INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2010/060648

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B01D71/64 B01D67/00 B01D53/22 C08G73/10
ADD.

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)
B01D C08G C08L

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 1 457 253 A1 (UNIV SINGAPORE [SG]) 15 September 2004 (2004-09-15) cited in the application the whole document	1-8,14, 15
X	EP 0 410 793 A1 (HOECHST CELANESE CORP [US]) 30 January 1991 (1991-01-30) claims 1-22; table 1	9-13
X	US 5 055 116 A (KOHN RACHEL S [US] ET AL) 8 October 1991 (1991-10-08) claims 1-22; example 2	9-13
A	US 5 202 411 A (ITATANI HIROSHI [JP]) 13 April 1993 (1993-04-13) claims 1-23; table 2(a)	9-13

☐ 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 document 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	Date of mailing of the international search report
11 November 2010	19/11/2010

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Luethe, Herbert

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

BNSDOCID: <WO_____2011009919A1_I_>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2010/060648

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See additional sheet

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

☒ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

The International Searching Authority has found that the international application contains multiple (groups of) inventions, as follows:

1. Claims 1-8, 14, 15

Method for producing an polyimide membrane, characterized in that it is produced directly from the polymerization solution - i.e. without insulation of the solid polymer (claims 1-8); membrane obtained according to said method (claim 14); casting solution used in said method (claim 15).

—

2. Claims 9-13

Polyimide membrane, characterized by various parameters which do not necessarily result from the method as per claim 1 (claims 9-13).

—

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2010/060648

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1457253 A1	15-09-2004	JP 2004277743 A	07-10-2004
		US 2004177753 A1	16-09-2004
EP 0410793 A1	30-01-1991	JP 3065214 A	20-03-1991
		US 5074891 A	24-12-1991
US 5055116 A	08-10-1991	NONE	
US 5202411 A	13-04-1993	CA 2039967 A1	07-10-1991

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

BNSDOCID: <WO____2011009919A1_I_>

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2010/060648

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. B01D71/64 B01D67/00 B01D53/22 C08G73/10
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
B01D C08G C08L

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 1 457 253 A1 (UNIV SINGAPORE [SG]) 15. September 2004 (2004-09-15) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-8,14, 15
X	EP 0 410 793 A1 (HOECHST CELANESE CORP [US]) 30. Januar 1991 (1991-01-30) Ansprüche 1-22; Tabelle 1	9-13
X	US 5 055 116 A (KOHN RACHEL S [US] ET AL) 8. Oktober 1991 (1991-10-08) Ansprüche 1-22; Beispiel 2	9-13
A	US 5 202 411 A (ITATANI HIROSHI [JP]) 13. April 1993 (1993-04-13) Ansprüche 1-23; Tabelle 2(a)	9-13

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
11. November 2010	19/11/2010

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Luethe, Herbert

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2010/060648

Feld Nr. II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein internationaler Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche diese Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, dass eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich

3. ☐ Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefasst sind.

Feld Nr. III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Diese Internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1. ☒ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.

2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung solcher Gebühren aufgefordert.

3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.

4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Dieser internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfasst:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

☒ Der Anmelder hat die zusätzlichen Recherchengebühren unter Widerspruch entrichtet und die gegebenenfalls erforderliche Widerspruchsgebühr gezahlt.

☐ Die zusätzlichen Recherchengebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt, jedoch wurde die entsprechende Widerspruchsgebühr nicht innerhalb der in der Aufforderung angegebenen Frist entrichtet.

☐ Die Zahlung der zusätzlichen Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN **PCT/ISA/ 210**

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-8, 14, 15

   Verfahren zur Herstellung einer Polyimidmembran, dadurch gekennzeichnet, dass sie direkt aus der Polymerisationslösung - d.h. ohne Isolierung des festen Polymers - hergestellt wird (Ansprüche 1-8); nach diesem Verfahren erhaltene Membran (Anspruch 14); die in diesem Verfahren verwendete Giesslösung (Anspruch 15).

   ---

2. Ansprüche: 9-13

   Polyimidmembran, gekennzeichnet durch diverse Parameter, die sich nicht notwendigerweise aus dem Verfahren nach Anspruch 1 ergeben (Ansprüche 9-13).

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2010/060648

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 1457253	A1	15-09-2004	JP	2004277743 A	07-10-2004
			US	2004177753 A1	16-09-2004
EP 0410793	A1	30-01-1991	JP	3065214 A	20-03-1991
			US	5074891 A	24-12-1991
US 5055116	A	08-10-1991	KEINE		
US 5202411	A	13-04-1993	CA	2039967 A1	07-10-1991

BNSDOCID: <WO____2011009919A1_I_>

Electronic Patent Application Fee Transmittal	
Application Number:	
Filing Date:	
Title of Invention:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES
First Named Inventor/Applicant Name:	Markus UNGERANK
Filer:	Marvin Jay Spivak/Sarfaraz Ahmed
Attorney Docket Number:	408824US99PCT
Filed as Large Entity	

U.S. National Stage under 35 USC 371 Filing Fees

Description	Fee Code	Quantity	Amount	Sub-Total in USD($)
Basic Filing:				
National Stage Fee	1631	1	390	390
Natl Stage Search Fee - Report provided	1642	1	500	500
National Stage Exam - all other cases	1633	1	250	250
Pages:				
Claims:				
Miscellaneous-Filing:				
Petition:				
Patent-Appeals-and-Interference:				

Description	Fee Code	Quantity	Amount	Sub-Total in USD($)
Post-Allowance-and-Post-Issuance:				
Extension-of-Time:				
Miscellaneous:				
		Total in USD ($)		**1140**

Electronic Acknowledgement Receipt	
EFS ID:	14588522
Application Number:	13807831
International Application Number:	PCT/EP11/58636
Confirmation Number:	4142
Title of Invention:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES
First Named Inventor/Applicant Name:	Markus UNGERANK
Customer Number:	22850
Filer:	Marvin Jay Spivak/Sarfaraz Ahmed
Filer Authorized By:	Marvin Jay Spivak
Attorney Docket Number:	408824US99PCT
Receipt Date:	31-DEC-2012
Filing Date:	
Time Stamp:	14:36:04
Application Type:	U.S. National Stage under 35 USC 371

Payment information:

Submitted with Payment	yes
Payment Type	Credit Card
Payment was successfully received in RAM	$1140
RAM confirmation Number	1567
Deposit Account	
Authorized User	

File Listing:

Document Number	Document Description	File Name	File Size(Bytes)/ Message Digest	Multi Part /.zip	Pages (if appl.)

1		408824US-NewApplication1.pdf	3015688 d552391c0e5d54c0b3270f2c11f08c022215031e	yes	82

Multipart Description/PDF files in .zip description		
Document Description	**Start**	**End**
Transmittal of New Application	1	2
Application Data Sheet	3	5
Miscellaneous Incoming Letter	6	6
Preliminary Amendment	7	7
Claims	8	15
Applicant Arguments/Remarks Made in an Amendment	16	16
Documents submitted with 371 Applications	17	17
Documents submitted with 371 Applications	18	18
Documents submitted with 371 Applications	19	19
Specification	20	49
Claims	50	55
Abstract	56	56
Drawings-only black and white line drawings	57	61
Oath or Declaration filed	62	77
Transmittal Letter	78	78
Information Disclosure Statement (IDS) Form (SB08)	79	79
Documents submitted with 371 Applications	80	82

Warnings:	
Information:	

2		408824US-NewApplication2.pdf	4965325 76e247f88405b9caf08a43cc7cf6428877f7a68d	yes	119
	Multipart Description/PDF files in .zip description				
	Document Description		Start	End	
	Foreign Reference		1	31	
	Foreign Reference		32	106	
	Foreign Reference		107	119	
Warnings:					
Information:					
3	Fee Worksheet (SB06)	fee-info.pdf	33144 8a66f9e4cda17339ae7ac73c878bc4d12766995c9	no	2
Warnings:					
Information:					
		Total Files Size (in bytes):	8014157		

This Acknowledgement Receipt evidences receipt on the noted date by the USPTO of the indicated documents, characterized by the applicant, and including page counts, where applicable. It serves as evidence of receipt similar to a Post Card, as described in MPEP 503.

New Applications Under 35 U.S.C. 111
If a new application is being filed and the application includes the necessary components for a filing date (see 37 CFR 1.53(b)-(d) and MPEP 506), a Filing Receipt (37 CFR 1.54) will be issued in due course and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the filing date of the application.

National Stage of an International Application under 35 U.S.C. 371
If a timely submission to enter the national stage of an international application is compliant with the conditions of 35 U.S.C. 371 and other applicable requirements a Form PCT/DO/EO/903 indicating acceptance of the application as a national stage submission under 35 U.S.C. 371 will be issued in addition to the Filing Receipt, in due course.

New International Application Filed with the USPTO as a Receiving Office
If a new international application is being filed and the international application includes the necessary components for an international filing date (see PCT Article 11 and MPEP 1810), a Notification of the International Application Number and of the International Filing Date (Form PCT/RO/105) will be issued in due course, subject to prescriptions concerning national security, and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the international filing date of the application.

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92*bis*.1 and Administrative Instructions, Section 422)

To:

WOLF, Oliver
Evonik Degussa GmbH
DG-IPM-PAT
Rodenbacher Chaussee 4
63457 Hanau
ALLEMAGNE

Date of mailing *(day/month/year)*
08 November 2012 (08.11.2012)

Applicant's or agent's file reference
2010P00237WO

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/EP2011/058636

International filing date *(day/month/year)*
26 May 2011 (26.05.2011)

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address
EVONIK FIBRES GMBH
Werkstrasse 3
A-4860 Lenzing
Austria

State of Nationality: AT
State of Residence: AT
Telephone No.: +49 6151 18 4366
Facsimile No.:
E-mail address: ipm-pat-hanau@evonik.com

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐ the person ☐ the name ☒ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address
EVONIK FIBRES GMBH
Gewerbepark 4
A-4861 Schörfling am Attersee
Austria

State of Nationality: AT
State of Residence: AT
Telephone No.: +49 6151 18 4366
Facsimile No.:
E-mail address: ipm-pat-hanau@evonik.com
☐ Notifications by e-mail authorized

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office
☐ the International Searching Authority
☐ the Authority(ies) specified for supplementary search
☐ the International Preliminary Examining Authority
☒ the designated Offices concerned
☐ the elected Offices concerned
☐ other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. +41 22 338 89 75

Authorized officer
Sanson Eric
e-mail pt05.pct@wipo.int
Telephone No. +41 22 338 74 05

Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

Bescheinigung	Certificate	Attestation
Die angehefteten Unterlagen stimmen mit der als ursprünglich eingereicht geltenden Fassung der auf dem nächsten Blatt bezeichneten europäischen Patentanmeldung überein.	The attached documents are exact copies of the text in which the European patent application described on the following page is deemed to have been filed.	Les documents joints à la présente attestation sont conformes au texte, considéré comme initialement déposé, de la demande de brevet européen qui est spécifiée à la page suivante.

Patentanmeldung Nr.	**Patent application No.**	**Demande de brevet n°**

10168121.1 / EP10168121

The organization code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is EP10168121.

Der Präsident des Europäischen Patentamts;
Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

Le President de l'Office européen des brevets
p.o.

R.C. van Dijk

EPA/EPO/OEB Form 1014 12.08

Anmeldung Nr:
Application no.: 10168121.1
Demande no :

Anmeldetag:
Date of filing: 01.07.10
Date de dépôt :

Anmelder / Applicant(s) / Demandeur(s):

Evonik Fibres GmbH
Werkstrasse 3
4860 Lenzing/AT

Bezeichnung der Erfindung / Title of the invention / Titre de l'invention:
(Falls die Bezeichnung der Erfindung nicht angegeben ist, siehe Beschreibung.
If no title is shown please refer to the description.
Si aucun titre n'est indiqué se référer à la description.)

Verfahren zur Trennung von Gasen

In Anspruch genommene Priorität(en) / Priority(Priorities) claimed / Priorité(s) revendiquée(s)
Staat/Tag/Aktenzeichen / State/Date/File no. / Pays/Date/Numéro de dépôt:

Internationale Patentklassifikation / International Patent Classification / Classification internationale de brevets:

B01D53/00

Am Anmeldetag benannte Vertragstaaten / Contracting States designated at date of filing / Etats contractants désignées lors du dépôt:

AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO PL PT RO SE SI SK SM TR

Verfahren zur Trennung von Gasen

Die Erfindung betrifft eine spezielle Vorrichtung, insbesondere Verkettung von Gasseparationsmembranmodulen, zur Auftrennung von Gasgemischen in zwei Fraktionen von jeweils erhöhter Reinheit.

Mittels einer Gasseparationsmembran können Gasgemische aufgrund unterschiedlicher Permeabilitäten (= Stoffstrom pro Zeiteinheit, Fläche, Differenzdruck und Schichtdicke) der Einzelgase in einem Kunststoff getrennt werden. Die Kunststoffe werden im Allgemeinen zu Hohlfasern oder Flachmembranen verarbeitet. Die Membrane zeichnen sich durch eine sehr dünne Trennschicht an der Oberfläche der Membran aus, sodass die Permeanz (= Stoffstrom pro Zeiteinheit, Fläche und Differenzdruck) der Membran möglichst groß ist.

Das mit einer Membran im einfachen Durchtritt erreichbare Trennergebnis ist neben der Selektivität der Membran vom Druckverhältnis zwischen Hochdruck- und Niederdruckseite der Membran abhängig. Je größer das Druckverhältnis ist, desto besser ist das maximal erzielbare Trennergebnis.

Im Bereich geringer Druckverhältnisse verlaufen die Kurven für die verschiedenen Selektivitäten dicht beieinander (siehe Abbildung 1). Das Trennergebnis wird in diesem Bereich durch das Druckverhältnis bestimmt. Dieser Bereich wird daher als „drucklimitiert" bezeichnet. Im Bereich hoher Druckverhältnisse ist das Trennergebnis kaum noch durch das

Druckverhältnis beeinflussbar. Dieser Bereich wird als „selektivitätslimitiert" bezeichnet.

Literaturbekannt sind eine Reihe von Membranverschaltungen für die Trennung von Gasen. In Baker, IndEngChemRes, Natural Gas Processing with Membranes, 47 (2008) findet sich eine ausführliche Auflistung verschiedener bekannter Verschaltungen. So lassen sich am Beispiel der Trennung von Methan (Retentatgas) und CO_2 (Permeatgas) mit einem einfachen einstufigen Membrantrennschritt gemäß Abb. 2 zwar hohe Reinheiten im Produktstrom (98% CH_4) erreichen. Die Qualität des permeatseitigen Abgasstroms ist dabei jedoch nicht beeinflussbar und von geringer Reinheit (44% CO_2). Entsprechend groß ist der Schlupf bzw. Verlust von Methan.

Bei einer einstufigen Verschaltung mit Rückführung (Abb. 3) lassen sich die Reinheiten leicht erhöhen. Das grundsätzliche Problem der geringen Retentatgasausbeute und der Permeatgasqualität lässt sich damit jedoch nicht lösen.

Für höhere Permeatreinheiten und höheren Ausbeuten der zurückgehaltenen Komponente sind eine Reihe mehrstufiger Verschaltungen bekannt. In einer einfach permeatgestuften Verschaltung mit Rekompression und Rückführung des ersten Permeats (Abb. 4) können Permeatreinheit (86%) und Methanausbeute verbessert werden.

Tritt die besser permeierende Komponente in erhöhten Konzentrationen (30%) auf so kann literaturgemäß eine Verschaltung nach Abb. 5 vorteilhaft sein. Es werden zwei

permeatgasreiche Ströme (82% CO2, 93% CO2) und ein retentatgasreicher Strom (82% CH4) erzeugt.

Bhide (MemSci, Hybrid processes for the removal of acid gases from natural gas, 1998) zeigt einen dreistufigen Prozess für die Entfernung von Sauergasen aus Erdgas (Abb. 6). Der zu behandelnde Gasstrom wird in einer vorgeschalteten Membran einer Grobreinigung unterzogen. Das druckseitig verbleibende vorgereinigte Erdgas wird über eine weitere Membran geführt. Retentatseitig entsteht der Zielproduktstrom, das um die Sauergase abgereicherte Erdgas. Der permeatseitige, sauergasangereicherte Strom wird komprimiert und einer weiteren Membranstufe zugeführt. Das Retentat dieser Stufe wird auf das Druckniveau der vorgeschalteten Stufe verdichtet und vor diese rezirkuliert. Mit diesem zusätzlichen energetischen und finanziellen Aufwand soll die Ausbeute von Methan erhöht werden. Nachteilig an dieser Verschaltung sind die Aufwendungen für die Kompressoren sowie die unzureichenden Reinheiten des sauergasangereicherten Stroms.

Chenar (MemSci Application of Cardo-type polyimide (PI) and polyphenylene oxide (PPO) hollow, 2008) beschreibt einen permeatgestuften Prozess mit Rekompression (Abb. 7). Nachteilig an dieser Verschaltung sind die stark begrenzten Reinheiten des Retentatgases sowie der zusätzliche Aufwand für die Rekompression.

Die EP0 799 634 offenbart eine Verschaltung gemäß Abb. 8. Nachteilig ist jedoch ein zusätzlicher potentieller Eintrag

von Öl oder Wasser als Dicht- und Schmiermittel, zusätzliche hohe Investmentkosten, erhöhter Energieverbrauch durch zusätzliche Kompression sowie erhöhte Ausfallwahrscheinlichkeit durch die beweglichen Teile.

Nachteilig an den oben genannten Verfahren ist die zusätzliche Rekompression und die weiterhin deutlich zu geringen Reinheiten von Retentatgas im Gesamtretentatstrom sowie die unzureichenden Ausbeuten des Retentatgases im Retentatstrom.

Abb. 9 zeigt eine, insbesondere für die Aufbereitung von Biogas häufig vorgeschlagene und auch umgesetzte Technologie (Air Liquide und Harasek). Offenbart ist eine retentatgestufte Verschaltung mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe.

Die TU Eindhoven entwickelte eine intern gestufte Verschaltung, welche Methanreinheiten von mehr als 90% ermöglicht (siehe Abb. 10). Nachteilig an dieser Verschaltung ist die ungenügende Reinheit des Retentatgases.

In der EP 0 603 798 ist eine mehrstufige Verschaltung zur Erzeugung von Stickstoff offenbart. Der Nachteil an diesem Verfahren ist die unzureichende Reinheit der permeierenden Komponente sowie der Einsatz von mindestens zwei Kompressoren.

EP0695574 offenbart eine Verschaltung mit teilweiser Nutzung eines Permeatstroms als Sweepstrom für die Erzeugung eines möglichst reinen Retentats. Nachteilig an diesem Verfahren ist die unzureichende Qualität des Gesamtpermeats.

In US5753011 wird ein Verfahren offenbart bei der durch Kombination von permeatgestuften Membrantrennschritten und Druckwechseladsorption PSA hohe Reinheiten für zwei Produktströme erreicht werden. Nachteilig an diesem Verfahren ist der Einsatz einer aufwendigen PSA.

In EP1634946 ist ein Verfahren zur Aufbereitung von Biogas offenbart. Darin ist eine thermische Verwertung des Methans aus dem Methan abgereicherten Stroms beschrieben. Nachteilig sind die hohen Kosten und der Verlust des Gases.

In EP0596268 sind schließlich verschiedene Verschaltungen zur Erzeugung von drei verschiedenen Gaszusammensetzungen offenbart.

Nachteilig an den aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren ist, dass entweder eine hohe Reinheit des Permeatgases oder eine hohe Reinheit des Retentatgases erzielt werden kann. Für das gleichzeitige Erzielen von hohen Reinheiten von Permeatgas und Retentatgas, wie es zum Beispiel bei der Aufbereitung und Einspeisung von Biogas in das Erdgasnetz durch die hohen Anforderungen an die Methanreinheit und durch die Begrenzung des Methanschlupfs notwendig ist, gibt es keine Verfahren, die ohne eine Rekompressionseinheit oder ohne eine weitere Aufreinigung des

Permeat- oder Retentatstromes (z.B. thermische Nachverbrennung des Permeatstromes oder Druckwechseladsorption für den Retentatstrom) auskommen.

Ausgehend von diesem Stand der Technik bestand die Aufgabe der vorliegenden Erfindung darin Vorrichtungen sowie Verfahren zur Trennung und Aufreinigung von Gasgemischen bereitzustellen, welche die Nachteile der Verfahren und Vorrichtungen des Standes der Technik nicht oder nur in verringertem Maße aufweisen. Insbesondere sollen Verfahren und Vorrichtungen bereitgestellt werden, welche gleichzeitig Permeatgas und Retentatgas in hohen Reinheiten liefern. In einer weiteren speziellen Aufgabe soll dieses Verfahren und diese Vorrichtung von den Invest- und Betriebskosten vorteilhaft sein und / oder eine einfachere Verfahrensführung ermöglichen.

In einer nächsten speziellen Aufgabe soll ein möglichst universell einsetzbares/-bare Verfahren/Vorrichtung für beliebige Gasgemische bereitgestellt werden. Insbesondere soll es möglich sein, Gasströme aufzutrennen, die bei der Herstellung von Biogas und Erdgas anfallen bzw. die Kohlendioxid und Methan in Gegenwart anderer Gase wie Wasser, Wasserstoff, Schwefelwasserstoff enthalten.

Weitere nicht explizit genannte Aufgaben ergeben sich aus dem Gesamtzusammenhang der nachfolgenden Ansprüche, Beschreibung, Beispiele und Abbildungen.

Es wurde nun überraschend gefunden, dass die Vorrichtung gemäß Anspruch 1 bzw. einem der davon abhängigen Ansprüche reine Ströme von Permeat und Retentat liefern kann, ohne dass mehr als ein Kompressor benötigt wird oder der Permeat- oder Retentatstrom weiter durch andere Methoden aufgereinigt werden muss. Die erfindungsgemäße Vorrichtung ermöglicht somit gleichzeitig Permeat- und Retentartströme in hoher Reinheit zu erzielen. Die Investitionskosten für die Anlage sind niedrig, sie kommt ohne zusätzliche nachgeschaltete Aufreinigungsverfahren aus. Es gelang somit mit einem reinen Membrantrennverfahren die gestellten Aufgaben zu lösen.

Gegenstand der vorliegenden Ansprüche sind daher die/das in den Ansprüchen 1 bis 9 bzw. 10 bis 15 beanspruchte und in der nachfolgenden Beschreibung, den Beispielen und Abbildungen 11 bis 13 näher definierte Vorrichtung bzw. Verfahren.

Die vorliegende Erfindung wird nachfolgend im Detail beschrieben. Zuvor werden einige wichtige Begriffe definiert.

Der Quotient der Permeanzen der Einzelgase ergibt die **Selektivität** der Membran zur Trennung bezüglich der zwei Gase und gibt somit an wie gut die Membran ein Gasgemisch bezüglich der beiden Komponenten auftrennen kann. Als **Permeat** wird der gesamte auf der Niederdruckseite der Membran, Membranmodule oder Membrantrennschritts anfallende Strom bezeichnet.
Als **Permeatgas** wird/werden die jeweils an der Membran, an dem Membranmodul, oder im Membrantrennschritt im **Permeatstrom**

gegenüber den jeweiligen Eintrittsstrom angereicherten Komponente/Komponenten bezeichnet.
Als **Retentat** wird der Gesamte auf der Hochdruckseite der Membran, Membranmodule oder Membrantrennschritts anfallende Strom bezeichnet, der nicht durch die Membran hindurch tritt.
Als **Retentatgas** wird/werden die jeweils an der Membran, an dem Membranmodul, oder im Membrantrennschritt im **Retentatstrom** gegenüber den jeweiligen Eintrittsstrom angereicherten Komponente/Komponenten bezeichnet.

Anhand der nachfolgend beschriebenen bevorzugten und speziellen Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens sowie der bevorzugten und besonders geeigneten Ausführungen sowie der Zeichnungen und Beschreibungen der Zeichnungen wird die Erfindung lediglich exemplarisch näher erläutert, d. h. sie ist nicht auf diese Ausführungs- und Anwendungsbeispiele oder auf die jeweiligen Merkmalskombinationen innerhalb einzelner Ausführungsbeispiele beschränkt.

Einzelne Merkmale, die im Zusammenhang mit konkreten Ausführungsbeispielen angeben und/oder dargestellt sind, sind nicht auf diese Ausführungsbeispiele oder die Kombination mit den übrigen Merkmalen dieser Ausführungsbeispiele beschränkt, sondern können im Rahmen der technischen Möglichkeiten, mit jeglichen anderen Varianten, auch wenn sie in den vorliegenden Unterlagen nicht gesondert behandelt sind, kombiniert werden.
Gleiche Bezugszeichen in den einzelnen Figuren und Abbildungen der Zeichnungen bezeichnen gleiche oder ähnliche oder gleich oder ähnlich wirkende Komponenten. Anhand der

Darstellungen in der Zeichnung werden auch solche Merkmale deutlich, die nicht mit Bezugszeichen versehen sind, unabhängig davon, ob solche Merkmale nachfolgend beschrieben sind oder nicht. Andererseits sind auch Merkmale, die in der vorliegenden Beschreibung enthalten, aber nicht in der Zeichnung sichtbar oder dargestellt sind, ohne weiteres für einen Fachmann verständlich.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung, siehe beispielhaft Abbildungen 11 bis 13, beinhaltet eine Verkettung von drei Membrantrennstufen. Jede Stufe besteht aus einem oder mehreren physikalischen Gasseparationsmodulen, die innerhalb einer Stufe parallel und/oder seriell verschaltet sind. Als Triebkraft für die Gasauftrennung in den Modulen wird eine Partialdruckdifferenz zwischen der Retentat- und der Permeatseite in den jeweiligen Membrantrennstufen erzeugt. Dies kann entweder mittels eines Kompressors (4), welcher auf der Feedseite der Membrantrennstufe (1) angeordnet ist und/ oder mittels zumindest einer Vakuumpumpe(in den Abb. 11 bis 13 nicht dargestellt) auf der Permeatseite der Membrantrennstufen (2) in Strom (9) und/oder auf der Permeatseite Membrantrennstufen (3) in Strom (11)erfolgen. Ggf. kann es vorteilhaft sein in einer oder mehrerer der Membrantrennstufen die Partialdruckdifferenz durch einen permeatseitigen Spülgasstrom zu erzeugen bzw. zu verstärken.

In einer bevorzugten Ausgestaltungsform der vorliegenden Erfindung bringt ein Kompressor das zu trennenden Gasgemisch, nachfolgend als Rohgasgemisch bezeichnet, auf den gewünschten Druck im Bereich von 5 bis 100 bar, vorzugsweise jedoch auf

einen Druck von 15 bis 75 bar. Das Rohgasgemisch wird mittels eines Gasstroms (5) in die Membrantrennstufe (1) eingeleitet. In der Membrantrennstufe (1) wird eine Vortrennung des Rohgasgemisches in leichter permeierende Komponenten (Permeatgas), die zu einem großen Teil ins Permeat der ersten Stufe gelangen und weniger schnell permeierende Komponenten (Retentatgas), die von der Membran vorwiegend zurückgehalten und sich im Retentat anreichern, erhalten.

Der Stufentrennschnitt (=Verhältnis Permeatstrom zu Feedstrom der betrachteten Stufe) ist abhängig von der Konzentration der leichter permeierenden Komponenten und beträgt für eine Konzentration von 50% einer Komponente A oder eines Permeatgases A im aufzureinigenden Gasstrom (5) zwischen 10 und 60%, vorzugsweise zwischen 15 und 55% und besonders bevorzugt zwischen 20 und 50 %. Der Stufentrennschnitt variiert in Abhängigkeit der Gaszusammensetzung im Gasstrom (5) in der Weise, dass eine Erhöhung eintritt, wenn die Konzentration einer leichter permeierenden Komponente A oder eines Permeatgases A sich erhöht und eine Erniedrigung eintritt, wenn die Konzentration der Komponente A oder eines Permeatgases A im aufzureinigenden Gasstrom (5) sich verringert. Allgemein kann man sagen, dass in der Membrantrennstufe (1) bevorzugt 20 bis 100%, besonders bevorzugt 40 bis 70 % der Komponente A oder eines Permeatgases A vom Gasstrom (5) in das Permeat übergehen.

Das Retentat der Membrantrennstufe (1) wird, optional mit Druckminderung durch ein optional vorhandenes Druckminderventil (12) oder mit Druckerhöhung, mittels des Retentatstroms (7) der Membrantrennstufe (2) zugeführt, in der die Feinreinigung erfolgt. Auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (2), d.h. im Retentatstrom (8), befindet sich bevorzugt ein Druckminderventil (13), mittels dessen der Druck im System aufrecht und konstant gehalten werden kann. Der Gehalt der schwerer permeiernden Komponenten oder eines Retentatgases B wird in der Membrantrennstufe (2) weiter erhöht, sodass der Gehalt an Komponente B oder eines Retentatgases B im Retentatproduktstrom (8) mehr als 90%, bevorzugt mehr als 95% und besonders bevorzugt mehr als 97% beträgt.

Der Stufentrennschnitt der Membrantrennstufe (2) beträgt bei einer Konzentration der Komponente A oder eines Permeatgases A von 50% im Strom (7) zwischen 10 und 60%, vorzugsweise zwischen 20 und 50 %.

Das Permeat (9) der Membrantrennstufe (2) wird mit dem Gasstrom (5) vereinigt und wiederaufbereitet. Dies kann je nachdem ob ein Kompressor (4) oder gar ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen. Bei einem einstufigen Kompressor (4) wird der Permeatstrom (9) bevorzugt der Saugseite des Kompressors (4)(siehe Abb. 11) zugeführt. Wird ein mehrstufiger Kompressor verwendet, so ist es möglich, dass der Permeatstrom (9) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor eingeführt wird (siehe Abb. 12 und 13).

Das mit der Komponente A oder einem Permeatgas A in der Membrantrennstufe (1) stark angereicherte Permeat wird mittels des Permeatstroms (6) der Membrantrennstufe (3) zugeführt. Falls notwendig kann mittels eines Druckminderventils (14) im Retentatstrom der Membrantrennstufe (3) verhindert werden, dass der Druck des Permeates der Membrantrennstufe (1) auf Umgebungsdruck abfällt ((siehe Abb. 11). Auf diese Weise kann die treibende Kraft für die Membrantrennstufe (3) erhalten bleiben. Die Membrantrennstufe (3) produziert ein Permeat mit einem Gehalt an Komponente B oder eines Retentatgases B größer als 95%, vorzugsweise größer als 97% und besonders vorzugsweise größer als 99%, welches über den Permeatproduktstrom (11) aus der Vorrichtung ausgeschleust wird.

Der Stufentrennschnitt der Membrantrennstufe (3) beträgt zwischen 50 und 95%, vorzugsweise zwischen 70 und 93%.

Das Retentat (10) der Membrantrennstufe (3) wird mit dem Gasstrom (5) vereinigt und wiederaufbereitet. Dies kann je nachdem ob ein Kompressor (4) oder gar ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen. Bei einem einstufigen Kompressor (4) wird der Retentatstrom (10) bevorzugt der Saugseite des Kompressors (4)(siehe Abb. 11) zugeführt. Wird ein mehrstufiger Kompressor verwendet, so ist es bevorzugt, dass der Retentatstrom (10) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor eingeführt wird (siehe Abb. 12 und 13).

Der Permeatstrom (6) wird bevorzugt so geführt, dass der Feeddruck der Membrantrennstufe (3) zwischen 1 und 30 bar, vorzugsweise zwischen 2 und 20 bar beträt.

Wie bereits erläutert ist es besonders vorteilhaft wenn ein mehrstufigen Kompressor (4) eingesetzt wird. In diesem Fall kann nämlich auf eine komplette Entspannung des Retentats der Membrantrennstufe (3) verzichtet werden kann, da das Retentat der Membrantrennstufe (3) zwischen zwei Verdichterstufen des Kompressors (4) eingespeist wird (siehe Abb. 12 und 13).

