

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年7月2日(02.07.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/136718 A1

(51) 国際特許分類:

B01D 65/02 (2006.01) B01D 71/02 (2006.01)
B01D 53/22 (2006.01) C10L 3/10 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/047579

(22) 国際出願日: 2018年12月25日(25.12.2018)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人: 日揮グローバル株式会社 (JGC CORPORATION) [JP/JP]; 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目3番1号 Kanagawa (JP).

(72) 発明者: 長谷川 裕晃 (HASEGAWA, Hiroaki); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい

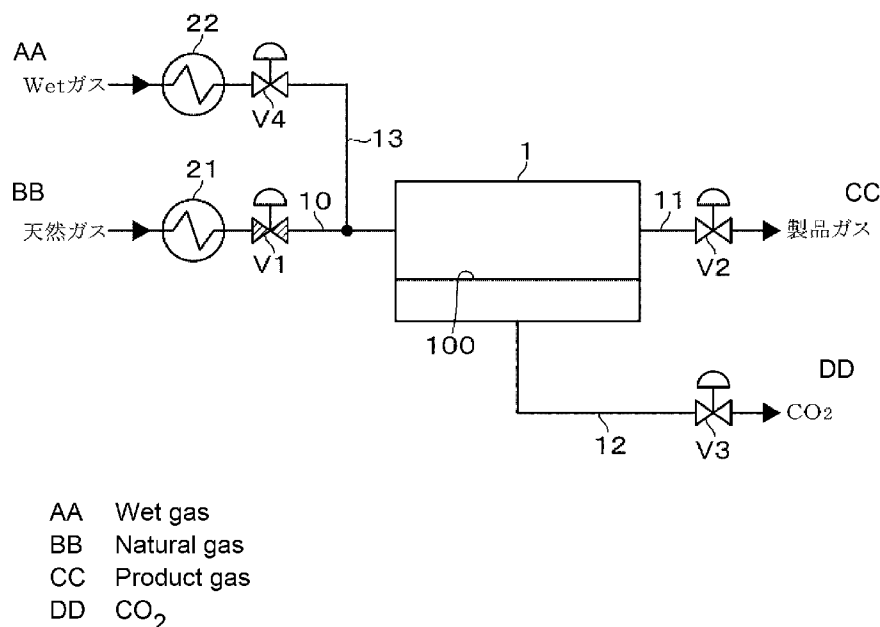
二丁目3番1号 日揮株式会社内 Kanagawa (JP). 小黒 秀一(OGURO, Syuichi); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目3番1号 日揮株式会社内 Kanagawa (JP). 寺谷 彰悟(TERATANI, Shogo); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目3番1号 日揮株式会社内 Kanagawa (JP). 岡崎 純也(OKAZAKI, Junya); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目3番1号 日揮株式会社内 Kanagawa (JP). 竹内 瑞希(TAKEUCHI, Mizuki); 〒2206001 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目3番1号 日揮株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人弥生特許事務所(YAYOY PATENT OFFICE); 〒2310058 神奈川県横浜市

(54) Title: NON-HYDROCARBON GAS SEPARATION DEVICE AND INORGANIC SEPARATION MEMBRANE REGENERATION METHOD

(54) 発明の名称: 非炭化水素ガス分離装置及び無機分離膜の再生方法

[図2]



(57) Abstract: [Problem] To regenerate an inorganic separation membrane that separates non-hydrocarbon gas contained in a gas to be treated using a simple procedure. [Solution] The present invention is provided with a regeneration gas supply channel that, in the separation of non-hydrocarbon gas contained in the gas to be treated, supplies a regeneration gas containing moisture to the primary side of an inorganic separation membrane in the separation membrane module. Thus, the inorganic separation membrane can be regenerated by supplying CO₂ gas containing

[続葉有]

中区弥生町 2 丁目 1 5 番 1 号ストークタワー
大通り公園 3 6 0 1 号 Kanagawa (JP).

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

moisture to the inorganic separation membrane and then supplying dried natural gas. Accordingly, the regeneration gas does not need to be dried before use, and CO₂ gas supplied via a pipeline, for example, can be used without modification.

(57) 要約: 【課題】簡素な手法により、被処理ガスに含まれる非炭化水素ガスの分離を行う無機分離膜を再生する。【解決手段】被処理ガスに含まれる被炭化水素ガスを分離するにあたって、分離膜モジュールにおける無機分離膜の一次側に水分を含むガスである再生ガスを供給する再生ガス供給路を設けている。これにより無機分離膜に水分を含むCO₂ガスを供給し、その後乾燥した天然ガスを供給することで無機分離膜を再生することができる。従って再生ガスを乾燥して用いる必要がなく、例えばパイプラインを介して供給されるCO₂ガスをそのまま使用することができる。

明 細 書

発明の名称：非炭化水素ガス分離装置及び無機分離膜の再生方法 技術分野

[0001] 本発明は、無機分離膜を用いて非炭化水素ガスを分離する非炭化水素分離装置及び無機分離膜の再生方法に関する。

背景技術

[0002] 井戸元より産出された炭化水素ガスである天然ガスに対しては、例えば天然ガスをLNG（Liquidized Natural Gas）に変換する場合、各種の処理設備を用いて、液化する前の天然ガスから各種の不純物を除去する前処理と、前処理後の天然ガスを液化してLNGを得る液化処理と、が行われる。天然ガスに含まれる不純物としては、二酸化炭素（ CO_2 ）ガスや窒素（ N_2 ）ガスなどの非炭化水素ガスを比較的多く含むものがあり、パイプラインガスや液化天然ガス向けの原料としての製品ガスを得るためには、これらの不純物を除去する必要がある。

[0003] 天然ガスから非炭化水素ガスを分離する非炭化水素ガス分離装置は、例えば特許文献1に示すようにゼオライトなどで構成された無機分離膜を備え、非炭化水素系ガスを無機分離膜に透過させることで、無機分離膜を透過する例えば CO_2 などの非炭化水素ガスと、無機分離膜を透過することができない炭化水素ガスとを分離する。

[0004] このような非炭化水素ガス分離装置においては、天然ガス中の不純物が無機分離膜の細孔内に汚れ成分として吸着し、徐々にその透過率が低下する。そのため無機分離膜から汚れ成分を取り除く無機分離膜の再生処理が行われる。特許文献1には、無機分離膜に乾燥した CO_2 ガスを加熱して透過させることにより無機分離膜の再生処理を行う技術が記載されている。

