

(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2012-243722

(P2012-243722A)

(43) 公開日 平成24年12月10日(2012.12.10)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
H 0 1 M 8/02 (2006.01)	H 0 1 M 8/02 E	5 H 0 2 6
H 0 1 M 8/10 (2006.01)	H 0 1 M 8/02 L	
	H 0 1 M 8/02 Z	
	H 0 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 28 頁)

(21) 出願番号	特願2011-115874 (P2011-115874)	(71) 出願人	000005049
(22) 出願日	平成23年5月24日 (2011. 5. 24)		シャープ株式会社
			大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号
		(74) 代理人	110001195
			特許業務法人深見特許事務所
		(72) 発明者	竹中 忍
			大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号
			シャープ株式会社内
		(72) 発明者	菰田 睦子
			大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号
			シャープ株式会社内
		(72) 発明者	吉江 智寿
			大阪府大阪市阿倍野区長池町22番22号
			シャープ株式会社内

最終頁に続く

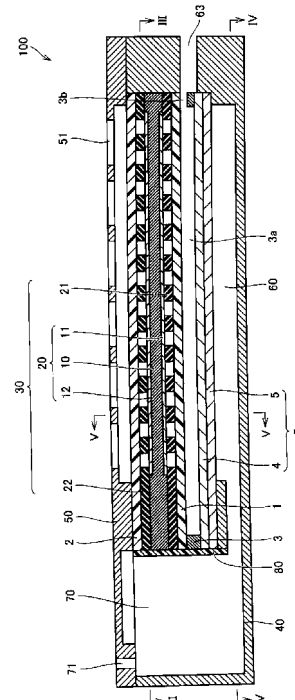
(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 発電特性が向上された燃料電池を提供する。

【解決手段】 アノード極11、電解質膜10およびカソード極12をこの順で有する単位電池30と、アノード極11側が開放された空間からなり、アノード極11側に配置される、液体燃料を収容するかまたは流通させるための液体燃料収容部60と、単位電池30と液体燃料収容部60との間に配置される第1の保湿層1とを備える燃料電池である。カソード極12上に配置される第2の保湿層2をさらに備えることが好ましい。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アノード極、電解質膜およびカソード極をこの順で有する単位電池と、
前記アノード極側が開放された空間からなり、前記アノード極側に配置される、液体燃料を収容するかまたは流通させるための液体燃料収容部と、

前記単位電池と前記液体燃料収容部との間に配置される第 1 の保湿層と、
を備える燃料電池。

【請求項 2】

前記カソード極上に配置される第 2 の保湿層をさらに備える請求項 1 に記載の燃料電池。

10

【請求項 3】

前記単位電池は、前記アノード極上に積層されるアノード集電層と、前記カソード極上に積層されるカソード集電層とをさらに含む請求項 1 または 2 に記載の燃料電池。

【請求項 4】

前記第 1 の保湿層は、前記アノード集電層と接するように前記アノード集電層上に配置される請求項 3 に記載の燃料電池。

【請求項 5】

前記第 2 の保湿層は、前記カソード集電層と接するように前記カソード集電層上に配置される請求項 3 または 4 に記載の燃料電池。

【請求項 6】

前記液体燃料収容部の開口を覆うように前記液体燃料収容部上に配置される、前記液体燃料の気化成分を透過可能な気液分離層と、

前記気液分離層と前記第 1 の保湿層との間に形成された空間からなる気化燃料収容部と、
をさらに備える請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の燃料電池。

20

【請求項 7】

前記気液分離層は、前記液体燃料収容部の開口を覆うように前記液体燃料収容部上に配置され、測定媒体をメタノールとしたときのバブルポイントが 30 kPa 以上である第 1 層と、前記第 1 層における単位電池側表面に積層され、前記液体燃料の気化成分を透過可能な第 2 層とから構成される 2 層構造を有する請求項 6 に記載の燃料電池。

30

【請求項 8】

ダイレクトアルコール型燃料電池である請求項 1 ～ 7 のいずれかの記載の燃料電池。

【請求項 9】

前記液体燃料は、純メタノールまたはメタノール水溶液である請求項 8 に記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池に関する。

【背景技術】

40

【0002】

燃料電池は、情報化社会を支える携帯用電子機器の新規電源として実用化の期待が高まっている。燃料電池は、使用する電解質材料や燃料の分類から、リン酸型、熔融炭酸塩型、固体電解質型、固体高分子型、ダイレクトアルコール型等に分類される。特に、電解質材料に固体高分子であるイオン交換膜を用いる固体高分子型燃料電池およびダイレクトアルコール型燃料電池は、常温で高い発電効率を得られることから、携帯用電子機器への応用を目的とした小型燃料電池としての実用化が検討されている。

【0003】

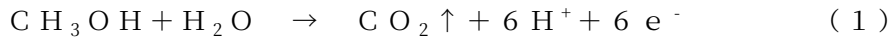
燃料としてアルコールまたはアルコール水溶液を使用するダイレクトアルコール型燃料電池は、燃料がガスである場合と比較して、燃料貯蔵室を比較的簡易に設計できるなどの

50

理由から、燃料電池の構造の簡略化、省スペース化が可能であり、携帯用電子機器への応用を目的とした小型燃料電池としての期待が特に高い。

【0004】

電解質膜としてカチオン交換膜（プロトン伝導膜）を使用するダイレクトアルコール型燃料電池においては、アノード極に燃料（アルコールまたはアルコール水溶液）を供給すると、燃料が酸化されて、二酸化炭素等のガスおよびプロトンが生じる。たとえば、アルコールとしてメタノールを用いた場合では、



の酸化反応により、副生ガスとして二酸化炭素がアノード極側で発生する。

【0005】

アノード極側で発生したプロトンは、電解質膜を介してカソード極側に伝達される。そして、当該プロトンと、カソード極に供給される酸化剤（たとえば空気）とが、



の還元反応を起こし、水が生成する。このときに電子が外部の電子機器（負荷）を通過してアノード極からカソード極に移動し、電力が取り出される。

【0006】

ダイレクトアルコール型燃料電池のような、液状の燃料（以下、液体燃料と称する。）を使用する燃料電池には、液体燃料をそのままアノード極に供給する液体供給方式と、液体燃料の気化成分をアノード極に供給する気化供給方式とがある。たとえば特許文献1には、液体燃料収容室とアノード極との間に、気化した燃料（以下、気化燃料と称する。）を透過させる気液分離膜を配し、気液分離膜とアノード極との間に気化燃料供給室を形成した気化供給方式の燃料電池が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】国際公開第2008/023633号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

携帯用電子機器などへの応用を目的とした小型燃料電池の実現のために、燃料電池にはさらなる発電特性の向上が求められている。そこで本発明の目的は、ダイレクトアルコール型燃料電池などのような、発電に伴いカソード極にて水が生じる燃料電池において、発電特性が向上された燃料電池を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明者らは、鋭意研究の結果、アノード極上に保湿層を配置することにより、カソード極で発生し〔上記式（2）参照〕、電解質膜を介してアノード極に戻された水を単位電池外に蒸散させることなくアノード極内に良好に保持することができ、これにより当該水がアノード極での反応〔上記式（1）参照〕に有効に利用される結果、高い発電特性が安定して得られることを見出した。

【0010】

すなわち本発明は、アノード極、電解質膜およびカソード極をこの順で有する単位電池と、アノード極側が開放された空間からなり、アノード極側に配置される、液体燃料を収容するかまたは流通させるための液体燃料収容部と、単位電池と液体燃料収容部との間に配置される第1の保湿層とを備える燃料電池を提供する。

【0011】

本発明の燃料電池は、カソード極上に配置される第2の保湿層をさらに備えることが好ましい。

【0012】

単位電池は、アノード極上に積層されるアノード集電層と、カソード極上に積層される

10

20

30

40

50

カソード集電層とをさらに含むことができる。この場合、第１の保湿層は、アノード集電層と接するようにアノード集電層上に配置されることが好ましい。また、第２の保湿層も同様に、カソード集電層と接するようにカソード集電層上に配置されることが好ましい。

【００１３】

本発明の燃料電池は、液体燃料収容部の開口を覆うように液体燃料収容部上に配置される、液体燃料の気化成分を透過可能な気液分離層と、気液分離層と第１の保湿層との間に形成された空間からなる気化燃料収容部とをさらに備えることができる。気液分離層は、液体燃料収容部の開口を覆うように液体燃料収容部上に配置され、測定媒体をメタノールとしたときのバブルポイントが３０ｋＰａ以上である第１層と、第１層における単位電池側表面に積層され、液体燃料の気化成分を透過可能な第２層とから構成される２層構造を有することが好ましい。

10

【００１４】

本発明の燃料電池は、好適にはダイレクトアルコール型燃料電池である。液体燃料としては、純メタノールまたはメタノール水溶液を好ましく用いることができる。

【発明の効果】

【００１５】

本発明によれば、アノード極側に第１の保湿層を設けたことにより、カソード極で発生し、電解質膜を介してアノード極に戻された水を、アノード極側から単位電池外に蒸散させることなくアノード極での反応に有効利用できるため、高い発電特性を安定して発揮する燃料電池を提供することができる。本発明の燃料電池は、携帯電子機器への応用を目的とした小型燃料電池、とりわけ携帯電子機器搭載型の小型燃料電池として好適である。

20

【図面の簡単な説明】

【００１６】

【図１】本発明の燃料電池の一例を示す概略断面図である。

【図２】図１に示される燃料電池の概略上面図である。

【図３】図１に示されるⅠⅠⅠ－ⅠⅠⅠ線における概略断面図である。

【図４】図１に示されるⅠⅤ－ⅠⅤ線における概略断面図である。

【図５】図１に示されるⅤ－Ⅴ線における概略断面図である。

【図６】図１に示される燃料電池で用いられている気化燃料板を示す概略上面図および概略断面図である。

30

【図７】気化燃料板の他の例を示す概略上面図および概略断面図である。

【図８】本発明の燃料電池の他の一例を示す概略断面図である。

【図９】図８に示される燃料電池が備える第３層を示す概略上面図である。

【図１０】液体燃料収容部の他の一例を示す概略断面図である。

【図１１】液体燃料収容部の他の一例を示す概略断面図である。

【図１２】本発明の燃料電池の他の一例を示す概略断面図である。

【図１３】本発明の燃料電池の他の一例を示す概略断面図である。

【図１４】実施例１で用いた箱筐体を示す概略上面図である。

【図１５】実施例１および比較例１で作製した燃料電池のⅠ－Ⅴ測定結果を示す図である。

40

【発明を実施するための形態】

【００１７】

以下、本発明の燃料電池を実施の形態を示して詳細に説明する。

<第１の実施形態>

図１は本実施形態の燃料電池を示す概略断面図であり、図２は当該燃料電池の概略上面図である。また、図１に示されるⅠⅠⅠ－ⅠⅠⅠ線、ⅠⅤ－ⅠⅤ線およびⅤ－Ⅴ線における断面図をそれぞれ図３～図５に示している。これらの図面に示される本実施形態の燃料電池１００は、アノード極１１、電解質膜１０およびカソード極１２をこの順で含む膜電極複合体２０と、アノード極１１上に積層され、これに電氣的に接続されたアノード集電層２１と、カソード極１２上に積層され、これに電氣的に接続されたカソード集電層２２

