(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 9 月 13 日(13.09.2012)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/121012 A1

(51) 国際特許分類:
G21F 9/16 (2006.01) *C03C 3/19* (2006.01)
B01J 20/06 (2006.01) *C03C 3/21* (2006.01)
C03C 3/16 (2006.01) *G21F 9/06* (2006.01)
C03C 3/17 (2006.01) *G21F 9/12* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2012/054230

(22) 国際出願日: 2012 年 2 月 22 日(22.02.2012)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2011-047984 2011 年 3 月 4 日(04.03.2011) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): セントラル硝子株式会社 (CENTRAL GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒7550001 山口県宇部市大字沖宇部５２５３番地 Yamaguchi (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 三田村 直樹(MITAMURA, Naoki). 都築 達也(TSUZUKI, Tatsuya). 天本 一平(AMAMOTO, Ippei).

(74) 代理人: 小林 博通, 外(KOBAYASHI, Hiromichi et al.); 〒1040044 東京都中央区明石町１番２９号 掖済会ビル ＳＨＩＧＡ内外国特許事務所内 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

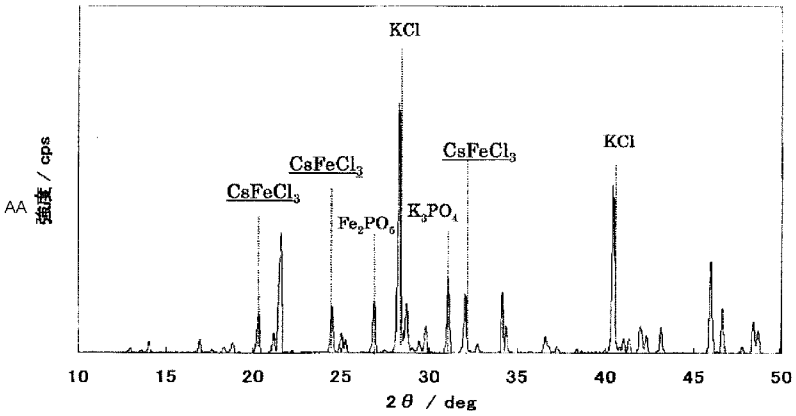
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) **Title**: SORBENT MATERIAL

(54) 発明の名称 : 収着材料

[図1]



AA... INTENSITY (cps)

(57) **Abstract**: A sorbent material of the invention comprises a Fe_2O_3-P_2O_5-based glass, which contains Fe_2O_3 as an essential component, and is composed of 1-50 mol% of Fe_2O_3, 50-80 mol% of P_2O_5, and 1-40 mol% in total of one or more members selected from Al_2O_3, B_2O_3, TiO_2, CoO, NiO, CeO_2, Cr_2O_3, La_2O_3, MoO_3, Nb_2O_5, and WO_3, and is characterized by having properties of selectively sorbing Cs or Sr in an electrolyte melt composed of a chloride-based mixed salt. The glass transition point of the Fe_2O_3-P_2O_5-based glass is preferably 450ºC or higher. By using the sorbent material, electrolyte recycling can be simplified.

(57) 要約: 本発明の収着材料は、Fe_2O_3を必須成分とし、Fe_2O_3を１～５０モル%、P_2O_5を５０～８０モル%、かつ、Al_2O_3、B_2O_3、TiO_2、CoO、NiO、CeO_2、Cr_2O_3、La_2O_3、MoO_3、Nb_2O_5、WO_3から選択される１種以上の合計を１～４０モル%含むFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなり、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒの選択的収着性を有することを特徴とする。Fe_2O_3－P_2O_5系ガラスのガラス転移点は４５０℃以上であることが望ましい。該収着材料の使用により、電解質の再生が簡便化出来る。

WO 2012/121012 A1

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 収着材料

技術分野

[0001] 本発明は、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒ、例えば、使用済核燃料の乾式再処理工程で生じる塩化物系使用済電解質融液中に蓄積した核分裂生成物であるＣｓ又はＳｒを選択的に収着させることで、電解質と核分裂生成物を分離可能なFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなる収着材料に関する。

