

## **DOCUMENT MADE AVAILABLE UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)**

International application number:	<b>PCT/JP2019/044214</b>
International filing date:	<b>12 November 2019 (12.11.2019)</b>
Document type:	<b>Certified copy of priority document</b>
Document details:	Country/Office: <b>JP</b>
	Number: <b>2018-220219</b>
	Filing date: <b>26 November 2018 (26.11.2018)</b>
Date of receipt at the International Bureau:	<b>28 November 2019 (28.11.2019)</b>

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a),(b) or (b-bis)

---

## CERTIFICATE OF AVAILABILITY OF A CERTIFIED PATENT DOCUMENT IN A DIGITAL LIBRARY

The International Bureau certifies that a copy of the patent application indicated below has been available to the WIPO Digital Access Service since the date of availability indicated, and that the patent application has been available to the indicated Office(s) as of the date specified following the relevant Office code:

Document details: Country/Office: **JP**

Filing date: **26 Nov 2018 (26.11.2018)**

Application number: **2018-220219**

Date of availability of document: **27 Nov 2018 (27.11.2018)**

The following Offices can retrieve this document by using the access code:

**JP, GE, NZ, EA, BR, GB, CA, IB, MA, FI, DK, US, AR, SE, KR, IL, IN,  
AU, EP, ES, NL, EE, CN, CL**

Date of issue of this certificate: **29 Nov 2019 (29.11.2019)**

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2018年11月26日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2018-220219

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

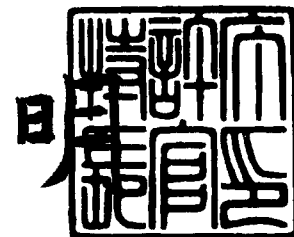
J P 2 0 1 8 - 2 2 0 2 1 9

出 願 人  
Applicant(s): 日本電信電話株式会社

2019年11月28日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

松 永



【書類名】 特許願  
【整理番号】 NTTH305578  
【提出日】 平成30年11月26日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C25B 1/04  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 日本電信電話株式会社内  
    【氏名】 竹内 陽祐  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 日本電信電話株式会社内  
    【氏名】 津田 昌幸  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 日本電信電話株式会社内  
    【氏名】 小野 陽子  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 日本電信電話株式会社内  
    【氏名】 上庄 拓哉  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000004226  
    【氏名又は名称】 日本電信電話株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100083806  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 三好 秀和  
    【電話番号】 03-3504-3075  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100129230  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 工藤 理恵  
【手数料の表示】  
    【振替番号】 00050474  
    【納付金額】 14,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【包括委任状番号】 1004078

【書類名】明細書

【発明の名称】水素発生装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、エネルギー源としての水素を発生させる技術に関する。

【背景技術】

【0002】

水素発生方法には、電気分解と化学反応による方法がある。水の電気分解による方法では、水中に配置した電極間に電圧を与えることで水素を発生させる。そのため、電極には、電氣的に安定性が高く耐食性のよい材料が使用される。例えば、Ni系、導電性酸化物、FeNi合金系、Ni系、IrO<sub>2</sub>系、Pt系、導電性酸化物系、ニッケル/YSZ複合体などの高価な材料が使用される（非特許文献1）。一方、化学反応による方法には、鉄と酸の反応を用いる方法、アルミと水酸化カルシウムの反応を用いる方法などがある。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0003】

【非特許文献1】光島、外1名、“水電解技術の現状と課題”、水素エネルギーシステム、Vol.36、2011年、p.11-p.16

【非特許文献2】宮坂、外3名、“流体機械・環境装置のエロージョン・コロージョン”、Zairyo-to-Kankyo、Vol.57、No.3、2008年、p.111-p.117

【非特許文献3】南雲、“液相から金属への水素侵入I”、Zairyo-to-Kankyo、Vol.55、No.9、2006年、p.380-p.389

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

電気分解と化学反応のいずれの方法においても、安価な材料を用い、安全に水素を発生させることが望ましい。しかし、電気分解による方法では、一般に電極材料として貴金属や導電性酸化物などの高価な材料が用いられる。一方、化学反応による方法では、安価な材料により水素発生を行うことは可能である反面、腐食性が高いものや発熱を伴うものなど、危険性が高い。

