

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載
 【部門区分】第2部門第1区分
 【発行日】令和3年3月25日(2021.3.25)

【公表番号】特表2020-507459(P2020-507459A)
 【公表日】令和2年3月12日(2020.3.12)
 【年通号数】公開・登録公報2020-010
 【出願番号】特願2019-542710(P2019-542710)
 【国際特許分類】

B 0 1 D 71/70 (2006.01)
B 0 1 D 53/22 (2006.01)
B 0 1 D 69/10 (2006.01)
B 0 1 D 69/12 (2006.01)
B 0 1 D 71/16 (2006.01)
B 0 1 D 71/26 (2006.01)
B 0 1 D 71/34 (2006.01)
B 0 1 D 71/42 (2006.01)
B 0 1 D 71/48 (2006.01)
B 0 1 D 71/50 (2006.01)
B 0 1 D 71/52 (2006.01)
B 0 1 D 71/56 (2006.01)
B 0 1 D 71/68 (2006.01)

【F I】

B 0 1 D 71/70 5 0 0
 B 0 1 D 53/22
 B 0 1 D 69/10
 B 0 1 D 69/12
 B 0 1 D 71/16
 B 0 1 D 71/26
 B 0 1 D 71/34
 B 0 1 D 71/42
 B 0 1 D 71/48
 B 0 1 D 71/50
 B 0 1 D 71/52
 B 0 1 D 71/56
 B 0 1 D 71/68

【手続補正書】

【提出日】令和3年2月8日(2021.2.8)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0138

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0138】

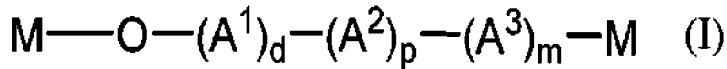
特許請求された主題の趣旨および範囲から逸脱することなく、本明細書に記載された実施形態に対して様々な改変および変形がなされ得ることは、当業者には明らかであるはずである。したがって、本明細書は、本明細書に記載される様々な実施形態の修正および変更を包含することが意図されるが、そのような修正および変更が、添付の特許請求の範囲およびそれらの等価物の範囲内であることを条件とする。

以下、本発明の好ましい実施形態を項分け記載する。

実施形態 1

メタンよりも 3 個以上の炭素原子を有する重質炭化水素に対して選択的に透過性であるポリマー材料を含む複合膜であって、前記ポリマー材料は、式 (I) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 1 のコポリマーを含み、

【化 2 5】

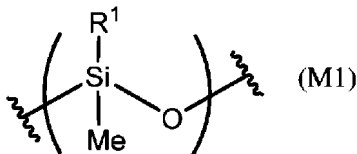


式中、

各 A¹ は、ジメチルシロキシルモノマーであり、

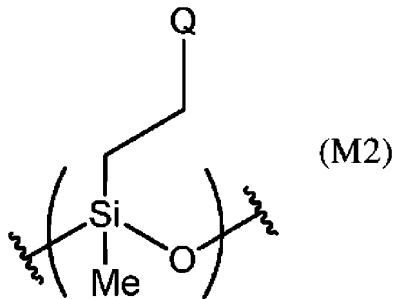
各 A² は、式 (M1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され、

【化 2 6】



各 A³ は、式 (M2) を有する内部ネットワークモノマーから独立して選択され、

【化 2 7】



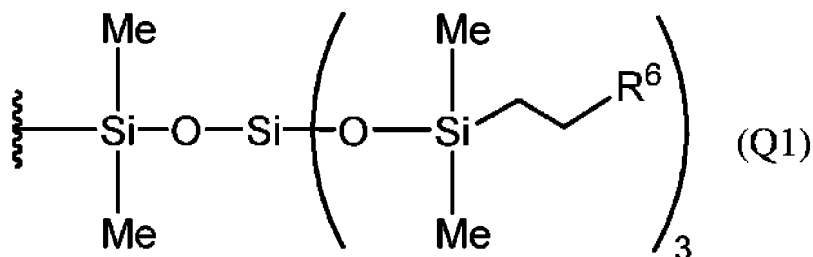
各 Q は、-Si(R²)₃、-Si(OR²)₃、R³、R⁴、Z¹、または基-(C_{H₂})_z-R⁵ から独立して選択され、z は、1 ~ 10 の整数であり、

