

(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
2016年5月19日(19.05.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/076091 A1

- (51) 国際特許分類:
B01D 53/22 (2006.01) B01D 61/58 (2006.01)
B01D 53/14 (2006.01) C01B 31/20 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/079723
- (22) 国際出願日: 2015年10月21日(21.10.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2014-230202 2014年11月12日(12.11.2014) JP
- (71) 出願人: 三菱重工業株式会社 (MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒1088215 東京都港区港南二丁目16番5号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 平田 琢也 (HIRATA, Takuya); 〒1088215 東京都港区港南二丁目16番5号 三菱重工業株式会社内 Tokyo (JP). 堀添 浩司 (HORIZOE, Kouji); 〒1088215 東京都港区港南二丁目16番5号 三菱重工業株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人酒井国際特許事務所 (SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1000013 東京都千代田区霞が関3丁目8番1号 虎の門三井ビルディング Tokyo (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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: APPARATUS FOR SEPARATING CO₂ IN GAS, MEMBRANE SEPARATION METHOD THEREFOR, AND MEMBRANE SEPARATION CONTROL METHOD FOR APPARATUS FOR SEPARATING CO₂ IN GAS

(54) 発明の名称: ガス中のCO₂分離装置及びその膜分離方法、ガス中のCO₂分離装置の膜分離管理方法

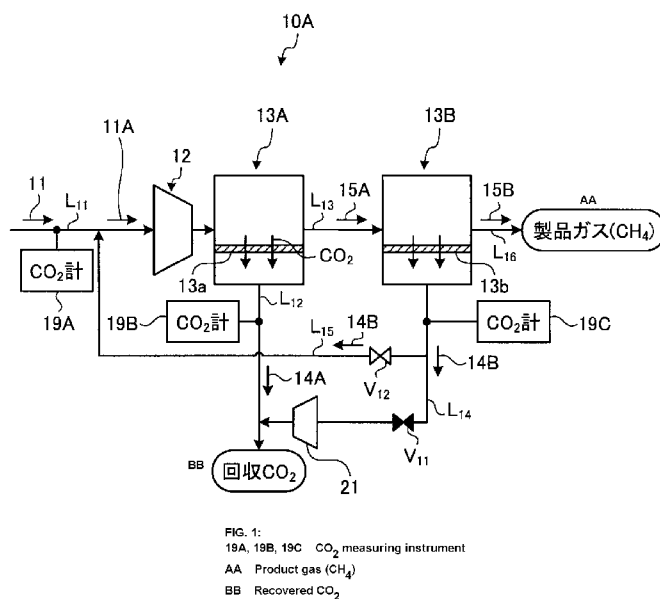


FIG. 1:
19A, 19B, 19C CO₂ measuring instrument
AA Product gas (CH₄)
BB Recovered CO₂

(57) Abstract: This apparatus for separating CO₂ in a gas is provided with: a first membrane separator 13A that performs membrane separation of CO₂ from a starting material gas 11 by means of a separation membrane 13a; a first permeated gas discharge line L₁₂ that discharges a first permeated gas 14A, which has permeated through the membrane separation of the first membrane separator 13A; a first non-permeated gas discharge line L₁₃ that discharges a first non-permeated gas 15A, which has not permeated through the membrane separation of the first membrane separator 13A; a second membrane separator 13B that is provided in the downstream of the first membrane separator 13A and performs further membrane separation of CO₂ from the first non-permeated gas 15A by means of a separation membrane 13b; a second permeated gas discharge line L₁₄ that discharges a second permeated gas 14B, which has permeated through the membrane separation of the second membrane separator 13B; and a second permeated gas return line L₁₅ that is branched from a part of the second permeated gas discharge line L₁₄ and returns the second permeated gas 14B to the starting material gas 11 side.

(57) 要約:

[続葉有]



原料ガス 1 1 から CO_2 を分離膜 1 3 a により膜分離する第 1 膜分離器 1 3 A と、第 1 膜分離器 1 3 A の膜分離で透過した第 1 透過ガス 1 4 A を排出する第 1 透過ガス排出ライン L_{12} と、第 1 膜分離器 1 3 A の膜分離で透過されない第 1 非透過ガス 1 5 A を排出する第 1 非透過ガス排出ライン L_{13} と、第 1 膜分離器 1 3 A の下流側に設けられ、第 1 非透過ガス 1 5 A から CO_2 をさらに分離膜 1 3 b により膜分離する第 2 膜分離器 1 3 B と、第 2 膜分離器 1 3 B の膜分離で透過した第 2 透過ガス 1 4 B を排出する第 2 透過ガス排出ライン L_{14} と、第 2 透過ガス排出ライン L_{14} の一部から分岐し、第 2 透過ガス 1 4 B を、原料ガス 1 1 側に戻す第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} と、を備える。

明 細 書

発明の名称：

ガス中の CO_2 分離装置及びその膜分離方法、ガス中の CO_2 分離装置の膜分離管理方法

技術分野

[0001] 本発明は、ガス中の CO_2 分離装置及びその膜分離方法、ガス中の CO_2 分離装置の膜分離管理方法に関するものである。

背景技術

[0002] 例えば、メタン (CH_4) を含む天然ガスから、二酸化炭素 (CO_2) を分離回収する技術として、化学的吸収法と物理的吸収法とが提案されている（特許文献1 参照）。

（１） 化学的吸収法の吸収法は、例えばアミン系やアルカリ系の吸収液により排ガス中の二酸化炭素を吸収除去した後、二酸化炭素が飽和状態まで吸収された吸収液を加熱再生するとともに、高濃度の二酸化炭素を回収する方法である。

（２） 物理的吸収法の吸着分離法は、ゼオライト系、分子ふるい、炭素系などの吸着剤により排ガス中の二酸化炭素を吸着除去した後、減圧状態及び／又は過熱状態にすることにより吸着された二酸化炭素を脱着させ吸着剤を再生するとともに、高濃度の二酸化炭素を回収する方法である。

[0003] また、ゼオライト等の CO_2 分離膜を用いて、メタンを主成分とする天然ガスから二酸化炭素を分離する技術が提案されている。特に、天然ガスの輸送設備において、二酸化炭素の濃度を例えば２％以下に低減することで、腐食を防止するので、天然ガスから二酸化炭素を所定濃度以下に低減することが求められている（特許文献2 参照）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平6－99035号公報

特許文献2：特開2012-236134号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ところで、 CO_2 分離膜を用いて、選択的に分離膜の透過ガス側に CO_2 を濃縮することで、 CO_2 濃度が3～75%の混合された天然ガスから、 CO_2 の除去された分離膜の非透過ガスを得る場合、膜分離法では、膜を介しての非透過ガスと透過ガスの圧力差がガス透過の駆動力となるため、非透過ガスの CO_2 濃度が低下すると分離効率が低下し、非透過ガス側には CO_2 が残存してしまい、非透過ガス側の CO_2 濃度を2%以下とすることが困難である、という問題がある。

[0006] CO_2 分離膜の非透過ガスが、特にメタンや水素などの有価なガスの場合、この有価ガスを利用する観点からは、非透過側ガスを高純度化することが望ましく、非透過ガス側の CO_2 残存量を低減する必要がある。

[0007] また、混合の天然ガス中の CO_2 濃度が低下するほど、 CO_2 分離膜の透過ガスへの CO_2 以外の物質の混入濃度が増加する、という問題がある。この結果、 CO_2 除去ガスが有価である場合（例えばメタン等）には、 CO_2 分離膜への有価ガスの混入は、混合ガスからの有価ガスの回収率の低下に繋がる、という問題がある。

特に、天然ガスは採掘する油田からの随伴するガス中の CO_2 濃度は例えば3～75%の混合比率に相違があるので、原料ガス中の CO_2 濃度が低いような場合において高純度な CO_2 ガスを得ることが求められている。

[0008] さらに、 CO_2 分離膜の透過ガスである CO_2 を、例えば CO_2 EOR (Enhanced Oil Recovery) 用途等の有価物として利用する際には、透過ガス純度が高いことも求められている。

[0009] よって、例えば天然ガス等の原料ガスから CO_2 を CO_2 分離膜により分離する際、非透過ガスである CO_2 の純度と、透過ガスであるメタンの純度とを共に向上する技術の出現が切望されている。

[0010] 本発明は、前記問題に鑑み、非透過ガスである CO_2 の純度と、透過ガスで

あるメタンの純度とを共に向上するガス中の CO_2 分離装置及びその膜分離方法、ガス中の CO_2 分離装置の膜分離管理方法を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

- [0011] 上述した課題を解決するための本発明の第1の発明は、 CO_2 を含む原料ガスを導入する原料ガス導入ラインと、前記原料ガス導入ラインの端部が接続され、前記原料ガスから CO_2 を膜分離する第1膜分離器と、前記第1膜分離器の膜分離で透過した第1透過ガスを排出する第1透過ガス排出ラインと、前記第1膜分離器の膜分離で透過されない第1非透過ガスを排出する第1非透過ガス排出ラインと、前記第1膜分離器の下流側に設けられ、第1非透過ガスから CO_2 を膜分離する第2膜分離器と、前記第2膜分離器の膜分離で透過した第2透過ガスを排出する第2透過ガス排出ラインと、前記第2透過ガス排出ラインの一部から分岐し、第2透過ガスを、前記原料ガス側又は前記第1非透過ガス側に戻す第2透過ガスの戻しラインと、を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。
- [0012] 第2の発明は、第1の発明において、前記第1透過ガス中の CO_2 濃度を求め、所定値以下の場合、前記第2透過ガスを原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。
- [0013] 第3の発明は、第1の発明において、前記原料ガス中の CO_2 濃度を求め、所定値以下の場合、第2透過ガスを原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。
- [0014] 第4の発明は、第1乃至3のいずれか一つの発明において、前記第1透過ガス排出ラインの一部から分岐し、第1透過ガスを原料ガスに戻す第1透過ガス分岐ラインを備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。
- [0015] 第5の発明は、第1乃至4のいずれか一つの発明において、前記原料ガス又は前記第1透過ガス又は第2透過ガス中の CO_2 濃度を計測する CO_2 濃度計を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。
- [0016] 第6の発明は、第1乃至4のいずれか一つの発明において、前記原料ガス中の CO_2 濃度を計測する CO_2 濃度計と、前記第1膜分離器の上流側に設けら

れ、前記原料ガス中の CO_2 濃度に応じて、原料ガス中の CO_2 を分離し、所定濃度の CO_2 ガス濃度とした原料ガスを得る前処理用の第3膜分離器と、を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。

[0017] 第7の発明は、第1乃至6のいずれか一つの発明において、前記原料ガス導入ラインに介装され、導入された原料ガスを圧縮する圧縮器を、前記第1膜分離器の上流側に備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。

[0018] 第8の発明は、第1乃至7のいずれか一つの発明において、前記第2非透過ガス排出ラインの一部から排出される第2非透過ガス中の CO_2 をさらに分離する CO_2 分離設備と、前記 CO_2 分離設備で分離した CO_2 ガスを、前記原料ガス又は前記第1非透過ガスに戻す CO_2 ガスの戻しラインと、を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置にある。

[0019] 第9の発明は、 CO_2 を含む原料ガスから CO_2 を選択的に分離する分離膜を有する膜分離器を直列に2段設け、1段目の第1膜分離器の膜分離で透過されない第1非透過ガスを2段目の第2膜分離器で膜分離するに際し、前記原料ガス又は前記第1膜分離器の膜分離後の第1透過ガス中の CO_2 濃度を求め、求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合、前記第2膜分離器の膜分離後の第2透過ガスを、原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法にある。

[0020] 第10の発明は、第9の発明において、さらに、前記第1膜分離器での膜分離後の前記第1透過ガスを前記原料ガスに戻すことを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法にある。

[0021] 第11の発明は、第9又は10の発明において、前記第2膜分離器からの第2非透過ガス中の CO_2 をさらに CO_2 分離設備で分離し、前記 CO_2 分離設備で分離した CO_2 ガスを、前記原料ガス又は前記第1非透過ガスに戻すことを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法にある。

[0022] 第12の発明は、 CO_2 を含む原料ガスから CO_2 を選択的に分離する分離膜を有する第1及び第2膜分離器を直列に2段設け、1段目の前記第1膜分離器の膜分離で透過されない第1非透過ガスを2段目の前記第2膜分離器で膜