50

とを備える単位電池 30；アノード極 11 の下方に配置され、アノード極 11 側が開放された空間からなる液体燃料収容部 60；単位電池 30 と液体燃料収容部 60 との間であって、アノード集電層 21 に接するようにアノード集電層 21 上に積層される第 1 の保湿層 1；カソード集電層 22 に接するようにカソード集電層 22 上に積層される第 2 の保湿層 2；液体燃料収容部 60 の開口（アノード極側への開放面）を覆うように液体燃料収容部 60 上に配置される気液分離層 7；気液分離層 7 と第 1 の保湿層 1 との間に形成される空間からなる気化燃料収容部 3a；および、液体燃料（図示せず）を貯蔵するための燃料貯蔵部 70 から基本的に構成されている。

【0018】

本実施形態の燃料電池 100 において気化燃料収容部 3a は、第 1 の保湿層 1 と気液分離層 7 との間に、気化燃料板 3 を介在させることにより形成されている。気化燃料板 3 は、厚み方向に貫通する貫通口である気化燃料収容部 3a、および、気化燃料収容部 3a と気化燃料板 3 外部とを連通する連通経路 3b を有している。

【0019】

気液分離層 7 は、液体燃料収容部 60 の開口を覆うように液体燃料収容部 60 上に配置される第 1 層 5 と、第 1 層 5 における単位電池 30 側表面に積層され、液体燃料の気化成分を透過可能な第 2 層 4 との 2 層構造を有する。

【0020】

液体燃料を流通させるための液体燃料収容部 60 は、これを形成する凹部（溝）を有する箱筐体 40 と、液体燃料収容部 60 の開口を覆うように積層される気液分離層 7 とによって構成されている。箱筐体 40 は、液体燃料収容部 60 を構成する部位とともに、燃料貯蔵部 70 の底壁および側壁を構成する部位を一体として有している。液体燃料収容部 60 と燃料貯蔵部 70 とは流路により接続されている。

【0021】

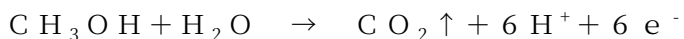
本実施形態の燃料電池 100 は、箱筐体 40 とともに、第 2 の保湿層 2 上に積層され、複数の開口 51 を有する蓋筐体 50 を備えている。蓋筐体 50 は、第 2 の保湿層 2 上に積層される部位とともに、燃料貯蔵部 70 の上壁（天井壁）を構成する部位を一体として有しており、箱筐体 40、蓋筐体 50 および、単位電池 30 などの側面によって燃料貯蔵部 70 が形成されている。図 1 に示されるように、単位電池 30 などの燃料貯蔵部側端面には、燃料貯蔵部 70 内に貯蔵された液体燃料が侵入しないよう、エポキシ系硬化性樹脂組成物の硬化物層などからなる封止層 80 が形成されている。本実施形態の燃料電池 100 において、燃料貯蔵部 70 は、単位電池 30 およびその下方に配置された液体燃料収容部 60 の側方に配置されている。

【0022】

箱筐体 40 は、気化燃料板 3 の連通経路 3b に接続された第 1 の開孔 63 を備えている。また、燃料貯蔵部 70 は、その内部空間と燃料電池 100 外部とを連通する第 2 の開孔 71 を備えている。この第 2 の開孔 71 は、蓋筐体 50 に設けられた貫通孔である。

【0023】

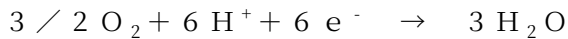
本実施形態の燃料電池 100 は、次のような動作により発電を行なう。流路を通して燃料貯蔵部 70 から液体燃料収容部 60 内に流通し、気液分離層 7 を濡らした液体燃料は、気液分離層 7 により気液分離され、液体燃料の気化成分（気化燃料）のみが気化燃料収容部 3a 側へ透過する。当該気化燃料は、第 1 の保湿層 1、ついでアノード集電層 21 の開口を通してアノード極 11 に供給される。そして、液体燃料としてメタノール水溶液を例に挙げると、アノード極 11 に供給されたガス状態のメタノール水溶液は、



の式で表される酸化反応を起こし消費される。気化燃料は、燃料電池 100 の発電電流量に応じて消費されていくこととなるが、これを補うように、気液分離層 7 から液体燃料が随時蒸発を続けるため、アノード極 11 近傍における気化燃料の蒸気圧は略一定に保たれる。

【0024】

一方、カソード極 1 2 においては、蓋筐体 5 0 の開口 5 1、第 2 の保湿層 2、ついでカソード集電層 2 2 の開口を通して到達した酸化剤（たとえば空気）と、電解質膜 1 0 を介してアノード極 1 1 からカソード極 1 2 に伝達されたプロトンとが、



の式で表される還元反応を起こす。以上の酸化還元反応により、電子が、アノード極 1 1 →アノード集電層 2 1 →外部の電子機器（負荷）→カソード集電層 2 2 →カソード極 1 2 のルートで移動し、外部の電子機器に対して電力供給がなされる。

【0025】

液体燃料収容部 6 0 と単位電池 3 0 との間に配置される、気液分離層 7 および気化燃料板 3 は、アノード極 1 1 への燃料供給を均一に、かつ適切量に制御された状態で行なうことを可能にする。すなわち、気液分離層 7 内および気化燃料板 3 の気化燃料収容部 3 a を通過することにより、燃料は、その量または濃度が適切な範囲に調整されるとともに、その量または濃度の均一化が促進される。これにより、燃料のクロスオーバーを効果的に抑制でき、発電部に温度ムラが生じにくく、安定した発電状態を維持することができる。

【0026】

次に、燃料電池 1 0 0 を構成する各部材等について詳細に説明する。

〔第 1 の保湿層〕

第 1 の保湿層 1 は、単位電池 3 0 と液体燃料収容部 6 0（本実施形態のように、気化燃料収容部 3 a が設けられる場合には、気化燃料収容部 3 a）との間に配置される、アノード極 1 1 内の水分が、アノード極 1 1 側から単位電池 3 0 外に（たとえば気化燃料収容部 3 a に）蒸散することを防止し、アノード極 1 1 内に保持させるための層である。第 1 の保湿層 1 を備える本実施形態の燃料電池 1 0 0 によれば、カソード極 1 2 で発生し、電解質膜 1 0 を介してアノード極 1 1 に到達した水を単位電池 3 0 外に蒸散させることなくアノード極 1 1 内に良好に保持することができる。これにより当該水がアノード極 1 1 での反応に有効に利用されるため、アノード極 1 1 での反応効率が向上し、高い発電特性を安定して発揮することができる。とりわけ、カソード極 1 2 側にも第 2 の保湿層 2 を設けることにより、当該効果をより効果的に得ることができる。

【0027】

また、アノード極 1 1 での反応効率が向上することに伴って、高濃度の燃料（高濃度とは、たとえば燃料としてメタノール水溶液を用いる場合、メタノール濃度が高いことを意味する。）を使用しても燃料のクロスオーバーが生じ難いという利点も有する。高濃度燃料が使用可能になることにより、液体燃料収容部 6 0 および燃料貯蔵部 7 0 の容量の低減、ひいては燃料電池のさらなる小型化が可能になる。

【0028】

さらに、第 1 の保湿層 1 および後述する第 2 の保湿層 2 の設置は、電解質膜 1 0 の乾燥、ならびにこれに伴うセル抵抗の増大および発電特性の低下を防止するうえでも極めて有効である。

【0029】

第 1 の保湿層 1 は、気化燃料などを透過できるよう気体透過性であり、水に対して不溶性であって、かつ保湿性（水を蒸散させない性質）を有する材料から構成される。具体的には、第 1 の保湿層 1 は、たとえば、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等のフッ素系樹脂；アクリル系樹脂；ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系樹脂；ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；ポリウレタン系樹脂；ポリアミド系樹脂；ポリアセタール系樹脂；ポリカーボネート系樹脂；ポリ塩化ビニル等の塩素系樹脂；ポリエーテル系樹脂；ポリフェニレン系樹脂；撥水化处理されたシリコン樹脂などからなる多孔性膜（多孔質層）であることができる。第 1 の保湿層 1 は、上記高分子からなる発泡体、繊維束、繊維、不織繊維、あるいはこれらの組み合わせなどであることができる。

【0030】

第 1 の保湿層 1 は、気化燃料および触媒層で生成する副生ガス（CO₂ガス等）などを

透過できるような気体透過性であり、かつ保湿性（水を蒸散させない性質）を有していることが望まれることから、第１の保湿層１の気孔率は、５０％以上９０％以下であることが好ましく、６０％以上８０％以下であることがより好ましい。第１の保湿層１の気孔率が９０％を超える場合、カソード極１２で発生し、電解質膜１０を介してアノード極１１に到達した水を単位電池３０内に保持することが困難になるため、高い発電特性を安定して発揮することができないことがある。一方、第１の保湿層１の気孔率が５０％未満である場合、気化燃料および触媒層で生成する副生ガス（ＣＯ_２ガス等）などの拡散が阻害され、アノード極１１における発電特性が低下しやすい。保湿層の気孔率は、保湿層の容積と重量を測定し、保湿層の比重を求め、これと素材の比重より、下記式：

$$\text{気孔率（％）} = \left[1 - \left(\text{保湿層の比重} / \text{素材比重} \right) \right] \times 100$$

10

により算出することができる。

【００３１】

第１の保湿層１の厚みは特に制限されないが、上記機能を十分に発現させるために、２０μm以上であることが好ましく、５０μm以上であることがより好ましい。また、燃料電池の薄型化の観点からは、第１の保湿層１の厚みは、５００μm以下であることが好ましく、３００μm以下であることがより好ましい。

【００３２】

第１の保湿層１は、それ自身が高い吸水性を有して、一旦吸収した液状の水を取り込んで外部に放出しないような性質を有しないことが望まれることから、撥水性を有することが好ましい。このような観点から、第１の保湿層１は、上記の中でも、ポリフッ化ビニリデン（ＰＶＤＦ）、ポリテトラフルオロエチレン（ＰＴＦＥ）等のフッ素系樹脂；撥水化処理されたシリコン樹脂などからなる多孔性膜（多孔質層）であることが好ましい。具体的には、ポリテトラフルオロエチレンからなる多孔質フィルムである日東電工（株）製 テミッシュ〔ＴＥＭＩＳＨ（登録商標）〕の「ＮＴＦ２０２６Ａ－Ｎ０６」や「ＮＴＦ２１２２Ａ－Ｓ０６」が例示できる。

20

【００３３】

第１の保湿層１は、アノード極１１上にアノード集電層２１を配置し、このアノード集電層２１に接するようにアノード集電層２１上に積層されることが好ましい。これにより、アノード極１１内の水分が単位電池３０外に蒸散されることをより効果的に防止することができる。

30

【００３４】

〔第２の保湿層〕

第２の保湿層２は、カソード極１２上、好ましくはカソード集電層２２上に配置される、カソード極１２で発生した水が、カソード極１２側から単位電池３０外に蒸散することを防止するための層である。第２の保湿層２を設けることにより、カソード極１２で生じた水を単位電池３０外部に蒸散させることなく、効率的に電解質膜１０を介してアノード極１１に戻すことができるため、アノード極１１での反応への当該水の有効利用をさらに促進できる。したがって、第１の保湿層１と第２の保湿層２とを併用することは、発電特性の向上により有利である。

