

(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
2010年8月12日(12.08.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/090118 A1

- (51) 国際特許分類:
B01D 53/68 (2006.01) *B01J 20/04* (2006.01)
B01D 53/14 (2006.01) *C01B 7/24* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/051085
- (22) 国際出願日: 2010年1月28日(28.01.2010)
- (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 2009-027742 2009年2月9日(09.02.2009) JP
特願 2009-125132 2009年5月25日(25.05.2009) JP
特願 2010-013290 2010年1月25日(25.01.2010) 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): 柴山 茂朗 (SHIBAYAMA, Takaaki). 岡川 敦 (RYOKAWA, Atsushi). 山田 周平 (YAMADA, Shuhei).
- (74) 代理人: 橋本 剛, 外 (HASHIMOTO, Takeshi et al.); 〒1040044 東京都中央区明石町1番29号

掖済会ビル S H I G A 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, RO, RS, RU, 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, LS, MW, MZ, NA, 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 (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, SE, SI, SK, SM, TR), 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))

(54) Title: METHOD FOR RENDERING IODINE FLUORIDE HARMLESS

(54) 発明の名称: フッ化ヨウ素の除害方法

(57) Abstract: Disclosed is a method for rendering iodine fluoride harmless, which is characterized in that a reagent, which contains not less than 5% by mass but not more than 100% by mass of an alkali metal oxide, an alkali metal carbonate, an alkaline earth metal carbonate, an alkaline earth metal, an alkaline earth metal oxide, an alkali metal hydroxide or an alkaline earth metal hydroxide in total, is brought into contact and reacted with a gas, which contains iodine fluoride represented by the following general formula: IF_x (wherein x represents 1, 3, 5 or 7) at a concentration not more than 10 vol%, at a temperature of not less than 0°C but not more than 540°C, so that the iodine component and the fluorine component are immobilized on the reagent. By this method, iodine fluoride can be efficiently rendered harmless.

(57) 要約: アルカリ金属酸化物、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属水酸化物、またはアルカリ土類金属水酸化物を合計で5質量%以上100質量%以下含有する反応剤を0°C以上540°C以下の温度で、一般式: IF_xで表されるフッ化ヨウ素(ただし、xは1、3、5、7のいずれか一つを示す。)を10vol%以下の濃度で含有するガスと接触させて反応させることにより、ヨウ素成分およびフッ素成分を該反応剤に固定することと特徴とするフッ化ヨウ素の除害方法が提供される。この方法によって、フッ化ヨウ素を効率的に除害できる。



WO 2010/090118 A1

明 細 書

発明の名称： フッ化ヨウ素の除害方法

技術分野

[0001] 本発明は、フッ素化剤、あるいは電子または原子力産業に用いられるエッチングガスやクリーニングガスとして有用な、フッ化ヨウ素を効率的に除害することができる方法に関するものである。

発明の背景

[0002] ミフッ化塩素や四フッ化珪素等のハロゲン化合物の除害方法としては、乾式処理法と湿式処理法が考えられる。乾式処理法は、装置がコンパクトで操作も簡便であり、湿式処理法のような水の逆流によるトラブルも無く、また大量の廃液処理ができない場合や装置スペースが無い場合には特に有効である。

[0003] 乾式処理法では、例えば、ミフッ化塩素についての乾式除害法（特許文献 1）が提案されているが、1）反応後のハロゲン化合物の遊離、2）反応剤固結の目詰まりによるトラブルの発生、3）定期的に反応剤を交換するため反応剤の利用効率が低い場合にはランニングコストがかかる等の問題点があり、特に前記問題点の 1）と 2）については、運転上重要であり、フッ化ヨウ素については、これら二つの問題点を解決する具体的な提案はこれまでに無く、フッ化ヨウ素を効率的に除害できる技術が望まれている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献 1：特開平 3－229618 号公報