背景技術

[0002] 使用済核燃料の乾式再処理工程は、溶媒である塩化物系の高温溶融塩に使用済燃料を溶解し、電解処理することにより陰極に析出する電解析出物であるウランや超ウラン元素（ＴＲＵ）を回収し、再処理製品としている。このような工程で発生する使用済電解質は、アクチノイド物質や核分裂生成物（ＦＰ）を含有しているために、高レベル放射性廃棄物として廃棄される。そのため、廃棄物量の低減や経済性の観点から、使用済電解質の再生を行う必要性がある。

[0003] 従来の技術として、使用済電解質融液中に残留するアクチノイド物質を還元・抽出工程で取り除き、ゼオライトカラムを通過させることでＦＰを吸着・除去する再生処理工程が検討されている（例えば、非特許文献１参照）。しかしながら、この再生処理工程では、ＦＰを吸着したゼオライトを安定化させるためにソーダライト固化体に転換する際、ゼオライト中のＦＰが脱離する。この脱離したＦＰを再度ゼオライトに吸着させて安定化させる必要があるため、最終的にＦＰを安定化させたソーダライト固化体が大量に発生する。そのため、環境負荷及び経済性の点から大きな課題となっている。

[0004] この問題を解決すべく、使用済電解質融液中のＦＰをリン酸塩に転換することにより沈殿分離し、電解質の再生を試みる技術が開示されている（例えば、特許文献１参照）。しかしながら、使用済電解質融液中に残留するＦＰ

のうちランタノイド系の塩（例えば塩化ランタン等）はリン酸塩に転換することにより沈殿物として塩化物系電解質融液から分離するものの、リチウムを除くアルカリ金属或いはアルカリ土類金属の塩（例えば、塩化セシウム、塩化ストロンチウム等）はリン酸塩に転換しても塩化物系電解質融液中に沈殿しないものがあるという問題がある（例えば、非特許文献２参照）。そのため、沈殿分離後の電解質融液もまた処理・処分が必要であり、経済性の面から大きな課題となっている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２００７－３０３９３４号公報

非特許文献

[0006] 非特許文献1：「乾式再処理技術開発における要素技術開発の現状」明珍宗孝、青瀬晋一、サイクル機構、Ｎｏ．２４別冊、２００４、１１、ｐ１６６
非特許文献2：「乾式再処理から発生する廃溶融塩の固化技術の開発」豊原尚美 他、日本原子力学会和文論文誌、Ｖｏｌ．１、Ｎｏ．４、２００２、ｐ４２０

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、上記課題を解決するものであって、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒ、例えば、塩化物系使用済電解質融液中に残留するＦＰであるＣｓ又はＳｒを選択的に収着することで、電解質の再生が簡便化出来るFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなる収着材料を提供することである。

課題を解決するための手段

[0008] すなわち、本発明は、Fe_2O_3を必須成分とし、Fe_2O_3を１～５０モル％、P_2O_5を５０～８０モル％、かつ、Al_2O_3、B_2O_3、TiO_2、ＣｏＯ、ＮｉＯ、CeO_2、Cr_2O_3、La_2O_3、MoO_3、Nb_2O_5、WO_3から選択される

１種以上の合計を１～４０モル％含むFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなり、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒを選択的に収着することを特徴とする収着材料を提供するものである。

[0009] 本発明の収着材料において、Fe_2O_3－P_2O_5系ガラスのガラス転移点が４５０℃以上であることが好ましい。

[0010] また、本発明は、塩化物溶融塩に使用済核燃料を溶解し、電解処理する工程で発生する使用済電解質を加熱溶融した状態で、上記の収着材料に接触させて、Ｃｓ又はＳｒを選択的に収着させて該電解液からＣｓ又はＳｒを除去する方法を提供するものである。

[0011] 本発明により、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒ、例えば、塩化物系使用済電解質融液中に蓄積した核分裂生成物であるＣｓ又はＳｒを収着でき、電解質の再生が可能となり、環境及び経済面での負荷を低減することが出来る。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]実施例１の収着材料の粉末Ｘ線回折の結果である。

[図2]実施例１，２，４，１１の収着材料のＣｓ収着率を示す図である。

[図3]実施例１，２，４，１１の収着材料のＳｒ収着率を示す図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明を詳細に説明する。

