

(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 8 月 9 日(09.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/105487 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/JP2012/051971
- (22) 国際出願日: 2012 年 1 月 30 日(30.01.2012)
- (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 2011-019691 2011 年 2 月 1 日(01.02.2011) 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): 水畑 宏隆
(MIZUHATA, Hirotaka). 佐多 俊輔(SATA, Shun-

suke). 吉田 章人(YOSHIDA, Akihito). 竹中 忍
(TAKENAKA, Shinobu).

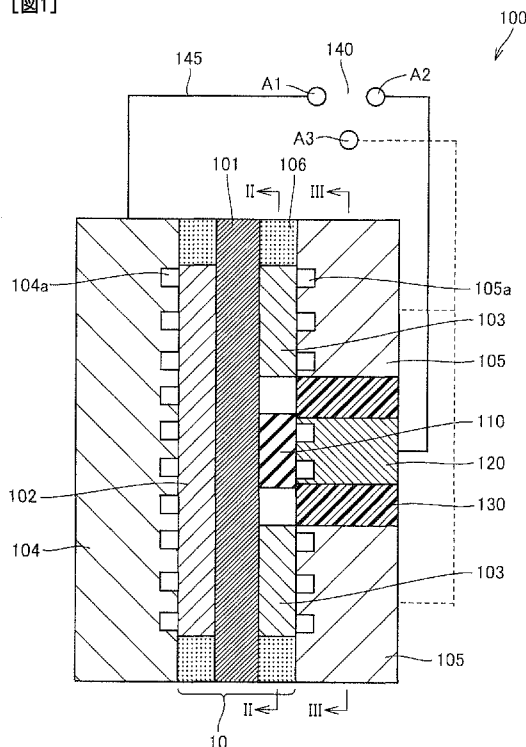
- (74) 代理人: 特許業務法人深見特許事務所(FUKAMI
PATENT OFFICE, p.c.); 〒5300005 大阪府大阪市北
区中之島二丁目 2 番 7 号 中之島セントラルタ
ワー Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,
GB, GD, GE, GH, 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,

[続葉有]

(54) Title: MEMBRANE ELECTRODE ASSEMBLY AND ALKALINE FUEL CELL USING SAME

(54) 発明の名称: 膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池

【図1】



(57) Abstract: Provided is a membrane electrode assembly for an alkaline fuel cell comprising an anion-conductive electrolyte membrane; a first electrode layered on a first surface of the anion-conductive electrolyte membrane; and a second electrode layered on a second surface opposite the first surface of the anion-conductive electrolyte membrane, wherein the membrane electrode assembly further comprises a third electrode layered on the first surface at a distance from the first electrode. Also provided are an alkaline fuel cell in which the membrane electrode assembly is used, and a method for using the alkaline fuel cell. The membrane electrode assembly can further comprise a fourth electrode layered on the second surface at a distance from the second electrode.

(57) 要約: アニオン伝導性電解質膜と、アニオン伝導性電解質膜の第1表面に積層される第1電極と、アニオン伝導性電解質膜の第1表面に対向する第2表面に積層される第2電極とを含むアルカリ形燃料電池用膜電極複合体であって、第1電極と離間して第1表面に積層される第3電極をさらに備える膜電極複合体、これを用いたアルカリ形燃料電池およびその使用方法が提供される。膜電極複合体は、第2電極と離間して第2表面に積層される第4電極をさらに備えることもできる。



MZ, NA, RW, 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 (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).

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：

膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池

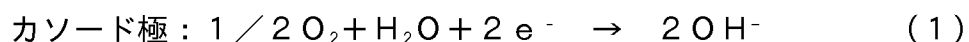
技術分野

[0001] 本発明は、膜電極複合体、これを用いたアルカリ形燃料電池およびその使用方法に関する。

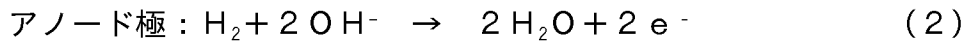
背景技術

[0002] 燃料電池は、小型軽量化や高出力密度を実現できる可能性を有していることから、携帯用電子機器用の新規電源や家庭用コジェネレーションシステムなどへの用途展開が精力的に進められている。燃料電池は、発電主要部として、電解質膜をアノード極およびカソード極で挟持した構成の膜電極複合体（MEA）を備えており、電解質膜の種類によって、固体高分子形燃料電池（直接形燃料電池を含む）、リン酸形燃料電池、熔融炭酸塩形燃料電池、固体酸化物形燃料電池、アルカリ形燃料電池などに分類される。

[0003] アルカリ形燃料電池は、電解質膜としてアニオン伝導性電解質膜（アニオン交換膜）を用いた、電荷キャリアが水酸化物イオン（OH⁻）である燃料電池である。アルカリ形燃料電池においては、アノード極とカソード極とを電気的に接続すると、次のような電気化学反応によりアノード極とカソード極との間に電流が流れ、電気エネルギーを得ることができる。すなわち、カソード極に酸化剤（たとえば酸素または空気など）および水（この水は、アノード極で生じ、電解質膜を透過した水であり得る）を供給すると、下記式（1）：

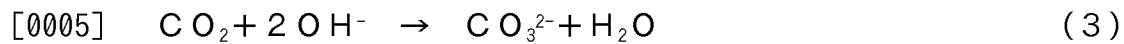


で表される触媒反応によりOH⁻が生成される。このOH⁻は、水分子との水和状態で電解質膜を介してアノード極側に伝達される。一方、アノード極では、供給された還元剤（燃料）、たとえばH₂ガスとカソード極から伝達されたOH⁻とが、下記式（2）：

