

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年3月23日(23.03.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/047121 A1

- (51) 国際特許分類:
C02F 1/46 (2006.01) C25B 9/00 (2006.01)
C25B 1/46 (2006.01) C25B 11/08 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/054583
- (22) 国際出願日: 2016年2月17日(17.02.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-181739 2015年9月15日(15.09.2015) JP
- (71) 出願人: 株式会社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 吉永 典裕 (YOSHINAGA, Norihiro); 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産室内 Tokyo (JP). 内藤 勝之 (NAITO, Katsuyuki); 〒2128582 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 東芝リサーチ・コンサルティング株式会社内 Kanagawa (JP). 太田 英男

(OOTA, Hideo); 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産室内 Tokyo (JP). 信田 直美 (SHIDA, Naomi); 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産室内 Tokyo (JP). 横田 昌広 (YOKOTA, Masahiro); 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産室内 Tokyo (JP).

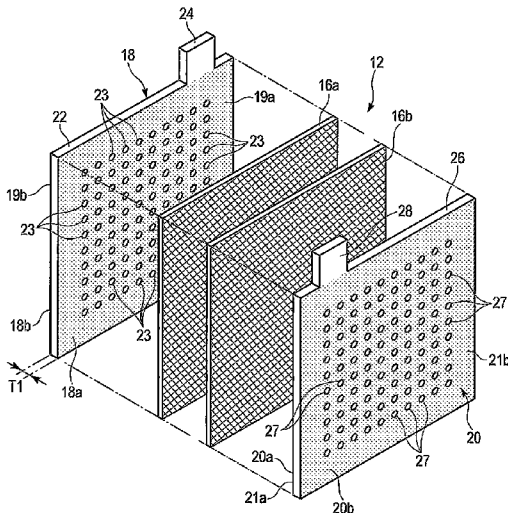
(74) 代理人: 特許業務法人スズエ国際特許事務所 (S & S INTERNATIONAL PPC); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目12番9号 スズエ・アンド・スズエビル Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): 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,

[続葉有]

(54) Title: ELECTRODE AND ELECTROLYSIS APPARATUS

(54) 発明の名称: 電極および電解装置



(57) Abstract: According to an embodiment, an electrolysis apparatus is provided with an electrolysis tank having an anode chamber with an anode 18 and a cathode chamber with a cathode 20 that faces the anode. The anode 18 has a first surface 18a on which a catalyst is loaded. The anode 18 has a distribution of current density that is generated when voltage is applied and the amount of catalyst on the first surface 18a has a distribution corresponding to the current density distribution.

(57) 要約: 実施形態によれば、電解装置は、陽極18が設けられた陽極室と、陽極に対向する陰極20が設けられた陰極室と、を有する電解槽を備えている。陽極18は、触媒が担持された第1表面18aを有している。陽極18は、電圧印加時に生じる電流密度の分布を有し、第1表面18aにおける触媒の触媒量は、電流密度の分布に応じた分布を有している。

WO 2017/047121 A1



SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ,
GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：電極および電解装置

技術分野

[0001] ここで述べる実施形態は、電極、およびこの電極を備える電解装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、水を電解して様々な機能を有する電解水、例えば、アルカリイオン水、オゾン水または次亜塩素酸水などを生成する電解装置が提供されている。電解装置としては、1室型、2室型、あるいは、3室型の電解槽（電解セル）を有する電解装置が知られている。例えば、3室型の電解槽内は、陽イオン交換膜および陰イオン交換膜によって、中間室と、この中間室の両側に位置する陽極室および陰極室との3室に仕切られている。陽極室および陰極室には、陽極および陰極がそれぞれ配置されている。

[0003] 例えば、一般的な電解用の陽極としては、チタン、タンタル、クロム、アルミニウムやその合金等の金属を基材とし、基材表面を白金等の貴金属や酸化イリジウム、酸化ルテニウム等の酸化物触媒層で被覆した電極が用いられる。

[0004] このような3室型の電解槽を有する電解装置では、例えば、中間室に塩水を流し、陽極室および陰極室にそれぞれ水を流通する。中間室の塩水を陰極および陽極で電解することで、陽極で発生した塩素ガスから次亜塩素酸水を生成するとともに、陰極室で水酸化ナトリウム水を生成する。生成した次亜塩素酸水は殺菌消毒水として、水酸化ナトリウム水は洗浄水として活用される。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2006-198562号公報

特許文献2：特開平05-148676号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記のような電解装置において、電極は長時間電解反応を行うと電極表面の劣化が進み、当初の電解性能を維持できなくなることが知られている。長時間の運転による触媒層の溶出や、触媒層の剥離が劣化の原因となる。劣化速度は、電圧印加時の電極の電流密度、電解槽温度、触媒量に依存する。

実施形態の課題は、長期間に亘って電解性能を維持でき高い耐久性を有する電極、およびこれを備える電解装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 実施形態によれば、電解装置は、陽極が設けられた陽極室と、前記陽極に対向する陰極が設けられた陰極室と、を有する電解槽を備え、前記陽極および陰極の少なくとも一方は、触媒が担持された第1表面を有し、前記陽極および陰極の前記少なくとも一方は、電圧印加時に生じる電流密度の分布を有し、前記第1表面における触媒の触媒量は、前記電流密度の分布に応じた分布を有している。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]図1は、第1の実施形態に係る電解水生成装置を概略的に示すブロック図。

[図2]図2は、上記電解水生成装置の電極ユニットを示す分解斜視図。

[図3]図3は、前記電極ユニットの電極を概略的に示す側面図。

[図4]図4は、電解槽の中間室の水圧を高く設定した場合の電極の変形状態を概略的に示す電解槽の断面図。

[図5]図5は、電解槽の中間室の水圧を低く設定した場合の電極の変形状態を概略的に示す電解槽の断面図。

[図6]図6は、第1の実施形態に係る電解水生成装置において、電極の触媒量、電解槽の各室の水圧を種々変更して、電極の寿命を測定した結果を示す図。

[図7]図7は、第2の実施形態に係る電解水生成装置を概略的に示す断面図。

[図8]図8は、第2の実施形態に係る電解水生成装置の電極ユニットを示す分解斜視図。

発明を実施するための形態

[0009] 以下に、図面を参照しながら、種々の実施形態について説明する。なお、実施形態を通して共通の構成には同一の符号を付すものとし、重複する説明は省略する。また、各図は実施形態とその理解を促すための模式図であり、その形状や寸法、比などは実際の装置と異なる個所があるが、これらは以下の説明と公知の技術を参酌して適宜、設計変更することができる。

[0010] (第1の実施形態)

図1は、第1の実施形態に係る電解水生成装置の構成を概略的に示す図である。電解装置の一例としての電解水生成装置10は、いわゆる3室型の電解槽11を備えている。電解槽11は、偏平な矩形箱状に形成され、その内部は、第1隔膜16aおよび第2隔膜16bにより、中間室15aと、中間室15aの両側に位置する陽極室15bおよび陰極室15cとの3室に仕切られている。すなわち、電解室は、第1隔膜16aにより陽極室15bと中間室15aとに仕切られ、第2隔膜16bにより中間室15aと陰極室15cとに仕切られている。第1隔膜16aおよび第2隔膜16bは、間隔を置いて、互いにほぼ平行に対向している。陽極室15b内に陽極(第1電極)18が設けられ、第1隔膜16aに対向している。陰極室15c内に陰極(第2電極)20が設けられ、第2隔膜16bに対向している。陽極18および陰極20は、ほぼ等しい大きさの矩形板状に形成され、第1、第2隔膜および中間室15aを挟んで、互に対向している。

[0011] なお、第1および第2隔膜16a、16b、並びに、陽極18および陰極20は、それぞれその外周縁部が電解槽11に固定、支持されている。

[0012] 電解水生成装置10は、電解槽11の中間室15aに電解液、例えば、飽和塩水を供給する電解液供給部31と、陽極室15bおよび陰極室15cに被電解水、例えば、水を供給する給水部32と、陽極18および陰極20に

正電圧および負電圧をそれぞれ印加する電源 33 と、を備えている。

[0013] 電解液供給部 31 は、飽和塩水を生成する塩水タンク 25 と、塩水タンク 25 から中間室 15a の下部に飽和塩水を導く供給配管 31a と、供給配管 31a 中に設けられた送液ポンプ 29 と、中間室 15a 内を流れた電解液を中間室 15a の上部から塩水タンク 25 に送る排水配管 31b と、を備えている。排水配管 31b には、調整弁（絞り弁）30a が設けられている。

