

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4690047号

(P4690047)

(45) 発行日 平成23年6月1日(2011.6.1)

(24) 登録日 平成23年2月25日(2011.2.25)

(51) Int.Cl.

F I

C O 9 D 11/00 (2006.01)

B O 1 J 31/06 (2006.01)

H O 1 M 4/86 (2006.01)

H O 1 M 4/92 (2006.01)

H O 1 M 8/10 (2006.01)

C O 9 D 11/00

B O 1 J 31/06

H O 1 M 4/86

H O 1 M 4/92

H O 1 M 8/10

M

B

請求項の数 4 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2004-559074 (P2004-559074)
 (86) (22) 出願日 平成15年10月17日(2003.10.17)
 (65) 公表番号 特表2006-509859 (P2006-509859A)
 (43) 公表日 平成18年3月23日(2006.3.23)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2003/033133
 (87) 国際公開番号 W02004/054021
 (87) 国際公開日 平成16年6月24日(2004.6.24)
 審査請求日 平成18年8月10日(2006.8.10)
 (31) 優先権主張番号 10/315,589
 (32) 優先日 平成14年12月10日(2002.12.10)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 505005049
 スリーエム イノベイティブ プロパティ
 ズ カンパニー
 アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133
 -3427, セント ポール, ポスト オ
 フィス ボックス 33427, スリーエ
 ム センター
 (74) 代理人 100099759
 弁理士 青木 篤
 (74) 代理人 100077517
 弁理士 石田 敬
 (74) 代理人 100087413
 弁理士 古賀 哲次
 (74) 代理人 100111903
 弁理士 永坂 友康

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 触媒インク

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

- a) 水 25 ~ 95 重量%と、
 b) 少なくとも 1 つの固体電気化学触媒 1 ~ 50 重量%と、
 c) 酸 (H^+) の形の少なくとも 1 つのポリマー電解質 1 ~ 50 重量%と、
 d) 少なくとも 1 つの極性非プロトン性有機溶媒 1 ~ 50 重量%と、を含む触媒インク

。

【請求項 2】

前記極性非プロトン性有機溶媒が、少なくとも 80 の標準沸点を有する、請求項 1 に記載の触媒インク。

【請求項 3】

前記極性非プロトン性有機溶媒が、ジメチルスルホキシド (DMSO)、N, N - ジメチルアセトアミド (DMA)、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、N, N - ジメチルホルムアミド (DMF)、N - メチルピロリジノン (NMP)、ジメチルイミダゾリジノン、アセトニトリル、ブチロラクトン、ヘキサメチルリン酸トリアミド、イソブチルメチルケトン、およびスルホランからなる群から選択される、請求項 1 に記載の触媒インク。

【請求項 4】

前記ポリマー電解質が高フッ素化されており、ポリマー主鎖中にアリーレン単位を含有しない、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の触媒インク。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、典型的に、燃料電池において用いられる膜電極接合体の製造に使用するための、触媒インク組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

欧州特許出願第0955687A2号明細書には、PEM燃料電池電極の触媒層を形成するためのスラリーの調製方法が開示されている。開示された方法において、MOHをペルフルオロスルホネートイオノマー（PF SI）（ナフィオン（Nafion）TMなど）の水／アルコール溶液に添加してPF SIをM⁺の形に変換する。ジメチルスルホキシド、N，N - ジメチルホルムアミドまたはエチレングリコールなどの有機極性溶媒を添加する（欧州特許出願第0955687号明細書の24段、27段、および請求項6）。次いで混合物を加熱してアルコールを除去し、触媒を添加してスラリーを形成する。スラリーを支持層に適用し、乾燥させて触媒層を形成した後、触媒層を酸で処理してPF SIをM⁺の形からH⁺の形に変換する（欧州特許出願第0955687号明細書の44段および請求項5）。

10

【0003】

米国特許出願公開第2002/0045081号明細書には、極性非プロトン性溶媒であるN - メチルピロリドン（NMP）に溶解されたスルホン化PEEKポリマーの使用が開示されている（米国特許出願公開第2002/0045081号明細書の実施例1）。