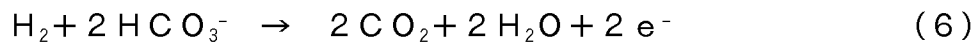
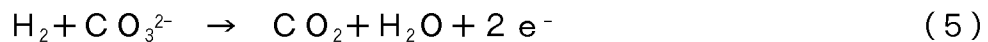


で表される触媒反応を起こし、水および電子を生成する。

[0004] アルカリ形燃料電池においては、電解質膜および触媒層の電解質にアニオン伝導性電解質を用いるために、稼動停止中に、電解質膜および触媒層が環境中の二酸化炭素 (CO_2) を吸収し、電解質膜および触媒層中の OH^- は、 CO_3^{2-} および／または HCO_3^- (以下、「 CO_2 由来アニオン」ということがある。) に置換される〔下記式 (3) および (4) 参照〕。このような CO_2 由来アニオンの濃度上昇 (OH^- イオン濃度の低下) は、電解質のアニオン伝導度を低下させ、セル抵抗を大きく増大させる。



上記セル抵抗増大の問題は、燃料電池の稼動により生じるセルフパージと呼ばれる現象により改善できることが知られている。セルフパージとは、燃料電池の稼動により、アニオン伝導度の低下の要因である、電解質膜および触媒層に含まれる CO_2 由来アニオンがアノード極に移動し、還元剤によって還元され、 CO_2 ガスとしてアノード極から排出される現象をいい、具体的には下記式 (5) および (6) :



で表すことができる。

[0006] しかしながら、Yu Matsui, Morihiro Saito, Akimasa Tasaka, and Minoru Inaba, ECS Transactions, 25 (13), 105-110 (2010)

〔非特許文献1〕に示されるように、セルフパージによれば、多くの CO_2 由来アニオンが OH^- に再置換されるため、セル抵抗の増大を抑制することは可能であるものの、ある一定量残存した CO_2 由来アニオンがセルフパージによってアノード極に局在化し、蓄積される結果、アノード極における反応過電圧が高くなり、発電効率が低下してしまうという問題があった。

先行技術文献

非特許文献

- [0007] 非特許文献1: Yu Matsui, Morihiro Saito, Akimasa Tasaka, and Minoru Inaba, ECS Transactions, 25 (13), 105-110 (2010)

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] 本発明は上記課題に鑑みなされたものであり、その目的は、セルフパージによるアノード極へのCO₂由来アニオンの蓄積を抑制することによりアノード極における反応過電圧を低下させることができ、もって良好な発電効率を示すアルカリ形燃料電池用の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形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] 本発明は、アニオン伝導性電解質膜と、該アニオン伝導性電解質膜の第1表面に積層される第1電極と、該アニオン伝導性電解質膜の第1表面に対向する第2表面に積層される第2電極とを含むアルカリ形燃料電池用膜電極複合体であって、第1電極と離間して第1表面に積層される第3電極をさらに備える膜電極複合体(MEA)を提供する。第1電極と第2電極とは、好ましくはアニオン伝導性電解質膜を介して対向するように設けられる。
- [0010] 本発明の膜電極複合体は、互いに離間して配置される複数の第3電極を備えることができる。この場合、複数の第3電極は、第1表面内において略均等に分散して配置されることが好ましい。
- [0011] 本発明の膜電極複合体は、第2電極と離間して第2表面に積層される第4電極をさらに備えることができ、また、互いに離間して配置される複数の第4電極を備えることができる。複数の第4電極を備える場合、これらは第2表面内において略均等に分散して配置されることが好ましい。
- [0012] 第4電極を備える1つの好ましい実施形態において、第1電極と第2電極

とは、アニオン伝導性電解質膜を介して対向するように設けられ、第3電極から第4電極に至る最短経路が、第1電極と第2電極との間に介在するアニオン伝導性電解質膜内を通るように配置される第3電極および第4電極を備える。この実施形態において、好ましくは、第3電極は、第1電極の外側側方に配置されるとともに、第4電極は、第2電極における第3電極に対向する側とは反対側の外側側方に配置される。

[0013] また本発明は、上記膜電極複合体と、各電極上に積層される集電層とを少なくとも備えるアルカリ形燃料電池およびその使用方法を提供する。第1電極上に積層される第1集電層と第3電極上に積層される第3集電層とは電氣的に絶縁される。また、膜電極複合体が第4電極を備える場合、第2電極上に積層される第2集電層と第4電極上に積層される第4集電層とは電氣的に絶縁される。

発明の効果

[0014] 上記のように、本発明の膜電極複合体は、実質的な発電を担う電極（すなわち、第1電極および第2電極）とは独立して、セルフパージ用として使用される第3電極および任意で設けられる第4電極を備えるものである。このような膜電極複合体を用いたアルカリ形燃料電池によれば、発電を担う電極に CO_2 由来アニオンが蓄積することを抑制できるため、発電時においてアノード極として機能する電極（第1電極）における反応過電圧を低下させることができ、発電効率を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池の好ましい一例を示す概略断面図である。

[図2]図1に示されるI-I'線における概略断面図である。

[図3]図1に示されるII-II'線における概略断面図である。

[図4]本発明の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池の他の好ましい一例を示す概略断面図である。

[図5]図4に示されるV-V'線における概略断面図である。

[図6]図4に示されるV I - V I線における概略断面図である。

[図7]本発明の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池の他の好ましい一例を示す概略断面図である。

[図8]図7に示されるV I I I - V I I I線における概略断面図である。

[図9]図7に示されるI X - I X線における概略断面図である。

[図10]本発明の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池の他の好ましい一例を示す概略断面図である。

[図11]図10に示されるX I - X I線における概略断面図である。

[図12]図10に示されるX I I - X I I線における概略断面図である。

[図13]本発明の膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池の他の好ましい一例を示す概略断面図である。