発明の概要

[0005] 本発明の目的は、フッ化ヨウ素を効率的に除害できる方法を提供することである。

[0006] 本発明者らは、上記目的を達成するため、鋭意検討を重ねた結果、アルカリ金属酸化物、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ土

類金属、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属水酸化物、またはアルカリ土類金属水酸化物を含有した反応剤を特定の温度で使用することで、フッ化ヨウ素を該反応剤に固定し、効率的にフッ化ヨウ素を除害できることを見出し、本発明に到ったものである。

[0007] すなわち、本発明は、アルカリ金属酸化物、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属水酸化物、またはアルカリ土類金属水酸化物を合計で5質量%以上100質量%以下含有する反応剤を0℃以上540℃以下の温度で、一般式： IF_x で表されるフッ化ヨウ素（ただし、 x は1、3、5、7のいずれか一つを示す。）を10vol%以下の濃度で含有するガスと接触させて反応させることにより、ヨウ素成分およびフッ素成分を該反応剤に固定することを特徴とするフッ化ヨウ素の除害方法（第1方法）を提供するものである。

[0008] さらに、第1方法は、該一般式： IF_x の x が5または7であることを特徴とするフッ化ヨウ素の除害方法（第2方法）であってもよい。

[0009] 本発明は、上述の反応剤を0℃以上540℃以下の温度でフッ化ヨウ素を含有するガスと接触させることによって、フッ化ヨウ素を人体に無害な O_2 、 H_2O などに換えることが可能となる。また、フッ素元素及びヨウ素元素については、例えばソーダライムを反応剤として用いた場合は、ヨウ素はヨウ素酸カルシウム、フッ素はフッ化カルシウムになり、同時に完全に固定化される。

詳細な説明

[0010] 本発明の方法により、容易にフッ化ヨウ素の効率的な除害をすることができる。

[0011] 以下、本発明を更に詳述する。

[0012] 本発明において用いる反応剤は、アルカリ金属酸化物、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属水酸化物、またはアルカリ土類金属水酸化物を合計で5質量%以上100質量%以下含有したものであれば使用できる。

- [0013] アルカリ金属酸化物としては、酸化リチウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化ルビジウム、酸化セシウム等が挙げられるが、中でも、顆粒状の形で用いることができることが望ましいため、酸化リチウム、酸化ナトリウム、または酸化カリウムを含む、ゼオライトが好ましく、具体的には、モレキュラーシーブが挙げられる。
- [0014] アルカリ金属炭酸塩としては、例えば、炭酸リチウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸ルビジウム、炭酸セシウム等が挙げられるが、顆粒状の形で用いることができる点で炭酸ナトリウムまたは炭酸カリウムが好ましい。
- [0015] アルカリ土類金属炭酸塩としては、例えば、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸ストロンチウム、炭酸バリウム等が挙げられるが、顆粒状の形で用いることができる点で炭酸カルシウムまたは炭酸マグネシウムが好ましい。
- [0016] アルカリ土類金属としては、例えば、カルシウム、マグネシウム、ストロンチウム、バリウム等が挙げられるが、中でも、顆粒状の形で用いることができる点でカルシウムまたはマグネシウムが好ましい。
- [0017] アルカリ土類金属酸化物としては、例えば、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム等が挙げられるが、中でも、顆粒状の形で用いることができる点で酸化カルシウムまたは酸化マグネシウムが好ましい。
- [0018] アルカリ金属水酸化物としては、例えば、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等が挙げられるが、中でも、顆粒状の形で用いることができる点で水酸化カリウムまたは水酸化ナトリウムが好ましい。
- [0019] アルカリ土類金属水酸化物としては、例えば、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化ストロンチウム、水酸化バリウム等が挙げられるが、顆粒状の形で用いることができる点で水酸化カルシウムまたは水酸化マグネシウムが好ましい。
- [0020] 反応剤をフッ化ヨウ素と接触させて反応させる方法として、反応剤が充填されている反応管にフッ化ヨウ素を含有するガス導入させる方法を用いるこ

