

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2019-64919

(P2019-64919A)

(43) 公開日 平成31年4月25日(2019.4.25)

(51) Int.Cl.			F I	テーマコード (参考)
C07C	37/07	(2006.01)	C07C 37/07	4H006
C07C	39/08	(2006.01)	C07C 39/08	4H039
C07C	46/06	(2006.01)	C07C 46/06	5H127
C07C	50/04	(2006.01)	C07C 50/04	
H01M	8/04	(2016.01)	H01M 8/04	J

審査請求 未請求 請求項の数 15 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2016-26381 (P2016-26381)
 (22) 出願日 平成28年2月15日 (2016.2.15)

(71) 出願人 509182010
 気相成長株式会社
 東京都小金井市東町四丁目26番20号
 (74) 代理人 100154405
 弁理士 前島 大吾
 (74) 代理人 100201341
 弁理士 畠山 順一
 (74) 代理人 100079005
 弁理士 宇高 克己
 (74) 代理人 230116296
 弁理士 薄葉 健司
 (72) 発明者 町田 英明
 東京都小金井市東町四丁目26番20号
 気相成長株式会社内

最終頁に続く

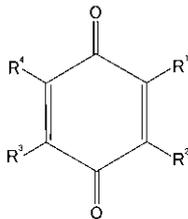
(54) 【発明の名称】 水素輸送方法および水素輸送用剤

(57) 【要約】

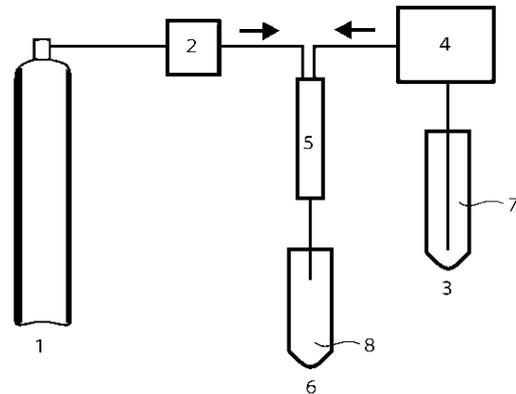
【課題】 エネルギーロスの問題、生体安全性の問題が改善された水素輸送技術を提供することである。

【解決手段】 水素がA点からB点に輸送される際に用いられる剤であって、前記剤は、一般式 [I] で表される化合物である。

一般式 [I]



【選択図】 図1



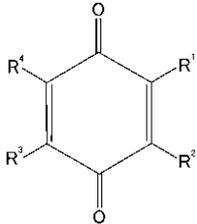
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

水素が A 点から B 点に輸送される方法であって、
前記方法は、

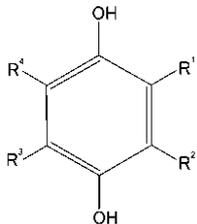
水素が一般式 [I] で表される化合物に添加されて出来た一般式 [I I] で表される化合物が、A 点から B 点に輸送される工程を具備することを特徴とする水素輸送方法。

一般式 [I]



10

一般式 [I I]



20

[R¹ , R² , R³ , R⁴ は、H、炭化水素基、及び - Si R⁵ (R⁶) (R⁷) の群の中から選ばれる何れかである。R⁵ , R⁶ , R⁷ は、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。R¹ と R² と R³ と R⁴ とは、同じでも、異なっても良い。R¹ , R² , R³ , R⁴ の全てが H の場合は除かれる。R⁵ と R⁶ と R⁷ とは、同じでも、異なっても良い。]

【請求項 2】

前記 A 点は、電気分解装置によって得られた水素が貯蔵されている場所であり、前記 B 点は、水素が消費される場所であることを特徴とする請求項 1 の水素輸送方法。

30

【請求項 3】

前記 B 点に輸送された前記一般式 [I I] で表される化合物が燃料電池に供給されることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 の水素輸送方法。

【請求項 4】

前記一般式 [I I] で表される化合物が消費されて出来た前記一般式 [I] で表される化合物が回収されることを特徴とする請求項 2 又は請求項 3 の水素輸送方法。