Da die Membrantrennstufe (2) bei Entspannung auf Feeddruck im Regelfall im selektivitätslimitierten Bereich betrieben werden würde, kann es sinnvoll sein das Permeat (9) der zweiten Stufe lediglich auf ein höheres Druckniveau einer mehrstufigen Druckerhöhungseinheit, d.h. eines mehrstufigen Kompressors (4) zu entspannen da sich somit die Betriebskosten der Kompressionseinheit reduzieren würden ohne das Trennergebnis deutlich zu verschlechtern. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird daher ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet und die Gasströme (9) und (10) diesem Kompressor jeweils zwischen zwei Kompressionsstufen zugeführt. Eine solche Verschaltung zeigt Abb. 12.

Wie bereits erwähnt kann die erfindungsgemäße Vorrichtung ein oder mehrere Druckminderventile (12), (13) oder (14) umfassen. In einer bevorzugten Ausführungsform wird, bevorzugt mittels eines Druckminderventils (14), sichergestellt, dass der Druckabfall über die

Membrantrennstufe (1), auf 1 und 30 bar, vorzugsweise zwischen 2 und 20 bar und besonders vorzugsweise zwischen 3 und 10 bar beschränkt wird. Gleichzeitig oder alternativ wird, bevorzugt mittels eines Druckminderventils (13), sichergestellt, dass der Druckabfall über die Membrantrennstufen (1) und (2), auf 1 und 100 bar, vorzugsweise zwischen 5 und 80 bar und besonders vorzugsweise zwischen 10 und 70 bar beschränkt wird.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung bzw. das erfindungsgemäße Verfahren kann im Prinzip mit allen Membranen realisiert werden, die in der Lage sind binäre Gasgemische oder Multigasgemische zu trennen. Als Membranmaterialien kommen bevorzugt aber nicht ausschließlich Kunststoffe zum Einsatz. Als Kunststoffe in der trennaktiven Schicht kommen besonders bevorzugt Polyimide, Polyamide, Polysulfone, Celluloseacetate und Derivate, Polyphenylenoxide, Polysiloxane, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität, Mixed Matrix Membranen, Facilitated Transport Membranen, Polyethylenoxide, Polypropylenoxide, Kohlenstoffmembranen oder Zeolithe oder Mischungen daraus in Frage.

Die Membranen werden ebenfalls bevorzugt in Form von Hohlfasermembranen und / oder Flachmembranen verwendet. Die Membranen werden zu Modulen verbaut, die dann in der Trennaufgabe zum Einsatz kommen. Als Module können alle in der Technik bekannten Gasseparationsmodule wie zum Beispiel aber nicht ausschließlich Hohlfasergasseparationsmodule, Spiralwickelgasseparationsmodule, Kissengasseparationsmodule oder Rohrbündelgasseparationsmodule zum Einsatz kommen.

Die Membranmodule haben vorzugsweise eine Gemischtgasselektivität der Komponenten A und B (= Verhältnis des Stoffstromes A zum Stoffstrom B über die Membran) von mindestens 5, bevorzugt mindestens 10 und besonders bevorzugt von mindestens 20. Höher selektive Membranen haben den Vorteil, dass die Trennung effektiver wird und weniger Permeat aus Membrantrennstufe (2) bzw. weniger Retentat aus der Membrantrennstufe (3) zurückgeführt und mit dem Gasstrom (5) vereinigt werden muß. Damit muss insbesondere bei Verwendung eines einstufigen Kompressors (4) weniger Gas doppelt komprimiert werden, was wirtschaftliche Vorteile beim Betrieb der Anlage mit sich bringt. Bei sehr selektiven Membranmodulen mit einer Selektivität von 45 müssen nur ca. 35% des als Rohgas in die Membrantrennstufe (1) eingebrachten Gases doppelt komprimiert werden, mit einem Membranmodul mit einer Selektivität von nur 10 kann es sein, dass die Doppelkomprimierung bis zu 300% beträgt. Die Angaben 35% bzw. 300% beziehen sich auf Versuche, bei denen ein Gasgemisches mit äquimolaren Mengen an Komponente A und B (= Feed) aufgegeben wurden, wobei 98,5% Komponente B im Retentatgas der Stufe(2) und 99% an Komponente B im Permeatstrom der Stufe (3) enthalten waren.

Es ist augenscheinlich, dass der erfindungsgemäße Prozess mit selektiveren Membranen wesentlich wirtschaftlicher geführt werden kann und die notwendigen Größe des Kompressors und die benötigten Energie reduziert werden können.

Das erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung hat insbesondere die Vorteile, dass es ein reines Membranverfahren ist und ohne zusätzliche Aufreinigung der Permeat- und/oder Retentatströme (8) bzw. (11) für viele Anwendungen auskommt. Man braucht zum Bespiel bei der Aufreinigung von Biogas oder Erdgas (= Abtrennung von Kohlendioxid aus Methan) keine Druckwechseladsorption oder Aminwäsche mehr zur Feinreinigung des Retentates, sodass dieses ins Erdgasnetz eingespeist werden kann.

Weiterhin kann mit dem erfindungsgemäßen Verfahren / der erfindungsgemäßen Vorrichtung gleichzeitig ein reiner Retentatstrom (8) und ein reiner Permeatstrom (11) bei der Bio- und Erdgasaufreinigung hergestellt werden. Es kann daher ohne große Verluste an Methan und ohne große Beeinträchtigung der Umwelt in die Atmosphäre entlassen werden, ohne dass das Gas noch weiter behandelt werden muss durch eine katalytische Nachverbrennung oder eine Nutzung in einem Blockheizkraftwerk. Es entfällt daher die Investition in weitere Anlagenteile, was zu einem wirtschaftlicheren Aufreinigungsprozess für Bio- und Erdgas führt.

Ein weiterer Vorteil ist darin zu sehen, dass das erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung Mit deutlich geringerem apparativem und energetischen Aufwand auskommt wie die bekannten Verfahren des Standes der Technik.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung näher erläutern und beschreiben, schränken diese jedoch in keiner Weise ein.

In den nachfolgenden Beispielen konnte gezeigt werden, dass nach erfindungsgemäßer Verschaltung der Module und Anwendung bestimmter Drücke gleichzeitig Methan mit einer Reinheit von mehr als 96% und Kohlendioxid mit einer Reinheit von mehr als 97% aus einer Mischung von Kohlendioxid und Methan im Verhältnis 50 zu 50 hergestellt werden konnte.

Beispiel 1: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer mäßig selektiven Polyimidmembran

Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus Polyimid Hohlfasern der Firma UBE (Type NM B01 A). 1,78 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer (in Abb. 11 nicht gezeigt) eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Membrantrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat der Stufe (1) wird anschließend über den Retentatstrom (7) zu Membrantrennstufe (2) geleitet. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (2) wird auf 18,2 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Membrantrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,895 m^3/h dieser Mischung die Membrantrennstufe (2) Das Permeat der Membrantrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,743 m^3/h mit einem Methangehalt von 34,5% und einem Kohlendioxidgehalt von 65,5 % und wird über den Gasstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert. Das Permeat der Membrantrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 1,67 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 91,0 % und einem Methangehalt von 9,0 % und wird über den Gasstrom (6) als Feed in die Membrantrennstufe (3) geleitet. Der

Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 4,2 bara beschränkt. Das ergibt einen Permeatstrom (11) aus Membrantrennstufe (3) von 0,885 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,0 % Kohlendioxid und nur 1,0 % Methan. Der Retentatstrom (10) der Membrantrennstufe (3) beträgt 0,801 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 17,9 % Methan und 82,1 % Kohlendioxid und wird in die Mischkammer rückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 1,544 m^3/h oder 86,7 % bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer relativ hohen Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine moderate Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 20.

Beispiel 2: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran

Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid Hohlfasern mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine

Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Membrantrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des Gasstroms (7) der Membrantrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (2) wird auf 18,4 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Membrantrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,503 m^3/h dieser Mischung die Membrantrennstufe (2) Das Permeat der Membrantrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,262 m^3/h mit einem Methangehalt von 24,6% und einem Kohlendioxidgehalt von 75,4% und wird über den Gasstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert. Das Permeat der Membrantrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,547 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 92,4% und einem Methangehalt von 7,6% und wird über den Gasstrom (6) als Feed in die Membrantrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 5,0 bara beschränkt. Das ergibt einen Permeatstrom (11) aus Membrantrennstufe (3) von 0,497 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,0% Kohlendioxid und nur 1,0% Methan. Der Retentatstrom (10) der Membrantrennstufe (3) beträgt 0,050 m^3/h. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,312m^3/h oder 31,2% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine

Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45. Die hohe Selektivität von 45 gegenüber 20 in Beispiel 1 ermöglicht daher einen ökonomisch günstigeren Prozeß durch eine geringere Rekomprimierung von 31,2% statt 86,7%.

Beispiel 3: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5%

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten. Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet um die Konzentration von Methan im Permeat (11) auf unter 0,5 Vol% zu senken. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Membrantrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des Gasstroms (7) der Membrantrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf

der Retentatseite der Membrantrennstufe (2) wird auf 18,1 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2) Das Retentat der Membrantrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,505 m^3/h dieser Mischung die Membrantrennstufe (2) Das Permeat der Membrantrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,244 m^3/h mit einem Methangehalt von 26,1% und einem Kohlendioxidgehalt von 73,9% und wird über den Gasstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert. Das Permeat der Membrantrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,607 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 93,1% und einem Methangehalt von 6,9% und wird über den Gasstrom (6) als Feed in die Membrantrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen Permeatstrom (11) aus Membrantrennstufe (3) von 0,495 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der Retentatstrom (10) der Membrantrennstufe (3) beträgt 0,112 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 35% Methan und 65% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,356m^3/h oder 35,6% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45.

Beispiel 4: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5% unter Zuhilfenahme einer Vakuumpumpe für das Permeat der Stufe 2

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten. Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung, ergänzt um eine Vakuumpumpe, welche in Abb. 11 nicht dargestellt ist, wurde verwendet um die Konzentration von Methan im Permeat (11) auf unter 0,5 Vol. % zu senken. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid Hohlfasern mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Membrantrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des Gasstroms (7) der Membrantrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (2) wird auf 14,5 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der

Membrantrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,505 m^3/h dieser Mischung die Membrantrennstufe (2) Das Permeat der Membrantrennstufe (2) hat einen Druck von 0,2 bara, hergestellt durch eine Vakuumpumpe und hat einen Volumenstrom von 0,371 m^3/h mit einem Methangehalt von 13,3% und einem Kohlendioxidgehalt von 86,7%. Der Gasstrom wird von der Druckseite der Vakuumpumpe über den Gasstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Membrantrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,542 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 94,8% und einem Methangehalt von 5,2% und wird über den Gasstrom (6) als Feed in die Membrantrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen Permeatstrom (11) aus Membrantrennstufe (3) von 0,495 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der Retentatstrom (10) der Membrantrennstufe (3) beträgt 0,047 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 54,9% Methan und 45,1% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,417m^3/h oder 41,7% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45. Im Gegensatz zu vorigem Beispiel 3 benötigt man weniger Druck (14,5 bar anstelle von 18,1 bar = 80,1% des

Druckes) und nur 6,1 % mehr Doppelkomprimierung, was zu einer Ersparnis bei der Komprimierarbeit führt.

Beispiel 5: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5% unter Zuhilfenahme einer Vakuumpumpe für das Permeat der Stufe 2 und verbesserter Retentatreinheit

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten. Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung, ergänzt um eine Vakuumpumpe, welche in Abb. 11 nicht dargestellt ist, wurde verwendet um die Konzentration von Methan im Permeat (11) auf unter 0,5 Vol. % zu senken. Jede Stufe bestand aus einem mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Membrantrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des Gasstroms (7) der Membrantrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (2) wird auf 18,1 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch

die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Membrantrennstufe (2) hat einen Gehalt von 99,7% Methan und 0,3% Kohlendioxid. Es verlassen 0,499 m^3/h dieser Mischung die Membrantrennstufe (2) Das Permeat der Membrantrennstufe (2) hat einen Druck von 0,2 bara, hergestellt durch eine Vakuumpumpe und hat einen Volumenstrom von 0,258 m^3/h mit einem Methangehalt von 25,8% und einem Kohlendioxidgehalt von 74,2%. Der Gasstrom wird von der Druckseite der Vakuumpumpe über den Gasstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Membrantrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,608 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 93,2% und einem Methangehalt von 6,8% und wird über den Gasstrom (6) als Feed in die Membrantrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen Permeatstrom (11) aus Membrantrennstufe (3) von 0,501 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der Retentatstrom (10) der Membrantrennstufe (3) beträgt 0,107 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 36,2% Methan und 63,8% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,366m^3/h oder 36,6% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über

Methan von 45. Im Gegensatz zu vorigem Beispiel 3 erhält man durch Verwendung einer Vakuumpumpe auf der Permeatseite der Membrantrennstufe (2) ein deutlich saubereres Retentat mit derselben Kompressorleistung. (99,7% Methan anstelle von 98,5%)

Abbildungsverzeichnis:

Abb. 1: Einfluss des Druckverhältnisses und der Selektivität auf das Trennergebnis

Abb. 2: Einstufige Membrantrennstufe ohne Rückführung

Abb. 3: Einstufige Membrantrennstufe mit Rückführung

Abb. 4: Zweistufige Membrantrennstufe mit Rekompression und Rückführung

Abb. 5: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die erste Retentatstufe

Abb. 6: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die zweite Retentatstufe

Abb. 7: Permeatgestuft mit Rekompression

Abb. 8: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe und permeatgestuft mit Rekompression

Abb. 9: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe

Abb. 10: Intern permeatgestufte Verschaltung

Abb.11: Beispielhafte Verschaltung von mehreren Membranmodulen laut Erfindung

Abb. 12: 3-Stufige Verschaltung von Membranmodulen mit einem Kompressor und Retentatrückführung der Membrantrennstufe (3) ohne totale Entspannung in eine erhöhte Kompressionsstufe des Kompressors (4)

Abb.13: 3-Stufige Verschaltung von Membranmodulen mit einem Kompressor und Retentatrückführung der dritten Stufe ohne totale Entspannung sowie Permeatrückführung der zweiten Stufe in eine erhöhte Kompressionsstufe des Kompressors (4)

Bezugszeichenliste:

1: Membrantrennstufe 1
2: Membrantrennstufe 2
3: Membrantrennstufe 3
4: einstufiger oder mehrstufiger Kompressor
5: Gasstrom
6: Permeatstrom der Membrantrennstufe 1
7: Retentatstrom der Membrantrennstufe 1
8: Retentatstrom der Membrantrennstufe 2
9: Permeatstrom der Membrantrennstufe 2
10: Retentatstrom der Membrantrennstufe 3
11: Permeatstrom der Membrantrennstufe 3
12: Optionales Druckminderventil im Retentatstrom 7
13: Optionales Druckminderventil im Retentatstrom 8
14: Optionales Druckminderventil im Retentatstrom 10
15: Vakuumpumpe (in den Abbildungen nicht wiedergegeben)
16: Mischkammer (in den Abbildungen nicht wiedergegeben)

Ansprüche

1. Vorrichtung zur Trennung von Gasen umfassend die Membrantrennstufen (1) bis (3),einen Kompressor (4) und/oder eine Vakuumpumpe (15), wobei die Membrantrennstufe (1) einen Gasstrom (5), bestehend aus mindestens 2 Komponenten, in einen Permeatstrom (6) und einen Retentatstrom (7) auftrennt, die Membrantrennstufe (2) den Retentatstrom (7) in einen Permeatstrom (9), der dem Gasstrom (5) zugeführt wird, und einen Retentatstrom (8), der als Produkt entnommen wird, aufteilt und die Membrantrennstufe (3) den Permeatstrom (6), in einen Retentatstrom (10), der dem Gasstrom (5) zugeführt wird, und einen Permeatstrom (11), der als Produkt entnommen wird, aufteilt, dadurch gekennzeichnet, dass der Stoffstrom (6) keiner Rekompression unterworfen wird.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Gasströme (9) und (10) auf der Saugseite des Kompressors (4) zur Wideraufbereitung geleitet werden.

3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet,
dass ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Permeatstrom (9) und /oder der Retentatstrom (10) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor (4) eingeführt werden.

5. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 4,
dadurch gekennzeichnet,
dass einer oder mehrere der Gasstrom (7), (8) oder (10) durch ein Druckminderventil (12), (13) oder (14) geleitet werden.

6. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5,
dadurch gekennzeichnet,
dass in mindestens einer der Membrantrennstufen (1) bis (3) ein Membranmodul mit einer Gemischtgasselektvität von mindestens 5, bevorzugt mindestens 10 und besonders bevorzugt mindestens 20 verwendet wird.

7. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6,
dadurch gekennzeichnet,
dass mindestens eine der Membrantrennstufen (1) bis (3) mehr als ein Gasseparationsmembranmodul umfasst, welche parallel und/oder seriell verschaltet sind.

8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7,
dadurch gekennzeichnet,
dass das/die Gasseparationsmembranmodul(e) aus Hohlfasermembranen und/oder Flachmembranen bestehen.

9. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass als Materialien für die Trennaktive Schicht der Membranen amorphe oder teilkristalline Kunststoffe verwendet werden wie zum Beispiel aber nicht ausschließlich Polyimide, Polyamide, Polysulfone, Celluloseacetate und Derivate, Polyphenylenoxide, Polysiloxane, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität, Mixed Matrix Membranen, Facilitated Transport Membranen, Polyethylenoxide, Polypropylenoxide oder Mischungen daraus.

10. Verfahren zur Auftrennung von Gasgemischen, dadurch gekennzeichnet, dass eine Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 9 verwendet wird.

11. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass als Gasgemisch eine Mischung von vorwiegend aber nicht ausschließlich Kohlendioxid und Methan oder Rohbiogas oder Roherdgas verwendet wird.

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck der Permeatseite (6) der Membrantrennstufe (1) bevorzugt mittels eines Druckminderventils (14) auf der Retentatseite der Membrantrennstufe (3) auf 1 bis 30 bar, vorzugsweise auf 2 bis 20 bar und besonders vorzugsweise auf 3 und 10 bar eingestellt wird.

13. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck der Retentatströme (7) und (8) der Membrantrennstufen (1) und (2) bevorzugt mittels eines Druckminderventils (13), auf 1 bis 100 bar, vorzugsweise auf 5 bis 80 bar und besonders vorzugsweise auf 10 bis 70 bar eingestellt wird.

14. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass als Triebkraft für die Trennaufgabe eine Partialdruckdifferenz zwischen der Retentat- und der Permeatseite in den jeweiligen Membrantrennstufen zum Einsatz kommt, wobei die Partialdruckdifferenz durch einen Kompressor im Strom (5) und/ oder durch eine Vakuumpumpe (15) in den Stoffströmen (9) und / oder (11)auf der Permeatseite der Membrantrennstufen (2) und/oder (3) und/oder durch einen permeatseitigen Spülgasstrom erzeugt wird.

15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck des Permeats der Membrantrennstufe (1) gleich oder erhöht ist gegenüber dem Umgebungsdruck, sodass noch eine Partialdruckdifferenz zwischen Retentat und Permeat der Membrantrennstufe (3) besteht und damit eine treibende Kraft gegeben ist für den Fall, dass das Permeat der Membrantrennstufe (3) auf Umgebungsdruck ist oder Unterdruck angelegt wird.

Zusammenfassung:

Die Erfindung betrifft eine spezielle Vorrichtung, insbesondere Verkettung von Gasseparationsmembranmodulen, zur Auftrennung von Gasgemischen in zwei Fraktionen von jeweils erhöhter Reinheit.

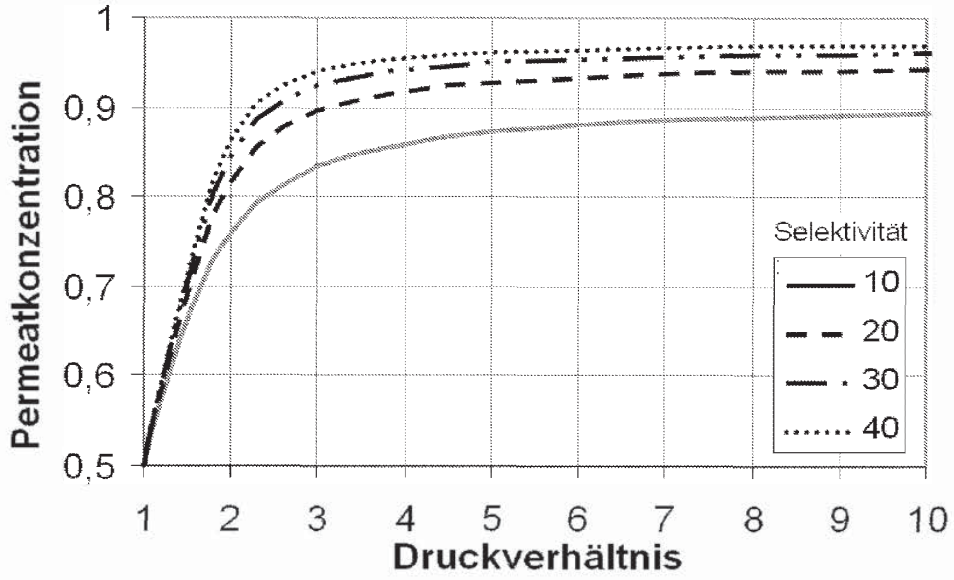


Abb. 1: Einfluss des Druckverhältnisses und der Selektivität auf das Trennergebnis

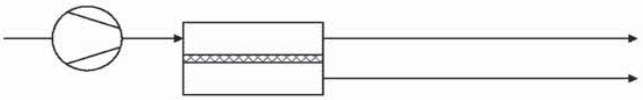


Abb. 2: Einstufige Membrantrennstufe ohne Rückführung

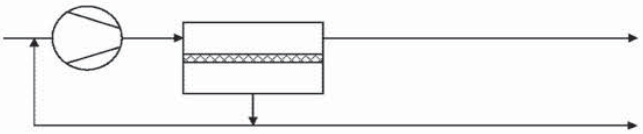


Abb. 3: Einstufige Membrantrennstufe mit Rückführung

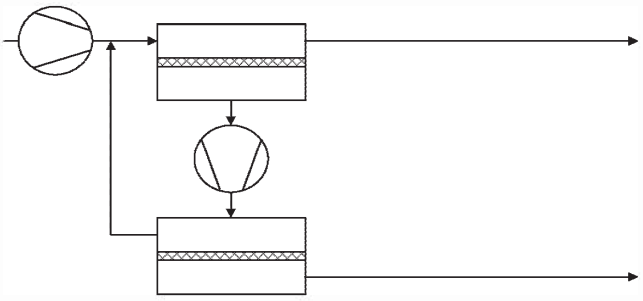


Abb. 4: Zweistufige Membrantrennstufe mit Rekompression und Rückführung

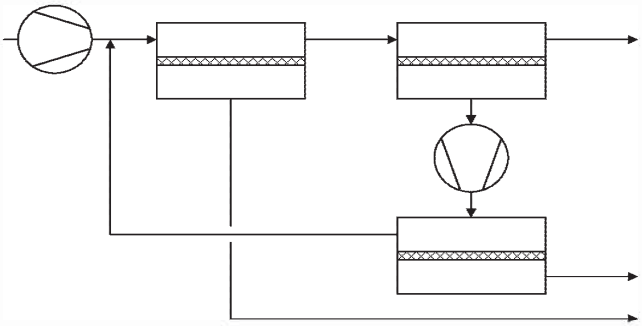


Abb. 5: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die erste Retentatstufe

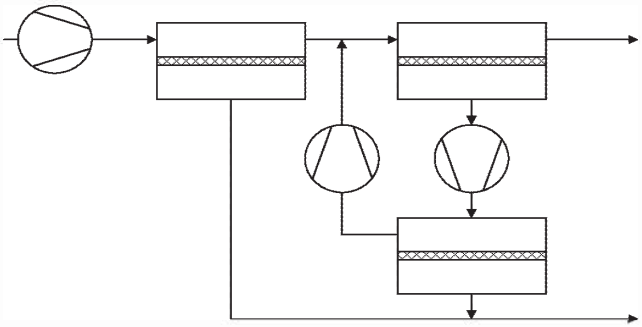


Abb. 6: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die zweite Retentatstufe

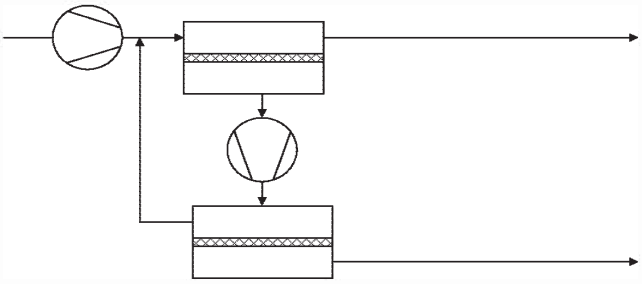


Abb. 7: Permeatgestuft mit Rekompression

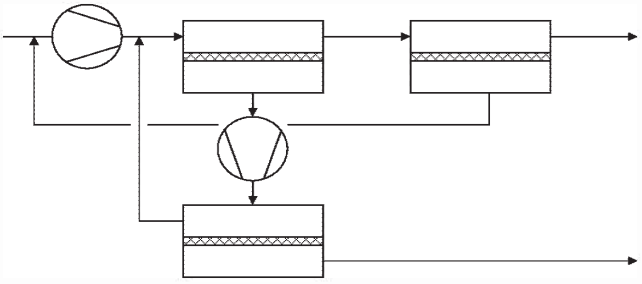


Abb. 8: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe und permeatgestuft mit Rekompression

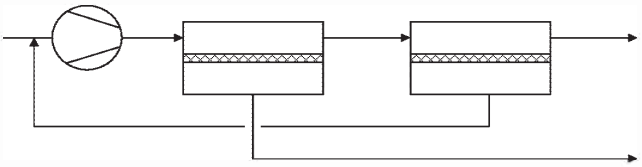


Abb. 9: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe

40

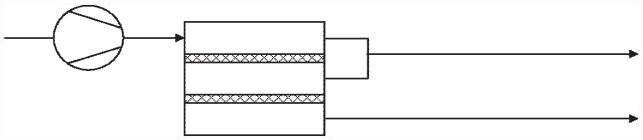


Abb. 10: Intern permeatgestufte Verschaltung

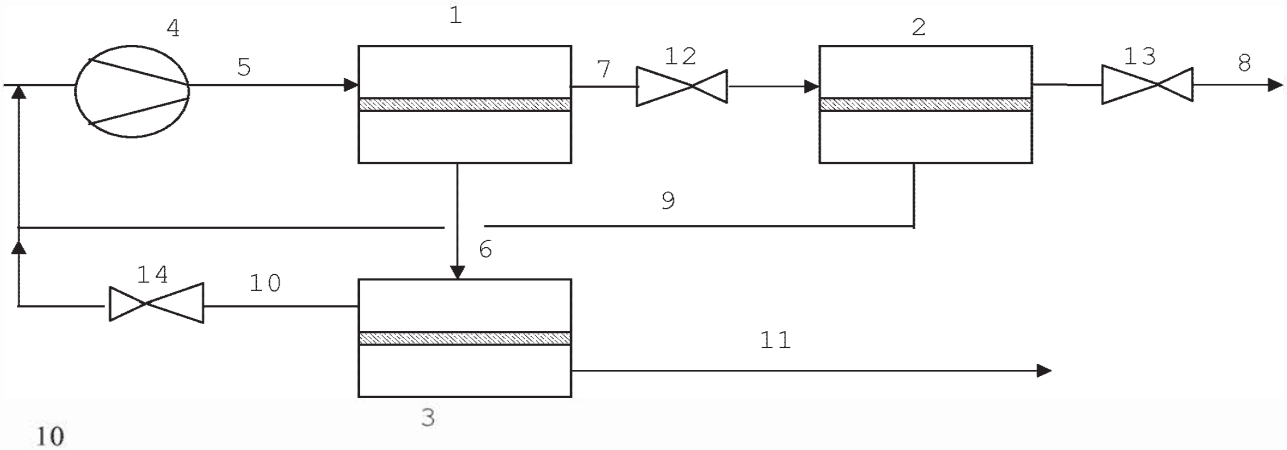


Abb.11: Beispielhafte Verschaltung von mehreren Membranmodulen laut Erfindung

WIPO
WORLD
INTELLECTUAL PROPERTY
ORGANIZATION

DOCUMENT MADE AVAILABLE UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

International application number:		**PCT/EP2011/058636**
International filing date:		**26 May 2011 (26.05.2011)**
Document type:		**Certified copy of priority document**
Document details:	Country/Office:	**EP**
	Number:	**10168121.1**
	Filing date:	**01 July 2010 (01.07.2010)**
Date of receipt at the International Bureau:		**27 June 2011 (27.06.2011)**

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a),(b) or (b-*bis*)

34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland
www.wipo.int

PCT-ANTRAG

Ausdruck (Original in electronischem Format)

0	**Vom Anmeldeamt auszufüllen**	
0-1	Internationales Aktenzeichen	**PCT/EP2011/058636**
0-2	Internationales Anmeldedatum	**26 MAY 2011 (26.05.2011)**
0-3	Name des Anmeldeamts und "PCT International Application"	**RO/EP**

0-4	**Formular PCT/RO/101 PCT-Antrag**	
0-4-1	Erstellt mit	PCT Online Filing Version 3.5.000.221 MT/FOP 20020701/0.20.5.9
0-5	**Antragsersuchen** Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird	
0-6	**(Vom Anmelder gewähltes) Anmeldeamt**	Europäisches Patentamt (EPA) (RO/EP)
0-7	**Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts**	2010P00237WO
I	**Bezeichnung der Erfindung**	VERFAHREN ZUR TRENNUNG VON GASEN
II	**Anmelder**	
II-1	Diese Person ist	Nur Anmelder
II-2	Anmelder für	Alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US
II-4	Name	EVONIK FIBRES GMBH
II-5	Anschrift	Werkstrasse 3 4860 Lenzing Österreich
II-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	AT
II-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	AT
II-8	Telefonnr.	+49 6151 18 4366
II-10	E-Mail	ipm-pat-hanau@evonik.com
III-1	**Anmelder und/oder Erfinder**	
III-1-1	Diese Person ist	Anmelder und Erfinder
III-1-2	Anmelder für	Nur US
III-1-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	UNGERANK, Markus
III-1-5	Anschrift	Münzbacherstraße 22 4320 Perg Österreich
III-1-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	AT
III-1-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	AT

PCT-ANTRAG

Ausdruck (Original in electronischem Format)

III-2	**Anmelder und/oder Erfinder**	
III-2-1	Diese Person ist	Anmelder und Erfinder
III-2-2	Anmelder für	Nur US
III-2-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	BAUMGARTEN, Goetz
III-2-5	Anschrift	Reinhard-Freericks-Str. 20 45721 Haltern am See Deutschland
III-2-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	DE
III-2-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	DE
III-3	**Anmelder und/oder Erfinder**	
III-3-1	Diese Person ist	Anmelder und Erfinder
III-3-2	Anmelder für	Nur US
III-3-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	PRISKE, Markus
III-3-5	Anschrift	Brassertstraße 129 45768 Marl Deutschland
III-3-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	DE
III-3-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	DE
III-4	**Anmelder und/oder Erfinder**	
III-4-1	Diese Person ist	Anmelder und Erfinder
III-4-2	Anmelder für	Nur US
III-4-4	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	ROEGL, Harald
III-4-5	Anschrift	Mühlbachgasse 20 4702 Wallern an der Trattnach Österreich
III-4-6	Staatsangehörigkeit (Staat)	AT
III-4-7	Sitz/Wohnsitz (Staat)	AT
IV-1	**Anwalt oder gemeinsamer Vertreter oder besondere Zustellanschrift** Die unten bezeichnete Person ist/wird hiermit bestellt, um für den (die) Anmelder vor den zuständigen internationalen Behörden zu handeln, und zwar in folgender Eigenschaft:	Anwalt
IV-1-1	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	DR. WOLF, Oliver
IV-1-2	Anschrift	c/o Evonik Degussa GmbH DG-IPM-PAT Rodenbacher Chaussee 4 63457 Hanau Deutschland
IV-1-3	Telefonnr.	06151-18-4366
IV-1-4	Telefaxnr.	06181-59-4304
IV-1-5	E-Mail	ipm-pat-hanau@evonik.com
IV-1-6	Registrierungsnr. des Anwalts	9207060