【００３５】

40

第２の保湿層２は、第１の保湿層１と同様、燃料電池外部からの酸化剤（空気など）を透過できるような気体透過性であり、水に対して不溶性であって、かつ保湿性（水を蒸散させない性質）を有し、好ましくはさらに撥水性を有する材料から構成される。第２の保湿層２の具体例も第１の保湿層１と同様である。

【００３６】

第２の保湿層２は、燃料電池外部からの酸化剤（空気など）を透過できるような気体透過性であり、かつ保湿性（水を蒸散させない性質）を有していることが望まれることから、第２の保湿層２の気孔率は、３０％以上９０％以下であることが好ましく、５０％以上８０％以下であることがより好ましい。第２の保湿層２の気孔率が９０％を超える場合、カソード極１２で発生した水を単位電池３０内に保持することが困難になるため、高い発電

50

特性を安定して発揮することができないことがある。一方、第2の保湿層2の気孔率が30%未満である場合、燃料電池外部からの酸化剤（空気など）の拡散が阻害され、カソード極12における発電特性が低下しやすい。

【0037】

第2の保湿層2の厚みは特に制限されないが、上記機能を十分に発現させるために、20 μm 以上であることが好ましく、50 μm 以上であることがより好ましい。また、燃料電池の薄型化の観点からは、第2の保湿層2の厚みは、500 μm 以下であることが好ましく、300 μm 以下であることがより好ましい。

【0038】

〔電解質膜〕

膜電極複合体20を構成する電解質膜10は、アノード極11からカソード極12へプロトンを伝達する機能と、アノード極11とカソード極12との電氣的絶縁性を保ち、短絡を防止する機能を有する。電解質膜の材質は、プロトン伝導性を有し、かつ電氣的絶縁性を有する材質であれば特に限定されず、高分子膜、無機膜またはコンポジット膜を用いることができる。高分子膜としては、たとえば、パーフルオロスルホン酸系電解質膜である、ナフィオン（登録商標、デュポン社製）、アシプレックス（登録商標、旭化成社製）、フレミオン（登録商標、旭硝子社製）などが挙げられる。また、スチレン系グラフト重合体、トリフルオロスチレン誘導体共重合体、スルホン化ポリアリーレンエーテル、スルホン化ポリエーテルエーテルケトン、スルホン化ポリイミド、スルホン化ポリベンゾイミダゾール、ホスホン化ポリベンゾイミダゾール、スルホン化ポリフォスファゼンなどの炭化水素系電解質膜などを用いることもできる。

【0039】

無機膜としては、たとえばリン酸ガラス、硫酸水素セシウム、ポリタングストリン酸、ポリリン酸アンモニウムなどからなる膜が挙げられる。コンポジット膜としては、タングステン酸、硫酸水素セシウム、ポリタングストリン酸等の無機物とポリイミド、ポリエーテルエーテルケトン、パーフルオロスルホン酸等の有機物とのコンポジット膜などが挙げられる。

【0040】

電解質膜10の厚みはたとえば1～200 μm である。また、電解質膜10のEW値（プロトン官能基1モルあたりの乾燥重量）は、800～1100程度であることが好ましい。EW値が小さいほど、プロトン移動に伴う電解質膜の抵抗が小さくなり高い出力を得ることができる。

【0041】

〔アノード極およびカソード極〕

電解質膜10の一方の表面に積層されるアノード極11および他方の表面に積層されるカソード極12にはそれぞれ、少なくとも触媒と電解質とを含有する多孔質層からなる触媒層が設けられる。アノード極11において触媒（アノード触媒）は、燃料からプロトンと電子とを生成する反応を触媒し、電解質は、生成したプロトンを電解質膜10へ伝導する機能を有する。カソード極12において触媒は、電解質を伝導してきたプロトンと酸化剤（空気など）から水を生成する反応を触媒する。

【0042】

アノード極11およびカソード極12の触媒は、カーボンやチタン等の導電体の表面に担持されたものでもよく、なかでも、水酸基やカルボキシル基等の親水性官能基を有するカーボンやチタン等の導電体の表面に担持されていることが好ましい。これにより、アノード極11およびカソード極12の保水性を向上させることができる。

【0043】

アノード極11およびカソード極12の電解質は、電解質膜10のEW値よりも小さなEW値を有する材料からなることが好ましく、具体的には、電解質膜10と同質材料であるが、EW値が400～800である電解質材料が好ましい。このような電解質材料を用いることによっても、アノード極11およびカソード極12の保水性を向上させることが

できる。

【0044】

アノード極11およびカソード極12の保水性の向上により、プロトン移動に伴う電解質膜10の抵抗や、アノード極11およびカソード極12における電位分布を改善することができる。また、EW値の低い電解質は同時に燃料の透過性も高いことから、EW値の低い電解質を用いることにより、アノード極11の触媒層に均一に気化燃料を供給することができる。

【0045】

アノード極11およびカソード極12はそれぞれ、触媒層上に積層されるアノード導電性多孔質層（アノードガス拡散層）、カソード導電性多孔質層（カソードガス拡散層）を備えていてもよい。これらの導電性多孔質層は、アノード極11、カソード極12に供給されるガス（気化燃料または酸化剤）を面内において拡散させる機能を有するとともに、触媒層と電子の授受を行なう機能を有する。アノード導電性多孔質層およびカソード導電性多孔質層としては、比抵抗が小さく、電圧の低下が抑制されることから、カーボン材料；導電性高分子；Au、Pt、Pd等の貴金属；Ti、Ta、W、Nb、Ni、Al、Cu、Ag、Zn等の遷移金属；これらの金属の窒化物または炭化物等；ならびに、ステンレスに代表されるこれらの金属を含有する合金などからなる多孔質材料を用いることが好ましい。Cu、Ag、Zn等の、酸性雰囲気下で耐腐食性に乏しい金属を用いる場合には、Au、Pt、Pdなどの耐腐食性を有する貴金属、導電性高分子、導電性窒化物、導電性炭化物、導電性酸化物等により表面処理（皮膜形成）を行なってもよい。より具体的には、アノード導電性多孔質層およびカソード導電性多孔質層として、たとえば、上記貴金属、遷移金属または合金からなる発泡金属、金属織物および金属焼結体；ならびにカーボンペーパー、カーボンクロス、カーボン粒子を含有するエポキシ樹脂膜などを好適に用いることができる。

【0046】

〔アノード集電層およびカソード集電層〕

アノード集電層21、カソード集電層22はそれぞれ、アノード極11上、カソード極12上に積層され、膜電極複合体20とともに単位電池30を構成する。アノード集電層21およびカソード集電層22はそれぞれ、アノード極11、カソード極12における電子を集電する機能と、電気的配線を行なう機能とを有する。集電層の材質は、比抵抗が小さく、面方向に電流を取り出しても電圧の低下が抑制されることから、金属であることが好ましく、なかでも、電子伝導性を有し、酸性雰囲気下で耐腐食性を有する金属であることがより好ましい。このような金属としては、Au、Pt、Pd等の貴金属；Ti、Ta、W、Nb、Ni、Al、Cu、Ag、Zn等の遷移金属；およびこれらの金属の窒化物または炭化物等；ならびに、ステンレスに代表されるこれらの金属を含有する合金などが挙げられる。Cu、Ag、Zn等の、酸性雰囲気下で耐腐食性に乏しい金属を用いる場合には、Au、Pt、Pdなどの耐腐食性を有する貴金属、導電性高分子、導電性窒化物、導電性炭化物、導電性酸化物等により表面処理（皮膜形成）を行なってもよい。なお、アノード導電性多孔質層およびカソード導電性多孔質層が、たとえば金属等からなり、導電性が比較的高い場合には、アノード集電層およびカソード集電層は省略されてもよい。

【0047】

より具体的には、アノード集電層21は、気化燃料をアノード極11へ誘導するための厚み方向に貫通する貫通孔（開口）を複数備える、上記金属材料などからなるメッシュ形状またはパンチングメタル形状を有する平板であることができる。この貫通孔は、アノード極11の触媒層で生成する副生ガス（CO₂ガス等）を気化燃料収容部3a側へ誘導するための経路としても機能する。同様に、カソード集電層22は、酸化剤（たとえば燃料電池外部の空気）をカソード極12の触媒層に供給するための厚み方向に貫通する貫通孔（開口）を複数備える、上記金属材料などからなるメッシュ形状またはパンチングメタル形状を有する平板であることができる。

【0048】

10

20

30

40

50

〔気化燃料板〕

図 6 (a) は図 1 に示される燃料電池 100 で用いられている気化燃料板 3 を示す概略上面図であり、図 6 (b) は図 6 (a) に示される B-B' 線における概略断面図である。気化燃料板 3 は、第 1 の保湿層 1 と気液分離層 7 との間に気化燃料を収容するための空間（すなわち、気化燃料収容部 3 a）を形成するための部材である。気化燃料板 3 は、第 1 の保湿層 1 に接するように第 1 の保湿層 1 上に配置されている。気化燃料板 3 は、厚み方向に貫通する貫通口である気化燃料収容部 3 a、および、気化燃料収容部 3 a と気化燃料板 3 外部とを連通する連通経路 3 b を有する。連通経路 3 b は、アノード極 11 で生成した副生ガス（ CO_2 ガス等）を燃料電池外部に排出させるための経路である。

【0049】

図 6 に示される気化燃料板 3 において連通経路 3 b は、気化燃料板 3 の周縁部に設けられ、気化燃料収容部 3 a から該周縁部の端面まで延びる溝（凹部）からなる。この周縁部は、4 つの周縁部のうち、燃料貯蔵部 70 から最も離れた周縁部である（図 1 参照）。ただし、連通経路の位置はこの位置に限定されるものではなく、他の周縁部に形成してもよい。

【0050】

液体燃料供給部 60 上に気液分離層 7 を介して気化燃料収容部 3 a を設けることにより、アノード極 11 に供給される気化燃料濃度のアノード極面内における均一化および気化燃料量の最適化が促進される。ここで本実施形態においては、アノード集電層 21 と気化燃料収容部 3 a との間に第 1 の保湿層 1 を介在させているため、気化燃料収容部 3 a のような空間をアノード極 11 上に設けても、アノード極 11 内の水分が気化燃料収容部 3 a へ蒸散されてしまうことがない。

【0051】

気化燃料収容部 3 a を設けることは以下の点でも有利である。

(i) 気化燃料収容部 3 a 内に存在する空気層により、単位電池の発電部（膜電極複合体）と液体燃料収容部 60 との間の断熱を図ることができる。これにより、液体燃料収容部 60 の温度が過度に上昇することによるクロスオーバーを抑制できる。このことは、電池内部温度の暴走および内圧上昇の抑制に寄与する。

【0052】

(i i) アノード極 11 で生成した CO_2 ガス等の副生ガスは、発電により生じた熱を伴って気化燃料収容部 3 a 内に到達し、続いて連通経路 3 b（図 1 に示される実施形態ではさらに第 1 の開孔 63）を通して、燃料電池外部に排出される。これにより、燃料電池内部に蓄積される熱量を大幅に低減することができるため、液体燃料収容部 60 を含めて燃料電池全体としての温度上昇を抑制することができる。このこともまた、電池内部温度の暴走および内圧上昇の抑制に寄与する。特に、気化燃料板 3 に連通経路 3 b（副生ガスの排出口）を設けていることにより、液体燃料収容部 60 への熱の伝達が起こりにくく、したがって液体燃料収容部 60 の過度の温度上昇ならびに、これに伴うクロスオーバーおよび温度暴走がより生じにくい。

