガスを第1透過ガスと第1非透過ガスとに分離する第1分離膜を収容した第1分離膜ユニットと、

前記第1透過ガスを第2透過ガスと第2非透過ガスとに分離する第2分離膜を収容した第2分離膜ユニットと、

前記第1分離膜ユニットの透過側空間を減圧する減圧装置と、

前記第2分離膜ユニットの供給側空間を昇圧する加圧装置と、
を備え、

前記混合ガスは、第1ガス及び前記第1ガスとは異なる第2ガスを含み、

前記第1分離膜及び前記第2分離膜は、前記第2ガスを優先的に透過させることができ、

下記試験により求めた、前記第1分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第2分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす、ガス分離システム、
を提供する。

試験：前記第1分離膜又は前記第2分離膜から試験片を作製する。前記試

験片の一方の面に隣接する空間に、前記第 1 ガス及び前記第 2 ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第 2 ガスの含有率は、標準状態で 50 vol %であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が 30℃であり、圧力が 0.1 MPaであり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して 0.1 MPa 小さくなるように減圧されている。

[0010] 本発明は、別の側面から、

第 1 分離膜を収容した第 1 分離膜ユニットに混合ガスを供給し、前記第 1 分離膜ユニットの透過側空間を減圧することによって、前記混合ガスを第 1 透過ガスと第 1 非透過ガスとに分離する第 1 分離工程と、

第 2 分離膜を収容した第 2 分離膜ユニットに前記第 1 透過ガスを供給し、前記第 2 分離膜ユニットの供給側空間を昇圧することによって、前記第 1 透過ガスを第 2 透過ガスと第 2 非透過ガスとに分離する第 2 分離工程と、
を含み、

前記混合ガスは、第 1 ガス及び前記第 1 ガスとは異なる第 2 ガスを含み、
前記第 1 分離膜及び前記第 2 分離膜は、前記第 2 ガスを優先的に透過させることができ、

下記試験により求めた、前記第 1 分離膜の前記第 1 ガスに対する前記第 2 ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第 2 分離膜の前記第 1 ガスに対する前記第 2 ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす、混合ガスの分離方法、
を提供する。

試験：前記第 1 分離膜又は前記第 2 分離膜から試験片を作製する。前記試験片の一方の面に隣接する空間に、前記第 1 ガス及び前記第 2 ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離

係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第2ガスの含有率は、標準状態で50vol%であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が30℃であり、圧力が0.1MPaであり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して0.1MPa小さくなるように減圧されている。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、回収動力の低減と膜面積の低減との両立に適した新たなガス分離システム及び混合ガスの分離方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の一実施形態にかかるガス分離システムの概略構成図である。

[図2]第1分離膜ユニットの一例を示す概略断面図である。

[図3]第1分離膜の一例を模式的に示す断面図である。

[図4]第2分離膜ユニットの一例を示す概略断面図である。

[図5]第2分離膜の一例を模式的に示す断面図である。

[図6]第1分離膜ユニットの別の一例を模式的に示す斜視図である。

[図7]ガス分離システムの変形例を示す概略構成図である。

[図8]計算例5～8で用いたガス分離システムを説明するための概略構成図である。

[図9]計算例9～12及び計算例23で用いたガス分離システムを説明するための概略構成図である。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明の第1態様にかかるガス分離システムは、

混合ガスを第1透過ガスと第1非透過ガスとに分離する第1分離膜を収容した第1分離膜ユニットと、

前記第1透過ガスを第2透過ガスと第2非透過ガスとに分離する第2分離膜を収容した第2分離膜ユニットと、

前記第1分離膜ユニットの透過側空間を減圧する減圧装置と、

前記第2分離膜ユニットの供給側空間を昇圧する加圧装置と、

を備え、

前記混合ガスは、第 1 ガス及び前記第 1 ガスとは異なる第 2 ガスを含み、
前記第 1 分離膜及び前記第 2 分離膜は、前記第 2 ガスを優先的に透過させることができ、

下記試験により求めた、前記第 1 分離膜の前記第 1 ガスに対する前記第 2 ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第 2 分離膜の前記第 1 ガスに対する前記第 2 ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。

試験：前記第 1 分離膜又は前記第 2 分離膜から試験片を作製する。前記試験片の一方の面に隣接する空間に、前記第 1 ガス及び前記第 2 ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第 2 ガスの含有率は、標準状態で 50 vol % であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が 30℃ であり、圧力が 0.1 MPa であり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して 0.1 MPa 小さくなるように減圧されている。

[0014] 本発明の第 2 態様において、例えば、第 1 態様にかかるガス分離システムでは、前記混合ガスにおける前記第 2 ガスの含有率が 30 vol % 以下である。

[0015] 本発明の第 3 態様において、例えば、第 1 又は第 2 態様にかかるガス分離システムでは、前記混合ガスは、前記第 1 ガスとして窒素を含み、かつ前記第 2 ガスとして二酸化炭素を含む。

[0016] 本発明の第 4 態様において、例えば、第 1 ～第 3 態様のいずれか 1 つにかかるガス分離システムでは、前記第 1 分離膜の膜面積は、前記第 2 分離膜の膜面積よりも大きい。

[0017] 本発明の第 5 態様において、例えば、第 1 ～第 4 態様のいずれか 1 つにかかるガス分離システムは、 $10 \leq \alpha_2 - \alpha_1 \leq 30$ を満たす。

[0018] 本発明の第 6 態様において、例えば、第 1 ～第 5 態様のいずれか 1 つにか

かるガス分離システムは、 $10 \leq \alpha_1 \leq 30$ を満たす。

[0019] 本発明の第7態様において、例えば、第1～第6態様のいずれか1つにかかるガス分離システムは、連続式システムである。

[0020] 本発明の第8態様において、例えば、第1～第7態様のいずれか1つにかかるガス分離システムは、前記第1分離膜ユニット及び前記第2分離膜ユニットに接続され、前記第2分離膜ユニットに前記第1透過ガスを供給するための透過ガス供給経路をさらに備え、前記減圧装置及び前記加圧装置が前記透過ガス供給経路に配置されている。

[0021] 本発明の第9態様において、例えば、第1～第8態様のいずれか1つにかかるガス分離システムは、前記第1分離膜ユニットに接続され、前記第1分離膜ユニットに前記混合ガスを供給するための混合ガス供給経路と、前記第2分離膜ユニットに接続され、前記第2分離膜ユニットから前記第2非透過ガスを排出するための排出経路と、をさらに備え、前記排出経路は、合流位置において、前記混合ガス供給経路に合流している。

[0022] 本発明の第10態様にかかる混合ガスの分離方法は、

第1分離膜を収容した第1分離膜ユニットに混合ガスを供給し、前記第1分離膜ユニットの透過側空間を減圧することによって、前記混合ガスを第1透過ガスと第1非透過ガスとに分離する第1分離工程と、

第2分離膜を収容した第2分離膜ユニットに前記第1透過ガスを供給し、前記第2分離膜ユニットの供給側空間を昇圧することによって、前記第1透過ガスを第2透過ガスと第2非透過ガスとに分離する第2分離工程と、
を含み、

前記混合ガスは、第1ガス及び前記第1ガスとは異なる第2ガスを含み、
前記第1分離膜及び前記第2分離膜は、前記第2ガスを優先的に透過させることができ、

下記試験により求めた、前記第1分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第2分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。

試験：前記第 1 分離膜又は前記第 2 分離膜から試験片を作製する。前記試験片の一方の面に隣接する空間に、前記第 1 ガス及び前記第 2 ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第 2 ガスの含有率は、標準状態で 50 vol % であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が 30℃ であり、圧力が 0.1 MPa であり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して 0.1 MPa 小さくなるように減圧されている。

[0023] 本発明の第 1 態様において、例えば、第 10 態様にかかる混合ガスの分離方法では、前記混合ガスにおける前記第 2 ガスの含有率が 30 vol % 以下である。

[0024] 本発明の第 2 態様において、例えば、第 10 又は第 11 態様にかかる混合ガスの分離方法では、前記混合ガスは、前記第 1 ガスとして窒素を含み、かつ前記第 2 ガスとして二酸化炭素を含む。

[0025] 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。

[0026] <ガス分離システム>

図 1 は、本発明の一実施形態にかかるガス分離システム 100 の概略構成図である。図 1 に示すように、本実施形態のガス分離システム 100 は、第 1 分離膜ユニット 10、第 2 分離膜ユニット 20、減圧装置 30、及び加圧装置 40 を備える。第 1 分離膜ユニット 10 は第 1 分離膜 11 を収容しており、第 2 分離膜ユニット 20 は第 2 分離膜 21 を収容している。第 1 分離膜ユニット 10 は、第 1 分離膜 11 を用いて、混合ガスについて膜分離を行う膜分離装置である。第 1 分離膜 11 は、混合ガスを第 1 透過ガスと第 1 非透過ガスとに分離することができる。第 2 分離膜ユニット 20 は、第 2 分離膜 21 を用いて、第 1 分離膜ユニット 10 から排出された第 1 透過ガスについて膜分離を行う膜分離装置である。第 2 分離膜 21 は、第 1 透過ガスを第 2

透過ガスと第2非透過ガスとに分離することができる。

- [0027] 第1分離膜ユニット10で処理される混合ガスは、第1ガス及び第2ガスとは異なる第2ガスを含む。第1ガス及び第2ガスとしては、例えば、窒素、二酸化炭素などが挙げられる。例えば、混合ガスは、第1ガスとして窒素を含み、かつ第2ガスとして二酸化炭素を含んでいてもよい。
- [0028] 第1分離膜ユニット10で処理される混合ガスは、水分(H₂O)を含有していてもよい。混合ガスは、水分飽和状態のガスであってもよい。
- [0029] 本実施形態において、第1分離膜11及び第2分離膜21はいずれも、第2ガスを優先的に透過させることができる。そのため、第1分離膜11によって分離された第1透過ガスは、混合ガスよりも第2ガスの含有率が高く、かつ混合ガスよりも第1ガスの含有率が低い。一方、第1非透過ガスは、混合ガスよりも第2ガスの含有率が低く、かつ混合ガスよりも第1ガスの含有率が高い。第2分離膜21によって分離された第2透過ガスは、第1非透過ガスよりも第2ガスの含有率が高く、かつ第1非透過ガスよりも第1ガスの含有率が低い。第2非透過ガスは、第1非透過ガスよりも第2ガスの含有率が高く、かつ第1非透過ガスよりも第1ガスの含有率が低い。
- [0030] ガス分離システム100では、下記試験により求めた、第1分離膜11の第1ガスに対する第2ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、第2分離膜21の第1ガスに対する第2ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。
- 試験：第1分離膜11又は第2分離膜21から試験片を作製する。試験片の一方の面に隣接する空間に、第1ガス及び第2ガスからなる試験ガスを供給するとともに、試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。操作の結果に基づいて、分離係数 α_1 又は分離係数 α_2 を特定する。ここで、操作において、試験ガスにおける第2ガスの含有率は、標準状態で50vol%であり、一方の面に隣接する空間に供給される試験ガスは、温度が30℃であり、圧力が0.1MPaであり、他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して0.1MPa小さくなるように減圧されている。

[0031] 上記の試験において、試験片は、例えば、第1分離膜11又は第2分離膜21を直径20mmの円板状に切断することによって作製できる。円板状の試験片のサイズは、直径20mm以上であってもよい。

[0032] 上記の試験の分離操作は、例えば、次の方法によって行うことができる。まず、試験片を金属セル中にセットし、リークが発生しないようにOリングでシールする。次に、試験片の一方の主面（例えば、後述する主面11a又は21a）に試験ガスが接触するように、金属セル内の空間（供給空間）に試験ガスを注入する。上述のとおり、供給空間に注入される試験ガスにおいて、第2ガスの含有率は、標準状態（0℃、101kPa）で50vol%である。試験ガスは、温度が30℃であり、圧力が0.1MPaである。なお、本明細書において、特に言及のない限り、「圧力」は、絶対圧を意味する。

[0033] 次に、試験片の他方の主面（例えば、後述する主面11b又は21b）に隣接する金属セル内の空間（透過空間）を真空ポンプで減圧する。このとき、透過空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して0.1MPa小さくなるように減圧される。これにより、透過空間において、試験片を透過した透過流体が得られる。透過流体の重量、並びに、透過流体における第2ガスの体積比率及び第1ガスの体積比率などに基づいて、試験片の分離係数 α を算出することができる。詳細には、第1分離膜11から作製された試験片を用いて上記の分離操作を行うことによって、第1分離膜11の分離係数 α_1 （第2ガス／第1ガス）を算出することができ、第2分離膜21から作製された試験片を用いて上記の分離操作を行うことによって、第2分離膜21の分離係数 α_2 （第2ガス／第1ガス）を算出することができる。

[0034] 詳細には、分離係数 α は、以下の式から算出することができる。第1分離膜11の分離係数 α_1 （第2ガス／第1ガス）及び第2分離膜21の分離係数 α_2 （第2ガス／第1ガス）を算出する場合、下記式において、 X_2 及び X_1 は、それぞれ、試験ガスにおける第2ガスの体積比率及び第1ガスの体積比率であり、 Y_2 及び Y_1 は、それぞれ、試験片を透過した透過流体における第2ガス