【0005】

本発明は、上記事情を鑑みてなされたものであり、安価な材料を用いて水素発生可能な水素発生装置を提供することを第1の目的とし、安全に水素発生可能な水素発生装置を提供することを第2の目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明の水素発生装置は、外部から溶液を流入して流出する水流経路部と、流入する前記溶液との反応により水素を発生させる金属から成る水素発生部と、発生させた前記水素を回収するための水素回収部と、を備え、前記水素発生部は、流入する前記溶液との摩擦により自体である前記金属の表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置されていることを特徴とする。

【0007】

上記水素発生装置において、前記水素発生部は、高所から低所へと落下する前記溶液との摩擦により自体である前記金属の表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置されていることを特徴とする。

【0008】

上記水素発生装置において、前記溶液は、アルカリ性から中性の範囲内の溶液、又はpH7～pH14の範囲内の溶液であることを特徴とする。

【0009】

上記水素発生装置において、前記水素発生部は、前記溶液の内部で電気化学反応に伴う

表面被膜を生じる金属であることを特徴とする。

【0010】

上記水素発生装置において、前記水素発生部は、純鉄、炭素鋼、NiとZnとAlとCuとMgとTiとMnとAgとを含む合金又は純金属のうちいずれかの金属であることを特徴とする。

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、安価な材料を用いて水素発生可能な水素発生装置を提供することができる。また、安全に水素発生可能な水素発生装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】第1の実施例に係る水素発生装置1の側面を示す模式図である。

【図2】第2の実施例に係る水素発生装置1の側面を示す模式図である。

【図3】水素の測定結果を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

本発明は、化学反応による水素発生について、反応性の低いアルカリ性（pH14）から中性（pH7）の範囲内の溶液を用いた安全な系において、流入する当該溶液の摩擦作用により金属の表面被膜を剥離（摩耗）して活性面を露出させることにより、溶液と金属の反応を促進して水素を発生させることに特徴を有する。

【0014】

例えば、鉄（Fe）を用いた場合、アルカリ性から中性の範囲内の水溶液中では、Fe（OH）<sub>2</sub>、Fe（OH）<sub>3</sub>などの表面被膜を形成することから、FeとH<sub>2</sub>Oとの反応が生じず、ほとんど水素を発生させることはない。そこで、本発明では、このような安全な系において、Feの表面被膜をH<sub>2</sub>Oの流れで除去することでFe面を新たに露出させ、当該新たに露出したFe面とH<sub>2</sub>Oが反応することで水素を発生させる。

【0015】

金属表面被膜の除去には、溶液と金属の摩擦・摩耗作用を用いる。具体的には、水平方向に流れる溶液の流れや垂直方向に落ちる溶液の落下を用いる。溶液の流れや溶液の落下を機械的に発生させてもよいし、再生可能エネルギー、すなわち、川の流れ、海流の流れ、滝水、雨水などを用いてもよい。

【0016】

図1は、第1の実施例に係る水素発生装置1の側面を示す模式図である。当該水素発生装置1は、水平方向に一定方向へ流れる川の流れや海流の流れなどを利用して水素を発生させる。当該水素発生装置1は、図1に示すように、主として、水流経路部11と、水素発生部12と、水素回収部13と、水素排出筒14と、を備えて構成される。

【0017】

水流経路部11は、水素発生装置1の外部から溶液Sを流入して流出するための水流経路であり、溶液Sを流出入可能な筒状の形状及び構造を備える。水流経路部11は、第1の部位11aと第2の部位11bで構成され、水素発生装置1の母体である水素回収部13の対向側面にそれぞれ固定配置される。第1の部位11aと第2の部位11bは、水素回収部13に流出入する溶液Sの流れが滑らかになるよう、つまり、溶液Sと金属M（水素発生部12）の摩擦・摩耗作用に影響を与えないように、互いが同一軸上に位置するように位置調整されている。