20

【0004】

米国特許第5,906,716号明細書には、極性非プロトン性溶媒（NMPなど）に可溶性であり、かつポリマー、例えば、スルホン化PEEKポリマーの主鎖中にアリーレン単位を含むカチオン交換ポリマーで好ましくは製造された金属化カチオン交換膜が開示されている（米国特許第5,906,716号明細書の実施例1）。

【0005】

米国特許出願公開第2002/0019308号明細書には、複合触媒が開示されている。

【0006】

30

特開2000-353528号公報には、多孔性電極触媒層および多孔性電極触媒層の製造方法が開示されている。実施例は、ナフィオンTMの原液の溶媒交換によって得られた、NMPに溶かしたナフィオンTMの溶液の使用を開示すると思われる。

【0007】

特開2001-273907A号公報には、多孔性電極触媒層および多孔性電極触媒層を製造する相分離方法が開示されている。実施例は、ナフィオンTM溶液に溶かした触媒の懸濁液を適用した後、乾燥させ、次いでPVdF/NMP溶液を適用し、その後、水で溶媒交換してPVdFの多孔層を形成することを開示すると思われる。

【0008】

国際特許出願国際公開第01/71835A2号パンフレットには、膜／電極複合体の製造方法が開示されている。

40

【0009】

英国特許出願第2316802A号明細書には、ポリエーテルスルホン炭素ブレンドをベースとしたガス拡散電極が開示されている。

【0010】

米国特許第5,716,437号明細書には、電極の製造に使用するための水性インクが開示されている。

【0011】

国際公開第99/21239号パンフレットには、カチオン交換ポリマーの存在下で、溶解された触媒金属を還元することによる、金属コロイド溶液の製造方法が開示されてい

50

る。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0012】

要約すると、本発明は、25～95重量%の水と、少なくとも1つの固体触媒、典型的に高分散白金触媒1～50重量%と、酸(H^+)の形の少なくとも1つのポリマー電解質1～50重量%と、少なくとも1つの極性非プロトン性有機溶媒1～50重量%と、を含む触媒インクを提供する。触媒インクは典型的に、 1 sec^{-1} において $10\text{ Pa}\cdot\text{sec}$ 以下の粘度を有する。触媒インクは典型的に、80以上の温度の空气中で完全乾燥された時に自然発火しない。

10

【0013】

この出願において、

「高分散白金触媒」は、粉末炭素担体上に分散された触媒など、 $100\text{ m}^2/\text{g}$ より大きい、より典型的に $500\text{ m}^2/\text{g}$ より大きい、最も典型的に $900\text{ m}^2/\text{g}$ より大きい比表面積を有する白金含有触媒を意味する。

「高フッ素化された」は、40重量%以上、典型的に50重量%以上、より典型的に60重量%以上の量のフッ素を含有することを意味する。

「完全乾燥された」は、水含有量が周囲空気と本質的に平衡状態にあるか、またはより低くなるまで、乾燥されることを意味する。

「標準沸点」は、標準参考資料に記載された沸点を意味する。

20

【0014】

適用する間に好ましいレオロジーを示し、高温の空气中で完全乾燥された時に自然発火しない触媒インク、特に、燃料電池の製造に使用するための触媒インクを提供することが本発明の利点である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

本発明は、25～95重量%の水と、少なくとも1つの固体触媒、典型的に高分散白金触媒1～50重量%と、酸(H^+)の形の少なくとも1つのポリマー電解質1～50重量%と、少なくとも1つの極性非プロトン性有機溶媒1～50重量%と、を含む触媒インクを提供する。前記触媒インクは典型的に、 1 sec^{-1} において $10\text{ Pa}\cdot\text{sec}$ 以下の粘度を有する。前記触媒インクは典型的に、80以上の空气中で完全乾燥された時に自然発火しない。

