

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5111722号  
(P5111722)

(45) 発行日 平成25年1月9日(2013.1.9)

(24) 登録日 平成24年10月19日(2012.10.19)

(51) Int.Cl.

H01M 8/04 (2006.01)

F 1

H01M 8/04

P

請求項の数 61 (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2004-81700 (P2004-81700)  
 (22) 出願日 平成16年3月19日 (2004.3.19)  
 (65) 公開番号 特開2004-288638 (P2004-288638A)  
 (43) 公開日 平成16年10月14日 (2004.10.14)  
 審査請求日 平成19年2月23日 (2007.2.23)  
 (31) 優先権主張番号 10/394,822  
 (32) 優先日 平成15年3月21日 (2003.3.21)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 591009509  
 ボーズ・コーポレーション  
 BOSE CORPORATION  
 アメリカ合衆国マサチューセッツ州017  
 01, フラミンガム, ザ・マウンテン (番地なし)  
 (74) 代理人 100064908  
 弁理士 志賀 正武  
 (74) 代理人 100089037  
 弁理士 渡邊 隆  
 (74) 代理人 100101465  
 弁理士 青山 正和  
 (74) 代理人 100108453  
 弁理士 村山 靖彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】電気化学発電

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

アノードと電解質とカソードとを有する燃料電池を用いて電気化学的発電を行う方法であって：

燃料を前記アノードに供給する段階と；

酸化剤を前記カソードに供給する段階と；

定電流の逆電流チャージングを前記燃料電池に周期的に供給する段階と；を備えた方法。

## 【請求項 2】

さらに、前記の燃料電池の作動状態をモニターすることを含む請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

10

## 【請求項 3】

前記燃料電池の作動状態をモニターすることが、前記燃料電池の作動状態をモニターし、該モニターの結果、前記燃料電池のパフォーマンスの低下を示すと判断したき、前記逆電流チャージングを供給する請求項 2 に記載の電気化学的発電を行う方法。

## 【請求項 4】

前記の燃料電池の作動状態をモニターすることが前記燃料電池の電圧をモニターすることを含む請求項 2 に記載の電気化学的発電を行う方法。

## 【請求項 5】

前記の逆電流チャージングを周期的に供給する段階が、逆電流パルスの数と各逆電流パ

20

ルスの経過時間とを選択することを含む請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 6】

モニターされた燃料電池作動条件に対応して、前記の逆電流パルスの所定数と各逆電流パルスの経過時間とを選択して、前記燃料電池の作動条件をモニターすることを含む請求項 5 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 7】

前記の逆電流チャージングを周期的に供給する段階が、前記のモニターされた燃料電池パフォーマンスが低下するときに逆電流パルスの数と各逆電流パルスの経過時間とを増大する請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 8】

前記の逆電流チャージングを周期的に供給する段階が、前記のモニターされた燃料電池パフォーマンスが改善するときに逆電流パルスの数と各逆電流パルスの経過時間とを低下する請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 9】

前記の酸素を前記カソードに供給する段階が、空気流を介して行われる請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 10】

前記の逆電流チャージングを周期的に供給する段階がさらに、酸化剤を前記カソードに供給するときに、空気流量を増大することを含む請求項 9 に記載の電気化学的発電を行う方法。

10

【請求項 11】

前記の酸化剤を前記カソードに供給する段階が、液体を介して行われる請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 12】

前記酸化剤が空気からの酸素ガスである請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 13】

前記酸化剤が塩素酸カリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

20

【請求項 14】

前記酸化剤が塩素酸ナトリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

30

【請求項 15】

前記酸化剤が過酸化水素を分解することによって得られる酸素である請求項 1 に記載の電気化学的発電を行う方法。

【請求項 16】

アノードと電解質とカソードとを備え、前記アノード及びカソードを接続する外部電源回路を有する燃料電池を前処理する方法であって：

メタノールを前記アノードに供給する段階と；

酸化剤を前記カソードに供給する段階と；

前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを前記燃料電池に周期的に供給する段階と；を備えた方法。

