



(10) **DE 11 2023 000 607 T5** 2024.11.21

(12)

Veröffentlichung

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2023/162879**
in der deutschen Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2
IntPatÜbkG)

(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2023 000 607.5**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP2023/005691**

(86) PCT-Anmeldetag: **17.02.2023**

(87) PCT-Veröffentlichungstag: **31.08.2023**

(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **21.11.2024**

(51) Int Cl.: **B01D 46/00 (2022.01)**
B01D 71/02 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
2022-029265 28.02.2022 JP

(71) Anmelder:
NGK INSULATORS, LTD., Nagoya-shi, Aichi, JP

(74) Vertreter:
**Müller-Boré & Partner Patentanwälte PartG mbB,
80639 München, DE**

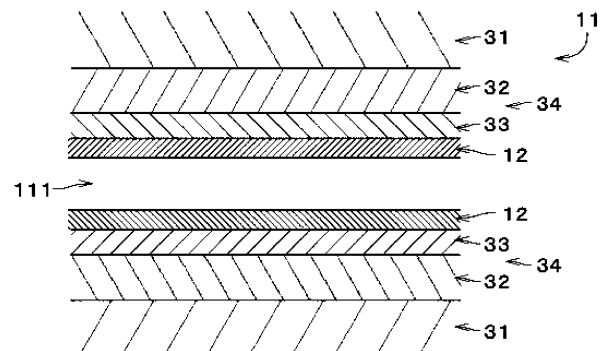
(72) Erfinder:
**Nakanishi, Takahiro, Nagoya-shi, Aichi, JP; Noda,
Kenichi, Nagoya-shi, Aichi, JP; Kinoshita, Naoto,
Nagoya-shi, Aichi, JP; Amano, Nao, Nagoya-shi,
Aichi, JP; Hirane, Azumi, Nagoya-shi, Aichi, JP**

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Keramisches Basismaterial, Keramikträger und Trennmembrankomplex**

(57) Zusammenfassung: Ein Basismaterial (31), das zum Tragen einer Trennmembran (12) verwendet wird, enthält eine Vielzahl von groben Teilchen, die jeweils ein Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 30 µm sind, und eine Vielzahl von feinen Teilchen, die jeweils ein Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 1 µm und weniger als 30 µm sind. Das Verhältnis zwischen der Anzahl der groben Teilchen und der Anzahl der feinen Teilchen (d.h. das Verhältnis grober Teilchen) ist größer als oder gleich 0,05 und kleiner als oder gleich 0,3. Die groben Teilchen weisen ein durchschnittliches Längenverhältnis von höher als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2 auf. Dadurch kann das Basismaterial (31) sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit erreichen.



Beschreibung

TECHNISCHES GEBIET

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein keramisches Basismaterial, einen Keramikträger, der das keramische Basismaterial enthält, und einen Trennmembrankomplex, der das keramische Basismaterial enthält.

HINWEIS AUF ZUGEHÖRIGE ANMELDUNGEN

[0002] Diese Anmeldung genießt die Priorität der japanischen Patentanmeldung Nr. JP2022-29265, die am 28. Februar 2022 beim japanischen Patentamt eingereicht wurde, deren gesamte Offenbarung hierin durch Bezugnahme aufgenommen ist.

TECHNISCHER HINTERGRUND

[0003] Derzeit laufen verschiedene Studien und Entwicklungen zur Trennung, Adsorption oder dergleichen von bestimmten Molekülen über eine Trennmembran wie eine Zeolithmembran. Die Trennmembran kann zum Beispiel auf einem porösen Träger gebildet und als Trennmembrankomplex verwendet werden. Im Allgemeinen werden der Permeabilitätswiderstand des porösen Trägers und die Festigkeit des porösen Trägers durch die Porosität oder die Porendurchmesser-Verteilung gesteuert. Eine Erhöhung der Porosität verringert zum Beispiel den Permeabilitätswiderstand, senkt aber die Festigkeit des porösen Trägers. Andererseits verbessert eine Verringerung der Porosität die Festigkeit des porösen Trägers, erhöht aber den Permeabilitätswiderstand.

[0004] In Anbetracht dessen wird in der japanischen Patentanmeldung Offenlegung Nr. S62-252381 (Dokument 1) ein poröses Zirkoniumdioxidmaterial vorgeschlagen, das 100 Gewichtsteile grobe Kristallteilchen und 20 Gewichtsteile oder mehr feine Kristallteilchen enthält. In dem porösen Zirkoniumdioxidmaterial sind die feinen Kristallteilchen zwischen den groben Kristallteilchen vorhanden und binden die groben Kristallteilchen zusammen. Dies erhöht die Porosität und Permeabilität des porösen Zirkoniumdioxidmaterials und verringert dadurch den Permeabilitätswiderstand, während die Festigkeit des porösen Zirkoniumdioxidmaterials erhöht wird. Die japanische Patentanmeldung Offenlegung Nr. 2011-201722 (Dokument 2) und die japanische Patentanmeldung Offenlegung Nr. 2008-156170 (Dokument 3) schlagen ebenfalls poröse Materialien vor, die grobe und feine Teilchen enthalten.

[0005] Damit die vorstehend erwähnten porösen Materialien sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit erreichen, ist es zumindest notwendig, den Teilchendurchmesser der porösen Materialien nach dem Brennen zu steuern. In Dokument 2 wird jedoch lediglich die Steuerung des Teilchendurchmessers eines Rohmaterials beschrieben, wie die Einstellung des Volumenverhältnisses von feinen Zeolithteilchen und groben Zeolithteilchen in einem Zeolithrohmaterial. Beim Brennen des Zeolithrohmaterials ändern sich die Teilchendurchmesser der gebrannten Zeolithkristalle in Abhängigkeit von der Brenntemperatur oder anderen Bedingungen. Daher ist es nicht einfach, durch eine einfache Steuerung des Teilchendurchmessers des Rohmaterials sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit zu erreichen.

[0006] Selbst wenn das Gewichtsverhältnis der groben Kristallteilchen und der feinen Kristallteilchen in dem porösen Zirkoniumdioxidmaterial wie in Dokument 1 eingestellt ist, reicht dies nicht aus, und es ist schwierig, den Permeabilitätswiderstand des porösen Zirkoniumdioxidmaterials günstig zu verringern und gleichzeitig die Festigkeit des porösen Zirkoniumdioxidmaterials zu sichern.

KURZDARSTELLUNG DER ERFINDUNG

[0007] Die vorliegende Erfindung ist für ein poröses keramisches Basismaterial bestimmt, das zur Unterstützung einer Trennmembran verwendet wird, und es ist eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands des keramischen Basismaterials als auch die Sicherung der Festigkeit des keramischen Basismaterials zu erreichen.

[0008] Ein keramisches Basismaterial gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält eine Vielzahl von groben Teilchen, die jeweils ein keramisches Teilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 30 μm sind, und eine Vielzahl von feinen Teilchen, die jeweils ein keramisches Teilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 1 μm und weniger als 30

µm sind. Das Verhältnis der Gesamtzahl der Vielzahl von groben Teilchen zur Gesamtzahl der Vielzahl von feinen Teilchen ist höher als oder gleich 0,05 und kleiner als oder gleich 0,3. Die Vielzahl der groben Teilchen weist ein durchschnittliches Längenverhältnis von höher als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2 auf.

[0009] Gemäß der vorliegenden Erfindung ist es möglich, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit zu erreichen.

[0010] Vorzugsweise enthält das keramische Basismaterial weiterhin ein anorganisches Bindematerial, das die Vielzahl der groben Teilchen und/oder die Vielzahl der feinen Teilchen bindet. Die Anzahl der feinen Teilchen, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial unter der Vielzahl von feinen Teilchen umgeben ist, ist größer als 5 % und kleiner als 55 % der Gesamtzahl der Vielzahl von feinen Teilchen.

[0011] Vorzugsweise weist das keramische Basismaterial eine Porosität von höher als oder gleich 20% und weniger als oder gleich 50% auf.

[0012] Vorzugsweise ist die Vielzahl der groben Teilchen und die Vielzahl der feinen Teilchen aus Aluminiumoxid, Mullit, Zirkoniumdioxid oder Titanoxid.

[0013] Vorzugsweise weist das keramische Basismaterial eine säulenartige Form auf, die sich in einer Längsrichtung erstreckt. Das keramische Basismaterial enthält eine Vielzahl von Zellen, die das keramische Basismaterial in der Längsrichtung durchdringen.

[0014] Die vorliegende Erfindung bezieht sich auch auf einen porösen Keramikträger, der zur Unterstützung einer Trennmembran verwendet wird. Ein Keramikträger gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält das beschriebene keramische Basismaterial und eine poröse keramische Zusatzschicht, die auf einer Oberfläche des keramischen Basismaterials vorgesehen ist und einen mittleren Porendurchmesser aufweist, der kleiner als ein mittlerer Porendurchmesser des keramischen Basismaterials ist.

[0015] Die vorliegende Erfindung ist auch für einen Trennmembrankomplex vorgesehen. Ein Trennmembrankomplex gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält entweder das vorstehend beschriebene keramische Basismaterial oder den vorstehend beschriebenen Keramikträger und eine Trennmembran, die auf einer Oberfläche des keramischen Basismaterials oder auf der keramischen Zusatzschicht des Keramikträgers vorgesehen ist.

[0016] Vorzugsweise ist die Trennmembran eine Zeolithmembran.

[0017] Vorzugsweise ist ein Zeolith, der die Zeolithmembran ausmacht, mit einem maximal 8- oder weniger gliedrigen Ring aufgebaut.

[0018] Diese und weitere Aufgaben, Merkmale, Aspekte und Vorteile der vorliegenden Erfindung werden aus der folgenden Beschreibung im Einzelnen der vorliegenden Erfindung deutlicher, wenn sie in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen betrachtet wird.

KURZBESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

Fig. 1 ist eine Schnittdarstellung eines Trennmembrankomplexes gemäß einer Ausführungsform.

Fig. 2 ist eine Schnittdarstellung, die einen Teil des Trennmembrankomplexes in vergrößerten Abmessungen zeigt.

Fig. 3 ist ein Diagramm, das einen Teil eines Bildes von einem polierten Schnitt eines Basismaterials in vergrößerten Abmessungen zeigt.

Fig. 4 ist ein Diagramm, das einen Teil eines Bildes von einem polierten Schnitt des Basismaterials in vergrößerten Abmessungen zeigt.

Fig. 5 ist ein Flussdiagramm, das die Herstellung des Trennmembrankomplexes zeigt.

Fig. 6 ist eine Schnittdarstellung einer Trenneinrichtung.

Fig. 7 ist ein Flussdiagramm, das die Trennung eines Substanzgemischs zeigt.

BESCHREIBUNG DER AUSFÜHRUNGSFORMEN

[0019] Fig. 1 ist eine Schnittdarstellung eines Trennmembrankomplexes 1 gemäß einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung. Fig. 2 ist eine Schnittdarstellung, die einen Teil des Trennmembrankomplexes 1 in vergrößerten Abmessungen zeigt. Der Trennmembrankomplex 1 enthält einen Keramikträger 11 (nachstehend auch einfach als „Träger 11“ bezeichnet) und eine Trennmembran 12. In der Darstellung von Fig. 1 ist die Trennmembran 12 in dicken Linien dargestellt. In der Darstellung von Fig. 2 sind der Träger 11 und die Trennmembran 12 kreuzweise schraffiert, und die Dicke der Trennmembran 12 ist größer als die tatsächliche Dicke.

[0020] Der Träger 11 ist ein poröses Bauteil, das für Gas und Flüssigkeit durchlässig ist. In dem in Fig. 1 gezeigten Beispiel ist der Träger 11 ein monolithischer Träger, der eine Vielzahl von Durchgangslöchern 111 (nachstehend auch als „Zellen 111“ bezeichnet) aufweist, die sich jeweils in einer Längsrichtung eines einstückig geformten säulenartigen Körpers (d.h. in der Rechts-Links-Richtung in Fig. 1) erstrecken. Der Träger 11 kann beispielsweise eine annähernd säulenartige Außenform aufweisen. Die Zellen 111 können z.B. in einer Matrix in einem Abschnitt des Trägers 11 senkrecht zur Längsrichtung angeordnet sein. Zum Beispiel kann jede Zelle 111 einen annähernd kreisförmigen Querschnitt senkrecht zur Längsrichtung aufweisen. Zu beachten ist, dass „annähernd kreisförmig“ nicht nur einen perfekten Kreis, sondern auch eine Ellipse oder einen verzerrten Kreis beinhaltet. Vorzugsweise kann jede Zelle 111 eine perfekte kreisförmige Querschnittsform aufweisen, aber die Querschnittsform muss nicht unbedingt ein perfekter Kreis sein. In der Darstellung von Fig. 1 ist der Durchmesser der Zellen 111 größer als der tatsächliche Durchmesser, und die Anzahl der Zellen 111 ist kleiner als die tatsächliche Anzahl.

