

(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
2023年6月22日(22.06.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/112846 A1

(51) 国際特許分類:

C25B 3/26 (2021.01) C25B 9/23 (2021.01)
C07C 1/02 (2006.01) C25B 11/032 (2021.01)
C07C 9/04 (2006.01) C25B 11/052 (2021.01)
C25B 3/03 (2021.01) C25B 13/07 (2021.01)
C25B 9/00 (2021.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/045409

(22) 国際出願日: 2022年12月9日(09.12.2022)

(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 2021-204311 2021年12月16日(16.12.2021) JP

(71) 出願人: 三井金属鉱業株式会社(MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒1418584 東京都品川区大崎一丁目11番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 北 畠 拓 哉 (KITABATAKE Takuya);
〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2

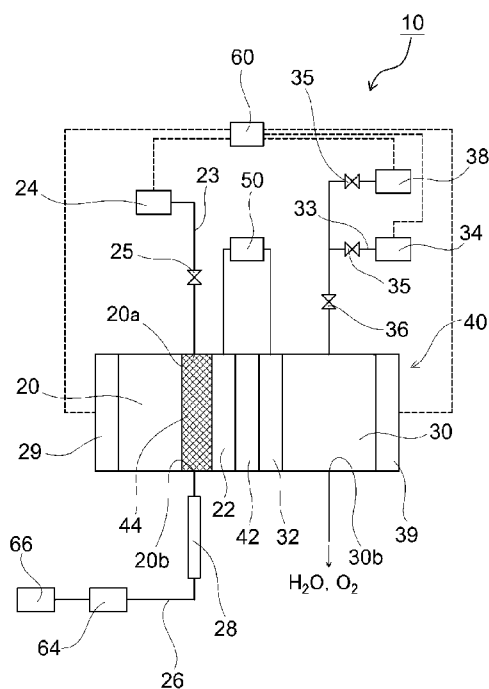
三井金属鉱業株式会社内 Saitama (JP). 茂木 暁(MOGI Satoshi); 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社内 Saitama (JP). 樋口 勉(HIGUCHI Tsutomu); 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社内 Saitama (JP). 中原 祐之輔(NAKAHARA Yunosuke); 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社内 Saitama (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人エスエス国際特許事務所(SSINPAT PATENT FIRM); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6階 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,

(54) Title: HYDROCARBON COMPOUND PRODUCTION DEVICE AND PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称: 炭化水素系化合物の製造装置及び製造方法



(57) Abstract: [Problem] To provide a hydrocarbon compound production device that ensures feedstock CO₂ gas diffuses through a cathode and generated gas diffuses, thereby improving the efficiency of a hydrocarbon compound generation reaction, and making it possible to keep the equilibrium of the hydrocarbon compound generation reaction in a state that is beneficial for hydrocarbon compound generation. [Solution] The present invention provides a hydrocarbon compound production device for synthesizing hydrocarbon compounds from H₂O and CO₂ via electrification, the hydrocarbon compound production device comprising: an electrolytic cell having a fuel synthesis section that includes a cathode, a proton-generating section that includes an anode, and an electrolyte membrane positioned between the cathode and the anode; a gas diffusion layer provided on the side of the cathode opposite to the side at which the electrolyte membrane is provided; and a generated gas discharge section for discharging, from the fuel synthesis section, a generated gas generated in the fuel synthesis part.

LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ,
UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, 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, ME, 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:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: [課題]原料である CO_2 のカソードへのガス拡散性を確保するとともに、生成ガスのガス拡散性も確保することで、炭化水素系化合物の生成反応の効率を向上させるとともに、炭化水素系化合物の生成反応の平衡を、炭化水素系化合物の生成に有利な状態に保つことができる炭化水素系化合物の製造装置を提供する。 [解決手段]通電により H_2O 及び CO_2 から炭化水素系化合物を合成する炭化水素系化合物の製造装置であって、カソードを含む燃料合成部と、アノードを含むプロトン発生部と、カソード及びアノード間に配置された電解質膜とを有する電解槽と、カソードの電解質膜を有する側とは反対側に設けられたガス拡散層と、燃料合成部において生成された生成ガスを、燃料合成部から排出する生成ガス排出部とを備える。

明 細 書

発明の名称：炭化水素系化合物の製造装置及び製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、通電により H_2O 及び CO_2 から炭化水素系化合物を合成する炭化水素系化合物の製造装置及び製造方法に関し、特に、生成ガスのガス拡散性を確保し炭化水素系化合物の生成反応の効率を向上させるとともに、炭化水素系化合物の生成反応の平衡を有利な状態に保つことができる炭化水素系化合物の製造装置及び製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、環境問題への意識の高まりから、地球温暖化の原因である CO_2 を原料としたメタネーション反応を利用したシステムが提案されている（例えば、特許文献1）。このようなメタネーションシステムのうち、プロトン伝導性セラミックスを用いた水電解システム（PCEC）（例えば、非特許文献1）では、アノード側で H_2O を電気分解することで、プロトン（ H^+ ）が電解質中を移動し、カソード側に H_2 が発生する。このとき、同時にカソード側で CO_2 を電気分解することで、メタンの生成が可能である。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2021-9820号公報