[0014] 本発明の収着材料は、Fe_2O_3を必須成分とするFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなり、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒを選択的に収着することを特徴とする。

[0015] 本発明の成分系において、Fe_2O_3は、Ｃｓを収着するための必須成分であり、P_2O_5系ガラスで問題となる吸湿性を改善し、ガラスを安定化させる成分である。ガラス中にFe_2O_3を１～５０モル％の範囲で含有させることが望ましい。１モル％未満では上記作用を発揮しえず、５０モル％を超えるとガラス化しなくなる。より好ましくは５～４５モル％の範囲、さらに好ましくは２０～３５モル％の範囲である。

[0016] P_2O_5は、ガラスの主成分であり、ガラス溶融を容易とする成分である。ガラスを形成するための必須成分であり、ガラス中にP_2O_5を５０～８０モル％の範囲で含有させることが望ましい。５０モル％未満では上記作用を発揮しえずかつガラス化が困難となり、８０モル％を超えるとガラスの耐湿性が悪くなる。より好ましくは５５～７５モル％の範囲である。

[0017] また、Fe_2O_3－P_2O_5系ガラスには、Al_2O_3、B_2O_3、TiO_2、ＣｏＯ、ＮｉＯ、CeO_2、Cr_2O_3、La_2O_3、MoO_3、Nb_2O_5、WO_3から選択される１種以上を含有させる。

[0018] Al_2O_3は、ガラス作製の際に結晶化を抑制し、耐久性を向上させる成分である。またガラス中にAl_2O_3を含有させることで、溶融塩に浸漬してＣｓ又はＳｒを収着した後でも材料形状を維持できるようになる。

[0019] B_2O_3は、軟化点及びＣｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0020] TiO_2は、ガラスの耐熱性を向上させ、またAl_2O_3と同様にＣｓ又はＳｒを収着後の材料の形状を維持しやすくなる成分である

[0021] ＣｏＯは、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0022] ＮｉＯは、B_2O_3、ＣｏＯと同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0023] CeO_2は、結晶化を抑制し、また、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0024] Cr_2O_3は、TiO_2と同様に、ガラスの耐熱性を向上させ、ガラス作製の際に結晶化を抑制しする成分である。またガラス中に含有することで、溶融塩に浸漬してＣｓ又はＳｒを収着した後でも材料形状を維持できるようになる。

[0025] La_2O_3は、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0026] MoO_3は、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る

成分である。

[0027] Nb_2O_5は、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。ガラス中に含有することで、溶融塩に浸漬してＣｓ又はＳｒを収着した後でも材料形状を維持できるようになる。

[0028] MoO_3は、B_2O_3と同様に、Ｃｓ又はＳｒの収着性を調整することが出来る成分である。

[0029] Al_2O_3、B_2O_3、TiO_2、ＣｏＯ、ＮｉＯ、CeO_2、Cr_2O_3、La_2O_3、MoO_3、Nb_2O_5、WO_3から選択される１種以上の合計が１～４０モル％の範囲でガラス中に含有させることが望ましい。１モル％未満では、前記効果が得られず、４０モル％以上ではガラス化が困難となる。より好ましくは１～３５モル％の範囲である。

[0030] この他にも、一般的な酸化物で表すSiO_2、ZrO_2、ＣｕＯ、V_2O_5、SnO_2、GeO_2など、あるいはF_2やCl_2などを、上記性質を損なわない範囲で３モル％まで加えてもよい。

[0031] 本発明の収着材料においては、Fe_2O_3－P_2O_5系のガラス転移点が４５０℃以上であることを特徴とする収着材料であることが望ましい。本発明の再生対象である電解質の融点は一般的に４５０℃以上であるため、ガラス転移点がその温度以下では、使用時に形状を維持出来なくなる。