各 R¹ は、C₅ ~ C₁₀ アルキルまたはフェニルから独立して選択され、

各 R² は、独立して、C₁ ~ C₂₀ アルキルであり、

各 R³ は、式 (Q1) を有する構造から独立して選択され、

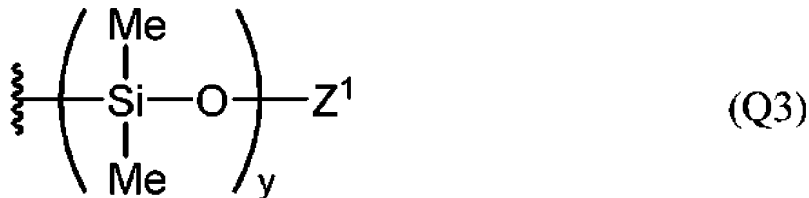
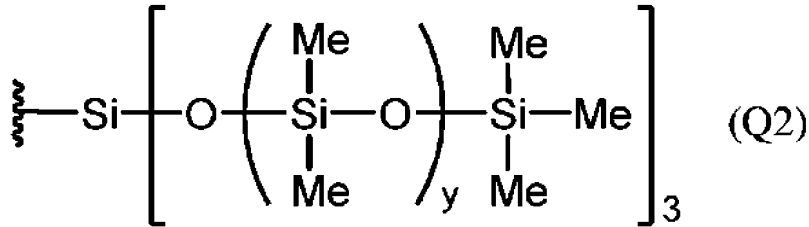
【化 2 8】



各 R⁶ は、R⁴ または R⁵ であり、少なくとも 1 つの R⁶ は、R⁴ であり、

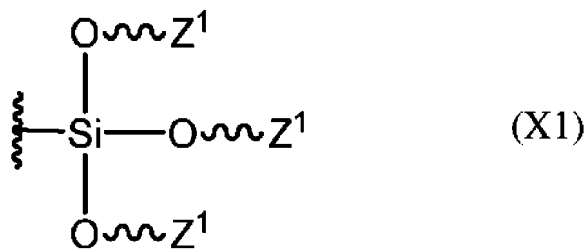
各 R⁴ は、式 (Q2) または式 (Q3) を有する構造から独立して選択され、

【化 2 9】



式 (Q2) および式 (Q3) 中の各 y は、1 ~ 850 の整数であり、
各 R^5 は、式 (X1) を有する架橋基であり、

【化 3 0】



各 Z^1 は、ポリシロキサン主鎖を有する第 2 のコポリマーへの架橋部位であり、
下付き文字 d 、 p 、および m は、ポリシロキサン主鎖中のランダムに配置されたモノマ
ー A^1 、 A^2 、および A^3 のモル分率を表し、

p は、0 ~ 0.50 であり、

p が 0 の場合、少なくとも 1 つのモノマー A^3 は、 $-(\text{CH}_2)_z - R^5$ であり、

m は、0.01 ~ 0.20 であり、

$d + p + m = 1$ であり、

各 M は、末端シリル基である、複合膜。

実施形態 2

p が、0.20 ~ 0.50 である、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 3

各 R^1 が、 $C_5 \sim C_{10}$ アルキルである、実施形態 2 に記載の複合膜。

実施形態 4

各 R^1 が、オクチルである、実施形態 2 に記載の複合膜。

実施形態 5

各 R^1 が、フェニルである、実施形態 2 に記載の複合膜。

実施形態 6

前記ポリマー材料への構造的支持を提供する多孔質支持体層およびベース支持体をさら
に備え、前記ポリマー材料は、多孔質支持体層上にコーティングされ、前記多孔質支持体
は、後に前記ポリマー材料と前記ベース支持体との間に介在する、実施形態 1 に記載の複
合膜。