30

【0016】

本発明による触媒インクは、燃料電池に使用するための膜電極接合体(MEA)の製造に用いられてもよい。MEAは、水素燃料電池などのプロトン交換膜燃料電池の中心要素である。燃料電池は、水素などの燃料と酸素などの酸化体との触媒組合せによって有用な電気を生み出す電気化学電池である。代表的なMEAは、固体電解質として機能する、ポリマー電解質膜(PEM)(イオン導電性膜(ICM)としても公知である)を含む。PEMの面の一方が、アノード電極層と接触しており、反対側の面がカソード電極層と接触している。各電極層が、電気化学触媒を含有し、典型的に白金金属を含有する。アノードおよびカソード電極層を触媒インクの形でPEMに適用して触媒被覆膜(CCM)を形成してもよい。流体輸送層(FTL)が、アノードおよびカソード電極材料への、およびそれらからのガス輸送を容易にし、電流を伝導する。代表的なPEM燃料電池において、プロトンが水素酸化によってアノードに形成され、カソードに輸送されて酸素と反応し、電極と接続する外部回路に電流が流れることを可能にする。FTLはまた、ガス拡散層(GDL)または拡散体/集電体(DCC)と呼ばれる場合がある。別の製造方法において、アノードおよびカソード電極層をPEMにではなく、触媒インクの形でFTLに適用してもよく、被覆FTLをPEMで挟んでMEAを形成してもよい。

40

【0017】

いずれの適した触媒を本発明の実施において用いてもよい。触媒は典型的に、100m

50

$^2 / g$ より大きい、より典型的に $500 m^2 / g$ より大きい、最も典型的に $900 m^2 / g$ より大きい比表面積を有する高分散白金触媒である。典型的に、炭素担持触媒粒子が用いられる。代表的な炭素担持触媒粒子は $50 \sim 90$ 重量%の炭素および $10 \sim 50$ 重量%の触媒金属であり、触媒金属は典型的に、カソードに Pt、アノードに $2 : 1$ の重量比の Pt および Ru を含む。

【0018】

いずれの適したポリマー電解質を本発明の実施において用いてもよい。ポリマー電解質は典型的に高フッ素化または過フッ素化される。ポリマー電解質は典型的に、ナフィオン（登録商標）（デラウェア州、ウィルミントンのデュポン・ケミカルズ社（DuPont Chemicals, Wilmington DE））およびフレミオン（Flemion）TM（日本、東京の旭硝子（Asahi Glass Co. Ltd.））などの酸官能性フルオロポリマーである。本発明に使用するためのインクに有用なポリマー電解質は典型的に、テトラフルオロエチレンと1つ以上のフッ素化、酸官能性モノマーとのコポリマーである。典型的にポリマー電解質は、スルホネート官能基を有する。典型的にポリマー電解質は、ポリマー主鎖中にアリーレン単位を含有しない。最も典型的にポリマー電解質はナフィオン（登録商標）である。ポリマー電解質は典型的に1200以下、より典型的に1100以下、より典型的に1050以下、最も典型的に約1000の当量を有する。本発明によるインクにおいて、ポリマー電解質は、塩の形ではなく実質的にプロトン付加された形または酸（ H^+ ）の形である。

【0019】

極性非プロトン性有機溶媒は典型的に、少なくとも80、より典型的に少なくとも100、より典型的に少なくとも160、最も典型的に少なくとも200の標準沸点を有する。極性非プロトン性有機溶媒は典型的に、ジメチルスルホキシド（DMSO）、N,N-ジメチルアセトアミド（dimethylacetamide）（DMA）、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、N,N-ジメチルホルムアミド（DMF）、N-メチルピロリジノン（NMP）、ジメチルイミダゾリジノン、アセトニトリル、ブチロラクトン、ヘキサメチルリン酸トリアミド、イソブチルメチルケトン、およびスルホランからなる群から選択され、より典型的にN-メチルピロリジノン（NMP）、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド（dimethylsulfoxide）（DMSO）およびアセトニトリルからなる群から選択される。最も典型的に、極性非プロトン性有機溶媒はN-メチルピロリジノン（NMP）である。

