(1) Numéro de publication:

0 008 273 A1

12

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

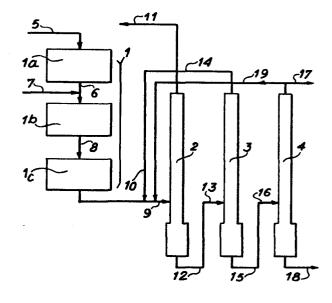
- (1) Numéro de dépôt: 79400556.1
- 2 Date de dépôt: 06.08.79

(5) Int. Cl.³: **G 21 F 9/02,** F 25 J 3/02, C 01 B 23/00

30 Priorité: 11.08.78 FR 7823735

- 71 Demandeur: COMMISSARIAT A L'ENERGIE
 ATOMIQUE Etablissement de Caractère Scientifique
 Technique et Industriel, 31/33, rue de la Fédération,
 F-75015 Paris (FR)
- (3) Date de publication de la demande: 20.02.80 Bulletin 80/4
- (72) Inventeur: Duhayon, Jacques, 3, Résidence des Fonds Fanettes, F-91190 Gif-sur-Yvette (FR) Inventeur: Goumondy, Jean-Pierre, 172, Rue Julian Grimau, F-94400 Vitry (FR) Inventeur: Leudet, Alain, 2bis, rue Edouard Herriot, F-91300 Massy (FR) Inventeur: Rousseau, Jean-Claude, Clos Longsault/Lèves Rue de Longsault, F-28300 Mainvilliers (FR)
- Etats contractants désignés: BE DE GB
- Mandataire: Mongredien, André et al, c/o Brevatome 25, rue de Ponthieu, F-75008 Paris (FR)
- Procédé de traitement d'un mélange d'air avec des gaz rares.
- Procédé de traitement d'effluents gazeux. Il se caractérise en ce qu'il comprend une étape de concentration des gaz rares en solution dans de l'argon liquide (2), par distillation cryogénique des gaz légers (3 et 4), et principalement de l'azote, à partir d'un mélange liquéfié.

Application au traitement des combustibles irradiés.



EP 0 008 273 A1

La présente invention, due aux travaux de Monsieur Alain LEUDET de la Société d'ETUDES CHIMIQUES et de Messieurs Jacques DUHAYON, Jean-Pierre GOUMONDY et Jean-Claude ROUSSEAU du COMMISSARIAT A L'ENERGIE 5 ATOMIQUE, a pour objet un procédé de traitement d'un mélange d'air avec des gaz rares, notamment du xénon et du krypton, et plus particulièrement de traitement des effluents gazeux provenant du retraitement de combustibles nucléaires irradiés, un tel traitement ayant également pour but de 10 récupérer le xénon que ces mélanges contiennent.

Les effluents gazeux provenant des usines de retraitement des combustibles irradiés sont essentiellement constitués d'air, dont la teneur en oxygène peut être inférieure à la teneur naturelle, de gaz rares tels que le xénon et le krypton, et contiennent généralement de la vapeur d'eau, du gaz carbonique, des traces d'hydrocarbures, et aussi des oxydes d'azote dont la présence est due à la dissolution des combustibles effectuée en milieu nitrique.

Il est connu de traiter ces effluents gazeux par des procédés qui comprennent essentiellement une étape d'épuration fournissant un mélange d'air et de gaz rares, exempt d'autres impuretés, puis une étape de préconcentration des gaz rares dans l'un des deux constituants de l'air, àasavoir l'oxygène ou l'azote.

Selon le procédé consistant à préconcentrer les qaz rares dans l'azote, cette étape de préconcentration s'effectue, après réduction catalytique de tout l'oxygène du mélange avec de l'hydrogène, par concentration des gaz rares dans une fraction de l'azote par distillation cryogénique.

Puis le mélange de krypton et de xénon dans l'azote est alors soumis à une autre distillation cryogénique pour séparer le krypton et l'azote du xénon. Ce procédé présente l'inconvénient que, étant donné la faible solubilité du xénon dans l'azote liquide, il se produit des bouchages dans les colonnes de distillation qui sont dus à une cristallisation du xénon.