実施形態 7

前記ベース支持体が、不織材料である、実施形態 6 に記載の複合膜。

実施形態 8

前記不織材料が、ポリ(エチレンテレフタレート)、セルロースアセテート、ポリエチ
レン、ポリプロピレン、ポリ(アルキルアミド)、またはポリ(アリーールアミド)から選

択される、実施形態 6 に記載の複合膜。

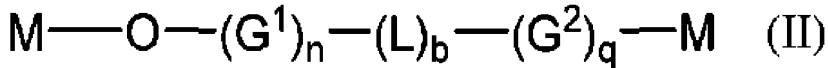
実施形態 9

前記多孔質支持体層が、ポリアクリロニトリル、ポリ(フッ化ビニリデン)、ポリカーボネート、ポリアミド、酢酸セルロース、ポリマースルホン、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、またはポリエーテルスルホンから選択される微孔質材料である、実施形態 6 に記載の複合膜。

実施形態 10

基 Q が Z¹ である少なくとも 1 つの内部ネットワークモノマー A³ を含む、実施形態 1 に記載の複合膜であって、前記第 2 のコポリマーが、式 (I I) に従うポリシロキサン主鎖を有し、

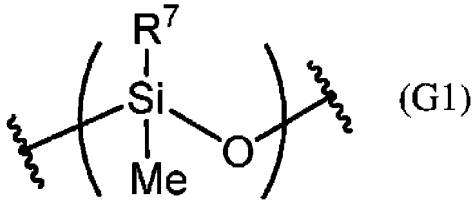
【化 3 1】



式中、

各 G¹ は、式 (G 1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され

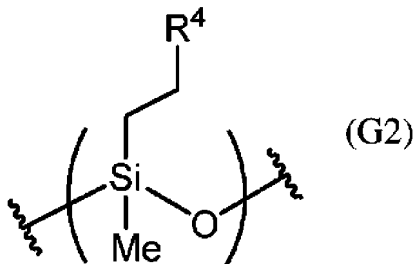
【化 3 2】



R⁷ は、水素、C₁ ~ C₁₀ アルキルまたは C₆ ~ C₁₀ アリールから選択され、

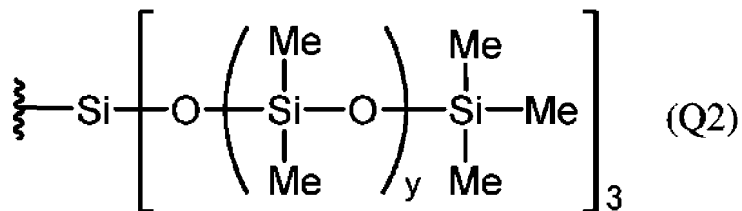
各 G² は、式 (G 2) を有する内部ネットワークモノマーから独立して選択され、

【化 3 3】



R⁴ は、式 (Q 2) を有する構造から選択され、

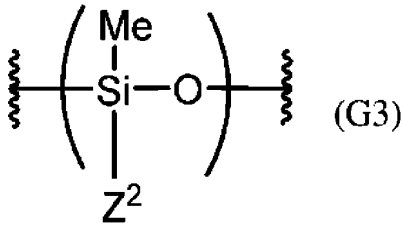
【化 3 4】



式 (Q 2) 中の各 y は、1 ~ 50 の整数であり、

各 L は、式 (G 3) を有する連結モノマーであり、

【化 3 5】



Z² は、前記第 1 のコポリマーまたは追加のコポリマーのいずれかに対する架橋部位であり、

前記第 2 のコポリマーの少なくとも 1 つの連結モノマー L の Z² は、前記第 1 のコポリマーへの架橋部位であり、

下付き文字 n、b、および q は、前記第 2 のコポリマーのランダムに配置されたモノマーのモル分率を表し、

b は、0.01 ~ 0.5 であり、

q は、0 ~ 0.05 であり、

n + b + q = 1 であり、

各 M は、末端シロキシル基である、複合膜。

実施形態 1 1

p が、0.20 ~ 0.50 である、実施形態 1 0 に記載の複合膜。

実施形態 1 2

p が、0.20 ~ 0.50 であり、

各 R¹ が、オクチルであり、

各 Q が、R³ である、実施形態 1 に記載の複合膜。

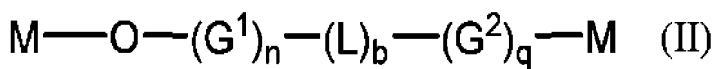
実施形態 1 3

p が、0.20 ~ 0.50 であり、

各 R¹ が、オクチルまたはフェニルであり、

各 Q が、式 (I I) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 2 のコポリマーへの架橋部位 Z¹ であり、

