

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6329489号  
(P6329489)

(45) 発行日 平成30年5月23日 (2018. 5. 23)

(24) 登録日 平成30年4月27日 (2018. 4. 27)

(51) Int. Cl.

F I

**B O 1 D 71/02 (2006. 01)**  
**B O 1 D 71/06 (2006. 01)**  
**B O 1 D 71/56 (2006. 01)**  
**G 2 1 F 9/02 (2006. 01)**

B O 1 D 71/02 5 0 0  
 B O 1 D 71/06  
 B O 1 D 71/56  
 G 2 1 F 9/02 5 5 1 A  
 G 2 1 F 9/02 5 5 1 E

請求項の数 10 (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2014-551692 (P2014-551692)  
 (86) (22) 出願日 平成25年1月9日 (2013. 1. 9)  
 (65) 公表番号 特表2015-509045 (P2015-509045A)  
 (43) 公表日 平成27年3月26日 (2015. 3. 26)  
 (86) 国際出願番号 PCT/IB2013/000465  
 (87) 国際公開番号 W02013/104996  
 (87) 国際公開日 平成25年7月18日 (2013. 7. 18)  
 審査請求日 平成26年8月1日 (2014. 8. 1)  
 審判番号 不服2016-5916 (P2016-5916/J1)  
 審判請求日 平成28年4月21日 (2016. 4. 21)  
 (31) 優先権主張番号 12/00076  
 (32) 優先日 平成24年1月10日 (2012. 1. 10)  
 (33) 優先権主張国 フランス (FR)  
 (31) 優先権主張番号 61/659, 693  
 (32) 優先日 平成24年6月14日 (2012. 6. 14)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 515322297  
 ゼネラル エレクトリック テクノロジー  
 ゲゼルシャフト ミット ベシュレンク  
 テル ハフツング  
 General Electric Te  
 chnology GmbH  
 スイス国 バーデン ブラウン ボヴェリ  
 シュトラッセ 7  
 Brown Boveri Strass  
 e 7, CH-5400 Baden,  
 Switzerland  
 (74) 代理人 100137545  
 弁理士 荒川 聡志

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 産業施設からの排出ガスをろ過するための方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

産業施設からの排出ガスをろ過するための方法のための膜であって、当該膜が、複数の一連のガス拡散選択膜を有し、

各ガス拡散選択膜は、内側表面と外側表面とを含む円筒形の壁を有する中空多孔質繊維から形成され、かつ、処理すべき排出ガスが中空多孔質繊維の外側表面の外側を中空多孔質繊維に沿って流れ、中空多孔質繊維の壁の内側表面と外側表面との間の細孔の寸法が外側表面から内側表面に向かって小さくなり、中空多孔質繊維の壁の排出ガスの流れる方向に沿った細孔の寸法が流れる方向に沿って小さくなると共に、各ガス拡散選択膜の細孔が、放射性のエアロゾル又はガスの形態の有機ヨウ素、無機ヨウ素、セシウム、ストロンチウム、及び、エアロゾル又はガスの形態の貴ガス、四酸化ルテニウムの1種又は複数種を保持するのに適合している、膜。

【請求項 2】

キャリアガスが、前記内側表面の内側を前記排出ガスの流れとは反対方向に流れる、請求項 1 記載の膜。

【請求項 3】

処理すべき排出ガスが、事故後の産業施設からの煙からなる、請求項 1 記載の膜。

【請求項 4】

処理すべき排出ガスが、稼働中の産業施設からの煙からなる、請求項 1 記載の膜。

【請求項 5】

処理すべき排出ガスが、換気システムから抽出される、請求項 1 記載の膜。

【請求項 6】

処理すべき排出ガスが、火災からの煙からなる、請求項 1 記載の膜。

【請求項 7】

処理すべき排出ガスが、核分裂生成物に起因するエアロゾルからなる、請求項 1 記載の膜。

【請求項 8】

前記膜が、セラミック又はポリマーをベースにして形成される、請求項 1 記載の膜。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項記載の膜を用いて産業施設からの排出ガスをろ過する方法。 10

【請求項 10】

請求項 1 乃至 8 のいずれか一項記載の膜を有する産業施設からの排出ガスをろ過する装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、産業施設、特に核起源のエネルギー生成分野の産業施設で排出ガスをろ過する方法のための膜に関する。 20

【0002】

より詳細には、本発明は、特に膜分離によって、気体状態の化学物質及び／又は放射性核種の高い流速での選択的な選別を可能にするものであり、主な目標は、正常運転及び異常運転状態の産業施設で、特に重大事故時に、発生するガス排出物を確実に回収することである。