B 6509-3

15

20

25

30

Selon l'autre procédé consistant à préconcentrer les gaz rares dans l'oxygène, on effectue cette préconcentration en éliminant tout l'azote du mélange et une partie de l'oxygène par distillation cryogénique. Le mélange de krypton et de xénon concentré dans l'oxygène alors obtenu est d'abord soumis à une étape de réduction catalytique de l'oxygène avec de l'hydrogène, puis à une étape de distillation cryogénique pour séparer le krypton du xénon. Ce procédé présente, par rapport au procédé de préconcentration dans l'azote, l'avantage que la solubilité du xénon est nettement plus grande dans l'oxygène liquide que dans l'azote liquide. Mais en raison de la radioactivité du milieu, il y a formation d'ozone dans le bouilleur de la colonne de distillation ; cette présence d'ozone engendre des risques d'explosion. Ces risques d'explosion pourraîent éventuellement être évités par une destruction continue et "in situ" de l'ozone formé ; mais la mise au point d'un tel système d'élimination pose un certain nombre de problèmes et n'a encore jamais été réalisée.

20

25

30

35

5

10

15

La présente invention a justement pour objet un procédé de traitement, notamment d'effluents gazeux provenant du retraitement de combustibles irradiés, qui pallie les inconvénients rappelés ci-dessus; en effet, lors de la mise en oeuvre du procédé considéré, il n'y a pas formation d'ozone, et donc pas risque d'explosion; quant aux problèmes de cristallisation du xénon, ils peuvent aisément être évités.

Le procédé conforme à l'invention se caractérise en ce qu'il comprend une étape de concentration des gaz rares en solution dans de l'argon liquide, par distillation cryogénique des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié.

De préférence, ce procédé comprend en outre, après ladite étape de concentration, une étape de récupération du xénon par distillation cryogénique du ou des autres gaz à partir du mélange concentré et liquéfié.

En effet, le demandeur a étudié le comportement du xénon du point de vue de la solubilité dans trois solvants cryogéniques, à savoir l'oxygène, l'azote et l'argon. Le demandeur a étudié quelle était la pression maximale telle que l'équilibre solide-liquide-vapeur xénon-solvant puisse exister. Il importait donc, pour éviter tout risque de cristallisation du xénon, d'opérer l'étape de préconcentration à une pression supérieure à cette pression remarquable citée plus haut. Le demandeur a recherché et découvert que pour un système oxygène-xénon, cette pression remarquable est de 17 bars absolus, que pour un système argon- xénon, cette pression remarquable serait notablement supérieure par exemple, de l'ordre de 35 bars absolus.

C'est pourquoi le fait d'opérer une étape de préconcentration du xénon et du krypton dans de l'argon liquide selon le procédé conforme à l'invention, présente l'avantage, par rapport au procédé de préconcentration du xénon et du krypton dans l'azote, d'éviter la cristalli-sation du xénon tout en opérant la distillation cryogénique à une pression nettement plus faible et également l'avantage, par rapport au procédé de préconcentration du xénon et du krypton dans l'oxygène, d'éviter la formation d'ozone.

L'invention a également pour objet un procédé de traitement de gaz effluents provenant du retraitement de combustibles nucléaires irradiés, constitués d'un mélange contenant au moins du xénon et du krypton radioactif dans l'air, caractérisé en ce qu'il comprend essentiellement et successivement une première étape d'élimination d'impuretés éventuelles telles que les hydrocarbures, les oxydes de l'azote, le gaz carbonique, la vapeur d'eau, une seconde étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans de l'argon liquide par distillation des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié, une troisième étape d'élimination de l'argon par distillation

cryogénique du mélange séparé d'argon, de xénon et de krypton, préalablement liquéfié, et une quatrième étape de séparation du xénon et du krypton, par distillation cryogénique du mélange séparé de xénon et de krypton, préalablement liquéfié.

Selon le procédé considéré, l'argon nécessaire pour la seconde étape de concentration peut être introduit dans le mélange gazeux à traiter, soit avant la première étape d'élimination des diverses impuretés, soit avant la deuxième étape de concentration.

