

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4925465号
(P4925465)

(45) 発行日 平成24年4月25日(2012.4.25)

(24) 登録日 平成24年2月17日(2012.2.17)

(51) Int.Cl.	F 1
G 2 1 F 9/02 (2006.01)	G 2 1 F 9/02 5 4 1 B
B 0 1 D 53/94 (2006.01)	G 2 1 F 9/02 5 4 1 A
	B 0 1 D 53/36 1 0 3 Z

請求項の数 37 (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2007-525326 (P2007-525326)	(73) 特許権者	507008552
(86) (22) 出願日	平成17年8月4日(2005.8.4)		テーエヌ・アンテルナショナル
(65) 公表番号	特表2008-509416 (P2008-509416A)		TN International
(43) 公表日	平成20年3月27日(2008.3.27)		フランス国・78182・モンティニー・
(86) 国際出願番号	PCT/FR2005/050647		ル・ブルトニュー・リュ・デ・エロン・1
(87) 国際公開番号	W02006/021727		1, rue des Herons,
(87) 国際公開日	平成18年3月2日(2006.3.2)		78182 Montigny Le B
審査請求日	平成20年7月14日(2008.7.14)		retonneux, France
(31) 優先権主張番号	0451817	(74) 代理人	100110423
(32) 優先日	平成16年8月9日(2004.8.9)		弁理士 曾我 道治
(33) 優先権主張国	フランス (FR)	(74) 代理人	100084010
			弁理士 古川 秀利
		(74) 代理人	100094695
			弁理士 鈴木 憲七

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 閉鎖チャンバー中の可燃ガスの除去方法および装置ならびにこのような装置を備えたチャンバー

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下の放射性物質を含有している、放射性物質を輸送および／または保管するに適している、受け皿、タンク、もしくはコンテナである閉鎖チャンバー中で、放射線分解により発生される可燃ガスを除去する方法であって、ここで、該チャンバー内側に、次の、

a) 該チャンバー雰囲気中に含有される酸素による、該可燃ガスを酸化していく少なくとも1種の反応の、不活性固体支持体により支持されている触媒

b) COをCO₂に酸化していく少なくとも該反応の、触媒
が入れられる、方法。

10

【請求項 2】

触媒 a) が、水素を水に酸化していく少なくとも前記反応の触媒である、請求項 1 の方法。

【請求項 3】

触媒 a) が、プラチナ（白金）、パラジウム、およびロジウムからなる群から選択される貴金属である、請求項 1 もしくは 2 の方法。

【請求項 4】

触媒 a) の不活性固体支持体が、0.1重量%未満の貴金属を支持する、請求項 3 の方法。

20

【請求項 5】

触媒 a) が稀土類であり、ランタノイド族から選択される、請求項 1～3 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 6】

触媒 a) の不活性固体支持体が、微小孔不活性固体支持体である、請求項 1～5 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 7】

前記微小孔不活性固体支持体が、可能性として活性化されたモレキュラーシーブズから選択される、請求項 6 の方法。

【請求項 8】

前記モレキュラーシーブズが、アルミナおよび活性化アルミナから選択される物質でできている、請求項 7 の方法。

【請求項 9】

前記微小孔不活性固体支持体が、少なくとも $200 \text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ、請求項 6～8 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 10】

前記微小孔不活性固体支持体が、少なくとも $300 \text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ、請求項 6～8 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 11】

触媒 b) が、CO を CO_2 に酸化していく反応の特異的な触媒である、請求項 1～10 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 12】

触媒 b) が、二酸化マンガン MnO_2 および酸化銅 CuO の混合物を含む、請求項 1～11 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 13】

触媒 a) に対する触媒 b) の質量比が、 $1/1 \sim 1/10$ である、請求項 1～12 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 14】

触媒 a) に対する触媒 b) の質量比が、 $1/2 \sim 1/4$ である、請求項 1～12 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 15】

次の、

c) 酸素源

も、前記チャンバー内側に入れられる、請求項 1～14 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 16】

前記酸素源が、固体の形もしくはガスの形である、請求項 15 の方法。

【請求項 17】

酸素源 c) が、固体過酸化物から選択される固体の源である、請求項 16 の方法。

【請求項 18】

前記固体過酸化物が、カルシウム、バリウム、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、およびこれらの混合物の過酸化物のような、アルカリおよびアルカリ土類金属の過酸化物およびこれらの混合物から選択される、請求項 17 の方法。

【請求項 19】

前記酸素源が、前記チャンバー雰囲気の一部もしくは全部を、純粋な酸素により置き換えて形成されるガスの源である、請求項 16 の方法。

【請求項 20】

吸湿性微小孔支持体 d) も、前記チャンバー内側に入れられる、請求項 1～19 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 21】

前記吸湿性微小孔支持体 d) が、モレキュラーシーブズから選択される、請求項 20 の

10

20

30

40

50

方法。

【請求項 2 2】

前記モレキュラーシーブズが、アルミノシリケートタイプ（例えば、式 $\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}]\text{XH}_2\text{O}$ 、式中、X が 27 までであり、もしくは、無水物 28.5 重量%を有する）の材料から選択される材料でできている、請求項 2 1 の方法。

【請求項 2 3】

前記吸湿性微小孔支持体が、少なくとも $200\text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ、請求項 2 0 ～ 2 2 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 2 4】

前記吸湿性微小孔支持体が、少なくとも $300\text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ、請求項 2 0 ～ 2 2 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 2 5】

触媒 a)、触媒 b) を支持している、前記微小孔不活性固体支持体が、離散した部品に碎かれている、請求項 6 ～ 1 0 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 2 6】

離散した前記部品は、結晶、ビーズ、もしくは顆粒の形態である、請求項 2 5 の方法。

【請求項 2 7】

前記吸湿性微小孔支持体 d) が離散した部品に碎かれている、請求項 2 0 ～ 2 4 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 2 8】

離散した前記部品は、結晶、ビーズ、もしくは顆粒の形態である、請求項 2 7 の方法。

【請求項 2 9】

前記酸素源 c) が、離散した部品に碎かれている、請求項 1 7 の方法。

【請求項 3 0】

離散した前記部品は、結晶、ビーズ、もしくは顆粒の形態である、請求項 2 9 の方法。

【請求項 3 1】

離散した前記部品が、外装直径 $2\text{ mm} \sim 20\text{ mm}$ を有する、請求項 2 5 ～ 3 0 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 3 2】