[0014] 給水部 32 は、水を供給する図示しない給水源と、給水源から陽極室 15b および陰極室 15c の下部に水を導く給水配管 32a と、陽極室 15b を流れた水を陽極室 15b の上部から排出する第 1 排水配管 32b と、陰極室 15c を流れた水を陰極室 15c の上部から排出する第 2 排水配管 32c と、第 1 排水配管 32b 中に設けられた調整弁（絞り弁）30b と、第 2 排水配管 32c 中に設けられた調整弁（絞り弁）30c と、を備えている。

[0015] 送液ポンプ 29、調整弁 30a、30b、30c は、水圧調整機構（圧力調整機構）を構成している。すなわち、中間室 15a に電解液を供給する送液ポンプ 29 の供給流量を調整することにより、あるいは、調整弁 30a、30b、30c によって水の流量あるいは電解液の流量を調整することにより、陽極室 15b 内の水圧、陰極室 15c 内の水圧、および中間室 15a 内の水圧、これらの水圧差を調整することができる。例えば、中間室 15a の水圧が陽極室 15b および陰極室 15c の各水圧よりも高くなるように調整し、あるいは、中間室 15a の水圧が陽極室 15b および陰極室 15c の各水圧よりも高くなるように調整することができる。また、中間室 15a、陽極室 15b、陰極室 15c の水圧が互いに等しくなるように調整することも可能である。

[0016] 電解水生成装置 10 により、食塩水を電解して酸性水（次亜塩素酸水および塩酸）とアルカリ性水（水酸化ナトリウム）を生成する動作について説明する。

図 1 に示すように、送液ポンプ 29 を作動させ、電解槽 11 の中間室 15a に飽和塩水を供給するとともに、陽極室 15b および陰極室 15c に水を

給水する。同時に、電源 3 3 から正電圧および負電圧を陽極 1 8 および陰極 2 0 にそれぞれ印加する。中間室 1 5 a へ流入した塩水中において電離しているナトリウムイオンは、陰極 2 0 に引き寄せられ、第 2 隔膜 1 6 b を通過して、陰極室 1 5 c へ流入する。そして、陰極室 1 5 c において、陰極 2 0 で水が電気分解されて水素ガスと水酸化ナトリウム水溶液を生じる。このようにして生成された水酸化ナトリウム水溶液（アルカリ性水）および水素ガスは、陰極室 1 5 c から第 2 排水配管 3 2 c に流出し、第 2 排水配管 3 2 c を通って排出される。

[0017] 中間室 1 5 a 内の塩水中において電離している塩素イオンは、陽極 1 8 に引き寄せられ、第 1 隔膜 1 6 a を通過して、陽極室 1 5 b へ流入する。そして、陽極室 1 5 b にて塩素イオンが陽極 1 8 に電子を与えて塩素ガスが発生する。その後、塩素ガスは陽極室 1 5 b 内で水と反応して次亜塩素酸と塩酸を生じる。このようにして生成された酸性水（次亜塩素酸水および塩酸）は、陽極室 1 5 b から第 1 排水配管 3 2 b を通って排出される。

[0018] 上述した電解水生成において、中間室 1 5 a、陽極室 1 5 b、陰極室 1 5 c の各室に供給する液体に圧力（水圧）を掛けることで以下のような特徴が表れる。例えば、中間室 1 5 a の水圧を陽極室 1 5 b の水圧よりも高く設定した場合、中間室 1 5 a から陽極室 1 5 b への塩素イオンの透過が促進されるので、陽極 1 8 での反応が進行し次亜塩素酸の生成効率が上昇する。逆に、中間室 1 5 a の水圧を陽極室 1 5 b の水圧よりも低く設定した場合、次亜塩素酸の生成効率は低下するが、陽極室 1 5 b へ透過する塩水の量が減るため、電解水使用時に錆の発生抑制や食品への塩味添加の影響を少なくする効果が得られる。

[0019] 中間室 1 5 a の水圧が陰極室 1 5 c の水圧よりも高い場合、中間室 1 5 a から陰極室 1 5 c へのナトリウムイオンの透過が促進されるので、運転電圧の低下に寄与する。逆に、中間室 1 5 a の水圧が陰極室 1 5 c の水圧よりも低い場合、電解電圧は上昇するが、陰極室 1 5 c へ透過する塩水の量が減るため、陰極 2 0 および配管、アルカリ水使用時の錆の発生抑制効果が得られ

る。

[0020] 次に、電解槽 11 内に設けられた電極ユニット（隔膜および電極）12 について詳細に説明する。図 2 は、電極ユニットを示す分解斜視図である。

第 1 隔膜 16 a は、例えば、陽極 18 とほぼ等しい寸法の矩形状に形成されて、陽極 18 の表面に隣接あるいは接触している。第 1 隔膜 16 a として、陰イオン交換膜、逆浸透膜、種々の電解質膜やナノポアを有する多孔質膜等を用いることができる。陰イオン交換膜としてはアニオン交換性の膜を用いることができ、一例として、株式会社トクヤマ製の A201 等が挙げられる。逆浸透膜としてはロメンブラ（東レ株式会社）等が用いられる。ナノポアを有する多孔質膜としては、多孔質ガラス、多高質アルミナ、多孔質チタニア、多孔質ゼオライト等の多孔質セラミックス、多孔質ポリエチレン、多孔質プロピレン等の多孔質ポリマー等がある。

[0021] 第 2 隔膜 16 b は、例えば、陰極 20 とほぼ等しい寸法の矩形状に形成されて、陰極 20 の表面に隣接あるいは接触している。第 2 隔膜 16 b として、陽イオン交換膜、逆浸透膜、ナノポアを有する多孔質膜等を用いることができる。陽イオン交換膜としてはカチオン交換性の膜を用いることができ、例として、N A F I O N（イー アイ デュポン社：商標）112、115、117、フレミオン（旭硝子株式会社：商標）、A C I P L E X（旭化成株式会社：商標）、ゴアセレクト（ダブリュー・エル・ゴア アンド アソシエーツ社：商標）が挙げられる。

[0022] 図 1 および図 2 に示すように、陽極（第 1 電極）18 は、例えば、矩形状の金属板からなる基材 22 に多数の貫通孔 23 を形成した多孔構造を有している。基材 22 は、第 1 表面 18 a および、第 1 表面 18 a とほぼ平行に対向する第 2 表面 18 b を有している。第 1 表面 18 a と第 2 表面 18 b との間隔、すなわち、板厚は T1 に形成されている。第 1 表面 18 a は第 1 隔膜 16 a に対向し、第 2 表面 18 b は陽極室 15 b に対向する。少なくとも第 1 表面 18 a の全面に亘って触媒層 19 a が形成あるいは担持されている。本実施形態では、第 1 表面 18 a および第 2 表面 18 b の両面に触媒層 19

a、19bを形成している。触媒金属を基材22として用いてもよい。

[0023] 陽極18は、その一側縁、例えば、上縁から突出した接続端子24を一体に有している。陽極18は、接続端子24を介して電源に接続される。電極端子は1つだけでなく複数設けることも可能である。基材22の板厚T1が薄い場合、電極端子を複数で設けると、電極端子と反応部で電子が移動する移動抵抗が抑えられる。

[0024] 貫通孔23は、陽極18のほぼ全面に亘って多数形成されている。各貫通孔23は、第1表面18aおよび第2表面18bに開口している。貫通孔23は、正方形、長方形、ひし形、円形、楕円形等、種々の形状を用いることができる。正方形や長方形、ひし形の頂点は丸まってもよい。貫通孔23は、規則的に限らず、ランダムに並んで形成してもよい。

[0025] 図1および図2に示すように、本実施形態では、陰極（第2電極）20は、陽極18と同様に構成されている。すなわち、陰極20は、例えば、矩形状の金属板からなる基材26に多数の貫通孔27を形成した多孔構造を有している。基材26は、第1表面20aおよび、第1表面20aとほぼ平行に対向する第2表面20bを有している。第1表面20aは第2隔膜16bに対向し、第2表面20bは陰極室15cに対向する。少なくとも第1表面20aの全面に亘って触媒層21aが形成あるいは担持されている。本実施形態では、第1表面20aおよび第2表面20bの両面に触媒層21a、21bを形成している。触媒金属を基材26として用いてもよい。更に、陰極20は、その一側縁、例えば、上縁から突出した接続端子28を一体に有している。陰極20は、接続端子28を介して電源に接続される。