[図14]図13に示されるX I V - X I V線における概略断面図である。

[図15]図13に示されるX V - X V線における概略断面図である。

[図16]図13に示されるX V I - X V I線における概略断面図である。

[図17]図13に示されるX V I I - X V I I線における概略断面図である。

[図18]実施例1で作製したアルカリ形燃料電池を示す概略断面図である。

[図19]図18に示されるX I X - X I X線における概略断面図である。

[図20]図18に示されるX X - X X線における概略断面図である。

[図21]実施例2で作製したアルカリ形燃料電池を示す概略断面図である。

[図22]図21に示されるX X I I - X X I I線における概略断面図である。

[図23]図21に示されるX X I I I - X X I I I線における概略断面図である。

[図24]実施例3で作製したアルカリ形燃料電池を示す概略断面図である。

[図25]図24に示されるX X V - X X V線における概略断面図である。

[図26]図24に示されるX X V I - X X V I線における概略断面図である。

[図27]図24に示されるX X V I I - X X V I I線における概略断面図である。

[図28]図24に示されるX X V I I I - X X V I I I線における概略断面図

である。

発明を実施するための形態

[0016] 本発明の膜電極複合体は、実質的な発電を担う電極（第1電極および第2電極）とは独立して、セルフパージ用の第3電極を別途に備えることを特徴としている。この第3電極は、発電時においてアノード極として機能する第1電極と同じ側のアニオン伝導性電解質膜表面（第1表面）に積層されるが、第1電極と離間して（接触しないように）配置される。また、本発明の膜電極複合体は、第3電極に加えて、セルフパージ用の第4電極を備えることもできる。この第4電極は、発電時においてカソード極として機能する第2電極と同じ側のアニオン伝導性電解質膜表面（第2表面）に積層されるが、第2電極と離間して（接触しないように）配置される。かかる膜電極複合体を備えるアルカリ形燃料電池は、第3、第4電極などを用いてセルフパージを行なった後、第1および第2電極を用いて実質的な発電を行なうものである。

[0017] このような膜電極複合体を用いたアルカリ形燃料電池によれば、セルフパージにより第1電極、第2電極およびアニオン伝導性電解質膜の CO_2 由来アニオン濃度を低減（ OH^- 濃度を増大）でき、これによりセル抵抗の増大を抑制できるとともに、セルフパージによる CO_2 由来アニオンの蓄積は、第3電極および／または第4電極において主に生じることになるため、発電時においてアノード極として機能する第1電極における反応過電圧を低下させることができ、発電効率を向上させることができる。

[0018] また、セルフパージにより膜電極複合体にイオン電流が流れ、これにより膜電極複合体は適度に加温された状態となるため、セルフパージ後、発電を行なう際の起動性を高めることができ、発電開始初期から十分に高い電力を得ることができる。

[0019] 以下、本発明の膜電極複合体、これを用いたアルカリ形燃料電池およびその使用方法について、実施の形態を示して詳細に説明する。

[0020] <第1の実施形態>

(1) 膜電極複合体およびアルカリ形燃料電池の構成

図1は、本実施形態に係る膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池を示す概略断面図であり、図2および図3はそれぞれ、図1に示されるⅠⅠ－ⅠⅠ線、ⅠⅠⅠ－ⅠⅠⅠ線における概略断面図である。本実施形態のアルカリ形燃料電池100は、膜電極複合体(MEA)10を備えることを特徴としている。膜電極複合体10は、アニオン伝導性電解質膜101；アニオン伝導性電解質膜101の第1表面に積層される第1電極103；アニオン伝導性電解質膜101の第1表面に対向する第2表面に積層される第2電極102；および、第1電極103と離間して第1表面に積層される、セルフパージ用の第3電極110から主に構成される。電極の周縁には、電極端面からの空気等の浸入を防止するために、ガスケット106（たとえば、シリコンゴム等の弾性樹脂からなる層や、エポキシ系樹脂等の硬化性樹脂の硬化物層）が設けられている。

[0021] 第1電極103と第2電極102とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられている。また、本実施形態において、第1電極103は2つに分割されて積層されており、これら2つの第1電極103の間に、第1電極103と離間するように第3電極110が配置されている。

[0022] また、アルカリ形燃料電池100は、第1電極103上に積層される第1集電層105；第2電極102上に積層される第2集電層104；および、第3電極110上に積層される第3集電層120を備えている。これらの集電層は、これに接する電極との間で電子の授受を行なうとともに、電氣的配線を行なうための部材である。第1集電層105と第3集電層120とは、これらの集電層の間に絶縁層130を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。また、第1集電層105および第3集電層120には、第1電極103または第3電極110に還元剤を供給するための第1流路105aが設けられている。同様に、第2集電層104には、第2電極102に酸化剤を供給するための第2流路104aが設けられている。このように、

本実施形態において各集電層は、還元剤や酸化剤を供給するための部材でもある。

[0023] さらに、アルカリ形燃料電池 100 は、外部配線 145 と、外部配線 145 に介在する切り替え手段（スイッチ） 140 とを備える。切り替え手段 140 は、集電層間の接続関係を切り替えるためのものであり、第 2 集電層 104 と電氣的接続される集電層を、第 1 集電層 105 または第 3 集電層 120 のいずれかに切り替えることができる。

[0024] （アニオン伝導性電解質膜）

アニオン伝導性電解質膜 101 としては、OH⁻イオンを伝導でき、かつ、第 1 電極 103 および第 3 電極 110 と第 2 電極 102 との間の短絡を防止するために電氣的絶縁性を有する限り特に制限されないが、アニオン伝導性固体高分子電解質膜を好適に用いることができる。アニオン伝導性固体高分子電解質膜の好ましい例は、たとえば、パーフルオロスルホン酸系、パーフルオロカルボン酸系、スチレンビニルベンゼン系、第 4 級アンモニウム系の固体高分子電解質膜（アニオン交換膜）が挙げられる。また、ポリアクリル酸に濃厚水酸化カリウム溶液を含浸させた膜やアニオン伝導性固体酸化物電解質膜をアニオン伝導性電解質膜 101 として用いることもできる。

