

(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
2012 年 11 月 29 日(29.11.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/161206 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/02 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
H01M 8/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/063141
- (22) 国際出願日: 2012 年 5 月 23 日(23.05.2012)
- (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 2011-115874 2011 年 5 月 24 日(24.05.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について):
シャープ株式会社(SHARP KABUSHIKI KAISHA)
[JP/JP]; 〒5458522 大阪府大阪市阿倍野区長池町
2 2 番 2 2 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 竹中 忍
(TAKENAKA, Shinobu). 蒔田 睦子(KOMODA,
Mutsuko). 吉江 智寿(YOSHIE, Tomohisa). 水畑
宏隆(MIZUHATA, Hirotaka). 大西 武範(ONISHI,
Takenori). 村岡 将史(MURAOKA, Masashi).
- (74) 代理人: 特許業務法人深見特許事務所 (Fukami
Patent Office, p.c.); 〒5300005 大阪府大阪市北区中
之島二丁目 2 番 7 号 中之島セントラルタワー
Osaka (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, 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, IS,
KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY,
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA,
RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, 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, 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, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

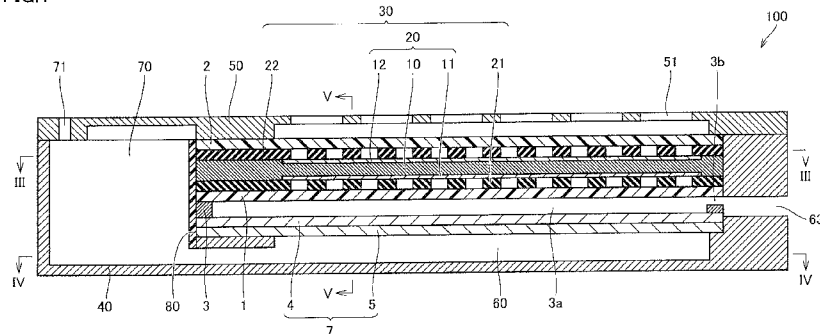
[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池

[図1]

FIG. 1



(57) Abstract: Disclosed is a fuel cell comprising: a unit cell having, in the following order, an anode, an electrolyte film and a cathode; a liquid fuel accommodating section that comprises a space for accommodating or circulating liquid fuel, is arranged on the anode side, and is open on the anode side; and a first humidifying layer arranged between the unit cell and the liquid fuel accommodating section. This fuel cell may further comprise a second humidifying layer arranged on the cathode. This fuel cell may be a direct alcohol type fuel cell. The liquid fuel may be for example pure methanol or an aqueous solution of methanol.

(57) 要約: 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が提供される。この燃料電池は、カソード極上に配置される第2の保湿層をさらに備えていてもよい。この燃料電池は、ダイレクトアルコール型燃料電池であることができる。液体燃料は、たとえば純メタノールまたはメタノール水溶液である。

WO 2012/161206 A1



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：燃料電池

技術分野

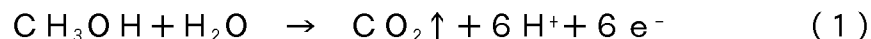
[0001] 本発明は、燃料電池に関する。

背景技術

[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。

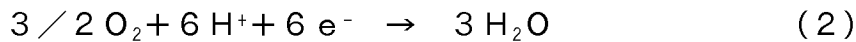
[0003] 燃料としてアルコールまたはアルコール水溶液を使用するダイレクトアルコール型燃料電池は、燃料がガスである場合と比較して、燃料貯蔵室を比較的簡易に設計できるなどの理由から、燃料電池の構造の簡略化、省スペース化が可能であり、携帯用電子機器への応用を目的とした小型燃料電池としての期待が特に高い。

[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。たとえば国際公開第2008/023633号（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] すなわち本発明は以下のものを含む。

[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。

[0011] [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[1]に記載の燃料電池。

[0012] [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[1]に記載の燃料電池。

[0013] [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[3]に記載の燃料電池。

[0014] [5] 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、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[3]に記載の燃料電池。

[0015] [6] 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、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、かつ

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[3]に記載の燃料電池。

[0016] [7] 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[1]～[6]のいずれかに記載の燃料電池。

[0017] [8] 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30kPa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[7]に記載の燃料電池。

[0018] [9] ダイレクトアルコール型燃料電池である[1] ~ [8] のいずれかに記載の燃料電池。

[0019] [10] 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[9]に記載の燃料電池。

発明の効果

[0020] 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。

図面の簡単な説明

[0021] [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。

[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。

発明を実施するための形態

[0022] 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I-I'-I-I'線、I-V-I-V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。

[0023] 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 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 を有している。

[0024] 気化分離層 7 は、液体燃料収容部 6 0 の開口を覆うように液体燃料収容部 6 0 上に配置される第 1 層 5 と、第 1 層 5 における単位電池 3 0 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。

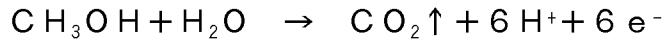
[0025] 液体燃料を流通させるための液体燃料収容部 6 0 は、これを形成する凹部（溝）を有する箱筐体 4 0 と、液体燃料収容部 6 0 の開口を覆うように積層される気液分離層 7 によって構成されている。箱筐体 4 0 は、液体燃料収容部 6 0 を構成する部位とともに、燃料貯蔵部 7 0 の底壁および側壁を構成する部位を一体として有している。液体燃料収容部 6 0 と燃料貯蔵部 7 0 とは流路により接続されている。

[0026] 本実施形態の燃料電池 1 0 0 は、箱筐体 4 0 とともに、第 2 の保湿層 2 上に積層され、複数の開口 5 1 を有する蓋筐体 5 0 を備えている。蓋筐体 5 0 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 7 0 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 4 0、蓋筐体 5 0 および、単位電池 3 0 などの側面によって燃料貯蔵部 7 0 が形成されている。図 1 に示されるように、単位電池 3 0 などの燃料貯蔵部側端面には、燃料貯蔵部 7 0 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 8 0 が形成されている。本実施形態の燃料電池 1 0 0 において、燃料貯蔵部 7 0 は、単位電池 3 0 およびその下方に配置された液体燃料収容部 6 0 の側方に配置されている。