【0018】

水素発生部12は、水流経路部11から流入する溶液Sとの反応により水素を発生させる板状の金属Mである。水素発生部12は、水素回収部13の内部において、水流経路部11から流入する溶液Sとの摩擦・摩耗により、自体である金属Mの表面被膜を剥離して活性面を露出させ、当該表面被膜の剥離及び活性面露出が生じるように水素回収部13の内部に固定配置されている。例えば、水素発生部12は、図1に示したように、水流経路

部11と同一軸上、つまり水流経路部11の第1の部位11aから第2の部位11bへ又はその逆方向へ直線状に流れる溶液Sの水流経路上に位置するように固定配置されている。

#### 【0019】

水素回収部13は、水素発生部12で発生させた水素を回収するための筐体である。水素回収部13は、内部が空洞である直方体の形状を備え、内部に水素発生部12（金属M）が固定配置される。また、水素回収部13は、水流経路部11の第1の部位11aと第2の部位11bにそれぞれ結合する各側面に溶液Sを流出入させるための貫通孔がそれぞれ形成されるとともに、上面に水素発生部12で発生した水素Hを放出するための貫通孔が形成されている。また、当該上面の貫通孔の位置には、水素を外部に放出するための水素排出筒14が固定配置されている。

#### 【0020】

以上が第1の実施例に係る水素発生装置1の構成である。当該水素発生装置1において、本実施形態で用いる溶液Sは、アルカリ性（pH14）から中性（pH7）の範囲内の溶液である。当該溶液Sは、腐食性が高く発熱を伴う酸性よりも危険性が低く比較的安全である。そのため、安全に水素を発生させることができる。また、金属Mは、溶液Sの内部で電気化学反応に伴う表面被膜を生じる金属である。例えば、金属Mは、純鉄、炭素鋼、NiとZnとAlとCuとMgとTiとMnとAgとを含む合金又は純金属、である。

#### 【0021】

図1に示した水素発生装置1の水素回収部13を一定以上の流速を持つ川に沈めると、当該川の水（溶液S）が一方の水流経路部11（第1の部位11a又は第2の部位11b）から流入して他方の水流経路部11（第2の部位11b又は第1の部位11a）から流出する。このとき、流入した水が水流経路上の水素発生部12である鉄（金属M）に接触して摩擦が発生する。当該摩擦の発生状況を継続させると、鉄の表面が摩耗し表面被膜が剥離して活性面が露出し、新たに露出した鉄の活性面と川の水が反応して水素が発生する。発生した水素は水素回収部13の空洞内部に集まり、水素排出筒14から水素発生装置1の外部に放出される。

#### 【0022】

なお、水平方向に流れる溶液の流れを用いる場合、水素発生装置1の材料や流水環境によって流速が異なるので、溶液Sと金属Mの摩擦・摩耗作用が生じる必要な所定流速を予め算出し、水流経路部11の流水経路構造に流速調整するための絞りを与えるなどして、水素回収部13に流入して水素発生部12（金属M）に接触する溶液Sの流速を調節することが望ましい（非特許文献2）。

#### 【0023】

また、水素発生部12の金属Mは、任意の形状でよいが、水素の発生量を増やすため、メッシュ状、多孔質状、積層構造にするなど、表面積を増やすことが望ましい。また、水素発生部12は、腐食により摩耗することから、消耗部品として機能する。

#### 【0024】

図2は、第2の実施例に係る水素発生装置1の側面を示す模式図である。当該水素発生装置1は、高所から低所へと落下する滝水、雨水などの位置エネルギーを利用して水素を発生させる。当該水素発生装置1も、図2に示すように、主として、水流経路部11と、水素発生部12と、水素回収部13と、水素排出筒14と、を備えて構成される。水流経路部11の第1の部位11aと第2の部位11bが水素回収部13の上下側面にそれぞれ固定配置されることが、第1の実施例と異なる。他の構成は、第1の実施例と同様である。