触媒 a)、触媒 b) のうちの少なくとも 1 つが、テキスタイル外装、ストレーナー、金属グリッド、もしくは有孔受け皿のような、少なくとも一部透過性である少なくとも 1 つの受け皿に、混合もしくは個々に入れられる、請求項 2 5、2 6、3 1 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 3 3】

触媒 a)、触媒 b)、酸素源 c) および吸湿性微小孔支持体 d) のうちの少なくとも 1 つが、テキスタイル外装、ストレーナー、金属グリッド、もしくは有孔受け皿のような、少なくとも一部透過性である少なくとも 1 つの受け皿に、混合もしくは個々に入れられる、請求項 2 5 ～ 3 1 のいずれか 1 項の方法。

【請求項 3 4】

触媒 a) および触媒 b) が混合され、酸素源 c) および吸湿性微小孔支持体 d) が分離される、請求項 3 3 に記載の方法。

【請求項 3 5】

有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下の放射性物質を含有している、放射性物質を輸送および／または保管するに適している、受け皿、タンク、もしくはコンテナである閉鎖チャンバー中で、放射線分解により発生される可燃ガスを除去していく装置であって、

該チャンバー雰囲気中に含有される酸素により、該可燃ガスを酸化していく少なくとも 1 種の反応の、不活性固体支持体により支持されている、触媒 a) および

CO を CO_2 に酸化していく少なくとも該反応の、触媒 b) を含む、装置。

10

20

30

40

50

【請求項 36】

さらに、酵素源 c)、および／または、吸湿性微小孔支持体 d) を含む、請求項 35 の装置。

【請求項 37】

放射性物質を輸送および／または保管するに適している、受け皿、タンク、もしくはコンテナであり、放射線分解により、可燃ガスを発生可能な、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下の放射性物質を含有可能な閉鎖チャンバーであって、更に、可燃ガスを除去していくための、請求項 35 または 36 で定義された少なくとも 1 つの装置を含有している、閉鎖チャンバー。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、放射性物質を含有している閉鎖チャンバー中の、水素のような可燃ガスを除去していく方法および装置に関し、放射線分解によりこのようなガスを発生し得る固体もしくは液体の有機化合物および可能性として水の存在下であり、あるいは、該放射性物質が、このタイプの化合物および可能性として水を含む場合である。

【0002】

本発明は更に、有機化合物および可能性として水の存在下に放射性物質を輸送もしくは保管するのに適している、受け皿、タンク、もしくは容器のような、あるいは、このタイプの部品を含んでいる閉鎖チャンバーに関し、該チャンバーは、可燃ガスを除去していくためのこのような装置を備えている。

20

【0003】

本発明は、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、または、有機化合物および可能性として水の存在下に放射性物質を含有している如何なる閉鎖チャンバーにおいても、使用され得る。非限定例として、これら放射性物質は、核反応炉用燃料元素を製造もしくは処理していくための設備からの、あるいは、このような反応炉から出てくる産業廃棄物であってよい。

【背景技術】

【0004】

核反応炉用燃料元素を製造していくための設備のような核施設は、ある量のスクラップ、いわゆる<<産業廃棄物>>を発生する。この産業廃棄物は、モーター部品、フィルター、金属スクラップ、ラバー、ガラス等のような、非常に広く種々の対象および物質を含むことがある。この廃棄物は、紙、木、綿のようなセルロース主体の、あるいは、ビニルもしくはポリウレタンでできたパッキングバッグ、覆い、手袋、および、ポリマー物質でできた雑多な対象のようなプラスチックの形の有機物をも含有することがある。全てのこれら廃棄物は、水および有機液体（油、炭化水素等）のような、少量の液体をも含有することがある。全てのこれら廃棄物は、これら自体が放射性物質を構成し、これはこれらが、該施設中での滞在の間に活性化された金属パーツ、または、該施設中での使用の間に放射性ウランもしくはプルトニウム粉末により汚染された有機物もしくは他の物質からなるからである。

30

40

【0005】

産業廃棄物は定期的に、処理センターおよび保管センターへと排出される。これらの場所への運搬は従って、如何なる他の放射性物質の輸送とも同じくらい多くの注意を必要とする。特に、産業廃棄物は、公共の利益面での、放射性物質輸送に関する規制の要件に見合っているコンテナ（容器）もしくはキャスク中でパッキングされ輸送されねばならない。

【0006】

実際、輸送は一般的に、産業廃棄物を、ドラム、ビン、もしくはカニスターのような受け皿中にパッキングして、これら受け皿をキャスクに入れて、実施される。

50

【0007】

産業廃棄物輸送は、輸送される物質のタイプと関連した、特異的な困難を引き起こす。実際、上で説明したように、この産業廃棄物はしばしば、固体もしくは液体残渣の形の有機物、または他に、ウランもしくはプルトニウムにより汚染されたある量の水を含有し、これらは放射能を、これら物質に付与している。実際、ウランおよびプルトニウムは、 α 粒子のエミッターであり、これらは、有機分子を開裂させる特異的な特性を持ち、一酸化炭素、二酸化炭素、酸素、および窒素のようなガス化合物、ならびに、可燃ガスを放出する。このメカニズムはいわゆる＜＜放射線分解＞＞であり、結果的に、炭素および水素を含有しているプラスチックおよび炭化水素中に含まれているもののような有機化合物分子の開裂、あるいは、水素の発生を伴う水分子の開裂となる。

10

【0008】

可燃ガスの、特に水素の、放射線分解による発生は主に、産業廃棄物が相対的に限られた容積の閉鎖チャンバー中に閉じ込められる場合の問題を引き起こす。実際、放射線分解ガスは次いで、閉じ込められた容積中に放出され、こうして、もし廃棄物タイプおよび放射強度がこれらのガスの重篤な発生を引き起こすと、高濃度可燃ガスが急速に到達されることがある。

【0009】

この問題は特に、輸送の間に重大であり、輸送力を最適化させるために、多数の廃棄物受け皿が一般的に同一キャスクに入れられるとの事実による。実際、このことは、廃棄物および受け皿から逃れる可燃ガスのための、キャスク中で利用できる何もない（自由な）空間を減らしてしまう帰結を持つ。