とができる。この方法を用いる場合、フッ化ヨウ素を含有するガスを反応管に導入する際、フッ化ヨウ素を含有するガスの流量は、その空塔速度（単位時間当たりの流量／容積）を 1000 H r^{-1} 以下にすることが好ましい。この速度を超えるとガスが分解せず反応管を通過する場合があります好ましくない。さらに、除去効率を上げるためには、 50 H r^{-1} 以下が望ましい。

[0021] フッ化ヨウ素と接触させる時の温度は、 0°C 以上であればフッ化ヨウ素と反応剤との反応は起きるが、除去効率を上げるためには、 100°C 以上が好ましい。また、 550°C 以上になると反応剤に固定されたヨウ素、例えば、ヨウ素酸カルシウムが、分解してヨウ素成分が遊離することから、 540°C 以下で接触させることが必要である。

[0022] 反応管に充填されている反応剤を加熱する手段、方式は、上記の所望の温度に加熱できれば特に限定されず、例えば、電気ヒータを外熱式または内熱式で用いることができる。外熱式において、反応管の径が大きいことにより内部の温度が所望の温度まで上がらない場合は、反応管内中央にヒータを設置することが望ましい。

[0023] 反応管の材質は、室温では、フッ素樹脂や金属材料が使用可能である。 100°C 以上においては、金属材料を使用することが好ましく、SUS304のような比較的安価な材料も使用可能である。 300°C 以上で且つ長期間連続的に反応管を使用する場合には、ハステロイやモネル等のNi合金を使用することが好ましい。反応管のフランジ等のガスケットはPTFE製や金属製を使用することが望ましい。さらに、PTFE製のガスケットを使用する場合は、フッ化ヨウ素が凝縮しないように、フランジ部に冷却ジャケットを設けることが望ましい。例えばフッ化ヨウ素が IF_5 の場合は、冷却ジャケットに $30\sim 50^{\circ}\text{C}$ の冷却水を循環させることが望ましい。

[0024] 反応管の構成は、1段目のバックアップとして2段目または更に複数の反応管を設置し、シリーズ形式に配置することが望ましい。例えばシリーズ形式に反応管が2段配置されている場合、その運用方法は、1段目の出口にガス検知器を設置し、フッ化水素、ヨウ素が一定濃度以上に達した時点で1段

目の薬剤を交換する。さらに、連続して除害を行う場合は、１段目に反応管を２基パラレル形式に設置し、１段目の２基を切り替えながら連続使用を行うことができる。

[0025] 反応管の出口には、薬剤の微粉体による配管の閉塞を防ぐため、金属製のフィルターを設置することが望ましい。また、出口フランジのガス口にも、ステンレス製の金網を差し込むことが望ましい。

[0026] 反応管出口や配管は、水の凝縮を防ぐために、配管のヒータトレースやデミスターの設置等を行うことが望ましい。また、凝縮した際のトラブル防止のために、管内のガスの流れは、ダウンフローで行うことが望ましい。

[0027] フッ化ヨウ素と反応剤の反応は発熱反応であるため、フッ化ヨウ素を高濃度含有するガスを反応管に流通させると、フッ化ヨウ素と反応剤との反応熱が大きくなるため、温度上昇が大きくなり装置の耐久性に問題が生じる虞がある。特に、反応剤が水酸化物の場合は、反応により発生する水は気化して排出されるが、フッ化ヨウ素を高濃度含有するガスを反応管に流通させると、急激な反応で発生する水の一部が反応剤に残存して反応剤が固結する可能性が高くなるため、反応管の閉塞が生じる虞がある。

[0028] したがって、反応剤に接触させる時のガス中のフッ化ヨウ素の濃度は、１０ｖｏｌ％以下が好ましく、さらに装置の耐久性を考慮すると、５ｖｏｌ％以下が好ましく、１ｖｏｌ％以下がより好ましい。また、濃度の下限は特に限定されないが、工業的に効率よく処理するためには０．０１ｖｏｌ％以上が好ましく、０．１ｖｏｌ％以上がより好ましい。