40

【請求項 17】

アノードと電解質とカソードとを備え、前記アノード及びカソードを接続する外部電源回路を有する燃料電池であって、前記燃料電池が反転状態のときに燃料電池のパフォーマンスを回復させる方法であって：

燃料を前記アノードに供給する段階と；

酸化剤を前記カソードに供給する段階と；

前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを前記燃料電池に周期的に供給する段階と；を備えた方法。

【請求項 18】

50

燃料電池を有するシステムを作動する方法であって、前記燃料電池はアノードと電解質とカソードとを備え、前記アノード及びカソードを接続する外部電源回路と、前記アノード及びカソードを接続する外部負荷回路とを備えたところの方法において：

前記燃料電池を作動して電力を供給する段階と；

前記システムの作動条件をモニターする段階と；

モニターされたシステム作動条件に基づいて、前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを前記燃料電池に周期的に供給する段階と；を備えた方法。

【請求項 19】

前記の燃料電池を作動して電力を供給する段階が、前記外部電源回路に電力を供給し、前記外部電源回路が、前記外部負荷回路に電力をさらに供給する請求項 18 に記載の方法。  
10

【請求項 20】

前記のシステムの作動条件をモニターする段階が、前記燃料電池のパフォーマンスをモニターすることを含む請求項 18 に記載の方法。

【請求項 21】

前記のシステムの作動条件をモニターする段階が、前記燃料電池の作動条件をモニターすることを含む請求項 18 に記載の方法。

【請求項 22】

前記のシステムの作動条件をモニターする段階が、前記外部負荷回路の負荷電流をモニターすることを含む請求項 18 に記載の方法。  
20

【請求項 23】

逆電流チャージングを前記燃料電池に選択的に供給するときに、前記外部電源回路が前記負荷回路に電力を供給する請求項 18 に記載の方法。

【請求項 24】

アノードと電解質とカソードとを有する燃料電池と、  
前記アノードとカソードとを接続する外部電源回路と、  
燃料を前記アノードに供給する第 1 のサプライヤーと、  
酸化剤を前記カソードに供給する第 2 のサプライヤーと、  
前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを周期的に供給するコントローラと、を備えた燃料電池作動装置。  
30

【請求項 25】

前記燃料電池はカーボン母体の燃料を消費する請求項 24 に記載の装置。

【請求項 26】

前記のカーボン母体の燃料電池は直接型メタノール燃料電池 (DMFC) である請求項 25 に記載の装置。

【請求項 27】

前記燃料電池は水素燃料電池である請求項 24 に記載の装置。

【請求項 28】

前記水素燃料電池は燃料として純水素を用いる請求項 27 に記載の装置。

【請求項 29】

前記水素燃料電池は燃料として一酸化炭素を混合した水素を用いる請求項 27 に記載の装置。  
40

【請求項 30】

前記コントローラは、前記燃料電池のパフォーマンス及び作動状態をモニターするよう構成され配置されている請求項 24 に記載の装置。

【請求項 31】

前記コントローラは、前記外部負荷回路電流をモニターするよう構成され配置されている請求項 24 に記載の装置。

【請求項 32】

前記第 2 のサプライヤーは空気流を介して酸化剤を前記カソードに供給する請求項 24  
50

に記載の装置。

【請求項 3 3】

前記第 2 のサプライヤーは液体を介して酸化剤を前記カソードに供給する請求項 2 4 に記載の装置。

【請求項 3 4】

前記酸化剤は空気からの酸素ガスである請求項 2 4 に記載の装置。

【請求項 3 5】

前記酸化剤が塩素酸カリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 2 4 に記載の装置。

【請求項 3 6】

前記酸化剤が塩素酸ナトリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 2 4 に記載の装置。

【請求項 3 7】

前記酸化剤が過酸化水素を分解することによって得られる酸素である請求項 2 4 に記載の装置。

【請求項 3 8】

アノードと電解質とカソードとを有する燃料電池と、

前記アノードとカソードとを接続する外部電源回路と、

燃料を前記アノードに供給する第 1 のサプライヤーと、

酸化剤を前記カソードに供給する第 2 のサプライヤーと、

前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを燃料電池に周期的に供給するコントローラと、を備えた燃料電池を前処理する装置。

