

(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
2011 年 10 月 13 日(13.10.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/125094 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/02 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
H01M 4/86 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/002441
- (22) 国際出願日: 2010 年 4 月 2 日(02.04.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 田村 淳 (TAMURA, Jun). 中野 義彦 (NAKANO, Yoshihiko). 山崎 六月 (YAMAZAKI, Mutsuki).
- (74) 代理人: 砂井 正之 (SAGOI Masayuki); 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 東芝テクノセンター 株式会社内 Tokyo (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, JP, 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, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

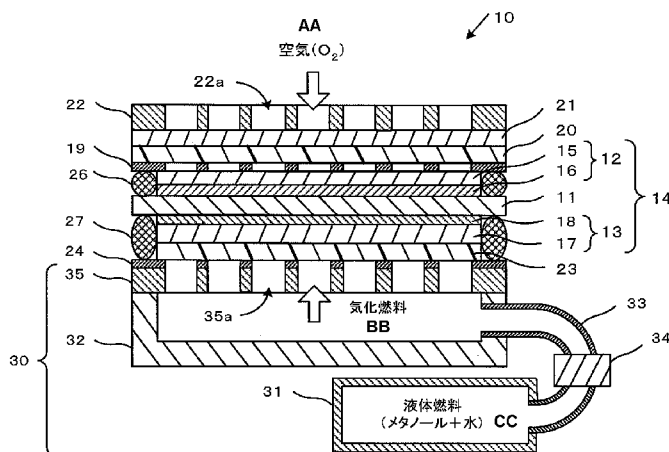
添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池

[図1]



AA AIR (O₂)
BB VAPORIZED FUEL
CC LIQUID FUEL (METHANOL + WATER)

(57) Abstract: Disclosed is a fuel cell which is suppressed in deterioration of the cell voltage and has sufficient reliability. Specifically disclosed is a fuel cell which comprises: a cathode (12), which comprises a cathode catalyst layer (16) and a first cathode gas diffusion layer (15) that is arranged on the cathode catalyst layer (16) and contains a fluororesin, and to which an oxidant gas is supplied; an anode (13), which comprises an anode catalyst layer (18) and anode gas diffusion layers (17, 23) that are arranged on the anode catalyst layer (18), and to which a fuel is supplied; a proton conducting membrane (11) that is held between the cathode catalyst layer (16) of the cathode (12) and the anode catalyst layer (18) of the anode (13); a second cathode gas diffusion layer (20) that is arranged on the first cathode gas diffusion layer (15) and has a fluororesin content less than that of the first cathode gas diffusion layer (15); a third cathode gas diffusion layer (21) that is arranged on the second cathode gas diffusion layer (20) and impregnated with water that is generated in the cathode (12); and a heat dissipation member (22) that is in contact with the third cathode gas diffusion layer (21).

(57) 要約:

[続葉有]



セル電圧の劣化を抑制し、十分な信頼性を有する燃料電池を提供する。カソード触媒層 16 と、カソード触媒層 16 に積層され、フッ素樹脂を含有する第 1 カソードガス拡散層 15 とを備え、酸化剤ガスが供給されるカソード 12 と、アノード触媒層 18 と、アノード触媒層 18 に積層されたアノードガス拡散層 17、23 とを備え、燃料が供給されるアノード 13 と、カソード 12 のカソード触媒層 16 とアノード 13 のアノード触媒層 18 とに挟持されたプロトン伝導性膜 11 と、第 1 カソードガス拡散層 15 に積層され、フッ素樹脂含有量が第 1 カソードガス拡散層 15 より少ない第 2 カソードガス拡散層 20 と、第 2 カソードガス拡散層 20 に積層され、カソード 12 で生成した水を含浸する第 3 カソードガス拡散層 21 と、第 3 カソードガス拡散層 21 に接触した放熱部材 22 と、を具備する。

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] 従来、燃料電池として、カソード触媒層において生成した水を、プロトン伝導性膜を通してアノード触媒層に供給することによって、出力密度などの電池特性を向上させたものが知られている（例えば、特許文献１参照。）。

[0003] この燃料電池では、液体燃料を気化させた気化燃料をアノードに供給し、アノード触媒層において気化燃料と反応する水を確保するために、空気導入口を有する表面層とカソードとの間に、カソード触媒層において生成した水を含浸して蒸散を抑制する保湿層が設けられている。

[0004] これにより、カソード触媒層の水分保持量がアノード触媒層の水分保持量よりも多い状態を作り出し、カソード触媒層において生成した水がプロトン伝導性膜を通してアノード触媒層へ拡散するのを促進して、出力密度の向上を図っている。

[0005] 然しながら、この燃料電池では、保湿層の保水能力および保水量に限界があり、カソードからアノードに水を安定して供給するのが難しいので、初期特性においては高い出力密度が得られても、長期特性においては十分な信頼性が得られないという問題がある。

[0006] 出力密度を長期間にわたって維持するためには、カソードからの放熱を適切に確保し、カソードに保持される水の量とカソードからアノードに供給される水の量とのバランスを適切に維持していくことが求められる。然し、この点に関しては何らの開示も、示唆も見られない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献１：国際公開第２００５／１１２１７２号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] 本発明は、出力密度の劣化を抑制し、十分な信頼性を有する燃料電池を提供する。

課題を解決するための手段

- [0009] 本発明の一態様の燃料電池は、カソード触媒層と、前記カソード触媒層に積層され、フッ素樹脂を含有する第 1 カソードガス拡散層とを備え、酸化剤ガスが供給されるカソードと、アノード触媒層と、前記アノード触媒層に積層されたアノードガス拡散層とを備え、燃料が供給されるアノードと、前記カソードの前記カソード触媒層と前記アノードの前記アノード触媒層とに挟持されたプロトン伝導性膜と、前記第 1 カソードガス拡散層に積層され、フッ素樹脂含有量が前記第 1 カソードガス拡散層より少ない第 2 カソードガス拡散層と、前記第 2 カソードガス拡散層に積層され、前記カソードで生成した水を含浸する第 3 カソードガス拡散層と、前記第 3 カソードガス拡散層に接触した放熱部材と、を具備することを特徴としている。

発明の効果

- [0010] 本発明によれば、出力密度の劣化を抑制し、十分な信頼性を有する燃料電池が得られる。

図面の簡単な説明

- [0011] [図1] 本発明の実施例 1 に係る燃料電池を示す断面図。
[図2] 燃料電池の各層の作用効果を説明するための図。
[図3] 燃料電池の製造工程を示すフローチャート。
[図4] 燃料電池の放熱板を示す平面図。
[図5] 燃料電池の特性と放熱板の熱伝導率との関係を示す図。
[図6] 燃料電池の特性と第 1 カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量との関係を示す図。
[図7] 燃料電池の特性と第 2 カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量との関係

を示す図。

[図8] 燃料電池の特性と第1アノードガス拡散層の厚さとの関係を示す図。

[図9] 燃料電池の特性と第2アノードガス拡散層のフッ素樹脂含有量との関係を示す図。

[図10] 燃料電池の特性と第2アノードガス拡散層の厚さとの関係を示す図。

[図11] 燃料電池の特性と第2カソードガス拡散層の有無との関係を示す図。

[図12] 燃料電池の特性と第2アノードガス拡散層の有無との関係を示す図。

[図13] 本発明の実施例2に係る燃料電池の要部を示す断面図。

[図14] 燃料電池の特性と第4カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量との関係を示す図。

[図15] 燃料電池の特性と各種パラメータとの関係をまとめて示す図。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の実施例について図面を参照しながら説明する。

実施例 1

[0013] 図1に示すように、本実施例の燃料電池10は、プロトン伝導性膜11を酸化剤ガスが供給される酸化剤極（以下、カソードという）12と、燃料が供給される燃料極（以下、アノードという）13とで挟持した構成となっている。この構成は、膜電極接合体14とも呼ばれている。

[0014] カソード12は、フッ素樹脂を含有する第1多孔質基材を有する第1カソードガス拡散層15と、カソード触媒層16とが積層された構造を有し、カソード触媒層16がプロトン伝導性膜11に接触している。

[0015] アノード13は、第2多孔質基材を有する第1アノードガス拡散層17と、アノード触媒層18とが積層された構造を有し、アノード触媒層18がプロトン伝導性膜11に接触している。

[0016] 第1カソードガス拡散層15は、例えば30～70wt%程度のフッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー（第1多孔質基材）を有し、酸化剤ガス供給手段（図示せず）から供給された酸化剤ガスをカソード触媒層16へ供給するとともに、集電体としての機能を果たしている。

- [0017] カソード触媒層 16 は、触媒活性物質と、導電性物質と、プロトン伝導物質とを含有する多孔質層、例えば Pt 触媒が担持されたカーボン粒子とイオン交換樹脂とを混合した多孔質層であり、プロトン、電子および酸素が反応して水が生成される反応を促進する機能を果たしている。
- [0018] 第 1 アノードガス拡散層 17 は、例えば多孔質カーボンペーパー（第 2 多孔質基材）を有し、後述する燃料供給手段から供給された燃料をアノード触媒層 18 へ供給するとともに、集電体としての機能を果たしている。
- [0019] アノード触媒層 18 は、触媒活性物質と、導電性物質と、プロトン伝導物質とを含有する多孔質層、例えば Pt-Ru 合金触媒が担持されたカーボン粒子とイオン交換樹脂とを混合した多孔質層であり、燃料であるメタノールと水が反応してプロトン、電子および二酸化炭素が生成される反応を促進する機能を果たしている。
- [0020] プロトン伝導性膜 11 は、陽イオン交換樹脂、例えばパーフルオロカーボンスルホン酸ポリマーからなる薄膜で、アノード触媒層 18 で生成したプロトンがカソード触媒層 16 へ移動する輸送路としての機能を果たしている。
- [0021] 更に、カソード 12 側には、第 1 カソードガス拡散層 15 上にカソード導電層 19 を挟んで第 1 カソードガス拡散層 15 よりフッ素樹脂含有量が少ない第 3 多孔質基材を有する第 2 カソードガス拡散層 20 が積層されている。
- [0022] 第 2 カソードガス拡散層 20 上には、透気度および透湿度が調整された第 4 多孔質基材を有する第 3 カソードガス拡散層 21 が積層されている。第 3 カソードガス拡散層 21 上には、複数の貫通孔 22a を有する放熱板（放熱部材）22 が配置されている。
- [0023] カソード導電層 19 は、例えば金属メッシュで、第 1 カソードガス拡散層 15 とむらなく接触してカソード 12 を外部に電氣的に接続する機能を果たしている。
- [0024] 第 2 カソードガス拡散層 20 は、例えば 5 ~ 20 wt % のフッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー（第 3 多孔質基材）を有し、酸化剤ガス供給手段から供給された酸化剤ガスを第 1 カソードガス拡散層 15 へ供給するとと

もに、カソード触媒層 16 で生成した水の排出を促進し、第 1 カソードガス拡散層 15 に水が滞留しにくくする機能を果たしている。

[0025] 第 3 カソードガス拡散層 21 は、例えば厚さが 0.75 mm、透気度が 1.7 秒/100 cm³、透湿度が 3000 g/m²・24 H、およびショア硬度が D44 のポリエチレン製多孔質フィルム（第 4 多孔質基材）で、カソード触媒層 16 で生成した水を含浸する保湿層としての機能を果たしている。

[0026] なお、透気度は JIS P-8117 に規定の測定方法、透湿度は JIS L-1099 A-1 に規定の測定方法によるものである。ショア硬度とは反発硬さであり、圧子として先端にダイヤモンド半球を取り付けたハンマーを用い、ハンマーを落とした時の跳ね返り高さを元の高さで割って算出される。

[0027] 放熱板 22 は、熱伝導率の高い金属板、例えば銅板であり、貫通孔 22a を通して酸化剤ガス供給手段から供給された酸化剤ガスを取り込むとともに、カソード触媒層 16 でプロトン、電子および酸素が反応して水が生成する際の反応熱を外部に速やかに放熱する機能を果たしている。

[0028] 一方、アノード 13 側には、第 1 アノードガス拡散層 17 上にフッ素樹脂を含有する第 5 多孔質基材を有する第 2 アノードガス拡散層 23 が積層されている。第 2 アノードガス拡散層 23 上には、アノード導電層 24 が積層されている。

[0029] 第 2 アノードガス拡散層 23 は、例えば 5～20 wt % のフッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー（第 5 多孔質基材）を有し、カソード 12 から供給された水のうちアノード触媒層 18 で消費されずにアノード触媒層 18 を通過した水を貯留して保持するとともに、後述する燃料供給手段から供給された燃料を均一にアノード 13 に分配する機能を果たしている。

[0030] アノード導電層 24 は、例えば金属メッシュで、第 2 アノードガス拡散層 23 とむらなく接触してアノード 13 を外部に電氣的に接続する機能を果たしている。

[0031] なお、プロトン伝導性膜 11 とカソード導電層 19 との間にはシール材と

して、例えばゴム製のＯリング２６を配置し、プロトン伝導性膜１１とアノード導電層２４との間にはシール材として、例えばゴム製のＯリング２７を配置することにより、膜電極接合体１４にシールが施されている。