[0025] アニオン伝導性電解質膜 101 は、アニオン伝導率が 10^{-5} S/cm 以上であることが好ましく、パーフルオロスルホン酸系高分子電解質膜などのアニオン伝導率が 10^{-3} S/cm 以上の電解質膜を用いることがより好ましい。アニオン伝導性電解質膜 101 の厚みは、通常 $5 \sim 300 \mu\text{m}$ であり、好ましくは $10 \sim 200 \mu\text{m}$ である。

[0026] （第 1 電極および第 2 電極）

アニオン伝導性電解質膜 101 の第 1 表面に積層され、発電時にアノード極として機能する第 1 電極 103、および、第 1 表面に対向する第 2 表面に積層され、発電時にカソード極として機能する第 2 電極 102 には、触媒と電解質とを含有する多孔質層からなる触媒層が少なくとも設けられる。これらの触媒層は、アニオン伝導性電解質膜 101 の表面に接して積層される。

第1電極103の触媒（アノード触媒）は、第1電極103に供給された還元剤と OH^- とから、水および電子を生成する反応を触媒する。第1電極103の電解質は、アニオン伝導性電解質膜101から伝導してきた OH^- を触媒反応サイトへ伝導する機能を有する。一方、第2電極102の触媒（カソード触媒）は、第2電極102に供給された酸化剤および水と、第1電極103から伝達された電子とから、 OH^- を生成する反応を触媒する。第2電極102の電解質は、生成した OH^- をアニオン伝導性電解質膜201へ伝導する機能を有する。

[0027] アノード触媒およびカソード触媒としては、従来公知のものを使用することができ、たとえば、白金、鉄、コバルト、ニッケル、パラジウム、銀、ルテニウム、イリジウム、モリブデン、マンガン、これらの金属化合物、およびこれらの金属の2種以上を含む合金からなる微粒子が挙げられる。合金は、白金、鉄、コバルト、ニッケルのうち少なくとも2種以上を含有する合金が好ましく、たとえば、白金-鉄合金、白金-コバルト合金、鉄-コバルト合金、コバルト-ニッケル合金、鉄-ニッケル合金等、鉄-コバルト-ニッケル合金が挙げられる。アノード触媒とカソード触媒とは同種であってもよいし、異種であってもよい。

[0028] アノード触媒およびカソード触媒は、担体、好ましくは導電性の担体に担持されたものを用いることが好ましい。導電性担体としては、たとえば、アセチレンブラック、ファーネスブラック、チャンネルブラック、ケッチェンブラック等のカーボンブラック、黒鉛、活性炭等の導電性カーボン粒子が挙げられる。また、気相法炭素繊維（VGCF）、カーボンナノチューブ、カーボンナノワイヤー等の炭素繊維を用いることもできる。

[0029] 第1電極103および第2電極102の電解質としては、アニオン伝導性固体高分子電解質膜を構成する電解質と同様のものを用いることができる。各触媒層における触媒と電解質との含有比は、重量基準で、通常5/1～1/4であり、好ましくは3/1～1/3である。

[0030] 第1電極103および第2電極102はそれぞれ、触媒層上に積層される

ガス拡散層を備えていてもよい。ガス拡散層は、供給される還元剤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、触媒層との間で電子の授受を行なう機能を有する。

[0031] ガス拡散層は、導電性を有する多孔質層であることができ、具体的には、たとえば、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；金属または合金の発泡体、焼結体または繊維不織布などであることができる。ガス拡散層の厚みは、厚み方向に対して垂直な方向（面内方向）への還元剤または酸化剤の拡散抵抗を低減させるために、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、厚み方向への拡散抵抗を低減させるために、 1 mm 以下であることが好ましい。ガス拡散層の厚みは、より好ましくは $100\sim500\text{ }\mu\text{m}$ である。

[0032] 第1電極103と第2電極102とは、図1に示されるように、好ましくはアニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられる。このような対向配置は、第1電極103と第2電極102との間の距離を最も短くさせ、これにより、これらの電極間に電流が流れる際の抵抗が低減されるため、発電効率の低下を抑制することができる。

[0033] 第1電極103および第2電極102は、燃料電池単位面積あたりの出力を向上させる観点から、アニオン伝導性電解質膜101上にできるだけ大きい面積を有して形成されることが好ましく、たとえば図2に示されるように、アニオン伝導性電解質膜101と同じ長さまたは同程度の長さを有して形成されることが好ましい。

[0034] （第3電極）

第3電極110はセルフパージ用の電極であり、還元剤の供給により CO_2 由来アニオンを CO_2 ガスとして排出する電極である。第3電極110の構成および組成に関しては、第1電極103について既述した内容が引用される。

[0035] 第3電極110は、セルフパージ用として独立に機能させるために、第1電極103と離間してアニオン伝導性電解質膜101の第1表面上に配置さ

れる。ここで、図1および図2に示される膜電極複合体10においては、第1電極103を2つに分割し、それらの間であって、アニオン伝導性電解質膜101の第1表面の中央領域に第3電極110を配置しているが、このような配置に限定されるものではない。たとえば、第1電極103を分割することなく、第3電極110を第1電極103の側方に配置するなど、第1電極103の数（分割の有無）や第3電極110の位置は特に制限されない。ただし、セルフパージの効率を考慮すると、第2電極102に対向するような位置に第3電極110を設けることが好ましい。