【0053】

(i i i) 連通経路 3 b より副生ガスを良好に排出することができるため、副生ガスの排出不良による燃料供給阻害を抑制することができ、アノード極 11 への燃料供給を良好に行なうことができる。これにより、安定した発電特性を得ることができる。また、連通経路 3 b より副生ガスを良好に排出することができるため、副生ガスの液体燃料収容部 60 内への侵入を抑制することができる。これにより、アノード極 11 に対して、十分な量の気化燃料を安定して供給することができるようになるため、燃料電池の出力安定性を向上させることができる。

【0054】

気化燃料板 3 の厚みは、たとえば、100～1000 μm 程度とすることができ、100～300 μm 程度まで薄くした場合であっても、上記のような効果を十分に得ることができる。

10

20

30

40

50

【0055】

気化燃料板3が有する貫通口（気化燃料収容部3a）は、発電部と液体燃料収容部60との間の断熱性の観点から、図6に示されるように、気化燃料板3の面積に対する開口率をできるだけ大きくすることが好ましく、したがって気化燃料板3はできるだけ大きな貫通口を有する枠形状（口の字状）を有することが好ましい。

【0056】

貫通口の開口率、すなわち、気化燃料板3の面積に対する貫通口の開口面積（後述するように、気化燃料板3は2以上の貫通口を有していてもよく、その場合にはそれらの開口面積の合計）の割合は、好ましくは50%以上、より好ましくは60%以上である。貫通口の開口率を大きくすることは、気化燃料収容部3aの、アノード極11に供給される燃料濃度を均一化する機能を高める上でも有利であり、アノード極11への十分な燃料供給を確保する上でも有利である。なお、貫通口の開口率は、通常、90%以下である。

【0057】

連通経路3bは、気化燃料板3の周縁部に設けられる溝（凹部）に限定されるものではなく、厚み方向に貫通する貫通穴であってもよいが、強度の観点から、溝（凹部）からなることが好ましい。連通経路3bが溝（凹部）からなる場合において、連通経路3bの深さは、好ましくは50 μ m以上である。50 μ m以上の深さにすることで、隣接する部材と気化燃料板3との接合を、熱圧着シートを用いたホットプレス（熱圧着）によって行なう場合であっても、熱圧着シートによる連通経路3bの閉塞を防止することができる。また、気化燃料板3の強度の観点から、連通経路3bの深さは気化燃料板3の厚みの75%程度までとすることが好ましい。

【0058】

図7（a）は気化燃料板の他の例を示す概略上面図であり、図7（b）は図7（a）に示されるC-C'線における概略断面図である。図7に示されるように、気化燃料板は2以上の貫通口を有していてもよい。図7の例において気化燃料板3'は、縦横2列に配列された合計4つの貫通口3a'を有する。これは、大きな貫通口の縦方向および横方向に梁を設け、4つに分割したものである。このような複数の貫通口を有する（梁を設けた）気化燃料板は、気化燃料板の面内方向の剛性が向上されるため、衝撃等に対する強度に優れる燃料電池が得られる点において有利である。また、図6に示されるような梁を設けない構造と比較して、気化燃料板の上下に配置される部材の熱などに起因する膨張等による貫通口の閉塞がより生じにくい点においても有利である。

【0059】

気化燃料板が2以上の貫通口を有する場合、気化燃料板周縁部に設けられる連通経路は、貫通口ごとに、貫通口の数と同じ数だけ設けてもよいし、貫通口の数より少ない、もしくは多い数の連通経路を設けることもできる。図7の例においては、4つの貫通口3a'に対して2つの連通経路3b'が、燃料貯蔵部70から最も離れた周縁部のみに設けられている。このように、貫通口ごとに連通経路を設けなくてもよいが、その場合には、図7に示されるように、連通経路3b'が設けられていない貫通口（図7（a）における下2つの貫通口3a'）は、接続経路3c'によって、連通経路3b'が設けられた貫通口（図7（b）における上2つの貫通口3a'）に空間的に接続される。接続経路3c'は、連通経路3b'と同様、貫通口間の梁に設けられた溝（凹部）であることができる（図7（b）参照）。接続経路3c'を設けることにより、連通経路3b'が設けられていない貫通口内に入った副生ガスを、連通経路3b'を通して外部に排出することができる。

【0060】

気化燃料板の貫通口（気化燃料収容部）に到達した副生ガスの外部への排出効率を向上させるために、あるいは、気化燃料板の、アノード極11に供給される燃料の濃度を均一化する機能を高めるために、連通経路3b'が設けられた貫通口同士および／または連通経路3b'が設けられていない貫通口同士を空間的に接続する接続経路3d'を設けることも好ましい（図7（a）参照）。

【0061】

複数の貫通口の形状（幅および長さなど）、配列数など（換言すれば、縦横に設ける梁の数や配置間隔など）は、箱筐体40における液体燃料収容部60を形成する凹部の位置や数、複数の凹部を有する場合におけるそれらの配置間隔などを考慮して決定することが好ましい。

【0062】

連通経路は、4つの周縁部のうち、どの周縁部に設けてもよいが、図1に示される例のように単位電池30の側方に燃料貯蔵部70が配置される場合など、アノード極11面内において燃料供給量に勾配が生じる場合には、燃料利用効率を高める観点から、連通経路の少なくとも1つは、燃料貯蔵部70から最も離れた周縁部に設けることが好ましく、連通経路のすべてを燃料貯蔵部70から最も離れた周縁部に設けることがより好ましい。すなわち、このような位置に連通経路を設けると、連通経路から排出される燃料の量を極力少なくすることができる。また、燃料電池が、同一平面上に列状に配列した複数の単位電池を含むスタック構造を有する場合には、副生ガス排出による隣り合う単位電池への空気供給を阻害しないよう、隣り合う単位電池に面しない周縁部に連通経路を設けることが好ましい。たとえば、複数の単位電池を一列に配列して単位電池をスタック化する場合、該スタック構造における、隣り合う単位電池に面しない2つの周縁部のいずれか一方に沿って燃料貯蔵部70を配置し、他方の周縁部（すなわち、燃料貯蔵部70から最も離れた周縁部）にすべての連通経路を設けることができる。これにより、単位電池30への空気供給の阻害を防止できるとともに、連通経路から排出される燃料の量を極力少なくすることができる。

【0063】

連通経路の断面積（2以上の連通経路を有する場合にはこれらの断面積の合計） S_1 と、気化燃料板の側面の合計面積 S_0 との比 S_1/S_0 は、副生ガスおよびこれに伴う熱の排出を行なうために0より大きくすることが必要であり、好ましくは0.002以上である。また、好ましくは0.3未満、より好ましくは0.1未満、さらに好ましくは0.05未満である。当該比が0.3以上になると、燃料の漏洩や空気の混入が起こりやすくなり、発電の安定性が低下するおそれがある。

【0064】

連通経路のすべてを燃料貯蔵部70から最も離れた周縁部に設ける場合など、気化燃料板が有する4つの周縁部のうちのいずれか1つの周縁部にのみ1または2以上の連通経路を設ける場合において、連通経路の断面積（2以上の連通経路を有する場合にはこれらの断面積の合計） S_1 と、連通経路が設けられる周縁部における側面の断面積 S_2 との比 S_1/S_2 は、上記と同様の理由から、好ましくは0.008以上である。

【0065】

気化燃料板の材質は、プラスチック、金属または非多孔質性のカーボン材料などであることができる。プラスチックとしては、たとえば、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ポリイミド（PI）、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、アクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン（PE）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）などを挙げることができる。金属としては、たとえば、チタン、アルミニウム等のほか、ステンレス、マグネシウム合金等の合金を用いることができる。発電部と液体燃料収容部60との間の断熱性をより向上させる観点からは、熱伝導性の低い材料を気化燃料板に用いることが好ましいが、気化燃料板による断熱性は、材料の熱伝導性よりも貫通口内に形成される空気層による寄与が大きい。したがって、断熱性の点においては、気化燃料板の材質よりも、空気層の体積（貫通口の開口率および厚み）を考慮することが重要である。

【0066】

上記のなかでも、気化燃料板は、金属、ポリフェニレンサルファイド（PPS）またはポリイミド（PI）などの剛性が大きい材質からなることが好ましい。剛性が大きい気化燃料板を用いると、ホットプレス（熱圧着）により気化燃料板とこれに隣接する部材との

接合が可能になるため、燃料電池の厚みや発電特性のばらつきを低減することができる。
また、ホットプレス時において、連通経路の閉塞を有効に防止することができる。

【0067】

〔気液分離層〕

気化燃料収容部3aと液体燃料収容部60との間に介在され、液体燃料収容部60の開口（アノード極11側への開放面）を覆うように（すなわち、液体燃料収容部60を形成する凹部を覆うように）配置される気液分離層7は、図1に示されるように、好ましくは第1層5と、第1層5の単位電池30側表面に積層される気液分離能を有する第2層4の2層構造である。

【0068】

10

（1）第1層

第1層5は、測定媒体をメタノールとしたときのバブルポイントが30kPa以上の層であり、このような第1層5を液体燃料収容部60の開口を覆うように配置することにより、第1層5の細孔内に液体燃料が毛細管力により保持されるため、アノード極11で発生した副生ガスの液体燃料収容部60内への侵入を効果的に防止することができる。

【0069】

また、第1層5の設置は次の点でも有利である。

（i）アノード極11で発生した副生ガスが液体燃料収容部60内へ浸入することを防止できることは、副生ガスの燃料電池外部への排出ルートが、気化燃料板の連通経路からの排出ルートに絞られることを意味しており、したがって、連通経路からの副生ガスの排出およびこれに伴う熱の排出を促進させることができるとともに、液体燃料収容部60への熱の伝達をより効果的に抑制することができる。これにより、液体燃料収容部60を含めて燃料電池全体としての過度の温度上昇ならびに、これに伴うクロスオーバーおよび温度暴走をより効果的に抑制することが可能になる。

20

【0070】

（ii）副生ガスの液体燃料収容部60内への侵入は、アノード極11への気化燃料の供給量を低下させるとともに、気化燃料の安定的な供給を阻害し、燃料電池の出力安定性を低下させる。第1層5を設けると、副生ガスの液体燃料収容部60内への浸入を防止することにより、アノード極11に対して、十分な量の気化燃料を安定して供給することができるようになるため、燃料電池の出力安定性を向上させることができる。また、副生ガスが浸入し液体燃料収容部60の内圧が上昇することによる構成部材間の界面での剥離や、構成部材の破壊をより効果的に抑制することから、燃料電池の信頼性をより向上させることができる。

30

【0071】

（iii）燃料貯蔵部70から液体燃料収容部60内への液体燃料の輸送を、第1層5の毛細管力を利用して行なうことができるため、液体燃料のパンプ供給が可能となる。これにより、液体燃料を送液するためのポンプ等の補機を省略することができる。また、毛細管力による燃料供給が可能になることにより、燃料供給の方向依存性をなくすることができる（すなわち、燃料電池の使用時における向きに関係なく、発電を行なうことができる。）。