[0032] 第２アノードガス拡散層２３上には、アノード導電層２４を挟んで燃料（メタノール）を供給する燃料供給手段３０が配置されている。

[0033] 燃料供給手段３０は、液体燃料を貯留する燃料収容部３１と、液体燃料を気化させてアノード１３に気化燃料を供給する燃料供給部３２と、燃料収容部３１と燃料供給部３２とを連通する流路３３とを有している。

[0034] 更に、流路３３の途中に介在し、燃料収容部３１から燃料供給部３２に液体燃料を送出するポンプ３４と、燃料供給部３２内で液体燃料が気化した気化燃料を均一に第２アノードガス拡散層２３に供給するための燃料分配層３５とを有している。

[0035] 燃料分配層３５は、液体燃料や気化燃料を透過させない材料、例えばポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）樹脂、ポリエチレンナフタレート（ＰＥＮ）樹脂、ポリイミド系樹脂で、気化燃料を通過させるための複数の貫通孔３５ａを有している。

[0036] また、燃料分配層３５は、例えば、液体燃料の気化成分と液体燃料とを分離し、その気化成分を第２アノードガス拡散層２３側へ透過させる気液分離膜であってもよい。気液分離膜には、例えば、シリコーンゴム、低密度ポリエチレン（ＬＤＰＥ）薄膜、ポリ塩化ビニル（ＰＶＣ）薄膜、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）薄膜、フッ素樹脂（たとえばポリテトラフルオロエチレン（ＰＴＦＥ）、テトラフルオロエチレン・パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（ＰＦＡ）など）微多孔膜などが用いられる。

[0037] 燃料電池１０は、アノード１３に燃料供給手段３０から、メタノールと水の混合燃料が供給され、カソード１２に酸化剤ガス供給手段から空気（酸素）が供給されると、触媒により次式に示す反応が促進される。アノード１３とカソード１２とを配線で接続することにより、外部に電力が取り出せるため、ダイレクトメタノール型燃料電池（ＤＭＦＣ）とも呼ばれる。

[0038] アノード： $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^-$ (1)

カソード： $6\text{H}^+ + (3/2)\text{O}_2 + 6\text{e}^- \rightarrow 3\text{H}_2\text{O}$ (2)

メタノールと水の混合燃料とは、濃度80wt%以上のメタノール水溶液または純メタノールのことである。燃料に純メタノールを用いると、燃料のエネルギー密度が高いため、燃料収容部31を小型化することができる。

[0039] 一方、燃料にメタノール水溶液を用いると、燃料と共に供給される水も式1の反応に使用される。その結果、アノードに供給される水が十分に確保されるので、安定した発電を長期に渡って行うことができる。

[0040] 但し、メタノール水溶液は、水の含有量が多過ぎると、気化しづらくなるので、アノードに供給されるメタノールが減少し、発電特性が低下する。また、燃料収納部31が大型化する。従って、メタノール水溶液のメタノール濃度は、80wt%以上とすることが好ましい。

[0041] メタノール水溶液のメタノール濃度が高くなると、アノード13で消費されなかったメタノールの一部がプロトン伝導性膜11を通過してカソード12に至るメタノールクロスオーバー現象が顕著に生じるようになる。

[0042] メタノールクロスオーバー現象により、カソード12に到達したメタノールは、カソード触媒層16で空気中の酸素と直接燃焼反応し、水および反応熱が生じる。

[0043] 本実施例では、メタノールクロスオーバー現象を適正な範囲に制御することで、メタノールクロスオーバー現象により生じる水を有効に活用して保水量の増加を図っている。

[0044] 更に本実施例では、メタノールクロスオーバー現象により生じる反応熱を有効に活用してカソード12およびアノード13の触媒活性およびプロトン伝導性膜11のプロトン伝導性の向上を図っている。

[0045] カソード12およびアノード13の触媒活性およびプロトン伝導性膜11のプロトン伝導性は温度依存性を有している。膜電極接合体14の温度を高めることにより、触媒活性およびプロトン伝導性を高くすることができる。その結果、燃料電池10の出力を高めることが可能である。

- [0046] そのために、第１アノードガス拡散層１７は、メタノールクロスオーバー現象を適正な範囲に制御できるように構成されている。第２カソードガス拡散層２０は、十分な保水能力を有するように構成されている。放熱板２２は、膜電極接合体１４からの放熱を適正な範囲に制御できるように構成されている。
- [0047] これにより、本実施例の燃料電池１０は、膜電極接合体１４からの放熱が適切に維持されるとともに、膜電極接合体１４を構成するカソード１２中に保持される水の量と、カソード１２からアノード１３に供給される水の量とが、膜電極接合体１４の面内で適切な範囲に維持されるように構成されている。
- [0048] 図２は燃料電池１０の各層の作用効果を説明するための図である。図２に示すように、第２カソードガス拡散層２０は、第１カソードガス拡散層１５よりフッ素樹脂含有量が少ない。そのため、第１カソードガス拡散層１５は撥水性が高く、第２カソードガス拡散層２０は撥水性が低くなる。その結果、カソード触媒層１６で生成した水蒸気４０は、第１カソードガス拡散層１５に留まりにくく、第２カソードガス拡散層２０へ円滑に排出される。
- [0049] フッ素樹脂含有量の多い第１カソードガス拡散層１５は、カソード触媒層１６で水蒸気が凝集し、空気の取り込みを阻害する、いわゆるフラッディングを抑制する効果がある。
- [0050] 第３カソードガス拡散層２１は、透気度、透湿度を調整したものを選択することにより、空気の取り込みを円滑に行いながら、カソード触媒層１６から排出される水蒸気４０を保持することができる。第３カソードガス拡散層２１で保持された水蒸気４１の多くは、第２カソードガス拡散層２０にて貯留されることになる。
- [0051] すなわち、第２カソードガス拡散層２０は、第１カソードガス拡散層１５から排出され、第３カソードガス拡散層２１を通過できなかった水蒸気４１の溜り場としての機能がある。第２カソードガス拡散層２０が高い保水性を発揮することで、アノード触媒層１８へ水４２を円滑に供給できる。

- [0052] 放熱板 22 は、熱伝導率が高い部材を選択することで、放熱性が向上し、水蒸気 41 の凝縮が促進され、膜電極接合体 14 の面内で温度分布を均一化することができる。温度分布が均一化されると、第 2 カソードガス拡散層 20 において保持される水 43 の量も多くなり、アノード触媒層 18 に供給される水 42 の量も増量することができる。
- [0053] 第 2 アノードガス拡散層 23 は、燃料分配層 35 より流入する燃料をさらに均一に第 1 アノードガス拡散層 17 へ分配する。アノード触媒層 18 の面内で燃料を均一に分配することで膜電極接合体 14 の面内の温度分布が不均一化する要因を未然に防止することができる。
- [0054] 第 2 アノードガス拡散層 23 は、アノード触媒層 18 で消費しきれなかった水 44 を一時貯留し、貯留された水 44 を再びアノード触媒層 18 に戻ることができるので、アノード触媒層 18 に必要な水が不足した場合に備えることができる。
- [0055] 上記構成の燃料電池 10 では、膜電極接合体 14 からの放熱が適切に維持されるとともに、膜電極接合体 14 を構成するカソード 12 中に保持される水の量と、カソード 12 からアノード 13 に供給される水の量とが、膜電極接合体 14 の面内で適切な範囲に維持されるので、長時間にわたって高い出力を安定して維持することができる。
- [0056] 図 3 は燃料電池 10 の製造工程を示すフローチャートである。図 3 に示すように、始に、カソード 12、アノード 13 でプロトン伝導性膜 11 を挟持した膜電極接合体 14 を形成する。
- [0057] アノード用触媒粒子（Pt : Ru = 1 : 1、原子比組成）を担持したカーボンプラックに、プロトン伝導性樹脂としてパーフルオロカーボンスルホン酸ポリマー溶液と、分散媒として水およびメトキシプロパノールを添加して、アノード用触媒粒子を担持したカーボンプラックを分散させたアノード触媒層用ペーストを調製する。
- [0058] 第 1 アノードガス拡散層 17 として、多孔質カーボンペーパー（200 mm × 100 mm、厚さ 360 μm）を用意する。第 1 アノードガス拡散層 17

上にアノード触媒層用ペーストをドクターブレード法により塗布し、乾燥させることにより、厚さ $150\mu\text{m}$ のアノード触媒層18を形成する。

[0059] ドクターブレード法とは、ある材料の粉を均質で一定の厚みを有する板に加工する方法の一つである。原料粉末と溶媒、消泡剤、樹脂などを混合して生成した粘り気のあるスラリーをドクターブレードの受け口に流し込み、両縁の平坦面と中央の山型の凸部の頂点との隙間から押出すと、段差に等しい一定の厚みを有する塗膜が得られるものである。

[0060] 同様に、カソード用触媒粒子(Pt)を担持したカーボンブラックに、プロトン伝導性樹脂としてパーフルオロカーボンスルホン酸ポリマー溶液と、分散媒として水およびメトキシプロパノールを添加して、カソード用触媒粒子を担持したカーボンブラックを分散させたカソード触媒層用ペーストを調製する。

[0061] 第1カソードガス拡散層15として、フッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー($200\text{mm}\times 100\text{mm}$ 、厚さ $270\mu\text{m}$ 、フッ素樹脂含有量 $50\text{wt}\%$)を用意する。第1カソードガス拡散層15上にカソード触媒層用ペーストをドクターブレード法により塗布し、乾燥させることにより、厚さ $150\mu\text{m}$ のカソード触媒層16を形成する。

[0062] なお、多孔質カーボンペーパーにフッ素樹脂を含有させるには、フッ素樹脂が分散または溶解した溶液に多孔質カーボンペーパーを浸漬し、自然乾燥の後、不活性雰囲気下、 380°C でフッ素樹脂を焼付けることにより行う。フッ素樹脂には、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を使用した。

[0063] アノード触媒層18を形成した第1アノードガス拡散層17、およびカソード触媒層16を形成した第1カソードガス拡散層15は、それぞれ長さ 40mm 、幅 30mm の長方形に切り出す。

[0064] 次に、プロトン伝導性膜11として、厚さ $30\mu\text{m}$ 、含水率が $10\sim 20\text{wt}\%$ のパーフルオロカーボンスルホン酸ポリマー膜(商品名:nafion膜、デュポン社製)を用意する。プロトン伝導性膜11をアノード触媒層18とカソード触媒層16とで挟み、ホットプレスを施すことにより、膜電

極接合体 14 が得られる。

- [0065] 次に、第2アノードガス拡散層 23 として、フッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー（厚さ 180 μm 、フッ素含有量 10 wt %）を用意する。第1アノードガス拡散層 17 に第2アノードガス拡散層 23 を積層する。
- [0066] 次に、導電層として、複数の貫通孔を有する金箔を用意する。この金箔をそれぞれ第1カソードガス拡散層 15 および第2アノードガス拡散層 23 に積層することにより、カソード導電層 19 およびアノード導電層 24 を形成する。
- [0067] 次に、プロトン伝導性膜 11 とカソード導電層 19 との間にゴム製のリング 26 を挟持し、プロトン伝導性膜 11 とアノード導電層 24 との間にゴム製のリング 27 を挟持し、膜電極接合体 14 の周りにシールを施す。
- [0068] 次に、第2カソードガス拡散層 20 として、フッ素樹脂を含有する多孔質カーボンペーパー（厚さ 360 μm 、フッ素樹脂含有量 10 wt %）を用意し、カソード導電層 19 に積層する。
- [0069] 次に、第3カソードガス拡散層 21 として、例えば長さ 44 mm、幅 34 mm、厚さ 0.75 mm、気孔率 26 %、透気度 1.7 秒 / 100 cm^3 、透湿度 3000 $\text{g} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{h}$ のポリエチレン製多孔質フィルムを用意し、第2カソードガス拡散層 20 に積層する。
- [0070] 次に、放熱板 22 として、一辺の長さが 3 mm の正方形の貫通孔 22a を均等に 70 個形成した厚さ 1 mm の銅板（20 °C における熱伝導率 370 W / mK）を用意し、第3カソードガス拡散層 21 に積層する。
- [0071] 第3カソードガス拡散層 21 と放熱板 22 との間に隙間があると、第3カソードガス拡散層 21 から放熱板 22 への熱伝導が円滑に行なわれなくなるため、第3カソードガス拡散層 21 と放熱板 22 とは出来るだけ密着させることが望ましい。
- [0072] 第1カソードガス拡散層 15、第2カソードガス拡散層 20、第2アノードガス拡散層 23 として、それぞれ予め目的の濃度のフッ素樹脂を含有させた多孔質カーボンペーパーを用いれば、フッ素樹脂を浸漬する工程を削減する

ことができる。

[0073] 次に、上述した燃料電池 10 に、室温 25℃、相対湿度 50% の環境下で、純度 99.9% w t の純メタノールを供給して、燃料電池 10 の発電特性を調べた結果について説明する。