非特許文献

[0004] 非特許文献1：李 坤朋、荒木 拓人、森 昌史、「プロトン伝導体／酸化物イオン伝導体形水蒸気電解による水素製造システムの効率検討」、燃料電池、一般社団法人燃料電池開発情報センター、令和2年7月30日、第20巻、第1号、p. 76-83

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] このような、メタンの生成反応では、カソード側に副生成物として水が生

成される。メタンの生成反応は平衡反応であるため、水の存在が反応の阻害となることが知られている。

また、生成されたメタンがカソード近辺に残留していると、同様に、残留するメタンの存在が反応の阻害となってしまう。

[0006] 本発明では、このような現状に鑑み、原料である CO_2 のカソードへのガス拡散性を確保するとともに、生成ガスのガス拡散性も確保することで、炭化水素系化合物の生成反応の効率を向上させるとともに、炭化水素系化合物の生成反応の平衡を、炭化水素系化合物の生成に有利な状態に保つことができる炭化水素系化合物の製造装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、上述するような従来技術における課題を解決するために発明されたものであって、本発明の炭化水素系化合物の製造装置及び製造方法は、以下のように構成されたものを含む。

[0008] [1] 通電により H_2O 及び CO_2 から炭化水素系化合物を合成する炭化水素系化合物の製造装置であって、

カソードを含む燃料合成部と、アノードを含むプロトン発生部と、カソード及びアノード間に配置された電解質膜と、を有する電解槽と、

前記カソードの前記電解質膜を有する側とは反対側に設けられたガス拡散層と、

前記燃料合成部において生成された生成ガスを、前記燃料合成部から排出する生成ガス排出部と、を備える、炭化水素系化合物の製造装置。

[0009] [2] 前記ガス拡散層を、前記カソードと接して配置される、[1]に記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0010] [3] 前記ガス拡散層が、貫通孔を含む多孔質構造を有する、[1]または[2]に記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0011] [4] 前記ガス拡散層の空隙率が、50%以上98%以下である、[1]から[3]のいずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0012] [5] 前記ガス拡散層が、セラミックスを含む、[1]から[4]のい

ずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0013] [6] 前記ガス拡散層の厚みが、 $0.5\mu\text{m}$ 以上である、[1]から[5]のいずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0014] [7] 前記ガス拡散層が、前記カソードと対向していない側の表面に CO_2 を水素化する水素化触媒層を備える、[1]から[6]のいずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0015] [8] 前記電解質膜が、プロトン伝導性材料を含む、[1]から[7]のいずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0016] [9] 前記プロトン伝導性材料が、プロトン伝導性セラミックスである、[8]に記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0017] [10] 前記生成ガス排出部が、冷却手段を有する、[1]から[9]のいずれかに記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[0018] [11] [1]から[10]のいずれかの炭化水素系化合物の製造装置を用いて、炭化水素系化合物の製造を行う炭化水素系化合物の製造方法であって、

少なくとも CO_2 を含むカソードガスを前記燃料合成部に供給し、かつ、 H_2O を前記プロトン発生部に供給するとともに、

前記カソードと前記アノードとを通电する、炭化水素系化合物の製造方法。

発明の効果

[0019] 本発明によれば、カソードの電解質膜を有する側とは反対側にガス拡散層を備えることによって、カソードへの CO_2 の拡散性を確保し、炭化水素系化合物の生成反応の効率を上げることができる。

[0020] また、ガス拡散層によって、生成ガスの拡散性も確保することができるため、生成ガスが生成ガス排出部から排出されやすくなり、炭化水素系化合物の生成反応の平衡を、炭化水素系化合物の生成に有利な状態に保つことができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図 1 は、本実施形態における炭化水素系化合物の製造装置の構成を説明するための模式図である。

[図2]図 2 は、図 1 の炭化水素系化合物の製造装置の変形例を示す模式図である。

[図3]図 3 は、別の実施形態における炭化水素系化合物の製造装置の構成を説明するための模式図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明の実施の形態（実施例）を図面に基づいて、より詳細に説明する。