【0003】

原子力施設の場合、環境への影響は、主として廃棄物の放射性特性、熱的特性及び化学的特性に関連している。放射性元素は、それらの放射能レベル及び化学組成に基づいて、貯蔵及び処理された後、廃棄物を形成するためにパッケージングされる。これらの放射性元素の中には、もちろん適用可能な規制によって厳密に規定された濃度ではあるが、気体の形態で雰囲気中に排出されるものがある。正常運転時に発生するガス排出物は、一般に発電所の浄化回路及びろ過回路から放出され、浄化回路及びろ過回路では、施設を構成するシステム及び装置の稼働によって発生する放射性元素の一部が回収される。例えばフランスでは、原子力発電所で発生する放射性ガス排出物は、典型的には希ガス又は貴ガスの許容限度の 1 . 1 % 程度であり、トリチウムに関しては 1 1 . 1 % 程度、ヨウ素（有機及び無機）に関しては 3 . 6 % 程度である。ヘリウム、ネオン、アルゴン、クリプトン、キセノン及びラドンは、希ガス（rare gas）族、すなわち元素周期律表の 0 族を構成するが、以下では、IUPAC（国際純正・応用化学連合）及び「フランス国民教育省官報」の推奨に従って貴ガス（noble gas）という名称を使用する。これらの廃棄物は、通常は低放射性であり、そこに含まれる放射性核種にはさほど毒性はなく、概して短期である。なお、ガス排出物には、固体粒子及び液体粒子が含まれている。放射性のものは、エアロゾルを形成し、粒径は大きく変動する。浮遊粉塵で核分裂現象は、ハロゲン、貴ガス、トリチウム、炭素 14 などの放射性核種を生成する。このようにして形成されるエアロゾルの組成及び放射能は、原子炉の種類及び放射経路に著しく依存している。 30 40

【0004】

通常、原子力発電所の排出ガスは、雰囲気中に排出する前に、非常に放射性の高い元素を抽出するために処理される。現在の慣行は、汚染ガス及び建屋の換気空気をろ過して、雰囲気中に排出される前に放射性粒子を抽出することからなる。換気システム及び浄化システムは、一般にアブソリュートフィルタに付随する粗いプレフィルタを含む。指標として、0 . 3 mm 程度の直径の粒子に対して、抽出収率は通常少なくとも 99 . 9 % になる 50

。

## 【 0 0 0 5 】

放射性ヨウ素は、ダストフィルタに付随する含浸チャコールを有するフィルタを用いて抽出される。チャコールの含浸は、ヨウ化有機化合物を保持するために必要とされる。

## 【 0 0 0 6 】

燃料エレメントから発生する放射性貴ガスは、放射能レベルを低下させるために、崩壊後に遅延モードで雰囲気中に放出される。この目的のために2通りの方法が用いられる。すなわち、特殊な貯蔵容器内でのバッファ貯蔵法、又は何層ものチャコールを通過させる方法である。貯蔵法に関しては、貴ガス及びキャリアガスが、ポンピングによって密閉貯蔵容器内に導入され、雰囲気への放出が許可されるまでこの貯蔵容器内に保存される。他方の方法は、排出物を一連のチャコールカラムに流すことからなり、チャコールカラムは、キャリアガスに比べて貴ガスの進行を遅らせて排出物の放射能崩壊を促進する。

10

## 【 0 0 0 7 】

低放射性及び中放射性の廃棄物を処理及びパッケージングするため多くの方法が現在十分に開発されており、工業規模で使用されている。この技術は、発電所からの廃棄物の効率的な管理を保証するために十分に進化してはいるが、様々な改善が絶えず可能であるとともに望まれている。廃棄物の管理に対する予算が増加することにより、生成量を最小限に低減するための方法や技術の採用が促進され、かつ、処理及びパッケージングにおける体積をさらに低減するための新しい手段の開発が促進されている。その具体例として、液体廃棄物の処理を改善するための特定の無機吸着材の使用、同じく液体廃棄物の処理のための膜技術、フィルタからの泥及び樹脂ビーズの乾燥、消耗したイオン交換樹脂の焼却、洗濯水の量を低減するための衣類その他の保護繊維材料のドライクリーニング、乾燥したフィルタの泥をパッケージングするための非常に耐久性のある気密封止容器の使用、削除すべき体積を低減するための特定の中放射性廃棄物のガラス固化、非燃料廃棄物の過圧縮などが挙げられる。