[0026] 陽極18および陰極20の基材22、26としては、チタン、クロム、アルミニウムやその合金等のバルブ金属、導電性金属を用いることができる。基材22、26の板厚T1は、電極に印加する電圧（電流）の電流密度に応じて決められる。電流密度が単位平方センチメートル当たり数百mAであれば、基材22、26の板厚T1は、0.4～1ミリの厚さがあれば十分である。本実施形態において、基材22、26の板厚T1は、例えば、500μ

m程度としている。

また、貫通孔23、27の開口径および開口間隔、開口率は、電極18、20の電流密度によって選択可能である。更に、後述するように、1枚の電極の表裏で貫通孔の開口径が異なる、いわゆるダブルメッシュ構造の電極を採用することもできる。

[0027] 塩酸生成および次亜塩素酸生成に用いる陽極では、触媒として、酸性および高電位に耐える白金等の貴金属や酸化イリジウム、酸化ルテニウム等の酸化物を用いることができる。塩酸生成に用いる陰極では、触媒として、アルカリ耐性のあるニッケルや貴金属等を用いることができる。次亜塩素酸生成に用いる陰極では、酸性に耐える白金等の貴金属触媒や銅、銀、ステンレス等を触媒に用いることができる。

[0028] 電極の基材に担持する触媒量は、電極の電流密度と要求電解時間とによって決定される。本実施形態において、陽極18の少なくとも第1表面18aに形成された触媒層19aは、電圧印加時に生じる陽極18の各部の電流密度の分布に応じて、同一平面内で触媒量を変化させている。すなわち、陽極18の第1表面18aにおいて、電流密度の低い部位は触媒量を少なく、電流密度の高い部位に向かって触媒量を多くしている。触媒の最低量を 1 g/m^2 以上とし、かつ、第1表面18aの面内で触媒量が最低量の30%以上かつ300%以内で連続的に傾斜（変化）を有するように触媒を基材に塗布している。この場合、第1表面18a全体の触媒量の合計は、一定とし、場所に応じて触媒量の分布を持たしている。

[0029] 通常、陽極18および陰極20において、接続端子24、28の近傍は、電圧印加時に電流が集中し易く、電流密度が高くなり、同時に、触媒の劣化が多くなり易い。そこで、本実施形態によれば、陽極18の第1表面18aにおいて、接続端子24の根本近傍部分の触媒量が多くなるように、触媒層19aを形成している。図3に示すように、例えば、第1表面18aの複数の部位を点1～9で示した場合、接続端子24の近傍部位3、および部位1、5の触媒量を多く形成し、次いで、部位2、4の触媒量を多く、更に、部

位 6、7、8、9 の触媒量を最小量としている（触媒量：部位 1、3、5 > 2、4 > 6、7、8、9）。

[0030] また、上述した 3 室型の電解槽 11 において、陽極室、中間室、陰極室の水圧に応じて、陽極 18 および陰極 20 の形状が僅かに変動する。図 4 に示すように、例えば、中間室 15 a の水圧が陽極室 15 b および陰極室 15 c の水圧よりも高くなるように設定されている場合、陽極 18 および陰極 20 は、その中央部が互いに離間する方向に変形する。これにより、陽極 18 および陰極 20 は、電圧印加時、それぞれ中央部の電流密度よりも、周縁部の電流密度が高くなる。

[0031] そこで、このような水圧設定の場合、陽極 18 の第 1 表面 18 a において、中央部（部位 5）の触媒量を少なくし、周縁部（部位 1-4、6-9）の触媒量が多くなるように触媒層 19 a を形成する。

[0032] 逆に、中間室 15 a の水圧が陽極室 15 b および陰極室 15 c の水圧よりも低くなるように設定されている場合、図 5 に示すように、陽極 18 および陰極 20 は、その中央部が互いに接近する方向に変形する。これにより、陽極 18 および陰極 20 は、それぞれ中央部の距離が互いに近づき、中央部の電流密度が高くなる。

[0033] そこで、このような水圧設定の場合、陽極 18 の第 1 表面 18 a において、中央部（部位 5）の触媒量を多くし、周縁部（部位 1、4、6-9）の触媒量が少なくなるように触媒層 19 a を形成する。但し、接続端子 24 の近傍部位 3 の触媒量は多く設定する。

[0034] 以上のように、電極 18、20 において、電流密度の高い部位、すなわち、劣化しやすい部位に触媒を多く塗り、他の部分の触媒量を減らすことで、トータルの触媒量は同じであるものの電極の寿命を延ばすことができる。

[0035] 上記のような電極の触媒量の傾斜構造を作製するためには、基材の表面に触媒を刷毛等で塗布し、その際、塗布回数を基材表面の場所に応じて変えることで作製可能である。また、スパッタリング等で触媒を塗布する場合は、ターゲットの位置を変えることで傾斜構造を製造可能である。基材をディッ

プ液（触媒液）にディッピングして触媒層を形成する場合、ディップ液からの引き上げ速度を調節することや、これに加えディップするときの吊り下げ位置をディップ回数ごとに変えることで、基材の同一表面内で自在に触媒量の傾斜をつけることができる。

[0036] 電極の劣化状態は、電極上に塗布された触媒の残存量と電圧の変動から把握することができる。ただし、経過的に触媒が消耗しても電圧変動はほとんど無いことがわかっており、触媒がある程度消耗すると電圧が急激に上昇する傾向にある。そのため、触媒の消耗と電圧の上昇の両方を見ながら、電極の寿命を決定する必要がある。触媒の残存量は、蛍光X線分析法やICP発光分析法によって決定することができるが、非破壊の観点から電解経過過程の触媒量に関しては蛍光X線分析法を採用することが望ましい。また、電極面内での触媒量の経時変化を観察するために、数百時間程度に一度電極を取り出し、例えば図3に点1～9で示すような指定された複数の場所の触媒量を測定することが好ましい。

[0037] 図6は、触媒量を種々変更して作成した複数の電極について、触媒量の分布と寿命との関係を測定した例を示している。図6において、比較例1ないし4は、それぞれ電極の表面全体に触媒を均一に塗布した電極例を示し、電極No. 1～30は、触媒量の分布を有する電極を示している。なお、図6において、触媒量の比率については、面内の各点の中で（触媒最大量／最小量 $\times 100 - 100$ ）として表している。

[0038] 比較例1ないし3のように、触媒量（ g/m^2 ）を全面に亘って均一（平均触媒量 $50\text{ g}/\text{m}^2$ ）とした場合、電極の寿命は $2500 \sim 400\text{ h}$ となる。比較例4のように、触媒量を $100\text{ g}/\text{m}^2$ と2倍にした場合は、寿命は 9000 h と長くなるが、製造コストの点で望ましくない。

[0039] これに対して、触媒量に分布を持たせる場合において、中間室、陽極室、陰極室の水圧が等しい場合、電極No. 2～5のように、接続端子の近傍部位1, 2, 3、中央部4, 5, 6、下端部7, 8, 9の順で触媒量を少なくしていくことにより、電極の寿命が改善することが分かる。但し、電極No.

． 1， N o． 6 のように、触媒最大量と触媒最小量との比が 30 % 以下の場合、あるいは、300 % 以上の場合、電極の寿命延長効果が低下する。

[0040] 中間室の水圧が陽極室および陰極室の水圧よりも高く設定されている場合、電極 N o． 8 ～ 11 のように、電極の中央部位 5 の触媒量を少なくし、周縁部 1 ～ 3、4、6、7 ～ 9 の触媒量を多くすることにより、電極の寿命が改善することが分かる。但し、電極 N o． 7， N o． 12 のように、触媒最大量と触媒最小量との比が 30 % 以下の場合、あるいは、300 % 以上の場合、電極の寿命延長効果が低下する。

[0041] 中間室の水圧が陽極室および陰極室の水圧よりも低く設定されている場合、電極 N o． 20 ～ 23 のように、電極の中央部位 5 の触媒量を最大とし、近傍部位 1， 2， 3 を最大もしくは少しすくなく、下端部 7， 8， 9 の触媒量を更に少なくすることにより、あるいは、電極の中央部位 5 の触媒量を最大とし、他の部位 1 ～ 4、6 ～ 9 の触媒量を少なくすることにより、電極の寿命が改善する。但し、電極 N o． 19， N o． 24 のように、触媒最大量と触媒最小量との比が 30 % 以下の場合、あるいは、300 % 以上の場合、寿命延長効果が低い。