[0032] 本発明の収着材料のＣｓ又はＳｒの収着効果は、イオン交換、分子篩い、反応・結晶化などのいずれかによるもの、あるいはその複合である。

[0033] 本発明の収着材料は、特に形状を問わないが、収着効果を上げる目的で、表面積を大きくし、粉末状、繊維状、あるいは多孔質にしても良い。

[0034] 本発明の収着材料は、Ｃｓ又はＳｒを含有する塩化物系電解質の溶融塩に効果を示す。ただし、塩化物系電解質は、リン酸塩等の他の塩を含有しても良い。

[0035] 収着材料としてのガラスは、例えばP_2O_5源として正リン酸を、Fe_2O_3源として酸化鉄を、Al_2O_3源として酸化アルミニウムを、B_2O_3源として硼酸を、TiO_2源として酸化チタンを、ＣｏＯ源として酸化コバルトを、ＮｉＯ

源として酸化ニッケルを、CeO_2源として酸化セリウムを、Cr_2O_3源として酸化クロムを、La_2O_3源として酸化ランタンを、MoO_3源として３酸化モリブデンを、Nb_2O_5源として酸化ニオブを、WO_3源として酸化タングステンを使用し、白金ルツボに投入し、電気加熱炉内で１１００～１３００℃、１～３時間加熱溶融した後、溶融ガラスを鋳型に流し込む等の手段で求める形状を作製すればよい。

実施例

[0036] 以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はかかる実施例に限定されるものではない。

[0037] P_2O_5源として正リン酸を、Fe_2O_3源として酸化鉄を、Al_2O_3源として酸化アルミニウムを、B_2O_3源として硼酸を、TiO_2源として酸化チタンを、CoO源として酸化コバルトを、NiO源として酸化ニッケルを、CeO_2源として酸化セリウムを、Cr_2O_3源として酸化クロムを、La_2O_3源として酸化ランタンを、MoO_3源として３酸化モリブデンを、Nb_2O_5源として酸化ニオブを、WO_3源として酸化タングステンを使用し、これらを表１，２の組成となるべく調合した。各調合原料を白金ルツボに投入し、電気加熱炉内で１２５０℃、３時間加熱溶融した。溶融ガラスを鋳型に流し込み、ブロック状とし、ガラス転移点以上に保持した電気炉内に移入して徐冷し、表１の実施例１～１１、表２の比較例１～３に示す組成のガラスを得て、収着材とした。

[表1]

実施例		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
ガラス組成	P_2O_5	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	60.0	70.0
(mol%)	Fe_2O_3	20.0	20.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	25.0
	Al_2O_3		10.0									5.0
	B_2O_3		10.0									
	TiO_2										5.0	
	CoO			5.0								
	NiO								5.0			
	CeO_2	20.0										
	Cr_2O_3				5.0							
	La_2O_3					5.0						
	MoO_3						5.0					
	Nb_2O_5							5.0				
	WO_3									5.0		
	ガラス化	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	ガラス転移点	538	522	490	526	507	492	507	500	493	496	523
	収着効果	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

[表2]

比較例		1	2	3
ガラス組成	P_2O_5	43.0	50.0	
(mol%)	SiO_2			72.0
	Fe_2O_3	8.0		
	Al_2O_3			2.0
	B_2O_3			
	TiO_2			
	ZrO_2			
	MgO			3.0
	CaO		50.0	9.0
	SrO			
	BaO			
	ZnO	49.0		
	ガラス化	○	×	○
	ガラス転移点	430	-	566
	収着効果	×	×	×

[0038] このようにして作製した各試料について、ガラス転移点、収着効果及び収着率を評価した。

[0039] ガラス転移点は、ＪＩＳ Ｒ ３１０３－３に基づき、熱機械分析装置ＴＭＡ８３１０（リガク（株）製）を用いて測定した。

[0040] Ｃｓの収着効果は、ＬｉＣｌ－ＫＣｌ混合塩にＣｓＣｌを０．６×１０－３ｍｏｌ／ｇ添加し、乾燥した大気中５００℃で加熱することで溶融塩とし、上記収着材を同条件で比較するために、直径２０ｍｍφ、高さ５０ｍｍの円柱状に加工したものを５時間浸漬した。浸漬後の試料をＸ線回折により分析することで、Ｃｓの収着効果を評価した。