【0020】

触媒インクは典型的に、25～95%の水、より典型的に50～80%の水、より典型的に60～75%の水を含有する。触媒インクは典型的に、1～50%の固体触媒、より典型的に5～25%の固体触媒、より典型的に10～20%の固体触媒を含有する。触媒インクは典型的に、1～50%のポリマー電解質、より典型的に1～20%のポリマー電解質、より典型的に1～10%のポリマー電解質、より典型的に3～8%のポリマー電解質を含有する。触媒インクは典型的に、第2の溶媒、典型的に極性非プロトン性有機溶媒1～50%、より典型的に3～25%の極性非プロトン性有機溶媒、より典型的に5～15%の極性非プロトン性有機溶媒、より典型的に8～14%の極性非プロトン性有機溶媒を含有する。触媒インクは典型的に5～30%の固形分（すなわちポリマーおよび触媒）を含有する。

【0021】

インクは、いずれの適した方法によって混合されてもよい。インクは典型的に、加熱しながら攪拌して製造するが、その後、塗布可能な稠度まで希釈してもよい。インクは典型的に、 $1 sec^{-1}$ において、10 Pa·sec以下、より典型的に6 Pa·sec以下、より典型的に2 Pa·sec以下、最も典型的に1.0 Pa·sec以下の粘度を有する。

【0022】

前記インクを燃料電池に使用するためのＣＣＭまたはＭＥＡの製造において用いてもよい。ハンドブラッシング、ノッチパーコーティング、流体支持ダイコーティング、ワイヤー捲回ロッドコーティング、流体支持コーティング、スロット供給ナイフコーティング、三本ロールコーティング、またはデカルコマニア転写など、手作業および機械方法の両方を含めるいずれの適した手段によってインクをＰＥＭまたはＦＴＬに適用してもよい。デカルコマニア転写の場合、インクを最初に転写基材に適用し、乾燥させ、その後、ＰＥＭへのデカルコマニアとして適用する。コーティングは、１回の適用で、または多数の適用で達成されてもよい。コーティング後に、インクは、炉等の中で、８０を超え温度、より典型的に１１０を超え温度、より典型的に１４０を超え温度の空气中で乾燥されてもよい。本発明によるインクは好ましくは、これらの条件下で完全乾燥された時に自己着火しない。典型的に、乾燥中に自己着火しないインクはまた、製造、取扱いおよび使用するのに、より安全である。

10

【００２３】

本発明は、燃料電池に使用するための膜電極接合体の製造において有用である。

【００２４】

本発明の目的および利点は以下の実施例においてさらに説明されるが、これらの実施例に記載された特定の材料およびそれらの量、ならびに他の条件および詳細は、本発明を不当に限定すると解釈されるべきではない。

【実施例】

【００２５】

20

特に記載しない限り、全ての試薬はウィスコンシン州、ミルウォーキーのアルドリッチ・ケミカル・カンパニー（Aldrich Chemical Co., Milwaukee, WI）から得られたかまたは入手可能であり、または公知の方法によって合成されてもよい。

【００２６】

インクの配合

表Ⅰを参照して、比較用の触媒インクおよび本発明による触媒インクを含めた様々な触媒インクを製造した。アノードインク（実施例１Ｃ（比較用）、２Ｃ（比較用）、および３～６）およびカソードインク（実施例７Ｃ（比較用）、８Ｃ（比較用）、９および１０）を製造した。

30

【００２７】

アノードインクを以下のように製造した。３０ｇの触媒粉末（日本、東京のＮ．Ｅ．ケムキャット・コーポレーション（N.E. Chemcat Corp）製のＳＡ２７－１３ＲＣ、２７％Ｐｔおよび１３％Ｒｕ担持６０％炭素）を（１６オンス）ガラスジャー（直径８．９ｃｍ×高さ８．９ｃｍ）に秤量した。次いで、内容物をへらで均一に分散させて混合物中に残っている触媒粉末の乾燥した固まりがないことを確実にしながら、１１２．２ｇのナフィオン™溶液（米国、デラウェア州、ウィルミントンのデュポン・フルオロプロダクツ（DuPont Fluoroproducts, Wilmington, DE, USA）製のＳＥ－１０１７２、１０％水溶液、ＣＡＳ＃３１１７５－２０－９）を、ガラスジャー中の触媒粉末に徐々に添加した。次いで、ガラスジャーを氷槽内に置き、回転子－固定子高剪断ミキサ（ノースカロライナ州、ウィルミントンのＩＫＡワークス（IKA Works, Wilmington, NC）製のウルトラ・テュラックス（Ultra-Turrax）Ｔ２５）下で、溶媒の蒸発を最小にし、１分間、１６，０００rpmにおいて解凝集した。次いで、表Ⅰに記載された付加的な溶媒２０．４ｇを添加し、１６，０００rpmにおける高剪断混合をさらに１０分間、続けた。付加的な溶媒は、水（沸点（Ｂ．Ｐ．）１００）、エチレングリコール（Ｂ．Ｐ．１９７、ＣＡＳ＃１０７－２１－１）、Ｎ－メチルピロリジノン（NMP）（Ｂ．Ｐ．２０２、ＣＡＳ＃８７２－５０－４）、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（DMF）（Ｂ．Ｐ．１５３、ＣＡＳ＃６８－１２－２）、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド（DMA）（Ｂ．Ｐ．１６５、ＣＡＳ＃１２７－１９－５）、およびジメチルスルホキシド（DMSO）（Ｂ．Ｐ．１８９