#### 【0025】

図2に示した水素発生装置1を滝に入れると、落下する当該滝の水（溶液S）が上部の水流経路部11（第1の部位11a）から流入して下部の水流経路部11（第2の部位11b）から流出する。このとき、流入した水が水流経路上の水素発生部12である鉄（金属M）に接触して摩擦が発生する。当該摩擦の発生状況を継続させると、鉄の表面が摩耗

し表面被膜が剥離して活性面が露出し、新たに露出した鉄の活性面と滝の水が反応して水素が発生する。発生した水素は水素回収部 1 3 の空洞内部に集まり、水素排出筒 1 4 から水素発生装置 1 の外部に放出される。

【0026】

なお、第2の実施例では、溶液 S は滝水や雨水の貯水など高い位置に存在する水を用い、その位置エネルギーを運動エネルギーに変えて利用する。したがって、金属 M の表面被膜の剥離に必要な位置エネルギーを予め見積もり、水流経路部 1 1 の垂直方向の長さや流入前の溶液貯蔵量を調節することが望ましい。

【0027】

図 3 は、鉄の活性面露出により水素発生させた測定結果を示す図である。比較のために、従来の電気分解法の測定結果を併せて示す。図 3 に示した測定結果は、いずれも発生した水素の一部が鉄中に侵入したものを昇温脱離分析装置により計測した結果である。活性面露出に用いた鉄は、 $\phi 7\text{ mm}$ 、厚さ  $1\text{ mm}$  のディスク形状であり、擬似的に機械的に湿式研磨を 10 分ほど行うことで活性面を露出させた。また、電気分解で供した鉄は、活性面露出に供した鉄と同形状であり、銀塩化銀電極基準で  $-1\text{ V}$  の電圧を印加することで 12 時間かけて水素を発生させた。

【0028】

図 3 に示した測定結果は、発生した水素の一部が鉄中に侵入したものを計測した結果であり、電気分解では約  $3\text{ ppm}$  の水素が検出された一方、活性面露出では約  $1\text{ ppm}$  であったことから、活性面露出では、電気分解ほどではないものの、同じオーダーでの水素が発生することが示された。本結果は、機械的に湿式研磨を行い活性面露出を行うことで短時間での水素発生が実現されたものだが、水流を用いた場合にも活性面が露出されれば同程度の水素発生が生じることは原理的に明らかである。なお、鉄の内部に侵入する水素は金属表面に吸着する水素のごく一部である（非特許文献 3）。

【0029】

本実施の形態によれば、外部から溶液 S を流入して流出する水流経路部 1 1 と、流入する溶液 S との反応により水素 H を発生させる金属 M から成る水素発生部 1 2 と、発生させた水素 H を回収するための水素回収部 1 3 と、を備え、水素発生部 1 2 は、流入する溶液 S との摩擦により自体である金属 M の表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置されている。つまり、本実施の形態では、金属 M の活性面露出に溶液の流れによる摩擦を用いて水素 H を発生させるので、安価な材料を用いて水素発生可能な水素発生装置を提供することができる。

【0030】

また、本実施の形態によれば、アルカリ性（ $\text{pH} 14$ ）から中性（ $\text{pH} 7$ ）の範囲内の溶液 S を用いるので、安全に水素発生可能な水素発生装置を提供することができる。

【0031】

纏めると、本実施形態では、アルカリ性から中性の溶液中で表面被膜の生成により金属と水の反応が抑制される条件において、摩擦・摩耗作用により断続的に被膜を剥離させ活性面を露出させることで、金属と水の化学反応に伴う水素発生を促進する。これにより、安価な材料を用い、安全な反応系で、水素発生を実現できる。例えば、再生可能エネルギーを用いて水素発生を実現することができる。

【符号の説明】

【0032】

- 1 … 水素発生装置
- 1 1 … 水流経路部
- 1 1 a … 第 1 の部位
- 1 1 b … 第 2 の部位
- 1 2 … 水素発生部
- 1 3 … 水素回収部
- 1 4 … 水素排出筒