[0027] 箱筐体 4 0 は、気化燃料板 3 の連通経路 3 b に接続された第 1 の開孔 6 3 を備えている。また、燃料貯蔵部 7 0 は、その内部空間と燃料電池 1 0 0 外部とを連通する第 2 の開孔 7 1 を備えている。この第 2 の開孔 7 1 は、蓋筐体 5 0 に設けられた貫通孔である。

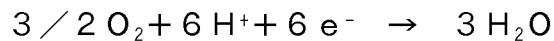
[0028] 本実施形態の燃料電池 1 0 0 は、次のような動作により発電を行なう。流路を通して燃料貯蔵部 7 0 から液体燃料収容部 6 0 内に流通し、気液分離層 7 を濡らした液体燃料は、気液分離層 7 により気液分離され、液体燃料の気

化成分（気化燃料）のみが気化燃料収容部 3 a 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 2 1 の開口を通してアノード極 1 1 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 1 1 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 1 0 0 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 1 1 近傍における気化燃料の蒸気圧は略一定に保たれる。

[0029] 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。

[0030] 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。

[0031] 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30と液体燃料収容部60（本実施形態のように、気化燃料収容部3aが設けられる場合には、気化燃料収容部3a）との間に配置される、アノード極11内の水分が、アノード極11側から単位電池30外に（たとえば気化燃料収容部3aに）蒸散することを防止し、アノード極11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100によれば、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外に蒸散させることなくアノード極11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11での反応に有効に利用されるため、アノード極11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12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。

[0032] また、アノード極11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60および燃料貯蔵部70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。

[0033] 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10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。

[0034] 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、織繊維、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。

- [0035] 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（ CO_2 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：

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

により算出することができる。

- [0036] 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、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1の保湿層1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。

- [0037] 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（P T F E）等のフッ素系樹脂；撥水化处理されたシリコー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〔T E M I S H（登録商標）〕の「N T F 2 0 2 6 A - N O 6」や「N T F 2 1 2 2 A - S O 6」が例示できる。

[0038] 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。

[0039] 〔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。

[0040] 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。

[0041] 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。

[0042] 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 μ m以上であることが好ましく、50 μ m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 μ m以下であることが好ましく、300 μ m以下であることがより好ましい。

[0043] [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。

[0044] 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。

[0045] 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。

[0046] [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。

[0047] 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。

[0048] 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。

[0049] 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。

[0050] 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 1 1、カソード極 1 2 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。

[0051] 〔アノード集電層およびカソード集電層〕

アノード集電層 2 1、カソード集電層 2 2 はそれぞれ、アノード極 1 1 上、カソード極 1 2 上に積層され、膜電極複合体 2 0 とともに単位電池 3 0 を構成する。アノード集電層 2 1 およびカソード集電層 2 2 はそれぞれ、アノード極 1 1、カソード極 1 2 における電子を集電する機能と、電氣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。

[0052] 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。

[0053] [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3a）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を有する。連通経路3bは、アノード極11で生成した副生ガス（CO₂ガス等）を燃料電池外部に排出させるための経路である。

[0054] 図6に示される気化燃料板3において連通経路3b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 7 0 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。

[0055] 液体燃料供給部 6 0 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 1 1 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 2 1 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 1 1 上に設けても、アノード極 1 1 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。

[0056] 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 6 0 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 6 0 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。

[0057] （i i）アノード極 1 1 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 6 3）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 6 0 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 6 0 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 6 0 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。

[0058] （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 1 1 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 6 0 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 1 1 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。

[0059] 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。

[0060] 気化燃料板 3 が有する貫通口（気化燃料収容部 3 a）は、発電部と液体燃料収容部 6 0 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。

[0061] 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 3 a の、アノード極 1 1 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 1 1 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。

[0062] 連通経路 3 b 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 3 b が溝（凹部）からなる場合において、連通経路 3 b の深さは、好ましくは 50 μm 以上である。50 μm 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路3 b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、連通路3 b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。

[0063] 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3 a'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つに分割したものということもできる。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。

[0064] 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3 a'に対して2つの連通路3 b'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、連通路3 b'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3 a')は、接続経路3 c'によって、連通路3 b'が設けられた貫通口(図7(a)における上2つの貫通口3 a')に空間的に接続される。接続経路3 c'は、連通路3 b'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3 c'を設けることにより、連通路3 b'が設けられていない貫通口内に入った副生ガスを、連通路3 b'を通して外部に排出することができる。

[0065] 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 3 b' が設けられた貫通口同士および／または連通経路 3 b' 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 3 d' を設けることも好ましい（図 7（a）参照）。

[0066] 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。

[0067] 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行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。

[0068] 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。

[0069] 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。

[0070] 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。

[0071] 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。

[0072] 〔気液分離層〕

気化燃料収容部 3 a と液体燃料収容部 6 0 との間に介在され、液体燃料収容部 6 0 の開口（アノード極 1 1 側への開放面）を覆うように（すなわち、液体燃料収容部 6 0 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 3 0 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。

[0073] （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 3 0 k P a 以上の層であり、このような第 1 層 5 を液体燃料収容部 6 0 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 1 1 で発生した副生ガスの液体燃料収容部 6 0 内への侵入を効果的に防止することができる。

[0074] 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 1 1 で発生した副生ガスが液体燃料収容部 6 0 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 3 の連通経路 3 b 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 3 b 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 6 0 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 6 0 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。

[0075] （ i i ）副生ガスの液体燃料収容部 6 0 内への侵入は、アノード極 1 1 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 6 0 内への浸入を防止することにより、アノード極 1 1 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できることから、燃料電池の信頼性をより向上させることができる。

[0076] (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、液体燃料のパッシブ供給が可能となる。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。）。

[0077] (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。

[0078] (v) 第1層5の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、出力向上および燃料電池の信頼性向上に寄与する。

[0079] (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内へ浸入することを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。

[0080] 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 $[\text{N}/\text{m}]$ 、 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。

[0081] 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。

[0082] 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。

[0083] 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。

[0084] 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。

[0085] 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。

[0086] 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。

[0087] 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。

[0088] (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。

[0089] 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、撥水化处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〔TEMISH（登録商標）〕の「NTF2026A-NO6」や「NTF2122A-SO6」が例示できる。

