

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2017-525552

(P2017-525552A)

(43) 公表日 平成29年9月7日(2017.9.7)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B O 1 D 11/02 (2006.01)	B O 1 D 11/02 A	4 D 0 5 6
B O 1 D 11/04 (2006.01)	B O 1 D 11/04 C	4 H 0 0 6
C O 7 C 311/48 (2006.01)	C O 7 C 311/48	5 H 0 3 1
C O 7 C 303/44 (2006.01)	C O 7 C 303/44	
H O 1 M 10/54 (2006.01)	H O 1 M 10/54	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 11 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2016-573915 (P2016-573915)	(71) 出願人	508079739
(86) (22) 出願日	平成27年6月16日 (2015.6.16)		ローディア オペレーションズ
(85) 翻訳文提出日	平成29年2月6日 (2017.2.6)		フランス国 エフー75009 パリ,
(86) 国際出願番号	PCT/EP2015/063381		リュ ドゥ クリシー 25
(87) 国際公開番号	W02015/193261	(74) 代理人	110002077
(87) 国際公開日	平成27年12月23日 (2015.12.23)		園田・小林特許業務法人
(31) 優先権主張番号	14/01375	(72) 発明者	メッツ, フランソワ
(32) 優先日	平成26年6月18日 (2014.6.18)		フランス国 エフー69540 イリニー
(33) 優先権主張国	フランス (FR)		, リュ デュ マルジョレ 28 ビス
		F ターム (参考)	4D056 AB07 AB17 AC04 AC22 AC29
			CA13 CA14 CA15 CA17 CA39
			4H006 AA02 AC61 AD16 BB12 BB16
			BB17 BB31
			5H031 BB09 EE03 EE04 RR02
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電解質塩を回収するための方法

(57) 【要約】

本発明は、電解質を水による液体抽出に供することを含む、母材中に溶解された電解質の金属塩を回収するための方法に関する。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

母材中に溶解された電解質の金属塩を回収するための方法であって、前記方法は、前記電解質を水による液体抽出に供することを含み、前記金属塩が、スルホンイミド、過塩素酸塩、スルホン酸塩、ジフルオロリン酸塩およびそれらの混合物からなる群から選択される、方法。

【請求項 2】

前記金属塩がアルカリ金属の有機または無機塩である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記金属塩が、K、Li、Na または Cs から選択されるアルカリ金属の塩である、請求項 2 に記載の方法。 10

【請求項 4】

前記金属塩がリチウム塩である、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記金属塩が、式 $(Rf^1 SO_2)(Rf^2 SO_2)NM^b$ を有するスルホンイミドであり、 M^b が、特に K、Li、Na および Cs から選択されるアルカリ金属を表わし、 Rf^1 および Rf^2 が独立に、フッ素原子、またはフルオロアルキル、パーフルオロアルキルおよびフルオロアルケニルから選択される 1～10 個の炭素原子を有する基を表わす、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の方法。 20

【請求項 6】

前記金属塩がリチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミドまたはリチウムビス（パーフルオロエタンスルホニル）イミドである、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

前記金属塩がリチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミドである、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】

前記金属塩が $LiClO_4$ および $LiOTf$ から選択される、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 9】

前記母材がポリマーまたはゲルを含む、請求項 1～8 のいずれか一項に記載の方法。 30

【請求項 10】

前記電解質の前記母材が有機溶剤を含み、この電解質が水と混和性であり、この電解質が、水によるおよび水と非混和性である有機抽出溶剤による液体抽出に連続的にまたは同時に供せられる、請求項 1～9 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 11】

水と非混和性である前記有機抽出溶剤が、クロロホルム、ジクロロエタン、ペルクロロエチレン、塩化メチレンおよび／またはクロロベンゼン、好ましくは塩化メチレンおよび／またはクロロベンゼンなどの塩素化溶剤である、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