Selon une caractéristique avantageuse du procédé de l'invention, on prend une partie du krypton séparé du xénon et obtenu lors de la quatrième étape, et on introduit ladite partie dans le mélange obtenu à la fin de la première étape, avant de procéder à la deuxième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans de l'argon liquide. Cette réintroduction d'une certaine quantité du krypton obtenu en fin de procédé permet d'abaisser la pression à laquelle s'effectue la deuxième étape de concentration du xénon et du krypton dans de l'argon liquide.

Naturellement, l'invention s'étend également aux installations appropriées pour la mise en oeuvre du procédé. De telles installations comprennent notamment des réacteurs catalytiques et des colonnes de distillation cryogénique avec tous leurs équipements annexes, en eux-mêmes connus, disposés et reliés par des conduits de circulation des différents produits, de manière à permettre la réalisation des opérations successives du procédé défini ci-dessus.

Les caractéristiques d'une telle installation ainsi que celles du procédé apparaîtront plus clairement à la lecture de la description ci-après, qui concerne un exemple de mise en oeuvre de l'invention. Bien entendu, cette description n'a aucun caractère limitatif vis-à-vis de l'invention.

La description qui suit est faite en référence aux figures jointes dans lesquelles :

35

5

10

15

20

25

- la figure l'illustre schématiquement le déroulement global du procédé décrit et l'installation utilisée;
- les figures 2 et 3 représentent, de manière schématique mais plus en détail, des parties de l'installation utilisée et la circulation des produits entre les différentes étapes.

Sur la figure 1, on a symbolisé les différentes unités de traitement permettant d'effectuer successivement les étapes du procédé de l'invention, dans cet ordre :

- 10 en 1 : l'unité dans laquelle s'effectue la première étape d'élimination des impuretés du mélange gazeux provenant de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires, première étape d'épuration qui permet d'obtenir un mélange constitué d'air ne contenant pratiquement plus que du xénon et du krypton ; cette première étape s'effectue en trois stades successifs, respectivement dans trois unités symbolisées en la, lb et lc ;
- en 2 : une colonne dans laquelle s'effectue la deuxième

 étape de concentration du xénon et du krypton dans
 de l'argon liquide, permettant d'éliminer principalement l'azote du mélange et de recueillir un
 mélange concentré de xénon et de krypton dans de
 l'argon;
- en 3 : la colonne dans laquelle s'effectue la troisième étape d'élimination de l'argon par distillation cryogénique du mélange d'argon, de xénon et de krypton;
- en 4 : la colonne dans laquelle s'effectue la séparation du xénon et du krypton par distillation cryogénique de façon à éliminer le krypton et à recueillir du xénon pur.

De façon plus précise, la première étape d'élimination des impuretés éventuelles contenues dans le mélange
gazeux de départ comporte un premier stade d'élimination des

hydrocarbures par oxydation catalytique (et également de dissociation catalytique de l'oxyde d'azote N₂0), qui s'effectue dans l'unité représentée en la ; un deuxième stade d'élimination de l'oxygène et des oxydes de l'azote par réduction catalytique, qui s'effectue dans l'unité représentée en lb ; et un troisième stade d'élimination du gaz carbonique et de la vapeur d'eau par passage sur tamis moléculaire et/ou gel de silice, qui s'effectue dans l'unité représentée en lc.

Ainsi, le mélange gazeux à traiter est tout d'abord introduit en 5 dans l'unité la et sort de cette unité débarrassé des hydrocarbures. Il est alors introduit, en 6, dans l'unité lb où s'effectue une réduction catalytique en présence de palladium par action d'hydrogène amené en 7. Il ressort de cette unité lb, débarrassé de l'oxygène et des oxydes de l'azote, et est introduit, en 8, dans l'unité lc où il est débarrassé du gaz carbonique et de la vapeur d'eau par passage sur tamis moléculaire. Ainsi, le mélange introduit, en 9, dans la colonne 2 est un mélange d'azote, de xénon et de krypton, auquel on additionne préalablement de l'argon, en 10, avant l'entrée dans la colonne 2. Dans la colonne 2 s'effectue la distillation cryogénique qui permet d'obtenir l'élimination de l'azote en 11, ce qui permet de récupérer, en 12, un mélange d'argon, de xénon et de krypton. Ce mélange d'argon, de xénon et de krypton est alors introduit en 13, dans la colonne 3, où s'effectue l'élimination de l'argon, en 14, par distillation cryogénique et la récupération, en 15, d'un mélange de krypton et de xénon. Ce mélange de krypton et de xénon est alors introduit en 16, dans la colonne 4, où s'effectue l'élimination du krypton, en 17, par distillation cryogénique et la récupération de xénon pur en 18.

