

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3985151号

(P3985151)

(45) 発行日 平成19年10月3日(2007. 10. 3)

(24) 登録日 平成19年7月20日(2007. 7. 20)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 M 8/06 (2006. 01)

H O 1 M 8/06

S

H O 1 M 8/10 (2006. 01)

H O 1 M 8/10

請求項の数 2 (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願2002-233865 (P2002-233865)	(73) 特許権者	304021440
(22) 出願日	平成14年8月9日(2002. 8. 9)		株式会社ジーエス・ユアサコーポレーション
(65) 公開番号	特開2004-79210 (P2004-79210A)		京都府京都市南区吉祥院西ノ庄猪之馬場町1番地
(43) 公開日	平成16年3月11日(2004. 3. 11)	(72) 発明者	佐野 利夫
審査請求日	平成16年11月10日(2004. 11. 10)		大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号
			株式会社 ユアサ コーポレーション内
		(72) 発明者	石丸 文也
			大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号
			株式会社 ユアサ コーポレーション内
		(72) 発明者	野村 栄一
			大阪府高槻市古曽部町二丁目3番21号
			株式会社 ユアサ コーポレーション内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 液体燃料直接供給形燃料電池システム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質を介して負極と正極とを対設し、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けたセルまたはこのセルが複数個積層されたセルスタックからなる発電ユニットを備え、前記正、負極の電気化学反応によって起電力を得る液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、前記正、負極の電気化学反応によって生成した反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料と酸化剤ガスから気体と液体を分離する構成を設けるとともに、前記反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料と酸化剤ガスから分離された液体成分を回収する液体成分回収手段を設け、かつ前記液体成分回収手段が、液体成分中の、前記正極または前記負極の電気化学反応によって生成される副生成物、前記副生成物の一部がイオン化したイオン副生成物、前記負極または前記正極から溶出した金属イオン、の少なくとも一つを吸着または分解するフィルターを備えていることを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

【請求項2】

プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質を介して負極と正極とを対設し、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けたセルまたはこのセルが複数個積層されたセルスタックからなる発電ユニットを備え、前記正、負極の電気化学反応によって起電力を得る液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、前記電気化学反応によって生成した反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料を含む前記

10

20

発電ユニットからの排出物から気体と液体を分離する構成を設けるとともに、前記反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料を含む前記発電ユニットからの排出物から分離された液体成分を回収する液体成分回収手段を設け、かつ前記液体成分回収手段は、液体成分中の、前記電気化学反応によって生成される副生成物、前記副生成物の一部がイオン化したイオン副生成物、前記負極または前記正極から溶出した金属イオン、の少なくとも一つを吸着または分解するフィルターを備えていることを特徴とする液体燃料直接供給形燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は液体燃料直接供給形燃料電池システムに関するもので、さらに詳しく言えば、液体燃料と酸化剤ガスを直接供給して発電を行うことができる液体燃料直接供給形燃料電池を、分散形電源、移動体用電源、小型携帯用電源に適用するに際しての、その最適な構造に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、環境問題や資源問題への対策がクローズアップされ、その一環として燃料電池の開発が活発に行われている。

【0003】

燃料電池は、電解質の両側に負極と正極とを設け、負極に水素などの還元剤を供給し、正極に空気中の酸素などの酸化剤を供給し、電解質を介した電気化学反応によって発電を行うものであり、その発電効率、エネルギー密度が高いことから、ニッケル-水素電池やリチウムイオン電池などの二次電池に代わる電源として注目されている。特に、還元剤として、メタノールなどの液体燃料を用いる、直接メタノール形燃料電池に代表される液体燃料直接供給形燃料電池は、燃料を改質、ガス化せずに直接発電に利用することができることから、構造がシンプルにでき、容易に小型化、軽量化できるので、種々の移動体用電源、分散形電源、可搬用電源、コンピューター用等のコンシューマ電源として検討されている。