しかしながら、天然ガスの液化を行う設備にて比較的入手しやすい CO_2 ガス、例えばパイプラインなどにより供給される CO_2 ガスは、水分などを多く含むことが多い。一方で、無機分離膜の中には、水分を取り込み易く、水分

を取り込んだ状態では非炭化水素ガスの分離能力が低下してしまうものがあるため、CO₂ガスを乾燥させる設備などが必要になる問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特願2017-148741号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、このような背景の下になされたものであり、簡素な手法により、被処理ガスに含まれる非炭化水素ガスの分離を行う無機分離膜を再生する技術を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の非炭化水素ガス分離装置は、被処理ガスに含まれる非炭化水素ガスを分離するガス分離装置において、

無機分離膜の一次側から二次側に非炭化水素ガスを透過させることにより、前記被処理ガス中の非炭化水素ガスを低減する分離膜モジュールと、

前記分離膜モジュール内の前記一次側の空間に接続され、非炭化水素ガスを含む被処理ガスを供給する被処理ガス供給路と、

前記分離膜モジュール内の前記二次側の空間に接続され、分離膜を透過した透過ガスが流出する透過ガス流路と、

前記一次側の空間に接続され、前記透過ガスが分離された後の非透過ガスが流出する非透過ガス流路と、

前記一次側の空間に接続され、無機分離膜の分離能力を再生するためのガスであって、水分を含むガスである再生ガスを供給する再生ガス供給路と、

前記一次側の空間に接続され、前記水分を含んだ再生ガスの供給により無機分離膜に取り込まれた水分を除去するための乾燥ガスを供給する乾燥ガス供給路と、を備える。

[0008] 前記非炭化水素ガス分離装置は以下の特徴を備えていてもよい。

(a) 前記被処理ガス供給路と乾燥ガス供給路とが共通化され、前記乾燥ガスとして被処理ガスを用いること。

(b) 前記再生ガスは、水分を含む二酸化炭素ガスであること。

(c) 前記再生ガスあるいは分離膜モジュールの少なくとも一方を加熱する加熱部を備えたこと。

(d) 前記再生ガス供給時の分離膜モジュール内の温度は、露点温度より高く、250℃以下の範囲内の温度であること。

(e) 前記再生ガスの水分濃度は、1ppmv以上であること。

(f) 前記再生ガス供給路は、前記分離膜モジュールにおける被処理ガスの流入側に接続されていること。

(g) 前記再生ガス供給路は、前記分離膜モジュールにおける非透過ガスの流出側に接続されていること。

(h) 前記再生ガス供給路は、前記被処理ガス供給路から被処理ガスが供給される位置と、非透過ガス流路へ前記非透過ガスが流出する位置との間の一次側の空間に接続されていること。

[0009] 本発明の無機分離膜の再生方法は、被処理ガス中の非炭化水素ガスを無機分離膜の一次側から二次側に透過させて、前記被処理ガス中の非炭化水素ガスを低減する分離膜モジュールの前記無機分離膜の再生方法であって、

水分を含むガスである再生ガスを前記一次側の空間に供給して前記無機分離膜の分離能力を再生させる工程と、

その後、乾燥ガスを供給して前記水分を含んだ再生ガスの供給により無機分離膜に取り込まれた水分を除去する工程と、を含む。

発明の効果

[0010] 本発明は、乾燥ガス供給路から供給される乾燥ガスを用いて無機分離膜に取り込まれた水分を除去するので水分を含む再生ガスを用いて無機分離膜を再生することができる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]天然ガスの製品化処理を示す工程図である。

[図2] CO_2 分離装置を示す構成図である。

[図3] CO_2 分離装置における CO_2 分離処理を示す作用説明図である。

[図4] CO_2 分離装置における再生処理を示す作用説明図である。

[図5] CO_2 分離装置における再生ガス供給路の他の例を示す構成図である。

[図6] CO_2 分離装置における再生ガス供給路のさらに他の例を構成図である。

[図7] 実施例及び参照例における透過率の経時変化を示すグラフ図である。

発明を実施するための形態

[0012] 初めに、天然ガスの処理の流れについて説明する。図1に示すように、井戸元から産出される天然ガスは、前処理101にて、例えば気液分離や水分除去が行われる。さらに次いで非炭化水素ガスである CO_2 を除去する CO_2 ガス分離102が行われる。 CO_2 ガスが除去された天然ガスは、例えばパイプラインを介して需要家に供給される場合や、液化103されて液化天然ガス(LNG)となり、貯蔵104を経て出荷される場合がある。

[0013] 図2は、 CO_2 ガス分離102に用いられる非炭化水素ガス分離装置である CO_2 分離装置の示す構成図である。分離膜モジュール1は、例えば CO_2 ガスを透過して分離する無機分離膜100を備える。無機分離膜100を構成する材料としては、例えば重質炭化水素に対する耐性の高い無機材料、例えばDDR (Deca-Dodecasil 3R) 型のゼオライト膜が採用される。

[0014] 無機分離膜100の具体的な構造は特定のタイプのものに限定されないが、例えば多孔質セラミックなどからなる配管状の基体の表面に、DDR型のゼオライト膜を成膜した管状部材を用いる例が挙げられる。そして、無機分離膜100が成膜された多数本の管状部材を金属製の本体内に収納し、天然ガスが通流する一次側の空間と、天然ガスから分離された CO_2 ガスが通流する二次側の空間とを区画することにより、分離膜モジュール1が構成される。

[0015] 分離膜モジュール1には、無機分離膜100の一次側の空間に天然ガスを供給する天然ガス供給路(被処理ガス供給路)10が接続されている。天然

ガス供給路 10 に設けられた 21 は、加熱部である。さらに、分離膜モジュール 1 には、前記一次側の空間を通流し、CO₂ガスが分離された後の天然ガス（非透過ガス）を排出するための製品ガス排出路（非透過ガス流路）11 が接続されている。また分離膜モジュール 1 は、無機分離膜 100 の二次側へ透過した透過ガス（例えば、CO₂ガス）を排出するCO₂ガス排出路（透過ガス流路）12 を備える。

