

JAERI-Research

97-076



ポリイミド分離膜を用いた水蒸気改質生成ガスからの
メタン分離に関する研究

1997年10月

小磯浩司*・稲垣嘉之・会田秀樹・関田健司・羽賀勝洋・日野竜太郎

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 いばらき印刷(株)

ポリイミド分離膜を用いた水蒸気改質生成ガスからのメタン分離に関する研究

日本原子力研究所大洗研究所核熱利用研究部

小磯 浩司*・稲垣 嘉之・会田 秀樹・関田 健司

羽賀 勝洋・日野竜太郎†

(1997年10月1日受理)

天然ガス（主成分： CH_4 ）の水蒸気改質法を用いたHTTR水素製造システムでは、高圧・低温（4.5MPa、800°C）の反応条件のため、 CH_4 の転化率は約65%の低い値に止まっている。この CH_4 転化率を向上させる手法の一つとして考えられたのが、未反応 CH_4 のリサイクルシステムである。このシステムは、改質後の生成ガス中からガス分離器を用いて CH_4 を分離し、改質器へ戻すことにより、実質的に CH_4 転化率を向上させるものである。

ポリイミド分離膜について、 CH_4 、 H_2 、 CO_2 、 CO の混合ガス中からの CH_4 分離特性を明らかにするために、実験及び数値解析を行った。混合ガスを用いて測定した各成分ガスの透過率は、単体ガスを用いた測定値（カタログ値）に対して約1/3～1/14に減少した。 CH_4 の分離については、混合ガス中から約80%の割合で CH_4 を回収することができ、 H_2 及び CO_2 については98%以上を除去することができた。これらの結果からポリイミド分離膜は、リサイクルシステムに有用であることを確認した。また、差分法による解析は透過量、モル分率分布等の実験結果をよく再現しており、分離挙動についての解析手法を確立することができた。

大洗研究所：〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀3607

† 東海研究所中性子科学研究センター

* 石川島播磨重工業株式会社

Study on Methane Separation from Steam Reforming Product Gas
with Polyimide Membrane

Hiroshi KOISO*, Yoshiyuki INAGAKI, Hideki AITA, Kenji SEKITA,
Katsuhiro HAGA and Ryutaro HINO⁺

Department of Advanced Nuclear Heat Technology
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaragi-gun, Ibaraki-ken

(Received October 1, 1997)

In the HTTR hydrogen production system by steam reforming of natural gas (main component: CH₄), CH₄ conversion rate is limited to approximately 65% due to high pressure and low temperature conditions (4.5MPa, 800°C). The one of the measures to improve CH₄ conversion is recycling of residual CH₄ extracted from steam reforming product gas with a gas separator.

Experimental and analytical studies on CH₄ separation from gas mixture composed of CH₄, H₂, CO₂ and CO were carried out to investigate gas separation characteristics of a polyimide membrane gas separator. Measured permeability of each gas in gas mixture was reduced from 1/3 to 1/14 of that obtained with a single gas (catalog value). The polyimide membrane could extract CH₄ of approximately 80% from gas mixture, then, H₂ and CO₂ more than 98% were removed. It was confirmed that the polyimide membrane could be available to residual CH₄ recycling. The analytical results by a difference method gave good prospects of experimental results such as permeated flow rate, mol-fraction profiles and so on. Therefore, it can be said the analysis method was established.

Keywords: Experiment, Analysis, HTTR, Hydrogen Production System, Steam Reforming,
Gas Separation, Polyimide Membrane, Residual Methane Recycling

* Center for Neutron Science, Tokai Research Establishment

* Ishikawajuma-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

目 次

1. まえがき	1
2. 試験方法	4
2.1 実験方法	4
2.2 解析方法	5
3. 試験結果と考察	10
3.1 透過係数	10
3.2 未透過流量における各成分ガスの流量とモル比	10
3.3 透過流量における各成分ガスの流量とモル比	11
3.4 ガス分離器内の分離挙動	12
4. まとめ	20
謝 辞	20
参考文献	21
付 録	22
A.1 ガス分離膜の概要	22
A.1.1 ガス分離膜の分類	22
A.1.2 ポリイミド高分子膜とガス分離器	24
A.2 ガス分離試験の実験データ	27

Contents

1. Introduction	1
2. Test Procedures	4
2.1 Experimental Procedures	4
2.2 Analytical Procedures	5
3. Results and Discussions	10
3.1 Permeability	10
3.2 Profile of Flow Rate and Mol-Fraction of Residual Gas	10
3.3 Profile of Flow Rate and Mol-Fraction of Permeated Gas	11
3.4 Separation Behavior in Gas Separator	12
4. Remarkable Conclusions	20
Acknowledgment	20
References	21
Appendix	22
A.1 Outline of Gas Separator	22
A.1.1 Classification of Gas Separator	22
A.1.2 Polyimide Membrane and Gas Separator	24
A.2 Experimental Gas Separation Data	27

1. まえがき

原研では平成9年度の臨界を目指して我が国初の高温ガス炉 HTTR の建設を進めており、一連の試験運転後には高温核熱利用の実証を目的として、天然ガスの水蒸気改質による水素製造システムとの接続が計画されている^(1,2)。この水蒸気改質システムは工業的に確立された技術であり、反応は次式で示される。



(1.1) 式の反応には高温・低圧が有利であるが、HTTR の運転条件（二次側冷却材温度：905℃、圧力：4.2MPa）により、従来の工業プラントよりも低温・高圧（800℃、4.5MPa）で反応を行わせる。このため、天然ガスの主成分である CH₄（メタン）の転化率（ここでは、「CH₄ の転化量 ÷ CH₄ の供給量」と定義する）は化学平衡条件から約 65 % となり、工業プラント（CH₄ 転化率：約 90 %）に比較して低い値にとどまっている。したがって、HTTR のシステムでは、大量の未反応メタンが発生することになる。ドイツでは HTTR と同様に CH₄ の水蒸気改質の研究開発^(3,4) が行われてき、ドイツのシステムは(1.1)式が可逆反応であることを利用した高温ガス炉の核熱の遠距離輸送を目的としたものである。原子炉側で(1.1)式の左辺から右辺への吸熱反応を行わせることにより、核熱を CO と H₂ の化学エネルギーに変換して輸送し、熱利用側で(1.1)式の右辺から左辺への発熱反応により熱を取出そうとする試みである。このとき、CH₄ は原子炉側と熱利用側の間で循環する。これに対して HTTR のシステムは原子炉側で H₂ を製造し、将来の水素利用社会への貢献を目指したものであり、このためには核熱を有効に利用するとともに、原料である CH₄ を効率よく H₂ へ変換することが必要となる。

CH₄ の転化率を向上させる手法としては、①メンブレンリアクタによる反応促進⁽⁵⁾、②未反応 CH₄ を回収してリサイクルを行う等が考えられる。しかし、メンブレンリアクタは研究段階であり、現時点では原子力プラントへの適用は困難である。それに対して未反応 CH₄ のリサイクルは、既存技術の組み合わせにより早期のシステム構築が可能となる。そこで、CH₄ の転化率を向上させる改良プロセスとして、分離器を用いて反応後生成ガス中から未反応 CH₄ を分離回収し、反応器へリサイクルする小規模のシステムを構築し、基礎試験を実施している⁽⁶⁾。その試験装置の構成を Fig. 1.1 に示す。試験装置は、CH₄ と水蒸気の供給系、反応管、ガス分離器を含むメタンの供給系から構成される。ガス分離器は、CH₄ と H₂ に対して分離選択性が優れたポリイミド高分子分離膜で構成されている。改質反応後の生成ガスは、H₂、CO₂、CO 及び未反応 CH₄ の混合ガスであり、これらは反応管からガス分離器へ送られて未反応 CH₄ が分離・抽出され、反応管へリサイクルされる。これによって、ポンベからの CH₄ 供給量を低減し、転化率を向上させることができる。

このシステムでは、ガス分離器を用いて混合ガスから(1.1)及び(1.2)式の反応を阻害する H₂ 及び CO₂ を除去し、未反応 CH₄ を効率よく回収することが重要な要素となる。しかし、ガス分離膜については、その素材に関係なく混合ガスを構成するガスの種類、成分比、流量等に応じて分離挙動が異なるため、カタログに提示されているような単体ガスの実験で得られた透過係数では、混合ガスの分離挙動を精度よく予測することは困難である。したがって、対象となる混合ガスの

分離実験から新たに各成分ガスの透過係数を求めることが必要である。

本報告書は、リサイクル試験の条件（混合ガス流量、圧力、成分比等）を模擬した4成分混合ガス（ CH_4 、 H_2 、 CO_2 、 CO ）を作成して行った分離実験と数値解析について述べたものである。使用したガス分離器は、ポリイミド系高分子分離膜（宇部興産製 USM-B10）で、分離実験により各成分ガスの透過係数を求め、それをを用いて差分法による数値解析を実施した。分離実験から、混合ガス中の H_2 及び CO_2 を除去し、未反応 CH_4 を効率よく回収するための条件（ガス分離器のガス供給側とガス透過側の差圧設定）についての知見を得ることができた。また、解析結果は、実験の分離挙動をよく再現しており、解析手法の妥当性を確認することができた。

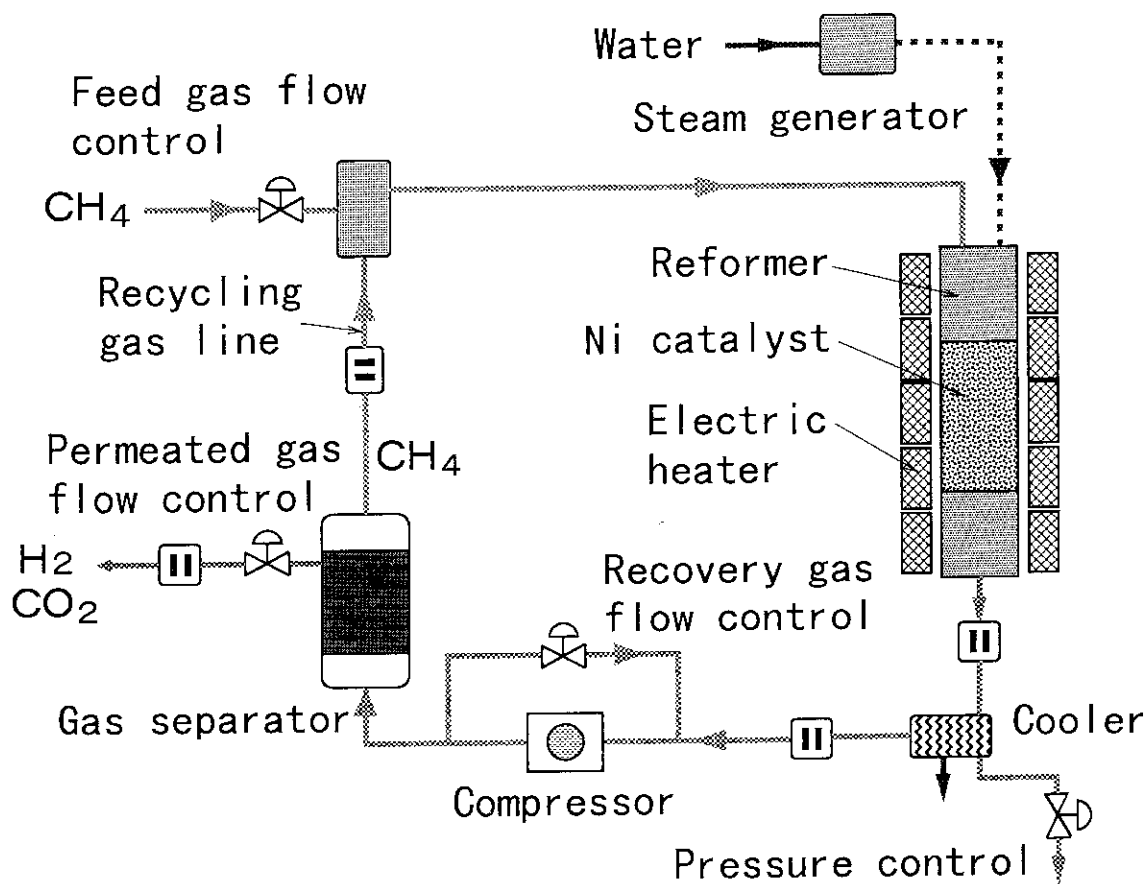


Fig. 1.1 Schematic flow diagram of residual methane recycling system.