[0074] 燃料電池 10 の発電は、燃料電池 10 に定電圧電源を接続して、燃料電池 10 の出力電圧が 0.3 V で一定になるように、燃料電池 10 に流れる電流を制御しながら行った。

[0075] 燃料電池 10 の発電特性として、燃料電池 10 が発電を開始した時の初期出力密度 P_0 および 1000 時間発電を行なった後の出力密度 P_1 を測定した。出力密度 P_1 と初期出力密度 P_0 との比から、出力密度の 1000 H 残存率を求めた。

[0076] 同時に、燃料電池 10 が発電を行なっているときの第 3 カソードガス拡散層 21 の表面温度を測定し、温度分布の面内均一性を調べた。図 4 は第 3 カソードガス拡散層 21 の表面温度の測定位置を示す図である。

[0077] 図 4 に示すように、放熱板 22 の貫通孔 22a を通して、第 3 カソードガス拡散層 21 と第 2 カソードガス拡散層 20 との間に熱電対を挿入し、第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 および周辺部 52 の表面温度を測定した。

[0078] なお、燃料電池の出力密度 (mW/cm^2) とは、燃料電池に流れる電流密度 (発電部の面積 1 cm^2 当りの電流値 (mA/cm^2)) に燃料電池の出力電圧を乗じたものである。発電部の面積とは、アノード触媒層 18 とカソード触媒層 16 とが対向している部分の面積である。ここでは、アノード触媒層 18 とカソード触媒層 16 の面積が等しく、かつ完全に対向しているので、発電部の面積はこれらの触媒層の面積に等しい。

[0079] 測定の結果、燃料電池 10 の初期出力密度 P_0 を 100% として、1000 H 残存率 (以後、単に残存率ともいう) は 95% であり、高い長期信頼性が得られた。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c 、および周辺部 52 の表面温度 T_e は、いずれも 55℃ であり、膜電極接合体 1

4の温度分布は均一であった。

[0080] 次に、膜電極接合体14からの放熱が適切に維持されるとともに、膜電極接合体14を構成するカソード12中に保持される水の量と、カソード12からアノード13に供給される水の量とが、膜電極接合体14の面内で適切に維持される範囲を確かめるために、燃料電池のパラメータを種々変更して、燃料電池の特性（出力密度の初期値、1000H残存率、膜電極接合体の温度）を調べた結果について説明する。

[0081] 燃料電池のパラメータとしては、放熱板22の熱伝導率、第1カソードガス拡散層15のフッ素樹脂含有量、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量、第1アノードガス拡散層17の厚さ、第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量、第2アノードガス拡散層23の厚さを選択した。

[0082] 図15は、燃料電池のパラメータを種々変更した一連の試験条件および試験結果をまとめて示したものである。一連の試験には、試験例1乃至試験例9と、比較例1乃至比較例13との21例が含まれている。ここでは、本実施例の燃料電池の要件を満たす試験を試験例と称し、満たさない試験を比較例と称している。各例およびその結果について説明する。

[0083] （試験例1）

上述した試験である。放熱板22（銅）の熱伝導率 λ が 370 W/mK 、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量が $50\text{ wt\%}$ 、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量が $10\text{ wt\%}$ 、第1アノードガス拡散層17の厚さが $360\text{ }\mu\text{m}$ 、第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量が $10\text{ wt\%}$ 、第2アノードガス拡散層23の厚さが $180\text{ }\mu\text{m}$ である。

[0084] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が 100% 、残存率が 95% であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が 55°C 、周辺部52の表面温度 T_e が 55°C であった。

[0085] （試験例2）

放熱板22の材質を銅からアルミニウム（ 20°C における熱伝導率 204 W/mK ）に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0086] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が95%、残存率が90%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0087] (試験例3)

第1カソードガス拡散層15のフッ素樹脂含有量を50wt%から70wt%に、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量を10wt%から20wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0088] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が95%、残存率が85%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0089] (試験例4)

第1カソードガス拡散層15のフッ素樹脂含有量を50wt%から30wt%に、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量を10wt%から5wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0090] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が90%、残存率が95%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0091] (試験例5)

第2カソードガス拡散層20と第3カソードガス拡散層21との間に、後述するフッ素樹脂含有量が5wt%の第4カソードガス拡散層61を配置した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0092] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が102%、残存率が96%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0093] (試験例6)

第2カソードガス拡散層20とカソード導電層19との間に、フッ素樹脂含有量が5wt%の第4カソードガス拡散層61を配置した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0094] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が102%、残存率が96%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0095] (試験例7)

第1カソードガス拡散層15のフッ素樹脂含有量を50wt%から60wt%に、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量を10wt%から15wt%に、第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量を5wt%から10wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0096] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が100%、残存率が95%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0097] (試験例8)

第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量を10wt%から20wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0098] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が94%、残存率が93%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0099] (試験例9)

第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量を10wt%から5wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0100] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が96%、残存率が91%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が55℃であった。

[0101] (比較例1)

放熱板22の材質を銅からステンレス(SUS304、20℃における熱伝導率15W/mK)に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0102] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が40%、残存率が40%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が60℃、周辺

部 5 2 の表面温度 T_e が 50°C であった。

[0103] (比較例 2)

第 1 カソードガス拡散層 1 5 のフッ素樹脂含有量を $50\text{ wt } \%$ から $85\text{ wt } \%$ に変更した。その他の条件は試験例 1 と同様である。

[0104] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が 30% 、残存率が 10% であった。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 50°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 44°C であった。

[0105] (比較例 3)

第 1 カソードガス拡散層 1 5 のフッ素樹脂含有量を $50\text{ wt } \%$ から $5\text{ wt } \%$ に変更した。その他の条件は試験例 1 と同様である。

[0106] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が 60% 、残存率が 30% であった。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 53°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 50°C であった。

[0107] (比較例 4)

第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量を $10\text{ wt } \%$ から $70\text{ wt } \%$ に変更した。その他の条件は試験例 1 と同様である。

[0108] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が 35% 、残存率が 20% であった。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 50°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 45°C であった。

[0109] (比較例 5)

第 4 カソードガス拡散層 6 1 のフッ素樹脂含有量を $5\text{ wt } \%$ から $70\text{ wt } \%$ に変更した。その他の条件は試験例 5 と同様である。

[0110] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が 35% 、残存率が 20% であった。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 51°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 45°C であった。

[0111] (比較例 6)

第 1 アノードガス拡散層 1 7 の厚さを $360\text{ }\mu\text{m}$ から $180\text{ }\mu\text{m}$ に変更した。その他の条件は試験例 1 と同様である。

[0112] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が50%、残存率が50%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が60℃、周辺部52の表面温度 T_e が60℃であった。

[0113] (比較例7)

第1アノードガス拡散層17の厚さを360 μm から540 μm に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0114] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が20%、残存率が10%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が56℃、周辺部52の表面温度 T_e が50℃であった。

[0115] (比較例8)

第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量を10wt%から50wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0116] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が70%、残存率が60%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が50℃、周辺部52の表面温度 T_e が45℃であった。

[0117] (比較例9)

第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量を10wt%から5wt%に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0118] この燃料電池では初期出力密度 P_0 が70%、残存率 P_1 が60%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が50℃であった。

[0119] (比較例10)

第2アノードガス拡散層23の厚さを180 μm から100 μm に変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0120] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が60%、残存率 P_1 が70%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55℃、周辺部52の表面温度 T_e が53℃であった。

[0121] (比較例11)

第2アノードガス拡散層23の厚さを180 μ mから270 μ mに変更した。その他の条件は試験例1と同様である。

[0122] この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が50%、残存率が60%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が53 $^{\circ}$ C、周辺部52の表面温度 T_e が51 $^{\circ}$ Cであった。

[0123] (比較例12)

第2カソードガス拡散層20を除去した。その他の条件は試験例1と同様である。この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が20%、残存率が30%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が55 $^{\circ}$ C、周辺部52の表面温度 T_e が50 $^{\circ}$ Cであった。

[0124] (比較例13)

第2アノードガス拡散層23を除去した。その他の条件は試験例1と同様である。この燃料電池では、初期出力密度 P_0 が30%、残存率が20%であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が60 $^{\circ}$ C、周辺部52の表面温度 T_e が50 $^{\circ}$ Cであった。

[0125] 以上説明した各例およびその結果を基に、燃料電池のパラメータと燃料電池の特性（出力密度の初期値、1000H残存率、膜電極接合体の温度）との関係について、図5乃至図12を用いて説明する。

[0126] 図5は放熱板22の熱伝導率と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例1乃至試験例9、および比較例1の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0127] 熱伝導率は放熱板22の形状を一定として、放熱板22の材質を、銅(Cu)、アルミニウム(Al)、SUSと変えることにより変化させた。

[0128] 図5に示すように、試験例1乃至試験例9では、放熱板22の熱伝導率が370W/mK(Cu)および204W/mK(Al)に対して、初期出力密度 P_0 が90~102%、残存率が85~96%と高い値が得られた。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c 、周辺部52の表面温度 T_e とも55 $^{\circ}$ Cであり、面内で均一であった。

- [0129] 一方、比較例 1 では、放熱板 22 の熱伝導率が 15 W/mK (SUS) であり、初期出力密度 P_0 が 40%、残存率が 40 と、試験例 1 乃至試験例 9 に比べていずれも 1/2 以下に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c が 60°C 、周辺部 52 の表面温度 T_e が 50°C であり、面内不均一が生じた。
- [0130] 図 5 より、放熱板 22 の熱伝導率は高い方が初期出力密度、残存率が向上する。例えば 60% 以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、放熱板 22 の熱伝導率を 100 W/mK 以上とすることが適当である。
- [0131] これらの結果は、放熱板 22 の放熱性の向上により、カソード 12 が冷却され、それに伴って発電により生じた水蒸気 41 の凝縮が促進され、カソード 12 からアノード 13 へ供給される水 42 が増加したことを示している。
- [0132] なお、放熱板 22 の熱伝導率の上限は特に規定されないが、熱伝導率が過大になると、過剰に凝縮した水により多孔質材が目詰まりする原因になるので、 500 W/mK 以下とすることが適当である。
- [0133] 図 6 は第 1 カソードガス拡散層 15 のフッ素樹脂含有量と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例 1 乃至試験例 9、比較例 2 および比較例 3 の結果をそれぞれプロットしたものである。
- [0134] 図 6 に示すように、試験例 1 乃至試験例 9 では、フッ素樹脂含有量が 30 ~ 70 wt% に対して、初期出力密度 P_0 が 90 ~ 102%、残存率が 85 ~ 96% と高い値が得られた。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c 、周辺部 52 の表面温度 T_e とともに 55°C であり、面内で均一であった。
- [0135] 一方、比較例 2 では、フッ素樹脂含有量が 85 wt% であり、初期出力密度 P_0 が 30%、残存率が 10 と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c が 50°C 、周辺部 52 の表面温度 T_e が 44°C であり、表面温度の低下と面内不均一が生じた。
- [0136] 比較例 3 では、フッ素樹脂含有量が 5 wt% であり、初期出力密度 P_0 が 60%、残存率が 30% と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡

散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 53°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 50°C であり、表面温度の低下と面内不均一が生じた。

[0137] 図 6 より、第 1 カソードガス拡散層 1 5 のフッ素樹脂含有量には適正範囲がある。例えば 80% 以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第 1 カソードガス拡散層 1 5 のフッ素樹脂含有量を 30~70 wt% とすることが適当である。

[0138] これらの結果は、カソード触媒層 1 6 で生成した水がカソード触媒層 1 6 で凝縮する、いわゆるフラッディングが起こりにくく、カソード触媒層 1 6 への空気の拡散性が良好に確保されていることを示している。

[0139] 図 7 は第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例 1 乃至試験例 9、および比較例 4 の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0140] 図 7 に示すように、試験例 1 乃至試験例 9 では、第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量が 5~20 wt% に対して、初期出力密度 P_0 が 90~102%、残存率が 85~96% と高い値が得られた。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e とも 55°C であり、面内で均一であった。

[0141] 一方、比較例 4 では、第 2 カソードガス拡散層 2 0 フッ素樹脂含有量が 70 wt% であり、初期出力密度 P_0 が 35%、残存率が 20% と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 2 1 の中央部 5 1 の表面温度 T_c が 50°C 、周辺部 5 2 の表面温度 T_e が 45°C であり、表面温度の低下と面内不均一が生じた。

[0142] 図 7 より、第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量には適正範囲がある。例えば 80% 以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量を 5~25 wt% とすることが適当である。

[0143] これらの結果は、第 2 カソードガス拡散層 2 0 のフッ素樹脂含有量を第 1 カソードガス拡散層 1 5 のフッ素樹脂含有量よりも少なくすることで、カソ

ード12の冷却に伴い発電により生じた水の蒸散が抑制され、カソード12からアノード13に供給される水の量が増大したことを示している。

[0144] 図8は第1アノードガス拡散層17の厚さと燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例1乃至試験例9、比較例6および比較例7の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0145] 図8に示すように、試験例1乃至試験例9では、第1アノードガス拡散層17の厚さは $360\mu\text{m}$ であり、初期出力密度 P_0 が $90\sim 102\%$ 、残存率が $85\sim 96\%$ と高い値が得られた。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c 、周辺部52の表面温度 T_e とも 55°C であり、面内で均一であった。