図 1 は、本実施形態における炭化水素系化合物の製造装置の構成を説明するための模式図である。

[0023] なお、本実施形態では、燃料（本明細書においては、「炭化水素系化合物」とも言う。）としてメタン（ CH_4 ）を製造する例を説明しているが、本発明はメタンやエタンなどの炭化水素に限られない。例えば、メタノールやエタノールなどのアルコール類、さらにはホルムアルデヒドやアセトアルデヒドなどのアルデヒド類、蟻酸や酢酸などのカルボン酸類、ジメチルエーテルなどのエーテル類などを含む、炭素と水素からなる炭化水素系化合物を製造する製造装置にも適用することが可能である。製造する炭化水素系化合物の種類は、例えば、カソードの材質を選択したり、製造装置に供給する CO_2 と H_2O の量を調整したりすることで選択することができ、二種類以上の炭化水素系化合物を同時に製造することもできる。

[0024] 図 1 に示すように、本実施形態の炭化水素系化合物の製造装置 10 は、カソード 22 を含む燃料合成部 20 と、アノード 32 を含むプロトン発生部 30 と、カソード 22 とアノード 32 との間に配置された電解質膜 42 と、を有する電解槽 40 を有する。

[0025] アノード 32 とカソード 22 は、電源 50 に接続されており、カソード 22 から電源 50 へ電流が流れ出すとともに、電源 50 からアノード 32 へ電流が流れ込むように構成されている。

[0026] 電解質膜 4 2 は、主に電荷キャリアとしてイオンを通す性質を有する膜であって、アノード 3 2 とカソード 2 2 とが電氣的に短絡しないような性質を有していれば、特に限定されるものではないが、例えば、プロトン伝導性材料を含む電解質膜 4 2 とすることができる。このように、電解質膜 4 2 がプロトン伝導性材料を含むことにより、アノード 3 2 を含むプロトン発生部 3 0 において H_2O が電気分解されることで生成されたプロトンは、この電解質膜 4 2 を通過してカソード 2 2 に移動する。このようなプロトン伝導性材料としては、プロトン伝導性セラミックスを用いることが好ましい。

[0027] また、プロトン発生部 3 0 には、プロトン発生部 3 0 に H_2O を供給する H_2O 供給部 3 4 が接続され、一方で、燃料合成部 2 0 には、燃料合成部 2 0 に CO_2 を含むカソードガスを供給するカソードガス供給部 2 4 が接続されている。カソードガス供給部 2 4 から供給するカソードガスは、少なくとも CO_2 を含むガスであれば、特に限定されるものではないが、例えば、 CO_2 のみからなるガスでもよいし、 N_2 や Ar などの不活性ガスとの混合ガスや、 NO_x や CO との混合ガスであってもよいし、また、空気であってもよい。

[0028] H_2O 供給部 3 4 からプロトン発生部 3 0 への H_2O 供給経路 3 3 上及びカソードガス供給部 2 4 から燃料合成部 2 0 へのカソードガス供給経路 2 3 上には、それぞれ圧力調整弁 3 5, 2 5 が設けられている。また、 H_2O 供給部 3 4 からプロトン発生部 3 0 への H_2O 供給経路 3 3 上には、逆止弁 3 6 が設けられており、プロトン発生部 3 0 の圧力上昇により、プロトン発生部 3 0 から H_2O 供給部 3 4 へと H_2O が逆流してしまうことを防止している。

[0029] また、本実施形態の炭化水素系化合物の製造装置 1 0 は、 H_2O 供給部 3 4 から供給される H_2O を搬送するキャリアガスを供給するキャリアガス供給部 3 8 を備えている。

このようにキャリアガスによって H_2O を搬送するように構成することで、例えば、ガスクロマトグラフやマスフローメーターなどの分析機器や測定器を用いて、プロトン発生部 3 0 へ供給する H_2O の供給量を正確に把握することが可能である。すなわち、上記の分析機器や測定器から得られる値を基に

、 H_2O 供給部34からプロトン発生部30へ供給する H_2O の供給量の制御をより正確に行うことが可能となる。

[0030] また、カソード22の電解質膜42を有する側とは反対側にガス拡散層44が設けられている。なお、本実施形態において、カソード22とガス拡散層44とは、接して配置されているが、離間して配置、すなわち、カソード22とガス拡散層44との間に隙間を設けても構わない。

[0031] ガス拡散層44としては、例えば、セラミックスや金属酸化物など導電性を有さないものであれば、既知のガス拡散層を用いてもよい。例えば、コーゼライト、ゼオライト、珪藻土などのケイ酸塩鉱物や、セリア、ジルコニア、アルミナ、チタニアなどの金属酸化物を用いることができる。好ましくは、貫通孔を含む多孔質構造を有するガス拡散層44であり、特に、ガス拡散層44の空隙率が、50%以上98%以下であることが好ましく、60%以上90%以下であることがより好ましく、65%以上80%以下であることがさらに好ましい。