2. 試験方法

本試験は、未反応 CH_4 のリサイクルにより CH_4 転化率の向上を図るため、 CH_4 、 H_2 、 CO_2 、 CO の4成分混合ガスについて、ポリイミド高分子ガス分離膜による分離実験を行って各々のガスについての透過特性を明らかにするとともに、数値解析による分離挙動の予測手法を確立することを目的としている。混合ガスの成分比は、水蒸気改質器出口の状態を模擬した。

2. 1 実験方法

(1) 実験装置の構成

実験装置は、Fig. 2.1 に示すようにガスポンペ、ガス混合器、ガス分離器、流量計及びガスクロマトグラフ等の計測系から構成される。ガス分離器（宇部興産製 USM-B10）は、金属製容器の中にポリイミド高分子膜の中空糸（外径 ϕ 0.42mm）を2160本収納したものであり、その透過部の表面積は 2.88m^2 である。ポリイミド高分子膜については、付録を参照されたい。ガス分離器の構造を Fig. 2.2 に示す。ガス分離器の設置方法は、最も分離特性が優れている向流型⁽⁷⁾とした。

各ガスは、ガスポンペから減圧弁で所定の圧力に設定して混合器へ送られる。混合器で各ガスの流量が設定され、その結果、ガス分離器入口での混合ガスの成分比が定まる。ガス分離器の透過量は、ガス分離器の入口ガスと透過ガスの差圧で制御を行い、その差圧は透過ガスラインに設けた圧力調整弁で制御した。また、系統圧の制御は、ガス分離器の未透過ガスラインに設けた圧力調整弁で行った。透過ガス及び未透過ガスについては、各々流量とガスクロマトグラフで各成分ガスの濃度を計測した後、大気へ放出した。

(2) 実験条件と評価方法

試験条件を Table 2.1 に示す。ガス分離器入口の CH_4 、 H_2 、 CO_2 、 CO の成分比は、リサイクル実験での試験条件を参考とし、 CH_4 の転化率が 60%、30% と想定した場合の割合で、また、そのときの CO の CO_2 への転化率を 70% とし、化学反応式(1.1)及び(1.2)に基づいて算出した。主な試験条件を以下に示す。

試験温度 : 常温

ガス分離器入口ガス圧力 : 0.3 MPa、0.5 MPa

ガス分離器入口ガス流量 : $2.60 \times 10^{-3} \text{mol/s}$ (58.3 Ncc/s) ~
 $5.58 \times 10^{-3} \text{mol/s}$ (125.0 Ncc/s)

試験パラメータは、試験系統圧力、入口ガスの成分比と流量、ガス分離器の入口ガスと透過ガスの差圧である。以下に、計測項目を示す。

- ①熱電対によるガス分離器入口ガス温度。
- ②ガスクロマトグラフによるガス分離器の透過ガス及び未透過側のガスの成分濃度。
- ③体積流量計による透過ガスの流量。
- ④石鹸膜流量計による未透過ガスの流量。
- ⑤ガス分離器の入口ガスと未透過ガス間の差圧。

⑥ガス分離器の透過ガス、未透過ガスの圧力

また、ガス分離特性を評価する上で重要な供給側と透過側の各成分ガスの分圧差 dp は、次式を用いて求めた。

$$dp_i = (M_{F,i} P_H + M_{R,i} P_H) / 2 - M_{P,i} P_L \quad (2.1)$$

dp : 供給側と透過側の分圧差 (Pa)

M : モル分率

P_H : ガス分離器供給側圧力 (Pa)

P_L : ガス分離器透過側圧力 (Pa)

S : 透過有効表面積 (m^2) ($= 2.88 m^2$)

添字

i : ガス成分

F : ガス分離器未透過側入口

R : ガス分離器未透過側出口

P : ガス分離器透過側出口

2. 2 解析方法

ガス分離性能を次に示す方法で数値解析により求めて、実験結果と比較した。

解析モデルは Fig. 2.3 に示すように向流型の差分モデルで、スタガ格子を用いた。要素の分割数については、軸方向に 20、50、100、250 分割の 4 ケースについて試解析を行ったが、50 分割以上では解析結果に差が見られないことから、ガス分離器軸方向の分割数を 50 として検討を進めた。また、透過流量は供給側と透過側の各成分ガスの分圧差に比例するものとした。このとき透過係数は一定となり、実験から求めた値を用いた。

使用した計算式を以下に示す。

$$Q_{F,i} = Q_{P,i} + Q_{R,i} \quad (2.2)$$

$$\frac{dQ_{P,i,j}}{dS} = K_i (p_{i,j} - p'_{i,j}) \quad (2.3)$$

$$Q_{P,i} = \sum_{j=1}^{50} dQ_{P,i,j} \quad (2.4)$$

$$Q_{R,i} = Q_{F,i} - \sum_{j=1}^{50} dQ_{P,i,j} \quad (2.5)$$

Q : 各成分ガスの流量

K : 各成分ガスの透過係数

p : 各成分ガスの供給側の分圧

p' : 各成分ガスの透過側の分圧

添字

j: 差分格子の番号

解析の手順は以下のように行った。境界条件としてガス分離器入口の供給ガス流量、圧力を与え、混合ガスの供給側と透過側の差圧は全格子において一定とした。すなわち、ガス分離器内の圧力損失は無視できるものとした。計算は、ガス分離器の未透過ガスの排出量を仮定して、(2.3)～(2.5)を用いて逐次代入法でガス分離器の出口部から始め、その部分の格子での透過流量が収束した後に上流の格子へ計算を進めた。そして、全格子の計算が終了した後にガス分離器入口部での物質収支を求め、(2.2)式を満たすまで未透過ガス排出量を補正して計算を繰り返した。

ガス分離器の解析で次のものを求めた。

- ① 各要素における各成分ガスの透過側流量、モル分率
- ② 各要素における各成分ガスの未透過側流量、モル分率
- ③ 各要素の透過流量
- ④ 未透過側入口、未透過側出口、透過側出口における各成分ガスの流量、モル分率

Table 2.1 Gas separation test conditions.

試験番号		1	2	3	4	5
混合ガス流量 (mol/s) / (Ncc/s)		4.34×10^{-3} / 97.2	4.34×10^{-3} / 97.2	3.72×10^{-3} / 83.3	5.58×10^{-3} / 125.0	2.60×10^{-3} / 58.3
供給側圧力 (MPa)		0.5	0.5	0.5	0.5	0.3
差圧 (MPa) / 試験番号		0.10/1-1 0.15/1-2 0.20/1-3 0.25/1-4 0.30/1-5 0.35/1-6 0.40/1-7	0.10/2-1 0.15/2-2 0.20/2-3 0.25/2-4 0.30/2-5 0.35/2-6 0.40/2-7	0.10/3-1 0.15/3-2 0.20/3-3 0.25/3-4 0.30/3-5 0.35/3-6 0.40/3-7	0.10/4-1 0.15/4-2 0.20/4-3 0.25/4-4 0.30/4-5 0.35/4-6 0.40/4-7	0.10/5-1 0.15/5-2 0.20/5-3
混合 ガス 成分 比 (%)	H ₂	51.93	68.36	51.93	51.93	68.36
	CH ₄	33.65	12.66	33.65	33.65	12.66
	CO ₂	8.65	11.39	8.65	8.65	11.39
	CO	5.77	7.59	5.77	5.77	7.59
備考		CH ₄ 転化率 30%想定	CH ₄ 転化率 60%想定	CH ₄ 転化率 30%想定	CH ₄ 転化率 30%想定	CH ₄ 転化率 60%想定

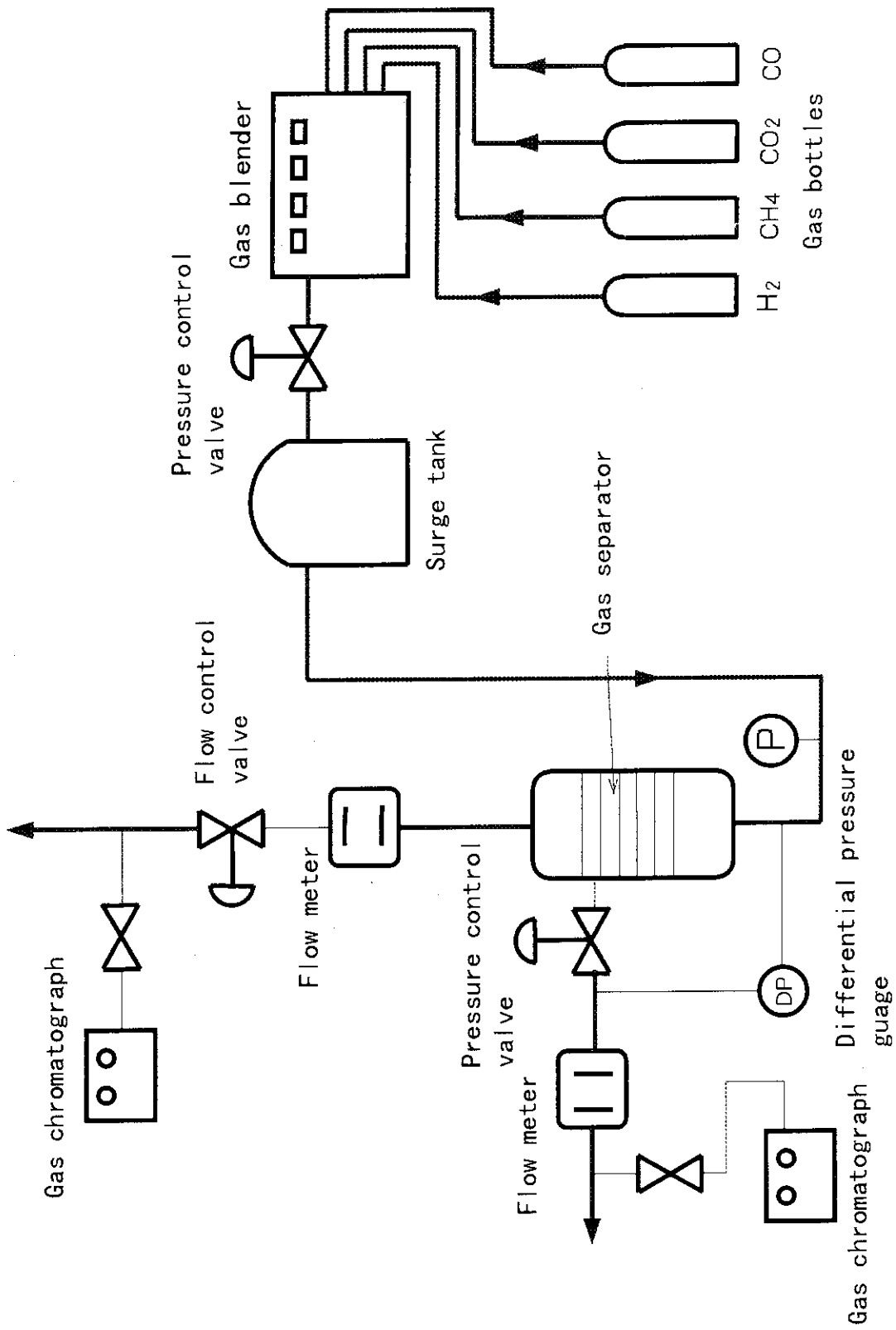


Fig. 2.1 Schematic flow diagram of gas separation test.

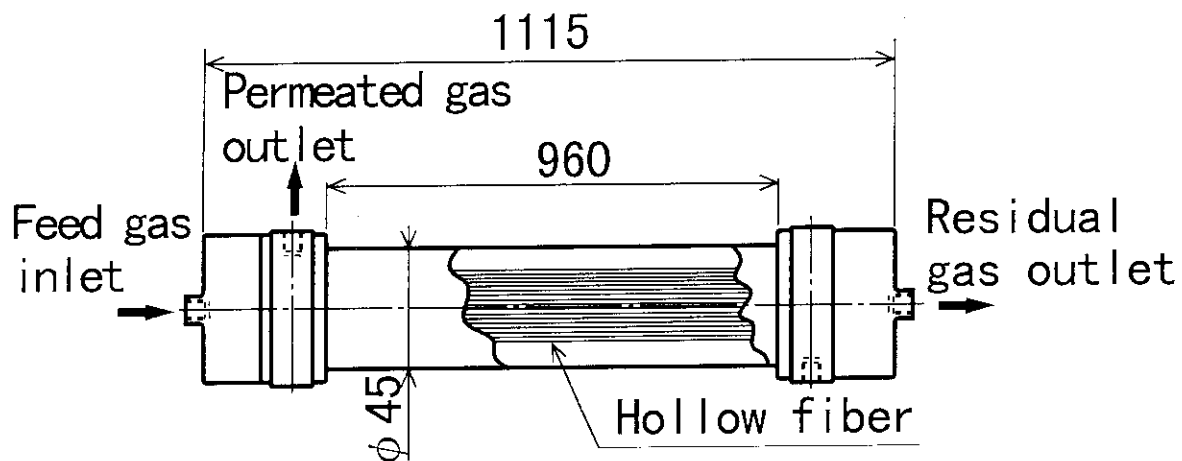


Fig. 2.2 Schematic view of gas separator.

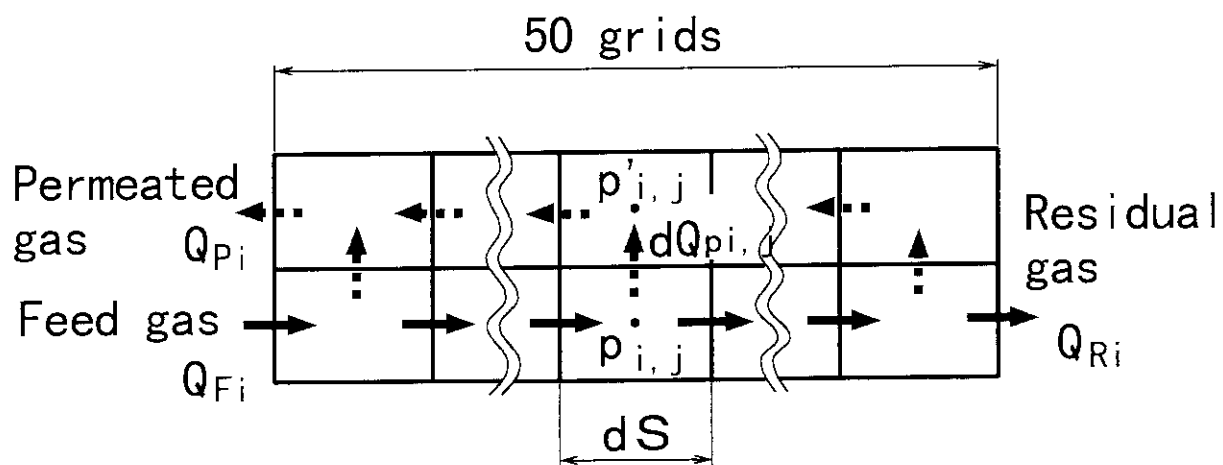


Fig. 2.3 Analytical model of gas separator.