分離するに際し、前記原料ガス中の CO_2 濃度を求め、前記原料ガス中の求めた CO_2 濃度が所定値以上の場合、前記原料ガス中の CO_2 を前処理用の第3膜分離器で膜分離し、前記第3膜分離器で分離されない第3非透過ガスを、前記第1膜分離器に導入して、 CO_2 を選択的に分離することを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離管理方法にある。

発明の効果

[0023] 本発明によれば、第2透過ガスを原料ガス側に戻すことで、原料ガス中に、 CO_2 が濃縮された第2透過ガスが導入され、 CO_2 分圧が増加する。この結果、 CO_2 添加原料ガス中の CO_2 濃度が、第2透過ガスをリサイクルしない場合よりも増加することとなるので、第1膜分離器での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]図1は、実施例1に係るガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

[図2]図2は、実施例1に係る他のガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

[図3-1]図3-1は、実施例1に係る他のガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

[図3-2]図3-2は、実施例1に係る他のガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

[図4]図4は、実施例2に係るガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

[図5]図5は、実施例3に係るガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガスからの CO_2 分離システムの概略図である。

[図6]図6は、実施例4に係るガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガスからの CO_2 分離システムの概略図である。

[図7]図7は、実施例5に係るガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガスからの CO_2 分離システムの概略図である。

[図8]図8は、実施例6に係るガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガスからの CO_2 分離システムの概略図である。

[図9]図9は、実施例6に係る他のガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガス

からの CO_2 分離システムの概略図である。

発明を実施するための形態

[0025] 以下に添付図面を参照して、本発明の好適な実施例を詳細に説明する。なお、この実施例により本発明が限定されるものではなく、また、実施例が複数ある場合には、各実施例を組み合わせるものも含むものである。

実施例 1

[0026] 図1は、実施例1に係るガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

図1に示すように、本実施例に係るガス中の CO_2 分離装置10Aは、 CO_2 を含む原料ガス11を導入する原料ガス導入ライン L_{11} と、原料ガス導入ライン L_{11} に介装され、導入された原料ガス11を圧縮する圧縮器12と、原料ガス導入ライン L_{11} の端部が接続され、原料ガス11から CO_2 を分離膜13aにより膜分離する第1膜分離器13Aと、第1膜分離器13Aの膜分離で透過した第1透過ガス14Aを排出する第1透過ガス排出ライン L_{12} と、第1膜分離器13Aの膜分離で透過されない第1非透過ガス15Aを排出する第1非透過ガス排出ライン L_{13} と、第1膜分離器13Aの下流側に設けられ、第1非透過ガス15Aから CO_2 をさらに分離膜13bにより膜分離する第2膜分離器13Bと、第2膜分離器13Bの膜分離で透過した第2透過ガス14Bを排出する第2透過ガス排出ライン L_{14} と、第2透過ガス排出ライン L_{14} の一部から分岐し、第2透過ガス14Bを、原料ガス11に戻す第2透過ガスの戻しライン L_{15} と、を備えるものである。

[0027] 本実施例では、原料ガス11としては二酸化炭素(CO_2)とメタン(CH_4)とを少なくとも含む原料ガスを用いて説明するが、本発明は、これに限定されるものではない。

[0028] この原料ガス11は、例えば油田から油と同伴する天然ガス、ガス田から排出される天然ガス等を挙げることができる。

[0029] 圧縮器12は、天然ガスである原料ガス11を所定圧力まで圧縮し、膜透過の駆動力として、 CO_2 の膜分離を容易としている。なお、原料ガス11の自圧が所定圧力に達している場合には、圧縮器12は不要となるので、圧縮

器 1 2 を図示しないバイパスラインによりバイパスするようにしてもよい。

なお、圧縮器以外としては、例えば真空ポンプによる膜透過側において、減圧手段により減圧するようにしてもよい。

[0030] 第 1 膜分離器 1 3 A は、 CO_2 を選択的に透過する分離膜 1 3 a を有する分離装置であり、分離膜 1 3 a としては、例えばゼオライト等を含有する二酸化炭素分離用ゼオライト膜、分子ゲート中空糸膜、分子ゲート膜等を用いることができるが、 CO_2 を選択的に透過する分離膜であれば、これらに限定されるものではない。

[0031] 第 1 膜分離器 1 3 A には、分離膜 1 3 a を透過した第 1 透過ガス 1 4 A を排出する第 1 透過ガス排出ライン L_{12} が接続され、選択的に分離された CO_2 を、回収 CO_2 として回収している。

[0032] また、この分離膜 1 3 a を透過しない第 1 非透過ガス 1 5 A は、第 1 非透過ガス排出ライン L_{13} により第 1 膜分離器 1 3 A から排出される。

[0033] 第 2 膜分離器 1 3 B は、第 1 膜分離器 1 3 A と同様の構成であり、 CO_2 を選択的に透過する分離膜 1 3 b を有する分離装置であり、分離膜 1 3 b としては分離膜 1 3 a と同一の種類でもよいが、必要に応じて異種の種類の分離膜を用いるようにしてもよい。

[0034] この第 2 膜分離器 1 3 B は、第 1 膜分離器 1 3 A からの第 1 非透過ガス排出ライン L_{13} の端部が接続され、排出される第 1 非透過ガス 1 5 A を内部に導入し、分離膜 1 3 b により CO_2 を選択的に分離する。

[0035] 第 2 膜分離器 1 3 B には、分離膜 1 3 b を透過した第 2 透過ガス 1 4 B を排出する第 2 透過ガス排出ライン L_{14} が接続され、選択的に分離された CO_2 を、回収 CO_2 として回収している。

なお、 CO_2 の回収に際して、第 1 透過ガス 1 4 A と第 2 透過ガス 1 4 B とには CO_2 ガスが分離された分だけ、圧力差が生じる。よって、補助圧縮器 2 1 を用いて、第 1 透過ガス 1 4 A の圧力と同等となるように、第 2 透過ガス 1 4 B を所定圧力まで圧縮して、回収 CO_2 としている。

[0036] また、この分離膜 1 3 b を透過しない第 2 非透過ガス 1 5 B は、第 2 膜分

離器 1 3 B から、第 2 非透過ガス排出ライン L_{16} により排出される。この排出された第 2 非透過ガス 1 5 B は、原料ガス 1 1 が例えばメタンリッチの場合には、メタンの製品ガスとなる。

[0037] また、本実施例では、第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} は、第 2 透過ガス排出ライン L_{14} の一部から分岐し、その先端が圧縮器 1 2 の上流側の原料ガス導入ライン L_{11} に接続され、第 2 透過ガス 1 4 B を原料ガス 1 1 に戻し、原料ガス 1 1 に CO_2 を添加し、 CO_2 添加原料ガス 1 1 A としている。

[0038] また、この第 2 透過ガス排出ライン L_{14} には、第一弁 V_{11} が設けられている。また、第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} には、第二弁 V_{12} が設けられている。そして、両弁 V_{11} 、 V_{12} の調整により、第 2 透過ガス 1 4 B の原料ガス 1 1 側へのリサイクル量を調整している。

[0039] すなわち、図 1 に示すように、第一弁 V_{11} を全閉し、第二弁 V_{12} を全開した場合には、第 2 透過ガス 1 4 B の全量（100%）を、原料ガス 1 1 側に戻すこととなる。なお、調整弁の代わりに、切替バルブ等の流量切替手段を用いるようにしてもよい。

[0040] そして、この第 2 透過ガス 1 4 B を原料ガス 1 1 側に戻すことで、原料ガス 1 1 中に、 CO_2 が濃縮された第 2 透過ガス 1 4 B が導入され、 CO_2 分圧が増加する。この結果、原料ガス 1 1 中の CO_2 濃度が、第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルしない場合よりも増加するので、第 1 膜分離器 1 3 A での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。これにより、第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルしない場合と較べて、第 1 膜分離器 1 3 A での CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。

[0041] 次に、本実施例におけるガス中の CO_2 分離装置 1 0 A の動作について、図 1 を参照しつつ説明する。

CO_2 及び CH_4 を含む原料ガス 1 1 は、圧縮器 1 2 に導入され、ここで、所定圧力まで圧縮される。圧縮された原料ガス 1 1 は、第 1 膜分離器 1 3 A で分離膜 1 3 a により CO_2 が選択的に分離され、第 1 透過ガス 1 4 A となって、回収 CO_2 となる。

- [0042] 第1膜分離器13Aの分離膜13aで膜分離されない第1非透過ガス15Aは、第1膜分離器13Aの下流側の第2膜分離器13Bに、第1非透過ガス排出ライン L_{13} により送られ、ここで第2膜分離器13Bの分離膜13bにより残存する CO_2 をさらに選択分離している。第2膜分離器13Bで分離膜13bにより透過されない第2非透過ガス15Bは製品ガス（メタン）として回収される。
- [0043] 本実施例では、圧縮器12に導入する前において、第2透過ガス14Bを原料ガス11に第2透過ガスの戻しライン L_{15} によりリサイクルするようにしている。この第2透過ガス14Bを原料ガス11側にリサイクルすることで、 CO_2 を添加した CO_2 添加原料ガス11Aを得ている。このリサイクルの際、第一弁 V_{11} を全閉し、第二弁 V_{12} を全開することで、第2透過ガス14Bの全量（100%）を、原料ガス11側に戻すようにしている。
- [0044] この第2透過ガス14Bを原料ガス11側に全量戻すことで、原料ガス11中に、 CO_2 が濃縮された第2透過ガス14Bが導入され、 CO_2 分圧が増加する。この結果、 CO_2 添加原料ガス11A中の CO_2 濃度が、第2透過ガス14Bをリサイクルしない場合よりも増加することとなるので、第1膜分離器13Aでの膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。これにより、第2透過ガス14Bをリサイクルしない場合と較べて、第1膜分離器13Aでの CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。
- [0045] ここで、原料ガス11中の CO_2 濃度を計測する CO_2 計19Aは、原料ガス11を供給する原料ガス導入ライン L_{11} に設けている。また、第1膜分離器13Aの第1透過ガス排出ライン L_{12} 及び第2膜分離器13Bの第2透過ガス排出ライン L_{14} にも CO_2 計19B、19Cを各々設けている。
- [0046] そして、原料ガス11又は第1膜分離器13Aの膜分離後の第1透過ガス14A中の CO_2 濃度を求め、求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合（原料ガス11の場合には、例えば20mol%以下、第1透過ガス14Aの場合には、例えば90mol%以下）、第2膜分離器13Bの膜分離後の第2透過ガス14Bを、原料ガス11側にリサイクルするようにしている。

[0047] ここで、下記〔表 1〕に、本実施例のように圧縮器 12 の上流側において、原料ガス 11 に第 2 透過ガス 14 B をリサイクルさせて、CO₂ 添加原料ガス 11 A とした場合と、従来のように、リサイクルしない場合との、CO₂ 膜分離の分離効率の相違を示す。

なお、比較例 1 は、第 1 膜分離器 13 A の一段のみで処理した場合である。

[0048] 〔表 1〕

(表 1)

		原料ガス 11	第 1 膜 分離器 13A 入口	第 1 膜 分離器 13A 透過側	第 1 膜 分離器 13A 非透過側	第 2 膜 分離器 13B 透過側	第 2 膜 分離器 13B 非透過側
試験 例 1	CO ₂ 濃度 [mol%]	20	28.6	92.3	15.7	84.8	2.5
	CH ₄ 濃度 [mol%]	80	71.4	7.7	84.3	15.2	97.5
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	20	33	18	15	13	2
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	80	82	1.5	80.8	2.3	78.5
比較 例 1	CO ₂ 濃度 [mol%]	20	20	88.2	2.5	—	—
	CH ₄ 濃度 [mol%]	80	80	11.8	97.5	—	—
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	20	20	18	2	—	—
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	80	80	2.4	77.6	—	—

[0049] この試験例では、CO₂ 濃度が 20 mol%、CH₄ 濃度が 80 mol% の原料ガス 11 を用いて膜分離した。

試験例 1 の場合には、図 1 に示すように、圧縮器 12 の上流側の原料ガス 11 に第 2 透過ガス 14 B を戻しているため、第 1 膜分離器 13 A 入口での CO₂ 濃度は戻し分の 8.6 mol% だけ増加し、CO₂ 濃度は 28.6 mol% となる。この結果、第 1 膜分離器 13 A 透過側の第 1 透過ガス 14 A の CO₂ 濃度は 92.3 mol% となる。