[0021] Die Trennmembran 12 ist auf der Innenoberfläche jeder Zelle 111 angeordnet. Vorzugsweise kann die Trennmembran 12 so vorgesehen sein, dass sie ungefähr die gesamte Innenoberfläche jeder Zelle 111 bedeckt. Der Träger 11 wird zur Unterstützung der Trennmembran 12 verwendet.

[0022] Der Träger 11 kann eine Länge (d.h. eine Länge in der Rechts-Links-Richtung in Fig. 1) von z.B. 10 cm bis 200 cm aufweisen. Der Außendurchmesser des Trägers 11 kann z.B. in einem Bereich von 0,5 cm bis 30 cm liegen. Der Abstand zwischen den Mittelachsen jedes Paares benachbarter Zellen 111 kann z.B. in einem Bereich von 0,3 mm bis 10 mm liegen. Die Oberflächenrauheit (Ra) des Trägers 11 kann z.B. im Bereich von 0,1 µm bis 5,0 µm und vorzugsweise im Bereich von 0,2 µm bis 2,0 µm liegen. Es ist zu beachten, dass die Form des Trägers 11 jede andere Form aufweisen kann, wie eine Wabenform, eine flache plattenartige Form, eine rohrartige Form, eine zylinderartige Form, eine säulenartige Form oder eine polygonale säulenartige Form. Wenn der Träger 11 eine rohr- oder zylinderartige Form aufweist, kann der Träger 11 eine Dicke von beispielsweise 0,1 mm bis 10 mm aufweisen.

[0023] Der Träger 11 kann beispielsweise eine Mehrschichtstruktur aufweisen, bei der eine Vielzahl von Schichten mit unterschiedlichen mittleren Porendurchmessern in Dickenrichtung in der Nähe der Innenoberflächen der Zellen 111 (d.h. in der Nähe der Trennmembran 12) übereinander geschichtet sind. In dem in Fig. 2 dargestellten Beispiel enthält der Träger 11 ein poröses keramisches Basismaterial 31 (nachstehend auch einfach als „Basismaterial 31“ bezeichnet) und eine poröse keramische Zusatzschicht 34 (nachstehend auch einfach als „Zusatzschicht 34“ bezeichnet), die auf der Oberfläche des Basismaterials 31 vorgesehen ist.

[0024] Die Zusatzschicht 34 enthält eine poröse Zwischenschicht 32, die direkt auf dem Basismaterial 31 ausgebildet ist, und eine poröse Oberflächenschicht 33, die auf der Zwischenschicht 32 ausgebildet ist. Das heißt, die Oberflächenschicht 33 ist indirekt über die Zwischenschicht 32 auf dem Basismaterial 31 vorgesehen. Die Zwischenschicht 32 ist zwischen dem Basismaterial 31 und der Oberflächenschicht 33 angeordnet. Die Oberflächenschicht 33 bildet die Innenoberfläche jeder Zelle 111 des Trägers 11 und die Trennmembran 12 ist auf der Oberflächenschicht 33 ausgebildet. Die Oberflächenschicht 33 kann eine Dicke von z.B. 1 µm bis 100 µm aufweisen. Die Zwischenschicht 32 kann eine Dicke von z.B. 100 µm bis 500 µm aufweisen. Es ist zu beachten, dass die Zwischenschicht 32 und die Oberflächenschicht 33 auf der Außenoberfläche und den Längsendsflächen des Trägers 11 vorhanden sein können oder nicht.

[0025] Das Material für den Träger 11 (d.h. das Basismaterial 31, die Zwischenschicht 32 und die Oberflächenschicht 33) ist keramisch mit chemischer Stabilität beim Vorgang der Bildung der Trennmembran 12 auf der Oberfläche des Trägers 11. In der vorliegenden Ausführungsform wird der Träger 11 aus einem keramischen Sinterkörper gebildet. Beispiele für den keramischen Sinterkörper, der als Material für den Träger 11 gewählt wird, sind Aluminiumoxid, Siliziumdioxid, Mullit, Zirkoniumdioxid, Titandioxid, Yttriumdioxid, Silizium-

nitrid und Siliziumcarbid. Vorzugsweise kann der Träger 11 aus Aluminiumoxid, Mullit, Zirkoniumdioxid oder Titandioxid gebildet werden. Das Basismaterial 31, die Zwischenschicht 32 und die Oberflächenschicht 33 können aus demselben Material oder aus verschiedenen Materialien aufgebaut sind.

[0026] Der Träger 11 (d.h. das Basismaterial 31, die Zwischenschicht 32 und die Oberflächenschicht 33) kann beispielsweise ein anorganisches Bindematerial zum Binden von Aggregatteilchen des vorstehend genannten keramischen Sinterkörpers enthalten. Als anorganisches Bindematerial kann mindestens eines verwendet werden von: Titandioxid, Mullit, leicht sinterbarem Aluminiumoxid, Siliziumdioxid, Glasfritte, Tonmineralien und leicht sinterbarem Cordierit.

[0027] Der Träger 11 kann außerdem Alkalimetall und/oder Erdalkalimetall enthalten. Beispiele für das Alkalimetall und das Erdalkalimetall sind Natrium (Na), Kalium (K), Calcium (Ca) und Magnesium (Mg).

[0028] Der mittlere Porendurchmesser der Oberflächenschicht 33 ist kleiner als die mittleren Porendurchmesser der Zwischenschicht 32 und des Basismaterials 31. Der mittlere Porendurchmesser der Zwischenschicht 32 ist kleiner als der mittlere Porendurchmesser des Basismaterials 31. Das heißt, der mittlere Porendurchmesser der Zusatzschicht 34 ist kleiner als der mittlere Porendurchmesser des Basismaterials 31. Das Basismaterial 31 kann einen mittleren Porendurchmesser von beispielsweise größer als oder gleich $1\ \mu\text{m}$ und weniger als oder gleich $70\ \mu\text{m}$ aufweisen. Die Zwischenschicht 32 kann einen mittleren Porendurchmesser von z.B. größer als oder gleich $0,1\ \mu\text{m}$ und kleiner als oder gleich $10\ \mu\text{m}$ aufweisen. Die Oberflächenschicht 33 kann einen mittleren Porendurchmesser von z.B. größer als oder gleich $0,005\ \mu\text{m}$ und kleiner als oder gleich $2\ \mu\text{m}$ aufweisen. Die mittleren Porendurchmesser des Basismaterials 31, der Zwischenschicht 32 und der Oberflächenschicht 33 können z.B. mit einem Quecksilberporosimeter, einem Perm-Porometer oder einem Nano-Perm-Porometer gemessen werden.

[0029] Zum Beispiel können die Oberflächenschicht 33, die Zwischenschicht 32 und das Basismaterial 31 ungefähr die gleiche Porosität aufweisen. Man beachte, dass die Oberflächenschicht 33, die Zwischenschicht 32 und das Basismaterial 31 unterschiedliche Porositäten aufweisen können. Die Porosität der Oberflächenschicht 33, der Zwischenschicht 32 und des Basismaterials 31 kann beispielsweise höher als oder gleich 20 % und niedriger als oder gleich 50 % sein.

[0030] Die Porosität des Basismaterials 31 kann durch das folgende Verfahren ermittelt werden. Zunächst werden die Poren des Basismaterials 31 mit einem Harz gefüllt und einem mechanischen Poliervorgang unterzogen, um einen polierten Abschnitt herzustellen. Anschließend wird der polierte Abschnitt mit einem Lasermikroskop betrachtet, um ein Bild zu erhalten (nachstehend auch als „Bild des polierten Abschnitts“ bezeichnet). Anschließend wird das Bild des polierten Abschnitts bzw. Schnitts binarisiert und farbcodiert in Porenabschnitte, Teilchenabschnitte und anorganische Bindematerialabschnitte und das Verhältnis der Porenabschnitte im gesamten Bild des polierten Abschnitts wird als Porosität definiert. Die Porositäten der Zwischenschicht 32 und der Oberflächenschicht 33 können auch nach einem annähernd ähnlichen Verfahren ermittelt werden.

[0031] Ein durchschnittlicher Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen der Oberflächenschicht 33 (d.h. ein Median-Durchmesser (D_{50}) in der volumenbasierten Teilchendurchmesserverteilung) ist kleiner als ein durchschnittlicher Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen der Zwischenschicht 32. Der durchschnittliche Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen der Zwischenschicht 32 ist kleiner als ein durchschnittlicher Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen des Basismaterials 31. Die durchschnittlichen Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen des Basismaterials 31, der Zwischenschicht 32 und der Oberflächenschicht 33 können z.B. durch ein Laserbeugungsverfahren gemessen werden.

[0032] Fig. 3 ist ein Diagramm, das einen Teil des Bildes des polierten Abschnitts des Basismaterials 31 in vergrößerten Abmessungen zeigt. Das Basismaterial 31 enthält eine Vielzahl von groben Teilchen 311 (d.h. grobe Kristallteilchen) und eine Vielzahl von feinen Teilchen 312 (d.h. winzige Kristallteilchen) als Aggregatteilchen. Die groben Teilchen 311 sind Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von jeweils mehr als oder gleich $30\ \mu\text{m}$. Die groben Teilchen 311 weisen ein durchschnittliches Längenverhältnis von größer als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2 auf. Die feinen Teilchen 312 sind Keramikteilchen mit jeweils einem Teilchendurchmesser von mehr als oder gleich $1\ \mu\text{m}$ und kleiner als $30\ \mu\text{m}$. Im Basismaterial 31 ist das Verhältnis der Anzahl der groben Teilchen 311 (nachstehend auch als „Grobteilchenverhältnis“ bezeichnet) zu der Anzahl der feinen Teilchen 312 höher als oder gleich 0,05 und kleiner als oder gleich 0,3. Wie vorstehend beschrieben, können die groben Teilchen 311 und die feinen Teilchen 312 vorzugsweise Teilchen

aus Aluminiumoxid, Mullit, Zirkoniumdioxid oder Titanoxid sein. In der vorliegenden Ausführungsform sind die groben Teilchen 311 und die feinen Teilchen 312 Aluminiumoxidteilchen.

[0033] Der Teilchendurchmesser der Aggregatteilchen (d.h. der groben Teilchen 311 und der feinen Teilchen 312) des Basismaterials 31 kann gemäß dem folgenden Verfahren ermittelt werden. Zunächst werden die Poren des Basismaterials 31 mit einem Harz gefüllt und einem maschinellen Poliervorgang unterzogen, um einen polierten Abschnitt herzustellen. Dann wird die Aufmerksamkeit auf ein Aggregatteilchen in einem Bild gelenkt, das durch Betrachtung des polierten Abschnitts mit einem Lasermikroskop erhalten wurde (d.h. das Bild des polierten Abschnitts), und zwei parallele gerade Linien werden veranlasst, das eine Aggregatteilchen zu umschreiben. Dann wird die Ausrichtung der zwei geraden Linien geändert, wobei ein Zustand beibehalten wird, in dem die zwei geraden Linien das Aggregatteilchen umschreiben. Wenn die zwei geraden Linien so ausgerichtet sind, dass ein maximales Intervall zwischen ihnen besteht, wird dieses Intervall als Hauptachse des Aggregatteilchens festgelegt. Nimmt man diese Hauptachse als den Teilchendurchmesser des Aggregatteilchens an, so werden Aggregatteilchen, deren Hauptachsen größer als oder gleich $30\ \mu\text{m}$ sind, als grobe Teilchen 311 bezeichnet und Aggregatteilchen, deren Hauptachsen größer als oder gleich $1\ \mu\text{m}$ und kleiner als $30\ \mu\text{m}$ sind, werden als feine Teilchen 312 bezeichnet. Man beachte, dass Teilchen, deren Hauptachsen kleiner als $1\ \mu\text{m}$ sind, weder zu den groben Teilchen 311 noch zu den feinen Teilchen 312 gehören.