40

【0072】

（iv）高分子材料などの熱伝導性の低い材料を第1層5に用いる場合には、第1層5内に保持された液体燃料は、発電部の急激な温度上昇に対する影響を受けにくくなり、その温度上昇が緩慢となる。その結果、第1層5内に保持された液体燃料を比較的低い温度に安定的に維持できるようになるため、アノード極11に供給される気化燃料の供給量を安定させることができる。このことは、燃料電池の信頼性向上に寄与する。

【0073】

（v）第1層面内に均一に液体燃料が広がり保持されるため、アノード極面に対して、均一に気化燃料を供給することができ、発電部に対し燃料の局所的な過剰供給や、燃料不足となることがないため、触媒等の材料劣化が抑えられる。このことは、出力向上および

50

燃料電池の信頼性向上に寄与する。

【0074】

(vi) ポンプ等の圧送手段を用いて燃料貯蔵部70に収容された液体燃料を液体燃料収容部60に圧送するなどの方法によって液体燃料収容部60内の圧力を高めることにより、アノード極11で発生した副生ガスが液体燃料収容部60内へ浸入することある程度防止することが可能であるが、第1層5による浸入防止の効果がこれを凌駕するため、液体燃料収容部60内の内圧を高める必要がない。これにより、内圧上昇による液漏れの危険性を回避することができ、燃料電池の信頼性を向上させることができる。

【0075】

ここで、バブルポイントとは、液媒体で濡らした層(膜)の裏側から空気圧をかけたときに、層(膜)の表面に気泡の発生が認められる最小圧力である。バブルポイントが高いほど気体の透過性は低い。バブルポイント ΔP は、下記式(3)：

$$\Delta P [\text{Pa}] = 4 \gamma \cos \theta / d \quad (3)$$

(γ は測定媒体の表面張力[N/m]、 θ は層(膜)の素材と測定媒体との接触角、 d は層(膜)が有する最大細孔径である。)

によって定義される。本発明においてバブルポイントは、測定媒体をメタノールとし、JIS K 3832に準拠して測定される。

【0076】

副生ガスの液体燃料収容部60内への侵入を効果的に防止する観点から、第1層5のバブルポイントは、好ましくは50kPa以上であり、より好ましくは100kPa以上である。第1層5のバブルポイントは、上記(3)から理解されるように、第1層5として用いる材料の細孔径や接触角の調整により制御可能である。

【0077】

30kPa以上のバブルポイントを達成するために、第1層5が有する細孔の最大細孔径は、1 μm 以下であることが好ましく、0.7 μm 以下であることがより好ましい。最大細孔径は、上記バブルポイントを測定することで得られるが、それ以外の手法としては水銀圧入法によって測定することができる。ただし、水銀圧入法では0.005 μm ~500 μm の細孔分布しか測定できないため、この範囲外の細孔は存在しない、もしくは無視できる場合に有効な測定手段である。

【0078】

第1層5としては、たとえば、高分子材料、金属材料または無機材料などからなる多孔質層や、高分子膜を挙げることができ、具体例を示せば以下のとおりである。

【0079】

1) 次の材料からなる多孔質層。ポリフッ化ビニリデン(PVDF)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)等のフッ素系樹脂；アクリル系樹脂；ABS樹脂；ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系樹脂；ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；セルロースアセテート、ニトロセルロース、イオン交換セルロース等のセルロース系樹脂；ナイロン；ポリカーボネート系樹脂；ポリ塩化ビニル等の塩素系樹脂；ポリエーテルエーテルケトン；ポリエーテルスルホン；ガラス；セラミックス；ステンレス、チタン、タングステン、ニッケル、アルミニウム、スチール等の金属材料。多孔質層は、これらの材料からなる発泡体、焼結体、不織布または繊維(ガラス繊維等)などであることができる。

【0080】

2) 次の材料からなる高分子膜。パーフルオロスルホン酸系重合体；スチレン系グラフト重合体、トリフルオロスチレン誘導体共重合体、スルホン化ポリアリーレンエーテル、スルホン化ポリエーテルエーテルケトン、スルホン化ポリイミド、スルホン化ポリベンゾイミダゾール、ホスホン化ポリベンゾイミダゾール、スルホン化ポリフォスファゼンなどの炭化水素系重合体などの電解質膜材料として用いることができるもの。これらの高分子膜は、3次元的に絡み合う高分子間の隙間として、ナノオーダーの細孔を有している。

【0081】

10

20

30

40

50

第1層5を構成する材料として高分子材料を用いる場合には、親水性官能基を導入するなどの方法により親水化処理を施し、細孔表面の水（したがってメタノールもしくはメタノール水溶液等の燃料）に対する濡れ性を高めることにより、第1層5のバブルポイントを高めることもできる。

【0082】

第1層5の厚みは特に制限されないが、燃料電池の薄型化の観点から、好ましくは20～500 μm であり、より好ましくは50～200 μm である。なお、第1層5を省略してもよいが、上記効果を得るために、気液分離層7は第1層5を含むことが好ましい。

【0083】

(2) 第2層

第1層5の単位電池30側表面に積層される第2層4は、気化燃料透過性（液体燃料の気化成分を透過できる性質）かつ液体燃料不透過性の疎水性を有する多孔質層であり、アノード極11への燃料の気化供給を可能とする気液分離能を有する層である。第2層4は、アノード極11へ供給される気化燃料の量または濃度を適切量に制御（制限）するとともに、均一化する機能をも有する。第2層4を設けることにより、燃料のクロスオーバーを効果的に抑制でき、発電部に温度ムラが生じにくく、安定した発電状態を維持することができる。

【0084】

第2層4としては、使用する燃料に関して気液分離能を有するものであれば特に制限されないが、たとえば、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン等のフッ素系樹脂、撥水化処理されたシリコン樹脂などからなる多孔質膜または多孔質シートを挙げることができ、具体的には、ポリテトラフルオロエチレンからなる多孔質フィルムである日東電工（株）製テミッシュ〔TEMI SH（登録商標）〕の「NTF2026A-N06」や「NTF2122A-S06」が例示できる。

【0085】

第2層4は、気化燃料透過性を有するものであることから、第1層5よりも小さいバブルポイントを有している。第2層4の上記測定方法に従うバブルポイントは好ましくは10kPa以下であり、第2層4に対するメタノールの接触角は大きいほど良く、好ましくは45度以上であり、より好ましくは90度程度以上である。また、気化燃料透過性および液体燃料不透過性を付与する観点から、第2層4が有する細孔の最大細孔径は、0.1～10 μm であることが好ましく、0.5～5 μm であることがより好ましい。第2層4が有する細孔の最大細孔径は、第1層5と同様、メタノール等を用いてバブルポイントを測定することにより求めることができる。

【0086】

第2層4の厚みは特に制限されないが、上記機能を十分に発現させるために、20 μm 以上であることが好ましく、50 μm 以上であることがより好ましい。また、燃料電池の薄型化の観点からは、第2層4の厚みは500 μm 以下であることが好ましく、300 μm 以下であることがより好ましい。

【0087】

(3) 第3層

気液分離層7は、第1層5と第2層4との間に介在される第3層を有していてもよい。図8に気液分離層7が第3層6を含む燃料電池の一例を示す。図8に示される燃料電池200は、気液分離層7が、第3層6をさらに含むこと以外は図1に示される燃料電池100と同様である。また、図9は、燃料電池200で使用されている第3層6を示す概略上面図である。

【0088】

第3層6は、第1層5と第2層4との間に配置され、液体燃料が透過可能な厚み方向に貫通する貫通孔を有する層であり、少なくとも第1層5と第2層4とを密着性良く面接合する役割を担い、好ましくは第2層4側への液体燃料透過量を調整（制限）する機能を有する。第3層6としては、たとえば図8および図9に示されるような、厚み方向に貫通す

10

20

30

40

50

る貫通孔を有する非多孔性シート（フィルム）を用いることができ、その材料としては熱可塑性樹脂が好ましく例示できる。これを用いて、第1層／第3層／第2層からなる積層体を熱圧着することにより、各層間を密着性良く面接合することができる。気液分離層7が第3層6としての厚み方向に貫通する貫通孔を有し、面接合が可能な非多孔性シートを有する燃料電池は、以下の点において有利である。

【0089】

（i）第3層6を介して第1層5と第2層4とを密着性良く接合することができるため、第1層5と第2層4との間に副生ガスが滞留することがなく、第2層4面内における気化燃料透過量のバラツキを抑制することができ、これによりアノード極11に対して均一な燃料供給を行なうことができ、出力を向上させることが可能になる。また、第3層6が樹脂からなる場合は、発電部の急激な温度上昇に対し、熱を液体燃料に伝達しにくくする効果がある。その結果、液体燃料の温度上昇が緩慢となり、液体燃料を比較的低い温度に安定的に維持できるようになるため、アノード極11に供給される気化燃料の供給量を安定させることができる。このことは、燃料電池の信頼性向上に寄与する。

10

【0090】

（ii）第3層6に形成される貫通孔の数や開孔径により、第2層4側への液体燃料透過量、ひいてはアノード極11への気化燃料供給量を適切な量に調整（制限）することができる。これにより、燃料のクロスオーバーの防止または抑制、および燃料供給の安定化を図ることができる。貫通孔の数は特に制限されないが、複数個存在することが好ましく、第2層4面内における気化燃料透過量を均一化する観点から、これらを第3層6における液体燃料収容部60の直上の領域に均一に分布させることが好ましい。貫通孔の開孔径（直径）は、たとえば、0.1～5mm程度とすることができる。

20

【0091】

（iii）第3層6により第1層5と第2層4との間の良好な面接合が可能であるため、ボルト・ナットまたはネジなどの締結部材などを用いた燃料電池の締め付けが不要となり、燃料電池の薄型化を図ることができる。

【0092】

（iv）ホットプレス（熱圧着）により容易に気液分離層7を作製することができるため、燃料電池製造工程の簡略化、製造効率の向上を図ることができる。

【0093】

上述の熱可塑性樹脂シートのほか、第3層6は、たとえば次のものから形成されるものであってもよい。

30

【0094】

1）接着性を有する樹脂または樹脂組成物から形成される多孔質層、たとえば、ホットメルト系接着剤や硬化型接着剤などの接着剤から形成される多孔質層。当該接着剤を用いる場合、第3層6は、接着剤層、すなわち、当該接着剤またはその硬化物からなる多孔質層である。このような第3層6を用いる場合であっても、上記（i）～（iii）と同様の効果を得ることができる。第2層4側への液体燃料透過量は、多孔質層が有する細孔によって調整（制限）される。

【0095】

2）厚み方向に貫通する貫通孔を有する、好ましくは非多孔性の金属板を含むもの。この場合、金属板の両面には、第1層5および第2層4との良好な密着性を確保するために、接着剤層が形成され、したがって、第3層6は、接着剤層／金属板／接着剤層の3層構造となる。接着剤層は、接着剤またはその硬化物からなる多孔質層である。接着剤は、ホットメルト系接着剤や硬化型接着剤などであることができる。このような第3層を用いる場合であっても、上記（i）～（iii）と同様の効果を得ることができる。第2層4側への液体燃料透過量は、熱可塑性樹脂シートの場合と同様、金属板に形成される貫通孔の数や開孔径により調整（制御）できる。接着剤層は貫通孔を塞がないように形成されることが好ましい。貫通孔の数は特に制限されないが、複数個存在することが好ましく、第2層4面内における気化燃料透過量を均一化する観点から、これらを金属板における液体燃

