

Verfahren zur Trennung von Gasen

Die Erfindung betrifft ein spezielles Verfahren und eine spezielle Vorrichtung, insbesondere Verkettung von
5 Gasseparationsmembranmodulen, zur Auftrennung von Helium enthaltenden Gasgemischen und zur Herstellung von Helium in hoher Reinheit.

Die Helium Gewinnung von Gasquellen ist energetisch ein
10 sehr aufwendiger Prozess und wird bislang im Wesentlichen mittels kryogener Destillation betrieben.

Zur Vereinfachung dieses Prozesses und zumindest als partieller Ersatz von energieintensiven Verfahrensschritten
15 wie z.B. der kyrogenen Destillation wurde der Einsatz von Membrantechnik vorgeschlagen. So werden z. B. in der US 2005/0217479A1 und dem darin zitierten Stand der Technik verschiedene Beispiele der Aufreinigung von Helium aus Gasströmen mittels Membrantechnologien dargestellt. In dem
20 beschriebenen Prozess können jedoch nur geringe Reinheiten von Helium erzielt werden, zudem ist die Ausbeute sehr schlecht.

Es ist allgemein bekannt, dass mittels
25 Gasseparationsmembranen Gasgemische aufgrund unterschiedlicher Permeabilitäten (= Stoffstrom pro Zeiteinheit, Fläche, Differenzdruck und Schichtdicke) der Einzelgase getrennt werden können. Im Allgemeinen werden zur Herstellung solcher Gasseparationsmembrane Kunststoffe
30 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.

Neben neuen Membranmaterialien wurden im Stand der Technik
5 auch verschiedene Verschaltung von Membranen untersucht.
Literaturbekannt sind eine Reihe von ein- oder mehrstufigen
Membranverschaltungen für die Trennung von Gasen.
Beispielhaft seien hier als Literaturstellen genannt:
Baker, IndEngChemRes, Natural Gas Processing with
10 Membranes, 47 (2008); Bhide MemSci, Hybrid processes for
the removal of acid gases from natural gas, 1998; Hhenar,
MemSci Application of Cardo-type polyimide (PI) and
polyphenylene oxide (PPO) hollow, 2008; EP 0 603 798; EP 0
695 574; US 5,753,011; EP 1 634 946; EP 0 596 268; US
15 6,565,626 B1; US 6,168,649 B1 und EP 0 799 634. Die
genannten Verfahren weisen den Nachteil auf, dass sie zum
Teil mehrere Rekompensationsschritte umfassen oder dass
entweder nur eine hohe Reinheit des Permeatgases oder nur
eine hohe Reinheit des Retentatgases erzielt werden kann.
20 Für das gleichzeitige Erzielen von hohen Reinheiten von
Permeatgas und Retentatgas, gibt es bislang keine
geeigneten Membranverfahren. Auch für die ausschließlich
mittels Membranverfahren durchgeführte Aufreinigung von
Helium gibt es bislang noch keine zufriedenstellenden
25 Lösungen.

Ausgehend von diesem Stand der Technik bestand die Aufgabe
der vorliegenden Erfindung darin ein Verfahren sowie eine
Vorrichtung zur Trennung und Aufreinigung von Helium
30 enthaltenden 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 ein Helium enthaltendes Permeatgas sowie ein Retentatgas in hohen Reinheiten liefern kann. In einer weiteren speziellen Aufgabe sollen diese Verfahren und Vorrichtungen von den

5 Invest- und Betriebskosten vorteilhaft sein und / oder eine einfachere Verfahrensführung ermöglichen.

In einer nächsten speziellen Aufgabe soll ein möglichst universell einsetzbares/-bare Verfahren/Vorrichtung zur

10 Aufreinigung von Helium bereitgestellt werden. Insbesondere soll es möglich sein, beliebige Gasströme, unabhängig vom Heliumgehalt, unabhängig von der Zusammensetzung des Gasstroms und unabhängig vom Gehalt der anderen Komponenten im Gasstrom effizient und effektiv aufzutrennen.

15 Eine weitere spezielle Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es die Verluste an Helium im Vergleich zu Rohgasstrom so gering wie möglich zu halten.

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

Es wurde nun überraschend gefunden, dass durch das

25 Verfahren nach Anspruch 1 und die Vorrichtung gemäß Anspruch 2 bzw. einem der davon abhängigen Ansprüche reine Ströme von Permeat (Heliumstrom) und Retentat erhalten werden können, ohne dass mehr als ein Kompressor benötigt wird. Die erfindungsgemäße Vorrichtung ermöglicht

30 gleichzeitig Helium und einen Retentatstrom in hoher Reinheit zu erhalten. 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 Erfindung sind daher die/das in
5 den Ansprüchen beanspruchte sowie in der nachfolgenden Beschreibung und den Beispielen näher erläuterte Vorrichtung bzw. Verfahren.

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

Der Quotient der Permeanzen zweier Einzelgase ergibt die **Selektivität** der Membran zur Trennung bezüglich der zwei
15 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.

20 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
25 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
30 **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

5 aufgetrennt werden soll und das/der als eine Komponente Helium enthält. Der Gehalt an Helium kann in beliebigen Grenzen variieren, beträgt jedoch bevorzugt zwischen 0,01 und 80 Vol%, besonders bevorzugt 0,1 und 20 Vol% und ganz besonders bevorzugt 1 bis 10 Vol. %. Bei dem Rohgasstrom

10 kann es sich um einen unbehandelten Gasstrom, z. B. Nebenprodukt- oder Abgasströme aus Verfahren etc. oder um einen bereits mit einer Erhöhung des Heliumanteils einhergehend aufgearbeiteten Gasstrom, z. B. aus eine kryogenen Destillation handeln. Beispiele für geeignete

15 Gasströme sind Prozessgase bei denen Helium z.B. als Schutzatmosphäre angewandt wird.

Feedstrom (5) bezeichnet einen Gasstrom aus Helium und mindestens einer weiteren Komponente, der der

20 Feedstromtrennstufe (1) zugeführt wird. Dieser Strom kann dem Rohgasstrom (17) bzw. dem durch einen Kompressor komprimierten Rohgasstrom entsprechen. Nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und/oder des dritten Retentatstroms (10) setzt sich der Feedstrom (5) jedoch aus

25 den Gasen des Rohgasstroms (17), denen des zweiten Permeatstroms (9) und/oder denen des dritten Retentatstroms (10) zusammen. Der Feedstrom (5) wird bevorzugt erzeugt indem die Ströme (9) und (10) entweder beide mit dem unkomprimierten Rohgasstrom (17) oder beide mit dem

30 komprimierten Rohgasstrom oder einer mit dem unkomprimierten und einer mit dem komprimierten Rohgasstrom vermischt werden oder indem 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, im Vergleich zum Feedstrom (5) bezüglich Helium angereicherten, Permeatstrom (6) und einen ersten, im Vergleich zum Feedstrom (5) bezüglich Helium abgereicherten, Retentatstrom (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, im Vergleich zum ersten Retentatstrom (7) bezüglich Helium angereicherten, Permeatstrom (9), und einen zweiten, im Vergleich zum ersten Retentatstrom (7) bezüglich Helium abgereicherten, Retentatstrom (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, im Vergleich zum ersten Permeatstrom (6) bezüglich Helium abgereicherten, Retentatstrom (10), und einen dritten, im Vergleich zum ersten Permeatstrom (6) bezüglich Helium angereicherten Permeatstrom (11).