[0029] また、反応剤に接触させる時のガス中のフッ化ヨウ素の濃度を所望の濃度にするには、 N_2 、 He 等の不活性ガスで希釈することが望ましい。

[0030] 以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

[0031] [実施例１～６]

反応剤としてソーダライム３００ｇ（和光純薬工業（株）製のソーダ石灰２号、中粒状、 $NaOH$ 含有量５質量％、 $Ca(OH)_2$ 含有量８０質量％、

水分 15 質量%) を充填した直径 1 i n c h、長さ 200 c m のヒータ付反応管 (S U S 304 製) を用い、該ヒータにて所定の温度 (500℃: 実施例 5、100℃: 実施例 1～3 および 6、5℃: 実施例 4) に加温し、N₂で所定の I F₇濃度 (9 v o l %: 実施例 6、1 v o l %: 実施例 1、4、および 5、0. 1 v o l %: 実施例 2、0. 01 v o l %: 実施例 3) に希釈した I F₇ガスを大気圧の下、240 m l / m i n の流速で反応管に流通させた。この時、反応管の出口ガスを超純水を吸収液とするバブラーに通して、固定化されないフッ素成分を該吸収液に吸収させた。その後、該吸収液をイオンクロマトグラフィーによりフッ素イオン濃度を求め、求められたフッ素イオン濃度から反応管出口ガス中のフッ素元素濃度を求めた (検出下限: 3 p p m)。また、反応管出口ガスをヨウ素ガス用のガス検知管 (ガステック製、N o. 9 L) を用いて測定した (検出下限: 0. 2 p p m)。ガス流通は、I F₇を全量 10 g 流通したところで完了とした。

[0032] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0033] [実施例 7]

反応剤として C a (和光純薬工業 (株) 製の粒状、純度 99%) を使用する以外は実施例 1 と同様に行った。

[0034] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0035] [実施例 8]

反応剤として C a O (和光純薬工業 (株) 製の生石灰、純度 98%) を粒径が 5～15 m m になるまで破碎したものを使用する以外は実施例 1 と同様に行った。

[0036] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0037] [実施例 9]

反応剤としてモレキュラーシーブ 4 A (ユニオン昭和 (株) 製、(N a₂O

$\text{)}_6 (\text{Al}_2\text{O}_3)_6 (\text{SiO}_2)_{12}] \cdot 27 \text{H}_2\text{O}$ 、 Na_2O 含有量：17.0質量%)
を使用する以外は実施例1と同様に行った。

[0038] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0039] [実施例10]

反応剤としてモレキュラーシーブ13X（ユニオン昭和（株）製、 $(\text{Na}_2\text{O})_{43} (\text{Al}_2\text{O}_3)_{43} (\text{SiO}_2)_{106}] \cdot 276 \text{H}_2\text{O}$ 、 Na_2O 含有量：14.5質量%)を使用する以外は実施例1と同様に行った。

[0040] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0041] [実施例11]

反応剤として Na_2CO_3 （和光純薬工業（株）製の炭酸ナトリウム、純度99.5%）を使用する以外は実施例1と同様に行った。

[0042] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0043] [実施例12]

反応剤として CaCO_3 （和光純薬工業（株）製の炭酸カルシウム、純度98%）を使用する以外は実施例1と同様に行った。

[0044] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0045] [比較例1]

反応剤としてシリコン（キンセイマテック（株）製の粒径5～15mm、純度98%）を30g使用する以外は実施例1と同様に行った。

[0046] その結果、流通開始直後からフッ素元素濃度が7%検出され、フッ素元素成分は、固定化できないことを確認した。ヨウ素については、ガス検知管の検出上限（12ppm）を超える値を検出し、固定化できないことを確認した。

[0047] [比較例2、3]