[0036] 第1電極103の面積（幅×長さ）と、第3電極110の面積との比は、燃料電池の発電能力とセルフパージの効率性の双方を勘案して決定される。当該比（第1電極103の面積／第3電極110の面積）があまりに大きいと、第3電極110が小さすぎてセルフパージの効率が低下する。一方、当該比があまり小さいと、発電に寄与するアノード極としての第1電極103が小さすぎて十分な出力を得ることができない。セルフパージの効率を考慮すると、第3電極110の長さは、アニオン伝導性電解質膜101のできるだけ広い範囲からCO₂由来アニオンを取り込むことができるよう長いことが好ましく、たとえば、アニオン伝導性電解質膜101と同じか、または略同じ長さとすることができる（図2参照）。第1電極103の厚みと第3電極110の厚みは同じであることが好ましい。

[0037] （集電層）

第1集電層105、第2集電層104、第3集電層120はそれぞれ、第1電極103、第2電極102、第3電極110上に接して設けられる、接する電極との間で電子の授受を行なうとともに、電氣的配線を行なうための部材である。また、本実施形態のアルカリ形燃料電池100において、これらの集電層は、還元剤や酸化剤を供給する機能も兼ね備えており、第1集電層105および第3集電層120には、還元剤を第1電極103および第3電極110に供給するための第1流路105aが、第2集電層104には、酸化剤を第2電極102に供給するための第2流路104aが設けられてい

る。

[0038] 上述のように、第1集電層105と第3集電層120とは、これらの集電層の間に絶縁層130を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。絶縁層130は、電氣的絶縁性を示すものであれば特に制限されず、たとえば、各種非導電性高分子（絶縁性接着剤などを含む）からなることができる。集電層の材質は特に制限されず、たとえば、カーボン材料、導電性高分子、各種金属、ステンレスに代表される合金などの導電性材料を用いることができる。各集電層の材質は同じであってもよいし、異なってもよい。

[0039] 第1流路105aおよび第2流路104aは、集電層の電極側表面に設けられた1または2以上の溝から構成することができ、その形状は特に制限されず、ライン状、サーペントイン状等であることができる。なお、第1電極103に還元剤を供給するための流路と第3電極110に還元剤を供給するための流路とは連結されていてもよいし、連結されていなくてもよい。

[0040] 集電層に還元剤や酸化剤を供給する機能を付与するのではなく、還元剤や酸化剤の供給を担う別途の部材（流路板）を集電層上に積層してもよい。流路板は、たとえば、各種プラスチック材料などの非導電性材料からなる板状体の表面に1または2以上の溝を設けたものであることができる。

[0041] 以上のような構成のアルカリ形燃料電池によれば、たとえば下記方法に従って稼働させることにより、上記した所望の効果をを得ることができる。

[0042] （2）アルカリ形燃料電池の使用法

まず、第2集電層104の第2流路104aを通して第2電極102に酸化剤を供給するとともに、第3集電層120の第1流路105aを通して第3電極110に還元剤を供給し、さらに切り替え手段140により（図1に示される端子A1とA2とを接続する）、第2集電層104と第3集電層120（したがって、第2電極102と第3電極110）とを電氣的に接続して、第2電極102と第3電極110との間に一定時間電流（イオン電流）を流す〔セルフパージ工程〕。この工程により、第2電極102では上記式

(1) のような触媒反応が生じ、一方、第3電極110では、上記式(5)および(6)のようなセルフパージ反応が生じる(一部、上記式(2)のような触媒反応も生じ得る)。これらの反応によって、アニオン伝導性電解質膜101、および、電極のうちの主に第2電極102に含まれる CO_2 由来アニオンが第3電極110に移動し、還元剤によって還元され、 CO_2 ガスとして第3電極110から排出されることとなる。

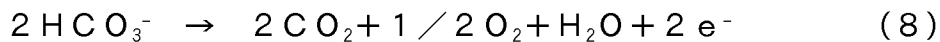
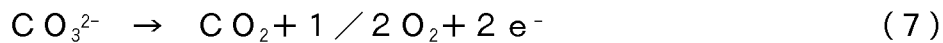
[0043] ここで、上記の「一定時間」とは、セルフパージが完了するまでの時間であればよく、具体的には、2～60分間、好ましくは、5～20分間程度である。セルフパージが完了するまでの時間とは、セルフパージ工程の開始直後、 CO_2 由来アニオンの排出量が一端増加した後、減少し安定するまでの時間である。セルフパージの完了は、膜電極複合体のオーミック抵抗の時間変化や、セルフパージ工程が定電位操作である場合は、電流の時間変化、セルフパージ工程が定電流操作である場合は、電圧の時間変化を観測することで判別できる。観測値の時間変動が一定値以下になれば、セルフパージ完了とみなしてよい。

[0044] 上記セルフパージにより多くの CO_2 由来アニオンが OH^- に再置換されるため、セル抵抗の増大を抑制することができる。また、セルフパージによる CO_2 由来アニオンの蓄積は、主に第3電極110において生じるため、発電時においてアノード極として機能する第1電極103における反応過電圧を低下させることができ、したがって、良好な発電効率を発揮することができる。なお、第1集電層105と第3集電層120とは電氣的に絶縁されているため、第1電極103がセルフパージに関与することはない。

[0045] 還元剤としては、たとえば、 H_2 ガス、炭化水素ガス、アンモニアガスなどを用いることができる。なかでも、 H_2 ガスを用いることが好ましい。酸化剤としては、たとえば、 O_2 ガスや、空気等の O_2 を含むガスなどを用いることができる。なかでも、空気が好ましく用いられる。

[0046] なお、第3電極110に還元剤を供給することなく、セルフパージ工程を実施することも可能である(後述する他の実施形態についても同様)。すな

わち、外部配線 145 中に外部電源（発電装置）を介在させておき、外部電源を稼働させて、強制的に第 2 電極 102 と第 3 電極 110 との間に電流を流すことにより、 CO_2 由来アニオンを第 3 電極 110 に移動させ、外部電源の電気エネルギーによりこれを還元して、 CO_2 ガスとして第 3 電極 110 から排出させることができる。外部電源の電気エネルギーによる CO_2 由来アニオンの還元は、下記式（7）および（8）：