vention, on prend une partie du krypton éliminé en 17, et on le recycle en 19 pour le réintroduire à l'entrée de la colonne 2, de façon à pouvoir effectuer la distillation cryogénique à une pression plus faible.

5

10

15

20

25

30

Selon l'invention, la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 2 est au plus de 18 bars, la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 4 est d'environ 3 bars et la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 3 est comprise entre la pression de la colonne 4 et la pression de la colonne 2.

Sur la figure 2, on a représenté plus en détail les différents éléments et circuits reliant les unités la, lb, lc, dans lesquelles on effectue la première étape d'élimination des impuretés selon le procédé de l'invention. Le mélange gazeux à traiter provenant de l'usine de retraitement de combustibles irradiés, est d'abord introduit en 20 dans un compresseur 21, puis est refroidi par une circulation d'eau dans un réfrigérant 22 et, après passage dans un échangeur 23, est introduit en 5 dans l'unité la qui contient un catalyseur au platine ou au rhodium : dans cette unité la, les hydrocarbures sont éliminés du mélange gazeux par oxydation catalytique et il y a également élimination du protoxyde d'azote N₂O par dissociation catalytique de ce dernier. Un dispositif de chauffage externe assure le maintien d'une température maximale de 700°C dans cette unité la. A la sortie de l'unité la, le mélange gazeux débarrassé des hydrocarbures passe dans l'échangeur 23, puis, après mélange avec une partie du mélange gazeux provenant du séparateur d'eau 27, dans un système de réchauffage électrique 24 qui le porte à une température de 100°C et est introduit, en 6, dans l'unité lb : dans cette unité lb, l'oxygène et les oxydes de l'azote sont éliminés par réduction catalytique, l'unité lb contenant un catalyseur au palladium et éventuellement un catalyseur au rhodium et de l'hydrogène étant introduit en 7, de façon à maintenir un léger excès de ce gaz en sortie de l'unité lb. A la sortie de l'unité 1b, le mélange gazeux débarrassé de l'oxygène et des oxydes d'azote est refroidi dans un réfrigérant à eau 25, puis passe dans un ventilateur 26. A la sortie du ven-

5

10

15

20

25

30

tilateur 26 une partie du mélange gazeux, après passage dans un séparateur d'eau 27, est recyclée en 28 vers l'unité 1b et l'autre partie est dirigée en 8, vers l'unité 1c.

Le mélange introduit en 8 dans l'unité lc est débarrassé de la vapeur d'eau et des traces de CO₂ par passage sur un tamis moléculaire et/ou un gel de silice dans l'un des deux absorbeurs 29 disposés en parallèle ; ces deux absorbeurs 29 subissent périodiquement et alternativement une régénération par chauffage et circulation d'azote.

Sur la figure 3, on reconnaît les colonnes 2, 3 et 4 servant respectivement à la mise en œuvre des deuxième, troisième et quatrième étapes du procédé de l'invention. Le mélange gazeux contenant de l'azote, de l'argon, du krypton et du xénon provenant de l'unité 1 est d'abord refroidi dans un échangeur de chaleur 30, puis est introduit en 9, dans la colonne 2.

La colonne de distillation 2 fonctionne à une pression au plus de 18 bars. La partie inférieure de la colonne 2 est maintenue à la température nécessaire à l'aide d'un dispositif de chauffage électrique 31. En tête de la colonne 2, un reflux est assuré par un condenseur 32, refroidi par de l'azote liquide amené en 33. On extrait de la partie supérieure de la colonne 2, en 11, un mélange contenant principalement de l'azote et éventuellement une fraction d'argon; ce mélange peut être recyclé dans le circuit de balayage de la cisaille ou rejeté dans l'atmosphère; on le réchauffe préalablement par passage dans l'échangeur 30, d'où il sort en 34. Du bas de la colonne 2, on extrait un mélange liquide d'argon concentré en krypton et xénon et on l'introduit en 13 dans la colonne de distillation 3.

