

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la  
Propriété Intellectuelle  
Bureau international



(43) Date de la publication internationale  
6 décembre 2012 (06.12.2012)

WIPO | PCT

(10) Numéro de publication internationale  
**WO 2012/164230 A1**

(51) Classification internationale des brevets :  
**B01D 59/34** (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :  
PCT/FR2012/051222

(22) Date de dépôt international :  
31 mai 2012 (31.05.2012)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :  
1154820 1 juin 2011 (01.06.2011) FR

(71) Déposants (pour tous les États désignés sauf US) : **UNIVERSITE DE RENNES 1** [FR/FR]; 2 rue de Thabor, F-35065 Rennes Cedex (FR). **CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE (CNRS)** [FR/FR]; 3 Rue Michel-Ange, F-75016 Paris (FR).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement) : **ROWE, Bertrand** [FR/FR]; 22 Chemin des Moines, F-22750 Saint Jacut De La Mer (FR). **GEORGES, Robert** [FR/FR]; 4 rue Bertrand Duguesclin, F-35390 Le Grand Fougeray (FR). **CANOSA, André** [FR/FR]; 3 allée Louise Bodin, F-35135 Chantepie (FR). **MORALES, Sébastien** [FR/FR]; 1 Contour de la Motte, F-35000 Rennes (FR).

(74) Mandataire : **WAGRET, Frédéric**; Cabinet Wagret, 19 rue de Milan, F-75009 Paris (FR).

(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible) : 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, JP, 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) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

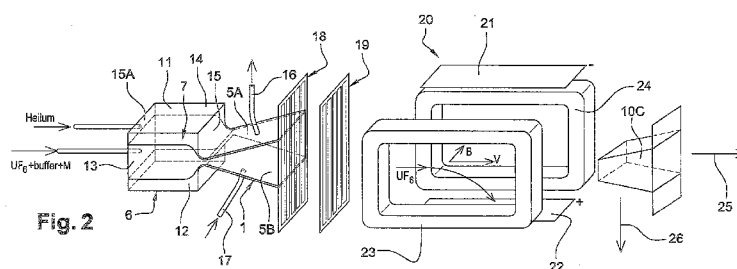
Publiée :

— avec rapport de recherche internationale (Art. 21(3))

[Suite sur la page suivante]

(54) Title : PROCESS AND DEVICE FOR SEPARATING ISOTOPES FROM A GAS FLOW

(54) Titre : PROCEDE ET DISPOSITIF POUR LA SEPARATION D'ISOTOPES A PARTIR D'UN ECOULEMENT GAZEUX



(57) Abstract : Process for the isotopic separation of at least two different isotopes of a substance in gaseous form, consisting in: converting into the form of a gas ( $\text{SF}_6$ ,  $\text{UF}_6$  or  $\text{MoF}_6$ ) the substance of interest containing the desired isotope; creating a supersonic speed stream of said gas, having laminar or slightly turbulent flow; exciting the molecules with a laser; inhibiting, by means of a laser, the nucleation of one of the isotopologues, thus forming less heavy aggregates of said isotopologue than the aggregates formed by the molecules of the other isotopologue; ionizing the molecules and aggregates of said gas; subjecting the ionized molecules and ionized aggregates of molecules to an electromagnetic field, in order to make the ionized molecules and aggregates of one of the isotopologues migrate to outside of the stream; recovering the portion of the gas stream having the highest concentration of the desired isotope.

(57) Abrégé :

[Suite sur la page suivante]

WO 2012/164230 A1



- 
- avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues (règle 48.2.h))

---

Procédé pour la séparation isotopique d'au moins deux différents isotopes d'un corps sous forme gazeuse, consistant à; Convertir sous forme d'un gaz (SF<sub>6</sub>, UF<sub>6</sub> ou MOF<sub>6</sub>) le corps d'intérêt contenant l'isotope recherché; Créer un flux à vitesse supersonique du dit gaz, à écoulement du type laminaire ou légèrement turbulent; Exciter les molécules par laser; Inhiber, au moyen d'un laser, la nucléation d'un des isotopologues, formant ainsi des agrégats moins massif dudit isotopologue que les agrégats formés par les molécules de l'autre isotopologue; Ioniser les molécules et agrégats dudit gaz. Soumettre les molécules et agrégats de molécules ionisés à un champ électromagnétique, pour faire migrer les molécules et agrégats ionisés d'un des isotopologues vers l'extérieur du flux; Récupérer la partie du flux gazeux présentant la concentration la plus élevée en isotope recherché.

PROCEDE ET DISPOSITIF POUR LA SEPARATION  
D'ISOTOPES A PARTIR D'UN ECOULEMENT GAZEUX

5

La présente invention concerne un procédé, et un dispositif pour sa mise en œuvre, destiné à séparer dans un mélange gazeux au moins un composé isotopique de l'autre ou des autres contenus dans ledit mélange.

10 Plus particulièrement, l'invention vise la séparation d'isotopes stables d'un même corps, afin d'en isoler un pour ses propriétés et caractéristiques qui le rende attractif selon les applications et utilisations envisagées.

Il existe plusieurs méthodes de séparation qui sont pour la plupart  
15 opérationnelles, basées sur d'une part la conversion sous forme de gaz du corps, et d'autre part la différence de poids atomique entre les isotopes.

L'invention concerne les méthodes dans lesquelles le gaz, après mélange  
20 éventuel avec un autre gaz, à savoir un gaz inerte comme de l'hélium, de l'argon ou de l'azote, passe dans un dispositif apte à créer un flux gazeux à vitesse supersonique qui est soumis à des moyens d'excitation et de modification chimique ou physique comme les lasers ou les faisceaux électroniques affectant davantage l'isotope recherché que l'autre ou les  
25 autres. Ensuite, les isotopes ainsi modifiés sous forme gazeuse sont, après ionisation, séparés par des moyens électromagnétiques qui assurent une migration d'un des isotopes à l'extérieur du flux gazeux aboutissant à l'enrichissement de l'isotope recherché.

30 Généralement, le flux gazeux est engendré par une tuyère, comme par exemple une tuyère dite de Laval, et les moyens d'excitation et de modification sont des lasers ou des faisceaux électroniques.

A titre d'exemple, le composé gazeux peut être du SF<sub>6</sub>, UF<sub>6</sub>, ou WF<sub>6</sub>,  
35 MoF<sub>6</sub>. Dans le cas de l'uranium, l'isotope recherché est alors l'U<sup>235</sup>; dans

le cas du soufre, l'isotope recherché est  $S^{34}$  et dans le cas du molybdène, l'isotope recherché est  $Mo^{99}$ .

5 Ainsi, le but de ces méthodes est d'enrichir en isotope recherché la partie du flux gazeux externe ou interne après séparation.

Les méthodes et dispositifs de séparation isotopique doivent concilier des contraintes contradictoires.