で表されるような反応に従う。

[0047] 上記外部電源は、第 3 電極 110 に還元剤を供給しながらセルフパージを行なう場合にも用いることができ、これによりセルフパージ工程にかかる時間を短縮させることができる。

[0048] セルフパージ工程後、第 2 電極 102 と第 3 電極 110 との間の電氣的接続を切断し、ついで、第 1 集電層 105 の第 1 流路 105a を通して第 1 電極 103 に還元剤を供給するとともに、第 2 集電層 104 の第 2 流路 104a を通して第 2 電極 102 に酸化剤を供給し、さらに切り替え手段 140 により（図 1 に示される端子 A1 と A3 とを接続する）、第 1 集電層 105 と第 2 集電層 104（したがって、第 1 電極 103 と第 2 電極 102）とを電氣的に接続することにより、電力を得る〔発電工程〕。上述のように、セルフパージによっても第 1 電極 103 に CO_2 由来アニオンの蓄積は生じにくいため、良好な発電効率を発揮することができる。

[0049] <第 2 の実施形態>

図 4 は、本実施形態に係る膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池を示す概略断面図であり、図 5 および図 6 はそれぞれ、図 4 に示される V-V 線、V I-V I 線における概略断面図である。図 4 および図 5 に示されるように、本実施形態のアルカリ形燃料電池 200 は、セルフパージ用の第 3 電極 110 を複数（図 4 の例では 3 つ）有する膜電極複合体 20 を備えることを特徴としており、これ以外の構成については、上記第 1 の実施形

態と同様とすることができる（可能な変形についても第1の実施形態と同様である）。また、アルカリ形燃料電池の使用方法についても第1の実施形態と同様である。

[0050] 膜電極複合体20は、アニオン伝導性電解質膜101；アニオン伝導性電解質膜101の第1表面に積層される第1電極103；アニオン伝導性電解質膜101の第2表面に積層される第2電極102；および、第1電極103と離間して第1表面に積層される、3つの第3電極110から主に構成される。第1の実施形態と同様、電極の周縁にはガスケット106が設けられている。第1電極103と第2電極102とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられている。

[0051] 本実施形態において、第1電極103は2つに分割されて積層されており、これら2つの第1電極103の間、および2つの第1電極103それぞれの外側側方に、第1電極103と離間するように合計3つの第3電極110が配置されている。

[0052] アルカリ形燃料電池200は、第1電極103上に積層される第1集電層105（計2つ）；第2電極102上に積層される第2集電層104；および、第3電極110上に積層される第3集電層120（計3つ）を備えている。第1集電層105と第3集電層120とは、これらの集電層の間に絶縁層130を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。また、第1集電層105および第3集電層120には、第1電極103または第3電極110に還元剤を供給するための第1流路105aが設けられており、第2集電層104には、第2電極102に酸化剤を供給するための第2流路104aが設けられている。

[0053] アルカリ形燃料電池200は、外部配線145と、外部配線145に介在する切り替え手段（スイッチ）140とを備える。切り替え手段140により、第2集電層104と電氣的接続される集電層を、第1集電層105または第3集電層120のいずれかに切り替えることができる。

[0054] 本実施形態のように複数の第3電極110を設ける場合においては、図4

および図5に示されるように、これら複数の第3電極110をアニオン伝導性電解質膜101の第1表面内において略均等に分散して配置することが好ましい。これは次の理由による。アニオン伝導性電解質膜101は非常に薄いので、膜厚方向のイオン伝導抵抗は、膜面内方向のイオン伝導抵抗に比べて非常に小さい。したがって、セルフパージを進めた場合、主に、第3電極110近傍のアニオン伝導性電解質膜101および第2電極102と第3電極110との間で CO_2 由来アニオンの移動が起こり、セルフパージが優先的に進行する。一方、第3電極110から遠く離れた領域のアニオン伝導性電解質膜101および第2電極102と第3電極110の間では、イオン伝導抵抗が大きいため、 CO_2 由来アニオンの移動が起こりにくく、セルフパージが十分に進まない傾向にある。複数の第3電極110を設け、好ましくはこれらを第1表面内において略均等に分散して配置することにより、第3電極110近傍の領域を増加させることができ、これによりアニオン伝導性電解質膜101および第2電極102全体のセルフパージを行なうことができるようになる。なお、セルフパージの効率を考慮すると、複数の第3電極110は、第2電極102に対向するような位置に設けることが好ましい。

[0055] <第3の実施形態>

(1) 膜電極複合体およびアルカリ形燃料電池の構成

図7は、本実施形態に係る膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池を示す概略断面図であり、図8および図9はそれぞれ、図7に示されるV I I I - V I I I線、I X - I X線における概略断面図である（アノード極側の断面構造は図2および図3と同様である。）。図7および図8に示されるように、本実施形態のアルカリ形燃料電池300は、セルフパージ用の第3電極110に加えて、同じくセルフパージ用の第4電極115を有する膜電極複合体30を備えることを特徴としており、これ以外の構成については、上記第1の実施形態と同様とすることができる（可能な変形についても第1の実施形態と同様である）。

[0056] 膜電極複合体30は、アニオン伝導性電解質膜101；アニオン伝導性電

解質膜 101 の第 1 表面に積層される第 1 電極 103 ; アニオン伝導性電解質膜 101 の第 2 表面に積層される第 2 電極 102 ; 第 1 電極 103 と離間して第 1 表面に積層される第 3 電極 110 ; および、第 2 電極 102 と離間して第 2 表面に積層される第 4 電極 115 から主に構成される。第 1 の実施形態と同様、電極の周縁には、ガスケット 106 が設けられている。第 1 電極 103 と第 2 電極 102 とは、アニオン伝導性電解質膜 101 を介して対向するように設けられている。また、第 3 電極 110 と第 4 電極 115 とは、アニオン伝導性電解質膜 101 を介して対向するように設けられている。