【請求項 5】

前記回収された前記一般式 [I] で表される化合物が前記 A 点に輸送され、前記輸送された前記一般式 [I] で表される化合物に水素が添加されて出来た前記一般式 [I I] で表される化合物が前記 A 点から前記 B 点に輸送されることを特徴とする請求項 4 の水素輸送方法。

40

【請求項 6】

前記水素が前記一般式 [I] で表される化合物に添加される際、ポリシラン金属触媒が用いられることを特徴とする請求項 1 又は請求項 5 の水素輸送方法。

【請求項 7】

前記一般式 [I] で表される化合物が溶解した溶液と、前記水素とが、ポリシラン金属触媒が設けられたカラム内に供給される

50

ことを特徴とする請求項 1 又は請求項 6 の水素輸送方法。

【請求項 8】

前記一般式 [I I] で表される化合物が前記 A 点から前記 B 点に輸送されるに際して、水素が前記一般式 [I] で表される化合物に添加される際に用いられた溶媒が規定量を越えて残存している場合、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去されていることを特徴とする請求項 1 ~ 請求項 7 いずれかの水素輸送方法。

【請求項 9】

前記一般式 [I I] で表される化合物の水溶液が前記燃料電池に供給されることを特徴とする請求項 3 ~ 請求項 8 いずれかの水素輸送方法。

【請求項 10】

前記燃料電池で回収された前記回収物中に含まれている溶媒が規定量を越えて残存している場合、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去されることを特徴とする請求項 3 ~ 請求項 9 いずれかの水素輸送方法。

【請求項 11】

前記一般式 [I] で表される化合物が 2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン (トルキノン) あることを特徴とする請求項 1 ~ 請求項 10 いずれかの水素輸送方法。

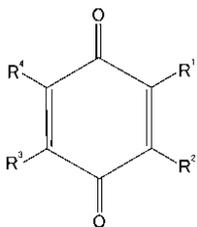
【請求項 12】

前記一般式 [I I] で表される化合物が 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノンであることを特徴とする請求項 1 ~ 請求項 11 いずれかの水素輸送方法。

【請求項 13】

水素が A 点から B 点に輸送される際に用いられる剤であって、前記剤は、一般式 [I] で表される化合物であることを特徴とする水素輸送用剤。

一般式 [I]



[R¹ , R² , R³ , R⁴ は、H、炭化水素基、及び - Si R⁵ (R⁶) (R⁷) の群の中から選ばれる何れかである。R⁵ , R⁶ , R⁷ は、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。R¹ と R² と R³ と R⁴ とは、同じでも、異なっても良い。R¹ , R² , R³ , R⁴ の全てが H の場合は除かれる。R⁵ と R⁶ と R⁷ とは、同じでも、異なっても良い。]

【請求項 14】

前記 A 点は、電気分解装置によって得られた水素が貯蔵されている場所であり、前記 B 点は、水素が消費される場所であることを特徴とする請求項 13 の水素輸送用剤。

【請求項 15】

前記一般式 [I] で表される化合物が 2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン (トルキノン) であることを特徴とする請求項 13 又は請求項 14 の水素輸送用剤。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

20

30

40

50

本発明は水素輸送技術に関する。

【背景技術】

【0002】

現在、化石燃料に代わるエネルギー源が求められている。その理由は、化石燃料には幾つかの問題が有るからである。例えば、埋蔵量に限界が有る。化石燃料は、基本的に、炭素(C)を持つ。この為、化石燃料が燃えると、CO₂が放出される。大量のCO₂放出は環境に悪影響を引き起こす。化石燃料の産出地は特定の地域に偏っている。この為、政治的な観点から、問題が有る。

【0003】

原子力発電が化石燃料の代替エネルギー源として注目されて来た。現実には、数多くの原子力発電所が建設されて来た。しかし、原子力発電所で発生した放射性廃棄物の処理問題が有る。

10

【0004】

太陽光発電や風力発電が、最近、注目されて来た。現実には、太陽光発電所や風力発電所が、数多く、建設された。しかし、太陽光発電所や風力発電所の立地場所は限られている。立地場所は消費地から離れた場所であることが多い。例えば、東京から約1000Kmも南方の小笠原近郊の海洋であったりする。

