

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5191745号
(P5191745)

(45) 発行日 平成25年5月8日(2013.5.8)

(24) 登録日 平成25年2月8日(2013.2.8)

(51) Int.Cl.

F I

CO 1 B 3/06 (2006.01)
 HO 1 M 8/06 (2006.01)
 HO 1 M 8/04 (2006.01)
 HO 1 M 8/10 (2006.01)

CO 1 B 3/06
 HO 1 M 8/06 R
 HO 1 M 8/06 G
 HO 1 M 8/04 J
 HO 1 M 8/04 L

請求項の数 16 (全 24 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-557110 (P2007-557110)
 (86) (22) 出願日 平成18年2月22日(2006.2.22)
 (65) 公表番号 特表2008-531450 (P2008-531450A)
 (43) 公表日 平成20年8月14日(2008.8.14)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2006/006182
 (87) 国際公開番号 W02006/093735
 (87) 国際公開日 平成18年9月8日(2006.9.8)
 審査請求日 平成21年1月26日(2009.1.26)
 (31) 優先権主張番号 11/067, 167
 (32) 優先日 平成17年2月25日(2005.2.25)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

前置審査

(73) 特許権者 501436665
 ソシエテ ビック
 SOCIETE BIC
 フランス共和国 エフ-92110 クリ
 シ リュ ジャンヌ ダニエル 14
 (74) 代理人 100086531
 弁理士 澤田 俊夫
 (74) 代理人 100093241
 弁理士 宮田 正昭
 (74) 代理人 100101801
 弁理士 山田 英治
 (72) 発明者 ローゼンスウェ、アレン
 フランス国、F-94100 セイン モ
 ドゥ フォス、アベニュー ジャン ジ
 ヨルジュ 44ビス

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 水素発生燃料電池カートリッジ

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

反応室部と、

第1の反応物であって上記反応室部において反応してガスを生成する上記第1の反応物を有する貯蔵部と、

上記貯蔵部を上記反応室部に結合する流れ制御装置とを有し、

上記第1の反応物が上記貯蔵部から上記反応室部へ上記流れ制御装置を介して搬送されて反応してガスを生成し、かつ、上記反応室部の圧力が予め定められた停止圧力を越えるときに上記流れ制御装置が上記第1の反応物の搬送を停止し、

上記流れ制御装置は、当該流れ制御装置の少なくとも一部を、上記第1の反応物の搬送を可能にする第1の位置、または上記反応物の搬送を阻止する第2の位置へバイアスするバネ部材を有するガス発生装置であって、

さらに上記ガスを開放する遮断バルブを有することを特徴とするガス発生装置。

【請求項 2】

上記第1の反応物は毛細管現象により上記反応室部へ搬送される請求項1記載のガス発生装置。

【請求項 3】

上記流れ制御装置は上記反応室部中に配された芯材部材に取り外し可能に結合できる芯材配管を有し、上記反応室部は第2の反応物を内包する請求項2記載のガス発生装置。

【請求項 4】

10

20

上記芯材配管は、上記貯蔵部に内包された上記第 1 の反応物と接触する第 1 の端部と、上記芯材部材と接触して上記貯蔵部から上記反応室部への流路を形成することが可能な第 2 の端部とを有する請求項 3 記載のガス発生装置。

【請求項 5】

上記第 1 の反応物は圧力下で上記反応室部へ搬送される請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 6】

上記流れ制御装置は、第 1 のバルブを有し、上記第 1 のバルブは、上記貯蔵部内の圧力が上記反応室部内の圧力より大きいときに開となって上記反応物を上記貯蔵部から上記反応室部へ搬送するようになされ、または上記第 1 のバルブは、上記反応室部内の圧力が上記貯蔵部内の圧力より小さい予め定められた差分内にあるときに、閉となる上記請求項 5 記載のガス発生装置。

10

【請求項 7】

上記流れ制御装置は、隔膜を有し、上記隔膜は、上記貯蔵部内の圧力が上記反応室部内の圧力より大きいときに開となって上記反応物を上記貯蔵部から上記反応室部へ搬送するようになされ、または、上記隔膜は、上記反応室部内の圧力が上記貯蔵部内の圧力より小さい予め定められた範囲内にあるときに、閉となる請求項 5 記載のガス発生装置。

【請求項 8】

ガスの発生を開始させる開始装置をさらに有する請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 9】

上記流れ制御装置は、上記反応物を上記貯蔵部から上記反応室部へ搬送可能にする第 1 の位置と、生成されたガスと上記反応室部から搬送可能にする第 2 の位置との間を往復する可動部材を有し、上記可動部材は上記バネ部材によりバイアスされる請求項 1 記載のガス発生装置。

20

【請求項 10】

上記遮断バルブは閉位置から開位置へと循環してガスの生成を維持させる請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 11】

上記貯蔵部は上記反応室部に取り外し可能に結合できる請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 12】

上記反応室部は加熱されて上記反応物を改質してガスを生成するか、または上記反応室部はガスの生成を支援する少なくとも 1 つの触媒を有する請求項 1 記載のガス発生装置。

30

【請求項 13】

上記貯蔵部は炭化水素、アルコール、または拡張バルーンを有する請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 14】

上記貯蔵部または上記反応室部は開放バルブに結合される請求項 1 記載のガス発生装置。

【請求項 15】

バッフルが上記貯蔵部および上記反応室部の間に配置され、上記バッフルは上記反応室部から上記貯蔵部へガスを搬送可能にする請求項 1 または 4 記載のガス発生装置。

40

【請求項 16】

反応室部と、

第 1 の反応物であって上記反応室部において反応してガスを生成する上記第 1 の反応物を有する貯蔵部と、

上記貯蔵部を上記反応室部に連結する流れ制御装置とを有し、

上記第 1 の反応物が上記貯蔵部から上記反応室部へ上記流れ制御装置を介して搬送されて反応してガスを生成し、かつ、上記反応室部の圧力が予め定められた停止圧力を越えるときに上記流れ制御装置が上記第 1 の反応物の搬送を停止し、

上記流れ制御装置は、当該流れ制御装置の少なくとも一部を、上記第 1 の反応物の搬送を可能にする第 1 の位置、または上記反応物の搬送を阻止する第 2 の位置へと移動可能で

50

ある隔膜を有するガス発生装置であって、
さらに上記ガスを開放する遮断バルブを有することを特徴とするガス発生装置。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

燃料電池は、直接すなわち、反応物質、すなわち燃料および酸素の化学エネルギーを直流（DC）電気に直接変換する装置である。多くの漸増している用途において、燃料電池は、化石燃料の燃焼などの従来の発電よりも効率的であり、リチウムイオンバッテリーなどの携帯型蓄電池より効率的である。

【0002】

10

一般に、燃料電池技術はアルカリ燃料電池、高分子電解質燃料電池、りん酸燃料電池、熔融炭酸塩燃料電池、固体酸化物燃料電池、および酵素燃料電池のような様々な異なった燃料電池を含む。今日のより重要な燃料電池は、3つのカテゴリ、すなわち、（i）圧縮水素（ H_2 ）を燃料として利用する燃料電池、（ii）水素燃料に改質されるメタノール（ CH_3OH ）、水素化ホウ素ナトリウム（ $NaBH_4$ ）、炭化水素（例えばブタン）又は他の燃料を利用する陽子交換膜（PEM）燃料電池、（iii）直接に非水素燃料を消費できるPEM燃料電池すなわち直接酸化燃料電池、および、（iv）炭化水素燃料を高熱で直接に電気に変換する固体酸化物燃料電池（SOFC）に分けることができる。

【0003】

20

圧縮された水素は一般に、高い圧力の下で保たれ、そのため、扱いが難しい。その上、大きい貯蔵タンクが通常必要で、消費者向け電子製品用に十分小さくすることができない。従来の改質燃料電池は、燃料を水素に変換させて燃料電池内で酸素と反応させるために改質材や気化および補助システムを必要とする。最近の進歩により、改質材または改質燃料電池が消費者向け電子製品に有望になっている。最も一般的な直接酸化燃料電池は、ダイレクトメタノール燃料電池すなわちDMFCである。他の直接酸化燃料電池は、ダイレクトエタノール燃料電池およびダイレクトテトラメチルオルトカーボネート燃料電池を含む。DMFCでは、メタノールが直接に燃料電池中で酸素と反応し、このDMFCは、最も簡単で可能性としては最も小さくなる燃料電池であり、消費者向け電子製品用の電力供給に最も有望である。SOFCは炭化水素例えばブタンを高熱で変換して電気を生じる。SOFCは、燃料電池反応を起こさせるために1000°Cの範囲の比較的高温を必要とする。

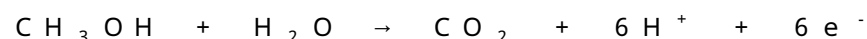
30

【0004】

電気を発生させる化学反応は燃料電池のそれぞれのタイプごとに異なる。DMFCでは、各電極での化学電気反応と燃料電池に関する総合的な反応は以下の通り記述される：

【0005】

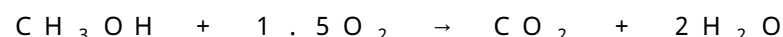
陽極での半反応：



陰極での半反応：



全体の燃料電池反応：



40

【0006】

PEMを通る水素イオン（ H^+ ）が陽極から陰極を通り抜けてマイグレーションするために、また、自由電子（ e^- ）がPEMを通り抜けられないため、電子は外部回路を通して流れなければならず、外部回路を通して電流を生じさせる。この外部回路は、モバイルすなわちセル電話、計算機、パーソナルデジタツアシスタツツ、ラップトップコンピュータ、電力ツールなどの有益な消費者向けの電子製品であってよい。

【0007】

DMFCは、特許文献1および特許文献2に開示されており、詳細はこれらに記載のとおりである。一般に、PEMはNafion（商標）などの高分子から作られており、D

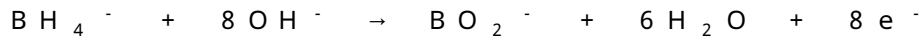
50

u P o n t から入手可能であり、厚さが約 0 . 0 5 m m ~ 約 0 . 5 0 m m の範囲のペルフルオ化合物材料、その他である。陽極は、典型的には、白金ルテニウムなどの触媒の薄層によってサポートされたテフロン (T e f l o n i z e d) のカーボン紙から製造される。陰極は、典型的には、白金粒子が膜の一面に接着されるガス拡散電極である。

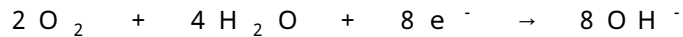
【 0 0 0 8 】

他の直接酸化燃料電池では、ホウ化水素燃料電池 (D B F C) はつぎのように反応する。

陽極での半反応：



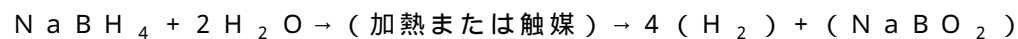
陰極での半反応：



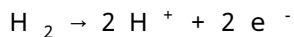
10

【 0 0 0 9 】

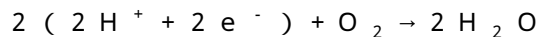
化学金属水素燃料電池では、一般に、液体の水素化ホウ素ナトリウムが改質され、つぎのように反応する。



