

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第2部門第1区分

【発行日】平成21年8月27日(2009.8.27)

【公表番号】特表2004-526559(P2004-526559A)

【公表日】平成16年9月2日(2004.9.2)

【年通号数】公開・登録公報2004-034

【出願番号】特願2002-565698(P2002-565698)

【国際特許分類】

B 01 D 71/02 (2006.01)

B 01 D 53/22 (2006.01)

B 01 D 69/12 (2006.01)

B 22 F 5/10 (2006.01)

【F I】

B 01 D 71/02 500

B 01 D 53/22

B 01 D 69/12

B 22 F 5/10

【誤訳訂正書】

【提出日】平成21年7月10日(2009.7.10)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

強固な孔質の耐火性基体と、

パラジウム若しくはパラジウムベース合金からなるフィルタ薄膜と、からなる水素を選択的に透過せしめる複合膜構造体(10-24-40)であって、

前記基体は、クロムおよび鉄を含むニッケルベースのスーパーアロイからなる微粉末によって形成され、2ミクロンから10ミクロンの間の大きさの開口孔を有する透過性の焼結金属体と、

前記焼結金属体上に前記微粉末より小さい微粉末によって形成され、20乃至50ミクロンの間の厚さを有し、1ミクロン未満の大きさの開口孔を有し、スーパーアロイからなる中間焼結金属薄膜と、からなり、前記中間焼結金属薄膜は、好ましくはクロムおよび鉄を含むニッケルベースのスーパーアロイからなり、

前記焼結金属体と前記中間焼結金属薄膜とは、それらの界面における熱膨張の差異を回避するように選択された熱膨張係数を有し、

前記フィルタ薄膜は、前記中間焼結金属薄膜上に設けられ、前記中間焼結金属薄膜の粒子の表面に微細溶接によって接合されており、

前記焼結金属体と、前記中間焼結金属薄膜と、前記フィルタ薄膜を構成する各材料の熱膨張係数は、前記焼結金属体と、前記中間焼結金属薄膜と、前記フィルタ薄膜の各界面における熱膨張の差異を回避するように選択されていることを特徴とする構造体。

【請求項2】

前記基体の前記焼結金属体が透過性を改良するのに適している筋部(17-31-47)を含むことを特徴とする請求項1に記載の構造体。

【請求項3】

前記基体は、一方の端部に抽出された水素を排気するカラー(20-34)が設けられ

、他方の端部にガス供給カラーが備えられている円筒状ロッド(10-24)であることを特徴とする請求項1または2に記載の構造体。

【請求項4】

前記円筒状ロッド(24a-b-c)は、それに良好な機械的抵抗を与えるのに適合している堅固な軸状の金属強化材(32a-b-c)を含む、ことを特徴とする請求項3記載の構造体。

【請求項5】

複数の請求項4によるロッド群によってグリッドが構成され、前記ロッド群が、互いに小なる距離で配され、かつ抽出された水素の捕集とガスの供給にそれぞれ割り当てられている2つの中空横断ビームに固定されて載置されている、ことを特徴とする請求項4記載の構造体。

【請求項6】

前記ロッド(24c)がガス注入部を有する手袋指型であり、前記ロッドの軸状の金属強化材(32c)は、中空であり、前記注入部に割り当てられ、かつ他方の端部で溶接された灰吹皿(40)によって形成された空洞(38)中で開いている、ことを特徴とする請求項5記載の構造体。

【請求項7】

前記基体は、孔質体(46)と中間薄膜(44)とを含み、かつ開口部に抽出された水素を取出すための管(52a-b)が接続されて他方の反対側の開口部にガス供給管(50a-b)が接続されている金属縁部(48a-b)に適合した封止された板体である、ことを特徴とする請求項1または2に記載の構造体。

【請求項8】

前記基体は良好な機械的抵抗を提供するのに適している堅固な金属の内部強化材(49)が設けられている、ことを特徴とする請求項1または2記載の構造体。

【請求項9】

可燃性ガス、水蒸気及び空気からなる1次混合気体を供給する調節セルによって適切な状態にされた常温プラズマ反応室(58-65-92)が水素、二酸化炭素及び一酸化炭素をふくむ2次混合気体を形成する可燃性ガス処理装置であって、