- 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.

5

Einzelne Merkmale, die im Zusammenhang mit konkreten Ausführungsbeispielen angegeben und/oder dargestellt sind, sind nicht auf diese Ausführungsbeispiele oder die Kombination mit den übrigen Merkmalen dieser

10 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.

15 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
20 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
25 verständlich.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung, siehe beispielhaft Abbildungen 1 bis 3, beinhaltet eine Verkettung von mindestens drei Membrantrennstufen. Jede Stufe besteht aus
30 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/
- 5 oder mittels zumindest einer, bevorzugt einer oder zwei Vakuumpumpe(n) (in den Abb. 1 bis 3 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
- 10 werden. Ggf. kann es vorteilhaft sein in einer oder mehrerer der Membrantrennstufen die Partialdruckdifferenz durch einen permeatseitigen Spülgasstrom zu erzeugen bzw. zu verstärken.
- 15 In einer bevorzugten Ausgestaltungsform der vorliegenden Erfindung bringt ein Kompressor (4) das Rohgasgemisch bzw. das Gasgemisch aus dem Rohgasstrom (17) und dem zweiten Permeatstrom (9) und/oder dem dritten Retentatstrom (10), auf den gewünschten Druck im Bereich von 5 bis 100 bar,
- 20 vorzugsweise jedoch auf einen Druck von 5 bis 50 bar bzw. besonders bevorzugt 10 bis 25 bar. Der erhaltene Feedstrom (5) wird in die Feedstromtrennstufe (1) eingeleitet. In der Feedstromtrennstufe (1) wird eine Vortrennung des Rohgasgemisches in leichter permeierende Komponenten
- 25 (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.
- 30 Das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung kann insbesondere bei der Aufreinigung von Roh-Helium ohne Rückführung der Stoffströme (9) und (10) durchgeführt werden (siehe Beispiel 2).

Insbesondere dann jedoch, wenn der Helium Gehalt im Rohgasstrom (17) sehr gering ist und/oder eine hohe Reinheit von Helium im dritten Permeatstrom (11) gewünscht wird, zeichnet sich das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung in einer bevorzugten Variante dadurch aus, dass es/sie derart ausgestaltet ist, dass die Konzentration an Helium im Feedstrom (5) durch die Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10) erhöht wird, bevorzugt um mindestens 2%, besonders bevorzugt um mindestens 3%, ganz besonders bevorzugt um 4 bis 10% und speziell bevorzugt um 5 bis 10%, jeweils im Vergleich zur Helium-Konzentration im Rohgasstrom (17). Die Erhöhung kann von der Zusammensetzung des Rohgasstromes (17) abhängen und ist besonders ausgeprägt bei niedrigen Konzentrationen an Helium (0,01 bis 10%). In der Regel beträgt die Konzentrationserhöhung von Helium zwischen 2 und 10% besonders bevorzugt zwischen 3 und 5 %, wenn der Gehalt des Permeatgases im Rohgasstrom (17) zwischen 2 und 7% beträgt.

Die Erfinder haben herausgefunden, dass die Ausbeute des gesamten Prozesses an Helium und Retentatgas zunimmt und damit der Gasverlust abnimmt, wenn die Konzentration des Heliums in der Feedstromtrennstufe (1) erhöht wird. Bei gleichem Stufentrennschnitt (=Verhältnis Permeatstrom zu Feedstrom der betrachteten Stufe) gelangt deutlich weniger Helium ins Retentat der Feedstromtrennstufe (1), wenn die Konzentration mindestens des Heliums im Feedstrom (5) erhöht wird. Analog wurde eine Ausbeuteerniedrigung festgestellt, wenn die Konzentration an Helium im aufzureinigenden Feedstrom (5) sich im Vergleich zum Rohgasstrom verringert. So beträgt der Stufentrennschnitt

für eine Konzentration von 10% Helium im aufzureinigenden Feedstrom (5) zwischen 2 und 30%, vorzugsweise zwischen 5 und 25% und besonders bevorzugt zwischen 10 und 15 %. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der

5 vorliegenden Erfindung ist das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung daher derart ausgestaltet, dass der Gehalt an Helium im Feedstrom (5) bei größer gleich 2 Vol. %, bevorzugt mehr als 5 Vol.% und ganz besonders bei mehr als 10 Vol. % bezogen auf das

10 Volumen des Feedstroms (5), nach Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10), liegt.

Durch diese Konzentrationserhöhung von Helium im Feedstrom

15 (5) wird wie bereits erläutert die Effizienz der Feedstromtrennstufe (1) erhöht, was wiederum zur Folge hat, dass weniger Retentatgas in den ersten Permeatstrom (6) gelangt. Dies erhöht wiederum die Effizienz der Permeattrennstufe (3) und sorgt dafür, dass auch hier

20 weniger unerwünschtes Retentatgas in den dritten Permeatstrom (10) gelangt.

Allgemein kann man sagen, dass in der Feedstromtrennstufe (1) bevorzugt 20 bis 100%, besonders bevorzugt 30 bis 90 %

25 und ganz besonders bevorzugt 40 bis 70 % an Helium vom Feedstrom (5) in das Permeat übergehen.

Das Retentat der Feedstromtrennstufe (1) wird, optional mit Druckminderung durch ein optional vorhandenes

30 Druckminderventil (12) oder mit Druckerhöhung, mittels des ersten Retentatstroms (7) der Retentattrennstufe (2) zugeführt, in der die Feinreinigung des Retentatstroms (7) 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) bevorzugt mehr als 80 Vol. %, besonders bevorzugt mehr als 90 Vol. %, ganz besonders bevorzugt 90 bis 99,9 Vol. % und speziell bevorzugt 92% bis 99,5 Vol. % beträgt. In einer besonders bevorzugten Variante zeichnet sich das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung dadurch aus, dass mindestens 95 Vol. %, bevorzugt mindestens 97 Vol. %, besonders bevorzugt mindestens 99 Vol. % und ganz besonders bevorzugt mindestens 99,5 Vol. %, 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 des Heliums von 5% im ersten Retentatstrom (7) zwischen 2 und 30%, vorzugsweise zwischen 5 und 15 %.
- Das Helium-enthaltende Permeat der Retentattrennstufe (2) wird mittels des zweiten Permeatstroms (9) rückgeführt, dem Feedstrom (5) zugeführt und wiederaufbereitet - was bevorzugt ist - oder es wird verworfen. Die Rückführung 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. 1) 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. 2 und 3).