の体積比率及び第 1 ガスの体積比率である。なお、これらの体積比率は、標準状態（0℃、101kPa）での値である。

$$\text{分離係数 } \alpha = (Y_2 / Y_1) / (X_2 / X_1)$$

[0035] 減圧装置 30 は、第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間を減圧することができる。言い換えると、減圧装置 30 によって、第 1 分離膜ユニット 10 の供給側空間と透過側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 30 の具体例は、ポンプである。減圧装置 30 は、真空ポンプなどの真空装置であることが好ましい。真空ポンプは、典型的には気体輸送式の真空ポンプであり、往復運動式の真空ポンプ又は回転式の真空ポンプなどが挙げられる。往復運動式の真空ポンプとしては、ダイヤフラム型又は揺動ピストン型の真空ポンプが挙げられる。回転式の真空ポンプとしては、液封ポンプ；油回転ポンプ（ロータリポンプ）；メカニカルブースターポンプ；ルーツ型、クロー型、スクリュウ型、ターボ型、スクロール型などの各種ドライポンプなどが挙げられる。減圧装置 30 としてのポンプは、回転数などを変化させるための可変速機構を備えていてもよい。可変速機構の例は、ポンプのモータを駆動するインバータである。可変速機構でポンプの回転数などを制御することによって、第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間の圧力を適切に調節することができる。

[0036] 減圧装置 30 は、複数のポンプの集合体であってもよい。すなわち、減圧装置 30 は、複数のポンプのそれぞれによって第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間を減圧できるように構成されていてもよい。この構成によれば、稼働するポンプの数を調整することによって、第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間の圧力を適切に調節することができる。

[0037] 加圧装置 40 は、第 2 分離膜ユニット 20 の供給側空間を昇圧することができる。言い換えると、加圧装置 40 によって、第 2 分離膜ユニット 20 の供給側空間と透過側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。加圧装置 40 の具体例は、ポンプである。加圧装置 40 は、第 2 分離膜ユニット 20 の供給側空間に向かって第 1 透過ガスを

圧送するポンプであってもよい。ポンプは、典型的には気体輸送式の加圧ポンプであり、往復運動式の加圧ポンプ又は回転式の加圧ポンプなどが挙げられる。往復運動式の加圧ポンプとしては、ダイヤフラム型のポンプ、揺動ピストン型のポンプが挙げられる。回転式のポンプとしては、液封ポンプ；油回転ポンプ（ロータリポンプ）；メカニカルブースターポンプ；ルーツ型、クロー型、スクリュウ型、ターボ型、スクロール型などの各種ドライポンプなどが挙げられる。加圧装置40としてのポンプは、回転数などを変化させるための可変速機構を備えていてもよい。可変速機構の例は、ポンプのモータを駆動するインバータである。可変速機構でポンプの回転数などを制御することによって、第2分離膜ユニット20の供給側空間の圧力を適切に調節することができる。

[0038] 加圧装置40は、複数のポンプの集合体であってもよい。すなわち、加圧装置40は、複数のポンプのそれぞれによって第2分離膜ユニット20の供給側空間を昇圧できるように構成されていてもよい。この構成によれば、稼働するポンプの数を調整することによって、第2分離膜ユニット20の供給側空間の圧力を適切に調節することができる。

[0039] 例えば、供給される混合ガスが二酸化炭素及び窒素を含む場合、分離膜ユニットの分離動力は、混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が低ければ低いほど、増加する傾向を示す。本発明者らは、分離膜ユニットの透過側空間から減圧することにより差圧を生じさせる運転方式（減圧方式）と、分離膜ユニットの供給側空間から昇圧することにより差圧を生じさせる運転方式（加圧方式）とを比較すると、供給される混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が低ければ低いほど、必要な分離動力に大きな開きが生じる傾向があるという知見を得た。この知見によれば、二酸化炭素の含有率が低い（例えば、10vol%以下）の混合ガスを処理するための分離膜ユニットに減圧方式を採用すれば、回収動力を低減させることができる。一方で、本発明者らは、減圧方式は、加圧方式と比較して、必要な膜面積が大きい傾向があり、この傾向は、混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が低ければ低いほど顕著であ

るという知見を得た。

[0040] これらの知見に基づき、本発明者らは、2つの分離膜ユニットを組み合わせた2段構成のガス分離システムの1段目の分離膜ユニットに減圧方式を採用し、2段目の分離膜ユニットに加圧方式を採用することで、回収動力を低減しつつ必要な膜面積を低減することができないかについて検討した。その結果、2段目の分離膜ユニットの分離膜として1段目の分離膜ユニットの分離膜よりも選択性の高い分離膜を採用することにより、回収動力の低減と膜面積の低減との両立が実現できることを新たに見出した。なお、分離膜の選択性と透過性との間にはトレードオフの関係が成立しうる。そのため、上記の選択性の関係を満たす場合、1段目の分離膜ユニットの分離膜は、2段目の分離膜ユニットの分離膜よりも透過性が高い傾向がある。本実施形態に係るガス分離システム100は、2つの分離膜ユニット（第1分離膜ユニット10及び第2分離膜ユニット20）を組み合わせたガス分離システムの1段目の第1分離膜ユニット10に減圧方式を採用し、2段目の第2分離膜ユニット20に加圧方式を採用し、かつ、第1分離膜11の分離係数 α_1 と第2分離膜21の分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。このような構成を有するガス分離システム100によれば、回収動力の低減と膜面積の低減との両立が実現されうる。

[0041] 分離係数 α_2 と分離係数 α_1 との差（ $\alpha_2 - \alpha_1$ ）は、2以上であってもよく、5以上であってもよく、8以上であってもよく、さらに10以上であってもよい。分離係数 α_2 と分離係数 α_1 との差（ $\alpha_2 - \alpha_1$ ）は、30以下であってもよく、25以下であってもよく、さらに20以下であってもよい。

[0042] 分離係数 α_2 と分離係数 α_1 との差（ $\alpha_2 - \alpha_1$ ）が $10 \leq \alpha_2 - \alpha_1 \leq 30$ を満たしてもよい。

[0043] 第1分離膜11の分離係数 α_1 は、 $\alpha_1 < \alpha_2$ が満たされる限り、特に限定されない。分離係数 α_1 は、例えば40以下であり、30以下、25以下、20以下、15以下、さらには10以下であってもよい。分離係数 α_1 の下限は、例えば1より大きく、2以上、3以上、4以上、さらには5以上であってもよい。

い。

[0044] 第1分離膜11の分離係数 α_1 は、 $10 \leq \alpha_1 \leq 30$ を満たしてもよい。

[0045] 第2分離膜21の分離係数 α_2 は、 $\alpha_1 < \alpha_2$ が満たされる限り、特に限定されない。分離係数 α_2 は、例えば5以上であり、10以上、15以上、20以上、25以上、30以上、40以上、50以上、60以上、70以上、さらには80以上であってもよい。分離係数 α_2 の上限は、例えば200以下であり、150以下であってもよく、100以下であってもよい。

[0046] 第2分離膜21の分離係数 α_2 は、 $30 \leq \alpha_2 \leq 50$ を満たしてもよく、 $40 \leq \alpha_2 \leq 50$ を満たしてもよい。

[0047] 第1分離膜11を透過する第2ガスの透過速度 T_1 は、特に限定されない。第2ガスの透過速度 T_1 は、例えば1GPU以上であり、5GPU以上、10GPU以上、50GPU以上、さらには100GPU以上であってもよい。透過速度 T_1 の上限は、特に限定されず、例えば1000GPU以下である。ただし、GPUは、 $10^{-6} \cdot \text{cm}^3(\text{STP})/(\text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{cmHg})$ を意味する。 $\text{cm}^3(\text{STP})$ は、1気圧、0℃における気体の体積を意味する。透過速度 T_1 は、第1分離膜11から作製された試験片を用いて上記の分離操作を行った結果に基づいて算出することができる。

[0048] 第2分離膜21を透過する第2ガスの透過速度 T_2 は、特に限定されない。第2ガスの透過速度 T_2 は、例えば1GPU以上であり、5GPU以上、10GPU以上、50GPU以上、さらには80GPU以上であってもよい。透過速度 T_2 の上限は、特に限定されず、例えば1000GPU以下である。透過速度 T_2 は、第2分離膜21から作製された試験片を用いて上記の分離操作を行った結果に基づいて算出することができる。

[0049] 混合ガスにおける第2ガスの含有率は、30vol%以下であってもよい。上述したように、加圧方式は、減圧方式に比べて、供給される混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が低ければ低いほど、必要な分離動力が増加する傾向がある一方で、必要な膜面積は減少する傾向がある。混合ガスにおける第2ガスの含有率が30vol%以下であることにより、ガス分離システム

100全体で必要な膜面積を減少させることができる。本明細書では、特に断りのない限り、「含有率」は、標準状態（0℃、101kPa）での値を意味する。

- [0050] 混合ガスにおける第2ガスの含有率は30vol%未満であってもよい。混合ガスにおける第2ガスの含有率は25vol%以下であってもよく、20vol%以下であってもよく、15vol%以下であってもよく、さらに10vol%以下であってもよい。
- [0051] 本実施形態のガス分離システム100は、透過ガス供給経路52をさらに備えている。透過ガス供給経路52は、第1分離膜ユニット10と第2分離膜ユニット20とを接続しており、第2分離膜ユニット20に第1透過ガスを供給するための経路である。透過ガス供給経路52には、減圧装置30及び加圧装置40が配置されている。
- [0052] 透過ガス供給経路52は、第1分離膜ユニット10から減圧装置30まで延びている第1部分52a、減圧装置30から加圧装置40まで延びている第2部分52b、及び加圧装置40から第2分離膜ユニット20まで延びている第3部分52cを有する。
- [0053] 減圧装置30は、第1部分52aを通じて、第1分離膜ユニット10の透過側空間を減圧することができる。減圧装置30は、例えば、第1部分52aを通過した第1透過ガスを吸引し、当該第1透過ガスを第2部分52bに排出する。減圧装置30は、例えば、第1部分52aを通過した第1透過ガスをガス分離システム100の外部に排出しないように構成されている。減圧装置30は、例えば、第1部分52a及び第2部分52bのみに接続されている。減圧装置30が複数のポンプの集合体である場合、透過ガス供給経路52の第1部分52aは、分岐し、複数のポンプの入口のそれぞれに接続されていてもよい。同様に、透過ガス供給経路52の第2部分52bは、分岐し、複数のポンプの出口のそれぞれに接続されていてもよい。
- [0054] 加圧装置40は、第3部分52cを通じて、第2分離膜ユニット20の供給側空間を昇圧することができる。加圧装置40は、例えば、第2部分52

bを通過した第1透過ガスを圧送し、当該第1透過ガスを第3部分52cに排出する。加圧装置40は、例えば、第2部分52bを通過したガスをガス分離システム100の外部に排出しないように構成されている。加圧装置40は、例えば、第2部分52b及び第3部分52cのみに接続されている。加圧装置40が複数のポンプの集合体である場合、透過ガス供給経路52の第2部分52bは、分岐し、複数のポンプの入口のそれぞれに接続されていてもよい。同様に、透過ガス供給経路52の第3部分52cは、分岐し、複数のポンプの出口のそれぞれに接続されていてもよい。

[0055] 透過ガス供給経路52の第3部分52cにおいて、加圧装置40と第2分離膜ユニット20との間には、熱交換器（図示せず）が配置されていてもよい。熱交換器は、例えば、加圧装置40によって圧送された第1透過ガスを冷却する。熱交換器は、例えば、不凍液などの冷却媒体と第1透過ガスとの間で熱交換を生じさせる気-液熱交換器であり、典型的には、フィンチューブ熱交換器である。

[0056] 第1分離膜ユニット10で処理される混合ガスが、水分（ H_2O ）を含有している場合、透過ガス供給経路52の第3部分52cには、ドレイン流路（図示せず）が接続されていてもよい。混合ガスが水分を含有している場合、第1透過ガスは水分を含んだまま加圧装置40に供給され、加圧装置40による圧縮によって凝縮される。ドレイン流路は、凝縮された水分を外部へ排出する。

[0057] 本実施形態のガス分離システム100は、混合ガス供給経路51をさらに備えている。混合ガス供給経路51は、第1分離膜ユニット10の入口13aに接続されており、混合ガスを貯蔵している容器（図示せず）などから第1分離膜ユニット10に混合ガスを供給するための経路である。混合ガス供給経路51は、混合ガスの発生源に直接接続されていてもよく、当該発生源から第1分離膜ユニット10に混合ガスを連続的に供給する構成であってもよい。

[0058] ガス分離システム100は、第1排出経路53をさらに備えている。第1

排出経路53は、第1分離膜ユニット10の出口13bに接続されており、第1分離膜ユニット10から第1非透過ガスを排出するための経路である。第1排出経路53には、第1排出経路53から第1非透過ガスを排出するための開口（図示せず）が形成されている。図1に示すように、ガス分離システム100は、第1非透過ガスを回収する回収部61をさらに備えていてもよい。第1排出経路53が回収部61に接続されていてもよい。回収部61は、例えば、第1非透過ガスを貯蔵する容器である。