前記反応室(58-65-92)は、複数の請求項1乃至8の1に記載の水素を選択的に透過できる膜構造体を含み、前記構造体に共通の水素捕集部(76)が接続されており、

前記構造体の近くに、高誘電体係数を有する非導電性耐火性被覆(60-62、68a-b、96a-b)が設けられ、かつ適切な電源(84)に応じて前記電極と構造体とを隔てる空間において前記常温プラズマを発生させるバリア放電を生成することが企図されたユニットを構成するように前記構造体に効果的に協同できる適合した形状と寸法を備えている、1以上の電極が配されている、ことを特徴とする可燃性ガス処理装置。

【請求項10】

前記反応室(65-92)において、フィルタ構造体(68a-bまたは94)に関する絶縁電極(78a-cまたは96a-b)によって形成されるユニットのそれぞれが、絶縁電極(78b-d)及び高温「水性ガスシフト」反応用の触媒微粒粉を含むバスケット(80a-bまたは98a-b)によって形成されるユニットに続いていることを特徴とする請求項9記載の可燃性ガス処理装置。

【請求項11】

関係する反応に対して特定の化学触媒を提供する反応室を含むタイプのガス処理装置であって、請求項1乃至8の1に記載の水素を選択的に透過できる膜構造体が前記触媒の近くに配されていることを特徴とする可燃性ガス処理装置。

【請求項12】

前記フィルタ構造(68a-b-c-d)および絶縁電極(78a-b-c-d)は、正方形形状のグリッドに集合された鉛筆体(24a-b)を有し、

前記グリッドは、フィルタ構造(68)に対して中性ガス注入管若しくは水素排気管、

又は絶縁電極（78）に対して電気的に絶縁されたリンク導体（79a-b）の何れかである2つの突設ビーム（71-73）にほぼ接触して固定された複数の鉛筆体によって形成され、前記ビーム（71-73）が前記反応室に据付けられた枠に固定されるように載置されている、ことを特徴とする請求項9若しくは10記載の可燃性ガス処理装置。

#### 【請求項13】

水素精製装置（100）であって、

水素を選択的に透過できる1以上の膜（108<sub>1...n</sub>）を含む非導電性被覆（144）によって覆われた耐火性筐体（106）により構成されたフィルタ室（102）と、

前記膜（108）の最適状態に対応する内部圧力と温度範囲にそれぞれ適合する温度状態と圧力状態によって精製された水素流を提供するのに適した加熱手段（118-120-126）、温度調整手段（140-142-138）および圧縮手段（130）と、を含み、

前記装置は請求項1乃至8の1に記載された装置であり、

前記膜はガスの供給と抽出された水素の捕集にそれぞれ割り当てられている2つの共通の管に接続されている、ことを特徴とする水素精製装置。

#### 【請求項14】

前記加熱手段はボイラ（116）と前記ボイラを通過して熱伝導加熱管（120）に結合しているバーナー（118）とを含み、

前記ボイラ（116）は、精製される水素を過剰圧力で供給し、孔質板（128）を介してフィルタ室（102）に連通し、

バーナー（118）は、捕集管（136）によりフィルタ室（102）の下流で排気された残留水素と、コンプレッサ（138）により供給された圧縮空気と、が供給され、前記圧縮空気の流れがフィルタ室（102）に配された熱電対（140）によって供給された信号によって制御される調整装置（142）に依存し、

バーナー（118）のチムニー（124）は、環状部分を有し、前記フィルタ室（102）を囲繞しかつ非導電性被覆（144）によって覆われている、ことを特徴とする請求項13記載の水素精製装置。

