

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5586809号
(P5586809)

(45) 発行日 平成26年9月10日 (2014. 9. 10)

(24) 登録日 平成26年8月1日 (2014. 8. 1)

(51) Int. Cl.	F I
CO 1 B 3/58 (2006. 01)	CO 1 B 3/58
CO 1 B 3/38 (2006. 01)	CO 1 B 3/38

請求項の数 6 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2014-509032 (P2014-509032)	(73) 特許権者	000005821
(86) (22) 出願日	平成25年3月7日 (2013. 3. 7)		パナソニック株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2013/001429		大阪府門真市大字門真1006番地
(87) 国際公開番号	W02013/150717	(74) 代理人	110000556
(87) 国際公開日	平成25年10月10日 (2013. 10. 10)		特許業務法人 有古特許事務所
審査請求日	平成26年4月22日 (2014. 4. 22)	(72) 発明者	楠山 貴広
(31) 優先権主張番号	特願2012-87652 (P2012-87652)		大阪府門真市大字門真1006番地 パナ
(32) 優先日	平成24年4月6日 (2012. 4. 6)		ソニック株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	脇田 英延
早期審査対象出願			大阪府門真市大字門真1006番地 パナ
		(72) 発明者	原田 千絵
			大阪府門真市大字門真1006番地 パナ
			ソニック株式会社内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 水素精製装置、水素生成装置及び燃料電池システム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アンモニア及び一酸化炭素を含む水素含有ガス中の一酸化炭素を酸化反応により低減するCO除去器と、前記CO除去器の上流に設けられ、触媒を用いて水素含有ガス中のアンモニアと酸素を反応させて、アンモニアを分解するアンモニア除去器と、酸素含有ガス供給器と、前記酸素含有ガス供給器から前記アンモニア除去器に酸素含有ガスを供給するための第1の流路と、前記CO除去器に酸素含有ガスを供給するための第2の流路と、を備える水素精製装置。

【請求項 2】

前記触媒が、触媒金属として遷移金属を含む請求項1記載の水素精製装置。

10

【請求項 3】

前記遷移金属がNiである請求項2記載の水素精製装置。

【請求項 4】

水素含有ガス中の一酸化炭素をシフト反応により低減する変成器を備え、前記アンモニア除去器は、前記変成器の下流に設けられている、請求項1－3のいずれかに記載の水素精製装置。

【請求項 5】

請求項1－4のいずれかに記載の水素精製装置と、原料ガスを含む反応ガスを用いて前記水素含有ガスを生成する改質器を備え、前記反応ガスは窒素ガス及び含窒素化合物の少なくともいずれか一方を含む、水素生成装置。

20

【請求項6】

請求項5記載の水素生成装置と、前記水素生成装置から供給される水素含有ガスを用いて発電する燃料電池とを備える、燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、水素精製装置、水素生成装置及び燃料電池システムに関する。

【背景技術】

【0002】

従来から、エネルギーを有効に利用することが可能である分散型の発電装置として、発電効率及び総合効率が共に高い燃料電池コージェネレーションシステム（以下、単に「燃料電池システム」という）が注目されている。

燃料電池システムは、発電部の本体として、燃料電池を備えている。この燃料電池としては、例えば、リン酸形燃料電池、熔融炭酸塩形燃料電池、アルカリ水溶液形燃料電池、固体高分子形燃料電池、或いは、固体電解質形燃料電池等が用いられる。これらの燃料電池の内、リン酸形燃料電池や固体高分子形燃料電池（略称、「PEFC」）は、発電運転の際の動作温度が比較的低いため、燃料電池システムを構成する燃料電池として好適に用いられる。特に、固体高分子形燃料電池は、リン酸形燃料電池と比べて、電極触媒の劣化が少なく、かつ電解質の逸散が発生しないため、携帯用電子機器や電気自動車等の用途において特に好適に用いられる。