[0059] 本実施形態のガス分離システム100は、第2排出経路54及び回収部62をさらに備えている。第2排出経路54は、第2分離膜ユニット20の出口24a及び回収部62の入口に接続されており、第2分離膜ユニット20から回収部62に第2透過ガスを送るための経路である。回収部62は、第2分離膜ユニット20から送られた第2透過ガスを回収することができる。回収部62は、例えば、第2透過ガスを貯蔵する容器である。

[0060] 本実施形態のガス分離システム100は、第3排出経路55をさらに備えている。第3排出経路55は、第2分離膜ユニット20の出口23bに接続されており、第2分離膜ユニット20から第2非透過ガスを排出するための経路である。図1に示すように、第3排出経路55は、合流位置51aにおいて混合ガス供給経路51に合流していてもよい。第3排出経路55が混合ガス供給経路51に合流していることによって、例えば、第2分離膜ユニット20で分離しきれなかった第2ガスを含む第2非透過ガスを再利用することができる。

[0061] 第3排出経路55は、混合ガス供給経路51に合流していなくてもよい。排出経路55は、第2非透過ガスを回収する回収部（図示せず）に直接接続されていてもよい。

[0062] ガス分離システム100の経路のそれぞれは、特に言及がない限り、例えば、金属製又は樹脂製の配管で構成されている。

[0063] ガス分離システム100は、ガス分離システム100の各部材を制御する制御器（図示せず）をさらに備えていてもよい。制御器は、例えば、A/D

変換回路、入出力回路、演算回路、記憶装置などを含むDSP (Digital Signal Processor) である。制御器には、ガス分離システム100を適切に運転するためのプログラムが格納されている。詳細には、制御器は、例えば、減圧装置30及び加圧装置40のそれぞれの動作を制御することができる。制御器は、ガスセンサから情報を受け取り、当該情報に基づいて、減圧装置30及び加圧装置40のそれぞれの運転条件を決定してもよい。

[0064] 一例として、制御器は、混合ガス供給経路51から第1分離膜ユニット10に混合ガスが供給された場合に、第1分離膜ユニット10の透過側空間が減圧されるように減圧装置30を制御する。詳細には、制御器は、第1分離膜ユニット10に混合ガスが供給されている間、第1分離膜ユニット10の透過側空間を減圧し続けるように減圧装置30を制御する。同様に、制御器は、透過ガス供給経路52から第2分離膜ユニット20に第1透過ガスが供給された場合に、第2分離膜ユニット20の供給側空間が昇圧されるように加圧装置40を制御する。詳細には、制御器は、第2分離膜ユニット20に第1透過ガスが供給されている間、第2分離膜ユニット20の供給側空間を昇圧し続けるように加圧装置40を制御する。なお、ガス分離システム100は、制御器を備えていなくてもよい。ガス分離システム100において、作業員が、減圧装置30及び加圧装置40のそれぞれのオンオフを切り替えることによって、減圧装置30及び加圧装置40のそれぞれの動作を制御してもよい。

[0065] 本実施形態のガス分離システム100は、例えば、連続式システムである。本明細書において、連続式システムとは、開閉弁などによって、ガス分離システム100を構成する経路を閉じることなく、混合ガスを連続的に処理することが可能なシステムを意味する。言い換えると、ガス分離システム100は、混合ガスを第1分離膜ユニット10で処理するとともに、第1分離膜ユニット10で得られた第1透過ガスについて、回収部などに捕集せずに、直ちに第2分離膜ユニット20で処理することが可能である。このように、本実施形態のガス分離システム100は、連続運転が可能である。連続式

システムとして機能するガス分離システム 100 は、混合ガスが連続的に供給される用途、特に工場又は発電所からの排出ガスの処理、に適している。

[0066] ガス分離システム 100 では、例えば、(1) 減圧装置 30 によって第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間を減圧しながら、混合ガスを第 1 透過ガスと第 1 非透過ガスとに分離する、及び、(11) 加圧装置 40 によって第 2 分離膜ユニット 20 の供給側空間を昇圧しながら、第 1 透過ガスを第 2 透過ガスと第 2 非透過ガスとに分離する、の少なくとも 1 つが成立する。ガス分離システム 100 では、上記の要件 (1) 及び (11) の両方が成立することが好ましい。

[0067] [第 1 分離膜ユニット]

図 2 は、第 1 分離膜ユニット 10 の一例を示す概略断面図である。図 2 に示すように、第 1 分離膜ユニット 10 は、第 1 分離膜 11 及び容器 12 を備える。容器 12 は、第 1 室 13 及び第 2 室 14 を有する。第 1 室 13 内の空間が供給側空間に相当し、第 2 室 14 内の空間が透過側空間に相当する。第 1 分離膜 11 は、容器 12 の内部に配置されている。容器 12 の内部において、第 1 分離膜 11 は、第 1 室 13 と第 2 室 14 とを隔てている。第 1 分離膜 11 は、容器 12 の 1 対の壁面の一方から他方まで延びている。

[0068] 第 1 室 13 は、入口 13a 及び出口 13b を有する。第 2 室 14 は、出口 14a を有する。第 1 室 13 の入口 13a は、混合ガス S1 を第 1 分離膜ユニット 10 に供給するための開口である。第 2 室 14 の出口 14a は、混合ガス S1 が第 1 分離膜 11 を透過することによって得られた第 1 透過ガス S2 を第 1 分離膜ユニット 10 から排出するための開口である。第 1 室 13 の出口 13b は、第 1 分離膜 11 を透過しなかった混合ガス S1 (第 1 非透過ガス S3) を第 1 分離膜ユニット 10 から排出するための開口である。入口 13a、出口 13b 及び出口 14a のそれぞれは、例えば、容器 12 の壁面に形成されている。

[0069] (第 1 分離膜)

本実施形態のガス分離システム 100 において、第 1 分離膜 11 の膜面積

M_1 は、第2分離膜21の膜面積 M_2 よりも大きい。第2分離膜21の膜面積 M_2 に対する第1分離膜11の膜面積 M_1 の比 M_1/M_2 は、例えば1.0以上であってもよく、1.5以上であってもよく、さらに2.0以上であってもよい。比 M_1/M_2 の上限は、例えば150以下であってもよく、100以下であってもよく、50以下であってもよく、20以下であってもよく、さらに15以下であってもよい。

[0070] 上述のとおり、第1分離膜11は、混合ガスS1に含まれる第2ガスを優先的に透過させることができる。以下では、第2ガスが二酸化炭素である場合の第1分離膜11、すなわち二酸化炭素を優先的に透過させる第1分離膜11、について説明する。本明細書では、二酸化炭素を優先的に透過させる分離膜を「二酸化炭素透過膜」と呼ぶことがある。

[0071] 図3は、第1分離膜11の一例を模式的に示す断面図である。図3に示すように、二酸化炭素透過膜としての第1分離膜11は、例えば、分離機能層1を備えている。第1分離膜11は、分離機能層1を支持する多孔性支持体3、及び、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。

[0072] (分離機能層)

分離機能層1は、混合ガスS1に含まれる二酸化炭素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。

[0073] 別の好ましい形態では、分離機能層1は、イオン液体を含む。イオン液体は、25℃で液体の塩（イオン性化合物）である。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。なお、第2網目構造は、主として、第1網目構造とは異なる有機材料により構成されていてもよい。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。

[0074] 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。

[0075] 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。

[0076] 本実施形態において、具体的なイオン性液体としては、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性液体等が挙げられる。

[0077] 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性液体において、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）。

[0078] 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。

[0079] 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。

[0080] 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。

[0081] 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。

[0082] 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。

[0083] 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性液体としては、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ルホネート、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ウダイド、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-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ドライド、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ドライド、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-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラシアノボレート、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。

[0084] 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-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラシアノボレート（[EMI] [TCB]）、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 ($[C_4m i m] [TF_2N]$)、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 ($[C_2OH i m] [TF_2N]$) が特に好ましい。

[0085] 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. K amio 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。

[0086] 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50 wt %以上であり、好ましくは60 wt %以上であり、より好ましくは70 wt %以上であり、さらに好ましくは80 wt %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、混合ガス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95 wt %である。

[0087] 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1 wt %以上であり、好ましくは5 wt %以上であり、より好ましくは10 wt %以上である。第1網目構造の含有率の上限値は、例えば15 wt %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1 wt %以上である。第2網目構造の含有率の上限値は、例えば5 wt %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2 wt %以上であり、好ましくは5 wt %以上であり、より好ましくは10 wt %以上である。この比率は、好ましくは20 wt %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。

[0088] 分離機能層1の厚さは、例えば50 μm 以下であり、好ましくは25 μm 以下であり、より好ましくは15 μm 以下である。分離機能層1の厚さは、場合によっては、10 μm 以下であってもよく、5.0 μm 以下であっても

よく、 $2.0\text{ }\mu\text{m}$ 以下であってもよい。分離機能層1の厚さは、 $0.05\text{ }\mu\text{m}$ 以上であってもよく、 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上であってもよい。

[0089] (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が挙げられる。マトリクスは、シリコーン樹脂を含むことが好ましい。

[0090] 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。

[0091] 中間層2の厚さは、特に限定されず、例えば $50\text{ }\mu\text{m}$ 未満であり、好ましくは $40\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、より好ましくは $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。中間層2の厚さの下限值は、特に限定されず、例えば $0.1\text{ }\mu\text{m}$ である。中間層2は、例えば、 $50\text{ }\mu\text{m}$ 未満の厚さを有する層である。

[0092] (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。

[0093] 多孔性支持体 3 は、例えば $0.01 \sim 0.4 \mu\text{m}$ 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 $10 \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $20 \mu\text{m}$ 以上であり、より好ましくは $50 \mu\text{m}$ 以上である。多孔性支持体 3 の厚さは、例えば $300 \mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $200 \mu\text{m}$ 以下であり、より好ましくは $150 \mu\text{m}$ 以下である。

[0094] 第 1 分離膜 11 は、典型的には平膜である。ただし、第 1 分離膜 11 は、平膜以外の形状であってもよく、例えば、中空糸膜であってもよい。

[0095] （第 1 分離膜の製造方法）

第 1 分離膜 11 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、例えばワイヤーバーなどを利用できる。ワイヤーバーのワイヤー線径、塗布液における中間層 2 の材料の濃度を調節することによって、形成される中間層 2 の厚さを調節することができる。なお、多孔性支持体 3 を塗布液に浸漬させることによって塗布膜を形成してもよい。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°C 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。

[0096] 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。

[0097] 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。なお、分離機能層 1 の材料を含む塗布液の塗布は、スピコートによって行ってもよい。これにより、第 1 分離膜 1 1 が得られる。

[0098] 第 1 分離膜 1 1 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第 1 分離膜 1 1 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、第 1 分離膜 1 1 が得られる。

[0099] [第 2 分離膜ユニット]

図 4 は、第 2 分離膜ユニット 2 0 の一例を示す概略断面図である。図 4 に示すように、第 2 分離膜ユニット 2 0 は、第 2 分離膜 2 1 及び容器 2 2 を備える。容器 2 2 は、第 3 室 2 3 及び第 4 室 2 4 を有する。第 3 室 2 3 内の空間が供給側空間に相当し、第 4 室 2 4 内の空間が透過側空間に相当する。第 2 分離膜 2 1 は、容器 2 2 の内部に配置されている。容器 2 2 の内部において、第 2 分離膜 2 1 は、第 3 室 2 3 と第 4 室 2 4 とを隔てている。第 2 分離膜 2 1 は、容器 2 2 の 1 対の壁面の一方から他方まで延びている。

[0100] 第 3 室 2 3 は、入口 2 3 a 及び出口 2 3 b を有する。第 4 室 2 4 は、出口 2 4 a を有する。第 3 室 2 3 の入口 2 3 a は、第 1 透過ガス S 2 を第 2 分離膜ユニット 2 0 に供給するための開口である。第 4 室 2 4 の出口 2 4 a は、第 1 透過ガス S 2 が第 2 分離膜 2 1 を透過することによって得られた第 2 透過ガス S 4 を第 2 分離膜ユニット 2 0 から排出するための開口である。第 3 室 2 3 の出口 2 3 b は、第 2 分離膜 2 1 を透過しなかった第 1 透過ガス S 2 (第 2 非透過ガス S 5) を第 2 分離膜ユニット 2 0 から排出するための開口である。入口 2 3 a、出口 2 3 b 及び出口 2 4 a のそれぞれは、例えば、容器 2 2 の壁面に形成されている。

[0101] (第 2 分離膜)

上述のとおり、第2分離膜21は、第1透過ガスS2に含まれる第2ガスを優先的に透過させることができる二酸化炭素透過膜である。

[0102] 図5は、第2分離膜21の一例を模式的に示す断面図である。図5に示すように、二酸化炭素透過膜としての第2分離膜21は、例えば、分離機能層5を備えている。第2分離膜21は、分離機能層5を支持する多孔性支持体7、及び、分離機能層5と多孔性支持体7との間に配置されている中間層6をさらに備えていてもよい。中間層6は、例えば、分離機能層5及び多孔性支持体7のそれぞれに直接接している。第2分離膜21は、分離機能層5側の主面21aと、多孔性支持体7側の主面21bとを有している。