ヒータにて所定の温度を、 -10°C （比較例 2）、 600°C （比較例 3）にする以外は実施例 1 と同様に行った。

[0048] その結果、温度が -10°C では、流通中は、フッ素元素もヨウ素元素も検出されなかったが、 IF_7 を 3.2 g 流通させたところで、反応管の内圧が上昇し、ガスを流通できなくなった。また、温度が 600°C では、流通直後フッ素元素は検出されなかったが、ヨウ素については、検出上限（12 ppm）を超える値が検出されたため、ガス流通を終了した。

[0049] [比較例 4]

IF_7 濃度を 12 vol% とする以外は実施例 1 と同様に行った。

[0050] その結果、流通中は、フッ素元素もヨウ素元素も検出されなかったが、 IF_7 を 5.6 g 流通させたところで、反応管の内圧が上昇し、ガスを流通できなくなった。

[0051] 上記実施例および比較例の結果を表 1 に示す。

[0052] [表 1]

	流通 ガス	反応剤	温度	入口 IF_7 濃度	フッ素元素 又はヨウ素 元素検出 の有無	ガス流通 完了の 可否
実施例 1	IF_7	ソーダライム	100°C	1 vol%	無	可
実施例 2	IF_7	ソーダライム	100°C	0.1 vol%	無	可
実施例 3	IF_7	ソーダライム	100°C	0.01 vol%	無	可
実施例 4	IF_7	ソーダライム	5°C	1 vol%	無	可
実施例 5	IF_7	ソーダライム	500°C	1 vol%	無	可
実施例 6	IF_7	ソーダライム	100°C	9 vol%	無	可
実施例 7	IF_7	Ca	100°C	1 vol%	無	可
実施例 8	IF_7	CaO	100°C	1 vol%	無	可
実施例 9	IF_7	モレキュラーシーブ 4A	100°C	1 vol%	無	可
実施例 10	IF_7	モレキュラーシーブ 13X	100°C	1 vol%	無	可
実施例 11	IF_7	Na_2CO_3	100°C	1 vol%	無	可
実施例 12	IF_7	CaCO_3	100°C	1 vol%	無	可
比較例 1	IF_7	Si	100°C	1 vol%	有	否
比較例 2	IF_7	ソーダライム	-10°C	1 vol%	無	否
比較例 3	IF_7	ソーダライム	600°C	1 vol%	有	否
比較例 4	IF_7	ソーダライム	100°C	12 vol%	無	否

[0053] [実施例 1 3]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 1 と同様に行った。

[0054] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0055] [実施例 1 4]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 2 と同様に行った。

[0056] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0057] [実施例 1 5]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 3 と同様に行った。

[0058] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0059] [実施例 1 6]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 4 と同様に行った。

[0060] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0061] [実施例 1 7]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 5 と同様に行った。

[0062] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0063] [実施例 1 8]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 6 と同様に行った。

[0064] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0065] [実施例 19]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 7 と同様に行った。

[0066] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0067] [実施例 20]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 8 と同様に行った。

[0068] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0069] [実施例 21]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 9 と同様に行った。

[0070] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0071] [実施例 22]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 10 と同様に行った。

[0072] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0073] [実施例 23]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 11 と同様に行った。

[0074] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0075] [実施例 24]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は実施例 12 と同様に行った。

[0076] その結果、ガス流通は、完了できた。また、吸収液からフッ素元素は検出されず、ガス検知管測定でもヨウ素は検出されなかった。

[0077] [比較例 5]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は比較例 1 と同様に行った。

[0078] その結果、流通開始直後からフッ素元素濃度が 5 % 以上検出され、フッ素元素成分は、固定化できないことを確認した。ヨウ素については、ガス検知管の検出上限 (12 ppm) を超える値を検出し、固定化できないことを確認した。

[0079] [比較例 6]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は比較例 2 と同様に行った。

[0080] その結果、流通中は、フッ素元素もヨウ素元素も検出されなかったが、 IF_5 を 5.2 g 流通させたところで、反応管の内圧が上昇し、ガスを流通できなくなった。

[0081] [比較例 7]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は比較例 3 と同様に行った。