[0090] 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 μ mであることが好ましく、0.5～5 μ m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。

[0091] 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 μ m以上であることが好ましく、50 μ m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 μ m以下であることが好ましく、300 μ m以下であることがより好ましい。

[0092] （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。

[0093] 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。

[0094] (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。

[0095] (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。

[0096] (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。

[0097] (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。

[0098] 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。

[0099] 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。

[0100] 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。

[0101] 〔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。

[0102] 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。

[0103] 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。

[0104] 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。

[0105] [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。

[0106] 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。

[0107] 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。

[0108] 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。

[0109] 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。

[0110] 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 μ m程度、好ましくは100～300 μ m）、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。

[0111] （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。

[0112] （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。

[0113] (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。

[0114] 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61として用いることもできる。

[0115] 燃料輸送部材61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、単位時間あ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。

[0116] 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℃ 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。

[0117] 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。

[0118] 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ことができるが、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。

[0119] 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。

[0120] （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。

[0121] (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12に示されるような、液体燃料収容部60の両面に単位電池30が配置された構成であってもよい。図12は、液体燃料収容部60の両面に単位電池30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60は、上下2つのアノード極11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40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60の両面に単位電池30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60（箱筐体40）で足りることから、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。

[0122] (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。

[0123] (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。

[0124] (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。

[0125] 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。

[0126] 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。

[0127] 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。

[0128] 本発明の燃料電池は、電子機器、特には、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

[0129] 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。

[0130] <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。

[0131] (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、カソード極用の触媒ペーストを作製した。

[0132] 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3mg/cm²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100μm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 22 mm 、横 27 mm 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。

[0133] 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 23 mm 、横 28 mm 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 22 mm 、横 27 mm の膜電極複合体 20 を作製した。

[0134] （2）単位電池の作製

縦 22 mm 、横 27 mm 、厚み 0.1 mm 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 0.8 mm ）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、これらアノード集電層 21 およびカソード集電層 22 とした。

[0135] 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 12 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 1 1、カソード極 1 2 の直上に配置されるように積層した。

[0136] (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〔TEMISH（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 上に、ポリオレフィンからなる接着剤層を介して積層し、これらを熱圧着により接合した。

[0137] (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 μ m 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。

[0138] 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〔TEMISH（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。

[0139] 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。

[0140] (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 3 b' および接続経路 3 c' , 3 d' はすべて溝（凹部）からなる）。貫通口 3 a' の開口率は、4 個の合計で 63% であり、連通経路 3 b' 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。

[0141] (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23.5mm、横1.0mm、深さ0.4mm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30mm、横27mm、厚み0.6mm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。

[0142] (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）を形成した。最後に、カソード極12に空気を供給するための開口51と、第2の開孔71（圧力調整孔）とを備えた蓋筐体50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。

[0143] <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。

[0144] [燃料電池の性能評価：実施例1および比較例1の燃料電池の出力特性（I-V特性）]

メタノール濃度17M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/cm²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

[0145] 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。

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。
- [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] 前記カソード極上に配置される第2の保湿層をさらに備え、
- 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に記載の燃料電池。
- [請求項6] 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、
- 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、かつ
- 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に記載の燃料電池。
- [請求項7] 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 に記載の燃料電池。

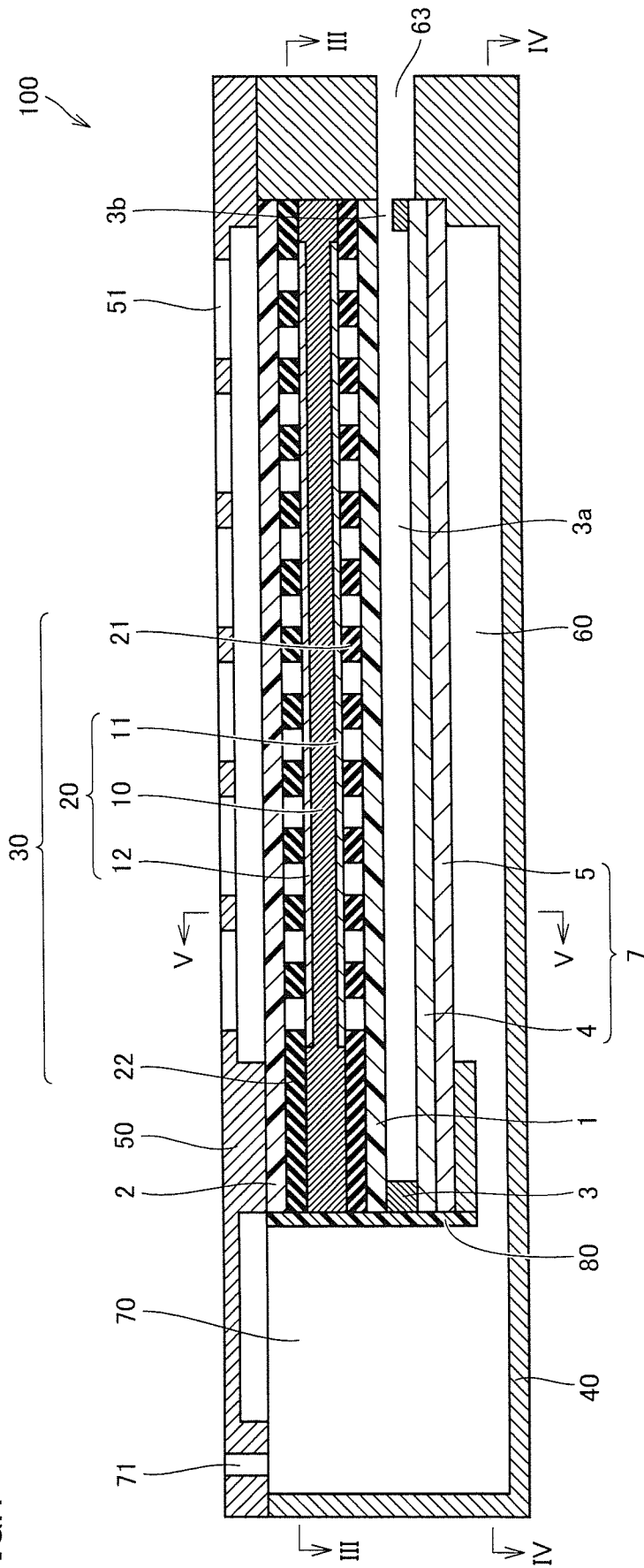
[請求項8] 前記気液分離層は、前記液体燃料収容部の開口を覆うように前記液体燃料収容部上に配置され、測定媒体をメタノールとしたときのバブルポイントが 30 kPa 以上である第 1 層と、前記第 1 層における単位電池側表面に積層され、前記液体燃料の気化成分を透過可能な第 2 層とから構成される 2 層構造を有する請求項 7 に記載の燃料電池。

