

(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 5 月 20 日(20.05.2010)

(10) 国際公開番号
WO 2010/055768 A1

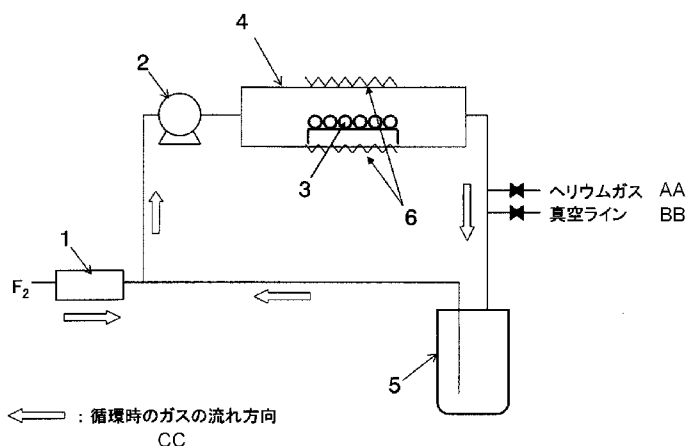
PCT

- (51) 国際特許分類:
C01G 17/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/068372
- (22) 国際出願日: 2009 年 10 月 27 日(27.10.2009)
- (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 2008-289337 2008 年 11 月 12 日(12.11.2008) 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 5 2 5 3 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): 梅崎 智典 (UMEZAKI, Tomonori). 毛利 勇 (MORI, Isamu). 中原 啓太 (NAKAHARA, Keita).
- (74) 代理人: 橋本 剛, 外 (HASHIMOTO, Takeshi et al.); 〒1040044 東京都中央区明石町 1 番 2 9 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, 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 PRODUCING GERMANIUM TETRAFLUORIDE

(54) 発明の名称: 四フッ化ゲルマニウムの製造方法

[図1]



(57) Abstract: A method for producing germanium tetrafluoride, which comprises a step of supplying a fluorine gas into a reactor which is filled with germanium metal and a diluent gas; a step of collecting germanium tetrafluoride, which is a reaction product, by passing the gas discharged from the reactor through a cooling collection unit, and a step of circulating the gas passed through the cooling collection unit back to the reactor. By circulating the gas in the closed system as described above, germanium tetrafluoride can be produced safely and efficiently.

(57) 要約: 本発明では、金属ゲルマニウムと希釈ガスが充填されている反応器にフッ素ガスを供給する工程と、反応器より放出される気体を冷却捕集器に通過させて反応生成物である四フッ化ゲルマニウムを捕集する工程と、冷却捕集器を通過するガスを再び反応器へ戻し循環させる工程と、を含む四フッ化ゲルマニウムの製造方法が提供される。このように閉鎖系でガスを循環させることにより、安全に且つ高効率に四フッ化ゲルマニウムを製造することができる。

明 細 書

発明の名称：四フッ化ゲルマニウムの製造方法

技術分野

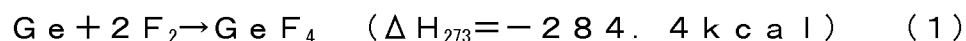
[0001] 本発明は、四フッ化ゲルマニウムの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 四フッ化ゲルマニウムの製造方法としては、（a）四塩化ゲルマニウムにフッ化アンチモンを反応させるハロゲン交換法（例えば、非特許文献1）、（b）六フッ化ゲルマニウム酸塩を熱分解する方法（例えば、非特許文献2）、（c）酸化ゲルマニウムと三フッ化臭素との反応による方法（例えば、非特許文献3）、（d）金属ゲルマニウムとフッ素ガスによる直接フッ素化法等がよく知られている。

[0003] しかしながら、上記（a）、（b）及び（c）の方法で得られる四フッ化ゲルマニウム中には、フッ化塩化ゲルマニウム、HF、CO₂、CF₄、N₂、O₂など多種類のガスを不純物として含有する。

[0004] 一方、上記（d）の方法では、高純度の金属ゲルマニウムやフッ素ガスが入手可能なことから、高純度の四フッ化ゲルマニウムを得ることができる。しかしながら、下記反応式（1）に示すように、金属ゲルマニウムとフッ素ガスとの反応による発熱量が大きいため、フッ素ガスを希釈導入しなければ反応が暴走する。