さて、多くの燃料電池、例えば、リン酸形燃料電池や固体高分子形燃料電池は、発電運転の際に水素を燃料として用いる。しかし、それらの燃料電池において発電運転の際に必要な水素の供給手段は、通常、インフラストラクチャーとして整備されてはいない。従って、リン酸形燃料電池や固体高分子形燃料電池を備える燃料電池システムにより電力を得るためには、その燃料電池システムの設置場所において、燃料としての水素を生成する必要がある。そのため、従来の燃料電池システムでは、燃料電池と共に、水素生成装置が併設されることが多い。水素生成装置では、例えば、水素生成方法の1つである水蒸気改質法が用いられて、水素含有ガスが生成される。この水蒸気改質法では、天然ガス、プロパンガス、ナフサ、ガソリン、灯油等の炭化水素系の原料（原料ガス）、又は、メタノール等のアルコール系の原料と水とが混合される。そして、その混合物が、改質触媒を備える改質器に供給される。すると、改質器では、水蒸気改質反応が進行することにより、水素含有ガスが生成される。

一方、水蒸気改質法により水素生成装置の改質器で生成された水素含有ガスは、副生成物として生成される一酸化炭素（CO）を含有している。例えば、水素生成装置の改質器で生成された水素含有ガスは、約10～15%の濃度で一酸化炭素を含有している。

ここで、水素含有ガスが含有する一酸化炭素は、固体高分子形燃料電池の電極触媒を著しく被毒する。そして、この電極触媒の被毒は、固体高分子形燃料電池の発電性能を著しく低下させる。そのため、従来の水素生成装置では、水素含有ガスを生成する改質器に加え、その水素含有ガス中の一酸化炭素濃度を十分に低減するために、CO低減器が併設されることが多い。このCO低減器により、改質器で生成された水素含有ガス中の一酸化炭素濃度が、100ppm以下、好ましくは、10ppm以下にまで低減される。この一酸化炭素が十分に除去された水素含有ガスが、発電運転の際、燃料電池システムの燃料電池に供給される。これにより、固体高分子形燃料電池において、電極触媒の被毒が防止される。

尚、水素生成装置を構成するCO低減器は、通常、その内部に配設される変成触媒において水性ガスシフト反応を進行させて一酸化炭素と水蒸気とから水素と二酸化炭素とを生成する変成器を備えている。又、このCO低減器は、変成器の下流側に、空気中の酸素と一酸化炭素との酸化反応を進行させる酸化触媒、又は、一酸化炭素のメタン化反応を進行させるメタン化触媒の少なくとも何れか一方を有する浄化器を更に備えている。これらの変成器及び浄化器により、改質器で生成された水素含有ガス中の一酸化炭素濃度を100p

10

20

30

40

50

pm以下にまで低減する。

ところで、水素生成装置の改質器に原料として供給される天然ガスは、通常、微量の窒素を含有している。この窒素の含有率は、例えば、天然ガスを供給する地域により異なっている。そして、燃料電池システムの発電運転の際、この窒素を含有する天然ガスが水素生成装置の改質器に供給されると、その改質器が備える改質触媒上において、水蒸気改質反応により生成される水素と窒素との化学反応が進行することにより、アンモニアが生成されることがある。アンモニアは、固体高分子形燃料電池の発電性能を大幅に低下させる化学物質であるだけでなく、浄化器に設けられた酸化触媒が、触媒種によっては、アンモニアにより被毒される場合がある。このアンモニアによる酸化触媒の被毒は、浄化器の一酸化炭素除去能力を著しく低下させる。これは、固体高分子形燃料電池における電極触媒の一酸化炭素による被毒の原因となる。ここで、この一酸化炭素による電極触媒の被毒は、アンモニアによる発電性能の低下に比べて、固体高分子形燃料電池の発電性能を著しく低下させる。従って、固体高分子形燃料電池に供給前にアンモニア除去器により水素含有ガスからアンモニアを除去するだけでは、燃料電池システムから安定した電力を得ることはできず、アンモニアによる酸化触媒の被毒に起因する発電性能の著しい低下を抑制する必要がある。