[0042] 以上のように構成された電極およびこれを備える電解水生成装置によれば、電極各部の電流密度に応じて、触媒量に分布を持たせることにより、すなわち、電流密度の高い部位の触媒量を多くし、電流密度の低い部位の触媒量を低減することにより、電極の劣化を抑制し、寿命を延ばすことが可能となる。また、電極表面に塗布あるいは担持するトータルの触媒量は従来と同様にすることができ、製造コストの上昇を招くことなく電極の寿命改善を図ることができる。これにより、長期間に亘って電解性能を維持できる長寿命の電極およびこれを備える電解装置が得られる。

なお、第 1 の実施形態において、陽極 18 および陰極 20 は、多数の貫通孔を有する多孔構造としたが、これに限らず、貫通孔を持たない平板状の電極としてもよい。

次に、他の実施形態に係る電極および電解水生成装置について説明する。

なお、以下に説明する他の実施形態において、前述した第 1 の実施形態と同一の部分には、同一の参照符号を付してその詳細な説明を省略し、第 1 の実施形態と異なる部分を中心に詳しく説明する。

[0043] (第 2 の実施形態)

図 7 は、第 2 の実施形態に係る電解水生成装置を概略的に示す断面図、図 8 は、電極ユニットの分解斜視図である。

第 2 の実施形態によれば、電解槽 11 の陽極室 15 b に設けられた陽極 18、および陰極室 15 c に設けられた陰極 20 は、それぞれダブルメッシュ構造を有する電極として構成されている。

陽極 18 は、例えば、矩形状の金属板からなる基材 22 に多数の貫通孔を形成した多孔構造を有している。基材 22 は、第 1 表面 18 a および、第 1 表面 18 a とほぼ平行に対向する第 2 表面 18 b を有している。第 1 表面 18 a と第 2 表面 18 b との間隔、すなわち、板厚は T_1 に形成されている。第 1 表面 18 a は第 1 隔膜 16 a に対向し、第 2 表面 18 b は陽極室 15 b に対向する。

[0044] 基材 22 の第 1 表面 18 a に複数の第 1 孔部 40 が形成され、第 1 表面 18 a に開口している。また、第 2 表面 18 b に複数の第 2 孔部 42 が形成され、第 2 表面 18 b に開口している。各第 1 孔部 40 は、対向する第 2 孔部 42 に連通し、基材 22 を貫通する貫通孔を形成している。第 1 隔膜 16 a 側となる第 1 孔部 40 の開口径 R_1 は、第 2 孔部 42 の開口径 R_2 よりも小さく、また、孔部の数は、第 1 孔部 40 が第 2 孔部 42 よりも多く形成されている。第 1 孔部 40 の深さは T_2 、第 2 孔部 42 の深さは T_3 であり、 $T_2 + T_3 = T_1$ に形成されている。また、本実施形態において、 $T_2 < T_3$ に形成されている。

[0045] 第 2 孔部 42 は、例えば、矩形状に形成され、第 2 表面 18 b にマトリクス状に並んで設けられている。各第 2 孔部 42 を規定している周壁は、孔部の底から開口に向かって、すなわち、第 2 表面 18 b 側に向かって、径が広くなるようなテーパ面あるいは湾曲面により形成してもよい。隣り合う第

2孔部42間の間隔、すなわち、電極の線状部の幅、はW2に設定されている。なお、第2孔部42は、矩形状に限定されることなく、他の種々の形状としてもよい。また、第2孔部42は、規則的に限らず、ランダムに並んで形成してもよい。

[0046] 第1孔部40は、例えば、矩形状に形成され、第1表面18aにマトリクス状に並んで設けられている。各第1孔部40を規定している周壁は、孔部の底から開口に向かって、すなわち、第1表面18aに向かって、径が広くなるようなテーパ面あるいは湾曲面により形成してもよい。本実施形態において、複数、例えば、9個の第1孔部40が、1つの第2孔部42と対向して設けられている。これら9個の第1孔部40は、それぞれ第2孔部42に連通し、第2孔部42と共に基材22を貫通する貫通孔を形成している。隣合う第1孔部40間の間隔W1は、第2孔部42間の間隔W2よりも小さく設定されている。これにより、第1表面18aにおける第1孔部40の数密度は、第2表面18bにおける第2孔部42の数密度よりも十分に大きい。

[0047] なお、第1孔部40は、矩形状に限定されることなく、他の形状としてもよい。第1孔部40は、規則的に限らず、ランダムに並んで形成してもよい。更に、全ての第1孔部40が第2孔部42に連通している構成に限らず、第2孔部42に連通していない第1孔部を含んでいてもよい。

[0048] 第1孔部40の開口径としては小さい方が圧力を均一化するためには好ましいが、物質拡散を阻害するためある程度の大きさは必要であり、正方形とした場合の開口の一辺が0.1～2mmが好ましく、さらに好ましくは0.3～1mmである。開口としては正方形、長方形、ひし形、円、楕円等と様々な形状を用いることができるが、開口面積としては上記正方形の開口面積と同じ、0.01～4mm²のものが好ましい。開口も含めた電極面積に占める開口面積の割合（開口率）は0.05～0.5が好ましく、0.1～0.3がさらに好ましい。開口率が小さすぎるとガス抜けが困難になる。開口率が大きすぎると電極反応が阻害される。

[0049] 第2孔部42の開口も正方形、長方形、ひし形、円、楕円等と様々な形状を用いることができる。第2孔部42の開口径としては大きい方がガス抜けをよくするためには好ましいが、電気抵抗が大きくなるためあまり大きくはできない。正方形の開口とすると一辺が1～40mmが好ましく、さらに好ましくは2～20mmである。開口としては正方形、長方形、ひし形、円、楕円等と様々な形状を用いることができるが、開口面積としては上記正方形の開口面積と同じ、1mm²から1600mm²のものが好ましい。長方形や楕円のように一方向に長くして電極の端から端につながるような開口も可能である。

[0050] 陽極18は、例えば、上端縁から突出する接続端子24を一体に備えている。また、基材22の第1表面18aの全面および第2表面18bの全面に触媒層19a、19bが形成されている。少なくとも第1表面18aにおいて、触媒層19aの触媒量は、電極の各部位により異なり、特に、電流密度に応じて異なり、同一平面内で分布を有している。触媒量の分布は、第1の実施形態と同様に設定されている。なお、第2表面18b側の触媒層19bも、触媒層19aと同様の触媒量の傾斜を有していてもよい。

[0051] 第2の実施形態によれば、陰極20は、陽極18と同様に構成されている。すなわち、陰極20は、例えば、矩形状の金属板からなる基材26に多数の貫通孔を形成した多孔構造を有している。基材26は、第1表面20aおよび、第1表面20aとほぼ平行に対向する第2表面20bを有している。第1表面20aは第2隔膜16bに対向し、第2表面20bは陰極室15cに対向する。

[0052] 基材26の第1表面20aに複数の第1孔部44が形成され、第1表面20aに開口している。また、第2表面20bに複数の第2孔部46が形成され、第2表面20bに開口している。第2隔膜16b側となる第1孔部44の開口径は、第2孔部46の開口よりも小さく、また、孔部の数は、第1孔部44が第2孔部46よりも多く形成されている。第1孔部44の深さは、第2孔部46の深さよりも小さく形成されている。

[0053] 複数、例えば、9個の第1孔部44が、1つの第2孔部46と対向して設けられている。これら9個の第1孔部44は、それぞれ第2孔部46に連通し、第2孔部46とともに基材26を貫通する貫通孔を形成している。隣合う第1孔部44間の間隔は、第2孔部46間の間隔よりも小さく設定されている。これにより、第1表面20aにおける第1孔部44の数密度は、第2表面20bにおける第2孔部46の数密度よりも十分に大きい。

[0054] 陰極20は、例えば、上端縁から突出する接続端子28を一体に備えている。また、基材26の第1表面20aの全面および第2表面20bの全面に触媒層21a、21bが形成されている。少なくとも第1表面20aにおいて、触媒層21aの触媒量は、電極の各部位により異なり、特に、電流密度に応じて異なり、同一平面内で分布を有している。触媒量の分布は、第1の実施形態と同様に設定されている。なお、第2表面20b側の触媒層21bも、触媒層19aと同様の触媒量の傾斜を有していてもよい。