[0050] これに対して、比較例 1 の場合、圧縮器 12 の上流側の原料ガス 11 に第 2 透過ガス 14 B を戻していないため、第 1 膜分離器 13 A 入口での CO₂ 濃度は原料ガス 11 と同じ組成の CO₂ 濃度が 20 mol% であり、第 1 膜分離器 13 A 透過側の第 1 透過ガス 14 A の CO₂ 濃度は 88.2 mol% となる。

[0051] よって、試験例 1 のように、第 1 膜分離器 13 A に導入する CO_2 添加原料ガス 11 A の CO_2 濃度を、原料ガス 11 中の CO_2 濃度よりも高めることが可能なため、第 1 膜分離器 13 A の第 1 透過ガス 14 A として、非 CO_2 ガス成分の混入量の低い高純度な CO_2 ガスを得ることができる。

この結果、濃縮 CO_2 として分離する第 1 膜分離器 13 A の透過ガスへの非 CO_2 ガス成分（例えばメタン）混入量が少なくなるので、第 1 非透過ガス 15 A 中及び第 2 非透過ガス 15 B 中の非 CO_2 ガス成分である例えばメタンの原料ガスからの回収率を高めることができる。

[0052] また、第 2 透過ガス 14 B のリサイクル先は、圧縮器 12 の上流側に限定されず、第 1 膜分離器 13 A の上流側であれば、いずれでもよい。

図 2 は、実施例 1 に係る他のガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

図 2 に示すように、本実施例に係るガス中の CO_2 分離装置 10 B は、図 1 に示すガス中の CO_2 分離装置 10 A において、さらに第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} から分岐された第 2 透過ガス分岐ライン L_{17} を設けるようにしている。

[0053] この第 2 透過ガス分岐ライン L_{17} の接続先を、圧縮器 12 と第 1 膜分離器 13 A の間の原料ガス導入ライン L_{11} としている。そして、補助圧縮器 22 を用いて所定圧力まで圧縮した後、圧縮された原料ガス 11 と混合するようにして、原料ガス 11 側へリサイクルしている。また、第 2 透過ガス分岐ライン L_{17} には、第三弁 V_{13} が設けられている。この第三弁 V_{13} の調整により、圧縮器 12 を通過後の原料ガス 11 側へ供給する第 2 透過ガス 14 B のリサイクル量を調整している。

[0054] そして、この第 2 透過ガス 14 B を原料ガス 11 側に戻すことで、原料ガス 11 中に、 CO_2 が濃縮された第 2 透過ガス 14 B を導入して、 CO_2 分圧を増加させるようにしている。この結果、原料ガス 11 中の CO_2 濃度が、第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合よりも増加するので、第 1 膜分離器 13 A での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。

これにより、第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合と較べて、第 1

膜分離器 13 A での CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。

[0055] 図 3-1、3-2 は、実施例 1 に係る他のガス中の CO_2 分離装置の概略図である。

図 2 に示すガス中の CO_2 分離装置 10 B では、この第 2 透過ガス分岐ライン L_{17} の接続先を、圧縮器 12 と第 1 膜分離器 13 A の間の原料ガス導入ライン L_{11} として、第 1 膜分離器 13 A に導入する前の原料ガス 11 中の CO_2 濃度を増加させている。

[0056] これに対し、図 3-1 に示すガス中の CO_2 分離装置 10 C-1 は、この第 2 透過ガス分岐ライン L_{17} の接続先を、第 1 膜分離器 13 A と第 2 膜分離器 13 B との間の第 1 非透過ガス排出ライン L_{13} として、第 2 膜分離器 13 B に導入する前の第 1 非透過ガス 15 A 中の CO_2 濃度を増加させている。

[0057] この結果、第 1 非透過ガス 15 A 中の CO_2 濃度が、第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合よりも増加するので、第 2 膜分離器 13 B での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。これにより、第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合と較べて、第 2 膜分離器 13 B での CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。よって、図 1 及び図 2 に示すガス中の CO_2 分離装置 10 A、10 B に較べて第 2 透過ガス 14 B 中の CO_2 濃度を高めることができる。

[0058] この際、図 3-1 に示すガス中の CO_2 分離装置 10 C-1 においては、第 2 透過ガス排出ライン L_{14} に設けた第一弁 V_{11} を全開し、第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} に設けた第二弁 V_{12} を閉止し、第 2 透過ガス 14 B の一部を回収 CO_2 として回収するようにしている。これは、第一弁 V_{11} 及び第二弁 V_{12} を共に閉止した場合、第 2 膜分離器 13 B に供給された CO_2 は製品ガスにのみ行き先が限られることになり、これを解消するためである。

[0059] また、第一弁 V_{11} を全開し、第 2 透過ガス 14 B の一部を第 2 透過ガス排出ライン L_{14} により回収 CO_2 として第 1 透過ガス 14 A と混合するようにする場合には、第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合と較べて、 CO_2 濃度が高い第 2 透過ガス 14 B を混合するため、第 1 透過ガス 14 A 及び第 2 透過

ガス 1 4 B が混合された回収 CO_2 中の CO_2 濃度低下を抑制することができる。

[0060] また、図 3-2 に示すガス中の CO_2 分離装置 1 0 C-2 においては、第 2 透過ガス排出ライン L_{14} に設けた第一弁 V_{11} を閉止し、第 2 透過ガスの戻しライン L_{15} に設けた第二弁 V_{12} を全開し、第 2 透過ガス 1 4 B の一部を原料ガス 1 1 側に戻している。

[0061] 図 3-2 に示すガス中の CO_2 分離装置 1 0 C-2 のように、第二弁 V_{12} を全開して、第 2 透過ガス 1 4 B の一部を原料ガス 1 1 にリサイクルすることにより、第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルしない場合と較べて、原料ガス 1 1 中の CO_2 濃度が高まることとなり、第 1 透過ガス 1 4 A 中の CO_2 濃度もより高めることができる。

実施例 2

[0062] 図 4 は、実施例 2 に係るガス中の CO_2 分離装置の概略図である。なお、実施例 1 のガス中の CO_2 分離装置の構成部材と同一の部材には同一符号を付して、その説明は省略する。

[0063] 実施例 2 のガス中の CO_2 分離装置 1 0 D では、原料ガス 1 1 中の CO_2 濃度が所定（想定）の場合よりも低い場合に、第 2 透過ガス 1 4 B のみを、原料ガス 1 1 中にリサイクルしただけでは、 CO_2 分離効率が低下する場合の対策である。

[0064] 本実施例に係るガス中の CO_2 分離装置 1 0 D の構成は、実施例 1 のガス中の CO_2 分離装置 1 0 A に、さらに第 1 透過ガス 1 4 A の第 1 透過ガス排出ライン L_{12} から分岐された第 1 透過ガス分岐ライン L_{18} を設けるようにしている。

[0065] この第 1 透過ガス分岐ライン L_{18} の接続先を、圧縮器 1 2 と第 1 膜分離器 1 3 A の間の原料ガス導入ライン L_{11} としている。そして、補助圧縮器 2 3 を用いて所定圧力まで圧縮した後、圧縮された原料ガス 1 1 と混合するようにして、原料ガス 1 1 側へ CO_2 をリサイクルするようにしている。また、第 1 透過ガス分岐ライン L_{18} には、第四弁 V_{14} が設けられている。そして、第四弁 V_{14}

により、圧縮器 12 を通過後の原料ガス 11 側へ供給する第 1 透過ガス 14 A のリサイクル量を調整している。

[0066] 原料ガス 11 として、天然ガス中の CO_2 濃度が例えば 10 mol % 以下のような場合、本実施例のように、第 2 透過ガス 14 B の全量と、第 1 透過ガス 14 A の所定量とを導入することで、原料ガス 11 中に、 CO_2 が濃縮された第 2 透過ガス 14 B に加えて、 CO_2 が濃縮された第 1 透過ガス 14 A が導入され、 CO_2 分圧を増加させるようにしている。この結果、 CO_2 添加原料ガス 11 A 中の CO_2 濃度が、第 2 透過ガス 14 B 及び第 1 透過ガス 14 A をリサイクルしない場合よりも増加することとなるので、第 1 膜分離器 13 A での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。これにより、第 1 透過ガス 14 A 及び第 2 透過ガス 14 B をリサイクルしない場合と較べて、第 1 膜分離器 13 A での CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。

[0067] ここで、原料ガス 11 中の CO_2 濃度を計測する CO_2 計 19 A は、原料ガス 11 を供給する原料ガス導入ライン L_{11} に設けている。また、第 1 膜分離器 13 A の第 1 透過ガス排出ライン L_{12} 及び第 2 膜分離器 13 B の第 2 透過ガス排出ライン L_{14} にも CO_2 計 19 B、19 C を各々設けている。

[0068] そして、原料ガス 11 又は第 1 膜分離器 13 A の膜分離後の第 1 透過ガス 14 A 中の CO_2 濃度を求め、求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合（原料ガス 11 の場合には、例えば 10 mol % 以下、第 1 透過ガス 14 A の場合には、例えば 80 mol % 以下）、第 2 膜分離器 13 B の膜分離後の第 2 透過ガス 14 B 及び第 1 膜分離器 13 A の膜分離後の第 1 透過ガス 14 A を、原料ガス 11 側にリサイクルするようにしている。なお、所定値は回収 CO_2 の要求濃度等により変動される。

[0069] ここで、下記 [表 2] に、本実施例のように圧縮器 12 の上流側の原料ガス導入ライン L_{11} に、第 1 透過ガス 14 A 及び第 2 透過ガス 14 B をリサイクルさせて原料ガス 11 中の CO_2 濃度を増加させて、 CO_2 添加原料ガス 11 A とした場合と、従来のように、リサイクルしない場合との、 CO_2 膜分離の分離効率の相違を示す。なお、比較例 2 は、第 1 膜分離器 13 A の一段のみで

処理した場合である。

[0070] [表2]

(表2)

		原料ガス 11	第1膜 分離器 13A入口	第1膜 分離器 13A透過側	第1膜 分離器 13A非透過側	第2膜 分離器 13B透過側	第2膜 分離器 13B非透過側
試験 例 2	CO ₂ 濃度 [mol%]	10	24.2	90.5	7.6	71	1.1
	CH ₄ 濃度 [mol%]	90	75.8	9.5	92.4	29	98.9
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	10	30	22.5	7.5	6.5	1
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	90	94	2.4	91.7	2.6	89.1
比較 例 2	CO ₂ 濃度 [mol%]	10	10	76.9	1.1	—	—
	CH ₄ 濃度 [mol%]	90	90	23.1	98.9	—	—
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	10	10	9	1	—	—
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	90	90	2.7	87.3	—	—

[0071] この試験例では、CO₂濃度が10mol%、CH₄濃度が90mol%の原料ガス11を用いて膜分離した。

試験例2の場合には、図4に示すように、圧縮器12の上流側の原料ガス11に第2透過ガス14Bを戻すと共に、第1透過ガス14Aを圧縮器12の下流側に戻している。第1膜分離器13A入口でのCO₂濃度は戻し分の14.2mol%だけ増加し、CO₂濃度は24.2mol%となる。この結果、第1膜分離器13A透過側の第1透過ガス14AのCO₂濃度は90.5mol%となる。

[0072] これに対して、比較例2の場合、圧縮器12の上流側の原料ガス11に第2透過ガス14Bを戻していないので、第1膜分離器13A入口でのCO₂濃度は原料ガス11と同じ組成のCO₂濃度が10mol%であり、第1膜分離器13A透過側の第1透過ガス14AのCO₂濃度は76.9mol%となる。また、試験例2での第1膜分離器13A透過側ガスのリサイクル率は60%であり、回収CO₂としての回収流量は9kmol/hであった。

[0073] よって、試験例2のように、第1膜分離器13Aに導入するCO₂添加原料ガス11AのCO₂濃度を、原料ガス11中のCO₂濃度よりも高めることが可

能なため、第1膜分離器13Aの第1透過ガス14Aとして、非CO₂ガス成分の混入量の低い高純度なCO₂ガスを得ることができる。

この結果、濃縮CO₂として分離する第1膜分離器13Aの透過ガスへの非CO₂ガス成分（例えばメタン）混入量が少なくなるので、第1非透過ガス15A中及び第2非透過ガス15B中の非CO₂ガス成分である例えばメタンの原料ガスからの回収率を高めることができる。

