

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号

特表2024-535048

(P2024-535048A)

(43)公表日 令和6年9月26日(2024.9.26)

(51)国際特許分類	F I	テーマコード(参考)
<b>B 0 1 D 53/86 (2006.01)</b>	B 0 1 D 53/86	2 5 0 4 D 1 4 8
<b>B 0 1 J 37/22 (2006.01)</b>	B 0 1 J 37/22	Z A B 4 G 1 6 9
<b>B 0 1 J 37/02 (2006.01)</b>	B 0 1 J 37/02	1 0 1 Z
<b>B 0 1 J 37/03 (2006.01)</b>	B 0 1 J 37/03	A
<b>B 0 1 J 37/04 (2006.01)</b>	B 0 1 J 37/04	1 0 1

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全46頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2024-516889(P2024-516889)	(71)出願人	391028362 ダブリュ・エル・ゴア アンド アソシエ イツ, インコーポレイティド W . L . G O R E & A S S O C I A T E S , I N C O R P O R A T E D アメリカ合衆国, デラウェア 1 9 7 1 1, ニューアーク, ペーパー ミル ロード 5 5 5
(86)(22)出願日	令和4年9月15日(2022.9.15)	(74)代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(85)翻訳文提出日	令和6年5月9日(2024.5.9)	(74)代理人	100123582 弁理士 三橋 真二
(86)国際出願番号	PCT/US2022/043633	(74)代理人	100128495 弁理士 出野 知
(87)国際公開番号	WO2023/043903	(74)代理人	100208225
(87)国際公開日	令和5年3月23日(2023.3.23)		
(31)優先権主張番号	63/245,596		
(32)優先日	令和3年9月17日(2021.9.17)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)		
(81)指定国・地域	AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA ,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA( AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,A T,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR ,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC, 最終頁に続く		最終頁に続く

(54)【発明の名称】 収着性ポリマー複合材(SPC)材料及び該収着性ポリマー複合材(SPC)材料を使用する水銀除去のための方法

(57)【要約】

例えば、工業排ガスから水銀(Hg)を除去できる装置及び方法。例示的な収着性ポリマー複合材(SPC)は、ポリマー、微細構造を有する収着剤、及び微細構造内の遷移金属ハロゲン化物を含むことができる。遷移金属ハロゲン化物は、銀(Ag)、ヨウ素(I)又は両方(AgI)を含むことができる。SPCを製造する方法は、遷移金属非ハロゲン化物塩を収着剤に適用すること、非遷移金属ハロゲン化物を収着剤に適用して、非遷移金属ハロゲン化物を非ハロゲン化物塩と反応させて、それにより、収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物を生成することを含むことができる。

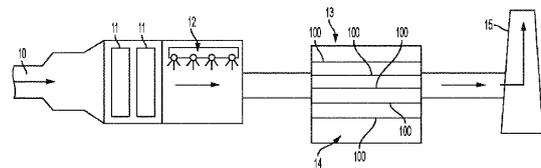


FIG. 1

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ポリマーと、収着剤とを含んでなり、  
該収着剤は微細構造を含み、さらに該微細構造は遷移金属ハロゲン化物を含む、  
収着性ポリマー複合材（SPC）。

## 【請求項 2】

硫黄をさらに含む、請求項 1 記載の SPC。

## 【請求項 3】

前記硫黄は元素硫黄を含む、請求項 2 記載の SPC。

## 【請求項 4】

前記硫黄は、前記 SPC の総質量に基づいて 0.1 wt% ~ 20 wt% の範囲の量で存在する、請求項 2 又は 3 記載の SPC。

## 【請求項 5】

前記硫黄は、前記 SPC の総質量に基づいて 3 wt% ~ 5 wt% の範囲の量で存在する、請求項 2 又は 3 記載の SPC。

## 【請求項 6】

前記遷移金属ハロゲン化物は、遷移金属塩化物、遷移金属臭化物、遷移金属フッ化物、遷移金属ヨウ化物のうち少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 7】

前記遷移金属ハロゲン化物は、ニッケル、鉛、銅、マンガン、鉄、水銀、銀、白金のうち少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 8】

前記遷移金属ハロゲン化物は銀（Ag）を含む、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 9】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ素（I）を含む、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 10】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀（AgI）を含む、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 11】

前記 SPC は、水銀（Hg）と反応するための少なくとも 6 ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度は少なくとも 6 ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない、請求項 8 又は 10 記載の SPC。

## 【請求項 12】

前記 SPC は、水銀（Hg）と反応するための少なくとも 6 ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度は少なくとも 6 ヶ月の運転使用全体を通して低下しない、請求項 8 又は 10 記載の SPC。

## 【請求項 13】

前記 SPC は、水銀（Hg）と反応するための少なくとも 6 ヶ月の運転使用のために構成され、ヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は少なくとも 6 ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない、請求項 9 ~ 10 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 14】

前記収着剤は、遷移金属非ハロゲン化物塩の硝酸銀（AgNO<sub>3</sub>）に対して、23 で 1,765 ミリモル/L 以上の吸着容量ラングミュア等温パラメータ q<sub>m</sub> を有する、請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項記載の SPC。

## 【請求項 15】

前記ポリマーはフルオロポリマーを含む、請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載の SPC

10

20

30

40

50

。

【請求項 16】

前記ポリマーはポリテトラフルオロエチレン（PTFE）を含む、請求項 1～15 のいずれか 1 項記載の SPC。

【請求項 17】

前記遷移金属ハロゲン化物は、SPC の総質量に基づいて、前記 SPC 中に 0.1 wt %～20 wt % の量で存在する、請求項 1～16 のいずれか 1 項記載の SPC。

【請求項 18】

前記遷移金属ハロゲン化物は、SPC の総質量に基づいて、前記 SPC 中に 0.1 wt %～6 wt % の量で存在する、請求項 1～14 のいずれか 1 項記載の SPC。

10

【請求項 19】

前記収着剤は、活性炭、シリカゲル、ゼオライト又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 1～18 のいずれか 1 項記載の SPC。

【請求項 20】

前記収着剤は活性炭を含む、請求項 1～19 のいずれか 1 項記載の SPC。

【請求項 21】

前記活性炭は炭素源に由来し、前記炭素源は石炭、亜炭、木材、ヤシ殻又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 20 記載の SPC。

【請求項 22】

元素硫黄をさらに含み、

20

前記収着剤は活性炭を含み、かつ

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀（AgI）である、請求項 1 記載の SPC。

【請求項 23】

ポリマー及び収着剤を含む収着性ポリマー複合材（SPC）を得ること、

遷移金属非ハロゲン化物塩を得ること、

非遷移金属ハロゲン化物を得ること、

該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤に適用して、該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤の微細構造内に組み込むこと、及び、

該非遷移金属ハロゲン化物を該収着剤に適用して、該非遷移金属ハロゲン化物を該遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させ、それにより該収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物を生成すること、

30

を含んでなる方法。

【請求項 24】

前記収着剤の前記微細構造内に非遷移金属塩がさらに形成され、そして

前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することをさらに含む、請求項 23 記載の方法

。

【請求項 25】

前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することは、

溶媒を使用して前記収着剤から前記非遷移金属塩を溶解することを含む、請求項 24 記載の方法。

40

【請求項 26】

前記溶媒は、水、メタノール、エタノール又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 25 記載の方法。

【請求項 27】

前記非遷移金属ハロゲン化物は、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類金属ハロゲン化物、アンモニウムハロゲン化物のうち少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 23～26 のいずれか 1 項記載の方法。

【請求項 28】

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属硝酸塩を含む、請求項 23～27 のいずれか 1 項記載の方法。

50

## 【請求項 29】

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は、遷移金属硫酸塩、遷移金属亜硫酸塩、遷移金属亜硝酸塩、遷移金属硝酸塩、金属酢酸塩、遷移金属塩素酸塩、遷移金属過塩素酸塩のうちの少なくとも1つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 23 ~ 28 のいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 30】

前記収着剤は活性炭を含み、

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は硝酸銀 (AgNO<sub>3</sub>) を含み、

前記非遷移金属ハロゲン化物はヨウ化カリウム (KI) であり、そして

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 (AgI) であり、そして

前記遷移金属非ハロゲン化物塩と非遷移金属ハロゲン化物との反応は：



を含む、請求項 23 記載の方法。

10

## 【請求項 31】

前記 SPC は元素硫黄 (S) を含む、請求項 23 ~ 30 のいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 32】

前記遷移金属は銀 (Ag) である、請求項 23 ~ 31 のいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 33】

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は溶液として前記収着剤に適用される、請求項 23 ~ 32 のいずれか1項記載の方法。

20

## 【請求項 34】

前記溶液は、前記溶液を前記収着剤上にスプレーすること、前記収着剤を前記溶液に浸漬すること、又はそれらの任意の組み合わせによって適用される、請求項 33 記載の方法。

## 【請求項 35】

前記溶液は、水中に1ミリモル/L ~ 100ミリモル/Lの遷移金属非ハロゲン化物塩を含む、請求項 31 又は請求項 34 記載の方法。

## 【請求項 36】

遷移金属ハロゲン化物と硫黄とを含む収着性ポリマー複合材 (SPC) を得、そして

水銀を含むガスを流して該 SPC と接触させ、該遷移金属ハロゲン化物が触媒として作用する水銀と硫黄との触媒反応によって硫化水銀 (HgS) を形成させる、方法。

30

## 【請求項 37】

前記遷移金属ハロゲン化物は銀 (Ag) を含む、請求項 36 記載の方法。

## 【請求項 38】

前記ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間行われ、前記 SPC の銀 (Ag) の濃度は少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項 37 記載の方法。

## 【請求項 39】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ素又はヨウ化物 (I) を含む、請求項 36 記載の方法。

## 【請求項 40】

前記ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間行われ、

前記 SPC のヨウ素又はヨウ化物 (I) の濃度は、少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項 39 記載の方法。

40

## 【請求項 41】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 (AgI) を含む、請求項 36 記載の方法。

## 【請求項 42】

前記ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間行われ、

前記 SPC のヨウ化銀 (AgI) の濃度は、少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項 41 記載の方法。

## 【請求項 43】

50

前記ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間行われ、

前記SPCの銀(Ag)の濃度は、少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項41記載の方法。

【請求項44】

前記ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間行われ、

前記SPCの銀(Ag)の濃度は、少なくとも6ヶ月全体を通して減少しない、請求項41記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

関連出願への相互参照

本出願は、2021年9月17日に提出された仮出願第63/245,596号の利益を主張し、その全体があらゆる目的で参照により本明細書に組み込まれる。

【0002】

本開示は、一般に、ガス流から化合物及び微粒子状物質を除去するための汚染制御デバイス及び方法に関する。

【背景技術】

【0003】

石炭火力発電所、都市廃棄物焼却施設及び製油所は、硫酸化物(SO<sub>2</sub>及びSO<sub>3</sub>)、窒素酸化物(NO、NO<sub>2</sub>)、水銀(Hg)蒸気、粒子状物質(PM)などの実質的に多種多量の環境汚染物を含む大量の排ガスを生成する。工業排ガスから水銀蒸気及び微粒子状物質を除去する方法を改善する必要がある。

【発明の概要】

【0004】

本明細書に開示される実施形態のいずれか又はすべての部分は、任意の実施形態の他の部分と組み合わせることができる。

【0005】

幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材(SPC)はポリマー及び収着剤、ならびに遷移金属ハロゲン化物を含み、遷移金属ハロゲン化物は収着剤の微細構造内に存在する。幾つかの実施形態において、SPCは硫黄を含む。幾つかの実施形態において、硫黄は元素硫黄を含む。幾つかの実施形態において、硫黄は元素硫黄である。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて0.1wt%~20wt%の範囲の量で存在する。

【0006】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は遷移金属塩化物を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は遷移金属臭化物を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は遷移金属フッ化物を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は遷移金属ヨウ化物を含む。

【0007】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はニッケルを含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は鉛を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は銅を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はマンガンを含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は鉄を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は水銀を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は白金を含む。

【0008】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は銀(Ag)を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ素又はそのイオン形態であるヨウ化物(I)を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀(AgI)を含む。