Dans la colonne 3, qui fonctionne à une pression comprise entre la pression de la colonne 4 et la pression de la colonne 2, on sépare par distillation cryogénique l'argon en 14 et on recueille le mélange de krypton et de xénon en bas de la colonne 3. Eventuellement, on peut recycler l'argon, sortant en 14 de la colonne 3, à l'entrée de la colonne 2.

5

10

15

20

25

30

Le mélange de krypton et de xénon sortant du bas de la colonne 3 est introduit en 16 dans la colonne 4, où l'on effectue la séparation du krypton et du xénon par distillation cryogénique : le krypton est obtenu en 17, en tête de la colonne 4, et le xénon en 18, en bas de la colonne 4.

Eventuellement, on recycle une partie du krypton obtenu en 17, en 19, à l'entrée de la colonne 2 ; ceci permet d'augmenter la teneur relative de krypton dans le mélange gazeux d'alimentation et d'effectuer la première distillation cryogénique dans la colonne 2 à une pression notablement inférieure à 18 bars ; par exemple, avec un rapport krypton sur xénon de 1, obtenu avec un reflux de 10 de krypton, on peut abaisser la pression de fonctionnement de la colonne 2 à une valeur de 10 bars.

Le xénon pur obtenu en 18 est commercialisable.

A titre indicatif, on donne ci-dessous un exemple de circulation des produits en précisant les concentrations des mélanges et les différents débits. Pour plus de simplicité, on se réfère à la figure 1.

Le mélange gazeux à traiter auquel il a été ajouté une quantité déterminée d'argon présente la composition suivante: 81% d'azote, 11% d'oxygène, 8% d'argon, 150ppm de krypton, et 1.500 ppm de xénon, des hydrocarbures, des oxydes de l'azote, de la vapeur d'eau et du gaz carbonique; il est introduit en 5, à un débit de 21,8 m³ par heure, dans l'unité la. A la sortie de l'unité la, le mélange débarrassé des hydrocarbures est introduit en 6 dans l'unité 1b et de l'hydrogène est introduit en 7 à un débit de 4,8 m³ par heure. A la sortie de l'unité lt, le mélange débarrassé de l'oxygène et des oxydes de l'azote est introduit en 8 dans l'unité lc. A la sortie de cette unité lc, le mélange gazeux débarrassé de la vapeur d'eau et du CO, est introduit en 9 dans la colonne 2 : à ce moment là, le mélange a la composition suivante: 88% d'azote, 12% d'argon, 150 pm de krypton et 1.500 ppm de xénon ; il est introduit dans la colonne 2. En tête de la colonne 2, on récupère en 11 un

5

10

15

20

25

30

mélange de 91% d'azote et de 9% d'argon. En bas de la colonne 2, on récupère un mélange de 90% d'argon, de 0,5% de krypton et de 5% de xénon. Ce mélange est introduit en 13 dans la colonne 3. En tête de cette colonne 3, on récupère en 14 de l'argon à un débit de 600 l/h et en bas de cette colonne 3, on récupère un mélange de 10% de krypton et de 90% de xénon. On introduit ce mélange en 16 dans la colonne 4. En tête de la colonne 4, on récupère en 17 du krypton à un débit de 3 l/h et en bas de la colonne 4, du xénon à un débit de 30 l/h. Les valeurs données ci-dessus concernent le cas où l'on n'effectue pas le recyclage d'une partie du krypton obtenu en 17 à l'entrée de la colonne 2.

Si l'on effectue ce recyclage, en 19, d'une partie du krypton obtenu en fin de procédé, par exemple à un débit de 27 l/h, le mélange gazeux introduit en 9 à l'entrée de la colonne 2 a alors la composition suivante : 86% d'azote, 12% d'argon, 1500 ppm de krypton et 1.500 ppm de xénon. Ceci permet de pouvoir faire fonctionner la colonne 2 à une pression de l'ordre de 12 bars au lieu de 18 bars.