【請求項 3 9】

前記燃料電池はカーボン母体の燃料を消費する請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 0】

前記のカーボン母体の燃料電池は直接型メタノール燃料電池 (DMFC) である請求項 3 9 に記載の装置。

【請求項 4 1】

前記燃料電池は水素燃料電池である請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 2】

前記水素燃料電池は燃料として純水素を用いる請求項 4 1 に記載の装置。

【請求項 4 3】

前記水素燃料電池は燃料として一酸化炭素を混合した水素を用いる請求項 4 1 に記載の装置。

【請求項 4 4】

前記コントローラは、前記燃料電池のパフォーマンス及び作動状態をモニターするよう構成され配置されている請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 5】

前記第 2 のサプライヤーは空気流を介して酸化剤を前記カソードに供給する請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 6】

前記第 2 のサプライヤーは液体を介して酸化剤を前記カソードに供給する請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 7】

前記酸化剤は空気からの酸素ガスである請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 8】

前記酸化剤が塩素酸カリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 4 9】

前記酸化剤が塩素酸ナトリウムを分解することによって得られる酸素である請求項 3 8

10

20

30

40

50

に記載の装置。

【請求項 5 0】

前記酸化剤が過酸化水素を分解することによって得られる酸素である請求項 3 8 に記載の装置。

【請求項 5 1】

アノードと電解質とカソードとを有する燃料電池と、  
前記アノードとカソードとを接続する外部電源回路と、  
燃料を前記アノードに供給する第 1 のサプライヤーと、  
酸化剤を前記カソードに供給する第 2 のサプライヤーと、  
前記外部電源回路を介して定電流の逆電流チャージングを燃料電池に周期的に供給する  
コントローラと、  
を備えた反転して燃料電池を作動する装置。

【請求項 5 2】

前記燃料電池はカーボン母体の燃料を消費する請求項 5 1 に記載の装置。

【請求項 5 3】

前記のカーボン母体の燃料電池は直接型メタノール燃料電池 (DMFC) である請求項 5 1 に記載の装置。

【請求項 5 4】

前記燃料電池は水素燃料電池である請求項 5 1 に記載の装置。

【請求項 5 5】

前記水素燃料電池は燃料として純水素を用いる請求項 5 4 に記載の装置。

【請求項 5 6】

前記水素燃料電池は燃料として一酸化炭素を混合した水素を用いる請求項 5 4 に記載の装置。

【請求項 5 7】

前記コントローラは、前記燃料電池のパフォーマンス及び作動状態をモニターするよう  
に構成され配置されている請求項 5 1 に記載の装置。

【請求項 5 8】

アノードと電解質とカソードとを有する燃料電池であって、電気を生成する燃料電池と  
、  
前記アノードとカソードとを接続する外部電源回路と、  
前記アノード及びカソードに接続される外部負荷回路と、  
定電流の逆電流チャージングを燃料電池に周期的に供給するために前記外部電源回路を  
制御するコントローラと、を備えた燃料を電気に変換する電力装置。

【請求項 5 9】

前記燃料電池はカーボン母体の燃料を消費する請求項 5 8 に記載の装置。

【請求項 6 0】

前記のカーボン母体の燃料電池は直接型メタノール燃料電池 (DMFC) である請求項 5 9 に記載の装置。

【請求項 6 1】

前記燃料電池は水素燃料電池である請求項 5 8 に記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は燃料電池に関し、特に燃料電池に逆(反転)電流をチャージする新規な装置及びその方法に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、化学エネルギーを電気エネルギーに変換することによって使用できる電気  
を生成する電気化学的装置である。典型的な燃料電池は、電解質(例えば、高分子電解質

10

20

30

40

50

膜 (P E M) ) によって分離された正負の電極を含む。典型的な直接メタノール燃料電池 (D M F C) において、負極に供給される水素又はメタノールのような燃料をアノード触媒に拡散し、陽子 (プロトン) 及び電子に分離する。陽子は P E M を通過してカソードへ進み、電子は外部回路を通って負荷に電力を供給する。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 3】