20

## 【 0 0 0 8 】

近年の産業技術水準に対応したこれらの技術の全てが、一般に、廃棄物の管理、特に原子力発電所における廃棄物の管理に適用されるわけではないかもしれない。しかしながら、この研究開発の努力は、安全性及び廃棄物管理の経済性のために原子力産業及び発電所事業者によってもたらされる細心の注意を表しており、性能向上を示している。

30

## 【 0 0 0 9 】

本発明は、産業施設、特に原子力施設で発生する排出ガスの処理に使用される膜技術の特定の方法の使用に関する。

## 【 0 0 1 0 】

軽水炉技術を使用した原子力発電所の原子炉（すなわち現在世界中に設置された施設の約95%）で重大事故が生じた場合には、原子炉建屋内部の雰囲気は時間経過とともに変化し、空気、蒸気、非凝縮性ガス（基本的に $H_2$ 、 $CO$ 、 $CO_2$ 、エアロゾル、蒸気、ガスなどの核分裂生成物等）を含有する混合物を形成するが、それらの割合は、空間的及び時間的観点からみて、変化しうる。この混合物及び/又はこの混合物中に含まれる有害な生成物の蓄積に起因する圧力が増加すると、水素爆発又は建屋の許容値を超える圧力をもたらす機械的完全性の損失を回避するために、最終的には外部環境へ排出される。建屋から漏れ出るおそれのある流体としては、空気、放射性ガス、蒸気又は流体の混合物がある。本発明の方法の課題は、放射性元素及び/又は環境的に排出すると危険な元素を、脱ガス段階で分離すること、このような元素をできる限り再利用するという観点から、貯蔵及び再処理のための適宜特別な処理のために回収すること、並びに環境への危険な排出を回避することである。

40

## 【 0 0 1 1 】

80年代初頭には、事故の影響を制限するために、いくつかの原子力発電所に簡単な手段が設けられた。その目標の1つは、排出ガスを特定のシステムによって制御及びろ過できるようにすることであった。

50

## 【 0 0 1 2 】

現在では、これらのいわゆる「緩和」システムは、ガスをろ過プロセスを通して排出することによって原子炉建屋内の圧力を低下させるために使用されている。世界中の原子力施設の稼働に関して、以下の2種類の技術が存在する。

## 【 0 0 1 3 】

・放射性ガスが区別なく捕獲される、砂ろ過：  
重大事故が生じた場合、原子炉建屋の格納容器内部の圧力は幾分急速に増大しかねない。砂ろ過システムを起動することによって、ガス・蒸気混合物の一部を、制御された状態で放出することができ、これによって、放射能の排出を格段に制限しながら、格納容器の過度の加圧が回避される。これらのサンドフィルタは主としてフランスで使用されており、ろ過すべきガスの流れに含まれる有害元素の約50%をろ過及び保持することができるが、貴ガスに対しては効果がない。図1は、サンドフィルタ20と、ガス放出煙突15の上流に配置された廃棄物測定ユニット25とが設けられた発電所10を示す。

10

## 【 0 0 1 4 】

・選択的な脱ガスが不可能な、スパージングによる脱ガスシステム：  
これらの回路では、回路内を循環する水の一部分が、特に空気冷却塔に入る際に蒸気として雰囲気中に漏れ出る。他の部分は、非揮発性生成物の濃度が高くなりすぎるのを制限するために環境に戻される。特にドイツ及びスウェーデンで使用されているこのシステムは、ろ過すべきガスの流れに含まれる有害元素の約75%を保持することができるが、これも貴ガスに対しては効果がない。このシステムは、非常に大型(>100m<sup>3</sup>)で扱いづら

20

## 【 0 0 1 5 】

これらのシステムはいずれも、区間バルブを開放するための自主的な手動のアクション又は補助されたアクションによって作動する。これらのシステムは、流れを生じさせて効果的にろ過するために、上流での駆動圧力を必要とする。これらのシステムの動作は、ろ過システムの寸法並びに特に液圧抵抗によって定まる圧力閾値までは受動的である。この圧力閾値未満では、ろ過機能を実施するためにアクチュエータと、ひいては電力供給部とが必要とされる。さらには種々のパラメータ、特に環境パラメータを監視するためにも、電力の供給が必要となる。