[0146] 一方、比較例6では、第1アノードガス拡散層17の厚さは $180\mu\text{m}$ であり、初期出力密度 P_0 が 50% 、残存率が 50% と、いずれも大幅に減少した。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c 、周辺部52の表面温度 T_e とも 60°C であり、温度は上昇したが面内不均一は生じなかった。

[0147] また、比較例7では、第1アノードガス拡散層17の厚さは $540\mu\text{m}$ であり、初期出力密度 P_0 が 20% 、残存率が 10% と、いずれも大幅に減少した。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度 T_c が 56°C 、周辺部52の表面温度 T_e が 50°C であり、周辺部の温度が低下し面内不均一が生じた。

[0148] 図8より、第1アノードガス拡散層17の厚さには適正範囲がある。例えば 80% 以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第1アノードガス拡散層17の厚さを $300\sim 400\mu\text{m}$ とすることが適当である。

[0149] これらの結果は、第1アノードガス拡散層17はカソード12から供給される水がアノード触媒層18で一部消費され、アノード触媒層18を通過した水を過不足なく保持することができることを示している。更に、メタノールクロスオーバーの量を適度に制御できることを示している。

[0150] メタノールクロスオーバーに注目すると、比較例6では、第1アノードガス

拡散層 17 が薄過ぎるので、第1アノードガス拡散層 17 を通過するメタノールが増加する。その結果、プロトン伝導性膜 11 を通過するメタノールも増加し、メタノールクロスオーバーが増大する。これにより、カソード触媒層 16 に発生する水が過剰になったため、フラッディングが生じ発電特性が低下したものと推察される。

[0151] 比較例 7 では、第1アノードガス拡散層 17 が厚過ぎるので、第1アノードガス拡散層 17 を通過するメタノールが減少する。その結果、プロトン伝導性膜 11 を通過するメタノールが減少し、メタノールクロスオーバーが抑制される。然し、発電に寄与するメタノールも減少したため、発電特性が低下したものと推察される。

[0152] 図 9 は第 2 アノードガス拡散層 23 のフッ素樹脂含有量と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例 1 乃至試験例 9、比較例 8 および比較例 9 の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0153] 図 9 に示すように、試験例 1 乃至試験例 9 では、第 2 アノードガス拡散層 23 のフッ素樹脂含有量は 5 ~ 20 % であり、初期出力密度 P_0 が 90 ~ 102 %、残存率が 85 ~ 96 % と高い値が得られた。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c 、周辺部 52 の表面温度 T_e とともに 55 °C であり、面内で均一であった。

[0154] 一方、比較例 8 では、第 2 アノードガス拡散層 23 のフッ素樹脂含有量は 50 % であり、初期出力密度 P_0 が 70 %、残存率が 60 % と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 表面温度 T_c が 50 °C、周辺部 52 の表面温度 T_e が 45 °C であり、表面温度は低下し面内不均一が生じた。

[0155] また、比較例 9 では、第 2 アノードガス拡散層 23 のフッ素樹脂含有量は 5 % であり、初期出力密度 P_0 が 70 %、残存率が 60 % と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 表面温度 T_c が 55 °C、周辺部 52 の表面温度 T_e が 50 °C であり、周辺部の表面温度が低下し面内不均一が生じた。

- [0156] 図9より、第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量には適正範囲がある。例えば80%以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第2アノードガス拡散層23のフッ素樹脂含有量を5~20wt%とすることが適当である。
- [0157] これらの結果は、第2アノードガス拡散層23は燃料分配層35より流入する燃料をさらに均一に第1アノードガス拡散層17へ分配する。燃料がアノード触媒層18の面内に均一に分配されることで、膜電極接合体14に発生する温度分布が均一化されたことを示している。
- [0158] 図10は第2アノードガス拡散層23の厚さと燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例1乃至試験例9、比較例10および比較例11の結果をそれぞれプロットしたものである。
- [0159] 図10に示すように、試験例1乃至試験例9では、第2アノードガス拡散層23の厚さ180 μ mに対して、初期出力密度P0が90~102%、残存率が85~96%と高い値が得られた。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tc、周辺部52の表面温度Teとも55℃であり、面内で均一であった。
- [0160] 一方、比較例10では、第2アノードガス拡散層23の厚さ100 μ mであり、初期出力密度P0が60%、残存率が70%と、いずれも大幅に減少した。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tcが55℃、周辺部52の表面温度Teが53℃であり、周辺部52の表面温度、面内均一性が若干低下した。
- [0161] また、比較例11では、第2アノードガス拡散層23の厚さ270 μ mであり、初期出力密度P0が50%、残存率が60%と、いずれも大幅に減少した。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tcが53℃、周辺部52の表面温度Teが51℃であり、表面温度が低下し面内不均一が生じた。
- [0162] 図10より、第2アノードガス拡散層23の厚さには適正範囲がある。例えば60%以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第2アノード

ガス拡散層 23 の厚さを $100 \sim 200 \mu\text{m}$ とすることが適当である。

[0163] これらの結果は、第 2 アノードガス拡散層 23 は、燃料分配層 35 より流入する燃料をさらに均一に第 1 アノードガス拡散層 17 へ分配し、膜電極接合体 14 に発生する温度分布が均一化されたことを示している。

[0164] 図 11 は第 2 カソードガス拡散層 20 の有無と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例 1 乃至試験例 9、および比較例 12 の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0165] 図 11 に示すように試験例 1 乃至試験例 9 では第 2 カソードガス拡散層 20 を有し、初期出力密度 P_0 が $90 \sim 102\%$ 、残存率が $85 \sim 96\%$ と高い値が得られた。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c 、周辺部 52 の表面温度 T_e とも 55°C であり、面内で均一であった。

[0166] 一方、比較例 10 では第 2 カソードガス拡散層 20 を有せず、初期出力密度 P_0 が 60% 、残存率が 70% と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c が 55°C 、周辺部 52 の表面温度 T_e が 53°C であり、表面温度、面内均一性はほぼ同等であった。

[0167] これらの結果は、第 2 カソードガス拡散層 20 を導入することで、カソード 12 の冷却に伴い発電により生じた水の蒸散が抑制され、カソード 12 からアノード 13 に供給される水の量が増大したことを示している。

[0168] 図 12 は第 2 アノードガス拡散層 23 の有無と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例 1 乃至試験例 9、および比較例 13 の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0169] 図 12 に示すように、試験例 1 乃至試験例 9 では、第 2 アノードガス拡散層 23 を有し、初期出力密度 P_0 が $90 \sim 102\%$ 、残存率が $85 \sim 96\%$ と高い値が得られた。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c 、周辺部 52 の表面温度 T_e とも 55°C であり、面内で均一であった。

[0170] 一方、比較例 12 では、第 2 アノードガス拡散層 23 を有せず、初期出力密度 P_0 が 30% 、残存率が 20% と、いずれも大幅に減少した。第 3 カソードガス拡散層 21 の中央部 51 の表面温度 T_c が 60°C 、周辺部 52 の表

面温度 T_e が 50°C であり、中央部の表面温度が上昇し、周辺部の表面温度が低下し、面内均一性が生じた。

[0171] これらの結果は、第2アノードガス拡散層23を導入することで、第2アノードガス拡散層23は燃料分配層35より流入する燃料をさらに均一に第1アノードガス拡散層17へ分配する。アノード触媒層18の平面方向で燃料を均一に分配することで膜電極接合体14に発生する温度分布が均一化されたことを示している。

[0172] 以上説明したように、本実施例の燃料電池10は、高い熱伝導率を有する放熱板22と、第1カソードガス拡散層15よりフッ素樹脂含有量の少ない第2カソードガス拡散層20とを有している。更に、第1アノードガス拡散層17にフッ素樹脂を含有する第2アノードガス拡散層23が積層されている。

[0173] 更に、本実施例の燃料電池10は、メタノールクロスオーバー現象を適正な範囲に制御することにより、メタノールクロスオーバー現象により生じる水を有効に活用して保水量の増加を図るとともに、メタノールクロスオーバー現象により生じる反応熱を有効に活用して触媒活性およびプロトン伝導性の向上を図っている。

[0174] その結果、膜電極接合体14からの放熱を適切に維持するとともに、膜電極接合体14を構成するカソード2中に保持される水の量と、カソード12からアノード13に供給される水の量とを、面内において適切な範囲に維持することができる。従って、出力密度の劣化を抑制し、十分な信頼性を有する燃料電池が得られる。

実施例 2

[0175] 本実施例に係る燃料電池について、図13を用いて説明する。図13は燃料電池の要部を示す断面図である。本実施例において、上記実施例1と同一の構成部分には同一符号を付してその部分の説明は省略し、異なる部分について説明する。

[0176] 本実施例が実施例1と異なる点は、第2カソードガス拡散層と第3カソー

ドガス拡散層との間に第4カソードガス拡散層を形成したことにある。

[0177] 即ち、図13に示すように、本実施例の燃料電池60では、第2カソードガス拡散層20と第3カソードガス拡散層21との間に、フッ素樹脂含有量が第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量より少ない第4カソードガス拡散層61が形成されている。

[0178] 第4カソードガス拡散層61は、粒子状炭素とフッ素樹脂とを有する多孔質層である。第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量は、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量（～20wt%）よりも小さく、例えば5wt%に設定されている。

[0179] 第4カソードガス拡散層61は、目が細かいので水を含みやすく、且つフッ素樹脂含有量が少ないので撥水性が低い層である。第4カソードガス拡散層61は、更にカソード12側の保水量を増やすために設けられている。

[0180] 図14は第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量と燃料電池の特性との関係を示す図で、試験例5乃至試験例7および比較例5の結果をそれぞれプロットしたものである。

[0181] 図14に示すように、第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量が5wt%では、初期出力密度P0が102%、残存率が96%と高い値が得られた。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tc、周辺部52の表面温度Teとも55℃であり、面内で均一であった。

[0182] フッ素樹脂含有量が10wt%では、初期出力密度P0が100%、残存率が95%であり、第4カソードガス拡散層61を有しない場合（試験例1）と同等であった。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tc、周辺部52の表面温度Teとも55℃であり、面内で均一であった。

[0183] 一方、フッ素樹脂含有量が70wt%では、初期出力密度P0が35%、残存率20%と大幅に減少した。第3カソードガス拡散層21の中央部51の表面温度Tcが51℃、周辺部52の表面温度Teが45℃であり、表面温度の低下と不均一性が生じた。

[0184] 図14より、第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量には適正範

囲がある。例えば80%以上の初期出力密度、残存率を確保するためには、第4カソードガス拡散層61のフッ素樹脂含有量は、第2カソードガス拡散層20のフッ素樹脂含有量より少なくすることが適当である。

[0185] これらの結果は、カソード12の冷却に伴い発電により生じた水の蒸散が抑制され、カソード12からアノード13に供給される水の量が増大したことを示している。

[0186] 次に、第4カソードガス拡散層61の形成方法について説明する。始めに、フッ素樹脂が分散または溶解した溶液中に粒子状炭素を分散させたペーストを作製する。次に、このペーストを第2カソードガス拡散層20上に塗布し、乾燥させる。その後、不活性雰囲気下でフッ素樹脂を焼付けする。

[0187] これにより、第2カソードガス拡散層20に、粒子状炭素とフッ素樹脂とを有する第4カソードガス拡散層61が積層される。

[0188] 粒子状炭素は、例えばカーボンブラックであり、フッ素樹脂は、例えばポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、四フッ化エチレン-六フッ化プロピレン共重合樹脂（FEP）、四フッ化エチレンパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合樹脂（PFA）などである。

[0189] 但し、これに限定されるものではなく、十分な導電性と安定性とを有するものであれば任意のものを使用することができる。

[0190] 以上説明したように、本実施例の燃料電池60では、第2カソードガス拡散層20と第3カソードガス拡散層21との間に、目が細かく、撥水性の低い第4カソードガス拡散層61が形成されている。

[0191] その結果、カソード12側の保水量が更に増加するので、カソード12側からアノード13側に長期間に亘って安定に水を供給することができる利点がある。

[0192] ここでは、第4カソードガス拡散層61を第2カソードガス拡散層20と第3カソードガス拡散層21との間に形成した場合について説明したが、カソード導電層19と第2カソードガス拡散層20との間に形成しても構わない。

[0193] この場合は、第4カソードガス拡散層61が積層された第2カソードガス拡散層20を反転させて、第4カソードガス拡散層61をカソード導電層19に接触させればよい。どちらの場合でも、同等の特性が得られている。

符号の説明

- [0194] 10、60 燃料電池
- 11 プロトン伝導性膜
 - 12 カソード
 - 13 アノード
 - 14 膜電極接合体
 - 15 第1カソードガス拡散層
 - 16 カソード触媒層
 - 17 第1アノードガス拡散層
 - 18 アノード触媒層
 - 19 カソード導電層
 - 20 第2カソードガス拡散層
 - 21 第3カソードガス拡散層
 - 22 放熱板
 - 22a、35a 貫通孔
 - 23 第2アノードガス拡散層
 - 24 アノード導電層
 - 25 燃料分配層
 - 26、27 オリング
 - 30 燃料供給手段
 - 31 燃料収納部
 - 32 燃料供給部
 - 33 流路
 - 34 ポンプ
 - 35 燃料分配層