PCT-ANTRAG

Ausdruck (Original in electronischem Format)

V	**BESTIMMUNGEN**	
V-1	**Die Einreichung dieses Antrags umfaßt gemäß Regel 4.9 Absatz a die Bestimmung aller Vertragsstaaten, für die der PCT am internationalen Anmeldedatum verbindlich ist, und, insoweit verfügbar, für jede Art von Schutzrecht und sowohl für ein regionales als auch für ein nationales Patent**	
VI-1	**Priorität einer früheren regionalen Anmeldung beansprucht**	
VI-1-1	Anmeldedatum	01. Juli 2010 (01.07.2010)
VI-1-2	Nummer	10168121.1
VI-1-3	Regionales Amt	EP
VI-2	**Ersuchen um Erstellung eines Prioritätsbeleges** Das Anmeldeamt wird ersucht, eine beglaubigte Abschrift der in der (den) nebenstehend genannten Zeile(n) bezeichneten früheren Anmeldung(en) zu erstellen und dem Internationalen Büro zu übermitteln:	VI-1
VI-3	**Einbeziehung durch Verweis :** Ist ein in Artikel 11 Absatz 1 Ziffer iii Buchstabe d oder e genannter Bestandteil der internationalen Anmeldung oder ein in Regel 20.5 Absatz a genannter Teil der Beschreibung, der Ansprüche oder der Zeichnungen nicht anderswo in der internationalen Anmeldung, aber vollständig in einer früheren Anmeldung enthalten, deren Priorität, zu dem Datum, an dem ein oder mehrere in Artikel 11 Absatz 1 Ziffer iii genannte Bestandteile zuerst beim Anmeldeamt eingegangen sind, beansprucht wird, so wird dieser Bestandteil oder Teil, vorbehaltlich der Bestätigung nach Regel 20.6, für die Zwecke der Regel 20.6 in diese internationale Anmeldung einbezogen.	
VII-1	**Gewählte Internationale Recherchenbehörde**	Europäisches Patentamt (EPA) (ISA/EP)

PCT-ANTRAG

Ausdruck (Original in electronischem Format)

VIII	Erklärungen	Anzahl der Erklärungen	
VIII-1	Erklärung hinsichtlich der Identität des Erfinders	–	
VIII-2	Erklärung hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, zum Zeitpunkt des internationalen Anmeldedatums, ein Patent zu beantragen und zu erhalten	–	
VIII-3	Erklärung hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, zum Zeitpunkt des internationalen Anmeldedatums, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen	–	
VIII-4	Erfindererklärung (nur im Hinblick auf die Bestimmung der Vereinigten Staaten von Amerika)	–	
VIII-5	Erklärung hinsichtlich unschädlicher Offenbarungen oder Ausnahmen von der Neuheitsschädlichkeit	–	
IX	**Kontrolliste**	Anzahl der Blätter	Elektronische Datei(en) beigefügt
IX-1	Antrag (inklusive Erklärungsblätter)	5	✓
IX-2	Beschreibung	34	✓
IX-3	Ansprüche	7	✓
IX-4	Zusammenfassung	1	✓
IX-5	Zeichnung(en)	5	✓
IX-7	INSGESAMT	52	
	Beigefügte Unterlagen	Unterlage(n) in Papierform beigefügt	Elektronische Datei(en) beigefügt
IX-8	Blatt für die Gebührenberechnung	–	✓
IX-18	PCT-SAFE Datenträger	–	–
IX-19	Sonstige(s)	Archiv für unkonvertierte Dateien	✓
IX-20	**Nr. der Abb. der Zeichn., die mit der Zusammenf. veröffentlicht werden soll**		
IX-21	**Sprache der int. Anmeldung**	Deutsch	
X-1	**Unterschrift des Anmelders, des Anwalts oder des Gemeinsamen Vertreters**	/Dr.Oliver Wolf, 9207060/	
X-1-1	Name (FAMILIENNAME, Vorname)	Dr. Wolf, Oliver	
X-1-2	Name der unterzeichnenden Person	Dr. Wolf, Oliver	
X-1-3	Eigenschaft	(Vertreter)	

VOM ANMELDEAMT AUSZUFÜLLEN

10-1	**Datum des tatsächlichen Eingangs dieser internationalen Anmeldung**	**26 MAY 2011 (26.05.2011)**
10-2	**Zeichnung(en):**	✓
10-2-1	Eingegangen	
10-2-2	~~Nicht eingegangen~~	
10-3	**Geändertes Eingangsdatum aufgrund nachträglich, jedoch fristgerecht eingeg. Unterlage(n) oder Zeichnung(en) zur Vervollständigung dieser int. Anmeldung**	
10-4	**Datum des fristgerechten Eingangs der Berichtigung nach PCT Artikel 11(2)**	
10-5	**Internationale Recherchenbehörde**	**ISA/EP**
10-6	**Übermittlung des Recherchenexemplars bis zur Zahlung der Recherchengebühr aufgeschoben**	

VOM INTERNATIONALEN BÜRO AUSZUFÜLLEN

11-1	**Datum des Eingangs des Aktenexemplars beim Internationalen Büro**	

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92*bis*.1 and Administrative Instructions, Section 422)

To:

WOLF, Oliver
Evonik Degussa GmbH
DG-IPM-PAT
Rodenbacher Chaussee 4
63457 Hanau
ALLEMAGNE

Date of mailing *(day/month/year)*
23 October 2012 (23.10.2012)

Applicant's or agent's file reference
2010P00237WO

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/EP2011/058636

International filing date *(day/month/year)*
26 May 2011 (26.05.2011)

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☒ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address
PRISKE, Markus
Brassertstraße 129
45768 Marl
Germany

State of Nationality: DE
State of Residence: DE
Telephone No.:
Facsimile No.:
E-mail address:

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐ the person ☐ the name ☒ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address
PRISKE, Markus
Am Königshof 13
40472 Düsseldorf
Germany

State of Nationality: DE
State of Residence: DE
Telephone No.:
Facsimile No.:
E-mail address:
☐ Notifications by e-mail authorized

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office
☐ the International Searching Authority
☐ the Authority(ies) specified for supplementary search
☐ the International Preliminary Examining Authority
☒ the designated Offices concerned
☐ the elected Offices concerned
☐ other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. +41 22 338 89 75

Authorized officer
Bouveret David
e-mail pt05.pct@wipo.int
Telephone No. +41 22 338 74 05

Form PCT/IB/306 (January 2009) 1/LFTP4YTTWDDGW0

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
5. Januar 2012 (05.01.2012)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2012/000727 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
B01D 53/22 (2006.01) *C10L 3/10* (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2011/058636

(22) Internationales Anmeldedatum:
26. Mai 2011 (26.05.2011)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10168121.1 1. Juli 2010 (01.07.2010) EP

(71) Anmelder *(für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US)*: **EVONIK FIBRES GMBH** [AT/AT]; Werkstrasse 3, A-4860 Lenzing (AT).

(72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder *(nur für US)*: **UNGERANK, Markus** [AT/AT]; Münzbacherstraße 22, A-4320 Perg (AT). **BAUMGARTEN, Goetz** [DE/DE]; Reinhard-Freericks-Str. 20, 45721 Haltern am See (DE). **PRISKE, Markus** [DE/DE]; Brassertstraße 129, 45768 Marl (DE). **ROEGL, Harald** [AT/AT]; Mühlbachgasse 20, A-4702 Wallern an der Trattnach (AT).

(74) Anwalt: **WOLF, Oliver**; Evonik Degussa GmbH, DG-IPM-PAT, Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau (DE).

(81) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart)*: AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart)*: ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

(54) **Title**: PROCESS FOR SEPARATION OF GASES

(54) **Bezeichnung** : VERFAHREN ZUR TRENNUNG VON GASEN

(57) **Abstract**: The invention relates to a specific apparatus, more particularly a chain of gas separation membrane modules, for separation of gas mixtures into two fractions each of elevated purity.

(57) **Zusammenfassung**: Die Erfindung betrifft eine spezielle Vorrichtung, insbesondere Verkettung von Gasseparationsmembranmodulen, zur Auftrennung von Gasgemischen in zwei Fraktionen von jeweils erhöhter Reinheit.

WO 2012/000727 A1

Verfahren zur Trennung von Gasen

Die Erfindung betrifft eine spezielle Vorrichtung, insbesondere Verkettung von Gasseparationsmembranmodulen, zur Auftrennung von Gasgemischen in zwei Fraktionen von jeweils erhöhter Reinheit.

Mittels einer Gasseparationsmembran können Gasgemische aufgrund unterschiedlicher Permeabilitäten (= Stoffstrom pro Zeiteinheit, Fläche, Differenzdruck und Schichtdicke) der Einzelgase in einem Kunststoff getrennt werden. Die Kunststoffe werden im Allgemeinen zu Hohlfasern oder Flachmembranen verarbeitet. Die Membrane zeichnen sich durch eine sehr dünne Trennschicht an der Oberfläche der Membran aus, sodass die Permeanz (= Stoffstrom pro Zeiteinheit, Fläche und Differenzdruck) der Membran möglichst groß ist.

Das mit einer Membran im einfachen Durchtritt erreichbare Trennergebnis ist neben der Selektivität der Membran vom Druckverhältnis zwischen Hochdruck- und Niederdruckseite der Membran abhängig. Je größer das Druckverhältnis ist, desto besser ist das maximal erzielbare Trennergebnis.

Im Bereich geringer Druckverhältnisse verlaufen die Kurven für die verschiedenen Selektivitäten dicht beieinander (siehe Abbildung 1). Das Trennergebnis wird in diesem Bereich durch das Druckverhältnis bestimmt. Dieser Bereich wird daher als „drucklimitiert" bezeichnet. Im Bereich hoher Druckverhältnisse ist das Trennergebnis kaum noch durch das

Druckverhältnis beeinflussbar. Dieser Bereich wird als „selektivitätslimitiert" bezeichnet.

Literaturbekannt sind eine Reihe von Membranverschaltungen für die Trennung von Gasen. In Baker, IndEngChemRes, Natural Gas Processing with Membranes, 47 (2008) findet sich eine ausführliche Auflistung verschiedener bekannter Verschaltungen. So lassen sich am Beispiel der Trennung von Methan (Retentatgas) und CO_2 (Permeatgas) mit einem einfachen einstufigen Membrantrennschritt gemäß Abb. 2 zwar hohe Reinheiten im Produktstrom (98% CH_4) erreichen. Die Qualität des permeatseitigen Abgasstroms ist dabei jedoch nicht beeinflussbar und von geringer Reinheit (44% CO_2). Entsprechend groß ist der Schlupf bzw. Verlust von Methan.

Bei einer einstufigen Verschaltung mit Rückführung (Abb. 3) lassen sich die Reinheiten leicht erhöhen. Das grundsätzliche Problem der geringen Retentatgasausbeute und der Permeatgasqualität lässt sich damit jedoch nicht lösen.

Für höhere Permeatreinheiten und höheren Ausbeuten der zurückgehaltenen Komponente sind eine Reihe mehrstufiger Verschaltungen bekannt. In einer einfach permeatgestuften Verschaltung mit Rekompression und Rückführung des ersten Permeats (Abb. 4) können Permeatreinheit (86%) und Methanausbeute verbessert werden.

Tritt die besser permeierende Komponente in erhöhten Konzentrationen (30%) auf so kann literaturgemäß eine Verschaltung nach Abb. 5 vorteilhaft sein. Es werden zwei

permeatgasreiche Ströme (82% CO2, 93% CO2) und ein retentatgasreicher Strom (82% CH4) erzeugt.

Bhide (MemSci, Hybrid processes for the removal of acid gases from natural gas, 1998) zeigt einen dreistufigen Prozess für die Entfernung von Sauergasen aus Erdgas (Abb. 6). Der zu behandelnde Gasstrom wird in einer vorgeschalteten Membran einer Grobreinigung unterzogen. Das druckseitig verbleibende vorgereinigte Erdgas wird über eine weitere Membran geführt. Retentatseitig entsteht der Zielproduktstrom, das um die Sauergase abgereicherte Erdgas. Der permeatseitige, sauergasangereicherte Strom wird komprimiert und einer weiteren Membranstufe zugeführt. Das Retentat dieser Stufe wird auf das Druckniveau der vorgeschalteten Stufe verdichtet und vor diese rezirkuliert. Mit diesem zusätzlichen energetischen und finanziellen Aufwand soll die Ausbeute von Methan erhöht werden. Nachteilig an dieser Verschaltung sind die Aufwendungen für die Kompressoren sowie die unzureichenden Reinheiten des sauergasangereicherten Stroms.

Chenar (MemSci Application of Cardo-type polyimide (PI) and polyphenylene oxide (PPO) hollow, 2008) beschreibt einen permeatgestuften Prozess mit Rekompression (Abb. 7). Nachteilig an dieser Verschaltung sind die stark begrenzten Reinheiten des Retentatgases sowie der zusätzliche Aufwand für die Rekompression.

Die EP0 799 634 offenbart eine Verschaltung gemäß Abb. 8. Nachteilig ist jedoch ein zusätzlicher potentieller Eintrag

von Öl oder Wasser als Dicht- und Schmiermittel, zusätzliche hohe Investmentkosten, erhöhter Energieverbrauch durch zusätzliche Kompression sowie erhöhte Ausfallwahrscheinlichkeit durch die beweglichen Teile.

Nachteilig an den oben genannten Verfahren sind die zusätzliche Rekompression und die weiterhin deutlich zu geringen Reinheiten von Retentatgas im Gesamtretentatstrom sowie die unzureichenden Ausbeuten des Retentatgases im Retentatstrom.

Abb. 9 zeigt eine, insbesondere für die Aufbereitung von Biogas häufig vorgeschlagene und auch umgesetzte Technologie (Air Liquide und Harasek). Offenbart ist eine retentatgestufte Verschaltung mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe.

Die TU Eindhoven entwickelte eine intern gestufte Verschaltung, welche Methanreinheiten von mehr als 90% ermöglicht (siehe Abb. 10). Nachteilig an dieser Verschaltung ist die ungenügende Reinheit des Retentatgases.

In der EP 0 603 798 ist eine mehrstufige Verschaltung zur Erzeugung von Stickstoff offenbart. Der Nachteil an diesem Verfahren ist die unzureichende Reinheit der permeierenden Komponente sowie der Einsatz von mindestens zwei Kompressoren.

EP0695574 offenbart eine Verschaltung mit teilweiser Nutzung eines Permeatstroms als Sweepstrom für die Erzeugung eines möglichst reinen Retentats. Nachteilig an diesem Verfahren ist die unzureichende Qualität des Gesamtpermeats.

In US5753011 wird ein Verfahren offenbart bei der durch Kombination von permeatgestuften Membrantrennschritten und Druckwechseladsorption PSA hohe Reinheiten für zwei Produktströme erreicht werden. Nachteilig an diesem Verfahren ist der Einsatz einer aufwendigen PSA.

In EP1634946 ist ein Verfahren zur Aufbereitung von Biogas offenbart. Darin ist eine thermische Verwertung des Methans aus dem Methan abgereicherten Stroms beschrieben. Nachteilig sind die hohen Kosten und der Verlust des Gases.

In EP0596268 sind schließlich verschiedene Verschaltungen zur Erzeugung von drei verschiedenen Gaszusammensetzungen offenbart.

In der US 6,565,626 B1 und der US 6,168,649 B1 werden jeweils Membrantrennverfahren mit drei Membrantrennstufen offenbart, wobei ein Retentat- und ein Permeatstrom der Stufen 2 bzw. 3 zum Rohgasstrom zurückgeführt wird.

Nachteilig an den aus dem Stand der Technik bekannten Verfahren ist, dass entweder eine hohe Reinheit des Permeatgases oder eine hohe Reinheit des Retentatgases erzielt werden kann. Für das gleichzeitige Erzielen von hohen Reinheiten von Permeatgas und Retentatgas, wie es zum

Beispiel bei der Aufbereitung und Einspeisung von Biogas in das Erdgasnetz durch die hohen Anforderungen an die Methanreinheit und durch die Begrenzung des Methanschlupfs notwendig ist, gibt es keine Verfahren, die ohne eine Rekompressionseinheit oder ohne eine weitere Aufreinigung des Permeat- oder Retentatstromes (z.B. thermische Nachverbrennung des Permeatstroms oder Druckwechseladsorption für den Retentatstrom) auskommen.

Ausgehend von diesem Stand der Technik bestand die Aufgabe der vorliegenden Erfindung darin Vorrichtungen sowie Verfahren zur Trennung und Aufreinigung von Gasgemischen bereitzustellen, welche die Nachteile der Verfahren und Vorrichtungen des Standes der Technik nicht oder nur in verringertem Maße aufweisen. Insbesondere sollen Verfahren und Vorrichtungen bereitgestellt werden, welche gleichzeitig Permeatgas und Retentatgas in hohen Reinheiten liefern. In einer weiteren speziellen Aufgabe soll dieses Verfahren und diese Vorrichtung von den Invest- und Betriebskosten vorteilhaft sein und / oder eine einfachere Verfahrensführung ermöglichen.

In einer nächsten speziellen Aufgabe soll ein möglichst universell einsetzbares/-bare Verfahren/Vorrichtung für beliebige Gasgemische bereitgestellt werden. Insbesondere soll es möglich sein, Gasströme aufzutrennen, die bei der Herstellung von Biogas und Erdgas anfallen bzw. die Kohlendioxid und Methan in Gegenwart anderer Gase wie Wasser, Wasserstoff, Schwefelwasserstoff enthalten.

Eine weitere spezielle Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es ein Verfahren bzw. eine Vorrichtung bereitzustellen, die es ermöglicht Methan-enthaltende Rohgasströme aufzureinigen, mit einer - im Vergleich zu den Verfahren des Standes der Technik, bei gleichem Durchsatz - verringerten Methanemission und somit einer verringerten Umweltbelastung durch dieses starke Treibhausgas.

Weitere nicht explizit genannte Aufgaben ergeben sich aus dem Gesamtzusammenhang der nachfolgenden Ansprüche, Beschreibung, Beispiele und Abbildungen.

Es wurde nun überraschend gefunden, dass die Vorrichtung gemäß Anspruch 1 bzw. einem der davon abhängigen Ansprüche reine Ströme von Permeat und Retentat liefern kann, ohne dass mehr als ein Kompressor benötigt wird oder der Permeat- oder Retentatstrom weiter durch andere Methoden aufgereinigt werden muss. Die erfindungsgemäße Vorrichtung ermöglicht somit gleichzeitig Permeat- und Retentartströme in hoher Reinheit zu erzielen. Die Investitionskosten für die Anlage sind niedrig, sie kommt ohne zusätzliche nachgeschaltete Aufreinigungsverfahren aus. Es gelang somit mit einem reinen Membrantrennverfahren die gestellten Aufgaben zu lösen.

Gegenstand der vorliegenden Ansprüche sind daher die/das in den Ansprüchen 1 bis 12 bzw. 13 bis 18 beanspruchte und in der nachfolgenden Beschreibung, den Beispielen und Abbildungen 11 bis 13 näher definierte Vorrichtung bzw. Verfahren.

Die vorliegende Erfindung wird nachfolgend im Detail beschrieben. Zuvor werden einige wichtige Begriffe definiert.

Der Quotient der Permeanzen der Einzelgase ergibt die **Selektivität** der Membran zur Trennung bezüglich der zwei Gase und gibt somit an wie gut die Membran ein Gasgemisch bezüglich der beiden Komponenten auftrennen kann. Als **Permeat** wird der gesamte auf der Niederdruckseite der Membran, Membranmodule oder Membrantrennschritts anfallende Strom bezeichnet.
Als **Permeatgas** wird/werden die jeweils an der Membran, an dem Membranmodul, oder im Membrantrennschritt im **Permeatstrom** gegenüber den jeweiligen Eintrittsstrom angereicherten Komponente/Komponenten bezeichnet.
Als **Retentat** wird der Gesamte auf der Hochdruckseite der Membran, Membranmodule oder Membrantrennschritts anfallende Strom bezeichnet, der nicht durch die Membran hindurch tritt.
Als **Retentatgas** wird/werden die jeweils an der Membran, an dem Membranmodul, oder im Membrantrennschritt im **Retentatstrom** gegenüber den jeweiligen Eintrittsstrom angereicherten Komponente/Komponenten bezeichnet.

Rohgas bzw. **Rohgasgemisch** bzw. **Rohgasstrom (17)** bezeichnet ein Gasgemisch aus mindestens zwei Gasen bzw. einen Strom dieses Gasgemisches, das/der mittels des erfindungsgemäßen Verfahrens bzw. der erfindungsgemäßen Vorrichtung aufgetrennt werden soll.

Feedstrom (5) bezeichnet einen Gasstrom, der der Feedstromtrennstufe (1) zugeführt wird. Dieser Strom kann zu

der Durchführung des Verfahrens dem Rohgasstrom (17) bzw. dem durch einen Kompressor komprimierten Rohgasstrom entsprechen. Nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) bzw. des dritten Retentatstroms (10) setzt sich der Feedstrom (5) aus den Gasen des Rohgasstrom (17), des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10) zusammen. Der Feedstrom (5) kann dabei erzeugt werden in dem die Ströme (9) und (10) entweder beide mit dem unkomprimierten Rohgasstrom (17) oder beide mit dem komprimierten Rohgasstrom oder einer mit dem unkomprimierten und einer mit dem komprimierten Rohgasstrom vermischt werden oder in dem die Ströme (9) und/oder (10) im Kompressor mit dem Rohgasstrom (17) vermischt werden. Kombinationen der zuvor beschriebenen Varianten sind von der vorliegenden Erfindung mit umfasst.

Feedstromtrennstufe (1) bezeichnet eine Membrantrennstufe zur Auftrennung des Feedstroms (5) in einen ersten Permeat- und einen ersten Retentatstrom (6) bzw. (7).

Retentattrennstufe (2) bezeichnet eine Membrantrennstufe die gleich oder unterschiedlich zur Feedstromtrennstufe (1) aufgebaut sein kann, zur Auftrennung des ersten Retentatstroms (7) in einen zweiten Permeat- und einen zweiten Retentatstrom (9) bzw. (8).

Permeattrennstufe (3) bezeichnet eine Membrantrennstufe die gleich oder unterschiedlich zur Feedstromtrennstufe (1) bzw. Retentattrennstufe (2) aufgebaut sein kann, zur Auftrennung des ersten Permeatstroms (6) in einen dritten Permeat- und einen dritten Retentatstrom (11) bzw. (10).

Anhand der nachfolgend beschriebenen bevorzugten und speziellen Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens sowie der bevorzugten und besonders geeigneten Ausführungen sowie der Zeichnungen und Beschreibungen der Zeichnungen wird die Erfindung lediglich exemplarisch näher erläutert, d. h. sie ist nicht auf diese Ausführungs- und Anwendungsbeispiele oder auf die jeweiligen Merkmalskombinationen innerhalb einzelner Ausführungsbeispiele beschränkt.

Einzelne Merkmale, die im Zusammenhang mit konkreten Ausführungsbeispielen angeben und/oder dargestellt sind, sind nicht auf diese Ausführungsbeispiele oder die Kombination mit den übrigen Merkmalen dieser Ausführungsbeispiele beschränkt, sondern können im Rahmen der technischen Möglichkeiten, mit jeglichen anderen Varianten, auch wenn sie in den vorliegenden Unterlagen nicht gesondert behandelt sind, kombiniert werden.
Gleiche Bezugszeichen in den einzelnen Figuren und Abbildungen der Zeichnungen bezeichnen gleiche oder ähnliche oder gleich oder ähnlich wirkende Komponenten. Anhand der Darstellungen in der Zeichnung werden auch solche Merkmale deutlich, die nicht mit Bezugszeichen versehen sind, unabhängig davon, ob solche Merkmale nachfolgend beschrieben sind oder nicht. Andererseits sind auch Merkmale, die in der vorliegenden Beschreibung enthalten, aber nicht in der Zeichnung sichtbar oder dargestellt sind, ohne weiteres für einen Fachmann verständlich.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung, siehe beispielhaft Abbildungen 11 bis 13, beinhaltet eine Verkettung von drei Membrantrennstufen. Jede Stufe besteht aus einem oder mehreren physikalischen Gasseparationsmodulen, die innerhalb einer Stufe parallel und/oder seriell verschaltet sind. Als Triebkraft für die Gasauftrennung in den Modulen wird eine Partialdruckdifferenz zwischen der Retentat- und der Permeatseite in den jeweiligen Membrantrennstufen erzeugt. Die Partialdruckdifferenz kann entweder mittels eines Kompressors (4), welcher auf der Feedseite der Feedstromtrennstufe (1) angeordnet ist und/ oder mittels zumindest einer, bevorzugt einer oder zwei Vakuumpumpe(n)(in den Abb. 11 bis 13 nicht dargestellt)bevorzugt auf der Permeatseite der Retentattrennstufe (2) im zweiten Permeatstrom (9) und/oder auf der Permeatseite Permeattrennstufe (3) in dritten Permeatstrom (11), erzeugt werden. Ggf. kann es vorteilhaft sein in einer oder mehrerer der Membrantrennstufen die Partialdruckdifferenz durch einen permeatseitigen Spülgasstrom zu erzeugen bzw. zu verstärken.

In einer bevorzugten Ausgestaltungsform der vorliegenden Erfindung bringt ein Kompressor (4) das Rohgasgemisch bzw. das Gasgemisch aus dem Rohgasstrom (17) und dem zweiten Permeatstroms (9) und/oder dem dritten Retentatstroms (10), auf den gewünschten Druck im Bereich von 5 bis 100 bar, vorzugsweise jedoch auf einen Druck von 9 bis 75 bar. Der erhaltene Feedstroms (5) wird in die Feedstromtrennstufe (1) eingeleitet. In der Feedstromtrennstufe (1) wird eine Vortrennung des Rohgasgemisches in leichter permeierende Komponenten (Permeatgas), die zu einem großen Teil ins

Permeat der ersten Stufe gelangen und weniger schnell permeierende Komponenten (Retentatgas), die von der Membran vorwiegend zurückgehalten und sich im Retentat anreichern, erhalten.

Das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung zeichnet sich dadurch aus, dass es/sie derart ausgestaltet ist, dass die Konzentration mindestens eines Permeatgases der Feedstromtrennstufe (1), nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10), im Feedstrom (5)erhöht wird, bevorzugt um mindestens 2%, besonders bevorzugt um mindestens 3% und ganz besonders bevorzugt um 3 bis 40%, jeweils im Vergleich zur Konzentration im Rohgasstrom (17). Die Erhöhung kann von der Zusammensetzung des Rohgasstromes (17)abhängen und ist besonders ausgeprägt bei niedrigen Konzentrationen eines Permeatgases (10 bis 20%). In der Regel beträgt die Konzentrationserhöhung eines der Permeatgase zwischen 2 und 15% besonders bevorzugt zwischen 3 und 8 %, wenn der Gehalt des Permeatgases im Rohgasstrom (17) zwischen 30 und 70% beträgt. Die Erfinder haben nämlich herausgefunden, dass die Ausbeute des gesamten Prozesses an Retentatgas zunimmt und damit der Verlust an Retenatgas abnimmt, wenn die Konzentration des Permeatgases in der Feedstromtrennstufe (1) erhöht wird. Bei gleichem Stufentrennschnitt (=Verhältnis Permeatstrom zu Feedstrom der betrachteten Stufe) gelangt deutlich weniger Permeatgas ins Permeat der Feedstromtrennstufe (1), wenn die Konzentration mindestens einer in der Feedstromtrennstufe (1) leichter permeierenden Komponente A oder eines Permeatgases A im Feedstrom (5)

erhöht wird. Analog wurde eine Erniedrigung festgestellt, wenn die Konzentration der Komponente A oder eines Permeatgases A im aufzureinigenden Feedstrom (5) sich verringert. So beträgt der Stufentrennschnitt für eine Konzentration von 50% einer Komponente A oder eines Permeatgases A im aufzureinigenden Feedstrom (5) zwischen 10 und 60%, vorzugsweise zwischen 15 und 55% und besonders bevorzugt zwischen 20 und 50 %. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung daher derart ausgestaltet, dass der Gehalt an Permeatgas(en) der Feedstromtrennstufe (1) im Feedstrom (5) bei größer gleich 40 Vol. %, bevorzugt mehr als 50 Vol.% und ganz besonders bei mehr als 55 Vol. % bezogen auf das Volumen des Feedstroms (5), nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10), liegt.

Durch diese Konzentrationserhöhung der Permeatgase im Feedstrom (5) wird wie bereits erläutert die Effizienz der Feedstromtrennstufe (1) erhöht, was wiederum zur Folge hat, dass weniger Retentatgas B in den ersten Permeatstrom (6) gelangt. Dies erhöht wiederum die Effizienz der Permeattrennstufe (3) und sorgt dafür, dass auch hier weniger unerwünschtes Retentatgas in den dritten Permeatstrom (10) gelangt. Insbesondere bei der Trennung von methanhaltigen Rohgasen führt dies zu dem Vorteil, dass die unerwünschten Emissionen des klimaschädlichen Methans deutlich reduziert werden konnten.

Allgemein kann man sagen, dass in der Feedstromtrennstufe (1) bevorzugt 20 bis 100%, besonders bevorzugt 40 bis 70 % der Komponente A oder eines Permeatgases A vom Feedstrom (5) in das Permeat übergehen.

Das Retentat der Feedstromtrennstufe (1) wird, optional mit Druckminderung durch ein optional vorhandenes Druckminderventil (12) oder mit Druckerhöhung, mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt, in der die Feinreinigung erfolgt. Auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2), d.h. im zweiten Retentatstrom (8), befindet sich bevorzugt ein Druckminderventil (13), mittels dessen der Druck im System aufrecht und konstant gehalten werden kann. Der Gehalt der schwerer permeierenden Komponenten oder eines Retentatgases B wird in der Retentattrennstufe (2) weiter erhöht, sodass der Gehalt an Komponente B oder eines Retentatgases B im zweiten Retentatstrom (8) mehr als 90%, bevorzugt mehr als 95% und besonders bevorzugt mehr als 97% beträgt. In einer besonders bevorzugten Variante zeichnet sich dass erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung somit dadurch aus, dass mindestens 95%, bevorzugt mindestens 97%, besonders bevorzugt mindestens 99% und ganz besonders bevorzugt mindestens 99,5 %, der mit dem Rohgasstrom (17)in die Vorrichtung eingeführten Retentatkomponente der Feedstromtrennstufe (1) über den zweiten Retentatstrom (8) ausgeschleust werden.

Der Stufentrennschnitt der Retentattrennstufe (2) beträgt bei einer Konzentration der Komponente A oder eines

Permeatgases A von 50% im ersten Retentatstrom (7) zwischen 10 und 60%, vorzugsweise zwischen 20 und 50 %.

Das Permeat der Retentattrennstufe (2) wird mittels des zweiten Permeatstroms (9) rückgeführt, dem Feedstrom (5) zugeführt und wiederaufbereitet. Dies kann - wie zuvor bei der Definition des Begriffes „Feedstrom" bereits erläutert - je nachdem ob ein Kompressor (4) oder gar ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird auf unterschiedliche Art und Weise erfolgen. Bei einem einstufigen Kompressor (4) wird der zweite Permeatstrom (9) bevorzugt der Saugseite des Kompressors (4)(siehe Abb. 11) zugeführt. Wird ein mehrstufiger Kompressor verwendet, so ist es bevorzugt, dass der zweite Permeatstrom (9) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor eingeführt wird (siehe Abb. 12 und 13).

Das mit der Komponente A oder einem Permeatgas A stark angereicherte Permeat der Feedstromtrennstufe (1) wird mittels des ersten Permeatstroms (6) der Permeattrennstufe (3) zugeführt. Falls notwendig kann mittels eines Druckminderventils (14) im Retentatstrom der Permeattrennstufe (3), d.h. dem dritten Retentatstrom (10), verhindert werden, dass der Druck des Permeats der Feedstromtrennstufe (1) auf Umgebungsdruck abfällt (siehe Abb. 11). Auf diese Weise kann die treibende Kraft für die Permeattrennstufe (3) erhalten bleiben. Die Permeattrennstufe (3) produziert ein Permeat mit einem Gehalt an Komponente B oder eines Retentatgases B größer als 95%, vorzugsweise größer als 97% und besonders vorzugsweise größer als 99%, welches über den dritten Permeatstrom (11) aus der

Vorrichtung ausgeschleust wird. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist die erfindungsgemäße Vorrichtung derart ausgestaltet, dass maximal 5%, bevorzugt maximal 3%, besonders bevorzugt maximal 1% und ganz besonders bevorzugt maximal 0,5 %, der mit dem Rohgasstrom (17) in die Vorrichtung eingeführten Retentatkomponente der Feedstromtrennstufe (1) über den dritten Permeatstrom (11) ausgeschleust werden.