2つの液体抽出の終了時に、2つの液相：実質的に全ての前記金属塩が溶解される水性相と、実質的に全ての、前記電解質の前記有機溶剤および前記有機抽出溶剤を含有する有機相とが存在しており、これらの2つの相が、好ましくは沈降または遠心分離によって分離される、請求項 10 または 11 に記載の方法。 40

【請求項 13】

前記電解質の前記溶剤と前記抽出溶剤とを含有する前記有機相が、好ましくは蒸留によって処理されて溶剤を分離する、請求項 12 に記載の方法。

【請求項 14】

前記電解質を水による前記液体抽出に供することによって得られる前記金属塩を含有する水性抽出溶液が、例えば噴霧－乾燥によって乾燥されて、そこから前記金属塩を抽出す 50

る、請求項 1～13 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 15】

前記金属塩が LiTFSI であり、前記 LiTFSI を含有する前記水性抽出溶液が、酸性にされて HTFSI および LiOH を生成し、それらは、単離され、その後再び互いに接触させられて前記 LiTFSI を再生する、請求項 1～13 のいずれか一項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電解質中に含有される、金属塩、特にリチウム塩を回収するための方法に関する。

10

【0002】

リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド（ $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ または LiTFSI ）、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミド（ $(\text{SO}_2\text{F})_2\text{NLi}$ または LiFSI ）またはリチウムビス（パーフルオロエタンスルホニル）イミド（ $(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ ）などのスルホニイミド塩が、特に目的とする化合物である。とりわけ、それらの特性により、それらは、純度および品質に関して、たとえば、バッテリーまたは帯電防止市場においてまたはエレクトロクロミズムにおいて電荷の伝導および／または消散に関して要求が厳しい電子用途向け有益な化合物である。これらの化合物は特に電解質において使用され、この場合、ポリマー、ゲルまたは有機溶剤であってもよい母材中にある。

20

【0003】

電解質を再生利用するための方法が先行技術に存在している。しかしながら、これらの方法は一般的に、費用がかかる、金属、特にリチウムの回収に焦点が当てられており、金属の塩そのままでの回収、またはさらに電解質の母材（液体電解質の場合は溶剤である）の回収には焦点が当てられていないが、にもかかわらず、これらの代替形態は、コストおよび環境の保全の観点から少なからぬ利点を有する。

【0004】

このように、国際公開第 2008/022415 号パンフレットには、リチウムバッテリーの電解質からリチウムを回収するための方法が記載されており、それに従えば、使用済みバッテリーがアセトン 5% を含有するエタノールの溶液と接触させられ、リチウム塩を抽出してそれと媒体の様々な成分との化学反応の後、リチウムが Li_2CO_3 の形態で回収される。次に、濾液を蒸留してエタノールを回収し、それを新たな抽出のために使用してもよい。このような方法において、リチウムだけが回収されるが、前記リチウムは改質された化学的形態であり、それは、そのリチウムがリチウムバッテリー内でそのままで再利用可能でないことを意味する。

30

【0005】

また、仏国特許出願公開第 2868603 号明細書には、リチウムアノードセルおよびバッテリーを処理するための方法が記載されている。リチウムの他に、前記文献は PF_6 アニオンの回収だけを提案する。また、特開平 05-017832 号公報は、リチウムバッテリーに含有されるリチウムを回収するための方法を提供するが、リチウム塩アニオンを回収するための手段を提案しない。本発明の目的は、電解質の金属塩、特にリチウム塩、特にリチウムスルホニイミドおよび特に $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ を回収するための方法を提供することであり、それは金属塩の化学的性質の改質をほとんどまたは全く引き起こさず、それはまた、場合により、電解質の母材がポリマー、ゲルまたは溶剤の形態であるか否かに関わらず、それを回収することを可能にする。