[0057] 本実施形態において、第 1 電極 103 は 2 つに分割されて積層されており、これら 2 つの第 1 電極 103 の間に、第 1 電極 103 と離間するように第 3 電極 110 が配置されている。同様に、第 2 電極 102 は 2 つに分割されて積層されており、これら 2 つの第 2 電極 102 の間に、第 2 電極 102 と離間するように第 4 電極 115 が配置されている。

[0058] アルカリ形燃料電池 300 は、第 1 電極 103 上に積層される第 1 集電層 105 ; 第 2 電極 102 上に積層される第 2 集電層 104 ; 第 3 電極 110 上に積層される第 3 集電層 120 ; および、第 4 電極 115 上に積層される第 4 集電層 125 を備えている。第 1 集電層 105 と第 3 集電層 120 とは、これらの集電層の間に絶縁層 130 を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。同様に、第 2 集電層 104 と第 4 集電層 125 とは、絶縁層 130 を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。また、第 1 集電層 105 および第 3 集電層 120 には、第 1 電極 103 または第 3 電極 110 に還元剤または酸化剤を供給するための第 1 流路 105 a が設けられている。同様に、第 2 集電層 104 および第 4 集電層 125 には、第 2 電極 102 または第 4 電極 115 に還元剤または酸化剤を供給するための第 2 流路 104 a が設けられている。

[0059] アルカリ形燃料電池 300 は、外部配線 145 と、外部配線 145 に介在する切り替え手段（スイッチ） 140 とを備える。切り替え手段 140 により、接続される集電層の切り替えを行なうことができる。

[0060] 第4電極115は、第3電極110と同様、セルフパージ用の電極であり、還元剤の供給により CO_2 由来アニオンを CO_2 ガスとして排出する電極である。第4電極115の構成および組成に関しては、第1電極103について既述した内容が引用される。

[0061] 第3電極110に加えて、第4電極115を設けると次の点で有利である。すなわち、セルフパージ用電極として第3電極110のみを備える膜電極複合体の場合、上記第1の実施形態で示したように、アニオン伝導性電解質膜101、および、電極のうちの主に第2電極102のセルフパージを行なうことができる一方、第1電極103のセルフパージを効果的に実施することができない。これに対し、第2表面に第4電極115を設けた場合、第1電極103に酸化剤を供給し、第4電極115に還元剤を供給して、第1電極103と第4電極115との間に電流を流すと、第1電極103のセルフパージを効果的に実施することが可能となる。本実施形態のアルカリ形燃料電池の使用方法は、具体的には、下記のとおりである。

[0062] (2) アルカリ形燃料電池の使用方法

まず、第1集電層105の第1流路105aを通して第1電極103に酸化剤を供給するとともに、第4集電層125の第2流路104aを通して第4電極115に還元剤を供給し、さらに切り替え手段140により（図7に示される端子B3とB4とを接続する）、第1集電層105と第4集電層125（したがって、第1電極103と第4電極115）とを電氣的に接続して、第1電極103と第4電極115との間に一定時間電流（イオン電流）を流す〔第1セルフパージ工程〕。この工程により、第1電極103では上記式（1）のような触媒反応が生じ、一方、第4電極115では、上記式（5）および（6）のようなセルフパージ反応が生じる（一部、上記式（2）のような触媒反応も生じ得る）。これらの反応によって、アニオン伝導性電解質膜101および第1電極103に含まれる CO_2 由来アニオンは第4電極115に移動し、還元剤によって還元され、 CO_2 ガスとして第4電極115から排出されることとなる。第1セルフパージ工程では、第1電極103は

カソード極として機能する。

[0063] 次に、第1電極103と第4電極115との間の電氣的接続を切断した後、第2集電層104の第2流路104aを通して第2電極102に酸化剤を供給するとともに、第3集電層120の第1流路105aを通して第3電極110に還元剤を供給し、さらに切り替え手段140により（図7に示される端子B1とB2とを接続する）、第2集電層104と第3集電層120（したがって、第2電極102と第3電極110）とを電氣的に接続して、第2電極102と第3電極110との間に一定時間電流（イオン電流）を流す〔第2セルフパージ工程〕。この工程により、第2電極102では上記式（1）のような触媒反応が生じ、一方、第3電極110では、上記式（5）および（6）のようなセルフパージ反応が生じる（一部、上記式（2）のような触媒反応も生じ得る）。これらの反応によって、アニオン伝導性電解質膜101および第2電極102に含まれるCO₂由来アニオンは第3電極110に移動し、還元剤によって還元され、CO₂ガスとして第3電極110から排出されることとなる。第2セルフパージ工程では、第2電極102がカソード極として機能する。

[0064] 以上のとおり、第1および第2セルフパージ工程を実施することにより、アニオン伝導性電解質膜101、第1電極103および第2電極102のすべてのセルフパージを行なうことができる。これにより、セル抵抗の増大をより効果的に抑制することができるとともに、発電時においてアノード極として機能する第1電極103における反応過電圧をより効果的に低下させることができ、したがって、より良好な発電効率を発揮することができる。

[0065] 第2セルフパージ工程後、第2電極102と第3電極110との間の電氣的接続を切断し、ついで、第1集電層105の第1流路105aを通して第1電極103に還元剤を供給するとともに、第2集電層104の第2流路104aを通して第2電極102に酸化剤を供給し、さらに切り替え手段140により（図7に示される端子B1とB4とを接続する）、第1集電層105と第2集電層104（したがって、第1電極103と第2電極102）と