40

50

、CAS # 67 - 68 - 5) から選択された。高剪断解凝集した後、ゴムへらを用いて触媒分散体を回転子 - 固定子混合ヘッドからおよびガラスジャー壁から掻き取り、およびジャーをしっかりと封止して触媒分散体からの溶媒の減量を防いだ。

【0028】

カソードインクを以下のように製造した。30 g の触媒粉末 (日本、東京のN.E.ケムキャット・コーポレーション製のSA50BK、50% Pt 担持50%炭素) を (16 オンス) ガラスジャー (直径8.9 cm × 高さ8.9 cm) に秤量した。次いで、内容物をへらで均一に分散させて混合物中に残っている触媒粉末の乾燥した固まりがないことを確実にしながら、84 g のナフィオン™溶液 (SE - 10172、10% 水溶液、CAS # 31175 - 20 - 9、米国、デラウェア州、ウィルミントンのデュポン・フルオロプロダクツ (DuPont Fluoroproducts, Wilmington, DE, USA)) を、ガラスジャー中の触媒粉末に徐々に添加した。80.1 g の付加的な水を添加した。次いで、ガラスジャーを氷槽内に置き、回転子 - 固定子高剪断ミキサ (ノースカロライナ州、ウィルミントンのIKAワークス製のウルトラ・テュラックスT25) 下で、溶媒の蒸発を最小にし、1分間、16,000 rpmにおいて解凝集した。次いで、表Iに記載された付加的な溶媒22.5 gを添加し、16,000 rpmにおける高剪断混合をさらに10分間、続けた。付加的な溶媒は、水 (B.P. 100)、エチレングリコール (B.P. 197、CAS # 107 - 21 - 1)、N - メチルピロリジノン (NMP) (B.P. 202、CAS # 872 - 50 - 4)、およびアセトニトリル (B.P. 81.6、CAS # 75 - 05 - 8) から選択された。高剪断解凝集した後、ゴムへらを用いて触媒分散体を回転子 - 固定子混合ヘッドからおよびガラスジャー壁から掻き取り、ジャーをしっかりと封止して触媒分散体からの溶媒の減量を防いだ。実施例10については、上に記載された重量を3分の1にして、すなわち、10 g のアノード触媒粉末、28 g のナフィオン™溶液、26.7 g の付加的な水および7.5 g の付加的な溶媒 (アセトニトリル) を使用した。

【0029】

インクの性質

各実施例のインクを凝集について検査し、粘度について測定し、乾燥条件下で灰化について試験した。

【0030】

各実施例のインクを凝集について目視検査し、強く凝集したかまたは弱く凝集したかに分類した。結果を表Iに記載する。

【0031】

ボーリン定応力レオメーター (Bohlin Constant Stress Rheometer) (ニュージャージー州、イーストブランズウィックのボーリン・インストルメンツ社 (Bohlin Instruments Inc., East Brunswick, New Jersey) から入手可能) を用いて、剪断速度の関数として触媒分散体の粘度を連続的に測定した。定応力条件下の流れ性質を $1 \sim 800 \text{ sec}^{-1}$ の剪断速度においてC14同心円筒ジオメトリー (cup - and - bob geometry) を用いて測定した。