5 1 中央部

5 2 周辺部

6 1 第4カソードガス拡散層

請求の範囲

- [請求項1] カソード触媒層と、前記カソード触媒層に積層され、フッ素樹脂を含有する第1カソードガス拡散層とを備え、酸化剤ガスが供給されるカソードと、
- アノード触媒層と、前記アノード触媒層に積層されたアノードガス拡散層とを備え、燃料が供給されるアノードと、
- 前記カソードの前記カソード触媒層と前記アノードの前記アノード触媒層とに挟持されたプロトン伝導性膜と、
- 前記第1カソードガス拡散層に積層され、フッ素樹脂含有量が前記第1カソードガス拡散層より少ない第2カソードガス拡散層と、
- 前記第2カソードガス拡散層に積層され、前記カソードで生成した水を含浸する第3カソードガス拡散層と、
- 前記第3カソードガス拡散層に接触した放熱部材と、
- を具備することを特徴とする燃料電池。
- [請求項2] 前記第1カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量が30乃至70wt %であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。
- [請求項3] 前記放熱部材は20℃における熱伝導率が100乃至500W/mKであることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。
- [請求項4] 前記放熱部材は20℃における熱伝導率が100乃至500W/mKであることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池。
- [請求項5] 前記第2カソードガス拡散層に積層され、粒子状炭素とフッ素樹脂からなる多孔質基材を有する第4カソードガス拡散層を具備することを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。
- [請求項6] 前記第2カソードガス拡散層に積層され、粒子状炭素とフッ素樹脂からなる多孔質基材を有する第4カソードガス拡散層を具備することを特徴とする請求項2に記載の燃料電池。
- [請求項7] 前記第4カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量は、前記第2カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量より少ないことを特徴とする請求

項 5 に記載の燃料電池。

[請求項 8] 前記第 4 カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量は、前記第 2 カソードガス拡散層のフッ素樹脂含有量より少ないことを特徴とする請求項 6 に記載の燃料電池。

[請求項 9] 前記アノードガス拡散層は、厚さが 300 乃至 400 μm の第 1 アノードガス拡散層と、前記第 1 アノードガス拡散層に積層され、厚さが 100 乃至 200 μm でフッ素樹脂を含有する第 2 アノードガス拡散層とを具備することを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池。

[請求項 10] 前記アノードガス拡散層は、厚さが 300 乃至 400 μm の第 1 アノードガス拡散層と、前記第 1 アノードガス拡散層に積層され、厚さが 100 乃至 200 μm でフッ素樹脂を含有する第 2 アノードガス拡散層とを具備することを特徴とする請求項 2 に記載の燃料電池。

[請求項 11] 前記第 2 アノードガス拡散層のフッ素樹脂含有量が 5 乃至 20 wt % であることを特徴とする請求項 9 に記載の燃料電池。

[請求項 12] 前記第 2 アノードガス拡散層のフッ素樹脂含有量が 5 乃至 20 wt % であることを特徴とする請求項 10 に記載の燃料電池。

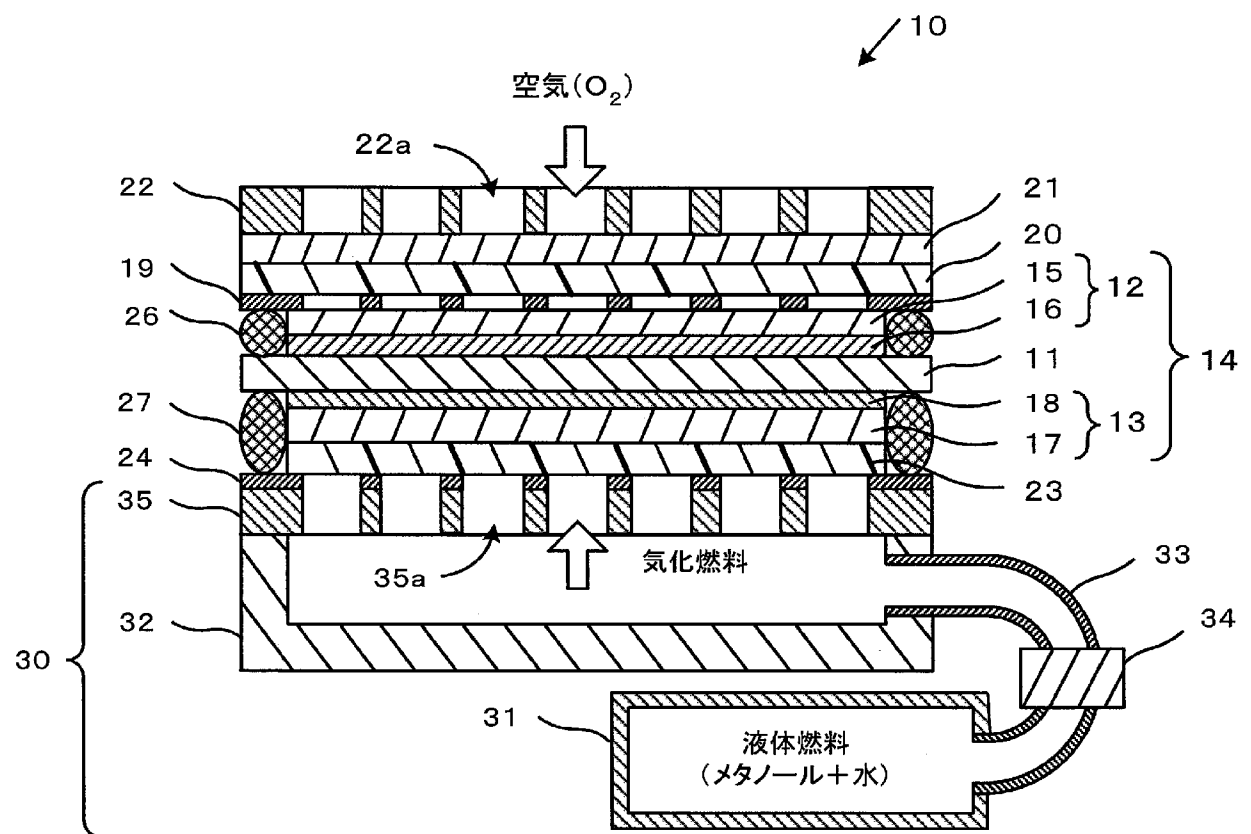
[請求項 13] 前記燃料は、メタノールであることを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池。

[請求項 14] 前記燃料は、メタノールであることを特徴とする請求項 2 に記載の燃料電池。

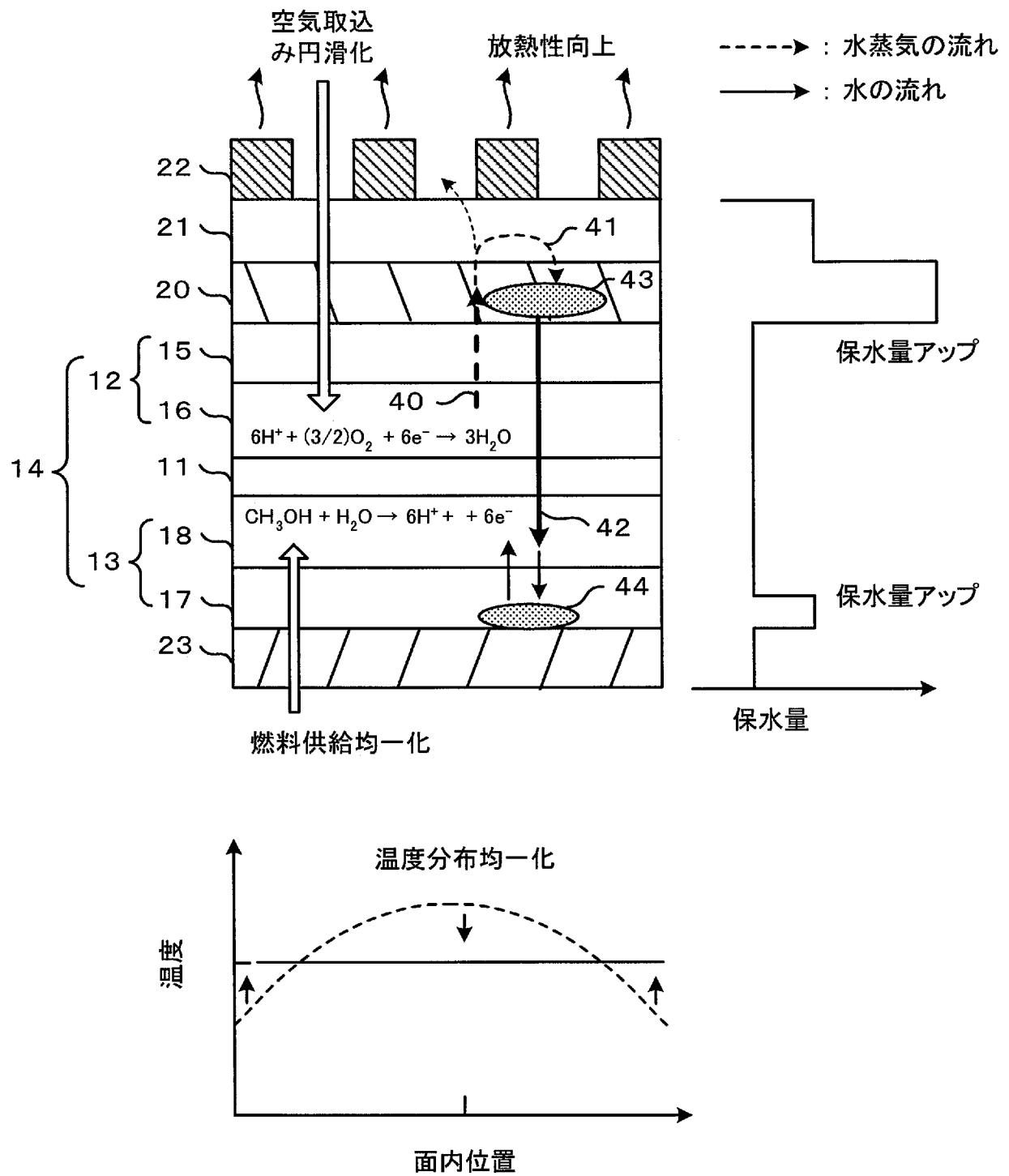
[請求項 15] 前記メタノールは、濃度が 80 wt % 以上のメタノール水溶液、または純メタノールであることを特徴とする請求項 13 に記載の燃料電池。

[請求項 16] 前記メタノールは、濃度が 80 wt % 以上のメタノール水溶液、または純メタノールであることを特徴とする請求項 14 に記載の燃料電池。

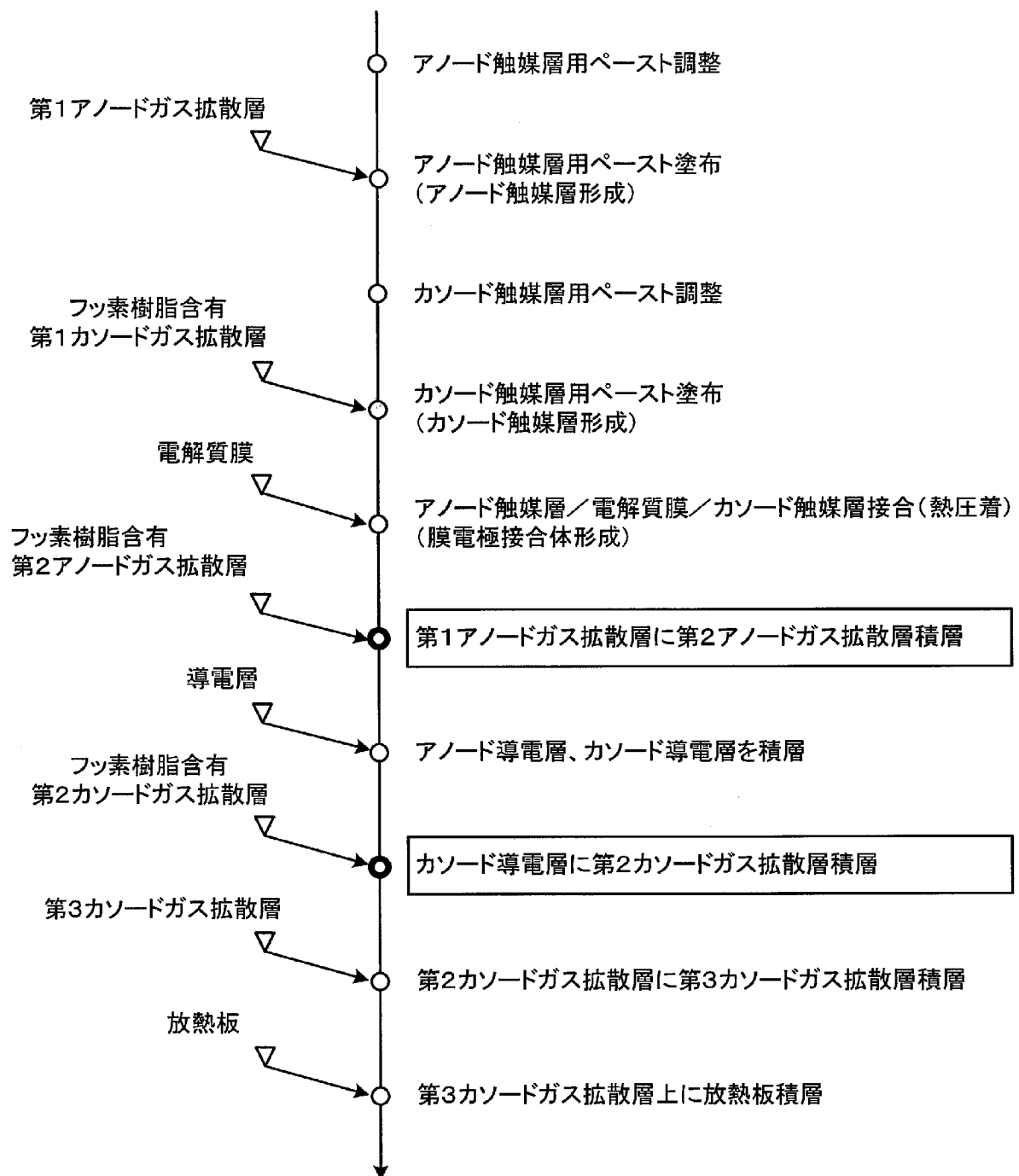
[図1]