#### 【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0011

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0011】

しかし、かかる種類の構造体は、ある欠点を有する。第1は、基体の表面の比較的有意な表面荒さに起因して、マイクロホールがフィルタ薄膜において形成されるという危険性である。かかる表面荒さは、孔質基体に対して最低限で必要とされる透過率によって要求された金属粒の大きさが比較的大きいことによる。また、かかる文献は、基体を構成するために、フィルタ薄膜の比較的低い熱膨張係数（すなわち、パラジウムにの場合  $11.8 \times 10^{-6}/$ ）と両立できる熱膨張率を有する金属の選択を提供していないという事実に、第2の危険性の原因がある。不利な膨張差に起因してマイクロクラックが発生するという理由により、かかる金属は、上記透過性薄膜の十分な選択性を許容するのに必要である。

#### 【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0022

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0022】

金属の支持体上に極薄の金属薄膜を形成するための公知の方法（特に真空蒸着法、電気分解法、非電着性金属析出法及びPVD（物理蒸着法））が、利用可能である。上記担持

体が焼結される場合に、上記した公知の金属薄膜を形成する技術は支持体の表面微粒子の上の超極薄薄膜の正確且つ有効で安定的なマイクロ溶接の実現を可能とする。

【誤訳訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0024

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0024】

水素がある場合に、基体の本体および中間薄膜を構成しているパラジウムおよび合金の両立性に関して、以下に記載する。「トピックスインアプライドフィジックス (Topics in Applied Physics) (第28巻)」 - 金属中の水素 I、p 56 と名付けられた研究によれば、膜の使用の状況（通常 300 度 10 バール）において原子状態の水素とパラジウムの密度である  $C = H / M$  比の最大値は  $C = 2 \times 10^{-3}$  であると評価されている。また、結果として  $10^{-4}$  の線膨張になる。同じオーダーの値が、銀およびニッケルに対して計算されている。従って、第1に、本発明による複合構造体の成分が、使用される標準球面において互いに完全に両立できること、第2に、上述の反応室における構造体の温度の温度上昇の間、銀およびニッケルの線膨張がパラジウム（略  $4 \times 10^{-3}$ ）の熱膨張よりも低い、という結果が示される。

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0025

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0025】

パラジウムと基体の金属との熱的な両立性が提供されることに関して、それが処理チャンバの温度を（20 の常温環境から 350 乃至 400 の基準点に）上昇する間、それが特に重要性を呈することが判る。本発明によれば、基体の本体および中間薄膜の熱膨張率が、フィルタ薄膜の熱膨張率よりも小若しくはわずかに大である。溶接されるように微粒子の上部によって画定されているフィルタ薄膜のマイクロエレメントは、かかる薄膜のマイクロクラックを生じるあらゆる引張り応力の影響を受けないようすることができる。パラジウムおよびインコネル 600（ニッケル、クロムおよび鉄ベースのスーパーアロイ）の場合、熱膨張率は、パラジウムの場合  $11.8 \times 10^{-6}$  / およびインコネル 600 の場合  $11.5 \times 10^{-6}$  / である。かかる事項は、本発明による複合構造体を形成するために上記スーパーアロイが好適に選択できることを示している。

【誤訳訂正6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0035

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0035】

図 1 b によれば、長いロッド形状の構造体 24 は、インコネル 600 からなる軸線上の強化材 32 を含む。図 1 c によれば、プレート構造 40 はインコネル 600 からなる金属縁部 48 を含む。図 2 a - b および図 3 a - b - c によれば、短いロッド状構造体 10 a - b 又は長いロッド状構造体 24 a - b - c は、それぞれ、一方の端部にカラー 20 a - b 又は 34 a - b - c が設けられ、カラー 20 a - b 又は 34 a - b - c は、溶接によつて薄い中間薄膜 14 a - b 又は 28 a - b - c に溶接されている。手袋指（1つの極薄フィルタ薄膜 13 または 27 が末端部に配置されている）形状を有する膜構造体 10 a - 24 a のカラー 20 a 若しくは 34 a は、抽出された水素の除去と当該構造体を集合管に固定することの双方を提供することを企図している。短いロッド状構造体 10 b 若しくは長いロッド状構造体 24 b は、超極薄薄膜 13 または 27 の代わりに、他方の端部に固定さ

れるカラー 22 若しくは 36 を含む。かかるカラー 22 - 36 は、生成された水素が徐々に抽出されるように、基体 16 または 30 に中性のベクトルガス（たとえば窒素）を注入するために提供される。