10

【0003】

そこで、アンモニアによる酸化触媒の劣化の進行に伴い再生動作が行われる水素生成装置が提案されている。（例えば、特許文献1参照）。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】国際公開第2007/081016号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、上記特許文献1の水素生成装置では、アンモニアによる酸化触媒の劣化の進行自体を抑制することについては検討されていない。

【0006】

本発明は、このような事情を鑑みてなされたものであり、従来に比べ、アンモニア被毒の進行が抑制され得る水素精製装置、水素生成装置及び燃料電池システムを提供することを目的とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記課題を解決するため、本発明の水素精製装置の一態様は、アンモニア及び一酸化炭素を含む水素含有ガス中の一酸化炭素を酸化反応により低減するCO除去器と、前記CO除去器の上流に設けられ、触媒を用いて水素含有ガス中のアンモニアと酸素を反応させて、アンモニアを分解するアンモニア除去器とを備える。

【0008】

また、本発明の水素生成装置の一態様は、上記水素精製装置と、原料ガスを含む反応ガスを用いて前記水素含有ガスを生成する改質器を備え、前記反応ガスは窒素ガス及び含窒素化合物の少なくともいずれか一方を含む。

40

【0009】

また、本発明の燃料電池システムの一態様は、上記水素生成装置と、前記水素生成装置から供給される水素含有ガスを用いて発電する燃料電池とを備える。

【発明の効果】

【0010】

本発明の一態様は、従来に比べ、アンモニア被毒の進行が抑制され得る。

【図面の簡単な説明】

【0011】

50

【図 1】図 1 は、第 1 実施形態にかかる水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【図 2】図 2 は、第 1 実施形態の第 1 変形例における水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【図 3】図 3 は、第 1 実施形態の第 2 変形例における水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【図 4】図 4 は、第 2 実施形態にかかる水素生成装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【図 5】図 5 は、第 3 実施形態にかかる燃料電池システムの概略構成の一例を示す概念図である。

10

【発明を実施するための形態】

【0012】

(第 1 実施形態)

第 1 実施形態にかかる水素精製装置は、アンモニア及び一酸化炭素を含む水素含有ガス中の一酸化炭素を酸化反応により低減する CO 除去器と、CO 除去器の上流に設けられ、触媒を用いて水素含有ガス中のアンモニアと酸素を反応させて、アンモニアを分解するアンモニア除去器と、を備える。

【0013】

かかる構成により、従来の水素精製装置に比べ、アンモニア被毒の進行が抑制され得る。例えば、アンモニアによる CO 除去器の触媒の劣化を抑制でき、かつ一酸化炭素濃度を低減できる。

20

【0014】

ここで、上記触媒は、触媒金属として遷移金属を含んでもよい。また、この遷移金属が Ni であってもよい。

[装置構成]

図 1 は、第 1 実施形態にかかる水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【0015】

図 1 に示す例では、本実施形態の水素精製装置 100 は、アンモニア除去器 1 と、CO 除去器 2 とを備える。

CO 除去器 2 は、アンモニア及び一酸化炭素を含む水素含有ガス中の一酸化炭素を酸化反応により低減する。CO 除去器 3 の外殻は、例えば、ステンレススチール等の金属で構成してもよい。

30

アンモニア除去器 1 は、CO 除去器 2 の上流に設けられ、触媒を用いて水素含有ガス中のアンモニアと酸素を反応させて、アンモニアを分解する。アンモニア除去器 1 の触媒は、触媒金属として、例えば、遷移金属を含んでもよい。遷移金属は、例えば、Ni を用いてもよい。なお、このようなアンモニア除去器 1 の一例として、例えば、特開 2010-285595 号公報に記載の乾式アンモニア分解処理装置が例示される。