[0034] Das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 des Basismaterials 31 kann gemäß dem folgenden Verfahren ermittelt werden. Zunächst wird für jedes der 30 groben Teilchen 311 in dem vorstehend erwähnten Bild des polierten Abschnitts die Länge in der Richtung senkrecht zur Hauptachse (d.h. Nebenachse) ermittelt, und ein Wert, der sich aus der Division der Hauptachse durch die Nebenachse ergibt, wird als das Längenverhältnis des groben Teilchens 311 ermittelt. Dann wird ein arithmetisches Mittel der Längenverhältnisse der 30 groben Teilchen 311 als das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 erhalten.

[0035] Das Verhältnis der groben Teilchen kann nach dem folgenden Verfahren ermittelt werden. Zunächst wird das vorstehend erwähnte Bild des polierten Abschnitts bei 1000-facher Vergrößerung aufgenommen. Dann werden die Anzahl der groben Teilchen 311 und die Anzahl der feinen Teilchen 312 in dem Bild des polierten Abschnitts durch Betrachten gezählt. Wenn zu diesem Zeitpunkt die Anzahl der groben Teilchen 311 im Bild des polierten Abschnitts weniger als 50 beträgt, wird die Position auf dem Basismaterial 31 geändert, um erneut ein Bild des polierten Abschnitts aufzunehmen, und die Anzahl der groben Teilchen 311 und die Anzahl der feinen Teilchen 312 werden durch Betrachten gezählt. Dann wird die erfasste Anzahl der groben Teilchen 311 durch die erfasste Anzahl der feinen Teilchen 312 geteilt, um das Grobteilchenverhältnis zu erhalten.

[0036] Der Einschluss der groben Teilchen 311 als die Aggregatteilchen im Basismaterial 31 vergrößert die Zwischenräume zwischen den Aggregatteilchen und verringert dementsprechend den Permeabilitätswiderstand des Basismaterials 31. Andererseits verschlechtert der Einschluss der groben Teilchen 311 die Sinterung der Aggregatteilchen und schwächt die Einschnürung (Bindung) zwischen den Aggregatteilchen. Dies führt zu einer Verringerung der mechanischen Festigkeit (nachstehend auch einfach als „Festigkeit“ bezeichnet) des Basismaterials 31. Darüber hinaus verbessert der Einschluss der feinen Teilchen 312 als Aggregatteilchen im Basismaterial 31 die Sinterung der Aggregatteilchen und verstärkt die Einschnürung zwischen den Aggregatteilchen. Dies führt zu einer Erhöhung der Festigkeit des Basismaterials 31. Andererseits werden durch den Einschluss der feinen Teilchen 312 die Zwischenräume zwischen den Aggregatteilchen verringert und damit der Permeabilitätswiderstand des Basismaterials 31 erhöht. Das Basismaterial 31 ist in der Lage, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstandes als auch die Sicherung der Festigkeit zu erreichen, indem das Grobteilchenverhältnis wie vorstehend beschrieben höher als oder gleich 0,05 und niedriger als oder gleich 0,3 eingestellt wird.

[0037] Im Basismaterial 31 weisen die groben Teilchen 311 ein durchschnittliches Längenverhältnis von höher als oder gleich 1,5 auf, so dass die Zwischenräume zwischen benachbarten groben Teilchen 311 relativ linear werden (z.B. weisen die Zwischenräume einen geringeren Krümmungsgrad auf) im Vergleich zu dem Fall, in dem die groben Teilchen 311 ein durchschnittliches Längenverhältnis von kleiner als 1,5 aufweisen. Daher ist es möglich, den Permeabilitätswiderstand des Basismaterials 31 zu verringern. Außerdem weisen die groben Teilchen 311 ein durchschnittliches Längenverhältnis von weniger als oder gleich 2 auf, um einen relativ großen Kontakt zwischen benachbarten groben Teilchen 311 zu gewährleisten. Daher ist es möglich, eine Schwächung der Einschnürung zwischen den Aggregatteilchen zu verhindern. Dementspre-

chend ist das Basismaterial 31 in der Lage, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit zu erreichen.

[0038] Das Basismaterial 31 enthält ein anorganisches Bindematerial 313, das die groben Teilchen 311 und/oder die feinen Teilchen 312 bindet. Zum besseren Verständnis der Zeichnung ist das anorganische Bindemittel 313 in **Fig. 3** schraffiert dargestellt. In dem Bild des polierten Abschnitts kann das anorganische Bindematerial 313 beispielsweise durchscheinend sein. Das anorganische Bindematerial 313 kann die groben Teilchen 311 zusammenbinden, die groben Teilchen 311 und die feinen Teilchen 312 zusammenbinden oder die feinen Teilchen 312 zusammenbinden. Das anorganische Bindematerial 313 kann beispielsweise Glasfritte oder Titandioxid sein. Im Basismaterial 311 wird die Einschnürung zwischen den Aggregatteilchen durch das anorganische Bindematerial 313 verstärkt. Dadurch wird die Festigkeit des Basismaterials 31 verbessert.

[0039] In dem Basismaterial 31 ist es auch bevorzugt, dass die feinen Teilchen 312 von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben sein können. Dadurch werden die Korngrenzen um die feinen Teilchen 312 verringert und das Auftreten von Rissen, die durch Korngrenzen entstehen, verringert. Unter dem Gesichtspunkt der Verbesserung der Festigkeit des Basismaterials 311 infolge des verringerten Auftretens von Rissen ist es vorteilhaft, dass die Anzahl der feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, unter allen feinen Teilchen 312 größer als oder gleich 5 % der Gesamtzahl der feinen Teilchen 312 sein kann. Wenn andererseits die Menge des anorganischen Bindematerials 313 zunimmt, werden die Zwischenräume zwischen den Aggregatteilchen mit dem anorganischen Bindematerial 311 gefüllt und dies erhöht den Permeabilitätswiderstand des Basismaterials 31. Unter dem Gesichtspunkt der Verringerung des Permeabilitätswiderstands des Basismaterials 31 ist es bevorzugt, dass die Anzahl der feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, unter allen feinen Teilchen 312 weniger als oder gleich 55 % der Gesamtzahl der feinen Teilchen 312 beträgt. In der folgenden Beschreibung wird das Verhältnis der Anzahl der feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, zur Gesamtzahl der feinen Teilchen 312 auch als „Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen“ bezeichnet.

[0040] Ähnlich wie in **Fig. 3** ist in **Fig. 4** ein Teil des Bildes des polierten Abschnitts des Basismaterials 31 in vergrößerter Darstellung gezeigt. In der Darstellung von **Fig. 4** sind die feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, unter allen feinen Teilchen 312 schraffiert. Wie in **Fig. 4** gezeigt, sind die feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, feine Teilchen 312, die sich vollständig an Positionen befinden, die vom äußeren Rand des anorganischen Bindematerials 313 auf der Innenseite des äußeren Randes des anorganischen Bindematerials 313 beabstandet sind. Befindet sich zumindest ein Teil eines feinen Teilchens 312 außerhalb des äußeren Randes des anorganischen Bindematerials 313, so wird dieses feine Teilchen 312 als nicht vollständig von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben betrachtet. Selbst in dem Fall, in dem sich das gesamte feine Teilchen 312 auf der Innenseite des äußeren Randes des anorganischen Bindematerials 313 befindet, wird dieses feine Teilchen 312 auch als nicht vollständig von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben bestimmt, wenn der äußere Rand des feinen Teilchens 312 in Kontakt mit dem äußeren Rand des anorganischen Bindematerials 313 ist.

[0041] Die in **Fig. 2** gezeigte Trennmembran 12 ist auf der Innenoberfläche jeder Zelle 111 (d.h. auf der Oberflächenschicht 33 der Zusatzschicht 34) ausgebildet und bedeckt, wie vorstehend beschrieben, annähernd die gesamte Innenoberfläche. Die Trennmembran 12 ist eine poröse Membran mit winzigen Poren. Die Trennmembran 12 trennt eine bestimmte Substanz von einem Substanzgemisch, das eine Vielzahl von Substanztypen enthält. In der vorliegenden Ausführungsform kann die Trennmembran 12 eine annähernd zylinderartige Form aufweisen.

[0042] Die Trennmembran 12 kann vorzugsweise eine anorganische Membran sein, die aus einem anorganischen Material gebildet ist, und bevorzugter eine Zeolithmembran. Das heißt, der Trennmembrankomplex 1 kann vorzugsweise ein anorganischer Membrankomplex und bevorzugter ein Zeolithmembrankomplex sein. Die Zeolithmembran bezieht sich auf mindestens einen Zeolithen, der auf der Oberfläche des Trägers 11 zu einer Membran geformt ist, und enthält keine Membran, die durch einfaches Dispergieren von Zeolithteilchen in einer organischen Membran gebildet wird. In der vorliegenden Ausführungsform ist die Trennmembran 12 eine Zeolithmembran. Die Trennmembran 12 kann eine Zeolithmembran sein, die zwei oder mehr Arten von Zeolithen mit unterschiedlichen Strukturen oder Zusammensetzungen enthält.

[0043] Die Trennmembran 12 kann beispielsweise eine Dicke von größer als oder gleich 0,05 µm und weniger als oder gleich 50 µm, vorzugsweise größer als oder gleich 0,1 µm und weniger als oder gleich 20 µm und bevorzugter größer als oder gleich 0,5 µm und weniger als oder gleich 10 µm aufweisen. Eine Vergrößerung der Dicke der Trennmembran 12 verbessert die Trennleistung. Eine Verringerung der Dicke der Trennmembran 12 erhöht die Durchlässigkeit. Die Oberflächenrauheit (Ra) der Trennmembran 12 kann beispielsweise weniger als oder gleich 5 µm, vorzugsweise weniger als oder gleich 2 µm, bevorzugter weniger als oder gleich 1 µm und noch bevorzugter weniger als oder gleich 0,5 µm betragen. Die Trennmembran 12 kann einen Porendurchmesser von z.B. 0,2 nm bis 1 nm aufweisen. Der Porendurchmesser der Trennmembran 12 ist kleiner als der mittlere Porendurchmesser der Oberflächenschicht 33 des Trägers 11.

[0044] In dem Fall, in dem der Zeolith, aus dem die Trennmembran 12 aufgebaut ist, maximal aus einem n-gliedrigen Ring zusammengesetzt ist, wird angenommen, dass die Nebenachse der n-gliedrigen Ringpore der Porendurchmesser der Trennmembran 12 ist. Enthält der Zeolith eine Vielzahl von Arten von n-gliedrigen Ringporen, wobei n die gleiche Zahl ist, so wird die Nebenachse einer n-gliedrigen Ringpore mit der größten Nebenachse als Porendurchmesser der Trennmembran 12 angenommen. Man beachte, dass der n-gliedrige Ring sich auf einen Ring bezieht, in dem n Sauerstoffatome das Gerüst jeder Pore bilden und jedes Sauerstoffatom an T-Atome gebunden ist, die später beschrieben werden, um eine cyclische Struktur zu bilden. Der n-gliedrige Ring bezieht sich auch auf einen Ring, der ein Durchgangsloch (Kanal) bildet, und enthält keinen Ring, der kein Durchgangsloch bildet. Die n-gliedrige Ringpore bezieht sich auf eine aus einem n-gliedrigen Ring gebildete Pore. Unter dem Gesichtspunkt der Verbesserung der Selektivität ist es bevorzugt, dass der Zeolith, aus dem die vorstehend erwähnte Trennmembran 12 aufgebaut ist, maximal aus einem 8- oder weniger gliedrigen Ring (z.B. 6- oder 8-gliedriger Ring) aufgebaut ist.

[0045] Der Porendurchmesser der Trennmembran 12 ist eindeutig durch die Gerüststruktur des Zeoliths bestimmt und wird aus den Werten ermittelt, die in der „Database of Zeolite Structures“ [online], von der International Zeolite Association, Internet <URL:<http://www.iza-structure.org/databases/>>, angegeben sind.

[0046] Es gibt keine besonderen Beschränkungen hinsichtlich der Art des Zeoliths, aus dem die Trennmembran 12 aufgebaut ist, und der Zeolith kann zum Beispiel ein Zeolith vom AEI-, AEN-, AFN-, AFV-, AFX-, BEA-, CHA-, DDR-, ERI-, ETL-, FAU- (X-Typ, Y-Typ), GIS-, IHW-, LEV-, LTA-, LTJ-, MEL-, MFI-, MOR-, PAU-, RHO-, SOD- oder SAT-Typ sein. Ist der Zeolith ein Zeolith mit 8-gliedrigem Ring, kann der Zeolith beispielsweise ein Zeolith vom AEI-, AFN-, AFV-, AFX-, CHA-, DDR-, ERI-, ETL-, GIS-, IHW-, LEV-, LTA-, LTJ-, RHO- oder SAT-Typ sein. In der vorliegenden Ausführungsform ist der Zeolith, aus dem die Trennmembran 12 aufgebaut ist, ein Zeolith vom DDR-Typ.