Das mit Helium 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. 1). Auf diese Weise kann die treibende Kraft für die Permeattrennstufe (3) erhalten bleiben. Die Permeattrennstufe (3) produziert bevorzugt ein Permeat (Helium-Produktstrom) mit einem Gehalt an Helium größer als 50 Vol. %, vorzugsweise 70 bis 99,9 Vol. %, besonders bevorzugt 80 bis 99 Vol. %, speziell bevorzugt 85 bis 98 Vol. % und ganz speziell bevorzugt 90 bis 96 Vol. %, welches über den dritten Permeatstrom (11) aus der Vorrichtung ausgeschleust wird. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist die erfindungsgemäße Vorrichtung derart ausgestaltet, dass maximal 50 Vol. %, bevorzugt maximal 30 Vol. %, besonders bevorzugt maximal 1 bis 20 Vol. %, ganz besonders bevorzugt maximal 2 bis 15 Vol. % und speziell bevorzugt 4 bis 10 Vol. %, der mit dem Rohgasstrom (17) in die Vorrichtung eingeführten Retentatkomponente der Feedstromtrennstufe (1) über den dritten Permeatstrom (11) ausgeschleust werden. In einer weiteren besonders bevorzugten Variante zeichnet sich das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung somit dadurch aus, dass mindestens 95 Vol. %,

bevorzugt mindestens 97 Vol. %, besonders bevorzugt mindestens 99 Vol. % und ganz besonders bevorzugt mindestens 99,5 Vol. %, der mit dem Rohgasstrom (17) in die Vorrichtung eingeführten Heliums der Feedstromtrennstufe (1) über den dritten Permeatstrom (11) ausgeschleust werden.

Der Stufentrennschnitt der Permeattrennstufe (3) beträgt zwischen 30 und 95%, vorzugsweise zwischen 50 und 70%.

10

Der dritte Retentatstrom (10) wird rückgeführt, dem Feedstrom (5) zugeführt und wiederaufbereitet - was bevorzugt ist - oder es wird verworfen. Die Rückführung 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. 2) 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. 2 und 3).

Das erfindungsgemäße Verfahren bzw. die erfindungsgemäße Vorrichtung zeichnet sich in der besonders bevorzugten Ausführungsform 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 50 Vol. %, bevorzugt 5 bis 40 Vol. %, ganz besonders bevorzugt 5 bis 30 Vol. % und speziell bevorzugt 10 bis 25 Vol. % des Volumens des Rohgasstroms (17) beträgt. Die Steuerung der Menge der rückzuführenden

30

Gasströme kann z. B. durch Auswahl der jeweiligen Membranmodule in den Membrantrennstufen (1) bis (3) oder durch Steuerung und Regelung von Drücken im System oder durch die Flüsse erfolgen. Somit zeichnet sich das

5 erfindungsgemäße Verfahren bzw. die Vorrichtung dadurch aus, dass trotz sehr geringer Rückströme die oben näher erläuterte Erhöhung der Konzentration an Helium im Feedstrom (5) sichergestellt wird. Dies erhöht deutlich die Effizienz des gesamten Verfahrens.

10

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), 1 bis 30 bar, vorzugsweise 2 bis 20

15 bar und besonders bevorzugt 2 bis 10 bar beträt.

20

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. 2 und 3).

25

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

30 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. 3.

5

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),

10

sichergestellt, dass der Druckabfall über die Feedstromtrennstufe (1), auf 1 bis 30 bar, vorzugsweise 2 bis 20 bar und besonders vorzugsweise 3 bis 10 bar beschränkt wird. Gleichzeitig oder alternativ wird, bevorzugt mittels eines Druckminderventils (13),

15

sichergestellt, dass der Druckabfall über die Feedstromtrennstufe (1) und die Retentattrennstufe (2), auf 1 bis 100 bar, vorzugsweise 5 bis 80 bar und besonders vorzugsweise 10 bis 70 bar beschränkt wird.

20

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

25

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.

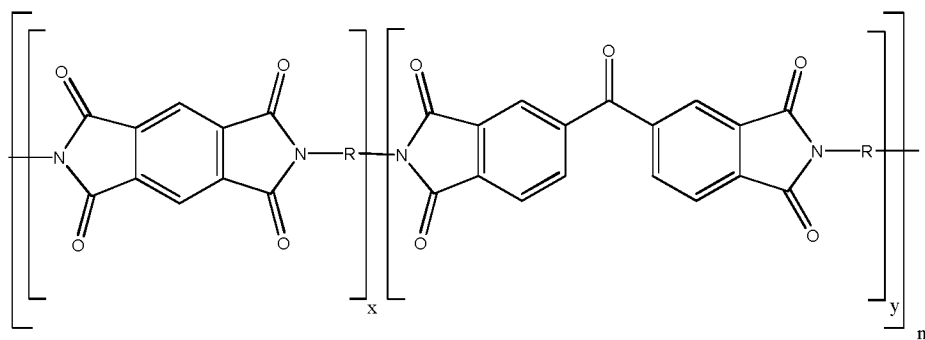
30

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung weisen die Gasseparationsmembranmodule eine Gemischtgasselektivität (= Verhältnis des He-angereicherten Stoffstromes zum He-abgereicherten Stoffstrom über die Membran) für Helium/Methan oder für Helium/Stickstoff von mindestens 40, bevorzugt 50 bis 400, besonders bevorzugt 100 bis 350 und ganz besonders bevorzugt 150 bis 300 auf. Für Helium/Methan umfasst die Erfindung zudem noch die speziell bevorzugten Ausführungsformen mit Gemischtgasselektivitäten von 200 bis 350 und ganz speziell bevorzugt von 250 bis 300. Diese hoch selektiven Membranen haben den Vorteil, dass die Trennung effektiver wird und weniger Permeat aus der Retentattrennstufe (2) bzw. weniger Retentat aus der Permeattrennstufe (3) rückgeführt werden muss. Ihr Einsatz ist daher eine gute Möglichkeit die erfindungsgemäßen Rückströme zu regeln. Ferner muss bei ihrem Einsatz und bei Verwendung eines einstufigen Kompressors (4) weniger Gas doppelt komprimiert werden, was wirtschaftliche Vorteile beim Betrieb der Anlage mit sich bringt. Bei diesen sehr selektiven Membranmodulen müssen nur bis zu 30 %, bevorzugt bis zu 20%, besonders bevorzugt bis zu ca. 10% des als Rohgas in die Feedstromtrennstufe (1) eingebrachten Gases doppelt komprimiert werden, mit einem Membranmodul mit einer Selektivität von nur 40 und ohne andere Regelungsmaßnahmen kann es sein, dass die Doppelkomprimierung bis zu 50% beträgt. Bei Membranen mit einer Mischgasselektivität unter 40 ist eine Aufkonzentrierung auf über 50% Helium im Produktgas mit dem Angegebenen Helium Gehaltsbereich des Rohgas kaum möglich. Die obigen Angaben beziehen sich auf Versuche, bei denen ein Gasgemisches mit 0,4 bis 7% Helium und einer zweiten Komponente B (= Feed) aufgegeben wurden, wobei mehr als 99%