。

10

20

30

40

50

## 【0009】

幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用（すなわち、少なくともSO<sub>2</sub>を含む排ガスに暴露される）のために構成され、銀（Ag）の濃度は少なくとも6カ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するために少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度は少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して減少しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に減少しない。

## 【0010】

10

幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、ヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、ヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して減少しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、ヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に減少しない。

## 【0011】

20

幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度及びヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6か月の運転使用全体を通して実質的に変化しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度及びヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して減少しない。幾つかの実施形態において、SPCは、水銀（Hg）と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀（Ag）の濃度及びヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は、少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に減少しない。

## 【0012】

30

「実質的に変化しない」という用語は、本明細書で使用されるときに、開始値の±10%の範囲内にある、開始値からのおおよその値の変化を表す。「実質的に減少しない」という用語は、本明細書で使用されるときに、開始値からのおよその値の変化が最大で-10%の変化であることを表す。

## 【0013】

幾つかの実施形態において、収着剤は、遷移金属硝酸銀（AgNO<sub>3</sub>）の非ハロゲン化物塩に対して、23で1,765ミリモル/L以上の吸着容量ラングミュア等温パラメータq<sub>m</sub>を有する。

## 【0014】

幾つかの実施形態において、ポリマーはフルオロポリマーを含む。幾つかの実施形態において、ポリマーはポリテトラフルオロエチレン（PTFE）を含む。

40

## 【0015】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は、SPCの総質量に基づいて、SPC中に0.1wt%～20wt%の量で存在する。

## 【0016】

幾つかの実施形態において、収着剤は、活性炭、シリカゲル、ゼオライト又はそれらの任意の組み合わせを含む。幾つかの実施形態において、収着剤は活性炭を含む。幾つかの実施形態において、活性炭は炭素源に由来し、該炭素源は石炭、褐炭、木材、ココナツシエル又はそれらの任意の組み合わせを含む。

## 【0017】

幾つかの実施形態において、SPCは元素硫黄をさらに含み、収着剤は活性炭を含み、

50

遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 ( A g I ) である。

【 0 0 1 8 】

幾つかの実施形態において、本出願は次の式を特徴とする。

遷移金属非ハロゲン化物塩 + 非遷移金属ハロゲン化物 遷移金属ハロゲン化物 + 非遷移金属非ハロゲン化物塩

【 0 0 1 9 】

幾つかの実施形態において、本出願は次の式を特徴とする。



【 0 0 2 0 】

方法の幾つかの実施形態において、方法は、ポリマー及び収着剤を含む収着性ポリマー複合材 ( S P C ) を得ること、遷移金属非ハロゲン化物塩を得ること、非遷移金属ハロゲン化物を得ること、前記遷移金属非ハロゲン化物塩を前記収着剤に適用して、前記遷移金属非ハロゲン化物塩を前記収着剤の微細構造内に組み込むこと、及び、前記非遷移金属ハロゲン化物を前記収着剤に適用して、前記非遷移金属ハロゲン化物を前記遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させ、それによって前記収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物を生成することを含む。

10

【 0 0 2 1 】

この方法の幾つかの実施形態において、非遷移金属塩も前記収着剤の微細構造内に生成され、この方法は、前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することをさらに含む。この方法の幾つかの実施形態において、前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することは、溶媒を使用して前記収着剤から前記非遷移金属塩を溶解することを含む。

20

【 0 0 2 2 】

この方法の幾つかの実施形態において、溶媒は水を含む。この方法の幾つかの実施形態において、溶媒はアルコールを含む。この方法の幾つかの実施形態において、溶媒は、水、アルコール又はそれらの組み合わせのうち少なくとも1つを含む。幾つかの実施形態において、アルコールは、メタノール、エタノール又はそれらの組み合わせを含む。この方法の幾つかの実施形態において、溶媒は、水、メタノール、エタノールのうち少なくとも1つ又はそれらの組み合わせを含む。

【 0 0 2 3 】

幾つかの実施形態において、非遷移金属ハロゲン化物はアルカリ金属ハロゲン化物を含む。幾つかの実施形態において、非遷移金属ハロゲン化物は、アルカリ土類金属ハロゲン化物を含む。幾つかの実施形態において、非遷移金属ハロゲン化物はハロゲン化アンモニウムを含む。幾つかの実施形態において、非遷移金属ハロゲン化物は、少なくともリチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム又はフランシウムを含む。

30

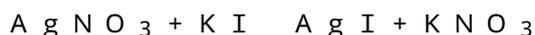
【 0 0 2 4 】

幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属硫酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属亜硫酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属亜硝酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属硝酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属酢酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属塩素酸塩を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属過塩素酸塩を含む。

40

【 0 0 2 5 】

この方法の幾つかの実施形態において、収着剤は活性炭を含む。ここで、遷移金属非ハロゲン化物塩は硝酸銀 ( A g N O \_ 3 ) を含み、非遷移金属ハロゲン化物はヨウ化カリウム ( K I ) であり、遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 ( A g I ) であり、遷移金属非ハロゲン化物塩と非遷移金属ハロゲン化物との反応は以下を含む。得られる非遷移金属塩は硝酸カリウム ( K N O \_ 3 ) である。



【 0 0 2 6 】

50

幾つかの実施形態において、方法は、ポリマーを得ること、及び、収着剤とポリマーから収着性ポリマー複合材（SPC）を形成することをさらに含む。この方法の幾つかの実施形態において、ポリマーはポリテトラフルオロエチレン（PTFE）を含む。

【0027】

幾つかの実施形態において、方法は、硫黄を得ること、及び、硫黄をSPCに組み込むことをさらに含む。この方法の幾つかの実施形態において、SPCは元素硫黄（S）を含む。この方法の幾つかの実施形態において、遷移金属は銀（Ag）である。

【0028】

この方法の幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は溶液として収着剤に適用される。この方法の幾つかの実施形態において、溶液は、溶液を収着剤上にスプレーすること、収着剤を溶液に浸漬すること、又はそれらの任意の組み合わせによって適用される。

10

【0029】

この方法の幾つかの実施形態において、溶液は、水中に1ミリモル/L～100ミリモル/Lの遷移金属非ハロゲン化物塩を含む。

【0030】

幾つかの実施形態において、方法は、遷移金属ハロゲン化物及び硫黄を含む収着ポリマー複合材（SPC）を得ること、及び、水銀を含むガスを流してSPCと接触させることを含み、それにより、水銀と硫黄の触媒反応によって硫化水銀（HgS）が生成され、遷移金属が触媒として作用する。この方法の幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は銀（Ag）を含む。この方法の幾つかの実施形態において、ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間操作され、SPCの銀（Ag）の濃度は少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない。この方法の幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ素又はヨウ化物（I）を含む。この方法の幾つかの実施形態において、ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間操作され、SPCのヨウ素又はヨウ化物（I）の濃度は少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない。この方法の幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀（AgI）を含む。この方法の幾つかの実施形態において、ガスを流すことは少なくとも6ヶ月間操作され、SPCのヨウ化銀（AgI）の濃度は少なくとも6ヶ月全体を通して実質的に変化しない。

20

【図面の簡単な説明】

30

【0031】

本開示の一部を形成し、本明細書で説明されるシステム及び方法が実施されうる実施形態を示す添付図面を参照する。

【0032】

【図1】図1は、本開示の幾つかの実施形態による、排ガス処理ユニットの概略図を示す。

【0033】

【図2A】図2Aは、本開示の幾つかの実施形態による、収着性ポリマー複合材の簡略図である。

【図2B】図2Bは、本開示の幾つかの実施形態による、収着性ポリマー複合材の簡略図である。

40

【0034】

【図3】図3は、方法の幾つかの実施形態によるフローチャートである。

【0035】

【図4】図4は、方法の幾つかの実施形態によるフローチャートである。

【0036】

【図5】図5は、方法の幾つかの実施形態によるフローチャートである。

【0037】

【図6】例1及び2のラングミュア等温線決定グラフを示す。

【0038】

50

【図 7】図 7 は、例 3、4 及び 5 の水銀除去効率試験のデータを示す。

【0039】

【図 8】図 8 は、例 5、6 及び 7 の水銀除去効率試験のデータを示す。

【0040】

【図 9】図 9 は、例 6 の実験室耐久性試験のデータを示す。

【0041】

【図 10】図 10 は、例 8 の実験室耐久性試験のデータを示す。

【0042】

【図 11】図 11 は、例 8 のフィールド耐久性試験のデータを示す。

【0043】

【図 12】図 12 は、例 A、B 及び HgO 粉末の XANES グラフを示す。

【0044】

【図 13】図 13 は、図 12 の XANES スペクトルの導関数を示す。

【0045】

【図 14】図 14 は、例 C、D、E 及び HgS 粉末の XANES グラフを示す。そして

【0046】

【図 15】図 15 は、図 14 の XANES スペクトルの導関数を示す。

【0047】

同様の参照番号は、全体を通して同じ又は類似の部分を表す。

【発明を実施するための形態】

【0048】

開示された利点及び改良点のうち、本開示の他の目的及び利点は、添付の図面と併せて行われる以下の説明から明らかになるであろう。本開示の詳細な実施形態は本明細書に開示される。しかしながら、開示された実施形態は、様々な形態で具体化されうる本開示の単なる例示にすぎないことを理解されたい。さらに、本開示の様々な実施形態に関して与えられた各例は、例示を目的とするものであり、限定するものではない。本開示のすべての実施形態は、本開示の範囲又は主旨から逸脱することなく組み合わせることができるように意図されている。

【0049】

本明細書で使用されるときに、「排ガス (flue gas)」とは、燃焼プロセス (限定されないが、石炭燃焼プロセスなど) の少なくとも 1 つの副生成物を含むガス状混合物を指す。幾つかの実施形態において、排ガスは完全に燃焼プロセスの副生成物からなることができる。幾つかの実施形態において、排ガスは、燃焼プロセスから生じる濃度と比較して高濃度の少なくとも 1 つのガスを含むことができる。幾つかの実施形態において、排ガスは、燃焼プロセスから出てくる少なくとも 1 つのガスの初期濃度と比較して、より低い濃度の少なくとも 1 つのガスを含むことができる。これは、例えば、燃焼後に少なくとも 1 つのガスの少なくとも一部を除去することによって起こりうる。幾つかの実施形態において、排ガスは、複数の燃焼プロセスの副生成物の組み合わせであるガス状混合物の形態をとることがある。

【0050】

本明細書で使用されるときに、用語「収着剤」は、吸収、吸着又はそれらの組み合わせのうちの少なくとも 1 つによって別の物質の分子を収集する特性を有する物質を意味する。

【0051】

本明細書で使用されるときに、「複合材」という用語は、異なる物理的又は化学的特性を有する 2 つ以上の構成材料を含み、それらを組み合わせると、個々の構成要素とは異なる特性を有する材料が得られる材料を指す。

【0052】

本明細書で使用されるときに、「収着性ポリマー複合材」(SPC) は、収着剤とポリマーを含む複合材である。実施形態において、収着性ポリマー複合材は、ポリマーの微細

10

20

30

40

50

構造中に組み込まれた収着剤粒子を含むことができる。

【0053】

本開示の幾つかの実施形態はデバイスに関する。図1は、本開示の幾つかの非限定的な実施形態による例示的なデバイスの概略図を示す。図示のように、燃焼器からの排ガス10の流れは、熱交換器によって温度を下げられ、電気集塵機又はバッグハウス11に導入されうる。幾つかの実施形態において、処理された排ガス流は、処理ユニット12によってさらに温度を下げるることができる。幾つかの実施形態において、処理ユニット12は、ガス湿度をさらに増加させる水スプレーを含む。幾つかの実施形態において、処理された排ガスは、本開示の幾つかの実施形態による収着性ポリマー複合材100を含む収着剤ハウジング13に導入される。幾つかの実施形態において、収着剤ハウスは、石灰石スクラ  
10  
パーの頂部に都合よく配置されうる。幾つかの実施形態において、処理された排ガス10中の金属蒸気は、収着性ポリマー複合材100上に吸収される。幾つかの実施形態において、追い出された硫酸は酸リザーバ14に滴下することができる。幾つかの実施形態において、処理された排ガスは収着剤ハウジング13を出て、スタック15を出る。したがって、幾つかの実施形態において、本明細書で使用されるときに、「運転使用」は、少なくともSO<sub>2</sub>を含む排ガスにさらされる、収着剤ハウジング13の一部として処理ユニット12内での使用を意味する。