[0047] Der Zeolith, aus dem die Trennmembran 12 aufgebaut ist, kann beispielsweise mindestens eines von Silizium (Si), Aluminium (Al) und Phosphor (P) als T-Atome (d.h. Atome, die sich im Zentrum des Sauerstofftetraeders (TO₄) befinden, aus dem der Zeolith aufgebaut ist) enthalten. Der Zeolith der Trennmembran 12 kann z.B. ein Zeolith sein, bei dem die T-Atome nur aus Si oder aus Si und Al aufgebaut sind, ein Zeolith vom AIPO-Typ, bei dem die T-Atome aus Al und P aufgebaut sind, ein Zeolith vom SAPO-Typ, bei dem die T-Atome aus Si, Al und P aufgebaut sind, ein Zeolith vom MAPSO-Typ, bei dem die T-Atome aus Magnesium (Mg), Si, Al und P aufgebaut sind, oder ein Zeolith vom ZnAPSO-Typ, bei dem die T-Atome aus Zink (Zn), Si, Al und P aufgebaut sind. Einige der T-Atome können durch andere Elemente ersetzt werden. Der Zeolith, der die Trennmembran 12 bildet, kann Alkalimetall enthalten. Das Alkalimetall kann z.B. Natrium (Na) oder Kalium (K) sein.

[0048] Wenn der Zeolith, aus dem die Trennmembran 12 aufgebaut ist, Si-Atome und Al-Atome enthält, kann das Si/Al-Verhältnis im Zeolith der Trennmembran 12 beispielsweise höher als oder gleich eins und niedriger als oder gleich hunderttausend sein. Das Si/Al-Verhältnis bezieht sich auf das Molverhältnis von Si-Elementen zu Al-Elementen, die im Zeolith der Trennmembran 12 enthalten sind. Das Si/Al-Verhältnis kann vorzugsweise höher als oder gleich 5, bevorzugter höher als oder gleich 20 und noch bevorzugter höher als oder gleich 100 sein. Vorzugsweise ist das Si/Al-Verhältnis möglichst hoch, da die Trennmembran 12 eine höhere Beständigkeit gegen Hitze und Säuren erreichen kann. Das Si/Al-Verhältnis kann z.B. durch Einstellen des Compoundierungsverhältnisses einer Si-Quelle und einer Al-Quelle in einer Ausgangsmateriallösung eingestellt werden, was später noch beschrieben wird.

[0049] Der Trennmembrankomplex 1 kann entweder die Zwischenschicht 32 oder die Oberflächenschicht 33 der Zusatzschicht 34 weglassen. Als weitere Alternative kann die Zusatzschicht 34 eine laminierte Struktur mit drei oder mehr Schichten aufweisen. Als weitere Alternative kann in dem Trennmembrankomplex 1 die

Zusatzschicht 34 weggelassen werden und das Basismaterial 31 allein als Träger 11 fungieren. In diesem Fall ist die Trennmembran 12 direkt auf der Oberfläche des Basismaterials 31 angeordnet.

[0050] Nachfolgend wird ein Beispiel für das Verfahren zur Herstellung des Trennmembrankomplexes 1 unter Bezugnahme auf **Fig. 5** beschrieben. Bei der Herstellung des Trennmembrankomplexes 1 wird zunächst der Träger 11 gebildet (Schritt S11). Konkret wird ein Grünkörper, der als Ausgangsmaterial für das Basismaterial 31 des Trägers 11 dient, hergestellt, indem z.B. Keramikteilchen, ein anorganisches Bindemittel, Wasser, ein Dispergiermittel und ein Verdickungsmittel miteinander verknetet werden. Anschließend wird der Grünkörper zu einem monolithischen Formkörper geformt, z.B. durch Strangpressen. Der Formkörper wird dann gebrannt, um das Basismaterial 31 zu erhalten.

[0051] Bei der vorstehend erwähnten Herstellung des Grünkörpers werden den als Aggregatteilchen dienenden Keramikteilchen (in der vorliegenden Ausführungsform Aluminiumoxidteilchen) beispielsweise 3 bis 25 Masseteile des anorganischen Bindematerials zugesetzt. Die Keramikteilchen enthalten grobe Ausgangsmaterialteilchen mit großen Teilchendurchmessern und feine Ausgangsmaterialteilchen mit kleinen Teilchendurchmessern. Der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Keramikteilchen (d.h. der in Prozent angegebene Wert und der sich aus der Division der Masse der groben Ausgangsmaterialteilchen durch die Gesamtmasse der groben Ausgangsmaterialteilchen und der feinen Ausgangsmaterialteilchen ergibt) kann z.B. im Bereich von 5 Masse-% bis 30 Masse-% liegen. In der volumenbasierten Teilchendurchmesserverteilung der groben Ausgangsmaterialteilchen liegt D_{10} im Bereich von 60 μm bis 100 μm , D_{50} (d.h. der durchschnittliche Teilchendurchmesser) liegt im Bereich von 80 μm bis 200 μm und D_{90} im Bereich von 200 μm bis 300 μm . Bei der volumenbasierten Teilchendurchmesserverteilung der feinen Ausgangsmaterialteilchen liegt D_{10} im Bereich von 3 μm bis 10 μm , D_{50} (d.h. der durchschnittliche Teilchendurchmesser) im Bereich von 20 μm bis 60 μm und D_{90} im Bereich von 60 μm bis 160 μm . Die Brenntemperatur für den vorstehend erwähnten Formkörper kann beispielsweise im Bereich von 500°C bis 1500°C liegen und beträgt in der vorliegenden Ausführungsform 1250°C. Die Brenndauer für den genannten Formkörper kann im Bereich von einer Stunde bis 100 Stunden liegen und beträgt in der vorliegenden Ausführungsform zwei Stunden.

[0052] Nachdem die Bildung des Basismaterials 31 beendet ist, wird die Zwischenschicht 32 auf den Innenoberflächen einer Vielzahl von Durchgangslöchern des Basismaterials 31 gebildet (d.h. Durchgangslöcher, die die Zellen 111 sein sollen), und die Oberflächenschicht 33 wird auf der Zwischenschicht 32 gebildet, um den Träger 11 zu bilden. Die Bildung der Zwischenschicht 32 und der Oberflächenschicht 33 kann z.B. durch ein Filtrationsabscheidungsverfahren erfolgen. Bei der Bildung der Zwischenschicht 32 werden zunächst die Aggregatteilchen der Zwischenschicht 32, ein organisches Bindematerial, ein pH-Einstellmittel, ein oberflächenaktives Mittel usw. zu Wasser gegeben und mit diesem gemischt, und das Ergebnis wird mit einer vorbestimmten Menge Wasser verdünnt, um eine Aufschlammung herzustellen. Dann wird die Aufschlammung in die vorstehend erwähnten Durchgangslöcher des Basismaterials 31 eingelassen, um eine Membran aus den Aggregatteilchen der Zwischenschicht 32 an den Innenoberflächen der Durchgangslöcher zu bilden. Danach wird diese Membran zusammen mit dem Basismaterial 31 gebrannt, um die Zwischenschicht 32 zu bilden. Die Bildung der Oberflächenschicht 33 erfolgt annähernd in gleicher Weise wie die Bildung der Zwischenschicht 32.

[0053] Nach der Bildung des Trägers 11 werden die für die Bildung der Trennmembran 12 verwendeten Impfkristalle synthetisiert und hergestellt (Schritt S12). Bei der Synthese der Impfkristalle wird ein Ausgangsmaterial, wie eine Si-Quelle, ein strukturgebendes Mittel (nachstehend auch als „SDA“ bezeichnet) usw., in einem Lösungsmittel gelöst oder dispergiert, um eine Ausgangsmateriallösung der Impfkristalle herzustellen. Anschließend wird die Ausgangsmateriallösung einer hydrothermischen Synthese unterzogen, und die entstandenen Kristalle werden gewaschen und getrocknet, um Zeolithpulver zu erhalten. Das Zeolithpulver kann in unveränderter Form als Impfkristalle verwendet werden oder durch Pulverisierung oder ein anderes Verfahren zu Impfkristallen verarbeitet werden. Es ist zu beachten, dass die Synthese der Impfkristalle in Schritt S12 parallel zu oder vor der vorstehend erwähnten Bildung des Trägers 11 in Schritt S11 durchgeführt werden kann.

[0054] Als Nächstes wird eine Dispersion, die durch Dispergieren der Impfkristalle in einem Lösungsmittel (z.B. Wasser oder Alkohol wie Ethanol) erhalten wurde, in die Zellen 111 des Trägers 11 eingebracht. Beispielsweise kann der Träger 11 auf eine Basis gelegt werden, so dass die Längsrichtung des Trägers 11 ungefähr parallel zur Schwerkraftrichtung verläuft, und die Dispersion wird von der oberen Öffnung der Zelle 111 in jede Zelle 111 eingelassen, so dass sich die Impfkristalle in der Dispersion auf den Innenoberflächen der Zellen 111 ablagern (Schritt S13). Insbesondere werden die Impfkristalle auf der Oberfläche der Zusatz-

schicht 34 abgelagert. Die in die Zellen 111 eingebrachte Dispersion wird aus den unteren Öffnungen der Zellen 111 ausgetragen.

[0055] Vorzugsweise kann der Schritt S13 mehrfach wiederholt werden (z.B. zweibis zehnmal). Bevorzugter ist es, wenn der Träger 11 während der Wiederholungen in Schritt S13 auf den Kopf gestellt wird. Auf diese Weise wird ein Träger mit Impfkristallabscheidung hergestellt, bei dem die Impfkristalle gleichmäßig auf den Innenoberflächen der Zellen 111 abgelagert werden. Es ist zu beachten, dass die Impfkristalle auch durch jedes andere Verfahren auf den Innenoberflächen der Zellen 111 abgeschieden werden können.

[0056] Dann wird der Träger 11 mit den darauf abgelagerten Impfkristallen in eine Ausgangsmateriallösung getaucht. Die Ausgangsmateriallösung kann z.B. durch Auflösen einer Si-Quelle, eines SDA usw. in einem Lösungsmittel hergestellt werden. Das Lösungsmittel in der Ausgangsmateriallösung kann z.B. Wasser oder Alkohol wie Ethanol sein. Das in der Ausgangsmateriallösung enthaltene SDA kann beispielsweise eine organische Verbindung sein. Als SDA kann z.B. 1-Adamantanamin verwendet werden.

[0057] Anschließend wird der Zeolith durch hydrothermische Synthese unter Verwendung der Impfkristalle als Keime gezüchtet, um die Trennmembran 12 auf der Innenoberfläche jeder Zelle 111 des Trägers 11 (d.h. auf der Zusatzschicht 34) zu bilden (Schritt S14). Die Temperatur der hydrothermischen Synthese kann vorzugsweise im Bereich von 120°C bis 200°C liegen und kann beispielsweise 160°C betragen. Die Dauer der hydrothermischen Synthese kann vorzugsweise im Bereich von fünf Stunden bis 100 Stunden liegen und kann beispielsweise 30 Stunden betragen.

[0058] Nach Beendigung der hydrothermischen Synthese werden der Träger 11 und die Trennmembran 12 mit entionisiertem Wasser gewaschen. Der Träger 11 und die Trennmembran 12 werden nach dem Waschen beispielsweise bei 80°C getrocknet. Nach dem Trocknen des Trägers 11 und der Trennmembran 12 wird die Trennmembran 12 einer Wärmebehandlung (d.h. Brennen) unterzogen, um das SDA in der Trennmembran 12 fast vollständig zu verbrennen und zu entfernen und um die Mikroporen in der Trennmembran 12 in die Trennmembran 12 eindringen zu lassen. Auf diese Weise erhält man den vorstehend erwähnten Trennmembrankomplex 1 (Schritt S15).

[0059] Nachfolgend wird die Trennung eines Substanzgemisches unter Verwendung des Trennmembrankomplexes 1 unter Bezugnahme auf die Fig. 6 und 7 beschrieben. Fig. 6 ist eine Schnittdarstellung einer Trenneinrichtung 2. Um das Verständnis der Zeichnung zu erleichtern, ist in Fig. 6 ein Schnitt durch den Trennmembrankomplex 1 in vereinfachter Form dargestellt. Fig. 7 ist ein Flussdiagramm, das die Trennung eines Substanzgemisches durch die Trenneinrichtung 2 zeigt.