【化 3 6】

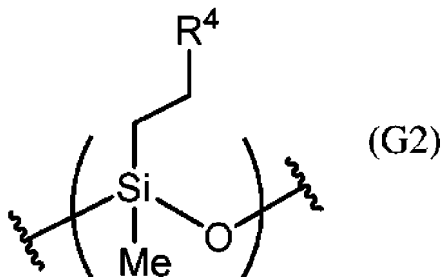


式中、

各 G¹ は、ジメチルシロキシルモノマーであり、

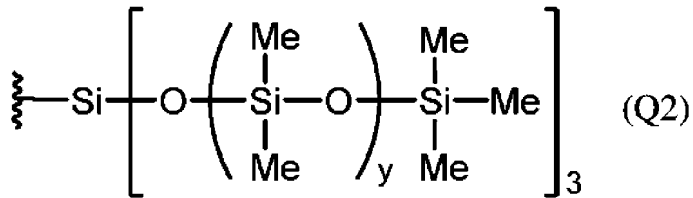
各 G² は、式 (G 2) を有する内部ネットワークモノマーから独立して選択され、

【化 3 7】



R⁴ は、式 (Q 2) を有する構造から選択され、

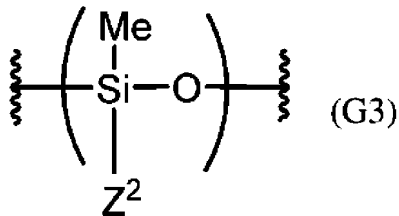
【化 3 8】



式 (Q2) 中の各 y は、1 ~ 850 の整数であり、

各 L は、式 (G3) を有する連結モノマーであり、

【化 3 9】



Z² は、前記第 1 のコポリマーの前記架橋部位 Z¹ であり、

下付き文字 n、b、および q は、前記第 2 のコポリマーのランダムに配置されたモノマーのモル分率を表し、

b は、0.01 ~ 0.5 であり、

q は、0.001 ~ 0.05 であり、

n + b + q = 1 であり、

各 M は、末端シリル基である、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 1 4

p が、0.20 ~ 0.50 であり、

各 R¹ が、オクチルであり、

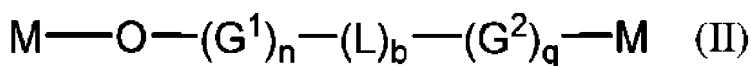
前記内部ネットワークモノマー A³ が、

Q が -Si(R²)₃ である式 (M2) に従うアルキルシリルモノマー、

Q が -Si(OR²)₃ である式 (M2) に従うアルコキシシリルモノマー、および

Q が式 (I I) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 2 のコポリマーへの架橋部位 Z¹ である式 (M2) に従う架橋モノマー、