Der Stufentrennschnitt der Permeattrennstufe (3) beträgt zwischen 50 und 95%, vorzugsweise zwischen 70 und 93%.

Der dritte Retentatstrom (10) wird rückgeführt, dem Feedstrom (5) zugeführt und wiederaufbereitet. Dies kann, wie oben bereits erläutert, auf unterschiedliche Weise erfolgen und kann z. B. davon abhängen, ob ein Kompressor (4) oder gar ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird. Bei einem einstufigen Kompressor (4) wird der dritte Retentatstrom (10) bevorzugt der Saugseite des Kompressors (4)(siehe Abb. 11) zugeführt. Wird ein mehrstufiger Kompressor verwendet, so ist es bevorzugt, dass der dritte Retentatstrom (10) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor eingeführt wird (siehe Abb. 12 und 13).

Das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung zeichnet sich besonders dadurch aus, dass es/sie derart ausgestaltet ist, dass das im zweiten Permeatstrom (9) und im dritten Retentatstrom (10) zurückgeführte Gasvolumen in Summe weniger als 60 Vol. %, bevorzugt 10 bis 50 Vol. %, ganz besonders bevorzugt 20 bis 40 Vol. % des Volumens des

Rohgasstroms (17) beträgt. Die Steuerung der Menge der rückzuführenden Retentatgasströme kann z. B. durch Auswahl der jeweiligen Membranmodule in den Membrantrennstufen (1) bis (3) oder durch die Drücke im System oder durch die Flüsse gesteuert werden. Somit zeichnet sich das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die Vorrichtung dadurch aus, dass trotz sehr geringer Rückströme die oben näher erläuterte Erhöhung der Konzentration der Permeatkomponente im Feedstrom (5) sichergestellt wird. Dies erhöht deutlich die Effizienz des gesamten Verfahrens.

Der erste Permeatstrom (6) wird bevorzugt so geführt, dass der Feeddruck der Permeattrennstufe (3), bevorzugt mittels eines Druckminderventils (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3), zwischen 1 und 30 bar, vorzugsweise zwischen 2 und 20 bar und besonders bevorzugt 3 und 10 bar beträt.

Wie bereits erläutert ist es besonders vorteilhaft wenn ein mehrstufiger Kompressor (4) eingesetzt wird. In diesem Fall kann nämlich auf eine komplette Entspannung des Retentats der Permeattrennstufe (3) verzichtet werden kann, da das Retentat der Permeattrennstufe (3) zwischen zwei Verdichterstufen des Kompressors (4) eingespeist werden kann (siehe Abb. 12 und 13).

Da die Retentattrennstufe (2) bei Entspannung auf Feeddruck im Regelfall im selektivitätslimitierten Bereich betrieben werden würde, kann es sinnvoll sein den zweiten Permeatstrom (9) lediglich auf ein höheres Druckniveau einer mehrstufigen

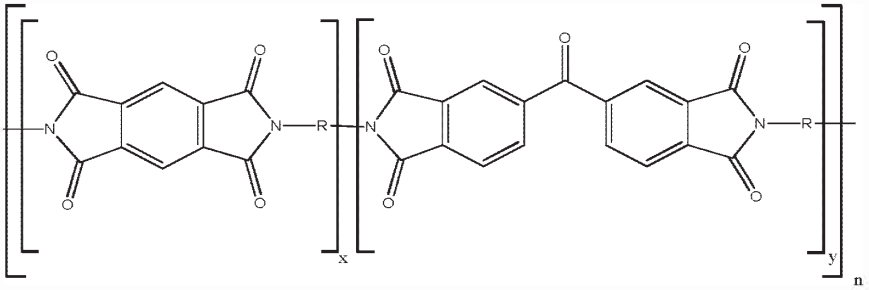
Druckerhöhungseinheit, d.h. eines mehrstufigen Kompressors (4) zu entspannen da sich somit die Betriebskosten der Kompressionseinheit reduzieren ohne das Trennergebnis deutlich zu verschlechtern. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird daher ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet und die Gasströme (9) und (10) diesem Kompressor jeweils zwischen zwei Kompressionsstufen zugeführt. Eine solche Verschaltung zeigt Abb. 12.

Wie bereits erwähnt kann die erfindungsgemäße Vorrichtung ein oder mehrere Druckminderventile (12), (13) oder (14) umfassen. In einer bevorzugten Ausführungsform wird, bevorzugt mittels eines Druckminderventils (14), sichergestellt, dass der Druckabfall über die Feedstromtrennstufe (1), auf 1 und 30 bar, vorzugsweise zwischen 2 und 20 bar und besonders vorzugsweise zwischen 3 und 10 bar beschränkt wird. Gleichzeitig oder alternativ wird, bevorzugt mittels eines Druckminderventils (13), sichergestellt, dass der Druckabfall über die Feedstromtrennstufe (1) und die Retentattrennstufe (2), auf 1 und 100 bar, vorzugsweise zwischen 5 und 80 bar und besonders vorzugsweise zwischen 10 und 70 bar beschränkt wird.

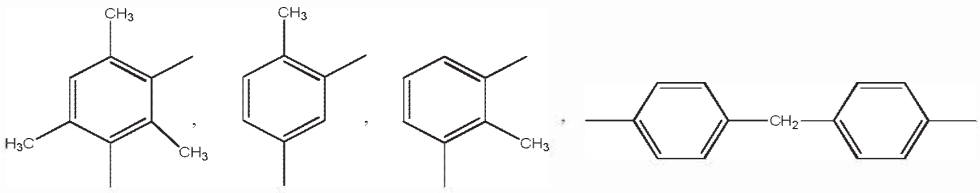
Die erfindungsgemäße Vorrichtung bzw. das erfindungsgemäße Verfahren kann im Prinzip mit allen Membranen realisiert werden, die in der Lage sind binäre Gasgemische oder Multigasgemische zu trennen. Als Membranmaterialien kommen bevorzugt aber nicht ausschließlich Kunststoffe zum Einsatz. Als Kunststoffe in der trennaktiven Schicht kommen besonders

bevorzugt Polyimide, Polyamide, Polysulfone, Celluloseacetate und Derivate, Polyphenylenoxide, Polysiloxane, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität, Mixed Matrix Membranen, Facilitated Transport Membranen, Polyethylenoxide, Polypropylenoxide, Kohlenstoffmembranen oder Zeolithe oder Mischungen daraus in Frage.

Besonders bevorzugte Membranen weisen als Materialien für die trennaktive Schicht bzw. als Material für die komplette Membran ein Polyimid der allgemeinen Formel



R ist ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus



x,y: Molenbruch mit $0 < x < 0,5$ und $1 > y > 0,5$

auf. Derlei Membranen sind von der Firma Evonik Fibres GmbH unter dem Namen Polyimid P84 und Polyimid P84 HT erhältlich. Ein Verfahren zur Herstellung dieser bevorzugten Membranen wird in der WO 2011/009919 A1 offenbart. Sämtliche in dieser Offenlegungsschrift offenbarten Membranen können im

erfindungsgemäßen Verfahren bevorzugt eingesetzt werden. Zur Vermeidung reiner Wiederholungen wird auf den Inhalt dieser Patentanmeldung hiermit vollumfänglich Bezug genommen. Es wurde gefunden, dass mit diesen Membranen die besten Trennergebnisse erzielt werden können.

Die Membranen werden bevorzugt in Form von Hohlfasermembranen und / oder Flachmembranen verwendet. Die Membranen werden zu Modulen verbaut, die dann in der Trennaufgabe zum Einsatz kommen. Als Module können alle in der Technik bekannten Gasseparationsmodule wie zum Beispiel aber nicht ausschließlich Hohlfasergasseparationsmodule, Spiralwickelgasseparationsmodule, Kissengasseparationsmodule oder Rohrbündelgasseparationsmodule zum Einsatz kommen.

Die Gasseparationsmembranmodule haben erfindungsgemäß eine Gemischtgasselektivität der Komponenten A und B (= Verhältnis des Stoffstromes A zum Stoffstrom B über die Membran) von mindestens 30, bevorzugt mindestens 35, besonders bevorzugt mindestens 40, ganz besonders bevorzugt von mindestens 45 und speziell bevorzugt von mindestens 45 bis 80. Höher selektive Membranen haben den Vorteil, dass die Trennung effektiver wird und weniger Permeat aus Retentattrennstufe (2) bzw. weniger Retentat aus der Permeattrennstufe (3) rückgeführt werden muss. Damit muss insbesondere bei Verwendung eines einstufigen Kompressors (4) weniger Gas doppelt komprimiert werden, was wirtschaftliche Vorteile beim Betrieb der Anlage mit sich bringt. Bei sehr selektiven Membranmodulen mit einer Selektivität von 45 müssen nur ca. 35% des als Rohgas in die Feedstromtrennstufe

(1) eingebrachten Gases doppelt komprimiert werden, mit einem Membranmodul mit einer Selektivität von nur 10 kann es sein, dass die Doppelkomprimierung bis zu 300% beträgt. Die Angaben 35% bzw. 300% beziehen sich auf Versuche, bei denen ein Gasgemisches mit äquimolaren Mengen an Komponente A und B (= Feed) aufgegeben wurden, wobei 98,5% Komponente B im Retentatgas der Stufe(2) und 99% an Komponente B im Permeatstrom der Stufe (3) enthalten waren.

Es ist augenscheinlich, dass der erfindungsgemäße Prozess mit selektiveren Membranen wesentlich wirtschaftlicher geführt werden kann und die notwendigen Größe des Kompressors und die benötigten Energie reduziert werden können.

Das erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung hat insbesondere die Vorteile, dass es ein reines Membranverfahren ist und ohne zusätzliche Aufreinigung der Permeat- und/oder Retentatströme (11) bzw. (8) für viele Anwendungen auskommt. Man braucht zum Bespiel bei der Aufreinigung von Biogas oder Erdgas (= Abtrennung von Kohlendioxid aus Methan) keine Druckwechseladsorption oder Aminwäsche mehr zur Feinreinigung des Retentates, sodass dieses ins Erdgasnetz eingespeist werden kann.

Weiterhin kann mit dem erfindungsgemäßen Verfahren / der erfindungsgemäßen Vorrichtung gleichzeitig ein reiner Retentatstrom (8) und ein reiner Permeatstrom (11) bei der Bio- und Erdgasaufreinigung hergestellt werden. Es kann daher ohne große Verluste an Methan und ohne große Beeinträchtigung der Umwelt in die Atmosphäre entlassen werden, ohne dass das

Gas noch weiter behandelt werden muss durch eine katalytische Nachverbrennung oder eine Nutzung in einem Blockheizkraftwerk. Es entfällt daher die Investition in weitere Anlagenteile, was zu einem wirtschaftlicheren Aufreinigungsprozess für Bio- und Erdgas führt.

Ein weiterer Vorteil ist darin zu sehen, dass das erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung mit deutlich geringerem apparativem und energetischen Aufwand auskommt wie die bekannten Verfahren des Standes der Technik.

Insbesondere durch die Kombination der erfindungsgemäßen Merkmale Gemischtgasselektivität, Steuerung der Menge der rückgeführten Retentatströme und Erhöhung der Permeatkomponente im Feedstrom (5) kann eine Vorrichtung bzw. ein Verfahren zur Verfügung gestellt werden, welches den Verfahren des Standes der Technik deutlich überlegen ist.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung bzw. das erfindungsgemäße Verfahren kann insbesondere zur Auftrennung von Gasgemischen mit mindestens zwei Gasen eingesetzt werden, wobei ganz besonders bevorzugt als Gasgemisch eine Mischung von vorwiegend aber nicht ausschließlich Kohlendioxid und Methan oder vorwiegend aber nicht ausschließlich Wasserstoff und Methan oder vorwiegend aber nicht ausschließlich Kohlenmonooxid und Wasserstoff oder Rohbiogas oder Roherdgas aufgetrennt wird.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung näher erläutern und beschreiben, schränken diese jedoch in keiner Weise ein.

In den nachfolgenden Beispielen konnte gezeigt werden, dass nach erfindungsgemäßer Verschaltung der Module und Anwendung bestimmter Drücke gleichzeitig Methan mit einer Reinheit von mehr als 96% und Kohlendioxid mit einer Reinheit von mehr als 97% aus einer Mischung von Kohlendioxid und Methan im Verhältnis 50 zu 50 hergestellt werden konnte.

Vergleichsbeispiel 1: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer mäßig selektiven Polyimidmembran

Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus Polyimid Hohlfasern der Firma UBE (Type NM B01 A). 1,78 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer (in Abb. 11 nicht gezeigt) eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Feedstromtrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat der Feedstromtrennstufe (1) wird anschließend über den ersten Retentatstrom (7) zur Retentattrennstufe (2) geleitet. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2) wird auf 18,2 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat

der Retentattrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,895 m^3/h dieser Mischung die Retentattrennstufe (2) Das Permeat der Retentattrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,743 m^3/h mit einem Methangehalt von 34,5% und einem Kohlendioxidgehalt von 65,5 % und wird über den zweiten Permeatstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Feedstromtrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 1,67 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 91,0 % und einem Methangehalt von 9,0 % und wird über den ersten Permeatstrom (6) als Feed in die Permeattrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 4,2 bara beschränkt. Das ergibt einen dritten Permeatstrom (11) aus Permeattrennstufe (3) von 0,885 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,0 % Kohlendioxid und nur 1,0 % Methan. Der dritte Retentatstrom (10) aus der Permeattrennstufe (3) beträgt 0,801 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 17,9 % Methan und 82,1 % Kohlendioxid und wird in die Mischkammer rückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Gasströmen (9) und (10) beträgt daher 1,544 m^3/h oder 86,7 % bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer relativ hohen Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine moderate Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 20.

Beispiel 1: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran

Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid Hohlfasern mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Feedstromtrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2) wird auf 18,4 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Retentattrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,503 m^3/h dieser Mischung die Retentattrennstufe (2). Das Permeat der Retentattrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,262 m^3/h mit einem Methangehalt von 24,6% und einem Kohlendioxidgehalt von 75,4% und wird über den zweiten Permeatstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Feedstromtrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,547 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 92,4% und einem Methangehalt von 7,6% und wird über den ersten Permeatstrom (6) als Feed in die Permeattrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 5,0 bara beschränkt. Das ergibt einen dritten Permeatstrom (11) aus Permeattrennstufe (3) von 0,497 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,0% Kohlendioxid und nur 1,0% Methan. Der dritte Retentatstrom (10) aus der Permeattrennstufe (3) beträgt 0,050 m^3/h. Die Summe an rückgeführten Gasströmen (9) und (10) beträgt daher 0,312m^3/h oder 31,2% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45. Die hohe Selektivität von 45 gegenüber 20 im Vergleichsbeispiel ermöglicht daher einen ökonomisch günstigeren Prozess durch eine geringere Rekomprimierung von 31,2% statt 86,7%.

Beispiel 2: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5%

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten. Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung wurde verwendet

um die Konzentration von Methan im dritten Permeatstrom (11) auf unter 0,5 Vol% zu senken. Jede Stufe bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Feedstromtrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2) wird auf 18,1 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2) Das Retentat der Retentattrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,505 m^3/h dieser Mischung die Retentattrennstufe (2). Das Permeat der Retentattrennstufe (2) hat einen Volumenstrom von 0,244 m^3/h mit einem Methangehalt von 26,1% und einem Kohlendioxidgehalt von 73,9% und wird über den zweiten Permeatstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Feedstromtrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,607 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 93,1% und einem Methangehalt von 6,9% und wird über den

ersten Permeatstrom (6) als Feed in die Permeattrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen dritten Permeatstrom (11) aus Permeattrennstufe (3) von 0,495 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der dritte Retentatstrom (10) aus der Permeattrennstufe (3) beträgt 0,112 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 35% Methan und 65% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,356m^3/h oder 35,6% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45.

Beispiel 3: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5% unter Zuhilfenahme einer Vakuumpumpe für das Permeat der Stufe 2

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten. Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung, ergänzt um eine Vakuumpumpe, welche in Abb. 11 nicht dargestellt ist, wurde verwendet um die Konzentration von Methan im dritten Permeatstrom (11) auf unter 0,5 Vol. % zu senken. Jede Stufe

bestand aus einem Hohlfasermembranmodul bestehend aus hochselektiven Polyimid Hohlfasern mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Feedstromtrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2) wird auf 14,5 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Retentattrennstufe (2) hat einen Gehalt von 98,5% Methan und 1,5% Kohlendioxid. Es verlassen 0,505 m^3/h dieser Mischung die Retentattrennstufe (2) Das Permeat der Retentattrennstufe (2) hat einen Druck von 0,2 bara, hergestellt durch eine Vakuumpumpe und hat einen Volumenstrom von 0,371 m^3/h mit einem Methangehalt von 13,3% und einem Kohlendioxidgehalt von 86,7%. Der Gasstrom wird von der Druckseite der Vakuumpumpe über den zweiten Permeatstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Feedstromtrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,542 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 94,8% und einem Methangehalt von 5,2% und wird über den

ersten Permeatstrom (6) als Feed in die Permeattrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen dritten Permeatstrom (11) aus Permeattrennstufe (3) von 0,495 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der dritte Retentatstrom (10) aus der Permeattrennstufe (3) beträgt 0,047 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 54,9% Methan und 45,1% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,417m^3/h oder 41,7% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45. Im Gegensatz zu vorigem Beispiel 2 benötigt man weniger Druck (14,5 bar anstelle von 18,1 bar = 80,1% des Druckes) und nur 6,1 % mehr Doppelkomprimierung, was zu einer Ersparnis bei der Komprimierarbeit führt.

Beispiel 4: Auftrennung einer Mischung aus Methan und Kohlendioxid mit einem Mischverhältnis von 50 zu 50 mit einer hochselektiven Polyimidmembran mit einem Methangehalt im Permeatstrom von weniger als 0,5% unter Zuhilfenahme einer Vakuumpumpe für das Permeat der Stufe 2 und verbesserter Retentatreinheit

Um verschiedenen Gesetzgebern zu genügen, ist es notwendig den Methanverlust in die Atmosphäre möglichst gering zu halten.

Die Abb. 11 dargestellt Verschaltung, ergänzt um eine Vakuumpumpe, welche in Abb. 11 nicht dargestellt ist, wurde verwendet um die Konzentration von Methan im zweiten Retentatstrom (8) zu erhöhen. Durch das Vakuum wird das Druckverhältnis in der Retentattrennstufe (2) durch Verminderung des Druckes im zweiten Permeatstrom (9) verbessert, sodass die treibende Kraft erhöht wird und höhere Reinheiten im zweiten Retentatstrom (8) erzeilt werden können.

Jede Stufe bestand aus einem mit einer Trennfläche von ca. 5 m^2 pro Modul. Diese Polyimid Hohlfasern wurden gemäß Bespiel 19 der österreichischen Patentanmeldung A1164/2009 hergestellt, wobei jedoch mit einer Fällbadtemperatur von 40°C anstelle von 10°C gearbeitet wurde. 1 m^3/h eines Rohgasgemisches aus 50% Methan und 50% Kohlendioxid, was in etwa einer Gasmischung von Biogas entspricht, wird in eine Mischkammer eingebracht und dann zusammen mit rückgeführtem Gas aus den Gasströmen (9) und (10) auf 25 bar komprimiert. Das komprimierte und auf 20°C gekühlte Gas wird auf die Feedstromtrennstufe (1) aufgebracht. Das Retentat dieser Stufe wird mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt. Ein Reduzierventil (13) auf der Retentatseite der Retentattrennstufe (2) wird auf 18,1 bara eingestellt und bestimmt so die treibende Kraft durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). Das Retentat der Retentattrennstufe (2) hat einen Gehalt von 99,7% Methan und 0,3% Kohlendioxid. Es verlassen 0,499 m^3/h dieser Mischung die Retentattrennstufe (2) Das Permeat der Retentattrennstufe (2) hat einen Druck von 0,2 bara, hergestellt durch eine Vakuumpumpe und hat einen Volumenstrom

von 0,258 m^3/h mit einem Methangehalt von 25,8% und einem Kohlendioxidgehalt von 74,2%. Der Gasstrom wird von der Druckseite der Vakuumpumpe über den zweiten Permeatstrom (9) in die Mischkammer zurückgeführt und vom Kompressor (4) wieder komprimiert.

Das Permeat der Feedstromtrennstufe (1) hat einen Volumenstrom von 0,608 m^3/h mit einem Kohlendioxidgehalt von 93,2% und einem Methangehalt von 6,8% und wird über den ersten Permeatstrom (6) als Feed in die Permeattrennstufe (3) geleitet. Der Druckabfall über die Membran der Stufe (1) erfolgt jedoch nicht bis zum Umgebungsdruck sondern wird durch ein Reduzierventil (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 4,4 bara beschränkt. Das ergibt einen dritten Permeatstrom (11) aus Permeattrennstufe (3) von 0,501 m^3/h mit einer Zusammensetzung von 99,5% Kohlendioxid und nur 0,5% Methan. Der dritte Retentatstrom (10) aus der Permeattrennstufe (3) beträgt 0,107 m^3/h und hat eine Zusammensetzung von 36,2% Methan und 63,8% Kohlendioxid und wird in die Mischkammer zurückgeführt und wieder komprimiert. Die Summe an rückgeführten Strömen (9) und (10) beträgt daher 0,366m^3/h oder 36,6% bezogen auf die zugeführte Menge an zu trennendem Gas. Man erhält reine Produktströme mit einer moderaten Doppelkomprimierungsrate. Die verwendeten Membranen zeigen eine hohe Gemischtgasselektivität von Kohlendioxid über Methan von 45. Im Gegensatz zu vorigem Beispiel 3 erhält man durch Verwendung einer Vakuumpumpe auf der Permeatseite der Retentattrennstufe (2) ein deutlich saubereres Retentat mit derselben Kompressorleistung. (99,7% Methan anstelle von 98,5%)

Abbildungsverzeichnis:

Abb. 1: Einfluss des Druckverhältnisses und der Selektivität auf das Trennergebnis

Abb. 2: Einstufige Membrantrennstufe ohne Rückführung

Abb. 3: Einstufige Membrantrennstufe mit Rückführung

Abb. 4: Zweistufige Membrantrennstufe mit Rekompression und Rückführung

Abb. 5: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die erste Retentatstufe

Abb. 6: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die zweite Retentatstufe

Abb. 7: Permeatgestuft mit Rekompression

Abb. 8: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe und permeatgestuft mit Rekompression

Abb. 9: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe

Abb. 10: Intern permeatgestufte Verschaltung

Abb.11: Beispielhafte Verschaltung von mehreren Membranmodulen laut Erfindung

Abb. 12: 3-Stufige Verschaltung von Membranmodulen mit einem Kompressor und Retentatrückführung der Permeattrennstufe (3) ohne totale Entspannung in eine erhöhte Kompressionsstufe des Kompressors (4)

Abb.13: 3-Stufige Verschaltung von Membranmodulen mit einem Kompressor und Retentatrückführung der dritten Stufe ohne totale Entspannung sowie Permeatrückführung der zweiten Stufe in eine erhöhte Kompressionsstufe des Kompressors (4)

Bezugszeichenliste:

1: Feedstromtrennstufe
2: Retentattrennstufe
3: Permeattrennstufe 3
4: einstufiger oder mehrstufiger Kompressor
5: Feedstrom
6: erster Permeatstrom
7: erster Retentatstrom
8: zweiter Retentatstrom
9: zweiter Permeatstrom
10: dritter Retentatstrom
11: dritter Permeatstrom
12: Optionales Druckminderventil im ersten Retentatstrom 7
13: Optionales Druckminderventil im zweiten Retentatstrom 8
14: Optionales Druckminderventil im dritten Retentatstrom 10
15: Vakuumpumpe (in den Abbildungen nicht wiedergegeben)
16: Mischkammer (in den Abbildungen nicht wiedergegeben)
17: Rohgasstrom

Ansprüche

1. Vorrichtung zur Trennung von Gasen umfassend die Membrantrennstufen (1) bis (3), zumindest einen Kompressor (4) und/oder zumindest eine, bevorzugt eine oder zwei, Vakuumpumpe(n) (15), wobei die Feedstromtrennstufe (1) einen Feedstrom (5), bestehend aus mindestens 2 Komponenten, in einen ersten Permeatstrom (6) und einen ersten Retentatstrom (7) auftrennt, die Retentattrennstufe (2) den ersten Retentatstrom (7) in einen zweiten Permeatstrom (9), der dem Feedstrom (5) zugeführt wird, und einen zweiten Retentatstrom (8), der als Produkt entnommen wird, aufteilt und die Permeattrennstufe (3) den ersten Permeatstrom (6), in einen dritten Retentatstrom (10), der dem Feedstrom (5) zugeführt wird, und einen dritten Permeatstrom (11), der als Produkt entnommen wird, aufteilt, dadurch gekennzeichnet, dass
   - der erste Permeatstrom (6) keiner Rekompression unterworfen wird
   - zumindest in der Feedstromtrennstufe (1), bevorzugt jedoch in allen drei Membrantrennstufen (1) bis (3), Gasseparationsmembranmodule mit einer Gemischtgasselektivität von mindestens 30 verwendet werden
   - die Vorrichtung derart ausgestaltet ist, dass das im zweiten Permeatstrom (9) und im dritten Retentatstrom (10) rückgeführte Gasvolumen in Summe weniger als 60 Vol. % des Volumens des Rohgasstroms (17) beträgt

- die Konzentration mindestens eines Permeatgases der Feedstromtrennstufe (1), nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10), im Feedstrom (5) erhöht wird, bevorzugt um mindestens 2%, besonders bevorzugt um mindestens 3% und besonders bevorzugt um 3 bis 40%, jeweils im Vergleich zur Konzentration im Rohgasstrom (17) erhöht ist.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der zweite Permeatstrom (9) und der dritte Retentatstrom (10) auf der Saugseite des Kompressors (4) zur Wideraufbereitung geleitet werden.

3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der zweite Permeatstrom (9) und /oder der dritte Retentatstrom (10) zwischen zwei Verdichtungsstufen in den Kompressor (4) eingeführt wird/werden.

5. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet,

dass der erste Retentatstrom (7) und/oder der zweite Retentatstrom (8) und/oder der dritte Retentatstrom (10) durch ein Druckminderventil geleitet werden.

6. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass in mindestens einer der Membrantrennstufen (1) bis (3) ein Gasseparationsmembranmodul mit einer Gemischtgasselektvität von mindestens 35, bevorzugt mindestens 40 und besonders bevorzugt mindestens 45 verwendet wird.

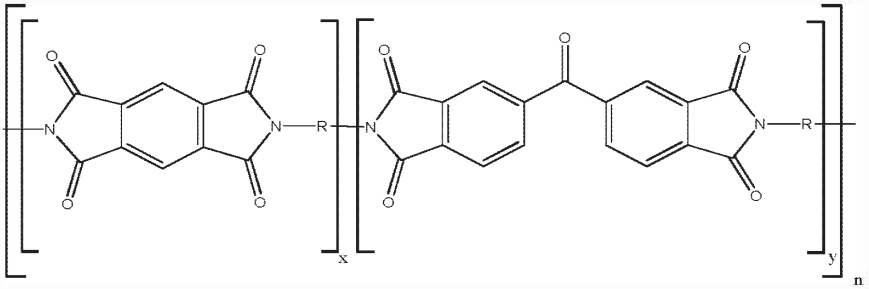
7. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine der Membrantrennstufen (1) bis (3) mehr als ein Gasseparationsmembranmodul umfasst, welche parallel und/oder seriell verschaltet sind.

8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass das/die Gasseparationsmembranmodul(e) aus Hohlfasermembranen und/oder Flachmembranen bestehen.

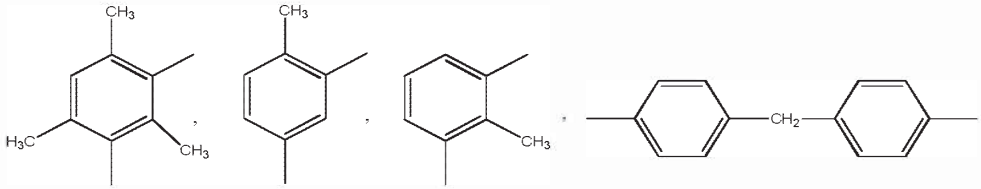
9. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass als Materialien für die Trennaktive Schicht der Membranen amorphe oder teilkristalline Kunststoffe verwendet werden wie zum Beispiel aber nicht ausschließlich Polyimide, Polyamide, Polysulfone, Celluloseacetate und Derivate, Polyphenylenoxide,

Polysiloxane, Polymere mit intrinsischer Mikroporosität, Mixed Matrix Membranen, Facilitated Transport Membranen, Polyethylenoxide, Polypropylenoxide oder Mischungen daraus.

10. Vorrichtung nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass als Material für die trennaktive Schicht der Membranen ein Polyimid der allgemeinen Formel



R ist ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus



x,y: Molenbruch mit $0 < x < 0,5$ und $1 > y > 0,5$

verwendet wird.

11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens 95%, bevorzugt mindestens 97%, besonders bevorzugt mindestens 99% und ganz besonders bevorzugt

mindestens 99,5 %, der mit dem Rohgasstrom (17) in die Vorrichtung eingeführten Retentatkomponente der Feedstromtrennstufe (1) über den zweiten Retentatstrom (8) ausgeschleust werden.

12. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass maximal 5%, bevorzugt maximal 3%, besonders bevorzugt maximal 1% und ganz besonders bevorzugt maximal 0,5 %, der mit dem Rohgasstrom (17) in die Vorrichtung eingeführten Retentatkomponente der Feedstromtrennstufe (1) über den dritten Permeatstrom (11) ausgeschleust werden.

13. Verfahren zur Auftrennung von Gasgemischen, dadurch gekennzeichnet, dass eine Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 12 verwendet wird.

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass als Gasgemisch eine Mischung von vorwiegend aber nicht ausschließlich Kohlendioxid und Methan oder vorwiegend aber nicht ausschließlich Wasserstoff und Methan oder vorwiegend aber nicht ausschließlich Kohlenmonooxid und Wasserstoff oder Rohbiogas oder Roherdgas verwendet wird.

15. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 oder 14,

dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck der Permeatseite (6) der Feedstromtrennstufe (1) bevorzugt mittels eines Druckminderventils (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 1 bis 30 bar, vorzugsweise auf 2 bis 20 bar und besonders vorzugsweise auf 3 und 10 bar eingestellt wird.

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 15,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck des ersten und zweiten Retentatstroms (7) und (8) bevorzugt mittels eines Druckminderventils (13) im zweiten Retentatstrom (8), auf 1 bis 100 bar, vorzugsweise auf 5 bis 80 bar und besonders vorzugsweise auf 10 bis 70 bar eingestellt wird.

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 16,
dadurch gekennzeichnet,
dass als Triebkraft für die Trennaufgabe eine Partialdruckdifferenz zwischen der Retentat- und der Permeatseite in den jeweiligen Membrantrennstufen zum Einsatz kommt, wobei die Partialdruckdifferenz durch einen Kompressor im Feedstrom (5) und/ oder durch eine Vakuumpumpe (15) im zweiten und/oder dritten Permeatstrom (9) und / oder (11) und/oder durch einen permeatseitigen Spülgasstrom erzeugt wird.

18. Verfahren nach Anspruch 16 oder 17,
dadurch gekennzeichnet,

dass der Druck des Permeats der Feedstromtrennstufe (1) gleich oder erhöht ist gegenüber dem Umgebungsdruck, sodass noch eine Partialdruckdifferenz zwischen Retentat und Permeat der Permeattrennstufe (3) besteht und damit eine treibende Kraft gegeben ist für den Fall, dass das Permeat der Permeattrennstufe (3) auf Umgebungsdruck ist oder Unterdruck angelegt wird.