[0060] Die Trenneinrichtung 2 führt dem Trennmembrankomplex 1 ein Substanzgemisch zu, das eine Vielzahl von Fluidtypen (d.h. Gas oder Flüssigkeit) enthält, und veranlasst eine Substanz mit hoher Permeabilität in dem Substanzgemisch, den Trennmembrankomplex 1 zu durchdringen, um die Substanz mit hoher Permeabilität von dem Substanzgemisch zu trennen. Die Trennung durch die Trenneinrichtung 2 kann zum Zweck der Extraktion einer Substanz mit hoher Permeabilität (nachstehend auch als „hochpermeable Substanz“ bezeichnet) aus dem Substanzgemisch oder zum Zweck der Kondensation einer Substanz mit niedriger Permeabilität (nachstehend auch als „niedrigpermeable Substanz“ bezeichnet) durchgeführt werden.

[0061] Das Substanzgemisch (d.h. ein Fluidgemisch) kann ein gemischtes Gas sein, das eine Vielzahl von Gasarten enthält, eine gemischte Lösung, die eine Vielzahl von Flüssigkeitsarten enthält, oder ein zweiphasiges Gas-Flüssigkeits-Fluid, das sowohl Gas als auch Flüssigkeit enthält, sein.

[0062] Das Substanzgemisch kann beispielsweise eine oder mehrere Arten von Substanzen enthalten, darunter Wasserstoff (H₂), Helium (He), Stickstoff (N₂), Sauerstoff (O₂), Wasser (H₂O), Kohlenmonoxid (CO), Kohlendioxid (CO₂), Stickstoffoxide, Ammoniak (NH₃), Schwefeloxide, Schwefelwasserstoff (H₂S), Schwefelfluoride, Quecksilber (Hg), Arsin (AsH₃), Cyanwasserstoff (HCN), Carbonylsulfid (COS), C1- bis C8-Kohlenwasserstoffe, organische Säuren, Alkohol, Mercaptane, Ester, Ether, Keton und Aldehyd. Die genannte Substanz mit hoher Permeabilität kann zum Beispiel eine oder mehrere Arten von Substanzen aus der Gruppe CO₂, NH₃ und H₂O sein. Es ist zu beachten, dass das Substanzgemisch und die Substanz mit hoher Permeabilität auch andere als die vorstehend beschriebenen Substanzen sein können.

[0063] Stickstoffoxide sind Verbindungen aus Stickstoff und Sauerstoff. Die genannten Stickstoffoxide können beispielsweise eine NO_x genannte Substanz wie Stickstoffmonoxid (NO), Stickstoffdioxid (NO₂), Dis-

stickstoffoxid (auch als Distickstoffmonoxid bezeichnet) (N_2O), Distickstofftrioxid (N_2O_3), Distickstofftetroxid (N_2O_4) oder Distickstoffpentoxid (N_2O_5) sein.

[0064] Schwefeloxide sind Verbindungen aus Schwefel und Sauerstoff. Die vorstehend genannten Schwefeloxide können beispielsweise eine SO_x genannte Substanz wie Schwefeldioxid (SO_2) oder Schwefeltrioxid (SO_3) sein.

[0065] Schwefelfluoride sind Verbindungen aus Fluor und Schwefel. Die genannten Schwefelfluoride können zum Beispiel Dischwefeldifluorid ($F-S-S-F$, $S=SF_2$), Schwefeldifluorid (SF_2), Schwefeltetrafluorid (SF_4), Schwefelhexafluorid (SF_6) oder Dischwefeldifluorid (S_2F_{10}) sein.

[0066] C1- bis C8-Kohlenwasserstoffe sind Kohlenwasserstoffe, die ein oder mehrere und acht oder weniger Kohlenstoffatome enthalten. Die C3- bis C8-Kohlenwasserstoffe können jeweils eine geradkettige Verbindung, eine Seitenkettenverbindung oder eine cyclische Verbindung sein. C2- bis C8-Kohlenwasserstoffe können jeweils entweder gesättigte Kohlenwasserstoffe (d.h. ohne Doppelbindungen und Dreifachbindungen in den Molekülen) oder ungesättigte Kohlenwasserstoffe (d.h. mit Doppelbindungen und/oder Dreifachbindungen in den Molekülen) sein. C1-bis C4-Kohlenwasserstoffe können z.B. Methan (CH_4), Ethan (C_2H_6), Ethylen (C_2H_4), Propan (C_3H_8), Propylen (C_3H_6), Normalbutan ($CH_3(CH_2)_2CH_3$), Isobuten ($CH(CH_3)_3$), 1-Buten ($CH_2=CHCH_2CH_3$), 2-Buten ($CH_3CH=CHCH_3$) oder Isobuten ($CH_2=C(CH_3)_2$) sein.

[0067] Die vorstehend erwähnten organischen Säuren können beispielsweise Carbonsäuren oder Sulfonsäuren sein. Die Carbonsäuren können zum Beispiel Ameisensäure (CH_2O_2), Essigsäure ($C_2H_4O_2$), Oxalsäure ($C_2H_2O_4$), Acrylsäure ($C_3H_4O_2$) oder Benzoesäure (C_6H_5COOH) sein. Die Sulfonsäuren können z.B. Ethansulfonsäure ($C_2H_6O_3S$) sein. Die organischen Säuren können entweder Kettenverbindungen oder cyclische Verbindungen sein.

[0068] Der vorstehend erwähnte Alkohol kann beispielsweise Methanol (CH_3OH), Ethanol (C_2H_5OH), Isopropanol (2-Propanol) ($CH_3CH(OH)CH_3$), Ethylenglykol ($CH_2(OH)CH_2(OH)$) oder Butanol (C_4H_9OH) sein.

[0069] Mercaptane sind organische Verbindungen mit endständigen Schwefelhydriden (SH) und werden auch als Thiol oder Thioalkohol bezeichnet. Die genannten Mercaptane können beispielsweise Methylmercaptan (CH_3SH), Ethylmercaptan (C_2H_5SH) oder 1-Propanthiol (C_3H_7SH) sein.

[0070] Der vorstehend erwähnte Ester kann zum Beispiel Ameisensäureester oder Essigsäureester sein.

[0071] Der vorstehend erwähnte Ether kann z.B. Dimethylether ($(CH_3)_2O$), Methylethylether ($C_2H_5OCH_3$), Diethylether ($(C_2H_5)_2O$) oder Tetrahydrofuran ($(CH_2)_4O$) sein.

[0072] Das vorstehend erwähnte Keton kann beispielsweise Aceton ($(CH_3)_2CO$), Methylethylketon ($C_2H_5COCH_3$) oder Diethylketon ($(C_2H_5)_2CO$) sein.

[0073] Der vorstehend erwähnte Aldehyd kann beispielsweise Acetaldehyd (CH_3CHO), Propionaldehyd (C_2H_5CHO) oder Butanal (Butyraldehyd) (C_3H_7CHO) sein.

[0074] Wie in **Fig. 6** gezeigt, enthält die Trenneinrichtung 2 den Trennmembrankomplex 1, eine Dichtungsvorrichtung 21, ein Gehäuse 22 und zwei Dichtungsbauteile 23. Der Trennmembrankomplex 1, die Dichtungsvorrichtung 21 und die Dichtungsbauteile 23 sind in dem Gehäuse 22 untergebracht. In der Darstellung von **Fig. 6** ist die Trennmembran 12 des Trennmembrankomplexes 1 schraffiert. Der Innenraum des Gehäuses 22 ist ein abgeschlossener Raum, der von dem Raum um das Gehäuse 22 herum isoliert ist. Das Gehäuse 22 ist mit einem Zuführer 26, einem ersten Sammler 27 und einem zweiten Sammler 28 verbunden.

[0075] Die Dichtungsvorrichtung 21 ist, wie vorstehend beschrieben, ein Bauteil, das an beiden Endabschnitten des Trägers 11 in Längsrichtung (d.h. in der Links-Rechts-Richtung in **Fig. 6**) befestigt ist und beide Längsendflächen des Trägers 11 sowie die Außenoberfläche des Trägers 11 in der Nähe dieser Endflächen abdeckt und abdichtet. In der vorliegenden Ausführungsform ist die Dichtungsvorrichtung 21 eine Glasversiegelung mit einer Dicke von 10 μm bis 50 μm . Das Material und die Form der Dichtungsvorrichtung 21 können nach Bedarf geändert werden. Es ist zu beachten, dass die Dichtungsvorrichtung 21 eine Vielzahl von Öffnungen aufweist, die die Vielzahl von Zellen 111 des Trägers 11 überlappen, so dass die beiden Längsenden jeder Zelle 111 nicht mit der Dichtungsvorrichtung 21 bedeckt sind. Dies ermöglicht das Einströmen und Ausströmen von Fluid von den Längsenden in die und aus den Zellen 111.

[0076] Das Gehäuse 22 ist ein annähernd zylinderförmiges, rohrförmiges Bauteil. Das Gehäuse 22 kann z.B. aus rostfreiem Stahl oder Kohlenstoffstahl aufgebaut sein. Die Längsrichtung des Gehäuses 22 ist ungefähr parallel zur Längsrichtung des Trennmembrankomplexes 1. Ein Längsende des Gehäuses 22 (d.h. das linke Ende in **Fig. 6**) ist mit einer Zufuhröffnung 221 versehen und das andere Längsende ist mit einer ersten Auslassöffnung 222 versehen. Die Zufuhröffnung 221 ist mit dem Zuführer 26 verbunden. Die erste Auslassöffnung 222 ist mit dem ersten Sammler 27 verbunden. Die Seitenfläche des Gehäuses 22 ist mit einer zweiten Auslassöffnung 223 versehen. Die zweite Auslassöffnung 223 ist mit dem zweiten Sammler 28 verbunden. Es ist zu beachten, dass Form und Material des Gehäuses 22 in unterschiedlicher Weise verändert werden können.

[0077] Die zwei Dichtungsbauteile 23 sind zwischen der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 in der Nähe der beiden Längsenden des Trennmembrankomplexes 1 angeordnet. Jedes Dichtungsbauteil 23 ist ein annähernd ringförmiges Bauteil, das aus einem gas- und fluidundurchlässigen Material aufgebaut ist. Die Dichtungsbauteile 23 können beispielsweise O-Ringe oder Packungen aus einem flexiblen Harz sein. Die Dichtungsbauteile 23 stehen in engem Kontakt mit der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 entlang des gesamten Umfangs des Trennmembrankomplexes 1. In dem in **Fig. 6** gezeigten Beispiel stehen die Dichtungsbauteile 23 in engem Kontakt mit der Außenoberfläche der Dichtungsvorrichtung 21 und sind indirekt über die Dichtungsvorrichtung 21 in engem Kontakt mit der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1. Alternativ können die Dichtungsbauteile 23 auch direkt in engem Kontakt mit der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 stehen. Der Raum zwischen jedem Dichtungsbauteil 23 und entweder der Dichtungsvorrichtung 21 oder der Außenoberfläche des Trennmembrankomplexes 1 sowie der Raum zwischen jedem Dichtungsbauteil 23 und der Innenoberfläche des Gehäuses 22 sind so abgedichtet, dass der Durchgang von Gas und Flüssigkeit nahezu oder vollständig verhindert wird. Es ist zu beachten, dass das Material für die Dichtungsbauteile 23 ein anderes als ein Harz sein kann und beispielsweise aus Karton, Metall oder einem anderen anorganischen Material aufgebaut sein kann.

[0078] Der Zuführer 26 führt dem Innenraum des Gehäuses 22 über die Zufuhröffnung 221 ein Substanzgemisch zu. Der Zuführer 26 kann beispielsweise einen Pumpmechanismus wie ein Gebläse oder eine Pumpe enthalten, der das Substanzgemisch in Richtung des Gehäuses 22 pumpt. Der Pumpmechanismus kann z.B. einen Temperaturregler und einen Druckregler enthalten, die die Temperatur bzw. den Druck des dem Gehäuse 22 zugeführten Substanzgemischs einstellen. Der erste Sammler 27 und der zweite Sammler 28 können beispielsweise ein Reservoir enthalten, in dem die aus dem Gehäuse 22 stammenden Substanzen gespeichert werden, oder ein Gebläse oder eine Pumpe, die diese Substanzen fördern.