[0032] また、このようなガス拡散層44としては、特に、セラミックスを含むことが好ましい。

また、ガス拡散層44の厚みは、0.5 μm 以上とすることが好ましく、50 μm 以上とすることがより好ましく、100 μm 以上とすることがさらに好ましい。ガス拡散層44の厚みの上限値は、特に限定されるものではないが、装置構成や操作性の観点から、10mm以下とすることが好ましく、5mm以下とすることがより好ましく、1mm以下とすることがさらに好ましい。

なお、ガス拡散層44としては、不織布状であることが好ましく、例えば、セラミックスナノファイバなどの酸化物を不織布状に加工したものをを用いることもできる。

[0033] なお、本実施形態では、カソードガス供給経路23を介してカソードガス供給部24から燃料合成部20に供給されるカソードガスは、燃料合成部20の入口20aからガス拡散層44に直接導入されるように構成されている

が、カソードガスがガス拡散層 4 4 を介してカソード 2 2 に供給されていればよく、例えば、図 2 に示すように、ガス拡散層 4 4 が存在しない位置にカソードガスを導入するようにしても構わない。

[0034] このように、カソードガスを、ガス拡散層 4 4 を介してカソード 2 2 に供給されるようにすることによって、カソードガスがガス拡散層 4 4 内を拡散し、カソード表面全体に接触するように構成することができる。このため、電解質膜 4 2 を介して燃料合成部 2 0 に供給されたプロトンを高効率に反応に利用できることから、カソード 2 2 における炭化水素系化合物の生成反応の効率を向上させることができる。

[0035] 燃料合成部 2 0 において生成された炭化水素系化合物を含む生成ガスは、燃料合成部 2 0 の出口 2 0 b から排出される。なお、燃料合成部 2 0 の出口 2 0 b から排出される生成ガスには、炭化水素系化合物の他に、生成反応が生じなかった CO_2 や CO 、 H_2 、 H_2O などが含まれる場合がある。

[0036] また、燃料合成部 2 0 の出口 2 0 b に接続された生成ガス排出部である出口側配管 2 6 には、燃料合成部 2 0 における生成ガスからメタンのみを分離する生成ガス分離部 6 4 が設けられている。生成ガス分離部 6 4 で分離されたメタンは、 CH_4 回収部 6 6 において回収・貯蔵される。

[0037] なお、本実施形態においては、生成ガス分離部 6 4 において、メタンのみを分離するように構成しているが、分離後のメタン以外の生成ガスはそのまま排出することもできるし、例えば、生成ガスを成分毎に分離し、生成ガスに含まれる CO_2 や H_2O を再利用するように構成することもできる。

[0038] なお、本実施形態では、生成ガスが、ガス拡散層 4 4 から出口側配管 2 6 に直接排出されるように構成されているが、カソード 2 2 において生成された生成ガスがガス拡散層 4 4 を介して出口側配管 2 6 に排出されていればよく、例えば、図 2 に示すように、ガス拡散層 4 4 が存在しない位置から生成ガスを排出するようにしても構わない。

[0039] このように、生成ガスを、ガス拡散層 4 4 を介して出口側配管 2 6 に排出するように構成することによって、生成ガスの拡散性を確保することができる。

、生成ガスが出口側配管 26 に排出されやすくなる。このため、燃料合成部 20 内に残留する生成ガスを減らすことができ、炭化水素系化合物の生成反応の平衡を、炭化水素系化合物の生成に有利な状態に保つことができる。

[0040] また、出口側配管 26 には、配管内を流通する生成ガスを冷却する冷却手段 28 が設けられている。具体的には、出口側配管 26 において、燃料合成部 20 の出口 20b の下流側、かつ、生成ガス分離部 64 の上流側に冷却手段 28 が設けられており、燃料合成部 20 から排出された生成ガスを冷却手段 28 によって冷却することにより、水とメタンを分離させている。なお、冷却手段 28 としては、出口側配管 26 を介して配管内の生成ガスを冷却可能なものであれば、特に限定されるものではなく、水冷であっても空冷であっても構わない。

[0041] また、燃料合成部 20 及びプロトン発生部 30 には、それぞれ、カソードガス加熱部 29 及び H_2O 加熱部 39 を備えている。燃料合成部 20 及びプロトン発生部 30 において、それぞれ、 CO_2 及び H_2O を電気分解する際に、カソードガス加熱部 29 及び H_2O 加熱部 39 によって加熱することによって、 CO_2 及び H_2O の電解効率が向上する。

[0042] なお、図 1 には図示していないが、カソードガス供給部 24 から燃料合成部 20 に供給されるカソードガスを加熱するカソードガス予備加熱部や、 H_2O 供給部 34 からプロトン発生部 30 に供給される H_2O を加熱する H_2O 予備加熱部を備えることもでき、これにより H_2O を低温水蒸気として供給することができる。