3. 試験結果と考察

3. 1 透過係数

混合ガスを用いた透過実験から得られた各成分ガスの分圧差と透過流量の関係を Fig. 3.1 に示す。図中の記号は計測値を示しており、実線は計測値を修正トンプソン法によってばらつきが5%の有意水準内に収まるように求めた透過係数を用いて、分圧差と透過流量の関係をプロットしたものである。すなわち、実線の傾きが透過係数となる。得られた各々の透過係数は、 H_2 : 1.11×10^{-8} 、 CO_2 : 1.42×10^{-8} 、 CO : 5.43×10^{-10} 、 CH_4 : 2.58×10^{-10} mol/m²sPa で、 CH_4 を基準にするとその比率は H_2 : CO_2 : CO : CH_4 = 43:55:2.1:1 となる。なお、本試験の範囲内では透過係数に与える圧力、流量、成分比等の影響は見られなかった。

H_2 と CO_2 の透過係数を比較すると、 CO_2 が H_2 よりも約 1.3 倍大きくなっているが、これは以下の理由による。Fig. 3.1 に示す透過流量と分圧差の関係をみると、 H_2 については分圧差が 0.03MPa 以下の領域では実線よりも透過流量の実測値は小さいが、分圧差が 0.03MPa 以上の領域では、分圧差と透過流量の関係はほぼ実線に沿っている。一方、 CO_2 については、分圧差が約 0.007MPa 以下の領域では透過流量の実測値が実線よりも大きく、また、分圧差が約 0.007MPa 以上の領域では、実線よりも小さくなるというように、分圧差の増加とともに透過係数が減少する傾向を示している。これらの平均から求めた透過係数が、上記の 1.42×10^{-10} mol/m²sPa であり、数値解析にはこの値を用いた。さらに詳細に分圧差と透過係数の傾向をみると、分圧差が 0.001MPa 以上の領域では、分圧差と透過流量の間に直線的な相関（図中の点線）がみられる。その傾き（すなわち、透過係数）は、 7.84×10^{-9} mol/m²sPa で、 H_2 の透過係数よりも小さくなる。 CO_2 の分圧差が本試験よりも大きな条件下では、この 7.84×10^{-9} mol/m²sPa が CO_2 の透過係数と考えられる。

混合ガスによる透過実験により求めた各ガスの透過係数は、単体ガスで計測した透過係数（カタログ値）⁽⁶⁾ に比べて小さくなる結果を得た。実験より得られた透過係数は、カタログ値に比べて、 H_2 は約 1/14、 CO_2 は約 1/3、 CO と CH_4 は約 1/5 となり、 H_2 の透過係数が最も顕著に減少した値を示していた。このことは、単体ガスの実験から求めた透過係数では、混合ガスの分離挙動を精度よく予測することが困難であることを示しており、分離対象となる混合ガスの成分比を模擬した混合ガスの透過実験により、新たに各成分ガスの透過係数を求めることが必要である。

3. 2 未透過流量における各成分ガスの流量とモル比

Fig. 3.2 にガス分離器出口における未透過流量と差圧の関係について実験結果（図中の記号）と解析結果（図中の線）を示す。実験及び解析の条件は、Table 2.1 の試験番号2の CH_4 転化率が 60% を想定した条件（ H_2 : 68.36%、 CH_4 : 12.66%、 CO_2 : 11.39%、 CO : 7.59%）で、ガス分離器への混合ガスの供給流量は 4.34×10^{-3} mol/s、各成分ガスの供給量は H_2 : 2.97×10^{-3} 、 CH_4 : 5.51×10^{-4} 、 CO_2 : 4.95×10^{-4} 、 CO : 3.30×10^{-4} mol/s である。透過係数については実験より求めた値を用いており、供給側と透過側の差圧をパラメータとしている。

実験によるガス分離器出口の未透過流量は、差圧が 0.1 ~ 0.4MPa の範囲において、 H_2 : 2.19×10^{-6} ~ 2.18×10^{-3} 、 CH_4 : 4.16×10^{-4} ~ 5.30×10^{-4} 、 CO_2 : 8.63×10^{-6} ~ 3.81×10^{-4} 、

CO : $1.95 \times 10^{-4} \sim 2.87 \times 10^{-4}$ mol/s であり、供給量に対する未透過流量の割合は H₂ : 0.7 ~ 73.5 %、CH₄ : 75.4 ~ 96.1 %、CO₂ : 1.7 ~ 76.9 %、CO : 59.0 ~ 87.1 % となる。(3.1)式に示す未透過出口流量の解析の実験結果に対する相対誤差 ϵ は、H₂ : 0.9 ~ 47.0 %、CH₄ : 1.4 ~ 4.1 %、CO₂ : 3.1 ~ 92.9 %、CO : 0.3 ~ 6.5 % であった。

$$\epsilon = \frac{(\text{未透過流量の実験値}) - (\text{未透過流量の解析値})}{(\text{未透過流量の実験値})} \times 100 (\%) \quad (3.1)$$

相対誤差は差圧が増加するにつれて大きくなる傾向があり、特に、H₂ と CO₂ については大きい。これはこの2つのガスの透過量が多く、差圧が増大するにつれてガス分離器出口での未透過流量が小さくなることによる。例えば、差圧 0.4MPa の条件で H₂ の未透過量の実験値 2.19×10^{-5} mol/s に対して解析値は 1.16×10^{-5} mol/s であり、供給量に対する割合で示すと実験値の 0.7 % に対し、解析値は 0.4 % である。また、CO₂ については未透過量の実験値 8.63×10^{-6} mol/s に対して解析値は 6.13×10^{-7} mol/s、供給量に対する割合で示すと実験値の 1.7 % に対し、解析値は 0.1 % であり、H₂ 及び CO₂ とも供給量のほとんどが透過している。すなわち、(3.1)式において分子の実験値と解析値の差が小さいにもかかわらず、分母の値も小さくなるために相対誤差 ϵ が大きくなっている。ちなみに、(3.1)式の分母をガス分離器入口での供給流量とすると、各々のガスの実験と解析の誤差は H₂ : 0.4 ~ 1.6 %、CH₄ : 1.1 ~ 4.0 %、CO₂ : 1.6 ~ 5.1 %、CO : 0.2 ~ 3.9 % となり、解析は実験結果をよく再現していると言える。

Fig. 3.3 にガス分離器出口の未透過ガス中の成分ガスのモル分率と差圧の関係を示す。ガス分離膜では、改質反応生成ガス中から未反応 CH₄ を 100 % 回収することは不可能で、(1.1)及び(1.2)式の反応を阻害する H₂ 及び CO₂ を除去する際に CH₄ の一部が透過し、また、ガス分離器出口での未透過ガス中にも H₂ 及び CO₂ が含まれる。実験及び解析の結果によれば、ガス分離器の供給側と透過側の差圧が 0.35MPa 以上であれば、未透過ガス中の H₂ 及び CO₂ の濃度は、各々 7 % 及び 1 % 以下まで低減できることが分かった。これを改質反応で生成したガス量、すなわち、ガス分離器入口の各ガスの供給流量と比較すると、H₂ が 2 %、CO₂ が 1 % 程度となり、改質反応に及ぼす影響は小さいと考えられる。このことからリサイクルシステムにおいては、ガス分離器の供給側と透過側の差圧を 0.35MPa 以上にする必要がある。一方、差圧が 0.35MPa のときの CH₄ の未透過量は、ガス分離器の入口に対して約 78 % であり、高効率で未反応 CH₄ を回収することができる。

3.3 透過流量における各成分ガスの流量とモル比

Fig. 3.4 に透過流量と差圧の関係について実験結果 (図中の記号) と解析結果 (図中の線) を示す。実験及び解析の条件は、上記の(2)と同様に Table 2.1 の試験番号2の CH₄ 転化率が 60 % を想定した条件である。

実験による透過流量は、差圧が 0.1 ~ 0.4MPa の範囲において、H₂ : $7.86 \times 10^{-4} \sim 2.95 \times 10^{-3}$ 、CH₄ : $2.14 \times 10^{-5} \sim 1.36 \times 10^{-4}$ 、CO₂ : $1.14 \times 10^{-4} \sim 4.90 \times 10^{-4}$ 、CO : $4.27 \times 10^{-5} \sim 1.35 \times 10^{-4}$ mol/s であり、供給量に対する透過量の割合は H₂ : 26.5 ~ 99.3 %、CH₄ : 3.9 ~ 24.6 %、CO₂ : 23.1 ~ 98.3 %、CO : 12.9 ~ 41.0 % となる。(3.2)式に示す透過流量の解析の実験結果に対する相対誤差 ϵ は、H₂ : 0.5 ~ 8.9 %、CH₄ : 5.6 ~ 72.7 %、CO₂ : 0.7 ~ 6.6 %、CO :

1.5 ~ 16.5 %であった。

$$\varepsilon = \frac{(\text{透過流量の実験値}) - (\text{透過流量の解析値})}{(\text{透過流量の実験値})} \times 100 (\%) \quad (3.2)$$

透過流量の相対誤差は、未透過量の場合とは逆に差圧が低い条件の CH_4 と CO において大きくなっている。差圧 0.1MPa の条件で CH_4 の透過量の実験値 $2.14 \times 10^{-5} \text{mol/s}$ に対して解析値は $3.70 \times 10^{-5} \text{mol/s}$ であり、供給量に対する割合で示すと実験値の 3.9 % に対し、解析値は 6.7 % である。また、 CO については未透過量の実験値 $4.27 \times 10^{-5} \text{mol/s}$ に対して解析値は $3.56 \times 10^{-5} \text{mol/s}$ 、供給量に対する割合で示すと実験値の 12.9 % に対し、解析値は 10.8 % であり、 H_2 及び CO_2 とともに供給量のほとんどが透過している。すなわち、(3.2)式において分子の実験値と解析値の差が小さいにもかかわらず、分母の値も小さくなるために相対誤差 ε が大きくなっている。

(3.2)式の分母をガス分離器入口での供給流量とすると、各々のガスの実験と解析の誤差は H_2 : 0.2 ~ 2.4 %、 CH_4 : 0.6 ~ 2.9 %、 CO_2 : 0.7 ~ 4.2 %、 CO : 0.6 ~ 3.0 % となる。

Fig. 3.5 に透過側出口ガスのモル分率と差圧の関係実験結果 (図中の記号) と解析結果 (図中の線) を示す。差圧が 0.1 ~ 0.4MPa の範囲において、各成分ガスの透過ガスのモル分率の実験値は、 H_2 : 79.6 ~ 81.6 %、 CH_4 : 2.2 ~ 3.7 %、 CO_2 : 11.8 ~ 13.3 %、 CO : 2.9 ~ 4.4 % とほぼ一定な分布を示している。また、解析は実験結果をよく再現している。

このガス分離膜を改質反応後の H_2 精製用として用いた場合を考えると、差圧 0.4MPa の条件で生成した H_2 の 99.3 % を回収できるが、供給ガス中の H_2 モル分率 68.3 % に対して回収ガス (透過ガス) 中の H_2 モル分率は 79.6 % であり、供給ガスに対して H_2 モル分率を僅かに 11 % 向上させたにすぎない。また、Fig. 3.5 からわかるように差圧を変化させても透過ガス中の H_2 モル分率はほとんど変化しない。これは、主に CO_2 の透過量が大きなことによるものであり、 H_2 と CO_2 を分離させることが困難であることを示している。このことから、本試験で使用したガス分離膜は H_2 精製用としては不適であるといえる。

3.4 ガス分離器内の分離挙動

Fig. 3.6 はガス分離器軸方向の未透過側のガス流量の分布 (解析結果)、Fig. 3.7 はモル分率の分布 (解析結果) を示しており、図の横軸 (ガス分離器の軸方向の距離) は解析モデルの格子番号で示している。解析条件は CH_4 の転化率が 60 %、差圧が 0.35MPa の試験番号 2-6 である。 H_2 及び CO_2 は、ガス分離器の全長の約 80 % (格子番号 40) の位置で全透過量の 98 % 以上が除去されている。透過係数の小さい CH_4 と CO の流量分布は、透過係数の大きな H_2 及び CO_2 に比較して流量の変化は小さい。

Fig. 3.8 はガス分離器軸方向の透過側のガス流量の分布 (解析結果)、Fig. 3.9 はモル分率の分布 (解析結果) を示している。透過側のガスの出口は格子番号の 1 であり、また、Fig. 3.8 で CH_4 のガス流用分布は CO の分布 (図中の一点鎖線) とほぼ同じである。 H_2 と CO_2 のモル分率が減少するのに対し CH_4 と CO のモル分率が上昇していく様子がわかる。

Fig. 3.10 はガス分離器軸方向における供給側と透過側の各成分ガスの分圧差の変化、Fig. 3.11 は各格子における透過量の変化を示したもので、Fig. 3.11 で CH_4 の透過流量の分布は CO の分布 (図中の一点鎖線) とほぼ同じである。格子番号 50 における H_2 との分圧差と透過流量は供給部