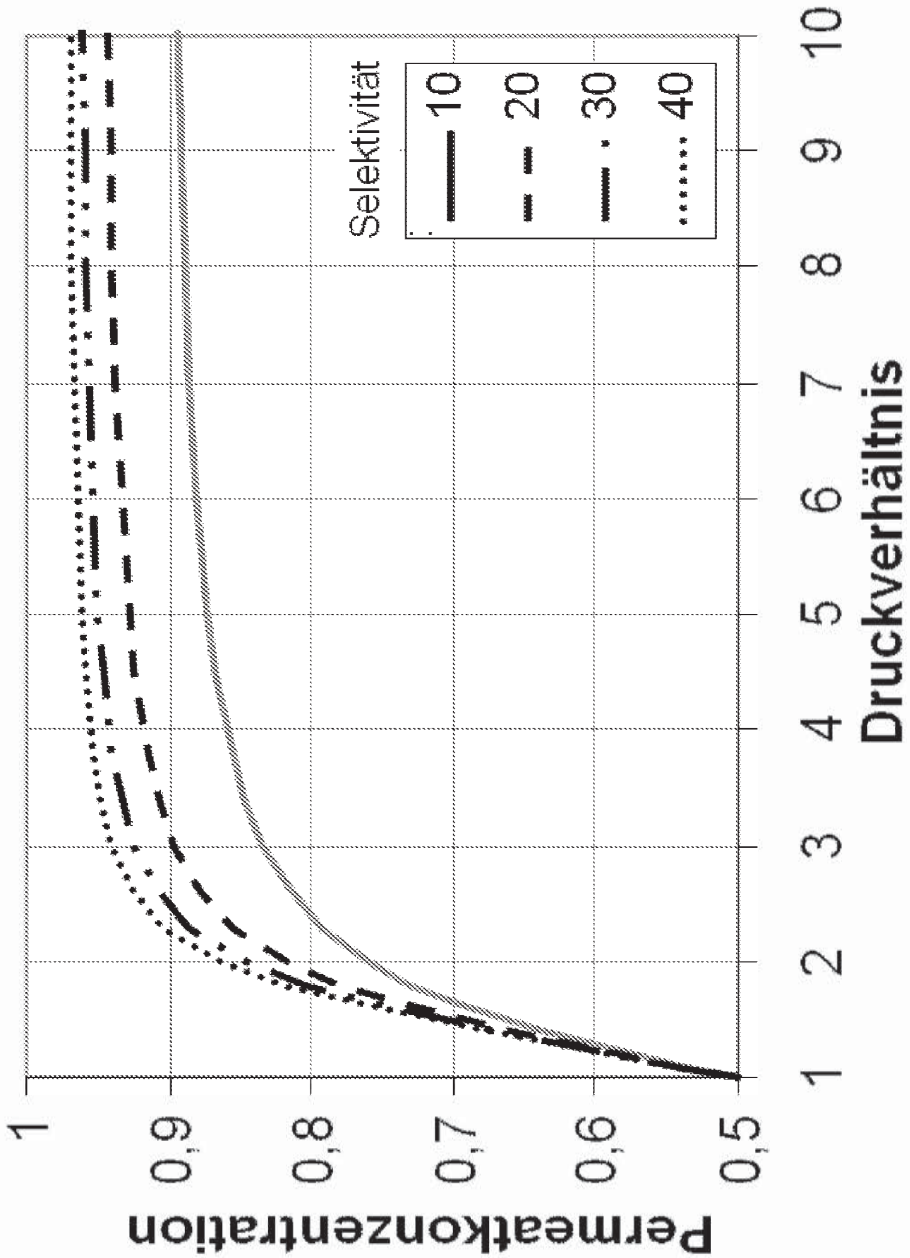


Abb. 1: Einfluss des Druckverhältnisses und der Selektivität auf das Trennergebnis

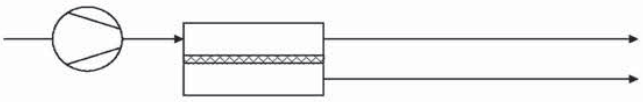


Abb. 2: Einstufige Membrantrennstufe ohne Rückführung

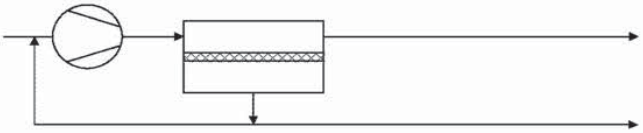


Abb. 3: Einstufige Membrantrennstufe mit Rückführung

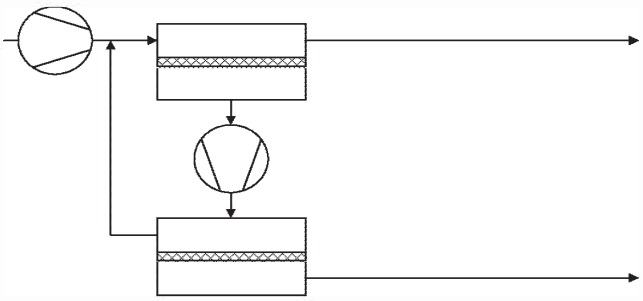


Abb. 4: Zweistufige Membrantrennstufe mit Rekompression und Rückführung

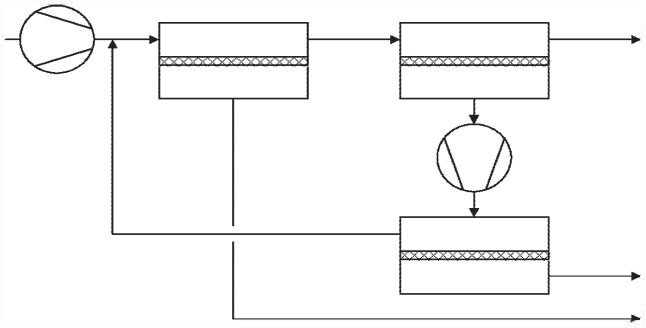


Abb. 5: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die erste Retentatstufe

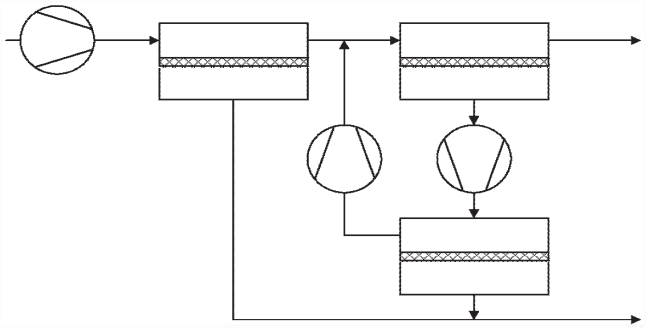


Abb. 6: Retentat- und permeatgestuft mit Rekompression und Rückführung in der zweiten Retentatstufe vor die zweite Retentatstufe

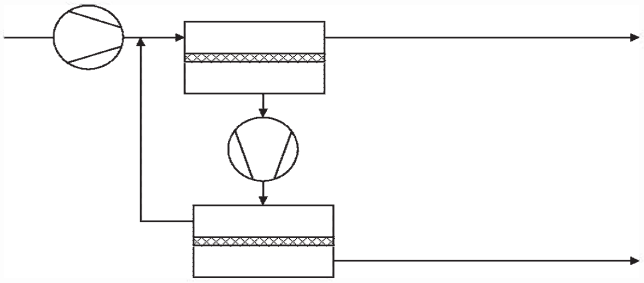


Abb. 7: Permeatgestuft mit Rekompression

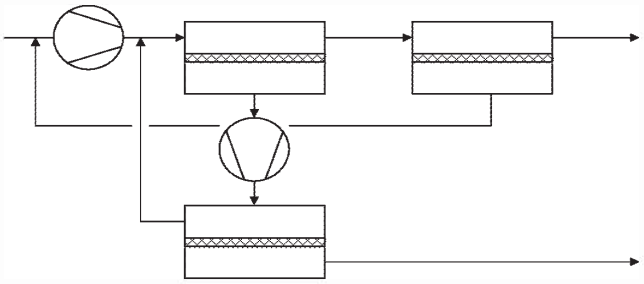


Abb. 8: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe und permeatgestuft mit Rekompression

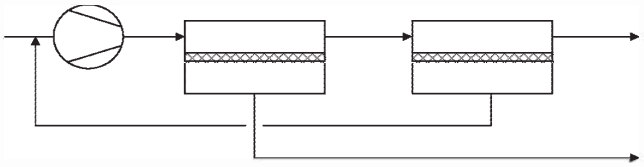


Abb. 9: Retentatgestuft mit Permeatrückführung aus der zweiten Stufe

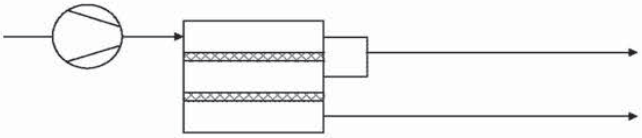


Abb. 10: Intern permeatgestufte Verschaltung

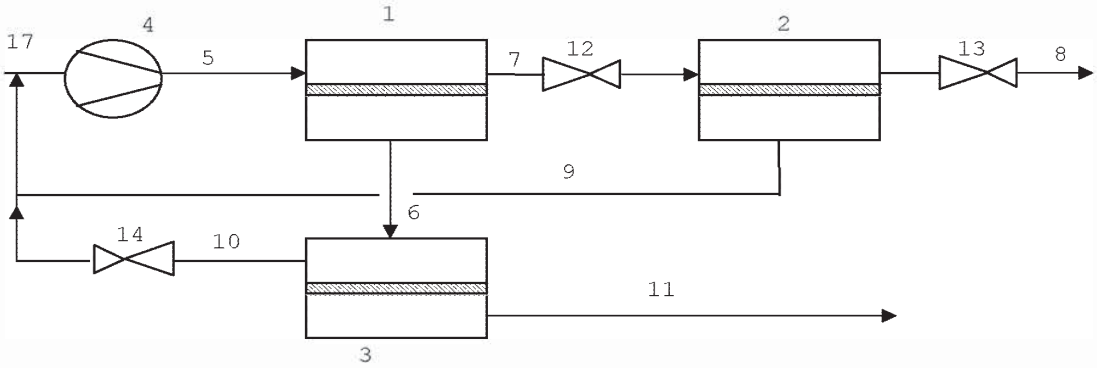


Abb.11: Beispielhafte Verschaltung von mehreren Membranmodulen laut Erfindung

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2011/058636

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B01D53/22 C10L3/10
ADD.

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)
B01D C10L

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)
EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	US 6 565 626 B1 (BAKER RICHARD W [US] ET AL) 20 May 2003 (2003-05-20) column 21, line 42 - column 22, line 43 column 18, lines 8-43; figure 2 -----	1-9, 11-18 10
X Y	US 6 168 649 B1 (JENSVOLD JOHN A [US] ET AL) 2 January 2001 (2001-01-02) column 13, line 18 - column 14, line 27; claims; figure 3 -----	1-9, 11-18 10
Y	US 2006/196355 A1 (EKINER OKAN M [US] ET AL EKINER OKAN MAX [US] ET AL) 7 September 2006 (2006-09-07) claims 10-12 -----	10
Y	WO 00/06293 A1 (GRACE W R & CO [US]) 10 February 2000 (2000-02-10) pages 6-8 -----	10
	-/--	

[X] Further documents are listed in the continuation of Box C.

[X] 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 document 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	Date of mailing of the international search report
13 September 2011	20/09/2011

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Persichini, Carlo

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y,P	WO 2011/009919 A1 (EVONIK FIBRES GMBH [AT]; UNGERANK MARKUS [AT]; BAUMGARTEN GOETZ [DE]) 27 January 2011 (2011-01-27) cited in the application claim 10	10
A	BAKER R W ET AL: "Natural gas processing with membranes: An overview", INDUSTRIAL AND ENGINEERING CHEMISTRY RESEARCH 20080402 AMERICAN CHEMICAL SOCIETY US, vol. 47, no. 7, 2 April 2008 (2008-04-02), pages 2109-2121, XP002612501, DOI: DOI:10.1021/IE071083W cited in the application the whole document	1-18
A	US 5 919 285 A (LI YAO-EN [US] ET AL) 6 July 1999 (1999-07-06) figures 4,5	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2011/058636

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6565626 B1	20-05-2003	NONE	
US 6168649 B1	02-01-2001	AU 1507400 A	26-06-2000
		WO 0033949 A1	15-06-2000
		EP 1148934 A1	31-10-2001
US 2006196355 A1	07-09-2006	EP 1934273 A1	25-06-2008
		WO 2006092677 A1	08-09-2006
WO 0006293 A1	10-02-2000	AU 763461 B2	24-07-2003
		AU 5210399 A	21-02-2000
		EP 1100614 A1	23-05-2001
		JP 2002521190 A	16-07-2002
		US 6180008 B1	30-01-2001
WO 2011009919 A1	27-01-2011	NONE	
US 5919285 A	06-07-1999	NONE	

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2011/058636

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. B01D53/22 C10L3/10
ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
B01D C10L

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 6 565 626 B1 (BAKER RICHARD W [US] ET AL) 20. Mai 2003 (2003-05-20)	1-9, 11-18
Y	Spalte 21, Zeile 42 - Spalte 22, Zeile 43 Spalte 18, Zeilen 8-43; Abbildung 2	10
X	US 6 168 649 B1 (JENSVOLD JOHN A [US] ET AL) 2. Januar 2001 (2001-01-02)	1-9, 11-18
Y	Spalte 13, Zeile 18 - Spalte 14, Zeile 27; Ansprüche; Abbildung 3	10
Y	US 2006/196355 A1 (EKINER OKAN M [US] ET AL EKINER OKAN MAX [US] ET AL) 7. September 2006 (2006-09-07) Ansprüche 10-12	10
Y	WO 00/06293 A1 (GRACE W R & CO [US]) 10. Februar 2000 (2000-02-10) Seiten 6-8	10

-/--

[X] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen [X] Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
13. September 2011	20/09/2011

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Persichini, Carlo

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2011/058636

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y,P	WO 2011/009919 A1 (EVONIK FIBRES GMBH [AT]; UNGERANK MARKUS [AT]; BAUMGARTEN GOETZ [DE]) 27. Januar 2011 (2011-01-27) in der Anmeldung erwähnt Anspruch 10	10
A	BAKER R W ET AL: "Natural gas processing with membranes: An overview", INDUSTRIAL AND ENGINEERING CHEMISTRY RESEARCH 20080402 AMERICAN CHEMICAL SOCIETY US, Bd. 47, Nr. 7, 2. April 2008 (2008-04-02), Seiten 2109-2121, XP002612501, DOI: DOI:10.1021/IE071083W in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-18
A	US 5 919 285 A (LI YAO-EN [US] ET AL) 6. Juli 1999 (1999-07-06) Abbildungen 4,5	1-18

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2011/058636

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 6565626 B1	20-05-2003	KEINE	
US 6168649 B1	02-01-2001	AU 1507400 A	26-06-2000
		WO 0033949 A1	15-06-2000
		EP 1148934 A1	31-10-2001
US 2006196355 A1	07-09-2006	EP 1934273 A1	25-06-2008
		WO 2006092677 A1	08-09-2006
WO 0006293 A1	10-02-2000	AU 763461 B2	24-07-2003
		AU 5210399 A	21-02-2000
		EP 1100614 A1	23-05-2001
		JP 2002521190 A	16-07-2002
		US 6180008 B1	30-01-2001
WO 2011009919 A1	27-01-2011	KEINE	
US 5919285 A	06-07-1999	KEINE	

PTO/SB/06 (07-06)
Approved for use through 1/31/2007. OMB 0651-0032
U.S. Patent and Trademark Office; U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE
Under the Paperwork Reduction Act of 1995, no persons are required to respond to a collection of information unless it displays a valid OMB control number.

PATENT APPLICATION FEE DETERMINATION RECORD

Substitute for Form PTO-875

Application or Docket Number	Filing Date	☐ To be Mailed
13/807,831	12/31/2012	

APPLICATION AS FILED – PART I

FOR	(Column 1) NUMBER FILED	(Column 2) NUMBER EXTRA	SMALL ENTITY ☐ RATE ($)	SMALL ENTITY ☐ FEE ($)	OR	OTHER THAN SMALL ENTITY RATE ($)	OTHER THAN SMALL ENTITY FEE ($)
☐ BASIC FEE (37 CFR 1.16(a), (b), or (c))	N/A	N/A	N/A			N/A	
☐ SEARCH FEE (37 CFR 1.16(k), (i), or (m))	N/A	N/A	N/A			N/A	
☐ EXAMINATION FEE (37 CFR 1.16(o), (p), or (q))	N/A	N/A	N/A			N/A	
TOTAL CLAIMS (37 CFR 1.16(i))	minus 20 =	*	X $ =		OR	X $ =	
INDEPENDENT CLAIMS (37 CFR 1.16(h))	minus 3 =	*	X $ =			X $ =	
☐ APPLICATION SIZE FEE (37 CFR 1.16(s))	If the specification and drawings exceed 100 sheets of paper, the application size fee due is $250 ($125 for small entity) for each additional 50 sheets or fraction thereof. See 35 U.S.C. 41(a)(1)(G) and 37 CFR 1.16(s).						
☐ MULTIPLE DEPENDENT CLAIM PRESENT (37 CFR 1.16(j))							
* If the difference in column 1 is less than zero, enter "0" in column 2.			TOTAL			TOTAL	

APPLICATION AS AMENDED – PART II

AMENDMENT	12/31/2012	(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	SMALL ENTITY RATE ($)	SMALL ENTITY ADDITIONAL FEE ($)	OR	OTHER THAN SMALL ENTITY RATE ($)	OTHER THAN SMALL ENTITY ADDITIONAL FEE ($)
	Total (37 CFR 1.16(i))	* 20	Minus	** 20	= 0	X $ =		OR	X $62=	0
	Independent (37 CFR 1.16(h))	* 1	Minus	***3	= 0	X $ =		OR	X $250=	0
	☐ Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))									
	☐ FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))							OR		
						TOTAL ADD'L FEE		OR	TOTAL ADD'L FEE	0

AMENDMENT		(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	RATE ($)	ADDITIONAL FEE ($)	OR	RATE ($)	ADDITIONAL FEE ($)
	Total (37 CFR 1.16(i))	*	Minus	**	=	X $ =		OR	X $ =	
	Independent (37 CFR 1.16(h))	*	Minus	***	=	X $ =		OR	X $ =	
	☐ Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))									
	☐ FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))							OR		
						TOTAL ADD'L FEE		OR	TOTAL ADD'L FEE	

* If the entry in column 1 is less than the entry in column 2, write "0" in column 3.

** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 20, enter "20".

*** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 3, enter "3".

The "Highest Number Previously Paid For" (Total or Independent) is the highest number found in the appropriate box in column 1.

Legal Instrument Examiner:
/CHARMISE CARTER/

This collection of information is required by 37 CFR 1.16. The information is required to obtain or retain a benefit by the public which is to file (and by the USPTO to process) an application. Confidentiality is governed by 35 U.S.C. 122 and 37 CFR 1.14. This collection is estimated to take 12 minutes to complete, including gathering, preparing, and submitting the completed application form to the USPTO. Time will vary depending upon the individual case. Any comments on the amount of time you require to complete this form and/or suggestions for reducing this burden, should be sent to the Chief Information Officer, U.S. Patent and Trademark Office, U.S. Department of Commerce, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450. DO NOT SEND FEES OR COMPLETED FORMS TO THIS ADDRESS. **SEND TO: Commissioner for Patents, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450.**

If you need assistance in completing the form, call 1-800-PTO-9199 and select option 2.

Form PTO 1449 (Modified)	U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE PATENT AND TRADEMARK OFFICE	ATTY DOCKET NO.	SERIAL NO.
		408824US99PCT	13/807,831
LIST OF REFERENCES CITED BY APPLICANT		APPLICANT	
		Markus UNGERANK, et al.	
		FILING DATE	GROUP
		December 31, 2012	

U.S. PATENT DOCUMENTS

EXAMINER INITIAL		DOCUMENT NUMBER	DATE	NAME	CLASS	SUB CLASS	FILING DATE IF APPROPRIATE
	AA						
	AB						
	AC						
	AD						
	AE						
	AF						
	AG						
	AH						
	AI						
	AJ						
	AK						
	AL						
	AM						
	AN						

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

		DOCUMENT NUMBER	DATE	COUNTRY	TRANSLATION YES	TRANSLATION NO
	AO					
	AP					
	AQ					
	AR					
	AS					
	AT					
	AU					
	AV					

OTHER REFERENCES (Including Author, Title, Date, Pertinent Pages, etc.)

	AW	Franz Borgmann, "Modellierung und Optimierung von Gaspermeationsanlagen", Diplomaufgabe, June 20, 1990, 206 pages (with English-language translation)
	AX	
	AY	
	AZ	☐ Additional References sheet(s) attached

Examiner	Date Considered

*Examiner: Initial if reference is considered, whether or not citation is in conformance with MPEP 609; Draw line through citation if not in conformance and not considered. Include copy of this form with next communication to applicant.

Electronic Acknowledgement Receipt	
EFS ID:	14706355
Application Number:	13807831
International Application Number:	
Confirmation Number:	4142
Title of Invention:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES
First Named Inventor/Applicant Name:	Markus UNGERANK
Customer Number:	22850
Filer:	Marvin Jay Spivak/Danielle Summers
Filer Authorized By:	Marvin Jay Spivak
Attorney Docket Number:	408824US99PCT
Receipt Date:	15-JAN-2013
Filing Date:	
Time Stamp:	16:40:30
Application Type:	U.S. National Stage under 35 USC 371

Payment information:

Submitted with Payment	no

File Listing:

Document Number	Document Description	File Name	File Size(Bytes)/ Message Digest	Multi Part /.zip	Pages (if appl.)
1		408824USIDS.pdf	15656249 768efc86fbfa4fa8f819a6f40a3ea920b79b66a3	yes	300

	Multipart Description/PDF files in .zip description		
	Document Description	**Start**	**End**
	Transmittal Letter	1	1
	Information Disclosure Statement (IDS) Form (SB08)	2	2
	Non Patent Literature	3	300
Warnings:			
Information:			
	Total Files Size (in bytes):	15656249	

This Acknowledgement Receipt evidences receipt on the noted date by the USPTO of the indicated documents, characterized by the applicant, and including page counts, where applicable. It serves as evidence of receipt similar to a Post Card, as described in MPEP 503.

New Applications Under 35 U.S.C. 111
If a new application is being filed and the application includes the necessary components for a filing date (see 37 CFR 1.53(b)-(d) and MPEP 506), a Filing Receipt (37 CFR 1.54) will be issued in due course and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the filing date of the application.

National Stage of an International Application under 35 U.S.C. 371
If a timely submission to enter the national stage of an international application is compliant with the conditions of 35 U.S.C. 371 and other applicable requirements a Form PCT/DO/EO/903 indicating acceptance of the application as a national stage submission under 35 U.S.C. 371 will be issued in addition to the Filing Receipt, in due course.

New International Application Filed with the USPTO as a Receiving Office
If a new international application is being filed and the international application includes the necessary components for an international filing date (see PCT Article 11 and MPEP 1810), a Notification of the International Application Number and of the International Filing Date (Form PCT/RO/105) will be issued in due course, subject to prescriptions concerning national security, and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the international filing date of the application.

Docket No. 408824US99PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF:	Markus UNGERANK, et al.	
SERIAL NO:	13/807,831	GAU:
FILED:	December 31, 2012	EXAMINER:
FOR:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES	

INFORMATION DISCLOSURE STATEMENT UNDER 37 CFR 1.97

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

Commissioner:
Applicant(s) wish to disclose the following information.

REFERENCES

■ The applicant(s) wish to make of record the reference(s) listed on the attached form PTO-1449 and/or accompanying documents from a corresponding foreign application. Copies of the listed reference(s) are attached, where required, as are either statements of relevancy or any readily available partial or full English translations of pertinent portions of any non-English language reference(s).

☐ Credit card payment is being made online (if electronically filed), or is attached hereto (if paper filed), in the amount required under 37 CFR §1.17(p).

RELATED CASES

☐ Attached is a list of applicant's pending application(s), published application(s) or issued patent(s) which may be related to the present application. In accordance with the waiver of 37 CFR 1.98 dated September 21, 2004, copies of the cited pending applications are not provided. Cited published and/or issued patents, if any, are listed on the attached PTO form 1449.

☐ Credit card payment is being made online (if electronically filed), or is attached hereto (if paper filed), in the amount required under 37 CFR §1.17(p).

CERTIFICATION

☐ Each item of information contained in this information disclosure statement was first cited in any communication from a foreign patent office in a counterpart foreign application not more than three months prior to the filing of this statement.

☐ No item of information contained in this information disclosure statement was cited in a communication from a foreign patent office in a counterpart foreign application and, to the knowledge of the undersigned, having made reasonable inquiry, was known to any individual designated in 37 CFR §1.56(c) more than three months prior to the filing of this statement.

DEPOSIT ACCOUNT

■ Please charge any additional fees for the papers being filed herewith and for which no payment is enclosed herewith, or credit any overpayment to deposit account number **15-0030**.

Respectfully submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, L.L.P.

Richard L. Treanor
Registration No. 36,379

Paul J. Killos
Registration No. 58,014

Customer Number
22850
Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 02/12)

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE
United States Patent and Trademark Office
Address: COMMISSIONER FOR PATENTS
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
www.uspto.gov

U.S. APPLICATION NUMBER NO.	FIRST NAMED APPLICANT	ATTY. DOCKET NO.
13/807,831	Markus Ungerank	408824US99PCT

22850
OBLON, SPIVAK, MCCLELLAND MAIER & NEUSTADT, L.L.P.
1940 DUKE STREET
ALEXANDRIA, VA 22314

INTERNATIONAL APPLICATION NO.	
PCT/EP2011/058636	
I.A. FILING DATE	PRIORITY DATE
05/26/2011	07/01/2010

CONFIRMATION NO. 4142
371 ACCEPTANCE LETTER

OC000000058691241

Date Mailed: 01/18/2013

NOTICE OF ACCEPTANCE OF APPLICATION UNDER 35 U.S.C 371 AND 37 CFR 1.495

The applicant is hereby advised that the United States Patent and Trademark Office in its capacity as a Designated / Elected Office (37 CFR 1.495), has determined that the above identified international application has met the requirements of 35 U.S.C. 371, and is ACCEPTED for national patentability examination in the United States Patent and Trademark Office.

The United States Application Number assigned to the application is shown above and the relevant dates are:

12/31/2012	12/31/2012
DATE OF RECEIPT OF 35 U.S.C. 371(c)(1), (c)(2) and (c)(4) REQUIREMENTS	DATE OF COMPLETION OF ALL 35 U.S.C. 371 REQUIREMENTS

A Filing Receipt (PTO-103X) will be issued for the present application in due course. **THE DATE APPEARING ON THE FILING RECEIPT AS THE " FILING DATE" IS THE DATE ON WHICH THE LAST OF THE 35 U.S.C. 371 (c)(1), (c)(2) and (c)(4) REQUIREMENTS HAS BEEN RECEIVED IN THE OFFICE. THIS DATE IS SHOWN ABOVE.** *The filing date of the above identified application is the international filing date of the international application (Article 11(3) and 35 U.S.C. 363).* Once the Filing Receipt has been received, send all correspondence to the Group Art Unit designated thereon.

The following items have been received:

- Copy of the International Application filed on 12/31/2012
- English Translation of the IA filed on 12/31/2012
- Copy of the International Search Report filed on 12/31/2012
- Preliminary Amendments filed on 12/31/2012
- Information Disclosure Statements filed on 12/31/2012
- Oath or Declaration filed on 12/31/2012
- Request for Immediate Examination filed on 12/31/2012
- U.S. Basic National Fees filed on 12/31/2012
- Assignee Statement for PGPUB filed on 12/31/2012
- Priority Documents filed on 12/31/2012
- Non-English Language Application filed on 12/31/2012

FORM PCT/DO/EO/903 (371 Acceptance Notice)

Applicant is reminded that any communications to the United States Patent and Trademark Office must be mailed to the address given in the heading and include the U.S. application no. shown above (37 CFR 1.5)

DIAN S GORDON

Telephone: (571) 272-3915

FORM PCT/DO/EO/903 (371 Acceptance Notice)

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE
United States Patent and Trademark Office
Address: COMMISSIONER FOR PATENTS
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
www.uspto.gov

APPLICATION NUMBER	FILING or 371(c) DATE	GRP ART UNIT	FIL FEE REC'D	ATTY.DOCKET.NO	TOT CLAIMS	IND CLAIMS
13/807,831	12/31/2012		1140	408824US99PCT	20	1

CONFIRMATION NO. 4142

22850
OBLON, SPIVAK, MCCLELLAND MAIER & NEUSTADT, L.L.P.
1940 DUKE STREET
ALEXANDRIA, VA 22314

FILING RECEIPT

OC000000058691240

Date Mailed: 01/18/2013

Receipt is acknowledged of this non-provisional patent application. The application will be taken up for examination in due course. Applicant will be notified as to the results of the examination. Any correspondence concerning the application must include the following identification information: the U.S. APPLICATION NUMBER, FILING DATE, NAME OF APPLICANT, and TITLE OF INVENTION. Fees transmitted by check or draft are subject to collection. Please verify the accuracy of the data presented on this receipt. **If an error is noted on this Filing Receipt, please submit a written request for a Filing Receipt Correction. Please provide a copy of this Filing Receipt with the changes noted thereon. If you received a "Notice to File Missing Parts" for this application, please submit any corrections to this Filing Receipt with your reply to the Notice. When the USPTO processes the reply to the Notice, the USPTO will generate another Filing Receipt incorporating the requested corrections**

Inventor(s)

Markus Ungerank, Perg, AUSTRIA;
Goetz Baumgarten, Haltern am See, GERMANY;
Markus Priske, Duesseldorf, GERMANY;
Harald Roegl, Wallern an der Trattnach, AUSTRIA;

Applicant(s)

Markus Ungerank, Perg, AUSTRIA;
Goetz Baumgarten, Haltern am See, GERMANY;
Markus Priske, Duesseldorf, GERMANY;
Harald Roegl, Wallern an der Trattnach, AUSTRIA;

Assignment For Published Patent Application

Evonik Fibres Gmbh, Schoerfling am Attersee, AUSTRIA

Power of Attorney: The patent practitioners associated with Customer Number 22850

Domestic Priority data as claimed by applicant

This application is a 371 of PCT/EP2011/058636 05/26/2011

Foreign Applications (You may be eligible to benefit from the **Patent Prosecution Highway** program at the USPTO. Please see http://www.uspto.gov for more information.)
EUROPEAN PATENT OFFICE (EPO) 10168121.1 07/01/2010

If Required, Foreign Filing License Granted: 01/15/2013
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is **US 13/807,831**
Projected Publication Date: 04/25/2013

Non-Publication Request: No

Early Publication Request: No

Title

PROCESS FOR SEPARATION OF GASES

Preliminary Class

PROTECTING YOUR INVENTION OUTSIDE THE UNITED STATES

Since the rights granted by a U.S. patent extend only throughout the territory of the United States and have no effect in a foreign country, an inventor who wishes patent protection in another country must apply for a patent in a specific country or in regional patent offices. Applicants may wish to consider the filing of an international application under the Patent Cooperation Treaty (PCT). An international (PCT) application generally has the same effect as a regular national patent application in each PCT-member country. The PCT process **simplifies** the filing of patent applications on the same invention in member countries, but **does not result** in a grant of "an international patent" and does not eliminate the need of applicants to file additional documents and fees in countries where patent protection is desired.

Almost every country has its own patent law, and a person desiring a patent in a particular country must make an application for patent in that country in accordance with its particular laws. Since the laws of many countries differ in various respects from the patent law of the United States, applicants are advised to seek guidance from specific foreign countries to ensure that patent rights are not lost prematurely.

Applicants also are advised that in the case of inventions made in the United States, the Director of the USPTO must issue a license before applicants can apply for a patent in a foreign country. The filing of a U.S. patent application serves as a request for a foreign filing license. The application's filing receipt contains further information and guidance as to the status of applicant's license for foreign filing.