[0079] Bei der Trennung eines Substanzgemischs wird zunächst der Trennmembrankomplex 1 hergestellt (Schritt S21 in **Fig. 7**). Konkret wird der Trennmembrankomplex 1 an der Innenseite des Gehäuses 22 angebracht. Dann führt der Zuführer 26 der Innenseite des Gehäuses 22 ein Substanzgemisch zu, das eine Vielzahl von Arten von Substanzen enthält, die jeweils eine unterschiedliche Permeabilität durch die Trennmembran 12 aufweisen, wie durch einen Pfeil 251 angedeutet. Das Substanzgemisch kann beispielsweise eine gemischte Lösung sein, die durch Mischen der Vielzahl von Arten von Flüssigkeiten gewonnen wird. Hauptkomponenten der gemischten Lösung können z.B. Wasser und Ethanol sein. Die gemischte Lösung kann außerdem eine andere Flüssigkeit als Wasser und Ethanol enthalten.

[0080] Das vom Zuführer 26 in das Gehäuse 22 gelieferte Substanzgemisch wird in jede Zelle 111 des Trägers 11 vom linken Ende des Trennmembrankomplexes 1 in der Zeichnung aus eingeleitet. Eine Substanz mit hoher Permeabilität, d.h. eine hochpermeable Substanz, in dem Substanzgemisch durchdringt die Trennmembran 12, die auf der Innenoberfläche jeder Zelle 111 und des Trägers 11 ausgebildet ist, und wird von der äußeren Oberfläche des Trägers 11 abgeleitet. Auf diese Weise wird die hochpermeable Substanz (z.B. Wasser) von einer niedrigerpermeablen Substanz (z.B. Ethanol) getrennt, die eine Substanz mit niedriger Permeabilität in dem Substanzgemisch ist (Schritt S22).

[0081] Eine von der Außenoberfläche des Trägers 11 abgeleitete Substanz (nachstehend als „permeierte Substanz“ bezeichnet) wird durch die zweite Auslassöffnung 223 zu dem zweiten Sammler 28 geleitet, wie durch einen Pfeil 253 angezeigt, und dann von dem zweiten Sammler 28 gesammelt. Die permeierte Substanz kann neben der vorstehend erwähnten hochpermeablen Substanz auch eine niedrigerpermeable Substanz enthalten, die die Trennmembran 12 durchdrungen hat.

[0082] In dem Substanzgemisch treten andere Substanzen als die Substanzen, die die Trennmembran 12 und den Träger 11 durchdrungen haben (nachstehend als „nicht permeierte Substanzen“ bezeichnet), durch

jedes Durchgangsloch 111 des Trägers 11 von der linken Seite zur rechten Seite in der Zeichnung und werden durch den ersten Sammler 27 durch die erste Auslassöffnung 222 gesammelt, wie durch einen Pfeil 252 angezeigt. Die nicht permeierten Substanzen können zusätzlich zu der vorstehend erwähnten niedrigerpermeablen Substanz eine hochpermeable Substanz enthalten, die die Trennmembran 12 nicht durchdrungen hat. Die vom ersten Sammler 27 gesammelte nichtpermeable Substanz kann beispielsweise zum Zuführer 26 umgewälzt und wieder dem Gehäuse 22 zugeführt werden.

[0083] Nachstehend werden die Trennmembrankomplexe 1 gemäß den Beispielen 1 bis 6 und den Vergleichsbeispielen 1 bis 6 unter Bezugnahme auf die Tabellen 1 und 2 beschrieben. Tabelle 1 gibt Auskunft über das Ausgangsmaterial des Basismaterials 31 des Trennmembrankomplexes 1. Tabelle 2 zeigt den Zusammenhang zwischen den physikalischen Eigenschaften der Teilchen im Basismaterial 31 jedes Trennmembrankomplexes 1 (d.h. die physikalischen Eigenschaften der gesinterten Teilchen), dem Permeabilitäts-widerstand und der Festigkeit.

[0084] Tabelle 1

	Grobe Ausgangsmaterialteilchen	Feine Ausgangsmaterialteilchen	Gehalt an groben Ausgangsmaterialteilchen (Masse-%)	anorganisches Bindungsmaterial (Masseteilchen)
	D ₅₀ (µm)	D ₅₀ (µm)		
Beispiel 1	90	40	30	10
Beispiel 2	60	20	5	20
Beispiel 3	90	40	20	18
Beispiel 4	60	20	5	15
Beispiel 5	90	40	20	3
Beispiel 6	60	20	5	25
Vergleichsbeispiel 1	120	40	40	15
Vergleichsbeispiel 2	-	20	0	15
Vergleichsbeispiel 3	90	40	20	10
Vergleichsbeispiel 4	90	40	20	15
Vergleichsbeispiel 5	60	20	7	15
Vergleichsbeispiel 6	60	20	3	10

[0084] Tabelle 2

	Physikalische Eigenschaften der Teilchen			Bewertung	
	Verhältnis grober Teilchen	Durchschnittliches Längenverhältnis von groben Teilchen	Verhältnis von umgebenden feinen Teilchen (%)	Permeabilitätswiderstand	Festigkeit
Beispiel 1	0,293	1,9	10	⊙	⊙
Beispiel 2	0,052	1,9	40	⊙	⊙
Beispiel 3	0,295	1,5	31	⊙	⊙
Beispiel 4	0,055	1,5	20	⊙	⊙
Beispiel 5	0,295	1,9	5	⊙	○
Beispiel 6	0,055	1,5	55	○	⊙

	Physikalische Eigenschaften der Teilchen			Bewertung	
	Verhältnis grober Teilchen	Durchschnittliches Längenverhältnis von groben Teilchen	Verhältnis von umgebenden feinen Teilchen (%)	Permeabilitätswiderstand	Festigkeit
Vergleichsbeispiel 1	0,343	1,9	21	⊙	X
Vergleichsbeispiel 2	0,025	1,9	20	X	⊙
Vergleichsbeispiel 3	0,297	1,2	15	X	⊙
Vergleichsbeispiel 4	0,296	2,5	23	⊙	X
Vergleichsbeispiel 5	0,063	2,5	20	⊙	X
Vergleichsbeispiel 6	0,053	1,2	15	X	⊙

[0084] In Beispiel 1 wurde der Trennmembrankomplex 1 durch ein Herstellungsverfahren ähnlich den vorstehend beschriebenen Schritten S11 bis S15 hergestellt. Bei der Herstellung des Grünkörpers, der als Ausgangsmaterial für das Basismaterial 31 in Schritt S11 dient, wurden 10 Masseteile Glas, das als anorganisches Bindematerial dient, zu 100 Masseteilen Aluminiumoxidteilchen, die als Aggregatteilchen dienen, hinzugefügt. Der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen an den Aluminiumoxidteilchen (d.h. die groben Ausgangsmaterialteilchen und die feinen Ausgangsmaterialteilchen) betrug 30 Masse-%. Die D_{50} der feinen Ausgangsmaterialteilchen betrug 40 μm , während die D_{50} der groben Ausgangsmaterialteilchen 90 μm betrug. Die Brenntemperatur und die Brenndauer für den Formkörper, der zum Basismaterial 31 wurde, wurden auf 1250°C bzw. zwei Stunden festgelegt. Die in Schritt S12 synthetisierten Impfkristalle waren Zeolithkristalle vom DDR-Typ. Die in Schritt S14 in jeder Zelle 111 gebildete Trennmembran 12 war eine Zeolithmembran vom DDR-Typ.

[0085] In dem in Beispiel 1 hergestellten Trennmembrankomplex 1 betragen die physikalischen Eigenschaften der Teilchen des Basismaterials 31, d.h. das Verhältnis der groben Teilchen, 0,293, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,9 und das Verhältnis der umgebenden feinen Teilchen 10 %.

[0086] In Beispiel 1 wurde die Wasserpermeabilität des Trennmembrankomplexes 1 wie nachfolgend beschrieben gemessen, um den Permeabilitätswiderstand zu bewerten. Zunächst wurde der Trennmembrankomplex 1 an der Innenseite des Gehäuses 22 der vorstehend erwähnten Trenneinrichtung 2 angebracht und eine gemischte Lösung aus Wasser und Ethanol vom Zuführer 26 in das Gehäuse 22 eingefüllt. In der gemischten Lösung betrug das Gewichtsverhältnis von Wasser und Ethanol 50:50. Die Temperatur der in das Gehäuse 22 eingebrachten gemischten Lösung wurde auf 60°C eingestellt. Unter der Annahme, dass der Druck auf der stromabwärts gelegenen Seite der Trennmembran 12, d.h. der Permeatdruck, auf 50 Torr (ca. 6,666 kPa) eingestellt wurde, wurde die Trennung der gemischten Lösung durch ein Pervaporationsverfahren (sog. PV-Verfahren) durchgeführt, um die Menge der permeierten Substanzen zu messen, die den Trennmembrankomplex 1 durchdrungen hatten (d.h. die Permeanz). Darüber hinaus wurde die Dichte der durchgelassenen Substanzen mit einem Dichteindikator gemessen, um das Verhältnis von Wasser und Ethanol in der durchgelassenen Substanz zu erhalten (nachstehend auch als „Wasser/Ethanol-Verhältnis“ bezeichnet). Danach wurden die vorstehend erwähnte Permeanz und das vorstehend erwähnte Wasser-/Ethanol-Verhältnis als Basis verwendet, um die Wassermenge zu erhalten, die den Trennmembrankomplex 1 durchdrungen hatte (d.h. die Wasserpermeabilität).

[0087] Wenn die Wasserpermeabilität größer oder gleich 2,8 $\text{kg/m}^2\text{h}$ war, wurde in Tabelle 1 in der Spalte „Permeabilitätswiderstand“ ein „Doppelkreis“ angegeben, der anzeigt, dass der Permeabilitätswiderstand günstig niedrig war. Wenn die Wasserpermeabilität höher als oder gleich 2,3 $\text{kg/m}^2\text{h}$ und kleiner als 2,8 $\text{kg/m}^2\text{h}$ war, wurde in der Spalte „Permeabilitätswiderstand“ ein „offener Kreis“ angegeben, der anzeigt, dass der Permeabilitätswiderstand relativ gering war. Wenn die Wasserpermeabilität weniger als 2,3 $\text{kg/m}^2\text{h}$ betrug, wurde in der Spalte „Permeabilitätswiderstand“ ein „Kreuz“ angegeben, was bedeutet, dass der Per-

meabilitätswiderstand relativ hoch war. In Beispiel 1 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0088] In Beispiel 1 wurde das in jede Zelle 111 des Trennmembrankomplexes 1 eingelassene Wasser unter Druck gesetzt, um die Innendruck-Bruchfestigkeit (d.h. die Druckfestigkeit) zu messen, bei der der Trennmembrankomplex 1 brach, und um dadurch die Festigkeit des Trennmembrankomplexes 1 zu bewerten. Wenn die Druckfestigkeit höher als oder gleich 20 MPa war, wurde in Tabelle 1 in der Spalte „Festigkeit“ ein „Doppelkreis“ angegeben, der anzeigt, dass die Festigkeit günstig hoch war. Wenn die Druckfestigkeit höher als oder gleich 18 MPa und niedriger als 20 MPa war, wurde in der Spalte „Festigkeit“ ein „offener Kreis“ angegeben, der anzeigt, dass die Festigkeit relativ hoch war. Wenn die Druckfestigkeit unter 18 MPa lag, wurde in der Spalte „Festigkeit“ ein „Kreuz“ als Hinweis auf eine niedrige Festigkeit eingetragen. In Beispiel 1 wurde die Festigkeit mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0089] Beispiel 2 war ähnlich wie Beispiel 1, außer dass 20 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden, dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen 5 Massenprozent betrug, dass D_{50} der feinen Ausgangsmaterialteilchen 20 μm betrug und dass D_{50} der groben Ausgangsmaterialteilchen 60 μm betrug. Im Basismaterial 31 des in Beispiel 2 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,052, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,9 und das Verhältnis der umgebenden feinen Teilchen 40%. In Beispiel 2 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Doppelkreis und die Festigkeit ebenfalls mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0090] Beispiel 3 war ähnlich wie Beispiel 1, außer dass 18 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden und dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen 20 Massenprozent betrug. Im Basismaterial 31 des in Beispiel 3 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,295, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,5 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 31 %. In Beispiel 3 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Doppelkreis und die Festigkeit ebenfalls mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0091] Beispiel 4 war ähnlich wie Beispiel 2, außer dass 15 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden. Im Basismaterial 31 des in Beispiel 4 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,055, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,5 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 20%. In Beispiel 4 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Doppelkreis und die Festigkeit ebenfalls mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0092] Beispiel 5 war ähnlich wie Beispiel 3, außer dass 3 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden. Im Basismaterial 31 des in Beispiel 5 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,295, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,9 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 5%. In Beispiel 5 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit dem Doppelkreis und die Festigkeit mit dem offenen Kreis gekennzeichnet.