また、生成した四フッ化ゲルマニウムを冷却捕集する際に、四フッ化ゲルマニウムの蒸気圧が－80℃においても2.6kPa以上であるため、捕集効率を向上させるためには極低温の冷媒を使用する必要がある。よって、上記（d）の方法のように、金属ゲルマニウムのフッ素化反応を開放系で行った場合、反応の制御や製造効率の向上が難しい。

先行技術文献

非特許文献

[0005] 非特許文献1 : H. S. Booth et al. J. Am. Chem. Soc. 58, 90 (1936)

非特許文献2 : Inorganic Syntheses IV 147

非特許文献3 : H. J. , J. Chem. Soc. 164 (1950)

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の目的は、安全に且つ高効率に、金属ゲルマニウムとフッ素ガスの直接反応を行い、四フッ化ゲルマニウムを製造する方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者等は、鋭意検討の結果、閉鎖系内で四フッ化ゲルマニウムの合成及び冷却捕集を行うことにより、上記目的が達成できることを見出し、本発明に至った。

[0008] すなわち、本発明は、金属ゲルマニウムと希釈ガスが充填されている反応器にフッ素ガスを供給する工程と、反応器より放出される気体を冷却捕集器に通過させて反応生成物である四フッ化ゲルマニウムを捕集する工程と、冷却捕集器を通過するガスを再び反応器へ戻し循環させる工程と、を含む四フッ化ゲルマニウムの製造方法が提供される。

[0009] 反応器内の金属ゲルマニウムの温度は100℃～400℃の範囲にあることが好ましい。また、反応器より放出される気体中のフッ素濃度は10.0 vol %未満であることが好ましい。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本発明の実施形態に係る四フッ化ゲルマニウム製造システムの概略図である。

[図2]従来の四フッ化ゲルマニウム製造システムの概略図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明について詳細に述べる。

[0012] 本発明では、閉鎖系内で四フッ化ゲルマニウムの合成及び冷却捕集を行う

。具体的には、金属ゲルマニウムと希釈ガスが充填されている反応器にフッ素ガスを供給して、フッ素ガスと金属ゲルマニウムの直接反応を行う。反応器より放出される気体を冷却捕集器に通過させて、反応生成物である四フッ化ゲルマニウムを捕集する。冷却捕集器を通過するガスは、ポンプ等の循環器により再び反応器へ戻し循環させる。

[0013] 反応器に充填される金属ゲルマニウムは、その形状を特に限定するものではなく、塊状又はロッド状のものが使用できる。その純度は反応生成物である四フッ化ゲルマニウムの純度に直接影響を及ぼすことから 99.99% 以上のものが望まれる。

[0014] 反応器に充填される希釈ガスは、フッ素ガスとの反応性の低いものであれば特に限定されず、例えば、窒素ガス、ヘリウムガス、ネオンガス、アルゴンガス等を用いることができる。

[0015] 反応器内の希釈ガスの充填量は、反応器内に希釈ガスが存在していればよく、特に限定するものではない。

[0016] また、金属ゲルマニウムをフッ素化する原料ガスとして用いられるフッ素ガスの純度も四フッ化ゲルマニウムの純度に直接影響を及ぼすことから 99% 以上のものが望まれる。

[0017] 反応器に用いる材質は、ニッケルあるいはモネルのような、少なくとも、金属ゲルマニウムとフッ素ガスとの反応温度において、フッ素ガスに対する耐食性を示すものでなければならない。

[0018] 反応温度は、反応器内の金属ゲルマニウムの温度が 100℃～400℃の範囲であることが好ましく、更に好ましくは 200℃～300℃が好適である。400℃を超えると反応器の材質とフッ素ガスとの反応が促進される可能性があるため好ましくない。

[0019] 反応器より放出される気体中のフッ素濃度は、反応器への希釈ガスの充填量、循環器の循環流量、またはフッ素ガスの供給流量を調節することで、適宜、調整できる。反応器より放出される気体中のフッ素濃度は 10.0 vol % 未満であることが好ましい。10.0 vol % 以上では反応器内で金属

ゲルマニウムとフッ素ガスとの反応が暴走している可能性があり、反応器の材質を損傷する恐れがあるため好ましくない。

[0020] 反応器で生成した四フッ化ゲルマニウムを捕集する際の冷却捕集器の温度は、四フッ化ゲルマニウムの露点以下であれば任意に選択可能であるが、フッ素ガス及び希釈ガスである窒素ガス、ヘリウムガス、ネオンガス、アルゴンガスの沸点以上となる -180°C 以上であることが望ましい。 -180°C 未満ではフッ素ガスの利用効率が下がる可能性がある。