20

【0010】

廃棄物コンテナ受け皿自体がしばしば、あるタイトさ（緻密さ）を提示することも、見受けられることがあるが、これは、シールを用いて提供され得るクリンプされた蓋により、閉じられるからである。この場合、可燃ガスが好ましくは、該受け皿各々内に存在している残りの何もない（自由な）空間中で蓄積する。これらの容積も非常に狭いので、このことは、該コンテナ受け皿自体中での高濃度の可燃ガスに至り得る。

【0011】

一般的に、放射線分解により発生される可燃ガスは、空気のような他のガス存在下に置かれる場合、その濃度が限界、いわゆる＜＜燃焼限界＞＞を超える場合、爆発性混合物を形成する。「燃焼限界」は、燃焼ガスのタイプにより、および、温度および圧力の条件により、変動する。水素の場合、空気中でのその燃焼限界は、約4%である。このことは、もし空気中での水素濃度がこのレベルを超えると、熱源もしくはスパーク（火花）が、この混合物を発火させるのに、および、閉じ込められた空間中での暴発に充分となり得ることを意味する。

30

【0012】

種々の研究および観察が、水素保有成分を含んでいる放射性物質を含有している閉鎖チャンバー中での放射線分解により発生される水素のような可燃ガスの濃度が時々、数日後、約4%の値に到達し得ることを示している。この状況は特に、産業廃棄物が強い α 粒子を発し、数多くの有機分子を含有する場合に当たる。

40

【0013】

実際、キャスクにとって、開けられる前の遙かに長い時間、閉じたままであることは、よくあることである。このことは、事故のリスクを引き起こし、これは、衝撃もしくは摩擦により引き起こされるスパークが、キャスクのチャンバー中での、もしくは、廃棄物で満たされた受け皿中での輸送の間に、発生されることがあるからである。このことにおいて結局、発火もしくは爆発が、キャスク全体の内容物に拡がる恐れがあり、公共の利益への深刻な事故のリスクを暗示している。比肩できるリスクが、もしキャスクがその輸送中に事故的な状況の火事に陥れば、存在する。更に、事故のリスクが、キャスクを開けて受け皿を荷下ろしする最終操作の間に、および、これらを最終的に開ける間に、隠れている。実際、これらの操作は、数多くの取り扱い操作を必要とし、これらは潜在的に、危険で

50

ある。これゆえ特に、水素保有化合物を含んでいる放射性物質を含有するのに使用される如何なる閉鎖チャンバー中での可燃ガスの蓄積リスクをも考えに入れるのが、重要である。

【0014】

放射性廃棄物輸送キャスクのような閉鎖チャンバー中の水素のような可燃ガスを除去していく1手法は本質的に、酸素と水素との水への再結合触媒（触媒的水素再結合剤）の、チャンバー中への導入に基づき、これとの接触時に、水素が、その空隙の空气中に存在する酸素と結合し、その触媒的な水素酸化メカニズムにより、水を形成する。

【0015】

この手法を実行に移している装置が例えば、EP-A-0 383 153およびEP-A-0 660 335において記載されている。 10

【0016】

文献EP-A-0 383 153は、放射性廃棄物保管受け皿中の内圧を減らしていく装置を記載している。この装置は、核廃棄物保管受け皿の壁もしくは蓋の開口部に入れられたチャンバーを含む。このチャンバー内側が、触媒を受け取り、焼結金属栓が入れている該保管受け皿内側と連絡している開口部を含む。該触媒は、金属製品、水蒸気に対して透過性の板、もしくは、焼結金属蓋により、外側から隔てられている。

【0017】

該保管受け皿中で形成された水素は、該焼結金属栓を通過し、空气中的酸素により該水素が水に酸化される該触媒に到達する。 20

【0018】

使用される該触媒は、貴金属、例えばパラジウムを、不活性支持体、例えばアルミナ上を含む。

【0019】

この文献において、周りの空気を含んでいる外部酸素源の使用がなされ、これはただ、密封された輸送キャスクの気密に閉じられたチャンバーに関してだけ、特徴的である。

【0020】

文献EP-A-0 660 335は、廃棄物保管タンク中の過圧を抑えていくための装置、特に、水素を発生している放射性廃棄物を記載し、ここでは、水素の酸素との再結合触媒および乾燥剤が、該保管タンク内側に入れられ、破裂盤を介してその環境と連絡している閉鎖風袋に入れられている。 30

【0021】

該風袋の内側に、水蒸気に対して透過性の2枚の分離シートが設けられ、この下に、2層の乾燥剤が置かれている。

【0022】

第1の実施形態において、2つのグリッド（取っ手）が、該再結合触媒を支持しており、該分離シートの上に載せられている。

【0023】

第2の実施形態において、1層の酸化剤が、該分離シートの上に載せられ、これらのガスに対して透過性の分離シートにより、その場所に保たれる。 40

【0024】

該乾燥剤は例えば、シリカゲル、モレキュラーシーブズ、例えば硫酸銅のような脱水された錯体、塩化カルシウム、硫酸マグネシウム、もしくは五酸化二磷のような吸湿性化学物質から選択され、可能性として、支持体上にある。

【0025】

該再結合触媒は特に、プラチナ（白金）もしくはパラジウムでコーティングされた触媒から選択される。この装置において、この再結合剤は、一旦このチャンバー中の全酸素が消費されてしまうと、働かなくなる。

【0026】

更に、これらの装置および方法は、触媒的水素再結合剤を使用するのであるが、特に該 50

チャンバーが炭素保有有機化合物を含有する場合、より低い効率を示すとのよくある特徴を持つことが観察されている。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0027】

これゆえ、有機化合物のタイプおよびその炭素含量に関わらず、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質を含有している閉鎖チャンバー中の可燃ガス、特に水素を除去していく方法および装置を求める必要性が存在する。

【0028】

可燃ガス、特に、水素の除去を、長期に亘り、実際には現実的に無限の期間、保証するために働く閉鎖チャンバー中の可燃ガスを除去していく方法および装置を求める必要性も、存在する。