に対して 2.1 %、CO₂ については供給部に対して 0.9 %まで低下している。一方、CH₄ と CO については H₂ と CO₂ の透過につれて分圧差が上昇し、透過流量も増加している。また、格子番号が 40 以上の領域では、H₂ と CO₂ の分圧差及び透過流量の変化が小さいことから、これ以上の透過面積は不要であり、本試験並びにのリサイクル試験において、ガス分離器のサイズは適切であったと考えられる。

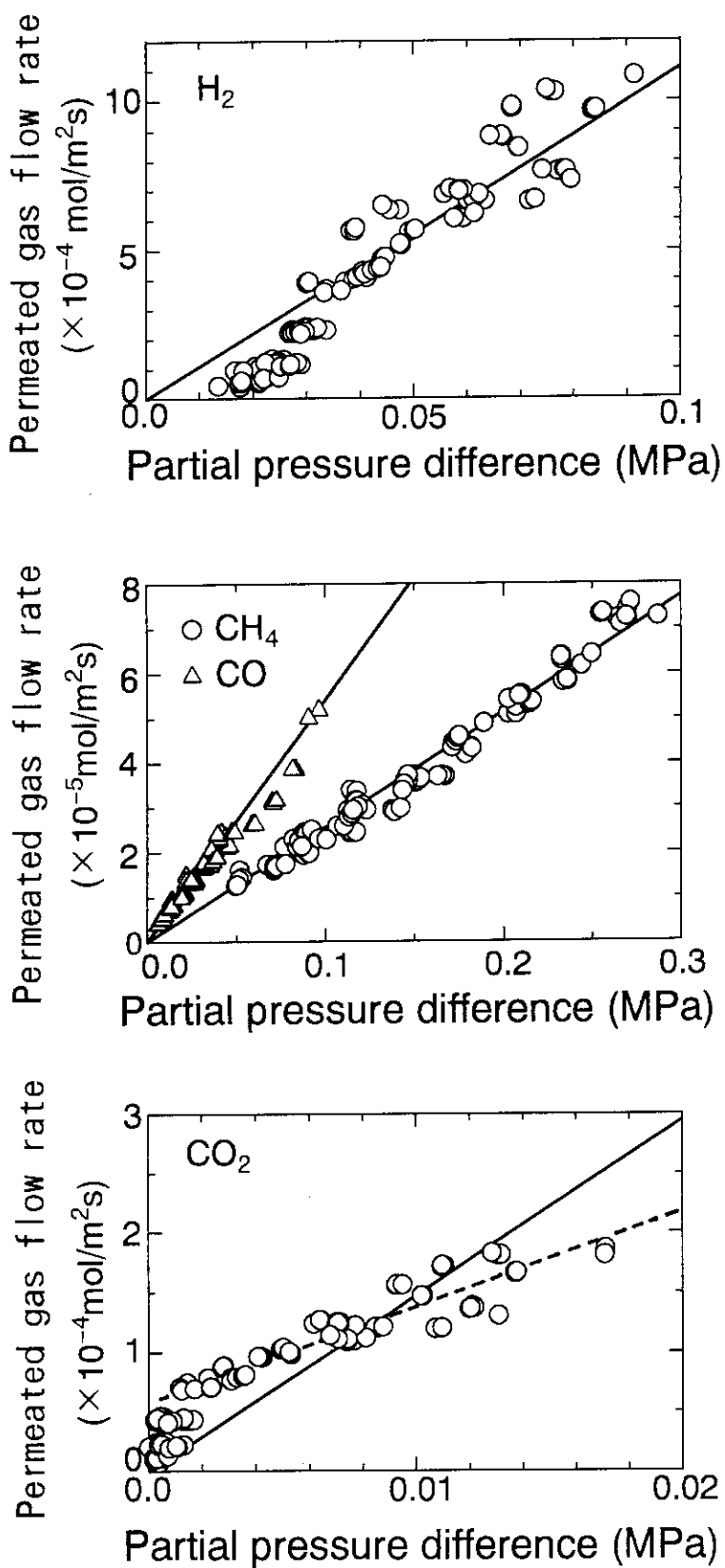


Fig. 3.1 Relationship between permeated gas flow rates and partial pressure difference.

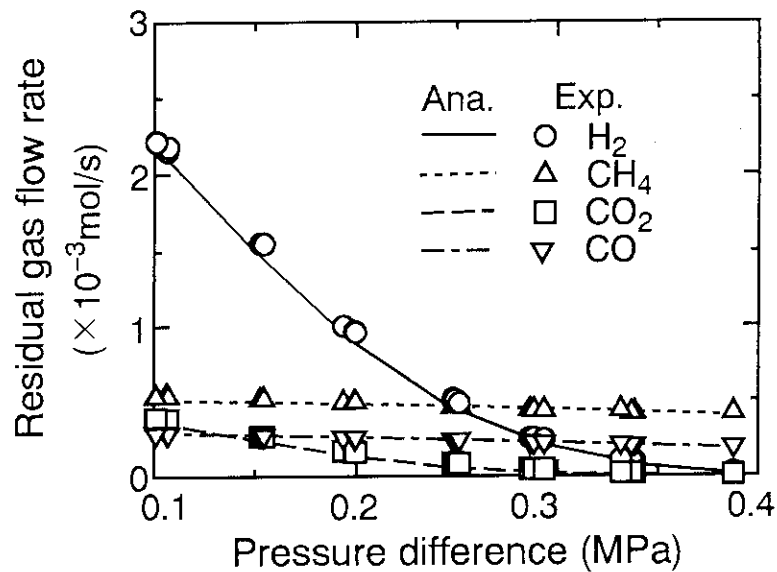


Fig. 3.2 Comparison of residual gas flow rates between experimental and analytical results.

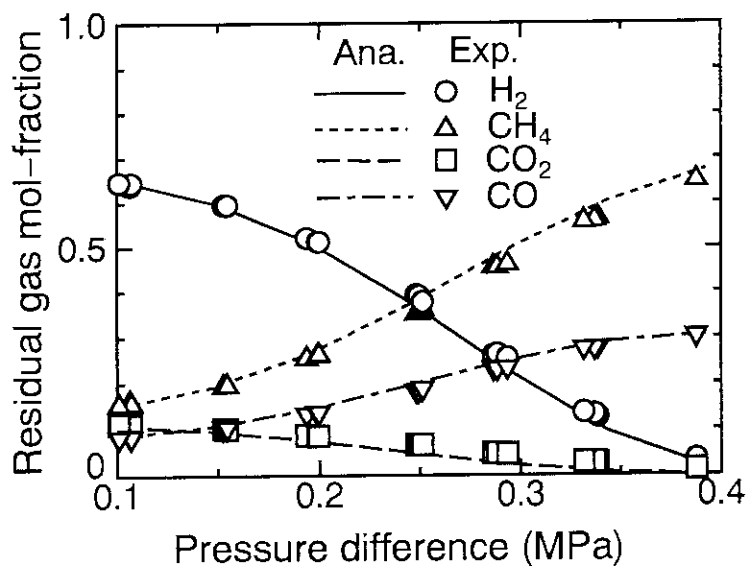


Fig. 3.3 Comparison of residual gas mol-fractions between experimental and analytical results.

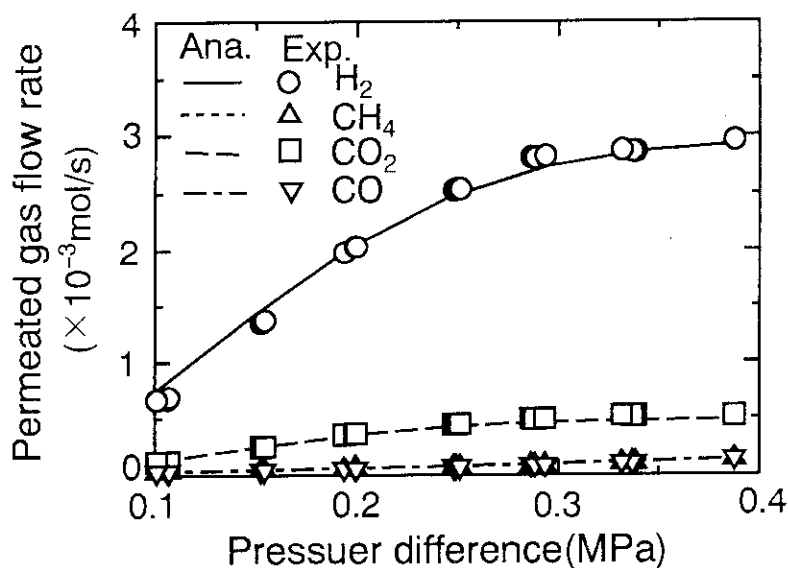


Fig. 3.4 Comparison of permeated gas flow rates between experimental and analytical results.

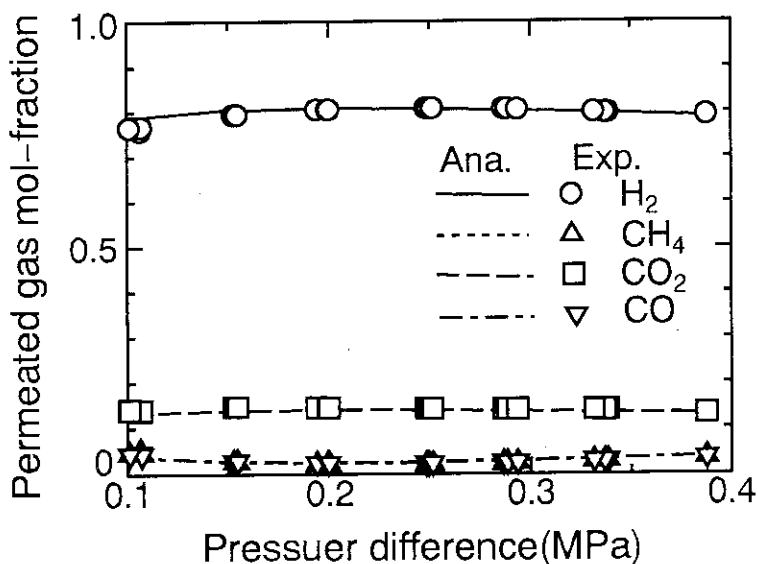


Fig. 3.5 Comparison of permeated gas mol-fractions between experimental and analytical results.

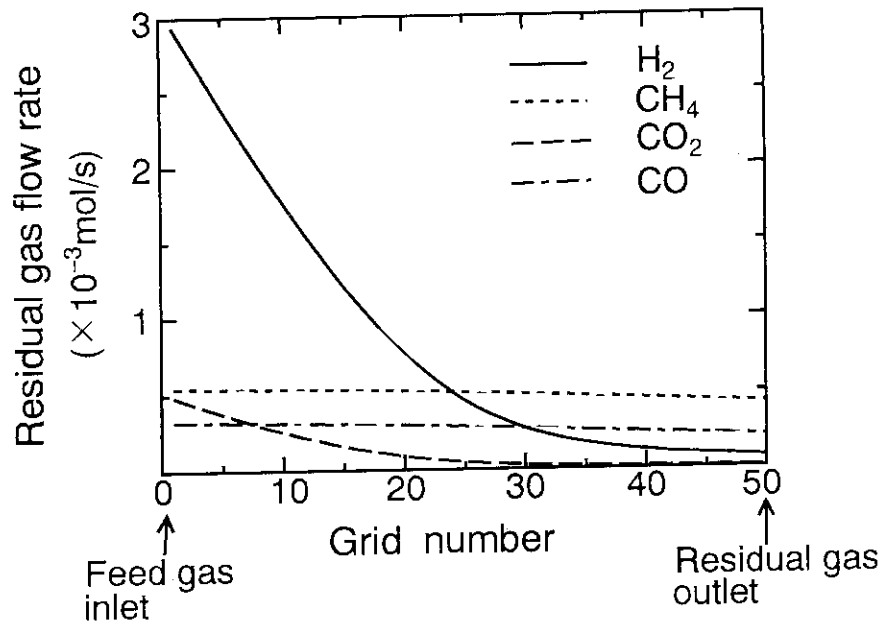


Fig. 3.6 Analytical axial profile of residual gas flow rates in gas separator.

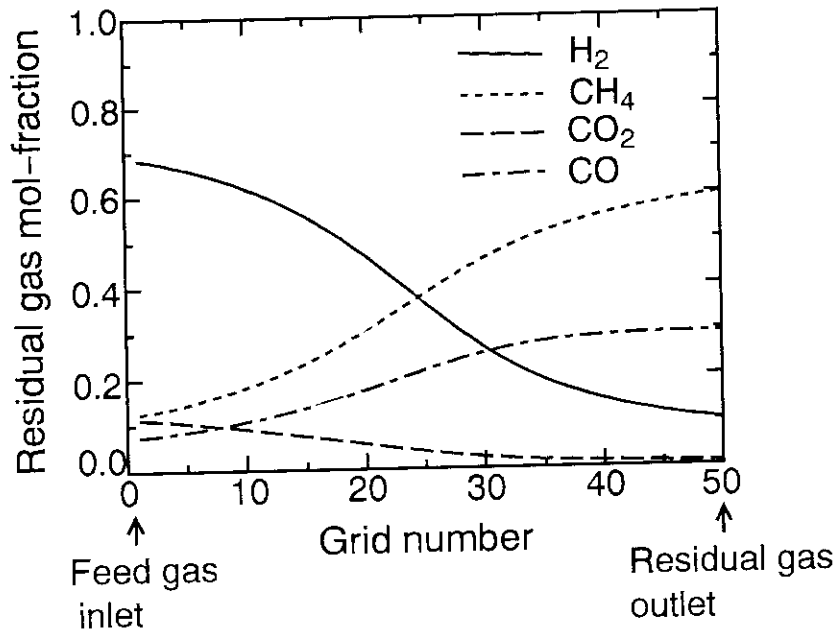


Fig. 3.7 Analytical axial profile of residual gas mol-fractions in gas separator.