[0021] 上述の通り、閉鎖系でガスを循環させることにより任意の希釈濃度での金属ゲルマニウムのフッ素化反応が可能となり、反応を容易に制御することができ、高収率で四フッ化ゲルマニウムを得ることができる。

実施例

[0022] 以下、実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0023] 各実施例では、図1に示すシステムを用いて四フッ化ゲルマニウムを生成した。生成システムは、 F_2 用マスフローコントローラ1と、ポンプ2と、反応器4と、冷却捕集器5をこの順序で配置して閉鎖系として構成した。フッ素ガスは、 F_2 用マスフローコントローラ1により流量を制御し、ポンプ2と冷却捕集器5の間で系内に導入して、反応器4に供給した。金属ゲルマニウム3は、反応器4内の中央部に充填した。また、ヒーター6を反応器4内にヒーター6を設置し、反応器4を所定の温度に加熱した。反応器4内ガスは、冷却捕集器5に導入され、反応生成物（四フッ化ゲルマニウム）を冷却捕集した。冷却捕集器5で捕集されず通過したガスは、ポンプ2により反応器4内に戻して循環した。さらに、生成システムには、系内を真空置換するための真空ライン、及び希釈ガス（ヘリウムガス）を系内に供給して反応器4に充填するためのガス供給ラインをそれぞれ反応器4と冷却捕集器5の間において開閉弁を介して接続した。

[0024] [実施例1]

純度99.99%の金属ゲルマニウム3の粉末1000gを、ニッケル製

で内径80mm、長さ1000mmの管状反応器4内の中央部に充填した。系内を真空置換した後、反応器4の外壁温度を200℃に設定し、系内にヘリウムガスを導入し80kPaとした。冷却捕集器5は-60℃に冷却した。次に、ポンプ2の循環流量を6L/minに設定し、F₂用マスフローコントローラ1により400cc/minの流量でフッ素を供給して10時間反応を行った。その後、冷却捕集器5に捕集された生成ガスをFT-IR（大塚電子社製 IG-1000）、紫外分光光度計（日立製 U-2810）で分析したところ、四フッ化ゲルマニウムの生成を確認した。また、反応器4出口ガス中のフッ素ガス濃度は、紫外分光光度計（日立製 U-2810）で分析したところ2vol%、四フッ化ゲルマニウムの濃度は、FT-IR（大塚電子社製 IG-1000）で分析したところ14vol%であり、他の成分はヘリウムガスであった。反応終了後、冷却捕集器5内を真空置換し、希釈ガスであるヘリウムガス及びフッ素ガスを除去し、導入したフッ素ガス量と捕集された四フッ化ゲルマニウムの質量により四フッ化ゲルマニウムの収率を求めたところ、ゲルマニウム基準で98%であった。

[0025] [実施例2]

純度99.99%の金属ゲルマニウム3の粉末500gを、ニッケル製で内径80mm、長さ1000mmの管状反応器4内の中央部に充填した。系内を真空置換した後、反応器4の外壁温度を150℃に設定し、系内にヘリウムガスを導入し120kPaとした。冷却捕集器5は-60℃に冷却した。次に、ポンプ2の循環流量を10L/minに設定し、F₂用マスフローコントローラ1により300cc/minの流量でフッ素を供給して10時間反応を行った。その後、冷却捕集器5に捕集された生成ガスをFT-IR（大塚電子社製 IG-1000）、紫外分光光度計（日立製 U-2810）で分析したところ四フッ化ゲルマニウムの生成を確認した。また、反応器4出口ガス中のフッ素ガス濃度は、紫外分光光度計（日立製 U-2810）で分析したところ1.5vol%、四フッ化ゲルマニウムの濃度は、FT-IR（大塚電子社製 IG-1000）で分析したところ11vol%で

あり、他の成分はヘリウムガスである。反応終了後、冷却捕集器 5 内を真空置換し、希釈ガスであるヘリウムガス及びフッ素ガスを除去し、導入したフッ素ガス量と捕集された四フッ化ゲルマニウムの質量により四フッ化ゲルマニウムの収率を求めたところ、ゲルマニウム基準で 99%であった。

[0026] [実施例 3]