【0054】

図2Aは、本明細書に記載の収着性ポリマー複合材100の非限定的な実施形態を断面図で示している。この非限定的な実施形態において、収着性ポリマー複合材100は、ポリマー101を部分的又は完全に覆う収着剤102を含む。幾つかの非限定的な実施形態において、遷移金属ハロゲン化物103（本明細書に記載のとおり）は、収着剤102の部分部分を部分的又は完全に覆うことができる。幾つかの実施形態において、収着剤102は炭素を含む。幾つかの実施形態において、収着剤102粒子は活性炭粒子であることができる。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物103は、収着剤102の細孔に吸収されうる。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物103は、収着剤102に吸着されうる。幾つかの実施形態において、収着剤102は、微細構造中に遷移金属ハロゲン化物103を含む又は有する微細構造を有する。遷移金属ハロゲン化物103は、少なくとも、塩化ニッケル、塩化鉛、塩化第一銅、塩化マンガン、塩化第一鉄、塩化第二水銀、塩化銀、塩化白金、臭化ニッケル、臭化鉛、臭化第一銅、臭化マンガン、臭化第一鉄、臭化第二水銀、臭化銀、臭化白金、フッ化ニッケル、フッ化鉛、フッ化第一銅、フッ化マンガン、フッ化第一鉄、フッ化第二水銀、フッ化銀、フッ化白金、ヨウ化ニッケル、ヨウ化鉛、ヨウ化第一銅、ヨウ化マンガン、ヨウ化第一鉄、ヨウ化第二水銀、ヨウ化銀、ヨウ化白金又はそれらの任意の組み合わせであることができる。  
20  
30

【0055】

図2Bは、本明細書に記載される収着性ポリマー複合材100の追加の非限定的な実施形態を示す。図示されるように、収着性ポリマー複合材料100は、ポリマーの微細構造201に組み込まれた収着剤202粒子を含むことができる。幾つかの実施形態において、ポリマーの微細構造201はフィブリルを含むことができる。幾つかの実施形態において、ポリマーは延伸PTFEであることができる。  
40

【0056】

本明細書に記載される収着性ポリマー複合材のさらなる非限定的な構成は、Hardwickらの米国特許第9,827,551号明細書及びLuらの米国特許第7,442,352号明細書に記載されており、それぞれの全体が参照により本明細書に組み込まれる。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材は、米国特許第7,791,861号明細書に教示される一般的なドライブレンド法を使用して調製することができ、その全体が参照により本明細書に組み込まれる。

【0057】

幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、活性炭、シリカゲル、ゼオライト又はそれらの組み合わせを含む。幾つかの実施形態において、活性炭は、石炭  
50

由来の炭素、亜炭由来の炭素、木材由来の炭素、ココナッツ由来の炭素又はそれらの任意の組み合わせである。幾つかの実施形態において、収着剤をポリマーと組み合わせるときに、得られた混合物を延伸して、収着剤を移動させることなく多孔質構造を形成することができる。収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $400\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $600\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $800\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $1000\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $1200\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $1400\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $1600\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $1800\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材の収着剤は、 $2000\text{ m}^2/\text{g}$ を超える表面積を有する。

10

## 【0058】

幾つかの実施形態において、収着剤は、23で1ミリモル/L～10ミリモル/L、又は2ミリモル/L～10ミリモル/L、又は3ミリモル/L～10ミリモル/L、又は4ミリモル/L～10ミリモル/L、又は5ミリモル/L～10ミリモル/L、又は7ミリモル/L～10ミリモル/Lの吸着容量ラングミュア等温パラメータ $q_m$ を有することができる、あるいは収着剤はこれらの範囲に含まれる任意の値の吸着容量ラングミュア等温パラメータ $q_m$ を有することができる。

20

## 【0059】

収着性ポリマー複合材のポリマーは、ポリフルオロエチレンプロピレン(PFEP)、ポリペフルオロアクリレート(PPFA)、ポリフッ化ビニリデン(PVDF)、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデンのターポリマー(THV)もしくはポリクロロトリフルオロエチレン(PCFE)の少なくとも1つ又はそれらの組み合わせである。幾つかの実施形態において、ポリマーはポリテトラフルオロエチレン(PTFE)である。幾つかの実施形態において、ポリマーは延伸ポリテトラフルオロエチレン(ePTFE)である。幾つかの実施形態において、ポリマーの構造は、延伸すると、ポリマーのフィブリルとノードとの間に空隙を形成できるように多孔質になる可能性がある。収着性ポリマー複合材料のポリマーは31ダイン/cm未満の表面エネルギーを有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材のポリマーは30ダイン/cm未満の表面エネルギーを有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材料のポリマーは25ダイン/cm未満の表面エネルギーを有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材料のポリマーは20ダイン/cm未満の表面エネルギーを有する。幾つかの実施形態において、収着性ポリマー複合材料のポリマーは15ダイン/cm未満の表面エネルギーを有する。

30

## 【0060】

幾つかの実施形態において、SPCは、ポリマー、収着剤及び遷移金属ハロゲン化物を含み、遷移金属ハロゲン化物は収着剤の微細構造内に存在する。

40

## 【0061】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は、以下の遷移金属元素のうち少なくとも1つ：

ニッケル、鉛、銅、マンガン、鉄、水銀、銀又は白金を含み、

そして次のハロゲン化物の少なくとも1つ：

塩化物、臭化物、フッ化物又はヨウ化物を含む。

## 【0062】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は、SPCの総質量に基づいて0.1wt%～1wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は、SPCの総質量に基づいて0.1wt%～2wt%の範囲の量で存在する。

50























硫黄は、SPCの総質量に基づいて14wt%～19wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて14wt%～20wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて15wt%～16wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて15wt%～17wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて15wt%～18wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて15wt%～19wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて15wt%～20wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて16wt%～17wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて16wt%～18wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて16wt%～19wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量

10

に基づいて16wt%～20wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて17wt%～18wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて17wt%～19wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて17wt%～20wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて18wt%～19wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて18wt%～20wt%の範囲の量で存在する。幾つかの実施形態において、硫黄は、SPCの総質量に基づいて19wt%～20wt%の範囲の量で存在する。

20

#### 【0064】

幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物は銀(Ag)を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ素(I)を含む。幾つかの実施形態において、遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀(AgI)を含む。幾つかの実施形態において、収着剤は活性炭を含む。

#### 【0065】

幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩の溶液を調製又は取得し、遷移金属非ハロゲン化物塩を収着剤に適用して、収着剤の微細構造内に遷移金属非ハロゲン化物塩を組み込む。次いで、非遷移金属ハロゲン化物を収着剤に適用して、非遷移金属ハロゲン化物を遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させる。この反応により、収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物が生成される。

30

#### 【0066】

等温線を測定し、ラングミュア等温パラメータ $q_m$ 及び $B$ を決定するために、遷移金属非ハロゲン化物塩の溶液を、ある所定の濃度で調製することができる。収着剤サンプルを小片に切断し、アルコールで湿らせることができる。次に、湿ったサンプルのそれぞれを、特定の温度で調製された溶液のそれぞれに浸すことができる。しばらくしてからサンプルを乾燥させ、乾燥サンプルのSEM(走査型電子顕微鏡写真)画像のエネルギー分散型X線分光法(EDX)を使用して遷移金属含有量を定量化できる。EDXは、電子ビームがサンプルに衝突し、サンプルの電子にエネルギーシフトを引き起こす分析技術である。このシフトにより、サンプルはX線信号を放出し、サンプルの元素組成の識別が可能になる。シグナルは、標的成分の相対濃度を反映する光強度でサンプルの画像において観察される。得られたデータは、溶液中の遷移金属含有量対遷移金属非ハロゲン化物塩濃度のグラフにプロットでき、以下に従ってラングミュア等温線に当てはめることができる。

40

#### 【数1】

50

$$\theta = \frac{q}{q_m} = \frac{B * C}{1 + B * C}$$

ラングミュア p パラメータ、 $q_m$  及び  $B$  は曲線近似から抽出される。

【0067】

幾つかの実施形態において、本出願は次の式を特徴とする。

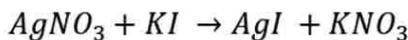
遷移金属非ハロゲン化物塩 + 非遷移金属ハロゲン化物 遷移金属ハロゲン化物 + 非遷移金属非ハロゲン化物塩

10

【0068】

幾つかの実施形態において、本出願は次の式を特徴とする。

【化1】



【0069】

幾つかの実施形態によれば、 $AgI$  は収着剤の微細構造（例えば、収着剤の炭素）に組み込まれることになる。しかしながら、 $AgI$  はこの組み込みを容易に達成できるほど容易に可溶性でない。図3～5に示されるように、 $AgI$  のこの組み込みを達成するための方法の実施形態は開示されている。幾つかの実施形態において、炭素微細構造内の化学反応を使用して、 $AgI$  を収着剤の微細構造に組み込む。化学反応により、両方の試薬である遷移金属非ハロゲン化物塩及び非遷移金属ハロゲン化物が炭素に輸送される。幾つかの実施形態において、化学反応は、可溶性遷移金属非ハロゲン化物塩を選択することを含む。幾つかの実施形態において、硝酸銀（ $AgNO_3$ ）が「水溶性」遷移金属非ハロゲン化物塩として選択される。幾つかの実施形態において、 $AgNO_3$  の高い水溶解度が化学反応にとって重要となりうる。

20

【0070】

幾つかの実施形態において、遷移金属非ハロゲン化物塩は溶媒（例えば、 $AgNO_3$  に対して水）と混合され、収着剤の炭素微細構造に適用される。 $AgNO_3$  は単に微細構造に吸収されうるだけでなく、収着剤に強く吸着されうる。これにより、その後の炭素の微細構造の表面上での  $KI$  との化学反応が促進されうる（溶媒内での反応ではなく、生成された  $AgI$  の少なくとも一部が炭素の微細構造の外側に生じることができる）。

30

【0071】

$KI$  は非遷移金属ハロゲン化物の例である。幾つかの実施形態による非遷移金属ハロゲン化物の特性には、非遷移金属ハロゲン化物が収着剤の炭素の微細構造に輸送されることができる「水溶性ハロゲン化物」種であることが含まれ、それは、続いて、吸着した  $AgNO_3$  と反応することができる。幾つかの例において、「非遷移金属ハロゲン化物」群の材料は、アンモニウム、第I族又は第II族ハロゲン化物を含む。これらの塩はすべて水溶性であるか、又はアルコール（例えば、メタノール、エタノール又はそれらの組み合わせ）に可溶である。幾つかの実施形態において、カチオンの選択における考慮事項は、そのカチオンのハロゲン化物塩が水又はアルコール（例えば、メタノール、エタノール又はそれらの組み合わせ）に可溶であることができることである。幾つかの実施形態による別の考慮事項は、副生成物（例えば、この例では、副生成物は  $KNO_3$ ）の溶解度であることができる。 $KNO_3$  は、上記の化学反応の「副生成物」である。 $KNO_3$  は、事実上すべての硝酸塩と同様に可溶性である。したがって、「副生成物」は、洗浄することによって、又は動作中に  $SPC$  内で生成される酸に単に溶解することによって容易に除去することができる。「非遷移金属塩」の組成は、使用する試薬によって異なる。

40

【0072】

50

幾つかの実施形態において、A g I は上述の化学反応の「生成物」である。幾つかの実施形態において、A g I は遷移金属ハロゲン化物である。A g I は水に不溶であり、水を溶媒として使用して炭素の微細構造から抽出することができない。

【0073】

上記の実施形態は迅速に（事実上瞬時に）反応し、硫黄を含有する S P C の微細構造への組み込みにより、水銀捕捉効率が大幅に向上する。

【0074】

図3は方法300の幾つかの実施形態によるフローチャートを示し、この方法は、ポリマー及び収着剤を含む収着性ポリマー複合材（S P C）を得ること302、及び、遷移金属非ハロゲン化物塩を得ること304及び非遷移金属ハロゲン化物を得ること306を含む。これらの工程302、304、306は任意の順序で実行することができる。方法300は、遷移金属非ハロゲン化物塩を収着剤に適用して、遷移金属非ハロゲン化物塩を収着剤の微細構造内に組み込むこと308、次いで、非遷移金属ハロゲン化物を収着剤に適用し（工程308の後）、非遷移金属ハロゲン化物を、収着剤の微細構造内に組み込まれている遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させることにより、収着剤の微細構造内で遷移金属ハロゲン化物を生成すること310をさらに含む。