[請求項9] ダイレクトアルコール型燃料電池である請求項 1 に記載の燃料電池。

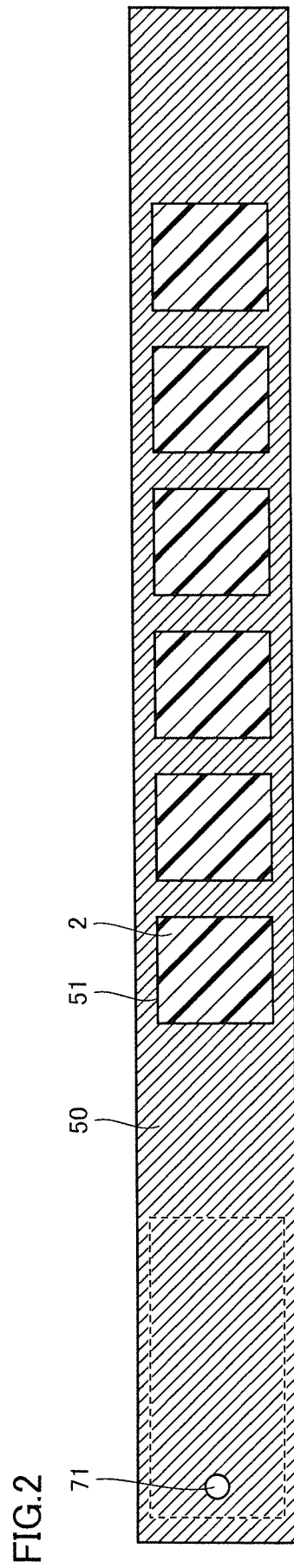
[請求項10] 前記液体燃料は、純メタノールまたはメタノール水溶液である請求項 9 に記載の燃料電池。

[図1]

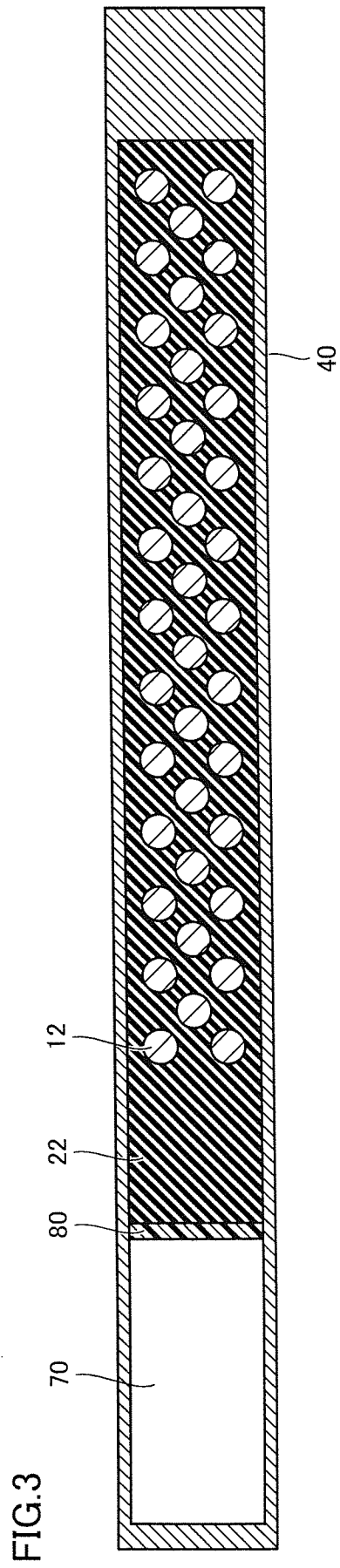
FIG.1



[図2]

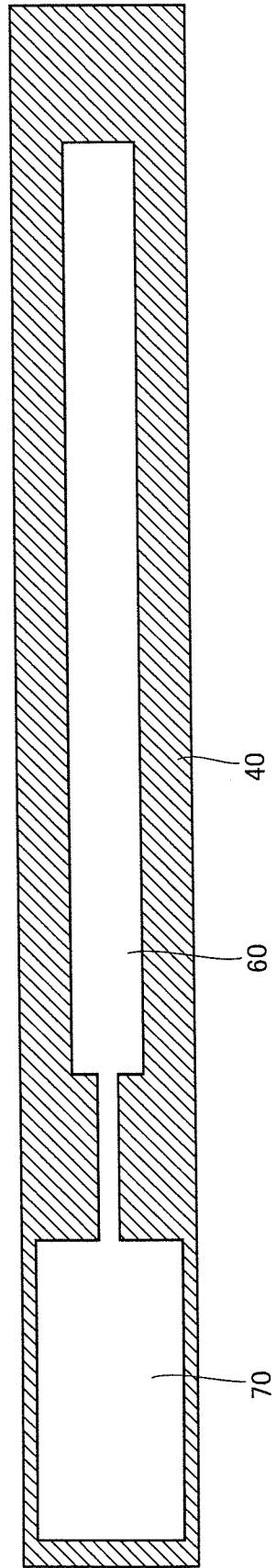


[図3]