本発明では、燃料電池の作動を周期的に中断し、中断中に電池に逆チャージ電流を供給するものである。

【0 0 0 4】

他の態様では、カソードで空気流量 (空気流速) を増加する。

10

【0 0 0 5】

他の態様では、本発明は、燃料電池の作動の中断時に負荷を支持しながら燃料電池に逆電流を供給し、通常作動中に燃料電池がエネルギー蓄積要素を再チャージするものである。

【0 0 0 6】

本発明の他の特徴、目的及び利点は、添付図面と共に以下の詳細な説明から明らかになるだろう。

【発明を実施するための最良の形態】

【0 0 0 7】

20

本発明の方法及び装置を、直接メタノール燃料電池 (D M F C) に関係付けて説明する。しかしながら、本発明の方法及び装置は限定的ではないが、メタノール及びエタノールのようなカーボンベース (母体) の燃料を利用する燃料電池を含むいかなる燃料電池にも適用可能である。燃料として、純水素又は一酸化炭素 (C O) で汚染された (混合された) 水素を利用する水素燃料電池にも適用される。図 1 は、電気化学的に酸化されて電子 (e<sup>-</sup>) 及び陽子 (H<sup>+</sup>) を生成する負電極 (アノード) にメタノールが供給される作動における D M F C 1 1 0 のシステム (装置) ブロック図を示すものである。陽子は電解質 1 0 0 を介してカソード 1 3 0 へ移動する。電解質 1 0 0 は、固体高分子電解質膜 (P E M) 型であり得る。電子は外部回路 (以下に説明する) を介して正電極 (カソード) 1 3 0 に進み、ここで、P E M を介して伝導した酸素 (又は酸化剤) 及び陽子と反応して水と熱を生成する。酸素は、例えば、空気を流したり又は液体を介して運搬する等の種々の方法によってカソード 1 3 0 に供給することができる。酸化剤は、酸化するため、及び / 又は、液体又は気体を介してカソードへ酸素を運搬するために用いることができる。多くの可能な酸化剤、例えば、塩素酸カリウム (K C 1 O<sub>3</sub>) 及び塩素酸ナトリウム (N a C 1 O<sub>3</sub>) は、加熱されると、分解し、酸素を放出できる。(液状の) 過酸化水素も、触媒又は酸に接触すると、分解し、酸素を放出できる。これらの酸化剤はカソードに直接接触し、電子と反応して還元反応を完了することができるが、これらはまず分解し、次いで放出された酸素がカソードに運搬され得る。

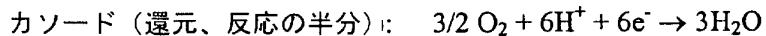
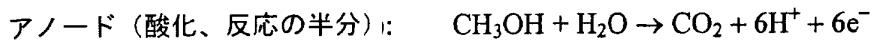
30

【0 0 0 8】

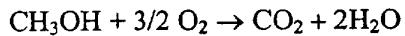
電極は P E M の一方側に接触し、典型的には、白金 (P t) 若しくは白金混合物やルテニウム若しくは白金ルテニウム (P t - R u) のような触媒で被覆されたカーボン紙の態様である。アノード及びカソードで生じる電気化学反応は以下で表すことができる：

40

【化 1】



総反応：



【0 0 0 9】

50

アノードで生成した電子は、出力（電力）処理（パワープロセッシング）回路及び負荷回路（以下に説明する）を含む外部回路200を介して進む。外部回路200は、例えば、バッテリー及び／又はキャパシタを含むことができるエネルギー蓄積ユニット150を含む。燃料電池からのエネルギーは、エネルギー蓄積ユニット150の中に蓄積（セーブ）することができる。外部回路200は、必要なら、任意で、エネルギー蓄積ユニット150を適当に供給するために燃料電池からの電力を調節する第1の中間（介在）電力処理回路140を含むことができる。第1の中間出力処理回路は例えば、DC/DC変換器を含むことができる。エネルギー蓄積ユニット150に蓄積されたエネルギーは、任意の第2の出力処理回路160を介して負荷回路170（例えば、携帯電子装置）に給電するために用いることができる。第2の出力処理回路160は、負荷回路170の要求に依存してエネルギー蓄積ユニット150から出力にさらに出力調整を付与してもよく、また、例えば、DC/DC又はDC/AC変換器を含んでもよい。第1の出力処理回路140、第2の出力処理回路160及びエネルギー蓄積ユニット150の組合せによって、負荷回路170に電力を供給する。