10

【0029】

簡単で、信頼でき、安全で、使い易く、長引いてコストのかかる手順を必要とせず、広く種々の条件下、つまり、中でも：

一酸化炭素および二酸化炭素のような酸化物のような他の放射線分解ガス存在下

この照射のタイプおよび強度に関わらない照射下

可能性としてマイナスである種々の温度における

水素のような可燃ガスの効果的な除去を保証する、閉鎖チャンバー中の可燃ガスを除去していく方法および装置を求める更なる必要性が、存在する。

20

【0030】

本発明の目的は、中でも、上でリストアップされた全必要性に見合う方法および装置を提供することである。

【0031】

本発明の更なる目的は、先行技術の方法および装置の欠点、限界、欠陥、および不利を提示しない方法および装置を提供することであり、文献E P - A - 0 3 8 3 1 5 3およびE P - A - 0 6 6 0 3 3 5において記載されたような、先行技術の方法および装置により引き起こされたこれらの問題に対する解決を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0032】

30

この目的および他が、本発明により達成され、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下に放射性物質を含有している閉鎖チャンバー中で、放射線分解により発生される可燃ガスを除去していく方法により、以降が、該チャンバー内側に入れられる。

a) 該チャンバーの雰囲気中を含有される酸素により、該可燃ガスを酸化していくための、不活性固体支持体により支持された少なくとも1種の反応触媒

b) COをCO₂に酸化していくための、少なくとも該反応の触媒

【0033】

該チャンバーの雰囲気中存在している酸素による、該可燃ガスの酸化反応は一般的に、そして本質的に、水素を水に酸化していく反応である。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0034】

好ましくは、触媒a)は少なくとも、水素を水に酸化していく反応触媒である。

【0035】

触媒a)は、不活性固体支持体により支持され、第1の活性な製品であり、該チャンバー内側の分子、有機化合物、および可能性として水の放射線分解により発生される該可燃ガスの、特に水素の、連続除去を可能ならしめる。

【0036】

この除去は、該チャンバーの雰囲気中存在する酸素を用いて、該可燃ガスを酸化していく反応により、特に該チャンバーの雰囲気中の酸素と水素の再結合反応により、達成さ

50

れ、水を生成する。

【0037】

この酸化反応の触媒 a) は、不活性固体支持体により支持され、貴金属であり得、有利に、プラチナ（白金）、パラジウム、およびロジウムからなる群から選択される。

【0038】

該貴金属は一般的に、0.1重量%より低い量で存在している。

【0039】

この酸化反応の触媒 a) は、稀土類であってもよく、有利に、ランタンのようなランタノイド族から選択されてくる。

【0040】

触媒 a) の支持体は、不活性固体支持体である。

【0041】

不活性支持体とは、該チャンバー中存在している化合物、該チャンバーの雰囲気、および他の活性生成物と、化学的に反応しない支持体を意味する。

【0042】

好ましくは、触媒 a) の支持体は、微小孔不活性固体支持体である。

【0043】

この微小孔支持体は一般的に、活性化され得るモレキュラーシーブズから選択される。

【0044】

用語「活性化された」とは、この技術分野において汎用される用語であり、これは、アルミナのようなモレキュラーシーブズを形成している化合物が、特にその比表面積を増やすための処理、特に熱処理済みであることを意味する。

【0045】

このモレキュラーシーブズは好ましくは、アルミナおよび活性化アルミナから選択される物質でできている。

【0046】

該微小孔不活性固体支持体は一般的に、大きな比表面積、つまり、一般的に少なくとも $200\text{ m}^2/\text{g}$ 、好ましくは少なくとも $300\text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ。

【0047】

触媒 b) は、第2の活性な製品であり、COをCO₂に酸化していく反応を触媒する。好ましくは、触媒 b) は、COをCO₂に酸化していく反応の特異的触媒である。

【0048】

「特異的」とは、b) により触媒されるCOのCO₂への酸化の速度論が、a) により触媒される速度論よりも、遙かに速いことを意味する。

【0049】

好ましくは、触媒 b) が、二酸化マンガンMnO₂ および酸化銅CuOの混合物を含む。

【0050】

本発明による方法は、2種の活性な製品、特定の触媒 a) および b) の組み合わせを使用し、これは全く、特に文献EP-A-0 383 153およびEP-A-0 660 335により代表されるような先行技術において記載されていない。

【0051】

本発明による方法は本質的に、活性な製品、触媒 a) および b) のこのような特定の組み合わせの使用により、上でリストアップした必要性および要件に見合い、先行技術の方法により引き起こされた問題に対する解決を提供する。特に、本発明者らは、先行技術の方法の効率が実質的に、一酸化炭素COのような他の放射線分解ガスの存在下に低下されていることを実証していくのに成功しており、この効率における低下は、一酸化炭素COによる、パラジウムのようなH₂酸化触媒 a) の被毒化により説明される。

【0052】

従って、可燃ガス酸化触媒を、COのCO₂への反応触媒 b) と組み合わせると、驚く

10

20

30

40

50

べきことに、可燃ガスを酸化していくための触媒 a) の、CO による被毒化を防ぐのに成功する。触媒 b) は、酸化により、一酸化炭素の連続除去を確実化し、二酸化炭素を生成させ、これは、触媒 a) の被毒化の問題を引き起こさない。

【0053】

先行技術においてはいずれも、その触媒の効率における低下が基本的に、該チャンバー中の CO の存在から結果来たことを、暗示する傾向になかった。先行技術は、当業者が、この技術分野において汎用される再結合剤のような触媒 a) と、特定の触媒 b) を関連付けるに至らせてしまう示唆を、全く含まなかった。

【0054】

本発明による方法は、効果的に、非常に長期に亘り、仮想的に本当に無限の期間、本閉鎖チャンバー中存在している水素のような可燃ガスを除去するよう働く。特に、もし、廃棄物が、CO および水素両方を放出しがちな炭素および水素を含んでいる有機化合物を含有すれば、該チャンバー中に存在している廃棄物に関わらず、非常に高い効率を保つ。本発明による方法は完全に、水素に加えて例えば CO、CO₂ 等も包含する種々の放射線分解ガスの存在下に、作動する。