40

【0006】

この趣旨で、本発明は、電解質を水による液体抽出に供することを含み、母材中に溶解された電解質の金属塩を回収するための方法に関する。

【0007】

50

用語「金属塩」は、金属の、好ましくは、特に：K、Li、NaまたはCsから選択される、アルカリ金属の有機または無機塩を意味することを意図する。リチウム（Li）塩が特に好ましい。

【0008】

本発明による方法において、金属塩は、スルホンイミド、過塩素酸塩、スルホン酸塩、ジフルオロリン酸塩およびそれらの混合物からなる群から選択されてもよい。

【0009】

式 $(Rf^1SO_2)(Rf^2SO_2)NM^b$ を有するスルホンイミドが好ましく、 M^b が、特に：K、Li、NaおよびCsから選択されるアルカリ金属を表わし、 Rf^1 および Rf^2 が独立に、フッ素原子またはフルオロアルキル、パーフルオロアルキルおよびフルオロアルケニルから選択される1～10個の炭素原子を有する基を表わす。

10

【0010】

本発明の文脈では：

- 用語「アルキル」は、好ましくは1～10個の炭素原子、特に1～4個の炭素原子を含む線状もしくは分枝の炭化水素鎖を意味することを意図する。
- 用語「フルオロアルキル」は、少なくとも1個のフッ素原子を含む線状もしくは分枝の $C_1 \sim C_{10}$ 炭化水素鎖から形成される基を意味することを意図する。
- 用語「パーフルオロアルキル」は、炭素原子に加えて、フッ素原子のみを含む、そして水素原子を持っていない線状もしくは分岐の $C_1 \sim C_{10}$ 鎖から形成される基を意味することを意図する。
- 用語「フルオロアルケニル」は、少なくとも1個のフッ素原子を含み、少なくとも1個の二重結合を含む線状もしくは分岐の $C_1 \sim C_{10}$ 炭化水素鎖から形成される基を意味することを意図する。

20

【0011】

好ましくは、 Rf^1 および Rf^2 基が独立に、フッ素原子またはフルオロアルキル、パーフルオロアルキルおよびフルオロアルケニルから選択される、1～5個の炭素原子を有する基から選択される。

【0012】

金属塩が好ましくは、リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミドまたはリチウムビス（パーフルオロエタンスルホニル）イミド、好ましくはリチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミドから選択されてもよい。

30

【0013】

また、金属塩が $LiClO_4$ （過塩素酸リチウム）および $LiOTf$ （リチウムトリフレートとも呼ばれるトリフルオロメタンスルホン酸リチウム）から選択されてもよい。

【0014】

また、金属塩が $LiPO_2F_2$ （ジフルオロリン酸リチウム）であってもよい。

【0015】

さらに、無機リチウム塩が $LiPF_6$ 、 $LiBF_4$ 、 $LiClO_4$ 、 $LiAsF_6$ またはリチウムホウ酸塩およびリン酸塩から選択されてもよいことが本明細書において示される。有機リチウム塩は好ましくは、前述のホウ酸塩およびリン酸塩のフルオロアルキル変種、 $LiOTf$ （またはトリフルオロメタンスルホン酸リチウム）または前述のリチウムスルホンイミド、例えばリチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド（ $(CF_3SO_2)_2NLi$ または $LiTFSI$ ）、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミド（ $(SO_2F)_2NLi$ または $LiFSI$ ）またはリチウムビス（パーフルオロエタンスルホニル）イミド（ $(C_2F_5SO_2)_2NLi$ ）、特に $LiTFSI$ から選択される。

40

【0016】

用語「電解質」は、それを導電性にする、すなわち電流を通過させることを可能にするイオンを含有する媒体を意味することを意図する。この媒体は固体または液体であってもよい。本発明に従って、イオンは金属塩によって提供され、前記塩は、ポリマー、ゲルま

50

たは有機溶剤であってもよい不導性母材中に溶解される。

【0017】

本発明に従って、抽出は、好ましくは大気圧でおよび0～100℃の間、好ましくは20～60℃の間の温度で水と接触させることによって行なわれる。したがって抽出溶剤は少なくとも水を含有する。金属塩の少なくとも一部を含有する水性抽出溶液が得られる。