#### 【0010】

燃料電池中断を、出力処理回路180、第2の処理回路160、エネルギー蓄積ユニット150、及び制御ボックス190の相互作用によって供給することができる。回路180及び制御ボックス190は、ハードウェアモジュール、ソフトウェアモジュール又はその組合せを備えてもよい。回路180は、スイッチ又はリレー147を介して燃料電池に逆電流185を供給することによって、エネルギー蓄積ユニット150から電力を引き出す。回路180は、通常の燃料電池放電（ディスチャージ）電流に逆の電流を注入することによって、燃料電池に逆電流を供給する。従って、逆電流チャージング中のカソード電位は通常作動中のものより高く、アノード電位は通常作動中のものより低い。スイッチ又はリレー147は通常燃料電池作動用にターミナル145に接続する。スイッチ又はリレー147は、逆電流チャージング中はスイッチターミナル146に接続し、エネルギー蓄積ユニット150に蓄積されたエネルギーからの電力を回路180に供給する。エネルギー蓄積ユニット150は、逆電流チャージング中に第2の出力処理回路160を介して負荷170に電力を供給し続ける。制御ボックス190はエネルギー蓄積ユニット150から電力を引き出し、回路180がシステムに逆電流パルスをどのように供給するかを制御する。逆電流チャージは逆電流パルスの数及び各パルスの継続時間に關係し、燃料電池仕様、燃料電池作動状態（ステータス）、燃料電池性能及び外部回路作動条件に依存する。制御ボックス190は、燃料電池作動状態（例えば、燃料電池が前処理を必要とするかどうか、逆状態であるかどうか、又は、長時間作動するかどうか、パフォーマンスの遅れが観察されたかどうか）に依存して、燃料電池のパフォーマンスを改善するために、燃料電池に周期的に逆電流チャージを供給することができる。制御ボックス190は、燃料電池電圧、負荷電流175、出力処理回路160、エネルギー蓄積ユニット150のような種々の電池パフォーマンス（性能）パラメータや、ステータスライン125を介した燃料電池作動状態や、燃料供給ステータスをモニターすることによる燃料電池反転（リバーサル）や、作動継続時間、及び長期間（ロングターム）パフォーマンス低下をモニターする。

#### 【0011】

燃料電池に印加される逆電流チャージパルスは、回路180及びスイッチ若しくはリレー147を介してのモニターされたパラメータ毎に制御することができる。例えば、制御ボックス190は、逆電流チャージング中に出力処理回路140の機能を無効にし得る。燃料電池出力電圧の低下が観察されると、制御ボックス190は初期に迅速な逆電流パルス群を電池に供給して燃料電池電力出力のレベルを増大することができる。次いで、逆電流パルスを、例えば、電池出力の観察された増加及び安定に起因して、モニターされた電池パフォーマンスによって決定されたものより低い頻度に調整することができる。一般的には、燃料電池を構築し、配置して安定な電力を負荷回路170に提供し、電源150に蓄積された余分のエネルギーをさらに供給して、負荷回路170からのピーク電力要求を満足することができる。

10

20

30

40

50

## 【0012】

実施例

膜電極アセンブリ (MEA) は作製若しくは商用源から購入した。MEAは $16\text{ cm}^2$ のアクティブ領域を有する単一セルでテストした。実験は1Mメタノール溶液及び圧縮空気を用いた行った。逆電流は典型的には負荷電流と同じだった。逆電流チャージングの継続時間は数秒から数分の範囲だった。チャージング中、セル電圧は開放回路電圧より大きく、カソードは酸化状態でありアノードは還元状態だった。