[0016] 上述の構成を備えたCO₂分離装置においては、汚れ成分の吸着に伴って低下したCO₂の透過率を回復させるため、再生ガスを用いた無機分離膜 100 の再生処理が行われる。この再生処理につき、本例のCO₂分離装置は、天然ガスの液化を行う設備にて比較的入手が容易なCO₂ガス、特に従来、再生ガスとして利用するのは不適当と考えられてきた水分を含むCO₂ガスを用いる点に特徴を有する。

水分を含むガスとしては、例えば他の天然ガスの液化設備に設けられ、アミンを用いて天然ガスから除去されたCO₂ガスや、天然のCO₂ガス田から供給されるCO₂ガスを例示することができる。アミンから得られたCO₂ガス中は飽和量近くの水分を含み、またガス田から供給されるCO₂ガス中の水分量は、2000ppmvを下回る。

[0017] 以上に説明した、水分を含むCO₂ガス（再生ガス）を用いた無機分離膜 100 の再生処理を実行するため、本例の天然ガス供給路 10 には、例えば水分を含むガス（Wet ガス：再生ガス）を分離膜モジュール 1 における無機分離膜 100 の一次側に供給する再生ガス供給路 13 が接続されている。図 2 中の V1～V4 はバルブであり、図 2 中 22 は加熱部である。一方、ゼオライトなどの無機材料からなる無機分離膜 100 は、水分を取り込み易く、水分を取り込んだ状態では、天然ガスからCO₂ガスを分離する能力が低下してしまうおそれがある。このため、既述のアミンを用いて天然ガスから分離されたCO₂ガスや、CO₂ガス田から供給されるCO₂ガスは、無機分離膜 100 の再生処理には不向きと考えられ、利用されていなかった。

[0018] これに対し、本実施形態のCO₂分離装置は、水分を含むCO₂ガスを用い

て再生処理を行ったことによって水分を取り込んだ無機分離膜 100 に対し、乾燥ガスを供給することにより、当該水分を除去する処理を実施する。本例の CO_2 分離装置は、この乾燥ガスとして天然ガスを用いている。当該天然ガスは、前処理 101 にて水分が例えば 1 ppmv 以下に除去されているので、無機分離膜 100 に取り込まれた水分を放出させる乾燥ガスとして好適である。従って本実施形態では、天然ガス供給路 10 は、被処理ガス供給路と、乾燥ガス供給路と、を兼用している。

[0019] 続いて、以上に説明した構成を備える CO_2 ガス分離装置の作用について説明する。図 3～図 6 においては、バルブを開いた状態を白抜きで示すと共に符号 O を付し、バルブを閉じた状態を斜線で示すと共に符号 S を付している。天然ガス中の CO_2 の分離を行う際には、図 3 に示すように例えばバルブ V1、V2 及び V3 を開く一方バルブ V4 を閉じておく。前記バルブセットにより、分離膜モジュール 1 はオンライン状態となる。前処理 101 にて水分が除去された天然ガスは分離膜モジュール 1 の一次側に供給される。このような天然ガス供給路 10 に設けられた加熱部 21 にて、天然ガスを例えば 20～150℃の範囲に加熱し、分離膜モジュール 1 内の一次側の空間へと供給する。天然ガスは、無機分離膜 100 に接触し CO_2 ガスが天然ガスから分離され、 CO_2 ガス排出路 12 を介して排出される一方、 CO_2 ガスと分離された天然ガスが製品ガス排出路 11 から排出される。

[0020] ここで本発明で用いられる分離膜モジュール 1 は、運転時間が長くなると、透過率（透過性能）が低下する。別の言い方をすれば、透過性能が低下するとは、新品の分離膜モジュール 1 の無機分離膜 100 の面積（有効面積）を S_0 としたとき、ある運転時間を経過した時の透過ガスの流量を新品の分離膜モジュール 1 の初期時における透過ガスの流量と同じにするための膜の面積を S_t とすると、運転時間が増加することにより、 S_t/S_0 の値が大きくなるということである。

[0021] 分離膜モジュール 1 の透過性能が低下する要因としては、無機分離膜 100 を構成するゼオライトの細孔内に天然ガスに含まれる不純物（主に C_3 以

上の炭化水素類）が汚れ成分として吸着することに起因していると推定している。そこで本発明に係るCO₂ガス分離装置においては、例えばCO₂分離装置の稼働時間が所定の時間を経過したときに、無機分離膜100の再生処理を行う。

[0022] 無機分離膜100の再生処理にあたっては、図4に示すように、まず天然ガス供給路10のバルブV1を閉じ、分離膜モジュール1を非稼働状態とする。さらに加熱部22によりCO₂ガスを露点温度以上、250℃以下の温度、例えば180℃に加熱し、再生ガス供給路13のバルブV4を開く。

また再生ガスは、加熱して供給することで、無機分離膜100の汚れ成分の除去効率が良くなる。しかしながら高温で水分を含むガスを無機分離膜100に供給すると無機分離膜がダメージを受けるおそれがあることから、その温度は、露点温度以上、250℃以下とすることが好ましい。

[0023] これにより、分離膜モジュール1には、180℃に加熱されると共に水分を含むCO₂ガスが再生ガスとして供給され、無機分離膜100を透過する。このCO₂ガスの供給を16～32時間、例えば16時間供給することにより、無機分離膜100に熱を与え、細孔に吸着した汚れ成分の分子運動を促し、細孔内から脱着した汚れ成分を二酸化炭素のガス流に乗せて分離膜から取り除くことができると考えられる。これにより無機分離膜100に吸着した汚れ成分を除去することができる。

[0024] 一方で再生ガスとして水分を含むCO₂ガスを用いていることにより、無機分離膜100の汚れ成分を除去することができる。一方で、無機分離膜100は水分を含んだ状態になっているため、この状態で使用しても十分な分離性能を発揮できないおそれがある

[0025] そこで例えば再生ガスを供給し、十分に汚れ成分を除去したところで図3に示すように天然ガスの供給を再開する。天然ガスは、前処理101にて行われる水分除去工程において、例えば脱水プラントなどの吸着塔に通流されて乾燥された状態（水分濃度10ppmv以下）である。そのため無機分離膜100に天然ガスを供給することにより、無機分離膜100に吸着した水