40

50

料収容部 60 の直上の領域に均一に分布させることが好ましい。貫通孔の開孔径（直径）は、たとえば、0.1～5 mm 程度とすることができる。

【0096】

〔液体燃料収容部〕

液体燃料収容部 60 は、燃料貯蔵部 70 から移送された液体燃料を流通させるための部位であり、好ましくはアノード極 11 の直下に配置される。図 1 に示される燃料電池 100 において、液体燃料収容部 60 は、アノード極 11 の燃料貯蔵部 70 側端部からこれと反対側の端部までの長さと同じかまたはそれ以上の長さを有しており、アノード極 11 の幅と同じかまたはそれ以上の幅を有する空間からなる。液体燃料収容部 60 の高さ（深さ）は特に制限されない。

10

【0097】

本実施形態の燃料電池 100 において液体燃料収容部 60 は、単位電池 30 の下部に気液分離層 7 に接するように配置された、液体燃料収容部 60 の内部空間を構成する凹部を有する箱筐体 40 と、気液分離層 7 とによって形成されている。なお、図 1 に示される箱筐体 40 は、液体燃料収容部 60 を構成する部位とともに、燃料貯蔵部 70 の底壁および側壁を構成する部位を一体として有しているが、これに限定されるものではなく、液体燃料収容部 60 を構成する部材と燃料貯蔵部 70 を構成する部材とは異なる部材であってもよい。

【0098】

箱筐体 40 は、プラスチック材料または金属材料を用いて、少なくとも燃料供給室 60 の内部空間を構成する凹部を有するように適宜の形状に成形することによって作製することができる。プラスチック材料としては、たとえば、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、アクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン（PE）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）などを挙げることができる。金属材料としては、たとえば、チタン、アルミニウム等のほか、ステンレス、マグネシウム合金等の合金材料を用いることができる。これらのなかでも、ポリフェニレンサルファイド（PPS）やポリエチレン（PE）は、3次元架橋による分子量増加により強度が高く安価に加工ができ、また軽量であることから好ましく用いられる。

20

30

【0099】

箱筐体 40 は、排熱層 1 の連通経路 3b から排出された熱を伴う副生ガスを燃料電池 100 外部へ排出するための第 1 の開孔 63 を有している。第 1 の開孔 63 は、箱筐体 40 の側壁に設けられた貫通孔である。第 1 の開孔 63 から燃料が排出されることを抑制または防止するために、第 1 の開孔 63 内に燃料を燃焼させる触媒を含む多孔質層を形成してもよい。気化燃料板に設けられた連通経路 3b および第 1 の開孔 63 により、燃料電池運転時においても、液体燃料収容部 60 内は圧力上昇が生じることなく、大気圧に維持される。

【0100】

〔燃料貯蔵部〕

燃料貯蔵部 70 は、好ましくは単位電池 30 および液体燃料収容部 60 の側方に配置される、液体燃料を貯蔵するための部位である。本実施形態の燃料電池 100 において燃料貯蔵部 70 は、第 2 の保湿層 2 上に積層され、複数の開口 51 を有する蓋筐体 50、箱筐体 40 および封止層 80 によって形成されている。

40

【0101】

なお、燃料貯蔵部 70 は、これら蓋筐体 50 および箱筐体 40 を用いて構成する必要性は必ずしもなく、たとえば、燃料貯蔵部 70 の上壁（天井壁）、側壁および底壁を一体として含む 1 つの部材から構成することもできる。

【0102】

蓋筐体 50 は、燃料貯蔵部 70 の上壁（天井壁）を形成するとともに、第 2 の保湿層 2

50

が直接露出することを防止する保護板として機能している。蓋筐体 50 のカソード極 12 直上部分には、酸化剤（空気など）を流通させるための複数の開口 51（ただし、開口の数は 1 以上あればよい）が形成されている。

【0103】

蓋筐体 50 は、プラスチック材料または金属材料を用い、適宜の形状に成形することによって作製することができる。プラスチック材料としては、たとえば、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、アクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン（PE）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）などを挙げることができる。金属材料としては、たとえば、チタン、アルミニウム等のほか、ステンレス、マグネシウム合金等の合金材料を用いることができる。これらのなかでも、ポリフェニレンサルファイド（PPS）やポリエチレン（PE）は、3 次元架橋による分子量増加により強度が高く安価に加工ができ、また軽量であることから好ましく用いられる。

【0104】

燃料貯蔵部 70 は、その内部空間と燃料電池外部とを連通する第 2 の開孔 71 を備えることが好ましい。これにより、液体燃料が液体燃料収容部 60 に輸送される場合においても、燃料貯蔵部 70 内が大気圧に維持されるため、液体燃料の輸送を円滑に行なうことができる。図 1 に示される燃料電池 100 において第 2 の開孔 71 は、蓋筐体 50 を厚み方向に貫通する貫通孔であるが、これに限定されるものではない。

【0105】

第 2 の開孔 71 からの液体燃料の漏洩を防止するために、第 2 の開孔 71 の開孔径は十分に小さいことが好ましく（たとえば直径 100～500 μm 程度、好ましくは 100～300 μm ）、あるいは、燃料電池外部への液体燃料の漏出を防止するための気液分離膜（たとえば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデンまたはポリエチレン等からなる多孔質膜）を第 2 の開孔 71 内に設けてもよい。

【0106】

（変形例）

本発明の燃料電池は、上記した実施形態および変形例に限定されるものではなく、たとえば以下のような変形例をも含む。

【0107】

（1）液体燃料収容部 60 の空間形状は図 4 に示されるものに限定されない。液体燃料収容部 60 は、たとえば図 10 に示されるような、枝分かれ状の複数の流路から形成されていてもよい。あるいは、複数のライン状の流路、サーペンタイン状の流路などから形成することもできる。図 10 は、液体燃料収容部 60 の他の一例を示す図 4 と同様の概略断面図である。

【0108】

（2）図 11 は液体燃料収容部 60 の他の一例を示す図 4 と同様の概略断面図である。図 11 に示されるように、液体燃料収容部 60 は、燃料輸送部材 61 を備えていてもよい。燃料輸送部材 61 は、その少なくとも一部が液体燃料収容部 60 内に配置され、燃料貯蔵部 70 から液体燃料収容部 60 に毛細管現象を利用して液体燃料を輸送するための部材であり、第 1 層 5 の毛細管力を利用した液体燃料輸送を補助する役割を担うことができる。

【0109】

燃料輸送部材 61 は、液体燃料に対して毛細管作用を示す材料からなる。このような毛細管作用を示す材料としては、アクリル系樹脂；ABS 樹脂；ポリエチレン等のポリオレフィン系樹脂；ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂；ナイロン；ポリ塩化ビニル；ポリエーテルエーテルケトン；ポリフッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素系樹脂；セルロースなどの高分子材料（プラスチック材料）からなる不規則な細孔を有する多孔質体；ステンレス、チタン、タングステン、ニッケル、アルミニ

ウム、スチールなどの金属材料からなる不規則な細孔を有する多孔質体が挙げられる。多孔質体としては、上記金属材料からなる不織布、発泡体、焼結体や、上記高分子材料からなる不織布などを挙げることができる。また、上記高分子材料または金属材料からなり、毛細管として表面に規則的なまたは不規則なスリットパターン（溝パターン）を有する板状体を燃料輸送部材 6 1 として用いることもできる。

【0110】

燃料輸送部材 6 1 が有する細孔の細孔径は、重力に対して十分な毛細管現象が生じ、良好な吸い上げ高（燃料輸送部材の一端を液体燃料に浸漬したときの、毛細管現象による液体燃料の当該部材における到達可能位置を意味する）および吸い上げ速度（燃料輸送部材の一端を液体燃料に浸漬したときの、単位時間当たりに吸い上げられる液体燃料の体積を意味する）を得るために、 $0.1 \sim 500 \mu\text{m}$ とすることが好ましく、 $1 \sim 300 \mu\text{m}$ とすることがより好ましい。なお、燃料輸送部材 6 1 が有する細孔の細孔径は、水銀圧入法により測定される径である。

10

【0111】

燃料輸送部材 6 1 を構成する毛細管作用を示す材料としては、上記吸い上げ高および吸い上げ速度の観点から、30 分後の揚水距離が 10 cm 以上であるものを用いることが好ましく、15 cm 以上であるものを用いることがより好ましい。このようなものとしては、王子キノクロス（株）製の「ハトシート」、東レ（株）製の「導水シート」などがある。揚水距離とは、フェルト試験片の下端 2 cm を温度 25 °C の水中に浸し、一定時間（30 分）放置後の水の到達高さを意味する。

20

【0112】

燃料輸送部材 6 1 の形状は、図 1 1 に示されるような短冊形状（より具体的には直方体形状）に限定されず、燃料電池全体の形状、膜電極複合体の形状または液体燃料収容部 6 0 の形状等に応じた適宜の形状とすることができる。直方体形状以外の他の例として、たとえば立方体形状、一端から他端に向かうに従い、幅が連続的または段階的に小さくまたは大きくなる形状（表面が台形や三角形である形状等）などの短冊形状が挙げられる。

【0113】

燃料輸送部材 6 1 の長さ（燃料貯蔵部 7 0 側の一端からこれに対向する他端までの距離）は特に制限されず、燃料電池全体の形状、膜電極複合体の形状または液体燃料収容部 6 0 の形状等に応じた適宜の長さとする事ができるが、燃料輸送部材 6 1 の一端を燃料貯蔵部 7 0 に保持された液体燃料に接触可能な位置に配置したときに、その他端がアノード極 1 1 の端部（燃料貯蔵部 7 0 側とは反対側の端部）の略直下の位置に配置されるような長さまたはそれ以上の長さを有していることが好ましい。

30

【0114】

なお、「液体燃料に接触可能な位置」とは、図 1 1 に示されるように、燃料輸送部材 6 1 の一端が燃料貯蔵部 7 0 内部に位置する場合のほか、燃料輸送部材 6 1 の一端が液体燃料収容部 6 0 と燃料貯蔵部 7 0 とを仕切る壁（箱筐体 4 0 の一部分である）の内部に位置する場合などを含む。

【0115】

（3）液体燃料収容部 6 0 が液体燃料を貯蔵する燃料貯蔵部 7 0 を兼ねた構成とし、燃料貯蔵部 7 0 を省略してもよい。

40

【0116】

（4）燃料電池の層構成は、図 1 ～ 5 に示されるものに限定されるものではなく、たとえば図 1 2 に示されるような、液体燃料収容部 6 0 の両面に単位電池 3 0 が配置された構成であってもよい。図 1 2 は、液体燃料収容部 6 0 の両面に単位電池 3 0 が配置された燃料電池の一例を示す、図 5 と同様の概略断面図である。かかる構成においては、液体燃料収容部 6 0 は、上下 2 つのアノード極 1 1 に対して燃料を供給するために、上下面ともに開放されている必要があることから、箱筐体 4 0 として、上下面が開いた空間を有する部材が用いられる。このような液体燃料収容部 6 0 の両面に単位電池 3 0 が配置された燃料電池は、2 つの単位電池に対して 1 つの液体燃料収容部 6 0 （箱筐体 4 0 ）で足りること

50

から、燃料電池の薄型化を図ることができるとともに、燃料電池の単位体積当たりの出力を向上させることができる。

【0117】

(5) 燃料電池の外形形状は、上記実施の形態の形状に限定されるものではない。たとえば、燃料電池の厚み方向からみたときの形状（平面形状）は、長方形のほか、正方形などであることができる。