10

【0075】

図4は、幾つかの実施形態による別のフローチャートを示し、方法400は、図3に示される方法300に加えて、非遷移金属塩も収着剤の微細構造内で生成されることをさらに含み、したがって、方法400は、収着剤から非遷移金属塩を除去すること402をさらに含む。

20

【0076】

図5は、幾つかの実施形態による別のフローチャートを示し、方法500は、図3に示される方法300に加えて、非遷移金属塩も収着剤の微細構造内で生成されることさらに含み、したがって、方法500は、収着剤から非遷移金属塩を除去すること502をさらに含み、収着剤から非遷移金属塩を除去すること502は、溶媒を使用して収着剤から非遷移金属塩を溶解すること504を含む。

【0077】

S P C の幾つかの実施形態において、ヨウ化銀担持炭素は、硝酸銀溶液を炭素に導入することによって調製することができ、ここで、硝酸銀分子は炭素上に吸収される。続いて、ヨウ化カリウム溶液を炭素に導入することができ、ここで、炭素細孔上の硝酸銀分子は次の反応に従ってヨウ化カリウム分子と相互作用する。

30



【0078】

上記の反応は速度論的に速く（ほぼ瞬時に）起こる。反応後に、A g I と K N O<sub>3</sub> が炭素細孔上又は炭素細孔内に生成される。次に、K N O<sub>3</sub> は水溶性であるため、適宜に、又は必要に応じて、水を使用して K N O<sub>3</sub> を炭素から洗い流すか又は除去することができる。

【実施例】

【0079】

以下の例は、本明細書に開示される様々な実施形態の動作機能が理解されることを保証するために提供される。保護範囲は、以下に示す様々な例によって必ずしも限定されるわけではない。

40

【0080】

装填方法の例：

【0081】

装填方法の例：A g I 装填方法1

非限定的な例において、0.724 g の硝酸銀（A g N O<sub>3</sub>）を15 mL の脱イオン（D I）水と混合することによって第一の溶液を調製した。第二の溶液は、0.707 g のヨウ化カリウム（K I）を15 mL の脱イオン水と混合することによって調製された。A

50

g  $\text{NO}_3$  と  $\text{KI}$  との量は、炭素粉末上に 1 wt % の  $\text{AgI}$  装填量を達成するように計算された。他の wt % の添加量を達成するために、硝酸銀及びヨウ化カリウムの量を調整することができる。100 g の活性炭粉末をタンブラードラム反応器チャンバに入れ、50 rpm でタンプリングした。硝酸銀を含む第一の溶液は、炭素粉末のタンプリング中に炭素上にゆっくりとスプレーされた。約 10 分間タンプリングした後に、ヨウ化カリウムを含む第二の溶液をゆっくりとカーボン上にスプレーした。両方の溶液の適用後に、タンブラードラム反応器チャンバをさらに 20 分間タンプリングした。次に、炭素粉末を含浸チャンバから取り出し、100 のオーブンで 24 時間乾燥させた。

#### 【0082】

装填方法の例： $\text{AgI}$  装填方法 2

別の非限定的な例において、第一の溶液は、7.24 g の硝酸銀 ( $\text{AgNO}_3$ ) を 1800 mL の DI 水と混合することによって調製され、第二の溶液は、7.07 g のヨウ化カリウム ( $\text{KI}$ ) と 800 mL の DI 水とを混合することによって調製された。 $\text{AgNO}_3$  と  $\text{KI}$  の量は、炭素粉末上に 1 wt % の  $\text{AgI}$  装填量を達成するように計算された。他の wt % の装填量を達成するために、硝酸銀及びヨウ化カリウムの量を調整することができる。1 kg の活性炭粉末を反応チャンバに入れた。硝酸銀を含む第一の溶液を、攪拌を続けながら反応チャンバにゆっくりと加えた。さらに 60 分間攪拌した後に、攪拌を続けながら、ヨウ化カリウムを含む第二の溶液を反応チャンバにゆっくりと加えた。両方の溶液を適用した後に、反応チャンバをさらに 60 分間攪拌した。スターラを止め、炭素を 3 時間沈降させた。次に、過剰な水をスラリーからデカントし、炭素粉末を 100 のオーブンで 24 時間乾燥させた。

#### 【0083】

装填方法の例： $\text{AgI}$  装填方法 3 :

さらに別の非限定的な例において、100 g の乾燥活性炭粉末を 1 g の  $\text{AgI}$  粉末と混合して、炭素粉末上に 1 wt % の  $\text{AgI}$  装填を形成した。 $\text{AgI}$  の量は、炭素粉末上に 1 wt % の  $\text{AgI}$  装填量を達成するように計算された。 $\text{AgI}$  及び乾燥活性炭粉末の量は、他の所望の量に応じて調整することができる。

#### 【0084】

ラングミュア等温線の決定例：

#### 【0085】

非限定的な例において、幾つかの硝酸銀 ( $\text{AgNO}_3$ ) 溶液を 0 ~ 100 ミリモル/L の濃度で調製した。SPC サンプルを直径 5 mm のディスクに切断し、アルコールで湿らせた。湿ったサンプルを室温で  $\text{AgNO}_3$  溶液に各溶液に 1 つずつ浸漬した。2 日後に、サンプルを 100 で 2 時間乾燥させ、EDX を使用して乾燥サンプルの SEM 画像から銀含有量を定量化した。3 つの SEM 画像からの平均銀含有量を、その特定の  $\text{AgNO}_3$  溶液に浸漬したサンプルの銀含有量として平均した。得られたデータを、銀含有量対溶液中の硝酸銀濃度のグラフにプロットし、上記式に従ってラングミュア等温線に当てはめ、曲線当てはめからラングミュアパラメータ  $q_m$  及び  $B$  を抽出した。

#### 【0086】

開示された実施形態の有効性を決定するために、水銀蒸気除去に関する非限定的な例示的な試験を実施した。これらの試験の性能において、非限定的な試験装置を使用した。試験装置は、例えば、以下のものを含む。

- (1) 質量フローコントローラによって調整されるエアサプライ、
- (2) 水銀透過管を備えた DYNACALIBRATOR 校正ガス発生器 (VICI Metronics, Inc.、米国ワシントン州ポールズポ) を介した少量の窒素パージによって生成される水銀源、
- (3) 質量フローコントローラによって調整される、窒素中の 2%  $\text{SO}_2$  ガス混合物から得られる  $\text{SO}_2$ 、及び、
- (4) バイパスが取り付けられそして 60 に維持されたオーブン内に配置される、辺長さが 12 mm である 300 mm の三角形のサンプルセル、

10

20

30

40

50

(5) 総水銀濃度、元素水銀濃度及びイオン水銀濃度を測定できる Tekran 3300 水銀分析装置 (Tekran Instruments Corporation、カナダ、トロント) による水銀検出、及び、

(6) Teledyne モデル T100H ハイレンジ UV 蛍光 SO<sub>2</sub> 分析装置 (Teledyne API、カリフォルニア州、米国) による SO<sub>2</sub> 分析装置。

【0087】

除去効率 (例えば、% 効率) は、入口レベル (サンプルをバイパスする; 濃度(入口)) と出口レベル (サンプルを通過する; 濃度(出口)) との差として決定できる。パーセント効率 (% 効率) は以下のように定義される。

$$\% \text{ 効率} = 100 \times [\text{濃度(入口)} - \text{濃度(出口)}] / [\text{濃度(入口)}]$$

10

【0088】

排ガスへの暴露に関する非限定的な例示的な試験を実施した。排ガスへの暴露は、例えば以下のものを含むことができる試験装置を使用してシミュレートできる。

(1) 質量フローコントローラによって調整されるエアサプライ、

(2) 質量フローコントローラによって調整される、窒素中の 1% SO<sub>2</sub> ガス混合物から得られる SO<sub>2</sub>、

(3) バイパスが取り付けられそして 55 に維持されたオープン内に配置される、辺長さが 12 mm である 300 mm の三角形のサンプルセル、

(4) オープンの外部に設置された MH-070 浸透管加湿器 (PermaPure、ニュージャージー州、米国) を使用して 80% を超える高い相対湿度を維持しながら行う

20

【0089】

様々な例示的なサンプルの除去効率を決定するために、サンプルを、785 mg/m<sup>3</sup> の SO<sub>2</sub> を含み、湿度 90% を備えたシミュレートされる排ガス流に、総空気流量 1 標準リットル/分で暴露した。

【0090】

およそ月に 1 回 (例えば、30 日ごと)、サンプルを採取し、蛍光 X 線 (「XRF」) によってヨウ素含有量を分析した。ヨウ素含有量を経時的に追跡した。

【0091】

排ガス耐久性に関する非限定的な例示的な試験は、石炭火力発電所の湿式排ガス脱硫吸収装置のスリップ流からの流出ガスに様々なサンプルを暴露することによって実行された。様々な試験サンプルを、例えば、限定するわけではないが、最大 2 つの構成で排ガスに暴露した。

30

【0092】

第一の構成において、最大 6 枚の 3.5 インチ × 12 インチ (8.89 cm × 30.48 cm) の SPC サンプルシートをロッドで支えてシートを横切る流れが妨げられないようにして、3.5 インチ × 3.5 インチ × 40 インチ (8.89 cm × 8.89 cm × 101 cm) 絶縁サンプル固定具に取り付けた。サンプルは、ファンによって一連のパイプを通してサンプル固定具に約 80 ACFM (137 m<sup>3</sup>/hr) の排ガスを引き込むことによって暴露された。

40

【0093】

第二の構成において、1.25 インチ × 12 インチ (3.175 cm × 30.48 cm) の SPC ストリップを 2' × 2' × 1' (61 cm × 61 cm × 30 cm) のフレーム固定具に取り付けた。ストリップの上部及び下部は、最大 100 枚のストリップを保持できるフレームのレールに沿って所定の位置に固定された。フレームを横切る妨げられない流れを提供するために、レールを 2 インチ (50 mm) 離して配置した。フレームを、2.1 フィート × 2.1 フィート × 8 フィート (0.66 m × 0.66 m × 2.4 m) の断熱パイロットタワー ユニットに挿入した。サンプルは、ファンによって約 2880 ACFM (4860 m<sup>3</sup>/hr) の排ガスを吸引することによって暴露された。

【0094】

50

両方の場合に、サンプル固定具を横切る流量及び圧力差をモニタリングした。排ガスの組成は非常に多様であったが、排ガスの典型的な組成は、水銀濃度  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $\text{SO}_2$  濃度  $20 \sim 40 \text{ ppm}$ 、 $\text{O}_2$  濃度  $6\%$ 、 $\text{NO}$  濃度  $200 \text{ ppm}$  を備え、相対湿度は  $> 95\%$  であった。流出ガスの温度は、典型的に  $50 \sim 55$  であった。

【0095】

およそ月に1回（例えば、30日ごと）、サンプルを採取し、XRFによってヨウ素含有量を分析した。ヨウ素含有量を経時的に追跡した。

【0096】

サンプル：

【0097】

例1 - 収着評価用の AgI を含まない SPC テープ

【0098】

55 wt % の木質活性炭 (NUCHAR SA - 20、Ingevity、サウスカロライナ州、米国) と 45 wt % の PTFE (SPC の合計 wt % に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合法を使用して調製して、複合材サンプルを形成した。

【0099】

例2 - 収着評価用の AgI を含まない SPC テープ

【0100】

75 wt % の石炭系活性炭 (Norit PAC - 20B、Cabot Inc.、テキサス州、米国) と 25 wt % の PTFE (SPC の合計 wt % に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合法を用いて調製して、複合材サンプルを形成した。