[0041] Ｃｓ及びＳｒの収着率は、ＬｉＣｌ－ＫＣｌ共晶塩５ｇにＣｌが０．００３ｍｏｌとなるように模擬ＦＰの塩化物であるＣｓＣｌ、$SrCl_2$、を添加し、化学量論量の３倍のリン酸塩転換材（Li_3PO_4）を加え、６００℃で２４時間溶融した。次いで、２５０～４２５μｍに粉砕・分級した上記収着材を０．５ｇ投入し、４８０℃、５００℃、５２０℃の処理温度で２４時間溶融した。その後、冷却固化して、６Ｌの水で洗浄し、ＩＣＰ発光分析装置ＵＬＴＩＭＡ２（Ｈｏｒｉｂａ Ｊｏｂｉｎ Ｙｖｏｎ製）を用いて、回収した洗浄液中のＣｓ、Ｓｒ、Ｌａの残留量を測定し、その残留量から収着率を評価した。

[0042] 収着材の組成及び測定・評価結果を表１～２にまとめた。

[0043] 表1から明らかなように、実施例１～１１の各試料は、各組成が適切な範囲であるため、安定なガラスが得られ、またガラス転移点も所望の範囲に入っ

ていた。

[0044] 溶融電解質に浸漬した後の実施例１の収着材の粉末Ｘ線回折の結果を例として図１に示すが、浸漬後の試料よりＣｓを含む結晶が観測され、Ｃｓの収着効果が得られた。また、図２及び図３に、実施例１、２、４、１１の収着材のＣｓ及びＳｒ収着率を例として示すが、すべての試料で２０～６０％のＣｓ及びＳｒ収着率が得られた。

[0045] これらに対して、表２に示すように、比較例１の試料は、組成が適切な範囲でないため、ガラス化はしたものの、ガラス転移点が所望の値より低かったため、溶融電解質に溶解してしまい、Ｃｓ及びＳｒ収着効果は得られなかった。比較例２の試料は、ガラス化しなかった。比較例３の試料は、一般的なソーダライムガラスであるが、Fe_2O_3を含有していないため、Ｃｓ及びＳｒの収着効果は得られなかった。

[0046] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、以下の実施形態に対し適宜変更、改良可能であることはいうまでもない。