純度 99.99%の金属ゲルマニウム 3 の粉末 2000 g を、ニッケル製で内径 130 mm、長さ 700 mm の反応器 4 内の中央部に充填した。系内を真空置換した後、反応器 4 の外壁温度を 250℃に設定し、系内にヘリウムガスを導入し 101 kPa とした。冷却捕集器 5 は -60℃に冷却した。次に、ポンプ 2 の循環流量を 15 L/min に設定し、F₂用マスフローコントローラ 1 により 700 cc/min の流量でフッ素を供給して 10 時間反応を行った。その後、冷却捕集器 5 に捕集された生成ガスを FT-IR (大塚電子社製 IG-1000)、紫外分光光度計 (日立製 U-2810) で分析したところ四フッ化ゲルマニウムの生成を確認した。また、反応器 4 出口ガス中のフッ素ガス濃度は、紫外分光光度計 (日立製 U-2810) で分析したところ 1.8 vol%、四フッ化ゲルマニウムの濃度は、FT-IR (大塚電子社製 IG-1000) で分析したところ 13 vol% であり、他の成分はヘリウムガスである。反応終了後、冷却捕集器 5 内を真空置換し、希釈ガスであるヘリウムガス及びフッ素ガスを除去し、導入したフッ素ガス量と捕集された四フッ化ゲルマニウムの質量により四フッ化ゲルマニウムの収率を求めたところ、ゲルマニウム基準で 99%であった。

[0027] [実施例 4]

純度 99.99%の金属ゲルマニウム 3 の粉末 2000 g を、ニッケル製で内径 130 mm、長さ 700 mm の反応器 4 内の中央部に充填した。系内を真空置換した後、反応器 4 の外壁温度を 250℃に設定し、系内にヘリウムガスを導入し 101 kPa とした。冷却捕集器 5 は -60℃に冷却した。次に、ポンプ 2 の循環流量を 15 L/min に設定し、F₂用マスフローコントローラ 1 により 50 cc/min の流量でフッ素を供給して 10 時間反応

を行った。その後、冷却捕集器 5 に捕集された生成ガスを F T - I R（大塚電子社製 I G - 1 0 0 0）、紫外分光光度計（日立製 U - 2 8 1 0）で分析したところ四フッ化ゲルマニウムの生成を確認した。また、反応器 4 出口ガス中のフッ素ガス濃度は、紫外分光光度計（日立製 U - 2 8 1 0）で分析したところ 0. 6 v o l %、四フッ化ゲルマニウムの濃度は、F T - I R（大塚電子社製 I G - 1 0 0 0）で分析したところ 1 3 v o l %であり、他の成分はヘリウムガスである。反応終了後、冷却捕集器 5 内を真空置換し、希釈ガスであるヘリウムガス及びフッ素ガスを除去し、導入したフッ素ガス量と捕集された四フッ化ゲルマニウムの質量により四フッ化ゲルマニウムの収率を求めたところ、ゲルマニウム基準で 9 9 %であった。

[0028] [比較例 1]

図 2 に示すシステムを用いて四フッ化ゲルマニウムを生成した。生成システムは、F₂用マスフローコントローラ 1 1 と、反応器 1 4 と、冷却捕集器 1 5 により開放系で構成した。フッ素ガスは、F₂用マスフローコントローラ 1 1 により流量を制御して、反応器 1 4 に供給した。金属ゲルマニウム 1 3 は、反応器 1 4 の内部に充填した。また、反応器 1 4 を所定の温度に加熱するためのヒーター 1 6 を反応器 1 4 内に設置した。反応器 1 4 より排出されるガスは、冷却捕集器 1 5 に導入され、反応生成物（四フッ化ゲルマニウム）が冷却捕集された。冷却捕集器 1 5 で捕集されず通過するガスは、排出ガスとして系外の除害装置に送られた。生成システムの反応器 1 4 と冷却捕集器 1 5 の間には、系内を真空置換するための真空ライン、及び希釈ガス（ヘリウムガス）を系内に供給して反応器 1 4 に充填するためのガス供給ラインをそれぞれ開閉弁を介して接続した。

[0029] 純度 9 9. 9 9 %の金属ゲルマニウム 1 3 の粉末 1 0 0 0 g を、ニッケル製で内径 2 0 0 mm、長さ 7 0 0 mmの反応器 1 4 内に充填した。系内を真空置換した後、反応器の外壁温度を 2 0 0 °C に設定し、系内にヘリウムガスを導入し 8 0 k P a とした。冷却捕集器 1 5 は - 6 0 °C に冷却した。次に、フッ素ガスを F₂用マスフローコントローラ 1 1 により 4 0 0 c c / m i n の