その他、電解水生成装置の給水系、塩水給水系、電源、水圧調整機構の構成は、前述した第1の実施形態と同一である。

[0055] 以上のように構成された第2の実施形態においても、電極各部の電流密度に応じて、触媒量に分布を持たせることにより、すなわち、電流密度の高い部位の触媒量を多くし、電流密度の低い部位の触媒量を低減することにより、電極の劣化を抑制し、寿命を延ばすことが可能となる。また、電極表面に塗布あるいは担持するトータルの触媒量は従来と同様にすることができ、製造コストの上昇を招くことなく電極の寿命改善を図ることができる。これにより、長期間に亘って電解性能を維持できる長寿命の電極およびこれを備える電解装置が得られる。

[0056] 次に、種々の実施例および比較例について説明する。

(実施例1)

陽極18および陰極20の基材22、26は、板厚0.5mmの平坦なチタン板をエッチングすることにより、図8に示したダブルメッシュ構造の電極18、20を作製する。隣合う第1孔部40間に形成される線状部の幅W

1は1mm、隣合う第2孔部42間に形成される幅広の線状部の幅W2は2mmである。菱形に開放された第1孔部40および第2孔部42の開口角度は120°である。

[0057] このエッチングされた電極基材22を10wt%シュウ酸水溶液中1時間80℃で処理する。塩化イリジウム($\text{IrCl}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$)に1-ブタノールを0.25M(Ir)になるように加えて調整した溶液を、引き上げ速度と吊り箇所を調節して電極基材22の第1表面および第2表面にディップコートした後、乾燥と焼成を行う。乾燥は80℃で10分間行ない、焼成は450℃で10分間行なう。塗布と乾燥と焼成を複数回繰り返した電極基材22を、反応電極面積が15cm×20cmの大きさに切り出して、陽極18とする。陽極18の右上部に角から1cm離し、幅3cm高さ3cmの接続端子24を取り付ける。塗布した触媒量は面内で変化させており、各ポイントの触媒量の詳細は図6に示した12種類(図6におけるNo7~18)である。

[0058] また、10wt%シュウ酸水溶液中、1時間80℃で処理した電極基材26に触媒層として白金をスパッタすることにより陰極20とする。

陽極室と中間室とを仕切る第1隔膜16aとしてトクヤマ製のA201を用い、陰極室と中間室とを仕切る第2隔膜16bとして陽イオン交換膜のナフィオン117を用いる。

これらの陽極18、陰極20、第1および第2隔膜16a、16b、例えば、塩化ビニル製の容器を用いて電解槽(電解セル)を作製する。陽極18および陰極20の接続端子に電源を接続し、電解槽に配管および送液ポンプを接続する。

[0059] このような電解水生成装置10を用いて、陽極室15bおよび陰極室15cに純水を供給し、中間室15aに飽和塩化ナトリウム水を供給する。陽極室、中間室、陰極室の水圧は、調整弁および送液ポンプにより制御し、各室の水圧は図6に示すように設定する。陽極および陰極の電流密度は300mA/cm²で固定し、陽極室15bで次亜塩素酸水を、陰極室15cで水素と

水酸化ナトリウム水を生成した。この際、電解電圧が8 Vまで上昇したときを電極の寿命とした。

[0060] 図6に示すように、中間室15aの水圧が陽極室15bおよび陰極室15cの水圧よりも低い場合、電極中央部の触媒の消耗が加速する。逆に中間室の圧力が高い場合は中央部の消耗は周辺部よりも遅くなる。また、端子から反応箇所までの距離も寿命に効く要因となる。そして、触媒比率が30%以上かつ300%以内では電極の寿命が長くなる一方で、触媒比率が30%未満、300%以上の場合では寿命が急激に短くなる。

[0061] (比較例1)

比較例1の電解水生成装置の構成は実施例1と同様であるが、陽極および陰極に担持された触媒の触媒量は面内で均一である。各電極の反応電極面積や運転条件は、実施例1と同様である。図6の比較例1～4から、触媒量が均一な場合は、平均触媒量が同一の実施例1と比べても電極の寿命が短いことがわかる。

[0062] 本発明は上述した実施形態そのままに限定されるものではなく、実施段階ではその要旨を逸脱しない範囲で構成要素を変形して具体化できる。また、上記実施形態に開示されている複数の構成要素の適宜な組み合わせにより、種々の発明を形成できる。例えば、実施形態に示される全構成要素から幾つかの構成要素を削除してもよい。さらに、異なる実施形態にわたる構成要素を適宜組み合わせてもよい。

例えば、陽極および陰極は、矩形状に限定されることなく、他の種々の形状を選択可能である。各構成部材の材料は、前述した実施形態および実施例に限定されるものではなく、他の材料を適宜選択可能である。電解質や生成物も塩や次亜塩素酸に限るものではなく、様々な電解質や生成物に展開してもよい。

請求の範囲

- [請求項1] 陽極が設けられた陽極室と、前記陽極に対向する陰極が設けられた陰極室と、を有する電解槽を備え、
- 前記陽極および陰極の少なくとも一方は、触媒が担持された第1表面を有し、前記陽極および陰極の少なくとも一方は、電圧印加時に生じる電流密度の分布を有し、
- 前記第1表面における触媒の触媒量は、前記電流密度の分布に応じた分布を有している電解装置。
- [請求項2] 前記第1表面において、電流密度の低い部位は触媒量が少なく、電流密度の高い部位に向かって触媒量が増加するように前記触媒が担持されている請求項1に記載の電解装置。
- [請求項3] 前記第1表面において、触媒の最低量を 1 g/m^2 以上とし、かつ、触媒量が最低量の30%以上かつ300%以内で変化して触媒が担持されている請求項2に記載の電解装置。
- [請求項4] 前記陽極および陰極は、電源に接続される接続端子をそれぞれ有し、前記第1表面において、前記接続端子に近い部位ほど、触媒量が多い請求項1から3のいずれか1項に記載の電解装置。
- [請求項5] 前記電解槽は、互いに対向する第1隔膜および第2隔膜と、前記第1隔膜および第2隔膜により前記陽極室と陰極室との間に仕切られ電解液を収容する中間室と、を備え、
- 前記陽極および陰極は、前記第1隔膜および第2隔膜を挟んで互いに対向し、
- 前記中間室の水圧を前記陽極室および陰極室の水圧よりも低く設定する圧力調整機構を更に備え、
- 前記第1表面において、中央部の触媒量よりも周縁部の触媒量が多い請求項1から4のいずれか1項に記載の電解装置。
- [請求項6] 前記電解槽は、互いに対向する第1隔膜および第2隔膜と、前記第1隔膜および第2隔膜により前記陽極室と陰極室との間に仕切られ電

解液を収容する中間室と、を備え、

前記陽極および陰極は、前記第1隔膜および第2隔膜を挟んで互いに対向し、

前記中間室の水圧を前記陽極室および陰極室の水圧よりも高く設定する圧力調整機構を更に備え、

前記第1表面において、中央部の触媒量よりも周縁部の触媒量が少ない請求項1から4のいずれか1項に記載の電解装置。

[請求項7] 前記陽極は、前記第1隔膜に対向する第1表面と、前記第1表面と反対側に位置する第2表面と、前記第1表面および第2表面に開口する複数の貫通孔と、を備えている請求項5又は6に記載の電解装置。

[請求項8] 前記陽極は、前記第1隔膜あるいは第2隔膜に対向する第1表面と、前記第1表面と反対側に位置する第2表面と、前記第1表面に開口する複数の第1孔部と、前記第2表面に開口しているとともに、前記第1孔部よりも大径の複数の第2孔部と、を有し、1つの前記第2孔部に複数の前記第1孔部が連通している請求項6又は7に記載の電解装置。

[請求項9] 前記触媒は、貴金属、酸化イリジウム、酸化ルテニウムの少なくとも1つを含んでいる請求項1から8のいずれか1項に記載の電解装置。

[請求項10] 電解装置に用いる電極であって、
第1表面を有する金属の基材と、前記基材の少なくとも第1表面に担持された触媒層と、を備え、前記触媒層の各部位の触媒量は、電圧印加時に生じる当該電極の電流密度の分布に応じて、前記第1表面内で分布している電極。

[請求項11] 前記第1表面において、電流密度の低い部位は触媒量が少なく、電流密度の高い部位に向かって触媒量が増加するように触媒が担持されている請求項10に記載の電極。

[請求項12] 前記第1表面において、触媒の最低量を 1 g/m^2 以上とし、かつ

、触媒量が最低量の30%以上かつ300%以内で変化して触媒が担持されている請求項11に記載の電極。

[請求項13] 電源に接続される接続端子を有し、前記第1表面において、前記接続端子に近い部位ほど、触媒量が多く担持されている請求項10から12のいずれか1項に記載の電極。