## 【 0 0 1 6 】

本発明の課題は、汚染排出ガス及び/又は有害排出ガス、特に放射性排出ガスをろ過するための方法であって、上述の短所を生じさせない方法を提供することである。

30

## 【 0 0 1 7 】

本発明の課題は、特に、このようなる過方法であって格段に効率的で、処理すべき排出ガスに含まれる有害な元素すべてを充分にろ過できる方法を提供することである。

## 【 0 0 1 8 】

本発明の課題は、特に、脱ガス時の放射性ガスの選択的分離、捕獲、選別、一時的貯蔵、後段での再利用のための処理、制御された希釈、並びに原子力発電所の格納容器の汚染雰囲気処理が可能となる方法を提供することである。

40

## 【 0 0 1 9 】

本発明の課題はさらに、原子力発電所からの排出ガスをろ過するための方法であって、永続的に利用でき、しかも必要に応じて継続的又は断続的に運転することができる方法を提供することである。

## 【 0 0 2 0 】

本発明の課題はさらに、重大事故が生じた場合における稼働中の原子力発電所からの排出ガスをろ過するための方法を提供することである。

## 【 0 0 2 1 】

本発明の課題は、産業施設からの排出ガスをろ過するための、改善された膜を含む装置を提供することである。

## 【 0 0 2 2 】

50

したがって、本発明の課題は、産業施設からの有害な排出ガスをろ過するための方法のための、内側表面及び外側表面を含む壁を含む膜であって、壁が、壁の半径方向及び長手方向に寸法が変化する複数の細孔を有している膜である。

【0023】

好適には、壁は円筒形である。

【0024】

或いは、壁は平板状である。

【0025】

好適には、処理すべき排出ガスは、外側表面の外側を長手方向に流れる。

【0026】

好適には、細孔の寸法は外側表面から内側表面に向かって大きくなる。

【0027】

好適には、細孔の寸法は壁の長手方向に大きくなる。

【0028】

第1の実施例によれば、処理すべき排出ガスは、事故後の産業施設の煙からなる。

【0029】

別の実施例によれば、処理すべき排出ガスは、稼働中の産業施設の煙からなる。

【0030】

別の実施例によれば、処理すべき排出ガスは、換気システムから抽出される。

【0031】

別の実施例によれば、処理すべき排出ガスは、火災からの煙からなる。

【0032】

別の実施例によれば、処理すべき排出ガスは、核分裂生産物に起因するエアロゾルからなる。

【0033】

好適には、膜は、例えば、シリカカーバイド、タングステン又はチタンのようなセラミック、及び／又はケブラー、及び／又はPEEK（ポリエーテルエーテルケトン）又はPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）のようなポリマーをベースにして形成される。

【0034】

本発明の上記その他の特徴及び利点については、非限定的な実施例を示す添付図面と併せて、本発明の複数の実施形態に関する以下の詳細な説明を参照することにより、理解を深めることができるであろう。

【図面の簡単な説明】

【0035】

【図1】排出ガスを処理するための従来のサンドフィルタを使用した、原子力発電所の概略図である。

【図2】好適な実施形態に基づくろ過方法を適用した、原子力発電所の概略図である。

【図3】原子力発電所において継続的に適用される代替実施形態の方法の概略図である。

【図4】好適な実施形態に基づく膜の概略断面図である。

【0036】

本発明の方法を、主として、格納容器を有する原子力発電所における用途に関連して説明する。しかしながらこの方法は、格納容器を全く有さない原子力発電所にも適用され、より一般に言えば、任意の形式の産業施設に適用される。

【0037】

図3に示すようにフランスで設置された加圧水型原子炉に関して、格納容器100は、 $70000 \sim 80000 \text{ m}^3$ 程度の容積を有しており、通常、コンクリート製の二重壁110、120からなる。事故の結果として格納容器内に核分裂生成物（エアロゾル、蒸気及びガスの形態）が存在すると、格納容器の雰囲気中、並びにエアロゾルの大部分が沈降するサンプ中には、かなりの線量率及び線量率が生じる。これら2つの相において予期される線量率は、典型的には $10 \text{ kGy} \cdot \text{h}^{-1}$ 程度である。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 3 8 】

いずれにせよこの値は、特に、燃料の劣化状態と、一次回路内に保持された核分裂生成物と、格納容器内のサンプと雰囲気との間における核分裂生成物の分布とに依存し、それ自体、格納容器内での熱水力状態及び当然ながら事故発生からの経過時間の関数である。

## 【 0 0 3 9 】

排出ガスの温度は、典型的には発電所外部の環境温度よりも高い。一般的な許容温度は、シナリオと考慮される時間スケールとに応じて典型的には40 ～ 140 である。なお、40 未満又は140 を上回る温度も可能である。湿度に関しては、反応速度と想定される事故の種類とに応じて0 ～ 100 %の範囲で変化しうる。