【0032】

剪断粘度対剪断速度のプロットをつくった。剪断速度 (S) および剪断粘度 (V) を「ベキ乗則流体」方程式として公知の以下の方程式：

$$V = k S^{(n-1)}$$

によって関連させ、式中、「k」が 1 sec^{-1} における粘度を示す定数であり、「n」が、ベキ指数 (PLI) であり、剪断が粘度に及ぼす効果を示す。材料の剪断粘度が剪断速度に敏感でない、すなわち、流体がニュートン流体である場合、PLIが1.0である。粘度が剪断によって減少するそれらの分散体は非ニュートンであり、チキソトロピーとして知られている。これらのチキソトロピー流体のPLIは、0 ~ 1の範囲である。ベキ指数の原理は、C.W.マコスコ (C.W. Macosko)、「レオロジー：原理、測定

10

20

30

40

50

、および適用 (Rheology : Principles , Measurements , and Applications) 、 ISBN # 1 - 5 6 0 8 1 - 5 7 9 - 5 、 8 5 ページにさらに記載されている。

【 0 0 3 3 】

約 5 0 ミクロンの深さの微小特徴を有する厚さ 1 ミルのシリコン被覆微細構造ポリプロピレンを含む剥離ライナー上に触媒インクの幅 3 インチ (7 . 6 c m) × 厚さ 3 ミル (7 6 ミクロン) のコーティングをノッチバー適用することによって、灰化を試験した。コーティングしたすぐ後、ライナーと共にコーティングをアルミニウムパン内に置き、1 4 0 の対流空気炉内に置いた。コーティングを 1 0 分間、乾燥させた。後で、コーティングを、触媒コーティングの完全乾燥または灰化のいずれかについて検査した。

10

【 0 0 3 4 】

【 表 1 】

表 1

	実施例1C	実施例2C	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
インクのタイプ	アノード	アノード	アノード	アノード	アノード	アノード
付加的な溶媒	水	エチレン グリコール	NMP	NMF	DMA	DMSO
溶媒のタイプ	無機	プロトン性 有機	非プロトン性 有機	非プロトン性 有機	非プロトン性 有機	非プロトン性 有機
総固形分	25. 4%	25. 4%	25. 4%	25. 4%	25. 4%	25. 4%
凝集	強い	弱い	弱い	弱い	弱い	弱い
1 sec ⁻¹ における粘度 (Pa · sec)	14. 5	0. 92	0. 9	1. 67	5. 79	1. 86
ベキ指数	0. 3956	0. 6622	0. 6604	. 06155	0. 5016	0. 6014
灰化	無し	有り	無し	無し	無し	無し

20

	実施例7C	実施例8C	実施例9	実施例10
インクのタイプ	カソード	カソード	カソード	カソード
付加的な溶媒	水	エチレン グリコール	NMP	アセト ニトリル
溶媒のタイプ	無機	プロトン性 有機	非プロトン性 有機	非プロトン性 有機
総固形分	17. 7%	17. 7%	17. 7%	17. 7%
凝集	強い	強い	弱い	弱い
1 sec ⁻¹ における粘度 (Pa · sec)	14. 6	12. 62	0. 45	0. 95
ベキ指数	0. 2509	0. 2414	0. 6823	0. 6361
灰化	無し	有り	無し	無し

30

【 0 0 3 5 】

本発明の様々な改良及び変更が、本発明の範囲及び原理から逸脱することなく実施できることは、当業者には明らかであり、本発明は、上記の例示的な実施態様に不当に制限されるものではないことは理解されるはずである。

40

フロントページの続き

(74)代理人 100082898

弁理士 西山 雅也

(72)発明者 ベラマカンニ, バスカール ブイ.

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427

(72)発明者 メカラ, ディビッド アール.

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427

(72)発明者 ハンソン, エリック ジェイ.

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427

審査官 岡田 隆介

(56)参考文献 特開2001-160400(JP, A)

特開2001-160401(JP, A)

特開2002-075383(JP, A)

特開2000-353528(JP, A)

特開2003-317728(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B01J 21/00-38/74

H01M 4/86-4/98

JSTPlus(JDreamII)

JST7580(JDreamII)