陽極での半反応：



陰極での半反応：



【 0 0 1 0 】

20

適切な触媒は白金およびルテニウム、その他である。水素化ホウ素ナトリウムを改質して生成された水素燃料は燃料電池中で、酸化剤例えば O_2 と反応させられ、電気 (すなわち電子の流れ) および水の副産物を生成する。ホウ酸ナトリウム (N a B O_2) の副産物も改質プロセスで生成される。水素化ホウ素ナトリウム燃料電池は特許文献 3 に検討されており、参照してここに組み入れる。

【 0 0 1 1 】

燃料電池応用のための最も重要な機構の 1 つは、燃料貯蔵である。他の重要な機構は、燃料の燃料カートリッジから燃料電池への搬送を安定化させることである。商業的に有用にするために、燃料電池、例えば、D M F C または P E M システムは消費者の通常の使用を満足させるに足る量の燃料を貯蔵する能力を有さなければならない。例えば、モバイルまたはセルラー電話、ノートブックコンピュータ、パーソナルデジタルアシスタント (P D A) のために、燃料電池は、少なくとも現行のバッテリーと同じくらい長く、好ましくはより長く、これら装置を給電できなくてはならない。さらに、燃料電池は、容易に交換可能または再充填かのような燃料タンクを伴って、現行の再充電可能なバッテリーに必要とされる長時間の充電を最小化または省略する必要がある。

30

【 0 0 1 2 】

既知の水素ガス発生器の 1 つの不利益は、一旦、反応が開始されると、ガス発生カートリッジは反応を制御できないということである。そのため、反応は、反応物の供給が終了するまで、または反応物源が遮断されるまで、継続する。

【 0 0 1 3 】

40

したがって、少なくとも 1 つの反応物の反応室部への流れを自己調整することができる水素発生装置を得ることが望まれる。

【特許文献 1】米国特許第 5 , 9 9 2 , 0 0 8 号

【特許文献 2】米国特許第 5 , 9 4 5 , 2 3 1 号

【特許文献 3】米国特許第 4 , 2 6 1 , 9 5 6 号

【発明の開示】

【 0 0 1 4 】

この発明は、保管寿命が著しく長く、また水素発生効率がより良好な燃料システム / ガス発生装置に向けられている。

【 0 0 1 5 】

50

1 実施例において、この発明は、少なくとも、反応室部、貯蔵部、および自己調整流れ制御装置またはシステムを含むガス発生装置に関する。自己調整流れ制御装置／システムは、反応室部の内部の圧力が予め定められた停止圧力に達するときに反応物の貯蔵部から反応室部への搬送を停止する。

【0016】

他の実施例において、この発明のガス発生装置は、反応室部と少なくとも1つの反応物を内包する貯蔵部とを含む。この反応物は、貯蔵部から反応室部へ搬送されて水素ガスを生成する。一般に、反応室部の内部の圧力が予め定められた停止圧力を越えるときに、当該装置は動作状態から非動作状態に切り替わり、この圧力が当該予め定められた圧力を下回るときに、当該装置が非動作状態から動作状態に切り替わる。

10

【0017】

好ましくは、反応室部は他の反応物または触媒を内包し、あるいは、加熱されて水素ガスの生成を支援する。貯蔵部からの反応物は毛細管現象またはポンプにより搬送できる。貯蔵部は種々の手法で加圧されて反応物を貯蔵部から反応室部へ搬送してよい。代替的には、反応室部内の改質反応により生成された圧力が貯蔵部へ戻されて反応物を反応室部へ搬送してよい。

【0018】

自己調整流れ制御装置は圧力応答隔膜、逆止めバルブ、ピストンまたはプッシャー、毛細管現象流路を切断する手段、その他、あるいはこれらの組み合わせでよい。

【0019】

ガス発生装置および自己調整流れ制御装置を動作させる方法も提供され、これは、ガス発生装置の遮断バルブを循環させ、自己調整流れ制御装置を循環させる。

20

【0020】

先の一般的な説明および以下の詳細な説明の双方は単に例示的また説明的なものであり、特許請求の範囲に記載される、この発明の詳細な説明を提供することを目的とすることを理解されたい。

【発明を実施するための最良の形態】

【0021】

添付の図面に示され以下に詳細に検討するように、この発明は燃料サプライに向けられており、この燃料サプライは燃料電池燃料、例えば、メタノールおよび水、メタノール／水の混合物、メタノール／水の種々の濃度の混合物、純粋なメタノール、および／または、米国特許第5,364,977号および同第6,512,005B2号に説明されるメチルクラスレートを貯蔵する。これら特許の内容は参照してここに組み入れる。メタノールまたは他のアルコールは多くの種類の燃料電池、例えば、DMFC、酵素燃料電池、および改質燃料電池、その他において使用可能である。燃料サプライは他の種類の燃料電池燃料、例えば、エタノールまたはアルコール；水素化物、例えば、水素化ホウ素ナトリウム；水素へと改質可能な他の化学物質；または燃料電池の改質または効率を改善する他の化学物質を含んでよい。燃料は、また、水酸化カリウム(KOH)電解質を含み、これは金属燃料電池またはアルカリ燃料電池とともに使用でき、燃料サプライに貯蔵可能である。金属燃料電池に対しては、燃料は、KOH電解質反応溶液中に浸漬された流体担持亜鉛粒子の形態であり、電池キャビティ内の陽極は亜鉛粒子から生成された粒子陽極である。KOH電解質溶液は、2003年4月24日に発行された「1またはそれ以上の負荷に電力を供給するよう構成された燃料電池システムの使用方法」と題された米国特許出願公開第2003/007493号に開示されており、その内容は参照してここに組み入れる。燃料は、また、メタノール、過酸化水素、および硫酸の混合物を含み、これはシリコンチップ状に形成された触媒を通過して流れ燃料電池反応を生成する。燃料は、また、メタノール、水素化ホウ素ナトリウム、電解質、および他の化合物、例えば、米国特許第6,554,877号、同第6,562,497号、および同第6,758,871号に説明されているもののブレンドまたは混合物を含み、これらは参照してその内容をここに組み込む。燃料は、また、米国特許第6,773,470号に説明されている、溶媒中に部分的

30

40

50

に溶解し、部分的に懸濁するもの、ならびに、米国特許出願公開 2002/076602 に説明されている、液体燃料および固体燃料を含むものを含み、これらは参照してその内容をここに組みこむ。

【0022】

燃料は、また、上述のように、水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4) のような金属水素化物および水を含み、反応により低圧力、低温度しか生成されない。燃料は、さらに、炭化水素燃料を含み、炭化水素燃料は、これに限定されないが、ブタン、灯油、アルコール、および天然ガスを含み、これは、「液体ヘテロインタフェース燃料電池デバイス」という題名で、2003年5月22日に公開された米国特許出願公開 2003/0096150 に開示されており、参照してここに組みこむ。燃料は、また、燃料と反応する液体酸化物を含む。したがって、この発明は、サプライ中に含有され、また、その他、燃料電池システムにより使用される、任意のタイプの燃料、電解質溶液、酸化物溶液または液体または固体に制約されない。ここで使用される用語「燃料」は、燃料電池または燃料サプライ中で反応することができるすべての燃料を含み、また、上述の適切な燃料、電解質溶液、酸化物溶液、液体、固体および/または化学物質ならびにこれらの混合物のすべてを含むが、これに限定されない。

10

【0023】

ここで使用される用語「燃料サプライ」は、これに限定されないが、使い捨てカートリッジ、再充填可能/再使用可能カートリッジ、電子製品内に配置されるカートリッジ、電子製品の外部に配置されるカートリッジ、燃料タンク、燃料リザーバ、燃料再充填タンク、燃料を貯蔵する他のコンテナ、および、燃料タンク、コンテナ、燃料電池または燃料電池が給電する電子製品に結合された管材を含む。1のカートリッジがこの発明の例示的な実施例との関連で以下に説明されるが、これら実施例は他の燃料サプライにも適用可能であり、この発明は燃料サプライのいかなる特定のタイプにも限定されないことに留意されたい。

20

【0024】

この発明の燃料サプライは、燃料電池で使用されない燃料を貯蔵するのに使用しても良い。これらの用途は、これに限定されないが、シリコンチップ上に構築されたマイクロガスタービン用の炭化水素および水素燃料を貯蔵することであり、"Here Come the Microengines"、The Industrial Physicist (2001年12月/2002年1月)、pp. 20-25 に検討されている。この出願の目的に関し、「燃料電池」はこれらマイクロエンジンも含む。他の用途は、内燃機関エンジン用の伝統的な燃料や、ポケットおよび実用ライター用の炭化水素例えばブタンおよび液体プロパンを貯蔵することである。

30

【0025】

適切な既知の水素発生装置は、本出願人の出願に係る米国特許出願 10/679,756 および 10/854,540 に開示されている。その内容は参照してここに組み入れる。

【0026】

この発明の種々の実施例において、この発明のガス発生装置は、反応室部と第2の反応物を具備する貯蔵部とを有する。反応室部はオプションとして第1の反応物を含んでよい。第1の反応物および第2の反応物は、金属水素化物、例えば水素化ホウ素ナトリウムおよび水であってよい。双方の反応物は気体、液体、水性、または固体の形態でよい。好ましくは、反応室部に貯蔵される第1の反応物は固体金属水素化物または固体水素化ホウ素金属であり、第2の反応物は水であり、オプションとしてこれに添加物および触媒が混合される。反応物の1つは、メチルクラスレートを含み、これは基本的にはメタノールを他の化合物の内部に内包または捕捉して含む。この発明の金属水素化物および水は反応して水素ガスを発生し、これが燃料電池により消費されて電気を生成する。他の適切な反応物または試薬は 10/854,540 に開示されており、先に参照して組み入れた。

40

【0027】

50

さらに、ガス発生装置は、第2の反応物を貯蔵部から反応室部へ搬送するのを制御することが可能な装置またはシステムを含んでよい。反応室部および/または貯蔵部の内部の動作条件はが、好ましくは、反応室部の内部の圧力が、貯蔵部内の第2の反応物を反応室部へ搬送するのを制御できる。例えば、反応室部内の圧力が予め定められた値より低いときに、好ましくは、貯蔵部内の圧力より低いときに、さらに好ましくは、貯蔵部内の圧力より予め定められた量だけ低いときに、貯蔵部内の第2の反応物が反応室部へ案内できる。第2の反応物の貯蔵部から反応室部への流れは好ましくは自己制御される。そして、反応室部が予め定められた圧力に到達し、好ましくは、貯蔵部内の圧力より大きな予め定められた圧力に到達したとき、第2の反応物の貯蔵部から反応室部への流れが停止されて水素ガスの生成が阻止できる。同様に、反応室部が予め定められた圧力を下回ったとき、好ましくは、貯蔵部内の圧力を予め定められた量だけ下回ったとき、第2の反応物が貯蔵部から反応室部へ流れることが可能になる。貯蔵部中の第2の反応物は、任意の既知の手法、これに限定されないが、ポンプ、浸透作用、毛細管現象、作動圧力、バルブ、1以上のこれらの組み合わせにより、反応室部へ案内できる。