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0044

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0044】

薄い中間薄膜 14 は、サイズ粒度が調製された超微細金属粉を含む適切なゲルを本体 16 に配することによって形成され、かつその後の適切な焼結操作によって 1 ミクロン未満の小なる大きさで互いに連通している開口孔を形成するのに適した小なる粒に形成されたニッケルまたはニッケルベースのスーパーアロイ（インコネル 600 としても良い）からなる。薄い中間薄膜 14（厚さが 30 乃至 50 ミクロンに調整されている）の有孔率および透過率は、比較的わずかである。また、その外部表面は、厚さ 2 乃至 4 ミクロンの極薄のフィルタ薄膜が配される支持体として特に適切である非常に滑らかな状態の表面荒さを呈する。公知文献を参照して、かかる極薄のフィルタ薄膜 12 は、本発明の目的に適合しあつその有効性が知られているあらゆる方法（特に上述したフィルタ薄膜を形成するための金属薄膜を形成する技術の 1 つ）によって実行されるパラジウムおよび銀合金の堆積によって形成される。

【誤訳訂正 8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0049

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0049】

図 5 は、上述の国際特許出願第 WO 98 / 28223 号に記載されている型の可燃性ガス処理装置（すなわち、水素発生装置）の常温プラズマ反応室 5\_8 の断面を示している。

【誤訳訂正 9】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0058

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0058】

ガス調節セル 8\_8 の外側に据付けられた管 8\_61...6 は、反応室 6\_5 が処理するガスの供給を確実にして、その結果、上記チャンバの筐体 6\_6 の底部で規則正しく分配された開口に突出する。2つの電極 7\_8a - b のグリッドならびに 4 つのフィルタ構造 6\_8a - b - c - d の形状とバスケットの微粒子 8\_2a - b の高透過性とによって、反応室 6\_5 を循環しているさまざまなガスは、混合に適した状態で混合される。

【誤訳訂正 10】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0060

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0060】

図 8 よると、本発明の他のフィルタ構造体を使用している処理装置 9\_1 の反応室 9\_2 が示されている。当該反応室 9\_2 の説明は、図 6 の処理装置の反応室 6\_5 から、それを区別することに關係するものだけとする。12 mm の間隔を有する 2 つの群が上記反応室 9\_2 に置かれている。各群は、図 4b に示されている構造体と同じ 8 mm 厚の大きい矩形板（たとえば 30 × 20 cm）の形で、本発明による 20 枚のフィルタ構造体（4 つの構造体 9\_4

a - b - c - d だけが示されている)を含んでいる。15 × 20 cmの大きさと8 mmの厚さを有する矩形板からなる2つの絶縁電極(例えば96a - b)と、15 × 20 cmの大きさと11 mmの厚さを有しあつ上述のものと同一の触媒粒子が充填された孔質の強固な縁部を有する2つの矩形バスケット(例えば98a - b)と、が2つのフィルタ板94の間に配されている。この反応室において行われる変換効率が上昇するように、フィルタ構造体94a - b - c - d中におけるベクトルガスの循環方向と反応室内に注入された反応性混合物の循環方向が、各々に対して逆にされても良い。上記40セットの板の全ては、60 cmの長さと40 cmの側辺の矩形断面を有する。直径60 cmで長さ80 cmの円筒状の筐体93は、前記セットに適合されても良い。まとめられた上記膜構造体の全面積は960のdm<sup>2</sup>である。そして、図8の反応室92に関する供給および排気は、図5の反応室58のそれら全てのように、図6の反応室65のそれらと同一である。一方、ガスの循環の方向に配置された記載されたプレートが、それらの末端のいずれかにおいて代替的に配置された通路によってかかる方向に対して垂直に配置される点を注記する。

【誤訳訂正11】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0071

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0071】

反応室65及び92によって提供されるものと同じ結果が得られるように、図5の構造体の反応室58中に、上述した絶縁電極60 - 62よりも2倍長いロッド体であり、電極と同一形状で適切な触媒を含むバスケットが、容易に据付けられることを注記しておく。