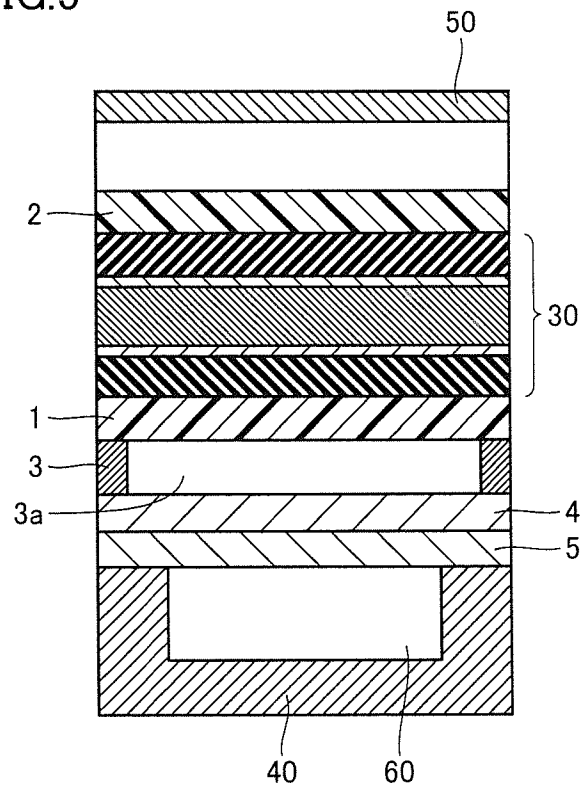
[図4]

FIG.4



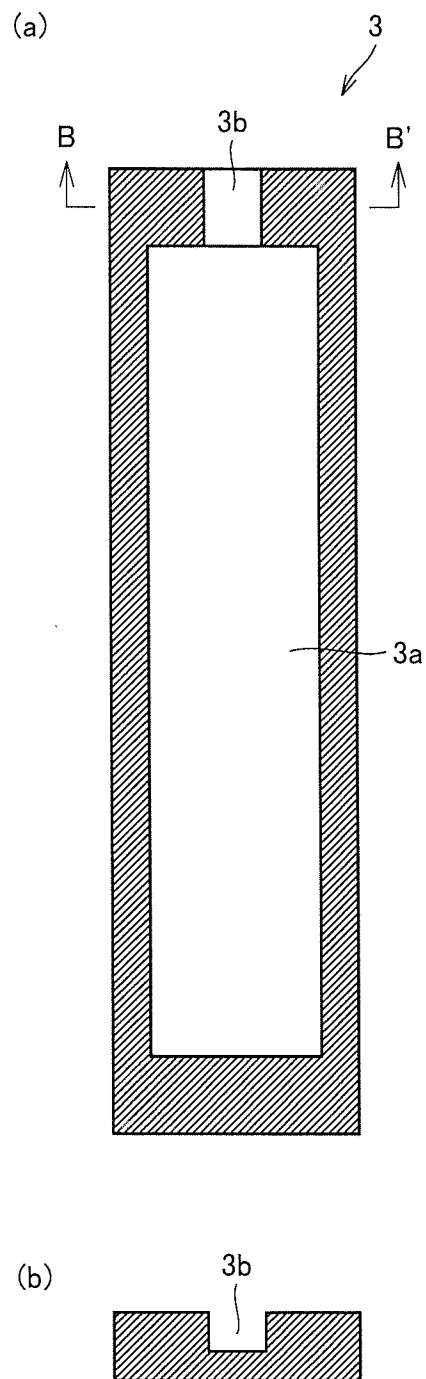
[図5]

FIG.5



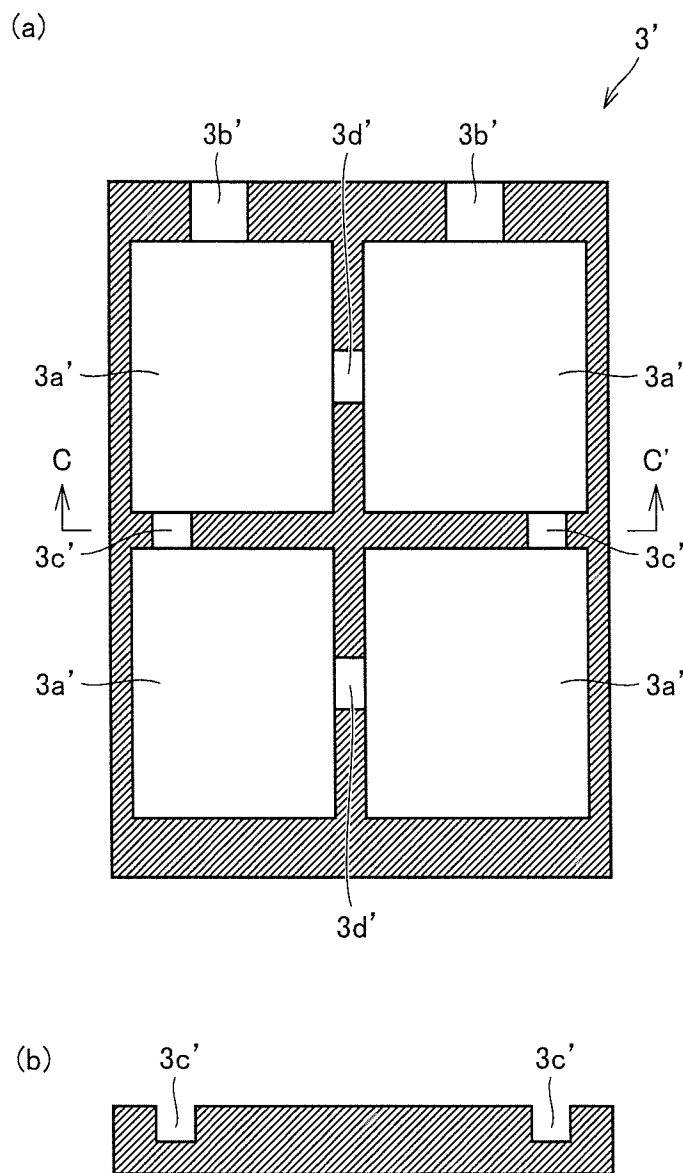
[図6]