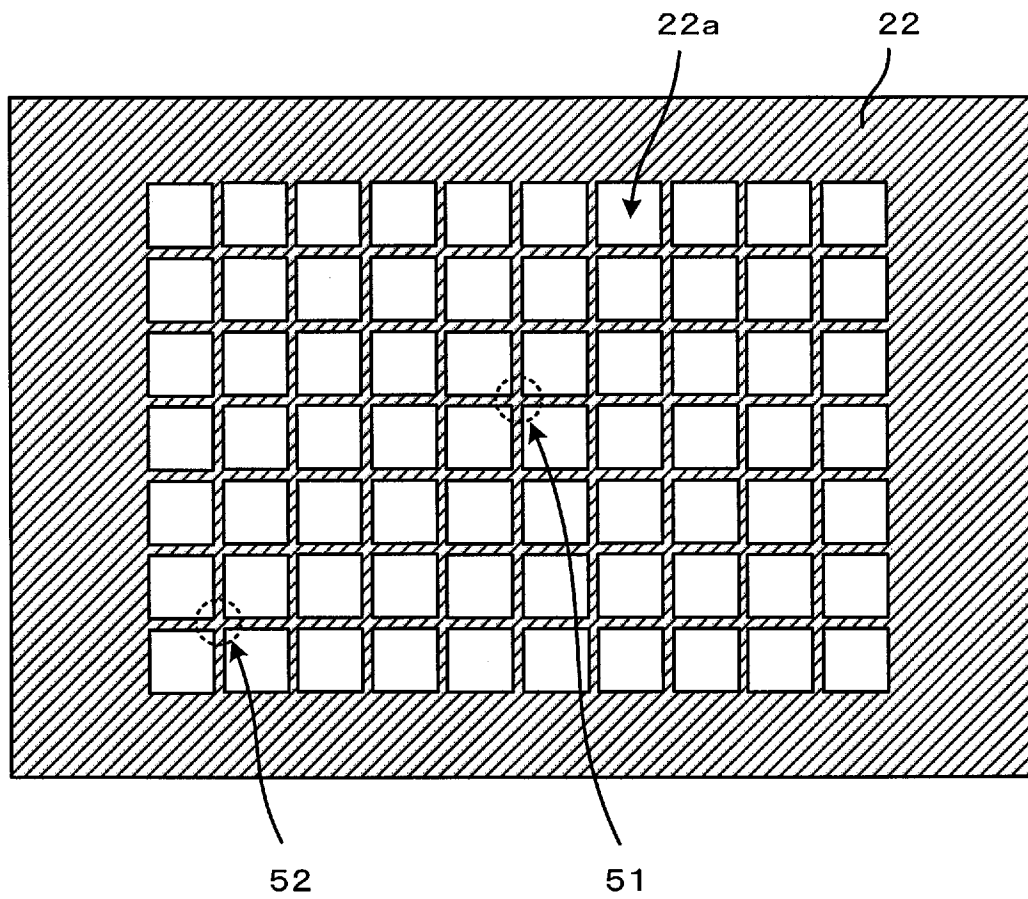
[図2]



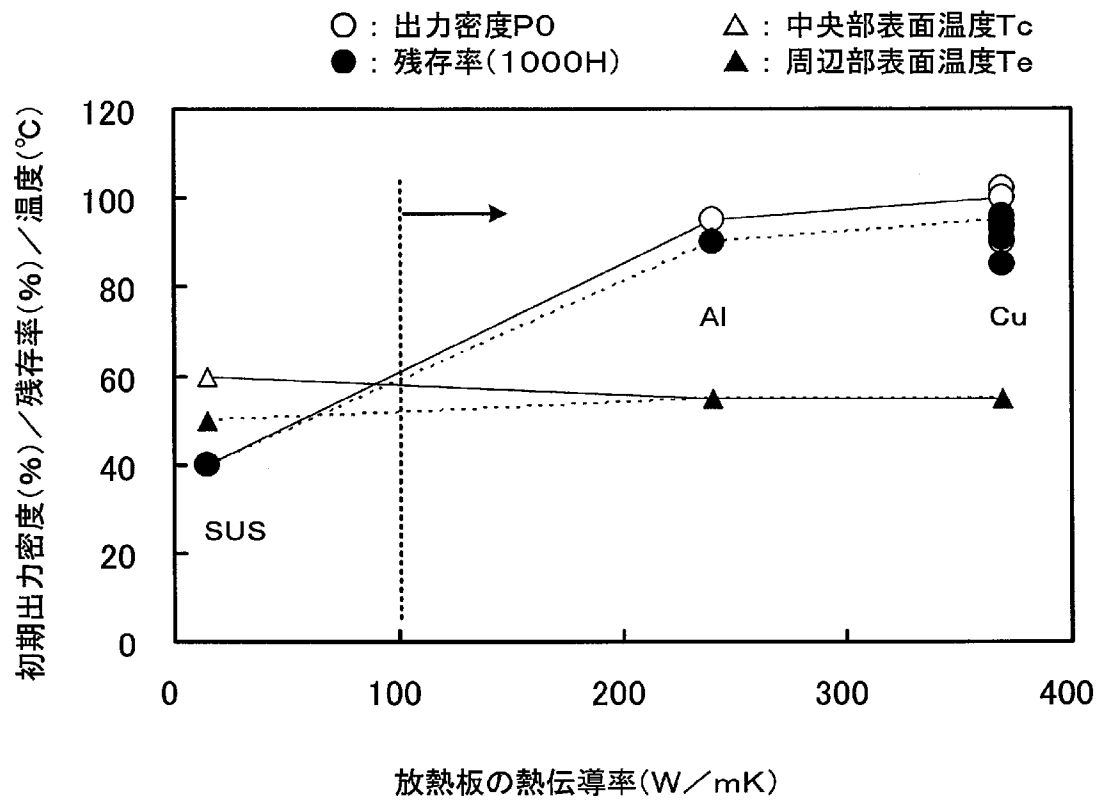
[図3]



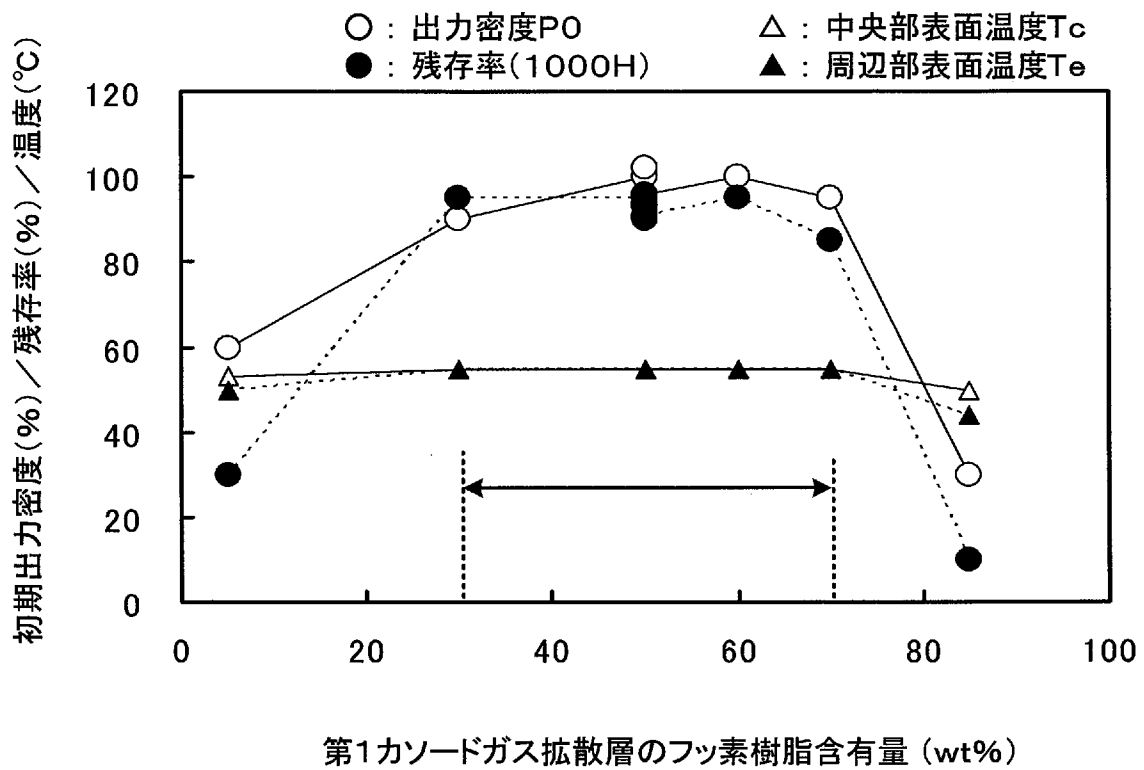
[図4]



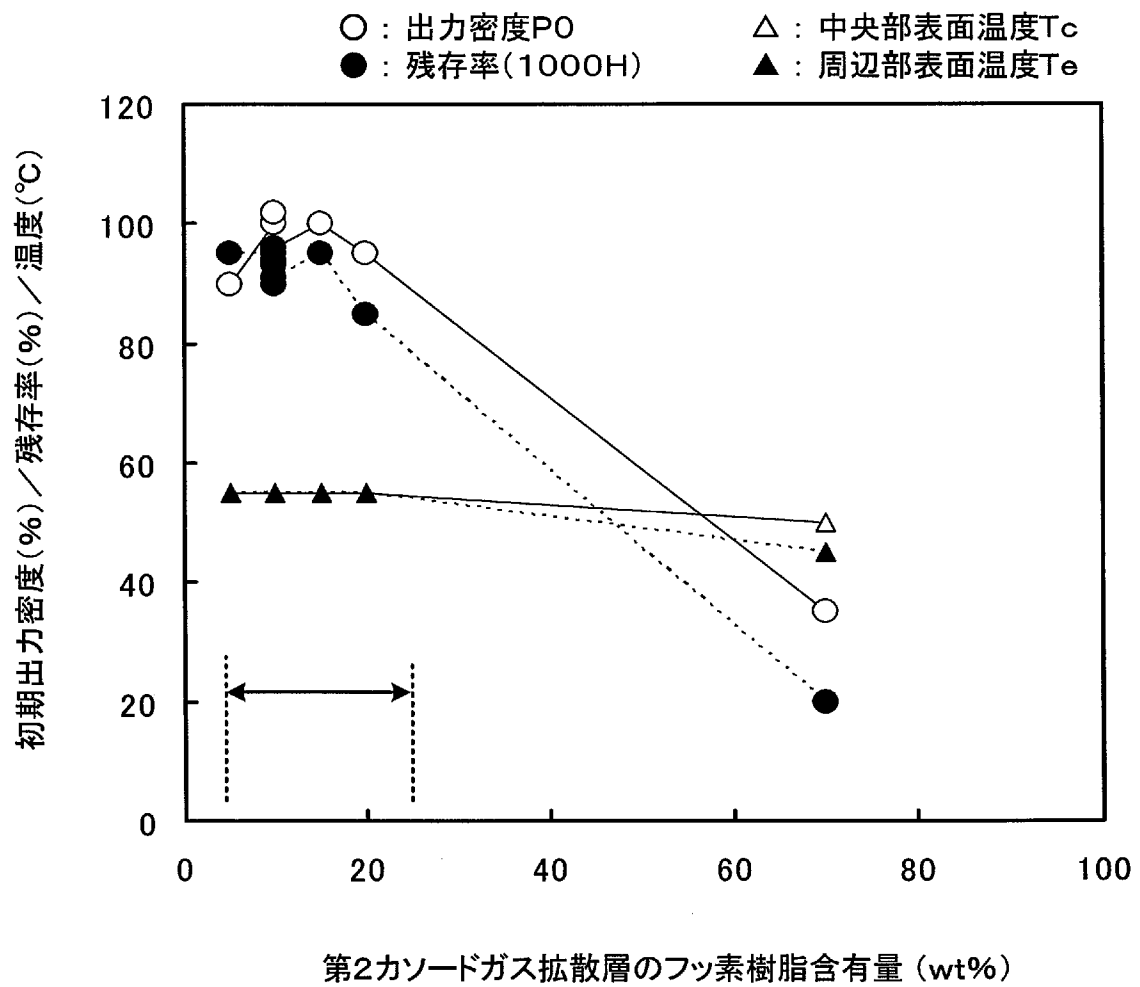
[図5]