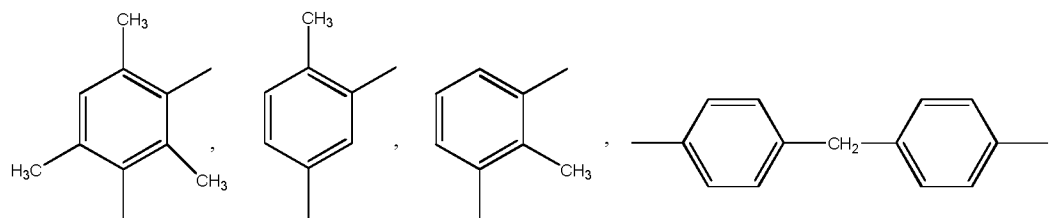
Komponente B im Retentatgas der Stufe(2) und mehr als 50% an Helium im Permeatstrom der Stufe (3) enthalten waren.

Der Einsatz solcher hoch selektiven Membrane ist somit eine bevorzugte Möglichkeit, den erfindungsgemäßen Prozess wesentlich wirtschaftlicher zu führen und die notwendigen Größe des Kompressors und die benötigten Energie zu reduzieren.

- 10 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



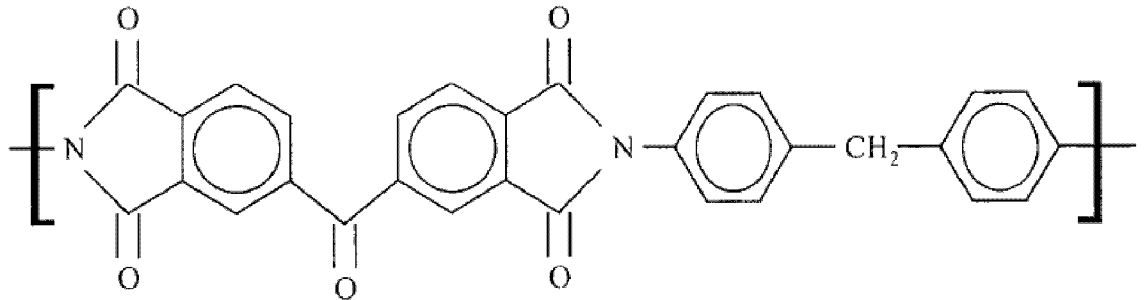
x,y: Molenbruch mit $0 < x < 0,5$ und $1 > y > 0,5$

15

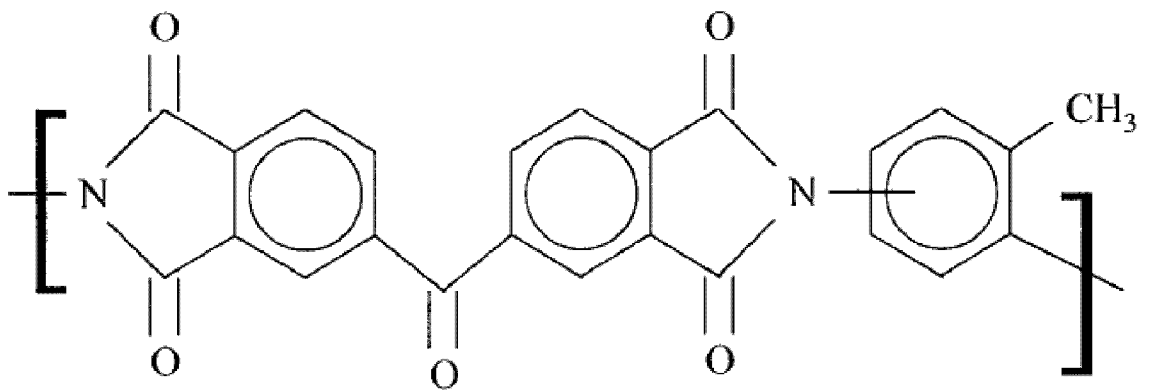
auf.

- 20 Ganz besonders bevorzugte Membranen umfassen als Material für die trennaktive Schicht der Membranen ein Polyimid

umfassend 10 bis 90 Gew. %, bevorzugt 15 bis 25 Gew.% und ganz besonders bevorzugt 20 Gew. %



5 sowie 90 bis 10 Gew. %, bevorzugt 85 bis 75 Gew.% und ganz besonders bevorzugt 80 Gew. %



10 Besonders bevorzugte Polyimide weisen sind in Chemical Abstracts registriert unter den Nummern: CAS Nr. 9046-51-9 und CAS Nr. 134119-41-8.

Die Herstellung solcher Membranen wird in der US
 15 2006/0196355 sowie in der WO 2011/009919 beschrieben. Zur Vermeidung reiner Wiederholungen wird der Inhalt dieser beiden Patentschriften vollumfänglich mit in den Inhalt der vorliegenden Beschreibung aufgenommen. Besonders bevorzugt sind die Membranen gemäß WO 2011/009919, welche gegenüber
 20 den Membranen aus der US 2006/0196355 neben der einfacheren

und kostengünstigeren Herstellung den Vorteil aufweisen, dass sie eine verbesserte Beständigkeit im erfindungsgemäßen Verfahren aufweisen. Sie weisen insbesondere eine bessere thermische Beständigkeit auf.

5

Besonders bevorzugte Membranen sind von der Firma Evonik Fibres GmbH unter dem Namen Polyimid P84 und ganz besonders als Polyimid P84 HT erhältlich.

- 10 Die Membranen werden erfindungsgemäß 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
- 15 aber nicht ausschließlich Hohlfasergasseparationsmodule, Spiralwickelgasseparationsmodule, Kissengasseparationsmodule oder Rohrbündelgasseparationsmodule zum Einsatz kommen.
- 20 Das erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung hat insbesondere die Vorteile, dass es ein reines Membranverfahren ist.

- Weiterhin kann mit dem erfindungsgemäßen Verfahren / der
- 25 erfindungsgemäßen Vorrichtung gleichzeitig ein reiner Retentatstrom (8) und ein reiner Permeatstrom (11) hergestellt werden.