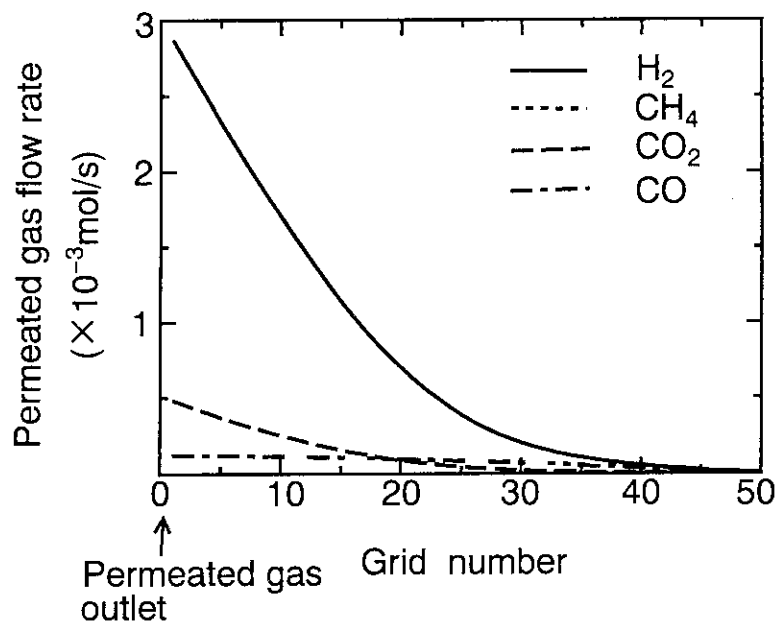


Fig. 3.8 Analytical axial profile of permeated gas flow rates in gas separator.

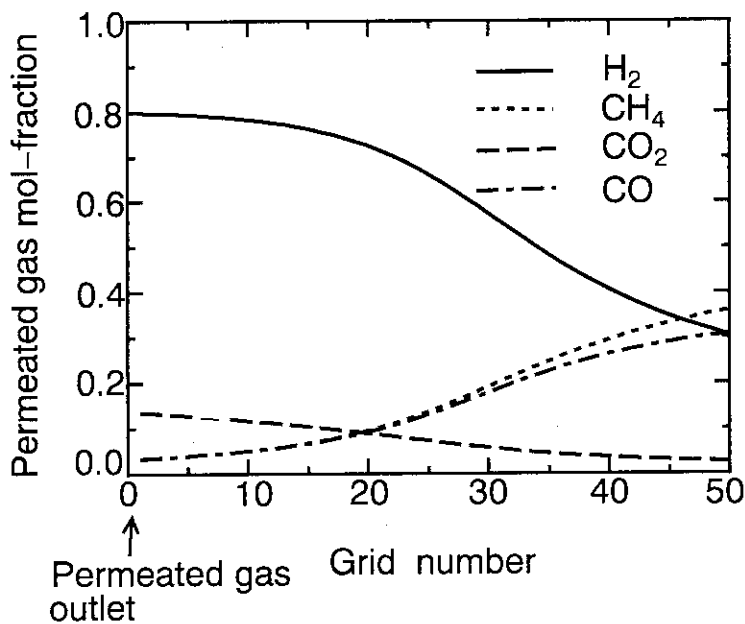


Fig. 3.9 Analytical axial profile of permeated gas mol-fractions in gas separator.

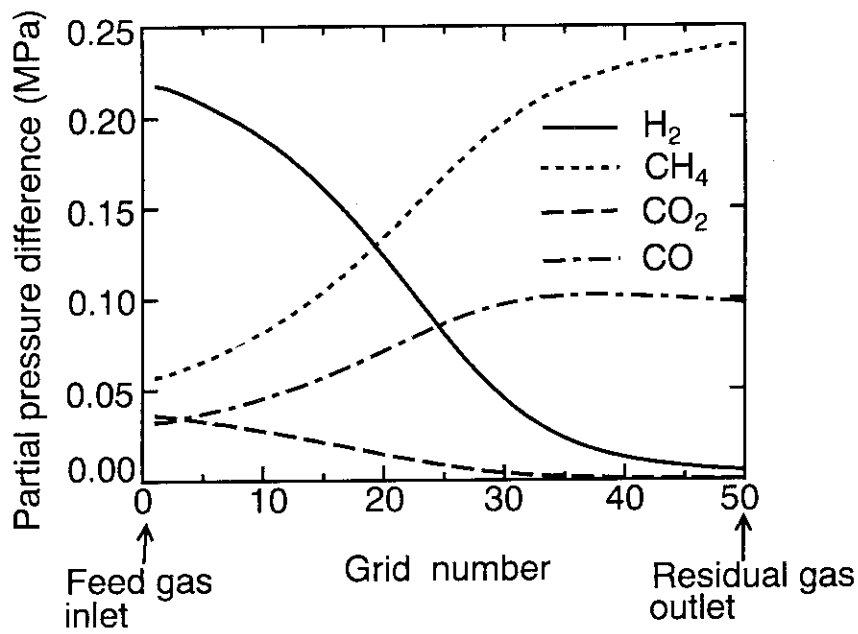


Fig. 3.10 Analytical axial profile of partial pressure difference between feed and permeated gases in gas separator.

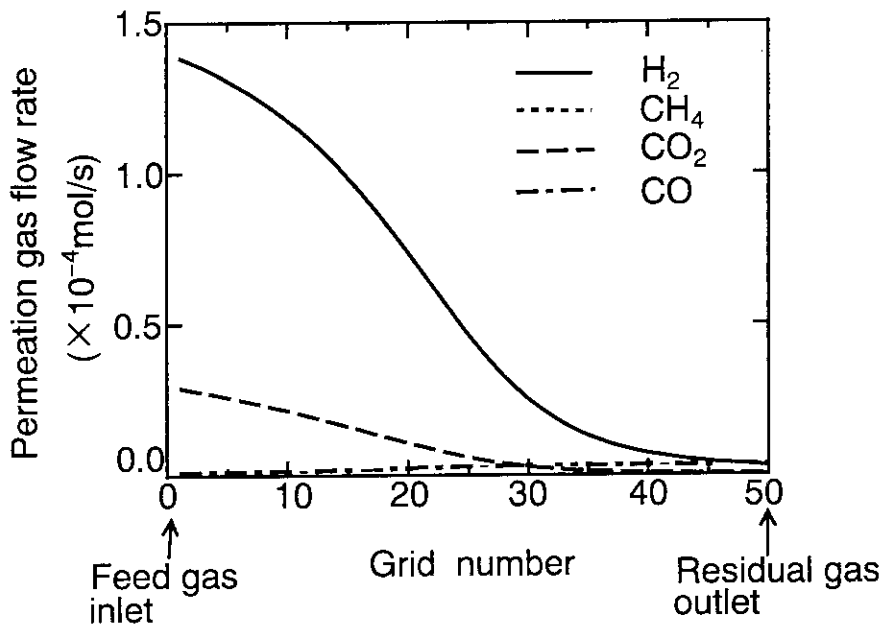


Fig. 3.11 Analytical axial profile of permeation gas flow rates in gas separator.

4. まとめ

ポリイミド高分子ガス分離膜の分離特性に関して、 H_2 、 CH_4 、 CO_2 、 CO の混合ガスを用いたガス分離試験を行い、以下の結論を得た。

- (1) 混合ガスにおける各成分ガスの透過係数は、単体ガスから求めた透過係数に比べて小さくなることが分かった。本試験範囲において各成分ガスの透過係数は、単体ガスから求めた透過係数に比べて、 H_2 は約 $1/14$ 、 CH_4 は約 $1/5$ 、 CO_2 は約 $1/3$ 、 CO は約 $1/5$ となった。このことは、単体ガスの実験から求めた透過係数では、混合ガスの分離挙動を精度よく予測することが困難であることを示している。
- (2) 混合ガスの分離特性試験により求めた透過係数を用いた数値解析により、ポリイミド高分子ガス分離膜の分離特性をよく再現しており、混合ガスの分離挙動を精度良く予測するための解析手法を確立した。
- (3) 水蒸気改質のリサイクル試験において、ガス分離器の供給側と透過側の差圧を 0.35MPa 以上とすれば、改質反応を阻害する H_2 と CO_2 を除去し、効率よく CH_4 を回収できることが明らかになった。

謝 辞

本研究にあたり、有益なご助言を頂いた、核熱利用研究部の宮本喜晟部長、同部熱利用技術研究室清水三郎主任研究員、並びに宇部興産（株）分離膜事業部の石原一彦氏、に感謝の意を表します。

4. まとめ

ポリイミド高分子ガス分離膜の分離特性に関して、 H_2 、 CH_4 、 CO_2 、 CO の混合ガスを用いたガス分離試験を行い、以下の結論を得た。

- (1) 混合ガスにおける各成分ガスの透過係数は、単体ガスから求めた透過係数に比べて小さくなることが分かった。本試験範囲において各成分ガスの透過係数は、単体ガスから求めた透過係数に比べて、 H_2 は約 $1/14$ 、 CH_4 は約 $1/5$ 、 CO_2 は約 $1/3$ 、 CO は約 $1/5$ となった。このことは、単体ガスの実験から求めた透過係数では、混合ガスの分離挙動を精度よく予測することが困難であることを示している。
- (2) 混合ガスの分離特性試験により求めた透過係数を用いた数値解析により、ポリイミド高分子ガス分離膜の分離特性をよく再現しており、混合ガスの分離挙動を精度良く予測するための解析手法を確立した。
- (3) 水蒸気改質のリサイクル試験において、ガス分離器の供給側と透過側の差圧を 0.35MPa 以上とすれば、改質反応を阻害する H_2 と CO_2 を除去し、効率よく CH_4 を回収できることが明らかになった。

謝 辞

本研究にあたり、有益なご助言を頂いた、核熱利用研究部の宮本喜晟部長、同部熱利用技術研究室清水三郎主任研究員、並びに宇部興産（株）分離膜事業部の石原一彦氏、に感謝の意を表します。

参考文献

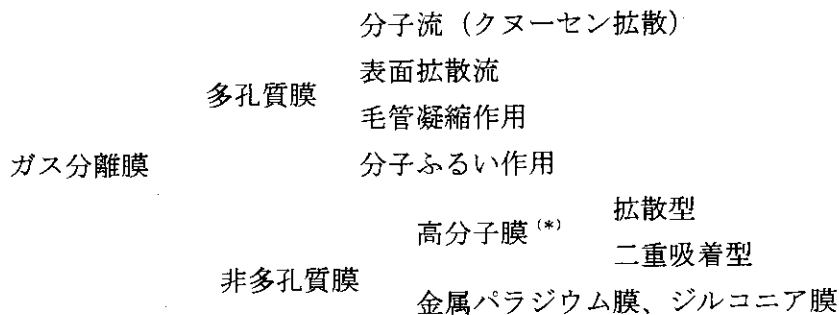
- (1) K. Hada, T. Nishihara, T. Shibata, S. Shiozawa, "Design of Steam Reforming System to be Connected to the HTTR, " Proc. 3rd JAERI Symp. HTGR Tech. (1996).
- (2) Y. Inagaki, R. Hino, K. Hada, K. Haga, T. Nishihara, T. Takeda, S. Shiozawa, "Out-of-Pile Demonstration Test Program of HTTR Hydrogen Production System by Steam Reforming of Natural Gas," Proc. 5th Int. Conf. Nucl. Eng., ICONE5-2342 (1997).
- (3) J. Singh, H. F. Niessen, R. Harth, H. Fedders, H. Reutler, W. Panknin, W. D. Mueller, H. G. Harms, "The Nuclear Heated Steam Reformer - Design and Semitechnical Operating Experience," Nucl. Eng. Des., Vol. 78 (1984) 179-194.
- (4) R. Harth, W. Jansing, H. Teubner, "Experience Gained from the EVA II and KVK Operation," Nucl. Eng. Des., Vol. 121 (1990) 173-182.
- (5) 黒田, 小林, 大内田, 太田, "都市ガスを原料としたメンブレンリアクタ型水素発生装置," 三菱重工技報, Vol.33, No. 5 (1996) 346-349.
- (6) 稲垣, 小磯, 会田, 関田, 日野, 羽賀, "メタンの水蒸気改質反応における未反応メタンのリサイクルシステムに関する研究," 第5回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, (1996) 100-103.
- (7) 大石, 松村, 東, 井家, "気体拡散分離装置の一解析", 原子力誌, Vol.3, No12 (1961) 923-928.
- (8) 宇部興産, "UBE GAS SEPARATION SYSTEM by Polyimide Membrane", (1984).