## 【 0 0 4 0 】

放射線分解によって、オゾン、亜酸化窒素 $N_2O$ 、一酸化窒素 $NO$ 、二酸化窒素 $NO_2$ 、亜硝酸 $HNO_2$ 、及び硝酸 $HNO_3$ が生成しうる。

## 【 0 0 4 1 】

様々なチームが、乾燥空気中での $O_3$ 、 $NO_2$ 、五酸化二窒素 $N_2O_5$ の形成、並びに湿り空気中（水の質量分率0.5%）での $O_3$ 、 $NO_2$ 、 $HNO_2$ 、 $HNO_3$ の形成を実験的に観察している。要約すると、重大事故が生じた場合に格納容器内に存在しうる放射線分解生成物は、その大半が $NO_x$ 、すなわち $NO_2$ 及び $N_2O$ と、そしてもちろん $O_3$ である。

## 【 0 0 4 2 】

IRSSN（フランス放射線防護・原子力安全研究所）を始めとするいくつかの研究所によって行われた原子力発電所における水素リスクを制御することを課題とし、かつ、特に触媒再結合の性質を扱ってきたプログラムの範囲内における実験から、固体金属ヨウ化物の分解によって揮発性ヨウ素を生成する物理化学的反応が検出される可能性が示されている。

## 【 0 0 4 3 】

下記の表は、稼働中のフランスで設置された原子炉における重大事故で発生したソースターム（代表的には排出量）に関する、推定された主成分の量の桁数を示している。ソースタームは原子炉の系統の特性であるので、国によって差が見られる。それでもなお、これらの値は、原子力発電所に適用される本発明を実施するための寸法設定の基礎として使用することができる。

## 【 0 0 4 4 】

## 【表1】

	放射能	等価質量
希ガス	1E19 Bq	約700 kg
有機ヨウ素	2E16 Bq	約1 kg
無機ヨウ素	1E15 Bq	数グラム
セシウム	1E16 Bq	約2 kg
ストロンチウム	1E15 Bq	約35 g

## 【 0 0 4 5 】

放射能レベルと、放出された等価質量の双方の点で、貴ガスが著しく寄与していることに注目すべきである。

## 【 0 0 4 6 】

本発明の方法は、5 バールで4 kg / m<sup>3</sup>の平均比重を有する湿り空気であって、システムを運転するのに十分な駆動圧力、すなわち1 バール以上、好適には1.0 バール以上の

10

20

30

40

50

絶対圧力にされた湿り空気を、1 k g / 秒以上、好適には 3 . 5 k g / 秒の流速で処理できるように容量設計することができ、さらには、1 k g 以上の放射性ヨウ素を数ヶ月間、典型的には 3 ヶ月間にわたって処理できるように容量設計することができる。

【 0 0 4 7 】

特に、本発明の方法の課題は、処理すべき流体に関する上記データ全体を考慮した無公害性の処理方法を提供することであり、これに関して必要とされる浄化係数は、以下の通りである。

- ・エアロゾルに関しては、本発明の方法は 1 0 0 0 より大きい浄化係数を有する。
- ・無機ヨウ素 (  $I_2$  ) に関しては、浄化係数は 1 0 0 0 より大きい。
- ・有機ヨウ素 (  $ICl_3$  ) に関しては、浄化係数は 1 0 0 より大きい。
- ・本発明の方法は、貴ガスに関して好適には非常に高い浄化係数、特に 1 0 0 0 より大きい浄化係数を提供する。
- ・本発明の方法は、四酸化ルテニウム (  $RuO_4$  ) に関して、1 0 0 より大きい浄化係数を有する。
- ・本発明の方法の課題は、放射性ガスを含む空気の処理により、格納容器内部の放射能を経時的に希釈することでもある。

10

【 0 0 4 8 】

上記の浄化係数は、ろ過装置で測定される上流 / 下流比として定義される。

【 0 0 4 9 】

本発明の方法は、格納容器の脱ガスの実施に際して膜ろ過法を使用して、格納容器内の圧力の影響下で、空気、蒸気、 $O_3$ 、 $NO_2$ 、 $HNO_2$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O_5$ 型のガスを含む流体、及び格納容器内の分裂生成物の存在を、最低限 3 . 5 ~ 7 k g / 秒の流速で放出する。