【0005】

遠方で発電された場合、電力の輸送が問題である。送電線を設置できない条件下での発電所の場合には問題である。この問題を解決する為、電気を水素に変換して輸送する方法が提案された。すなわち、太陽光発電や風力発電によって発電された電力によって水の電気分解が行われる。これによって、水素が製造される。前記水素が消費地に輸送される。水素は燃やされても水が出来るに過ぎない。従って、環境汚染の問題は小さい。

20

【0006】

しかし、水素の輸送は困難である。原油タンカーで原油を運ぶように水素を運ぶことは困難である。その理由として次の点が指摘される。水素輸送タンクには高耐圧が要求される。水素を圧縮するのも容易ではない。この為、輸送コストが高く付く。

【0007】

この種の問題を解決する為、市川(北海道大学)らは、芳香族化合物を用いる手法を提案した。まず、芳香族化合物(例えば、トルエン)に水素が添加される(C₆H₅ + 3H₂ → C₆H₁₁)。このC₆H₁₁が消費地に輸送される。これは水素が輸送されたことになる。消費地で水素が取り出される(脱離される)。取り出された水素が燃料電池に供給されて発電が行われる。このようなシステムのプラントが千代田化工建設株式会社によって試みられている。これは、水素が常温・常圧で輸送・貯蔵されることを意味している。従って、前記手法は有効である。

30

【0008】

しかし、前記手法にも問題が残る。水素の添加・脱離には熱が必要である。このことはエネルギー損失を引き起こす。前記芳香族化合物は有害である。ベンゼンは白血病を誘発する恐れが有る。トルエンは脳障害を誘発する恐れが有る。トルエン(ベンゼン)と水とは分離する。前記芳香族化合物が海に流出した場合、海面上に油膜が形成される。これによって生物被害が起きる。前記芳香族化合物は、揮発性が高く、引火の危険性が有る。

40

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0009】

【非特許文献1】Rajesh B. Biniwalea, S. Rayalua, S. Devotta, and M. Ichikawa, Chemical hydrides: A solution to high capacity hydrogen storage and supply, International Journal of Hydrogen Energy, Volume 33, Issue 1, January 2008, Pages 360 - 365

【特許文献】

【0010】

50

【特許文献 1】特許第 5 1 2 2 1 7 8 号

【特許文献 2】特許第 5 2 8 3 6 6 5 号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

従って、本発明が解決しようとする課題は前記問題点を解決することである。特に、水素輸送に際して、トルエンが用いられた場合の問題点を解決することである。例えば、エネルギーロスの問題、生体安全性の問題が改善された水素輸送技術を提供することである。

【課題を解決するための手段】

10

【0012】

前記課題を解決する為の検討が、本発明者によって、鋭意、推し進められた。その結果、水素輸送用剤（水素を添加・脱離する化合物（水素キャリア））として、アルキルベンゾキノンが好適であろうとの啓示を得るに至った。アルキルベンゾキノン溶液（溶媒は水または有機溶媒）を水素ガスと一緒に連続的に有機ポリシラン金属触媒（例えば、日揮触媒化成株式会社製）が充填されたカラムに流されると、アルキルヒドロキノン溶液が簡単に得られた。反応 [アルキルベンゾキノン + 水素 → アルキルヒドロキノン] が利用される。アルキルヒドロキノンが燃料電池に供給され、発電が行われる。

【0013】

前記知見を基にして本発明が達成された。

20

【0014】

本発明は、水素が A 点から B 点に輸送される際に用いられる剤であって、前記剤は、一般式 [I] で表される化合物であることを特徴とする水素輸送用剤を提案する。

【0015】

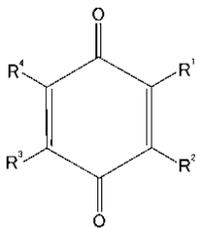
本発明は、水素が A 点から B 点に輸送される方法であって、前記方法は、

水素が一般式 [I] で表される化合物に添加されて出来た一般式 [I I] で表される化合物が、A 点から B 点に輸送される工程を具備することを特徴とする水素輸送方法を提案する。

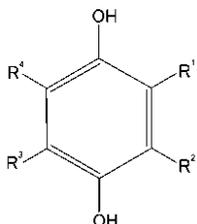
30

【0016】

一般式 [I]