付 録

A. 1 ガス分離膜の概要

A. 1. 1 ガス分離膜の分類⁽¹⁾

膜によるガス分離法は、特殊な膜の片側に原料ガス（数種類の気体分子の混合体）を接触させ、反対側をそれよりも低圧力にすることにより、特定のガス（気体分子）が膜を透過する現象を利用して分離するものである。このガス分離膜としては、以下に示すように多孔質膜と非多孔質膜の2種類に大別される。その分離機構の概念を Fig. A.1.1⁽²⁾ に示す。



(*) 高分子膜の多くは均質膜として非多孔質膜であるが、グラシン紙のように多孔質膜に分類されるものもある。

ガスはその分子径（ファンデルワールス径）が数Åと小さいので、数十Åの細孔のある多孔質膜はもちろんのこと、細孔の無い非多孔質膜でも高分子鎖の熱運動によって生じる数Åの間隙を縫って透過することができる。この多孔質膜と非多孔質膜の概念を分子鎖オーダーで図示したものを Fig. A.1.2⁽³⁾ に示す。

さらに、ガスがこれらの膜を透過する様子をモデル的に示したものが Fig. A.1.3⁽⁴⁾ である。ガス分子である蝶が高分子膜である葉の繁った木の隙間を通り抜けていく場面において、隙間だらけの多孔質膜では容易に通って抜けていくことができるが、葉の繁った非多孔質膜では通りにくい。しかし、高分子鎖の熱運動に相当する風による揺らぎによって時々隙間ができるので、ゆっくりではあるが通ることができる。これが拡散である。したがって、葉の繁った非多孔質膜では、温度が高いほど揺らぎが大きくなって透過も容易になる。

多孔質膜は、膜に開いた孔に対するガスの透過性の差を利用して分離するもので、ガスの種類、条件、膜の孔径等により分離機構は前述の分子流（クヌーセン拡散）、表面拡散流、毛管凝縮作用、分子ふるい作用に分類される。このうち、多孔質膜の分離機構として代表的なものはクヌーセン拡散で、その分離機構は以下の通りである。

数十Å～数百Åの細孔内を複数種類のガスが分子流として流れるとき、分子と分子の衝突の他に、分子と細孔壁との衝突も生じて抵抗となる。この場合、細孔径（ r ）とガス分子の平均自由行程（ λ ）との関係（クヌーセン数）が、 $r/\lambda > 5$ のように細孔径が相対的に大きな場合には、分子と分子の衝突が中心となり、粘性流れが支配的なポアズイユ流れとなって混合ガス全体が一定方向に流れて分離作用は生じない。一方、 $r/\lambda < 1$ のように細孔径が相対的に小さくなると、

分子と細孔壁との衝突による抵抗が律速となり、分子量論的に抵抗はガスの分子量の平方根に比例する。したがって、 H_2 (分子量 2) のように分子量が小さいもののほうが、 CO_2 (分子量 44) のように分子量の大きいものよりも透過速度が速くなり、これによって分離機能が発現される。この H_2 と CO_2 の混合ガスの例では、その透過速度比が $(44/2)^{0.5} = 4.7$ となり、分離が可能となる。

非多孔質膜は、前述のように高分子膜と金属パラジウム膜、ジルコニア膜とに分類されるが、実用上非多孔質膜を代表する高分子膜は、膜の構造、製法等の見地からさらに均質膜 (対称膜) と不均質膜 (非対称膜) とに分類される。均質膜は化学的、物理的に均質な膜で、身近な例としてはセロハンやプラスチックフィルムがある。セロハンは透析膜としての機能があり、プラスチックフィルムにはガスの選択透過機能を有するものがある。

非多孔質膜の代表的なものとして複合膜がある。これは、多孔質状の支持膜の上に別組成の均質膜を形成したもので、機能の異なった膜の組み合わせが可能となり、最終目的に合った高性能分離膜が得られやすいことから、実用上はこの複合膜が圧倒的に多い。本試験で使用したポリイミド高分子膜は、この複合膜の一種である。

金属パラジウム膜は混合ガス中から H_2 を分離するために用いられるもので、 H_2 分子が膜表面で原子化してプロトン (H^+) と電子 (e^-) となり、これが膜の中を拡散して膜の裏面で再結合し、原子、分子化する。したがって、高純度の水素が得られる。ジルコニア膜はいわゆる固体電解質である。一般にこの固体電解質中を動くイオンは一種類に限られているので、特定のガスを分離できる。ジルコニア膜は O_2 イオン伝導体であるため、混合ガス中からの O_2 分離に適している。

基本的にガスの透過は、多孔質膜及び非多孔質膜にかかわらず、膜内外における分圧差が推進力となる。したがって、ガス分離膜のガス透過流量は多孔質膜、非多孔質膜共に次式で与えられる。

$$q = K (P_h - P_l) \quad (A.1.1)$$

q : ガス透過流量 (mol/m^2s)

K : 透過速度定数 ($mol/m^2s Pa$)

P_h : 分離膜の高圧側 (ガス供給側) のガス分圧 (Pa)

P_l : 分離膜の低圧側 (ガス透過側) のガス分圧 (Pa)

多孔質膜と非多孔質膜の特性を比較すると一般的には次のようになり、ガス分離膜の選択については、以下に示す特徴を考慮して行う必要がある。

- ① 多孔質膜は非多孔質膜に比べて透過速度が大きい。
- ② 多孔質膜は非多孔質膜に比べて分離性が小さい。
- ③ 多孔質膜は温度上昇により透過速度は減少するが、非多孔質膜は温度上昇により透過速度は増加する。
- ④ 多孔質膜は一般的に非多孔質膜に比べて高温まで使用できる。
- ⑤ 多孔質膜は孔径が小さいほどに、孔径を均一に製造することが困難である。 H_2 や He などの

分子径の小さいガスを対象としたガス分離には、分離性能の確保が難しく、また、製作コストが高くなるために不適である。

A. 1. 2 ポリイミド高分子膜とガス分離器

ポリイミド高分子膜は、昭和 55 年通産省「大型プロジェクト C₁ 化学プロジェクト」において宇部興産が開発したものである。石油ショック時の石油価格の高騰が世相に与えた影響に対する教訓より、大型プロジェクトでは石油以外の炭素資源（重質油、石炭、天然ガス、タールサンドなど）と水蒸気を反応させて H₂ と CO を製造し、分離精製したのちにエタノール、エチレングリコール、酢酸等の原料にしようとするものであった。したがって、ポリイミドの当初の開発目的は H₂ と CO の混合物からの効率良い H₂ の分離回収であった⁽⁵⁾。

ポリイミド高分子膜の分子構造は、Fig. A.1.4 に示すような重合体（ポリマー）となっている⁽⁶⁾。ガス分離性能はこのポリマーへのガス分子の吸着、拡散し易さにより決まる。代表的なポリイミド高分子膜を使用したガス分離器構造は、耐圧性能、表面積の増加を増加させるために Fig. A.1.5 に示すような中空糸の集合体を組み込んだ構造としている⁽⁶⁾。中空糸は一般的に 2 層構造となっている。すなわち、内側は耐圧性能を増加させるための多孔質サポート材（多孔質層）、外側はガス分離のためのポリイミド高分子膜（分離膜層）となっている。

参考文献

- (1) 東レリサーチセンター, "ガス分離技術の新展開 基礎原理から最先端技術、用途まで," 第 2 版 (1991), 11-20.
- (2) 日本膜学会, "膜分離プロセスの設計法", (1985), 25.
- (3) 仲川, "分離膜—基礎から応用まで—", 産業図書, (1987), 48.
- (4) 仲川, "化学 One Point 11、膜のはたらき—気体透過膜を中心に—", (1985), 17.
- (5) 中村, 二宮, 堀田, "ガス分離用ポリイミド膜の開発とその応用", 燃料協会誌, Vol.67, No.12 (1988), 1038-1051.
- (6) 宇部興産, "UBE GAS SEPARATION SYSTEM by Polyimide Membrane", (1984).

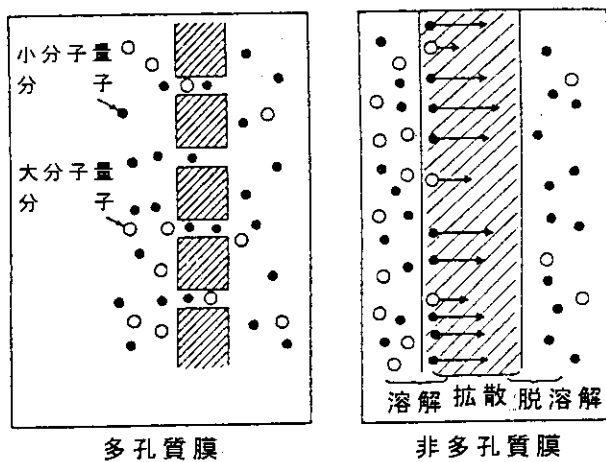


Fig. A.1.1 Gas separation mechanism of porous membranes⁽²⁾.

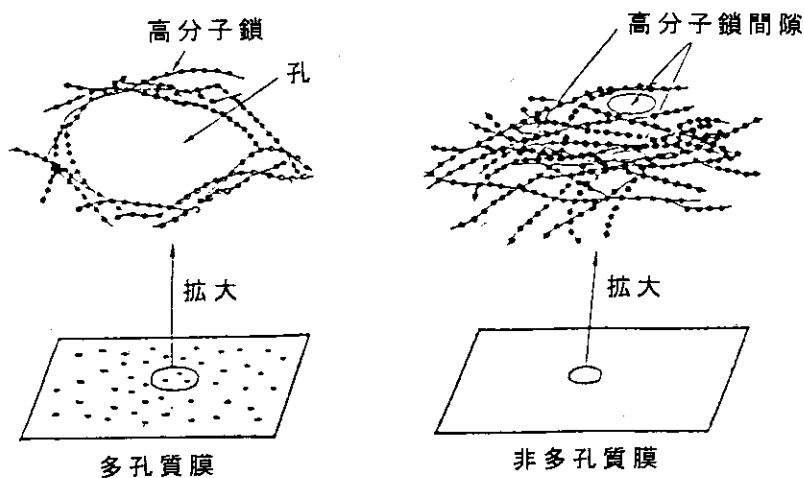


Fig. A.1.2 Conceptual structure of porous and nonporous membranes⁽³⁾.

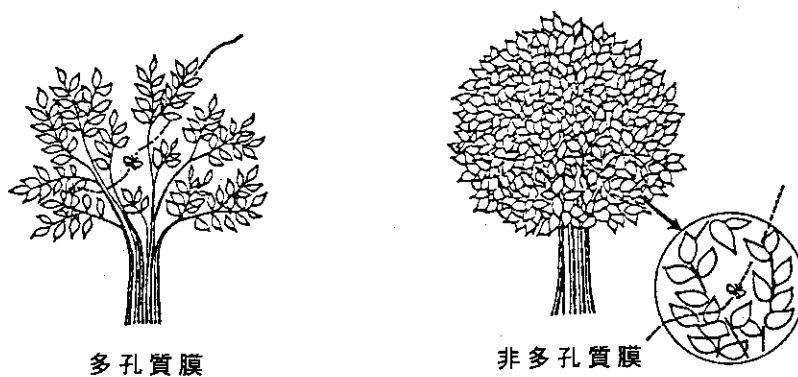


Fig. A.1.3 Conceptual gas permeation mechanism of porous and nonporous membranes⁽⁴⁾.

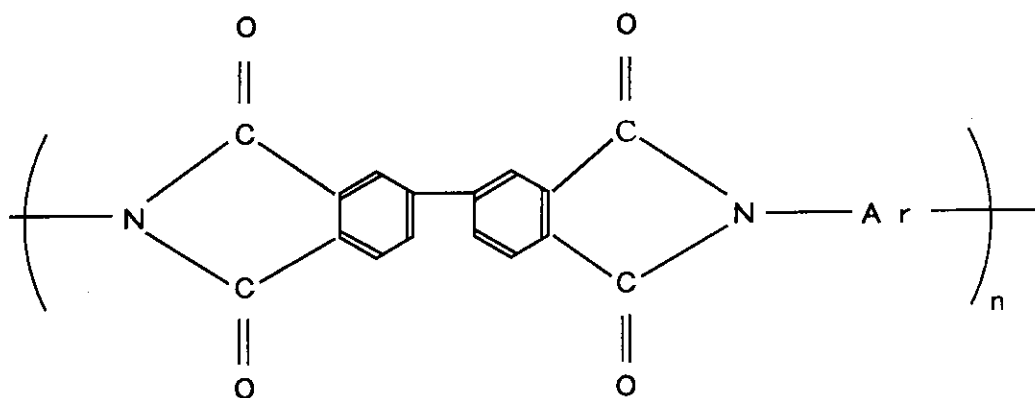


Fig. A.1.4 Chemical formula of polyimide membrane⁽⁶⁾.

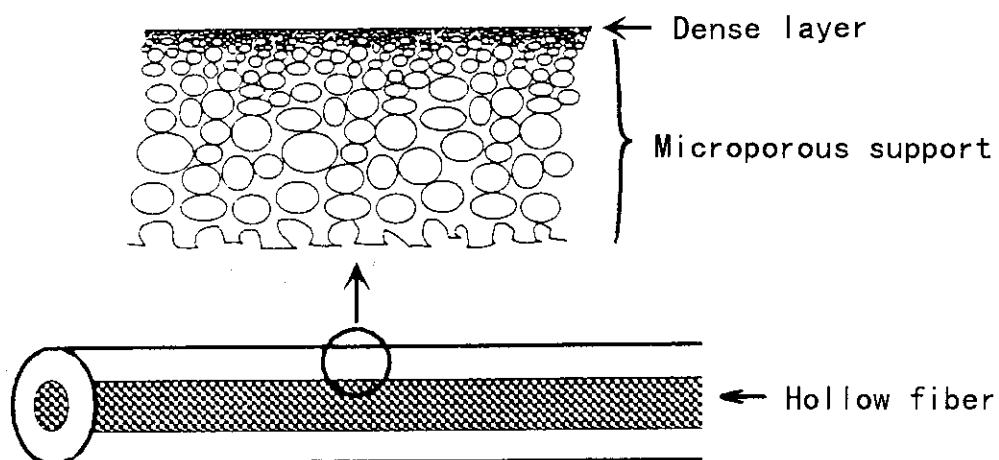


Fig. A.1.5 Structure of polyimide membrane⁽⁶⁾.