10

【0028】

図1(a)に示すように、ガス発生装置は、第1の反応物を具備する反応室部12と、第2の反応物を具備する貯蔵部14と、自己調整流れ制御装置16と、配管18とを含んでよい。代替的には、反応室部12が反応物の代わりに触媒を含んでよく、また反応室部12が加熱されてよい。配管18は、貯蔵部14に配置された第1の端部と、反対側の第2の端部とを含み、第2の端部が反応室部12に対して取り外し可能に結合でき、または動作可能に関連づけできるようになっている。第1の反応物および第2の反応物が一緒に混合されると、反応して水素ガスを生成する。

20

【0029】

貯蔵部14内に部分的な真空が形成されないように、拡張物質を貯蔵部14に挿入して、反応物が搬送されているときに、拡張物質が少なくとも部分的に搬送済みの体積を置き換えるようにしてよい。適切な拡張物質は、これに限定されないが、ブタン、メタノールのようなアルコール、加圧されているバルーン、その他を含む。代替的には、開放バルブを貯蔵部14と連通させて配置して、反応物が貯蔵部14から搬出されるときに空気を流入させるようにしてよい。部分的な真空を最小化する他の装置は以下で検討される。これら装置はこの発明のいずれの実施例とともに採用してよい。

30

【0030】

ガス発生装置10は、配向装置、例えば、おもり20を具備しても良く、このおもり20は配管18の一部に結合されて、配管18の第1の端部が貯蔵部14内の第2の反応物と確実に流体連通するようになる。おもり20は、装置10の向きに関わらず、配管20の第1の端部を、第2の反応物が累積して配置されている位置に移動させることが可能な任意の重量を有してよい。したがって、反応物が貯蔵部14から引き抜かれるときに、液体反応物のレベルが貯蔵部14内で減少し、装置10がどのような位置、例えば、横方向、斜め方向、上下方向にあっても、それと無関係に、配管18の第1の端部が第2の反応物に接触しなければならない。換言すれば、おもり20および残留燃料が同一の方向に重力により引かれ、このため接触を維持する。配管18の第2の端部は、好ましくは図示のとおり、それが反応室部12に入れられる前に拡張され、より効率よく第2の反応物を分配する。

40

【0031】

配管18は、貯蔵部12内の第2の反応物を反応室部12へ搬送することが可能な任意の材料から製造できる。このましくは、配管18は、液体を芯材で吸い上げることができる、すなわち、毛細管現象を実現する任意の材料またはデザインを含んでよい。適切な配管材料は、これに限定されないが、ファイバー、フィラー、繊維材料、オープンセル発泡体、砂材料、またはこれらの組み合わせを含む。好ましくは、配管18は柔らかい。配管18は、第2の反応物を反応室部12へ搬送可能な任意の形状を採用できる。配管18は非透過性の鞘または固体ブロック中に埋め込まれた1または複数の芯材部材を有してもよ

50

い。

【 0 0 3 2 】

貯蔵部 1 4 からの第 2 の反応物が反応室部 1 2 へと、重力による供給により、配管 1 8 を伴うことなしに、案内可能な位置または向きでガス発生装置 1 0 が主に使用されるならば、当該ガス発生装置 1 0 はオプションとして配管 1 8 を含まない。

【 0 0 3 3 】

ガス発生装置 1 0 は反応室部 1 2 および貯蔵部 1 4 の間に層 4 をも含んでよい。層 2 4 は多孔性面を具備し、第 2 の反応物を第 1 の反応物へと均一に分配 / 案内することが可能な任意の材料から製造できる。層 2 4 は好ましくは配管 1 8 と類似の芯材材料である。

【 0 0 3 4 】

さらに、ガス発生装置 1 0 は、オプションとして、液体非透過性、ガス透過性の層 / 膜 2 5 を含んで良く、これが水素ガスのようなガスを装置の外部へ案内でき、同時に液体を反応室部 1 2 内に維持できる。膜 2 5 は、当業者に既知の任意の液体非透過性 / 気体透過性材料から製造できる。そのような材料は、これに限定されないが、アルカン基を有する撥水性材料であってよい。より具体的な例は、これに限定されないが、ポリエチレン組成物、ポリテトラフルオロエチレン、ポリプロピレン、ポリグラクチン (V I C R Y、商標)、冷凍乾燥硬膜、またはその組み合わせを含む。気体透過性部材 2 2 は、多孔性部材を被覆する気体透過性 / 液体非透過性膜を含んでよい。このような膜の例は C E L G A R D (商標) および G O R E - T E X (商標) である。この発明に採用できる、他の気体透過性、液体非透過性部材は、これに限定されないが、約 $0.1\mu\text{m}$ ~ 約 $0.45\mu\text{m}$ の孔サイズの S U R B E N T (総評) ポリビニリデンフロライド (P V D F) を含み、これは M i l l i p o r e 社から入手できる。S U R B E N T (商標) P V D F の孔サイズはシステムを出る水および / またはメタノールの料を調整する。 $0.2\mu\text{m}$ のハイドロを具備する電子ベントタイプ材料のような材料もこの発明に使用でき、これは W . L . G o r e から入手できる。さらに、G e n P o r e 社から入手できる。孔サイズが約 $10\mu\text{m}$ の直径が 0.25 インチの棒、厚さが約 $0.3\mu\text{m}$ の直径 2 インチのディスク、および A p p l i e d P o r o u s T e c h n o l o g i e s 社から入手できる、孔サイズが約 $10\mu\text{m}$ 未満の焼結および / またはセラミックの多孔性材料も、この発明に利用できる。さらに B e l l L a b s 社からのナノガラス材料も液体をフィルタリングするのにしよ

【 0 0 3 5 】

バルブ 3 6 は好ましくは遮断バルブであり、開となって、生成されたガスを所望の位置、例えば燃料電池へ搬送することができる任意のバルブであってよい。バルブ 3 6 は水素ガスが必要なときに開にされ、水素ガスの需要がないときに閉にされる。バルブ 3 6 はユーザにより手作業で制御されても、必要であれば、C P U または制御装置により自動的に制御されてもよい。バルブ 3 6 は逆止めバルブ、カモノハシバルブ、ソレノイドバルブ、磁気バルブ、その他の機械バルブ、および / または電気バルブであってよい。この発明において使用して適切な遮断バルブはさらに本出願人に係る 2 0 0 4 年 1 1 月 1 日出願の米国特許出願 1 0 / 9 7 8 , 9 4 9 および同じく 2 0 0 3 年 7 月 2 9 日出願の米国特許出願 1 0 / 6 2 9 , 0 0 6 に開示されている遮断バルブを含む。これらの内容は参照してここに組み入れる。代替的には、バルブ 3 6 は開を維持して良く、燃料電池または装置内の他のバルブが水素の流れを制御するために開および閉されてよい。

【 0 0 3 6 】

この実施例では、配管 1 8 の拡張された第 2 の端部が自己調整流れ制御装置 1 6 と動作可能に関連づけられる。流れ制御装置 1 6 を除いて、反応室部 1 2 および貯蔵部 1 4 は相互に仕切り部 2 3 により隔離されている。図 1 (a) に示すように、流れ制御部 1 6 は、バネ 2 2 によりバイアスされたディスク 2 6 を含む。ディスク 2 6 およびバネ 2 2 の双方

10

20

30

40

50

は、区切り部 2 3 により包囲されている。ディスク 2 6 は区切り部 2 3 に対して可動であり、その間にシールを形成する。シール 2 1、例えば O - リングは、図示のとおり、ディスク 2 6 に一体に組み込み可能であり、シールを形成する。好ましくは、ディスク 2 6 は、少なくとも、実質的に非透過性の面を含み、この面が配管 1 8 の拡大した第 2 の端部を支持し、あるいは、ディスク 2 6 が実質的に非透過性の材料から製造して良い。

【 0 0 3 7 】

動作状態すなわち流れている状態では、配管 1 8 の拡大した第 2 の端部が芯材層 2 4 に連結され、あるいは、接触して、流路を形成し、第 2 の反応物が貯蔵部 1 4 から芯材動作 (w i c k i n g) または毛細管減少により反応室部 1 2 に搬送されて反応し水素ガスを生成する。ガスが生成されると、反応室部 1 2 の内部の圧力が増大する。ディスク 2 6 は実質的にガスに対して非透過性であり、配管 1 8 も、第 2 の反応物により湿潤されているときには、気体が配管 1 8 を下降していくのを阻止することが可能であるので、増大したガスの圧力がバイアスパネ 2 2 に抗してディスクに力を加える。さらに、シール 2 1 は、水素ガスがディスク 2 6 の回りを通り、および / または、漏れるのを阻止する。したがって、バルブ 3 6 が閉の時のガスの圧力が可能のディスク 2 6 に作用する。予め定められた圧力以上で、反応室部 1 2 内のガス圧力がディスク 2 6 および配管 1 8 の拡大された第 2 の端部を、図 1 (b) に示すように、芯材層 2 4 から離して空間 3 7 を形成する。配管 1 8 が芯材層 2 4 から離れると、毛細管減少の流路が遮断されて、第 2 の反応物の搬送が停止される。

【 0 0 3 8 】

水素ガスが必要なときには、バルブ 3 6 が手作業、電子的、または自動的に開とされて、反応室部 1 2 内のガス圧力が開放される。反応室部 1 2 内の圧力が減少して予め定められた圧力を下回ると、パネ 2 2 がディスク 2 6 を押して配管 1 8 の拡大した第 2 の端部が芯材層 2 4 と接触して第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れが再開され、水素の発生も再開される。水素ガスがもはや必要でなくなると、バルブ 3 6 が閉じられ、反応室部 1 2 の内部の圧力が増大して予め定められた圧力に到達し、これにより、増大した圧力が、配管 1 8 の拡大した第 2 の端部をディスク 2 4 から離して、第 2 の反応物の反応室部への流れが停止され、水素の生成が停止する。

【 0 0 3 9 】

このように、流れ制御装置 1 6 は自己調整的であり、動作状態すなわち O N 位置では、配管 1 8 の第 1 の端部がパネバイアスされて反応室部 1 2 と接触して第 2 の反応物を芯材作用または毛細管減少により反応室部へ搬送する。非動作状態すなわち O F F 位置では、予め定められた圧力を越える反応室部 1 2 内の圧力が配管 1 8 を反応室部 1 2 から分離して第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを停止し、水素の生成を停止する。

【 0 0 4 0 】

貯蔵部 1 4 内に部分的な圧力が形成されるのを最小化するために、さらに、上述の排気装置に加えて、バッフル 1 4 0 を配管 1 8 の回りに設けて良く、このバッフル 1 4 0 は反応室部 1 2 からの水素ガスを貯蔵部 1 4 へ案内する排気機構である。事例的な適切な排気機構は、本出願人に係る、筆記用具に関する米国特許第 5 , 9 0 6 , 4 4 6 号に十分に説明されている。' 4 4 6 特許は、空気をインク貯蔵部に流入させて真空の形成を最小化し、これと同時にインクが当該排気機構を介して流れ出ないようにする、排気機構を教示している。' 4 4 6 特許の内容は参照してここに組み入れる。