分は、速やかに除去される。

[0026] 但し既述のように、水分を取り込んだ状態の無機分離膜100は、 CO_2 ガスの分離性能が低下しているおそれがある。そこで、無機分離膜100を乾燥させる処理を行っている期間中は、通常時と比較して単位時間あたりの天然ガスの供給量を減らす流量調整を実施してもよい。これにより、無機分離膜100を乾燥させる処理が完了する前の期間であっても、製品ガス排出路11から流出する天然ガスに含まれる CO_2 ガスの濃度を、通常時における目標濃度に維持することができる。

[0027] 上述の実施の形態によれば、天然ガスに含まれる CO_2 ガスを分離する CO_2 分離装置において、分離膜モジュール1における無機分離膜100の一次側に水分を含む CO_2 ガスである再生ガスを供給する再生ガス供給路13を設けている。これにより水分を含む CO_2 ガスを供給して無機分離膜100を再生することができる。水分を含む CO_2 ガスを用いたことにより無機分離膜100に取り込まれた水分は、その後乾燥した天然ガスを供給することで除去することができる。従って水分を含んだ再生ガスを乾燥させるための専用の処理設備を設ける必要がなく、通常、水分を含んだ状態で供給される、例えばパイプラインを介して供給された CO_2 ガスをそのまま使用することができる。

[0028] ここで再生ガスの水分濃度は、1ppmv～飽和濃度であればよいが、好適には100ppmv～飽和濃度の範囲を例示できる。再生ガスは水分を含んだ CO_2 ガスに限定されるものではない。上述の範囲の水分を含んでいれば再生ガスは、例えば窒素ガスを用いてもよい。あるいは、メタンガス、エタンガスなどの軽質炭化水素($\text{C} \leq 2$)を用いてもよい。またこれらのガスを混合したガスでも良い。

[0029] また乾燥ガスの供給は、天然ガス供給路10から供給される天然ガスを利用する場合に限定されない。例えば分離膜モジュール1に乾燥ガスを供給する乾燥ガス供給路を接続してもよい。この場合には再生ガスを供給した後、天然ガスの供給を行う前に、乾燥ガス供給路から分離膜モジュール1に乾燥

ガスを供給して無機分離膜 100 に吸着している水分を除去する。

従来、乾燥したCO₂ガスを用いて、例えば20時間再生処理を行っていたことに比べれば、乾燥ガスを使用しなければならない時間は短時間で終わることができる。

[0030] 専用の乾燥ガス供給路から供給される乾燥ガスは、水分を脱離させることができればよい。乾燥されたガスであれば特段の限定はない。乾燥されたガスとしては、例えば乾燥CO₂ガスを用いる場合を例示できる。さらに被処理ガス以外のガスを乾燥ガスに用いる場合に無機分離膜100の汚れ成分の吸着を抑制する観点からC3以上の炭化水素を含まないガスを用いることが好ましい。例えばTEG (Tri Ethylene Glycol) などの吸収液で水分を吸収除去した乾燥ガスの水分濃度は、100ppmv以下であり、且つ再生ガスよりも水分濃度が低いことが好ましい。

[0031] また図5に示すように、再生ガス供給路13を製品ガス排出路11側に接続すると共に、天然ガス供給路10に非透過ガス排出路14を接続し、分離膜モジュール1の後段側から再生ガスを供給するようにしてもよい。発明者らは、分離膜モジュール1に天然ガス供給路10から天然ガスを供給して処理を行った場合に、製品ガス排出路11に近い部位の無機分離膜100ほど汚れ成分の吸着量が大きくなる場合があるとの知見を得ている。この場合には、再生ガス供給路13を製品ガス排出路11側に接続し、再生ガスを分離膜モジュール1の製品ガス排出路11側から天然ガス供給路10側に通流させることで汚れ成分が吸着しやすい製品ガス排出路11側の除去効率を高くすることができる。

[0032] さらに図6に示すように2基の分離膜モジュール1A、1Bを直列に接続し、分離膜モジュール1Aと、1Bと、の間に再生ガスを供給するように構成してもよい。さらに再生ガス供給路13を分離膜モジュール1Aと、1Bと、の間の配管15に接続し、天然ガス供給路10、及び製品ガス排出路11に非透過ガス排出路14A、14Bを夫々接続する。そして再生ガスを供給するにあたって、図6に示すようにバルブV1、V2を閉じバルブV4を

開く。これにより分離膜モジュール 1 A には、天然ガスの排出側から、分離膜モジュール 1 B には天然ガスの供給側から再生ガスが供給される。このような構成の場合にも同様の効果を得ることができる。

また本発明は、CO₂ガスを分離する装置に限らず、例えば窒素ガスを分離する装置に適用してもよい。

[0033] [検証試験]

本発明の効果を検証するために以下の試験を行った。実施の形態に用いた無機分離膜 100 を用い無機分離膜 100 に C 3 以上の炭化水素を汚れ成分として吸着させ、水分含有 CO₂ ガス（実施例：水分濃度 1000 ppmv）及び CO₂ ガス（参照例：水分濃度 3 ppmv）からなる再生ガスを夫々供給して無機分離膜 100 の再生を行った時の無機分離膜 100 の CO₂ ガスの透過率の経時変化を測定した。供給する再生ガスの温度は、供給開始時に 90℃に設定し、4 時間後に 180℃に到達するように設定した。続いて 20 時間 180℃を保持して処理を行い、その後 3 時間かけて 90℃に降温させ、再生ガスの供給を終了した。

[0034] 図 7 はこの結果を示し、実施例及び参照例における無機分離膜 100 の透過率の経時変化を示すグラフ図である。図 7 に示すように無機分離膜 100 の透過率は、実施例、参照例共にほぼ同様な挙動を示していた。また汚れ成分を吸着させる前の無機分離膜 100 の透過率と比較したところ、実施例にてほぼ同等の透過率が得られていた。従って実施例においても無機分離膜 100 の汚れ成分を除去し十分に再生することができると言える。