実施例 3

[0074] 図5は、実施例3に係るガス中のCO₂分離装置を備えた油随伴ガスからのCO₂分離システムの概略図である。なお、実施例1及び2のガス中のCO₂分離装置の構成部材と同一の部材には同一符号を付して、その説明は省略する。

図5に示すように、本実施例に係る油随伴ガスからのCO₂分離システム100Aは、原油（含随伴ガス）51を搾油する生産井52と、原油51から油53と原料ガス11となる随伴ガスと水54とに各々分離するセパレータ55と、実施例1の第1膜分離器13A及び第2膜分離器13Bを備えたガス中のCO₂分離装置10Aと、第2膜分離器13Bからの第2非透過ガス15B中に残存するCO₂をさらに分離するCO₂分離設備60とを備えている。

[0075] 原油51は生産井52より産出され、原油採掘ラインL₁を介してセパレータ55に送られ、ここで油53及び水54を分離すると共に、随伴する随伴ガスを分離している。本実施例では、この随伴ガスが原料ガス11となる。

[0076] 原料ガス11は、実施例1と同様に処理され、CO₂分離効率の向上を図るようにしている。本実施例では、第2膜分離器13Bの第2非透過ガス15B中にCO₂が所望以上に残存する場合、化学的吸収法や物理的吸収法によりCO₂分離設備60で除去することで、原料ガス11からCO₂を除去した精製ガス66を得るようにしている。

[0077] 本実施例のCO₂分離設備60は、吸収液としてアミン溶剤を用い、第2非透過ガス15B中のCO₂を除去するCO₂吸収塔61と、CO₂吸収塔61でCO₂を吸収したリッチ溶液62からリボイラ72による水蒸気によりCO₂を放

出して吸収液を再生する再生塔 6 3 とから構成され、再生塔 6 3 で CO_2 を放出したリーン溶液 6 4 を、再度 CO_2 吸収塔 6 1 で循環利用している。なお、リッチ溶液 6 2 とリーン溶液 6 4 とは、熱交換器 6 5 で熱交換している。

[0078] CO_2 吸収塔 6 1 で CO_2 が除去された第 2 非透過ガス 1 5 B は、メタンリッチな精製ガス 6 6 となる。ここで、図 5 中、符号 L_2 はリッチ溶液供給ライン、 L_3 はリーン溶液供給ライン、 L_4 は精製ガス排出ライン、 L_5 は CO_2 同伴水蒸気排出ライン、 L_6 は CO_2 回収ライン、 L_7 は CO_2 回収分岐ラインである。

[0079] リッチ溶液 6 2 を再生する再生塔 6 3 の頂部からは、 CO_2 を同伴した水蒸気 6 7 が放出され、気液分離器 7 1 で CO_2 を分離して分離ガス 6 8 としている。気液分離器 7 1 で分離された CO_2 は、 CO_2 回収ライン L_6 により、第 2 膜分離器 1 3 B での分離した CO_2 と同様に、 CO_2 回収ライン L_6 に介装された第五弁 V_{15} を開き、補助圧縮器 2 3 で圧縮されて回収 CO_2 として回収される。

[0080] 本実施例に係る油随伴ガスからの CO_2 分離システム 1 0 0 A では、実施例 1 と同様に、原料ガス 1 1 又は第 1 透過ガス 1 4 A 中の CO_2 濃度を求め、求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合（原料ガス 1 1 の場合には、例えば 2 0 m o l % 以下、第 1 透過ガス 1 4 A の場合には、例えば 9 0 m o l % 以下）、第 2 膜分離器 1 3 B の膜分離後の第 2 透過ガス 1 4 B を、原料ガス 1 1 側にリサイクルするようにしている。なお、所定値は回収 CO_2 の要求濃度等により変動される。

[0081] そして、この第 2 透過ガス 1 4 B を原料ガス 1 1 側に戻すことで、原料ガス 1 1 中に、 CO_2 が濃縮された第 2 透過ガス 1 4 B が導入され、 CO_2 分圧が増加する。この結果、原料ガス 1 1 中の CO_2 濃度が、第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルしない場合よりも増加するので、第 1 膜分離器 1 3 A での膜分離のドライビングフォースを向上させることとなる。これにより、第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルしない場合と較べて、第 1 膜分離器 1 3 A での CO_2 選択分離性の向上を図ることができる。

[0082] ここで、下記 [表 3] に、本実施例のように圧縮器 1 2 の上流側において、原料ガス 1 1 に第 2 透過ガス 1 4 B をリサイクルさせて、 CO_2 添加原料ガ

ス 1 1 A とした場合と、従来のように、リサイクルしない場合との、 CO_2 膜分離の分離効率の相違を示す。なお、比較例 3 は、第 1 膜分離器 1 3 A の一段のみで処理した場合である。

[0083] [表3]

(表3)

		原料ガス 11	第1膜 分離器 13A入口	第1膜 分離器 13A透過側	第1膜 分離器 13A非透過側	CO_2 吸収塔 61出口	再生塔 63出口
試験 例 3	CO_2 濃度 [mol%]	20	28.6	92.3	15.7	0.3	100
	CH_4 濃度 [mol%]	80	71.4	7.7	84.3	99.7	0
	CO_2 流量 [kmol/h]	20	33	18	15	0.2	1.8
	CH_4 流量 [kmol/h]	80	82	1.5	80.8	78.5	0
比較 例 3	CO_2 濃度 [mol%]	20	20	88.2	2.5	0.3	100
	CH_4 濃度 [mol%]	80	80	11.8	97.5	99.7	0
	CO_2 流量 [kmol/h]	20	20	18	2	0.2	1.8
	CH_4 流量 [kmol/h]	80	80	2.4	77.6	77.6	0

[0084] この試験例では、 CO_2 濃度が 20 mol%、 CH_4 濃度が 80 mol% の原料ガス 1 1 を用いて膜分離した。

試験例 3 の場合には、図 5 に示すように、圧縮器 1 2 の上流側の原料ガス 1 1 に第 2 透過ガス 1 4 B を戻しているため、第 1 膜分離器 1 3 A 入口での CO_2 濃度は戻し分の 8.6 mol% だけ増加し、 CO_2 濃度は 28.6 mol% となる。この結果、第 1 膜分離器 1 3 A の透過側第 1 透過ガス 1 4 A の CO_2 濃度は 92.3 mol% となる。

[0085] また、 CO_2 吸収塔 6 1 出口の精製ガス 6 6 の CO_2 濃度は、0.3 mol%、 CH_4 濃度は 99.7 mol% となり、再生塔 6 3 出口の分離ガス 6 8 の CO_2 濃度は 100 mol%、 CH_4 濃度は 0 mol% となり、この結果、 CH_4 回収率は 98.1% となる。

[0086] これに対して、比較例 3 の場合、圧縮器 1 2 の上流側の原料ガス 1 1 に第 2 透過ガス 1 4 B を戻していないため、第 1 膜分離器 1 3 A 入口での CO_2 濃度は原料ガス 1 1 と同じ組成の CO_2 濃度が 20 mol% であり、第 1 膜分離器 1 3 A 透過側の第 1 透過ガス 1 4 A の CO_2 濃度は 88.2 mol% となる。

。

[0087] また、 CO_2 吸収塔 6 1 出口の精製ガス 6 6 の CO_2 濃度は、0.3 mol %、 CH_4 濃度は 99.7 mol % となり、再生塔 6 3 出口の分離ガス 6 8 の CO_2 濃度は 100 mol %、 CH_4 濃度は 0 mol % となり、この結果、 CH_4 回収率は 97.0 % となる。

[0088] よって、試験例 3 のように、第 1 膜分離器 1 3 A に導入する CO_2 添加原料ガス 1 1 A の CO_2 濃度を、原料ガス 1 1 中の CO_2 濃度よりも高めることが可能なため、第 1 膜分離器 1 3 A の第 1 透過ガス 1 4 A として、非 CO_2 ガス成分の混入量の低い高純度な CO_2 ガスを得ることができる。

[0089] この結果、濃縮 CO_2 として分離する第 1 膜分離器 1 3 A の第 1 透過ガス 1 4 A への非 CO_2 ガス成分（例えばメタン）混入量が少なくなるので、第 1 非透過ガス 1 5 A 中の非 CO_2 ガス成分である例えばメタンの原料ガスからの回収率を高めることができる。

実施例 4

[0090] 図 6 は、実施例 4 に係るガス中の CO_2 分離装置を備えた油随伴ガスからの CO_2 分離システムの概略図である。なお、実施例 3 の油随伴ガスからの CO_2 分離システムの構成部材と同一の部材には同一符号を付して、その説明は省略する。

図 6 に示すように、本実施例に係る油随伴ガスからの CO_2 分離システム 1 0 0 B は、原油（含随伴ガス）5 1 を搾油する生産井 5 2 と、原油 5 1 から油 5 3 と原料ガス 1 1 となる随伴ガスと水 5 4 とに各々分離するセパレータ 5 5 と、実施例 2 の第 1 膜分離器 1 3 A 及び第 2 膜分離器 1 3 B を備えたガス中の CO_2 分離装置 1 0 D と、第 2 膜分離器 1 3 B からの第 2 非透過ガス 1 5 B 中に残存する CO_2 をさらに分離する CO_2 分離設備 6 0 とを備えている。

[0091] そして、原料ガス 1 1 又は第 1 透過ガス 1 4 A 中の CO_2 濃度を求め、求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合（原料ガス 1 1 の場合には、例えば 10 mol % 以下、第 1 透過ガス 1 4 A の場合には、例えば 80 mol % 以下）、第 2 膜分離器 1 3 B の膜分離後の第 2 透過ガス 1 4 B、第 1 膜分離器 1 3 A の

膜分離後の第1透過ガス14A及びCO₂分離設備60からの分離ガス68を、CO₂回収ラインL₆から分岐されたCO₂回収分岐ラインL₇に介装された第六弁V₁₆を開き、原料ガス11側にリサイクルするようにしている。

[0092] 本実施例に係る油随伴ガスからのCO₂分離システム100Bによれば、再生塔63から放散された分離ガス68であるCO₂を、原料ガス11に添加するようにしているので、原料ガス11中のCO₂の分離効率を向上させることができる。

以上により、CO₂を不純物として含む原料ガス11中のCO₂を高度除去するとともに、高純度なCO₂を回収CO₂として得ることができる。

実施例 5

[0093] 図7は、実施例5に係るガス中のCO₂分離装置を備えた油随伴ガスからのCO₂分離システムの概略図である。なお、実施例4の油随伴ガスからのCO₂分離システムの構成部材と同一の部材には同一符号を付して、その説明は省略する。

図7に示すように、本実施例に係る油随伴ガスからのCO₂分離システム100Cでは、第2透過ガス14Bのリサイクルの有無の判断をCO₂濃度により管理している。

[0094] 先ず、本実施例では、第1透過ガス14A中のCO₂濃度をCO₂計19Bにより求める。求めたCO₂濃度が、例えば90mol%を超える場合には、第2透過ガス14Bのリサイクルをしないという判断をする。

[0095] 第1透過ガス14AにおいてCO₂濃度を判断するのは、分離膜13aの劣化度合いを考慮する点と、製品要求の回収CO₂のCO₂濃度に適合しているかを判断する点からである。

[0096] すなわち、第1透過ガス14AのCO₂濃度（純度）の所望値は、回収CO₂の適用先で異なる。例えば90mol%で良い場合や、92mol%以上とする場合等である。

[0097] このように、第1膜分離器13A及び第2膜分離器13BによりCO₂が濃縮された第1及び第2透過ガス14A、14B中のCO₂濃度をCO₂計19B

、19Cで測定し、所望のCO₂純度を満足している場合には、原料ガス11への第1、第2透過ガス14A、14B及び再生塔63で回収された分離ガス68の原料ガス11へのリサイクル量を減ずる或いはリサイクルを行わないことにより、CO₂濃縮ガスの原料ガス11へのリサイクルに要する圧縮動力の増加を防止する。

[0098] この結果、本実施例では、所望値の回収CO₂濃度となる場合には、原料ガス11への第1、第2透過ガス14A、14B及び再生塔63で回収された分離ガス68の原料ガス11へのリサイクル量を減ずる或いはリサイクルを行わないことにより、無用なりサイクルは行わない操業を実施することができる。

[0099] ここで、下記[表4]に、本実施例のように原料ガス11に第2透過ガス14Bをリサイクルさせない場合のCO₂分離効率を示す。

[0100] [表4]