[0103] 分離機能層5は、第1分離膜11の分離機能層2と同様の構造及び作用効果を有するため説明を省略する。中間層6は、第1分離膜11の中間層2と同様の構造及び作用効果を有するため説明を省略する。多孔性支持体7は、第1分離膜11の多孔性支持体3と同様の構造及び作用効果を有するため説明を省略する。

[0104] 第2分離膜21は、膜面積を除き、第1分離膜11と同じであってもよく、異なってもよい。一例として、第1分離膜11及び第2分離膜21からなる群より選ばれる少なくとも1つは、分離機能層の材料として、ポリエーテルブロックアミド樹脂又はイオン液体を含んでいてもよく、第1分離膜11及び第2分離膜21の両方が、分離機能層の材料として、ポリエーテルブロックアミド樹脂又はイオン液体を含むことが好ましい。

[0105] 第2分離膜21は、典型的には平膜である。ただし、第2分離膜21は、平膜以外の形状であってもよく、例えば、中空糸膜であってもよい。

[0106] 第2分離膜21は、第1分離膜11の製造方法と同様の方法により作製することができる。

[0107] ガス分離システム100が備える第1分離膜ユニット10及び第2分離膜ユニット20は、流通式（連続式）の膜分離方法に適している。ただし、これらの分離膜ユニットは、バッチ式の膜分離方法に用いられてもよい。

[0108] [第1分離膜ユニットの変形例]

ガス分離システム１００において、第１分離膜ユニット１０は、図２に示す形態に限らず、例えば、スパイラル型の膜エレメント、中空糸膜エレメントなどであってもよい。図６は、第１分離膜ユニット１０の別の一例を模式的に示す斜視図である。図６は、スパイラル型の膜エレメントを示している。図６の第１分離膜ユニット１５は、中心管１６及び積層体１７を備えている。積層体１７が第１分離膜１１を含んでいる。

[0109] 中心管１６は、円筒形状を有している。中心管１６の表面には、中心管１６の内部に第１透過ガス８０を流入させるための複数の開口が形成されている。中心管１６の材料としては、例えば、アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン共重合樹脂（ＡＢＳ樹脂）、ポリフェニレンエーテル樹脂（ＰＰＥ樹脂）、ポリサルフォン樹脂（ＰＳＦ樹脂）などの樹脂；ステンレス鋼、チタンなどの金属が挙げられる。中心管１６の内径は、例えば２０～１００ｍｍの範囲にある。

[0110] 積層体１７は、第１分離膜１１の他に、供給側流路材１８及び透過側流路材１９をさらに含む。積層体１７は、中心管１６の周囲に巻回されている。第１分離膜ユニット１５は、外装材（図示せず）をさらに備えていてもよい。

[0111] 供給側流路材１８及び透過側流路材１９としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、ポリフェニレンサルファイド（ＰＰＳ）又はエチレン・クロロトリフルオロエチレン共重合体（ＥＣＴＦＥ）からなる樹脂製のネット、織物又は編物を用いることができる。

[0112] 第１分離膜ユニット１５を用いた膜分離は、例えば、次の方法によって行われる。まず、巻回された積層体１７の一端に混合ガスＳ１を供給する。これにより、積層体１７の第１分離膜１１を透過した第１透過ガスＳ２が中心管１６の内部に移動する。第１透過ガスＳ２は、中心管１６を通じて外部に排出される。第１分離膜ユニット１５で処理された混合ガスＳ１（第１非透過ガスＳ３）は、巻回された積層体１７の他端から外部に排出される。

[0113] ガス分離システム 100 において、第 2 分離膜ユニット 20 は、図 4 に示す形態に限らず、例えば、スパイラル型の膜エレメント、中空糸膜エレメントなどであってもよい。一例として、第 2 分離膜ユニット 20 は、第 1 分離膜ユニット 15 と同様の構成を有するスパイラル型の膜エレメントであってもよい。

[0114] [混合ガスの分離方法]

次に、本発明の一実施形態にかかる混合ガスの分離方法について説明する。

[0115] 混合ガスの分離方法は、第 1 分離膜 11 を収容した第 1 分離膜ユニット 10 に混合ガス S1 を供給し、第 1 分離膜ユニット 10 の透過側空間を減圧することによって、混合ガス S1 を第 1 透過ガス S2 と第 1 非透過ガス S3 とに分離する第 1 分離工程と、第 2 分離膜 21 を収容した第 2 分離膜ユニット 20 に第 1 透過ガス S2 を供給し、第 2 分離膜ユニット 20 の供給側空間を昇圧することによって、第 1 透過ガス S2 を第 2 透過ガス S4 と第 2 非透過ガス S5 とに分離する第 2 分離工程とを含む。本実施形態の混合ガスの分離方法において、上記試験により求めた、第 1 分離膜 11 の第 1 ガスに対する第 2 ガスの分離係数 α_1 と、上記試験により求めた、第 2 分離膜 21 の第 1 ガスに対する第 2 ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。

[0116] 本実施形態の混合ガスの分離方法は、2つの分離工程（第 1 分離工程及び第 2 分離工程）を組み合わせた分離方法の前段の第 1 分離工程に減圧方式を採用し、後段の第 2 分離工程に加圧方式を採用し、かつ、第 1 分離膜 11 の分離係数 α_1 と、第 2 分離膜 21 の分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす。このような構成を有する混合ガスの分離方法によれば、回収動力の低減と膜面積の低減との両立が実現されうる。

[0117] (第 1 分離工程)

第 1 分離工程は、例えば、次のように実施される。まず、混合ガス供給経路 51 を通じて、混合ガス S1 を第 1 分離膜ユニット 10 の第 1 室 13（供給側空間）に供給する。混合ガス S1 は、例えば、昇圧されずに、測定環境

における大気圧（例えば101.33kPa）で第1室13に供給される。

[0118] 次に、第1分離膜ユニット10の第1室13に混合ガスS1を供給した状態で、第2室14内（透過側空間）を減圧する。詳細には、減圧装置30を用いて、出口14aを通じて、第2室14内を減圧する。透過側空間内の圧力は、例えば70kPa以下であり、好ましくは50kPa以下であり、より好ましくは30kPa以下であり、さらに好ましくは10kPa以下であり、特に好ましくは5kPa以下である。透過側空間内の圧力は、減圧装置30の運転に必要なエネルギー（動力）を考慮して、1kPa以上であってもよく、2kPa以上であってもよく、3kPa以上であってもよく、5kPa以上であってもよい。

[0119] 第2室14内を減圧することによって、供給側空間と透過側空間との間に差圧が生じる、又は、差圧が増加する。これにより、混合ガスS1が第1分離膜11によって分離され、第1透過ガスS2が第2室14に供給される。混合ガスS1の分離が行われている間、第2室14内は、減圧装置30によって減圧され続けてもよい。第1分離膜ユニット10の供給側空間と透過側空間との差圧は、ガス分離システム100が消費するエネルギーを低減する観点から、例えば500kPa以下、好ましくは400kPa以下、より好ましくは300kPa以下、さらに好ましくは200kPa以下、特に好ましくは100kPa以下に調整される。第1分離膜ユニット10の供給側空間と透過側空間との差圧の下限値は、特に限定されず、例えば10kPaである。

[0120] 第2室14に供給された第1透過ガスS2は、透過ガス供給経路52の第1部分52aを通過し、減圧装置30に吸引される。減圧装置30は、吸引した第1透過ガスS2を透過ガス供給経路52の第2部分52bに排出する。第1透過ガスS2が第2部分52bに供給されるため、第2部分52b内の圧力は、通常、測定環境における大気圧程度に維持される。第1透過ガスS2は、第2部分52bを通じて、加圧装置40に供給される。

[0121] 上述のとおり、第1分離膜ユニット10の第1分離膜11は、混合ガスS

1に含まれる第2ガスを優先的に透過させる。そのため、第1分離工程によって得られた第1透過ガスS2は、混合ガスS1に比べて第2ガスの含有率が高い。第1分離工程によって得られた第1透過ガスS2における第2ガス（例えば二酸化炭素）の含有率は、特に限定されず、例えば40vol%～70vol%である。混合ガスS1における第2ガスの含有率（vol%）に対する第1透過ガスS2における第2ガスの含有率（vol%）の比は、特に限定されず、例えば2～6である。

[0122] 一方、混合ガスS1における第1ガスの濃度は、第1室13の入口13aから出口13bに向かって徐々に上昇する。第1室13で処理された混合ガスS1（第1非透過ガスS3）における第1ガス（例えば窒素）の含有率は、例えば95vol%～99vol%である。第1非透過ガスS3は、出口13bを通じて、第1分離膜ユニット10の外部に排出される。第1非透過ガスS3は、例えば、第1排出経路53を通じて排出される。

[0123] （第2分離工程）

第2分離工程は、例えば、次のように実施される。まず、透過ガス供給経路52の第2部分52b及び第3部分52cを通じて、第1透過ガスS2を第2分離膜ユニット20の第3室23（供給側空間）に供給する。

[0124] 次に、第2分離膜ユニット20の第3室23に第1透過ガスS2を供給した状態で、第3室23内（供給側空間）を昇圧する。詳細には、第3部分52cに配置された加圧装置40を用いて、入口23aを通じて、第3室23内を昇圧する。供給側空間内の圧力は、例えば101kPa以上であり、好ましくは150kPa以上であり、より好ましくは200kPa以上であり、さらに好ましくは300kPa以上であり、特に好ましくは400kPa以上である。供給側空間内の圧力上限値は、1500kPaであってもよく、1300kPaであってもよく、1100kPaであってもよく、1000kPaであってもよく、900kPaであってもよい。

[0125] 第3室23内を昇圧することによって、供給側空間と透過側空間との間に差圧が生じる、又は、差圧が増加する。これにより、第1透過ガスS2が第

2分離膜21によって分離され、第2透過ガスS4が第4室24に供給される。第1透過ガスS2の分離が行われている間、第3室23内は、加圧装置40によって昇圧され続けてもよい。第2分離膜ユニット20の供給側空間と透過側空間との差圧は、ガス分離システム100が消費するエネルギーを低減する観点から、例えば1000kPa以下、好ましくは800kPa以下、より好ましくは600kPa以下、さらに好ましくは500kPa以下、特に好ましくは400kPa以下に調整される。第2分離膜ユニット20の供給側空間と透過側空間との差圧の下限值は、特に限定されず、例えば100kPaである。

[0126] 第4室24に供給された第2透過ガスS4は、第2排出経路54を通じて、例えば、回収部62に送られる。

[0127] 上述のとおり、第2分離膜ユニット20の第2分離膜21は、第1透過ガスS2に含まれる第2ガスを優先的に透過させる。そのため、第2分離工程によって得られた第2透過ガスS4は、第1透過ガスS2に比べて第2ガスの含有率が高い。第2分離工程によって得られた第2透過ガスS4における第2ガス（例えば二酸化炭素）の含有率は、特に限定されず、例えば95vol%である。第1透過ガスS2における第2ガスの含有率（vol%）に対する第2透過ガスS4における第2ガスの含有率（vol%）の比は、特に限定されず、例えば1.3～2.5である。

[0128] 一方、第1透過ガスS2における第1ガスの濃度は、第3室23の入口23aから出口23bに向かって徐々に上昇する。第3室23で処理された第1透過ガスS2（第2非透過ガスS5）における第1ガス（例えば窒素）の含有率は、特に限定されず、例えば70vol%～97vol%である。第2非透過ガスS5は、出口23bを通じて、第2分離膜ユニット20の外部に排出される。

[0129] 上述のとおり、混合ガスS1は、第1ガス及び第2ガスを含む。典型的には、混合ガスS1は、第1ガスとして窒素を含み、かつ第2ガスとして二酸化炭素を含む。混合ガスS1は、典型的には、工場又は発電所からの排出ガ

スである。ただし、本実施形態のガス分離システム 100 は、上記の組成以外の混合ガス S1 の分離に用いることもできる。例えば、第 1 ガス及び第 2 ガスは、窒素、メタン、酸素、水素などの非極性ガス、ヘリウムなどの不活性ガス、及び、二酸化炭素以外の酸性ガスから選ばれる 1 種のガスであってもよい。二酸化炭素以外の酸性ガスとしては、例えば、硫化水素、硫化カルボニル、硫黄酸化物 (SO_x)、シアン化水素、窒素酸化物 (NO_x) などが挙げられる。

[0130] 混合ガス S1 における第 2 ガスの含有率は 30 vol % 以下であってもよい。上述したように、加圧方式は、減圧方式に比べて、供給される混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が低ければ低いほど、必要な分離動力が増加する傾向がある一方で、必要な膜面積は減少する傾向がある。混合ガス S1 における第 2 ガスの含有率が 30 vol % 以下であることにより、ガス分離システム 100 全体で必要な膜面積を減少させることができる。

[0131] 混合ガス S1 における第 2 ガスの含有率は 30 vol % 未満であってもよい。混合ガス S1 における第 2 ガスの含有率は 25 vol % 以下であってもよく、20 vol % 以下であってもよく、15 vol % 以下であってもよく、さらに 10 vol % 以下であってもよい。