【0101】

例3 - 木質炭素を含む SPC テープ

【0102】

木質活性炭 (NUCHAR SA - 20、Ingevity、サウスカロライナ州、米国) に、例示的な AgI 装填方法 1 を使用して 1 wt % のヨウ化銀 (AgI) を含浸させた。次に、53 wt % の上述の AgI 担持活性炭、42 wt % の PTFE 及び 5 wt % の硫黄 (SPC の総質量 % に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合法を使用して調製して複合材サンプルを形成した。

【0103】

例4 - 石炭系炭素を含む SPC テープ 1

【0104】

石炭系活性炭 (Norit Vapure 612、Cabot Inc.、テキサス州、米国) に、例示的な AgI 装填方法 1 を使用して 1 wt % のヨウ化銀 (AgI) を含浸させた。次に、72 wt % の上記の AgI 含浸活性炭、22 wt % の PTFE 及び 6 wt % の硫黄 (SPC の総質量 % に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合法を使用して調製して複合材サンプルを形成した。

【0105】

例5 - 石炭系炭素を含む SPC テープ 2

【0106】

石炭系活性炭 (Norit PAC - 20B、Cabot Inc.、テキサス州、米国) に、例示的な AgI 装填方法 1 を使用して 1 wt % のヨウ化銀 (AgI) を含浸させた。次に、72 wt % の上記の AgI 含浸活性炭、22 wt % の PTFE 及び 6 wt % の硫黄 (SPC の総質量 % に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合法を使用して調製して複合材サンプルを形成した。

10

20

30

40

50

## 【0107】

例6 - 乾燥混合 AgI を含む SPC テープ

## 【0108】

石炭系活性炭 (Norit PAC-20B、Cabot Inc.、テキサス州、米国) を、例示的な AgI 装填方法 3 を使用して 1 wt% のヨウ化銀 (AgI) 粉末と混合した。次に、72 wt% の上記 AgI 混合活性炭、22 wt% の PTFE、及び 6 wt% の硫黄 (SPC の総質量% に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示される一般的な乾式混合方法を使用して調製し、複合材サンプルを形成した。

## 【0109】

例7 - AgI を含まない SPC テープ (比較例)

## 【0110】

72 wt% の石炭系活性炭 (Norit PAC-20B、Cabot Inc.、テキサス州、米国)、22 wt% の PTFE 及び 6 wt% の硫黄 (SPC の総質量% に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書で教示されている一般的な乾式混合法を使用して調製して複合材サンプルを形成した。

## 【0111】

例8 - 石炭系炭素を含む SPC テープ 2

## 【0112】

石炭系活性炭 (Norit PAC-20B、Cabot Inc.、テキサス州、米国) に、例示的な AgI 装填方法 2 を使用して、8.22 wt% のヨウ化銀 (AgI) を含浸させた。次に、71 wt% の上記の AgI 含浸活性炭、24 wt% の PTFE、及び 6 wt% の硫黄 (SPC の総質量% に基づく) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成し、米国特許第 7,791,861 号明細書に教示されている一般的な乾式混合方法を使用して調製して複合材サンプル形成した。

## 【0113】

その他の金属ハロゲン化物の例

## 【0114】

他の幾つかの遷移金属ハロゲン化物を試験し、有効な特性があることを確認した。例えば、ヨウ化銅 (CuI) を試験し、約 30% ~ 約 70% の水銀除去効率を有することが判明した。例えば、ヨウ化第二水銀 (HgI<sub>2</sub>) を試験し、乾燥条件下 (IPA を含む 10 wt% の HgI<sub>2</sub> を吸収させた木質 SA20 炭素粉末) で 16% を超える Hg 除去効率があることが判明した。別の例において、臭化銀 (AgBr) も Hg 除去に効果的であることが判明した。1 wt% AgBr 含浸 PAC-20BF カーボンテープ試験では、Hg 除去効率は約 35% (25% 超、50% 未満) であった。別の例において、塩化銀 (AgCl) も Hg 除去に効果的であることが判明した。1 wt% AgCl を含浸させた PAC-20BF カーボンテープの試験において、Hg 除去効率は約 30% (20% 超、40% 未満) であった。

## 【0115】

図 6 は、例 1 及び例 2 のラングミュア等温決定グラフを示す。例 1 及び 2 からの SPC サンプルは、収着等温試験及び上記の方法を使用してフィッティングされたモデルを使用して評価した。図 6 は、例 1 によるサンプルのラングミュアパラメータが、 $q_m = 11.81 \text{ wt\%}$ 、 $B = 0.88 \text{ L/ミリモル}$  であったことを示している。図 6 は、例 2 によるサンプルのラングミュアパラメータが、 $q_m = 41.81 \text{ wt\%}$ 、 $B = 0.34 \text{ L/ミリモル}$  であったことを示している。さらに、曲線適合 (破線) から、遷移金属硝酸銀 (AgNO<sub>3</sub>) の非ハロゲン化物塩に対して、収着剤が 23 で 1,765 ミリモル/L 以上の吸着容量ラングミュア等温パラメータ  $q_m$  を有することが計算できる。

## 【0116】

図 7 に、例 3、4 及び 5 の水銀除去効率試験の評価データを示す。例 3 では、水銀除去

10

20

30

40

50

効率は26.4%と決定された。例4では、水銀除去効率は55.6%であると決定された。例5では、水銀除去効率は58.8%であると決定された。

【0117】

図8に、例5、6及び7の水銀除去効率試験の評価データを示す。例5では、水銀除去効率は58.8%と決定された。例6では、水銀除去効率は43.3%であると決定された。例7では、水銀除去効率は43.5%であると決定された。

【0118】

図9は、例6の実験室耐久性（模擬暴露）試験からの評価データを示す。例6の耐久性試験は132日間実施された。銀及びヨウ素の含有量を、「保持」サンプル（例えば、初期含有量又は排ガスに「暴露」されなかったサンプル）と個別に比較した。132日間の模擬暴露後でも、評価可能な銀又はヨウ素含有量の損失はないことが判明した。

10

【0119】

図10は、例8の実験室耐久性（模擬暴露）試験の評価データを示す。例8の耐久性試験は、77日、139日及び200日実施した。銀及びヨウ素の含有量を、「保持」サンプル（例えば、初期含有量又は排ガスに「暴露」されなかったサンプル）と個別に比較した。77、139及び200日間の模擬暴露後でも、評価可能な銀又はヨウ素含有量の損失はないことが判明した。

【0120】

図11は、例8のフィールド耐久試験（石炭火力発電所の湿式排ガス脱硫吸収装置のストリップ流）からの別の評価データを示す。例8の耐久試験は253日間実施した。銀及びヨウ素の含有量を、「保持」サンプル（例えば、初期含有量又は排ガスに「暴露」されなかったサンプル）と個別に比較した。保持サンプルと比較して、排ガス暴露後に評価可能な銀又はヨウ素含有量の損失がないことが判明した。

20

【0121】

銀及びヨウ素含有量の評価可能な損失がないという有利かつ予期せぬ結果は、以下のよう理解できる。

【0122】

S P Cサンプルの様々な例は、S P Cの活性炭に捕捉されている水銀の特定の種を決定するために、X線吸収近端分光法（「XANES」）を使用して試験した。XANESは、サンプルを高エネルギーX線（例えば、一般にシンクロトロンからの）に暴露し、X線エネルギーの関数としてX線吸光度を測定及び決定することを含む。近端吸収の位置と形状から、元素の酸化状態に関する情報を得ることができる。適切な標準が提供されていれば、位置と形状を未知のものを識別するためのフィンガープリントとして使用することもできる。

30

【0123】

本明細書に記載の発見は、AgIが消費されない、反応に参加しない、あるいはその両方であるという点で、AgIが他のヨウ素源（KI、TBAIなど）と比べて異なる働きを示している。むしろ、AgIは、おそらく触媒反応又はその形態への何らかの関与を介して、異なる種の水銀（例えば、HgS）を生成する。

【0124】

図12は、例A及び例BのXANESグラフと、比較としてHgO粉末のグラフを示す。

40

【0125】

例Aは、AgIをHgに暴露していない非限定的なS P Cサンプルである。この例を調製するために、76%の石炭系活性炭（Norit PAC-20B、米国テキサス州キャボット社）及び19%のPTFEを含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成した。S P Cは、一般的な乾式混合法を使用して調製された（例えば、米国特許第7791861号明細書を参照されたい）。このサンプルの直径18mmのS P Cディスクを、数滴の水銀元素（Hg）を含む密閉容器内に入れた。容器を70のオープンに1時間入れて、S P Cを水銀蒸気にさらした。処理されたサンプルの一部をXRFで分析し、約0.

50

6 w t % の水銀が含まれていることが示された。

【 0 1 2 6 】

例 B は、A g I を H g に暴露した別の非限定的な S P C サンプルである。この例を調製するために、例示的な A g I 装填方法 2 ( 上記参照 ) に従って、5 w t % のヨウ素銀 ( A g I ) を装填した 8 0 w t % の石炭系活性炭 ( N o r i t P A C - 2 0 B 、 C a b o t I n c . 、テキサス州、米国)及び 2 0 w t % の P T F E を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成した。S P C は、一般的な乾式混合法を使用して調製された ( 例えば、米国特許第 7 , 7 9 1 , 8 6 1 号明細書を参照されたい ) 。このサンプルの S P C の 6 インチ x 1 インチのストリップを、数滴の水銀元素 ( H g ) を含む密閉容器に入れた。容器を 6 0 のオープンに 6 6 時間入れて、S P C を水銀蒸気にさらした。処理されたサンプルの一部を X R F で分析し、約 0 . 6 w t % の水銀を含むことが判明した。 10

【 0 1 2 7 】

図 1 2 に示されるように、例 A 及び例 B を評価して、H g L <sub>111</sub> 端の X A N E S スペクトルを取得し、得られたスペクトルを酸化水銀 ( H g O ) の基準スペクトルと比較することにより、例に含まれる水銀種を決定した。X A N E S スペクトルは、S P C 上の水銀が比較により、主に H g O の形で存在していることを示した。活性炭に捕捉された水銀元素は、X A N E S 分析によって H g O の形であることが判明した。X A N E S スペクトルに新しい特徴が存在しないことは、A g I が H g と有意な程度まで反応しないことを示している。図 1 3 は、例 A 、例 B 及び参照 H g O スペクトルの H g L <sub>111</sub> 端の X A N E S スペクトルの導関数を示す。図 1 3 は、上記の決定に一致し、それを裏付けている。 20

【 0 1 2 8 】

図 1 4 は、例 C 、例 D 及び例 E の X A N E S グラフと、比較として H g S 粉末のグラフを示す。

【 0 1 2 9 】

例 C は、A g I を含まず、硫黄を含む、H g に暴露された別の非限定的な S P C サンプルである。この例を調製するために、7 6 w t % の石炭系活性炭 ( N o r i t P A C - 2 0 B 、 C a b o t I n c . 、テキサス州、米国)、1 9 w t % の P T F E 及び 5 w t % の硫黄 ( S ) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成した。S P C は、一般的な乾式混合法 ( 例えば、米国特許第 7 , 7 9 1 , 8 6 1 号明細書を参照されたい ) を使用して調製し、複合材サンプルを形成した。このサンプルの合計 7 つの直径 1 8 m m の S P C ディスクを、数滴の水銀元素 ( H g ) を含む密閉容器内に入れた。容器を 7 0 のオープンに 1 9 時間入れて、S P C を水銀蒸気にさらした。処理されたサンプルの一部を X R F で分析し、約 2 . 4 w t % の H g を含むことが示された。 30

【 0 1 3 0 】

例 D は、A g I 及び硫黄を含む、H g に暴露されたさらに別の非限定的な S P C サンプルである。この例を調製するために例示的な A g I 装填方法 2 に従って、5 w t % の A g I を装填した 7 6 w t % の石炭系活性炭 ( N o r i t P A C - 2 0 B 、 C a b o t I n c . 、テキサス州、米国)、1 9 w t % の P T F E 及び 5 w t % の硫黄 ( S ) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成した。S P C は、一般的な乾式混合法を使用して調製された ( 例えば、米国特許第 7 , 7 9 1 , 8 6 1 号明細書を参照されたい ) 。このサンプルの合計 7 つの直径 1 8 m m の S P C ディスクを、数滴の水銀元素 ( H g ) を含む密閉容器に入れた。容器を 7 0 のオープンに 1 9 時間入れて、S P C を水銀蒸気にさらした。処理されたサンプルの一部を X R F で分析し、約 4 . 1 w t % の H g を含むことが示された。 40