【0004】

このような直接メタノール形燃料電池では、電解質の両側に負極と正極とを対設し、前記負極にメタノール水溶液を供給し、前記正極に空気を供給するとともに、前記セルの電気化学反応によって生成した反応生成物を排出するための流路溝とマニホールドを有するセパレータを介して複数個積層されたセルスタック、または電解質の両側に負極と正極とを対設し、前記負極にメタノール水溶液を供給し、前記正極に空気を供給するとともに、前記セルの電気化学反応によって生成した反応生成物を排出するための流路溝とマニホールドを有するセパレータからなるセルを発電ユニットとしている。そして、このセパレータによって、負極にメタノール水溶液を供給し、正極に空気を供給すると、負極の電気化学反応によって二酸化炭素が反応生成物として生成し、正極の電気化学反応によって水が反応生成物として生成し、負極側では前記二酸化炭素が反応に寄与しなかったメタノール水溶液とともに、正極側では前記水が反応に寄与しなかった空気とともに外部に排出される。

【0005】

また、上記した直接メタノール形燃料電池には、正極に空気を供給するのに、ポンプ等の外部動力を用いるタイプと、正極に空気を大気中から取り入れるための開口を前記セパレータに設け、この開口を通じて大気中の酸素を自然拡散、自然対流によって供給するタイプとが検討されており、後者のものは、前者のものと比較して、出力を得にくいといった短所はあるものの、ポンプを駆動するための電力が不要であることから、発電効率を高くでき、システムをシンプルでコンパクトにできる、ポンプの駆動音のない静かな発電機にできる、といった長所がある。このようなことから、直接メタノール形燃料電池は、コンピューター用等の小型のコンシューマ電源として最適なものとなる可能性がある。

10

20

30

40

50

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

上記した如く、直接メタノール形燃料電池では、負極側から二酸化炭素と反応に寄与しなかったメタノール水溶液が排出され、正極側から水と反応に寄与しなかった空気が排出され、さらに上記電気化学反応によって、たとえばホルムアルデヒドや蟻酸といった副生成物が微量に生成されたり、これらが反応することによって、たとえば蟻酸メチルといった副生成物が微量に生成されることがあり、また前記副生成物の一部が蟻酸イオンといったイオン副生成物として微量に含有されたり、負極または正極から溶出した白金イオン、ルテニウムイオンといった金属イオンが微量に含有されることがあるため、前記二酸化炭素と水や反応に寄与しなかったメタノール水溶液と空気をどのように処理し、前記副生成物、イオン副生成物、金属イオンをどのように処理するかが、直接メタノール形燃料電池の実用化の上で重要であった。従来の直接メタノール形燃料電池では、二酸化炭素と水、反応に寄与しなかったメタノール水溶液と空気は、副生成物、イオン副生成物、金属イオンとともに一括して気液分離槽に導入し、この気液分離槽によって気体成分と液体成分とに分離し、気体成分は大気中に排出する前に副生成物を除去していたが、液体成分は副生成物、イオン副生成物、金属イオンを除去しないで再利用していた。従って、このような副生成物、イオン副生成物、金属イオンを含有したメタノール水溶液が継続的に電気化学反応に使用されることになり、電池特性の低下が促進されるという問題があった。

10

【0007】

【課題を解決するための手段】

20

本発明は上記課題を解決するためになされたもので、液体成分中に混在する副生成物を除去し、電池特性の低下が促進されないようにすることを目的としている。すなわち、その請求項1記載の発明は、プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質を介して負極と正極とを対設し、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けたセルまたはこのセルが複数個積層されたセルスタックからなる発電ユニットを備え、前記正、負極の電気化学反応によって起電力を得る液体燃料直接供給形燃料電池システムにおいて、前記正、負極の電気化学反応によって生成した反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料と酸化剤ガスから気体と液体を分離する構成を設けるとともに、前記反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料と酸化剤ガスから分離された液体成分を回収する液体成分回収手段を設け、かつ前記液体成分回収手段が、液体成分中の、前記正極または前記負極の電気化学反応によって生成される副生成物、前記副生成物の一部がイオン化したイオン副生成物、前記負極または前記正極から溶出した金属イオン、の少なくとも一つを吸着または分解するフィルターを備えていることを特徴とする。