[請求項14] 前記第1表面において、中央部の触媒量よりも周縁部の触媒量が多い請求項10から13のいずれか1項に記載の電極。

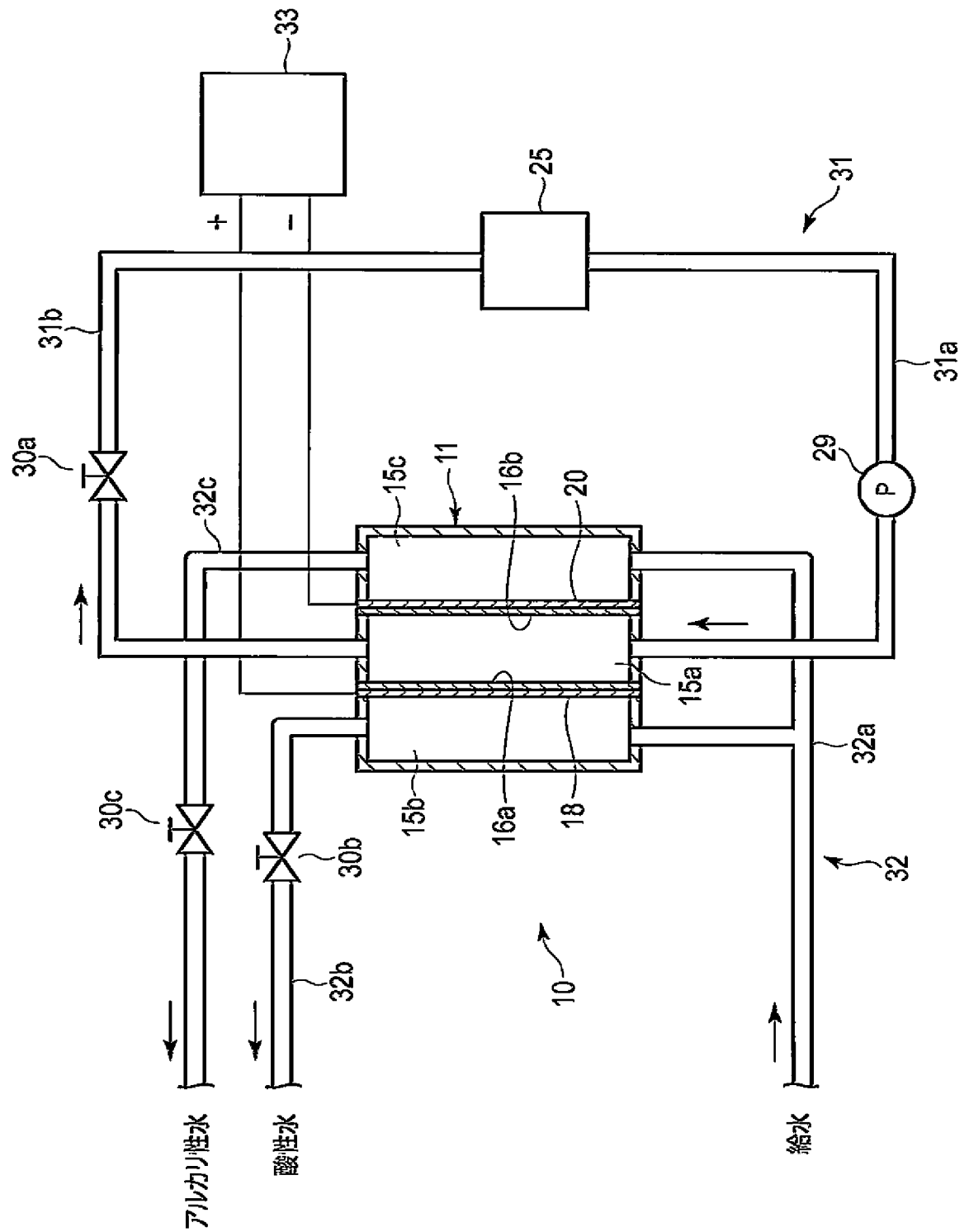
[請求項15] 前記第1表面において、中央部の触媒量よりも周縁部の触媒量が少ない請求項10から13のいずれか1項に記載の電極。

[請求項16] 陽極が設けられた陽極室と、前記陽極に対向する陰極が設けられた陰極室と、を有する電解槽を備え、

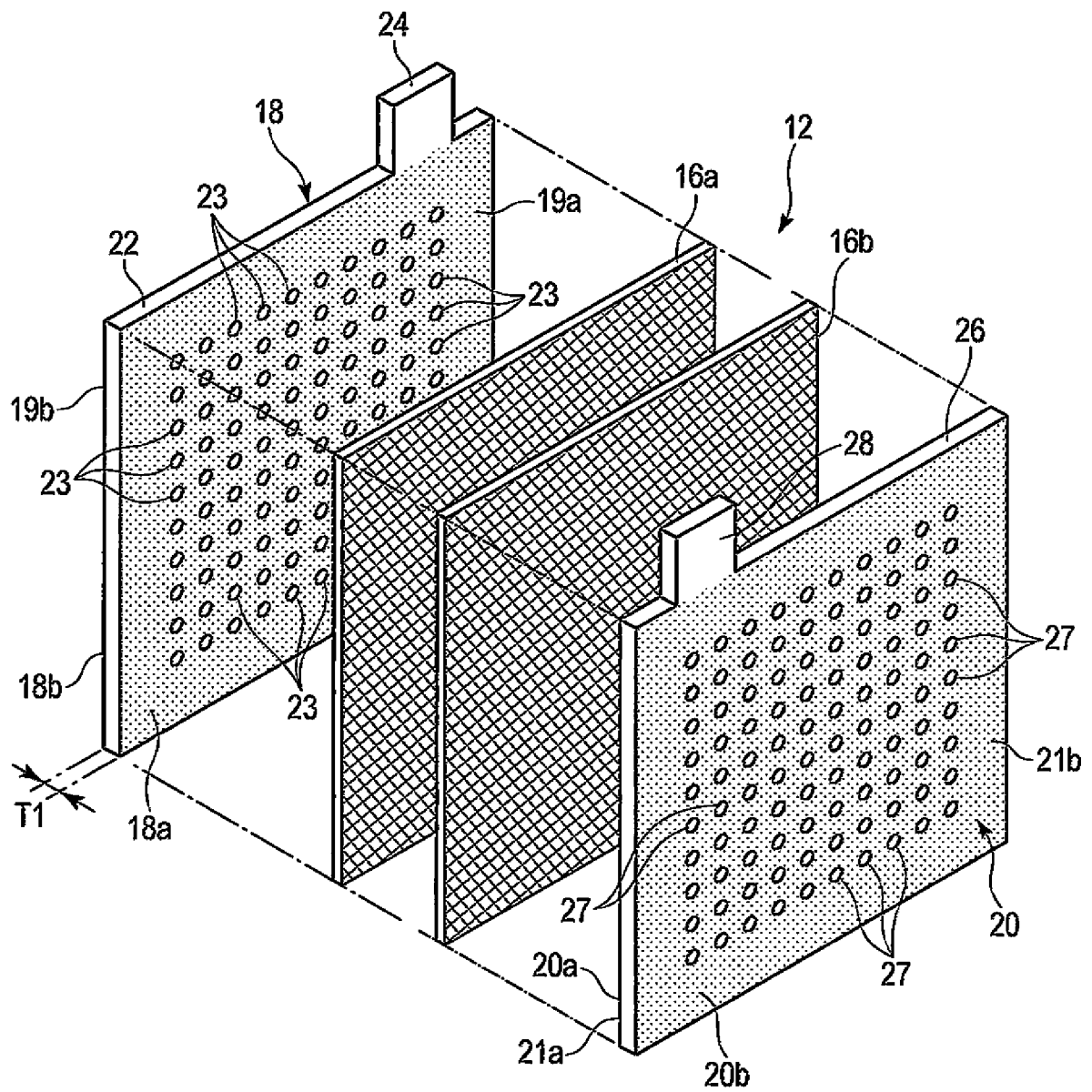
前記陽極および陰極の少なくとも一方は、触媒が担持された第1表面を有し、前記担持された触媒は、前記第1表面の部位に応じて触媒量が相違し、前記第1表面内で触媒量の分布を有している電解装置。

[請求項17] 前記陽極および陰極の少なくとも一方は、電圧印加時に生じる電流密度の分布を有し、前記第1表面における触媒の触媒量は、前記電流密度の分布に応じた分布を有している請求項16に記載の電解装置。