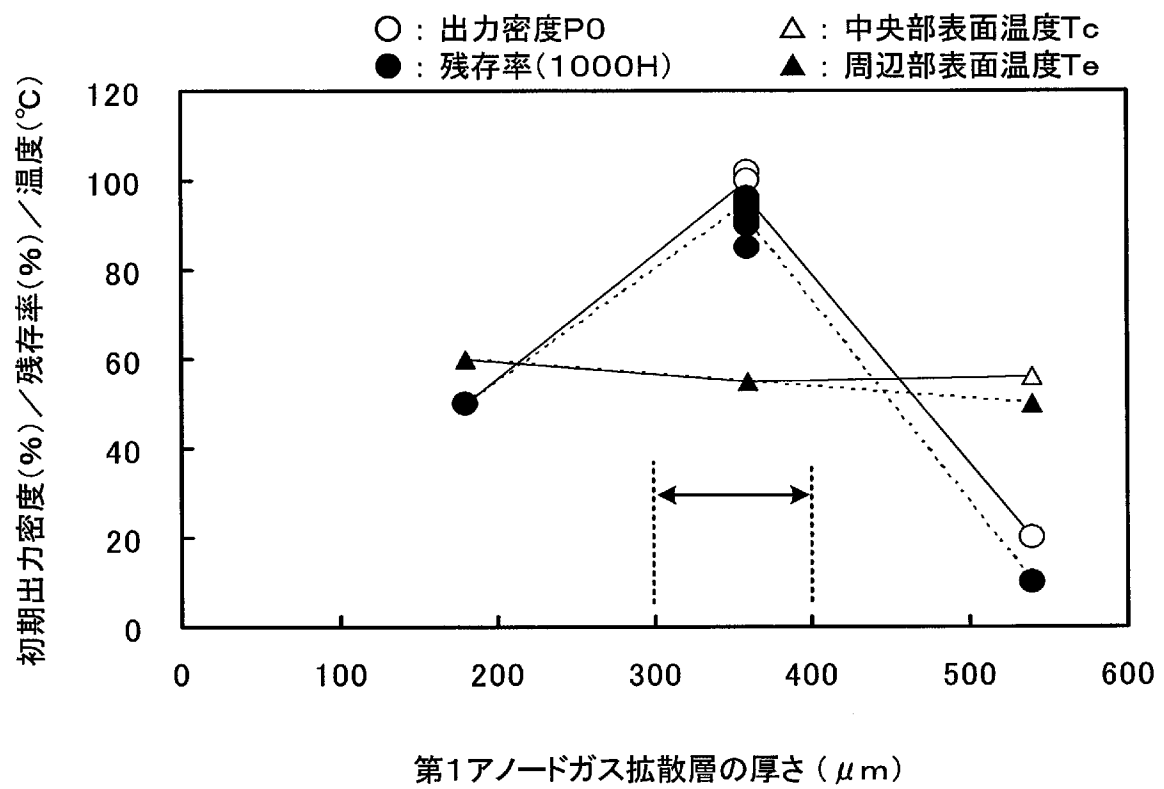
[図6]



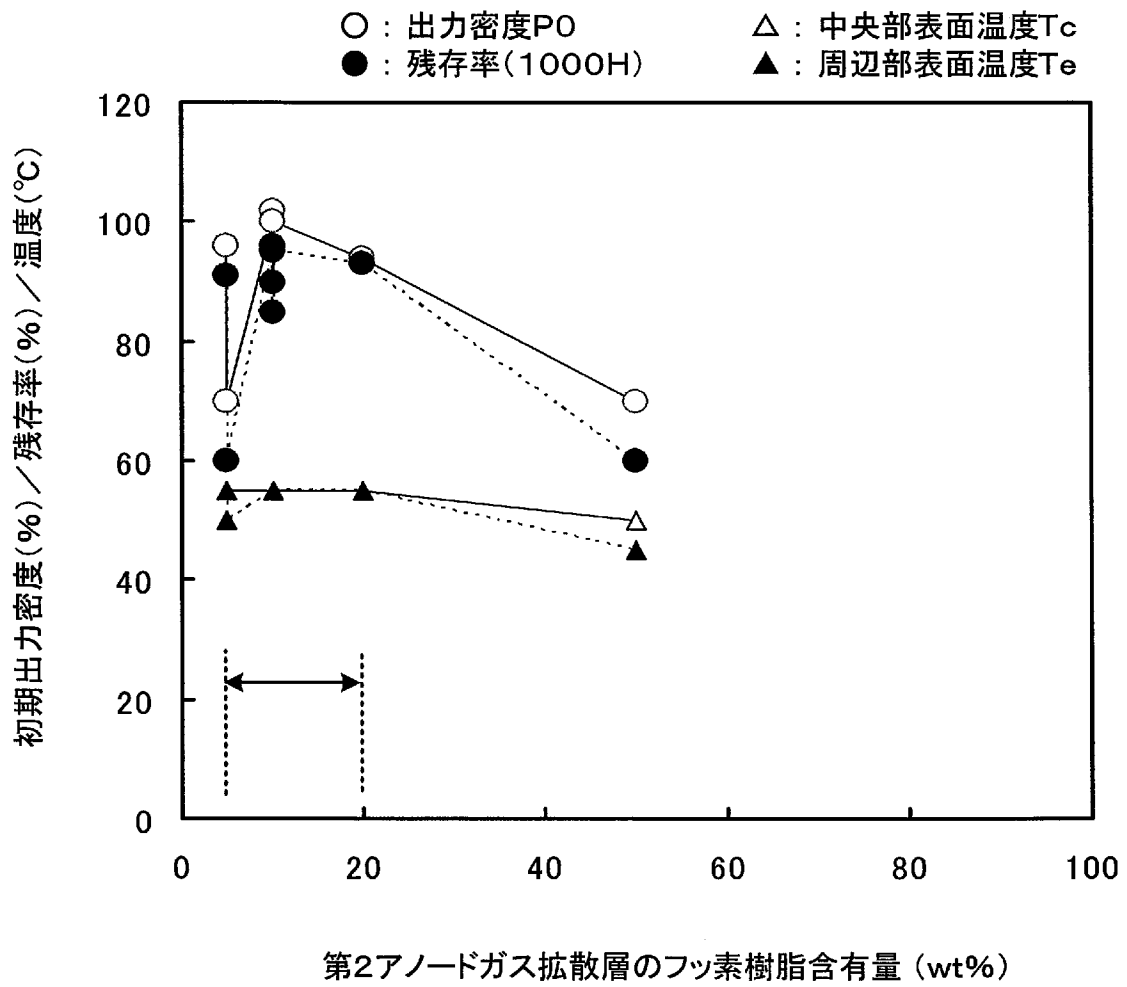
[図7]



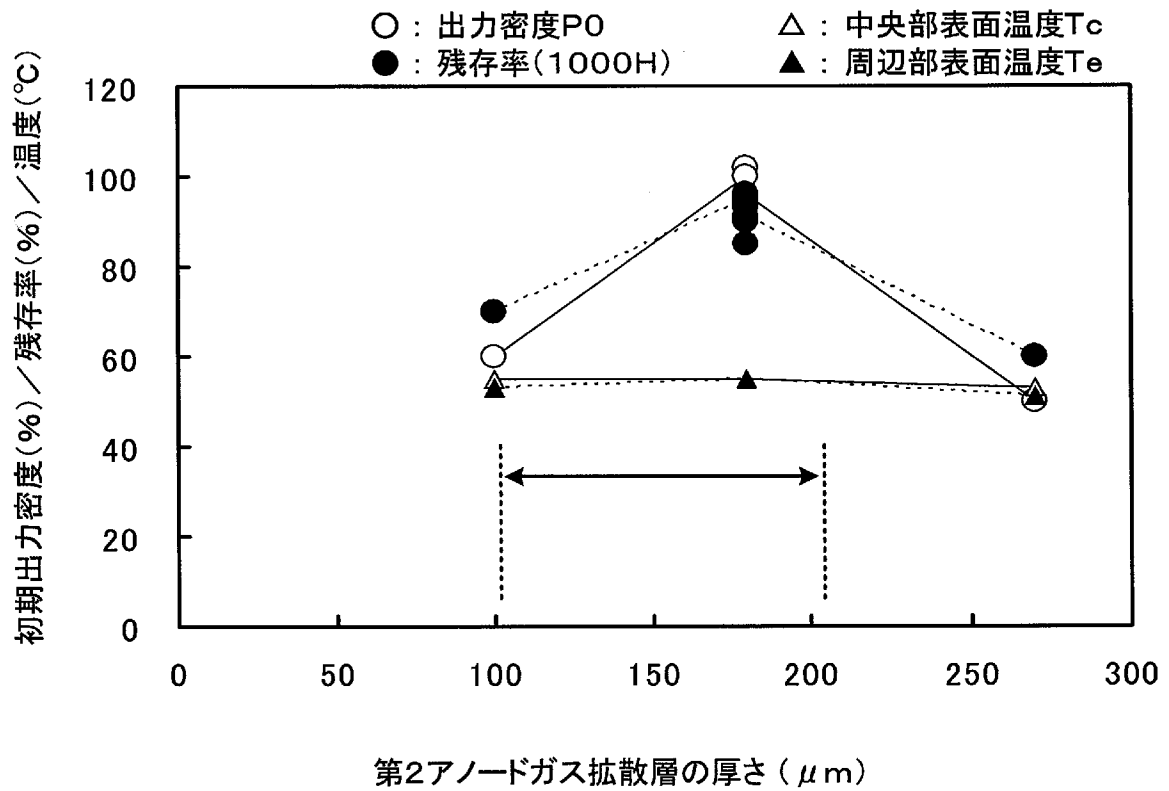
[図8]



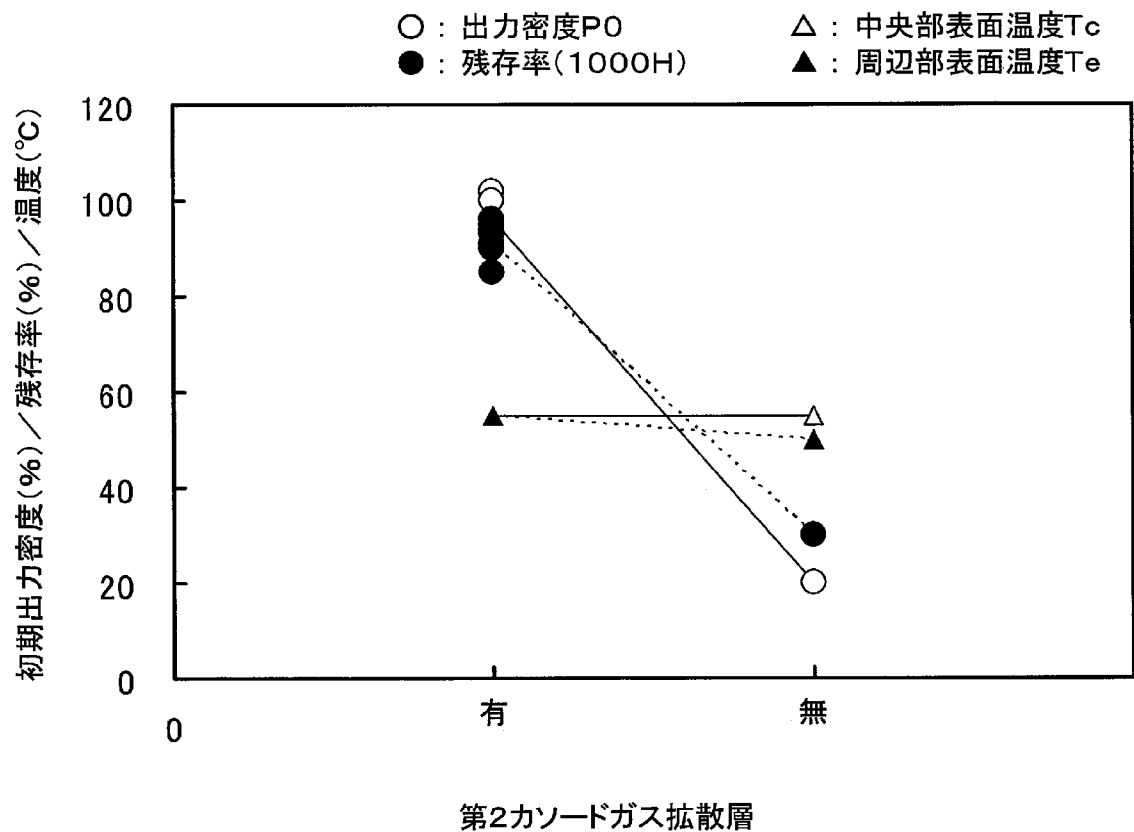
[図9]