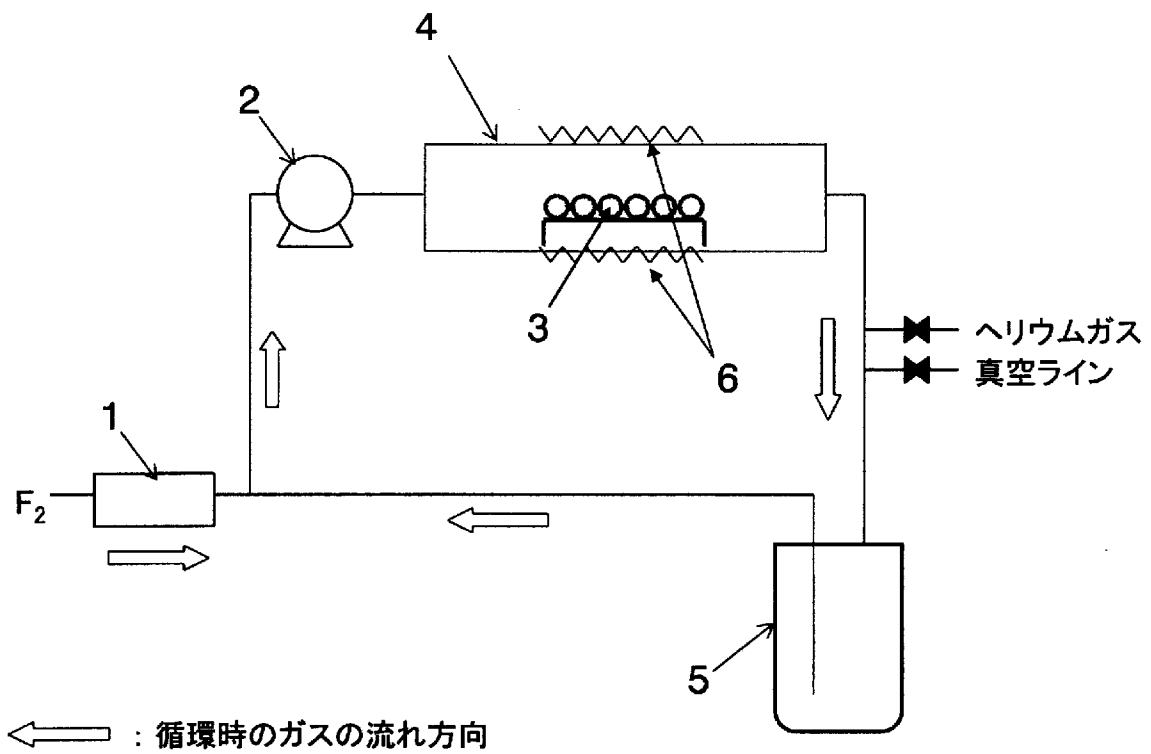
流量でフッ素を供給して 10 時間反応を行った。その後、冷却捕集器 5 に捕集された生成ガスを FT-IR（大塚電子社製 IG-1000）、紫外分光光度計（日立製 U-2810）で分析したところ四フッ化ゲルマニウムの生成を確認した。反応終了後、冷却捕集器 15 内を真空置換することによりフッ素ガスを除去し、導入したフッ素ガス量と捕集された四フッ化ゲルマニウムの質量により四フッ化ゲルマニウムの収率を求めたところ、ゲルマニウム基準で 87% であった。また、反応器 14 の内面に損傷が生じているのが確認された。損傷の原因は 100% 濃度のフッ素ガスを導入したため、局所的に大きな発熱が生じたためであると推測される。

[0030] 本発明を具体的な実施例に基づいて説明してきたが、本発明は上記実施例に限定されるものではなく、その趣旨を逸脱しない範囲で種々の変形・変更を含むものである。