[0082] その結果、流通直後でフッ素元素は検出されなかったが、ヨウ素については、ガス検知管の検出上限 (12 ppm) を超える値が検出されたため、ガス流通を終了した。

[0083] [比較例 8]

流通するガス中のフッ化ヨウ素として IF_7 の代わりに IF_5 を使用する以外は比較例 4 と同様に行った。

[0084] その結果、流通中は、フッ素元素もヨウ素元素も検出されなかったが、 IF_5 を 7.6 g 流通させたところで、反応管の内圧が上昇し、ガスを流通できな

くなった。

[0085] 上記実施例 1 3 ～ 2 4 および比較例 5 ～ 8 の結果を表 2 に示す。

[0086] [表2]

	流通 ガス	反応剤	温度	入口 IF ₅ 濃度	フッ素元素 又は珪素 元素検出 の有無	ガス流通 完了の 可否
実施例 1 3	IF ₅	ソーダライム	100℃	1 vol%	無	可
実施例 1 4	IF ₅	ソーダライム	100℃	0.1 vol%	無	可
実施例 1 5	IF ₅	ソーダライム	100℃	0.01 vol%	無	可
実施例 1 6	IF ₅	ソーダライム	5℃	1 vol%	無	可
実施例 1 7	IF ₅	ソーダライム	500℃	1 vol%	無	可
実施例 1 8	IF ₅	ソーダライム	100℃	9 vol%	無	可
実施例 1 9	IF ₅	Ca	100℃	1 vol%	無	可
実施例 2 0	IF ₅	CaO	100℃	1 vol%	無	可
実施例 2 1	IF ₅	モレキュラーシーブ 4A	100℃	1 vol%	無	可
実施例 2 2	IF ₅	モレキュラーシーブ 13X	100℃	1 vol%	無	可
実施例 2 3	IF ₅	Na ₂ CO ₃	100℃	1 vol%	無	可
実施例 2 4	IF ₅	CaCO ₃	100℃	1 vol%	無	可
比較例 5	IF ₅	Si	100℃	1 vol%	有	否
比較例 6	IF ₅	ソーダライム	-10℃	1 vol%	無	否
比較例 7	IF ₅	ソーダライム	600℃	1 vol%	有	否
比較例 8	IF ₅	ソーダライム	100℃	12 vol%	無	否

[0087] [実施例 2 5 ～ 2 8]

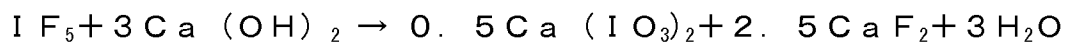
反応剤として、ソーダライム 250 g（和光純薬工業（株）製のソーダ石灰 2 号、中粒状、NaOH 含有量 5 質量%、Ca(OH)₂ 含有量 80 質量%、水分 15 質量%）を乾燥機内で 120℃にて 12 時間乾燥させたものを使用した。この反応剤を充填した直径 1 inch、長さ 100 cm のヒータ付反応管（SUS304 製）を用い、該ヒータにて所定の温度（25℃：実施例 2 5 および 2 6、100℃：実施例 2 7、200℃：実施例 2 8）に加熱し、IF₅ ボンベからの IF₅ をキャリアーガスである N₂ で所定の IF₅ 濃度（1.5 vol%：実施例 2 5 および 2 6、0.9 vol%：実施例 2 7 および 2 8）に希釈した IF₅ ガスを大気圧の下、所定の流速（600 ml/min）

n：実施例25、240ml/min：実施例26～28）で反応管に流通させた。

[0088] 反応管の出口ガスをHFガス検出器（新コスモス製、XPS-7）を用いて測定し、HF濃度が3volppm以上を示したときに反応剤が破過したとみなし、IF₅流通を停止した。反応管内をN₂でパージした後、加熱を終了した。