(表4)

		原料ガス 11	第1膜 分離器 13A透過側	第2膜 分離器 13B透過側	CO ₂ 吸収塔 61出口	再生塔 63出口
試験 例 4	CO ₂ 濃度 [mol%]	30	92.8	90.7	0.4	100
	CH ₄ 濃度 [mol%]	70	7.2	9.3	99.6	0
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	30	7.5	19.5	0.3	2.7
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	70	0.6	2.0	67.4	0

[0101] この試験例では、CO₂濃度が30mol%、CH₄濃度が70mol%の原料ガス11を用いて膜分離した。

試験例4の場合には、図7に示すように、圧縮器12の上流側の原料ガス11に第2透過ガス14Bを戻していない。この結果、第1膜分離器13A透過側の第1透過ガス14AのCO₂濃度は92.8mol%、第2膜分離器13B透過側の第2透過ガス14BのCO₂濃度は90.7mol%となる。また、CO₂吸収塔61出口の精製ガス66のCO₂濃度は0.4mol%、CH₄濃度は99.6mol%となり、再生塔63出口の分離ガス68のCO₂濃度は100mol%、CH₄濃度は0mol%となり、この結果、CH₄回収率

は 96.3%となる。

実施例 6

[0102] 図8は、ガス中のCO₂分離装置を備えた油随伴ガスからのCO₂分離システムの概略図である。なお、実施例4の油随伴ガスからのCO₂分離システムの構成部材と同一の部材には同一符号を付して、その説明は省略する。

図8に示すように、本実施例に係る油随伴ガスからのCO₂分離システム100Dは、原油（含随伴ガス）51を搾油する生産井52と、原油51から油53と原料ガス11となる随伴ガスと水54とに各々分離するセパレータ55と、実施例2の第1膜分離器13A及び第2膜分離器13Bを備えたガス中のCO₂分離装置10Dと、第2膜分離器13Bからの第2非透過ガス15B中に残存するCO₂をさらに分離するCO₂分離設備60と、原料ガス11中のCO₂濃度を計測するCO₂計19Aと、第1膜分離器13Aの上流側に設けられ、原料ガス11中のCO₂濃度に応じて、原料ガス11中のCO₂を分離し、所定濃度のCO₂ガス濃度とした原料ガス11を得る分離膜13cを有する第3膜分離器13Cと、を備えている。

[0103] ここで、原料ガス11中のCO₂濃度は、採掘する生産井52からの原油51中の随伴ガスの成分により大きく変動する場合がある。

長年（例えば10年、20年以上）の経年変化により、原油51中の随伴ガス中のCO₂が大幅に増加する場合がある。特に、CO₂をCO₂-EORとして油田等に戻した場合に、増加の傾向がみられる場合がある。

更には、複数の生産井52からの原料ガス11が集中し、この混合された原料ガス11からCO₂を選択的に分離する場合、CO₂濃度が極端に変動する場合がある。

[0104] 本実施例では、このような場合の対策として、第1膜分離器13Aに供給する原料ガス11中のCO₂濃度を所定濃度に調整するために、圧縮器12と第1膜分離器13Aとの間に、前処理用の第3膜分離器13Cを設け、CO₂濃度が所定濃度（30mol%以下）となる第3非透過ガス15Cを得るように調整している。

[0105] これにより、第1膜分離器13Aに導入する原料ガス11の濃度を、実施例5と同等の濃度とすることができる。

[0106] これにより、CO₂濃度が高い場合の分離膜13bで分離できない余分なCO₂がアミン吸収法のCO₂分離設備60に導入することを防止できる。

すなわち、CO₂分離設備60では導入するCO₂濃度が設計初期において規定されており、これを超える場合には、処理できず、CO₂分離設備60の増設が必要となる。

[0107] 本実施例では、前処理用の第3膜分離器13Cを設けることで、これを解消することができる。

[0108] この結果、原料ガス11の組成変動や流量変動があるような場合にも、適切に対応できる。

[0109] 本実施例では、主にCO₂流量が時間的に変化することで原料ガス11の流量が増加した場合に、原料ガス11の圧縮器12の後流に追設の前処理用の第3膜分離器13Cを必要に応じた段数設置するようにしている。これにより、原料ガス11の流量増加分に相当するCO₂ガスを追設の前処理用の第3膜分離器13Cで高純度な濃縮CO₂として取り出した後に、流量の減じた原料ガス11を、実施例4と同様に第1膜分離器13Aに供給する。

以上により、CO₂を不純物として含む原料ガス11中のCO₂を高度除去するとともに、高純度なCO₂を得ることができる。

[0110] よって、追設の第3膜分離器13Cの設置により、大幅なCO₂分離プロセスの変更を行わずに、原料ガス11中のCO₂量増加に伴う原料ガス11の流量増加時において、膜分離器以降のCO₂分離設備60を改造せずに、処理ガス量増加に伴う性能不足を補うことが可能となる。

[0111] ここで、下記〔表5〕に、本実施例のように原料ガス11からCO₂を分離する場合のCO₂分離効率を示す。

[0112]

[表5]

(表5)

		原料 ガス 11	第3膜 分離器 13C透過側	第3膜 分離器 13C非透過側	第1膜 分離器 13A透過側	第2膜 分離器 13B透過側	CO ₂ 吸収塔 61出口	再生塔 63出口
試験 例 5	CO ₂ 濃度 [mol%]	49.5	96.7	30	92.8	90.7	0.4	100
	CH ₄ 濃度 [mol%]	50.5	3.3	70	7.2	9.3	99.6	0
	CO ₂ 流量 [kmol/h]	70	40	30	7.5	19.5	0.3	2.7
	CH ₄ 流量 [kmol/h]	71.4	1.4	70	0.6	2.0	67.4	0

[0113] この試験例では、CO₂濃度が49.5mol%、CH₄濃度が50.5mol%の原料ガス11を用いて膜分離した。

試験例5の場合には、図8に示すように、圧縮器12を通過した原料ガス11を第3膜分離器13Cに通過させている。この結果、第3膜分離器13Cの透過側の第3透過ガス14CのCO₂濃度は96.7mol%、CH₄濃度は3.3mol%となり、第3膜分離器13Cの非透過側の第3非透過ガス15CのCO₂濃度は30mol%、CH₄濃度は70mol%となる。

[0114] また、第1膜分離器13A透過側の第1透過ガス14AのCO₂濃度は92.8mol%、CH₄濃度は7.2mol%、第2膜分離器13Bの透過側第2透過ガス14BのCO₂濃度は90.7mol%、CH₄濃度は9.3mol%となる。また、CO₂吸収塔61出口の精製ガス66のCO₂濃度は、0.4mol%、CH₄濃度は99.6mol%となり、再生塔63出口の分離ガス68のCO₂濃度は100mol%、CH₄濃度は0mol%となり、この結果、CH₄回収率は94.4%となる。

[0115] 図9は、本実施例に係る他のガス中のCO₂分離装置を備えた油随伴ガスからのCO₂分離システムの概略図である。

図9のガス中のCO₂分離装置を備えた油随伴ガスからのCO₂分離システム100Eでは、第3膜分離器13CをバイパスラインL₃₁に介装している。このバイパスラインL₃₁には、第七弁V₁₇が設けられ、原料ガス導入ラインL₁₁には、第八弁V₁₈が設けられている。

[0116] ガス中のCO₂分離装置の膜分離管理を行う場合には、原料ガス11中のC

O₂を監視し、CO₂濃度が所定量以上に増加したと判断した場合、第七弁V₁₇を全開し、第八弁V₁₈を閉じることで、圧縮器12を通過後の原料ガス11を第3膜分離器13Cに導入し、ここでCO₂を分離し、原料ガス11中のCO₂を所定濃度の第3非透過ガス15Cとなるように調整している。

[0117] よって、本実施例によれば、原料ガス11の各々の濃度に応じて、実施例4乃至6によるCO₂分離を実施することができる。さらに原料ガス11中のCO₂濃度が高い場合には、バイパスラインL₃₁側に切り替えて、圧縮器12を通過後の原料ガス11を第3膜分離器13Cに導入し、ここでCO₂を分離し、所定濃度となるように調整してCO₂の膜分離をすることができる。

[0118] これにより、CO₂濃縮ガスの純度に応じて、原料ガス11へのCO₂濃縮ガスのリサイクル量を調整できると共に、CO₂濃度が増大した場合においても任意の対応も可能となる。

符号の説明

- [0119] 10A～10D ガス中のCO₂分離装置
- 11 原料ガス
- 12 圧縮器
- 13A～13C 第1～第3膜分離器
- 13a～13c 分離膜
- 14A～14C 第1～第3透過ガス
- 15A～15C 第1～第3非透過ガス
- 100A～100E 油随伴ガスからのCO₂分離システム

請求の範囲

- [請求項1] C O₂を含む原料ガスを導入する原料ガス導入ラインと、
前記原料ガス導入ラインの端部が接続され、前記原料ガスからC O₂を膜分離する第1 膜分離器と、
前記第1 膜分離器の膜分離で透過した第1 透過ガスを排出する第1 透過ガス排出ラインと、
前記第1 膜分離器の膜分離で透過されない第1 非透過ガスを排出する第1 非透過ガス排出ラインと、
前記第1 膜分離器の下流側に設けられ、第1 非透過ガスからC O₂を膜分離する第2 膜分離器と、
前記第2 膜分離器の膜分離で透過した第2 透過ガスを排出する第2 透過ガス排出ラインと、
前記第2 透過ガス排出ラインの一部から分岐し、第2 透過ガスを、前記原料ガス側又は前記第1 非透過ガス側に戻す第2 透過ガスの戻しラインと、を備えることを特徴とするガス中のC O₂分離装置。
- [請求項2] 請求項1 において、
前記第1 透過ガス中のC O₂濃度を求め、所定値以下の場合、前記第2 透過ガスを原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中のC O₂分離装置。
- [請求項3] 請求項1 において、
前記原料ガス中のC O₂濃度を求め、所定値以下の場合、第2 透過ガスを原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中のC O₂分離装置。
- [請求項4] 請求項1 乃至3 のいずれか一つにおいて、
前記第1 透過ガス排出ラインの一部から分岐し、第1 透過ガスを原料ガスに戻す第1 透過ガス分岐ラインを備えることを特徴とするガス中のC O₂分離装置。
- [請求項5] 請求項1 乃至4 のいずれか一つにおいて、

前記原料ガス又は前記第1透過ガス又は第2透過ガス中の CO_2 濃度を計測する CO_2 濃度計を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置。

[請求項6] 請求項1乃至4のいずれか一つにおいて、
前記原料ガス中の CO_2 濃度を計測する CO_2 濃度計と、
前記第1膜分離器の上流側に設けられ、前記原料ガス中の CO_2 濃度に応じて、原料ガス中の CO_2 を分離し、所定濃度の CO_2 ガス濃度とした原料ガスを得る前処理用の第3膜分離器と、を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置。