10 En effet, ils doivent à la fois :

- Consommer le moins d'énergie possible
- Présenter un encombrement minimal
- Permettre d'obtenir des taux d'enrichissement (teneur en isotope recherché) les plus élevés possibles
- 15 • Utiliser des quantités de gaz, donc de corps de départ, les plus faibles possibles en fonction de la quantité finale de produit enrichi désiré à un taux d'enrichissement déterminé.

Les procédés et dispositifs connus sont encore très loin d'optimiser le  
20 travail nécessaire à la séparation des espèces isotopiques. Du fait des faibles taux d'enrichissement en un seul passage du gaz dans les dispositifs communs comme les centrifugeuses, les installations doivent être conçues de manière sérielle pour obtenir des taux d'enrichissement acceptable. Ceci implique des installations de grande taille, et présentant  
25 une forte consommation d'énergie par rapport au travail thermodynamique minimal nécessaire à l'enrichissement. Le brevet FR 2 370 506 décrit un exemple de telles installations.

D'autres procédés ou dispositifs, comme celui décrit dans le brevet  
30 américain US 4 119 509, conduisent à un régime d'écoulement qui n'est pas compatible avec la séparation efficace des isotopes. En effet, ce dispositif ne permet pas d'inhiber la diffusion qui entraîne un mélange des isotopologues dans les flux gazeux, limitant fortement l'efficacité de ce procédé.

L'invention propose un procédé et un dispositif qui constituent une avancée significative dans le domaine concerné, en permettant une séparation isotopique à haut rendement, avec des quantités de gaz et une  
5 énergie raisonnables, à l'aide d'une installation de taille réduite.

A cette fin, selon l'invention, le procédé pour la séparation isotopique d'au moins deux différents isotopes d'un corps sous forme gazeuse, comporte les étapes énoncées dans la revendication 1.

10

L'étape de récupération des ions est réalisée de préférence avec recombinaison des ions.

Le gaz est par exemple du SF<sub>6</sub>, UF<sub>6</sub> ou MoF<sub>6</sub>.

15

Les molécules sont excitées par vibrations à l'aide d'au moins un laser, par exemple du type CO<sub>2</sub> dans le cas d'un gaz UF<sub>6</sub>.

Le gaz est mélangé à au moins un premier gaz inerte, comme de l'hélium  
20 ou de l'argon.

Le flux gazeux présente une vitesse supersonique.

Avantageusement, le moyen de création de l'écoulement laminaire ou  
25 légèrement turbulent est une tuyère, du type tuyère de Laval, de préférence à géométrie plane comportant :

- des parois amont en forme de convergent ;
- un col à section parallélipédique à la sortie du convergent amont ;
- 30 • un conduit divergent abouté au col, pourvu d'une section dite de sortie, la sortie correspondant à la partie évasée du conduit divergent.

On alimente la tuyère avec un écoulement gazeux comprenant d'une part un jet central ou intérieur formé d'un mélange du gaz à traiter et d'un premier autre gaz, à savoir un gaz inerte, et d'autre part un jet périphérique ou extérieur formé d'un second autre gaz, à savoir un gaz inerte.

Les deux jets sont sensiblement isolés l'un de l'autre. Dans le cas d'une tuyère de révolution, les deux jets sont concentriques.

Les premier et second gaz inertes peuvent être les mêmes, et sont choisis parmi l'hélium, l'azote, l'argon, l'hydrogène.

L'alimentation de la tuyère est réalisée par l'intermédiaire d'une chambre alimentée en gaz, et pourvue :

- d'une paroi de sortie correspondant au convergent amont de la tuyère
- d'un déflecteur interne à parois convergentes, sensiblement concentrique audit convergent amont de la tuyère, et à distance de celui-ci.

Le déflecteur interne est situé en amont du col de la tuyère ou bien se prolonge en aval jusqu'à celui-ci.

Un mélange dudit gaz et d'un premier gaz inerte circule dans la partie intérieure du déflecteur et un écoulement d'un second gaz inerte est prévu entre le déflecteur et le convergent de la tuyère. Ces deux gaz sont indépendants et proviennent de deux réservoirs séparés.

Après détente dans le divergent de la tuyère, on fait migrer une partie des isotopes présents de l'écoulement intérieur vers l'écoulement extérieur.

30

La tuyère est généralement de forme plane de manière à augmenter le rendement du procédé par la minimisation du flux massique des espèces passant dans les couches limites et la maximisation du flux massique des

espèces passant dans le cœur isentropique où se produit l'absorption sélective du rayonnement laser.

La tuyère peut présenter les exemples de dimensions suivants :

- 5       • Rayon de courbure du convergent de la tuyère : 260 mm
- Rayon de courbure du déflecteur interne : 250 mm
- Hauteur du col : 100 mm
- Longueur du divergent aval 2000 à 3000 mm
- Largeur de la section de sortie du divergent : 1200 mm

10

La section de sortie du déflecteur interne est positionnée au niveau du col de la tuyère ou décalée de quelques millimètres en amont dudit col.

- Ces dimensions correspondent à une vitesse de Mach 4, qui elle-même
- 15       correspond à une température de 40°K au cœur de l'écoulement. Ceci permet une sélectivité correcte de l'absorption du rayonnement laser et donc garantit un taux d'enrichissement élevé.

- La largeur de la section de sortie du conduit est comprise entre 5 et 20
- 20       fois la largeur du col et de préférence proche de 7 fois la largeur du col.

La longueur du conduit divergent est au moins de 2000 mm et/ou comprise entre 20 et 30 fois la hauteur du col.

- 25       Dans le cas d'une forme de révolution, la tuyère présente les exemples de dimensions suivants lorsqu'elle est de révolution :

- Diamètre de courbure du déflecteur : 250 mm
- Diamètre de courbure du déflecteur interne : 250 mm
- Diamètre du col : 100 mm
- 30       • Longueur du divergent aval 1680 mm
- Diamètre de la section de sortie du conduit : 340 mm

Le diamètre de la section de sortie du conduit est compris entre 3 fois et 6 fois le diamètre du col, et de préférence entre 3 fois et 4 fois

La longueur du conduit divergent est au moins de 1300 mm, et/ou comprise entre 13 fois et 30 fois le diamètre du col.

- 5 Que ce soit dans le cas d'une tuyère plane ou d'une tuyère de révolution, la vitesse de diffusion  $V_d$  est très inférieure à la vitesse moyenne  $V_q$  dans la section considérée de la tuyère  $V_d = D/e$ , avec « D » coefficient de diffusion et « e » la distance séparant les parois en regard des déflecteurs externe et interne.

10

Des moyens pour inhiber ou réduire les phénomènes de nucléation des molécules du flux gazeux, sont prévus dans le conduit ou dans l'écoulement extérieur à la tuyère, et de préférence, lesdits moyens comportent au moins un laser, par exemple du type à infrarouge, dont la  
15 direction lumineuse est transversale au flux gazeux.

Des moyens de refroidissement peuvent être utilisés afin de réduire la viscosité des gaz en parois et donc le débit du gaz inerte porteur. Ces moyens de refroidissement donnent des températures du flux gazeux  
20 entre 4°K et 80°K, et de préférence entre 4°K et 10°K.