FIG.6



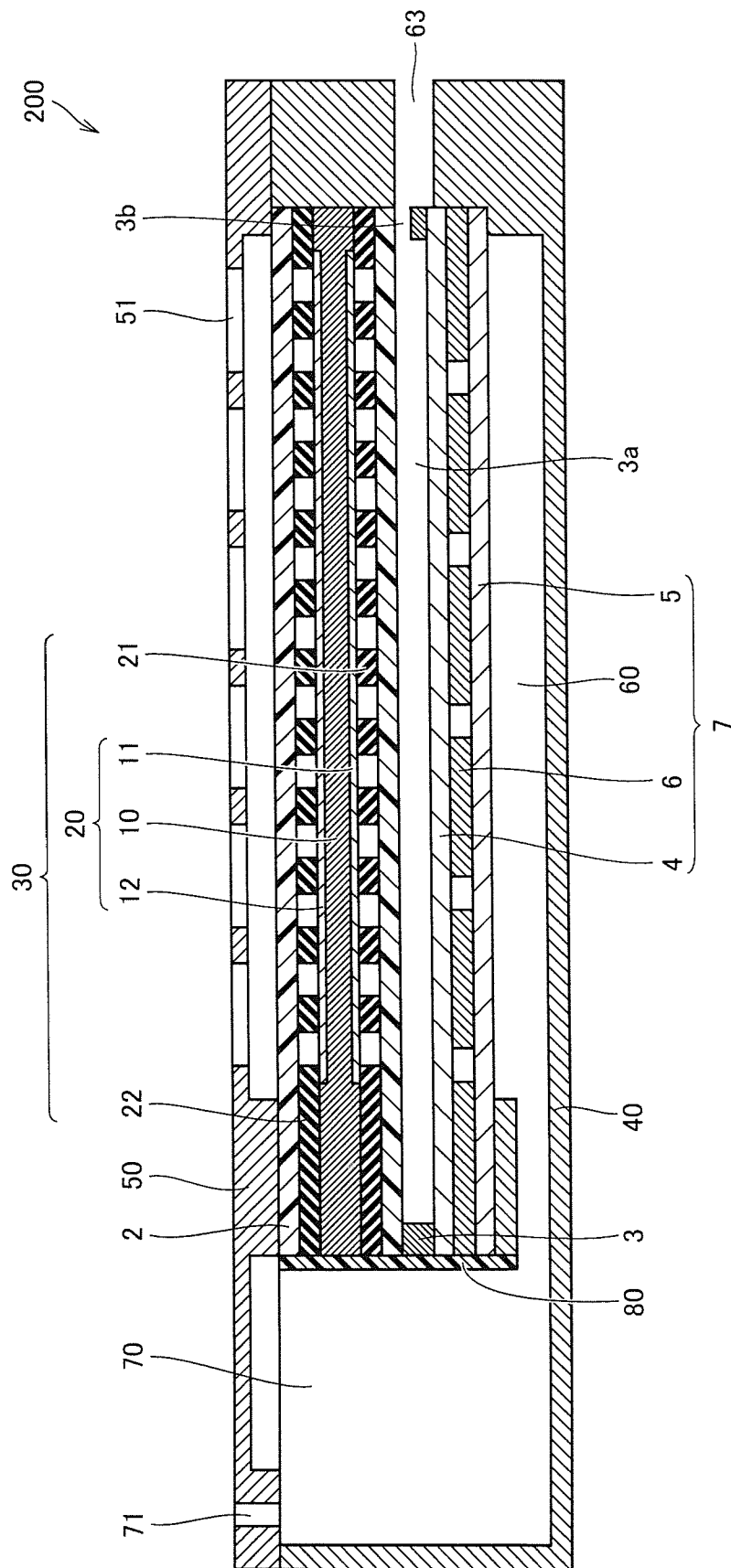
[図7]

FIG.7



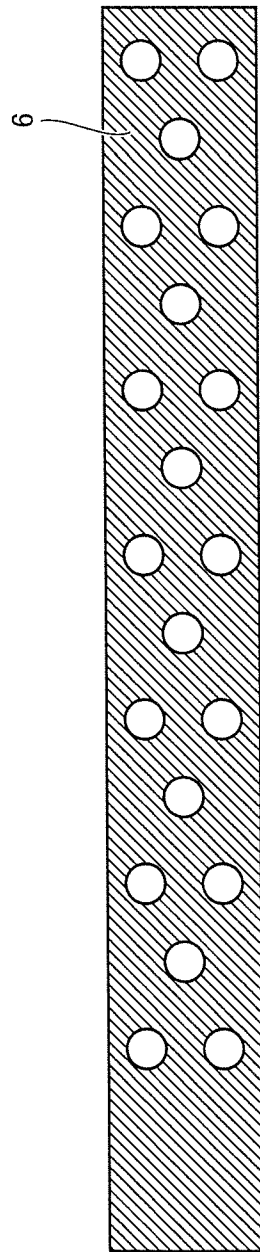
[図8]

FIG.8



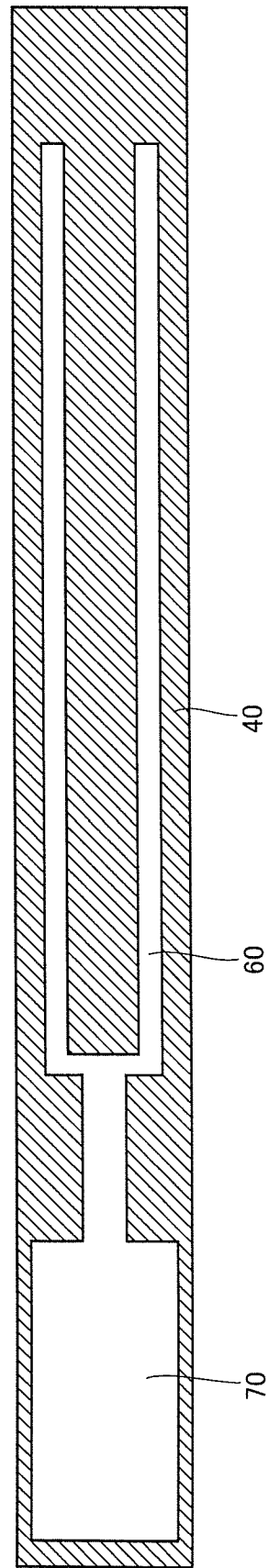
[図9]