- Ein weiterer Vorteil ist darin zu sehen, dass das
- 30 erfindungsgemäße Verfahren / die erfindungsgemäße Vorrichtung

mit deutlich geringerem apparativem und energetischen Aufwand auskommt wie die bekannten Verfahren des Standes der Technik.

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

- Wie zuvor beschrieben kann das erfindungsgemäße Verfahren
15 eingesetzt werden um hochreine Heliumströme zu erhalten. Grundsätzlich kann das Verfahren aber auch benutzt werden um „Roh-Helium“ herzustellen. Als „Roh-Helium“ bezeichnet man Helium mit einer Reinheit von 50 bis 70 Vol. % Helium, welches einer anderweitigen Weiterverarbeitung oder
20 Aufreinigung zugeführt werden kann. Das erfindungsgemäße Verfahren kann somit herkömmlicher Heliumaufarbeitungsanlagen vollständig ersetzen. Es kann aber auch nur Teile bzw. Teilschritte ersetzen. Es erlaubt somit größtmögliche Flexibilität.

25

Ein konventionelles Heliumaufbereitungsverfahren aus Gasgemischen, besteht z. B. aus den Schritten:

- a) Entfernung von CO₂, z. B. durch Aminabsorption
30 b) Trocknung, z.B. über Molekularsieb
c) Kohlenwasserstoffentfernung, z.B. über Aktivkohle
d) Heliumaufkonzentration, z. B. über fraktionierte Destillation

man erhält ein „Roh-Helium“ mit einer Reinheit von 50 bis 70 Vol. %

- 5 e) N_2 und CH_4 -Abtrennung, z.B. durch Abkühlung auf -193°C
f) Kat. Umwandlung von H_2 in H_2O
g) ggf. weitere Aufarbeitungsschritte

10 Man erhält Helium mit einer Reinheit bis zu 99,99 Vol. %.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann hier insbesondere die Schritte d) und/oder e) aber auch weitere der genannten Schritte ersetzen.

15

Meßmethoden:

- 20 Zur Bestimmung der Gemischtgasselektivität He/CH_4 oder He/N_2 werden Membranmodule mit einer Mischung von 50% He und 50% N_2 bzw. 50% He und 50% CH_4 bei Raumtemperatur (23°C) im Feed betrieben. Die Zusammensetzung des Permeates und des Retentates werden hierbei bei verschiedenen Drücken
25 (5, 10, 15, 20 bar(g)) gemessen. Aus diesen Messungen lassen sich dann die Permeanzen des He und des N_2 bzw. CH_4 für den gesamten gemessenen Druckbereich (5 bis 20 bar) berechnen.

Das Verhältnis dieser Permeanzen entspricht dann der
30 Mischgas Selektivität.

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

5 Beispiele

Allgemeine Vorbemerkung

Die nachfolgenden Beispiele basieren auf
10 Simulationsrechnungen. Basis sind Membranmodule umfassend
619 Hohlfasermembranen aus P84HT. Die reale
Gemischtgasselektivität beträgt $\text{He}/\text{N}_2 = 175$ und $\text{He}/\text{CH}_4 =$
290. Für die Simulationsrechnungen wurden jedoch nur
folgende Gemischtgasselektivitäten zu Grunde gelegt: He/N_2
15 $= 150$ und $\text{He}/\text{CH}_4 = 250$.

Für die Simulationsrechnungen wurde davon ausgegangen, dass
die in Abb. 1 dargestellte Verschaltung verwendet wird.
Jede Membrantrennstufe besteht aus den o.g. Modulen.

20 $1 \text{ m}^3/\text{h}$ eines Rohgasgemisches mit der in den Beispielen
angegebenen Zusammensetzung wird in eine Mischkammer
eingebracht und dann, ggf. zusammen mit rückgeführtem Gas
aus den Gasströmen (9) und (10), auf den in den Beispielen
25 angegebenen Druck 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
30 der Retentattrennstufe (2) bestimmt die treibende Kraft
durch die Membran der Membrantrennstufen (1) und (2). 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 den in den Beispielen angegebenen Druck beschränkt. Die Summe an rückgeführten Gasströmen (9) und (10) wird in den nachfolgenden Beispielen angegeben.

5

Erfindungsgemäßes Beispiel 1: Herstellung von „Roh-Helium“

Als Rohgasstrom wird in einem Mischer eine Mischung aus

10

0,4 Vol% He

16,1 Vol. % N₂

83,5 Vol. % CH₄

15 hergestellt.

Die Summe der rückgeführten Stoffströme (9) und (10) betrug 14 Vol.- %. Der Feeddruck betrug 20 bar(a). Die Heliumausbeute bezogen auf die eingesetzte Heliummenge betrug > 97 Gew.%. Weitere Zusammensetzungen und Drücke der erhaltenen Gasströme finden sich in nachfolgender Tabelle 1.

20

Tabelle 1:

	He [Vol.%]	N ₂ [Vol.%]	CH ₄ [Vol.%]	Druck p [bar (a)]
Feedstrom (5) nach 1. Rückführung	2,91	16,37	80,72	20,07
Erster Permeatstrom (6)	22,9	18,51	58,59	2,31
Erster Retentatstrom (7)	1,78	16,25	81,97	20,07
Zweiter Retentatstrom (8)	0,01	16,13	83,86	20,00
Zweiter Permeatstrom (9)	26,67	17,9	55,43	0,28
Dritter Retentatstrom (10)	18,18	19,38	62,44	2,3

Dritter Permeatstrom (11) = He-Produktstrom	69,9	9,8	20,3	1
--	------	-----	------	---

Aus einem vergleichbaren Rohgasgemisch wird im
 nächstliegenden Stand der Technik, nämlich der US
 2005/0217479, Beispiel 4, nur eine Heliumkonzentration von
 5 10 Vol. % erzielt. Die Helium-Ausbeute beträgt 62%. Dies
 bestätigt den signifikanten technischen Fortschritt, der
 durch das erfindungsgemäße Verfahren erzielt wurde.

10 **Erfindungsgemäßes Beispiel 2: Herstellung von Helium mit hoher Reinheit aus „Roh-Helium“**

Als Rohgasstrom wird in einem Mischer eine „Roh-
 Heliummischung“ aus

15

50 Vol% He
 46 Vol. % N₂
 3 Vol. % CH₄
 1 Vol. % H₂

20

hergestellt.

Es erfolgt keine Rückführung der Stoffströme (9) und (10).
 Der Feeddruck betrug 16 bar(a). Es wurde ein Produktstrom
 25 (11) (1 bar(a)) mit folgender Zusammensetzung erhalten:

90,2 Vol% He
 7,7 Vol. % N₂
 0,3 Vol. % CH₄
 30 1,8 Vol. % H₂

Der Retentatstrom (8) (16 bar(a)) hatte folgende Zusammensetzung:

- 0,7 Vol% He
5 93,0 Vol. % N₂
6,3 Vol. % CH₄
0,1 Vol. % H₂

- Die Heliumausbeute betrug > 99 Gew.%. Dies zeigt, dass mit
10 dem erfindungsgemäßen Verfahren ein einem Prozeßschritt und
in hohen Ausbeuten in bereits hoch aufgereinigter
Heliumstrom erhalten werden kann.