30

【0008】

すなわち、請求項1記載の発明によれば、正、負極の電気化学反応によって生成した反応生成物および前記電気化学反応に寄与しなかった液体燃料と酸化剤ガスから分離された液体成分を液体成分回収手段で回収し、この液体成分回収手段に副生成物、前記副生成物の一部がイオン化したイオン副生成物、負極または正極から溶出した金属イオン、の少なくとも一つをする吸着または分解するフィルターを備えているから、再利用するメタノール水溶液中に、蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルといった副生成物が含有されないようにでき、蟻酸イオンといったイオン副生成物が含有されないようにでき、白金イオンやルテニウムイオンといった金属イオンが含有されないようにできる。

40

【0009】

また、本発明における好ましい形態(1)は、フィルターが副生成物を吸着する吸着材を含有していることを特徴とし、本発明における好ましい形態(2)は、フィルターが副生成物を分解する光化学触媒を含有していることを特徴とし、本発明における好ましい形態(3)は、フィルターがイオン副生成物または金属イオンを吸着するイオン交換樹脂を含有していることを特徴とする。

【0010】

50

すなわち、本発明における好ましい形態（１）によれば、副生成物を吸着材で吸着させることができ、本発明における好ましい形態（２）によれば、副生成物を光化学触媒で分解させることができ、本発明における好ましい形態（３）によれば、イオン副生成物または金属イオンをイオン交換樹脂で吸着させることができるから、蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルといった副生成物、蟻酸イオンといったイオン副生成物、白金イオンやルテニウムイオンといった金属イオンを除去したメタノール水溶液を再利用に供することができる。

【００１１】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を、その実施の形態に基づいて説明する。

10

【００１２】

図１は、本発明の実施の形態に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの例として示した直接メタノール形燃料電池システムの構成図であり、その特徴は、プロトン導電性固体高分子膜からなる電解質１１を介して負極１２と正極１３とを対設したセル１を発電ユニットとし、前記負極１２に、液体燃料としてのメタノール水溶液を、その電気化学反応に適した濃度にして貯蔵する燃料タンク２から供給し、前記正極１３に、酸化剤ガスとしての空気を供給し、前記セル１の電気化学反応によって生成した反応生成物を、前記電気化学反応に寄与しなかったメタノール水溶液と空気を気液分離槽３に導入し、この気液分離槽３で気体と液体に分離し、液体成分としての水とメタノール水溶液とを液体成分回収手段４を介して燃料タンク２に回収されるようにしたことである。前記液体成分中には電気化学反応によって生成した、たとえば蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルのような副生成物、前記副生成物の一部がイオン化した、たとえば蟻酸イオンのようなイオン副生成物、負極または正極から溶出した、たとえば白金イオンやルテニウムイオンのような金属イオンが含有されている。なお、前記気液分離槽３で分離された気体成分としての空気と二酸化炭素とは気体成分回収手段５に回収されるようにしている。

20

【００１３】

前記液体成分回収手段４には、前記副生成物、イオン副生成物、金属イオンの少なくとも一つを吸着または分解するフィルター６が備えられている。また、前記気体成分回収手段５にも、気体成分中の副生成物が吸収または分解するフィルターを備えていてもよい。

【００１４】

30

【実施例】

（実施例１）

図２は、本発明の第１の実施例に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの例として示した直接メタノール形燃料電池システムの構成図を示し、正極１３に供給する空気を図示していないポンプ等によって強制的にセル１に供給し、負極１２の反応生成物と反応に寄与しなかったメタノール水溶液および正極１３の反応生成物と反応に寄与しなかった空気を一括して気液分離槽３に導入し、この気液分離槽３によって、液体成分としての水とメタノール水溶液を分離して液体成分回収手段４に導入し、気体成分としての空気と二酸化炭素を分離して気体成分回収手段５に導入するようにしたものである。