10

【0055】

本発明による方法は同様に、広範な温度において、特にマイナスの温度において、照射下に、その性質に関わらず、完全に作動する。

【0056】

任意に、いつも存在しているこれら 2 種の触媒 a) および b) に加えて、酸素源 c) が、該チャンバーに入れられる。この酸素源は、任意の第 3 の活性な製品であり、該チャンバー中初期に存在していた全酸素が一旦消費されてしまうと、酸素欠乏を取り繕うよう働く。

20

【0057】

この酸素源は、ガスの形もしくは固体の形であってよい。

【0058】

もし該酸素源が固体の形であれば、一般的に、固体過酸化物から選択される。これらの化合物は酸素を、水存在下に放出し、例えば、触媒 a) による水素の酸化の間に形成される水である。これらの固体過酸化物は一般的に、過酸化カルシウム、過酸化バリウム、過酸化ナトリウム、過酸化カリウム、過酸化マグネシウム、およびこれらの混合物のような、アルカリおよびアルカリ土類金属の過酸化物ならびにこれらの混合物から選択される。

30

【0059】

もし該酸素源がガスの形であれば、一般的に、該チャンバーの雰囲気の一部もしくは一部を、純粋な酸素により置き換えていくことにより、形成される。

【0060】

任意に、吸湿性微小孔不活性固体支持体 d) も、該チャンバーに入れられる。

【0061】

該吸湿性微小孔不活性固体支持体は、第 4 の任意の活性な製品であり、水の吸収により、該チャンバーの雰囲気の水蒸気の連続低下を確実化するよう働く。温度に依り、除去される水の量は一般的に、該吸湿性微小孔支持体の 15% ~ 30% を表示する。該チャンバー中の残りの水蒸気がこうして、低い値、例えば 10% 未満 (水蒸気含量) に、該支持体の飽和まで維持される。このことは特に、該酸化反応、特に、触媒 a) により触媒される水素の酸化により生成され、アルミナのような、触媒 a) の固体支持体の微小孔中に吸収されていなかったと思われる自由な水を集めるよう働き、一般的に、その重量の 30% までの水を吸収し得る。

40

【0062】

該吸湿性微小孔支持体は好ましくは、モレキュラーシーブズから選択される。

【0063】

有利には、該微小孔不活性固体支持体 d) のモレキュラーシーブズは、アルミノシリケートタイプ (例えば、式 $\text{Na}_{1/2} [(\text{AlO}_2)_{1/2} (\text{SiO}_2)_{1/2}] \text{XH}_2\text{O}$ 、式中

50

、Xが27までであり、もしくは、無水物28.5重量%を有する)の材料から選択される材料でできている。

【0064】

該吸湿性微小孔支持体は一般的に、大きな、つまり少なくとも $200\text{ m}^2/\text{g}$ 、好ましくは少なくとも $300\text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積を持つ。

【0065】

この第4の活性な製品が特に、もし第3の活性な製品が酸素ガス源からなるのであれば、存在しているべきであることが判る。実際、この場合、触媒a)のアルミナのような支持体により吸収されていない水の存在は、該酸素源が、水の存在下にのみ酸素を放出する固体過酸化物からなる場合とは反対に、酸素を発生させるのに必要でない。

10

【0066】

好ましくは、触媒a)、触媒b)、そして可能性として、酸素源c)を支持している微小孔不活性固体支持体および任意の吸湿性微小孔支持体d)は、分散した部品、または、例えば、結晶、ビーズ、もしくは顆粒のような粒子の形を採り、粉末の形を採ってもよい。

【0067】

これゆえ、本発明の好ましい実施形態において、触媒a)、触媒b)を支持している不活性固体、好ましくは微小孔支持体、および任意の吸湿性微小孔支持体d)が、例えば、結晶、ビーズ、もしくは顆粒のような分散した部品に分けられ、一般的に約2mm～約20mmの外装直径を持っている。

20

【0068】

表記「外装直径」とは、当該部品の外装を形成している想像上の球の直径を意味する。

【0069】

活性な製品c)は有利に、粉末のような、細かく砕かれた形である。

【0070】

一般的に、活性な製品a)、b)、そして可能性として、c)およびd)が、混合もしくは別々に、少なくとも1つの受け皿に入れられ、これは少なくとも一部透過性であり、テキスタイル外装、ストレーナー、金属グリッドのようなものであり、もしくは、カートリッジのような有孔な受け皿である。

【0071】

好ましくは、活性な製品a)およびb)は、混合される。

30

【0072】

もう一方では、活性な製品c)およびd)は、分離されなければならない。

【0073】

例えば、これら活性な製品の各々を、重ねられた層の形の2つのグリッド間で分散させたり、あるいは、これら2つの義務の活性な製品a)およびb)の混合物を有する単一層を形成させることが可能であり、任意の活性な製品c)およびd)の各々が別々にパッケージされており、例えば、別々の層の形である。

【0074】

カートリッジのような幾つかの受け皿が、その交換面積を大きくするために、同一の閉鎖チャンバーに入れられ得る。

40

【0075】

触媒a)に対する触媒b)の質量比は一般的に、 $1/1 \sim 1/10$ 、好ましくは、 $1/2 \sim 1/4$ であり、この質量比は一般的に、 H_2 流速に対するCO流速の比が一般的に約 $1:11$ となるように与えられている。

【0076】

本発明は更に、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下に放射性物質を含有している閉鎖チャンバー中で、放射線分解により発生される可燃ガスを除去していく装置に関し：

a) 該チャンバーの雰囲気中を含有される酸素により、該可燃ガスを酸化していくため

50

の、不活性固体支持体により支持された少なくとも1種の反応触媒

b) COをCO₂に酸化していくための、少なくとも該反応の触媒

c) 可能性として、酸素源

d) 可能性として、吸湿性微小孔不活性固体支持体

を含んでおり、a)、b)、c)、およびd)は、上で定義されたようなものである。

【0077】

仕上げるに、本発明は更に、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下の放射性物質を含有するに適している閉鎖チャンバーに関し、放射線分解により可燃ガスを生成することが考えられ、該チャンバーは更に、可燃ガスを除去していく、前に定義したとおりの少なくとも1つの装置を含有している。