なお、水素含有ガスは、上記のとおり、少なくとも一酸化炭素及びアンモニアを含有する。水素含有ガスの一例として、改質ガス、水性ガスが例示される。

【0016】

40

また、水素精製装置 100 は、図示されない酸素含有ガス供給器を備えてもいいし、上記の水素含有ガス中に酸素含有ガスが予め含まれている場合は、かかる酸素含有ガス供給器を備えなくてもいい。

この酸素含有ガス供給器は、アンモニア除去器 1 に酸素含有ガスを供給する。酸素含有ガス供給器は、アンモニア除去器 1 に酸素含有ガスを供給できれば、どのような構成であってもよい。酸素含有ガス供給器は、例えば、ブローアでもよい。

アンモニア除去器 1 は加熱しながら用いてもよい。例えば、アンモニア除去器 1 を加熱するため、燃料電池システム中の高温となる領域の熱を利用することができる。燃料電池システム中の高温となる領域としては、例えば、改質器、変成器、CO 除去器、バーナー等が挙げられる。アンモニア除去器 1 の加熱にバーナーを用いる場合には、バーナーからの

50

熱伝導のみならず、バーナーからの熱放射、バーナー排ガスからの熱伝導等により、アンモニア除去器 1 を加熱することができる。また、アンモニア除去器 1 の外部から、上記以外のヒーター等によりアンモニア除去器 1 を加熱することとしてもよい。

また、水素精製装置 100 は、図示されない制御器を備えてもよい。例えば、制御器は、上記の酸素含有ガス供給器を制御してもよい。制御器は、制御機能を有するものであればよく、演算処理部（図示せず）と、制御プログラムを記憶する記憶部（図示せず）とを備える。演算処理部としては、MPU、CPU が例示される。記憶部としては、メモリーが例示される。制御器は、集中制御を行う単独の制御器で構成されていてもよく、互いに協働して分散制御を行う複数の制御器で構成されていてもよい。

〔動作〕

10

以下、本実施形態の水素精製装置 100 の動作の一例を説明する。

【0017】

本例では、図示されない水素含有ガス供給源から、アンモニア除去器 1 に水素含有ガスが供給される。このとき、酸素含有ガス供給器から水素含有ガスに酸素含有ガスが添加されてもよい。アンモニア除去器 1 の内部において水素含有ガス中のアンモニアが除去される。その後、アンモニア除去済みの水素含有ガスは、CO 除去器 2 において一酸化炭素が除去され、図示されない水素利用機器へと供給される。

（第 1 変形例）

第 1 変形例の水素精製装置は、第 1 実施形態の水素精製装置において、酸素含有ガス供給器と、酸素含有ガス供給器からアンモニア除去器に酸素含有ガスを供給するための第 1

20

の流路と、CO 除去器に酸素含有ガスを供給するための第 2 の流路とを備えてもよい。

【0018】

かかる構成により、第 2 の流路を備えず、第 1 の流路のみを備える場合に比べ、アンモニア除去器に供給する酸素含有ガス量（酸素量）を下げることができ、その結果、副反応による水素の酸化反応を抑制できる。

【0019】

これは、以下の理由による。

【0020】

水素精製装置が、第 2 の流路を備えず、第 1 の流路のみ備える場合、CO 除去器で消費される酸素量も含め第 1 の流路より酸素含有ガスを供給する必要がある。第 1 の流路より供給された酸素含有ガス中の酸素は、アンモニア除去に使用されるだけでなく、アンモニア除去器を通過する間にその一部は、水素の酸化反応に消費されてしまう。

30

【0021】

本変形例の水素精製装置では、第 2 の流路を介して CO 除去器で消費される酸素量含む酸素含有ガスを供給できるので、第 1 の流路を介してアンモニア除去器に供給する酸素含有ガス量（酸素量）を下げるができる。