Le procédé est basé sur l'uniformité de l'écoulement en son cœur ce qui signifie que les conditions de pression et de température restent inchangées dans le sens de l'écoulement sur des longueurs de quelques  
25 mètres et transversalement sur plusieurs dizaines de centimètres. Les formes des tuyères décrites permettent de valider ces conditions.

L'invention sera bien comprise à la lumière de la description qui suit se rapportant à des exemples illustratifs mais non limitatifs, en regard des  
30 figures dans lesquelles :

La figure 1 est un schéma de principe de deux des éléments du dispositif de l'invention, à savoir :



- Une chambre amont alimentée en deux flux de gaz séparés, respectivement interne et externe provenant de deux réservoirs sources séparés, et en aval de cette chambre
- Une tuyère du type dite de Laval ;

5

La figure 2 est vue schématique en perspective de l'ensemble du dispositif de l'invention ;

La figure 3 est un schéma en coupe du moyen de « pompage différentiel » ;

10

La figure 4 est un schéma en coupe d'un exemple de tuyère ;

La figure 5 est une coupe schématique partielle, dans un plan vertical, de l'amont de la tuyère et des déflecteurs ;

15

La figure 6 est une courbe montrant de façon schématique les variations de concentration des agrégats en fonction du nombre de molécules dans les agrégats, avec et sans laser infra rouge, obtenues en aval du faisceau laser.

20

On a représenté sur la figure 1 une vue schématique de principe de deux éléments du dispositif de l'invention correspondant chacun à une étape du procédé de l'invention.

25

La description qui suit se réfère à une application particulière, donnée à titre illustratif mais non limitatif, de la séparation isotopique de deux isotopes de l'uranium, à savoir  $U^{235}$  et  $U^{238}$ , à partir d'un composé gazeux de l'uranium,  $UF_6$ .

30

Il est entendu que l'invention n'est pas limitée à ce type de composé et peut être appliquée à un autre mélange gazeux, par exemple  $SF_6$ .

Le dispositif de l'invention tel que décrit ci-dessous en regard des figures, vise à réaliser une séparation par enrichissement isotopique, des deux isotopes, pour utilisation de celui recherché tel que  $U^{235}$ .

- 5 Les notions « d'amont » et « d'aval » se réfèrent à la direction d'écoulement des gaz circulant et contenant l'isotope recherché.

Le dispositif réalise un écoulement du gaz à vitesse supersonique à l'aide d'un dispositif appelé tuyère de Laval, référencée 1, constitué d'un  
10 caisson à section transversale (transversalement à l'écoulement gazeux) rectangulaire de section croissante, et dont les dimensions, en sortie de tuyère, sont par exemple : hauteur entre 500 mm et 1200mm, de préférence de l'ordre de 1000 mm, et largeur entre 500 et 1200mm, de préférence de l'ordre de 1000 mm.

15

La tuyère 1 comporte une section amont d'alimentation 1A, une section centrale 1B et une section aval 1C.

La section amont 1A comporte un convergent à section arrondie  
20 comprenant des plaques arrondies supérieure 3A et inférieure 3B.

La section centrale 1B est constituée d'un col formé de deux plaques parallèles supérieure 4A et inférieure 4B.

- 25 La section aval 1C de la tuyère comporte deux plaques planes supérieure 5A et inférieure 5B formant un divergent.

Il est entendu que les sections amont 1A, centrale 1B et aval 1C  
30 comportent aussi chacune des parois verticales sur les côtés, mais qui ne sont pas visibles sur la coupe schématique de la figure 1.

En amont de la tuyère 1 est prévu un dispositif 6 d'alimentation de la tuyère en gaz destiné à être traité, et plus particulièrement de manière à

engendrer un jet de mélange de gaz présentant des caractéristiques particulières dans la tuyère 1.

Le dispositif d'alimentation comporte une chambre 6, par exemple  
5 parallélépipédique, pourvue d'une ouverture de sortie constituée par le convergent à section arrondie 3A, 3B de la section amont 1A de la tuyère 1.

A l'intérieur de la chambre 6 est prévu un déflecteur 7 formé de deux  
10 plaques courbes respectivement supérieure 7A et inférieure 7B.

Chaque plaque déflectrice 7A, 7B comporte successivement :

- une partie amont convergente, formée de deux plaques respectives supérieure 8A et inférieure 8B
- 15 - une partie aval divergente, formée de deux plaques respectives supérieure 9A et inférieure 9B.

Les plaques convergentes 8A, 8B ont des courbures très proches ou  
similaires à celles des plaques amont 3A et 3B qui forment à la fois  
20 l'entrée de la tuyère 1 et la sortie de la chambre 6. La distance séparant les plaques 8A, 8B des plaques 3A, 3B est de préférence constante. Les plaques sont soudées bord à bord. Des détails sont donnés ci-après au regard de la figure 4. Chaque plaque présente une forme courbe pourvue  
25 d'un point d'inflexion correspondant à la jonction de la partie amont avec la partie aval.

La chambre 6 est alimentée :

- d'une part en gaz à traiter, tel que  $UF_6$  , mélangé à un premier autre gaz, ou gaz tampon, tel que de l'hélium ou de l'hydrogène par  
30 exemple, dans l'espace intérieur du déflecteur 7 ;
- d'autre part en un second autre gaz, tel que de l'hélium, dans l'espace entre les parois respectives du déflecteur et de la chambre ;

Ces deux flux gazeux proviennent de deux réservoirs sources séparés (non représentés et connus en eux-mêmes) et les déflecteurs 7A et 7B sont conçus de façon que lesdits gaz ne se mélangent pas avant le col de la tuyère.

5

L'ensemble des gaz issus de la chambre 6 pénètre dans la tuyère 1 par le col 4A, 4B.

Le jet de gaz issu de la tuyère 1 pénètre dans une chambre de détente aval (non représentée sur les figures 1 et 2 et visible sur la figure 3). Dans cette chambre de détente, le jet de gaz est soumis à des moyens d'excitation (par laser) et des moyens d'ionisation (par laser), lesdits moyens d'excitation n'étant pas représentés sur la figure 1 et représentés sur la figure 2.

15

Ensuite, le flux gazeux passe au travers d'un dispositif de déviation magnétique (non représentés et décrits en regard de la figure 2), pour dévier les molécules de gaz recherché tel que par exemple  $U^{235}$  et enrichir le centre du flux en molécules de gaz sans intérêt ou de moindre intérêt.

20

Sur la figure 2 on a représenté en perspective l'ensemble du dispositif selon l'invention pour la mise en œuvre du procédé, sous forme schématique et reprenant certains des éléments de la figure 1.

La chambre 6 et le déflecteur 7 visent à engendrer un écoulement à vitesse supersonique dans la tuyère, sous la forme d'un jet central, de forme planaire ou de révolution, suivant la géométrie de la tuyère, entouré d'un jet dit périphérique annulaire, comme décrit ci après.