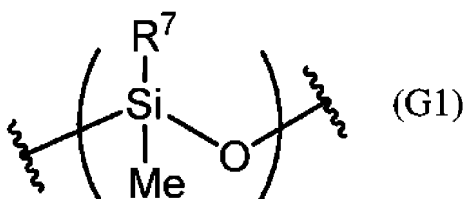
【化 4 0】



(式中、

各 G¹ は、式 (G1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され、

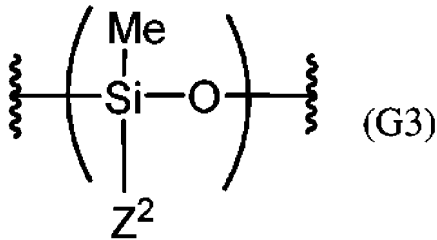
【化 4 1】



R⁷ は、C₁ ~ C₁₀ アルキルまたは C₆ ~ C₁₀ アリールから選択され、

各 L は、式 (G3) を有する連結モノマーであり、

【化 4 2】



Z^2 は、前記第 1 のコポリマーの前記架橋部位 Z^1 であり、

下付き文字 n 、 b 、および q は、前記第 2 のコポリマーのランダムに配置されたモノマーのモル分率を表し、

b は、 $0.01 \sim 0.5$ であり、

q は、 0 であり、

$n + b + q = 1$ であり、

各 M は、末端シリル基である)、ならびに

それらの組み合わせからなる群から選ばれる、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 1 5

前記内部ネットワークモノマー A^3 が、少なくとも 1 つの架橋モノマーを含む、実施形態 1 4 に記載の複合膜。

実施形態 1 6

各 R^7 が、メチル、オクチル、およびフェニルからなる群から選ばれる、実施形態 1 5 に記載の複合膜。

実施形態 1 7

各 R^7 が、メチルである、実施形態 1 5 に記載の複合膜。

実施形態 1 8

各 R^7 が、オクチルである、実施形態 1 5 に記載の複合膜。

実施形態 1 9

各 R^7 が、フェニルである、実施形態 1 5 に記載の複合膜。

実施形態 2 0

前記内部ネットワークモノマー A^3 が、少なくとも 1 種のアシルシリルモノマー、少なくとも 1 種のアロキシシリルモノマー、および少なくとも 1 種の架橋モノマーを含む、実施形態 1 4 に記載の複合膜。

実施形態 2 1

p が、 $0.20 \sim 0.50$ であり、

各 R^1 が、オクチルであり、

各 Q は、 $-\text{Si}(\text{R}^2)_3$ 、または R^5 から独立して選択される、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 2 2

前記内部ネットワークモノマー A^3 が、

Q が $-\text{Si}(\text{R}^2)_3$ である式 (M2) に従うアシルシリルモノマー、

Q が R^5 である式 (M2) に従う架橋モノマー、および

それらの組み合わせからなる群から選ばれる、実施形態 2 1 に記載の複合膜。

実施形態 2 3

各 R^2 が、メチルまたはエチルである、実施形態 2 2 に記載の複合膜。

実施形態 2 4

前記内部ネットワークモノマー A^3 が、

Q が $-\text{Si}(\text{R}^2)_3$ である式 (M2) に従う少なくとも 1 種のアシルシリルモノマー、および

Q が R^5 である式 (M2) に従う少なくとも 1 種の架橋モノマーを含む、実施形態 2 1 に記載の複合膜。

実施形態 2 5

前記内部ネットワークモノマー A³ が、
 Q が R³ である式 (M 2) に従うモノマー、
 Q が - (CH₂)_z - R⁵ である式 (M 2) に従う架橋モノマー、および
 それらの組み合わせからなる群から選ばれる、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 2 6

p が 0 である、実施形態 2 5 に記載の複合膜。

実施形態 2 7

前記内部ネットワークモノマー A³ が、
 Q が R³ である式 (M 2) に従う少なくとも 1 種のモノマー、および
 Q が - (CH₂)_z - R⁵ である式 (M 2) に従う少なくとも 1 種の架橋モノマーを含む、実施形態 2 5 に記載の複合膜。

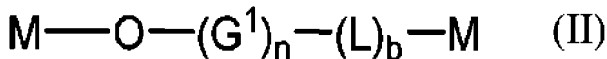
実施形態 2 8

前記内部ネットワークモノマー A³ が、
 Q が R³ である式 (M 2) に従う少なくとも 1 種のモノマー、および
 Q が - (CH₂)_z - R⁵ であり、z が 1 である式 (M 2) に従う少なくとも 1 種の架橋モノマーを含む、実施形態 2 5 に記載の複合膜。

実施形態 2 9

p が、0.20 ~ 0.50 であり、
 各 R¹ が、C₅ ~ C₁₀ アルキル、オクチル、またはフェニルであり、
 各 Q が、式 (I I) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 2 のコポリマーへの架橋部位 Z¹ であり、