【0018】

本発明の第1の代替形態において、母材が、金属塩が溶解されるポリマーまたはゲルを含む、すなわち金属塩が前記母材と化学的に反応していない。母材中に含有されるポリマーは、例えば、POE（ポリエチレンオキシド）またはシリコン油であってもよい。母材中に含有されるゲルは、例えば、PAN（ポリアクリルアミド）、PVDF（ポリニフッ化ビニリデン）ホモポリマーまたはVDF（フッ化ビニリデン）-HFP（ヘキサフロオロプロピレン）コポリマーであってもよい。

10

【0019】

この代替形態において、水による液体抽出工程の終了時に、一方でポリマーまたはゲルおよび、他方で、金属塩の少なくとも一部を含有する水溶液が概して回収される。ポリマーまたはゲルは、場合により、例えば、乾燥を含む適切な処理の後に、場合により、同じ適用において電解質として再利用されてもよい。

【0020】

本発明の第2の代替形態において、電解質の母材が有機溶剤を含む。この代替形態において、有機溶剤中の金属塩の溶液（すなわち電解質）は、水と混和性であり、この電解質は、水によるおよび水と非混和性である有機抽出溶剤による液体抽出に連続的にまたは同時に供せられてもよい。

20

【0021】

この代替形態において、水によるおよび有機溶剤による抽出の工程は、任意の順序で実施されてもよい。好ましくは、水抽出は最初に実施される。確かに、一般的に、電解質を含む使用済みデバイスは水の存在下で、例えば水の下または水ミストの存在下で微粉碎され、それによって微粉碎によって放出される熱を除き、スパークのあらゆるリスクを避けることを可能にする。

【0022】

電解質の有機溶剤は理想的には、2つの対立する性質、すなわち：高い電気定数および低い沸点（高流動性に相当する）の間の良い妥協点を有するのがよい。それは好ましくは、脂肪族スルホン、例えばDMSO（ジメチルスルホキシド）、DESO（ジエチルスルホキシド）、DPSO（ジプロピルスルホキシド）、EMS（エチルメチルスルホキシド）、またはFEMS（フルロロエチルメチルスルホキシド）；アルキルカーボネート、例えばPC（プロピルカーボネート）、EC（エチルカーボネート）またはDMC（ジメチルカーボネート）；ニトリル、例えばAdN（アジボニトリル）およびMGN（メチルグルタロニトリル）；およびGBL（γ-ブチロラクトン）から選択される少なくとも1つおよび好ましくは少なくとも2つの溶剤である。

30

【0023】

少なくとも2つの溶剤の混合物は一般的に、前述の性質の妥協点をいっそう容易に達成することを可能にする。良い結果は特に、EC/DMC混合物によって得られた。

40

【0024】

水と非混和性である有機抽出溶剤の選択は、特に電解質の溶剤に依存し、当業者は、文献で得られる溶剤の混和性の表に基づいてそれを容易に同定することができる。抽出溶剤はまた、溶剤の混合物であってもよいということに留意しなければならない。クロロホルム、ジクロロエタンおよびペルクロロエチレンなどの塩素化溶剤が非常に適している。良い結果は、特に電解質がEC/DMC混合物を含むとき、塩化メチレンおよび／またはクロロベンゼンを使用して得られた。

【0025】

有機溶剤による抽出工程は好ましくは、周囲圧力および温度で実施される。

50

【0026】

2つの液体／液体抽出の終了時に、2つの液相：実質的に全ての金属塩が溶解される水性相と、実質的に全ての、電解質の有機溶剤および有機抽出溶剤を含有する有機相とが存在している。

【0027】

用語「実質的に」は、処理された媒体（使用済みの、好ましくは微粉碎されたデバイス、またはその水抽出によって得られた水溶液のどちらか）中に存在している初期量の少なくとも70%、好ましくは少なくとも80%、またはさらに少なくとも90%を意味することを意図する。