[0043] このようにカソードガス予備加熱部や H_2O 予備加熱部を設けて、カソードガスや H_2O を、燃料合成部 20 やプロトン発生部 30 に導入する前に加熱しておくことによって、燃料合成部 20 における炭化水素系化合物の生成反応の反応効率を向上させたり、プロトン発生部 30 における H_2O の電解効率を向上させたりすることができる。

[0044] プロトン発生部 30 において H_2O を電気分解することにより生じた O_2 は、プロトン発生部 30 の排出部 30b から排出される。排出部 30b は、プロ

トン発生部 30 内のガスが排出できる位置であれば、どの位置に設けても構わない。なお、電気分解されなかった H_2O も同様に排出部から排出される。また、図示しないが、排出された H_2O が、例えば、排出部 30b から H_2O 供給部 34 まで流れる経路を設けて循環させ、 H_2O を再利用可能な構成にすることもできる。

[0045] また、本実施形態の炭化水素系化合物の製造装置 10 は、カソードガス供給部 24、 H_2O 供給部 34、キャリアガス供給部 38、カソードガス加熱部 29、 H_2O 加熱部 39 とそれぞれ電氣的に接続された制御部 60 を備えている。

[0046] 制御部 60 は、カソードガス供給部 24 からのカソードガスの供給量、 H_2O 供給部 34 からの H_2O の供給量、キャリアガス供給部 38 からのキャリアガスの供給量、カソードガス加熱部 29 の発熱量、 H_2O 加熱部 39 の発熱量をそれぞれ制御するように構成される。

[0047] 図 3 は、別の実施形態における炭化水素系化合物の製造装置の構成を説明するための模式図である。

図 3 に示す炭化水素系化合物の製造装置 10 は、基本的には、図 1, 2 に示す炭化水素系化合物の製造装置 10 と同様な構成であり、同様な構成要素には、同じ符号を付して、その詳細な説明を省略する。

[0048] 本実施形態の炭化水素系化合物の製造装置 10 は、ガス拡散層 44 が、カソード 22 と対向していない側の表面に水素化触媒層 45 を備えている。水素化触媒層 45 には、例えば、Ni、Ru、Cu、Zn、Mn、Co などの遷移金属や、Mg、Ca などのアルカリ土類金属、また、Na や Al を用いることができる。水素化触媒層 45 は、これらの金属を単体で用いることもできるし、2 種以上の元素を含む複合酸化物として用いることもできる。

[0049] このようにガス拡散層 44 の表面に水素化触媒層 45 を備えることによって、水素化触媒層が、カソードガスに含まれる未反応の CO_2 の水素化反応、すなわち、炭化水素系化合物の生成反応に必要な活性化エネルギーを下げるため、炭化水素系化合物の生成反応の反応効率をより向上させ

ることができる。

[0050] ガス拡散層 4 4 の親疎水性は、装置構成や製造する炭化水素系化合物に応じて適宜選択することができる。例えば、本実施形態では、ガス拡散層 4 4 のカソード 2 2 側の表面を親水性とし、ガス拡散層 4 4 の水素化触媒層 4 5 側の表面を疎水性とすることによって、カソード 2 2 側に反応阻害物である水が存在することを抑制し、触媒層側で未反応のカソードガスと水が接触しないように構成することができるため、炭化水素系化合物の生成反応の反応効率をより向上させることができる。

[0051] 以上、本発明の好ましい実施形態について説明したが、本発明はこれに限定されることはなく、本発明の目的を逸脱しない範囲で種々の変更が可能である。例えば、図 3 のみに配置されている機能を一部選択して図 1 や図 2 の装置に組み込むこともできる。

符号の説明

- [0052]
- | | |
|-------|-----------------------|
| 1 0 | 製造装置 |
| 2 0 | 燃料合成部 |
| 2 0 a | 燃料合成部入口 |
| 2 0 b | 燃料合成部出口 |
| 2 2 | カソード |
| 2 3 | カソードガス供給経路 |
| 2 4 | カソードガス供給部 |
| 2 5 | 圧力調整弁 |
| 2 6 | 出口側配管 |
| 2 8 | 冷却手段 |
| 2 9 | カソードガス加熱部 |
| 3 0 | プロトン発生部 |
| 3 0 b | 排出部（プロトン発生部出口） |
| 3 2 | アノード |
| 3 3 | H ₂ O 供給経路 |

3 4	H ₂ O 供給部
3 5	圧力調整弁
3 6	逆止弁
3 8	キャリアガス供給部
3 9	H ₂ O 加熱部
4 0	電解槽
4 2	電解質膜
4 4	ガス拡散層
4 5	水素化触媒層
5 0	電源
6 0	制御部
6 4	生成ガス分離部
6 6	C H ₄ 回収部