【 0 1 3 1 】

例 E は、硫黄及び A g I ( 銀含量が低い ) を含み、H g に暴露された別の非限定的な S P C サンプルである。この例を調製するために、例示的な A g I 装填方法 2 により 1 w t % の A g I を装填した 7 6 w t % の石炭系活性炭 ( N o r i t P A C - 2 0 B 、 C a b o t I n c . 、テキサス州、米国)、1 9 w t % の P T F E 及び 5 w t % の硫黄 ( S ) を含む収着性ポリマー複合材を実験室条件下で作成した。S P C は、一般的な乾式混合法 50

を使用して調製された（例えば、米国特許第 7,791,861 号明細書を参照されたい）。このサンプルの合計 7 つの直径 18 mm の SPC ディスクを、数滴の水銀元素（Hg）を含む密閉容器に入れた。容器を 70 のオープンに 165 時間入れた。処理されたサンプルの一部を XRF で分析し、約 4.6 wt% の Hg を含むことが示された。

#### 【0132】

図 14 に示すように、例 C、D 及び E を、Hg L<sub>111</sub> 端の XANES を介してどのような水銀種が含まれているかを決定するために評価した。スペクトルは硫化水銀（HgS）の参照スペクトルと比較された。例 C、D 及び E の XANES スペクトルは、SPC 上の水銀が主に HgS の形態で存在することを示した。XANES スペクトルに新しい特徴が存在しないことは、AgI が Hg と有意な程度まで反応しないことを示している。AgI に関連する可能性のある新しい水銀種の証拠は存在しなかった。図 15 は、例 C、D、E の Hg L<sub>111</sub> 端の XANES スペクトル及び参照 HgS スペクトルの導関数を示す。図 15 は、上記の決定と一致し、それを裏付けている。

#### 【0133】

驚くべきことに、Hg と AgI の反応に関する証拠はなかったが、吸収された水銀の量は例 C（2.4%）から例 D（4.1%）及び例 E（4.6%）へと劇的に増加し、AgI の強力な促進効果を示唆した。

#### 【0134】

幾つかの実施形態において、SPC は、収着剤として不活性な非炭素質担体を利用する。すなわち、幾つかの実施形態によれば、収着剤は炭素を含まない。幾つかの実施形態において、収着剤は炭素質担体と非炭素質担体の両方を含む。

#### 【0135】

非炭素質担体の非限定的な例は、以下のように製造することができる。50 の温度に保たれた液体トルエン 10 mL を入手し、継続的に攪拌しながら、デカンテーションによって過剰の元素硫黄を MS-3030 メソポーラスシリカ（PQ コーポレーション、バレーフォージ、ペンシルベニア州、米国）10 g に加える。次にトルエンを 120 で蒸発させ、サンプルを乾燥させる（例えば、一晚）。次の工程において、0.2 g の硝酸銀（AgNO<sub>3</sub>）を含む水溶液 10 mL を、継続的に攪拌しながら硫黄を豊富に含むシリカ担体に添加する。次に、過剰な水を 120 で蒸発させ、サンプルを乾燥させる（例えば、一晚）。次に、AgNO<sub>3</sub> と硫黄を豊富に含むサンプルを、別の開いたバイアルに入った過剰な元素ヨウ素を含む密閉容器に入れる。次に、密閉容器を 60 のオープンに入れる（例えば、一晚）。次に容器をバージし、ヨウ素バイアルを取り除く。次いで、120 での最終乾燥工程を実行して、残留する元素ヨウ素を除去し、幾つかの実施形態による、収着剤である、又は収着剤の一部であることができる非炭素質担体を生成する。

#### 【0136】

上記に従って作成されたサンプルを EDX によって評価した。試験結果は、ヨウ素（I）と銀（Ag）の化学量論比を示し、AgNO<sub>3</sub> から AgI への直接変換を示している。上記の手順により、AgI は均一に分布し、元素硫黄（S）と同じ位置にあり、反応性の高い AgI が最後の Hg アクセプタの硫黄の周囲にシェルを形成すると予想される。

#### 【0137】

本明細書に記載される例は、同様の結果、同様の特性、同様の利点又はそれらの組み合わせを有することが試験された、又は有することが期待される様々な実施形態及びそれらの組み合わせの非限定的な代表例である。

#### 【0138】

本明細書で使用される用語は、実施形態を記載することを意図しており、限定することを意図したものではない。「a」、「an」及び「the」という用語には、特に明記されていない限り、複数形も含まれる。「含む（comprises）」及び/又は「含む（comprising）」という用語は、本明細書で使用されるときに、記載された特徴、整数、工程、操作、要素及び/又は構成要素の存在を指すが、1 つ以上の他の特徴、整数、工程、操作、要素及び/又は構成要素の存在又は追加を排除するものではない。

10

20

30

40

50

【 0 1 3 9 】

本開示の範囲から逸脱することなく、特に使用される構成材料及び部品の形状、サイズ、及び配置に関して詳細部の変更が可能であることを理解されたい。この明細書及び説明される実施形態は例であり、本開示の真の範囲及び主旨は特許請求の範囲によって示される。