La chambre 6 est représentée par un cube de manière schématique, comprenant des parois supérieure 11, inférieure 12, latérales 13 et 14, frontale 15 (en aval) et arrière 15A (amont).

Selon un mode préféré, les parois divergentes 5A et 5B de la tuyère sont refroidies par cryogénie, à l'aide de moyens connus en eux-mêmes tels que des conduits 16 et 17 connectés à une circuiterie de circulation de fluide cryogénique et débouchant dans les parois 5A, 5B, la source de  
5 liquide cryogénique n'étant pas représentée et connue en elle-même.

A la sortie de la tuyère 1 sont prévus des dispositifs aptes à exciter les particules du mélange gazeux sortant de la tuyère. Ces moyens sont par exemple des lasers du type infrarouge connus en eux-mêmes et  
10 référencés 18.

Le flux de gaz, après l'étape d'excitation, passe au travers de moyens d'ionisation 19 constitués de faisceaux d'électrons ou de lasers à excimère, c'est-à-dire un laser à gaz mélangé avec un halogène. Sous  
15 l'effet d'une stimulation électronique, se forme un excimère qui en retombant à son état fondamental, émet un rayonnement laser de longueur d'onde déterminée. Ce type de laser permet d'atteindre à l'heure actuelle dans l'ultra violet du vide des longueurs d'onde inférieures à 200 nm.

20

Ensuite, le flux de gaz pénètre dans un ensemble de séparation isotopique 20 basé sur les propriétés de diffusion forcée sous champs électromagnétiques des composés du mélange gazeux.

25 Le dispositif de séparation magnétique 20 comporte deux plaques rectangulaires 21 et 22 de polarités respectives « - » et « + », parallèles à la direction de l'écoulement gazeux, ainsi que deux aimants supraconducteurs 23 et 24 de formes annulaire et connus en eux-mêmes, et situés de part et d'autre du jet, suivant deux plans parallèles, et  
30 transversaux aux plaques polarisées 21 et 22.

A la sortie du dispositif de séparation magnétique 20, est prévu un dispositif 10 de diffusion dit « à pompage différentiel », relié en aval à des

pompes (connues en elles mêmes et non représentées), par la flèche d'écoulement 25.

Le dispositif 10 est décrit en regard de la figure 3, et comporte deux conduits de pompage séparés 10A et 10 B et un diffuseur central 10C. Le rôle du diffuseur central est de permettre une recompression du flux gazeux et donc l'utilisation de pompe de taille inférieure. Le pompage dit « différentiel » est créé par des pompes différentes en aval des flèches d'écoulement 25 et 26, ce qui permet de maintenir efficacement la basse pression requise pour une bonne qualité d'écoulement à vitesse supersonique. Le pompage en aval de la flèche d'écoulement 26 aspire le surplus du flux dans les couches limites de l'écoulement à l'extérieur du diffuseur 10C.

La figure 4 montre de façon schématique et à plus grande échelle la tuyère et sa chambre amont 6. Les éléments communs avec la représentation de la figure 1 portent les mêmes références.

Dans la chambre 6, la flèche « f » représente la direction d'écoulement du mélange interne  $\text{SF}_6$  et le gaz tampon (He). Les flèches « g » et « g' » représentent l'écoulement externe d'hélium.

La forme de la tuyère et ses dimensions sont calculées sur la base des éléments et paramètres suivants : température, pression, nature et proportion des gaz mélangés (dans la partie d'introduction de la chambre amont 6 de la tuyère, par exemple  $\text{SF}_6$  plus gaz tampon).

La figure 5 donne un exemple particulier, non limitatif, de dimensions de la tuyère.

30

Les parois déflectrices convergentes aval 9A et 9B présentent un rayon de courbure R1 de 26 mm, tandis que les parois 4A et 4B convergentes amont de la tuyère présentent un rayon de courbure de R2 de 25 mm. Le

col 4A, 4B de la tuyère présente une dimension « h » en hauteur, transversalement à l'écoulement, de l'ordre de 10 mm.

La distance séparant les plaques déflectrices convergentes 9A, 9B du convergent 3A, 3B de la tuyère 1 est la plus faible possible, de l'ordre de h/10, tout autre paramètre étant égal. Enfin, la distance « l », suivant la direction d'écoulement, entre l'extrémité aval des plaques déflectrices 9A et 9B d'une part, et le début du col 3A, 3B d'autre part, est par exemple de 18 mm.

10

On peut en variante (non représentée) réaliser la tuyère et le déflecteur amont (dans la chambre 6) sous la forme d'un corps de révolution (par exemple conique) dont l'axe correspond à la direction de l'écoulement du flux gazeux.

15

La tuyère présente une forme et des dimensions telles :

- que l'écoulement en aval du col présente une vitesse supérieure à Mach 2, et de préférence de l'ordre de Mach 3 ou 4 ; et
- qu'il n'y ait pas de diffusion depuis l'écoulement extérieur « E » vers l'écoulement intérieur « I » dans la tuyère, entre les parois divergentes 5A, 5B, les deux écoulements étant délimités par deux surfaces inférieure et supérieure symbolisées en pointillés « a » et « b » sur la figure 4.

20

Le débit total de gaz périphérique (hélium) à l'extérieur des deux parois déflectrices 9A et 9B, et du mélange du gaz à traiter avec le gaz tampon, est réparti, en sortie aval de la tuyère, c'est-à-dire à l'extrémité des plaques divergentes 5A, 5B, de manière que :

- débit écoulement central = débit total x 0.85
- débit partie annulaire extérieure de l'écoulement = débit total x 0.15 environ

30

Le refroidissement par cryogénie des parois du divergent 5A, 5B de la tuyère, avec de l'hélium liquide par exemple, permet de réduire et diminuer de façon très sensible les débits massiques du flux de gaz traité.

5 Les propriétés de l'écoulement intérieur « I » autour de l'axe central de la tuyère sont telles qu'il n'y ait pas de diffusion entre l'écoulement extérieur « E » et ledit écoulement intérieur « I », et que la viscosité de l'écoulement soit négligeable. Le nombre de Reynolds est élevé c'est-à-dire supérieur à 2000. On sait que si le coefficient de diffusion est de l'ordre de grandeur  
10 de la viscosité cinématique, ce qui est le cas pour beaucoup de gaz, il donne l'ordre de grandeur de la vitesse d'ensemble par rapport à la vitesse de diffusion. Un grand nombre Reynolds implique donc une diffusion négligeable.

15 Le but est de faire en sorte que les isotopologues recherchés soient évacués vers l'écoulement extérieur, et ce grâce au moins en partie, à la diffusion forcée, dont l'importance dépend fortement de la masse, sous champ électro-magnétique des particules après ionisation par les moyens d'ionisation 19 (figure 2).

20

L'un des intérêts et l'une des particularités de l'invention est d'utiliser les ions agrégats pour la séparation du fait que les ions peuvent acquérir facilement, sous l'action de champ électromagnétique, une vitesse moyenne d'ensemble du même ordre de grandeur que la vitesse  
25 moyenne de l'écoulement pour une masse spécifiée.