請求の範囲

- [請求項1] 通電により H_2O 及び CO_2 から炭化水素系化合物を合成する炭化水素系化合物の製造装置であって、
- カソードを含む燃料合成部と、アノードを含むプロトン発生部と、カソード及びアノード間に配置された電解質膜と、を有する電解槽と、
- 前記カソードの前記電解質膜を有する側とは反対側に設けられたガス拡散層と、
- 前記燃料合成部において生成された生成ガスを、前記燃料合成部から排出する生成ガス排出部と、を備える、炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項2] 前記ガス拡散層が、前記カソードと接して配置される、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項3] 前記ガス拡散層が、貫通孔を含む多孔質構造を有する、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項4] 前記ガス拡散層の空隙率が、50%以上98%以下である、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項5] 前記ガス拡散層が、セラミックスを含む、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項6] 前記ガス拡散層の厚みが、 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上である、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項7] 前記ガス拡散層が、前記カソードと対向していない側の表面に CO_2 を水素化する水素化触媒層を備える、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項8] 前記電解質膜が、プロトン伝導性材料を含む、請求項1に記載の炭化水素系化合物の製造装置。
- [請求項9] 前記プロトン伝導性材料が、プロトン伝導性セラミックスである、請求項8に記載の炭化水素系化合物の製造装置。

[請求項10] 前記生成ガス排出部が、冷却手段を有する、請求項 1 に記載の炭化水素系化合物の製造装置。

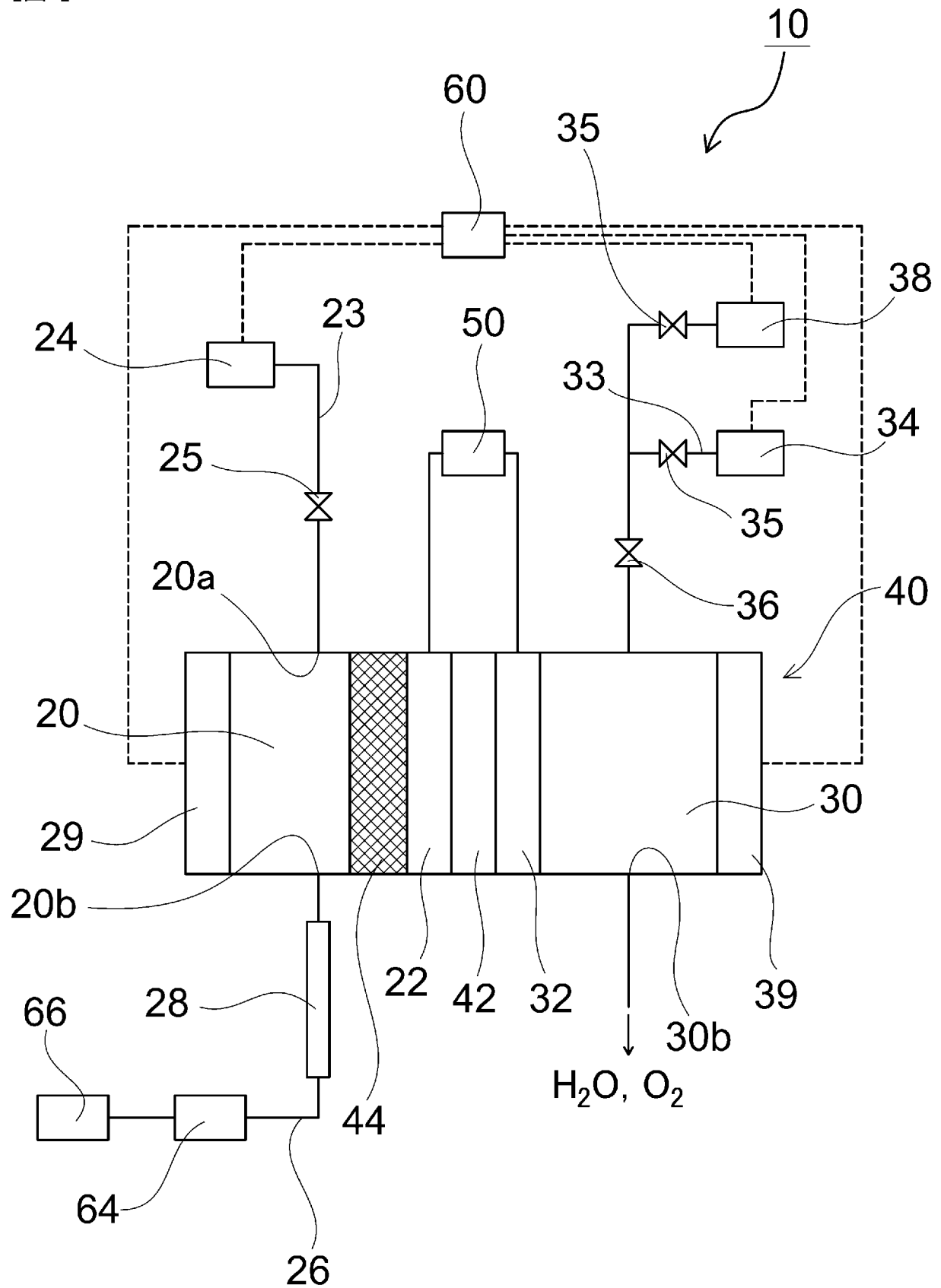
[請求項11] 請求項 1 から 10 のいずれか一項に記載の炭化水素系化合物の製造装置を用いて、炭化水素系化合物の製造を行う炭化水素系化合物の製造方法であって、