FIG.9



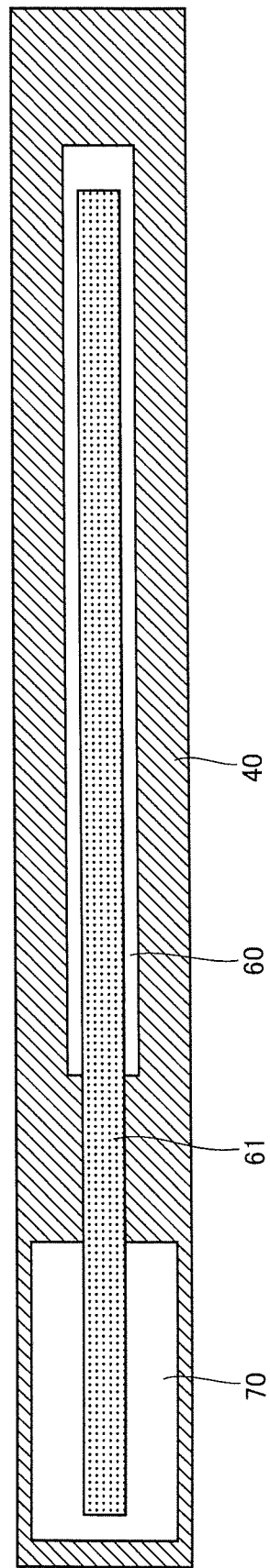
[図10]

FIG.10



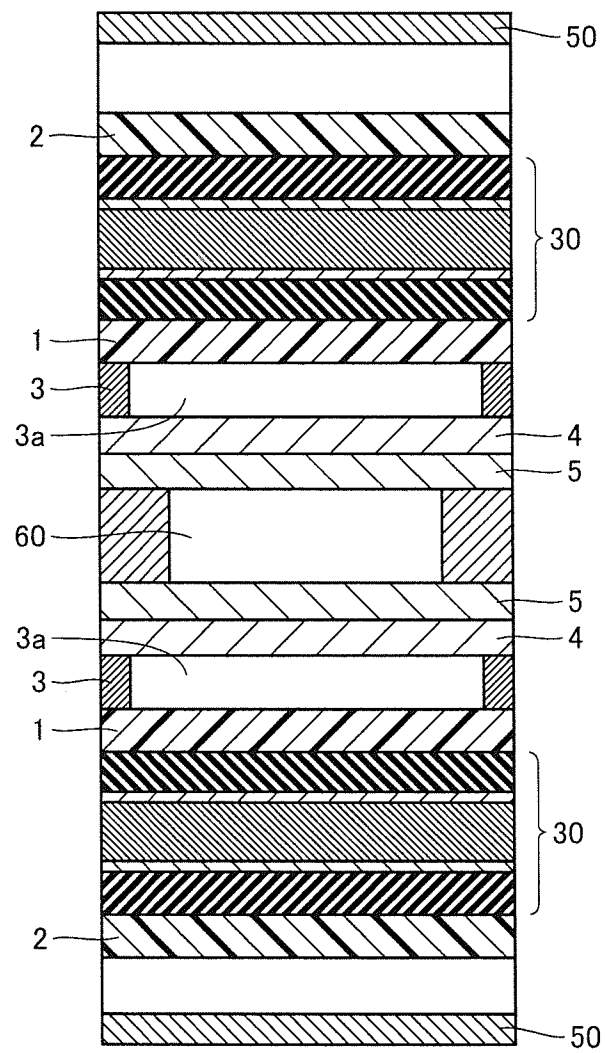
[図11]

FIG.11



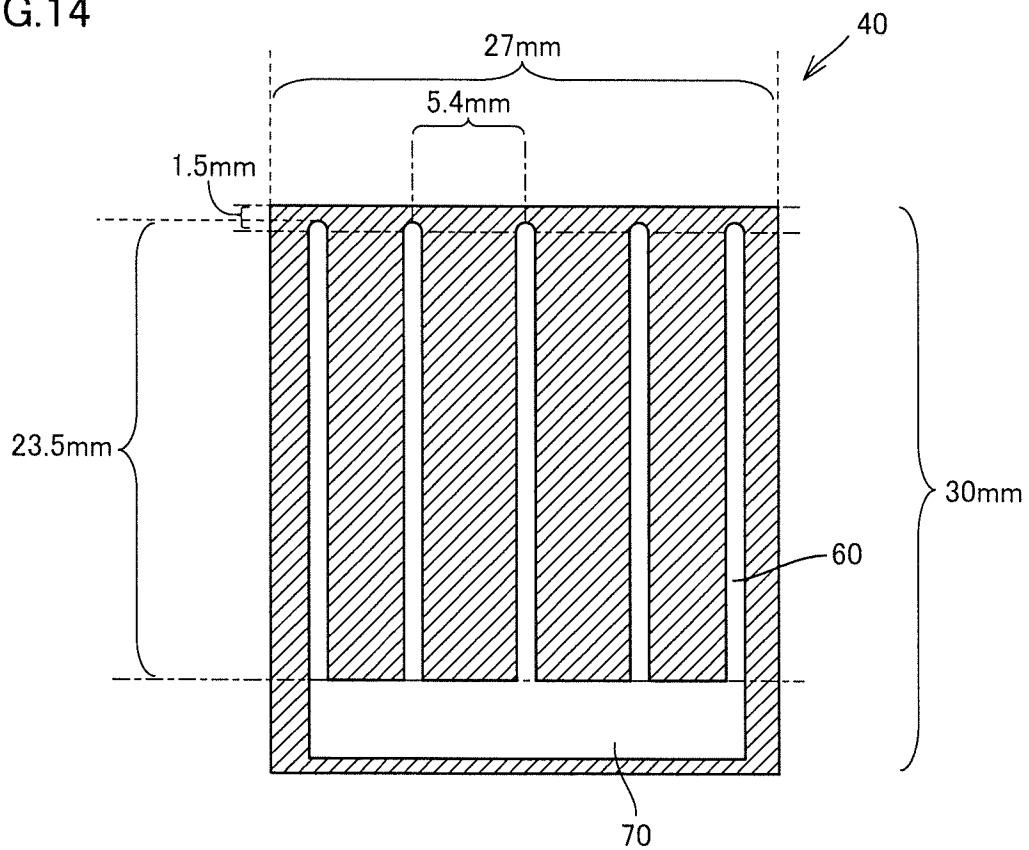
[図12]