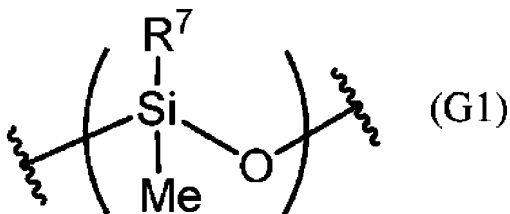
【化 4 3】



式中、

各 G¹ は、式 (G 1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され、

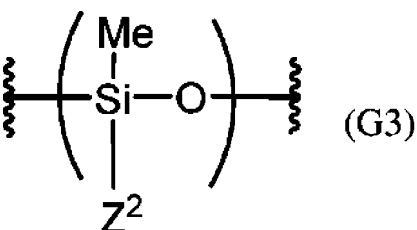
【化 4 4】



R⁷ は、水素、C₁ ~ C₁₀ アルキルまたは C₆ ~ C₁₀ アリールから選択され、

各 L は、式 (G 3) を有する連結モノマーであり、

【化 4 5】



Z² は、前記第 1 のコポリマーの架橋部位 Z¹ であり、

下付き文字 n、b、および q は、前記第 2 のコポリマーのランダムに配置されたモ

ノマーのモル分率を表し、

n は、 $0.005 \sim 0.55$ であり、

$n + b = 1$ であり、

各 M は、末端シリル基である、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 3 0

各 R^7 が、水素である、実施形態 2 9 に記載の複合膜。

実施形態 3 1

各 R^7 が、メチルである、実施形態 2 9 に記載の複合膜。

実施形態 3 2

各 R^7 が、オクチルであり、

n が、 $0.25 \sim 0.3$ である、実施形態 2 9 に記載の複合膜。

実施形態 3 3

各 R^7 が、フェニルであり、

n が、 $0.45 \sim 0.50$ である、実施形態 2 9 に記載の複合膜。

実施形態 3 4

p が、 $0.20 \sim 0.50$ であり、

各 R^1 が、フェニルであり、

各 Q が、基 R^4 である、実施形態 1 に記載の複合膜。

実施形態 3 5

天然ガスから重質炭化水素を除去するためのシステムであって、

入口、保持液出口、および透過液出口を備える分離器ユニットと、

前記分離器ユニットの前記入口と流体連通する天然ガス源と、

前記分離器ユニット内で最初に少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記入口から前記透過液出口への流体の流れを防止し、前記少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記流体の流れが前記入口から前記保持液出口へ進むことを可能にするように構成される、実施形態 1 に記載の少なくとも 1 つの複合膜と、

前記分離器ユニットの前記保持液出口と流体連通する保持液収集器と、

前記分離器ユニットの前記透過液出口と流体連通する透過液収集器とを備えるシステム

。

実施形態 3 6

前記透過液収集器が、少なくとも 3 個の炭素原子を有する重質炭化水素を含む透過液を収集する、実施形態 3 5 に記載のシステム。

実施形態 3 7

p が、 $0.20 \sim 0.50$ である、実施形態 3 5 に記載のシステム。

実施形態 3 8

各 R^1 が、オクチルまたはフェニルである、実施形態 3 7 に記載のシステム。

実施形態 3 9

前記複合膜の前記ポリマー材料が多孔質支持体層上にコーティングされ、前記多孔質支持体が後に前記ポリマー材料と前記不織材料との間に介在する、実施形態 3 5 に記載のシステム。

実施形態 4 0

前記不織材料が、ポリ(エチレンテレフタレート)であり、前記多孔質支持体層が、ポリアクリロニトリル、ポリ(フッ化ビニリデン)、またはポリエーテルスルホンから選択される、実施形態 3 9 に記載のシステム。

実施形態 4 1

メタン、および初期体積分率の少なくとも 3 個の炭素原子を有する重質炭化水素を含有する天然ガス流から、前記重質炭化水素を除去する方法であって、

入口と、保持液出口と、透過液出口と、分離器ユニット内で最初に少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記入口から前記透過液出口への流体の流れを防止し、前記少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記流体の流れが前記入口から前記保持液出口へ