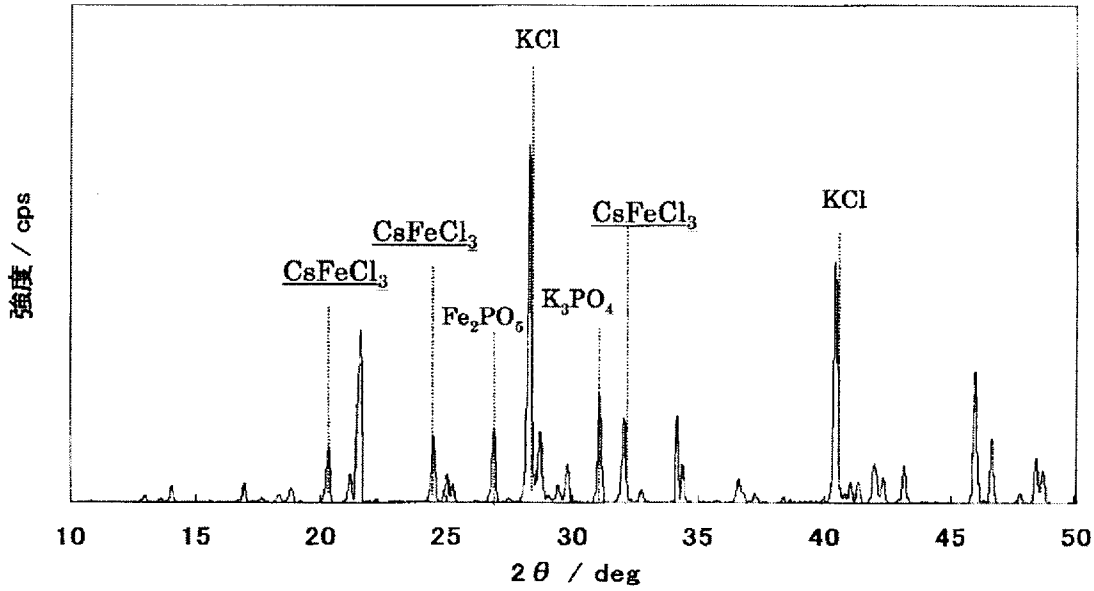
請求の範囲

［請求項1］ Fe_2O_3を必須成分とし、Fe_2O_3を１～５０モル％、P_2O_5を５０～８０モル％、かつ、Al_2O_3、B_2O_3、TiO_2、CoO、NiO、CeO_2、Cr_2O_3、La_2O_3、MoO_3、Nb_2O_5、WO_3から選択される１種以上の合計を１～４０モル％含むFe_2O_3－P_2O_5系ガラスからなり、塩化物系の混合塩からなる電解質融液中のＣｓ又はＳｒの選択的収着性を有することを特徴とする収着材料。

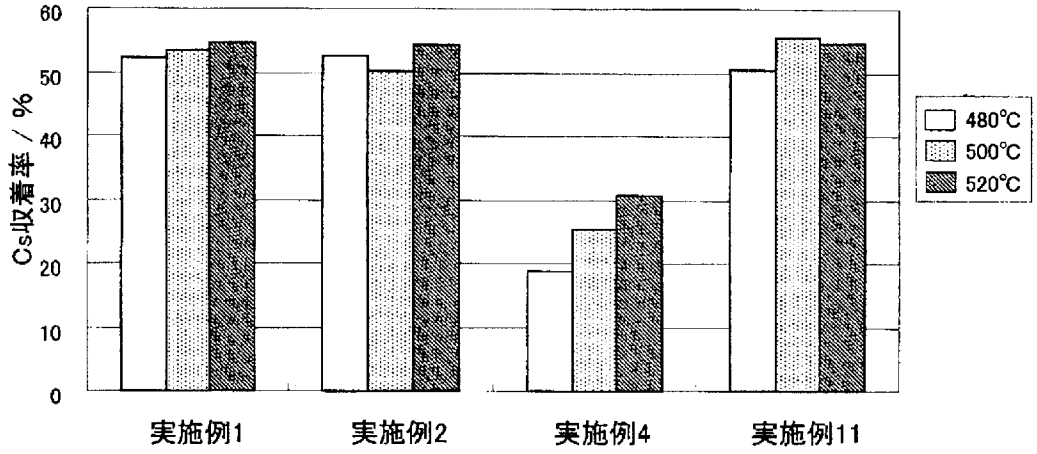
［請求項2］ Fe_2O_3－P_2O_5系ガラスのガラス転移点が４５０℃以上であることを特徴とする請求項１に記載の収着材料。

［請求項3］ 塩化物溶融塩に使用済核燃料を溶解し、電解処理する工程で発生する使用済電解質を加熱溶融した状態で、請求項１又は２に記載の収着材料に接触させて、Ｃｓ又はＳｒを選択的に収着させて該電解液からＣｓ又はＳｒを除去する方法。

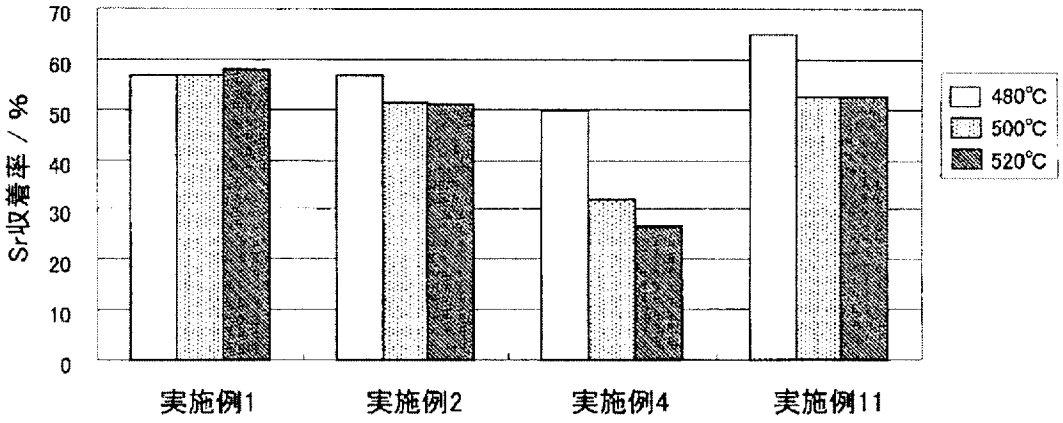
[図1]