一般式 [I I]



40

一般式 [I] [I I] において、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、H、炭化水素基、及び -SiR⁵ (R⁶) (R⁷) の群の中から選ばれる何れかである。R⁵, R⁶, R⁷ は、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。R¹, R², R³, R⁴ は、好ましくは、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。R¹, R², R³, R⁴ の

50

全てがHの場合は除かれる。

【0017】

前記炭化水素基は、好ましくは、炭素数が1～10の炭化水素基であった。より好ましくは、炭素数が1～8の炭化水素基であった。更に好ましくは、炭素数が1～5の炭化水素基であった。前記炭化水素基は、好ましくは、鎖状の炭化水素基であった。前記炭化水素基は、好ましくは、アルキル基であった。

【0018】

前記R¹とR²とR³とR⁴とは、同じでも、異なっても良い。前記全てのR¹とR²とR³とR⁴とが同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。前記R¹とR²とR³とR⁴の中の少なくとも一つは炭化水素基であることが好ましい。

10

【0019】

前記R⁵とR⁶とR⁷とは、同じでも、異なっても良い。前記全てのR⁵とR⁶とR⁷とが同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。

【0020】

前記A点は、例えば電気分解装置によって得られた水素が貯蔵されている場所である。前記B点は、例えば水素が消費される場所である。

【0021】

前記一般式[I]で表される化合物は、好ましくは、2-メチル-1,4-ベンゾキノン(トルキノン)、2,6-ジメチル-1,4-ベンゾキノン、及びテトラメチル-1,4-ベンゾキノンの群の中から選ばれる一種または二種以上である。

20

【0022】

前記一般式[II]で表される化合物は、好ましくは、2-メチル-1,4-ヒドロキノン、2,6-ジメチル-1,4-ヒドロキノン、及びテトラメチル-1,4-ヒドロキノンの群の中から選ばれる一種または二種以上である。

【0023】

前記B点に輸送された前記一般式[II]で表される化合物は、例えば燃料電池に供給される。これによって、発電が行われる。

【0024】

前記一般式[II]で表される化合物が消費(例えば、燃料電池に供給されて、発電)された場合、前記一般式[I]で表される化合物が生成する。この生成物質(前記一般式[I]で表される化合物)は、好ましくは、回収される。

30

【0025】

前記回収された前記一般式[I]で表される化合物は、好ましくは、前記A点に輸送される。前記輸送された前記一般式[I]で表される化合物に水素が添加される。これによって得られた前記一般式[II]で表される化合物が、好ましくは、前記A点から前記B点に輸送される。これが繰り返される。そうすると、無駄が極めて少なくなる。

【0026】

前記水素が前記一般式[I]で表される化合物に添加される際、好ましくは、ポリシラン金属触媒が用いられる。例えば、前記一般式[I]で表される化合物が溶解した溶液と、水素とが、ポリシラン金属触媒が設けられたカラム内に供給される。これによって、前記一般式[I]で表される化合物が、簡単に、前記一般式[II]で表される化合物に変わる。

40

【0027】

前記一般式[II]で表される化合物が前記A点から前記B点に輸送されるに際して、水素が前記一般式[I]で表される化合物に添加される際に用いられた溶媒(例えば、有機溶媒)が規定量を越えて残存している場合、好ましくは、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去される。輸送コストの観点から、溶媒の量は少ない方が良い。但し、溶媒除去コストと輸送コストとを勘案すると、溶媒除去割合は、例えば50～99.9%(更に好ましくは、70%以上)である。

50

【 0 0 2 8 】

前記燃料電池で回収された前記回収物中に含まれている溶媒（例えば、水）が規定量を越えて残存している場合、好ましくは、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去される。前記溶媒の除去割合は、例えば 50 ~ 99.9%（更に好ましくは、70%以上）である。

【 発明の効果 】

【 0 0 2 9 】

エネルギーロスの問題や生体安全性の問題が改善される。
コスト的にも有利である。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 3 0 】