[0093] Beispiel 6 war ähnlich wie Beispiel 2, außer dass 25 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden. In dem Basismaterial 31 des in Beispiel 6 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,055, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,5 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 55%. In Beispiel 6 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit dem offenen Kreis und die Festigkeit mit dem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0094] Vergleichsbeispiel 1 war ähnlich wie Beispiel 1, außer dass 15 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden, dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen 40 Massenprozent betrug und dass D_{50} der groben Ausgangsmaterialteilchen 120 μm war. Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 1 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,343, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,9 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 21 %. In Vergleichsbeispiel 1 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit dem Doppelkreis und die Festigkeit mit dem Kreuz gekennzeichnet.

[0095] Vergleichsbeispiel 2 war ähnlich wie Beispiel 4, außer dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 0 Massenprozent betrug (d.h., die Aluminiumoxidteilchen enthielten keine groben Ausgangsmaterialteilchen). Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 2 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,025, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,9 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 20%. In Vergleichsbeispiel 2 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Kreuz und die Festigkeit mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0096] Vergleichsbeispiel 3 war ähnlich wie Beispiel 1, mit der Ausnahme, dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 20 Massenprozent betrug. Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 3 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,297, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,2 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 15%. In Vergleichsbeispiel 3 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Kreuz und die Festigkeit mit einem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0097] Vergleichsbeispiel 4 war ähnlich wie Vergleichsbeispiel 3, mit der Ausnahme, dass 15 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden. Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 4 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,296, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 2,5 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 23 %. In Vergleichsbeispiel 4 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit einem Doppelkreis und die Festigkeit mit einem Kreuz gekennzeichnet.

[0098] Vergleichsbeispiel 5 war ähnlich wie Beispiel 4, mit der Ausnahme, dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 7 Massenprozent betrug. Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 5 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,063, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 2,5 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 20 %. In Vergleichsbeispiel 5 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit dem Doppelkreis und die Festigkeit mit dem Kreuz gekennzeichnet.

[0099] Vergleichsbeispiel 6 war ähnlich wie Vergleichsbeispiel 5, außer dass 10 Masseteile des anorganischen Bindematerials zu 100 Masseteilen der Aluminiumoxidteilchen in Schritt S11 hinzugefügt wurden und dass der Gehalt der groben Ausgangsmaterialteilchen in den Aluminiumoxidteilchen 3 Massenprozent betrug. Im Basismaterial 31 des in Vergleichsbeispiel 6 hergestellten Trennmembrankomplexes 1 betrug das Verhältnis der groben Teilchen 0,053, das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 1,2 und das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen 15%. In Vergleichsbeispiel 6 wurde der Wasserpermeabilitätswiderstand mit dem Kreuz und die Festigkeit mit dem Doppelkreis gekennzeichnet.

[0100] Vergleiche der Beispiele 1 bis 6 und der Vergleichsbeispiele 1 bis 2 zeigen, dass das Verhältnis der groben Teilchen vorzugsweise höher als oder gleich 0,05 und niedriger als oder gleich 0,3 ist, um sowohl eine Verringerung des Wasserpermeabilitätswiderstands des Basismaterials 31 als auch die Sicherung der Festigkeit des Basismaterials 31 zu erreichen. Vergleiche der Beispiele 1 bis 6 und der Vergleichsbeispiele 3 bis 6 zeigen auch, dass das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 vorzugsweise größer als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2 ist, und zwar sowohl unter dem Gesichtspunkt der Verringerung des Permeabilitätswiderstands des Basismaterials 31 als auch der Sicherung der Festigkeit des Basismaterials 31.

[0101] Vergleiche der Beispiele 1 bis 4 und der Beispiele 5 und 6 zeigen, dass das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen unter dem Gesichtspunkt der weiteren Verbesserung der Festigkeit des Basismaterials 31 vorzugsweise größer als 5 % ist. Auch unter dem Gesichtspunkt der weiteren Verringerung des Wasserpermeabilitätswiderstands des Basismaterials 31 ist das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen vorzugsweise niedriger als 55 %.

[0102] Wie vorstehend beschrieben, umfasst das poröse keramische Basismaterial (d.h. das Basismaterial 31), das zum Tragen der Trennmembran 12 verwendet wird, die Vielzahl von groben Teilchen 311, die jeweils ein Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von mehr als oder gleich 30 μm sind, und die Vielzahl von feinen Teilchen 312, die jeweils ein Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von mehr als oder gleich 1 μm und weniger als 30 μm sind. Das Verhältnis zwischen der Anzahl der groben Teilchen 311 und der Anzahl der feinen Teilchen 312 (d.h. das Verhältnis der groben Teilchen) ist größer als oder gleich 0,05 und kleiner als oder gleich 0,3. Das durchschnittliche Längenverhältnis der groben Teilchen 311 ist größer als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2. Dadurch kann das Basismaterial 31, wie vorstehend

beschrieben, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit erreichen.

[0103] Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass das Basismaterial 31 weiterhin das anorganische Bindematerial 313 enthält, das die groben Teilchen 311 und/oder die feinen Teilchen 312 bindet. Die Anzahl der feinen Teilchen 312, deren gesamter Umfang von dem anorganischen Bindematerial 313 umgeben ist, kann vorzugsweise mehr als 5% und weniger als 55% der Gesamtzahl der feinen Teilchen 312 betragen. Dadurch wird die Festigkeit des Basismaterials 31 weiter verbessert und der Permeationswiderstand weiter vermindert.

[0104] Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass das Basismaterial 31 eine Porosität von mehr als oder gleich 20 % und weniger als oder gleich 50 % aufweisen kann. Dies ermöglicht es dem Basismaterial 311 günstiger, sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstands als auch die Sicherung der Festigkeit zu erreichen.

[0105] Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass die groben Teilchen 311 und die feinen Teilchen 312 Teilchen aus Aluminiumoxid, Mullit, Zirkoniumdioxid oder Titanoxid sind. Dies erhöht die Haftfestigkeit des Basismaterials 31 und der Trennmembran 12, wenn die Trennmembran 12 direkt auf dem Basismaterial 31 vorgesehen ist. Dementsprechend ist es möglich, die Trennmembran 12 stabil zu halten.

[0106] Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass das Basismaterial 31 eine säulenartige Form aufweist, die sich in Längsrichtung erstreckt und die Zellen 11 enthält, die das Basismaterial 31 in Längsrichtung durchdringen. Auf diese Weise kann durch die Übernahme der vorstehend erwähnten Struktur auch in den monolithischen oder wabenförmigen Trennmembrankomplex 1 mit dem Basismaterial 31 sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstandes als auch die Sicherung der Festigkeit erreicht werden.

[0107] Vorzugsweise kann der poröse keramische Träger (d.h. der Träger 11), der zum Tragen der Trennmembran 12 verwendet wird, das vorstehend erwähnte Basismaterial 31 und die poröse keramische Zusatzschicht (d.h. die Zusatzschicht 34) enthalten, die auf der Oberfläche des Basismaterials 31 vorgesehen ist und einen mittleren Porendurchmesser aufweist, der kleiner als der mittlere Porendurchmesser des Basismaterials 31 ist. Dadurch wird die Haftfestigkeit des Trägers 11 und der Trennmembran 12 erhöht und die Trennmembran 12 kann stabil gelagert werden.

[0108] Der vorstehend erwähnte Trennmembrankomplex 1 enthält entweder das vorstehend erwähnte Basismaterial 31 oder den vorstehend erwähnten Träger 11 und die Trennmembran 12, die auf der Oberfläche des Basismaterials 31 oder auf der Zusatzschicht 34 des Trägers 11 vorgesehen ist. Dadurch kann der Trennmembrankomplex 1 sowohl eine Verringerung des Permeabilitätswiderstandes als auch die Sicherung der Festigkeit erreichen.

[0109] Wie vorstehend beschrieben, ist es bevorzugt, dass die Trennmembran 12 eine Zeolithmembran sein kann. Wenn die Trennmembran 12 aus Zeolithkristallen mit gleichmäßigem Porendurchmesser gebildet wird, ist es möglich, eine selektive Permeation einer hochpermeablen Substanz vorteilhaft zu erreichen. Dadurch ist es möglich, eine hochpermeable Substanz aus einem Substanzgemisch effizient zu trennen.

[0110] Bevorzugter kann der Zeolith, aus dem die Zeolithmembran aufgebaut ist, aus einem maximal 8- oder weniger gliedrigen Ring aufgebaut sein. Dadurch lässt sich eine selektive Permeation einer hochpermeablen Substanz mit einer relativ kleinen Molekülgröße günstiger erreichen. Dadurch ist es möglich, eine hochpermeable Substanz aus einem Substanzgemisch effizienter abzutrennen.

[0111] Das Basismaterial 31, der Träger 11 und der vorstehend beschriebene Trennmembrankomplex 1 können auf verschiedene Weise modifiziert werden.

[0112] Zum Beispiel kann die Porosität des Basismaterials 31 weniger als 20% oder mehr als 50% betragen. Das Verhältnis der umgebenen feinen Teilchen im Basismaterial 31 kann niedriger als oder gleich 5% sein oder höher als oder gleich 55% sein.

[0113] In dem Trennmembrankomplex 1 kann der Zeolith, aus dem die Trennmembran 12, die eine Zeolithmembran ist, aufgebaut ist, maximal mit einem mehr als 8-gliedrigen Ring aufgebaut sein. Die Trennmembran 12 ist nicht auf eine Zeolithmembran beschränkt und kann eine anorganische Membran, wie eine Siliziumdioxidmembran oder eine Kohlenstoffmembran, oder eine organische Membran, wie eine

Polyimidmembran oder eine Silikonmembran, oder eine metallorganische Gerüstmembran (MOF) sein. Der Trennmembrankomplex 1 kann zusätzlich zu der Trennmembran 12 eine Funktionsmembran oder eine Schutzmembran enthalten, die auf die Trennmembran 12 laminiert ist. Eine solche Funktions- oder Schutzmembran kann eine Zeolithmembran, eine andere anorganische Membran als eine Zeolithmembran oder eine organische Membran oder eine MOF-Membran sein.

[0114] Der Trennmembrankomplex 1 muss nicht notwendigerweise durch das vorstehend genannte Herstellungsverfahren (Schritte S11 bis S15) hergestellt werden, sondern kann auch durch ein beliebiges anderes Herstellungsverfahren hergestellt werden.

[0115] Der Trennmembrankomplex 1 kann für die Trennung eines Substanzgemisches oder für jeden anderen Zweck in verschiedenen Einrichtungen verwendet werden, die sich in ihrer Struktur von der vorstehend erwähnten Trenneinrichtung 2 unterscheiden.

[0116] Die Konfigurationen der vorstehend beschriebenen bevorzugten Ausführungsform und Variationen können in geeigneter Weise kombiniert werden, solange es keine gegenseitigen Unstimmigkeiten gibt.

[0117] Obwohl die Erfindung im Einzelnen gezeigt und beschrieben wurde, ist die vorangehende Beschreibung in allen Aspekten erläuternd und nicht einschränkend. Es versteht sich daher, dass zahlreiche Modifizierungen und Variationen entwickelt werden können, ohne vom Umfang der Erfindung abzuweichen.

INDUSTRIELLE ANWENDBARKEIT

[0118] Das keramische Basismaterial und der keramische Träger gemäß der vorliegenden Erfindung können zur Unterstützung einer Zeolithmembran verwendet werden, die als Trennmembran verwendbar ist. Der Trennmembrankomplex gemäß der vorliegenden Erfindung kann z.B. als Trennmembran für verschiedene Substanzen oder als Adsorptionsmembran für verschiedene Substanzen eingesetzt werden.