【0028】

好ましくは、これらの2つの相は、例えば沈降または遠心分離によって分離される。

【0029】

工業的に、固体電解質および液体電解質の両方を含有するデバイスの混合ストリームが一般的に処理されるので、実施において、上記の2つの代替形態がしばしば組み合わせられ、そしてその結果として、金属塩をそこから抽出するために、最初に、水による抽出を実施することが必要である。処理されたストリームが液体電解質をも含む場合、水による抽出から得られた液相は次に好ましくは、水と非混和性の有機溶剤による抽出に供される。

【0030】

本発明の1つの好ましい代替形態に従って、これらの相の1つまたは各々を処理して、出発電解質の金属塩および溶剤をそれぞれそこから回収してもよい。

【0031】

本発明の文脈では、用語「と混和性の」は、少なくとも5重量%、またはさらに少なくとも10重量%で概して可溶性であることを意味することを意図する。

【0032】

用語「不混和性の」は、5重量%未満、好ましくは2重量%未満で概して混和性であることを意味することを意図する。

【0033】

用語「液体抽出」は、溶剤または金属塩の相当な量、すなわち処理された媒体中に存在している初期量の少なくとも70体積%、好ましくは少なくとも80体積%、またはさらに少なくとも90体積%をそれぞれそこから抽出するために十分な量および時間の間水または溶剤と接触させることを意味することを意図する。使用される水または溶剤は実質的に高純度、好ましくは少なくとも70体積%、好ましくは少なくとも80体積%、またはさらに少なくとも90体積%の高純度であってもよい。抽出される媒体に対する水または液体の体積比は、20：80～80：20の間、好ましくは40：60～60：40の間であってもよい。接触させる時間は、例えば、少なくとも0.5時間であってもよい。

【0034】

本発明に従って、液体抽出は単一工程で実施されてもよく、またはそれはいくつかの連続工程で実施されてもよく、すなわちそれは段階分けされてもよい。一般的に、水による抽出は単一工程において実施される。他方で、有機溶剤による抽出は、適切な場合、有利には段階分けされる。この場合、好ましくは、電解質の有機溶剤の少なくとも20体積%を第1の工程において抽出し、そして必要な数の工程を好ましくは使用して溶剤の合計少なくとも90%を抽出する。

【0035】

本発明の第1の好ましい代替形態において、金属塩を含有する水溶液が例えば噴霧－乾燥によって乾燥され、直接に再利用可能な金属塩をそこから抽出する。この代替形態は、十分に高純度である水溶液の場合、すなわち純度が使用目的（例えば：電解質における再利用）のために十分である金属塩を得ることができる水溶液の場合に非常に適している。

【0036】

本発明の第2の好ましい代替形態において、金属塩がLiTFSIであり、それを含有する水溶液が好ましくは最初に、例えば蒸発、蒸留または凍結乾燥によって濃縮される。次にこの溶液を酸性にしてHTFSIを生成し、それを好ましくは最初に（例えば蒸留等によって）精製し、次いで新鮮なLiOHまたはLi₂CO₃の水溶液と再び接触させて、LiTFSIを再生する。換言すれば、LiTFSIを含有する水性抽出溶液を酸性にしてHTFSIおよびLiHSO₄を生成して単離し、次いでHTFSIを新鮮なLiOHまたはLi₂CO₃と接触させて、LiTFSIを再生する。

【0037】

有機溶剤による抽出に同様に供せられる液体電解質の場合にだけ用いられる、本発明の第3の好ましい代替形態において、電解質の溶剤と抽出溶剤とを含有する有機相を例えば蒸留によって処理して溶剤を分離する。このように再生された溶剤を場合により、後処理の結果として、すなわちそれぞれ電解質溶剤としておよび抽出溶剤として、好ましくは同じ適用において同様に再利用することができる。