Applicants may wish to consult the USPTO booklet, "General Information Concerning Patents" (specifically, the section entitled "Treaties and Foreign Patents") for more information on timeframes and deadlines for filing foreign patent applications. The guide is available either by contacting the USPTO Contact Center at 800-786-9199, or it can be viewed on the USPTO website at http://www.uspto.gov/web/offices/pac/doc/general/index.html.

For information on preventing theft of your intellectual property (patents, trademarks and copyrights), you may wish to consult the U.S. Government website, http://www.stopfakes.gov. Part of a Department of Commerce initiative, this website includes self-help "toolkits" giving innovators guidance on how to protect intellectual property in specific countries such as China, Korea and Mexico. For questions regarding patent enforcement issues, applicants may call the U.S. Government hotline at 1-866-999-HALT (1-866-999-4158).

LICENSE FOR FOREIGN FILING UNDER

Title 35, United States Code, Section 184

Title 37, Code of Federal Regulations, 5.11 & 5.15

GRANTED

The applicant has been granted a license under 35 U.S.C. 184, if the phrase "IF REQUIRED, FOREIGN FILING LICENSE GRANTED" followed by a date appears on this form. Such licenses are issued in all applications where

the conditions for issuance of a license have been met, regardless of whether or not a license may be required as set forth in 37 CFR 5.15. The scope and limitations of this license are set forth in 37 CFR 5.15(a) unless an earlier license has been issued under 37 CFR 5.15(b). The license is subject to revocation upon written notification. The date indicated is the effective date of the license, unless an earlier license of similar scope has been granted under 37 CFR 5.13 or 5.14.

This license is to be retained by the licensee and may be used at any time on or after the effective date thereof unless it is revoked. This license is automatically transferred to any related applications(s) filed under 37 CFR 1.53(d). This license is not retroactive.

The grant of a license does not in any way lessen the responsibility of a licensee for the security of the subject matter as imposed by any Government contract or the provisions of existing laws relating to espionage and the national security or the export of technical data. Licensees should apprise themselves of current regulations especially with respect to certain countries, of other agencies, particularly the Office of Defense Trade Controls, Department of State (with respect to Arms, Munitions and Implements of War (22 CFR 121-128)); the Bureau of Industry and Security, Department of Commerce (15 CFR parts 730-774); the Office of Foreign AssetsControl, Department of Treasury (31 CFR Parts 500+) and the Department of Energy.

NOT GRANTED

No license under 35 U.S.C. 184 has been granted at this time, if the phrase "IF REQUIRED, FOREIGN FILING LICENSE GRANTED" DOES NOT appear on this form. Applicant may still petition for a license under 37 CFR 5.12, if a license is desired before the expiration of 6 months from the filing date of the application. If 6 months has lapsed from the filing date of this application and the licensee has not received any indication of a secrecy order under 35 U.S.C. 181, the licensee may foreign file the application pursuant to 37 CFR 5.15(b).

SelectUSA

The United States represents the largest, most dynamic marketplace in the world and is an unparalleled location for business investment, innovation, and commercialization of new technologies. The U.S. offers tremendous resources and advantages for those who invest and manufacture goods here. Through SelectUSA, our nation works to promote and facilitate business investment. SelectUSA provides information assistance to the international investor community; serves as an ombudsman for existing and potential investors; advocates on behalf of U.S. cities, states, and regions competing for global investment; and counsels U.S. economic development organizations on investment attraction best practices. To learn more about why the United States is the best country in the world to develop technology, manufacture products, deliver services, and grow your business, visit http://www.SelectUSA.gov or call +1-202-482-6800.

PATENT APPLICATION FEE DETERMINATION RECORD

Substitute for Form PTO-875

Application or Docket Number: 13/807,831

APPLICATION AS FILED - PART I

FOR	(Column 1) NUMBER FILED	(Column 2) NUMBER EXTRA	SMALL ENTITY RATE($)	SMALL ENTITY FEE($)	OR	OTHER THAN SMALL ENTITY RATE($)	OTHER THAN SMALL ENTITY FEE($)
BASIC FEE (37 CFR 1.16(a), (b), or (c))	N/A	N/A	N/A			N/A	390
SEARCH FEE (37 CFR 1.16(k), (i), or (m))	N/A	N/A	N/A			N/A	500
EXAMINATION FEE (37 CFR 1.16(o), (p), or (q))	N/A	N/A	N/A			N/A	250
TOTAL CLAIMS (37 CFR 1.16(i))	20 minus 20 =	*			OR	x 62 =	0.00
INDEPENDENT CLAIMS (37 CFR 1.16(h))	1 minus 3 =	*				x 250 =	0.00
APPLICATION SIZE FEE (37 CFR 1.16(s))	If the specification and drawings exceed 100 sheets of paper, the application size fee due is $310 ($155 for small entity) for each additional 50 sheets or fraction thereof. See 35 U.S.C. 41(a)(1)(G) and 37 CFR 1.16(s).						0.00
MULTIPLE DEPENDENT CLAIM PRESENT (37 CFR 1.16(j))							0.00
* If the difference in column 1 is less than zero, enter "0" in column 2.			TOTAL			TOTAL	1140

APPLICATION AS AMENDED - PART II

		(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	SMALL ENTITY RATE($)	SMALL ENTITY ADDITIONAL FEE($)	OR	OTHER THAN SMALL ENTITY RATE($)	OTHER THAN SMALL ENTITY ADDITIONAL FEE($)
AMENDMENT A	Total (37 CFR 1.16(i))	*	Minus	**	=	x =		OR	x =	
	Independent (37 CFR 1.16(h))	*	Minus	***	=	x =		OR	x =	
	Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))									
	FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))							OR		
						TOTAL ADD'L FEE		OR	TOTAL ADD'L FEE	

		(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	RATE($)	ADDITIONAL FEE($)	OR	RATE($)	ADDITIONAL FEE($)
AMENDMENT B	Total (37 CFR 1.16(i))	*	Minus	**	=	x =		OR	x =	
	Independent (37 CFR 1.16(h))	*	Minus	***	=	x =		OR	x =	
	Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))									
	FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))							OR		
						TOTAL ADD'L FEE		OR	TOTAL ADD'L FEE	

* If the entry in column 1 is less than the entry in column 2, write "0" in column 3.
** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 20, enter "20".
*** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 3, enter "3".
The "Highest Number Previously Paid For" (Total or Independent) is the highest found in the appropriate box in column 1.

MULTIPLE DEPENDENT CLAIM FEE CALCULATION SHEET

Substitute for Form PTO-1360
(For use with Form PTO/SB/06)

Application Number	Filing Date
13807831	

Applicant(s) Markus UNGERANK

* May be used for additional claims or amendments

CLAIMS	AS FILED		AFTER FIRST AMENDMENT		AFTER SECOND AMENDMENT	
	Indep	Depend	Indep	Depend	Indep	Depend
1	1		1			
2		1		1		
3		2		1		
4		2		1		
5		(1)		1		
6		(1)		1		
7		(1)		1		
8		(1)		1		
9		(1)		1		
10		(1)		1		
11		(1)		1		
12		(1)		1		
13		(1)		1		
14		(1)		1		
15		(1)		1		
16		(1)		1		
17		(1)		1		
18		(1)		1		
19				1		
20				1		
21						
22						
23						
24						
25						
26						
27						
28						
29						
30						
31						
32						
33						
34						
35						
36						
37						
38						
39						
40						
41						
42						
43						
44						
45						
46						
47						
48						
49						
50						
Total Indep	1		1		0	
Total Depend	19	↵	19	↵	0	↵
Total Claims	20		20		0	

	*		*		*	
	Indep	Depend	Indep	Depend	Indep	Depend
51						
52						
53						
54						
55						
56						
57						
58						
59						
60						
61						
62						
63						
64						
65						
66						
67						
68						
69						
70						
71						
72						
73						
74						
75						
76						
77						
78						
79						
80						
81						
82						
83						
84						
85						
86						
87						
88						
89						
90						
91						
92						
93						
94						
95						
96						
97						
98						
99						
100						

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE
United States Patent and Trademark Office
Address: COMMISSIONER FOR PATENTS
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
www.uspto.gov

APPLICATION NUMBER	FILING OR 371(C) DATE	FIRST NAMED APPLICANT	ATTY. DOCKET NO./TITLE
13/807,831	12/31/2012	Markus Ungerank	408824US99PCT

CONFIRMATION NO. 4142

22850
OBLON, SPIVAK, MCCLELLAND MAIER & NEUSTADT, L.L.P.
1940 DUKE STREET
ALEXANDRIA, VA 22314

PUBLICATION NOTICE

OC000000060716677

Title:PROCESS FOR SEPARATION OF GASES

Publication No.US-2013-0098242-A1
Publication Date:04/25/2013

NOTICE OF PUBLICATION OF APPLICATION

The above-identified application will be electronically published as a patent application publication pursuant to 37 CFR 1.211, et seq. The patent application publication number and publication date are set forth above.

The publication may be accessed through the USPTO's publically available Searchable Databases via the Internet at www.uspto.gov. The direct link to access the publication is currently http://www.uspto.gov/patft/.

The publication process established by the Office does not provide for mailing a copy of the publication to applicant. A copy of the publication may be obtained from the Office upon payment of the appropriate fee set forth in 37 CFR 1.19(a)(1). Orders for copies of patent application publications are handled by the USPTO's Office of Public Records. The Office of Public Records can be reached by telephone at (703) 308-9726 or (800) 972-6382, by facsimile at (703) 305-8759, by mail addressed to the United States Patent and Trademark Office, Office of Public Records, Alexandria, VA 22313-1450 or via the Internet.

In addition, information on the status of the application, including the mailing date of Office actions and the dates of receipt of correspondence filed in the Office, may also be accessed via the Internet through the Patent Electronic Business Center at www.uspto.gov using the public side of the Patent Application Information and Retrieval (PAIR) system. The direct link to access this status information is currently http://pair.uspto.gov/. Prior to publication, such status information is confidential and may only be obtained by applicant using the private side of PAIR.

Further assistance in electronically accessing the publication, or about PAIR, is available by calling the Patent Electronic Business Center at 1-866-217-9197.

Office of Data Managment, Application Assistance Unit (571) 272-4000, or (571) 272-4200, or 1-888-786-0101

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE
United States Patent and Trademark Office
Address: COMMISSIONER FOR PATENTS
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
www.uspto.gov

APPLICATION NO.	FILING DATE	FIRST NAMED INVENTOR	ATTORNEY DOCKET NO.	CONFIRMATION NO.
13/807,831	12/31/2012	Markus Ungerank	408824US99PCT	4142

22850 7590 06/02/2014

OBLON, SPIVAK, MCCLELLAND MAIER & NEUSTADT, L.L.P.
1940 DUKE STREET
ALEXANDRIA, VA 22314

EXAMINER	
GREENE, JASON M	
ART UNIT	**PAPER NUMBER**
1772	

NOTIFICATION DATE	DELIVERY MODE
06/02/2014	ELECTRONIC

Please find below and/or attached an Office communication concerning this application or proceeding.

The time period for reply, if any, is set in the attached communication.

Notice of the Office communication was sent electronically on above-indicated "Notification Date" to the following e-mail address(es):

patentdocket@oblon.com
oblonpat@oblon.com
ahudgens@oblon.com

PTOL-90A (Rev. 04/07)

Office Action Summary	Application No. 13/807,831	Applicant(s) UNGERANK ET AL.	
	Examiner Jason M. Greene	Art Unit 1772	AIA (First Inventor to File) Status No

-- The MAILING DATE of this communication appears on the cover sheet with the correspondence address --

Period for Reply

A SHORTENED STATUTORY PERIOD FOR REPLY IS SET TO EXPIRE 3 MONTHS FROM THE MAILING DATE OF THIS COMMUNICATION.

- Extensions of time may be available under the provisions of 37 CFR 1.136(a). In no event, however, may a reply be timely filed after SIX (6) MONTHS from the mailing date of this communication.
- If NO period for reply is specified above, the maximum statutory period will apply and will expire SIX (6) MONTHS from the mailing date of this communication.
- Failure to reply within the set or extended period for reply will, by statute, cause the application to become ABANDONED (35 U.S.C. § 133). Any reply received by the Office later than three months after the mailing date of this communication, even if timely filed, may reduce any earned patent term adjustment. See 37 CFR 1.704(b).

Status

1)☐ Responsive to communication(s) filed on _____.

☐ A declaration(s)/affidavit(s) under **37 CFR 1.130(b)** was/were filed on _____.

2a)☐ This action is **FINAL**. 2b)☒ This action is non-final.

3)☐ An election was made by the applicant in response to a restriction requirement set forth during the interview on _____; the restriction requirement and election have been incorporated into this action.

4)☐ Since this application is in condition for allowance except for formal matters, prosecution as to the merits is closed in accordance with the practice under *Ex parte Quayle*, 1935 C.D. 11, 453 O.G. 213.

Disposition of Claims*

5)☒ Claim(s) 1-20 is/are pending in the application.

5a) Of the above claim(s) _____ is/are withdrawn from consideration.

6)☐ Claim(s) _____ is/are allowed.

7)☒ Claim(s) 1-20 is/are rejected.

8)☐ Claim(s) _____ is/are objected to.

9)☐ Claim(s) _____ are subject to restriction and/or election requirement.

* If any claims have been determined allowable, you may be eligible to benefit from the **Patent Prosecution Highway** program at a participating intellectual property office for the corresponding application. For more information, please see http://www.uspto.gov/patents/init_events/pph/index.jsp or send an inquiry to PPHfeedback@uspto.gov.

Application Papers

10)☐ The specification is objected to by the Examiner.

11)☒ The drawing(s) filed on 31 December 2012 is/are: a)☒ accepted or b)☐ objected to by the Examiner.

Applicant may not request that any objection to the drawing(s) be held in abeyance. See 37 CFR 1.85(a).

Replacement drawing sheet(s) including the correction is required if the drawing(s) is objected to. See 37 CFR 1.121(d).

Priority under 35 U.S.C. § 119

12)☒ Acknowledgment is made of a claim for foreign priority under 35 U.S.C. § 119(a)-(d) or (f).

Certified copies:

a)☒ All b)☐ Some** c)☐ None of the:

1.☒ Certified copies of the priority documents have been received.

2.☐ Certified copies of the priority documents have been received in Application No. _____.

3.☐ Copies of the certified copies of the priority documents have been received in this National Stage application from the International Bureau (PCT Rule 17.2(a)).

** See the attached detailed Office action for a list of the certified copies not received.

Attachment(s)

1) ☒ Notice of References Cited (PTO-892)

2) ☒ Information Disclosure Statement(s) (PTO/SB/08a and/or PTO/SB/08b) Paper No(s)/Mail Date 12/31/12; 1/15/13.

3) ☐ Interview Summary (PTO-413) Paper No(s)/Mail Date. _____.

4) ☐ Other: _____.

DETAILED ACTION

1. The present application is being examined under the pre-AIA first to invent provisions.

Claim Rejections - 35 USC § 102

2. The following is a quotation of the appropriate paragraphs of pre-AIA 35 U.S.C. 102 that form the basis for the rejections under this section made in this Office action:

> A person shall be entitled to a patent unless –
>
> (b) the invention was patented or described in a printed publication in this or a foreign country or in public use or on sale in this country, more than one year prior to the date of application for patent in the United States.

Claim Rejections - 35 USC § 103

3. The following is a quotation of pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) which forms the basis for all obviousness rejections set forth in this Office action:

> (a) A patent may not be obtained though the invention is not identically disclosed or described as set forth in section 102 of this title, if the differences between the subject matter sought to be patented and the prior art are such that the subject matter as a whole would have been obvious at the time the invention was made to a person having ordinary skill in the art to which said subject matter pertains. Patentability shall not be negatived by the manner in which the invention was made.

4. Claims 1, 2, 6, 8, 9, 11-14, 17, 19 and 20 are rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 102(b) as anticipated by Baker et al. (US 6,565,626 B1) or, in the alternative, under pre-

AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1).

Claim 10 is rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1).

Baker et al. discloses an apparatus for separating gases comprising membrane separation stages (211,212,213) and a compressor (210), wherein the membrane separation stages comprise a feed stream separation stage (211), a retentate separation stage (212) and a permeate separation stage (213), wherein the feed stream separation stage (211) is configured to separate a feed stream (202) comprising at least two components into a first permeate stream (204) and a first retentate stream (205), the retentate separation stage (212) is configured to divide the first retentate stream (205) into a second permeate stream (206) and a second retentate stream (207), and the permeate separation stage (213) is configured to divide the first permeate stream (204) into a third retentate stream (209) and a third permeate stream (208), wherein the second permeate stream (206) is supplied to the feed stream and the second retentate stream (207) is withdrawn as a product, wherein the third retentate stream (209) is supplied to the feed stream and the third permeate stream (208) is withdrawn as a product, wherein the apparatus is configured not to subject the first permeate stream (204) to any recompression (see col. 22, lines 21-33), wherein the feed stream separation stage comprises a gas separation membrane module having a mixed gas

selectivity of over 30 and 35 (e.g. 40-50 for Cytop ® for carbon dioxide/methane at certain temperatures, see Fig. 13, col. 8, lines 56-59 and col. 16, lines 8-18), wherein the apparatus is configured a gas volume in the recycled second permeate stream (206) and in the third retentate stream (207) is capable of totaling less than about 60% by volume of a crude gas stream (201), wherein the apparatus is configured to be capable of increasing a concentration of at least one permeate gas (e.g. nitrogen) of the feed stream separation stage (211), after recycling of the two streams (206,209), in the feed stream (202) compared to a concentration in the crude gas stream (201) (see e.g. Table 6 at col. 29-30), wherein the apparatus is configured to pass the second permeate stream (209) and the third retentate stream (209) along a suction side of the compressor (210), wherein at least one of the membrane separation stages comprises a gas separation membrane module comprising hollow fiber or flat sheet membranes (see col. 18, lines 37-41), wherein a separation active layer of a membrane comprises a material that is an amorphous or semi-crystalline polymer including polyimides (see Table 1 at col. 2, col. 13, line 51 to col. 15, line 1 and col. 16, lines 19-32) at Fig. 2, Table 1 at col. 2, col. 13, line 51 to col. 18, line 43 and col. 22, line 21 to col. 23, line 43.

With regard to the selectivity of the membrane, the Examiner notes that the claims are silent as to any specific gas pairs used to determine the selectivity as well as any operating parameters (e.g. temperature) for evaluating the selectivity. Thus in the absence of such limitations, a membrane having a selectivity of 30 or more for any two gases at any conditions reads on the claim limitation.

With regard to the volume of the recycled gas compared to the crude gas and the increase in concentration in the feed stream of a gas permeated in the feed stage, lintended use has been continuously held not to be germane to determining the patentability of the apparatus, In re Finsterwalder, 168 USPQ 530 (CCPA 1971). Purpose to which apparatus is to be put and expression relating apparatus to contents thereof during intended operation are not significant in determining patentability of an apparatus claim, Ex parte Thibault, 164 USPQ 666 (PTO Board of Appeals 1969). Inclusion of the material worked upon by a structure being claimed does not impart patentability to the claims, In re Otto et al., 136 USPQ 458 (CCPA 1963). A recitation with respect to the manner in which a claimed apparatus is intended to be employed does not differentiate the claimed apparatus from a prior art apparatus satisfying the structural limitations of that claimed, Ex parte Masham, 2 USPQ 2d 1647 (PTO Board of Appeals 1987).

Alternatively, and with regard to claim 10, Ekiner et al. discloses a membrane system for treating natural gas wherein the membrane is made from the same polymer as instantly claimed at paragraphs [0002], [0011] and [0060]-[0070].

It would have been obvious to one of ordinary skill in the art at the time the invention was made to incorporate the membrane material of Ekiner et al, into the system of Baker et al. to provide a membrane having a high resistance to plasticization and a good balance between, superior mechanical properties and a good balance between selectivity and productivity, as suggested by Ekiner et al. at paragraph [0011].

Since the Ekiner et al. membrane is made from the same material as instantly claimed it will inherently exhibit the recited selectivity.

With regard to claims 11 and 12, the Examiner notes that the claims recite an intended use of the apparatus. Since the prior art structure is capable of performing the intended use, the claim limitations are met.

With regard to claims 13, 14, 17, Baker et al. discloses a process for separating a gas mixture comprising separating the gas mixture with the apparatus, wherein the gas mixture is a crude natural gas, wherein a driving force is a partial pressure differential between a retentate side and a permeate side in the respective membrane separation stages and the partial pressure differential is generated by a compressor (210) in the feed stream.

5. Claims 3 and 4 are rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Baker et al. (US 6,425,267 B1) or, in the alternative, under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1), and further in view of Baker et al. (US 6,425,267 B1).

With regard to claim 3, Baker et al. '626 does not teach the compressor being a multistage compressor. However, Baker et al. 267 teaches a similar system wherein a multistage compressor is used at Fig. 4 and col. 20, lines 24-35.

It would have been obvious to one of ordinary skill in the art at the time the invention was made to incorporate the multistage compressor of Baker '267 into the systems of Baker et al. '626 or Baker et al. '626 and Ekiner et al. for convenience (as suggested by Baker et al. '267) or to improve efficiency or allow for intercooling.

With regard to claim 4, Baker et al. '267 also teaches introducing streams into the compressor between stages depending on pressures, and selecting the appropriate stage to introduce the recycle streams would be within the scope of one having ordinary skill in the art.

6. Claims 5, 15 and 16 are rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Franek (US 2004/0168570 A1) or, in the alternative, under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1), and further in view of Franek (US 2004/0168570 A1).

Baker et al. does not teach a pressure reducing valve, but Franek teaches a similar system using such a valve (3b) to lower the pressure of a retentate stream at Fig. 7 and paragraphs [0015] and [0039].

It would have been obvious to one of ordinary skill in the art at the time the invention was made to incorporate the pressure reducing valve of Franek into the systems of Baker et al. '626 or Baker et al. '626 and Ekiner et al. to lower the pressure of a retentate stream if it's too high, as suggested by Franek. This applies especially to the second retentate stream (207) of Baker et al. '626 which is not permeated through a membrane and is redirected to the natural gas stream, but also applies to all three retentate streams.

With additional regard to claims 15 and 16, reducing the pressure of the third retentate stream (209) will subsequently adjust the pressure on the permeate side of the feed stream separation stage. Likewise, reducing the pressure of the second retentate stream (207) will subsequently adjust the pressure of the first retentate stream (205). Selecting the degree of pressure reduction would be within the scope of one having ordinary skill, especially in the absence of unexpected or unobvious results.

7. Claim 7 is rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Baker et al. (US 2011/0167821 A1) or, in the alternative, under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1), and further in view of Baker et al. (US 2011/0167821 A1).

Baker et al. '626 does not teach at least one of the membrane separation stages comprising a plurality of modules in series or parallel, but Baker et al. '821 teaches a similar system comprising a membrane stage comprising a plurality of modules in series

or parallel at paragraph [0083]. It would have been obvious to use multiple modules in series for enhanced separation or in parallel for greater capacity or to allow the system to continue to operate when one module is being serviced.

8. Claim 18 is rejected under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Baker et al. (US 6,648,944 B1) or, in the alternative, under pre-AIA 35 U.S.C. 103(a) as obvious over Baker et al. (US 6,565,626 B1) in view of Ekiner et al. (US 2006/0196355 A1), and further in view of Baker et al. (US 6,648,944 B1).

Baker et al. '626 does not teach the driving force comprising a reduced pressure on the permeate side of the membrane, but Baker et al. 944 teaches a similar system using a vacuum pump to generate a reduced pressure as at least a part of the driving force at col. 5, lines 16-21. One having ordinary skill would have recognized that the vacuum pump could be added to enhance driving force.

Conclusion

9. Any inquiry concerning this communication or earlier communications from the examiner should be directed to Jason M. Greene whose telephone number is (571)272-1157. The examiner can normally be reached on Monday - Friday (8:00 AM to 4:30 PM).

If attempts to reach the examiner by telephone are unsuccessful, the examiner's supervisor, Insuk Bullock can be reached on (571) 272-5954. The fax phone number for the organization where this application or proceeding is assigned is 571-273-8300.

Information regarding the status of an application may be obtained from the Patent Application Information Retrieval (PAIR) system. Status information for published applications may be obtained from either Private PAIR or Public PAIR. Status information for unpublished applications is available through Private PAIR only. For more information about the PAIR system, see http://pair-direct.uspto.gov. Should you have questions on access to the Private PAIR system, contact the Electronic Business Center (EBC) at 866-217-9197 (toll-free). If you would like assistance from a USPTO Customer Service Representative or access to the automated information system, call 800-786-9199 (IN USA OR CANADA) or 571-272-1000.

/Jason M. Greene/
Primary Examiner, Art Unit 1772

jmg
May 27, 2014

Notice of References Cited	Application/Control No. 13/807,831	Applicant(s)/Patent Under Reexamination UNGERANK ET AL.	
	Examiner Jason M. Greene	Art Unit 1772	Page 1 of 1

U.S. PATENT DOCUMENTS

*		Document Number Country Code-Number-Kind Code	Date MM-YYYY	Name	Classification
*	A	US-6,565,626 B1	05-2003	Baker et al.	95/51
*	B	US-2006/0196355 A1	09-2006	Ekiner et al.	095/045
*	C	US-6,425,267 B1	07-2002	Baker et al.	95/47
*	D	US-2004/0168570 A1	09-2004	Franek, Johann	095/050
*	E	US-2011/0167821 A1	07-2011	Baker et al.	96/9
*	F	US-6,648,944 B1	11-2003	Baker et al.	95/51
	G	US-			
	H	US-			
	I	US-			
	J	US-			
	K	US-			
	L	US-			
	M	US-			

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

*		Document Number Country Code-Number-Kind Code	Date MM-YYYY	Country	Name	Classification
	N					
	O					
	P					
	Q					
	R					
	S					
	T					

NON-PATENT DOCUMENTS

*		Include as applicable: Author, Title Date, Publisher, Edition or Volume, Pertinent Pages)
	U	
	V	
	W	
	X	

*A copy of this reference is not being furnished with this Office action. (See MPEP § 707.05(a).)
Dates in MM-YYYY format are publication dates. Classifications may be US or foreign.

Index of Claims	Application/Control No.	Applicant(s)/Patent Under Reexamination
	13807831	UNGERANK ET AL.
	Examiner	Art Unit
	JASON M GREENE	1772

✓	Rejected	-	Cancelled	N	Non-Elected	A	Appeal
=	Allowed	÷	Restricted	I	Interference	O	Objected

☐ Claims renumbered in the same order as presented by applicant ☐ CPA ☐ T.D. ☐ R.1.47

CLAIM		DATE								
Final	Original	05/27/2014								
	1	✓								
	2	✓								
	3	✓								
	4	✓								
	5	✓								
	6	✓								
	7	✓								
	8	✓								
	9	✓								
	10	✓								
	11	✓								
	12	✓								
	13	✓								
	14	✓								
	15	✓								
	16	✓								
	17	✓								
	18	✓								
	19	✓								
	20	✓								

EAST Search History

EAST Search History (Prior Art)

Ref #	Hits	Search Query	DBs	Default Operator	Plurals	Time Stamp
L2	123	96/9.ccls. and vacuum	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 12:17
L3	8	96/4-14.ccls. and parallel with modules with servic$5	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 12:29
L7	76	b01d53/226.cpc. and (three third) with (permeate$1 retentate$1)	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 13:30
S2	54	96/9.ccls. and (three third) with stage$1	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/22 08:32
S4	71	95/47,51.ccls. and (three third) with stage$1	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/22 13:25
S5	91	95/47,51.ccls. and (three third) with (permeate$1 retentate$1)	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/22 13:29
S6	30	(96/4-14 95/45-56).ccls. and multistage with compress$5	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/23 10:59
S12	161	(96/4-14 95/45-56).ccls. and pressure with reduc$5 with valve$1	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 08:10
S13	23	(96/4-14 95/45-56).ccls. and multistage$1 with compressor$1	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 08:41
S14	16	(96/4-14 95/45-56).ccls. and stage$1 with plural	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 10:50
S16	11	(96/4-14 95/45-56).ccls. and membrane$1 with parallel with capacity	US-PGPUB; USPAT	OR	OFF	2014/05/27 10:51

5/27/2014 1:33:20 PM
C:\Users\jgreene1\Documents\EAST\Workspaces\13807831.wsp

Form PTO 1449 (Modified)	U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE PATENT AND TRADEMARK OFFICE	ATTY DOCKET NO.	SERIAL NO.
		408824US99PCT	13/807,831
LIST OF REFERENCES CITED BY APPLICANT		APPLICANT	
		Markus UNGERANK, et al.	
		FILING DATE	GROUP
		December 31, 2012	

U.S. PATENT DOCUMENTS

EXAMINER INITIAL		DOCUMENT NUMBER	DATE	NAME	CLASS	SUB CLASS	FILING DATE IF APPROPRIATE
	AA						
	AB						
	AC						
	AD						
	AE						
	AF						
	AG						
	AH						
	AI						
	AJ						
	AK						
	AL						
	AM						
	AN						

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

		DOCUMENT NUMBER	DATE	COUNTRY	TRANSLATION YES	TRANSLATION NO
	AO					
	AP					
	AQ					
	AR					
	AS					
	AT					
	AU					
	AV					

OTHER REFERENCES (Including Author, Title, Date, Pertinent Pages, etc.)

/JMG/	AW	Franz Borgmann, "Modellierung und Optimierung von Gaspermeationsanlagen", Diplomaufgabe, June 20, 1990, 206 pages (with English-language translation)
	AX	
	AY	
	AZ	☐ Additional References sheet(s) attached

Examiner	/Jason M. Greene/	Date Considered	05/27/2014

*Examiner: Initial if reference is considered, whether or not citation is in conformance with MPEP 609; Draw line through citation if not in conformance and not considered. Include copy of this form with next communication to applicant.

ALL REFERENCES CONSIDERED EXCEPT WHERE LINED THROUGH. /JMG/

Search Notes	Application/Control No.	Applicant(s)/Patent Under Reexamination
	13807831	UNGERANK ET AL.
	Examiner	Art Unit
	JASON M GREENE	1772

CPC- SEARCHED		
Symbol	Date	Examiner

CPC COMBINATION SETS - SEARCHED		
Symbol	Date	Examiner

US CLASSIFICATION SEARCHED			
Class	Subclass	Date	Examiner
95	45, 47, 51, 55	5/27/14	JMG
96	4, 7, 9, 10, 14	5/27/14	JMG

SEARCH NOTES		
Search Notes	Date	Examiner
PALM inventor name search	5/27/14	JMG
EAST text search	5/27/14	JMG

INTERFERENCE SEARCH			
US Class/ CPC Symbol	US Subclass / CPC Group	Date	Examiner

UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

UNITED STATES DEPARTMENT OF COMMERCE
United States Patent and Trademark Office
Address: COMMISSIONER FOR PATENTS
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
www.uspto.gov

BIB DATA SHEET

CONFIRMATION NO. 4142

SERIAL NUMBER	FILING or 371(c) DATE RULE	CLASS	GROUP ART UNIT	ATTORNEY DOCKET NO.
13/807,831	12/31/2012	095	1772	408824US99PCT

APPLICANTS

INVENTORS

Markus Ungerank, Perg, AUSTRIA;
Goetz Baumgarten, Haltern am See, GERMANY;
Markus Priske, Duesseldorf, GERMANY;
Harald Roegl, Wallern an der Trattnach, AUSTRIA;

**** CONTINUING DATA ***************************

This application is a 371 of PCT/EP2011/058636 05/26/2011

**** FOREIGN APPLICATIONS ***************************

EUROPEAN PATENT OFFICE (EPO) 10168121.1 07/01/2010

**** IF REQUIRED, FOREIGN FILING LICENSE GRANTED ****

01/15/2013

Foreign Priority claimed	35 USC 119(a-d) conditions met	Verified and Acknowledged	Met after Allowance	STATE OR COUNTRY	SHEETS DRAWINGS	TOTAL CLAIMS	INDEPENDENT CLAIMS
☑ Yes ☐ No	☑ Yes ☐ No	/JASON M GREENE/ Examiner's Signature	☐ Initials	AUSTRIA	5	20	1

ADDRESS

OBLON, SPIVAK, MCCLELLAND MAIER & NEUSTADT, L.L.P.
1940 DUKE STREET
ALEXANDRIA, VA 22314
UNITED STATES

TITLE

PROCESS FOR SEPARATION OF GASES

FILING FEE RECEIVED		
1140	FEES: Authority has been given in Paper No._____ to charge/credit DEPOSIT ACCOUNT No._____ for following:	☐ All Fees ☐ 1.16 Fees (Filing) ☐ 1.17 Fees (Processing Ext. of time) ☐ 1.18 Fees (Issue) ☐ Other _____ ☐ Credit

BIB (Rev. 05/07).