進むことを可能にするように構成される、実施形態 1 に記載の少なくとも 1 つの複合膜とを備える分離器ユニットに、前記天然ガス流を供給圧力で導入することと、

前記保持液出口からの保持液であって、前記保持液は、低減された体積分率の前記重質炭化水素を有し、前記低減された体積分率は、前記初期体積分率より小さい、保持液、または

前記透過液出口からの透過液であって、前記透過液は、増加した体積分率の前記重質炭化水素を有し、前記増加した体積分率は、前記初期体積分率より大きい、透過液の少なくとも 1 つを収集することを含む方法。

実施形態 4 2

前記供給圧力が、1 パール ~ 10 パールである、実施形態 4 1 に記載の方法。

実施形態 4 3

前記分離器ユニットが、20 ~ 100 の分離温度にある、実施形態 4 1 に記載の方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

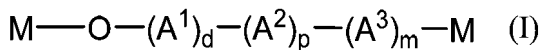
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

メタンよりも 3 個以上の炭素原子を有する重質炭化水素に対して選択的に透過性であるポリマー材料を含む複合膜であって、前記ポリマー材料は、式 (I) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 1 のコポリマーを含み、

【化 1】

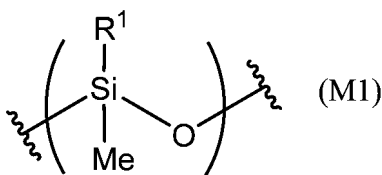


式中、

各 A^1 は、ジメチルシロキシルモノマーであり、

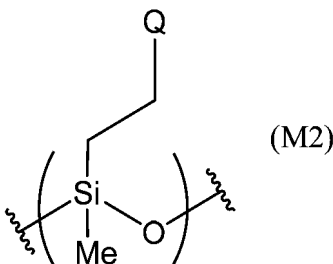
各 A^2 は、式 (M1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され、

【化 2】



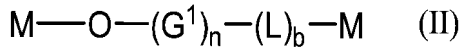
各 A^3 は、式 (M2) を有する内部ネットワークモノマーから独立して選択され、

【化 3】



各 Q は、式 (II) に従うポリシロキサン主鎖を有する第 2 のコポリマーへの架橋部位 Z^1 であり、

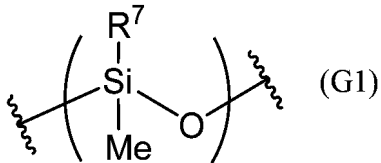
【化 4】



式中、

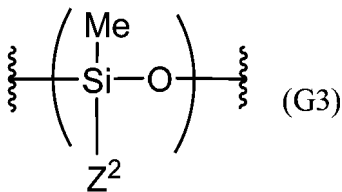
各 G^1 は、式 (G1) を有する置換メチルシロキシルモノマーから独立して選択され、

【化 5】



R^7 は、 $C_1 \sim C_{10}$ アルキルまたは $C_6 \sim C_{10}$ アリールから選択され、
各 L は、式 (G3) を有する連結モノマーであり、

【化 6】



Z^2 は、前記第 1 のコポリマーの架橋部位 Z^1 であり、
下付き文字 n および b は、前記第 2 のコポリマーのランダムに配置されたモノマーのモル分率を表し、

n は、 $0.005 \sim 0.55$ であり、

$n + b = 1$ であり、

各 R^1 は、 $C_5 \sim C_{10}$ アルキルまたはフェニルから独立して選択され、
下付き文字 d 、 p 、および m は、ポリシロキサン主鎖中のランダムに配置されたモノマー A^1 、 A^2 、および A^3 のモル分率を表し、