少なくとも CO_2 を含むカソードガスを前記燃料合成部に供給し、
かつ、 H_2O を前記プロトン発生部に供給するとともに、

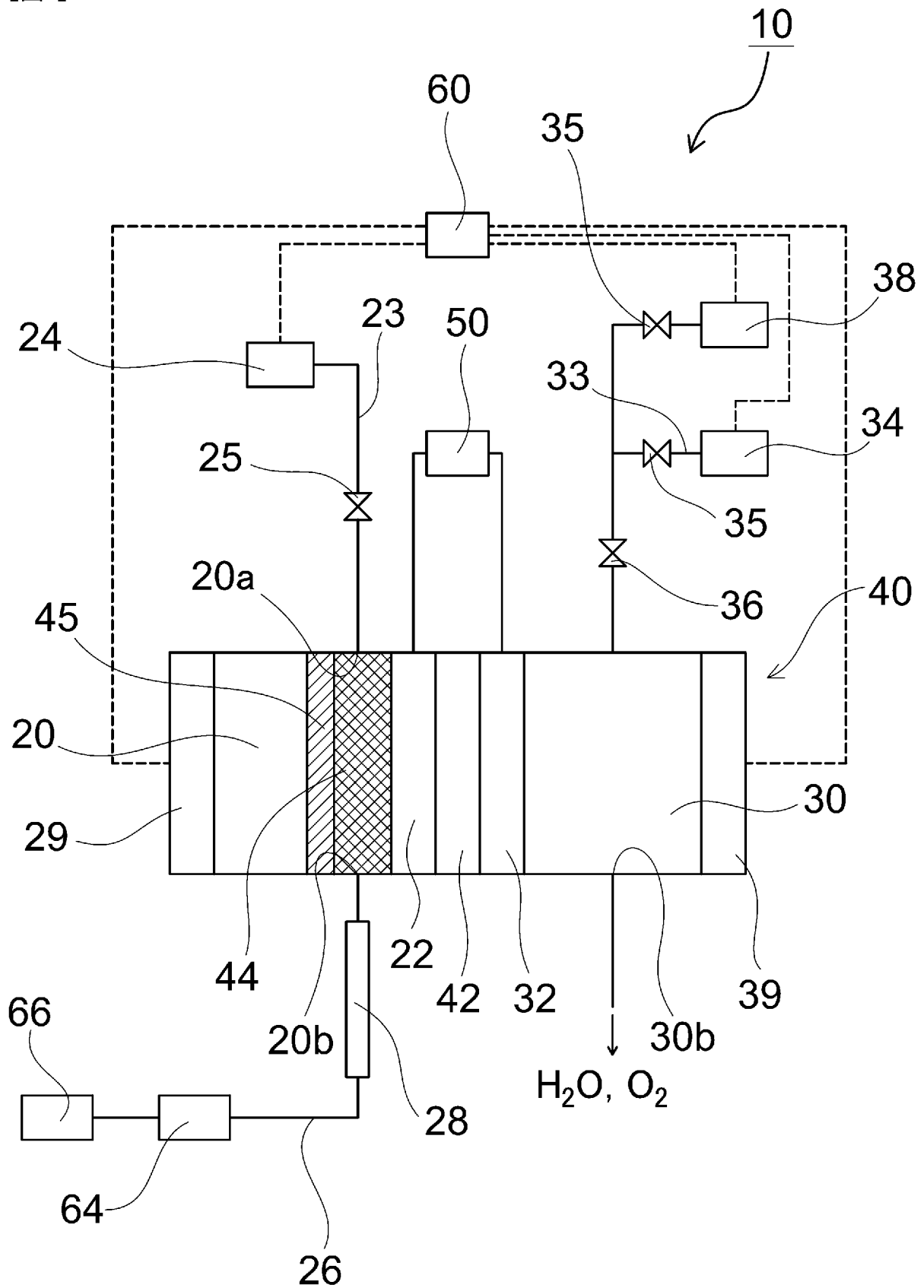
前記カソードと前記アノードとを通電する、炭化水素系化合物の製造方法。

[illegible]