KCl
CsFeCl3
CsFeCl3
CsFeCl3
KCl
Fe2PO5
K3PO4
強度 / cps
10
15
20
25
30
35
40
45
50
2θ / deg

[図2]


Cs収着率 / %
60
50
40
30
20
10
0
480℃
500℃
520℃
実施例1
実施例2
実施例4
実施例11

[図3]


Sr収着率 / %
70
60
50
40
30
20
10
0
480℃
500℃
520℃
実施例1
実施例2
実施例4
実施例11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2012/054230

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
G21F9/16(2006.01)i, *B01J20/06*(2006.01)i, *C03C3/16*(2006.01)i, *C03C3/17*(2006.01)i, *C03C3/19*(2006.01)i, *C03C3/21*(2006.01)i, *G21F9/06*(2006.01)i, *G21F9/12*(2006.01)i
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G21F9/16, B01J20/06, C03C3/16, C03C3/17, C03C3/19, C03C3/21, G21F9/06, G21F9/12

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JST7580(JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2011-7694 A (Central Glass Co., Ltd.), 13 January 2011 (13.01.2011), paragraphs [0001], [0030] to [0035] & WO 2010/150822 A1	1-3
A	WO 2010/150823 A1 (Central Glass Co., Ltd.), 29 December 2010 (29.12.2010), entire text; all drawings & JP 2011-5444 A	1-3
A	Ippei AMAMOTO et al., "Rinsan'en Tenkanho ni yoru Shiyozumi Denkaishitsu Saisei Process ni Kansuru Kento", Atomic Energy Society of Japan '2010 Nen Haru no Nenkai' Yoshishu, 09 March 2010 (09.03.2010), J15	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
14 March, 2012 (14.03.12)	27 March, 2012 (27.03.12)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2012/054230

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

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

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

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

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

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

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

The invention of claim 1 is not considered to be novel in the light of the invention disclosed in the document 1, and does not have a special technical feature. Therefore, the invention of claim 1 and the inventions of claims 2-3 do not comply with the requirement of unity.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

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

Remark on Protest

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

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

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１２／０５４２３０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　G21F9/16(2006.01)i, B01J20/06(2006.01)i, C03C3/16(2006.01)i, C03C3/17(2006.01)i, C03C3/19(2006.01)i, C03C3/21(2006.01)i, G21F9/06(2006.01)i, G21F9/12(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　G21F9/16, B01J20/06, C03C3/16, C03C3/17, C03C3/19, C03C3/21, G21F9/06, G21F9/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１２年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus/ JST7580(JDreamII)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2011-7694 A (セントラル硝子株式会社) 2011.01.13, 段落[0001],[0030]-[0035] & WO 2010/150822 A1	1-3
A	WO 2010/150823 A1 (セントラル硝子株式会社) 2010.12.29, 全文全図 & JP 2011-5444 A	1-3
A	天本一平　他７名，「リン酸塩転換法による使用済み電解質再生プロセスに関する検討」，日本原子力学会「2010年春の年会」要旨集，2010.03.09，J15	1-3

☐　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 １４．０３．２０１２	国際調査報告の発送日 ２７．０３．２０１２
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　２Ｉ　３６０８ 村川　雄一 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３２７３

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１２／０５４２３０

第Ⅱ欄　請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第１ページの２の続き）

法第8条第3項（ＰＣＴ17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

１．☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、

２．☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

３．☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってＰＣＴ規則6.4(a)の第２文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄　発明の単一性が欠如しているときの意見（第１ページの３の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求項１に係る発明は、文献１に記載された発明に対して新規性が認められず、特別な技術的特徴を有しない。したがって、請求項1に係る発明と請求項2-3に係る発明は単一性の要件を満たさない。

１．☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。

２．☑ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。

３．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。

４．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。

☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。

☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。