【0022】

本変形例の水素精製装置は、上記の点以外は、第 1 実施形態の水素精製装置と同様に構成してもよい。

〔装置構成〕

40

図 2 は、第 1 実施形態の第 1 変形例にかかる水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【0023】

図 2 に示す例では、本変形例の水素精製装置 100 は、アンモニア除去器 1 と、CO 除去器 2 と、酸素含有ガス供給器 3 と、第 1 の流路 5 A と、第 2 の流路 5 B とを備える。

【0024】

アンモニア除去器 1、CO 除去器 2 及び酸素含有ガス供給器 3 については、第 1 実施形態と同様であるので説明を省略する。

【0025】

第 1 の流路 5 A は、酸素含有ガス供給器 3 からアンモニア除去器 1 に酸素含有ガスを供

50

給するための流路である。

【0026】

第2の流路5Bは、CO除去器2に酸素含有ガスを供給するための流路である。

【0027】

なお、第2の流路5Bは、図2に例示する如く、第1の流路5Aから分岐するように配してもいいし、図示されない別個の酸素含有ガス供給器から第1の流路5Aとは独立して配してもいい。

[動作]

以下、本変形例の水素精製装置100の動作の一例を説明する。

【0028】

本例では、酸素含有ガス供給器3からの酸素含有ガスが、第1の流路5Aを介してアンモニア除去器1に供給されるとともに、第2の流路5Bを介してCO除去器2にも供給される。

【0029】

本変形例の水素精製装置100の動作は、上記の点以外は、第1実施形態と同様の動作であってもよい。

(第2変形例)

第2実施形態の水素精製装置は、第1実施形態、及びその第1変形例のいずれかの水素精製装置において、水素含有ガス中の一酸化炭素をシフト反応により低減する変成器を備え、上記のアンモニア除去器は、変成器の下流に設けられていてもよい。

【0030】

かかる構成により、CO除去器に供給される一酸化炭素濃度を低減でき、CO除去器への酸素供給量増大による水素の酸化を抑制し得る。また、水素精製装置後の水素含有ガス中の一酸化炭素濃度を減少し得る。

【0031】

本変形例の水素精製装置は、上記の点以外は、第1実施形態、及びその第1変形例のいずれかの水素精製装置と同様に構成してもよい。

[装置構成]

図3は、第1実施形態の第2変形例にかかる水素精製装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【0032】

図3に示す例では、本変形例の水素精製装置100は、アンモニア除去器1と、CO除去器2と、変成器6とを備える。

アンモニア除去器1及びCO除去器2については第1実施形態と同様であるので説明を省略する。また、上記と同様に、酸素含有ガス供給器3を設けてもいいし、第1の流路5A及び第2の流路5Bを設けてもいい。

【0033】

変成器6は、水素含有ガス中の一酸化炭素をシフト反応により低減する。アンモニア除去器1は、変成器6の下流に設けられている。

【0034】

変成器6の外殻は、例えば、ステンレススチール等の金属で構成してもよい。

[動作]

以下、本変形例の水素精製装置100の動作の一例を説明する。

【0035】

本例では、水素含有ガス中のCOが変成器6により低減され、COが低減された水素含有ガスがアンモニア除去器1に供給される。

【0036】

本変形例の水素精製装置100の動作は、上記の点以外は、第1実施形態及び、その第1変形例のいずれかと同様の動作であってもよい。

(第2実施形態)

第2実施形態の水素生成装置は、第1実施形態、第1実施形態の第1変形例及び第2変形例のいずれかの水素精製装置と、原料ガスを含む反応ガスを用いて水素含有ガスを生成する改質器を備え、反応ガスは窒素ガス及び含窒素化合物の少なくともいずれか一方を含む。