10

【0078】

本発明は、以降の詳細な説明の読解から、より良く理解され、但し例示のために与えられ非限定的であり、本明細書に添付された図面を参照している。

【0079】

本発明は、如何なる閉鎖チャンバーにも適用され、この中においては、有機化合物および可能性として水を含んでいる放射性物質、あるいは、有機化合物および可能性として水の存在下の放射性物質が入れられる。

【0080】

本発明の意味での有機化合物とは、少なくとも1炭素原子、少なくとも1水素原子、および可能性として、例えば、窒素原子、硫黄原子、燐原子、酸素原子、およびハロゲン原子から選択される少なくとも他の1原子を含んでいる化合物を意味する。

20

【0081】

本チャンバーは、本発明範囲を超えていくことがなければ、如何なる形状および寸法、ならびに、多かれ少なかれ高レベルの緻密さを持ってよい。特に、ドラムまたは円筒形状もしくは平行管形状の容器のような受け皿であってよい。更に、本チャンバーは同様に、放射性物質の関連した、輸送、保管、もしくは処理用に意図されてよい。

【0082】

更に、本閉鎖チャンバーに入れられる放射性物質は、有機化合物および可能性として水を含んでいる全ての放射性物質、もしくは、有機化合物および可能性として水の存在下の全ての放射性物質からなってもよい。

30

【0083】

一般的に、本発明はより具体的に、該有機化合物が、水素に加えて、COおよびCO₂を放出もしくは生成する、ある種のプラスチックのような化合物である場合に適用される。実際、本発明により、COが触媒a)を被毒し、効果的に触媒b)により除去され得、触媒a)の効率を保つことが、実証されている。

【0084】

非限定的な例として、該放射性物質は、核燃料元素の処理もしくは製造プラントからの産業廃棄物からなってもよい。既に述べたように、このような廃棄物は、放射性プルトニウムもしくはウランにより汚染され、水の、または、セルロース物質、プラスチック、もしくは炭化水素のような固体もしくは液体有機化合物の、あるフラクションを含有することがある。

40

【0085】

本発明によれば、少なくとも2種の活性な製品が、該放射性物質を含有している該閉鎖チャンバーに入れられる。

【0086】

これらの活性な製品のうちの1種は、以下<<活性な製品A>>と呼ばれ、該物質中存在している放射性同位元素により放出される照射の効果の下、該チャンバー中存在している酸素による連続触媒の酸化により、該チャンバーの雰囲気中での放射線分解により発生される水素のような可燃ガスを除去するようデザイン（設計）される。

50

【0087】

第2の活性な製品は、以下<<活性な製品B>>と呼ばれ、連続酸化により一酸化炭素を除去し、 CO_2 を形成するようデザイン（設計）される、活性な製品である。

【0088】

これら2つの活性な製品AおよびBは任意に、1つもしくは2つの他の活性な製品と組み合わせられてよい。

【0089】

これら2つの他の任意の活性な製品は、第3の製品を含み、これは以下<<活性な製品C>>と呼ばれ、 O_2 源を与えるようデザイン（設計）され、該チャンバー中初期に存在していた全酸素が一旦消費されてしまうと、酸素の欠乏を取り繕うよう働くものであり、そして第4の製品を含み、これは以下<<活性な製品D>>と呼ばれ、吸水性の活性な製品からなっている。

10

【0090】

活性な製品Aは、不活性固体支持体を含み、好ましくは、微小孔を有し、パラジウム、プラチナ（白金）、もしくはロジウムのような貴金属を支持している（貴金属で含浸されている）。変法として、該不活性固体支持体は、好ましくは、微小孔を有し、有利にランタンのようなランタノイド族から選択される稀土類をも支持できる（稀土類で含浸されている）。

【0091】

活性な製品Dは、吸湿性微小孔支持体からなる。

20

【0092】

活性な製品Aの不活性固体支持体は、もしこの支持体が微小孔を有すれば、任意の活性な製品Dの吸湿性微小孔支持体と両方とも、一般的に、大きな展開表面積を有するモレキュラーシーブズからなり、例えば200以上、実際には $300\text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積により定義される。

【0093】

これゆえ、もし活性な製品Aの微小孔支持体が、貴金属もしくは稀土類で含浸されていれば、該チャンバーの雰囲気中での放射線分解により発生される可燃ガス、より具体的には水素の酸化のための非常に大きな反応面積を持つ。

【0094】

活性な製品Aにおいて、貴金属もしくは稀土類が、該チャンバー中存在している酸素による、水素の連続酸化用反応触媒である。

30

【0095】

一般的に、該微小孔触媒支持体中の0.1重量%の貴金属の存在が、望まれる効果を得るよう働く。

【0096】

活性な製品Aの好ましい微小孔不活性支持体および任意の活性な製品Dの吸湿性微小孔支持体は一般的に、上で述べたように、好ましくは、活性な製品Dの微小孔支持体に関しては、式 $\text{Na}_{1/2}[(\text{AlO}_2)_{1/2}(\text{SiO}_2)_{1/2}]X\text{H}_2$ を有するアルミノシリケートの群から選択されるモレキュラーシーブズからなり、式中、Xは27までであり得、28.5%の無水物を提示し、活性な製品Aの好ましい微小孔支持体に関しては、アルミナ、好ましくは活性化されたものから選択される。

40

【0097】

活性な製品Aにおいて、その好ましい微小孔支持体の大きな比表面積が、貴金属もしくは稀土類の触媒作用を最大化するよう働く。実際、大きな反応表面積が支持体上で与えられ、非常に僅かな触媒化合物を、抑えられた体積中で使用することによる。

【0098】

該触媒を支持している（触媒で含浸されている）該微小孔不活性支持体との接触の際に、水素が、該チャンバー中の酸素と結合し、水を形成する。こうして形成された水は捕捉され、分子（レベル）の毛細管現象により、製品Aの好ましい支持体の微小孔中深く固定

50

される。例として、このような支持体は、その質量の30%までの水を吸収できる。

【0099】

過剰な水は、活性な製品Aの微小孔支持体により吸収されず、可能性として、活性な製品Dを形成している吸湿性微小孔支持体の微小孔中で捕捉される。

【0100】

このことは、放射線分解により再び分解されがちであり、除去される水素の一部を再び保っていることになる自由な水の如何なる形成をも防ぐことを可能にする。実際、該微小孔支持体中深く捕捉された水は、もしこの水が自由な水であったとした場合よりも、該チャンバーの雰囲気中で放出される照射の効果に、付されない。あるいは、もし活性な製品Dが存在しなければ、触媒a)の支持体により吸収されなかった過剰な自由な水が次いで、固体過酸化物を含んでいる活性な製品Cと反応し得、酸素の放出を引き起こす。