A. 2 ガス分離試験の実験データ

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (1/7).

Test No. 1-1	混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
Test No. 1-1	H ₂	4.943E-01	3.883E-01	1.059E-01	2.112E-02	2.254E-03	2.115E-03	1.393E-04	5.199E-01	5.070E-01	8.510E-01	2.587E-09
	CH ₄	4.943E-01	3.883E-01	1.059E-01	7.710E-02	1.455E-03	1.440E-03	1.421E-05	3.356E-01	3.453E-01	8.684E-02	2.777E-10
	CO ₂	4.943E-01	3.883E-01	1.059E-01	1.847E-04	3.758E-04	3.719E-04	3.915E-08	8.659E-02	8.915E-02	2.392E-02	5.501E-08
	CO	4.943E-01	3.883E-01	1.059E-01	7.504E-03	2.505E-04	2.443E-04	6.256E-06	5.779E-02	5.856E-02	3.822E-02	6.651E-10
Test No. 1-2	H ₂	4.923E-01	3.373E-01	1.550E-01	2.460E-02	2.254E-03	1.911E-03	3.430E-04	5.199E-01	4.923E-01	7.562E-01	5.180E-09
	CH ₄	4.923E-01	3.373E-01	1.550E-01	1.193E-01	1.454E-03	1.407E-03	4.786E-05	3.356E-01	3.624E-01	1.055E-01	2.712E-10
	CO ₂	4.923E-01	3.373E-01	1.550E-01	3.562E-04	3.758E-04	3.296E-04	4.614E-05	8.659E-02	8.493E-02	1.017E-01	6.673E-08
	CO	4.923E-01	3.373E-01	1.550E-01	1.384E-02	2.505E-04	2.339E-04	1.658E-05	5.779E-02	6.028E-02	3.655E-02	6.241E-10
Test No. 1-3	H ₂	4.982E-01	2.959E-01	2.023E-01	2.900E-02	2.254E-03	1.516E-03	7.373E-04	5.199E-01	4.560E-01	7.307E-01	8.165E-09
	CH ₄	4.982E-01	2.959E-01	2.023E-01	1.509E-01	1.455E-03	1.310E-03	1.231E-04	3.356E-01	4.004E-01	1.220E-01	2.459E-10
	CO ₂	4.982E-01	2.959E-01	2.023E-01	4.299E-04	3.758E-04	1.159E-04	1.159E-04	8.659E-02	7.813E-02	1.149E-01	1.082E-07
	CO	4.982E-01	2.959E-01	2.023E-01	2.102E-02	2.505E-04	2.178E-04	3.273E-05	5.779E-02	6.549E-02	3.244E-02	5.278E-10
Test No. 1-4	H ₂	4.913E-01	2.426E-01	2.487E-01	3.928E-02	2.254E-03	1.049E-03	1.204E-03	5.205E-01	3.816E-01	7.623E-01	1.052E-08
	CH ₄	4.913E-01	2.426E-01	2.487E-01	1.802E-01	1.455E-03	1.310E-03	1.442E-04	3.356E-01	4.764E-01	9.126E-02	2.428E-10
	CO ₂	4.913E-01	2.426E-01	2.487E-01	2.201E-03	3.714E-04	1.789E-04	1.926E-04	8.578E-02	6.503E-02	1.219E-01	3.587E-08
	CO	4.913E-01	2.426E-01	2.487E-01	2.702E-02	2.505E-04	2.118E-04	3.875E-05	5.765E-02	7.899E-02	2.453E-02	5.121E-10
Test No. 1-5	H ₂	5.001E-01	2.027E-01	2.974E-01	5.011E-02	2.254E-03	6.75E-04	1.576E-03	5.199E-01	3.015E-01	7.552E-01	1.139E-08
	CH ₄	5.001E-01	2.027E-01	2.974E-01	2.101E-01	1.455E-03	1.263E-03	1.919E-04	3.356E-01	5.618E-01	9.194E-02	2.505E-10
	CO ₂	5.001E-01	2.027E-01	2.974E-01	5.016E-03	3.758E-04	1.063E-04	2.895E-04	8.659E-02	4.728E-02	1.291E-01	2.088E-08
	CO	5.001E-01	2.027E-01	2.974E-01	3.222E-02	2.505E-04	2.010E-04	4.947E-05	5.779E-02	8.945E-02	2.370E-02	5.249E-10

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (2/7).

Test No. 1-6

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	未透過側出口モル分率	供給側モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	4.952E-01	1.531E-01	3.422E-01	6.104E-02	2.254E-03	3.819E-04	1.872E-03	2.030E-01	5.199E-01	7.628E-01	1.098E-08
CH ₄	4.952E-01	1.531E-01	3.422E-01	2.357E-01	1.455E-03	1.238E-03	2.171E-04	6.580E-01	3.356E-01	8.845E-02	2.480E-10
CO ₂	4.952E-01	1.531E-01	3.422E-01	8.745E-03	3.758E-04	6.659E-04	3.092E-04	3.541E-02	8.669E-02	1.260E-01	1.396E-08
CO	4.952E-01	1.531E-01	3.422E-01	3.663E-02	2.505E-04	1.948E-04	5.573E-05	1.036E-01	5.779E-02	2.271E-02	5.161E-10

Test No. 1-7

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	未透過側出口モル分率	供給側モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.207E-01	9.782E-02	4.229E-01	7.937E-02	2.254E-03	1.033E-04	2.150E-03	7.183E-02	5.199E-01	7.476E-01	9.270E-09
CH ₄	5.207E-01	9.782E-02	4.229E-01	2.869E-01	1.455E-03	1.144E-03	3.109E-04	7.949E-01	3.356E-01	1.074E-01	2.532E-10
CO ₂	5.207E-01	9.782E-02	4.229E-01	1.308E-02	3.758E-04	2.128E-04	3.545E-04	1.479E-02	8.669E-02	1.224E-01	1.005E-08
CO	5.207E-01	9.782E-02	4.229E-01	4.352E-02	2.505E-04	1.705E-04	7.998E-05	1.185E-01	5.779E-02	2.762E-02	5.408E-10

Test No. 2-1

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	未透過側出口モル分率	供給側モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.021E-01	3.950E-01	1.071E-01	2.991E-02	2.969E-03	2.181E-03	7.878E-04	6.455E-01	6.833E-01	8.155E-01	8.048E-09
CH ₄	5.021E-01	3.950E-01	1.071E-01	5.288E-02	5.512E-04	5.298E-04	2.146E-05	1.568E-01	1.269E-01	2.221E-02	2.748E-10
CO ₂	5.021E-01	3.950E-01	1.071E-01	1.317E-03	4.948E-04	3.807E-04	1.141E-04	1.127E-01	1.139E-01	1.182E-01	3.344E-08
CO	5.021E-01	3.950E-01	1.071E-01	2.298E-02	3.299E-04	2.872E-04	4.266E-05	8.501E-02	7.592E-02	4.416E-02	6.009E-10

Test No. 2-2

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	未透過側出口モル分率	供給側モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.011E-01	3.467E-01	1.545E-01	4.461E-02	2.969E-03	1.554E-03	1.415E-03	5.959E-01	6.833E-01	8.146E-01	1.072E-08
CH ₄	5.011E-01	3.467E-01	1.545E-01	7.158E-02	5.512E-04	5.129E-04	3.824E-05	1.269E-01	1.269E-01	2.201E-02	2.301E-10
CO ₂	5.011E-01	3.467E-01	1.545E-01	2.772E-03	4.948E-04	2.656E-04	2.291E-04	1.019E-01	1.139E-01	1.319E-01	3.207E-08
CO	5.011E-01	3.467E-01	1.545E-01	3.649E-02	3.298E-04	2.751E-04	5.477E-05	1.055E-01	7.592E-02	3.153E-02	4.867E-10

Test No. 2-3

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	未透過側出口モル分率	供給側モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	4.992E-01	2.995E-01	1.996E-01	5.670E-02	2.969E-03	9.615E-04	2.007E-03	6.833E-01	6.833E-01	8.132E-01	1.248E-08
CH ₄	4.992E-01	2.995E-01	1.996E-01	9.046E-02	5.512E-04	4.934E-04	5.782E-05	1.269E-01	1.269E-01	2.343E-02	2.210E-10
CO ₂	4.992E-01	2.995E-01	1.996E-01	6.399E-03	4.948E-04	1.624E-04	3.323E-04	1.139E-01	1.139E-01	1.347E-01	1.999E-08
CO	4.992E-01	2.995E-01	1.996E-01	4.607E-02	3.299E-04	2.591E-04	7.077E-05	1.381E-01	7.592E-02	2.868E-02	4.865E-10

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (3/7).

Test No. 2-4												
混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)	
H ₂	5.00E-01	2.490E-01	2.51E-01	6.419E-02	2.969E-03	4.859E-04	2.482E-03	6.833E-01	3.796E-01	8.102E-01	1.377E-08	
CH ₄	5.001E-01	2.490E-01	2.511E-01	1.171E-01	5.512E-04	6.658E-04	8.553E-05	1.269E-01	3.638E-01	2.791E-02	2.103E-10	
CO ₂	5.001E-01	2.490E-01	2.511E-01	9.485E-03	4.947E-04	8.601E-05	4.087E-04	1.139E-01	6.719E-02	1.334E-01	1.654E-08	
CO	5.001E-01	2.490E-01	2.511E-01	6.038E-02	3.298E-04	2.428E-04	8.734E-05	7.592E-02	1.894E-01	2.850E-02	4.362E-10	

Test No. 2-5												
混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)	
H ₂	4.992E-01	2.058E-01	2.933E-01	6.827E-02	2.969E-03	2.420E-04	2.727E-03	6.833E-01	2.560E-01	8.022E-01	1.438E-08	
CH ₄	4.992E-01	2.058E-01	2.933E-01	1.419E-01	5.512E-04	4.368E-04	1.744E-04	1.269E-01	4.629E-01	3.367E-02	2.109E-10	
CO ₂	4.992E-01	2.058E-01	2.933E-01	1.097E-02	4.948E-04	4.472E-05	4.501E-04	1.139E-01	4.730E-02	1.324E-01	1.576E-08	
CO	4.992E-01	2.058E-01	2.933E-01	7.219E-02	3.299E-04	2.219E-04	1.079E-04	7.592E-02	2.348E-01	3.174E-02	4.378E-10	

Test No. 2-6												
混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)	
H ₂	4.884E-01	1.568E-01	3.316E-01	7.481E-02	2.969E-03	1.072E-04	2.861E-03	6.833E-01	1.371E-01	8.032E-01	1.387E-08	
CH ₄	4.884E-01	1.568E-01	3.316E-01	1.626E-01	5.512E-04	4.360E-04	1.525E-04	1.269E-01	5.575E-01	3.234E-02	2.280E-10	
CO ₂	4.884E-01	1.568E-01	3.316E-01	1.284E-02	4.948E-04	2.292E-05	4.719E-04	1.139E-01	2.930E-02	1.325E-01	1.425E-08	
CO	4.884E-01	1.568E-01	3.316E-01	8.130E-02	3.299E-04	2.160E-04	1.139E-04	7.592E-02	2.762E-01	3.196E-02	4.756E-10	

Test No. 2-7												
混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)	
H ₂	4.972E-01	1.096E-01	3.876E-01	9.130E-02	2.969E-03	2.188E-05	2.947E-03	6.833E-01	3.414E-02	7.956E-01	1.187E-08	
CH ₄	4.972E-01	1.096E-01	3.876E-01	1.888E-01	5.512E-04	4.155E-04	1.357E-04	1.269E-01	6.485E-01	3.664E-02	2.590E-10	
CO ₂	4.972E-01	1.096E-01	3.876E-01	1.708E-02	4.948E-04	8.631E-06	4.861E-04	1.139E-01	3.47E-02	1.313E-01	1.063E-08	
CO	4.972E-01	1.096E-01	3.876E-01	9.040E-02	3.298E-04	1.947E-04	1.351E-04	7.592E-02	3.039E-01	3.648E-02	5.547E-10	

Test No. 3-1												
混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)	
H ₂	5.001E-01	3.854E-01	1.147E-01	2.136E-02	1.931E-03	1.665E-03	2.666E-04	5.193E-01	4.989E-01	6.981E-01	2.831E-09	
CH ₄	5.001E-01	3.854E-01	1.147E-01	8.467E-02	1.251E-03	1.73E-03	7.859E-05	3.365E-01	3.513E-01	2.066E-01	2.676E-10	
CO ₂	5.001E-01	3.854E-01	1.147E-01	2.904E-04	3.217E-04	3.934E-04	1.825E-05	8.651E-02	9.090E-02	4.797E-02	3.936E-08	
CO	5.001E-01	3.854E-01	1.147E-01	8.417E-03	2.146E-04	1.999E-04	1.799E-05	5.771E-02	5.889E-02	4.730E-02	6.391E-10	

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (4/7).