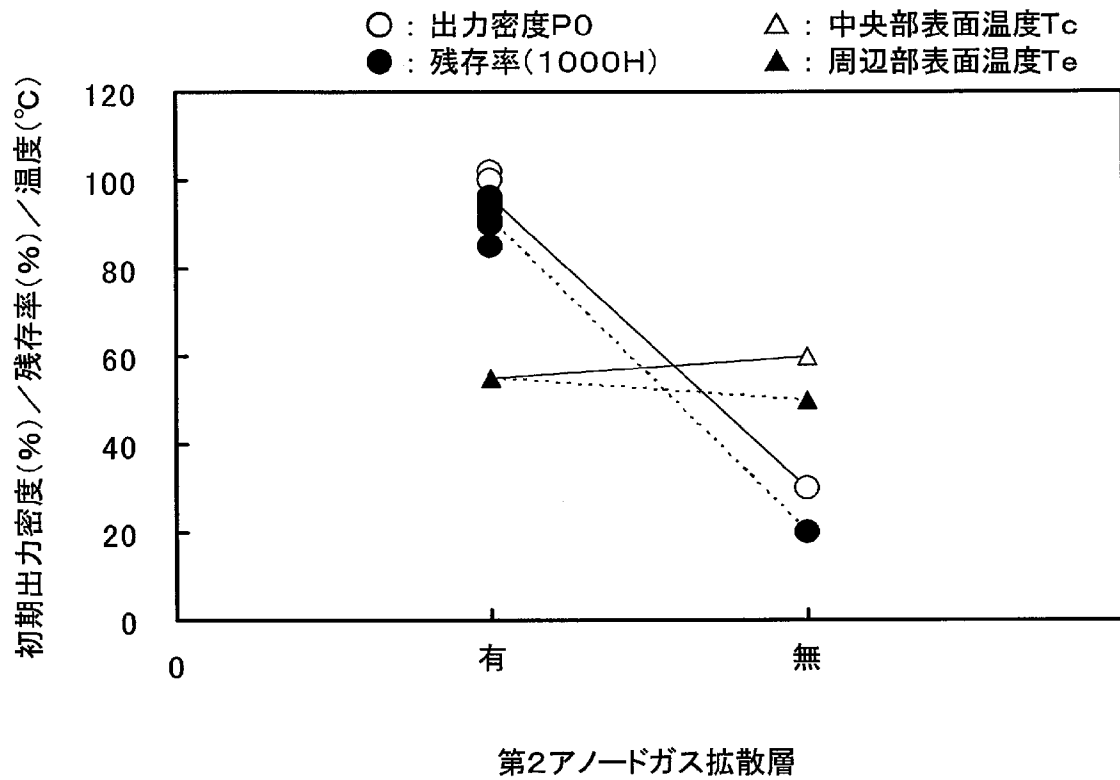
[図10]



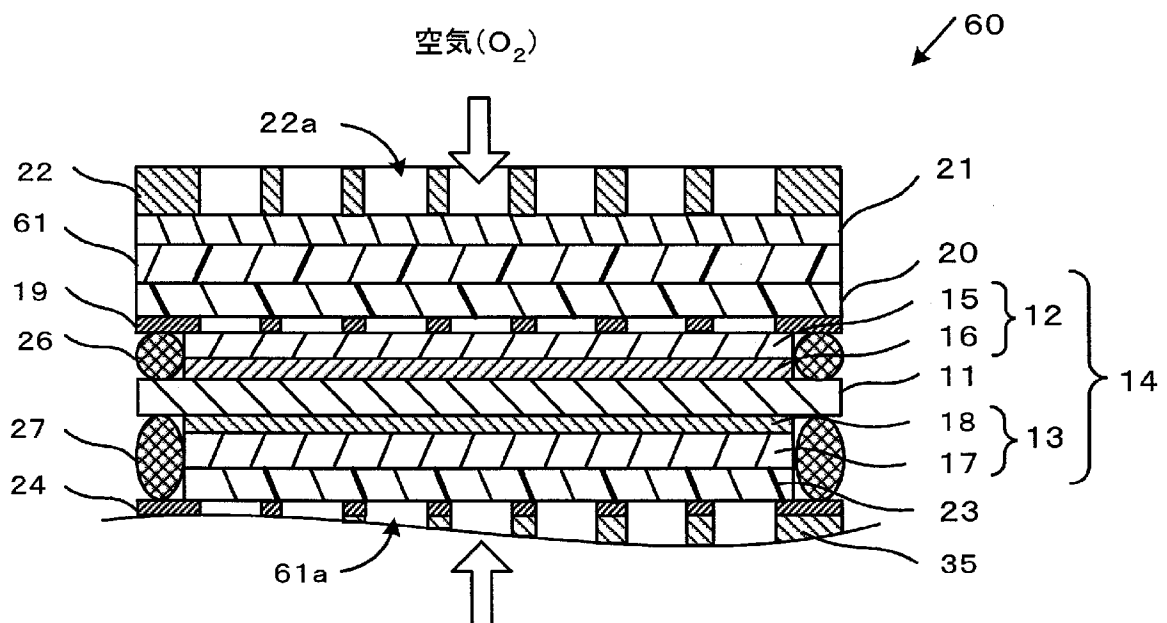
[図11]



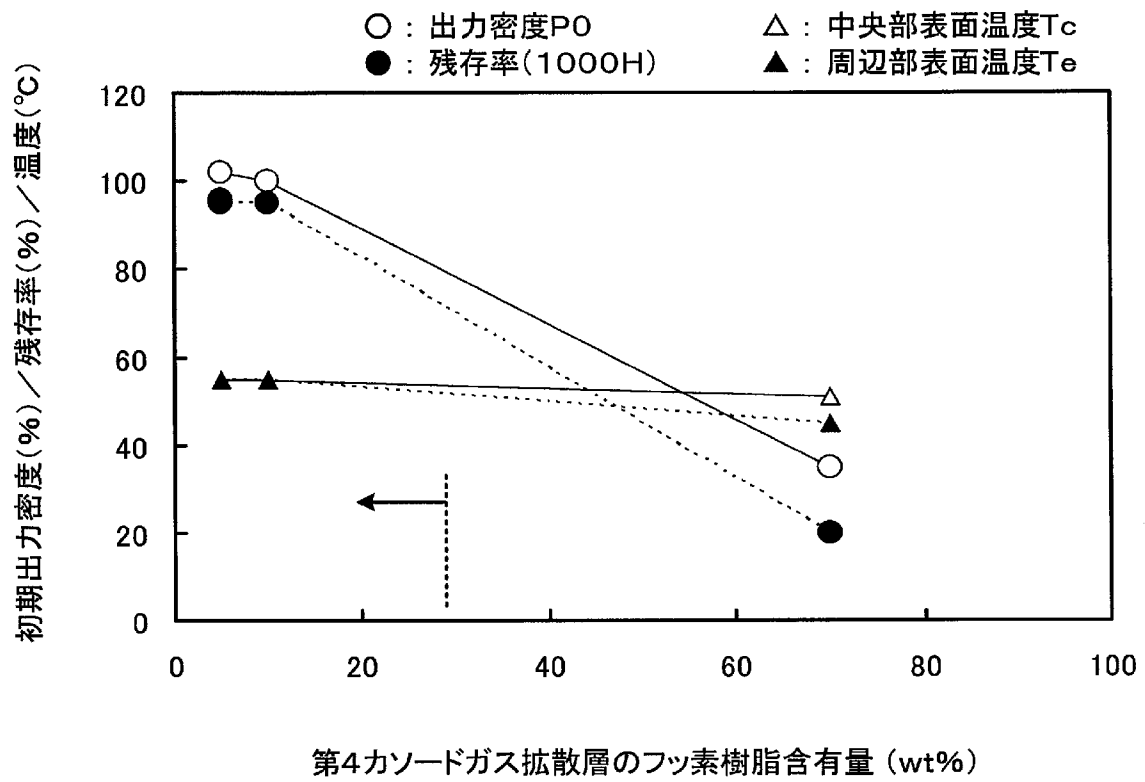
[図12]



[図13]



[図14]



[図15]

試験名	放熱板 材質	放熱率 (W/mK)	第1カソードガ ス拡散層のフッ 素樹脂含有量 (wt%)	第2カソードガ ス拡散層のフッ 素樹脂含有量 (wt%)	第4カソードガ ス拡散層のフッ 素樹脂含有量 (wt%)	第1アノード ガス拡散層 の厚さ (μ m)	第2アノード ガス拡散層 の厚さ (μ m)	初期出 力密度P O (%)	1000H 残存率 (%)	中央部 温度Tc (°C)	周辺部 温度Te (°C)
試験例1	Cu	370	50	10	-	360	180	100	95	55	55
試験例2	Al	204	50	10	-	360	180	95	90	55	55
試験例3	Cu	370	70	20	-	360	180	95	85	55	55
試験例4	Cu	370	30	5	-	360	180	90	95	55	55
試験例5	Cu	370	50	10	5	360	180	102	96	55	55
試験例6	Cu	370	50	10	5	360	180	102	96	55	55
試験例7	Cu	370	60	15	10	360	180	100	95	55	55
試験例8	Cu	370	50	10	-	360	180	94	93	55	55
試験例9	Cu	370	50	10	-	360	180	96	91	55	55
比較例1	SUS	15	50	10	-	360	-	40	40	60	50
比較例2	Cu	370	85	10	-	360	180	30	10	50	44
比較例3	Cu	370	5	10	-	360	180	60	30	53	50
比較例4	Cu	370	50	70	-	360	180	35	20	50	45
比較例5	Cu	370	50	10	70	360	180	35	20	51	45
比較例6	Cu	370	50	10	-	180	180	50	50	60	60
比較例7	Cu	370	50	10	-	540	180	20	10	56	50
比較例8	Cu	370	50	10	-	360	180	70	60	50	45
比較例9	Cu	370	50	10	-	360	180	70	60	55	50
比較例10	Cu	370	50	10	-	360	100	60	70	55	53
比較例11	Cu	370	50	10	-	360	270	50	60	53	51
比較例12	Cu	370	50	-	-	360	180	20	30	55	50
比較例13	Cu	370	50	10	-	360	-	30	20	60	50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/002441

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M8/02(2006.01)i, H01M4/86(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, H01M4/86, 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 1996-2010

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2010 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2010

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.
Y A	JP 2009-129830 A (Toshiba Corp.), 11 June 2009 (11.06.2009), claims; paragraphs [0016] to [0042], [0052] to [0061]; fig. 1 (Family: none)	1-4, 9-16 5-8
Y A	JP 2003-331850 A (Mitsubishi Electric Corp.), 21 November 2003 (21.11.2003), claims; paragraphs [0020] to [0030]; fig. 1 (Family: none)	1-4, 9-16 5-8
A	JP 2006-92920 A (Toyota Motor Corp.), 06 April 2006 (06.04.2006), paragraphs [0020] to [0036]; fig. 1 (Family: none)	1-16

☒ 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
21 June, 2010 (21.06.10)Date of mailing of the international search report
29 June, 2010 (29.06.10)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/002441

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2005/112172 A1 (Toshiba Corp.), 24 November 2005 (24.11.2005), paragraphs [0018] to [0033]; fig. 1 & US 2007/0059575 A1 & EP 1758188 A1 & KR 10-2007-0011485 A & CN 1954451 A	1-16
A	JP 2008-135249 A (Toyota Motor Corp.), 12 June 2008 (12.06.2008), paragraphs [0024] to [0036]; fig. 1 (Family: none)	1-16

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, H01M4/86(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, H01M4/86, 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 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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
Y A	JP 2009-129830 A（株式会社東芝）2009.06.11, 【特許請求の範囲】，【0016】－【0042】，【0052】－【0061】，【図1】 （ファミリーなし）	1-4, 9-16 5-8
Y A	JP 2003-331850 A（三菱電機株式会社）2003.11.21, 【特許請求の範囲】，【0020】－【0030】，【図1】（ファミリーなし）	1-4, 9-16 5-8
A	JP 2006-92920 A（トヨタ自動車株式会社）2006.04.06, 【0020】－【0036】，【図1】（ファミリーなし）	1-16

☒ 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 1 . 0 6 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 9 . 0 6 . 2 0 1 0

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100-8915

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 03-3581-1101 内線 3477

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	WO 2005/112172 A1 (株式会社東芝) 2005. 11. 24, [0018]-[0033], [図 1] & US 2007/0059575 A1 & EP 1758188 A1 & KR 10-2007-0011485 A & CN 1954451 A	1-16
A	JP 2008-135249 A (トヨタ自動車株式会社) 2008. 06. 12, 【0024】 - 【0036】 , 【図 1】 (ファミリーなし)	1-16