20

【 0 0 5 0 】

本発明の方法は、好適には、キャリアとして窒素のような不活性ガスを使用する。本発明の方法によって処理される流体は、水及び蒸気で飽和させることができる。あろうがなかろうが、処理すべき流体中に存在する水による再結合及び膜の酸化の危険を阻止するために、完全にガスで飽和され、かつこれらのガスで加圧された水は、圧力差によって複数の、典型的には 4 つの一連の疎水性の脱ガス膜 2 0 0 の方に導かれる。膜分離は、ふるい分け、吸着、及び / 又は拡散によって達成される。このように窒素のようなキャリアガスによって運び去られたガスは、特に浸透圧による拡散及び分離によって疎水性膜を通過し (中空繊維による脱ガス方法)、そして、一連のガス拡散選択膜 2 1 0 , 2 2 0 , 2 3 0 . . . の方に導かれる。これらの膜は、要求及び / 又は利益に応じて、ガスの分類及び選択を可能にするカスケード接続又は直列接続になっている。

30

【 0 0 5 1 】

膜分離法は、分離すべき分子に対する膜の選択的保持特性に基づいている。カスケードにおける最初のガス拡散選択膜によって、上記のデータ全体を考慮することができ、また、要求される浄化係数に基づいて貴ガス全体を回収することができる。

【 0 0 5 2 】

特にセラミック (放射能に対して不活性) をベースにした選択膜が存在し、この選択膜は、特にキセノン、クリプトン、アルゴンの分離を保証する。膜を別の適当な材料で形成することも可能であり、例えばシリカカーバイド、特にシリカ、タングステン又はチタンのカーバイド、又はケブラー、又はポリマー、特に P E E K (ポリエーテルエーテルケトン) 又は P T F E (ポリテトラフルオロエチレン)、のような材料で形成することも可能である。このようにして分離され濃縮流中に存在するガス全体は、各々 1 種類のガスを含む複数の密閉貯蔵容器内に圧縮形態で保存することができる。これらの貯蔵容器を用いて、貯蔵、核分裂生成物の放射性崩壊、捕獲したガスをできる限り再利用すること、捕獲したガスを中和すること、又は、捕獲したガスを希釈によって最終的に空気中に排出することさえ、全て可能となる。

40

【 0 0 5 3 】

50

膜のガス拡散性及び透過選択性によって、各ガスはそれぞれ特定のセラミック膜を通過することが可能となり、こうして一方では無機ヨウ素を、他方では有機ヨウ素を捕獲することができる。

【 0 0 5 4 】

セシウムのようなターゲット元素を捕獲するクラウンカリックス [ 4 ] アレン分子をグラフト化しておいた 1 つ ( 又は複数 ) の膜に通路を設けてもよい。また同じ原理で、ストロンチウムを捕獲する膜 ( 例えば、特にストロンチウムに対する親和性に関して選択される別のカリックスアレンを含むもの ) に通路を設けてもよい。

【 0 0 5 5 】

各膜は、内側表面と外側表面とを備える壁を含む。壁は複数の細孔 P を有する。壁は円筒形又は平板状とすることができる。複数の壁を重ね合わせてもよく、円筒形の構成では同軸に、平板状の構成では積み重ねられる。

【 0 0 5 6 】

図 4 は、管状の膜 2 1 0 の構造をより詳細に図示している。この膜の壁は、排出ガスの有害な元素を保持するのに適した複数の細孔 P を有している。この膜は、細孔の材料及び寸法に基づいて、所与の元素をろ過するためのものである。細孔の寸法は、半径方向及び軸方向に変化し、例えば図 4 に示すように外側から内側に向かって減少し、右から左に向かって減少する。この実施例においては、ろ過すべきガスの流れは、膜の外側で矢印 A の方向に流れ、一方、キャリアガスは膜の内側で反対方向に、すなわち矢印 B の方向に流れる。ガス流中のろ過すべき元素は、膜の壁を外側から内側に向かって横断する際に、最も大きい細孔から最も小さい細孔を通過することによって分離される。この分離は、膜の壁の内側と外側との圧力差による圧力下で、或いは拡散によって運転できる。

【 0 0 5 7 】

膜は、校正された中空多孔質繊維を有するモジュールである。繊維を螺旋状に巻回することによって、最小限の圧力降下で、高い脱ガス速度の流れに曝される面積を大きくすることができる。細孔径は、各ステージで数ナノメートルまで制御される。そのためにこれらの膜は、膜表面の半径方向及び長手方向に沿って変化する細孔であって、捕獲すべき分子のサイズに適した細孔を含む。さらに、セラミック材料を使用した好適な実施形態によれば、この材料は、放射能に対して完全に無害である。