Le procédé de l'invention joue sur la répartition de masse des agrégats avant ionisation et on sépare ensuite après ionisation de ces agrégats.

30 Les calculs de la forme et des dimensions des parois du séparateur, sont réalisés à partir des lignes de courants de façon que les séparateurs suivent les lignes de courant.



Selon une particularité du procédé de l'invention, à l'intérieur du jet, entre lignes de courant parallèles, la diffusion moléculaire naturelle est considérée comme négligeable.

- 5 Le dispositif complet d'ionisation comporte deux types de sources :
- un laser IR infra rouge destiné à exciter l'un des deux isotopologues, en l'occurrence  $^{32}\text{SF}_6$  ou  $^{34}\text{SF}_6$  et à créer, par inhibition sélective de la nucléation, des populations d'agrégats de masse moyenne bien différenciée. La densité
- 10 du gaz à exciter est de l'ordre de  $10^{-14}/\text{cm}^3$ .
- Des faisceaux d'électrons ou des lasers à excimère destinés à l'ionisation primaire (non sélective).

Le laser IR inhibe la nucléation de l'espèce « excitée » à quelques %.

15

La nucléation entraîne une augmentation de la section efficace d'ionisation des agrégats et une diminution de leur concentration volumique.

- 20 L'isotopologue  $^{34}\text{SF}_6$  est excité et donc moins agrégé que l'autre isotopologue ( $^{32}\text{SF}_6$ ). Les monomères et petits agrégats de  $^{34}\text{SF}_6$ , bien plus légers, sont ainsi plus fortement déviés une fois ionisés par les moyens électromagnétiques disposés en aval du fait de leur plus faible masse.

25

Le  $^{32}\text{SF}_6$  est statistiquement plus agrégé, donc présente des d'agrégats de plus forte masse que l'isotopologue  $^{34}\text{SF}_6$ . Par conséquent, le champ électromagnétique aval influence beaucoup moins le  $^{32}\text{SF}_6$ . Ce dernier aura donc moins tendance à « sortir du jet ».

30

A noter que le laser IR d'excitation n'est pas strictement nécessaire car la nucléation à son début entraîne un enrichissement « naturel » de l'isotopologue le moins abondant mais est prévu dans une forme préférée de mise en œuvre de l'invention. L'intérêt du laser IR est d'augmenter la

différenciation en masse entre  $34\text{SF}_6$  et  $32\text{SF}_6$  par inhibition de l'agrégation des monomères.

La figure 6 est une courbe montrant les variations de façon schématique  
5 les variations de concentration des agrégats en fonction du nombre de molécules dans les agrégats avec et sans laser infra rouge, obtenues en aval du faisceau laser. Sur cette figure, on peut voir que la formation des agrégats de  $32\text{SF}_6$  n'est pratiquement pas inhibée alors qu'elle l'est fortement pour  $34\text{SF}_6$ . Le but est que la taille des agrégats de  $34\text{SF}_6$ ,  
10 reliée directement au nombre de molécules  $N$  par agrégat, leur permette de sortir du jet sous l'action du champ électromagnétique.

L'ionisation peut être réalisée de deux manières :

1. soit de manière dite « directe », c'est-à-dire par un laser qui crée  
15 des cations et des électrons, par réaction : photons + agrégat  $\rightarrow$  agrégat ionisé en cation + électron ; on crée ainsi des agrégats ionisés positivement ;
2. soit par deux étapes successives d'ionisation, par laser ou faisceau d'électrons ou décharge électrique, pour créer des agrégats ionisés  
20 négativement (anions), à savoir :
  - une « ionisation primaire », qui crée par exemple par la réaction : atome + électron  $\rightarrow$  un ion positif + électron ;
  - suivie d'une « ionisation secondaire », où les agrégats sont ionisées sous forme négatives (anions) par attachement  
25 électronique des électrons formés par l'ionisation primaire.

La seconde voie ci-dessus (2) est préférée.

## REVENDEICATIONS

1. Procédé pour la séparation isotopique d'au moins deux différents  
5 isotopes d'un corps sous forme gazeuse, comportant les étapes  
suivantes :

- Convertir sous forme d'un gaz le corps d'intérêt contenant l'isotope recherché ;
- Créer un flux à vitesse supersonique dudit gaz, à écoulement du  
10 type laminaire ou légèrement turbulent ;
- Exciter les molécules par laser ;
- Inhiber, au moyen d'un laser, la nucléation d'un des isotopologues, formant ainsi des agrégats moins massif dudit isotopologue que les agrégats formés par les molécules de l'autre isotopologue ;
- 15 • Ioniser les molécules et agrégats dudit gaz.
- Soumettre les molécules et agrégats de molécules ionisés à un champ électromagnétique, pour faire migrer les molécules et agrégats ionisés d'un des isotopologues vers l'extérieur du flux, du fait de la différence de masse entre les agrégats respectifs des deux  
20 isotopologues ;
- Récupérer la partie du flux gazeux présentant la concentration la plus élevée en isotope recherché.

2 Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le gaz est  
25 par exemple du SF<sub>6</sub>, UF<sub>6</sub> ou MoF<sub>6</sub>.

3 Procédé selon l'une des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que les molécules ou atomes sont ionisées par au moins un laser ou un faisceau d'électrons, par exemple un laser du type excimère dans le cas  
30 d'un gaz UF<sub>6</sub>.

4 Procédé selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le gaz est mélangé à au moins un premier gaz inerte, comme de l'hélium ou de l'argon ou de l'hydrogène.

5 Procédé selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le flux gazeux présente une vitesse supersonique.

- 5 6 Procédé selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que le moyen de création de l'écoulement laminaire ou légèrement turbulent est une tuyère, du type tuyère de Laval à géométrie plane, et comportant :
- une paroi externe amont en forme de convergent dont l'entrée correspond à la partie évasée et la paroi présente de préférence une
  - 10 section en arc de cercle ;
  - un col parallélépipédique à la sortie de la paroi amont externe ;
  - un conduit divergent abouté au col parallélépipédique, pourvu d'une section dite de sortie, la sortie correspondant à la partie évasée du conduit divergent.

15

- 7 Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que l'on alimente la tuyère avec un écoulement gazeux comprenant d'une part un jet central ou intérieur formé d'un mélange du gaz à traiter et d'un premier autre gaz, à savoir un gaz inerte, et d'autre part un jet périphérique ou extérieur
- 20 formé d'un second autre gaz, à savoir un gaz inerte, les réservoirs sources du premier mélange de gaz et du second autre gaz étant séparés.

- 8 Procédé selon l'une des revendications 6 ou 7, caractérisé en ce que
- 25 l'alimentation de la tuyère est réalisée par l'intermédiaire d'une chambre alimentée en gaz, et pourvue :
- d'une paroi de sortie correspondant au convergent amont de la tuyère
  - d'un déflecteur convergent interne, sensiblement concentrique audit convergent amont de la tuyère, et à distance de celui-ci.