【 0 0 4 1 】

' 4 4 6 特許の図面に示し、また図 1 1 として部分的に再現するように、バッフル 1 4 0 は芯材要素を包囲し、複数のリブ 1 4 2、1 4 4、1 4 6、1 4 8 等を有する。これらリブの間の間隔は、反応室部 1 2 から貯蔵部 1 4 へ向かって減少する。より具体的には、反応室部 1 2 のより近くに位置するリブ 1 4 2 は、つぎの組のリブ 1 4 4 より相対的に大きな間隔を有し、リブ 1 4 4 はリブ 1 4 6 より相対的に大きな間隔を有し、以下同様である。リブの組の数はいくつでもよく、この発明はリブの組のどのような個数にも限定されない。

【 0 0 4 2 】

この構成によれば、予め定められたレベルの部分的な真空が貯蔵部 1 4 内にあるときには、水素は反応室部 1 2 から貯蔵部 1 4 へ連絡できるけれども、反応物は貯蔵部 1 4 から反応室部へ流れることができない。先に検討したように、反応物の流れは配管 1 8 を通じて制御され、これは図示のとおり 2 以上の異なる芯材材料を有してよい。

【 0 0 4 3 】

代替的な自己調整流れ制御装置 1 6 は図 1 (c) および 1 (d) に示される。この自己調整流れ制御装置はハウジング 3 2 を具備し、これが、バネ 2 8 によりバイアスされた可動部材 3 0 を含む。ハウジング 3 2 は、一端で、反応室部 1 2 に圧力入力ポート 3 4 によって結合され反応室部 1 2 内の圧力が入力チャンネル 3 4 を介して連通してバイアス力に抗して可動部材 3 0 に作用する。

10

【 0 0 4 4 】

図 1 (c) および 1 (d) に示し、19で参照されるように、可動部材 3 0 は好ましくは配管 1 8 の一部を含む。反応室部 1 2 内の圧力が予め定められた圧力より小さいときには、バネ 2 8 が、部材 3 0 を押して少なくとも部分的に整合させて少なくとも部分的に流路が形成される寸法および形状をとる。このため、動作状態すなわち ON 位置では、バネ 2 8 の力が少なくとも部分的にセクション 1 9 を配管 1 8 と整合させて連続した毛細管の流れを配管 1 8 の第 1 の端部と配管 1 0 の拡大した第 2 の端部との間に形成する。貯蔵部 1 4 の第 2 の反応物は配管 1 8 の第 1 の端部から配管 1 8 の第 2 の端部へと流れ、さらに反応室部 1 2 へと流れることができ、反応して水素を生成する。

20

【 0 0 4 5 】

反応室部 1 2 内の圧力が予め定められた値を越えると、図 1 (c) に示すように、圧力がポート 3 4 を介して可動部材 3 0 に伝わり、部材 3 0 をバネ 2 8 に抗して変位させて、セクション 1 9 がもはや配管 1 8 と整合しなくなる。したがって、非動作状態、すなわち OFF 位置では、このような非整合状態となり、このため第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れが停止する。図 1 (a) および 1 (b) で示す実施例と同様に、バルブ 3 6 が開になると、反応室部 1 2 内の圧力が減少する。圧力が開放され、バネ 2 8 が部材 3 0 内のセクション 1 9 を移動させて配管 1 8 と少なくとも部分的に整合させて、第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを再開できる。オプションのシールを、OFF 位置で配管 1 8 をセクション 1 9 から分離するために可動部材 3 0 との間に設け、または配管 1 8 とバネ 2 8 との間に設け、または、配管 1 8 と圧力ポート 3 4 との間に設けて良い。

30

【 0 0 4 6 】

図 1 (a) および 1 (b) に示すように、第 1 の反応物は固体として示される。しかしながら、第 1 の反応物は水性でも液体形態でもよい。添加物、例えば、安定剤、触媒、または他の添加物が第 1 の反応物または第 2 の反応物、あるいは双方と混合され、あるいはブレンドされてよい。固体の反応物は、これに限定されないが、粉末、ペレット、多孔質構造、球、チューブ、溶解性シートまたはこれらの組み合わせを含む。この発明は、個々の燃料、または添加物、または添加物をどのように混合しブレンドするか、バス発生装置中にどのように貯蔵するかに制約されない。

【 0 0 4 7 】

40

図 2 に示される他の実施例では、ガス発生装置 4 0 は自己調整流れ制御装置 1 6 を含み、これが自己調整ガス圧調整装置 4 2 またはガスバルブ 4 2 と、自己調整液体制御同値 4 1 または液体バルブ 4 1 とを具備する。流れ制御装置 1 6 は貯蔵部 1 4 を反応室部 1 2 に連結する。貯蔵部 1 4 は第 2 の反応物を保持するブラダーまたはライナー 4 4 を含んでよい。ブラダー 4 4 は可撓性の材料または弾性材料を含む任意の材牢から製造できる。適切なブラダーは、本出願人に係る米国特許出願 1 0 / 6 2 9 0 0 4 に開示されており、その内容は参照してここに組み入れる。代替的にはブラダー 4 4 に代えて、貯蔵部 1 4 は、第 2 の反応物から圧力を隔離することができる任意の部材、例えば、貯蔵部 1 4 との間でシールを形成する可動壁、圧縮ガスを収容するようになされた拡張可能ライナーを具備してよい。上述した実施例と同様に、反応室部 1 2 は芯材層 4 6 (芯材層 2 6 と類似する) を

50

具備して反応室部 12 内の第 2 の反応物の分配を改善してよい。反応室部 12 は、芯材料または液体非透過性、気体透過性膜（膜 25 に類似する）から製造されるフィラーディスク 48 を具備して別個の気体収集室部 50 を形成してよい。バルブ 36 が設けられて、水素ガスを室部 50 または反応室部 50 から燃料電池へ搬送する。ディスク 48 は、類似の材料から製造されるオプションのロッド 47 に結合されて良く、これにより、第 2 の反応物を第 1 反応物のカラムを通じて支持し分配する。図 2 (b) - 2 (d) に示すように、第 1 の反応物はペレットの形態をしている必要はないけれども、ジグザグ形状のウェファ、線形のウェファ、またはグリッド形状のウェファにそれぞれなされてよい。さらに、ガス発生装置 40 は、図 2 (b) - 2 (d) に示すように、スプレイアタッチメント 39 を含んでよく、第 2 の反応物を第 1 の反応物ウェファ状に均一に分散する。

10

【0048】

自己調整流れ制御装置 16 は、第 2 の反応物が所定の条件の下で反応室部 12 に入るのを可能にする。好ましくは、自己制御流れ制御装置 16 は、第 2 の反応物を内包するブラダー 44 を第 1 の反応物を内包する反応室部 12 へ結合する気体バルブ 42 および液体バルブ 41 を有する。当初、ガス発生装置 40 が構築された後、貯蔵部 14 が加圧されてわずかな量の第 2 の反応物が反応室部 12 に搬送されて反応が開始されて水素ガスを生成する。反応室部 12 の内部の圧力が増加して、それが貯蔵部 14 内の圧力と等しくなる。これら 2 つの区画の圧力が予め定められた差分、例えば $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ の範囲内になると、気体バルブ 42 が開となってこれら 2 つの区画内の圧力を等しくする。これら 2 つの圧力が実質的に等しくなると、例えば相互に $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ 以内になると、ブラダー 44 に印可する圧力が液体バルブ 41 を開にできなくなり、第 2 の反応物の流れが生じなくなる。したがって、ガス発生装置 40 は、反応室部 12 が加圧されるときに非動作状態すなわち OFF 位置になる。一例では、 $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ は約 $1 \text{ psi} (6.895 \text{ kPa})$ から約 $20 \text{ psi} (137.9 \text{ kPa})$ の予め定められた値であり、好ましくは、 X は $5 \text{ psi} (34.48 \text{ kPa})$ でよく、より好ましくは、 X は約 $2 \text{ psi} (13.79 \text{ kPa})$ でよい。

20

【0049】

水素が必要なとき、遮断バルブ 36 が開となり、ガス発生装置 40 が動作すなわち ON 位置になる。水素がガス収集室部 50 または反応室部 12 から搬送されると、反応室部 12 内の圧力が減少する。貯蔵部 14 および反応室部 12 の間の圧力差が $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ を超えると、気体バルブ 42 が閉となり、これにより、貯蔵部 14 をより高い圧力に維持する。貯蔵部 14 内の維持圧力がブラダー 44 に加わり、これが液体バルブ 41 を開いて第 2 の反応物を反応室部 12 に搬送して第 1 の反応物と反応する。

30

【0050】

高く維持された貯蔵部 14 内の圧力が抽気されると、2 つの室部の圧力が再び $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ 内になる。反応室部 12 内の生成ガスが、反応室部 12 からの圧力が貯蔵部 14 内の圧力と等価になるまで、気体バルブ 42 を開とし、液体バルブ 41 を閉として第 2 の反応物の流れを停止させて反応を停止させる。水素ガスを生成する反応を継続させるために、遮断バルブ 36 が閉じられる。好ましくは、貯蔵部 14 内の高く維持された圧力がすべて抽気される前に、双方の圧力がお互いに $X \text{ psi} (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ である間に、閉じられる。このように閉じると、室部 12 および貯蔵部 14 の双方が再加圧される（気体バルブ 41 が開のままであるので）。圧力が所望のレベルに至ると、バルブ 36 が再び開とされてサイクルを再開する。バルブ 36 の開および閉動作は循環的であり、CPU またはコントローラにより制御できる。圧力ゲージをガス発生装置 40 内に挿入でき、CPU / コントローラが読み出し可能であり、これにより開 / 閉サイクルを制御する。ガス発生装置 40 の事例的な動作サイクルは、以下にまとめられる。

40

【0051】

代替的には、遮断バルブ 36 を循環させることなしに水素の生成を維持するために、貯蔵部 14 内のブラダー 44 を連続的に例えば圧力ガスにより加圧して良い。好ましくは、