Erfindungsgemäßes Beispiel 3: Herstellung von Helium mit
15 **hoher Reinheit**

3a) Als Rohgasstrom wird in einem Mischer eine Mischung aus

- 3 Vol% He
20 16,1 Vol. % N₂
80,9 Vol. % CH₄

hergestellt.

- 25 Die Summe der rückgeführten Stoffströme (9) und (10) betrug
14 Vol.- %. Der Feeddruck betrug 20 bar(a). Die
Heliumausbeute bezogen auf die eingesetzte Heliummenge
betrug > 95 Gew.%. Weitere Zusammensetzungen und Drücke der
erhaltenen Gasströme finden sich in nachfolgender Tabelle
30 2.

Tabelle 2:

	He [Vol. %]	N ₂ [Vol. %]	CH ₄ [Vol. %]	Druck p [bar (a)]
Feedstrom (5) nach 1. Rückführung	7,03	16,07	76,9	20,08
Erster Permeatstrom (6)	49,72	12,46	37,82	2,32
Erster Retentatstrom (7)	3,53	16,37	80,1	20,08
Zweiter Retentatstrom (8)	0,03	16,56	83,41	20,00
Zweiter Permeatstrom (9)	43,23	14,19	42,58	0,28
Dritter Retentatstrom (10)	24,14	18,53	57,33	2,3
Dritter Permeatstrom (11) = He-Produktstrom	94,96	1,73	3,31	1

3b) Als Rohgasstrom wird in einem Mischer eine Mischung aus

6 Vol% He

16,1 Vol. % N₂

5 77,9 Vol. % CH₄

hergestellt.

Die Summe der rückgeführten Stoffströme (9) und (10) betrug
 10 15 Vol.- %. Der Feeddruck betrug 20 bar(a). Die
 Heliumausbeute betrug > 97 Gew.%. Weitere Zusammensetzungen
 und Drücke der erhaltenen Gasströme finden sich in
 nachfolgender Tabelle 3.

15 Tabelle 3:

	He [Vol.%]	N ₂ [Vol.%]	CH ₄ [Vol.%]	Druck p [bar (a)]
Feedstrom (5) nach 1. Rückführung	10,26	16,04	73,7	20,08
Erster Permeatstrom (6)	63,14	9,44	27,42	2,32
Erster Retentatstrom (7)	4,15	16,80	79,05	20,08
Zweiter Retentatstrom (8)	0,03	17,09	82,88	20,00
Zweiter Permeatstrom (9)	46,47	13,77	39,76	0,28
Dritter Retentatstrom (10)	26,69	18,53	54,78	2,3
Dritter Permeatstrom (11) = He-Produktstrom	97,62	0,85	1,53	1

Diese Beispiele zeigen, dass mit dem erfindungsgemäßen
 Verfahren Helium mit hoher Reinheit gewonnen werden kann
 20 ohne Roh-Helium als Zwischenprodukt zu erstellen und somit
 2 Schritte der Klassischen Helium Aufbereitung ersetzt
 werden können.

Erfindungsgemäßes Beispiel 4: Herstellung von Helium mit
5 **hoher Reinheit aus einem He/N₂ Gasstrom**

In einem Mischer wird eine Mischung aus

2,7% Vol% He
10 97,3 Vol. % N₂

hergestellt.

Die Summe der rückgeführten Stoffströme (9) und (10) betrug
15 20 Vol.- %. Der Feeddruck betrug 16 bar(a). Es wurde ein
Produktstrom (11) (1 bar(a)) mit > 90% Heliumgehalt und ein
Retentatstrom (8) (16 bar(a)) mit einem Heliumgehalt von
0,04 Vol. % erhalten.

20 Die Heliumausbeute betrug > 99,5 Gew.%. Dies zeigt, dass
mit dem erfindungsgemäßen Verfahren in einem Prozessschritt
und in hohen Ausbeuten ein bereits hoch aufgereinigter
Heliumstrom und gleichzeitig ein hochreiner Retentatstrom
erhalten werden kann.

25

Aus einem vergleichbaren Rohgasgemisch wird im
nächstliegenden Stand der Technik, nämlich der US
2005/0217479 , Beispiel 3, nur eine Heliumkonzentration von
30 28 Vol. % erzielt. Die Helium-Ausbeute beträgt 75%. Im
Retentatstrom befinden sich noch 0,7 Vol. % Helium. Dies
bestätigt erneut den signifikanten technischen Fortschritt,
der durch das erfindungsgemäße Verfahren erzielt wurde. Mit
dem erfindungsgemäßen Verfahren kann nicht nur ein bereits
35 hoch angereicherter Heliumstrom erzeugt werden,

gleichzeitig erhält man auch einen höchst reinen N₂-Strom und somit gleichzeitig zwei verwertbare Produkte.

Abbildungsverzeichnis:

- 5 **Abb.1:** Beispielhafte Verschaltung von mehreren
 Membranmodulen laut Erfindung
- 10 **Abb.2:** 3-Stufige Verschaltung von Membranmodulen mit
 einem Kompressor und Retentatrückführung der
 Permeattrennstufe (3) ohne totale Entspannung
 in eine erhöhte Kompressionsstufe des
 Kompressors (4)
- 15 **Abb.3:** 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
- 5 3: Permeattrennstufe
- 4: einstufiger oder mehrstufiger Kompressor
- 5: Feedstrom
- 6: erster Permeatstrom
- 7: erster Retentatstrom
- 10 8: zweiter Retentatstrom
- 9: zweiter Permeatstrom
- 10: dritter Retentatstrom
- 11: dritter Permeatstrom
- 12: Optionales Druckminderventil im ersten Retentatstrom 7
- 15 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)
- 20 17: Rohgasstrom