【００１５】

40

前記実施例１の液体成分回収手段４には、負極１２の電気化学反応に寄与しなかったメタノール水溶液と正極１３の電気化学反応によって生成した水とが液体成分として導入され、この液体成分回収手段４に内蔵されたフィルター６によって、前記液体成分中の蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルのような副生成物、前記副生成物の一部がイオン化した蟻酸イオンのようなイオン副生成物、前記負極または正極から溶出した白金イオンやルテニウムイオンのような金属イオン、の少なくとも一つが吸着または分解されて、燃料タンク２に送出されるようにしている。

【００１６】

（実施例２）

図３は、本発明の第２の実施例に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの例として示

50

した直接メタノール形燃料電池システムの構成図を示し、正極 1 3 に供給する空気を、ファンによる自然拡散または自然対流で供給するものである。なお、この第 2 の実施例では、セル 1 の正極側が大気中に開放されているため、セル 1 全体をケースに入れるとともに、負極 1 2 の反応生成物と反応に寄与しなかったメタノール水溶液のみを気液分離槽 3 に導入し、この気液分離槽 3 によって液体成分としてのメタノール水溶液を分離して液体成分回収手段 4 に導入するようにしたものである。

【0017】

前記実施例 2 の液体成分回収手段 4 には、負極 1 2 の電気化学反応に寄与しなかったメタノール水溶液が液体成分として導入され、この液体成分回収手段 4 に内蔵されたフィルター 6 によって、前記液体成分中の蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルのような副生成物、前記副生成物の一部がイオン化した蟻酸イオンのようなイオン副生成物、前記負極または正極から溶出した白金イオンやルテニウムイオンのような金属イオン、の少なくとも一つが吸着または分解されて、燃料タンク 2 に送出されるようにしている。

10

【0018】

前述した実施例 1、2 の液体成分回収手段 4 に内蔵されたフィルター 6 が、蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルといった副生成物を吸着する、活性炭またはゼオライトなどの吸着材を含有したものであると、前記副生成物を吸着することができ、前記フィルター 6 が、蟻酸、ホルムアルデヒド、蟻酸メチルといった副生成物を分解する、酸化チタンなどの光化学触媒を含有したものであると、前記副生成物を水と二酸化炭素に分解することができ、前記フィルター 6 が、蟻酸イオンのようなイオン副生成物や白金イオンまたはルテニウムイオンのような金属イオンを吸着する、スチレン系、アクリル系またはメタクリル酸系などのイオン交換樹脂を含有したものであると、前記イオン副生成物や金属イオンを吸着することができるので、このような副生成物、イオン副生成物、金属イオンが含有されたメタノール水溶液が燃料タンク 2 に送出されるのを防止することができる。

20

【0019】

上記した、吸着材、光化学触媒またはイオン交換樹脂をフィルターに含有させる方法としては、これらをハニカム層に担持させておくのがよいが、光化学触媒をハニカム層に担持させておく場合は、このハニカム層に太陽光が照射されるようにしたり、ハニカム層の近傍にケミカルランプを配置して、その光が照射されるようにする必要がある。

【0020】

また、上記した吸着材、光化学触媒またはイオン交換樹脂はそれぞれを単独で用いてもよいが、適宜組み合わせてもよい。この場合は、それらの相乗効果が期待できる。

30

【0021】

また、上記した実施の形態や実施例は、液体燃料にメタノール水溶液を用いる直接メタノール形燃料電池システムで説明したが、メタノール水溶液以外の液体燃料、たとえばエチルアルコール、ブタノール、ジメチルエーテル等を用いた液体燃料直接供給形燃料電池にも適用することができる。

【0022】

また、上記した実施の形態や実施例は、発電ユニットがセル 1 からなるものについて説明したが、このセル 1 を複数個積層したセルスタックで発電ユニットを構成しても同様に適用することができる。

40

【0023】

なお、上記した実施の形態や実施例は、液体成分回収手段 4 にフィルター 6 を備えたものであるが、気体成分回収手段 5 にも同様のフィルターを備えておき、反応後の空気と反応生成物としての二酸化炭素中に含有される副生成物を吸収または分解するようにしてもよい。

【0024】

また、上記した実施の形態や実施例において例示した吸着剤、光化学触媒、イオン交換樹脂は、これらに限定されるものではなく、同様の機能を有する他の種類のものであってもよいし、これらの形状（たとえば粒子径）も限定されるものではなく、これらをフィルタ