50

貯蔵部 14 は十分な量の液化炭化水素、例えば、N - ブタン、イソブタン、またはイソブタンおよびプロパンのブレンドを具備する。これらの材料の気液図は、炭化水素のうちのいくらかが液体形態のままである限り、その圧力が一定になるというものである。一例において、貯蔵部 14 内の圧力は $17 \text{ psi } (117.2 \text{ kPa})$ に維持され (N - ブタンを室温で使用)、反応室部 12 内の圧力が $17 \text{ psi } (117.2 \text{ kPa})$ から $X \text{ psi } (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ の範囲内またはそれ以上のときに、気体バルブ 42 が開となり、圧力を等価とし、液体バルブ 41 を開とする当該バルブ 41 を横切る顕著な圧力差がなく、そのため、流れが生じない。水素ガスが必要なときには、バルブ 36 を開にして、2つの室部の間の圧力差が $X \text{ psi } (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ より大きくなり、気体バルブ 42 が閉となる。そして、貯蔵部 14 内の圧力がブラダー 44 に加わり、液体バルブ 41 を開として第 2 の反応物を反応室部 12 へと搬送する。これはバルブ 36 が閉となるまで継続する。貯蔵部 14 内の加圧ガスが反応室部 12 に入り込むのを最小化、または阻止するために、気体バルブ 42 は一方向でよく、すなわち、水素ガスの反応室部 12 から貯蔵部 14 への搬入のみを許容する。また、貯蔵部 14 が加圧されるときに、気体バルブ 42 を省略して良く、貯蔵部 14 および反応室部 12 の間の圧力差が十分に大きく液体バルブ 41 を開および閉にすることができる。この実施例はさらに図 5 (a) を参照して以下に説明する。また、多孔質膜を気体バルブ 42 の近傍に配置して良い。適切な多孔性膜は、より小さな水素分子は透過させるほど大きく、より大きな炭化水素分子は阻止するほど小さいサイズでなければならない。

【0052】

代替的には、イソブタンまたはイソブタン/プロパンのブレンドを N - ブタンに変えて採用して良く、その圧力はそれぞれ約 $31 \text{ psi } (213.7 \text{ kPa})$ および $50 \text{ psi } (344.8 \text{ kPa})$ である。 $X \text{ psi } (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ は任意の圧力で良く、例えば、 $2 \text{ psi } (13.79 \text{ kPa})$ 、 $4 \text{ psi } (27.58 \text{ kPa})$ 、 $6 \text{ psi } (41.37 \text{ kPa})$ 等である。

【0053】

他の動作モードにおいて、反応室部 12 内の水素発生速度は遮断バルブ 36 から出る寿命その速度より大きい。このため、バルブ 36 が開位置にあるときに、反応室部 12 の内部の圧力が、貯蔵部 14 内の圧力より大きな圧力へと増大し続ける。反応室部 12 内の圧力が予め定められた値だけ貯蔵部 14 の内部の圧力を越えると、液体バルブ 41 が閉となり第 2 の反応物が反応室部 12 に搬入されるのを阻止し、気体バルブ 42 が開となり反応室部 12 の内部の圧力が少なくとも貯蔵部 14 の内部の圧力と実質的に等しくなるようにできる。水素の需要が継続する場合、反応室部 12 の内部の圧力は減少して貯蔵部 14 内の圧力より小さな圧力となり、この結果、気体バルブ 42 が閉となり、液体バルブ 41 が開となる。この動作モードの要約を以下の表 2 に示す。

【表 2】

表 2. バルブ 36 を循環させることなく貯蔵部 14 を加圧する動作

	液体バルブ 41	気体バルブ 42	$P_{12} \text{ vs } P_{14}$	バルブ 36
初期設定	閉	閉	$P_{12} = P_{14}$	閉
バルブ 36 を開	開	閉	$P_{12} < P_{14}$	開
所望より大きな速度で水素を生成	閉	開	$P_{12} > P_{14}$	開
	開	閉	$P_{12} < P_{14}$	開

【0054】

実際、ガス発生装置 40 は、比較的新しいとき、すなわち、装置が新しく、反応速度が比較的大きいときには、表 2 に示される動作モードによって動作可能である。反応物が枯渇に近づき、反応速度が所定速度をしたまわると、ガス発生装置 40 は表 1 で示される動作循環で動作してよい。

【 0 0 5 5 】

ガス発生装置 4 0 はさらに開放バルブ 4 3 を含んでよい。開放バルブ 4 3 の目的は、反応室部 1 2 内に過剰な圧力が形成されるのを阻止することである。例えば、開放バルブ 4 3 は、反応室部 1 2 内の圧力が予め定められた値に達すると開となることができるバルブである。好ましくは、開放バルブ 4 3 は逆止めバルブである。代替的には、開放バルブ 4 3 は手作業で開にでき、水素貯蔵領域 5 0 内のいくつかの水素を排出する。膜 2 5 は開放バルブ 4 3 とともに採用して液体が装置 4 0 から流出するのを阻止してよい。

【 0 0 5 6 】

図 3 に示すように、オプションのスタータ 5 2 をガス発生装置 4 0 内に含んで良い。スタータ 5 2 は初期圧力をブラダー 4 4 に加えて第 2 の反応物を反応室部 1 2 へ案内させて反応を開始させることができる。スタータ 5 2 は当業者に既知の任意のタイプのスタータであってよい。これは手動のスタートでもよく、ガス発生装置が生成ガスを必要とする機器に結合されると初期反応を開始できる自動スタータであってもよい。例えば、スタータ 5 2 は、圧縮、移動、回転させて直接または間接的に圧力をブラダー 4 4 に加えて第 2 の反応物の少なくとも幾分かを反応室部に案内することができるボタン、ポンプ機構、スライド機構、および/またはネジであってよい。事例的なスタータは図 8 (a) - 8 (d) に示される。

【 0 0 5 7 】

図 4 (a) を参照すると、自己調整流れ制御装置 1 6 は隔膜 5 6 を有してよく、これがブラダー 4 4 の開口 5 4 を被覆して第 2 の反応物の流れを阻止し、また開口 5 4 を被覆解除して第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを許容するように構成される。隔膜 5 6 は、貯蔵部 1 4 および反応室部 1 2 の間の圧力差に応答する。図示のとおり、貯蔵部 1 4 が、圧縮ガス、バネ、発泡体、液化炭化水素、または他の圧力機構により加圧されて実質的に一定の圧力をブラダー 4 4 に加える。当初、最初の使用の前では、貯蔵部 1 4 内の大きな圧力により、第 2 の反応物の幾分かが開口 5 4 および隔膜 5 6 の孔 5 5 を通じて搬送されて第 1 の反応物と反応する。生成された水素が、反応室部 1 2 内の圧力が貯蔵部 1 4 の圧力から $X \text{ psi } (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ の範囲になるまで、反応室部 1 2 を加圧する。隔膜 5 6 は、 $X \text{ psi } (= X \times 6.895 \text{ kPa})$ の範囲内では、図 4 (c) に示すように、開口 5 4 を閉じ、第 2 の反応物の流れを停止するような寸法および形状とされる。水素ガスが必要なときには、遮断バルブ 3 6 が開にされ、反応室部 1 2 内の圧力が減少する。隔膜 5 6 は図 4 (b) に示すように開となり、この結果、第 2 の反応物が反応室部 1 2 へ流れて必要な水素を生成する。水素がもはや必要でないときには、バルブ 3 6 は遮断され、反応室部 1 2 が再加圧されて流れを停止する。

【 0 0 5 8 】

図 5 (a) を参照すると、隔膜 5 6 が逆止めバルブ 5 7 に置き換えられて良く、これが隔膜 5 6 と同一の条件で開および閉となる。図 5 (b) は流れ調整器 5 8 を示す。好ましくは、調整器 5 8 は第 2 の反応物を吸収可能なフィルター材料から製造される。そのため、第 2 の反応物を吸収可能な任意の材料をこの発明に採用できる。適切な材料は発泡体、フィルターまたは繊維材料である。他のオプションは、これに限定されないが、復帰バルブおよび噴霧制限である。

【 0 0 5 9 】

図 6 の示すように、ガス発生装置 4 0 は、バルブ 6 5 および可動部材すなわちピストン 6 8 に連結されたスタータ 6 4 を含んで良い。スタータ 6 4 を押してバルブ 6 5 を開にして第 2 の反応物を反応室部 1 2 へ案内して反応を開始できる。スタータ 6 4 は手動のスタートでもよく、ガス発生装置が生成ガスを必要とする機器に結合されると初期反応を開始できる自動スタータであってもよい。可動部材 6 8 はオプションとしてバルブ 6 9 を含んでも良い。オプションのバルブ 6 9 をこの発明で使用すると、スタータ 6 4 を、初期反応を開始するのに使用できる。初期反応が開始されて反応室部 1 2 が加圧されると、この圧力が、オプションのバルブ 6 9 を開として第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを可能にする傾向があるピストン 6 8 に加わる。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 0 】

可動部材 6 8 およびガス発生装置 4 0 の壁部の間にシールを形成するために、また第 2 の反応物を第 1 の反応物と隔離するために、可動部材 6 8 は 1 またはそれ以上のシール 6 2、例えば o - リングを有してよい。さらに、可動部材 6 8 およびガス発生装置 4 0 の壁部の間の摩擦を補償するために、オプションの (1 または複数の) バネ 6 6 を図 6 に示すように反応室部 1 2 中に配置して良い。

【 0 0 6 1 】

反応が開始すると、反応室部 1 2 内の圧力が予め定められたレベルへと増大して、反応室部 1 2 内の圧力がバルブ 6 9 を閉にして第 2 の反応物の反応室部 1 2 へ至る流れを停止する。貯蔵部 1 4 内に真空が生成されるのを最小化するために、また第 2 の反応物へ圧力を加え、および / または維持するために、可動部材 6 8 がバネ 6 6 によって貯蔵部 1 4 へとバイアスされる。バルブ 3 6 を開にすることにより反応室部 1 2 内の圧力が減少されたのち、貯蔵部 1 4 内のより大きな圧力がバルブ 6 9 を開にしてさらに第 2 の反応物を反応室部 1 2 へ搬送してさらに水素を生成させる。代替的には、オプションのバルブ 6 9 を可能部材 6 8 に組みこまないときに、必要時に、スタータ 6 4 が押圧されてバルブ 6 5 を開にして第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを開始させてよい。

【 0 0 6 2 】

他の実施例が図 7 に示される。この実施例は図 6 と類似である。ただし、バネ 6 6 が貯蔵部 1 4 内に配置され、可動部材 6 8 がバルブ 6 9 を含んでいない。さらに、スタータ 6 4 は、軸 7 1 に置換され、これが、バルブすなわち末端 1 7 を具備し、これが回転可能である。軸 7 1 が回転動作するとバルブも比例して回転し、これにより、第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れが開始および停止される。図 7 に示すような、バルブシステムは一般に産業界では「線形制御バルブ」 (linear control valve) または「グローブバルブ」 (globe valve) として知られている。そして、初期の反応を開始するために、軸 7 1 を回転させてバルブ 1 7 を開にする。この実施例における水素発生プロセスは図 6 に関連して検討したプロセスと類似である。ただし、この実施例では、部材 6 8 が貯蔵部 1 4 へ移動するとき、部材 6 8 の移動が軸 7 1 と連結されたバルブ 1 7 を回転させて第 2 の反応物の反応室部への流れを停止させる。反応室部 1 2 内の圧力が予め定められた圧力を下回るとき、バネ 6 6 が可動部材 6 8 を反応室部 1 2 へと押して、この結果、これが、軸 7 1 に結合されているバルブ 1 7 を回転させて開となす。