REVENDICATIONS

- 1. Procédé de traitement d'un mélange d'air avec des gaz rares, notamment du xénon et du krypton, au moins partiellement radioactifs, notamment d'effluents gazeux provenant du retraitement de combustibles irradiés, caractérisé en ce qu'il comprend une étape de concentration des gaz rares en solution dans de l'argon liquide, par distillation cryogénique des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié.
- 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé
 10 en ce qu'il comprend une étape de récupération du xénon par
 distillation cryogénique du ou des autres gaz à partir du
 mélange concentré et liquéfié.
 - 3. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que l'étape de concentration des gaz rares s'effectue à une pression d'au plus 18 bars.
 - 4. Procédé de traitement de gaz effluents provenant du retraitement de combustibles nucléaires irradiés, constitués d'un mélange contenant au moins du krypton radioactif et du xénon dans l'air, caractérisé en ce qu'il comprend essentiellement et successivement une première étape d'élimination d'impuretés éventuelles telles que les hydrocarbures, les oxydes de l'azote, le gaz carbonique, la vapeur d'eau, une seconde étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans de l'argon liquide par distillation des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié, une troisième étape d'élimination de l'argon par distillation cryogénique du mélange séparé d'argon, de xénon et de krypton, préalablement liquéfié, et une quatrième étape de séparation du xénon et du krypton par distillation cryogénique du mélange séparé de xénon et krypton, préalablement liquéfié.
 - 5. Procédé selon la revendication 4, caractérisé en ce que l'on prend une partie du krypton, séparé du xénon et obtenu lors de la quatrième étape, et on introduit ladite partie dans le mélange obtenu à la fin de la première étape,

5

15

20

25

30

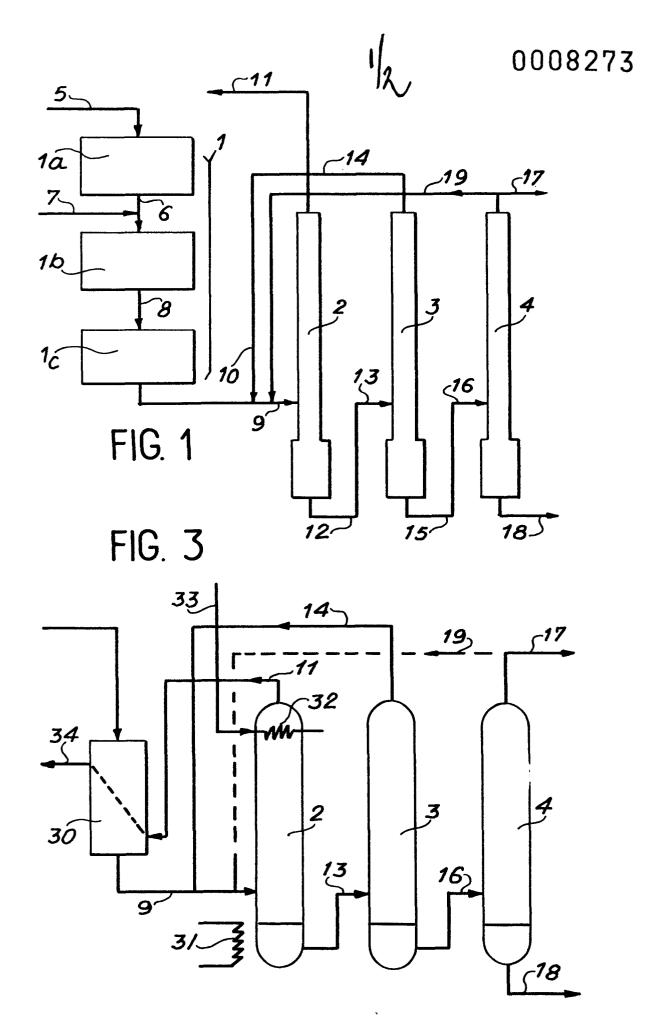
avant de procéder à la deuxième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans de l'argon liquide.