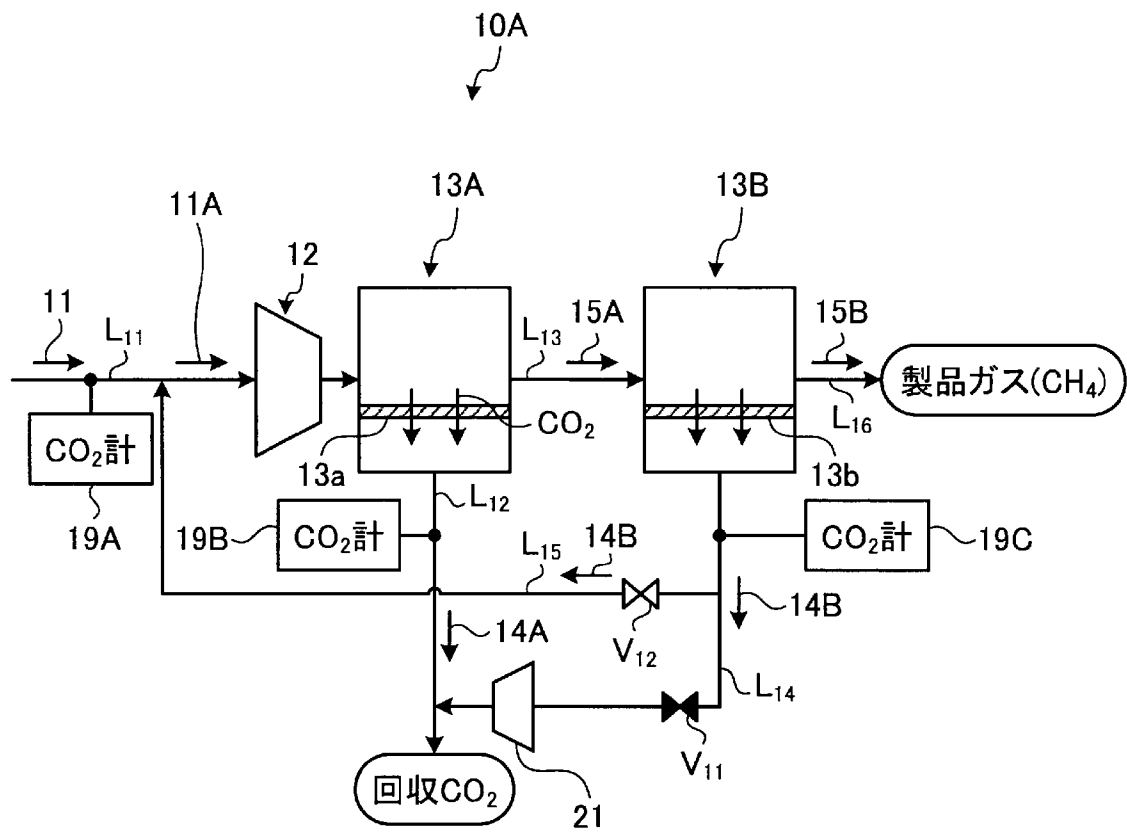
[請求項7] 請求項1乃至6のいずれか一つにおいて、
前記原料ガス導入ラインに介装され、導入された原料ガスを圧縮する圧縮器を、前記第1膜分離器の上流側に備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置。

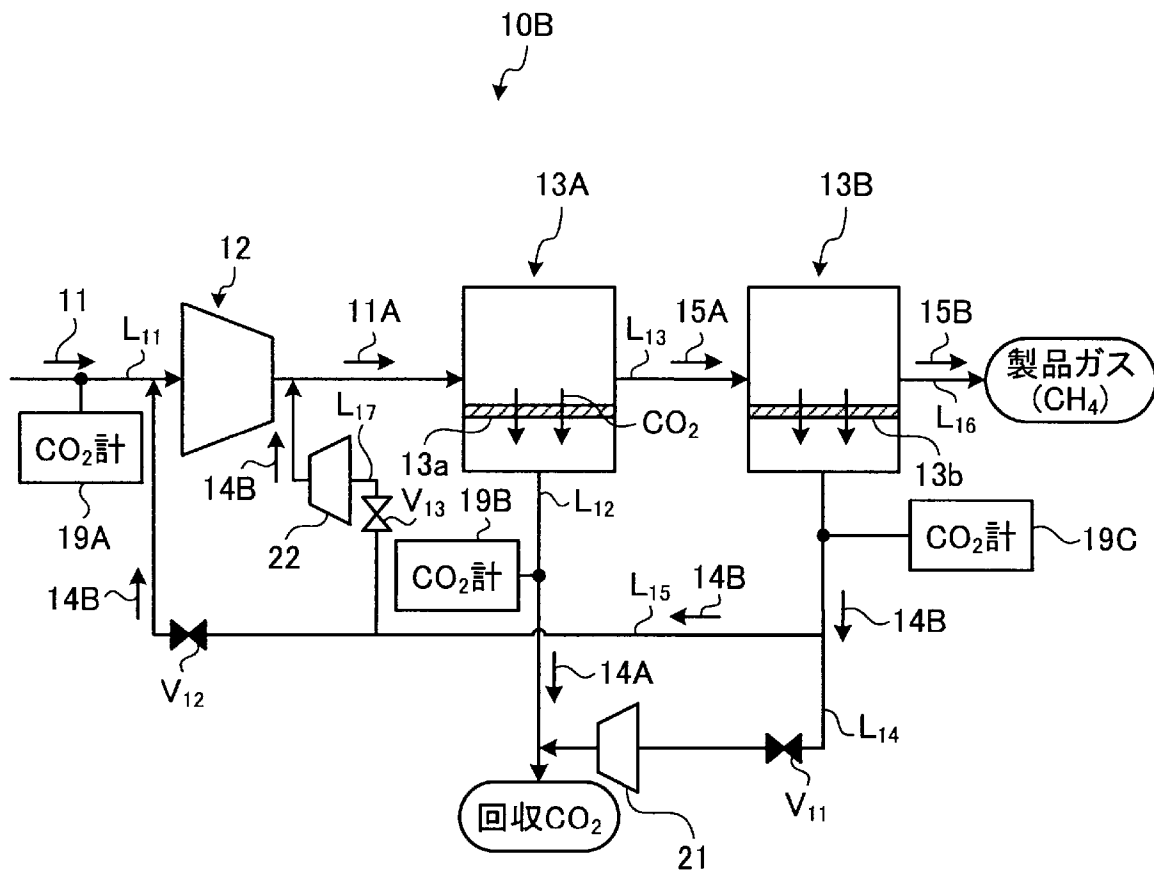
[請求項8] 請求項1乃至7のいずれか一つにおいて、
前記第2非透過ガス排出ラインの一部から排出される前記第2非透過ガス中の CO_2 をさらに分離する CO_2 分離設備と、
前記 CO_2 分離設備で分離した CO_2 ガスを、前記原料ガス又は前記第1非透過ガスに戻す CO_2 ガスの戻しラインと、を備えることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置。

[請求項9] CO_2 を含む原料ガスから CO_2 を選択的に分離する分離膜を有する膜分離器を直列に2段設け、
1段目の第1膜分離器の膜分離で透過されない第1非透過ガスを2段目の第2膜分離器で膜分離するに際し、
前記原料ガス又は前記第1膜分離器の膜分離後の第1透過ガス中の CO_2 濃度を求め、
求めた CO_2 濃度が所定値以下の場合、
前記第2膜分離器の膜分離後の第2透過ガスを、原料ガス側にリサイクルすることを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法。

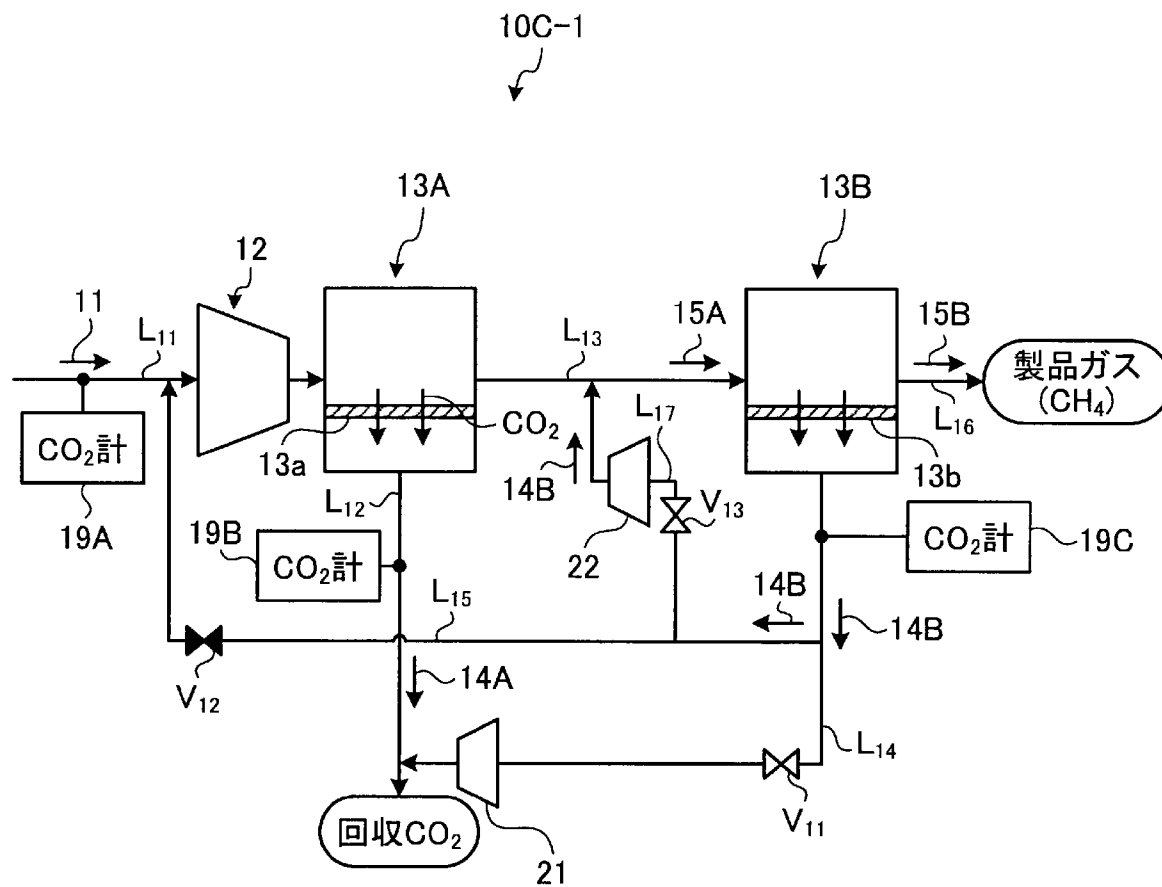
- [請求項10] 請求項9において、
さらに、前記第1膜分離器での膜分離後の前記第1透過ガスを前記原料ガスに戻すことを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法。
- [請求項11] 請求項9又は10において、
前記第2膜分離器からの第2非透過ガス中の CO_2 をさらに CO_2 分離設備で分離し、
前記 CO_2 分離設備で分離した CO_2 ガスを、前記原料ガス又は前記第1非透過ガスに戻すことを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離方法。
- [請求項12] CO_2 を含む原料ガスから CO_2 を選択的に分離する分離膜を有する第1及び第2膜分離器を直列に2段設け、
1段目の前記第1膜分離器の膜分離で透過されない第1非透過ガスを2段目の前記第2膜分離器で膜分離するに際し、
前記原料ガス中の CO_2 濃度を求め、
前記原料ガス中の求めた CO_2 濃度が所定値以上の場合、
前記原料ガス中の CO_2 を前処理用の第3膜分離器で膜分離し、前記第3膜分離器で膜分離されない第3非透過ガスを、
前記第1膜分離器に導入して、 CO_2 を選択的に分離することを特徴とするガス中の CO_2 分離装置の膜分離管理方法。

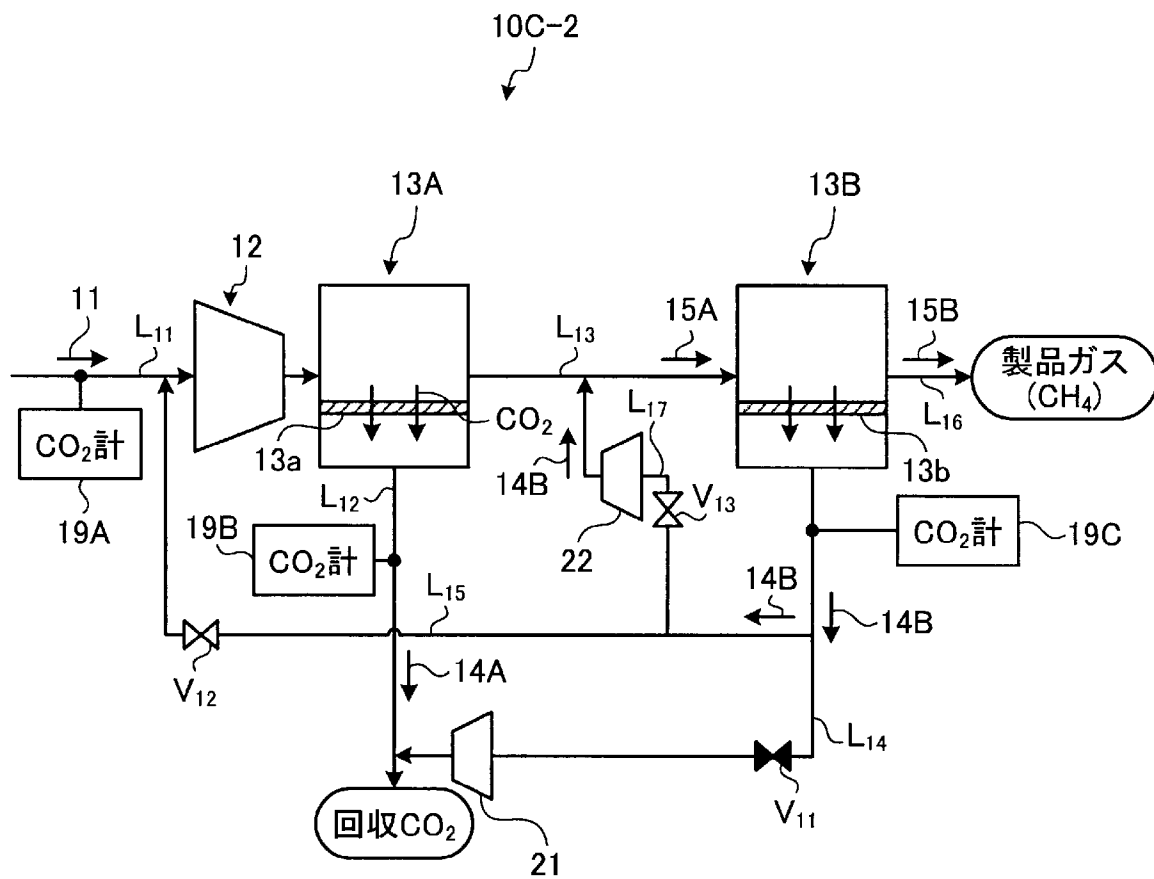
[図1]