30

- 9 Procédé selon la revendication 7, caractérisé en ce que les deux jets sont sensiblement isolés l'un de l'autre et sont concentriques et en ce que les premier et second gaz inertes sont les mêmes, et sont choisis parmi l'hélium, l'azote, l'argon, l'hydrogène.

10 Procédé selon l'une des revendications 7 ou 8, caractérisé en ce que le déflecteur interne est situé en amont du col de la tuyère ou bien se prolonge en aval jusqu'à celui-ci.

5

11 Procédé selon la revendication 8, caractérisé en ce qu'un mélange dudit gaz et d'un premier gaz inerte circule dans la partie intérieure du déflecteur et un écoulement d'un second gaz inerte est prévu entre le déflecteur et le convergent de la tuyère.

10

12 Procédé selon la revendication 8, caractérisé en ce que la section ouverte aval du déflecteur interne est située en amont dudit col ou bien se prolonge en aval jusqu'à celui-ci.

15 13 Procédé selon l'une des revendications 8 à 12, caractérisé en ce qu'un mélange dudit gaz et d'un premier gaz inerte circule dans la partie intérieure du déflecteur interne, et un écoulement de second gaz inerte est prévu entre la paroi externe convergente et le déflecteur interne.

20 14 Procédé selon l'une des revendications 7 à 13, caractérisé en ce que l'on fait migrer une partie des isotopes présents de l'écoulement intérieur vers l'écoulement extérieur.

25 15 Dispositif pour la mise en œuvre du procédé selon l'une des revendications 6 à 14, caractérisé en ce que la tuyère présente les dimensions suivantes :

- Rayon de courbure du convergent de la tuyère : 260 mm
- Rayon de courbure du déflecteur interne : 250 mm
- Largeur du col : 100 mm
- 30 • Longueur du conduit aval 2000 à 3000 mm
- Largeur de la section de sortie de conduit : 1200 mm.

16 Dispositif pour la mise en œuvre du procédé selon l'une des revendications 6 à 14, caractérisé en ce que la largeur de la section de

sortie de la tuyère est comprise entre 5 et 20 fois la largeur du col et de préférence proche de 7 fois la largeur du col, et en ce que la longueur du conduit est au moins de 2000 mm et/ou comprise entre 20 et 30 fois la largeur du col.

5

17 Dispositif pour la mise en œuvre du procédé selon l'une des revendications 6 à 14, caractérisé en ce que la tuyère présente une forme de révolution, et présente les dimensions suivantes :

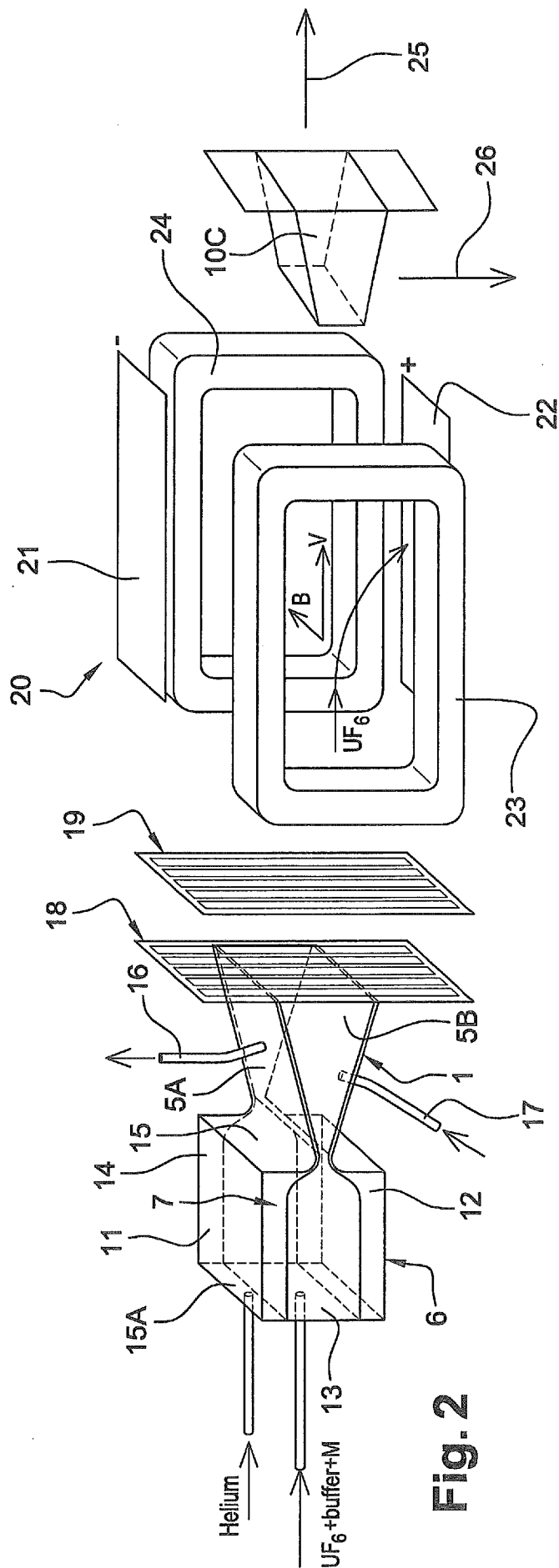
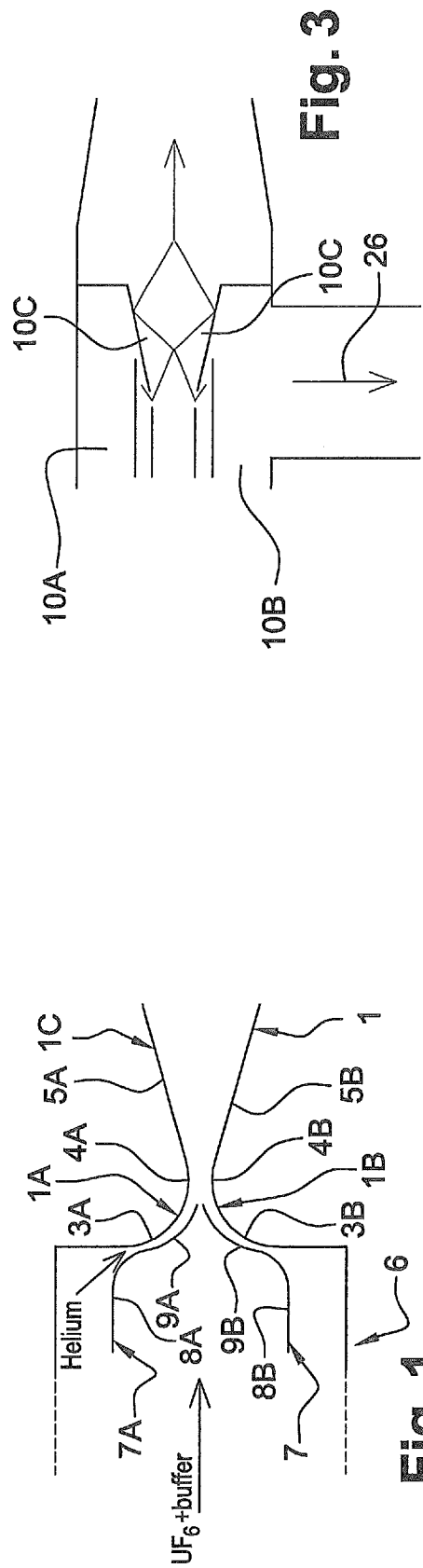
- Diamètre de courbure du déflecteur externe : 250 mm
- 10 • Diamètre de courbure du déflecteur interne : .. 250 mm
- Diamètre du col : 100 mm
- Longueur du conduit aval : 1680 mm
- Diamètre de la section de sortie du conduit : 340 mm