## 【0013】

MEAは以下のように準備した：Pt - Ruブラック (ジョンソン・マッセイ、ロンドン、英国)を5重量%NAFION溶液 (エレクトロケム社、ウォーボーン、マサチューセッツ州)と水に混合し、インクを生成する。次いで、アノード電極は、得られたインク層をプリ (予備) テフロン (登録商標) 化されたカーボン紙 (東レ、トレイカ、日本)に付けることによって準備した。Pt Ruブラック (ジョンソン・マッセイ、ロンドン、英国)の代わりにPtを用いることを除いて、カソードを準備するのに同様なプロセスを用いた。完全なMEAは、アノード電極及びカソード電極をNAFION (登録商標) (デュポン社、ウィルミントン、デラウェア州)に結合することによって作製した。燃料と空気の供給によって、2つの加熱したグラファイトブロック間でテストするために、MEAを作製した。

10

## 【0014】

実施例1

20

この例は、本発明に従って準備した燃料電池の前処理を介してパフォーマンス (性能) の改善を証明している。図3に証明したように、逆電流を軽めにMEAに付与した後は、前処理後のMEAのパフォーマンスは、短時間逆電流チャージング前処理 (図3における曲線 (b)) の前のパフォーマンスと比べて大きく改善した。

## 【0015】

MEAは、 $4.5\text{ mg/cm}^2$ のPt - Ruと $3\text{ mg/cm}^2$ のPtとを用いて作製した。NAFION (登録商標) N117を電解質膜 (デュポン社、ウィルミントン、デラウェア州)として用いた。新たに作製されたMEAパフォーマンス (出力電圧)を、前処理の前後の両方で、70°で2A負荷でテストした。

30

## 【0016】

短時間逆電流チャージングを介した前処理を以下のように実施した：逆電流チャージングを、180秒にわたって計6回、2Aの18秒逆電流チャージングを周期的に付与することによってMEA上で実施した。逆電流チャージングされなかったとき、セル出力電流を2Aに維持した。電力改善は15%だった (一定出力電流状態で図2に示した15%電圧改善によって、15%電力改善された。)。逆電流チャージング後に、セルによってより高い電圧で電力が供給されたことに留意されたい。

## 【0017】

実施例2

本実施例は、周期的な逆電流チャージングの効果として、長期間での燃料電池パフォーマンスの低下を緩やかにすることを実証するものである。燃料電池は通常、例えば、定電流モードで一定負荷の下で作動する。このモードでの長期間作動によって、セルの出力電圧は低下する。この例では、燃料電池作動は周期的に手動で中断し、逆電流チャージングパルスを印加する。作動システムでは、これらの機能を図1のシステム、すなわち、スイッチ147が回路180及び制御ボックス190を介して位置145と146との間で周期的にスイッチされることによって備える。

40

## 【0018】

テストされたMEAは、NAFION (登録商標) N117膜を用いて、アノード側上に $2.2\text{ mg/cm}^2$  (ジョンソン・マッセイ社) のPt - Ruと、カソード側上の $3.3\text{ mg/cm}^2$ のPtとで準備した。テフロン (登録商標) 化された東レカーボン紙を気体拡散電極として用いた。セルを42°で $550\text{ ccc/min}$ の空気流でテストした。燃

50

料電池作動を、負荷から燃料電池の接続を切ることによって負荷電流(0.78 A)を中断することを介して中断した。中断中に、逆電流パルスを外部電源回路を介して印加した。

#### 【0019】

セルは、0.81 A / 15 min の放電の後に -0.81 A / 0.3 min の逆電流チャージングを行う電流の放電 / チャージ(充電)サイクルの第1の期間(ピリオド)についてテストした。次いでセルを、0.78 A の一定の電流放電だけから成る第2の期間に對してテストした。図3の曲線は、両方の期間に對して、テスト下のセルの出力を示している。セルは、周期的中断及び逆電流チャージングを行った時間の間の 0.5 mV / hr のパフォーマンス低下に對して、定電流作動を行っていた期間に對してほぼ 3 mV / hr のパフォーマンス低下を経験した。 10

#### 【0020】

周期的逆電流チャージングを行っている間の期間での電流放電は、セルを一定電流負荷(0.78 A)で作動中の期間より高いレベル(0.81 A)で維持していたことは留意されたい。これは、十分なエネルギーが、負荷 170 と逆電流チャージング回路 180 からのエネルギー要求とを満足させるために逆電流チャージング期間中に利用可能であることを保証するために行われるものである。