【 0 0 6 3 】

図 8 (a) はこの発明の他の実施例を示す。このガス発生装置においては、反応室部 1 2 が貯蔵部 1 4 / プラダー 4 4 から可動ピストン 6 8 によって隔離されている。ただし、反応室部 1 2 は、ピストン 6 8 に形成された開口 7 8 を通じて貯蔵部 1 4 に対して一定の流体連通となっている。可動ピストン 6 8 は、また、反応室部 1 2 内に配置されたバネ 6 6 によって貯蔵部 1 4 へとバイアスされている。反応を開始するためには、スタータ 7 4 を作動させ、例えば、押圧する。スタータ 7 4 の作動により圧力が生成されると、逆止めバルブを開にして第 2 の反応物を反応室部 1 2 へ開放して第 1 の反応室部と反応させる。水素ガスが生成され、ガス発生装置全体を加圧する。バルブ 3 6 が開となると、水素ガスが開放される。貯蔵部 1 4 および反応室部 1 2 の間の圧力差がないので、何も第 2 の反応物の反応室部 1 2 への流れを阻止しない。このため、水素が、反応物が消費されるまで生成される。

【 0 0 6 4 】

図 8 (b) - 8 (d) は他のタイプのスタータを示す。図 8 (b) に示すように、押しボタン 7 4 がポンプボタン 8 2 に置き換えられて良く、これが、ガス、例えば空気をプラダー 7 8 に満たす。プラダー 7 8 はプラダー 4 4 に力を加えて第 2 の反応物の少なくとも幾分か、または予め定められた量を反応室部 1 2 に案内できる。さらに、図 8 (c) に示すように、押しボタン 7 4 をネジ式の装置 7 6 で置き換えることができ、これを回してプラダー 4 4 に力を加えることができる。他のオプションの実施例は、図 8 (d) に示すように、スライド機構 8 2 を含んでよい。この実施例では、スライドスイッチ 8 2 が予め定

められた方向に移動されるときに、ブラダー 44 に力が加えられ、第 2 の反応物の幾分か、または予め定められた量が反応室部 12 へ開放される。

【0065】

この発明の他の実施例が図 9 (a) - 9 (d) に示される。このガス発生装置は、第 2 の反応物を具備する貯蔵部 14 に結合され、第 1 の反応物を具備する反応室部 12 を含む。貯蔵部 14 およびブラダー 44 は制御装置 16 に取り外し可能に連結できる。貯蔵部 14 が制御装置 16 に取り外し可能に結合されるときに、好ましくはブラダー 44 が逆止めバルブを具備してブラダーをシールし、配管 45 が対応する逆止めバルブを具備し配管をシールしブラダー上の逆止めバルブと係合してその間の流路を形成する。適切な対応するバルブは米国特許出願 10 / 624006 および同 10 / 978949 に十分に開示されてお

10

【0066】

自己調整流れ制御装置 16 は配管 45 / 隔膜 92 を有し、これが棒 94 と相互作用し、また動作可能に関係付けられる。棒 94 は配管 45 内に配される。非動作すなわち OFF 位置では、図 9 (c) に示すように、棒 94 がシール面 97 に愛してシール 98 を有して流れを阻止する。図示のとおり、配管 45 は数ターンしている。ただし、流路の実際の形状は重要でなく、この発明は配管 45 のいかなる具体的な形状にも制約されない。好ましくは、シール 98 は、ずれ要素 (shear component) なしに圧縮されてシール 98 の寿命を伸ばす。これは角度のないシール面、例えばシール面 97 により実現で

20

【0067】

隔膜 92 および棒 94 はオブションの上側バネ 88 および下側バネ 96 の間で平衡状態にされている。これらバネは予め荷重を受けており、反応室部 12 の予め定められた圧力に対応しており、ガス発生装置はこの圧力を越えると閉じる。オブションの調整部 86 を設けてバネの相対的な荷重を調整する。図 9 (b) に最もよく示すように、反応室部からの圧力 P2 が配管 45 に戻される (液体の第 2 の反応物または生成された水素を通じて流体的に)。圧力 P2 は隔膜 92 の底に作用し、P2 が十分に大きいときに、P2 が隔膜 92 および棒 94 を上方に押して配管 45 の流路を閉とする。バネ 88 および 96 の予めの荷重、またはこれらバネの間の相対的な予めの荷重が圧力を決定し、配管 45 が遮断される前に P2 がこの圧力に達する。代替的には、バネ 88 および 96 のうちの 1 つを省略してよい。例えば、バネ 96 を省略して、バネ 88 を残し、これが隔膜 92 に作用する圧力 P2 と平衡するようになしてよい。

30

【0068】

他の実施例と同様に、反応室部 12 はバルブ 36、これを被覆する少なくとも 1 つの液体非透過性、気体透過性の膜 25 を具備する。反応室部 12 は、少なくとも 1 つのフィルター / フィルタ 46 と、隔膜 92 の領域に入る粒子を阻止し、少なくともその数を減少させる、少なくとも 1 つのスクリーンと、ガス発生装置の目詰まりを最小化する少なくとも 1 つの拡散メッシュ 114 と、スクリーン 110 の閉塞を阻止する少なくとも 1 つの拡散メッシュ 120 とを有する。オブションとして、ガス発生装置 40 は、ブラダー 44 およびシール 98 の間に気体非透過性部材を含んでいずれのガスもブラダー 44 に入らないようにしてよい。

40

【0069】

他の実施例を図 10 に示す。この実施例では、ガス発生装置 40 は、貯蔵部 14 および反応室部 12 に加えて、室部 126 を含む。室部 126 は可動部材 68 によって反応室部 12 から分離されており、この可動部材 68 がバルブ要素 132 および 128 を配置させている。好ましくは、気体透過性 / 液体非透過性部材 48 がバルブ要素 132 および 128 の間に配置されて、任意の生成ガスが反応室部 12 から排出されるときに、反応室部 1

50

2 に液体を保持するようになっている。室部 1 2 6 はさらに雄バルブ 1 3 0 を有し、これが雌バルブ 1 2 8 と結合するようになっている。

【 0 0 7 0 】

可動部材 6 8 は遮断バルブ 3 6 および貯蔵部 1 4 の間を往復動する。一側では、可動部材 6 8 はバネ 6 6 によりバイアスされ、他側では、反応室部 1 2 内で生成されたガスにより押圧可能である。可動部材 6 8 が遮断バルブ 3 6 へと押圧されるとき、バルブ 1 3 0 はバルブ 1 2 8 と連結してガスを反応室部 1 2 からガス室部 1 3 2 へと搬送する。可動部材 6 8 が貯蔵部 1 4 へと押圧されるときに、バルブ 1 3 4 がバルブ 1 3 2 と結合して第 2 の反応物をさらに貯蔵部 1 4 から反応室部 1 2 へと搬送する。

【 0 0 7 1 】

好ましくは、初めての使用に先立って、反応室部 1 2 は、加圧ガス、例えば、不活性ガス、空気または水素を含む。ガスは、雌バルブ 1 2 8 を雄バルブ 1 3 0 に適切に接触させる距離だけ可動部材 6 8 を押圧する予め定められた圧力に近づくレベルへと、反応室部 1 2 を加圧する。水素生成が必要なときに、バルブ 3 6 は開となり貯蔵されたガスを開放する。この開放により、ガス室部 5 0 内の圧力が減少し、反応室部 1 2 内の圧力も同様である。反応室部 1 2 内の圧力が予め定められたレベルを下回ると、バネ 6 6 が可動部材 6 8 を貯蔵部 1 4 へと押す。好ましくは、バネ 6 6 は、雄バルブ 1 3 2 を雌バルブ 1 3 0 中に挿入させるに足る距離、可動部材 6 8 を押す。雄バルブ 1 3 2 を雌バルブ 1 3 4 に挿入することにより、経路が開となり、貯蔵部 1 4 内の第 2 の反応物がオリフィス 4 9 を介して反応室部 1 2 へと流れることができる。第 2 の反応物が反応室部 1 2 に案内されると、これが好ましくは第 1 の反応物と反応して水素を生成する。圧力が、予め定められた値に達し、すなわちバネ 6 6 により可動部材 6 8 へ加えられているある圧力を上回ると、可動部材 6 8 が雄バルブ 1 3 0 へと押される。雄バルブ 1 3 0 の雌バルブ 1 2 8 との結合により、生成ガスが反応室部 1 2 を出て室部 5 0 へ至る経路が開となり、この後、バルブ 3 6 を介してガス発生装置から排出される。

【 0 0 7 2 】

このサイクルが、この後繰り返され、可動部材 6 8 は、再度、貯蔵具 1 4 側へ移動してバルブ 1 3 4 をバルブ 1 3 2 に結合させてさらに第 2 の反応物を反応室部 1 2 へ搬送する。好ましくは、貯蔵部 1 4 は加圧され、第 2 の反応物が先に検討したようにブラダー 4 4 内に貯蔵される。

【 0 0 7 3 】

上述の実施例の各々において、ガス発生装置 4 0 は反応室部 1 2 および貯蔵部 1 4 を含む。いくつかの事例的な実施例では、反応室部 1 2 内の第 1 の反応物および / または貯蔵部 1 4 またはブラダー 4 4 内の第 2 の反応物は、オプションとしての触媒、水素担持燃料、および薬剤（例えば水）の少なくとも 1 つを含んで良く、ここで、薬剤は、触媒を伴って、または伴わずに、第 1 の水素担持燃料と反応してガスを生成でき、オプションで添加物を含んで良い。好ましくは、薬剤は、触媒の存在下で水素担持燃料と反応して所望のガスを発生させる。好ましくは、反応室部 1 2 内の第 1 の反応物と貯蔵部 1 2 またはブラダー内の第 2 の反応物 1 4 は同一の組成物でない。さらに好ましくは、水素担持燃料および薬剤は別々の室部に配される。すなわち、反応室部 1 2 内の第 1 の反応物が水素担持燃料であれば、薬剤を貯蔵部 1 4 内の第 2 の反応物として具備することが好ましい。

【 0 0 7 4 】

この発明の水素担持燃料は、薬剤 / 組成物と反応しておよび / または所定の条件下に置かれて、水素を発生させることができる任意の燃料であってよい。いくつかの事例的な実施例では、水素担持燃料は金属水素化物を含んで良い。いくつかの事例的な実施例では、燃料は、これに限定されないが、元素周期表の I - I I I 族の元素の水素化物およびその混合物、例えば、アルカリ性またはアルカリ金属水素化物、またはこれらの混合物を含んで良い。他の化合物、例えばアルカリ金属水素物（アラネート）および水素化ホウ素アルカリ金属も採用して良い。例えば、水素化カルシウムを固体燃料としてこの発明に従ってそのように使用してよい。好ましくは、水素担持燃料は NaBH_4 を含み、これは固定形

10

20

30

40

50

態である。好ましくは、液体形態の NaBH_4 を採用するときには、液体の NaBH_4 を含む室部が安定剤も含む。例示的な安定剤は、これに限定されないが、金属水酸化物、例えばアルカリ金属水酸化物を含んで良い。最も好ましい安定剤は、 NaOH である。