15 18 Dispositif pour la mise en œuvre du procédé selon l'une des revendications 6 à 14, caractérisé en ce que le diamètre de la section de sortie de la tuyère est compris entre 3 fois et 6 fois le diamètre du col, et de préférence entre 3 fois et 4 fois, et en ce que la longueur du conduit est au moins de 1300 mm, et/ou comprise entre 13 fois et 30 fois le diamètre  
20 du col.

19 Dispositif selon l'une des revendications 15 à 18, caractérisé en ce que la vitesse de diffusion  $V_d$  de l'écoulement dans la tuyère est très inférieure à la vitesse  $V_q$  vitesse moyenne dans la section considérée de  
25 la tuyère  $V_d = D/e$ , avec « D » coefficient de diffusion et « e » la distance séparant les parois en regard des déflecteurs externe et interne.

20 Dispositif selon l'une des revendications 15 à 19, caractérisé en ce qu'il comporte des moyens pour inhiber ou réduire les phénomènes de  
30 nucléation des molécules du flux gazeux, comportant au moins un laser, par exemple du type à infrarouge, dont la direction lumineuse est transversale au flux gazeux.

21 Dispositif selon l'une des revendications 15 à 20, caractérisé en ce qu'il comporte des moyens de refroidissement des parois de la tuyère.





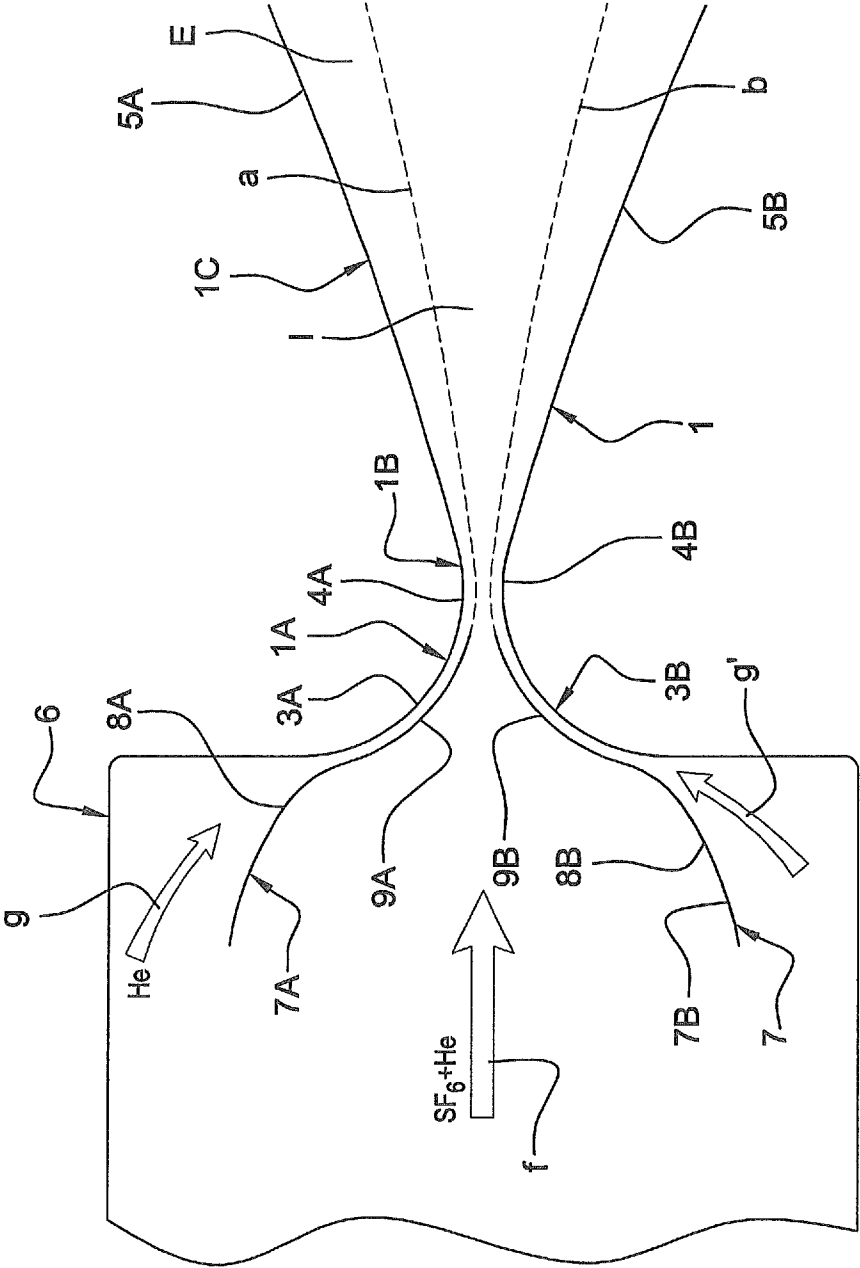
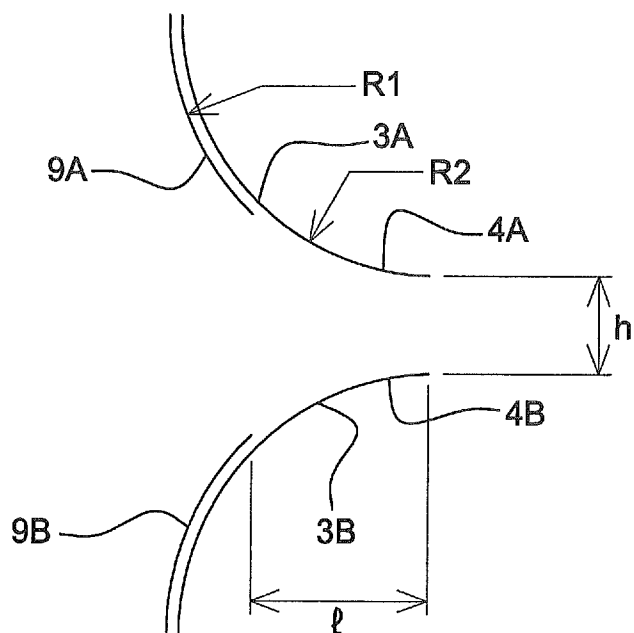
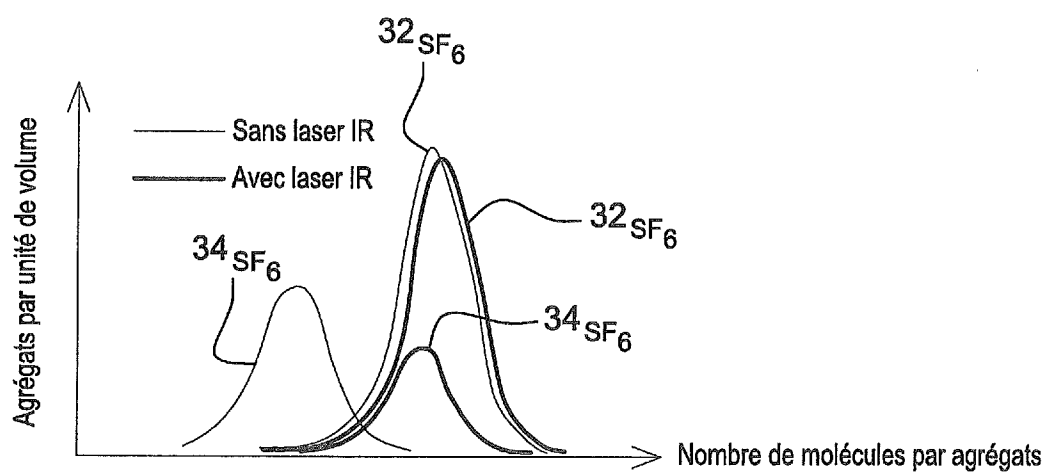