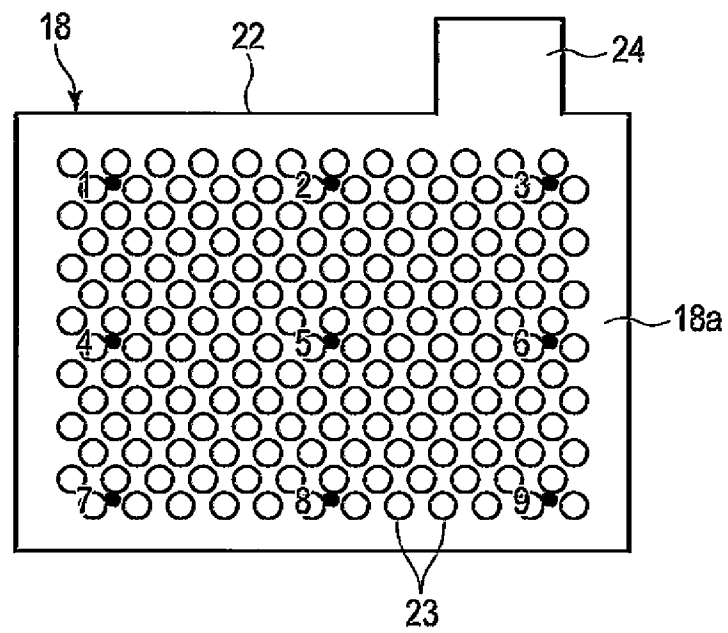
[図1]



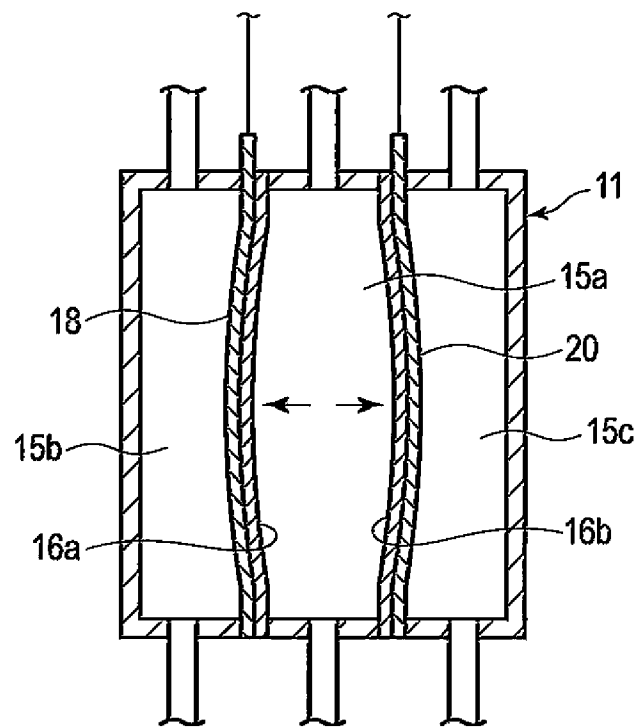
[図2]



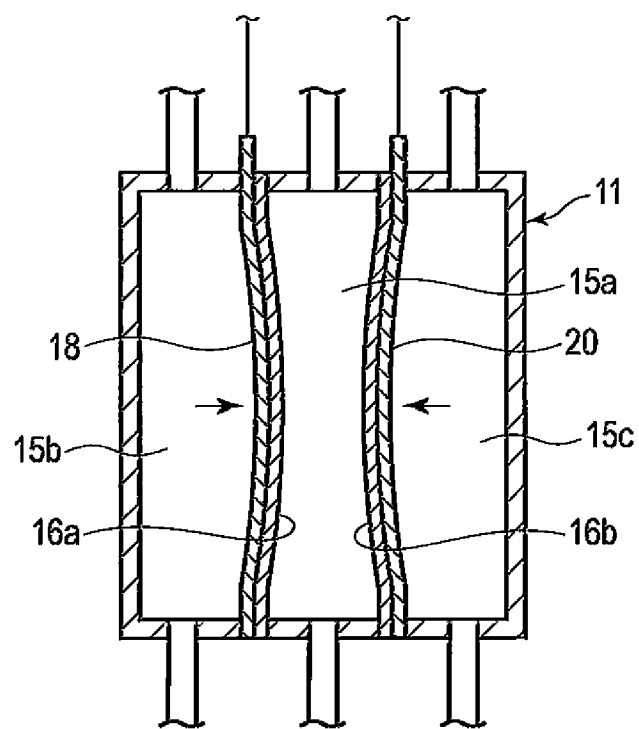
[図3]



[図4]



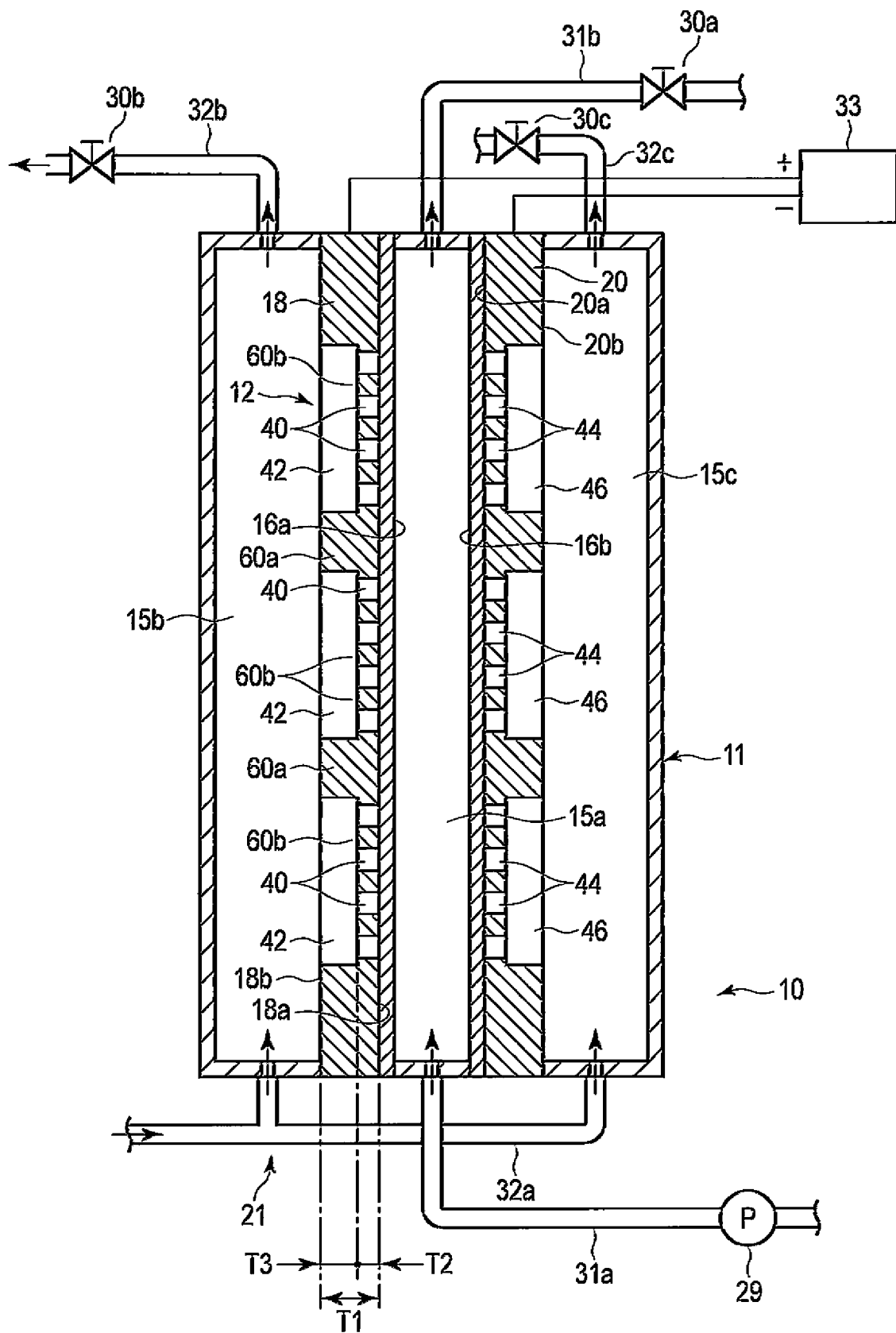
[図5]