【0075】

いくつかの事例的な実施例において、第1の反応物、第2の反応物、または双方は、燃料源の反応速度を増大させることにより水素の発生を容易にする触媒を含んでよい。この発明の触媒は、所望の反応を支援できるいかなる形状またはサイズを含んでよい。例えば、触媒は粉末の形態をとるほど小さくて良く、また、貯蔵部または反応室部と同じくらいに大きくて良い。いくつかの事例的な実施例では、触媒は触媒床である。この触媒は、第1の反応物または第2の反応物の少なくとも一方が触媒に接するようになる限り、反応室部の内部、貯蔵部の内部またはブラダーの内部、反応室部、貯蔵部、またはブラダーの近傍にあってよい。

10

【0076】

いくつかの事例的な実施例では、触媒は、ルテニウム触媒、白金触媒、ニッケル触媒、当業者に既知の任意の他の触媒を含んで良い。いくつかの事例的な実施例では、元素の周期律表のV I I I B族からの金属を具備する触媒を採用できる。好ましくは、この発明のバス発生装置とともに採用できる触媒は CoCl_2 である。

【0077】

この発明に採用できるいくつかの事例的な燃料は、これに限定されないが、メタノール、水素化ホウ素、アンモニアホウ素、およびヒドラジンを含む。これら事例的な燃料を製造するために、第1の先駆体はジメチルジカーボネート、水、ホウ素含有ポリマー、カーボネート、アンモニア、アジン、および/または過酸化水素であってよい。これらの燃料の各々は米国特許出願 10 / 854540 に詳細に説明されており、その内容についてはすでに参照してここに組み入れた。

20

【0078】

いくつかの事例的な実施例において、燃料と反応可能な薬剤は水である。好ましくは、この発明の第1の反応物は、好ましくは反応室部に配置され、 NaBH_4 であり、第2の反応物は、好ましくは貯蔵部または貯蔵部内のブラダー内に配置され、水である。

30

【0079】

いくつかの事例的な実施例において、オプションの添加物は、反応室部、貯蔵部および/または反応室部18の内部にあってよく、第1の反応物および/または第2の反応物の凝固を実質的に防止できる、すなわちその凝固点を小さくできる任意の組成物であって良い。いくつかの例示的な実施例では、添加物は凍結防止剤であってよい。いくつかの例示的な実施例では、添加物はアルコールベースの組成物である。好ましくは、この発明の添加物は CH_3OH である。ただし、上述のとおり、第1の反応物および/または第2の反応物の凝固点を小さくできる任意の添加物を採用できる。

【0080】

液体溶液はオプションとして約3から5のpHの酸を含む。液体溶液に添加される酸の一例は酢酸である。この発明において酸の目的は、液体溶液および固体燃料の間のより定常的な反応を実現するため、および、反応室部の入口において障壁が形成されるのを防止するためである。

40

【0081】

上述の明細書およびここで開示された発明の実践を考慮することにより、当業者にはこの発明の他の実施例が明らかであろう。この明細書および例は事例としてのみ考慮すべきであり、この発明の範囲および精神は特許請求の範囲およびその均等物により示されるべきであることに留意されたい。

【0082】

添付図面は明細書の一部を形成し、明細書との関連において理解されるべきであり、種

50

々の図において類似の参照番号は類似の部分を示すために用いられる。添付図面は以下のとおりである。

【図面の簡単な説明】

【0083】

【図1(a)】自己調整流れ制御装置具備するガス発生装置を動作状態で示す断面図である。

【図1(b)】図1(a)のガス発生装置を非動作状態で示す断面図である。

【図1(c)】図1(a)に示すガス発生装置において使用できる代替的な自己調整流れ制御装置を、非動作状態で示す模式図である。

【図1(d)】図1(c)の代替的な自己調整流れ制御装置を動作状態で示す模式図である。

10

【図2(a)】自己調整流れ制御装置を具備する他のガス発生装置の断面図である。

【図2(b)】図2(a)のガス発生装置とともに使用して好適な種々のウェファおよびスプレИАタッチメントの模式図である。

【図2(c)】図2(a)のガス発生装置とともに使用して好適な種々のウェファおよびスプレИАタッチメントの模式図である。

【図2(d)】図2(a)のガス発生装置とともに使用して好適な種々のウェファおよびスプレИАタッチメントの模式図である。

【図3】初期反応を開始させるブッシャーを具備する代替的なガス発生装置の断面図である。

20

【図4(a)】他のガス発生装置の断面図である。

【図4(b)】図4(a)のガス発生装置の流れ制御装置を開位置で示す図である。

【図4(c)】図4(a)のガス発生装置の流れ制御装置を閉位置で示す図である。

【図5(a)】図4(a)の実施例の変形例を示す図である。

【図5(b)】図4(a)の実施例の変形例を示す図である。

【図6】他のガス発生装置を示す断面図である。

【図7】反応を開始させるために使用可能な回転棒を具備する他のガス発生装置を示す断面図である。

【図8(a)】反応を開始させる押しボタンを具備する他のガス発生装置の断面図である。

30

【図8(b)】図3および図8(a)とともに使用可能な種々の開始機構を示す部分切欠き模式図である。

【図8(c)】図3および図8(a)とともに使用可能な種々の開始機構を示す部分切欠き模式図である。

【図8(d)】図3および図8(a)とともに使用可能な種々の開始機構を示す部分切欠き模式図である。

【図9(a)】隔膜を含むことが可能な自己調整流れ制御装置を具備する他のガス発生装置を示す断面図である。

【図9(b)】図9(a)の自己調整流れ制御装置の拡大断面図である。

【図9(c)】自己調整流れ制御装置が閉位置にあるときの図9(a)の自己調整流れ制御装置の拡大断面図である。

40

【図9(d)】自己調整流れ制御装置が開位置にあるときの図9(a)の自己調整流れ制御装置の拡大断面図である。

【図10】他のガス発生装置の断面図である。

【図11】反応物貯蔵部内において部分的な圧力が形成されるのを最小化するために使用できるバッフルまたは排気機構を示す部分断面図である。

【符号の説明】

【0084】

10 ガス発生装置

12 反応室部

50

- 1 4 貯蔵部
- 1 6 自己調整流れ制御装置
- 1 8 配管
- 2 0 おもり
- 3 6 バルブ

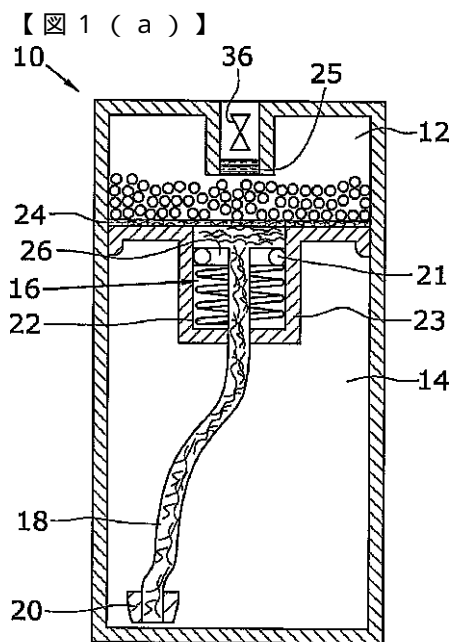


Fig. 1(a)

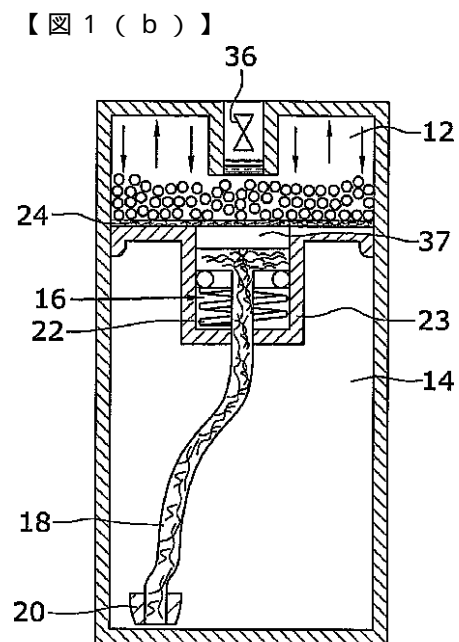


Fig. 1(b)

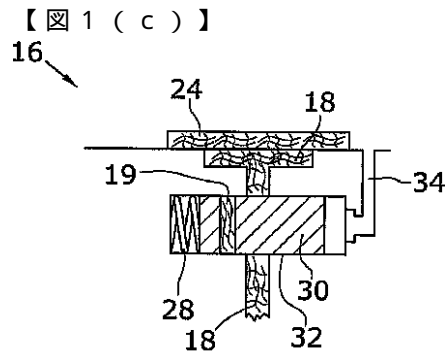


Fig. 1(c)

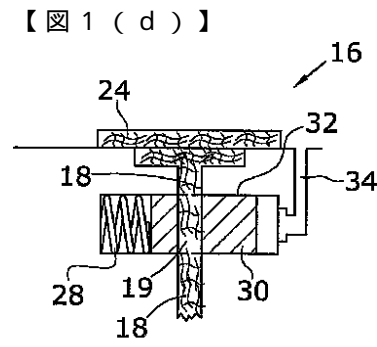


Fig. 1(d)

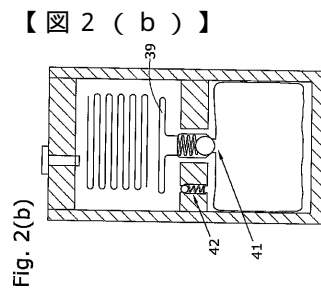


Fig. 2(b)

【図 2 (c)】

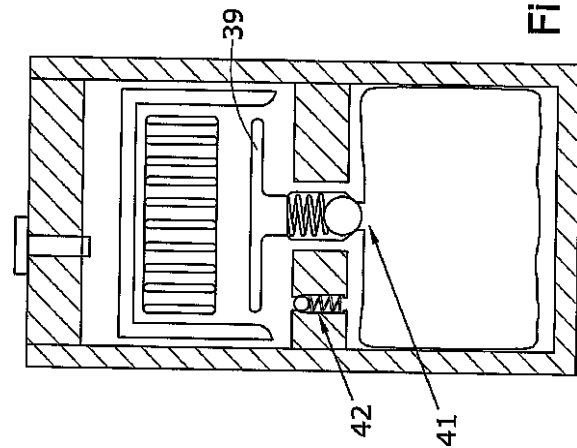
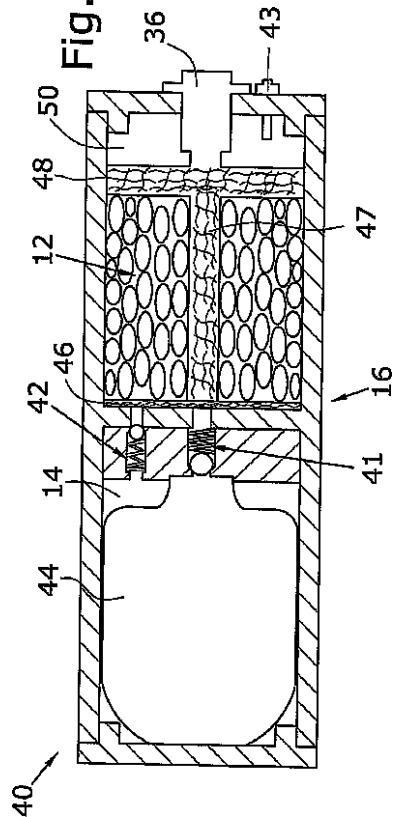