10

【0101】

更に、該チャンバーの雰囲気が高い湿気含量に届き得ないので、こうして実施に移された酸化方法は完璧に作動することが、観察されるはずである。より精確には、活性な製品Dの効率は、該チャンバーの雰囲気中での相対湿度約10%未満を保証するよう働く。このことは、活性な製品AおよびBを使用しての、該酸化反応の最大収率を確保する。

【0102】

活性な製品Bは、該チャンバー内側に入れられねばならないが、金属酸化物、好ましくは顆粒の形のものの混合物を含み、COの酸化によるCO₂への連続除去を可能ならしめる。

20

【0103】

好ましい製品は、二酸化マンガンMnO₂および酸化銅CuOの混合物を含む。

【0104】

二酸化マンガンMnO₂および酸化銅CuOの混合物は一般的に、製品Bの約80重量%を占める（一般的に、約66%のMnO₂および14%のCuO）。

【0105】

この活性な製品Bは、該チャンバー中存在しているガスがCOを含有する場合特に、重要な役割を演じる。実際、如何なる理論によっても結び付けられることを望むことなく、CO分子がH₂分子よりも大きいので、活性な製品Aの活性部位がCOによりブロックされることが、従って実証されている。これゆえ、触媒a)により優先的に変換されるのはCOであり、水素ではない。換言すれば、COが触媒a)の活性部位をブロックするので、水素は再結合されない。

30

【0106】

もし、触媒a)に加えて、触媒b)が該チャンバーに入れられれば、このことが、触媒a)よりも遙かに速い、COのCO₂への酸化を可能ならしめる。触媒a)の活性部位が次いで、可燃ガスの、特に水素の酸化のために、より利用できるようになる。

【0107】

活性な製品Bとして使用され得る触媒は、ZanderによりCarulite（登録商標）の下に販売されている製品である。これは、CuOおよびMnO₂を含んでいる混合物であり、特に、COのCO₂への酸化反応を触媒する。

40

【0108】

例えば、Carulite（登録商標）は、この反応を、触媒a)よりも10倍速い速度で触媒し、こうして、触媒a)が、可燃ガスを酸化していく反応に、特に、水素を水に酸化していく反応に、利用できるままになる。

【0109】

活性な製品Aに対する活性な製品Bの質量比は一般的に、1/1～1/10、好ましくは、1/2～1/4である。この比は一般的に、一般的に約1/11であるH₂流速に対するCO流速の比に関して求められ、この流速の比は、一般的に産業廃棄物により発生されるものである。

【0110】

50

活性な製品Cは任意であるが、酸素源であるとして定義される。この酸素源は一般的に、ガスの形もしくは固体の形である。

【0111】

後者の場合、一般的に、水の存在下に酸素を解き放つ過酸化物のファミリーの固体化合物である。この水は一般的に、触媒a)による水素の酸化の間に形成された水であり、触媒a)の好ましくは微小孔を有する不活性固体支持体により吸収されていないものである。

【0112】

従って、もし活性な製品Cがこのような固体過酸化物であれば、活性な製品Dを使用しないのが好ましく、こうして水が、該過酸化物と反応して酸素を解き放つのに、利用できるままとなる。

10

【0113】

該固体過酸化物は一般的に、カルシウム、バリウム、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、およびこれらの混合物の過酸化物のような、アルカリおよびアルカリ土類金属の過酸化物から、選択される。

【0114】

固体の形の該酸素源は、酸素の欠乏が考えられる場合、該チャンバー中に当初に導入される。

【0115】

該チャンバー中で容易に使用され、パッケージされるために、活性な製品A、B、C、およびDは一般的に、顆粒、ビーズ、結晶のような、離散した部品もしくは粒子の形を採る。こうして、活性な製品Aおよび可能性としてDの微小孔支持体は有利に、顆粒、ビーズ、もしくは結晶のような、小さな寸法を有する部品、粒子に碎かれる。

20

【0116】

より精確には、これら微小孔を有する支持体の部品の各々が好ましくは、約2mm～約20mmの外装直径を持つ。微小孔を有する支持体のこれら部品の各々が、活性な製品Aの場合、1種の貴金属を支持する(1種で含浸されている)。活性な製品Bは一般的に既に、碎かれた形であり、例えば、つまり、一般的に、酸化物 MnO_2 および CuO の顆粒の形である。

【0117】

30

存在している場合、活性な製品Cは、もし固体の製品であれば、一般的に、粉末の形を採る。

【0118】

微小孔を有するこれら支持体(活性な製品AおよびD)を碎くことおよび活性な製品Bの既に碎かれた特徴は任意に、より精確には以下に記載のように、該チャンバーに入れる前に、容易に、種々のタイプの受け皿中のこれら活性な製品の少なくとも1つをパッケージすることを可能にする。この碎くことは、微小孔を有する該支持体の特性の効率を最大化させるようにも働き、これは、更に活性な製品Aの支持体の酸化表面積を増加させていくことによる。実際、微小孔を有する触媒の該支持体を形成している小さな部品中で水素が拡散する場合、これら部品の全ての表面の周りで酸化される。換言すれば、全酸化表面積は、該支持体を形成している部品の全表面積の和に対応し、当該部品により占められる全体積の外側表面積よりも、遙かに大きい。

40

【0119】

同じ議論が、活性な製品Dの支持体を碎くことに適用され、その水吸収表面積を増加させる。

【0120】

結局、活性な製品Aおよび可能性としてDの支持体を小さな部品に碎くこと、活性な製品BおよびCの碎かれた特性、ならびに、大きな比表面積を有する微小孔を有する物質の使用が組み合わさって、本発明による方法を、極めて効率的にする。水素が効果的に、COのように、大きな表面積上で酸化され、形成された水が、これら微小孔を有する物質の