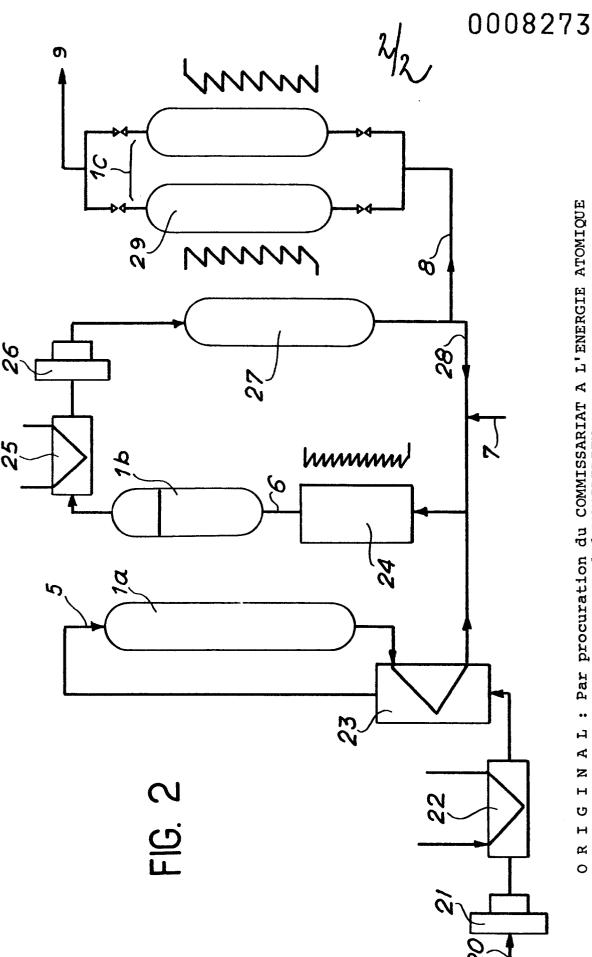
- 6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 ou 5, caractérisé en ce que la première étape
 d'élimination des impuretés éventuelles comporte un premier
 stade d'élimination des hydrocarbures par oxydation catalytique, un deuxième stade d'élimination de l'oxygène et des
 oxydes de l'azote par réduction catalytique, et un troisième
 stade d'élimination du gaz carbonique et de la vapeur d'eau
 par passage sur tamis moléculaire et/ou gel de silice.
- 7. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 6, caractérisé en ce que la quatrième étape de séparation du xénon et du krypton s'effectue à une pression d'environ 3 bars.
- 8. Procédé selon l'une quelconque des revendications 4 à 7, caractérisé en ce que la troisième étape d'élimination de l'argon du mélange d'argon, de xénon et de krypton obtenu s'effectue à une pression comprise entre la pression à laquelle s'effectue la quatrième étape et la pression à laquelle s'effectue la deuxième étape.

O R I G I N A L : Par procuration du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

André MONGREDIEN

5





: Par procuration du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE André MONGREDIEN Н Ø Z н ט Н ĸ

OEB Form 1503.1 06.78

RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

0008273.

EP 79 40 0556

CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.²) **DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS** Revendica-tion concernée Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes Catégorie FR - A - 2 280 954 (C.E.A.)A 1,2,4 G 21 F 9/02 * Revendications 1-4 * F 25 J 3/02 C 01 B 23/00 US - A - 4 012 490 (LOFREDO) A 1 * Revendications 1,6,18 * RAPPORT IN-1221 (microfilm, avril A 1969, 47 pages), Idaho Nuclear Corp.: "Rare gas recovery faci-DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.*) lity at the Idaho Chemical processing plant" BENDIXSEN et G 21 F 9/00 OFFUTT G 21 F 9/02 * "Summary", page 1 * F 25 J 3/02 CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X: particulièrement pertinent A: arrière-plan technologique O: divulgation non-écrite P: document intercalaire T: théorie ou principe à la base de l'invention E: demande faisant interférence D: document cité dans la demande L: document cité pour d'autres &: membre de la même famille, document correspondant Le présent rapport de recherche a été établi pour toutes les revendications Lieu de la recherche Date d'achèvement de la recherche Examinateur La Haye 14-09-1979 NICOLAS