符号の説明

[0035]	1	分離膜モジュール
	10	天然ガス供給路
	11	製品ガス排出路
	12	CO ₂ ガス排出路
	13	再生ガス供給路
	21、22	加熱部

1 0 0

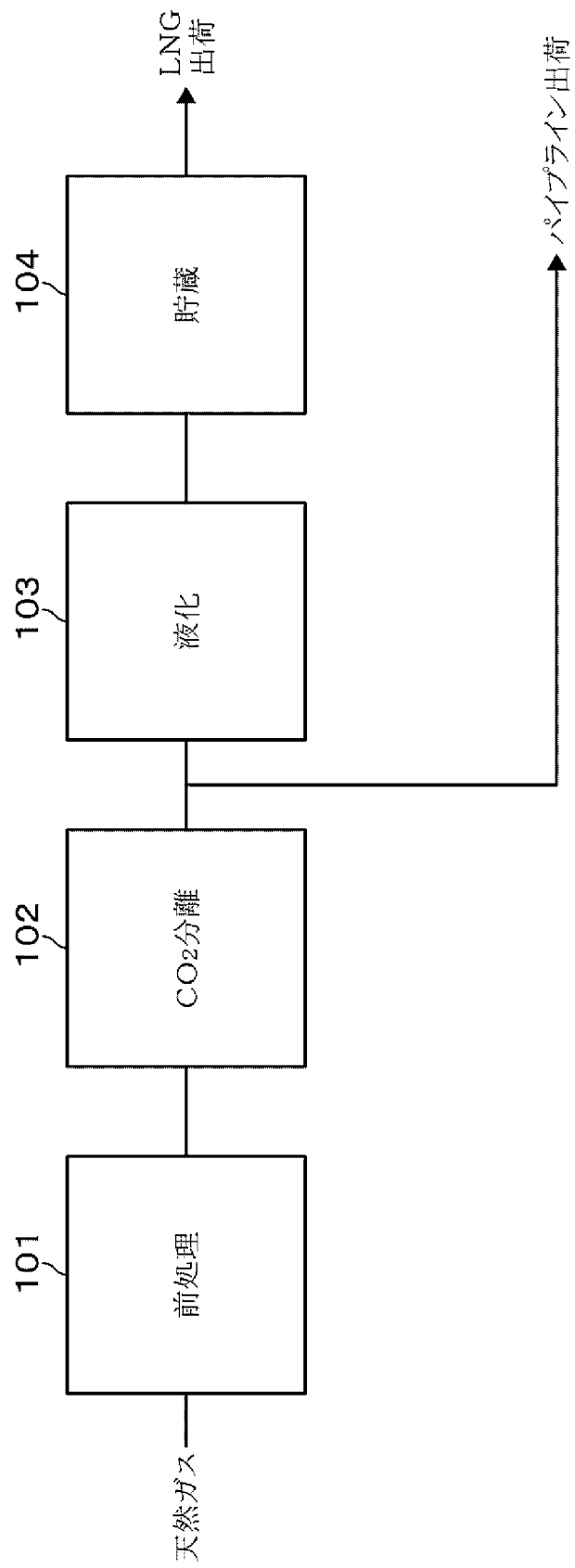
無機分離膜

請求の範囲

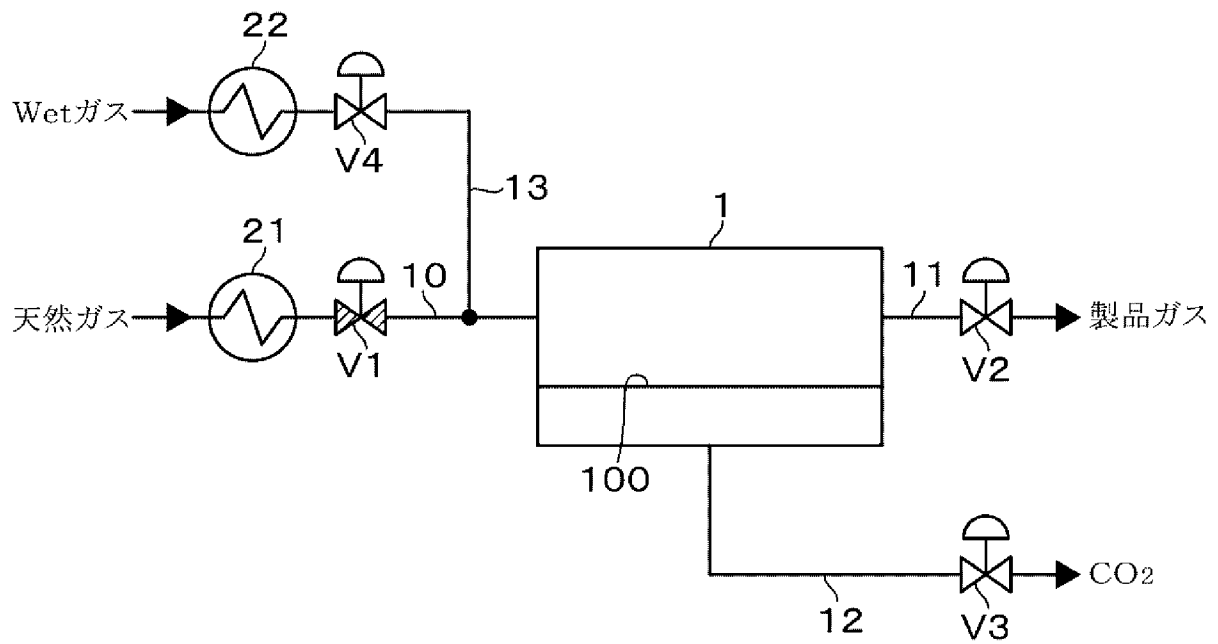
- [請求項1] 被処理ガスに含まれる非炭化水素ガスを分離するガス分離装置において、
- 無機分離膜の一次側から二次側に非炭化水素ガスを透過させることにより、前記被処理ガス中の非炭化水素ガスを低減する分離膜モジュールと、
- 前記分離膜モジュール内の前記一次側の空間に接続され、非炭化水素ガスを含む被処理ガスを供給する被処理ガス供給路と、
- 前記分離膜モジュール内の前記二次側の空間に接続され、分離膜を透過した透過ガスが流出する透過ガス流路と、
- 前記一次側の空間に接続され、前記透過ガスが分離された後の非透過ガスが流出する非透過ガス流路と、
- 前記一次側の空間に接続され、無機分離膜の分離能力を再生するためのガスであって、水分を含むガスである再生ガスを供給する再生ガス供給路と、
- 前記一次側の空間に接続され、前記水分を含んだ再生ガスの供給により無機分離膜に取り込まれた水分を除去するための乾燥ガスを供給する乾燥ガス供給路と、を備えた非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項2] 前記被処理ガス供給路と乾燥ガス供給路とが共通化され、前記乾燥ガスとして被処理ガスを用いる請求項1に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項3] 前記再生ガスは、水分を含む二酸化炭素ガスである請求項1に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項4] 前記再生ガスあるいは分離膜モジュールの少なくとも一方を加熱する加熱部を備えた請求項1に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項5] 前記再生ガス供給時の分離膜モジュール内の温度は、露点温度より高く、250℃以下の範囲内の温度である請求項4に記載の非炭化水素ガス分離装置。