SHEET 1 OF 1

Form PTO 1449 (Modified) U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE PATENT AND TRADEMARK OFFICE	ATTY DOCKET NO. 408824US99PCT	SERIAL NO. New U.S. PCT Application Based on PCT/EP11/58636
LIST OF REFERENCES CITED BY APPLICANT	APPLICANT Markus UNGERANK, et al.	
	FILING DATE Herewith	GROUP

U.S. PATENT DOCUMENTS

EXAMINER INITIAL		DOCUMENT NUMBER	DATE	NAME	CLASS	SUB CLASS	FILING DATE IF APPROPRIATE
/JMG/	AA	6 565 626	05/20/2003	BAKER et al.			
/JMG/	AB	6 168 649	01/02/2001	JENSVOLD et al.			
/JMG/	AC	2006 0196355	09/07/2006	EKINER et al.			
/JMG/	AD	5 919 285	07/06/1999	LI et al.			
/JMG/	AE	6 180 008	01/30/2001	WHITE			
	AF						
	AG						
	AH						
	AI						
	AJ						
	AK						
	AL						
	AM						
	AN						

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

		DOCUMENT NUMBER	DATE	COUNTRY	TRANSLATION YES	TRANSLATION NO
/JMG/	AO	00 06293	02/10/2000	WO (Equivalent of US 6 180 008)		NO
/JMG/	AP	2011 009919	01/27/2011	WO (with English abstract)		NO
	AQ					
	AR					
	AS					
	AT					
	AU					
	AV					

OTHER REFERENCES (Including Author, Title, Date, Pertinent Pages, etc.)

/JMG/	AW	BAKER, R., et al., "Natural Gas Processing with Membranes: An Overview," Industrial and Engineering Chemistry Research, Vol. 47, No. 7, Pages 2109-2121, (April 2, 2008) XP 002612501
/JMG/	AX	International Search Report Issued September 20, 2011 in PCT/EP11/58636 Filed May 26, 2011
	AY	
	AZ	☐ Additional References sheet(s) attached

Examiner	/Jason M. Greene/	Date Considered	05/27/2014

*Examiner: Initial if reference is considered, whether or not citation is in conformance with MPEP 609; Draw line through citation if not in conformance and not considered. Include copy of this form with next communication to applicant.

ALL REFERENCES CONSIDERED EXCEPT WHERE LINED THROUGH. /JMG/

DOCKET NO: 408824US99PCT

IN THE UNITED STATES PATENT & TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF	:
MARKUS UNGERANK, ET AL.	: EXAMINER: GREENE, JASON M.
SERIAL NO: 13/807,831	:
FILED: DECEMBER 31, 2012	: GROUP ART UNIT: 1772
FOR: PROCESS FOR SEPARATION OF GASES	:

AMENDMENT AND REQUEST FOR RECONSIDERATION

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

Responsive to the Office Action of June 2, 2014, Applicants request reconsideration in view of the following amendment and remarks.

Amendments to the Claims are reflected in the listing of claims which begins on page 2 of this paper.

Discussion of the Claims begins on page 18 of this paper.

Remarks begin on page 19 of this paper.

IN THE CLAIMS

Please amend the claims as follows:

Claim 1 (Previously Presented): An apparatus for separating gases, comprising:

membrane separation stages; and,

a compressor, a vacuum pump, or both,

wherein the membrane separation stages comprise a feed stream separation stage, a retentate separation stage, and a permeate separation stage:

the feed stream separation stage is configured to separate a feed stream comprising at least two components into a first permeate stream and a first retentate stream,

the retentate separation stage is configured to divide the first retentate stream into a second permeate stream and a second retentate stream,

wherein

the second permeate stream is supplied to the feed stream, and the second retentate stream is withdrawn as a product, and

the permeate separation stage is configured to divide the first permeate stream into a third retentate stream and a third permeate stream,

wherein

the third retentate stream is supplied to the feed stream, and the third permeate stream is withdrawn as a product,

the apparatus is configured not to subject the first permeate stream to any recompression,

the feed stream separation stage comprises a gas separation membrane module having a mixed gas selectivity of at least 30,

the apparatus is configured such that a gas volume recycled in the second permeate stream and in the third retentate stream totals less than 60% by volume of a crude gas stream,

the apparatus is configured to increase a concentration of at least one permeate gas of the feed stream separation stage, after recycling of the second permeate stream and of the third retentate stream, in the feed stream, compared to a concentration in the crude gas stream.

Claim 2 (Previously Presented): The apparatus of claim 1,

wherein

the apparatus is configured to pass the second permeate stream and the third retentate stream along a suction side of the compressor.

Claim 3 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, comprising:

a multistage compressor as a compressor.

Claim 4 (Previously Presented): The apparatus of claim 3, wherein the apparatus is configured to introduce the second permeate stream, the third retentate stream, or both into the compressor between two compression stages.

Claim 5 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein the apparatus is configured to pass at least one selected from the group consisting of the first retentate stream, the second retentate stream, and the third retentate stream through a pressure-reducing valve.

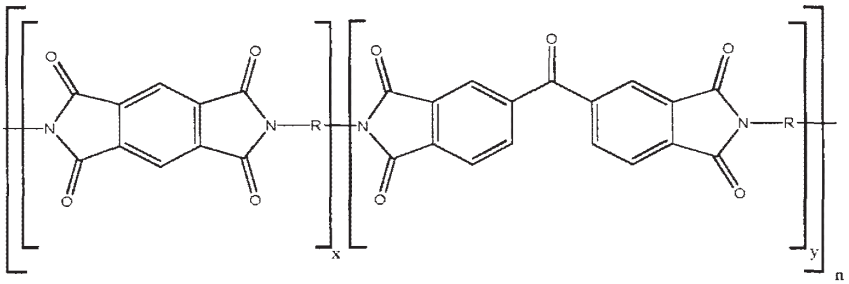
Claim 6 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein the gas separation membrane module in at least one of the membrane separation stages has a mixed gas selectivity of at least 35.

Claim 7 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein at least one of the membrane separation stages comprises more than one gas separation membrane module, wherein the modules are connected in parallel, in series, or in parallel and in series.

Claim 8 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein at least one of the membrane separation stages comprises a gas separation membrane module comprising a hollow fiber membrane, a flat membrane, or both.

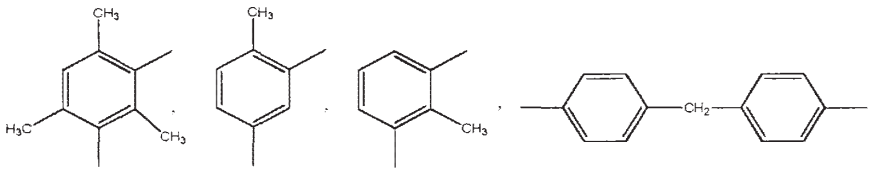
Claim 9 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein a separation-active layer of a membrane comprises a material that is an amorphous or semicrystalline polymer.

Claim 10 (Currently Amended): The apparatus of claim [[9]] 15, wherein the material is a polyimide of formula



wherein

each R is independently selected from the group consisting of



x and y are mol fractions,

$0 < x < 0.5$, and

$1 > y > 0.5$.

Claim 11 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein the apparatus is configured to discharge at least 95% of a retentate component of the feed stream separation stage which has been introduced into the apparatus with the crude gas stream via the second retentate stream.

Claim 12 (Previously Presented): The apparatus of claim 1, wherein the apparatus is configured to discharge not more than 5% of a retentate component of the feed stream separation stage introduced into the apparatus with the crude gas stream via the third permeate stream.

Claim 13 (Currently Amended): A process for separating a gas mixture stream comprising:

separating the gas mixture with [[the]] an apparatus ~~of claim 1~~ comprising:

membrane separation stages; and

a compressor, a vacuum pump, or both,

wherein the membrane separation stages comprise a feed stream separation stage, a retentate separation stage, and a permeate separation stage:

the feed stream separation stage is configured to separate the gas mixture stream into a first permeate stream and a first retentate stream,

the retentate separation stage is configured to divide the first retentate stream into a second permeate stream and a second retentate stream,

wherein the second permeate stream is supplied to the gas mixture stream, and the second retentate stream is withdrawn as a product, and the permeate separation stage is configured to divide the first permeate stream into a third retentate stream and a third permeate stream,

wherein the third retentate stream is supplied to the gas mixture stream, and the third permeate stream is withdrawn as a product,

the apparatus is configured not to subject the first permeate stream to any recompression,

the feed stream separation stage comprises a gas separation membrane module having a mixed gas selectivity of at least 30,

the apparatus is configured such that a gas volume recycled in the second permeate stream and in the third retentate stream totals less than 60% by volume of a crude gas stream,

the apparatus is configured to increase a concentration of at least one permeate gas of the feed stream separation stage, after recycling of the second permeate stream and of the third retentate stream, in the feed stream, compared to a concentration in the crude gas stream, and

wherein the third permeate stream comprises more than 95 vol% of a retentate gas of the feed stream separation stage in the gas mixture stream, and the second retentate system comprises more than 95 vol% of a permeate gas of the feed stream separation stage in the gas mixture stream.

Claim 14 (Currently Amended): The process of claim 13, wherein

the crude gas ~~mixture~~ stream comprises:

~~carbon dioxide and methane;~~

~~hydrogen and methane;~~

~~carbon monoxide and hydrogen;~~ at least one of

a crude biogas[[; or]] and

a crude natural gas.

Claim 15 (Previously Presented): The process of claim 13, wherein the separating comprises adjusting a pressure on a permeate side of the feed stream separation stage with a pressure-reducing valve on a retentate side of the permeate separation stage, to from 1 to 30 bar.

Claim 16 (Previously Presented): The process of claim 13, wherein the separating comprises adjusting a pressure of the first and second retentate stream with a pressure-reducing valve in the second retentate stream, to from 1 to 100 bar.

Claim 17 (Previously Presented): The process of claim 13, wherein a driving force is a partial pressure differential between a retentate side and a permeate side in the respective membrane separation stages,

wherein the partial pressure differential is generated by at least one selected from the group consisting of a compressor in the feed stream, a vacuum pump in the second permeate stream, a vacuum pump in the third permeate stream, and a permeate-side purge gas stream.

Claim 18 (Previously Presented): The process of claim 17, wherein a pressure of the permeate side of the feed stream separation stage is greater than or equal to an ambient pressure,

the driving force comprises the ambient pressure or a reduce pressure at the permeate side of the permeate separation stage.

Claim 19 (Currently Amended): The apparatus of claim [[9]] 1, wherein the material is at least one selected from the group consisting of a polyimide, a polyamide, a polysulfone, a cellulose acetate, a cellulose acetate derivative, a polyphenylene oxide, a polysiloxane, a polymer with an intrinsic microporosity, a mixed matrix membrane, a facilitated transport membrane, a polyethylene oxide, and a polypropylene oxide.

Claim 20 (Currently Amended): The process of claim 14, wherein the crude gas mixture consists essentially of[[:]] carbon dioxide and methane[[;]]

~~hydrogen and methane;~~

~~carbon monoxide and hydrogen;~~

~~a crude biogas; or~~

~~a crude natural gas~~.

Claim 21 (New): The process of claim 13, wherein the third permeate stream comprises more than 97 vol% of the carbon dioxide in the gas mixture stream.

Claim 22 (New): The process of claim 13, wherein the second retentate stream comprises more than 97 vol% of the methane in the gas mixture stream.

Claim 23 (New): The process of claim 13, wherein the crude gas stream comprises carbon dioxide and methane.

Claim 24 (New): The process of claim 13, wherein the crude gas stream comprises hydrogen and methane.

Claim 25 (New): The process of claim 13, wherein the crude gas stream comprises carbon monoxide and hydrogen.

Claim 26 (New): The process of claim 13, wherein the apparatus is configured to pass the second permeate stream and the third retentate stream along a suction side of the compressor.

Claim 27 (New): The process of claim 13, wherein the compressor is a multistage compressor.

Claim 28 (New): The process of claim 13, wherein the apparatus is configured to introduce the second permeate stream, the third retentate stream, or both into the multistage compressor between two compression stages.

Claim 29 (New): The process of claim 13, wherein the apparatus is configured to pass at least one selected from the group consisting of the first retentate stream, the second retentate stream, and the third retentate stream through a pressure-reducing valve.

Claim 30 (New): The process of claim 13, wherein the gas separation membrane module in at least one of the membrane separation stages having a mixed gas selectivity for carbon dioxide and methane of at least 35.

Claim 31 (New): The process of claim 13, wherein at least one of the membrane separation stages comprises more than one gas separation membrane module, wherein the modules are connected in parallel, in series, or in parallel and in series.

Claim 32 (New): The process of claim 13, wherein at least one of the membrane separation stages comprises a gas separation membrane module comprising a hollow fiber membrane, a flat membrane, or both.

Claim 33 (New): The process of claim 13, wherein a separation-active layer of a membrane comprises a material that is an amorphous or semicrystalline polymer.

Claim 34 (New): A process for separating a gas mixture stream comprising methane and carbon dioxide, comprising:

separating the gas mixture with an apparatus comprising:

membrane separation stages; and,

a compressor, a vacuum pump, or both,

wherein the membrane separation stages comprise a feed stream separation stage, a retentate separation stage, and a permeate separation stage:

the feed stream separation stage is configured to separate a feed stream comprising at least two components into a first permeate stream and a first retentate stream,

the retentate separation stage is configured to divide the first retentate stream into a second permeate stream and a second retentate stream,

wherein the second permeate stream is supplied to the feed stream, and the second retentate stream is withdrawn as a product, and

the permeate separation stage is configured to divide the first permeate stream into a third retentate stream and a third permeate stream,

wherein the third retentate stream is supplied to the feed stream, and the third permeate stream is withdrawn as a product,

the apparatus is configured not to subject the first permeate stream to any recompression,

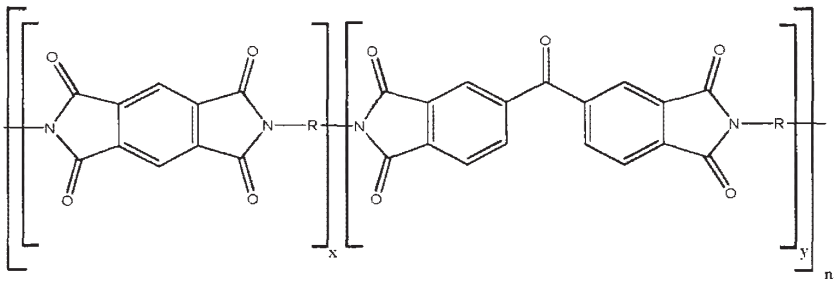
the feed stream separation stage comprises a gas separation membrane module having a mixed gas selectivity of at least 30,

the apparatus is configured such that a gas volume recycled in the second permeate stream and in the third retentate stream totals less than 60% by volume of a crude gas stream,

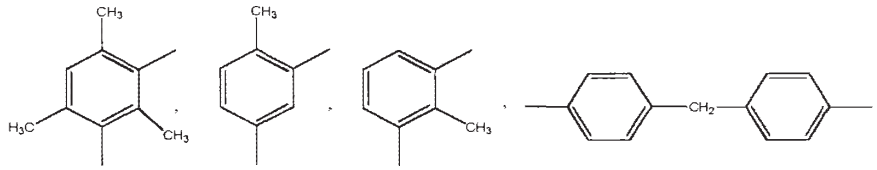
the apparatus is configured to increase a concentration of at least one permeate gas of the feed stream separation stage, after recycling of the second permeate stream and of the third retentate stream, in the feed stream, compared to a concentration in the crude gas stream.

Claim 35 (New): The apparatus of claim 34, wherein the material is at least one selected from the group consisting of a polyimide, a polyamide, a polysulfone, a cellulose acetate, a cellulose acetate derivative, a polyphenylene oxide, a polysiloxane, a polymer with an intrinsic microporosity, a mixed matrix membrane, a facilitated transport membrane, a polyethylene oxide, and a polypropylene oxide.

Claim 36 (New): The process of claim 35, wherein the material is a polyimide of formula



wherein each R is independently selected from the group consisting of



x and y are mol fractions,

$0 < x < 0.5$, and

$1 > y > 0.5$.

Claim 37 (New): The process of claim 34, wherein the crude gas stream comprises at least one gas pair selected from the group consisting of:

carbon dioxide and methane;

hydrogen and methane;

carbon monoxide and hydrogen;

a crude biogas; and

a crude natural gas.

Claim 38 (New): The process of claim 34, wherein the crude gas stream consists essentially of at least one gas pair selected from the group consisting of:

carbon dioxide and methane;

hydrogen and methane;

carbon monoxide and hydrogen;

a crude biogas; and

a crude natural gas.

Claim 39 (New): The process of claim 34, wherein the third permeate stream comprises less than 5 vol. % of the retentate gas compared to the amount of said retentate gas originally introduced into the process with crude gas stream and that the second retentate stream comprises more than 95 vol. % of the retentate gas of the feed stream separation stage compared to the amount of said retentate gas originally introduced into the process with the crude gas stream.

Claim 40 (New): The process of claim 39, wherein a driving force is a partial pressure differential between a retentate side and a permeate side in the respective membrane separation stages, and

wherein the partial pressure differential is generated by at least one selected from the group consisting of a compressor in the feed stream, a vacuum pump in the second permeate stream, a vacuum pump in the third permeate stream, and a permeate-side purge gas stream.

Claim 41 (New): The process of claim 39, wherein a pressure of the permeate side of the feed stream separation stage is greater than or equal to an ambient pressure,

the driving force comprises the ambient pressure or a reduce pressure at the permeate side of the permeate separation stage.

Claim 42 (New): The process of claim 39, wherein the material is at least one selected from the group consisting of a polyimide, a polyamide, a polysulfone, a cellulose acetate, a cellulose acetate derivative, a polyphenylene oxide, a polysiloxane, a polymer with an intrinsic microporosity, a mixed matrix membrane, a facilitated transport membrane, a polyethylene oxide, and a polypropylene oxide.

Claim 43 (New): The process of claim 34, wherein the separating comprises adjusting a pressure of the first and second retentate stream with a pressure-reducing valve in the second retentate stream, to from 1 to 100 bar.

Claim 44 (New): The process of claim 34, wherein the separating comprises adjusting a pressure on a permeate side of the feed stream separation stage with a pressure-reducing valve on a retentate side of the permeate separation stage, to from 1 to 30 bar.

Claim 45 (New): The process of claim 34, wherein the gas separation membrane module in at least one of the membrane separation stages has a mixed gas selectivity of at least 35.

Claim 46 (New): The process of claim 34, wherein the gas separation membrane module in at least one of the membrane separation stages has a mixed gas selectivity of at least 45.

Claim 47 (New): The process of claim 34, wherein the apparatus comprises at least one gas separation membrane module comprising hollow polyimide fibers having a separation area of about $5m^2$.

Claim 48 (New): The process of claim 34, wherein the apparatus is configured to pass the second permeate stream and the third retentate stream along a suction side of the compressor.

Claim 49 (New): The process of claim 34, wherein the compressor is a multistage compressor.

Claim 50 (New): The process of claim 34, wherein the apparatus is configured to introduce the second permeate stream, the third retentate stream, or both into the multistage compressor between two compression stages.

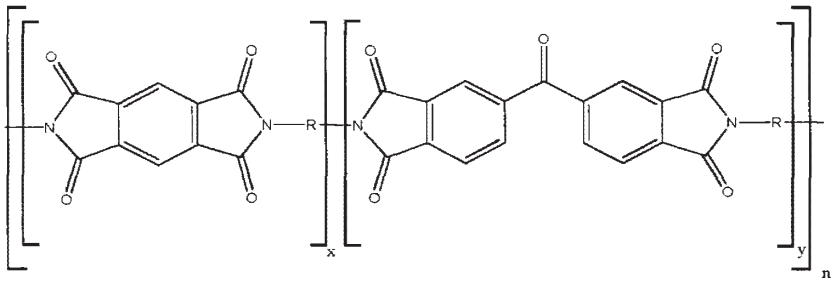
Claim 51 (New): The process of claim 34, wherein the apparatus is configured to pass at least one selected from the group consisting of the first retentate stream, the second retentate stream, and the third retentate stream through a pressure-reducing valve.

Claim 52 (New): The process of claim 34, wherein at least one of the membrane separation stages comprises more than one gas separation membrane module, wherein the modules are connected in parallel, in series, or in parallel and in series.

Claim 53 (New): The process of claim 34, wherein at least one of the membrane separation stages comprises a gas separation membrane module comprising a hollow fiber membrane, a flat membrane, or both.

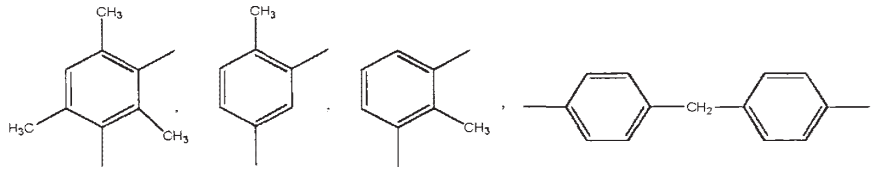
Claim 54 (New): The process of claim 39, wherein a separation-active layer of a membrane comprises a material that is an amorphous or semicrystalline polymer.

Claim 55 (New): The process of claim 39, wherein the material is a polyimide of formula



wherein

each R is independently selected from the group consisting of



x and y are mol fractions,

$0 < x < 0.5$, and

$1 > y > 0.5$.

Claim 56 (New): The apparatus of claim 1, wherein the second retentate stream comprises more than 97 vol% of the methane in the gas mixture stream.

Claim 57 (New): The apparatus of claim 1, wherein the apparatus comprises at least one gas separation membrane module having a gas selectivity for methane and carbon dioxide of at least 45.

Claim 58 (New): The apparatus of claim 1, wherein the apparatus comprises at least one gas separation membrane module comprising hollow polyimide fibers having a separation area of about $5m^2$.

DISCUSSION OF THE CLAIMS

Claims 1-58 are pending in the present application. Claims 21-58 are new claims. Support for the new Claims is found in the previously presented claims and in paragraphs [0075] and [0063] of the pre-grant publication US 2013/0098242. Claim 13 is rewritten herein as an independent claim. Claim 34 is a new independent claim supported by original Claims 1 and 13.

No new matter is added.

REMARKS

Claim 1 is drawn to an apparatus for separating gases. Claims 13 and 34 are drawn to processes that use a particular separation apparatus for separating a gas mixture into two streams of relatively high purity. The apparatus is described, in one or more embodiments, as capable of separating a gas mixture into two fractions "each of elevated purity" (see the Abstract of the corresponding pre-grant publication US 2013/0098242). Throughout the original specification Applicants point out that advantages such as the avoidance of recompression of certain streams (corresponding with the requirement of present Claim 1 that "the apparatus is configured not to subject the first permeate stream to any recompression") are related to obtaining the desired apparatus capability; namely, separating a gas mixture to obtain two streams of high purity. The apparatus of the present claims is more than merely an assembly of unrelated features. In order to obtain the desirable gas mixture separation that is achieved by the inventive apparatus it is necessary that the apparatus meet all of the claim limitations.

The Office rejected the apparatus claims as anticipated and/or obvious over Baker (US 6,565,626), alone or in combination with Ekiner (US 2006/0196355). The Office takes pains in its attempt to identify disclosure in the Baker reference relating to particular features in the present claims. However, the Office is unable to point to any disclosure in the cited art relating to the requirement of present Claim 1 that the apparatus is configured such that a gas volume recycled in a second permeate stream and in a third retentate stream "totals less than 60% by volume" of a gas mixture which is subject to separation (see for example page 5, lines 1-13 of the June 2, 2014 Office Action). Although the Office gives full consideration to features of the claims which describe how different stages and/or features of the apparatus are configured, when it comes to the claimed feature corresponding to the recycling volumes of

the permeate stream and third retentate stream, the Office takes the position that this feature represents an intended use:

> With regard to the volume of the recycled gas compared to the crude gas and the increase in concentration in the feed stream of a gas permeated in the feed stage, intended use has been continuously held not to be germane to determining the patentability of the apparatus (citations omitted).

It therefore appears that the Office takes the position that certain features of the claimed invention represent nothing more than an intended use and thus should not be given patentable weight. Applicants respectfully traverse on both legal and factual grounds.

The Federal Circuit recently held that the Office's refusal to give patentable weight to features of the claimed invention which were presented as preamble language and/or the recitation of particular functionality in the body of the claims was improper. The Federal Circuit's holding in *In re Jasinski* should serve to guide the Office's interpretation of the features of present Claim 1, e.g., features which the Office asserts represent nothing more than intended use.[1] In *Jasinski* the applicant argued that such functional language referred to the "essence of the invention". This term was used to describe criteria recited in the claim by which previously recited comparing limitations were analyzed (see the paragraph bridging pages 4 and 5 of the *Jasinski* decision attached herewith).

> We agree with Mr. Jasinski. Not only does the "to verify/verifying" language refer to the "essence of the invention," it also provides the criteria by which the previously-recited comparing limitation is analyzed. We thus conclude that the "to verify/verifying" language is limiting. *See Vizio, Inc. v. Int'l Trade Comm'n*, 605 F.3d 1330, 1341 (Fed. Cir. 2010) ("[T]he "for decoding" language ... is properly construed as a limitation, and not merely a statement of purpose or intended use for the invention, because "decoding" is the essence or a fundamental characteristic of the claimed invention.").

[1] The Federal Circuit opinion in *In re Jasinski* is submitted concurrently herewith.

Here the features of the claims which the Office asserts represent an intended use meet both prongs of the Federal Circuit's analysis in the *Jasinski* case. The claim language describing recycled gas volume, which the Office asserts is an intended use, is directly related to prior recitations of elements in Claim 1 defining gas streams such as the second permeate stream and the third retentate stream. More specifically, this text provides criteria by which the previously-recited claim limitations are interpreted. The text thus meets at least the first prong of the Federal Circuit's analysis in *Jasinski*.

Secondly, the text which the Office asserts amounts to an intended use is reflective of the "essence" of the invention described in the present specification; namely, an apparatus or system which is capable of separating a gas mixture to provide two gas streams of high purity in an efficient manner. The functional language in the present claims therefore meets the second prong of the Federal Circuit's analysis in *Jasinski*.

For the reasons explained above, Applicants submit that all of the features of present Claim 1 should be given patentable weight. Applicants request reconsideration of Claim 1 with full patentable weight given to all recited features. Applicants submit that reconsideration of Claim 1 should result in a determination that the presently claimed invention is neither disclosed nor suggested by the art of record.

For the reasons explained above in detail, Applicants submit the rejection of the claims should be withdrawn.

Notwithstanding the arguments above, there are additional reasons and factual evidence supporting the patentability of the presently claimed invention. These additional arguments and an explanation of the factual evidence of the original specification are provided below.

Features relating to the "volume of the recycled gas" and the "increase in concentration" refer to special configurations (set-ups) in, for example, valves. The "volume

of the recycled gas" feature ensures that an increase in the concentration of the permeate component in the feed stream is achieved even though a very low return stream volume is applied. This increases the efficiency of the overall process (as noted above this relates to the "essence" of the invention cited by the Federal Circuit in *Jasinski*). The "increase in concentration" feature increases the efficiency of the feed stream separation stage which in turn has the result that less retentate gas passes into the first permeate stream. This in turn increases the efficiency of the permeate separation stage and ensures that less unwanted retentate gas passes into the third permeate stream. In other words, the overall yield of the retentate gas is significantly increased when the apparatus is configured as presently claimed.

As shown in Examples 35 to 37 of Baker, the pressure of the feed stream has a significant effect on the "volume of the recycled gas" feature but only a small impact on the "increase in concentration" feature. Examples 39 and 40 of Baker show that the temperature of the feed stream has a significant impact on the "volume of the recycled gas" feature but virtually no effect on the on the "increase in concentration" feature. Examples 4 to 7 of Baker show that variation of the membrane size influences the "volume of the recycled gas" and "increase in concentration" features. As consequence these features can be adjusted independently and via different configurations (set-ups) of the apparatus.

Here the features of the claimed invention distinguish from the cited art.

The Nonobviousness of Claims 1, 13 and new Claim 34

Baker describes 2, 3 and 4 stage processes in Figures 1, 2 and 4. The examiner takes the position that it would have been obvious to use Baker's 3-stage process without recompression and thereby arrive at the presently claimed invention.

As noted above, all of the features of the present claims must be considered together. This includes features relating to

- feature a) the selectivity of the membrane
- feature b) "volume of the recycled gas"
- feature c) "increase in concentration"
- feature d) a process without recompression
- feature e) 3-stage process.

Applicants submit that those of skill in the art would not arrive at the combination of features recited in present Claim 1 based on Baker.

Feature b) correlates to the sum of the flows of streams 206 and 209 divided by the flow of stream 201 in Figure 2. The respective data were taken from the Baker's tables. With regard to feature c) Baker's examples show that nitrogen is the only permeate gas whose concentration is increased in at least some examples whereas the concentration of the second permeate gas CO_2 is always decreased. Values for features b) and c) were calculated for the Baker process from the Baker examples.

Even though the selectivity of the membranes used in Baker for CO_2/CH_4 is 20 and thus much closer to the present disclosure than for N_2/CH_4, where the selectivity is below 5, a comparison to N_2 is provided below because the concentration of CO_2 (feature c)) is always reduced in Baker and thus adjusted to an opposite direction compared to the present invention.

Thus, for Baker, nitrogen is considered as the permeate gas for feature c). The calculation for feature c) was carried out as follows. The difference of the nitrogen contents of streams 203 and 201 (see Figure 2 of Baker) was calculated then divided by the nitrogen content in stream 201 and multiplied by 100%. Thus, for example 25 the calculation is based on the data of Table 26 is as follows: $(5.3 - 5.0)/5.0*100\% = 6\%$. The increase of the permeate gas nitrogen in this examples was therefore 6%.

The results of the calculations for all the Baker examples having sufficient data and using the three stage separation process according to Figure 2 are provided below:

	Example						
	4	5	6	7	8	21	22
Feature b)	480	323	144	855	400	247	292
Feature c)	36	9.3	-0.4	90	24.7	0	0

	Example							
	23	25	26	27	28	30	31	32
Feature b)	562	42	102	169	283	131	116	95
Feature c)	0.5	6	6	1.3	-5.2	16	12	10

	Example						
	33	35	36	37	39	40	41
Feature b)	83	231	181	155	156	110	460
Feature c)	12	11.7	11.7	10.8	10.8	12.5	37.6

The range for feature b) is of from 42% (Example 25) to 855% (Example 7). The range for feature c) for N_2 is from minus 5.2 (Example 28) to 90% (Example 7). Accordingly, even for N_2 Baker show in some examples a decrease of feature c) which is the opposite of what is presently claimed. None of the examples of Baker shows a combination of features b) and c) as claimed in the present invention. Thus, Baker does not suggest the combination of features b) and c).

Baker teaches away from the presently claimed invention.

Feature b) ensures that an increase in the concentration of the permeate component in the feed stream is achieved even though a very low return stream volume is applied. This increases the efficiency of the overall process. Feature c) increases the efficiency of the feed

stream separation stage, which in turn has the result that less retentate gas passes into the first permeate stream. This in turn increases the efficiency of the permeate separation stage and ensures that less unwanted retentate gas passes into the third permeate stream. In other words, the overall yield of the retentate gas is significantly increased. That these effects have been achieved by the present invention will be shown below by using the data of Example 1 of the present disclosure.