【 図 面 】

【 図 1 】

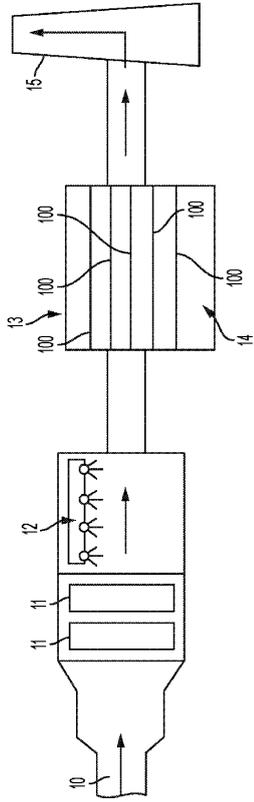


FIG. 1

【 図 2 A 】

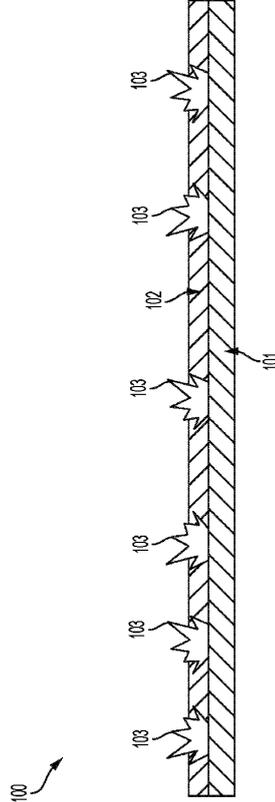


FIG. 2A

10

20

30

40

50

【 図 2 B 】

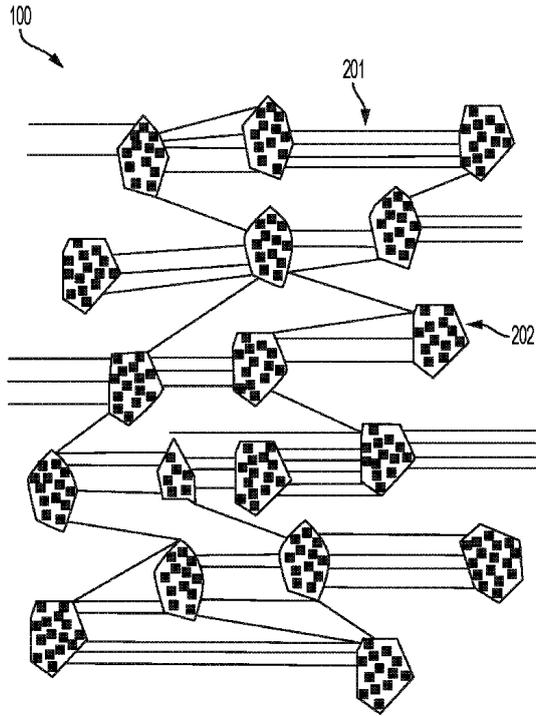


FIG. 2B

【 図 3 】

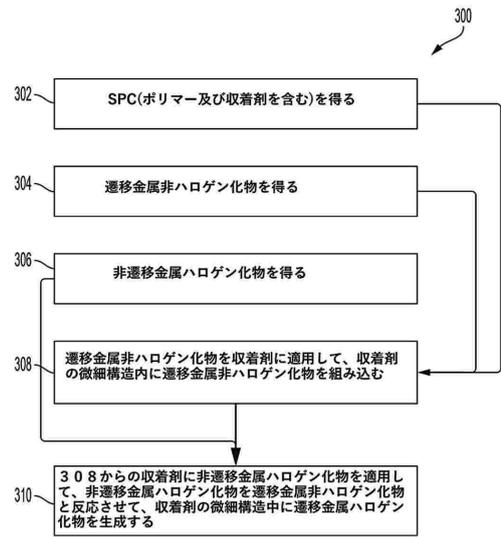


FIG. 3

【 図 4 】

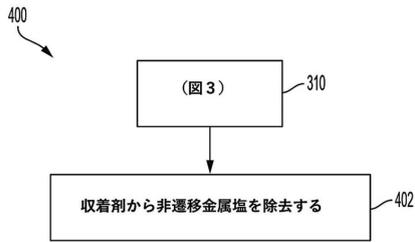


FIG. 4

【 図 5 】

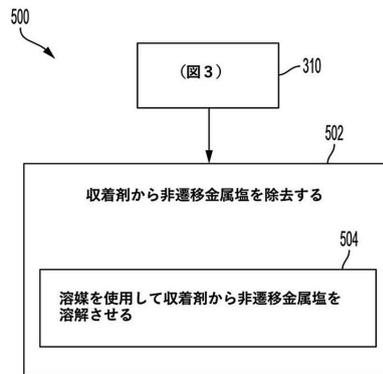


FIG. 5

10

20

30

40

50

【 図 6 】

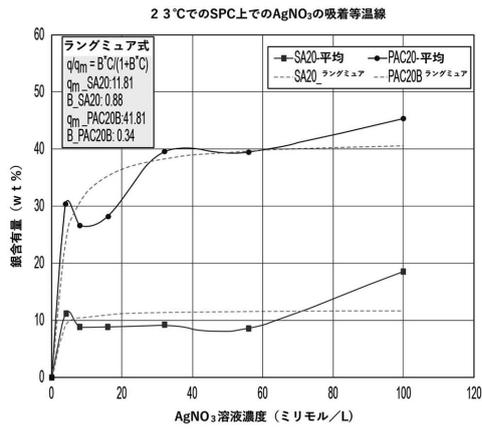


FIG. 6

【 図 7 】

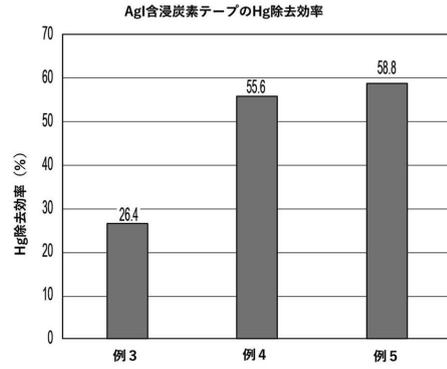


FIG. 7

10

【 図 8 】

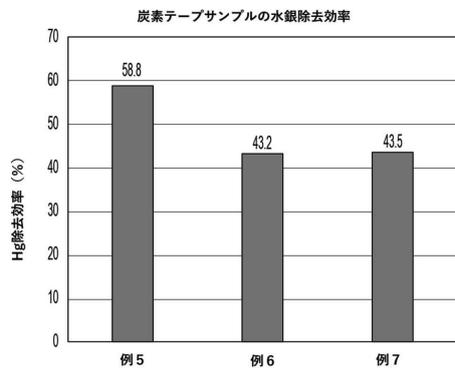


FIG. 8

【 図 9 】

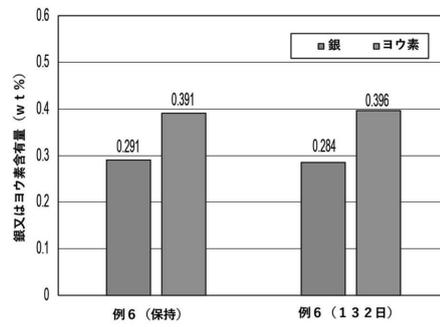


FIG. 9

20

30

40

50

【 図 1 0 】

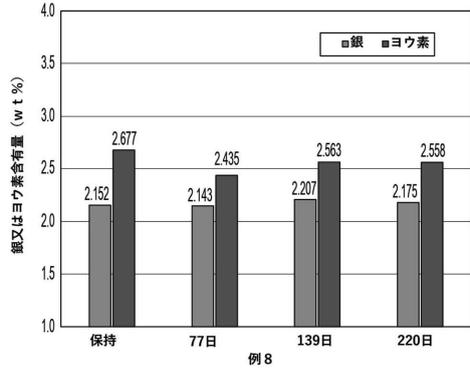


FIG. 10

【 図 1 1 】

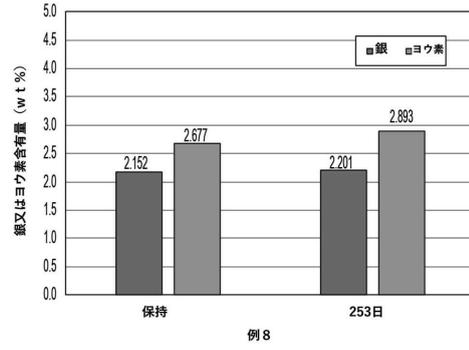


FIG. 11

10

【 図 1 2 】

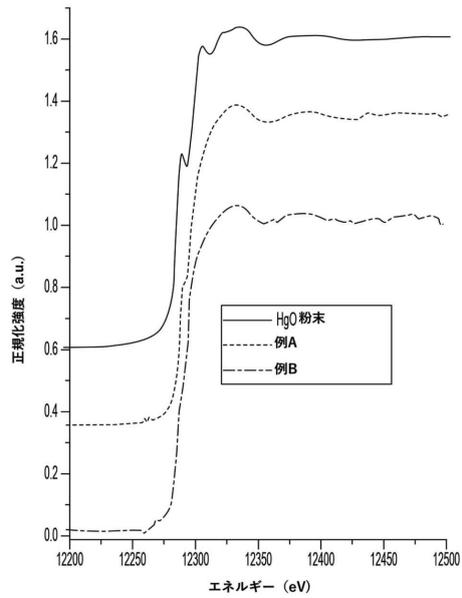


FIG. 12

【 図 1 3 】

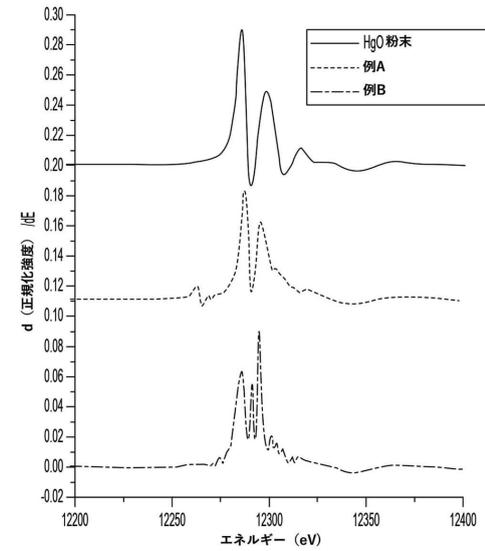


FIG. 13

20

30

40

50

【 図 1 4 】

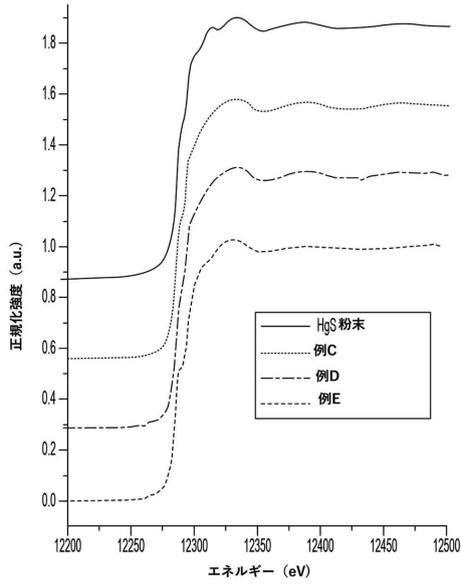


FIG. 14

【 図 1 5 】

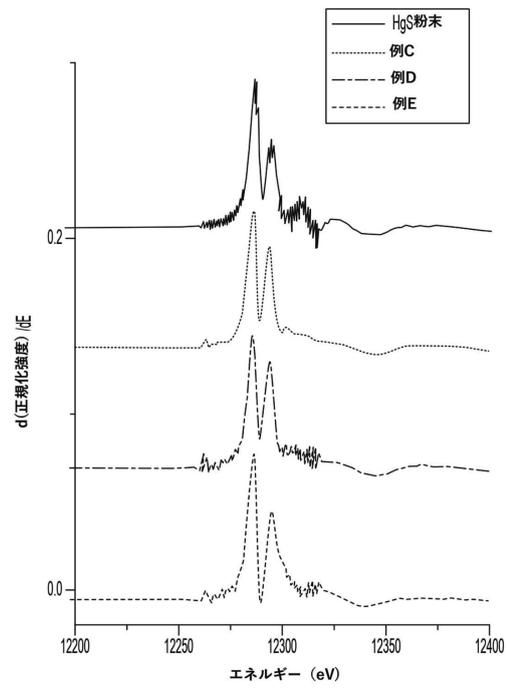


FIG. 15

10

20

30

40

50

【手続補正書】

【提出日】令和6年5月9日(2024.5.9)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0139

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0139】

本開示の範囲から逸脱することなく、特に使用される構成材料及び部品の形状、サイズ、及び配置に関して詳細部の変更が可能であることを理解されたい。この明細書及び説明される実施形態は例であり、本開示の真の範囲及び主旨は特許請求の範囲によって示される。以下、本発明の態様を列挙する。

(態様1)

ポリマーと、収着剤とを含んでなり、

該収着剤は微細構造を含み、さらに該微細構造は遷移金属ハロゲン化物を含む、

収着性ポリマー複合材(SPC)。

(態様2)

硫黄をさらに含む、態様1記載のSPC。

(態様3)

前記硫黄は元素硫黄を含む、態様2記載のSPC。

(態様4)

前記硫黄は、前記SPCの総質量に基づいて0.1wt%~20wt%の範囲の量で存在する、態様2又は3記載のSPC。

(態様5)

前記硫黄は、前記SPCの総質量に基づいて3wt%~5wt%の範囲の量で存在する、態様2又は3記載のSPC。

(態様6)

前記遷移金属ハロゲン化物は、遷移金属塩化物、遷移金属臭化物、遷移金属フッ化物、遷移金属ヨウ化物のうち少なくとも1つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様1~5のいずれか1項記載のSPC。

(態様7)

前記遷移金属ハロゲン化物は、ニッケル、鉛、銅、マンガン、鉄、水銀、銀、白金のうち少なくとも1つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様1~6のいずれか1項記載のSPC。

(態様8)

前記遷移金属ハロゲン化物は銀(Ag)を含む、態様1~7のいずれか1項記載のSPC。

(態様9)

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ素(I)を含む、態様1~8のいずれか1項記載のSPC。

(態様10)

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀(AgI)を含む、態様1~7のいずれか1項記載のSPC。

(態様11)

前記SPCは、水銀(Hg)と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀(Ag)の濃度は少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない、態様8又は10記載のSPC。

(態様12)

前記SPCは、水銀(Hg)と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、銀(Ag)の濃度は少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して低下しない、態様

10

20

30

40

50

8又は10記載のSPC。

(態様13)

前記SPCは、水銀(Hg)と反応するための少なくとも6ヶ月の運転使用のために構成され、ヨウ素又はヨウ化物(I)の濃度は少なくとも6ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない、態様9~10のいずれか1項記載のSPC。

(態様14)

前記収着剤は、遷移金属非ハロゲン化物塩の硝酸銀(AgNO<sub>3</sub>)に対して、23で1,765ミリモル/L以上の吸着容量ラングミュア等温パラメータqmを有する、態様1~13のいずれか1項記載のSPC。

(態様15)

前記ポリマーはフルオロポリマーを含む、態様1~14のいずれか1項記載のSPC。

(態様16)

前記ポリマーはポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を含む、態様1~15のいずれか1項記載のSPC。

(態様17)

前記遷移金属ハロゲン化物は、SPCの総質量に基づいて、前記SPC中に0.1wt%~20wt%の量で存在する、態様1~16のいずれか1項記載のSPC。

(態様18)

前記遷移金属ハロゲン化物は、SPCの総質量に基づいて、前記SPC中に0.1wt%~6wt%の量で存在する、態様1~14のいずれか1項記載のSPC。

(態様19)

前記収着剤は、活性炭、シリカゲル、ゼオライト又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様1~18のいずれか1項記載のSPC。

(態様20)

前記収着剤は活性炭を含む、態様1~19のいずれか1項記載のSPC。

(態様21)

前記活性炭は炭素源に由来し、前記炭素源は石炭、亜炭、木材、ヤシ殻又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様20記載のSPC。

(態様22)

元素硫黄をさらに含み、

前記収着剤は活性炭を含み、かつ

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀(AgI)である、態様1記載のSPC。

(態様23)

ポリマー及び収着剤を含む収着性ポリマー複合材(SPC)を得ること、

遷移金属非ハロゲン化物塩を得ること、

非遷移金属ハロゲン化物を得ること、

該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤に適用して、該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤の微細構造内に組み込むこと、及び、

該非遷移金属ハロゲン化物を該収着剤に適用して、該非遷移金属ハロゲン化物を該遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させ、それにより該収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物を生成すること、

を含んでなる方法。

(態様24)

前記収着剤の前記微細構造内に非遷移金属塩がさらに形成され、そして

前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することをさらに含む、態様23記載の方法。

(態様25)

前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することは、

溶媒を使用して前記収着剤から前記非遷移金属塩を溶解することを含む、態様24記載の方法。

(態様26)

10

20

30

40

50

前記溶媒は、水、メタノール、エタノール又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様 2 5 記載の方法。

(態様 2 7)

前記非遷移金属ハロゲン化物は、アルカリ金属ハロゲン化物、アルカリ土類金属ハロゲン化物、アンモニウムハロゲン化物のうち少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様 2 3 ~ 2 6 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 2 8)

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は遷移金属硝酸塩を含む、態様 2 3 ~ 2 7 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 2 9)

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は、遷移金属硫酸塩、遷移金属亜硫酸塩、遷移金属亜硝酸塩、遷移金属硝酸塩、金属酢酸塩、遷移金属塩素酸塩、遷移金属過塩素酸塩のうち少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、態様 2 3 ~ 2 8 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 3 0)

前記収着剤は活性炭を含み、

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は硝酸銀 (AgNO<sub>3</sub>) を含み、

前記非遷移金属ハロゲン化物はヨウ化カリウム (KI) であり、そして

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 (AgI) であり、そして

前記遷移金属非ハロゲン化物塩と非遷移金属ハロゲン化物との反応は：



を含む、態様 2 3 記載の方法。

(態様 3 1)

前記 SPC は元素硫黄 (S) を含む、態様 2 3 ~ 3 0 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 3 2)

前記遷移金属は銀 (Ag) である、態様 2 3 ~ 3 1 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 3 3)

前記遷移金属非ハロゲン化物塩は溶液として前記収着剤に適用される、態様 2 3 ~ 3 2 のいずれか 1 項記載の方法。

(態様 3 4)

前記溶液は、前記溶液を前記収着剤上にスプレーすること、前記収着剤を前記溶液に浸漬すること、又はそれらの任意の組み合わせによって適用される、態様 3 3 記載の方法。

(態様 3 5)

前記溶液は、水中に 1 ミリモル / L ~ 1 0 0 ミリモル / L の遷移金属非ハロゲン化物塩を含む、態様 3 1 又は態様 3 4 記載の方法。

(態様 3 6)