FIG.12



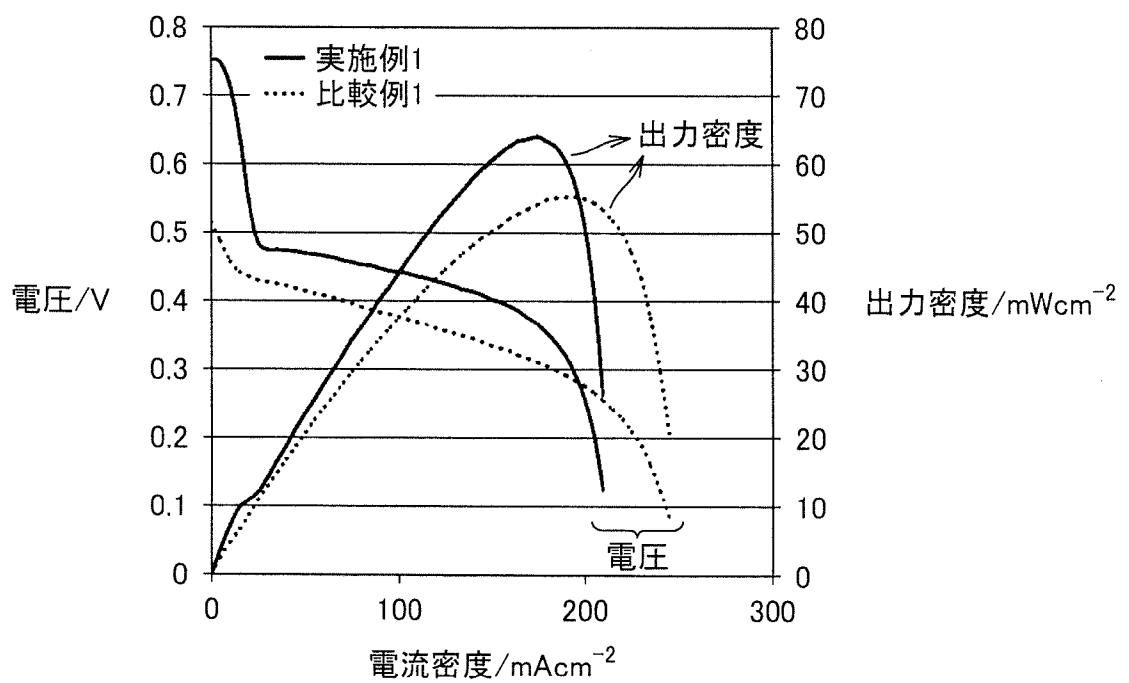
[図14]

FIG.14



[図15]

FIG.15



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063141

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M8/02(2006.01)i, H01M8/04(2006.01)i, H01M8/10(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)

H01M8/02, H01M8/04, H01M8/10

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 1996-2012

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

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 Y	WO 2005/112172 A1 (Toshiba Corp.), 24 November 2005 (24.11.2005), paragraphs [0040] to [0057]; fig. 5 & US 2007/0059575 A1 & EP 1758188 A1 & KR 10-2007-0011485 A & CN 1954451 A & TW 272739 B	1-7, 9, 10 8
X A	WO 2007/037199 A1 (Toshiba Corp.), 05 April 2007 (05.04.2007), paragraphs [0039], [0050]; fig. 3 & JP 2007-95558 A & US 2009/0042090 A1	1-3, 5, 9, 10 4, 7, 8
Y	WO 2008/068887 A1 (Toshiba Corp.), 12 June 2008 (12.06.2008), paragraph [0036]; fig. 1 & TW 200836394 A	8

☒ 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
20 June, 2012 (20.06.12)Date of mailing of the international search report
03 July, 2012 (03.07.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063141

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 2007-73349 A (Toshiba Corp.), 22 March 2007 (22.03.2007), entire text (Family: none)	1-10
A	JP 2007-214110 A (Sharp Corp.), 23 August 2007 (23.08.2007), entire text & US 2007/0166597 A1	1-10
A	WO 2007/063797 A1 (Toshiba Corp.), 07 June 2007 (07.06.2007), entire text & JP 2007-149565 A & US 2009/0317685 A1 & CN 101313433 A	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063141

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Each of documents 1 and 2 discloses a fuel cell which has the same configuration as that of the fuel cell described in claim 1.

Thus, the invention described in claim 1 has no special technical feature in light of the contents of documents 1 and 2. Therefore, it is obvious that the invention described in claim 1 and the inventions described in claim 2-10 do not comply with the requirement of unity of invention.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01M8/02(2006.01)i, H01M8/04(2006.01)i, H01M8/10(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. H01M8/02, H01M8/04, H01M8/10

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 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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 Y	WO 2005/112172 A1 (株式会社東芝) 2005.11.24, [0040]-[0057], [図 5] & US 2007/0059575 A1 & EP 1758188 A1 & KR 10-2007-0011485 A & CN 1954451 A & TW 272739 B	1-7, 9, 10 8
X A	WO 2007/037199 A1 (株式会社東芝) 2007.04.05, [0039], [0050], [図 3] & JP 2007-95558 A & US 2009/0042090 A1	1-3, 5, 9, 10 4, 7, 8
Y	WO 2008/068887 A1 (株式会社東芝) 2008.06.12, [0036], [図 1] & TW 200836394 A	8

☒ 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

2 0 . 0 6 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

0 3 . 0 7 . 2 0 1 2

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)

4 X

4 4 9 0

▲高▼橋 真由

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 7

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 2007-73349 A (株式会社東芝) 2007. 03. 22, 全文 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2007-214110 A (シャープ株式会社) 2007. 08. 23, 全文 & US 2007/0166597 A1	1-10
A	WO 2007/063797 A1 (株式会社東芝) 2007. 06. 07, 全文 & JP 2007-149565 A & US 2009/0317685 A1 & CN 101313433 A	1-10

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってP C T規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

文献1、2には、それぞれ、請求項1に記載された構成と同様の構成を有している燃料電池が記載されている。

してみると、文献1、2の記載に照らして、請求項1に係る発明は、特別な技術的特徴を有しないから、請求項1に係る発明と、請求項2－10に係る発明が単一性を満たしていないことは明らかである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。