- [請求項6] 前記再生ガスの水分濃度は、1 p p m v 以上である請求項 1 に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項7] 前記再生ガス供給路は、前記分離膜モジュールにおける被処理ガス流路に接続されている請求項 1 に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項8] 前記再生ガス供給路は、前記分離膜モジュールにおける非透過ガスの流出側に接続されている請求項 1 に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項9] 前記再生ガス供給路は、前記被処理ガス供給路から被処理ガスが供給される位置と、非透過ガス流路へ前記非透過ガスが流出する位置との間の一次側の空間に接続されている請求項 1 に記載の非炭化水素ガス分離装置。
- [請求項10] 被処理ガス中の非炭化水素ガスを無機分離膜の一次側から二次側に透過させて、前記被処理ガス中の非炭化水素ガスを低減する分離膜モジュールの前記無機分離膜の再生方法であって、
水分を含むガスである再生ガスを前記一次側の空間に供給して前記無機分離膜の分離能力を再生させる工程と、
その後、乾燥ガスを供給して前記水分を含んだ再生ガスの供給により無機分離膜に取り込まれた水分を除去する工程と、を含む無機分離膜の再生方法。
- [請求項11] 前記乾燥ガスとして、被処理ガスを用いる請求項 1 0 に記載の無機分離膜の再生方法。
- [請求項12] 再生ガスとして、水分を含む二酸化炭素ガスを用いる請求項 1 0 に記載の無機分離膜の再生方法。
- [請求項13] 前記再生ガス供給時の分離膜モジュール内の温度は、露点温度より高く、250℃以下の範囲内の温度である請求項 1 0 に記載の無機分離膜の再生方法。
- [請求項14] 前記再生ガスの水分濃度は、1 p p m v 以上である請求項 1 0 に記載の無機分離膜の再生方法。

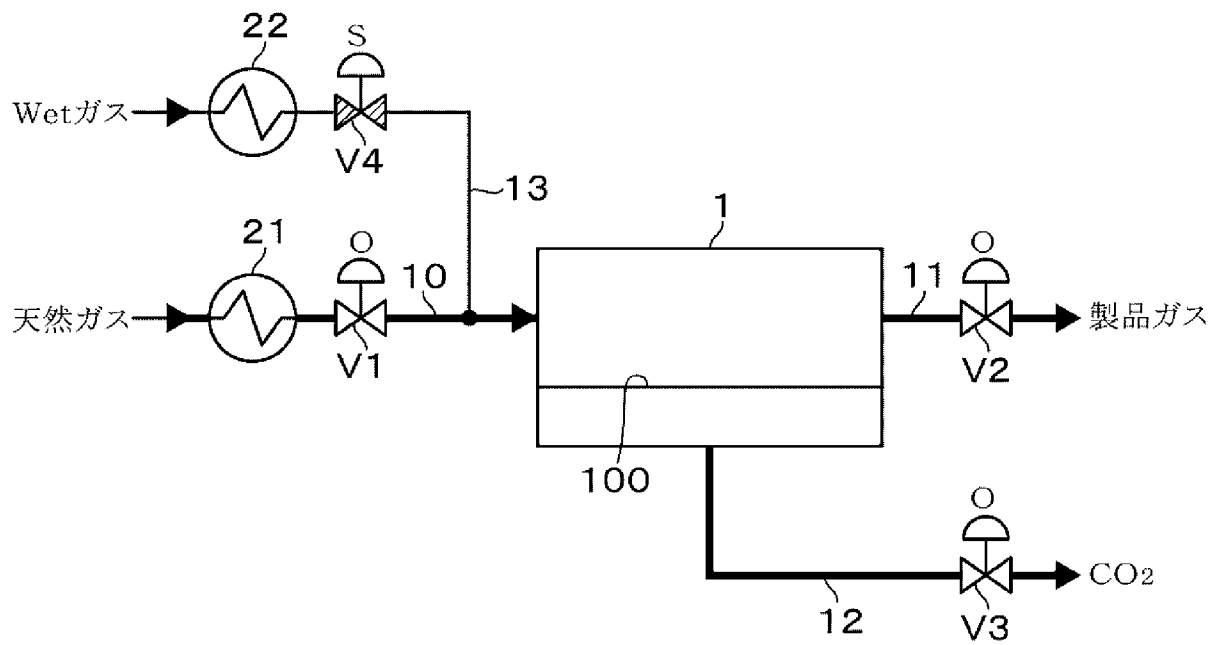
[図1]



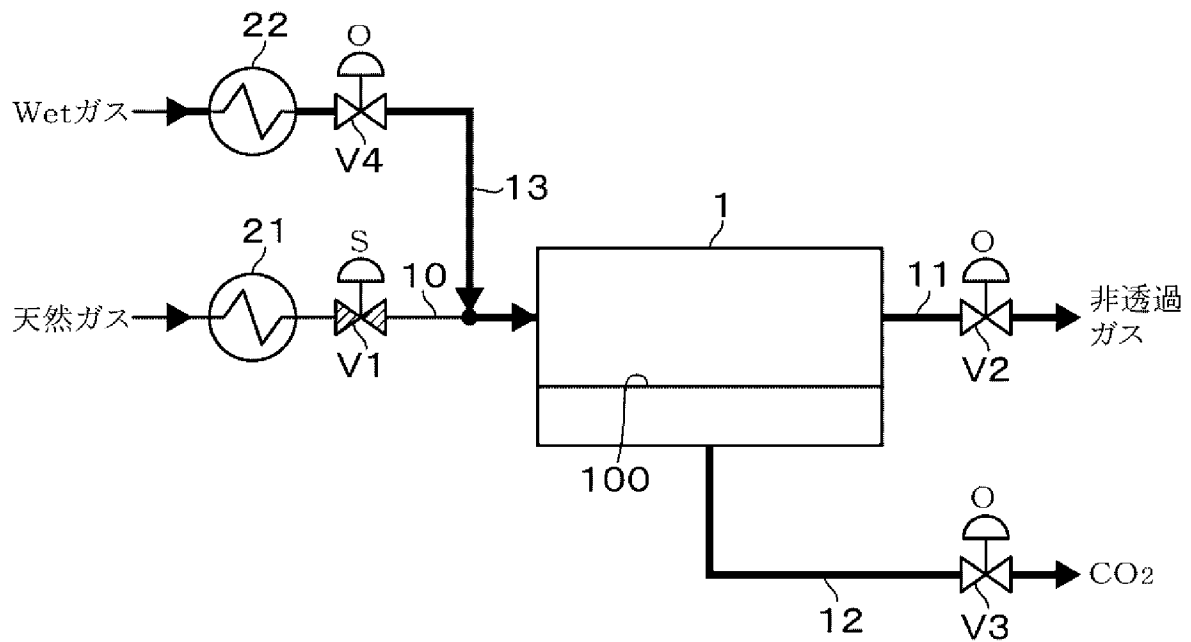
[図2]