#### 【0021】

##### 実施例3

この実施例は、セルの反転(逆転)を行った後、燃料電池パフォーマンスの回復を示すものである。燃料電池の長期間作動中に、大きなセルスタックに含まれている一又は二以上のセルの出力電圧について逆にすることが可能である。これが生じるときは、セル出力電圧は負となる。すなわち、セルの反転中に、アノードはカソードよりも高い正(電位)となる。反転についての一の共通の起因は反応物の枯渇である。セルの反転はアノード又はカソードのいずれかにおいて反応物の枯渇によって生じ得るが、アノード燃料を制限するときに最大の問題が生じる。例えば、アノード内に燃料がないと、カーボン腐食が生じ、アノード触媒は過度の酸化によってダメージを受け得る。しかしながら、本発明による電流逆(反転)手順を用いると、セルは回復し得る。 20

#### 【0022】

セル電圧が負となるまで燃料なしで時々セルを作動することによって、セル反転のシミュレーションを行った。セルに逆電流を短時間付与することによって、セル低下が減少し、セルパフォーマンスがほとんど回復した。 30

#### 【0023】

以下に説明する定義された負荷(放電電流)を用いて、まずMEAをテストした。セル電圧を安定化した後、セルダメージを生じさせるのに十分の時間、セルを介して同じ電流量を付与している間、燃料ポンプを止めた。セル反転によって生じたセルダメージは、燃料源が回復した後のセル電圧が同じ出力電流密度条件の下でもともとのセル電圧より低かったならば、生じることが決まっていた。

#### 【0024】

MEAは、膜(メンブレン)上にプリコートされる触媒と共にリンテック(カレッジ・ステーション社、テキサス州)から購入した。アノードは 4 mg / cm<sup>2</sup> の Pt - Ru を含んでおり、カソードは 4 mg / cm<sup>2</sup> の Pt を含んでいた。このMEAは、アノード気体拡散電極としてテフロン(登録商標)化されたカーボン紙を、またカソード気体拡散電極として金メッシュを用いて、600 cc / min の空気流を使用してテストした。図4は、70 °で 1 A 負荷で燃料電池パフォーマンス(性能)曲線(電圧 v s 時間)を示す。(図4の曲線(a))の間のテスト後、同量の電流をセルから取り出している間、燃料供給ポンプを止めた。数分後、セル電圧を反転した(図4の曲線(b))。アノードは、-1.7 V のセル電圧出力を用いてカソードよりも高い正だった。燃料ポンプを入れて燃料供給を回復した後、出力電圧をセル反転前よりも大きく低下した(図4の曲線(c))。数個の短時間逆電流チャージングパルスを印加した後、セル電圧の大部分は回復した(図 40

4 の曲線( d ) )。

【 0 0 2 5 】

実施例 4

本実施例は、逆電流チャージングを増大する空気流量に結合することを示す。図 5 は、カソード側の空気流量の増加と共に逆電流チャージングを用いた燃料電池電圧の改善を示している。

【 0 0 2 6 】

実施例 1 で準備した M E A を用いると、逆電流チャージングを 2 0 0 c c / m i n ( 図 5 の曲線( c ) ) 及び 6 0 0 c c / m i n ( 図 5 の曲線( a ) ) でテストした。逆電流チャージングの前は、 M E A はより低い空気流量を有していた。逆電流チャージングの後は、 M E A は、より低い空気流量での M E A ( 図 5 の曲線( d ) ) よりも高い空気流量 ( 図 5 の曲線( b ) ) でより高い電圧出力を有していた。

【 0 0 2 7 】

燃料電池パフォーマンスの改善のための新規な装置及び手法を示した。当業者から、本発明の思想から逸脱することなく、本明細書に示した実施形態に対して多くの変形及び変更が可能であることは明らかである。結果として、本発明は、本明細書に開示した装置及び手法によって、かつ、添付の特許請求の範囲の精神及び範囲によって決められた各特徴及び全ての特徴並びに特徴の組合せを想到することによって把握される。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 2 8 】