Ansprüche

1. Verfahren zur Trennung von Helium enthaltenden Gasen,
dadurch gekennzeichnet,
- 5 dass es in einer Vorrichtung durchgeführt wird,
welche eine Feedstromtrennstufe (1), eine
Retentattrennstufe (2) und eine Permeattrennstufe (3)
aufweist, sowie zumindest einen Kompressor (4)
und/oder zumindest eine, bevorzugt eine oder zwei,
10 Vakuumpumpe(n) (15),
 dass die Feedstromtrennstufe (1) einen Feedstrom
(5), bestehend aus Helium und mindestens einer
weiteren Komponente, in einen ersten, im Vergleich zum
Feedstrom (5) bezüglich Helium angereicherten,
15 Permeatstrom (6) und einen ersten, im Vergleich zum
Feedstrom (5) bezüglich Helium abgereicherten,
Retentatstrom (7) auftrennt,
 dass die Retentattrennstufe (2) den ersten
Retentatstrom (7) in einen zweiten, im Vergleich zum
20 ersten Retentatstrom (7) bezüglich Helium
angereicherten Permeatstrom (9), und einen zweiten, im
Vergleich zum ersten Retentatstrom (7) bezüglich
Helium abgereicherten, Retentatstrom (8), auftrennt
 dass die Permeattrennstufe (3) den ersten
25 Permeatstrom (6), in einen dritten, im Vergleich zum
ersten Permeatstrom (6) bezüglich Helium
abgereicherten, Retentatstrom (10), und einen dritten,
im Vergleich zum ersten Permeatstrom (6) bezüglich
Helium angereicherten Permeatstrom (11), auftrennt,
30 dass der dritte Permeatstrom (11) als Produkt
entnommen oder weiterverarbeitet und gegebenenfalls
der zweite Retentatstrom (8) als erstes weiteres

Produkt entnommen oder weiterverarbeitet oder
verworfen werden,

dass der zweite Permeatstrom (9) und der dritte
Retentatstrom (10) in den Feedstrom (5) zugeführt oder
5 verworfen werden,

dass der erste Permeatstrom (6) keiner
Rekompression unterworfen wird

dass bei Rückführung des zweiten Permeatstroms
(9) und des dritten Retentatstroms (10) die Regelung
10 des mit dem zweiten Permeatstrom (9) und dem dritten
Retentatstrom (10) in den Feedstrom (5)

zurückgeführten Gasvolumens derart eingestellt wird,
dass in Summe weniger als 50 Vol. %, bevorzugt 5 bis
40 Vol. %, ganz besonders bevorzugt 5 bis 30 Vol. %
15 und speziell bevorzugt 10 bis 25 Vol. %, des Volumens
des Rohgasstroms (17) zurückgeführt werden,
und

dass bei Rückführung des zweiten Permeatstroms
(9) und des dritten Retentatstroms (10) die Helium
20 Konzentration nach erstmaliger Rückführung des zweiten
Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10),
im Feedstrom (5) erhöht wird, bevorzugt um mindestens
2%, besonders bevorzugt um mindestens 3% besonders
bevorzugt um 4 bis 10% und ganz besonders bevorzugt um
25 5 bis 10%, jeweils im Vergleich zur Konzentration im
Rohgasstrom (17).

2. Vorrichtung zur Trennung von Helium enthaltenden
Gasen, dadurch gekennzeichnet,

30 dass sie eine Feedstromtrennstufe (1), eine
Retentattrennstufe (2) und eine Permeattrennstufe (3)
aufweist, sowie zumindest einen Kompressor (4)

und/oder zumindest eine, bevorzugt eine oder zwei,
Vakuumpumpe(n) (15),

5 dass die Feedstromtrennstufe (1) derart
ausgestaltet ist, dass sie einen Feedstrom (5),
bestehend aus Helium und mindestens einer weiteren
Komponente, in einen ersten, im Vergleich zum
Feedstrom (5) bezüglich Helium angereicherten,
Permeatstrom (6) und einen ersten, im Vergleich zum
Feedstrom (5) bezüglich Helium abgereicherten,
10 Retentatstrom (7) auftrennt,

dass die Retentattrennstufe (2) derart
ausgestaltet ist, dass sie den ersten Retentatstrom
(7) in einen zweiten, im Vergleich zum ersten
Retentatstrom (7) bezüglich Helium angereicherten
15 Permeatstrom (9), und einen zweiten, im Vergleich zum
ersten Retentatstrom (7) bezüglich Helium
abgereicherten, Retentatstrom (8), auftrennt

dass die Permeattrennstufe (3) derart
ausgestaltet ist, dass sie den ersten Permeatstrom
20 (6), in einen dritten, im Vergleich zum ersten
Permeatstrom (6) bezüglich Helium abgereicherten,
Retentatstrom (10), und einen dritten, im Vergleich
zum ersten Permeatstrom (6) bezüglich Helium
angereicherten Permeatstrom (11), auftrennt,

25 dass die Vorrichtung derart ausgestaltet ist,
dass der dritte Permeatstrom (11) als Produkt
entnommen oder weiterverarbeitet und gegebenenfalls
der zweite Retentatstrom (8) als weiteres Produkt
entnommen oder weiterverarbeitet oder verworfen werden
30 können,

dass die Vorrichtung derart ausgestaltet ist,
dass der zweite Permeatstrom (9) und der dritte

Retentatstrom (10) in den Feedstrom (5) zugeführt oder verworfen werden können,

dass die Vorrichtung derart ausgestaltet ist, dass der erste Permeatstrom (6) keiner Rekompensation unterworfen wird

dass bei Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10) die Rückführung des mit dem zweiten Permeatstrom (9) und mit dem dritten Retentatstrom (10) in den Feedstrom (5) zurückgeführten Gasvolumens derart geregelt ist, dass in Summe weniger als 50 Vol. %, bevorzugt 5 bis 40 Vol. %, ganz besonders bevorzugt 5 bis 30 Vol. % und speziell bevorzugt 10 bis 25 Vol. %, des Volumens des Rohgasstroms (17) zurückgeführt werden, und

dass bei Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10) die Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10) derart geregelt ist, dass die Helium Konzentration nach erstmaliger Rückführung des zweiten Permeatstroms (9) und des dritten Retentatstroms (10), im Feedstrom (5) erhöht wird, bevorzugt um mindestens 2%, besonders bevorzugt um mindestens 3%, besonders bevorzugt um 4 bis 10% und ganz besonders bevorzugt um 5 bis 10%, jeweils im Vergleich zur Konzentration im Rohgasstrom (17).

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder Vorrichtung nach Anspruch 2,

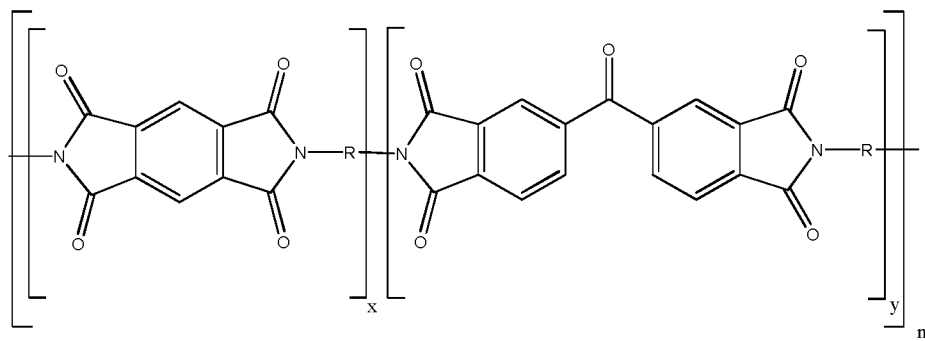
dadurch gekennzeichnet, dass zumindest in der Feedstromtrennstufe (1), bevorzugt jedoch in der Feedstromtrennstufe (1), der Retentattrennstufe (2) und der Permeattrennstufe (3), Gasseparationsmembranmodule

mit einer Gemischtgasselektivität für Helium/Methan oder für Helium/Stickstoff von mindestens 40, bevorzugt 50 bis 400, besonders bevorzugt 150 bis 300 verwendet werden.