【 図 1 】 水素添加システム

【 図 2 】 燃料電池による発電システム

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 3 1 】

第 1 の発明は水素輸送用剤である。水素輸送用剤は、言い換えると、水素を添加・脱離する化合物（水素キャリア）である。前記水素輸送用剤は、水素が A 点から B 点に輸送される際に用いられる剤である。前記 A 点は、例えば電気分解装置によって得られた水素が貯蔵されている場所である。前記 B 点は、例えば水素が消費される場所（例えば、燃料電池の設置場所）である。前記剤は、前記一般式 [I] で表される化合物である。前記一般式 [I] において、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、H、炭化水素基、及び - Si R^5 (R^6) (R^7) の群の中から選ばれる何れかである。 R^5 , R^6 , R^7 は、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、好ましくは、H 及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。好ましくは、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 の全てが H の場合は除かれる。前記炭化水素基は、好ましくは、炭素数が 1 ~ 10 の炭化水素基である。より好ましくは、炭素数が 1 ~ 8 の炭化水素基である。更に好ましくは、炭素数が 1 ~ 5 の炭化水素基である。前記炭化水素基は、好ましくは、鎖状の炭化水素基である。前記炭化水素基は、好ましくは、アルキル基である。前記 R^1 と R^2 と R^3 と R^4 とは、同じでも、異なっても良い。前記全ての R^1 と R^2 と R^3 と R^4 とが同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。前記 R^1 と R^2 と R^3 と R^4 の中の少なくとも一つは炭化水素基であることが好ましい。前記 R^5 と R^6 と R^7 とは、同じでも、異なっても良い。前記全ての R^5 と R^6 と R^7 とが同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。前記一般式 [I] で表される化合物は、例えば 2 - メチル - 1, 4 - ベンゾキノン (トルキノン)、2, 6 - ジメチル - 1, 4 - ベンゾキノン、及びテトラメチル - 1, 4 - ベンゾキノンの群のなかから選ばれる一種または二種以上である。前記一般式 [I] で表される化合物に水素を反応（水素添加）させて前記一般式 [II] で表される化合物に変性することは容易である。前記一般式 [I] で表される化合物は、25℃では、固体である。従って、取り扱いが容易である。前記変性に要するエネルギーは少なく済む。前記変性のコストは低廉である。前記一般式 [II] で表される化合物の輸送に際して高耐圧容器は不要である。前記一般式 [II] で表される化合物は保存安定性に富む。前記一般式 [I] で表される化合物は、ベンゼンやトルエンに比べて、安全である。例えば、ベンゼンやトルエンは蒸気圧が高く、引火性 [ベンゼン (蒸気圧 ; 80 /760torr 引火点 ; - 11℃)] が有る。トルエン (蒸気圧 ; 110 /760torr 引火点 ; 5℃)] が有る。ベンゼンやトルエンは蒸気圧が高い。この為、生体内に吸引される恐れが高い。ベンゼンの発癌性は知られている。トルエンの中枢神経系への作用は知られている。これに対して、2 - メチル - 1, 4 - ベンゾキノンや 2 - メチル - 1, 4 - ヒドロキノンは固体である。揮発性が極めて低い。生体内に吸引される恐れは低い。火災の危険性が低い。2 - メチル - 1, 4 - ヒドロキノンは、重合禁止材として、大量に消費されて来た。しかし、ベンゼンやトルエンの様な致命的な有害性は報告されていない。