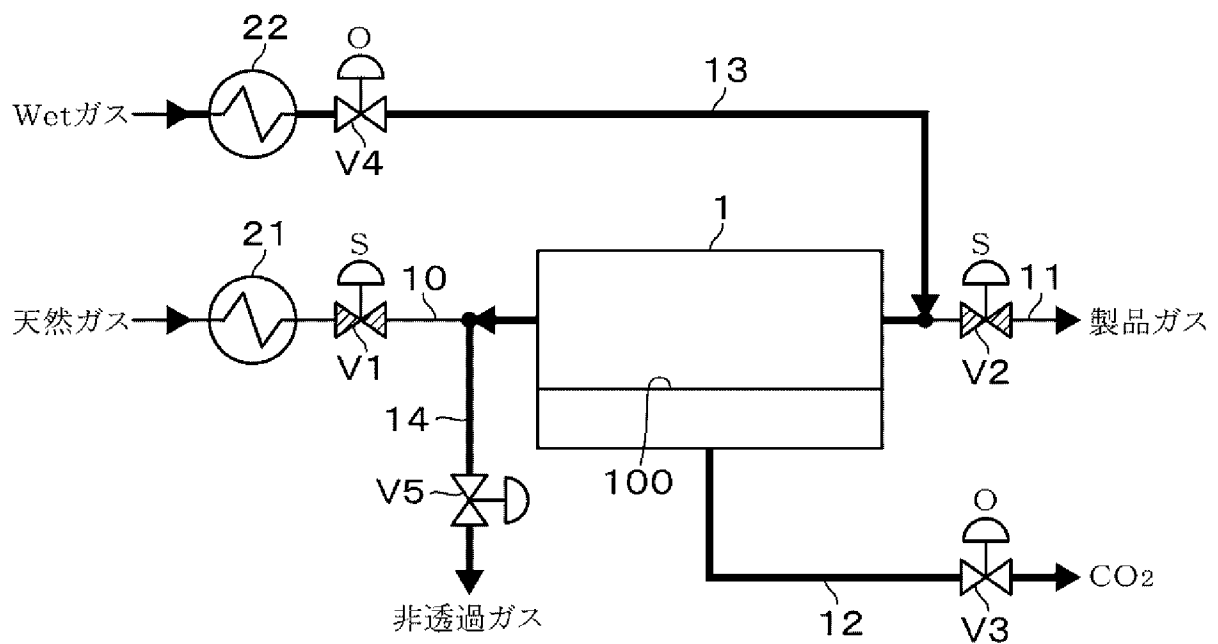
[図3]



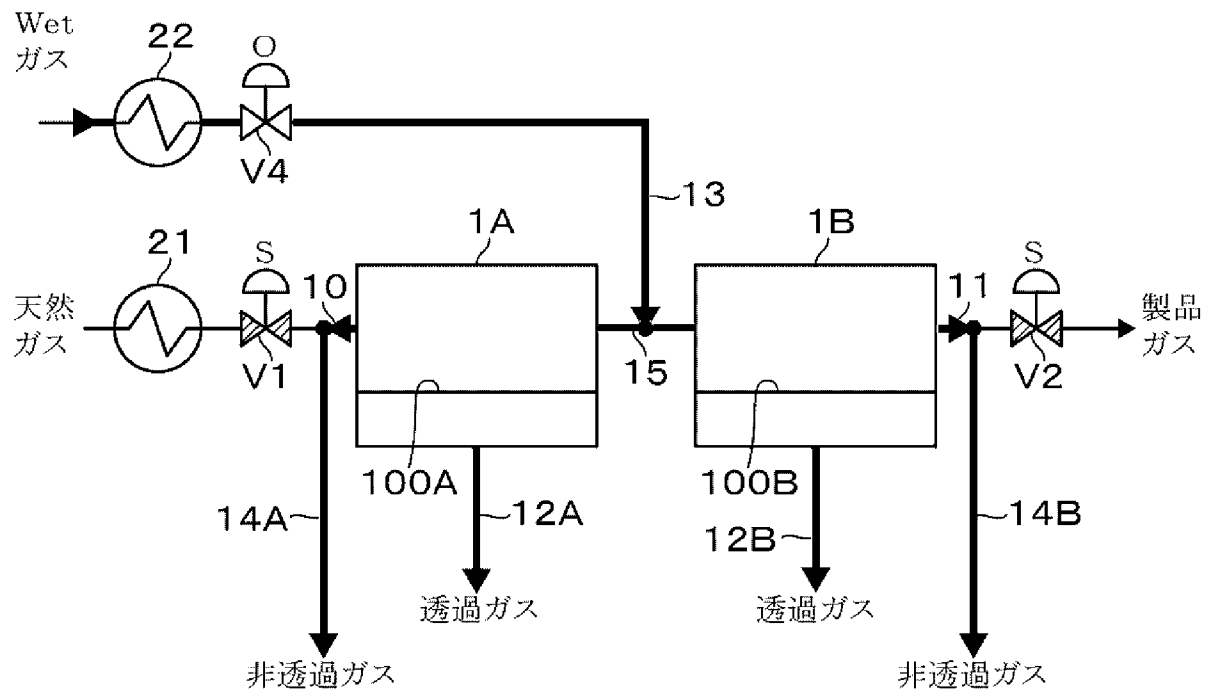
[図4]