50

、特に活性な製品Dの支持体の毛細管特性のために、これら小さな部品中深く捕捉される。

【0121】

本発明の好ましい実施形態において、活性な製品Aの微小孔を有する支持体は、活性化アルミナ Al_2O_3 であり、小さな顆粒の形である。活性化アルミナ Al_2O_3 は、大きな比表面積を有する物質であり、 $200\text{m}^2/\text{g}$ より大きく、実際 $300\text{m}^2/\text{g}$ より大きい。最良の結果を得るには、アルミナの該顆粒は、数mmの、好ましくは約2mm～約20mmの、外装直径を持つ。活性な製品Aの支持体の場合、これら顆粒は僅かに（0.1重量%未満）、貴金属もしくは稀土類で含浸される。

【0122】

これらの条件下では、活性な製品Aの含浸される顆粒の量は、体積で1Lもしくは重量で約800gに対応しており、閉鎖チャンバーの自由な雰囲気中の400Lよりも多い水素を除去するに充分である。

【0123】

放射性物質の輸送に関わる特定の適用では、これらの物質は一般的に、前記コンテナ（容器）の内側に詰め込まれるドラムのような受け皿中でパッケージされる。これら活性な製品が次いで有利に、これら受け皿の内側に入れられる。このことは、発生される場合、水素を直接除去するよう働く。非常に少ない水素だけが従って、これら受け皿から逃れ、当該コンテナの自由な容積中で拡散し、ここでこれら活性な製品により除去され、また、この自由な容積に、少量入れられる。

【0124】

もしこれらの受け皿が密封されれば、これら活性な製品は、これら受け皿内側に独占的に、十分な量で、入れられ得る。実際、水素がこれら受け皿中で除去され、非常に僅かに当該コンテナのチャンバー中に拡散するので、当該コンテナの雰囲気中の水素濃度がそれで、いつも有意でなくなる。

【0125】

これら活性な製品の、これら受け皿中への導入が、これらの最終的な取り外し後、水素の蓄積を防ぐのを続けるよう働くことが、観察されるはずである。更に、もしこれら受け皿が当該サイト（場所）での長期間の保管用に意図されるのであれば、これら活性な製品は可能性としてリニューアルされ得、当該保管サイトで連続して、水素の除去を確実化させる。換言すれば、本発明による方法の使用は、輸送の間に閉鎖チャンバー中で発生される可燃ガスの除去に限られない。

【0126】

結論として、本発明による方法は特に、有機成分および可能性として水を含んでいる放射性物質を含有している異なるタイプのチャンバーと組み合わせて使用するのに簡単である。該チャンバーにこれら活性な製品を入れるのに必要な取り扱い操作は特に、実施するに簡単で速い。該チャンバー中で放射線分解により発生された可燃ガスの除去は有効に、保証される。更に、輸送および保管の時間が、非常に柔軟に制御され得、これは、考えられる輸送および／または保管の期間、適切な量の活性な製品を該チャンバー中に導入するので充分だからである。

【0127】

本発明が今、以降の実施例に言及しながら記載され、例示のために与えられ、非限定的である。

【実施例】

【0128】

この実施例は、本発明の方法を例示し、以降の活性な製品a)およびb)を使用している。

活性な製品a)：3mmのビーズの形の、比表面積 $300\text{m}^2/\text{g}$ を持っている、パラジウム（触媒）で含浸されたアルミナ（微小孔不活性固体支持体）

活性な製品b)：以降の化学組成を有する顆粒：

10

20

30

40

50

65% MnO_2

13% CuO

9% Al_2O_3

約10% H_2O

これら顆粒は、1～2mmのサイズである。

【0129】

このテストは、活性な製品c) およびd) を用いずに、実施された。

【0130】

このテストは、以降のように、実施された。

【0131】

上記した活性な製品a) の量25gおよび上記した活性な製品b) の量12.5g（これらの製品は個々に、パッケージされている）が、600mLの水素および53mLの一酸化炭素を含有している20Lのチャンバー（Tedlar bag）に入れられた。初期の水素濃度が、約5.6%であった。

【0132】

H_2 / CO 混合物が、以降の流速で連続して注入された。

一酸化炭素に関して 5.6 mL / 時間

水素に関して 65 mL / 時間

H_2 / CO 流速比 11.6 を表している。

【0133】

この比は、費やされた燃料の再処理により発生される圧縮された廃棄物（この平均組成は、90%のごみおよび末端品ならびに10%の産業廃棄物であった）を含有しているキャスク中で発生される H_2 および CO の流速の比の代表であり、水素および一酸化炭素の流速はそれぞれ、2L / 時間および0.18L / 時間であった。

【0134】

このテストは、95時間継続した（該チャンバー中存在している酸素の使い切りまで）。該チャンバー中の水素含量が、このテストを通じて、クロマトグラフィーにより、測定された。この含量は、このテストを通じて、1%未満（体積）のままであり、図1において示される時間の関数としての（時間） H_2 含量の曲線により、示されるとおりであった。

【図面の簡単な説明】

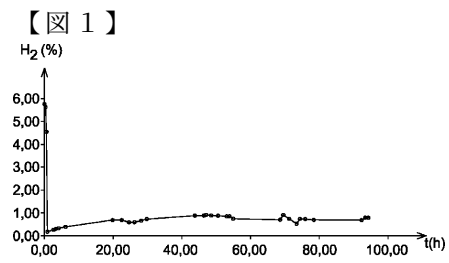
【0135】

【図1】本実施例において実施されたテストの間に、クロマトグラフィーにより測定された、時間（t、時間）の関数として、本チャンバー中での水素含量（体積%）を示すグラフである。

10

20

30



フロントページの続き

(74)代理人 100111648

弁理士 梶並 順

(74)代理人 100122437

弁理士 大宅 一宏

(72)発明者 アバディ、パスカル

フランス国、7 8 3 3 0 フォンテネ・ル・フルーリー、スカール・モンジュ 5

(72)発明者 イサール、エルヴェ

フランス国、9 2 1 7 0 ヴァンヴ、リュ・ディッシー 4 1 - 4 3

審査官 村川 雄一

(56)参考文献 特表2001-500261 (JP, A)

特開2001-228296 (JP, A)

特開2002-286893 (JP, A)

英国特許第01306240 (GB, B)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G21F 9/02

G21F 9/36

G21F 5/00

G21C 19/32

B01D 53/94