【 0 0 5 8 】

キャリアガス  $N_2$  を選択することにより、 $NO_2$ 、 $HNO_2$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O_5$  型のガスを窒素及び  $H_2O$  に再結合することができる。選択膜の出口でガス汚染を測定することにより、第 1 段階において、処理済みの清浄な流体排出物を、制御電磁弁を介して冷却式放出煙突へと向かわせることができる。

【 0 0 5 9 】

この電磁弁によれば、格納容器内の汚染物質を希釈するために、回収された窒素の全部または一部を戻り管路 1 3 0 に沿って送ることも可能である。このことは、窒素分離膜を通して放射性元素を全く放出しない酸素富化空気を戻すことによって達成することができる。

【 0 0 6 0 】

この方法は、水質調整システムの圧力がシステムの寸法によって規定された下限値、例えば 1 . 5 バールを上回る限り、外部エネルギーなしで動作する。回路の入口弁の一つを手動で開放することによって、キャリアガス ( 一般に窒素 ) を貯蔵するための貯蔵シリンダの自動加圧が引き起こされ、そしてこのキャリアガスが、膨張弁を介して回路に入れられる。

【 0 0 6 1 】

他方で、典型的に 1 . 5 バールである下限値よりも圧力が低い場合には、ガスは、アクチュエータによって、又は、例えば真空圧縮器によって加圧された外部回路によって、疎水性膜から脱ガスされる。

【 0 0 6 2 】



このような実施形態は、吸引側を提供する真空ポンプを含み、この真空ポンプは、自動パージ装置と、調整システムに水を戻すブースターポンプとを備えた交換器の内部にある。真空ポンプは、選択膜側に高圧を生成するために、吸い上げられたガスを圧縮する。

【0063】

選択膜の低圧側は、空気冷却塔によって生成される吸引によって、又は、ファンによる格納容器内の再循環空気の吸引によって達成される。

【0064】

好適には、この方法は、放射能の排出を低減するための、特に金属製プレフィルタを用いた第1のフロントろ過と、処理すべき排出物からCO<sub>2</sub>、CO、蒸気、及び残留水を分離するための、第2のタンジェンシャルろ過と、例えば無機ヨウ素、有機ヨウ素、貴ガスのような有害な元素を分離及び貯蔵するため、及び、残留空気、CO<sub>2</sub>、COを煙突150へと放出するための、ガス拡散による第3のろ過と、窒素のようなキャリアガスをガス透過によって回収するため、つまり、戻り管路130を介して格納容器100の内部で再利用又は希釈するための、第4のろ過とを含む。

【0065】

本発明の方法によれば、計画介入中における格納容器での迅速な介入ができるよう、事故以外の格納容器の放射性環境を処理することも可能である。このことは特に図3に示しており、ここでは2つの壁110と120の間に含まれている雰囲気が永続的に監視される。このようにすると、内側の壁110の中で漏れが生じた場合に、漏れが修復される次のメンテナンスまで排出物を継続的にろ過することができる。これにより、このような漏れが生じると直ぐに発電所が停止してしまうという事態は回避される。

【0066】

本発明の方法の特別な利点は、その信頼性と特に高い効率である。実に、有害な元素の99.5%より多くを捕獲することができ、既存の装置とは異なり、貴ガスに対しても有効である。

【0067】

本発明の方法は、非分散型の技術を使用する。すなわち、フォーム又はエマルジョンの危険がない。このろ過システムは口バストであり、ロータリー型の吸収カラムとは異なり、可動部分を全く有さない。この方法は、格納容器の圧力の変化、湿度測定率又は温度変化に関係なく動作する。この方法は、特に流量に応じた線膨張率を考慮することによって工業規模で容易に作成することができる。これは明らかに既存の装置よりも経済的である。

【0068】

本発明の方法は、モジュール式の原理を利用しており、特に接続、組み立て、封止において、モジュール式の原理に適した技術を使用している。モジュール式の原理により、多数のモジュールを格納容器の汚染元素と目標回収率とに応じて適合させることができるので、フレキシビリティが増加する。

【0069】

モジュールの製造は、数千から数百万以上の基本繊維を集めることによって達成され、数百から数千平方メートル(m<sup>2</sup>)の膜面積に対して、積算長さは1000kmに達する。

【0070】

本発明の方法は、高圧回路(HP)及び低圧回路(LP)、すなわちチューブ側及びカレンダー側を備えたチューブ式交換器の構造を有する中空繊維を備えるモジュールを含む。本発明の方法の利点は、特にそのコンパクトさにある。なぜなら、交換面の比表面積がカラムに比べて格段に大きい、すなわち30~300m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>ではなく、2000~3000m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>であるからである。