Fig. 4

3 / 3



**Fig. 5**



**Fig. 6**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/FR2012/051222

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. B01D59/34  
ADD.

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)  
B01D

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

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

EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages               | Relevant to claim No. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | GB 1 545 940 A (US ENERGY)<br>16 May 1979 (1979-05-16)                                           | 1-6,<br>15-20         |
| Y         | the whole document                                                                               | 21                    |
| Y         | FR 2 416 716 A1 (KRAFTWERK UNION AG [DE])<br>7 September 1979 (1979-09-07)<br>abstract; figure 5 | 21                    |



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

25 September 2012

Date of mailing of the international search report

02/10/2012

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Brothier, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/FR2012/051222

| Patent document<br>cited in search report |    | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|-------------------------------------------|----|---------------------|----------------------------|---------------------|
| GB 1545940                                | A  | 16-05-1979          | AU 508808 B2               | 03-04-1980          |
|                                           |    |                     | AU 1985576 A               | 01-06-1978          |
|                                           |    |                     | CA 1067452 A1              | 04-12-1979          |
|                                           |    |                     | DE 2653795 A1              | 04-08-1977          |
|                                           |    |                     | FR 2336166 A1              | 22-07-1977          |
|                                           |    |                     | GB 1545940 A               | 16-05-1979          |
|                                           |    |                     | IL 50951 A                 | 31-12-1980          |
|                                           |    |                     | JP 52066200 A              | 01-06-1977          |
|                                           |    |                     | NO 764024 A                | 27-05-1977          |
|                                           |    |                     | SE 7613092 A               | 27-05-1977          |
|                                           |    |                     | US 4734177 A               | 29-03-1988          |
|                                           |    |                     | ZA 7606945 A               | 26-10-1977          |
|                                           |    |                     | -----                      |                     |
| FR 2416716                                | A1 | 07-09-1979          | AU 526179 B2               | 23-12-1982          |
|                                           |    |                     | AU 4414479 A               | 23-08-1979          |
|                                           |    |                     | CA 1117166 A1              | 26-01-1982          |
|                                           |    |                     | DE 2805958 A1              | 16-08-1979          |
|                                           |    |                     | FR 2416716 A1              | 07-09-1979          |
|                                           |    |                     | GB 2015141 A               | 05-09-1979          |
|                                           |    |                     | JP 1430238 C               | 09-03-1988          |
|                                           |    |                     | JP 54117897 A              | 12-09-1979          |
|                                           |    |                     | JP 62035806 B              | 04-08-1987          |
| -----                                     |    |                     |                            |                     |

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°

PCT/FR2012/051222

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE  
INV. B01D59/34  
ADD.

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

## B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)  
B01D

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)  
EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

| Catégorie* | Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents | no. des revendications visées |
|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------|
| X          | GB 1 545 940 A (US ENERGY)<br>16 mai 1979 (1979-05-16)                                         | 1-6,<br>15-20                 |
| Y          | le document en entier                                                                          | 21                            |
| Y          | FR 2 416 716 A1 (KRAFTWERK UNION AG [DE])<br>7 septembre 1979 (1979-09-07)<br>abrégé; figure 5 | 21                            |



Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents



Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

\* Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent

"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date

"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)

"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens

"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

25 septembre 2012

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

02/10/2012

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Brothier, J

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°

PCT/FR2012/051222

| Document brevet cité<br>au rapport de recherche |    | Date de<br>publication | Membre(s) de la<br>famille de brevet(s) |            | Date de<br>publication |
|-------------------------------------------------|----|------------------------|-----------------------------------------|------------|------------------------|
| GB 1545940                                      | A  | 16-05-1979             | AU                                      | 508808 B2  | 03-04-1980             |
|                                                 |    |                        | AU                                      | 1985576 A  | 01-06-1978             |
|                                                 |    |                        | CA                                      | 1067452 A1 | 04-12-1979             |
|                                                 |    |                        | DE                                      | 2653795 A1 | 04-08-1977             |
|                                                 |    |                        | FR                                      | 2336166 A1 | 22-07-1977             |
|                                                 |    |                        | GB                                      | 1545940 A  | 16-05-1979             |
|                                                 |    |                        | IL                                      | 50951 A    | 31-12-1980             |
|                                                 |    |                        | JP                                      | 52066200 A | 01-06-1977             |
|                                                 |    |                        | NO                                      | 764024 A   | 27-05-1977             |
|                                                 |    |                        | SE                                      | 7613092 A  | 27-05-1977             |
|                                                 |    |                        | US                                      | 4734177 A  | 29-03-1988             |
|                                                 |    |                        | ZA                                      | 7606945 A  | 26-10-1977             |
|                                                 |    |                        | -----                                   |            |                        |
| FR 2416716                                      | A1 | 07-09-1979             | AU                                      | 526179 B2  | 23-12-1982             |
|                                                 |    |                        | AU                                      | 4414479 A  | 23-08-1979             |
|                                                 |    |                        | CA                                      | 1117166 A1 | 26-01-1982             |
|                                                 |    |                        | DE                                      | 2805958 A1 | 16-08-1979             |
|                                                 |    |                        | FR                                      | 2416716 A1 | 07-09-1979             |
|                                                 |    |                        | GB                                      | 2015141 A  | 05-09-1979             |
|                                                 |    |                        | JP                                      | 1430238 C  | 09-03-1988             |
|                                                 |    |                        | JP                                      | 54117897 A | 12-09-1979             |
|                                                 |    |                        | JP                                      | 62035806 B | 04-08-1987             |
| -----                                           |    |                        |                                         |            |                        |