遷移金属ハロゲン化物と硫黄とを含む収着性ポリマー複合材 (SPC) を得、そして水銀を含むガスを流して該 SPC と接触させ、該遷移金属ハロゲン化物が触媒として作用する水銀と硫黄との触媒反応によって硫化水銀 (HgS) を形成させる、方法。

(態様 3 7)

前記遷移金属ハロゲン化物は銀 (Ag) を含む、態様 3 6 記載の方法。

(態様 3 8)

前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、前記 SPC の銀 (Ag) の濃度は少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、態様 3 7 記載の方法。

(態様 3 9)

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ素又はヨウ化物 (I) を含む、態様 3 6 記載の方法。

(態様 4 0)

前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、

前記 SPC のヨウ素又はヨウ化物 (I) の濃度は、少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、態様 3 9 記載の方法。

10

20

30

40

50

( 態様 4 1 )

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 ( A g I ) を含む、態様 3 6 記載の方法。

( 態様 4 2 )

前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、

前記 S P C のヨウ化銀 ( A g I ) の濃度は、少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、態様 4 1 記載の方法。

( 態様 4 3 )

前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、

前記 S P C の銀 ( A g ) の濃度は、少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、態様 4 1 記載の方法。

( 態様 4 4 )

前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、

前記 S P C の銀 ( A g ) の濃度は、少なくとも 6 ヶ月全体を通して減少しない、態様 4 1 記載の方法。

【 手続補正 2 】

【 補正対象書類名 】 特許請求の範囲

【 補正対象項目名 】 全文

【 補正方法 】 変更

【 補正の内容 】

【 特許請求の範囲 】

【 請求項 1 】

ポリマーと、収着剤とを含んでなり、

該収着剤は微細構造を含み、さらに該微細構造は遷移金属ハロゲン化物を含む、収着性ポリマー複合材 ( S P C ) 。

【 請求項 2 】

元素硫黄をさらに含む、請求項 1 記載の S P C 。

【 請求項 3 】

前記元素硫黄は、前記 S P C の総質量に基づいて 3 w t % ~ 5 w t % の範囲の量で存在する、請求項 2 記載の S P C 。

【 請求項 4 】

前記遷移金属ハロゲン化物は遷移金属ヨウ化物であり、かつ、ニッケル、鉛、銅、マンガ  
ン、鉄、水銀、銀、白金のうちの少なくとも 1 つ又はそれらの任意の組み合わせを含む、  
請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の S P C 。

【 請求項 5 】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 ( A g I ) を含む、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記  
載の S P C 。

【 請求項 6 】

前記 S P C は、水銀 ( H g ) と反応するための少なくとも 6 ヶ月の運転使用のために構成  
され、銀 ( A g ) の濃度は少なくとも 6 ヶ月の運転使用全体を通して実質的に変化しない  
、又は低下しない、請求項 5 記載の S P C 。

【 請求項 7 】

前記収着剤は、遷移金属非ハロゲン化物塩の硝酸銀 ( A g N O <sub>3</sub> ) に対して、2 3 で 1  
、7 6 5 ミリモル / L 以上の吸着容量ラングミュア等温パラメータ q m を有する、請求項  
1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の S P C 。

【 請求項 8 】

前記ポリマーはフルオロポリマーを含む、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の S P C 。

【 請求項 9 】

前記遷移金属ハロゲン化物は、S P C の総質量に基づいて、前記 S P C 中に 0 . 1 w t %  
~ 2 0 w t % の量で存在する、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の S P C 。

【 請求項 1 0 】

10

20

30

40

50

前記収着剤は、活性炭、シリカゲル、ゼオライト又はそれらの任意の組み合わせを含む、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の S P C。

【請求項 1 1】

ポリマー及び収着剤を含む収着性ポリマー複合材 ( S P C ) を得ること、  
遷移金属非ハロゲン化物塩を得ること、  
非遷移金属ハロゲン化物を得ること、  
該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤に適用して、該遷移金属非ハロゲン化物塩を該収着剤の微細構造内に組み込むこと、及び  
該非遷移金属ハロゲン化物を該収着剤に適用して、該非遷移金属ハロゲン化物を該遷移金属非ハロゲン化物塩と反応させ、それにより該収着剤の微細構造内に遷移金属ハロゲン化物を生成すること、  
を含んでなる方法。

10

【請求項 1 2】

前記収着剤の前記微細構造内に非遷移金属塩がさらに形成され、そして  
前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することを含み、さらに  
前記収着剤から前記非遷移金属塩を除去することは、溶媒を使用して前記収着剤から前記非遷移金属塩を溶解することを含む、請求項 1 1 記載の方法。

【請求項 1 3】

前記収着剤は活性炭を含み、  
前記遷移金属非ハロゲン化物塩は硝酸銀 (  $A g N O _ 3$  ) を含み、  
前記非遷移金属ハロゲン化物はヨウ化カリウム (  $K I$  ) であり、  
前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ化銀 (  $A g I$  ) であり、そして  
前記遷移金属非ハロゲン化物塩と前記非遷移金属ハロゲン化物との反応は：  
 $A g N O _ 3 + K I \rightarrow A g I + K N O _ 3$   
を含む、請求項 1 1 記載の方法。

20

【請求項 1 4】

遷移金属ハロゲン化物と硫黄とを含む収着性ポリマー複合材 ( S P C ) を得、そして  
水銀を含むガスを流して該 S P C と接触させ、該遷移金属ハロゲン化物が触媒として作用する水銀と硫黄との触媒反応によって硫化水銀 (  $H g S$  ) を形成させる、方法。

【請求項 1 5】

前記遷移金属ハロゲン化物は銀 (  $A g$  ) を含み、かつ、前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、前記 S P C の銀 (  $A g$  ) の濃度は少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項 1 4 記載の方法。

30

【請求項 1 6】

前記遷移金属ハロゲン化物はヨウ素又はヨウ化物 (  $I$  ) を含み、かつ、前記ガスを流すことは少なくとも 6 ヶ月間行われ、前記 S P C のヨウ素又はヨウ化物 (  $I$  ) の濃度は、少なくとも 6 ヶ月全体を通して実質的に変化しない、請求項 1 4 記載の方法。

40

50



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/US2022/043633

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2019/321778 A1 (SJOSTROM SHARON [US] ET AL) 24 October 2019 (2019-10-24)	1-9, 11-21, 36-40, 42-44
A	paragraph [0152] - paragraph [0158]	10, 22-35, 41
Y	US 2007/196255 A1 (SHERMAN JEFFREY H [US] ET AL) 23 August 2007 (2007-08-23)	1-9, 11-21, 36-40, 42-44
A	claims 1-33	10, 22-35, 41
Y	EP 2 260 940 A1 (CHIYODA CORP [JP]) 15 December 2010 (2010-12-15)	1-9, 11-21, 36-40, 42-44
A	claims 1,13,14 paragraph [0070] - paragraph [0074]	10, 22-35, 41
Y	WO 2009/032129 A2 (CORNING INC [US]; GADKAREE KISHOR P [US] ET AL.) 12 March 2009 (2009-03-12)	1-9, 11-21, 36-40, 42-44
A	claims 1-55 paragraph [0105] - paragraph [0109]	10, 22-35, 41
Y	US 2008/274874 A1 (HESCHEL WOLFGANG [DE] ET AL) 6 November 2008 (2008-11-06)	1-9, 11-21, 36-40, 42-44
A	claims 1-11	10, 22-35, 41
A	US 2006/240980 A1 (HUNG SHUO-TING [TW] ET AL) 26 October 2006 (2006-10-26) the whole document	1-44

10

20

30

40

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/US2022/043633

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
<b>WO 2015077746 A2</b>	<b>28-05-2015</b>	<b>US 2015147246 A1</b> <b>WO 2015077746 A2</b>	<b>28-05-2015</b> <b>28-05-2015</b>
<b>US 7442352 B2</b>	<b>28-10-2008</b>	<b>US 2005019240 A1</b> <b>US 2007207923 A1</b>	<b>27-01-2005</b> <b>06-09-2007</b>
<b>US 2019321778 A1</b>	<b>24-10-2019</b>	<b>US 2012100053 A1</b> <b>US 2014072487 A1</b> <b>US 2014331905 A1</b> <b>US 2016074808 A1</b> <b>US 2018169575 A1</b> <b>US 2019321778 A1</b> <b>US 2021039043 A1</b> <b>US 2022331738 A1</b>	<b>26-04-2012</b> <b>13-03-2014</b> <b>13-11-2014</b> <b>17-03-2016</b> <b>21-06-2018</b> <b>24-10-2019</b> <b>11-02-2021</b> <b>20-10-2022</b>
<b>US 2007196255 A1</b>	<b>23-08-2007</b>	<b>NONE</b>	
<b>EP 2260940 A1</b>	<b>15-12-2010</b>	<b>AU 2008353207 A1</b> <b>CA 2718703 A1</b> <b>CN 101977685 A</b> <b>DK 2260940 T3</b> <b>EP 2260940 A1</b> <b>JP 5553966 B2</b> <b>JP 2009226254 A</b> <b>MY 153950 A</b> <b>PL 2260940 T3</b> <b>RU 2447936 C1</b> <b>US 2011020205 A1</b> <b>WO 2009116183 A1</b>	<b>24-09-2009</b> <b>24-09-2009</b> <b>16-02-2011</b> <b>28-10-2019</b> <b>15-12-2010</b> <b>23-07-2014</b> <b>08-10-2009</b> <b>15-04-2015</b> <b>28-02-2020</b> <b>20-04-2012</b> <b>27-01-2011</b> <b>24-09-2009</b>
<b>WO 2009032129 A2</b>	<b>12-03-2009</b>	<b>CN 101855001 A</b> <b>EP 2205338 A2</b> <b>JP 2010537805 A</b> <b>TW 200938291 A</b> <b>US 2010239479 A1</b> <b>WO 2009032129 A2</b>	<b>06-10-2010</b> <b>14-07-2010</b> <b>09-12-2010</b> <b>16-09-2009</b> <b>23-09-2010</b> <b>12-03-2009</b>
<b>US 2008274874 A1</b>	<b>06-11-2008</b>	<b>DE 102007020422 A1</b> <b>EP 1987873 A2</b> <b>US 2008274874 A1</b>	<b>30-10-2008</b> <b>05-11-2008</b> <b>06-11-2008</b>
<b>US 2006240980 A1</b>	<b>26-10-2006</b>	<b>TW 200637795 A</b> <b>US 2006240980 A1</b> <b>US 2007078520 A1</b>	<b>01-11-2006</b> <b>26-10-2006</b> <b>05-04-2007</b>

10

20

30

40

50

## フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

テーマコード (参考)

**B 0 1 J 31/26 (2006.01)**

B 0 1 J 31/26

A

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,N  
 E,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,  
 CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,J  
 M,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY  
 ,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,T  
 H,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

弁理士 青木 修二郎

(74)代理人 100144417

弁理士 堂垣 泰雄

(72)発明者 シアオ - チュン ルー

アメリカ合衆国, デラウェア 1 9 7 1 1 , ニューアーク, ペーパー ミル ロード 5 5 1

(72)発明者 スティーブ ハードウィック

アメリカ合衆国, デラウェア 1 9 7 1 1 , ニューアーク, ペーパー ミル ロード 5 5 1

(72)発明者 ウーベ ボイシャー

アメリカ合衆国, デラウェア 1 9 7 1 1 , ニューアーク, ペーパー ミル ロード 5 5 1

F ターム (参考) 4D148 AA16 AB02 BA16Y BA20Y BA28Y BA30Y BA34X BA35Y BA36Y BA38Y  
BA43X BB01 CD02 CD05 EA04

4G169 AA03 AA08 AA09 AA11 BA02A BA07A BA08A BA08B BA22A BA22B  
 BB08A BB08B BB12C BC03C BC21A BC29A BC31A BC32A BC32B BC37A BC37B  
 BC62A BC66A BC68A BC75A BD08A BD11A BD12B BD13B BD14A BD14B BE34A  
 BE34B CA02 CA06 CA11 DA06 EA03Y EA10 EA11 EC03Y EC04Y EC05Y  
 EC28 EE06 FA02 FB07 FB08 FB14 FB24 FB48 FB52 FC02 FC08  
 ZA01A