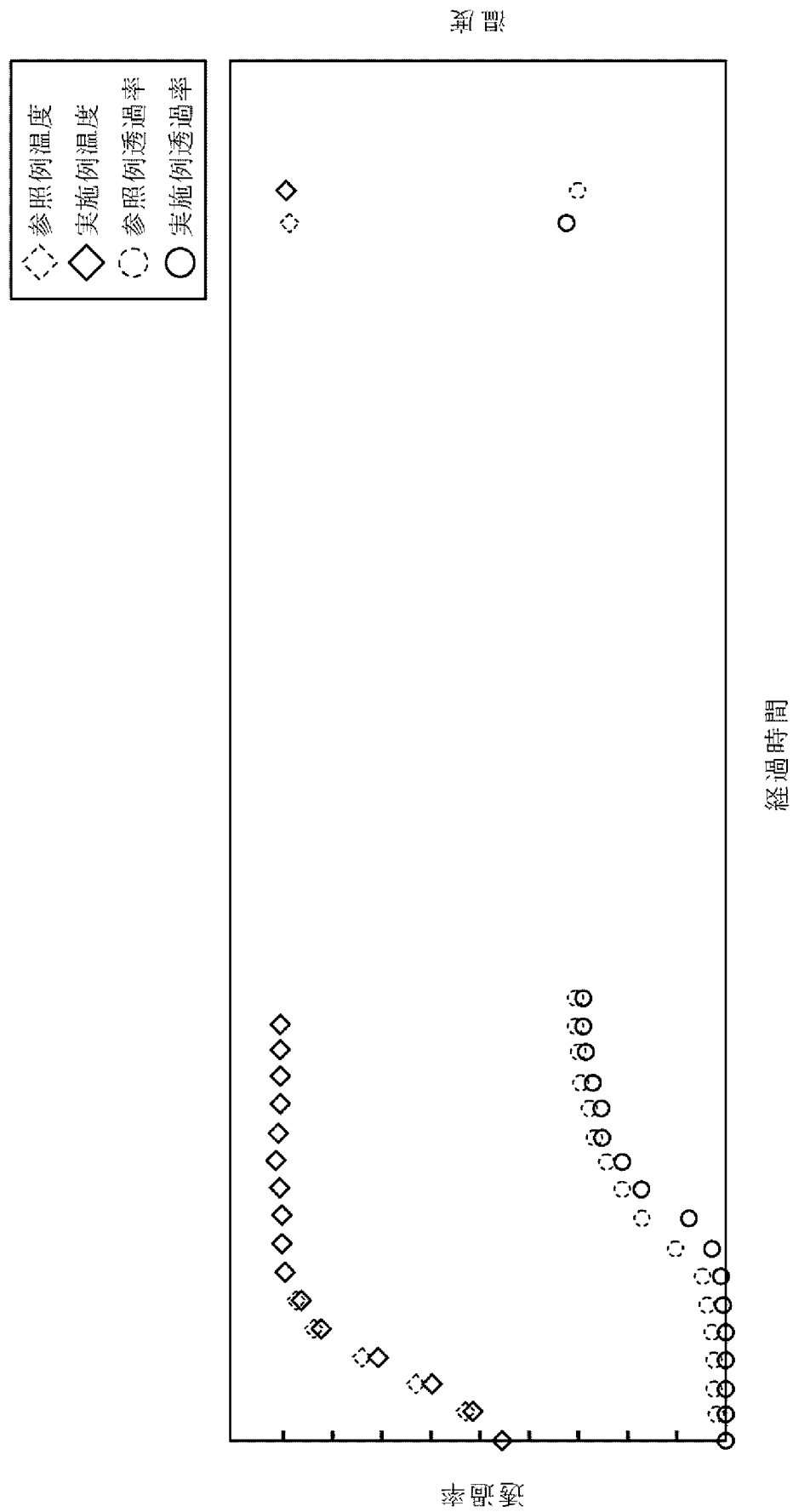
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/047579

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. B01D65/02 (2006.01) i, B01D53/22 (2006.01) i, B01D71/02 (2006.01) i, C10L3/10 (2006.01) n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. B01D65/02, B01D53/22, B01D71/02, C10L3/10, C10G5/00, B01J20/00, B01J38/00

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2017-148741 A (HITACHI ZOSEN CORPORATION) 31 August 2017, claims 1-2, 5, paragraphs [0001], [0035], fig. 1 (Family: none)	1-14
Y	US 6843907 B1 (UOP LLC) 18 January 2005, abstract, column 3, lines 14-61, column 4, lines 22-62 (Family: none)	1-14
A	WO 2012/147534 A1 (NIPPON GLASS KK) 01 November 2012, paragraphs [0036], [0037] & US 2014/0048482 A1, paragraphs [0043], [0044] & EP 2703065 A1	1-14

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

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

Date of the actual completion of the international search 22.03.2019	Date of mailing of the international search report 02.04.2019
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/047579

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2018/180210 A1 (ZEON CORPORATION) 04 October 2018, paragraph [0032] (Family: none)	1-14
A	JP 2018-183756 A (UBE INDUSTRIES, LTD.) 22 November 2018, entire text (Family: none)	1-14

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01D65/02(2006.01)i, B01D53/22(2006.01)i, B01D71/02(2006.01)i, C10L3/10(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01D65/02, B01D53/22, B01D71/02, C10L3/10, C10G5/00, B01J20/00, B01J38/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2017-148741 A (日本造船株式会社) 2017.08.31, 請求項1-2, 5, [0001], [0035], 図1 (ファミリーなし)	1-14
Y	US 6843907 B1 (UOP LLC) 2005.01.18, Abstract, 第3欄第14行~第61行, 第4欄第22行~第62行 (ファミリーなし)	1-14
A	WO 2012/147534 A1 (日本硝子株式会社) 2012.11.01, [0036]-[0037] & US 2014/0048482 A1, [0043]-[0044] & EP 2703065 A1	1-14

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22.03.2019

国際調査報告の発送日

02.04.2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

▲高▼ 美葉子

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

4D

9839

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2018/180210 A1 (日本ゼオン株式会社) 2018. 10. 04, [0 0 3 2] (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2018-183756 A (宇部興産株式会社) 2018. 11. 22, 全文 (ファミリーなし)	1-14