50

ーに含有させる方法も上述した方法に限定されるものではない。

【0025】

【発明の効果】

以上のように、本発明によれば、メタノール水溶液を改質、ガス化することなく発電を行うことができるといった直接メタノール形燃料電池などの液体燃料直接供給形燃料電池を、携帯用電源、コンピューター用電源といった小型コンシューマー用途に適用するに際し、再利用されるメタノール水溶液から、副生成物、イオン副生成物または金属イオンを確実に除去することができるので、上記した用途に適した、電池特性の低下が抑制できるシステムの構成に寄与することができる。

【図面の簡単な説明】

10

【図1】本発明の実施の形態に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの構成図である。

【図2】本発明の第1の実施例に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの構成図である。

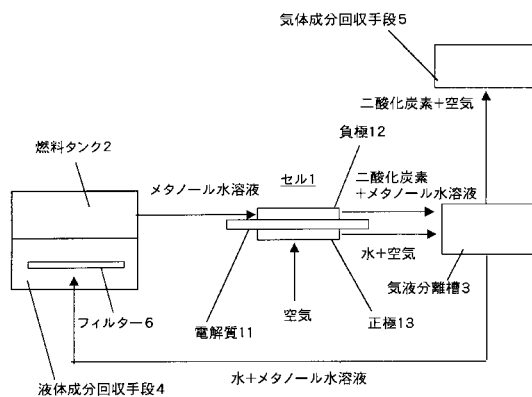
【図3】本発明の第2の実施例に係る液体燃料直接供給形燃料電池システムの構成図である。

【符号の説明】

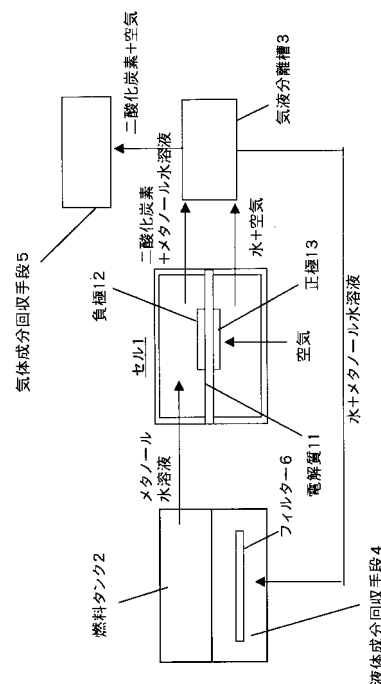
- 1 セル
- 2 燃料タンク
- 3 気液分離槽
- 4 液体成分回収手段
- 5 気体成分回収手段
- 6 フィルター

20

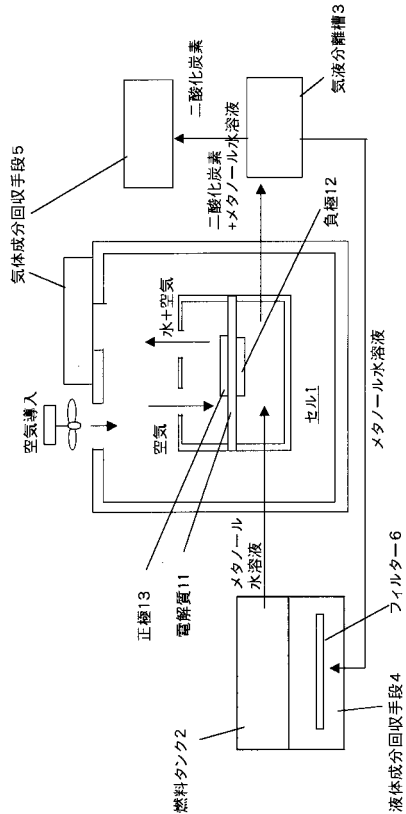
【図1】



【図2】



【図 3】



フロントページの続き

審査官 須田 裕一

(56)参考文献 特開平04-229958 (JP, A)
特表平11-510311 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H01M 8/06