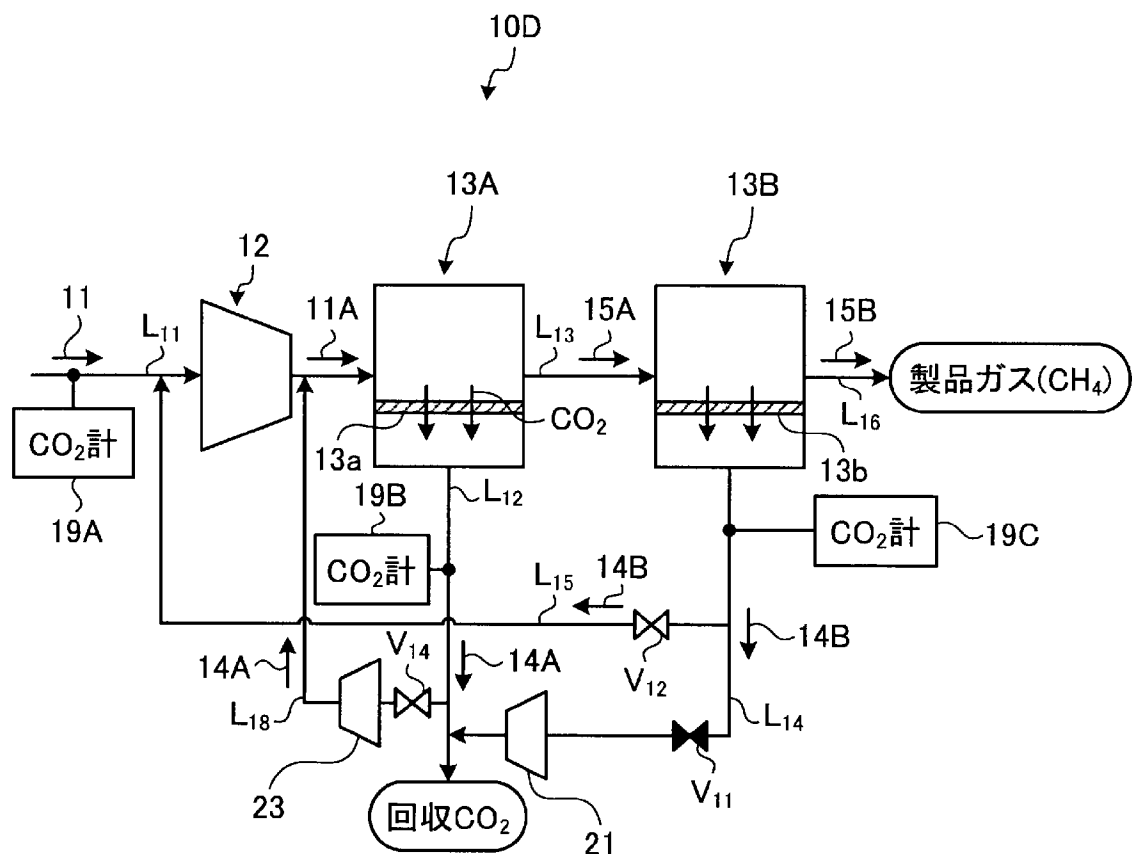


[図3-1]

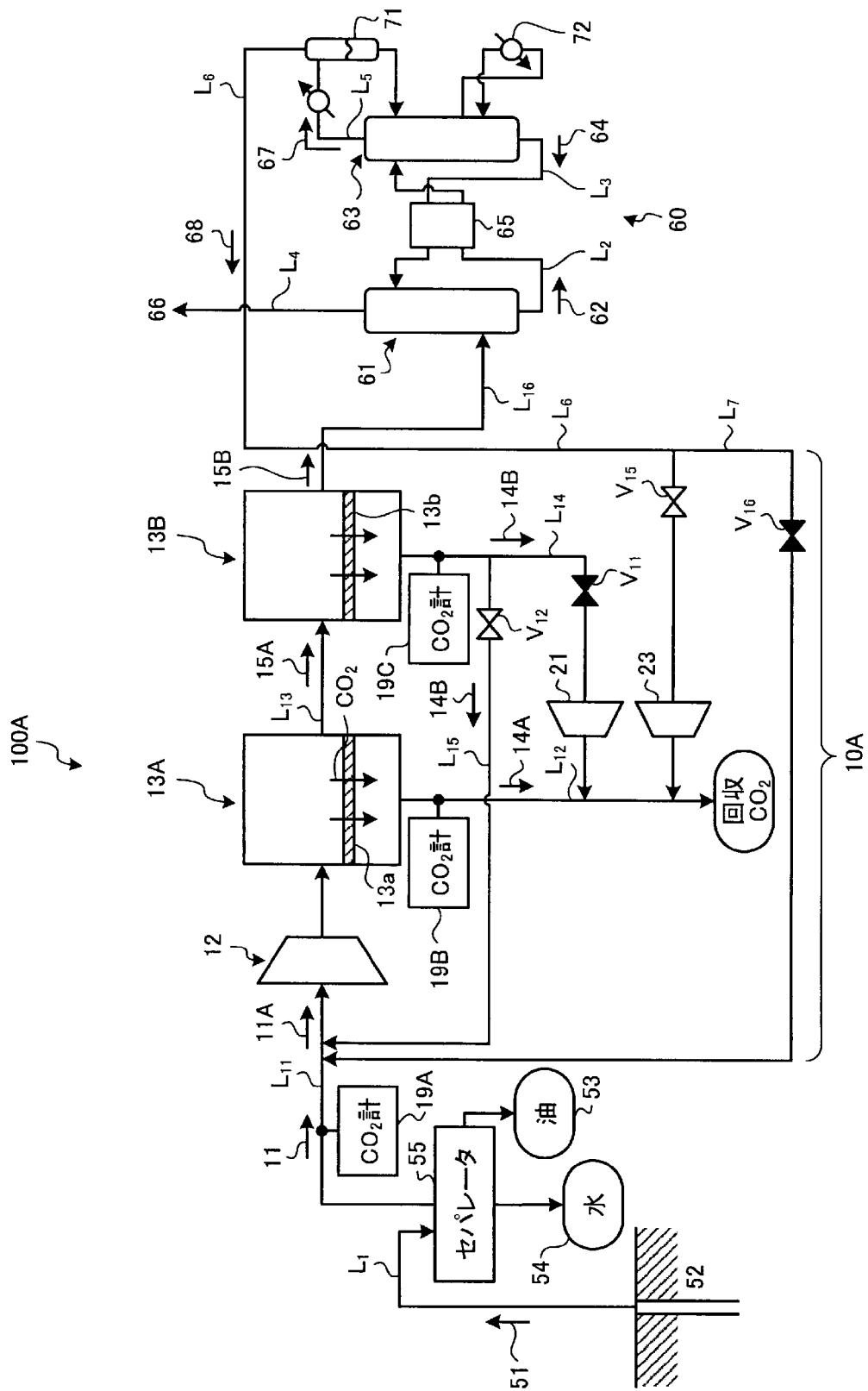




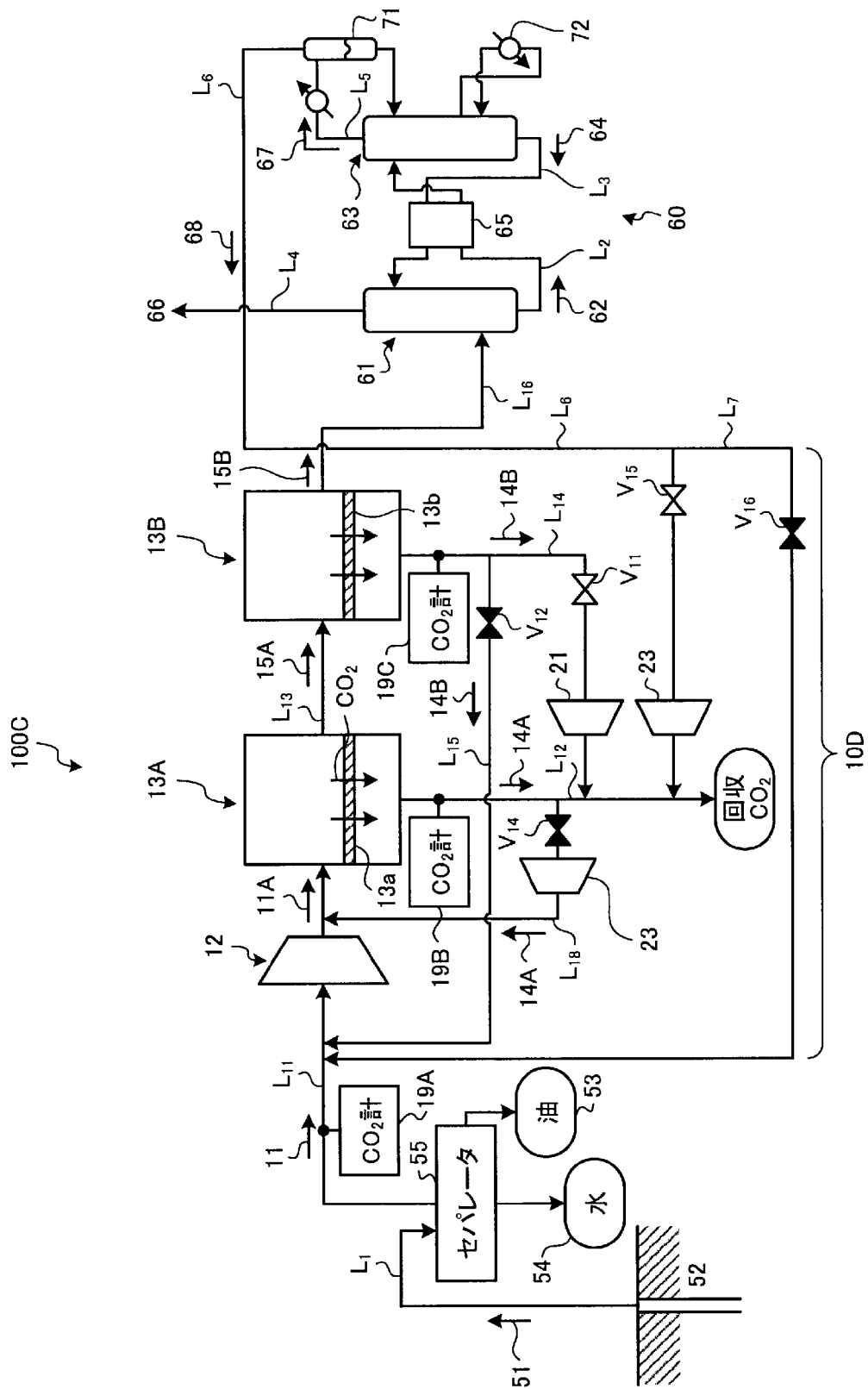
[図4]