【0037】

かかる構成により、従来の水素生成装置に比べ、改質器において窒素ガスあるいは含窒素化合物から生成されたアンモニア被毒の進行が抑制され得る。

本実施形態の水素生成装置は、上記の点以外は、第1実施形態及び、その第1変形例及び第2変形例のいずれかの水素精製装置を備える水素生成装置と同様に構成してもよい。

[装置構成]

図4は、第2実施形態にかかる水素生成装置の概略構成の一例を示す概念図である。

【0038】

図4に示す例では、本実施形態の水素生成装置200は、改質器4と、アンモニア除去器1と、CO除去器2とを備える。

【0039】

アンモニア除去器1及びCO除去器2については第1実施形態と同様であるので説明を省略する。また、上記と同様、酸素含有ガス供給器3を設けてもいいし、第1の流路5A及び第2の流路5Bを設けてもいいし、変成器6を設けてもいい。

【0040】

改質器4は、原料ガスを含む反応ガスを用いて水素含有ガスを生成する。具体的には、改質器4内の改質触媒（図示せず）において、原料ガスが改質反応して、水素含有ガスが生成される。改質反応は、いずれの形態であってもよく、例えば、水蒸気改質反応、オートサーマル反応及び部分酸化反応等が挙げられる。図4には示されていないが、各改質反応において必要となる機器は適宜設けられる。例えば、改質反応が水蒸気改質反応であれば、改質器を加熱する燃焼器、水蒸気を生成する蒸発器、及び蒸発器に水を供給する水供給器が設けられる。改質反応がオートサーマル反応であれば、水素生成装置200は、さらに、改質器に空気を供給する空気供給器（図示せず）が設けられる。なお、原料ガスは、メタンを主成分とする都市ガス、天然ガス、LPG等の少なくとも炭素及び水素から構成される有機化合物を含むガスである。

[動作]

以下、本実施の形態の水素生成装置200の動作の一例を説明する。

【0041】

本例では、改質器4が、原料ガスを含む反応ガスを用いて水素含有ガスを生成する。

【0042】

本実施形態の水素生成装置200のその後の動作は、第1実施形態、その第1変形例及び第2変形例のいずれかと同様の動作であってもよい。よって、詳細な説明は省略する。

（第3実施形態）

第3実施形態の燃料電池システムは、第2実施形態の水素生成装置と、水素生成装置から供給される水素含有ガスを用いて発電する燃料電池とを備える。

【0043】

かかる構成により、従来の燃料電池システムに比べ、改質器において窒素ガスあるいは含窒素化合物から生成されたアンモニア被毒の進行が抑制され得る。

本実施形態の燃料電池システムは、上記の点以外は、第2実施形態の水素生成装置を備える燃料電池システムと同様に構成してもよい。

[装置構成]

図5は、第3実施形態にかかる燃料電池システムの概略構成の一例を示す概念図である。

【0044】

図5に示す例では、本実施形態の燃料電池システム300は、水素生成装置200と、燃料電池7とを備える。

【0045】

水素生成装置200については第2実施形態と同様であるので説明を省略する。

【0046】

燃料電池7は、一酸化炭素及びアンモニアが低減された水素含有ガスを用いて発電する。燃料電池としては、いずれの種類であっても良く、高分子電解質形燃料電池、固体酸化物形燃料電池、及び磷酸形燃料電池等が例示される。

[動作]

以下、本実施形態の燃料電池システム300の動作の一例を説明する。

【0047】

本例では、燃料電池システム300の発電運転時において、燃料電池7が、水素生成装置200から供給される一酸化炭素及びアンモニアが低減された水素含有ガスを用いて発電する。

10

【0048】

本実施形態の燃料電池システム300の動作は、燃料電池7を水素利用機器と考えれば、第2実施形態と同様の動作であってもよい。よって、詳細な説明を省略する。

【0049】

上記説明から、当業者にとっては、本発明の多くの改良や他の実施形態が明らかである。従って、上記説明は、例示としてのみ解釈されるべきであり、本発明を実行する最良の態様を当業者に教示する目的で提供されたものである。本発明の精神を逸脱することなく、その構造及び／又は機能の詳細を実質的に変更できる。