[0132] 本実施形態の混合ガスの分離方法において、第 1 分離工程及び第 2 分離工程は、連続して行うことが好ましい。すなわち、第 1 分離工程で分離された第 1 透過ガス S2 は、タンクなどに捕集されずに、ただちに第 2 分離工程に供されることが好ましい。第 1 分離工程及び第 2 分離工程を連続して行うことによって、単位時間当たりの混合ガス S1 の処理量を容易に増加させることができる。

[0133] 本実施形態の混合ガスの分離方法は、第 1 分離工程によって得られた第 1 非透過ガス S3 を回収する回収工程と、第 2 分離工程によって得られた第 2 透過ガス S4 とを回収する回収工程をさらに含んでもよい。

[0134] (混合工程)

本実施形態の分離方法は、例えば、第 2 非透過ガス S5 と混合ガス S1 と

を混合する混合工程をさらに含む。混合工程は、第3排出経路55を通じて、第2非透過ガスS5を混合ガス供給経路51の合流位置51aに送ることによって実施することができる。混合工程によれば、第2非透過ガスS5を再利用することができ、第1ガス及び第2ガスの回収率を向上できる傾向がある。

[0135] 本実施形態の混合ガスの分離方法によれば、例えば、第2ガスが濃縮された第2透過ガスS4と、第1ガスが濃縮された第1非透過ガスS3とを回収することができる。この分離方法による第2ガス（例えば二酸化炭素）の回収率は、特に限定されず、例えば80wt%以上であり、好ましくは90wt%以上である。第1ガスの回収率は、特に限定されず、例えば90wt%以上であり、好ましくは95wt%以上である。なお、二酸化炭素が濃縮された第2透過ガスS4は、例えば、ドライアイスなどの製造に利用することができる。窒素が濃縮された第1非透過ガスS3は、例えば、工業用途で利用可能である。

[0136] 本実施形態のガス分離システム100及びガス分離システム100を用いた混合ガスの分離方法によれば、回収動力の低減と膜面積の低減との両立が実現しうる。このように、本実施形態のガス分離システム100及びガス分離システム100を用いた混合ガスの分離方法は、回収動力の低減と膜面積の低減との両立に適している。

[0137] <ガス分離システムの変形例>

図7は、上記で説明したガス分離システム100の変形例を示す概略構成図である。変形例のガス分離システム110は、減圧装置30及び加圧装置40が単一の容器に収容された減圧ユニット31を備える。以上を除き、変形例のガス分離システム110の構成はガス分離システム100の構成と同じである。したがって、ガス分離システム100と変形例のガス分離システム110とで共通する要素には同じ参照符号を付し、それらの説明を省略する。

[0138] 図7に示すように、減圧ユニット31は、例えば、減圧装置30、加圧装

置 4 0、及び第 2 部分 5 2 b を含む。

[0139] 減圧ユニット 3 1 は、例えば、減圧装置 3 0 としての真空ポンプに加圧装置 4 0 としてのブースターポンプを組み合わせた構成を有していてもよい。

実施例

[0140] 以下に、実施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。

[0141] (計算例 1 ～ 4)

計算例 1 ～ 4 として、図 1 に示すガス分離システム 1 0 0 を運転したときのシミュレーションを行った。詳細には、ガス分離システム 1 0 0 において、第 1 分離膜ユニット 1 0 が備える第 1 分離膜 1 1 及び第 2 分離膜ユニット 2 0 が備える第 2 分離膜 2 1 として、上記の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。第 1 分離膜 1 1 を透過する第 2 ガスの透過速度 T_1 (GPU)、第 1 分離膜 1 1 の分離係数 α_1 、第 2 分離膜 2 1 を透過する第 2 ガスの透過速度 T_2 、(GPU) 及び第 2 分離膜 2 1 の分離係数 α_2 を表 1 に示すように設定した。さらに、混合ガスの供給条件を以下のように設定した。

[混合ガスの供給条件]

組成 (体積比) : $N_2 / CO_2 = 90 / 10$

CO_2 重量 : $1000 \text{ kg} / \text{hr}$

圧力 : 101.33 kPa

温度 : 25°C

[0142] また、計算例 1 ～ 4 のガス分離システム 1 0 0 の運転では、第 1 分離膜ユニット 1 0 の透過側空間を減圧装置 3 0 により 3 kPa まで減圧すること、及び第 2 分離膜ユニット 2 0 の供給側空間を加圧装置 4 0 により 900 kPa まで昇圧することを想定した。減圧装置 3 0 の運転効率は 40%、加圧装置 4 0 の運転効率は 70% に設定した。

[0143] 計算例 1 ～ 4 について、下記の仮定条件が成立する場合に、二酸化炭素の回収動力 ($MWh / t - CO_2$)、必要な総膜面積 (m^2) を計算した。計算には、Schlumberger 社製のプロセスモデリングソフト Symmetry を用いた。なお

、二酸化炭素の回収動力とは、第2透過ガスS4に含まれる二酸化炭素の重量1 t当たりの、ガス分離システムの運転に必要なエネルギーである。

[仮定条件]

第2分離膜ユニット20から排出される第2透過ガスS4における二酸化炭素の含有率が95 vol %である。

ガス分離システム100による二酸化炭素の回収率が90 wt %である。

[0144] (計算例5～8)

計算例5～8として、図8に示すガス分離システム200を運転したときのシミュレーションを行った。ガス分離システム200は、第2分離膜ユニット220の透過側空間を第2減圧装置232で減圧することを除き、図1に示すガス分離システム100と同様の構成を有していた。すなわち、ガス分離システム200は、第2分離膜ユニット220の供給側空間を昇圧する加圧装置を備えていなかった。詳細には、ガス分離システム200において、第1分離膜ユニット210が備える第1分離膜211及び第2分離膜ユニット220が備える第2分離膜221として、計算例1と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。第1分離膜211を透過する第2ガスの透過速度 T_1 (GPU)、第1分離膜211の分離係数 α_1 、第2分離膜221を透過する第2ガスの透過速度 T_2 (GPU)、及び第2分離膜221の分離係数 α_2 を表1に示すように設定した。混合ガスの供給条件は計算例1と同様にした。

[0145] また、計算例5～8のガス分離システム200の運転では、第1分離膜ユニット210の透過側空間を第1減圧装置231により3 kPaまで減圧すること、及び第2分離膜ユニット220の透過側空間を第2減圧装置232により3 kPaまで減圧することを想定した。第1減圧装置231及び第2減圧装置232の運転効率は40%に設定した。

[0146] 計算例5～8について、計算例1～4と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、二酸化炭素の回収動力 ($\text{MWh} / \text{t-CO}_2$) 及び必要な総膜面積 (m^2) を計算した。

[0147] (計算例 9 ～ 1 2)

計算例 9 ～ 1 2 として、図 9 に示すガス分離システム 3 0 0 を運転したときのシミュレーションを行った。ガス分離システム 3 0 0 は、第 1 分離膜ユニット 3 1 0 の供給側空間を第 1 加圧装置 3 4 1 で昇圧することを除き、図 1 に示すガス分離システム 1 0 0 と同様の構成を有していた。すなわち、ガス分離システム 3 0 0 は、第 1 分離膜ユニット 3 1 0 の透過側空間を減圧する減圧装置を備えていなかった。詳細には、ガス分離システム 3 0 0 において、第 1 分離膜ユニット 3 1 0 が備える第 1 分離膜 3 1 1 及び第 2 分離膜ユニット 3 2 0 が備える第 2 分離膜 3 2 1 として、計算例 1 と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。第 1 分離膜 3 1 1 を透過する第 2 ガスの透過速度 T_1 (GPU)、第 1 分離膜 3 1 1 の分離係数 α_1 、第 2 分離膜 3 2 1 を透過する第 2 ガスの透過速度 T_2 (GPU)、及び第 2 分離膜 3 2 1 の分離係数 α_2 を表 1 に示すように設定した。混合ガスの供給条件は計算例 1 と同様にした。

[0148] また、計算例 9 ～ 1 2 のガス分離システム 3 0 0 の運転では、第 1 分離膜ユニット 3 1 0 の供給側空間を第 1 加圧装置 3 4 1 により 9 0 0 kPa まで昇圧すること、及び第 2 分離膜ユニット 3 2 0 の供給側空間を第 2 加圧装置 3 4 2 により 9 0 0 kPa まで昇圧することを想定した。第 1 加圧装置 3 4 1 及び第 2 加圧装置 3 4 2 の運転効率は 7 0 % に設定した。

[0149] 計算例 9 ～ 1 2 について、計算例 1 ～ 4 と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、二酸化炭素の回収動力 (MWh / t - CO₂) 及び必要な総膜面積 (m²) を計算した。

[0150] 計算例 1 ～ 1 2 のシミュレーション結果を表 1 に示す。

[0151]

[表1]

分離システム	計算例	第1分離膜			第2分離膜			回収動力 [MWh/t-CO ₂]	第1分離膜面積 M ₁ [m ²]	第2分離膜面積 M ₂ [m ²]	総膜面積 [m ²]
		透過側空間の圧力 [kPa]	透過速度 T ₁ [GPU]	分離係数 α ₁	供給側空間の圧力 [kPa]	透過速度 T ₂ [GPU]	分離係数 α ₂				
100	1	3	800	30	900	800	30	0.90	9978	69	10047
	2	3	800	30	900	100	50	0.76	9136	770	9906
	3	3	100	50	900	800	30	0.62	81428	69	81496
	4	3	100	50	900	100	50	0.56	77758	772	78530
200	5	3	800	30	900	800	30	0.85	9526	556	10082
	6	3	800	30	900	100	50	0.75	8758	6270	15028
	7	3	100	50	900	800	30	0.66	79096	556	79652
	8	3	100	50	900	100	50	0.62	75776	6270	82046
300	9	3	800	30	900	800	30	1.81	3776	69	3845
	10	3	800	30	900	100	50	1.59	3462	770	4232
	11	3	100	50	900	800	30	1.57	38492	69	38561
	12	3	100	50	900	100	50	1.41	36118	773	36891

[0152] 表1に示すように、図1に示すガス分離システム100を想定した計算例

1～4のうち、計算例2は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていた。一方、計算例1及び3～4は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていなかった。また、計算例5～8では、図1に示すガス分離システム100ではなく、図8に示すガス分離システム200を想定した。計算例9～12では、図1に示すガス分離システム100ではなく図9に示すガス分離システム300を想定した。すなわち、計算例2は実施例に相当し、計算例1及び3～12は比較例に相当していた。表1に示すシミュレーション結果の比較から分かるように、計算例2では、回収動力の低減と膜面積の低減とを両立できた。

[0153] (計算例13～15)

次に、計算例13～15として、図1に示すガス分離システム100において、総膜面積を固定して運転したときのシミュレーションを行い、計算例1～4と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、透過速度 T_2 (GPU)、分離係数 α_2 、及び二酸化炭素の回収動力 (MWh / t - CO₂) がどのように変化するかを試験した。詳細には、ガス分離システム100において、第1分離膜11及び第2分離膜21として、計算例1～4と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。透過速度 T_1 (GPU) 及び分離係数 α_1 を表2に示すように設定した。混合ガスの供給条件は計算例1～4と同様にした。

[0154] (計算例16～19)

計算例16～19として、図1に示すガス分離システム100において、透過速度 $T_1 > \text{透過速度 } T_2$ の要件を満たすように運転したときのシミュレーションを行い、計算例1～4と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、回収動力 (MWh / t - CO₂) 及び総膜面積 (m²) がどのように変化するかを試験した。詳細には、ガス分離システム100において、第1分離膜11及び第2分離膜21として、計算例1～4と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。透過速度 T_1 (GPU)、分離係数 α_1 、透過速度 T_2 (GPU)、及び分離係数 α_2 を表2に示すように設定した。混合ガスの供給条件は計算例1～4と同様にした。

[0155] また、計算例16～19のガス分離システム100の運転では、第1分離

膜ユニット10の透過側空間を減圧装置30により3kPaまで減圧すること、及び第2分離膜ユニット20の供給側空間を加圧装置40により900kPaまで昇圧することを想定した。減圧装置30の運転効率は40%、加圧装置40の運転効率は70%に設定した。

[0156] 計算例13～19のシミュレーション結果を表2に示す。

[0157]

[表2]

分離システム	計算例	第1分離膜		第2分離膜		回収動力 [MWh/t-CO ₂]	第1分離膜 膜面積M ₁ [m ²]	第2分離膜 膜面積M ₂ [m ²]	総膜面積 [m ²]
		透過速度T ₁ [GPU]	分離係数 α_1	透過速度T ₂ [GPU]	分離係数 α_2				
100	13	800	30	800	30	0.90	9978	69	10047
	14	800	30	110	40	0.81	9449	598	10047
	15	800	30	86	50	0.76	9152	895	10047
	16	800	30	100	20	1.10	10959	435	11394
	17	800	30	100	30	0.90	9977	548	10525
	18	800	30	100	40	0.81	9449	659	10108
	19	800	30	100	50	0.76	9136	770	9906