p は、 $0.20 \sim 0.50$ であり、

m は、 $0.01 \sim 0.20$ であり、

$d + p + m = 1$ であり、

式 (I) および (II) における各 M は、末端シリル基である、複合膜。

【請求項 2】

各 R^1 が、オクチルである、請求項 1 に記載の複合膜。

【請求項 3】

各 R^1 が、フェニルである、請求項 1 に記載の複合膜。

【請求項 4】

前記ポリマー材料への構造的支持を提供する多孔質支持体層およびベース支持体をさらに備え、前記ポリマー材料は、多孔質支持体層上にコーティングされ、前記多孔質支持体は、後に前記ポリマー材料と前記ベース支持体との間に介在し、前記ベース支持体が、ポリ(エチレンテレフタレート)、セルロースアセテート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ(アルキルアミド)、またはポリ(アリールアミド)から選択される不織材料であり、前記多孔質支持体層が、ポリアクリロニトリル、ポリ(フッ化ビニリデン)、ポリカーボネート、ポリアミド、酢酸セルロース、ポリマースルホン、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、またはポリエーテルスルホンから選択される微孔質材料である、請求項 1 に記載の複合膜。

【請求項 5】

各 R^1 が、オクチルまたはフェニルであり、

各 R^7 が、メチル、オクチル、またはフェニルである、請求項 1 に記載の複合膜。

【請求項 6】

各 R⁷ が、メチルである、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 7】

各 R¹ が、オクチルであり、

各 R⁷ が、メチルである、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 8】

各 R⁷ が、オクチルであり、

n が、0.25 ~ 0.30 である、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 9】

各 R¹ が、オクチルであり、

各 R⁷ が、オクチルであり、

n が、0.25 ~ 0.30 である、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 10】

各 R⁷ が、フェニルであり、

n が、0.45 ~ 0.50 である、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 11】

各 R¹ が、オクチルであり、

各 R⁷ が、フェニルであり、

n が、0.45 ~ 0.50 である、請求項 5 に記載の複合膜。

【請求項 12】

天然ガスから重質炭化水素を除去するためのシステムであって、
入口、保持液出口、および透過液出口を備える分離器ユニットと、
前記分離器ユニットの前記入口と流体連通する天然ガス源と、
前記分離器ユニット内で最初に少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記入口から前記透過液出口への流体の流れを防止し、前記少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記流体の流れが前記入口から前記保持液出口へ進むことを可能にするように構成される、請求項 1 に記載の少なくとも 1 つの複合膜と、
前記分離器ユニットの前記保持液出口と流体連通する保持液収集器と、
前記分離器ユニットの前記透過液出口と流体連通する透過液収集器であって、少なくとも 3 個の炭素原子を有する重質炭化水素を含む透過液を収集する透過液収集器と、を備えるシステム。

【請求項 13】

各 R¹ が、オクチルまたはフェニルであり、各 R⁷ が、メチル、オクチル、またはフェニルである、請求項 12 に記載のシステム。

【請求項 14】

前記複合膜の前記ポリマー材料が多孔質支持体層上にコーティングされ、前記多孔質支持体が後に前記ポリマー材料と前記不織材料との間に介在し、前記不織材料が、ポリ(エチレンテレフタレート)であり、前記多孔質支持体層が、ポリアクリロニトリル、ポリ(フッ化ビニリデン)、またはポリエーテルスルホンから選択される、請求項 12 に記載のシステム。

【請求項 15】

メタン、および初期体積分率の少なくとも 3 個の炭素原子を有する重質炭化水素を含有する天然ガス流から、前記重質炭化水素を除去する方法であって、

入口と、保持液出口と、透過液出口と、分離器ユニット内で最初に少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記入口から前記透過液出口への流体の流れを防止し、前記少なくとも 1 つの複合膜を通過することなく前記流体の流れが前記入口から前記保持液出口へ進むことを可能にするように構成される、請求項 1 に記載の少なくとも 1 つの複合膜とを備える、20 ~ 100 の分離温度にある分離器ユニットに、前記天然ガス流を 1 パール ~ 10 パールの供給圧力で導入することと、

前記保持液出口からの保持液であって、前記保持液は、低減された体積分率の前記重

質炭化水素を有し、前記低減された体積分率は、前記初期体積分率より小さい、保持液、または

前記透過液出口からの透過液であって、前記透過液は、増加した体積分率の前記重質炭化水素を有し、前記増加した体積分率は、前記初期体積分率より大きい、透過液の少なくとも1つを収集することを含む方法。