[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/045409

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C25B 3/26(2021.01)i; **C07C 1/02**(2006.01)i; **C07C 9/04**(2006.01)i; **C25B 3/03**(2021.01)i; **C25B 9/00**(2021.01)i;
C25B 9/23(2021.01)i; **C25B 11/032**(2021.01)i; **C25B 11/052**(2021.01)i; **C25B 13/07**(2021.01)i
 FI: C25B3/26; C07C1/02; C07C9/04; C25B3/03; C25B9/00 G; C25B9/23; C25B11/032; C25B11/052; C25B13/07

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)

C25B1/00-C25B15/08

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	XIE, Kui et al. Electrochemical reduction of CO ₂ in a proton conducting solid oxide electrolyser. Journal of Materials Chemistry. 2011, vol. 21, pp. 195-198 in particular, Experimental, Results and discussion	1-11
A	KR 10-2011-0113003 A (INDUSTRY FOUNDATION OF CHONNAM NATIONAL UNIVERSITY) 14 October 2011 (2011-10-14) paragraphs [0007]-[0077], fig. 1-3	1-11
A	WO 2019/048016 A1 (DANMARKS TEKNISKE UNIVERSITET) 14 March 2019 (2019-03-14) p. 8, line 23 to p. 38, line 17, fig. 1-9	1-11
A	JP 2013-119556 A (MITSUBISHI HEAVY IND LTD) 17 June 2013 (2013-06-17) entire text, fig. 1	1-11
A	JP 2020-147776 A (UNIV NAGAOKA TECHNOLOGY) 17 September 2020 (2020-09-17) entire text, fig. 1-5	1-11



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

07 February 2023

Date of mailing of the international search report

21 February 2023

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/045409

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
KR	10-2011-0113003	A	14 October 2011	(Family: none)	
WO	2019/048016	A1	14 March 2019	(Family: none)	
JP	2013-119556	A	17 June 2013	(Family: none)	
JP	2020-147776	A	17 September 2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C25B 3/26(2021.01)i; C07C 1/02(2006.01)i; C07C 9/04(2006.01)i; C25B 3/03(2021.01)i; C25B 9/00(2021.01)i; C25B 9/23(2021.01)i; C25B 11/032(2021.01)i; C25B 11/052(2021.01)i; C25B 13/07(2021.01)i FI: C25B3/26; C07C1/02; C07C9/04; C25B3/03; C25B9/00 G; C25B9/23; C25B11/032; C25B11/052; C25B13/07										
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（IPC）） C25B1/00-C25B15/08										
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2023年	日本国実用新案登録公報	1996-2023年	日本国登録実用新案公報	1994-2023年
日本国実用新案公報	1922-1996年									
日本国公開実用新案公報	1971-2023年									
日本国実用新案登録公報	1996-2023年									
日本国登録実用新案公報	1994-2023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） JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)										
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	XIE, Kui et al., Electrochemical reduction of CO ₂ in a proton conducting solid oxide electrolyser, Journal of Materials Chemistry, 2011, Vol. 21, p. 195-198 特にExperimental, Results and discussion	1-11								
A	KR 10-2011-0113003 A (INDUSTRY FOUNDATION OF CHONNAM NATIONAL UNIVERSITY) 14.10.2011 (2011 - 10 - 14) [0007]-[0077], 図1-3	1-11								
A	WO 2019/048016 A1 (DANMARKS TEKNISKE UNIVERSITET) 14.03.2019 (2019 - 03 - 14) 第8ページ第23行-第38ページ第17行, 図1-9	1-11								
A	JP 2013-119556 A (三菱重工業株式会社) 17.06.2013 (2013 - 06 - 17) 全文, 図1	1-11								
A	JP 2020-147776 A (国立大学法人長岡技術科学大学) 17.09.2020 (2020 - 09 - 17) 全文, 図1-5	1-11								
☐ 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。										
<table border="0"> <tr> <td> * 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “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 </td> <td> “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抵触するものではなく、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 </td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “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抵触するものではなく、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						
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “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抵触するものではなく、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 07.02.2023		国際調査報告の発送日 21.02.2023								
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 酒井 英夫 4E 9631 電話番号 03-3581-1101 内線 3425								

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/045409

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
KR	10-2011-0113003	A	14.10.2011	(ファミリーなし)	
WO	2019/048016	A1	14.03.2019	(ファミリーなし)	
JP	2013-119556	A	17.06.2013	(ファミリーなし)	
JP	2020-147776	A	17.09.2020	(ファミリーなし)	