[0158] 表2に示すように、計算例13～15のうち、計算例14～15は $\alpha_1 < \alpha_2$

を満たしていた。一方、計算例 13 は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていなかった。すなわち、計算例 14 ~ 15 は実施例に相当し、計算例 13 は比較例に相当していた。表 2 に示すシミュレーション結果の比較から分かるように、計算例 14 ~ 15 では、回収動力が $0.81 \text{ MWh} / \text{t} - \text{CO}_2$ 以下であり、計算例 13 に比べて回収動力を低減できた。具体的には、図 1 に示すガス分離システム 100 において総膜面積を固定して運転した場合、第 1 分離膜に対して第 2 分離膜の選択性を上げることで、すなわち、第 2 分離膜 21 の分離係数 α_2 を増加させることで、第 2 分離膜 21 の透過速度 T_2 を減少させることができ、これにより回収動力を低減できた。

[0159] 表 2 に示すように、計算例 16 ~ 19 のうち、計算例 18 ~ 19 は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていた。一方、計算例 16 ~ 17 は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていなかった。すなわち、計算例 18 ~ 19 は実施例に相当し、計算例 16 ~ 17 比較例に相当していた。表 2 に示すシミュレーション結果の比較から分かるように、計算例 18 ~ 19 では、回収動力が $0.81 \text{ MWh} / \text{t} - \text{CO}_2$ 以下、かつ、総膜面積が 10108 m^2 以下であり、計算例 16 ~ 17 に比べて回収動力及び総膜面積のいずれもが低減できた。具体的には、図 1 に示すガス分離システム 100 において透過速度 $T_1 > \text{透過速度 } T_2$ の要件を満たすように運転した場合、第 1 分離膜に対して第 2 分離膜の選択性を上げることで、すなわち、第 2 分離膜 21 の分離係数 α_2 を増加させることで、回収動力及び総膜面積をともに減少させることができた。

[0160] (計算例 20 ~ 21)

次に、計算例 20 ~ 21 として、図 1 に示すガス分離システム 100 において、混合ガスの供給条件のうち混合ガスの組成を変更して運転したときのシミュレーションを行い、計算例 1 ~ 4 と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、回収動力 ($\text{MWh} / \text{t} - \text{CO}_2$) 及び総膜面積 (m^2) がどのように変化するかを試験した。詳細には、ガス分離システム 100 において、第 1 分離膜 11 及び第 2 分離膜 21 として、計算例 1 ~ 4 と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。混合ガスにおける二酸化炭素の含有率 (vol)

%)、透過速度 T_1 (GPU)、分離係数 α_1 、透過速度 T_2 (GPU)、及び分離係数 α_2 を表3に示すように設定した。混合ガスの組成以外の混合ガスの供給条件は計算例1～4と同様にした。

[0161] また、計算例20～21のガス分離システム100の運転では、第1分離膜ユニット10の透過側空間を減圧装置30により3kPaまで減圧すること、及び第2分離膜ユニット20の供給側空間を加圧装置40により900kPaまで昇圧することを想定した。減圧装置30の運転効率は40%、加圧装置40の運転効率は70%に設定した。

[0162] (計算例22～23)

計算例22～23として、図9に示すガス分離システム300において、混合ガスの供給条件のうち混合ガスの組成を変更して運転したときのシミュレーションを行い、計算例1～4と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、回収動力(MWh/t-CO₂)及び総膜面積(m²)がどのように変化するかを試験した。詳細には、ガス分離システム300において、第1分離膜311及び第2分離膜321として、計算例1～4と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。混合ガスにおける二酸化炭素の含有率(vol%)、透過速度 T_1 (GPU)、分離係数 α_1 、透過速度 T_2 (GPU)、及び分離係数 α_2 を表3に示すように設定した。混合ガスの組成以外の混合ガスの供給条件は計算例1～4と同様にした。

[0163] また、計算例22～23のガス分離システム300の運転では、第1分離膜ユニット310の供給側空間を第1加圧装置341により900kPaまで昇圧すること、及び第2分離膜ユニット320の供給側空間を第2加圧装置342により900kPaまで昇圧することを想定した。第1加圧装置341及び第2加圧装置342の運転効率は70%に設定した。

[0164] 計算例20～23のシミュレーション結果を表3に示す。

[0165]

[表3]

分離システム	計算例	混合ガスのCO ₂ 含有率 [vol%]	第1分離膜		第2分離膜		回収動力 [MWh/t-CO ₂]	第1分離膜 膜面積M ₁ [m ²]	第2分離膜 膜面積M ₂ [m ²]	総膜面積 [m ²]
			透過速度T ₁ [GPU]	分離係数 α_1	透過速度T ₂ [GPU]	分離係数 α_2				
100	20	10	800	30	100	50	0.76	9136	770	9906
	21	20	800	30	100	50	0.42	3387	770	4157
300	22	10	800	30	100	50	1.59	3462	770	4232
	23	20	800	30	100	50	0.62	1004	773	1777

[0166] 表3に示すように、計算例20～21及び計算例22～23は、いずれも

$\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていた。ただし、計算例22～23では、図1に示すガス分離システム100ではなく、図9に示すガス分離システム300を想定した。すなわち、計算例20～21は実施例に相当し、計算例22～23は比較例に相当していた。計算例20のシミュレーション結果と計算例22シミュレーション結果との比較から分かるように、計算例20では、回収動力が0.76 MWh / t-CO₂、かつ、総膜面積が9906 m²以下であり、回収動力の低減と膜面積の低減との両立の面で、計算例22よりも優位性を有していた。この結果から、少なくとも混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が10 vol %以下である場合、図1に示すガス分離システム100を $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たすように運転させることにより、回収動力の低減と膜面積の低減との優れた両立効果が得られることが分かる。また、計算例21のシミュレーション結果と計算例23シミュレーション結果との比較から分かるように、計算例21の回収動力は、計算例23の回収動力の約1/2であり、計算例21の総膜面積は、計算例23の総膜面積の約2倍であった。ただし、一般的にシステムの動力コストに対して膜の交換コストは低いため、トータルのシステム運転コストの面で、計算例21は計算例23よりも優位性を有していたといえる。この結果から、少なくとも混合ガスにおける二酸化炭素の含有率が20 vol %以下である場合、図1に示すガス分離システム100を $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たすように運転させることにより、トータルのシステム運転コストの面で優れた効果が得られることが分かる。

[0167] (計算例24～26)

次に、計算例24～26として、図1に示すガス分離システム100において、第1分離膜ユニット10の透過側空間の圧力及び第2分離膜ユニット20の供給側空間の圧力を変化させたときのシミュレーションを行い、計算例1～4と同様の上記の仮定条件が成立する場合に、二酸化炭素の回収動力 (MWh / t-CO₂) 及び必要な総膜面積 (m²) を計算した。詳細には、ガス分離システム100において、第1分離膜11及び第2分離膜21として、計算例1～4と同様の二酸化炭素分離膜を用いることを想定した。透過速

度 T_1 (GPU)、分離係数 α_1 、透過速度 T_2 (GPU)、及び分離係数 α_2 を表 4 に示すように設定した。混合ガスの供給条件は計算例 1 ～ 4 と同様にした。

[0168] 計算例 2 のシミュレーション結果とともに、計算例 24 ～ 26 のシミュレーション結果を表 4 に示す。

[0169]

[表4]

分離システム	計算例	第1分離膜			第2分離膜			回収動力 [MWh/t-CO ₂]	第1分離膜面積 M ₁ [m ²]	第2分離膜面積 M ₂ [m ²]	総膜面積 [m ²]
		透過側空間の圧力 [kPa]	透過速度 T ₁ [GPU]	分離係数 α_1	供給側空間の圧力 [kPa]	透過速度 T ₂ [GPU]	分離係数 α_2				
100	2	3	800	30	900	100	50	0.76	9136	770	9906
	24	3	800	30	1100	100	50	0.77	9056	617	9673
	25	3	800	30	1300	100	50	0.77	8987	514	9501
	26	3	800	30	1500	100	50	0.78	8934	441	9375
	27	1	800	30	700	100	50	0.84	6631	1030	7661
	28	1	800	30	900	100	50	0.84	6524	771	7295
	29	1	800	30	1100	100	50	0.84	6456	618	7074
	30	1	800	30	1300	100	50	0.85	6420	514	6934
	31	1	800	30	1500	100	50	0.85	6392	441	6833
	32	2	800	30	700	100	50	0.77	7877	1030	8907
	33	2	800	30	900	100	50	0.77	7739	771	8510
	34	2	800	30	1100	100	50	0.77	7659	618	8276
	35	2	800	30	1300	100	50	0.78	7598	514	8112
	36	2	800	30	1500	100	50	0.78	7577	440	8017

[0170] 表4に示すように、計算例24～36は $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たしていた。表2に示

すシミュレーション結果の比較から分かるように、第1分離膜ユニット10の透過側空間の圧力及び第2分離膜ユニット20の供給側空間の圧力を変化させた場合であっても、回収動力の低減と膜面積の低減とを両立できた。具体的には、第1分離膜ユニット10の透過側空間の圧力を3 kPaに固定した場合、2 kPaに固定した場合、1 kPaに固定した場合のいずれにおいても、第2分離膜ユニット20の供給側空間の圧力を増加させると、回収動力の増加は抑制しつつ、総膜面積を低減することができた。

[0171] [水分飽和状態の混合ガスを用いたシミュレーション]

さらに、計算例1～11について、水分飽和状態の混合ガスを用いたシミュレーションを行い、二酸化炭素の回収動力 ($\text{MWh} / \text{t} - \text{CO}_2$) 及び必要な総膜面積 (m^2) を計算した。混合ガスの供給条件は以下のとおりに設定した。

[混合ガスの供給条件]

組成 (体積比) : $\text{N}_2 / \text{CO}_2 / \text{O}_2 / \text{H}_2\text{O} = 82 / 10 / 5 / 3$

CO_2 重量 : $1000 \text{ kg} / \text{hr}$

圧力 : 101.33 kPa

温度 : 25°C

[0172] 第1分離膜11及び第2分離膜21の H_2O の透過度は、 CO_2 の3倍に設定した。

[0173] 水分飽和状態の混合ガスを用いた場合の計算例1～11のシミュレーション結果を表5に示す。表5には、表1のシミュレーション結果 ($\text{N}_2 / \text{CO}_2 = 90 / 10$) を並べて示している。

[0174]

[表5]

分離システム	混合ガスの組成 (体積比)	N ₂ /CO ₂ =90/10		N ₂ /CO ₂ /O ₂ /H ₂ O=82/10/5/3	
	計算例	回収動力 [MWh/t-CO ₂]	総膜面積 [m ²]	回収動力 [MWh/t-CO ₂]	総膜面積 [m ²]
100	1	0.90	10047	1.08	10137
	2	0.76	9906	0.87	9595
	3	0.62	81496	0.73	78003
	4	0.56	78530	0.64	73309
200	5	0.85	10082	1.37	12306
	6	0.75	15028	1.02	13684
	7	0.66	79652	0.93	90948
	8	0.62	82046	0.74	83330
300	9	1.81	3845	1.99	3808
	10	1.59	4232	1.71	4059
	11	1.57	38561	1.69	37606

[0175] 表5に示すシミュレーション結果の比較から分かるように、水分飽和状態の混合ガスを用いた場合であっても、実施例に相当する計算例2では、回収動力の低減と総膜面積の低減とを両立できた。なお、図1に示すガス分離システム100を想定した計算例1～4では、水分飽和状態の混合ガスを用いた場合、回収動力の増加は抑制しつつ、総膜面積を低減することができた。図9に示すガス分離システム300を想定した計算例9～11では、水分飽和状態の混合ガスを用いた場合であっても、回収動力及び総膜面積に大きな違いは見られなかった。これは、ガス分離システム300では、第1加圧装置341による圧縮によって混合ガスに含まれる水分が凝縮されて排出されるとともに、第2加圧装置342による圧縮によって第1透過ガスに含まれる水分が凝縮されて排出されたことが原因と考えられる。一方、図8に示すガス分離システム200を想定した計算例5～8では、水分飽和な混合ガスを用いた場合、回収動力及び総膜面積がともに上昇する傾向を示した。これは、ガス分離システム200では、混合ガスが水分を含んだまま第1減圧装置231に供給されるとともに、第1透過ガスが水分を含んだまま第2減圧装置232に供給されたことが原因と考えられる。

[0176] 上記実施例では、混合ガスが、第1ガスとして窒素を含み、かつ第2ガスとして二酸化炭素を含む場合の例をシミュレーションした。しかし、混合ガスは、上記実施例で使用了なものに限られない。

産業上の利用可能性

[0177] 本実施形態のガス分離システムは、混合ガス、例えば二酸化炭素及び窒素を含む混合ガス、を分離することに適している。特に、本実施形態のガス分離システムは、工場又は発電所などの燃焼装置から排出される排出ガスから二酸化炭素を効率的に回収することに適している。

請求の範囲

- [請求項1] 混合ガスを第1透過ガスと第1非透過ガスとに分離する第1分離膜を収容した第1分離膜ユニットと、
- 前記第1透過ガスを第2透過ガスと第2非透過ガスとに分離する第2分離膜を収容した第2分離膜ユニットと、
- 前記第1分離膜ユニットの透過側空間を減圧する減圧装置と、
- 前記第2分離膜ユニットの供給側空間を昇圧する加圧装置と、
- を備え、
- 前記混合ガスは、第1ガス及び前記第1ガスとは異なる第2ガスを含み、
- 前記第1分離膜及び前記第2分離膜は、前記第2ガスを優先的に透過させることができ、
- 下記試験により求めた、前記第1分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第2分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす、ガス分離システム。
- 試験：前記第1分離膜又は前記第2分離膜から試験片を作製する。前記試験片の一方の面に隣接する空間に、前記第1ガス及び前記第2ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第2ガスの含有率は、標準状態で50vol%であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が30℃であり、圧力が0.1MPaであり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して0.1MPa小さくなるように減圧されている。
- [請求項2] 前記混合ガスにおける前記第2ガスの含有率が30vol%以下である、請求項1に記載のガス分離システム。