10

20

30

40

50

【0032】

第2の発明は水素輸送方法である。前記方法は、水素が前記一般式 [I] で表される化合物に添加されて出来た前記一般式 [I I] で表される化合物が、A点からB点到に輸送される工程を具備する。例えば、先ず、前記一般式 [I] で表される化合物に水素が添加される。この水素添加反応（水添反応）によって、前記一般式 [I I] で表される化合物が得られる。この一般式 [I I] で表される化合物がA点からB点到に輸送される。前記A点は、例えば電気分解装置によって得られた水素が貯蔵されている場所である。前記B点は、例えば水素が消費される場所（例えば、燃料電池の設置場所）である。前記一般式 [I] [I I] において、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、H、炭化水素基、及び - Si R^5 (R^6) (R^7) の群の中から選ばれる何れかである。 R^5 , R^6 , R^7 は、H及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 は、好ましくは、H及び炭化水素基の群の中から選ばれる何れかである。前記炭化水素基は、好ましくは、炭素数が1~10の炭化水素基である。より好ましくは、炭素数が1~8の炭化水素基である。更に好ましくは、炭素数が1~5の炭化水素基である。前記炭化水素基は、好ましくは、鎖状の炭化水素基である。前記炭化水素基は、好ましくは、アルキル基である。前記 R^1 と R^2 と R^3 と R^4 とは、同じでも、異なっても良い。前記全ての R^1 , R^2 , R^3 , R^4 が同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。前記 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 の中の少なくとも一つは炭化水素基であることが好ましい。前記 R^5 と R^6 と R^7 とは、同じでも、異なっても良い。前記全ての R^5 , R^6 , R^7 が同一でも良い。一部が同一のみでも良い。全てが異なっても良い。前記一般式 [I] で表される化合物は、例えば2-メチル-1,4-ベンゾキノン（トルキノン）、2,6-ジメチル-1,4-ベンゾキノン、及びテトラメチル-1,4-ベンゾキノンの群のなかから選ばれる一種または二種以上である。前記一般式 [I I] で表される化合物は、例えば2-メチル-1,4-ヒドロキノン、2,6-ジメチル-1,4-ヒドロキノン、及びテトラメチル-1,4-ヒドロキノンの群のなかから選ばれる一種または二種以上である。前記一般式 [I I] で表される化合物は、25では、固体である。従って、取り扱いが容易である。

10

20

【0033】

前記一般式 [I I] で表される化合物が消費（例えば、燃料電池に供給されて、発電）された場合、前記一般式 [I] で表される化合物が生成する。この生成物質（前記一般式 [I] で表される化合物）は、好ましくは、回収される。前記回収された前記一般式 [I] で表される化合物は、好ましくは、前記A点到に輸送される。前記輸送された前記一般式 [I] で表される化合物に水素が添加される。これによって得られた前記一般式 [I I] で表される化合物が、好ましくは、前記A点から前記B点到に輸送される。これが繰り返される。無駄が極めて少なくなった。

30

【0034】

前記水素が前記一般式 [I] で表される化合物に添加される際、好ましくは、ポリシラン金属触媒が用いられる。前記ポリシラン金属触媒は、例えば日揮触媒化成株式会社から市販されている。例えば、前記一般式 [I] で表される化合物が溶解した溶液と、水素とが、ポリシラン金属触媒が設けられたカラム内に供給された。これによって、前記一般式 [I] で表される化合物が、簡単に、前記一般式 [I I] で表される化合物に変わった。

40

【0035】

前記一般式 [I I] で表される化合物が前記A点から前記B点到に輸送されるに際して、水素が前記一般式 [I] で表される化合物に添加される際に用いられた溶媒（例えば、有機溶媒）が規定量を越えて残存している場合、好ましくは、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去される。輸送コストの観点から、溶媒の量は少ない方が良い。但し、溶媒除去コストと輸送コストとを勘案すると、溶媒除去割合は、例えば50~99.9%（更に好ましくは、70%以上）であった。

【0036】

前記燃料電池で回収された前記回収物中に含まれている溶媒（例えば、水または有機溶

50

媒)が規定量を越えて残存している場合、好ましくは、前記溶媒の量が規定量以下となるように除去される。溶媒除去割合は、例えば50~99.9%(更に好ましくは、70%以上)であった。

【0037】

以下、具体的な実施例が挙げられる。但し、本発明は以下の実施例にのみ限定されない。本発明の特長が大きく損なわれない限り、各種の変形例や応用例も本発明に含まれる。

【0038】

[実施例1 水素添加]

図1の装置が用いられた。図1中、1は水素ポンプである。2は流量制御器である。3は容器である。4はポンプである。5はポリシラン金属触媒が充填されたカラムである。カラム5の長さは8cmである。このカラム5には、8gのポリシランパラジウム触媒(Pd/アルミナ(200メッシュ)、Pd:0.1mmol/g)が、充填されている。前記ポリシランパラジウム触媒は、側鎖に、フェニル基とメチル基とを有する。6は容器である。7は、容器3に充填された前記一般式[I]で表された化合物の溶液である。8は、容器6に充填された前記一般式[II]で表された化合物の溶液である。水素添加は25の条件下で行われた。