[0089] IF₅ガスの流速と反応管の容積（空状態）から滞在時間を求めた。また、IF₅除去時の主要な反応を次式と推定し、水酸化カルシウム3モルに対して5フッ化ヨウ素1モルに相当する量をIF₅の理論除去量として、IF₅の理論除去量に対する実際のIF₅流通量を百分率で求めたものを利用効率（%）とした。

[0090] 推定した主要反応式：



尚、IF₅流通量の実測値は、IF₅ガスの流通開始から破過までのIF₅ポンベの重量変化から求め、IF₅の理論除去量は、使用したソーダライム中の水酸化カルシウム量から求めた。

[0091] 上記実施例25～28の結果を表3に示す。

[0092] [表3]

	温度	ガス流量 (ml/min)	IF ₅ 濃度 (vol%)	滞在時間 (sec)	利用効率 (%)
実施例25	25℃	600	1.5	50	13
実施例26	25℃	240	1.5	125	27
実施例27	100℃	240	0.9	125	57
実施例28	200℃	240	0.9	125	56

請求の範囲

- [請求項1] アルカリ金属酸化物、アルカリ金属炭酸塩、アルカリ土類金属炭酸塩、アルカリ土類金属、アルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属水酸化物、またはアルカリ土類金属水酸化物を合計で5質量%以上100質量%以下含有する反応剤を0℃以上540℃以下の温度で、一般式： IF_x で表されるフッ化ヨウ素（ただし、 x は1、3、5、7のいずれか一つを示す。）を10vol%以下の濃度で含有するガスと接触させて反応させることにより、ヨウ素成分およびフッ素成分を該反応剤に固定することを特徴とするフッ化ヨウ素の除害方法。
- [請求項2] 該一般式： IF_x の x が5または7であることを特徴とする請求項1記載のフッ化ヨウ素の除害方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/051085

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01D53/68(2006.01)i, B01D53/14(2006.01)i, B01J20/04(2006.01)i, C01B7/24(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)

B01D53/34-53/85, B01D53/14-53/18, B01J20/00-20/34, C01B7/24

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2000-254438 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 19 September 2000 (19.09.2000), claims 1 to 3; paragraphs [0016], [0029], [0030], [0033] & US 6309618 B1 & TW 523491 B & KR 10-2000-0062165 A	1, 2
A	JP 2004-249285 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 09 September 2004 (09.09.2004), claims 1, 3, 8; paragraphs [0047], [0049], [0056], [0058] & US 2006/0140836 A1 & EP 1587604 A1 & WO 2004/067152 A1 & DE 602004003471 A1 & KR 10-2005-0094044 A & CN 1744939 A	1, 2

☒ 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
08 March, 2010 (08.03.10)

Date of mailing of the international search report
23 March, 2010 (23.03.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/051085

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 04-094723 A (Central Glass Co., Ltd.), 26 March 1992 (26.03.1992), entire text (Family: none)	1,2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B01D53/68(2006.01)i, B01D53/14(2006.01)i, B01J20/04(2006.01)i, C01B7/24(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 (I P C))

Int.Cl. B01D53/34-53/85, B01D53/14-53/18, B01J20/00-20/34, C01B7/24

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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)

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 2000-254438 A (昭和電工株式会社) 2000.09.19, 請求項 1 - 3、 【0016】、【0029】、【0030】、【0033】 & US 6309618 B1 & TW 523491 B & KR 10-2000-0062165 A	1, 2
A	JP 2004-249285 A (昭和電工株式会社) 2004.09.09, 請求項 1、3、 8、【0047】、【0049】、【0056】、【0058】 & US 2006/0140836 A1 & EP 1587604 A1 & WO 2004/067152 A1 & DE 602004003471 A1 & KR 10-2005-0094044 A & CN 1744939 A	1, 2

☒ 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

0 8 . 0 3 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 3 . 0 3 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

三崎 仁

4 Q

3 8 4 8

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 8

C (続き) . 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
A	JP 04-094723 A (セントラル硝子株式会社) 1992.03.26, 全文 (ファミリーなし)	1, 2