【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

外部から溶液を流入して流出する水流経路部と、  
流入する前記溶液との反応により水素を発生させる金属から成る水素発生部と、  
発生させた前記水素を回収するための水素回収部と、を備え、  
前記水素発生部は、  
流入する前記溶液との摩擦により自体である前記金属の表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置されていることを特徴とする水素発生装置。

【請求項 2】

前記水素発生部は、  
高所から低所へと落下する前記溶液との摩擦により自体である前記金属の表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置されていることを特徴とする請求項 1 に記載の水素発生装置。

【請求項 3】

前記溶液は、  
アルカリ性から中性の範囲内の溶液、又は pH 7 ~ pH 14 の範囲内の溶液であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の水素発生装置。

【請求項 4】

前記水素発生部は、  
前記溶液の内部で電気化学反応に伴う表面被膜を生じる金属であることを特徴とする請求項 3 に記載の水素発生装置。

【請求項 5】

前記水素発生部は、  
純鉄、炭素鋼、Ni と Zn と Al と Cu と Mg と Ti と Mn と Ag とを含む合金又は純金属のうちいずれかの金属であることを特徴とする請求項 4 に記載の水素発生装置。

【書類名】要約書

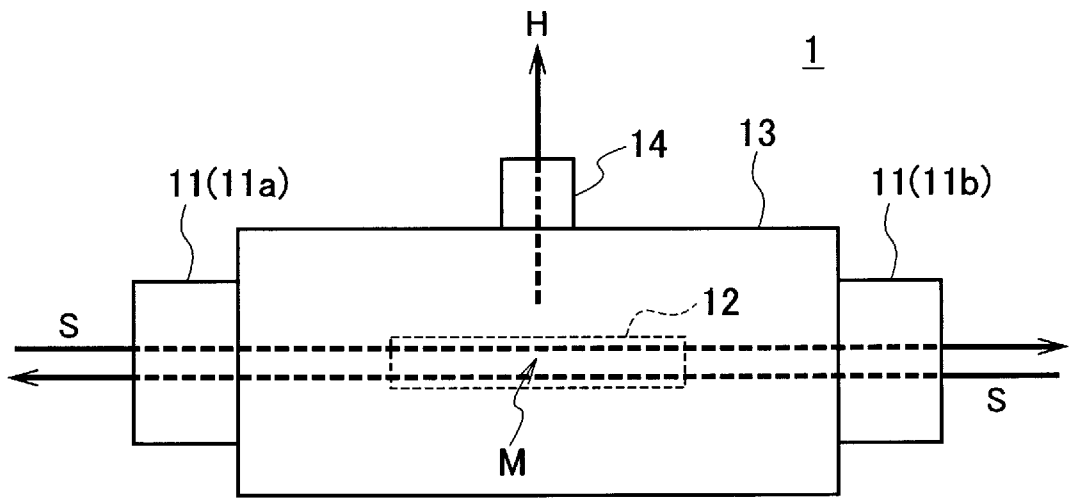
【要約】

【課題】安価な材料を用いて水素発生可能な水素発生装置を提供する。

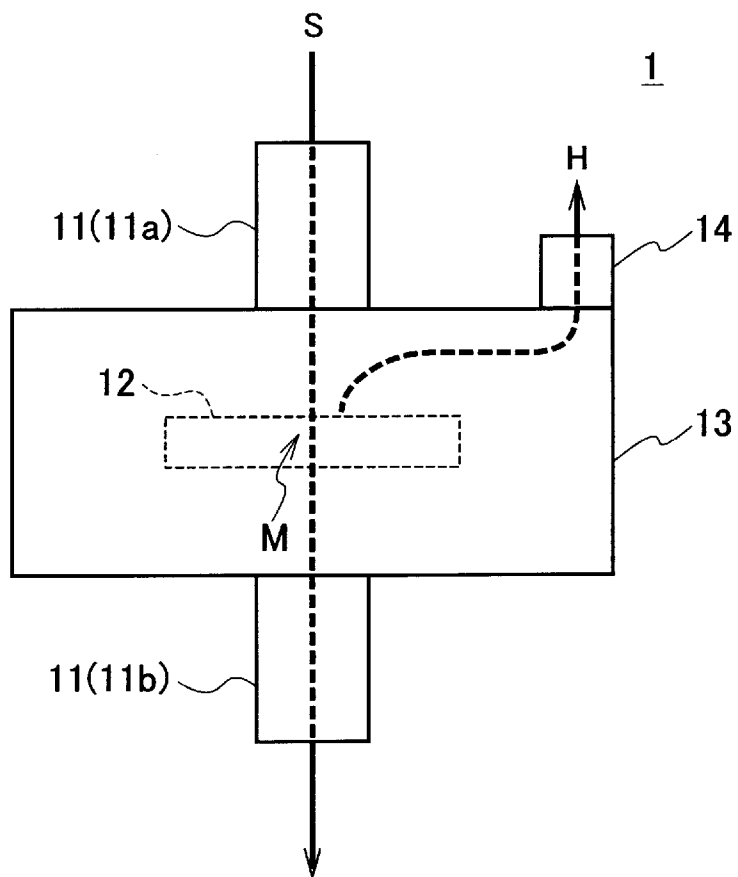
【解決手段】水素発生装置1は、外部から溶液Sを流入して流出する水流経路部11と、流入する溶液Sとの反応により水素Hを発生させる金属Mから成る水素発生部12と、発生させた水素Hを回収するための水素回収部13と、を備え、水素発生部12は、流入する溶液Sとの摩擦により自体である金属Mの表面被膜を剥離して活性面を露出させるように配置される。

【選択図】図1

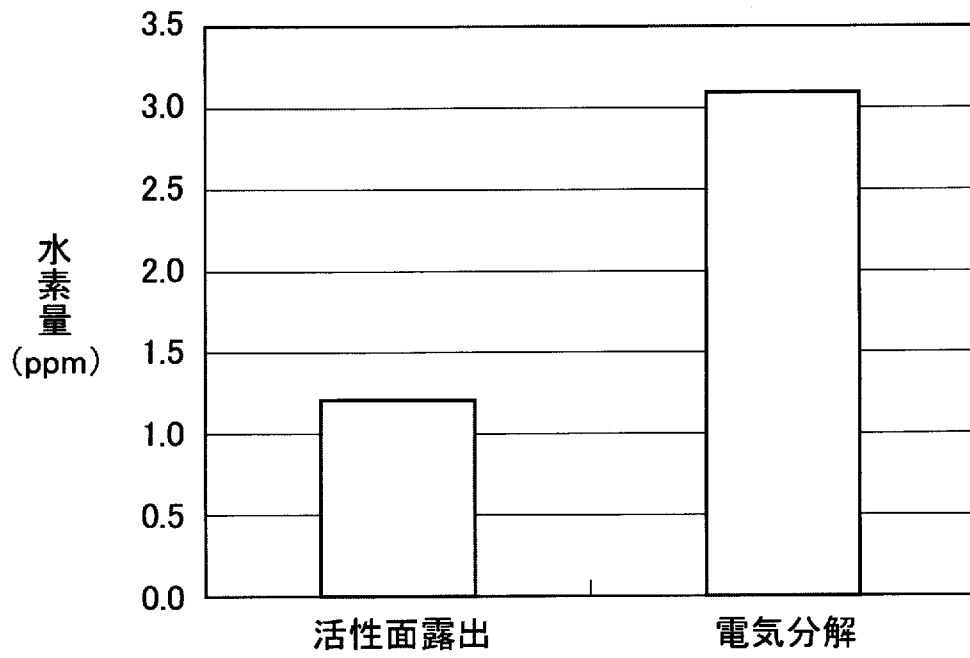
【書類名】 図面  
【図 1】



【図 2】



【図3】



出願人履歴

0 0 0 0 0 4 2 2 6

20140127

住所変更

東京都千代田区大手町一丁目5番1号

日本電信電話株式会社