In Example 1 the sum of recycled gas streams (9) and (10) is 0.312 m^3/h or 31.2% based on the amount of gas to be separated supplied. This feature a) is fulfilled. The whole amount of gas to be separated in Example 1 was 1m^3/h. Considering that the gas to be separated comprised 50% methane the amount of methane supplied calculates to be 0.5 m^3/h. Then, 0.503 m^3/h of a retentate product stream with a methane content of 98.5% was obtained. 98.5% of 0.503 m^3/h = 0.496 m^3/h of methane in retentate stream. Consequently the yield of methane = 0.496 m^3/h / 0.503 m^3/h * 100% = 99.2%. Even though the recycling rate is lower than in all examples of Baker, the methane yield is higher than in Baker.

With respect to feature e), the Baker example with the highest methane recovery (Example 13) has a methane yield of 92%. However, in this example a 4-stage separation process (according to Figure 4) and not a 3-stage process (according to Figure 2) is used. None of the examples using the 3-stage process achieves a methane recovery of more than 87%. Only when the 4-stage process is used can Baker provide a methane recovery of up to 92%.

Those of skill in the art considering the Baker disclosure would have no reason to expect that a methane recovery of 99% can be achieved with a 3-stage process as presently claimed. For a maximum methane yield the 4-stage Baker process may be selected. However, the 4-stage process comes at much greater cost than a 3-stage process/apparatus. Just selecting a 3-stage process is not enough, however. The cited art provides insufficient data

from which to set up a plant (i.e., to include features a)-d)) to achieve a higher methane recovery and simultaneously permeate and retentate product streams of high purity.

With respect to feature a), all of the Baker examples use membranes with a CO_2/CH_4 selectivity of 20, which is outside the presently claimed range. In addition, Baker discloses (see col. 13, lines 42 to 45) that inexpensive membranes with low selectivity can be used. Membranes with low selectivity are not only cheaper, they also exhibit better permeability. It would make no sense to use a membrane of lower selectivity to arrive at a process that provides two gas streams of high purity.

Applicants submit that those of skill in the art would not have found motivation or a reasonable expectation of success in using high selective membranes instead of membranes with low selectivity. This is in particular true in view of col. 16, line 42 and lines 54 to 57, where Baker repeatedly teaches, that membranes with high selectivity do not show any benefit for his process and that it is not necessary to use them. In view of these teachings of Baker and having in mind, that high selective membranes are expensive, have worse flux and are difficult to obtain, a skilled artisan would not have tested or used high selective membranes in Baker, and further would not have expected that high selective membranes in combination with the other features b) to e) has any beneficial effect for Baker.

However, the use of high selective membranes together with features b) and c) provide to a process and apparatus having significant improvements compared to Baker as already shown above. The presently claimed process has further an unexpectedly higher efficiency and, as shown below, a significantly reduced double compression rate, i.e. amount of gas that has to be recycled and re-purified.

In the present examples a membrane with a selectivity for CO_2/CH_4 of 45 was used. In the comparative example a membrane with a selectivity of 20 (as in Baker) was used. A gas mixture of 50% CO_2 and 50% methane was always used. The pressure ratio for the feed

stream separation stage was 0.23 in the comparative example and 0.24 to 0.3 for the examples, which is more or less identical. Thus comparing the example with the comparative example shows the effect of the selectivity of the membrane. For the comparative example a double compression rate of 86.7% was found. Surprisingly the examples of the invention had a double compression rate of only 31.2 to 41.7%.

Inventive example 3 provides a double compression rate of 41.7 even though the feed pressure was only 14.5 (versus 18.2 bar in the comparative example). This shows that even at lower pressures, which reduces costs for compression, a higher efficiency is achieved with the inventive process and apparatus.

Examples 1, 2 and 4 nearly have an identical feed pressure compared to the comparative example. Nevertheless, in example 1 a reduction of 64% of the double compression rate compared to the comparative example was achieved.

The evidence of record shows that unexpected improvements in performance are provided by the claimed invention. The evidence of record rebuts the rejection of the claims as obvious over Baker and the cited art's teachings with respect to the use of membranes having poor separation (see for example col. 13, line 42-43 and col. 16, lines 49-51 of Baker).

In summary, the skilled artisan would not have expected a high methane recovery with a 3-stage process in view of the closest prior art's teaching the use of a 4 stage process.

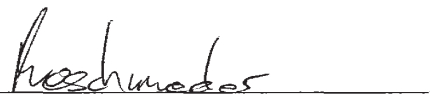
The skilled artisan would not have modified the 3-stage process of Baker to use high selective membranes in view of expense and resulting low permeance, and further because Baker teaches (see col. 13, lines 42 to 45) that membranes with poor selectivity can be used and uses membranes with poor selectivity in all separation examples.

Factual evidence of unexpected results such as the reduced double compression rates, high recovery rates and high purities obtained with the claims apparatus and process are probative of the non-obviousness of the presently claimed invention.

For the reasons discussed above in detail, Applicants request withdrawal of the rejection and the allowance of all now-pending claims.

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, L.L.P.



Richard L. Treanor
Attorney of Record
Registration No. 36,379

Stefan U. Koschmieder, Ph.D.
Registration No. 50,238

Customer Number
22850
Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 08/09)

Electronic Patent Application Fee Transmittal	
Application Number:	13807831
Filing Date:	31-Dec-2012
Title of Invention:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES
First Named Inventor/Applicant Name:	Markus Ungerank
Filer:	Stefan U. Koschmieder/Ronita Fleming
Attorney Docket Number:	408824US99PCT
Filed as Large Entity	

U.S. National Stage under 35 USC 371 Filing Fees

Description	Fee Code	Quantity	Amount	Sub-Total in USD($)
Basic Filing:				
Pages:				
Claims:				
Claims in excess of 20	1615	38	80	3040
Miscellaneous-Filing:				
Petition:				
Patent-Appeals-and-Interference:				
Post-Allowance-and-Post-Issuance:				
Extension-of-Time:				

Description	Fee Code	Quantity	Amount	Sub-Total in USD($)
Miscellaneous:				
			Total in USD ($)	**3040**

Electronic Acknowledgement Receipt	
EFS ID:	19754335
Application Number:	13807831
International Application Number:	
Confirmation Number:	4142
Title of Invention:	PROCESS FOR SEPARATION OF GASES
First Named Inventor/Applicant Name:	Markus Ungerank
Customer Number:	22850
Filer:	Stefan U. Koschmieder/Ronita Fleming
Filer Authorized By:	Stefan U. Koschmieder
Attorney Docket Number:	408824US99PCT
Receipt Date:	01-AUG-2014
Filing Date:	31-DEC-2012
Time Stamp:	15:05:36
Application Type:	U.S. National Stage under 35 USC 371

Payment information:

Submitted with Payment	yes
Payment Type	Credit Card
Payment was successfully received in RAM	$3040
RAM confirmation Number	1236
Deposit Account	
Authorized User	

File Listing:

Document Number	Document Description	File Name	File Size(Bytes)/ Message Digest	Multi Part /.zip	Pages (if appl.)

1		408824USamendment.pdf	969124 d5d8a2aeef8f0624ad7d79bcbed00da207406bc3	yes	29

Multipart Description/PDF files in .zip description		
Document Description	**Start**	**End**
Miscellaneous Incoming Letter	1	1
Amendment/Req. Reconsideration-After Non-Final Reject	2	2
Claims	3	18
Applicant Arguments/Remarks Made in an Amendment	19	29

Warnings:

Information:

2	Fee Worksheet (SB06)	fee-info.pdf	30305 98456bfc4a5bad7aace204f1d354adcaa58edc29	no	2

Warnings:

Information:

Total Files Size (in bytes):	999429

This Acknowledgement Receipt evidences receipt on the noted date by the USPTO of the indicated documents, characterized by the applicant, and including page counts, where applicable. It serves as evidence of receipt similar to a Post Card, as described in MPEP 503.

New Applications Under 35 U.S.C. 111
If a new application is being filed and the application includes the necessary components for a filing date (see 37 CFR 1.53(b)-(d) and MPEP 506), a Filing Receipt (37 CFR 1.54) will be issued in due course and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the filing date of the application.

National Stage of an International Application under 35 U.S.C. 371
If a timely submission to enter the national stage of an international application is compliant with the conditions of 35 U.S.C. 371 and other applicable requirements a Form PCT/DO/EO/903 indicating acceptance of the application as a national stage submission under 35 U.S.C. 371 will be issued in addition to the Filing Receipt, in due course.

New International Application Filed with the USPTO as a Receiving Office
If a new international application is being filed and the international application includes the necessary components for an international filing date (see PCT Article 11 and MPEP 1810), a Notification of the International Application Number and of the International Filing Date (Form PCT/RO/105) will be issued in due course, subject to prescriptions concerning national security, and the date shown on this Acknowledgement Receipt will establish the international filing date of the application.

Docket No. 408824US99PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

INVENTOR(S) Markus UNGERANK, et al.

SERIAL NO: 13/807,831 ART UNIT: 1772

FILING DATE: December 31, 2012 EXAMINER: GREENE, J. M.

FOR: PROCESS FOR SEPARATION OF GASES

FEE TRANSMITTAL

☐ No additional fee is required

☐ Small entity status of this application under 37 C.F.R. §1.9 and §1.27 is claimed.

☐ Track 1 Prioritized Examination

The Fee has been calculated as shown below:

FOR	NUMBER FILED	NUMBER EXTRA	RATE	CALCULATIONS
TOTAL CLAIMS	58 - 20 =	38	x $80 =	$3,040.00
INDEPENDENT CLAIMS	3 - 3 =	0	x $420 =	$0.00
☐ MULTIPLE DEPENDENT CLAIMS (If applicable)			+ $780 =	$0.00
☐ LATE FILING OF DECLARATION			+ $140 =	$0.00
☐ NON-ELECTRONIC FILING FEE			+ $400 =	$0.00
			BASIC FEES	$0.00
			TOTAL OF ABOVE CALCULATIONS	$3,040.00
☐ REDUCTION BY 50% FOR FILING BY SMALL ENTITY				$0.00
☐ FILING IN NON-ENGLISH LANGUAGE			+ $140 =	$0.00
			TOTAL	$3,040.00

☐ Please charge Deposit Account No. **15-0030** in the amount of ____

■ Credit card payment is being made online (if electronically filed), or is attached hereto (if paper filed), in the amount of **$3,040.00**.

■ The Director is hereby authorized to charge any additional fees which may be required for the papers being filed herewith and for which no payment is enclosed herewith, or credit any overpayment to Deposit Account No. **15-0030**, with the **EXCEPTION** of deficiencies in fees for multiple dependent claims in new applications.

■ If these papers are not considered timely filed by the Patent and Trademark Office, then a petition is hereby made under 37 C.F.R. §1.136, and any additional fees required under 37 C.F.R. §1.136 for any necessary extension of time may be charged to Deposit Account No. 15-0030.

Submitted by: _____

Richard L. Treanor
Registration No. 36,379

Customer Number
22850
Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 02/12)

Stefan U. Koschmieder, Ph.D.
Registration No. 50,238

PTO/SB/06 (09-11)
Approved for use through 1/31/2014. OMB 0651-0032
U.S. Patent and Trademark Office; U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE
Under the Paperwork Reduction Act of 1995, no persons are required to respond to a collection of information unless it displays a valid OMB control number.

PATENT APPLICATION FEE DETERMINATION RECORD Substitute for Form PTO-875	Application or Docket Number 13/807,831	Filing Date 12/31/2012	☐ To be Mailed

ENTITY: ☒ LARGE ☐ SMALL ☐ MICRO

APPLICATION AS FILED – PART I

	(Column 1)	(Column 2)		
FOR	NUMBER FILED	NUMBER EXTRA	RATE ($)	FEE ($)
☐ BASIC FEE (37 CFR 1.16(a), (b), or (c))	N/A	N/A	N/A	
☐ SEARCH FEE (37 CFR 1.16(k), (i), or (m))	N/A	N/A	N/A	
☐ EXAMINATION FEE (37 CFR 1.16(o), (p), or (q))	N/A	N/A	N/A	
TOTAL CLAIMS (37 CFR 1.16(i))	minus 20 =	*	X $ =	
INDEPENDENT CLAIMS (37 CFR 1.16(h))	minus 3 =	*	X $ =	
☐ APPLICATION SIZE FEE (37 CFR 1.16(s))	If the specification and drawings exceed 100 sheets of paper, the application size fee due is $310 ($155 for small entity) for each additional 50 sheets or fraction thereof. See 35 U.S.C. 41(a)(1)(G) and 37 CFR 1.16(s).			
☐ MULTIPLE DEPENDENT CLAIM PRESENT (37 CFR 1.16(j))				
* If the difference in column 1 is less than zero, enter "0" in column 2.			TOTAL	

APPLICATION AS AMENDED – PART II

AMENDMENT	08/01/2014	(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	RATE ($)	ADDITIONAL FEE ($)
	Total (37 CFR 1.16(i))	* 58	Minus	** 20	= 38	X $80 =	3040
	Independent (37 CFR 1.16(h))	* 3	Minus	***3	= 0	X $420 =	0
	☐ Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))						
	☐ FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))						
						TOTAL ADD'L FEE	**3040**

AMENDMENT		(Column 1) CLAIMS REMAINING AFTER AMENDMENT		(Column 2) HIGHEST NUMBER PREVIOUSLY PAID FOR	(Column 3) PRESENT EXTRA	RATE ($)	ADDITIONAL FEE ($)
	Total (37 CFR 1.16(i))	*	Minus	**	=	X $ =	
	Independent (37 CFR 1.16(h))	*	Minus	***	=	X $ =	
	☐ Application Size Fee (37 CFR 1.16(s))						
	☐ FIRST PRESENTATION OF MULTIPLE DEPENDENT CLAIM (37 CFR 1.16(j))						
						TOTAL ADD'L FEE	

* If the entry in column 1 is less than the entry in column 2, write "0" in column 3.
** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 20, enter "20".
*** If the "Highest Number Previously Paid For" IN THIS SPACE is less than 3, enter "3".
The "Highest Number Previously Paid For" (Total or Independent) is the highest number found in the appropriate box in column 1.

LIE
/TONYA MCBRIDE/

This collection of information is required by 37 CFR 1.16. The information is required to obtain or retain a benefit by the public which is to file (and by the USPTO to process) an application. Confidentiality is governed by 35 U.S.C. 122 and 37 CFR 1.14. This collection is estimated to take 12 minutes to complete, including gathering, preparing, and submitting the completed application form to the USPTO. Time will vary depending upon the individual case. Any comments on the amount of time you require to complete this form and/or suggestions for reducing this burden, should be sent to the Chief Information Officer, U.S. Patent and Trademark Office, U.S. Department of Commerce, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450. DO NOT SEND FEES OR COMPLETED FORMS TO THIS ADDRESS. **SEND TO: Commissioner for Patents, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450.**
If you need assistance in completing the form, call 1-800-PTO-9199 and select option 2.

Form PTO 1449 (Modified)	U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE PATENT AND TRADEMARK OFFICE	ATTY DOCKET NO. 408824US99PCT	SERIAL NO. 13/807,831
LIST OF REFERENCES CITED BY APPLICANT		APPLICANT Markus UNGERANK, et al.	
		FILING DATE December 31, 2012	GROUP 1772

U.S. PATENT DOCUMENTS

EXAMINER INITIAL		DOCUMENT NUMBER	DATE	NAME	CLASS	SUB CLASS	FILING DATE IF APPROPRIATE
	AA						
	AB						
	AC						
	AD						
	AE						
	AF						
	AG						
	AH						
	AI						
	AJ						
	AK						
	AL						
	AM						
	AN						

FOREIGN PATENT DOCUMENTS

		DOCUMENT NUMBER	DATE	COUNTRY	TRANSLATION YES	TRANSLATION NO
	AO	JP 2009-242773 A	10/22/2009	JAPAN (with English abstract and unedited computer generated English translation)	X	
	AP					
	AQ					
	AR					
	AS					
	AT					
	AU					
	AV					

OTHER REFERENCES (Including Author, Title, Date, Pertinent Pages, etc.)

	AW	
	AX	
	AY	
	AZ	☐ Additional References sheet(s) attached

Examiner		Date considered	

*Examiner: Initial if reference is considered, whether or not citation is in conformance with MPEP 609; Draw line through citation if not in conformance and not considered. Include copy of this form with next communication to applicant.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number: **JP2009-242773 A**

(43)Date of publication of application: **22.10.2009**

(51)InternationalClassification: **C10L3/06(2006.01); B01D53/22(2006.01); C10L3/10(2006.01)**

(21)Application number: **JP2008-288305**

(22)Date of filing: **11.11.2008**

(71)Applicant: **AIR WATER INC**

(72)Inventor: **TSUCHIDA YASUHIRO; OOKA YASUNORI; KANAI MAKOTO**

(30)Priority

Priority number **2008065636**

Priority date **14.03.2008**

Priority country **JP**

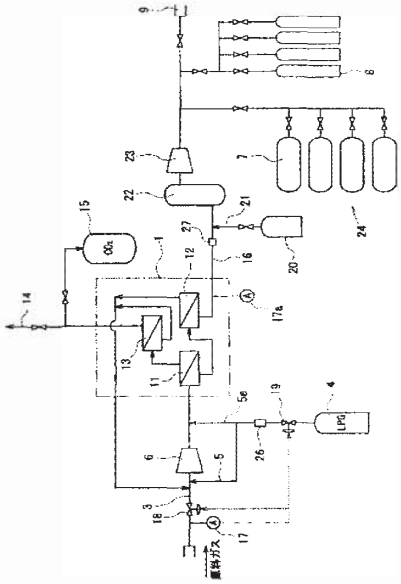
(54) [OL] METHANE GAS CONCENTRATION DEVICE, METHOD THEREFOR, FUEL GAS PRODUCTION DEVICE AND METHOD THEREFOR

(57)Abstract:

[EN]

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a methane gas concentration device which can obtain a methane gas with a high concentration at a high recovery rate.

SOLUTION: The methane gas concentration device 1 where, from a mixed gas at least comprising a methane gas and carbon dioxide, the carbon dioxide is separated, so as to concentrate the methane gas, includes: a first concentration apparatus 11 where the methane gas is concentrated by a separation membrane allowing the carbon dioxide to preferentially permeate from the mixed gas; a second concentration apparatus 12 where the methane gas is further concentrated by a separation membrane allowing the carbon dioxide to preferentially permeate from a non-permeating gas in the first concentration apparatus 11; and a recovery apparatus 13 where the methane gas is recovered by a separation membrane allowing the carbon dioxide to further preferentially permeate from a permeating gas in the first concentration apparatus 11, thus, the methane gas with a high concentration can be obtained at a high recovery rate.



This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix

powered by KRAMER HOFMANN

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix

powered by
KRAMER HOFMANN

Claims

[EN]

[Claim(s)]

[Claim 1]

It is methane concentration equipment which separates carbon dioxide from mixed gas which contains methane and carbon dioxide at least, and condenses methane,

The 1st concentration equipment which condenses methane by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,

The 2nd concentration equipment which condenses methane further by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from nontransparent gas of the above-mentioned 1st concentration equipment,

Methane concentration equipment provided with a recovery system which collects methane by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from penetration gas of the above-mentioned 1st concentration equipment.

[Claim 2]

The methane concentration equipment according to claim 1 which refluxes penetration gas of the above-mentioned 2nd concentration equipment, and nontransparent gas of a recovery system to the introduction side of the 1st concentration equipment.

[Claim 3]

Area of a separation film of the above-mentioned 1st concentration equipment and the 2nd concentration equipment omits, and is, and it is the methane concentration equipment according to claim 1 or 2.

[Claim 4]

The methane concentration equipment according to any one of claims 1 to 3 which made area of a separation film of the above-mentioned recovery system smaller than area of a separation film of the 1st concentration equipment.

[Claim 5]

It is a methane condensation method which separates carbon dioxide from mixed gas which contains methane and carbon dioxide at least, and condenses methane,

The 1st concentration step that condenses methane by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,

The 2nd concentration step that condenses methane further by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from nontransparent gas of the 1st concentration step of the above,

A methane condensation method provided with a recovery process which collects methane by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT. powered by
Please see appendix

KRAMER HOFMANN

penetration gas of the 1st concentration step of the above.

[Claim 6]

It is a manufacturing installation of fuel gas containing methane and a high Btu gas for quantity-of-heat regulation,

A high-Btu-gas adding means which adds a high Btu gas to biogas produced by disassembling an organic matter, and is made into mixed gas of biogas and a high Btu gas,

The 1st concentration equipment which condenses methane and a high Btu gas by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,

A manufacturing installation of fuel gas provided with a recovery system which collects methane and high Btu gases by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from penetration gas of the above-mentioned 1st concentration equipment.

[Claim 7]

A manufacturing installation of the fuel gas according to claim 6 which adds a high Btu gas to biogas in the upper stream of pressure rising means which voltage-increase gas which introduces the above-mentioned adding means into the 1st concentration equipment.

[Claim 8]

A manufacturing installation of the fuel gas according to claim 6 or 7 which made area of a separation film of the above-mentioned recovery system smaller than area of a separation film of the 1st concentration equipment.

[Claim 9]

It is a manufacturing method of fuel gas containing methane and a high Btu gas for quantity-of-heat regulation,

A high-Btu-gas addition process which adds a high Btu gas to biogas produced by disassembling an organic matter, and is made into mixed gas of biogas and a high Btu gas,

The 1st concentration step that condenses methane and a high Btu gas by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,

A manufacturing method of fuel gas provided with a recovery process which collects methane and high Btu gases by a separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from penetration gas of the 1st concentration step of the above.

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix

powered by
KRAMER HOFMANN

Detailed Description

[EN]

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

[0001]

The present invention relates to the manufacturing installation and method of fuel gas containing the methane concentration equipment which separates carbon dioxide from the mixed gas containing methane and carbon dioxide, and condenses methane, a method and methane, and the high Btu gas for quantity-of-heat regulation.

[Background of the Invention]

[0002]

From the former, by carrying out anaerobiotic fermentation processing of the organic wastes, such as nightsoil, purification water sludge, sewage disposal sludge, livestock-droppings urine, and garbage, with a methane fermentation bacillus, The biogas which disassembles an organic waste and mainly contains methane and carbon dioxide is generated, and the technology of using this biogas effectively as energy is developed.

[0003]

The thing of versatility [collection management technique / which, on the other hand, separates high-concentration methane and carbon dioxide from the biogas which made it generate] is developed. A membrane separation method is raised as what can be especially used for equipment of small size - a medium size.

[0004]

Such a membrane separation method performs segregation according to a difference of a transmission rate of gas constituents using a poly membrane etc.

Separation of gas constituents is possible only by making a film pass pressurized gas, and a separation film is chosen according to a kind, the amount of raw gas, etc. of target gas, If needed, it is used, combining two or more separation films in parallel, or (following Patent document 1 -3) and using it, combining in series are performed (the following Patent document 4).

[Patent document 1] JP,H11-3723,A

[Patent document 2] JP,2001-949,A

[Patent document 3] JP,2006-507385,A

[Patent document 4] JP,2007-254572,A

[Description of the Invention]

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix

powered by KRAMER HOFMANN

[Problem to be solved by the invention]

[0005]

However, if two or more separation films were only used in parallel, a recovery rate has a limit in obtaining high-concentration methane of what can be raised to some extent. On the other hand, if two or more separation films were only used in series, there is a limit in raising the recovery rate of what can obtain to some extent high-concentration methane. Thus, the actual condition is that the concentration equipment of the methane which can obtain high-concentration methane with high recovery was not obtained. When it was going to obtain fuel gas by using as a raw material the biogas which mainly contains carbon dioxide and methane, there was a problem that sufficient quantity of heat may not be obtained, only from methane.

[0006]

The present invention is made in order to solve such a problem.

The purpose is to provide a manufacturing installation and a method of methane concentration equipment, a method, and fuel gas that high-concentration methane can be obtained with high recovery.

[Means for solving problem]

[0007]

In order to attain the above-mentioned purpose, the methane concentration equipment of the present invention is methane concentration equipment which separates carbon dioxide from the mixed gas which contains methane and carbon dioxide at least, and condenses methane,

The 1st concentration equipment which condenses methane by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,

The 2nd concentration equipment which condenses methane further by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the nontransparent gas of the above-mentioned 1st concentration equipment,

Let it be a summary to have had the recovery system which collects methane by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from the penetration gas of the above-mentioned 1st concentration equipment.

[0008]

In order to attain the above-mentioned purpose, the methane condensation method of the present invention is a methane condensation method which separates carbon dioxide from the mixed gas which contains methane and carbon dioxide at least, and condenses methane,

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix

powered by
KRAMER HOFMANN

The 1st concentration step that condenses methane by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,
The 2nd concentration step that condenses methane further by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the nontransparent gas of the 1st concentration step of the above,
Let it be a summary to have had the recovery process which collects methane by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from the penetration gas of the 1st concentration step of the above.

[0009]

In order to attain the above-mentioned purpose, the manufacturing installation of the fuel gas of the present invention is a manufacturing installation of the fuel gas containing methane and the high Btu gas for quantity-of-heat regulation,
The high-Btu-gas adding means which adds a high Btu gas to the biogas produced by disassembling an organic matter, and is made into the mixed gas of biogas and a high Btu gas,
The 1st concentration equipment which condenses methane and a high Btu gas by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,
Let it be a summary to have had the recovery system which collects methane and high Btu gases by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from the penetration gas of the above-mentioned 1st concentration equipment.

[0010]

In order to attain the above-mentioned purpose, the manufacturing method of the fuel gas of the present invention is a manufacturing method of the fuel gas containing methane and the high Btu gas for quantity-of-heat regulation,
The high-Btu-gas addition process which adds a high Btu gas to the biogas produced by disassembling an organic matter, and is made into the mixed gas of biogas and a high Btu gas,
The 1st concentration step that condenses methane and a high Btu gas by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially from the above-mentioned mixed gas,
Let it be a summary to have had the recovery process which collects methane and high Btu gases by the separation film which makes carbon dioxide transmit preferentially further from the penetration gas of the 1st concentration step of the above.

[Effect of the Invention]

[0011]

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix
powered by
KRAMER HOFMANN

Since the methane concentration equipment and the method of the present invention remove carbon dioxide by two steps of concentration, the 1st step and the 2nd step, by a separation film and condense methane, they can obtain high-concentration concentration methane. Since a separation film separates carbon dioxide for the penetration gas of the 1st-step concentration further and methane is collected, the recovery rate of methane can be improved by leaps and bounds. Thus, high-concentration methane can be obtained with high recovery, for example, even if the content of methane is the environment which impurity gas, such as air, mixes into less than 60% of mixed gas, and mixed gas, high-concentration methane can be obtained with high recovery. The high-concentration choke damp can be obtained as exhaust gas after collecting methane with high recovery, and the function as a carbon dioxide recovery system is also exhibited simultaneously.

[0012]

In the methane concentration equipment and the method of the present invention, in refluxing the above-mentioned 2nd concentration equipment or the penetration gas of a process, and the nontransparent gas of a recovery system to the introduction side of the 1st concentration equipment or a process, While introducing again carbon dioxide and methane transmitted in the 2nd concentration equipment or a process into the 1st concentration equipment or a process, the methane which was not transmitted with a recovery system can be again introduced into the 1st concentration equipment or a process, and the concentration concentration and the recovery rate of methane can be improved.

[0013]

Omit, and in the methane concentration equipment and the method of the present invention, the area of the separation film of the above-mentioned 1st concentration equipment, a process and the 2nd concentration equipment, or a process is, and to a case, By [on which abbreviation etc. spread the area of the separation film of the above-mentioned 1st concentration equipment, a process and the 2nd concentration equipment or a process] carrying out, the concentration equipment of the same separation film as the 1st concentration equipment and the 2nd concentration equipment can be used, and it is advantageous in respect of equipment efficiency. Since there are few differences with the introducing pressure of the 1st concentration equipment, the introducing pressure of a process and the 2nd concentration equipment, or a process, The concentration performance of an abbreviated EQC is exerted by the thing on which abbreviation etc. spread the area of a separation film and to do, and the 1st concentration equipment or the process of the 2nd concentration equipment or a process can also improve the concentration concentration and the recovery rate of methane.

[0014]

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix
powered by
KRAMER HOFMANN

In the methane concentration equipment and the method of the present invention, when area of the separation film of the above-mentioned recovery system or a process is made smaller than the area of the separation film of the 1st concentration equipment or a process, Methane becomes more difficult to transmit the separation film of a recovery system or a process, and the recovering efficiency of methane can be improved.

[0015]

In the methane concentration equipment and the method of the present invention, when differential pressure before and behind the penetration of the separation film in the above-mentioned recovery system or a process is set to 0.1 or less MPa, methane becomes more difficult to transmit the separation film of a recovery system or a process, and the recovering efficiency of methane can be improved.

[0016]

The manufacturing installation and method of fuel gas of the present invention add a high Btu gas to biogas beforehand, make it the mixed gas of biogas and a high Btu gas, separate carbon dioxide from this mixed gas, and condense methane and a high Btu gas. By defining the mixing ratio over biogas beforehand and adding a high Btu gas by doing in this way, The fuel gas of predetermined quantity of heat with which the high Btu gas was mixed with methane with the predetermined ratio can be obtained, and the fuel gas of the quality stabilized by quantity of heat sufficient as a raw material in biogas can be obtained by easy control in this way.

[0017]

In the manufacturing installation and method of fuel gas of the present invention, when adding a high Btu gas to biogas in the upper stream of the pressure rising means which voltage-increase the gas introduced into the 1st concentration equipment or a process, the above-mentioned adding means can add a high Btu gas to low pressure biogas, and prevents liquefaction of a high Btu gas. Thereby, change of methane after a separation film penetration and the mixing ratio of a high Btu gas can be prevented, and the fuel gas of the stable quality can be obtained by easy control.

[0018]

In the manufacturing installation and method of fuel gas of the present invention, when area of the separation film of the above-mentioned recovery system or a process is made smaller than the area of the separation film of the 1st concentration equipment or a process, Methane becomes more difficult to transmit the separation film of a recovery system or a process, and the recovering efficiency of methane can be improved.

[Best Mode of Carrying Out the Invention]

[0019]

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix
powered by
KRAMER HOFMANN

Next, the best form for carrying out the present invention is described.

[0020]

Fig.1 is a configuration diagram showing an example of the fuel gas manufacturing installation with which the present invention is applied.

[0021]

This fuel gas manufacturing installation is provided with the methane concentration equipment 1 which separates carbon dioxide from the mixed gas which contains methane and carbon dioxide at least, and condenses methane, and manufactures the fuel gas containing methane and the high Btu gas for quantity-of-heat regulation.

[0022]

The biogas produced by disassembling an organic matter is used for the above-mentioned fuel gas manufacturing installation as material gas. The above-mentioned biogas is gas which contains carbon dioxide while it generates an organic waste with the digester (not shown) etc. which carry out decomposition treatment of the organic matter using anaerobic microorganisms, such as a methane bacterium, in anaerobic atmosphere and contains methane in high concentration.

[0023]

As for the above-mentioned digester, form, such as a cylinder tub, a rectangular tub, and an ovoid tub, is used, for example. As the above-mentioned digester, can also use the thing of 1 stage structure by which the agitating equipment stirred while circulating through the emitted sewage gas was provided, and, The souring tub which disassembles polymer organic matters, such as protein, into low molecule organic matters, such as organic acid, by facultatively anaerobic bacteria, the solubilization tub which decomposes oil and fat content etc. at an elevated temperature, and is dissolved, etc. can be provided in the preceding paragraph, and the thing of 2 stage structures can also be used.

[0024]

The propane addition way 5 which communicates LPG cylinder 4 is connected to the material gas introduction path 3 which introduces the above-mentioned material gas into the methane concentration equipment 1, propane is added as a high Btu gas to it to the biogas produced by disassembling an organic matter, and it is considered as the mixed gas of biogas and propane in it. LPG cylinder 4 and the propane addition way 5 function as a high-Btu-gas adding means of the present invention. The propane addition way 5a which is changed into the propane addition way 5 and shown with a chain line in a graphic display is provided, and a high Btu gas can be added to the downstream side of the compressor 6.

[0025]

As a high Btu gas, not only propane but ethane gas and commercial butane can also be

This text is a machine translation offered by JPO and INPIT.
Please see appendix
powered by
KRAMER HOFMANN