【0118】

(6) 燃料電池は、燃料貯蔵部70に収容された液体燃料を液体燃料収容部60に圧送するためのポンプなどの圧送手段を備えることができる（たとえば第1層5や燃料輸送部材61を有しない場合など。ただし、これらの部材とともに圧送手段を備えていてもよい）。圧送手段を用いることにより、短時間で液体燃料収容部60内を液体燃料で満たすことができるため、燃料電池の起動性を向上させることができる。

【0119】

(7) 燃料電池は、同一平面上に配列された単位電池30を2以上含むものであってもよい。このような複数の単位電池30を含む燃料電池の一例を図13に示す。図13に示される燃料電池300は、アノード極11、電解質膜10およびカソード極12をこの順で含む膜電極複合体20と、アノード極11上に積層されるアノード集電層21と、カソード極12上に積層されるカソード集電層22とを備える単位電池30を同一平面上に3個配列してなる発電部；発電部の下方に配置される液体燃料収容部60（箱筐体40に形成された凹部からなる）；アノード集電層21に接するように積層される第1の保湿層1；カソード集電層22に接するように積層される第2の保湿層2；液体燃料収容部60の開口を覆うように液体燃料収容部60上に配置される気液分離層7（第1層5と第2層4の2層構造）；および、気液分離層7と第1の保湿層1との間に形成される空間からなる気化燃料収容部3aを有する気化燃料板3から基本的に構成されている。

【0120】

発電部の周縁は、シール部材95で封止されている。シール部材95は上述の封止層80と同様の材料から構成することができる。燃料電池は、これを保護する観点から、外装ケース90に収容されてもよい。外装ケース90におけるカソード極12の直上に位置する領域には、酸化剤（空気など）を取り込むための開口91が形成される。

【0121】

燃料電池が複数の単位電池30を含む場合において、単位電池30の数は特に制限されない。また、気化燃料収容部3aおよび液体燃料収容部60は、単位電池30ごとに設けられてもよいし、単位電池30より少ない数だけ設けられてもよい。図13に示される例において気化燃料収容部3aおよび液体燃料収容部60の数は、単位電池30が3個であるのに対して1つである。同様に、その他の部材についても、単位電池30より少ない数とし、複数の単位電池30が当該部材を共有するようにしてもよい。たとえば、図13に示される例において3個の単位電池30は、1つの第1の保湿層1、1つの第2の保湿層2および1つの電解質膜10を共有している。

【0122】

本発明の燃料電池は、固体高分子型燃料電池またダイレクトアルコール型燃料電池などであることができ、特にダイレクトアルコール型燃料電池（とりわけ、ダイレクトメタノール型燃料電池）として好適である。本発明の燃料電池において使用することのできる液体燃料としては、たとえば、メタノール、エタノールなどのアルコール類；ジメトキシメタンなどのアセタール類；ギ酸などのカルボン酸類；ギ酸メチルなどのエステル類；ならびにこれらの水溶液を挙げることができる。液体燃料は1種に限定されず、2種以上の混合物であってもよい。コストの低さや体積あたりのエネルギー密度の高さ、発電効率の高さなどの点から、メタノール水溶液または純メタノールが好ましく用いられる。本発明によれば、高濃度燃料（濃度が50モル%を超えるメタノール水溶液または純メタノールなど）を用いる場合であっても、良好な発電特性を得ることができる。

【0123】

本発明の燃料電池は、電子機器、特に、携帯電話、電子手帳、ノート型パソコンに代表される携帯機器などの小型電子機器用の電源として好適に用いることができる。

【実施例】

【0124】

以下、実施例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0125】

<実施例1>

以下の手順で、図1と類似の構成の燃料電池を作製した。

【0126】

(1) 膜電極複合体の作製

Pt担持量32.5重量%、Ru担持量16.9重量%の触媒担持カーボン粒子(TEC66E50、田中貴金属社製)と、電解質である20重量%のナフィオン(登録商標)のアルコール溶液(アルドリッチ社製)と、n-プロパノールと、イソプロパノールと、ジルコニアボールとを、所定の割合でフッ素系樹脂製の容器に入れ、攪拌機を用いて500rpmで50分間の混合を行なうことにより、アノード極用の触媒ペーストを作製した。また、Pt担持量46.8重量%の触媒担持カーボン粒子(TEC10E50E、田中貴金属社製)を用いること以外はアノード極用の触媒ペーストと同様にして、カソード極用の触媒ペーストを作製した。

【0127】

ついで、片面に撥水性を有する多孔質層が形成されたカーボンペーパー(25BC、SGL社製)を縦23mm、横28mmに切断した後、その多孔質層上に、上記のアノード極用の触媒ペーストを触媒担持量が約 $3\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように、縦22mm、横27mmのウィンドウを有したスクリーン印刷版を用いて塗布し、乾燥させることにより、アノード導電性多孔質層であるカーボンペーパー上の中央にアノード触媒層が形成された、厚み約 $100\mu\text{m}$ のアノード極11を作製した。また、同じサイズのカーボンペーパーの多孔質層上に、上記のカソード極用の触媒ペーストを触媒担持量が約 $1\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように、縦22mm、横27mmのウィンドウを有したスクリーン印刷版を用いて塗布し、乾燥させることにより、カソード導電性多孔質層であるカーボンペーパー上の中央にカソード触媒層が形成された、厚み約 $50\mu\text{m}$ のカソード極12を作製した。

【0128】

つぎに、厚み約 $175\mu\text{m}$ のパーフルオロスルホン酸系イオン交換膜(ナフィオン(登録商標)117、デュポン社製)を縦23mm、横28mmに切断して電解質膜10とし、上記アノード極11と電解質膜10と上記カソード極12をこの順で、それぞれの触媒層が電解質膜10に対向するように重ね合わせた後、 130°C 、2分間の熱圧着を行ない、アノード極11およびカソード極12を電解質膜10に接合した。上記重ね合わせは、アノード極11とカソード極12の電解質膜10の面内における位置が一致するように、かつアノード極11と電解質膜10とカソード極12の中心が一致するように行なった。ついで、得られた積層体の外周部を切断することにより、縦22mm、横27mmの膜電極複合体20を作製した。

【0129】

(2) 単位電池の作製

縦22mm、横27mm、厚み0.1mmのステンレス板(NSS445M2、日新製鋼社製)を用意し、この中央領域に、開孔径 $\phi 0.6\text{mm}$ である複数の開孔(開孔パターン: 千鳥 60° ピッチ0.8mm)を、フォトレジストマスクを用いたウェットエッチングにて両面から加工することにより、厚み方向に貫通する貫通孔を複数備えるステンレス板を2枚作製し、これらをアノード集電層21およびカソード集電層22とした。

【0130】

つぎに、上記アノード集電層21をアノード極11上に、カーボン粒子とエポキシ樹脂とからなる導電性接着剤層を介して積層するとともに、カソード集電層22をカソード極

10

20

30

40

50

1 2 上に、カーボン粒子とエポキシ樹脂とからなる導電性接着剤層を介して積層し、これらを熱圧着により接合して、縦 22 mm、横 27 mm の単位電池 30 を作製した。なお、アノード集電層 21 およびカソード集電層 22 は、それらの開孔が形成された領域がそれぞれアノード極 11、カソード極 12 の直上に配置されるように積層した。

【0131】

(3) 第1および第2の保湿層の接合

第1の保湿層1および第2の保湿層として、ポリテトラフルオロエチレンからなる多孔質フィルム（日東電工（株）製の「テミッシュ〔TEMISSH（登録商標）〕NTF2122A-S06」、縦25 mm、横27 mm、厚み0.2 mm、気孔率75%）を2枚用意した。これらの保湿層を単位電池30のアノード集電層21およびカソード集電層22 10

【0132】

(4) 気液分離層の作製

気液分離層7の第1層5として、縦25 mm、横27 mm、厚み0.1 mmのポリフッ化ビニリデンからなる多孔質フィルム（MILLIPORE製のデュラポアメンブレンフィルター）を用いた。この多孔質フィルムが有する細孔の最大細孔径は0.1 μmであり、またJIS K 3832に準拠したバブルポイントは、測定媒体をメタノールとしたとき、115 kPaであった。

【0133】

また、気液分離層7の第2層4として、縦25 mm、横27 mm、厚み0.2 mmのポリテトラフルオロエチレンからなる多孔質フィルム（日東電工（株）製の「テミッシュ〔TEMISSH（登録商標）〕NTF2122A-S06」）を用いた。この多孔質フィルムのJIS K 3832に準拠したバブルポイントは、測定媒体をメタノールとしたとき、18 kPaであった。

【0134】

上記第1層5上に第2層4を積層し、すべての側面の層境界部を接着剤で接合して気液分離層7を作製した。

【0135】

(5) 気化燃料板と気液分離層との接合

エッチング加工により、図7に示される形状を有する縦25 mm、横27 mm、厚み0.2 mmのSUS製の気化燃料板3'を作製した（連通経路3b'および接続経路3c'、3d'はすべて溝（凹部）からなる）。貫通口3a'の開孔率は、4個の合計で63%であり、連通経路3b'の断面積の2個の合計と気化燃料板側面の合計面積との比は、0.04である。気化燃料板3'の溝形成面とは反対側の面に気液分離層7を、その第2層4側が気化燃料板3'に対向するように積層し、熱圧着によりこれらを接合した。

【0136】

(6) 液体燃料収容部の作製

図14に示したような、一方の面に縦23.5 mm、横1.0 mm、深さ0.4 mmの凹部（液体燃料収容部60となる空間）が5本形成された縦30 mm、横27 mm、厚み0.6 mmの箱筐体40を用意した。この箱筐体40は、図1に示されるものと同様の形状を有しており、液体燃料収容部60となる凹部側方に燃料貯蔵部70を構成する凹部を備えたものである。気化燃料板3'と気液分離層7との積層体の第1層5側が箱筐体40側になるよう、ポリオレフィン系接着剤を介して箱筐体40の凹部上に該積層体を積層させた後、熱圧着を行なうことにより、該積層体と箱筐体40とを接合した。

【0137】

(7) 燃料電池の作製

気化燃料板3'上に保湿層を有する単位電池30を積層し、熱圧着によりこれらを接合した。単位電池30、保湿層1、2、気化燃料板3'および気液分離層7の燃料貯蔵部70側端面に、エポキシ樹脂を塗布し硬化させることにより、封止層80（燃料侵入防止層 50

）を形成した。最後に、カソード極 1 2 に空気を供給するための開口 5 1 と、第 2 の開孔 7 1（圧力調整孔）とを備えた蓋筐体 5 0 を、第 2 の保湿層 2 上に配置することにより燃料電池を得た。

【0138】

<比較例 1>

第 1 の保湿層 1 を有しない（第 2 の保湿層 2 は有する）こと以外は実施例 1 と同様にして燃料電池を作製した。

【0139】

（燃料電池の性能評価）

（1）実施例 1 および比較例の燃料電池の出力特性（I-V 特性）

10

メタノール濃度 17 M のメタノール水溶液を燃料としてパッシブ供給にて燃料供給を行ない、燃料電池を稼働させ、充放電装置（菊水電子工業（株）製の「SPEC20526」）を用いて I-V 測定を行ない、燃料電池の出力特性を評価した。図 15 は、実施例 1 および比較例 1 で作製した燃料電池の出力特性を示す図である。図 15 に示されるように、実施例 1 の燃料電池は、良好な出力特性を示しており、また、約 65 mW/cm^2 の最大出力密度が得られた。一方、比較例 1 の燃料電池においては、電流密度を次第に大きくしたときの電圧の降下度が実施例 1 に比べて大きくなるとともに、最大出力密度も低下した。