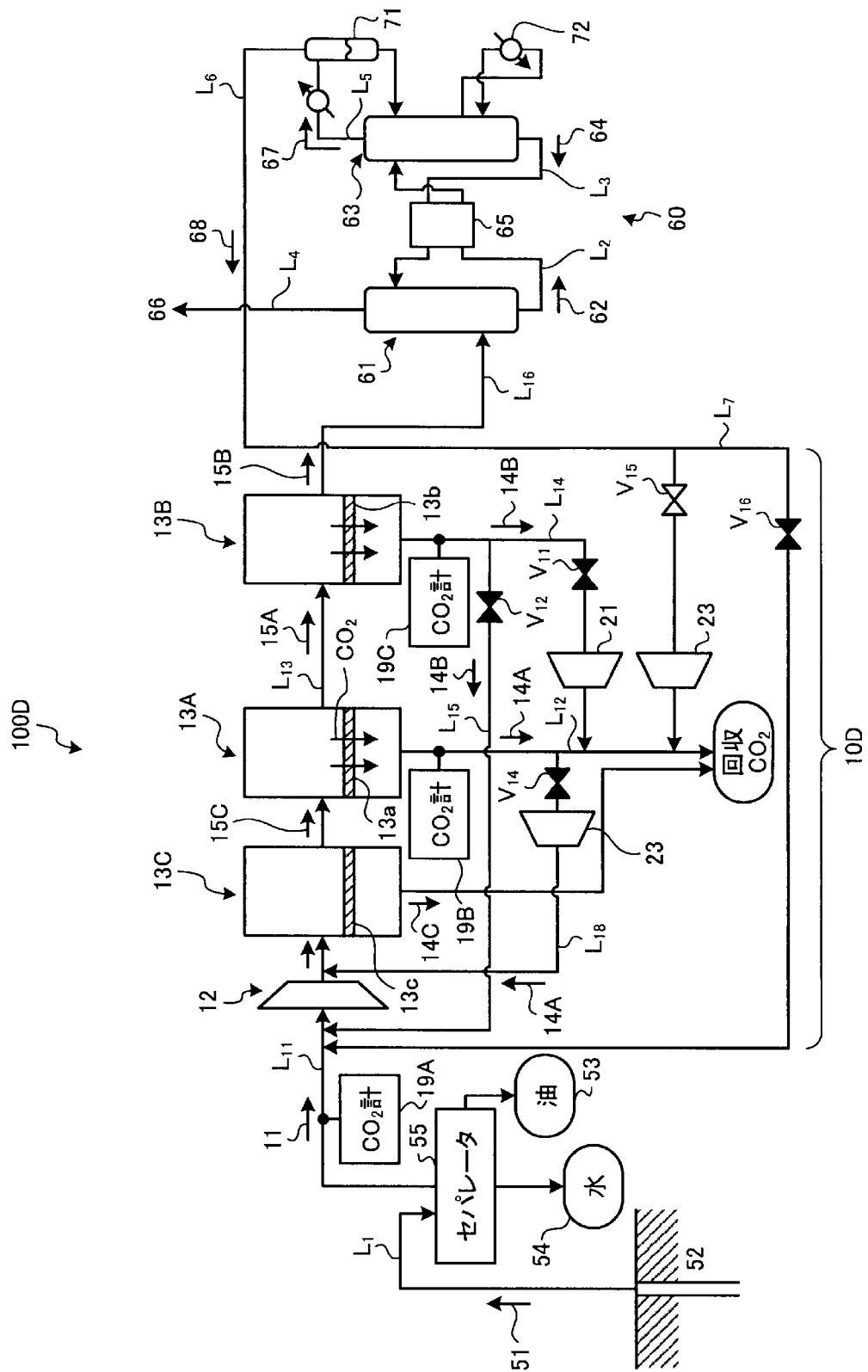
[図5]



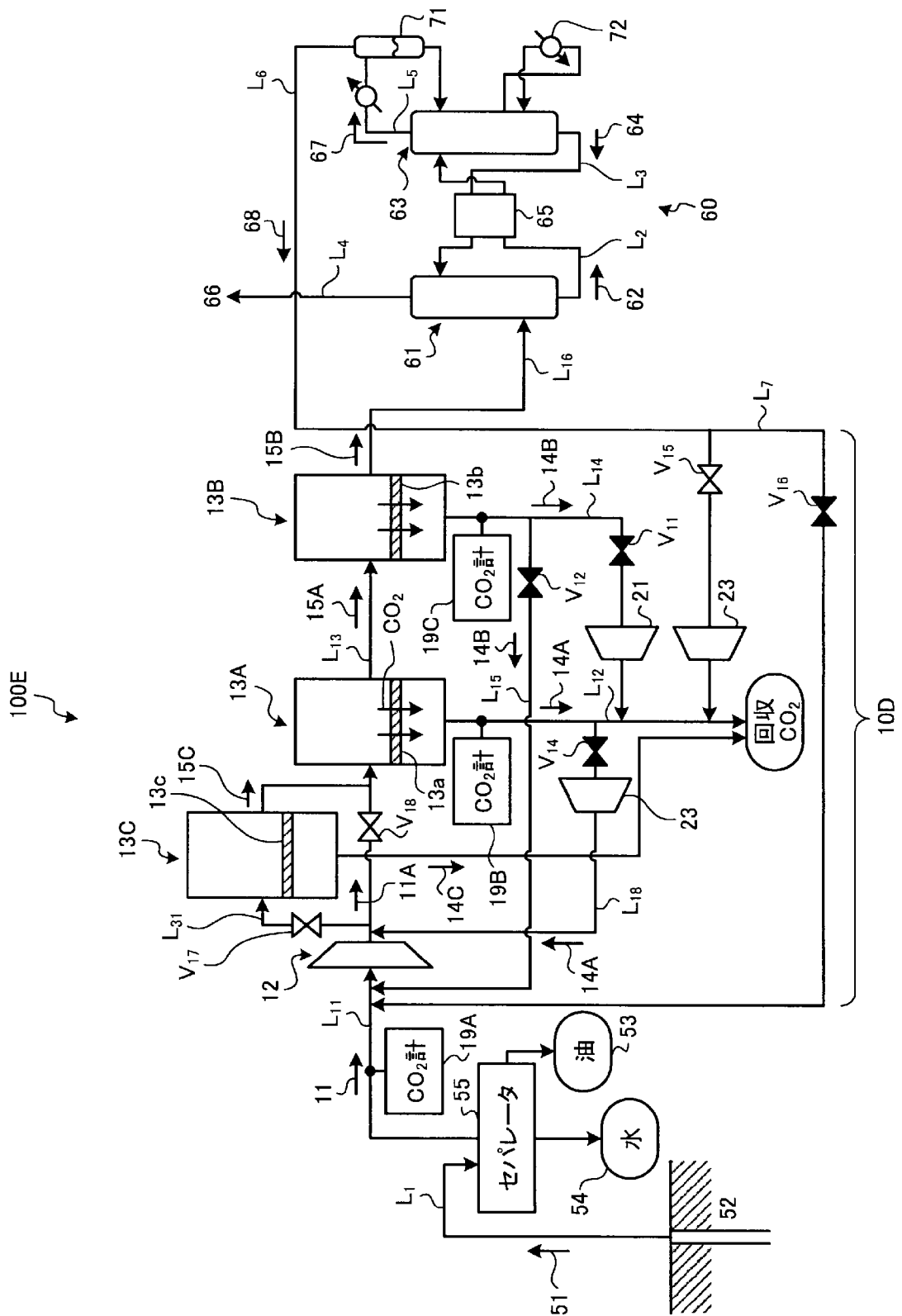
[図7]



[図8]



[図9]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/079723

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01D53/22(2006.01)i, B01D53/14(2006.01)i, B01D61/58(2006.01)i, C01B31/20(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01D53/22, B01D61/00-B01D71/82, C02F1/44, C01B31/20

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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.
X Y	JP 2006-507385 A (L'Air Liquide, Societe Anonyme a Directoire et Conseil de Surveillance pour l'Etude et l'Exploitation des Procedes Georges Claude), 02 March 2006 (02.03.2006), claims; paragraphs [0009] to [0020], [0025] to [0027]; fig. 1 & US 2004/0099138 A1 claims; paragraphs [0007] to [0023], [0034] to [0036]; fig. 1 & WO 2004/045745 A1 & EP 1565249 A1 & CN 1713949 A	1, 4, 7 2-3, 5-6, 8-12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 November 2015 (27.11.15)

Date of mailing of the international search report
08 December 2015 (08.12.15)

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/JP2015/079723

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2007/0125537 A1 (Kaaeid A. Lokhandwala), 07 June 2007 (07.06.2007), claims; paragraphs [0008], [0015] to [0016], [0104] to [0126]; fig. 2 (Family: none)	1-12
Y	JP 7-748 A (Praxair Technology, Inc.), 06 January 1995 (06.01.1995), paragraph [0013]; fig. 2 & US 5378263 A cols. 4-5; fig. 2 & EP 603798 A1	1-12
Y A	JP 2000-33222 A (Air Liquide Japan, Ltd.), 02 February 2000 (02.02.2000), paragraphs [0005], [0016] to [0021]; fig. 3 & US 6197090 B1 cols. 2-5; fig. 3 & EP 974389 A2	2-3, 5, 9-10 1, 4, 6-8, 11-12
Y A	US 2013/0108531 A1 (Michael J. Mitariten), 02 May 2013 (02.05.2013), paragraphs [0007] to [0008], [0061] to [0062]; fig. 3A, 3B (Family: none)	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10
Y A	JP 2002-363114 A (Research Institute of Innovative Technology for the Earth), 18 December 2002 (18.12.2002), paragraphs [0005] to [0014]; fig. 1 (Family: none)	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10
Y A	JP 4-277008 A (Union Carbide Industrial Gases Technology Corp.), 02 October 1992 (02.10.1992), paragraphs [0009] to [0010], [0018]; fig. 1 & US 5102432 A cols. 2-5; fig. 1 & EP 490322 A1 & KR 10-1996-0004605 B & CN 1063053 A	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B01D53/22(2006.01)i, B01D53/14(2006.01)i, B01D61/58(2006.01)i, C01B31/20(2006.01)i

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（I P C））

Int.Cl. B01D53/22, B01D61/00- B01D71/82, C02F1/44, C01B31/20

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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
X Y	JP 2006-507385 A（レール・リキードーソシエテ・アノニム・ア・ディレクトワール・エ・コンセイユ・ドゥ・スールバイランス・プール・レテュード・エ・レクスプロワタシオン・デ・プロセデ・ジ・ヨルジュ・クロード）2006.03.02, 特許請求の範囲, [0009]-[0020], [0025]-[0027], 第1図 & US 2004/0099138 A1, claims, [0007]-[0023], [0034]^ [0036], fig. 1 & WO 2004/045745 A1 & EP 1565249 A1 & CN 1713949 A	1, 4, 7 2-3, 5-6, 8-12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「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

2 7 . 1 1 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

0 8 . 1 2 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

中村 泰三

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 8

4 Q

5 5 7 6

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
Y	US 2007/0125537 A1 (Kaaeid A. Lokhandwala) 2007.06.07, 特許請求の範囲, [0008], [0015]-[0016], [0104]-[0126], 第2図 (ファミリーなし)	1-12
Y	JP 7-748 A (プラクスエア・テクノロジー・インコーポレイテッド) 1995.01.06, [0013], 第2図 & US 5378263 A, cols.4-5, fig. 2 & EP 603798 A1	1-12
Y A	JP 2000-33222 A (日本エア・リキード株式会社) 2000.02.02, [0005], [0016]-[0021], 第3図 & US 6197090 B1, cols. 2-5, fig. 3 & EP 974389 A2	2-3, 5, 9-10 1, 4, 6-8, 11-12
Y A	US 2013/0108531 A1 (Michael J. Mitariten) 2013.05.02, [0007]-[0008], [0061]-[0062], 第3A, 3B図 (ファミリーなし)	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10
Y A	JP 2002-363114 A (財団法人地球環境産業技術研究機構) 2002.12.18, [0005]-[0014], 第1図 (ファミリーなし)	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10
Y A	JP 4-277008 A (ユニオン・カーバイド・インダストリアル・ガゼズ・テクノロジー・コーポレーション) 1992.10.02, [0009]-[0010], [0018], 第1図 & US 5102432 A, cols. 2-5, fig. 1 & EP 490322 A1 & KR 10-1996-0004605 B & CN 1063053 A	6, 8, 11-12 1-5, 7, 9-10