Test No. 3-2

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.070E-01	3.471E-01	1.599E-01	2.425E-02	1.932E-03	1.526E-03	4.060E-04	5.193E-01	4.836E-01	7.268E-01	4.990E-09
CH ₄	5.070E-01	3.471E-01	1.599E-01	1.208E-01	1.252E-03	1.686E-03	8.362E-05	3.365E-01	3.695E-01	1.497E-01	2.536E-10
CO ₂	5.070E-01	3.471E-01	1.599E-01	4.809E-04	3.218E-04	2.756E-04	4.622E-05	8.651E-02	8.717E-02	8.275E-02	4.770E-08
CO	5.070E-01	3.471E-01	1.599E-01	1.438E-02	2.147E-04	1.919E-04	2.278E-05	5.771E-02	6.070E-02	4.078E-02	5.747E-10

Test No. 3-3

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	4.992E-01	2.963E-01	2.029E-01	2.854E-02	1.932E-03	1.223E-03	7.084E-04	5.193E-01	4.438E-01	7.351E-01	8.077E-09
CH ₄	4.992E-01	2.963E-01	2.029E-01	1.530E-01	1.252E-03	1.134E-03	1.181E-04	3.366E-01	4.114E-01	1.225E-01	2.391E-10
CO ₂	4.992E-01	2.963E-01	2.029E-01	3.203E-04	3.218E-04	2.164E-04	1.054E-04	8.651E-02	7.853E-02	1.093E-01	1.389E-07
CO	4.992E-01	2.963E-01	2.029E-01	2.096E-02	2.147E-04	1.828E-04	3.185E-05	5.771E-02	6.633E-02	3.305E-02	5.196E-10

Test No. 3-4

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.021E-01	2.554E-01	2.467E-01	3.640E-02	1.931E-03	8.671E-04	1.064E-03	5.193E-01	3.893E-01	7.331E-01	1.008E-08
CH ₄	5.021E-01	2.554E-01	2.467E-01	1.820E-01	1.252E-03	1.089E-03	1.684E-04	3.366E-01	4.777E-01	1.160E-01	2.379E-10
CO ₂	5.021E-01	2.554E-01	2.467E-01	1.703E-03	3.218E-04	1.456E-04	1.762E-04	8.651E-02	6.490E-02	1.214E-01	4.100E-08
CO	5.021E-01	2.554E-01	2.467E-01	2.659E-02	2.146E-04	1.719E-04	4.277E-05	5.771E-02	7.578E-02	2.946E-02	5.028E-10

Test No. 3-5

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.041E-01	2.044E-01	2.996E-01	4.728E-02	1.932E-03	5.068E-04	1.425E-03	5.193E-01	2.824E-01	7.399E-01	1.106E-08
CH ₄	5.041E-01	2.044E-01	2.996E-01	2.159E-01	1.252E-03	1.046E-03	2.055E-04	3.365E-01	5.832E-01	1.067E-01	2.489E-10
CO ₂	5.041E-01	2.044E-01	2.996E-01	4.076E-03	3.218E-04	7.835E-05	2.435E-04	8.651E-02	4.366E-02	1.264E-01	2.381E-08
CO	5.041E-01	2.044E-01	2.996E-01	3.240E-02	2.147E-04	1.628E-04	5.188E-05	5.771E-02	9.073E-02	2.694E-02	5.229E-10

Test No. 3-6

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	4.844E-01	1.519E-01	3.326E-01	5.746E-02	1.932E-03	2.946E-04	1.637E-03	5.193E-01	1.939E-01	7.438E-01	1.057E-08
CH ₄	4.844E-01	1.519E-01	3.326E-01	7.325E-01	1.252E-03	1.029E-03	2.299E-04	3.365E-01	6.728E-01	1.044E-01	2.703E-10
CO ₂	4.844E-01	1.519E-01	3.326E-01	7.416E-03	3.218E-04	4.591E-05	2.759E-04	8.651E-02	3.022E-02	1.254E-01	1.481E-08
CO	4.844E-01	1.519E-01	3.326E-01	3.517E-02	2.147E-04	1.565E-04	5.811E-05	5.771E-02	1.031E-01	2.640E-02	5.647E-10

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (5/7).

Test No. 3-7

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.031E-01	1.102E-01	3.929E-01	7.264E-02	1.932E-03	1.805E-03	1.805E-03	5.193E-01	1.007E-01	7.321E-01	9.246E-09
CH ₄	5.031E-01	1.102E-01	3.929E-01	2.691E-01	1.252E-03	9.643E-04	2.876E-01	3.365E-01	7.690E-01	1.166E-01	2.694E-10
CO ₂	5.031E-01	1.102E-01	3.929E-01	1.096E-02	3.218E-04	2.098E-05	3.008E-04	8.651E-02	1.873E-02	1.220E-01	1.103E-08
CO	5.031E-01	1.102E-01	3.929E-01	4.022E-02	2.147E-04	1.424E-04	7.225E-05	5.771E-02	1.136E-01	2.930E-02	5.742E-10

Test No. 4-1

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.090E-01	3.822E-01	1.268E-01	2.469E-02	2.897E-03	2.561E-03	3.361E-04	5.193E-01	5.100E-01	6.021E-01	2.958E-09
CH ₄	5.090E-01	3.822E-01	1.268E-01	9.188E-02	1.878E-03	1.734E-03	1.434E-04	3.365E-01	3.454E-01	2.570E-01	2.730E-10
CO ₂	5.090E-01	3.822E-01	1.268E-01	7.107E-04	4.827E-04	4.417E-04	4.106E-05	8.651E-02	8.795E-02	7.356E-02	1.892E-08
CO	5.090E-01	3.822E-01	1.268E-01	9.521E-03	3.220E-04	2.844E-04	3.763E-05	5.771E-02	5.663E-02	6.741E-02	6.328E-10

Test No. 4-2

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.001E-01	3.435E-01	1.567E-01	2.692E-02	2.897E-03	2.494E-03	4.039E-04	5.193E-01	5.012E-01	6.74E-01	4.307E-09
CH ₄	5.001E-01	3.435E-01	1.567E-01	1.151E-01	1.878E-03	1.771E-03	1.878E-04	3.365E-01	3.559E-01	1.774E-01	2.561E-10
CO ₂	5.001E-01	3.435E-01	1.567E-01	1.031E-03	4.827E-04	4.237E-04	5.907E-05	8.651E-02	8.516E-02	9.760E-02	2.063E-08
CO	5.001E-01	3.435E-01	1.567E-01	1.369E-02	3.220E-04	2.871E-04	3.488E-05	5.771E-02	5.772E-02	5.763E-02	5.708E-10

Test No. 4-3

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	4.894E-01	2.974E-01	1.920E-01	2.878E-02	2.897E-03	2.193E-03	7.042E-04	5.193E-01	4.763E-01	7.223E-01	7.662E-09
CH ₄	4.894E-01	2.974E-01	1.920E-01	1.430E-01	1.878E-03	1.763E-03	1.148E-04	3.365E-01	3.829E-01	1.177E-01	2.369E-10
CO ₂	4.894E-01	2.974E-01	1.920E-01	7.101E-04	4.827E-04	3.668E-04	1.169E-04	8.651E-02	7.966E-02	1.189E-01	5.776E-08
CO	4.894E-01	2.974E-01	1.920E-01	1.945E-02	3.220E-04	2.818E-04	4.014E-05	5.771E-02	6.121E-02	4.117E-02	5.093E-10

Test No. 4-4

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	5.070E-01	2.593E-01	2.477E-01	4.376E-02	2.896E-03	1.659E-03	1.237E-03	5.193E-01	4.299E-01	7.236E-01	1.016E-08
CH ₄	5.070E-01	2.593E-01	2.477E-01	1.747E-01	1.877E-03	1.674E-03	2.031E-04	3.365E-01	4.328E-01	1.188E-01	2.635E-10
CO ₂	5.070E-01	2.593E-01	2.477E-01	3.601E-03	4.825E-04	2.692E-04	2.133E-04	8.651E-02	6.961E-02	1.247E-01	2.259E-08
CO	5.070E-01	2.593E-01	2.477E-01	2.569E-02	3.218E-04	2.656E-04	5.621E-05	5.771E-02	6.868E-02	3.288E-02	5.587E-10

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (6/7).

Test No. 4-5

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
H ₂	5.041E-01	1.981E-01	3.060E-01	5.836E-02	2.897E-03	1.010E-03	1.887E-03	5.193E-01	3.251E-01	7.635E-01	1.198E-08
CH ₄	5.041E-01	1.981E-01	3.060E-01	2.086E-01	1.878E-03	1.677E-03	2.010E-04	3.365E-01	5.394E-01	8.134E-02	2.634E-10
CO ₂	5.041E-01	1.981E-01	3.060E-01	7.057E-03	4.827E-04	1.587E-04	3.240E-04	8.661E-02	5.106E-02	1.311E-01	1.771E-08
CO	5.041E-01	1.981E-01	3.060E-01	3.192E-02	3.220E-04	2.628E-04	5.942E-05	5.771E-02	8.447E-02	2.404E-02	5.550E-10

Test No. 4-6

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
H ₂	5.041E-01	1.562E-01	3.479E-01	6.953E-02	2.897E-03	6.371E-04	2.260E-03	5.193E-01	2.478E-01	7.646E-01	1.216E-08
CH ₄	5.041E-01	1.562E-01	3.479E-01	2.324E-01	1.878E-03	1.632E-03	2.458E-04	3.365E-01	6.270E-01	8.316E-02	2.737E-10
CO ₂	5.041E-01	1.562E-01	3.479E-01	1.018E-02	4.827E-04	1.019E-04	3.808E-04	8.661E-02	3.886E-02	1.288E-01	1.451E-08
CO	5.041E-01	1.562E-01	3.479E-01	3.582E-02	3.220E-04	2.528E-04	6.924E-05	5.771E-02	9.633E-02	2.342E-02	5.775E-10

Test No. 4-7

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
H ₂	4.952E-01	1.023E-01	3.929E-01	8.406E-02	2.897E-03	3.201E-04	2.577E-03	5.193E-01	1.450E-01	7.641E-01	1.157E-08
CH ₄	4.952E-01	1.023E-01	3.929E-01	2.557E-01	1.878E-03	1.590E-03	2.878E-04	3.365E-01	7.205E-01	8.552E-02	2.872E-10
CO ₂	4.952E-01	1.023E-01	3.929E-01	1.376E-02	4.827E-04	5.506E-05	4.276E-04	8.661E-02	2.496E-02	1.268E-01	1.215E-08
CO	4.952E-01	1.023E-01	3.929E-01	3.942E-02	3.220E-04	2.418E-04	8.018E-05	5.771E-02	1.096E-01	2.377E-02	6.120E-10

Test No. 5-1

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
H ₂	3.030E-01	1.953E-01	1.077E-01	3.038E-02	1.779E-03	6.735E-04	1.105E-03	6.830E-01	5.509E-01	7.999E-01	1.303E-08
CH ₄	3.030E-01	1.953E-01	1.077E-01	5.028E-02	3.307E-04	2.914E-04	3.928E-05	1.270E-01	2.384E-01	2.843E-02	2.556E-10
CO ₂	3.030E-01	1.953E-01	1.077E-01	2.320E-03	2.999E-04	1.071E-04	1.898E-04	1.140E-01	8.757E-02	1.374E-01	3.076E-08
CO	3.030E-01	1.953E-01	1.077E-01	2.471E-02	1.979E-04	1.506E-04	4.732E-05	7.600E-02	1.232E-01	3.425E-02	5.600E-10

Test No. 5-2

混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側モル分率	未透過側出口モル分率	透過側出口モル分率	透過係数 (mol/m ² ·sPa)
H ₂	3.050E-01	1.446E-01	1.603E-01	3.899E-02	1.779E-03	2.193E-04	1.559E-03	6.830E-01	3.385E-01	7.971E-01	1.477E-08
CH ₄	3.050E-01	1.446E-01	1.603E-01	7.718E-02	3.307E-04	2.606E-04	7.007E-05	1.270E-01	4.024E-01	3.582E-02	2.285E-10
CO ₂	3.050E-01	1.446E-01	1.603E-01	5.244E-03	2.999E-04	3.542E-05	2.614E-04	1.140E-01	5.469E-02	1.336E-01	1.975E-08
CO	3.050E-01	1.446E-01	1.603E-01	3.893E-02	1.979E-04	1.324E-04	6.546E-05	7.600E-02	2.046E-01	3.346E-02	4.863E-10

Table A.2.1 Experimental results of gas separation by polyimide membrane (7/7).

Test No. 5-3 混合ガス成分	供給側圧力 (MPa)	透過側圧力 (MPa)	差圧 (MPa)	分圧差 (MPa)	供給側流量 (mol/s)	未透過側出口流量 (mol/s)	透過側出口流量 (mol/s)	供給側 モル分率	未透過側出口 モル分率	透過側出口 モル分率	透過係数 (mol/m ² sPa)
H ₂	3.001E-01	1.005E-01	1.996E-01	4.397E-02	1.776E-03	7.254E-05	1.704E-03	6.830E-01	1.452E-01	8.096E-01	1.482E-08
CH ₄	3.001E-01	1.005E-01	1.996E-01	1.000E-01	3.303E-04	2.771E-04	5.318E-05	1.270E-01	5.585E-01	2.527E-02	2.296E-10
CO ₂	3.001E-01	1.005E-01	1.996E-01	6.766E-03	2.965E-04	1.265E-05	2.838E-04	1.140E-01	2.549E-02	1.349E-01	1.695E-08
CO	3.001E-01	1.005E-01	1.996E-01	4.886E-02	1.976E-04	1.339E-04	6.378E-05	7.600E-02	2.698E-01	3.031E-02	5.012E-10