- [請求項3] 前記混合ガスは、前記第1ガスとして窒素を含み、かつ前記第2ガスとして二酸化炭素を含む、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項4] 前記第1分離膜の膜面積は、前記第2分離膜の膜面積よりも大きい、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項5] $10 \leq \alpha_2 - \alpha_1 \leq 30$ を満たす、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項6] $10 \leq \alpha_1 \leq 30$ を満たす、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項7] 連続式システムである、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項8] 前記第1分離膜ユニット及び前記第2分離膜ユニットに接続され、前記第2分離膜ユニットに前記第1透過ガスを供給するための透過ガス供給経路をさらに備え、
前記減圧装置及び前記加圧装置が前記透過ガス供給経路に配置されている、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項9] 前記第1分離膜ユニットに接続され、前記第1分離膜ユニットに前記混合ガスを供給するための混合ガス供給経路と、
前記第2分離膜ユニットに接続され、前記第2分離膜ユニットから前記第2非透過ガスを排出するための排出経路と、
をさらに備え、
前記排出経路は、合流位置において、前記混合ガス供給経路に合流している、請求項1に記載のガス分離システム。
- [請求項10] 第1分離膜を収容した第1分離膜ユニットに混合ガスを供給し、前記第1分離膜ユニットの透過側空間を減圧することによって、前記混合ガスを第1透過ガスと第1非透過ガスとに分離する第1分離工程と、
第2分離膜を収容した第2分離膜ユニットに前記第1透過ガスを供給し、前記第2分離膜ユニットの供給側空間を昇圧することによって、前記第1透過ガスを第2透過ガスと第2非透過ガスとに分離する第2分離工程と、

を含み、

前記混合ガスは、第1ガス及び前記第1ガスとは異なる第2ガスを含み、

前記第1分離膜及び前記第2分離膜は、前記第2ガスを優先的に透過させることができ、

下記試験により求めた、前記第1分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_1 と、下記試験により求めた、前記第2分離膜の前記第1ガスに対する前記第2ガスの分離係数 α_2 とが、 $\alpha_1 < \alpha_2$ を満たす、混合ガスの分離方法。

試験：前記第1分離膜又は前記第2分離膜から試験片を作製する。前記試験片の一方の面に隣接する空間に、前記第1ガス及び前記第2ガスからなる試験ガスを供給するとともに、前記試験片の他方の面に隣接する空間を減圧する操作を行う。前記操作の結果に基づいて、前記分離係数 α_1 又は前記分離係数 α_2 を特定する。ここで、前記操作において、前記試験ガスにおける前記第2ガスの含有率は、標準状態で50vol%であり、前記一方の面に隣接する空間に供給される前記試験ガスは、温度が30℃であり、圧力が0.1MPaであり、前記他方の面に隣接する空間は、当該空間内の圧力が測定環境における大気圧に対して0.1MPa小さくなるように減圧されている。

[請求項11] 前記混合ガスにおける前記第2ガスの含有率が30vol%以下である、請求項10に記載の混合ガスの分離方法。

[請求項12] 前記混合ガスは、前記第1ガスとして窒素を含み、かつ前記第2ガスとして二酸化炭素を含む、請求項10に記載の混合ガスの分離方法。

[図1]

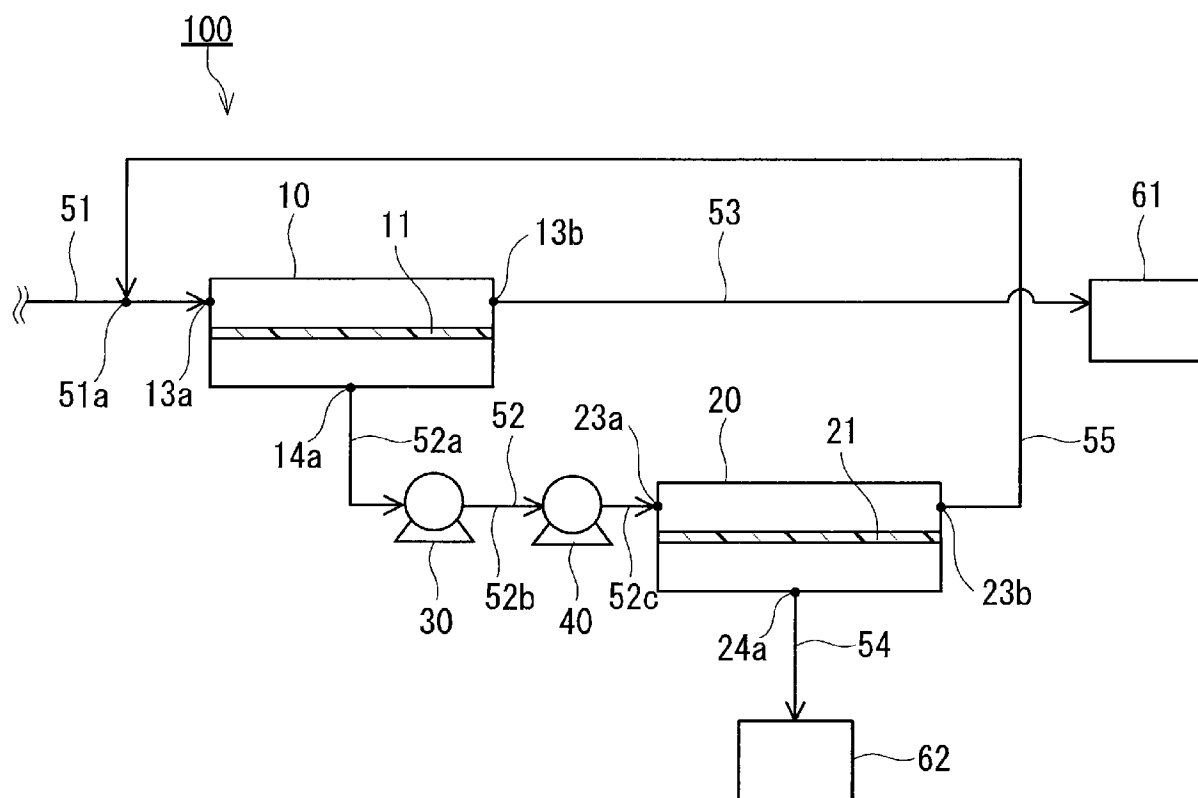


FIG. 1

[図2]

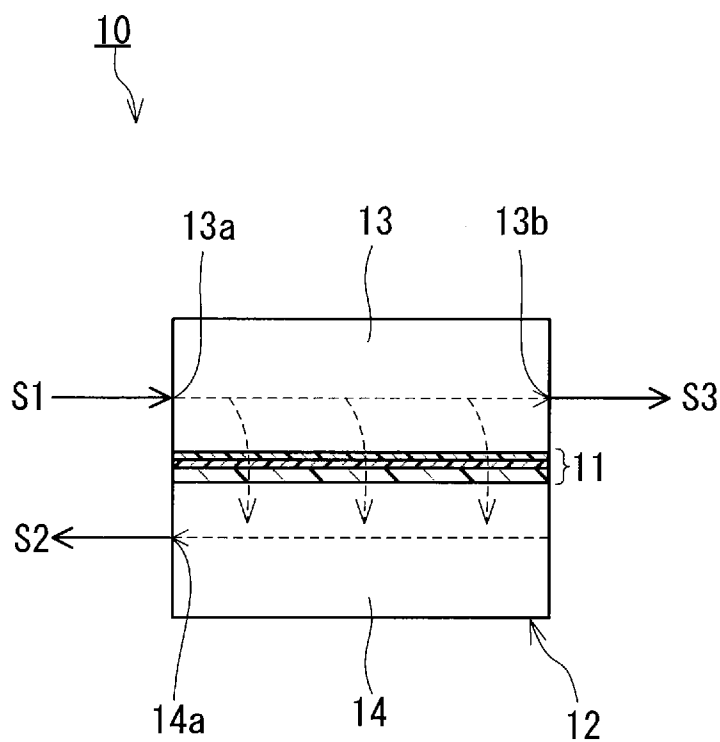


FIG. 2

[図3]

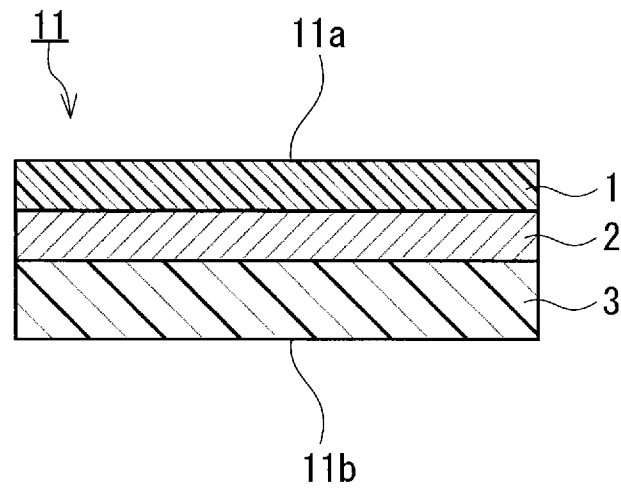


FIG. 3

[図4]

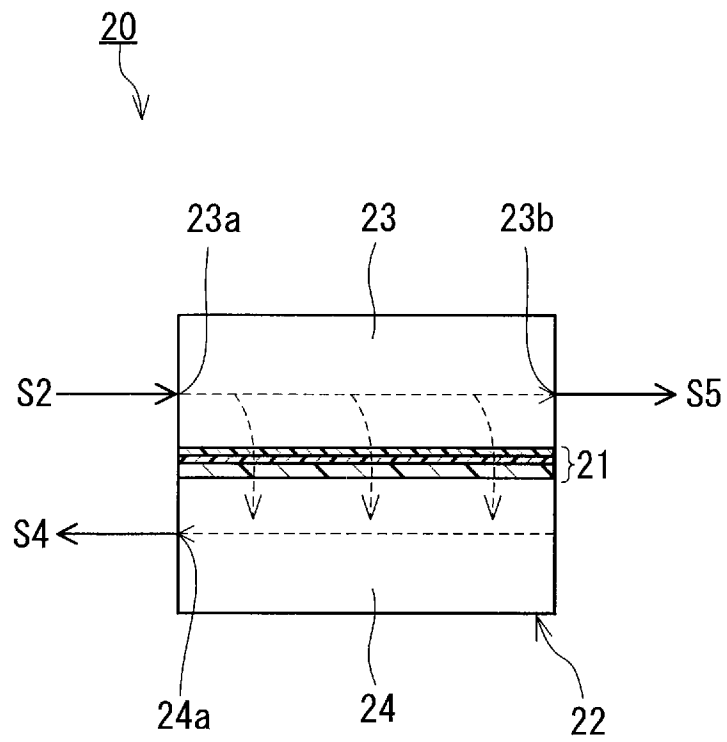


FIG. 4

[図5]

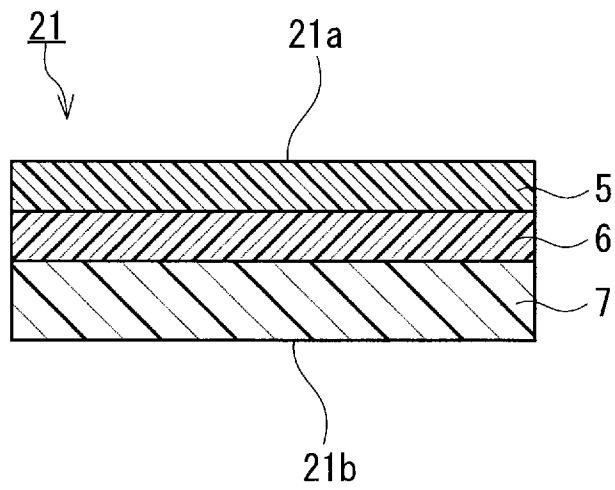


FIG. 5

[図6]