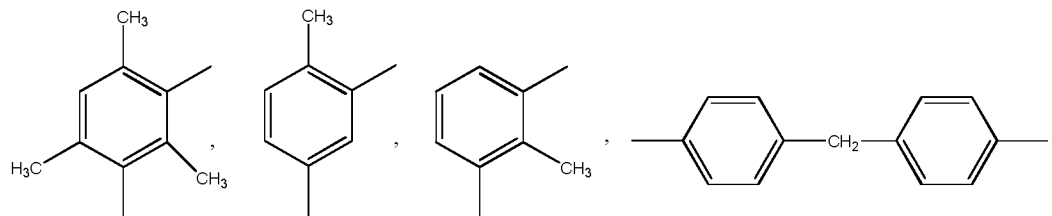
5

4. Verfahren oder Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass als Material für die trennaktive Schicht der Membranen ein Polyimid der allgemeinen Formel

10



R ist ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus



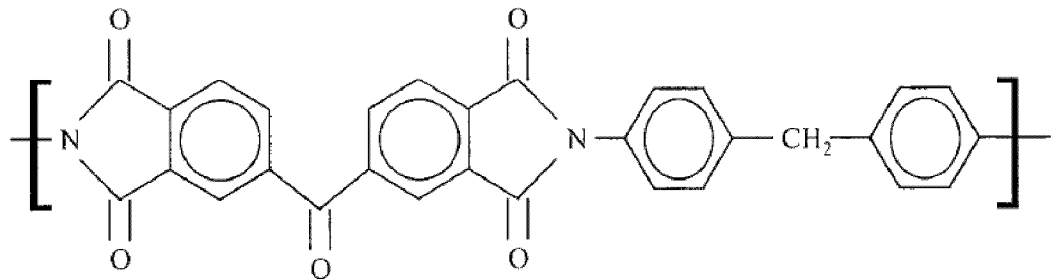
x,y: Molenbruch mit $0 < x < 0,5$ und $1 > y > 0,5$

verwendet wird.

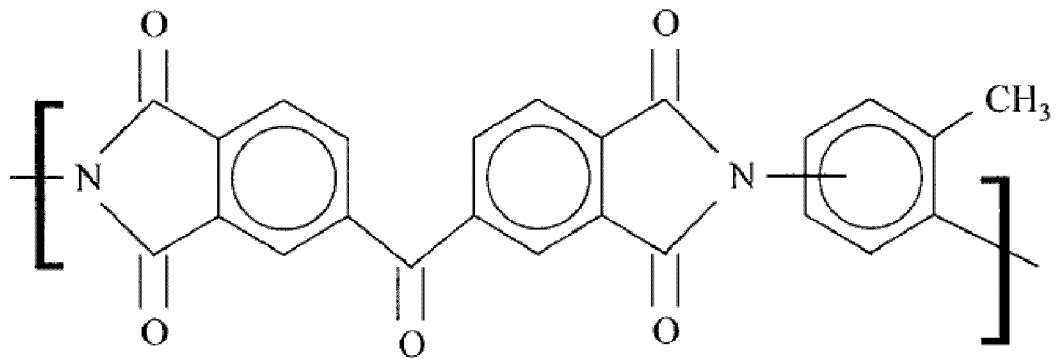
15

5. Verfahren oder Vorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass als Material für die trennaktive Schicht der Membranen ein Polyimid umfassend 10 bis 90 Gew. %, bevorzugt 15 bis 25 Gew.% und ganz besonders bevorzugt 20 Gew. %

20



5 sowie 90 bis 10 Gew. %, bevorzugt 85 bis 75 Gew.% und ganz besonders bevorzugt 80 Gew. %



verwendet wird.

10 6. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass der zweite Permeatstrom (9) und der dritte
Retentatstrom (10) auf der Saugseite des Kompressors
15 (4) zur Wiederaufbereitung geleitet werden.

7. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
20 dass ein mehrstufiger Kompressor (4) verwendet wird.

8. Verfahren oder Vorrichtung nach Anspruch 7,
dadurch gekennzeichnet,
dass der zweite Permeatstrom (9) und /oder der dritte
Retentatstrom (10) zwischen zwei Verdichtungsstufen in
5 den Kompressor (4) eingeführt wird/werden.
9. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen
Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
10 dass der erste Retentatstrom (7) und/oder der zweite
Retentatstrom (8) und/oder der dritte Retentatstrom
(10) durch ein Druckminderventil geleitet werden.
10. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen
15 Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass mindestens eine der Membrantrennstufen (1) bis (3)
mehr als ein Gasseparationsmembranmodul umfasst, welche
parallel und/oder seriell verschaltet sind.
- 20
11. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen
Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass das/die Gasseparationsmembranmodul(e) aus
25 Hohlfasermembranen und/oder Flachmembranen bestehen.
12. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen
Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
30 dass mindestens 95%, bevorzugt mindestens 97%,
besonders bevorzugt mindestens 99% und ganz besonders
bevorzugt mindestens 99,5 %, des mit dem Rohgasstroms

(17) in die Vorrichtung eingeführten Heliums über den dritten Permeatstrom (11) ausgeschleust werden.

- 5 13. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck der Permeatseite (6) der
Feedstromtrennstufe (1) bevorzugt mittels eines
10 Druckminderventils (14) auf der Retentatseite der Permeattrennstufe (3) auf 1 bis 30 bar, vorzugsweise auf 2 bis 20 bar und besonders vorzugsweise auf 2 bis 10 bar eingestellt wird.
- 15 14. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck des ersten und zweiten Retentatstroms (7) und (8) bevorzugt mittels eines Druckminderventils
20 (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.
- 25 15. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der vorherigen Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet,
dass als Triebkraft für die Trennaufgabe eine Partialdruckdifferenz zwischen der Retentat- und der Permeatseite in den jeweiligen Membrantrennstufen zum
30 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.

16. Verfahren oder Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14
5 oder 15,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Druck des Permeats der Feedstromtrennstufe (1)
gleich oder erhöht ist gegenüber dem Umgebungsdruck,
sodass noch eine Partialdruckdifferenz zwischen
10 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.