10

【0039】

2-メチル-1,4-ベンゾキノン(トルキノン)が溶媒(トルエン:エタノール=3:1)に溶解された。前記トルキノンの濃度は0.05mol/lである。水素がポンプ1からカラム5に供給された。流量は5.6ml/分である。トルキノン溶液7が容器3からカラム5に供給された。流量は0.2ml/分である。水素添加反応がカラム5において行われた。2-メチル-1,4-ベンゾキノンが2-メチル-1,4-ヒドロキノンに変わった。

20

【0040】

カラムに流す前の溶液(溶液7)と、カラムに流した後の溶液(溶液8)とが、ガスクロマトグラフによって分析された。その結果が表1に示される。数値は、(2-メチル-1,4-ベンゾキノン)+(2-メチル-1,4-ヒドロキノン)=100%である。以下の表でも同様である。

表1

	2-メチル-1,4-ベンゾキノン	2-メチル-1,4-ヒドロキノン
溶液7	99.5%	0.5%
溶液8	0.5%	99.5%

30

【0041】

トルエン、エタノール、2-メチル-1,4-ベンゾキノン、及び2-メチル-1,4-ヒドロキノン以外の物質の検出は認められなかった。

殆どの2-メチル-1,4-ベンゾキノンが2-メチル-1,4-ヒドロキノンに変わっていることが判った。

溶液8の溶媒が留去された。このものが¹H-NMRで調べられた。その結果、99.5%が2-メチル-1,4-ヒドロキノンであることが判った。

40

【0042】

[実施例2 燃料電池発電実験]

図2の装置が用いられた。図2中、9はアルキルヒドロキノン溶液(2-メチル-1,4-ヒドロキノン水溶液)である。濃度は0.05mol/lである。10はアルキルベンゾキノン溶液(2-メチル-1,4-ベンゾキノン水溶液)である。11は、アルキルヒドロキノン溶液が充填されている容器である。12は、アルキルベンゾキノン溶液が充填されている容器である。13はポンプである。14は燃料電池(株式会社ケミックス製)である。15は電圧測定器である。16は空気の入口である。17は空気の出口である。実験は25の温度下で行われた。

【0043】

空気が入口16から燃料電池14内に供給された。供給量は0.2ml/分であった。

50

この後、2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン水溶液が燃料電池 1 4 内に供給された。供給量は 0 . 2 m l / 分であった。その結果、発電（電圧：0 . 2 5 m V ）が認められた。電圧が観測されなくなるまで排出された溶液を容器 1 1 に戻して供給され発電が続行された。

【 0 0 4 4 】

燃料電池 1 4 に供給前の溶液 9 と、燃料電池 1 4 から排出され電圧が観測されなくなった溶液 1 0 とが、ガスクロマトグラフによって分析された。その結果が表 3 に示される。

表 3

	<u>2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン</u>	<u>2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン</u>
溶液 9	0 . 3 %	9 9 . 7 %
溶液 1 0	9 9 . 5 %	0 . 5 %

10

【 0 0 4 5 】

水、2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン、及び 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン以外の物質の検出は認められなかった。

殆どの 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノンの H が消費され、2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノンに変わっていることが判った。

【 0 0 4 6 】

[実施例 3 水素添加]

実施例 2 の燃料電池で排出された混合（2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン：2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン = 9 9 . 5 : 0 . 5 ）水溶液の濃縮物が用いられ、実施例 1 に準じて行われた。その結果は実施例 1 と同様であった。殆どの 2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノンは 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノンに変わっていることが判った。

20

【 0 0 4 7 】

[実施例 4 燃料電池発電実験]

実施例 2 に準じて行われた。但し、実施例 1 で得られた溶液の溶媒が濃縮されて透明ガラス容器内に保管（2 年間）されていた固体（2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン）の水溶液が用いられた。結果は実施例 3 と同様であった。例えば、発電の電圧は 0 . 2 5 m V であった。水、2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノン、及び 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノン以外の物質の検出は認められなかった。殆どの 2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノンの H が消費され、2 - メチル - 1 , 4 - ベンゾキノンに変わっていることが判った。2 - メチル - 1 , 4 - ヒドロキノンが長期間に亘って保管されていても、燃料電池による発電に問題が無かった。