【0038】

次に来る実施例は、本発明を例示し得るが、それを限定しない。

【0039】

実施例1

合成電解質は、2つの溶剤それぞれ50体積%のEC/DMC混合物中にLiTFSI（1M）を導入することによって得られた。

【0040】

得られた溶液を塩化メチルの等価体積で、次いで水の等価体積で抽出した。沈降によって容易に分離する2つの相が得られ、LiTFSIは水性相中に95重量%超であった。

【0041】

実施例2

有機抽出溶剤としてクロロベンゼンを使用したことを除いて条件は実施例1と同じであり、同様な結果が得られた。

【0042】

反例

抽出溶剤としてMEK（メチルエチルケトン）を使用したことを除いて条件は実施例1と同じであったが、前記溶剤は、沈降によって容易に分離する2つの異なる相を得ることを可能としなかった。

【0043】

実施例3

合計34gの重さがあり、EC/DMC混合物の溶液中に2gのLiTFSIを含む使用済み可撓性バッテリーを600gの水および900gの塩化メチレンを使用する単一工程の抽出に供した。沈降によって容易に分離する2つの相が得られ、水性相中のLiTFSI 1.8gすなわち90%が回収された。

10

20

30

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2015/063381

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. B01D11/02 B01D11/04 H01M6/52 H01M10/54
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B01D H01M

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

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

EPO-Internal, WPI Data, INSPEC, COMPENDEX

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	FR 2 868 603 A1 (RECUPYL SA) 7 October 2005 (2005-10-07) cited in the application page 1, lines 33-37 page 3, lines 23-32 page 4, line 21 - page 5, line 24 page 8, line 27 - page 9, line 22; figure 3 claims 1, 5, 6	1-15
A	----- JP H05 17832 A (DAITO KAGAKU K.K.; NOMURA KOSAN CO., LTD.) 26 January 1993 (1993-01-26) cited in the application abstract ----- -/--	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

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

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

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

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

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

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

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

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

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 August 2015

Date of mailing of the international search report

31/08/2015

Name and mailing address of the ISA/

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

Authorized officer

Masson, Jean-Pierre

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2015/063381

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5 360328 B1 (JOINT ENG CO., LTD.) 4 December 2013 (2013-12-04) abstract	1-15
A	----- EP 2 410 603 A1 (UMICORE SA) 25 January 2012 (2012-01-25) paragraph [0009] - paragraph [0010] figure 1 claim 1	1-15
A	----- WO 2008/022415 A1 (LG ELETRONICS DE SAO PAULO LTDA) 28 February 2008 (2008-02-28) cited in the application page 4, lines 1-22 figure 1 claim 1 -----	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/063381

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
FR 2868603	A1	07-10-2005	AT 369633 T 15-08-2007
		AU 2005234188 A1	27-10-2005
		BR P10509647 A	18-09-2007
		CA 2559928 A1	27-10-2005
		CN 1965438 A	16-05-2007
		DE 602005001937 T2	29-05-2008
		DK 1733451 T3	27-12-2007
		EP 1733451 A1	20-12-2006
		ES 2292140 T3	01-03-2008
		FR 2868603 A1	07-10-2005
		HK 1101524 A1	31-12-2009
		JP 5128272 B2	23-01-2013
		JP 2007531977 A	08-11-2007
		US 2007196725 A1	23-08-2007
		WO 2005101564 A1	27-10-2005
		ZA 200607874 A	26-03-2008

JP H0517832	A	26-01-1993	NONE

JP 5360328	B1	04-12-2013	JP 5360328 B1 04-12-2013
		JP 2014235945 A	15-12-2014

EP 2410603	A1	25-01-2012	NONE

WO 2008022415	A1	28-02-2008	BR P10603719 A 08-04-2008
		WO 2008022415 A1	28-02-2008

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード (参考)
C O 1 B 11/18 (2006.01) C O 1 B 11/18

(81)指定国 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, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, 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, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US