Fig. 2(c)

【図 2 (a)】
Fig. 2(a)



【図 2 (d)】

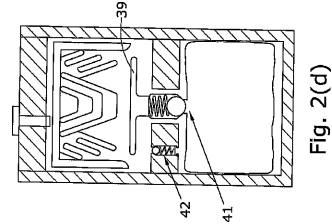


Fig. 2(d)

【図 3】

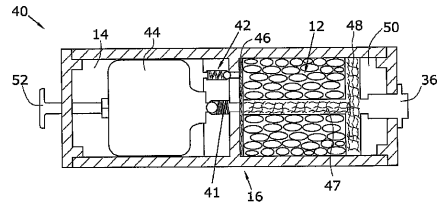


Fig. 3

【図 4 (a)】

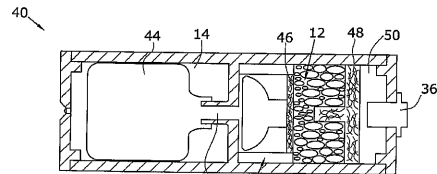


Fig. 4(a)

【図 4 (b)】

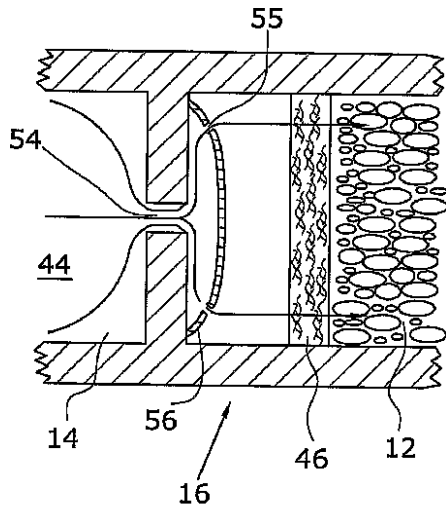


Fig. 4(b)

【図 4 (c)】

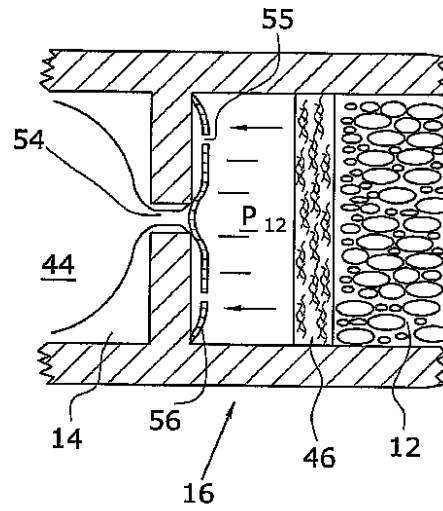


Fig. 4(c)

【図 5 (a)】

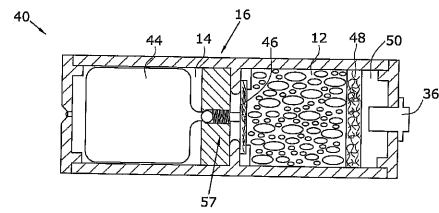


Fig. 5(a)

【図 5 (b)】

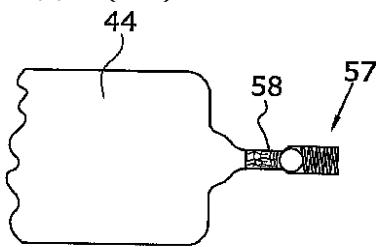
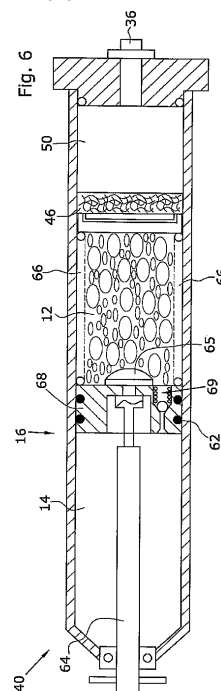
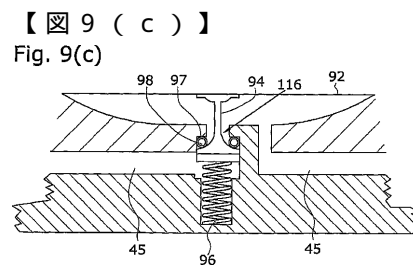
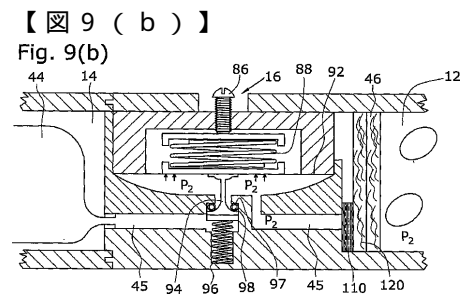
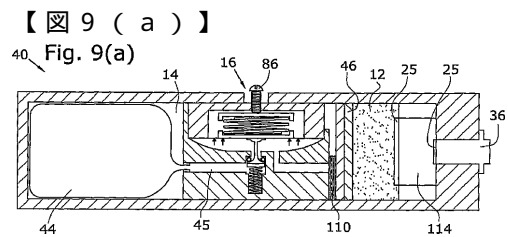
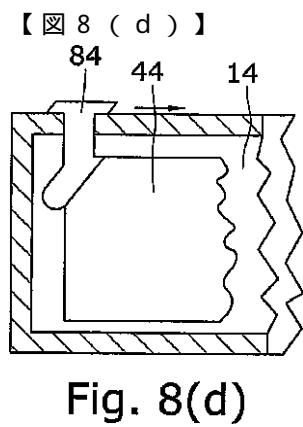
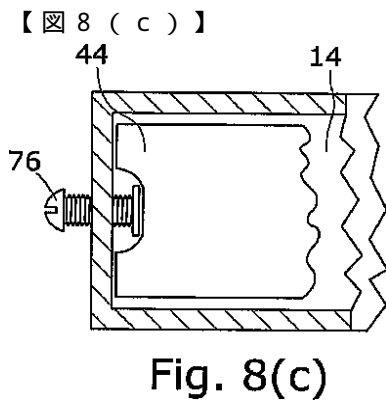
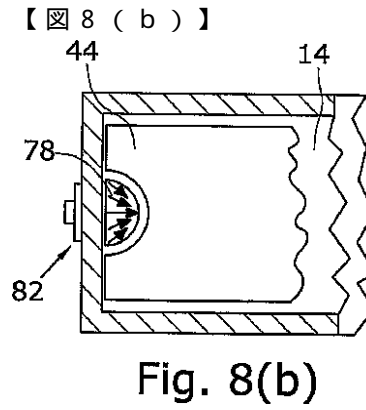
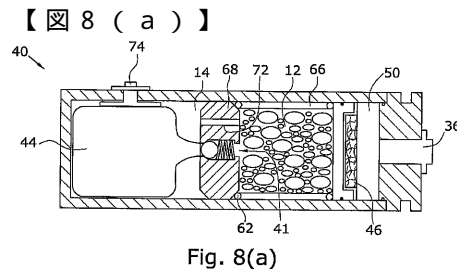
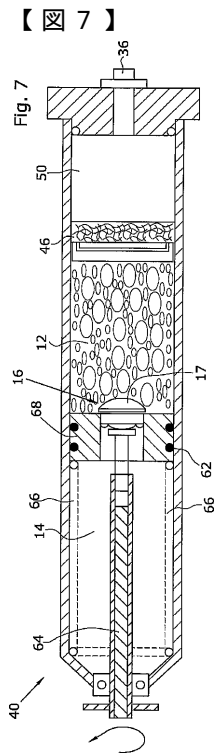
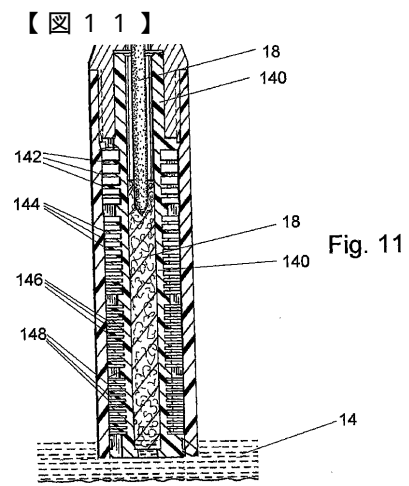
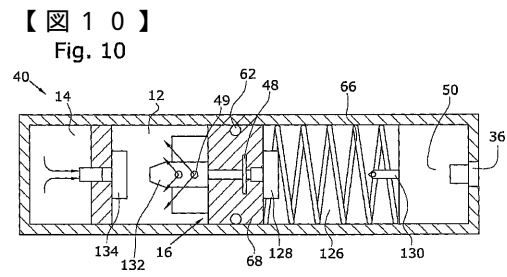
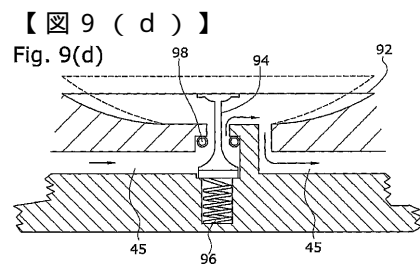


Fig. 5(b)

【図 6】







フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

H 0 1 M 8/04

N

H 0 1 M 8/10

(72)発明者 アダムズ、ポール

アメリカ合衆国、06468 コネチカット州、モンロー、ペリー ドライブ 21

(72)発明者 クレロ、アンドリュー、ジェイ、

アメリカ合衆国、06518 コネチカット州、ハムデン、エラモ テラス 15

(72)発明者 フェアバンクス、フロイド

アメリカ合衆国、06770 コネチカット州、ノーガタック、バーチ レーン 103

(72)発明者 スグロア、アンソニー、ジュニア

アメリカ合衆国、06492 コネチカット州、ウォーリングフォード、ヒンツ ドライブ 28

(72)発明者 ステパン、コンスタンス、アール、

アメリカ合衆国、06478 コネチカット州、オックスフォード、クリスタル レーン 16

審査官 横山 敏志

(56)参考文献 特開2003-290645(JP,A)

国際公開第2001/074710(WO,A1)

特表平09-512626(JP,A)

特開2003-142135(JP,A)

特開2003-257466(JP,A)

特開2004-087470(JP,A)

特開2004-319490(JP,A)

特開2004-281384(JP,A)

国際公開第2004/071946(WO,A2)

米国特許第03098769(US,A)

米国特許第05372617(US,A)

米国特許第06746496(US,B1)

米国特許第04317046(US,A)

国際公開第97/004231(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01B3/00-6/34

H01M8/04-8/10