【0071】

本発明の方法によれば、貴ガスを含む全ての放射性ガスを選択的に脱ガスすることができる。

## 【 0 0 7 2 】

本発明の方法によれば、排出ガスを固形廃棄物に変換するためのゼオライトによる処理又は後段での使用のため、圧縮ガス貯蔵容器からの排出ガスを完全に管理することができる。

## 【 0 0 7 3 】

本発明の方法を換気システムに搭載すると、2重の放出機会を有するシステムによって格納容器の汚染をできる限り希薄にすることができる。本発明の方法を、排出ガスの処理に使用すると、貴ガスを完全に管理することができる。

## 【 0 0 7 4 】

本発明の方法を、原子力発電所の回路からの排出ガスの処理に使用すると、放射性ガス又は放射性ガスによる環境危険を完全に管理することができる。

10

## 【 0 0 7 5 】

本発明の方法を、インジェクション回路の処理時に放出される有害ガスを回収するための回路に搭載すると、有害ガスを回収してこれを処理することができる。膜分離の性能は、以下のような膜の固有特性を組み合わせた結果である。

- ・選択性
- ・透過性
- ・モジュールにおける流れの圧力、温度、レイアウトのような動作パラメータ。

## 【 0 0 7 6 】

膜分離法に関する別の重要なパラメータは、膜の両側における圧力差である。（高圧の増加又は低圧の減少による）圧力差の増加は、透過のための駆動力の増加をもたらす、分離をより容易にする。

20

## 【 0 0 7 7 】

ガス分離に関連した用途では、高圧は一般に上流処理によって加えられるので、最適化に重要なパラメータは、透過流の低圧、すなわちガスが生成される圧力である。膜分離の性能の観点から、できる限り低い圧力が望ましい。

## 【 0 0 7 8 】

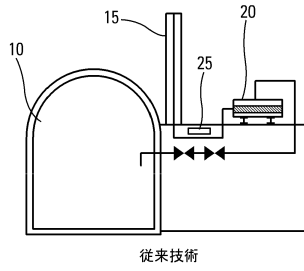
別の好適な側面によれば、上述したような原子力発電所のための複数の膜を使用した分類方法を、別の種類の産業施設で使用することもでき、特に化学プラントにおいて使用することもできる。膜の数及び種類は、ろ過及び分類すべき元素に基づいて選択される。

30

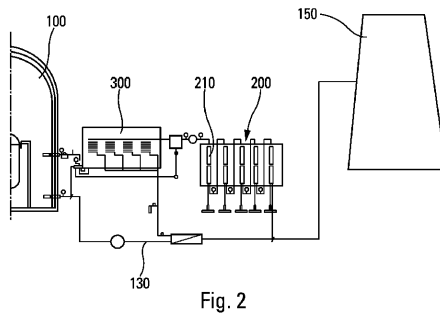
## 【 0 0 7 9 】

ここまで、特定の実施形態を参照しながら本発明について説明してきたが、本発明はこれらの実施形態に限定されるものではなく、当業者によって、添付の特許請求の範囲によって規定された本発明の権利範囲から逸脱することなく全ての有用な変更を加えることができることは自明である。

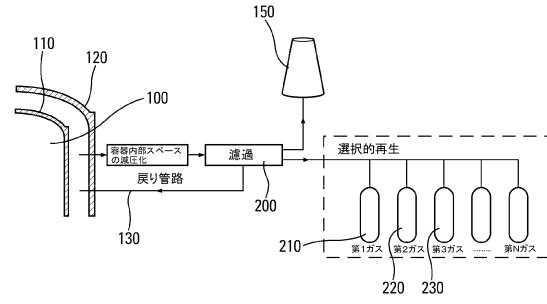
【図 1】



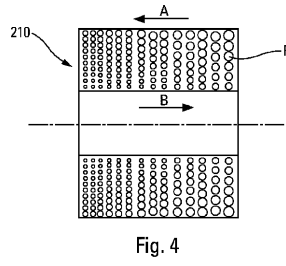
【図 2】



【図 3】



【図 4】



---

フロントページの続き

(72)発明者 フィリップ シャントロー  
フランス国 セット アヴニユ ジャン・モネ 615 レジダンス ル・ミュラノ - セ23

合議体

審判長 大橋 賢一

審判官 豊永 茂弘

審判官 中澤 登

(56)参考文献 特開2004-231512(JP, A)  
特表平10-512808(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B01D 71/02

B01D 71/06

B01D 71/56

G21F 9/02