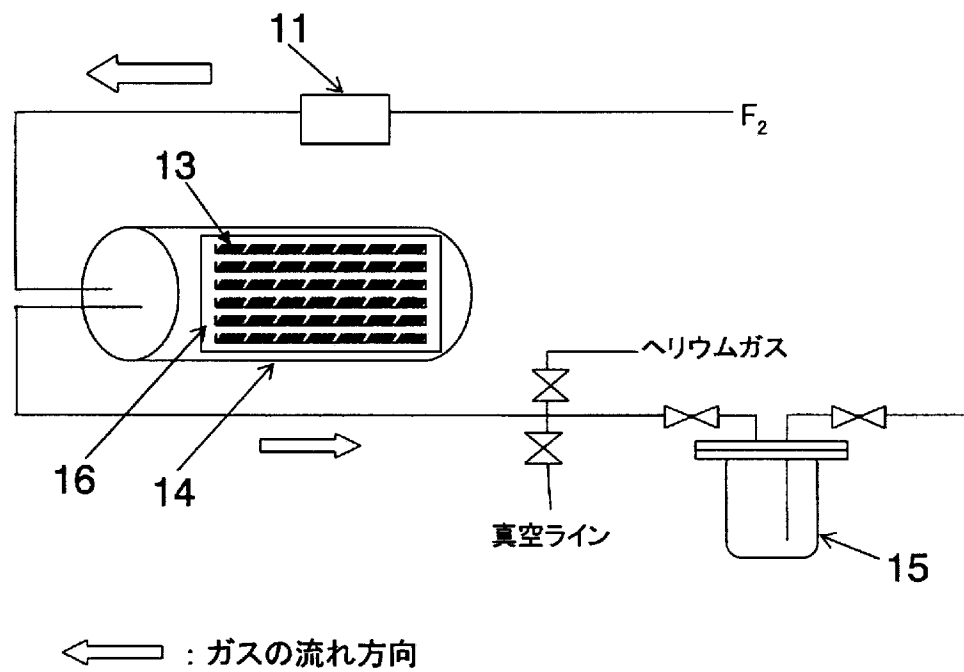
請求の範囲

- [請求項1] 金属ゲルマニウムと希釈ガスが充填されている反応器にフッ素ガスを供給する工程と、反応器より放出される気体を冷却捕集器に通過させて反応生成物である四フッ化ゲルマニウムを捕集する工程と、冷却捕集器を通過するガスを再び反応器へ戻し循環させる工程と、を含む四フッ化ゲルマニウムの製造方法。
- [請求項2] 反応器内の金属ゲルマニウムの温度が100℃～400℃の範囲にあることを特徴とする、請求項1に記載の四フッ化ゲルマニウムの製造方法。
- [請求項3] 反応器より放出される気体中のフッ素濃度が10.0vol%未満であることを特徴とする、請求項1に記載の四フッ化ゲルマニウムの製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/068372

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01G17/04 (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)

C01G17/04

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

CA (STN), JSTPlus (JDreamII), JST7580 (JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2004-131370 A (Advance Research Chemicals, Inc.), 30 April 2004 (30.04.2004), claims 1, 7, 11; paragraphs [0021] to [0022]; fig. 1 & US 2004/0076577 A1 & EP 1394114 A2	1-3
Y	JP 01-234301 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 19 September 1989 (19.09.1989), claims; page 3, lower left column, line 11 to page 4, upper left column, line 2; example 8 & US 4960581 A & EP 333084 A2	1-3

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

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17 November, 2009 (17.11.09)Date of mailing of the international search report
01 December, 2009 (01.12.09)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/068372

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-265057 A (Japan Nuclear Cycle Development Institute), 05 October 2006 (05.10.2006), claim 1 (Family: none)	1-3
Y	JP 02-172806 A (Mitsubishi Electric Corp.), 04 July 1990 (04.07.1990), claims; page 1, left column, line 17 to page 2, upper left column, line 4; fig. 5 (Family: none)	1-3

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01G17/04 (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. C01G17/04

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

CA (STN), JSTPlus (JDreamII), JST7580 (JDreamII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2004-131370 A (アドヴァンス・リサーチ・ケミカルズ・インコーポレーテッド) 2004.04.30, 請求項 1, 7, 11, 【0021】 - 【0022】, 図 1 & US 2004/0076577 A1 & EP 1394114 A2	1-3
Y	JP 01-234301 A (三井東圧化学株式会社) 1989.09.19, 特許請求の範囲, 第 3 頁左下欄第 11 - 第 4 頁左上欄 2 行, 実施例 8 & US 4960581 A & EP 333084 A2	1-3

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 7 . 1 1 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

0 1 . 1 2 . 2 0 0 9

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)

磯部 香

4 G

3 6 3 7

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

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
Y	JP 2006-265057 A (核燃料サイクル開発機構) 2006. 10. 05, 請求項 1 (ファミリーなし)	1-3
Y	JP 02-172806 A (三菱電機株式会社) 1990. 07. 04, 特許請求の範囲, 第 1 頁左欄第 17 行ー第 2 頁左上欄 4 行, 第 5 図 (ファミリーなし)	1-3