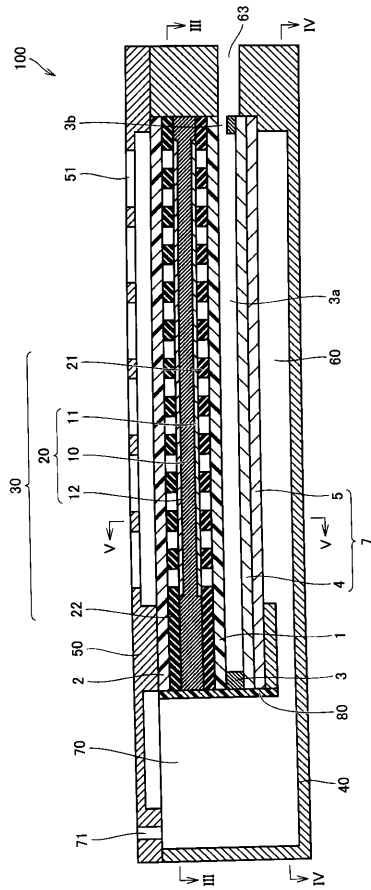
【符号の説明】

【0140】

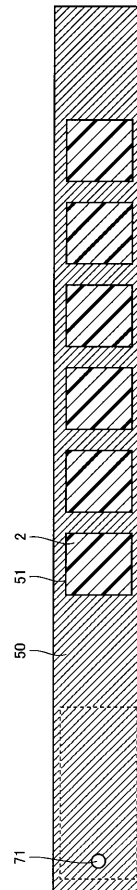
20

1 第 1 の保湿層、2 第 2 の保湿層、3, 3' 気化燃料板、3a, 3a' 気化燃料収容部（貫通口）、3b, 3b' 連通経路、3c', 3d' 接続経路、4 第 2 層、5 第 1 層、6 第 3 層、7 気液分離層、10 電解質膜、11 アノード極、12 カソード極、20 膜電極複合体、21 アノード集電層、22 カソード集電層、30 単位電池、40 箱筐体、50 蓋筐体、51 開口、60 液体燃料収容部、61 燃料輸送部材、63 第 1 の開孔、70 燃料貯蔵部、71 第 2 の開孔、80 封止層、90 外装ケース、91 開口、95 シール部材、100, 200, 300 燃料電池。

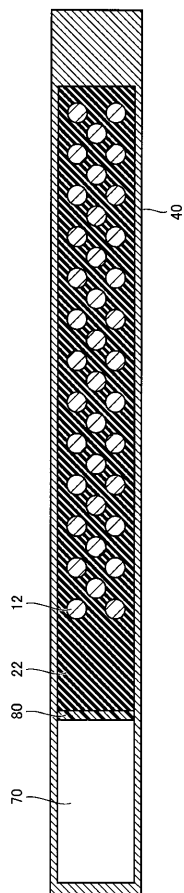
【図 1】



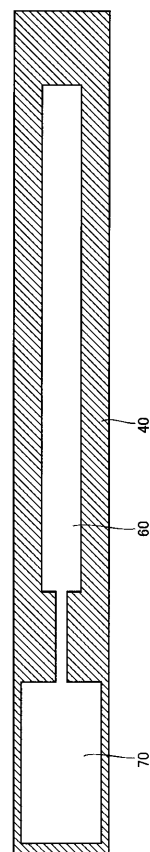
【図 2】



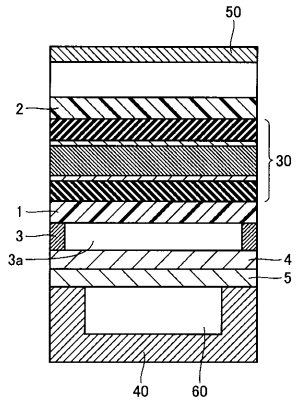
【図 3】



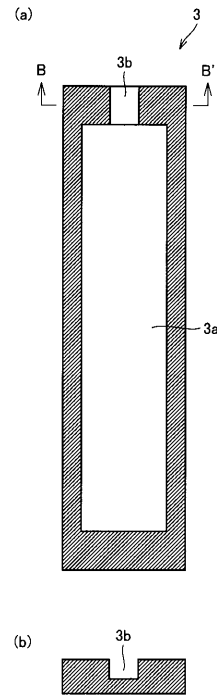
【図 4】



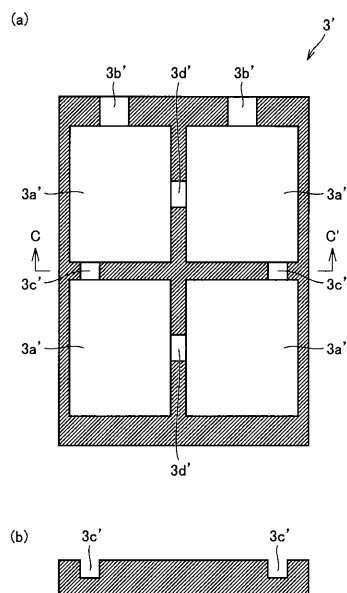
【図 5】



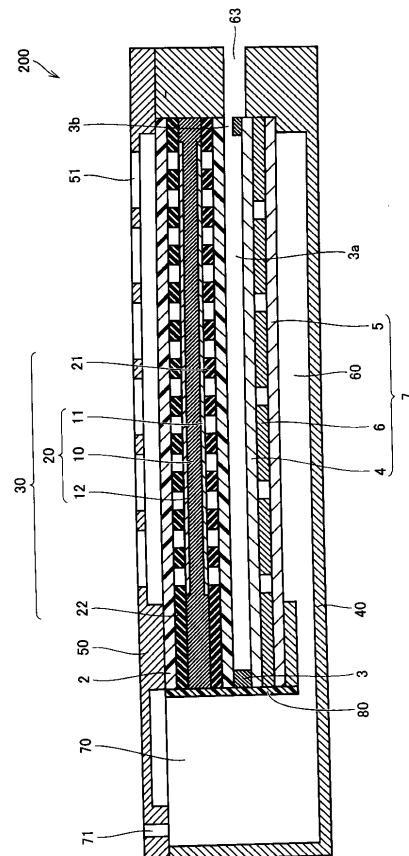
【図 6】



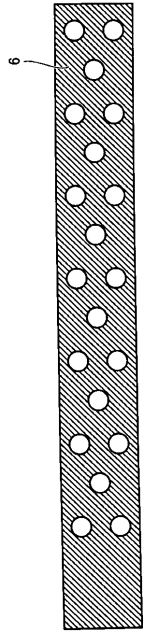
【図 7】



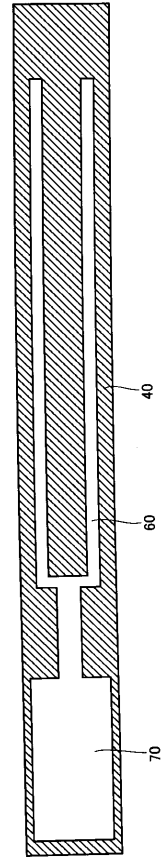
【図 8】



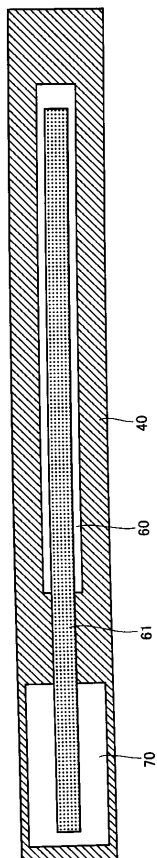
【図 9】



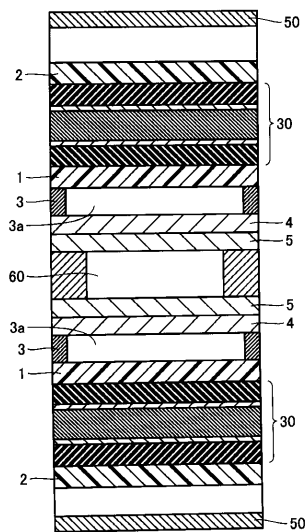
【図 10】



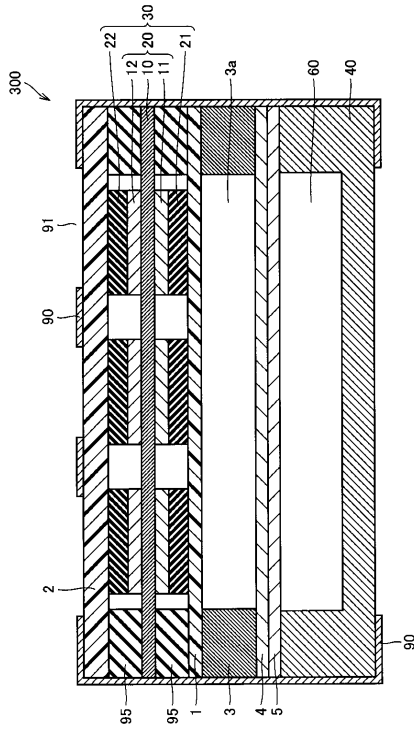
【図 11】



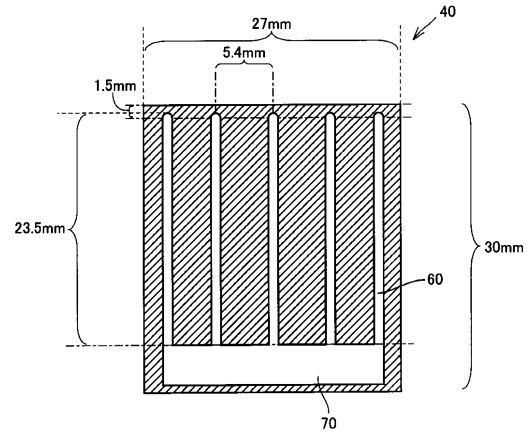
【図 12】



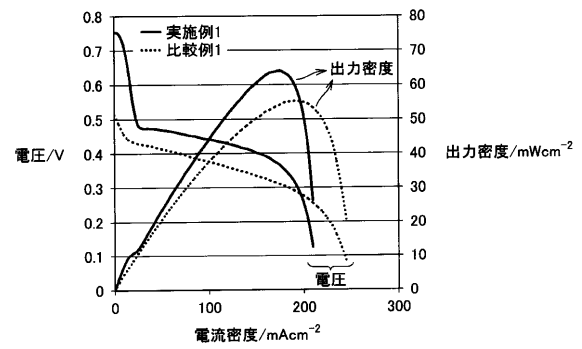
【図 13】



【図 14】



【図 15】



フロントページの続き

- (72)発明者 水畑 宏隆
大阪府大阪市阿倍野区長池町２番２号 シャープ株式会社内
- (72)発明者 大西 武範
大阪府大阪市阿倍野区長池町２番２号 シャープ株式会社内
- (72)発明者 村岡 将史
大阪府大阪市阿倍野区長池町２番２号 シャープ株式会社内
- Fターム(参考) 5H026 AA06 AA08