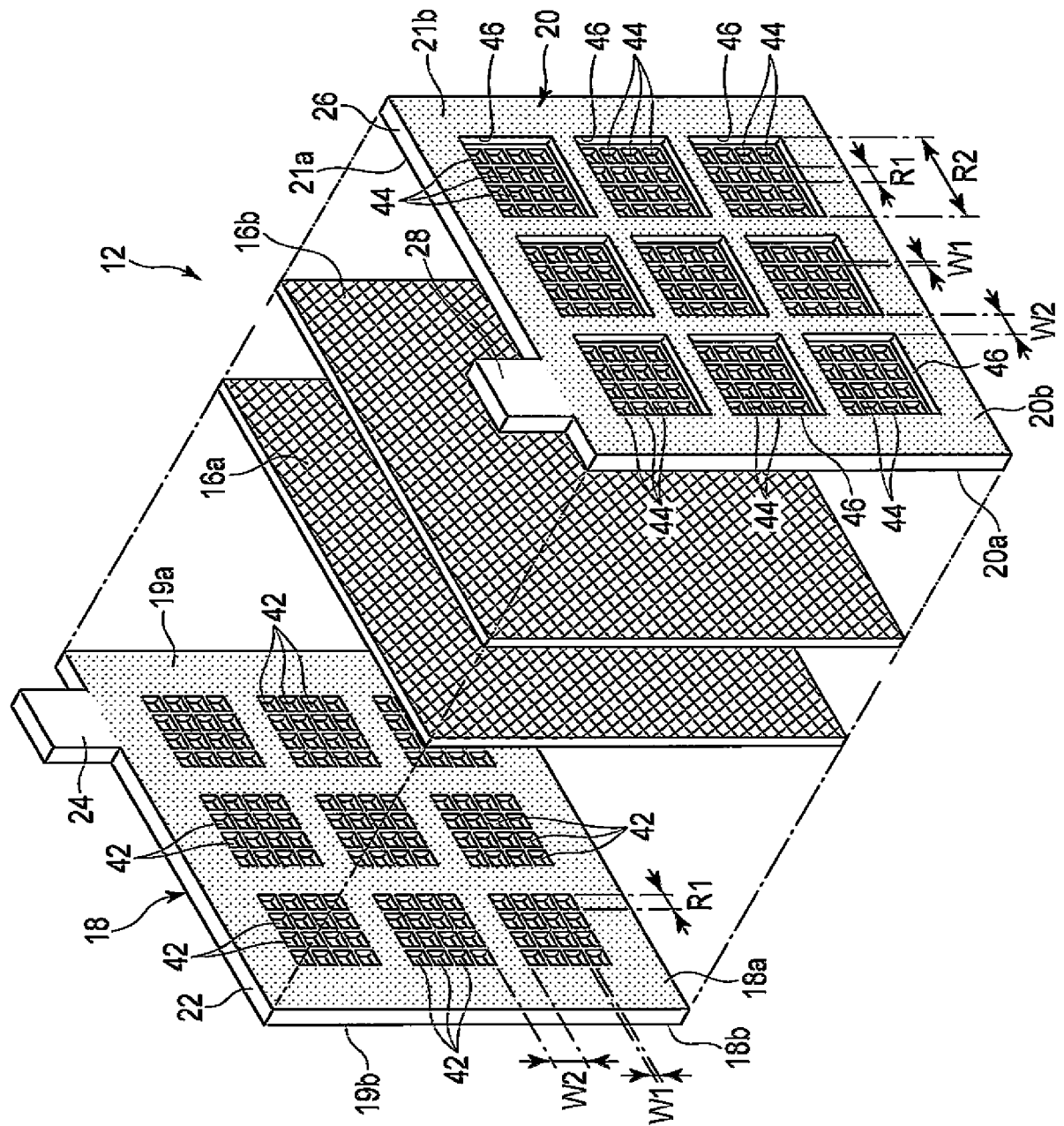
[図6]

	場所	触媒量(g/m ²)									平均触媒量 (g/m ²)	触媒最大量/最小量 x100-100	陽極室圧力 kPa	中間室圧力 kPa	陰極室圧力 kPa	寿命/h
		1	2	3	4	5	6	7	8	9						
電極 No	比較例1	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	0	25	25	25	3500
	比較例2	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	0	50	25	50	2500
	比較例3	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	0	25	50	25	4000
	比較例4	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	0	25	50	25	9000
	No1	55	55	55	50	50	50	45	45	45	50	22	25	25	25	2500
	No2	57	57	57	50	50	50	43	43	43	50	33	25	25	25	4500
	No3	70	70	70	50	50	50	30	30	30	50	133	25	25	25	5000
	No4	75	75	75	50	50	50	25	25	25	50	200	25	25	25	5500
	No5	80	80	80	50	50	50	20	20	20	50	300	25	25	25	7000
	No6	82	82	82	50	50	50	18	18	18	50	356	25	25	25	2500
	No7	55	55	55	55	45	55	55	55	55	50	22	25	50	25	2000
	No8	57	57	57	57	43	57	57	57	57	50	33	25	50	25	3700
	No9	70	70	70	70	30	70	70	70	70	50	133	25	50	25	4500
	No10	75	75	75	75	25	75	75	75	75	50	200	25	50	25	5200
	No11	80	80	80	80	20	80	80	80	80	50	300	25	50	25	6200
	No12	82	82	82	18	18	18	82	82	82	50	356	25	50	25	2100
	No13	50	50	50	50	55	50	50	50	50	50	10	50	25	50	3000
	No14	57	57	57	50	57	50	43	43	43	50	33	50	25	50	5200
	No15	30	30	30	30	70	30	30	30	30	50	133	50	25	50	5500
	No16	25	25	25	25	75	25	25	25	25	50	200	50	25	50	6000
	No17	20	20	20	20	80	20	20	20	20	50	300	50	25	50	7600
	No18	18	18	18	18	82	18	18	18	18	50	356	50	25	50	2900

[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/054583

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C02F1/46(2006.01)i, C25B1/46(2006.01)i, C25B9/00(2006.01)i, C25B11/08(2006.01)i

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)

C02F1/46, C25B1/46, C25B9/00, C25B11/08

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2010-59506 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 18 March 2010 (18.03.2010), claims; paragraphs [0030], [0032], [0060]; fig. 1, 2 (Family: none)	1, 9, 10, 16, 17 2-8, 11-15
A	JP 2014-530291 A (Aquaecos Ltd.), 17 November 2014 (17.11.2014), claims & WO 2013/035762 A1 claims & CN 103781731 A & KR 10-2014-0074927 A	1-17
A	JP 2005-95896 A (Hoshizaki Electric Co., Ltd.), 14 April 2005 (14.04.2005), claims; paragraph [0016] (Family: none)	1-17

☒ 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
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15 April 2016 (15.04.16)

Date of mailing of the international search report
26 April 2016 (26.04.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/054583

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 2007-190548 A (Midori Anzen Co., Ltd.), 02 August 2007 (02.08.2007), claims (Family: none)	1-17
A	JP 7-45293 A (Mitsui Engineering & Shipbuilding Co., Ltd.), 14 February 1995 (14.02.1995), claims; paragraph [0024] (Family: none)	1-17

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C02F1/46(2006.01)i, C25B1/46(2006.01)i, C25B9/00(2006.01)i, C25B11/08(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C02F1/46, C25B1/46, C25B9/00, C25B11/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2010-59506 A（大日本印刷株式会社）2010.03.18, 特許請求の範囲、[0030]、[0032]、[0060]、図1, 2（ファミリーなし）	1, 9, 10, 16, 17
A		2-8, 11-15
A	JP 2014-530291 A（アクアエコス株式会社）2014.11.17, 特許請求の範囲 & WO 2013/035762 A1, 特許請求の範囲 & CN 103781731 A & KR 10-2014-0074927 A	1-17

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 5 . 0 4 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

2 6 . 0 4 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

手島 理

4 D

5 0 8 3

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 2 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2005-95896 A (ホシザキ電機株式会社) 2005. 04. 14, 特許請求の 範囲、[0 0 1 6] (ファミリーなし)	1-17
A	JP 2007-190548 A (ミドリ安全株式会社) 2007. 08. 02, 特許請求の 範囲 (ファミリーなし)	1-17
A	JP 7-45293 A (三井造船株式会社) 1995. 02. 14, 特許請求の範囲、[0 0 2 4] (ファミリーなし)	1-17