Bezugszeichenliste

1	Trennmembrankomplex
11	Träger
12	Trennmembran
31	Basismaterial
34	Zusatzschicht
111	Zelle
311	grobes Teilchen
312	feines Teilchen
313	anorganisches Bindematerial
S11 bis S15, S21 bis S22	Schritt

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- JP2022-29265 [0002]
- S62-252381 [0004]
- 2011-201722 [0004]
- 2008-156170 [0004]

Zitierte Nicht-Patentliteratur

- Database of Zeolite Structures“ [online], von der International Zeolite Association, Internet <URL: <http://www.iza-structure.org/databases/> [0045]

Patentansprüche

1. Poröses keramisches Basismaterial, das zum Tragen einer Trennmembran verwendet wird, wobei das keramische Basismaterial umfasst:
eine Vielzahl von groben Teilchen, die jeweils ein Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 30 μm sind; und
eine Vielzahl von feinen Teilchen, die jeweils Keramikteilchen mit einem Teilchendurchmesser von größer als oder gleich 1 μm und weniger als 30 μm sind,
das Verhältnis der Gesamtzahl der Vielzahl von groben Teilchen zur Gesamtzahl der Vielzahl von feinen Teilchen höher als oder gleich 0,05 und kleiner als oder gleich 0,3 ist, und
die Vielzahl der groben Teilchen ein durchschnittliches Längenverhältnis von höher als oder gleich 1,5 und kleiner als oder gleich 2 aufweist.
2. Keramisches Basismaterial nach Anspruch 1, weiterhin umfassend ein anorganisches Bindematerial, das die Vielzahl der groben Teilchen und/oder die Vielzahl der feinen Teilchen bindet,
wobei die Anzahl der feinen Teilchen, deren gesamte Umfänge von dem anorganischen Bindematerial umgeben sind, unter der Vielzahl der feinen Teilchen größer als 5 % und weniger als 55 % der Gesamtzahl der Vielzahl der feinen Teilchen beträgt.
3. Keramisches Basismaterial nach Anspruch 1 oder 2, wobei das keramische Basismaterial eine Porosität von höher als oder gleich 20% und kleiner als oder gleich 50% aufweist.
4. Keramisches Basismaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei die Vielzahl der groben Teilchen und die Vielzahl der feinen Teilchen Teilchen aus Aluminiumoxid, Mullit, Zirkoniumdioxid oder Titanoxid sind.
5. Keramisches Basismaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei das keramische Basismaterial eine sich in Längsrichtung erstreckende säulenartige Form aufweist, das keramische Basismaterial eine Vielzahl von Zellen enthält, die das keramische Basismaterial in der Längsrichtung durchdringen.
6. Poröser Keramikträger, der zum Tragen einer Trennmembran verwendet wird, wobei der Keramikträger umfasst:
das keramische Basismaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 5; und
eine poröse keramische Zusatzschicht, die auf einer Oberfläche des keramischen Basismaterials vorgesehen ist und einen mittleren Porendurchmesser aufweist, der kleiner als der mittlere Porendurchmesser des keramischen Basismaterials ist.
7. Trennmembrankomplex, umfassend:
entweder das keramische Basismaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 5 oder den Keramikträger nach Anspruch 6; und
eine Trennmembran, die auf einer Oberfläche des keramischen Basismaterials oder auf der keramischen Zusatzschicht des Keramikträgers vorgesehen ist.
8. Trennmembrankomplex nach Anspruch 7, wobei die Trennmembran eine Zeolithmembran ist.
9. Trennmembrankomplex nach Anspruch 8, wobei ein Zeolith, der die Zeolithmembran ausmacht, aus einem maximal 8- oder weniger gliedrigen Ring aufgebaut ist.

Es folgen 4 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

Fig. 1

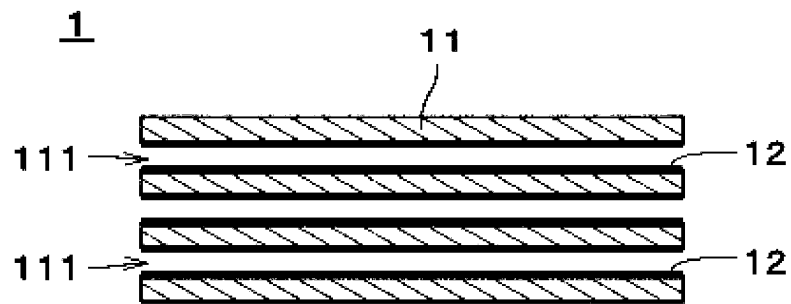


Fig. 2

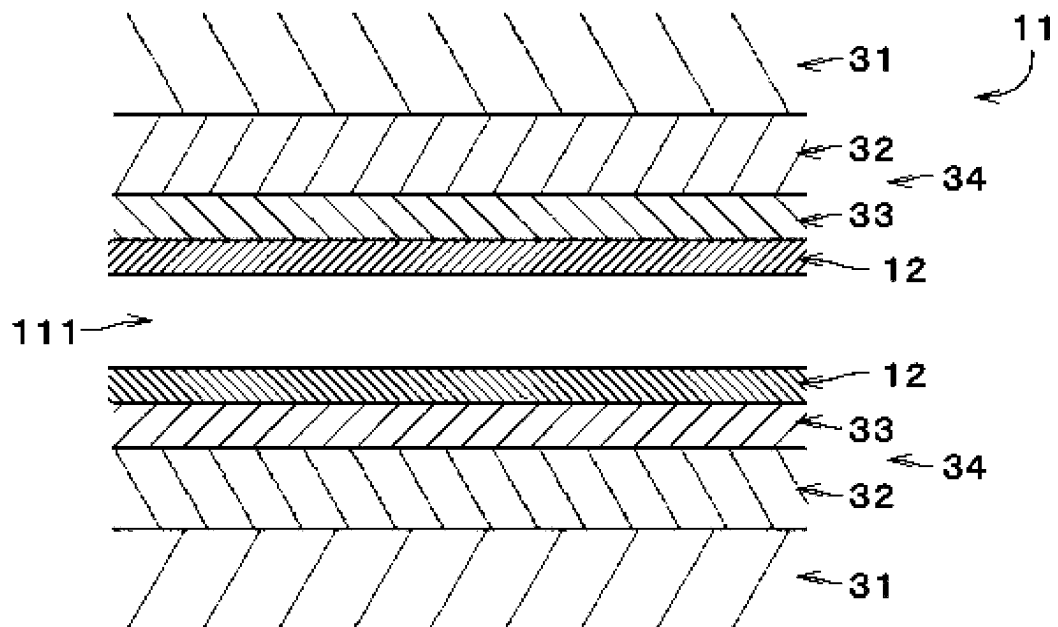


Fig. 3

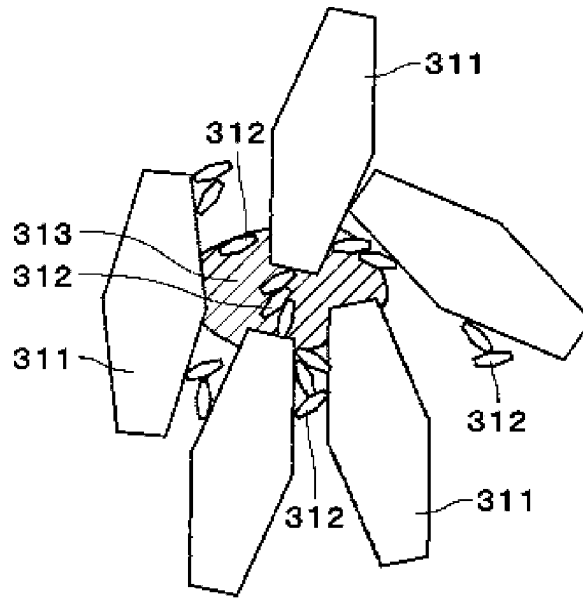


Fig. 4

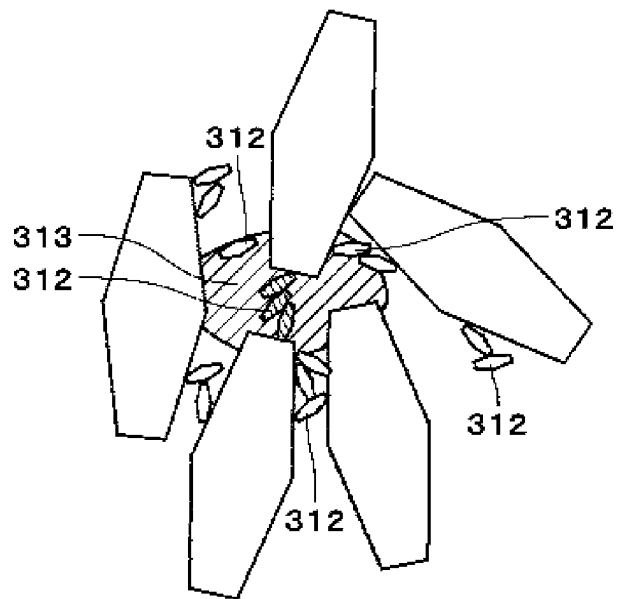


Fig. 5

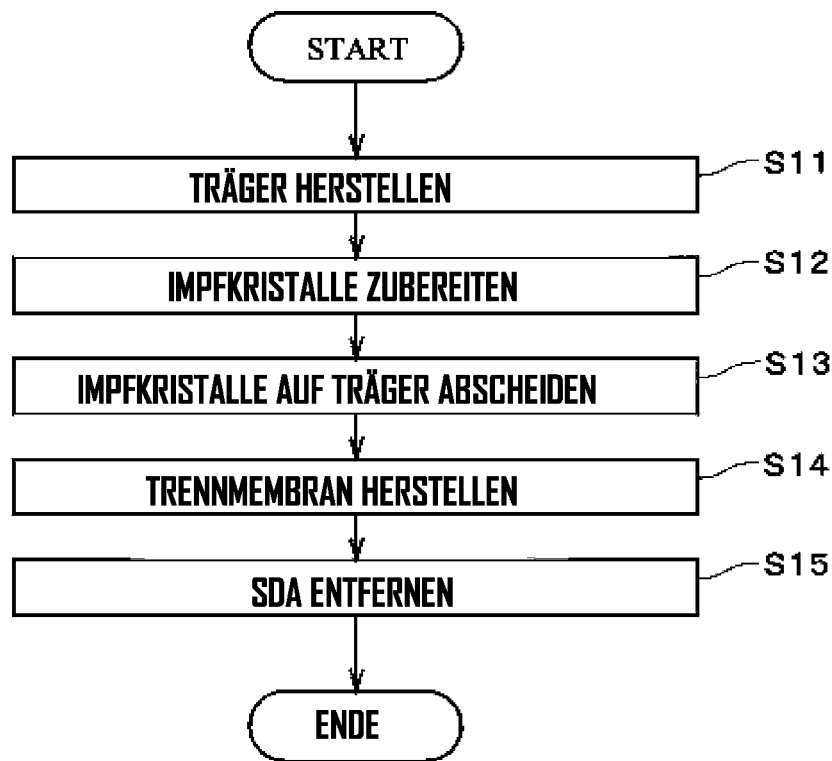


Fig. 6

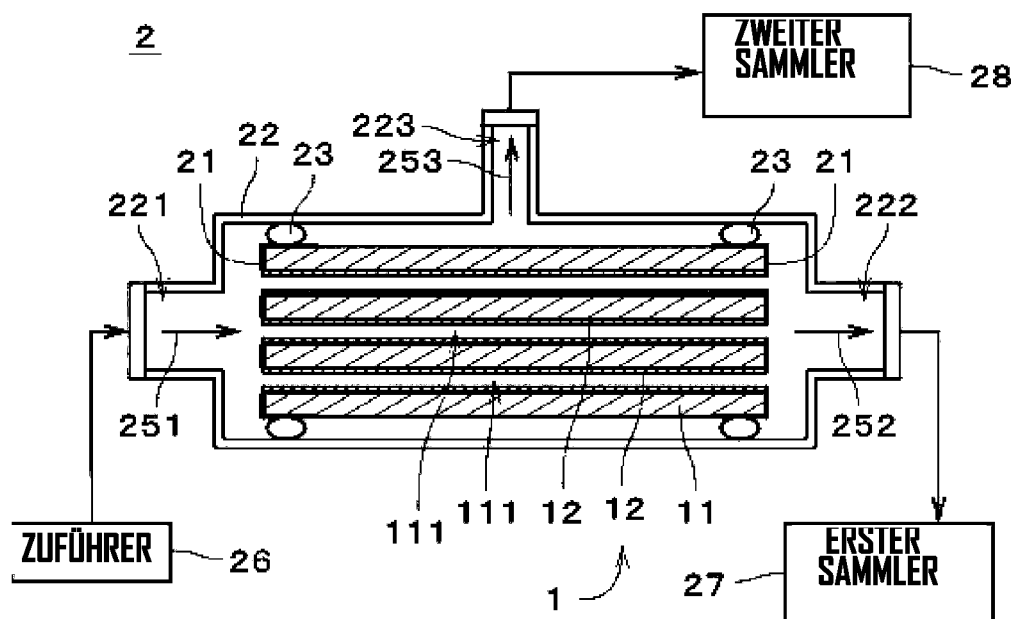


Fig. 7