【 図 1 】本発明によって作動する燃料電池のシステムブロック図を示す図である。

【 図 2 】本発明による逆電流チャージングを用いて燃料電池の前処理の効果を実証する電圧対時間のグラフである。

【 図 3 】本発明による逆電流チャージングを用いて燃料電池電圧の長期間低下の改善を立証する実証する電圧対時間のグラフである。

【 図 4 】本発明による逆電流チャージングを用いてセル反転後に、燃料電池電圧の回復を示す電圧対時間のグラフである。

【 図 5 】本発明による逆電流チャージングを用いた燃料電池電圧とカソード側空気流の増大との改善を示す電圧対時間のグラフである。

【 符号の説明 】

【 0 0 2 9 】

1 0 0 電解質

1 1 0 D M F C

1 3 0 カソード

1 4 0 出力処理回路

1 4 5 ターミナル

1 5 0 エネルギー蓄積ユニット

1 6 0 出力処理回路

1 7 0 負荷回路

1 8 0 出力処理回路

1 9 0 制御ボックス

2 0 0 外部回路

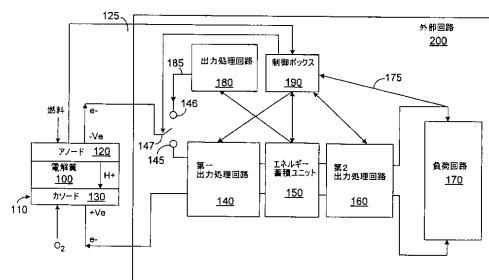
10

20

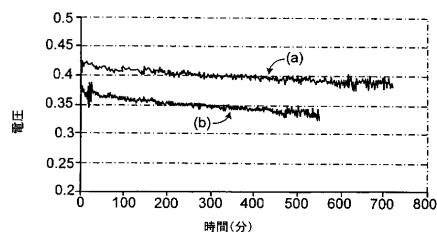
30

40

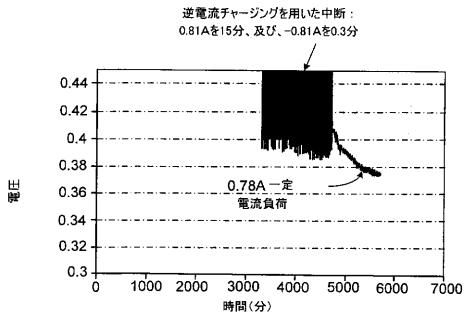
【図1】



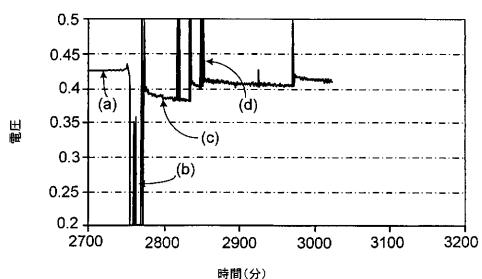
【図2】



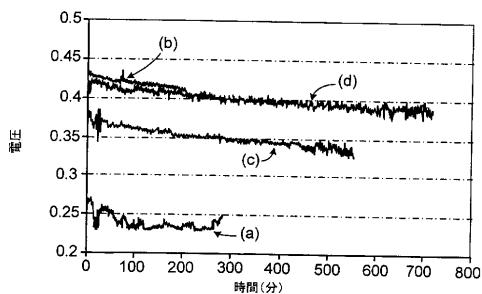
【図3】



【図4】



【図5】



---

フロントページの続き

(74)代理人 100110364

弁理士 実広 信哉

(72)発明者 リカルド・エフ・カレラス

アメリカ合衆国・マサチューセッツ・01701-9168・フラミンガム・ザ・マウンテン・(番地なし)

(72)発明者 リフン・リン

アメリカ合衆国・マサチューセッツ・01701-9168・フラミンガム・ザ・マウンテン・(番地なし)

審査官 國島 明弘

(56)参考文献 國際公開第02/019446 (WO, A1)

特表2000-512069 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/04