30

【 0 0 4 8 】

[実施例 5]

ポリシラン白金触媒（Pt / - アルミナ（200 メッシュ）、Pt : 0 . 1 m m o l / g ）がポリシランパラジウム触媒の代わりに用いられ、実施例 1 に準じて行われた。その結果は実施例 1 と同様であった。

【 0 0 4 9 】

[実施例 6]

ポリシランニッケル触媒（Ni / - アルミナ（200 メッシュ）、Ni : 0 . 1 m m o l / g ）がポリシランパラジウム触媒の代わりに用いられ、実施例 1 に準じて行われた。その結果は実施例 1 と同様であった。

40

【 0 0 5 0 】

[実施例 7]

ポリシラン銅触媒（Cu / - アルミナ（200 メッシュ）、Cu : 0 . 1 m m o l / g ）がポリシランパラジウム触媒の代わりに用いられ、実施例 1 に準じて行われた。その結果は実施例 1 と同様であった。

【 0 0 5 1 】

[実施例 8]

ポリシランルテニウム触媒（Ru / - アルミナ（200 メッシュ）、Ru : 0 . 1 m m o l / g ）がポリシランパラジウム触媒の代わりに用いられ、実施例 1 に準じて行われ

50

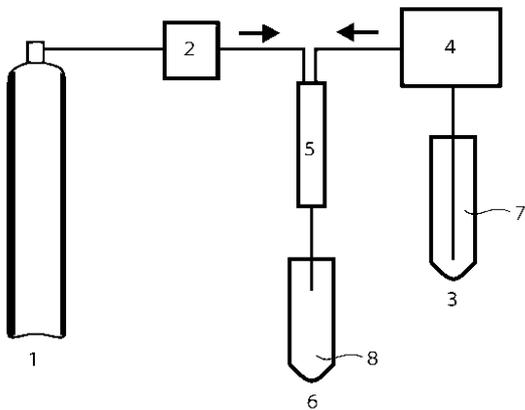
た。その結果は実施例 1 と同様であった。

【符号の説明】

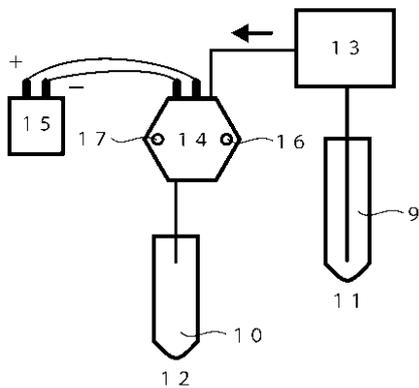
【 0 0 5 2 】

- 1 水素ポンベ
- 2 流量制御器
- 3, 6 容器
- 4 ポンプ
- 5 カラム
- 1 1, 1 2 容器
- 1 3 ポンプ
- 1 4 燃料電池
- 1 5 電圧測定器
- 1 6 空気入口
- 1 7 空気出口

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)	
H 0 1 M	8/06	(2016.01)	H 0 1 M	8/06	Z
C 0 7 B	61/00	(2006.01)	C 0 7 B	61/00	3 0 0

(72)発明者 石川 真人

東京都小金井市東町四丁目26番20号 気相成長株式会社内

(72)発明者 須藤 弘

東京都小金井市東町四丁目26番20号 気相成長株式会社内

(72)発明者 小椋 厚志

東京都国立市西3-8-15

(72)発明者 高田 俊和

茨城県つくば市南中妻370-11

(72)発明者 大下 祥雄

愛知県名古屋千種区富士見台3-36

Fターム(参考) 4H006 AA05 AC11 AC12 AC42 AC44 BA05 BA21 BA23 BA25 BA26
 BA55 BA61 BB11 BB14 BC35 BE20 FC52 FC76 FE13
 4H039 CA60 CB20
 5H127 AA08 AB03 AC15 BA01 BA21 BA57 BB02 BB12 BB36