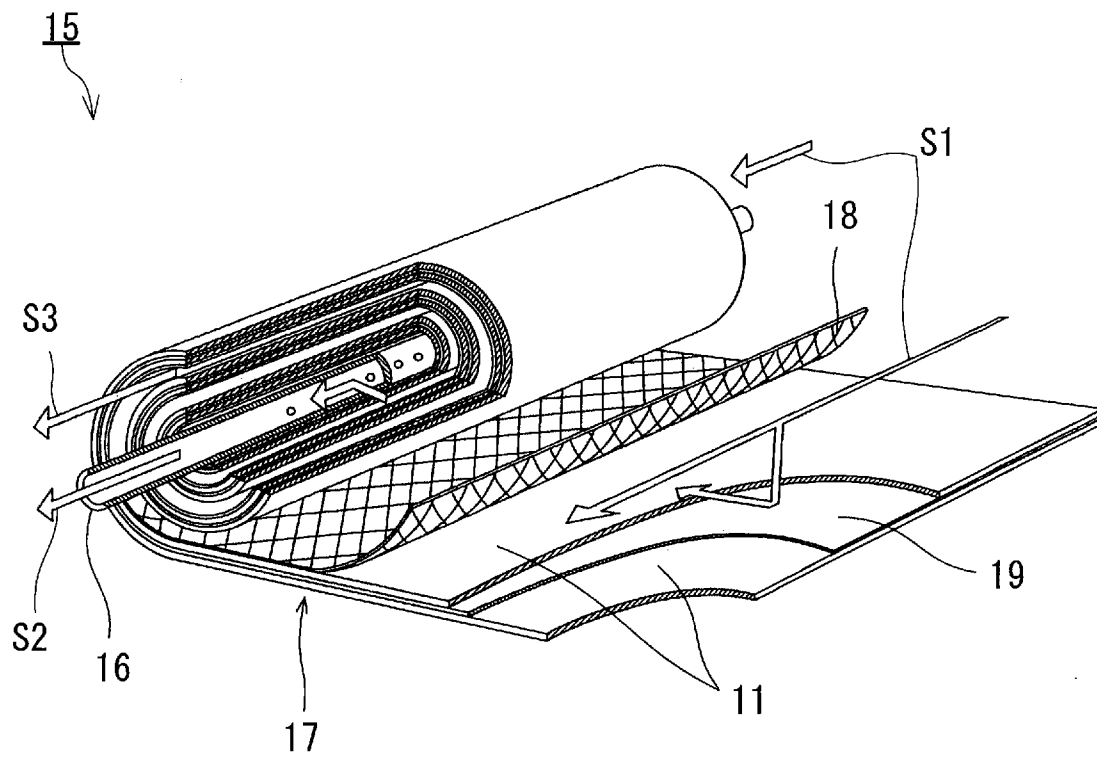


FIG. 6

[図7]

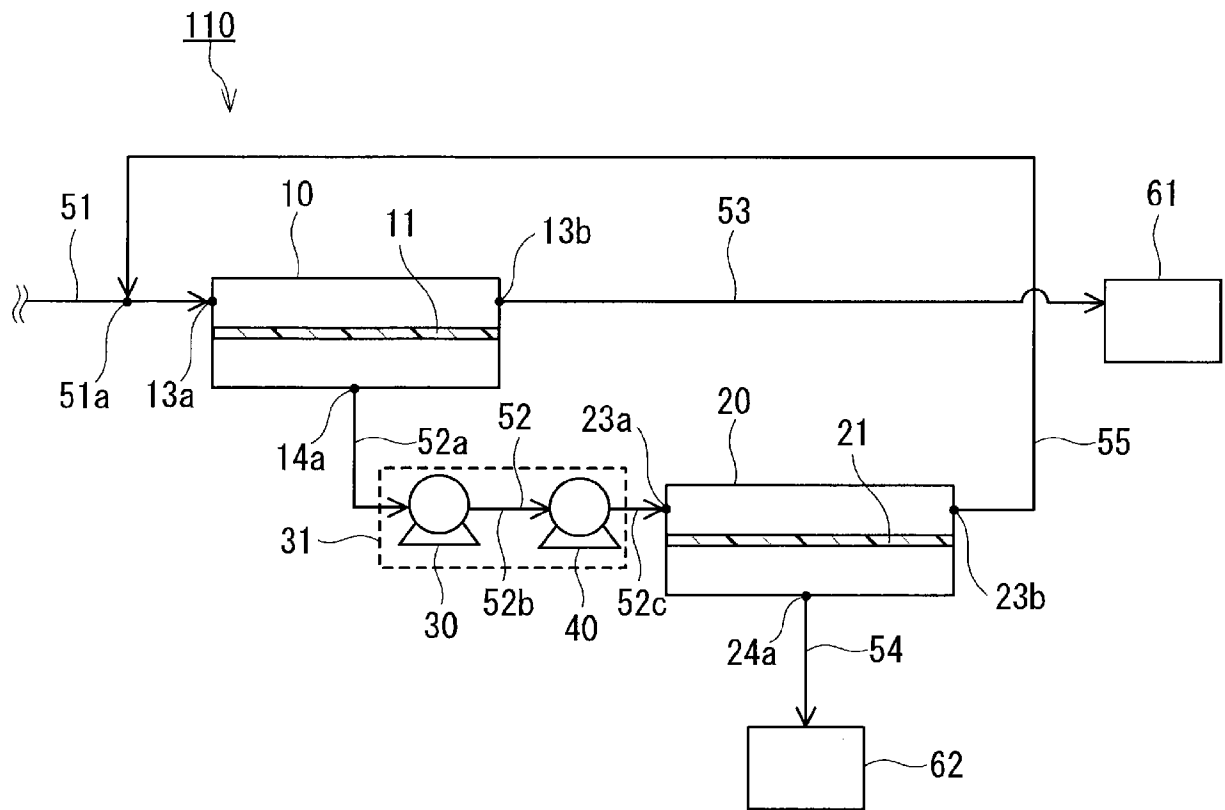


FIG. 7

[図8]

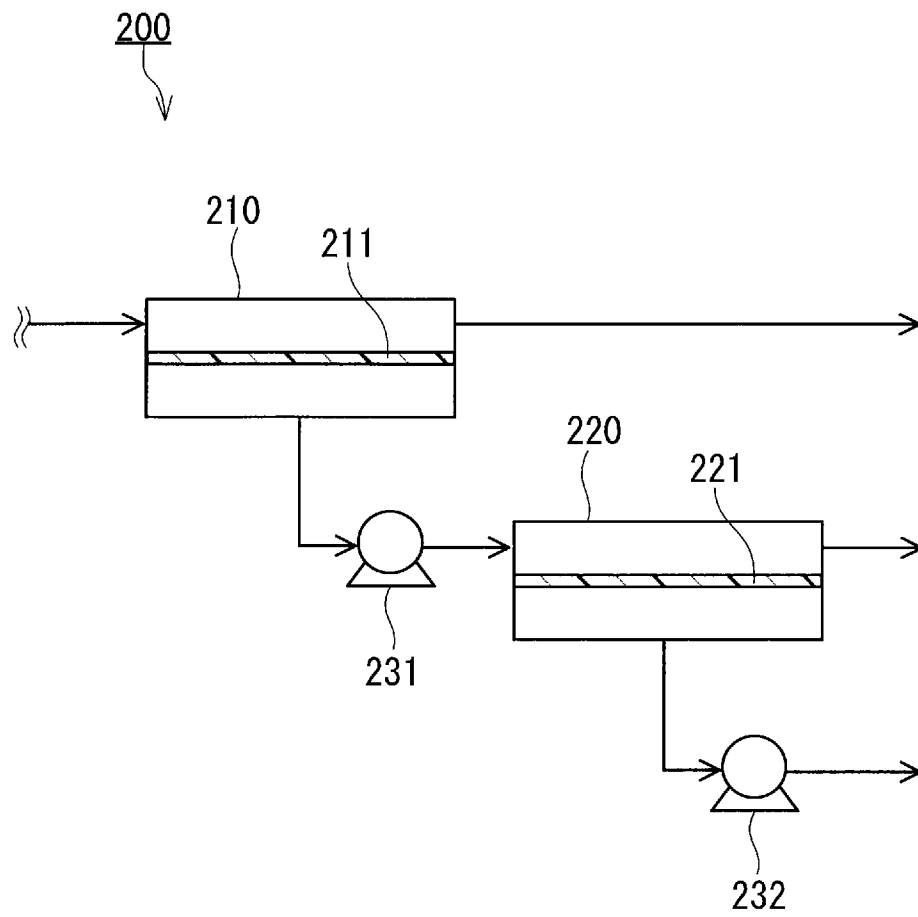


FIG. 8

[図9]

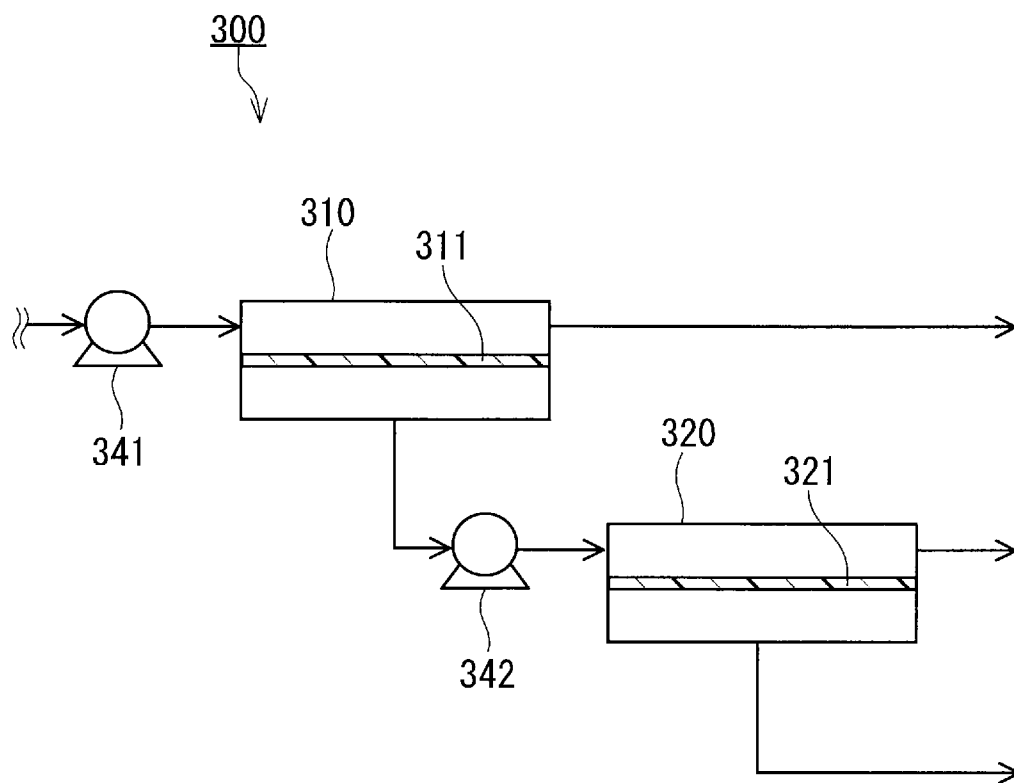


FIG. 9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/009898

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B01D 53/22**(2006.01)i; **B01D 61/58**(2006.01)i

FI: B01D53/22; B01D61/58

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)

B01D53/22, 61/00-78

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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	WO 2022/030267 A1 (NITTO DENKO CORPORATION) 10 February 2022 (2022-02-10) paragraphs [0014]-[0164], fig. 1	1-12
Y	JP 2008-137847 A (AIR LIQUIDE JAPAN, LTD.) 19 June 2008 (2008-06-19) paragraph [0066], fig. 2	1-12
Y	JP 5-508104 A (MEMBRANE TECHNOLOGY & RESEARCH INC.) 18 November 1993 (1993-11-18) p. 9, lower left column, line 20 to lower right column, line 4, fig. 3	1-12



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
“D” document cited by the applicant in the international application
“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

26 April 2024

Date of mailing of the international search report

14 May 2024

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/JP2024/009898

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
WO	2022/030267	A1	10 February 2022	US	2023/0294039	A1	
				paragraphs [0033]-[0197], fig. 1			
				EP	4194076	A1	
				CN	116056778	A	
JP	2008-137847	A	19 June 2008	US	2010/0074820	A1	
				paragraph [0102], fig. 2			
				WO	2008/065633	A1	
				KR	10-2009-0085082	A	
				CN	101547857	A	
JP	5-508104	A	18 November 1993	WO	1992/019358	A1	
				p. 33, lines 14-25, fig. 3			

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B01D 53/22(2006.01)i; B01D 61/58(2006.01)i FI: B01D53/22; B01D61/58		
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）） B01D53/22, 61/00-78 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 - 2024年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2024年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2024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	WO 2022/030267 A1（日東電工株式会社）10.02.2022（2022 - 02 - 10） [0014] - [0164]、図1	1 - 12
Y	JP 2008-137847 A（日本エア・リキード株式会社）19.06.2008（2008 - 06 - 19） [0066]、図2	1 - 12
Y	JP 5-508104 A（メンブレイン・テクノロジー・アンド・リサーチ・インコーポレイ テッド）18.11.1993（1993 - 11 - 18） 第9頁左下欄第20行 - 右下欄第4行、図3	1 - 12
☐ 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、一般的技术水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “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 26.04.2024	国際調査報告の発送日 14.05.2024	
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） 片山 真紀 4D 4505 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	

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/JP2024/009898

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2022/030267	A1	10.02.2022	US	2023/0294039	A1	
				[0 0 3 3] - [0 1 9 7]、図 1			
				EP	4194076	A1	
				CN	116056778	A	

JP	2008-137847	A	19.06.2008	US	2010/0074820	A1	
				[0 1 0 2]、図 2			
				WO	2008/065633	A1	
				KR	10-2009-0085082	A	
				CN	101547857	A	

JP	5-508104	A	18.11.1993	WO	1992/019358	A1	
				第 3 3 頁第 1 4 行－第 2 5 行、図 3			