20

【産業上の利用可能性】

【0050】

本発明の一態様は、従来に比べ、アンモニア被毒の進行が抑制され得るので、水素精製装置、水素生成装置及び燃料電池システムに利用できる。

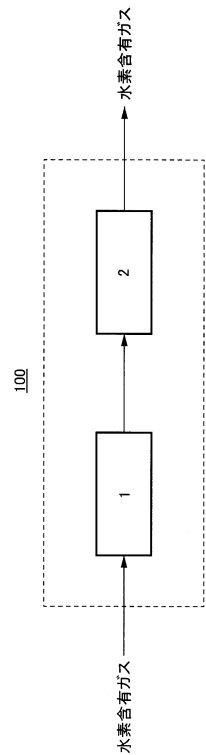
【符号の説明】

【0051】

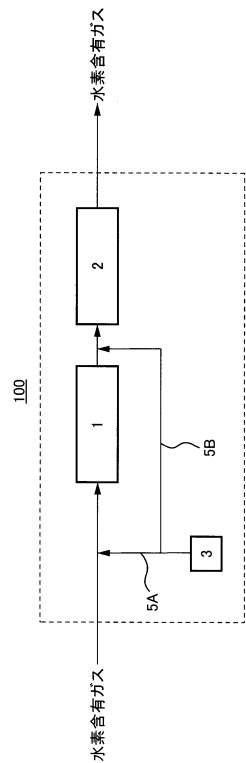
- 1 アンモニア除去器
- 2 CO除去器
- 3 酸素含有ガス供給器
- 4 改質器
- 5 A 第1の流路
- 5 B 第2の流路
- 6 変成器
- 7 燃料電池
- 100 水素精製装置
- 200 水素生成装置
- 300 燃料電池システム

30

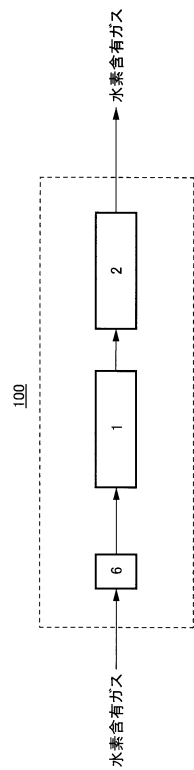
【図 1】



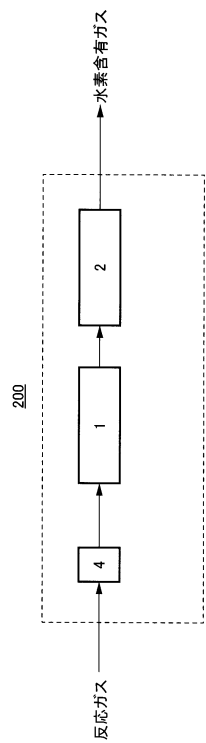
【図 2】



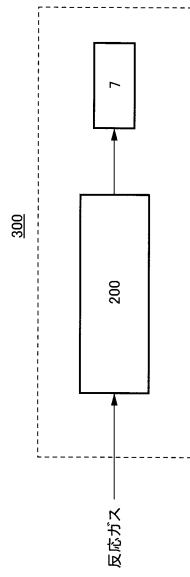
【図 3】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

- (72)発明者 藤原 誠二
大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内
- (72)発明者 中嶋 知之
大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内

審査官 村岡 一磨

- (56)参考文献 特開2012-046395 (JP, A)
特開2003-031247 (JP, A)
特開2010-285595 (JP, A)
特開2009-230927 (JP, A)
特開2006-016256 (JP, A)
特開2003-132926 (JP, A)
特開2003-331898 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C01B 3/00-3/58
JSTPlus (JDreamII)