を電氣的に接続することにより、電力を得る〔発電工程〕。上述のように、セルフパージによっても第1電極103にCO₂由来アニオンの蓄積は生じにくいため、良好な発電効率を発揮することができる。

[0066] なお、第1セルフパージ工程と第2セルフパージ工程の順序を逆にしても同様の効果が得られることはいうまでもない。

[0067] <第4の実施形態>

図10は、本実施形態に係る膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池を示す概略断面図であり、図11および図12はそれぞれ、図10に示されるXⅠ-XⅠ線、XⅠⅠ-XⅠⅠ線における概略断面図である（アノード極側の断面構造は図5および図6と同様である。）。図10および図11に示されるように、本実施形態のアルカリ形燃料電池400は、セルフパージ用の第4電極115を複数（図10の例では3つ）有する膜電極複合体40を備えることを特徴としており、これ以外の構成については、上記第3の実施形態と同様とすることができる（可能な変形についても第3の実施形態と同様である）。アルカリ形燃料電池の使用方法についても第3の実施形態と同様である。また、アルカリ形燃料電池400は、複数（図10の例では3つ）の第3電極110を有しており、この点は、上記第2の実施形態と同様である。

[0068] 膜電極複合体40は、アニオン伝導性電解質膜101；アニオン伝導性電解質膜101の第1表面に積層される第1電極103；アニオン伝導性電解質膜101の第2表面に積層される第2電極102；第1電極103と離間して第1表面に積層される、3つの第3電極110；および、第2電極102と離間して第2表面に積層される、3つの第4電極115から主に構成される。第1の実施形態と同様、電極の周縁にはガスケット106が設けられている。第1電極103と第2電極102とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられている。また、第3電極110と第4電極115とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられている。

[0069] 本実施形態において、第1電極103は2つに分割されて積層されており、これら2つの第1電極103の間、および2つの第1電極103それぞれの外側側方に、第1電極103と離間するように合計3つの第3電極110が配置されている。同様に、第2電極102は2つに分割されて積層されており、これら2つの第2電極102の間、および2つの第2電極102それぞれの外側側方に、第2電極102と離間するように合計3つの第4電極115が配置されている。

[0070] アルカリ形燃料電池400は、第1電極103上に積層される第1集電層105（計2つ）；第2電極102上に積層される第2集電層104（計2つ）；第3電極110上に積層される第3集電層120（計3つ）；および、第4電極115上に積層される第4集電層125（計3つ）を備えている。第1集電層105と第3集電層120とは、これらの集電層の間に絶縁層130を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。同様に、第2集電層104と第4集電層125とは、絶縁層130を介在させることにより互いに電氣的に絶縁されている。また、第1集電層105および第3集電層120には、第1電極103または第3電極110に還元剤または酸化剤を供給するための第1流路105aが設けられている。同様に、第2集電層104および第4集電層125には、第2電極102または第4電極115に還元剤または酸化剤を供給するための第2流路104aが設けられている。

[0071] アルカリ形燃料電池400は、外部配線145と、外部配線145に介在する切り替え手段（スイッチ）140とを備える。切り替え手段140により、接続される集電層の切り替えを行なうことができる。

[0072] 本実施形態のように複数の第4電極115を設ける場合においては、第3電極110の場合と同様の理由から、図10および図11に示されるように、これら複数の第4電極115をアニオン伝導性電解質膜101の第2表面内において略均等に分散して配置することが好ましい。複数の第4電極115を設け、好ましくはこれらを第2表面内において略均等に分散して配置す

ることにより、第4電極115近傍の領域を増加させることができ、これによりアニオン伝導性電解質膜101および第1電極103全体のセルフパージを行なうことができるようになる。

[0073] 好ましくは、図10に示されるように、第3電極110および第4電極115をともに複数設け、これらをそれぞれ第1表面、第2表面略均等に分散して配置する。これにより、アニオン伝導性電解質膜101、第1電極103および第2電極102全体のセルフパージを行なうことができるようになる。

[0074] <第5の実施形態>

(1) 膜電極複合体およびアルカリ形燃料電池の構成

図13は、本実施形態に係る膜電極複合体およびこれを用いたアルカリ形燃料電池を示す概略断面図であり、図14～図17はそれぞれ、図13に示されるXⅠV-XⅠV線、XⅤ-XⅤ線、XⅤⅠ-XⅤⅠ線、XⅤⅠⅠ-XⅤⅠⅠ線における概略断面図である。本実施形態のアルカリ形燃料電池500は、セルフパージ用の第3電極110および第4電極115を備える点において上記第3の実施形態と同じであるが、第3電極110と第4電極115との配置関係に特徴を有する。すなわち、アルカリ形燃料電池500が備える膜電極複合体50において、第3電極110と第4電極115とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられるのではなく、第1電極103の一方の外側側方に配置される第3電極110に対して、第4電極115は、第2電極102における第3電極110に対向する側とは反対側の外側側方に配置される。このような第3電極110と第4電極115との配置関係以外の構成は、第3の実施形態と同様である（可能な変形についても第3の実施形態と同様である）。第1電極103と第2電極102とは、アニオン伝導性電解質膜101を介して対向するように設けられる。

[0075] 一方、第3電極110と第4電極115の機能に関していえば、第3および第4の実施形態では、セルフパージ工程において第3電極110および第

4 電極 1 1 5 は、いずれも還元剤の供給により CO_2 由来アニオンを CO_2 ガスとして排出するとともに、残存した CO_2 由来アニオンを蓄積する役割を担うが、本実施形態では、第 3 電極 1 1 0 または第 4 電極 1 1 5 のいずれか一方は、セルフパージ工程において酸化剤が供給されるカソード極としての役割を担う。

[0076] 本実施形態に従い、図 1 3 に示されるような配置関係で第 3 電極 1 1 0 および第 4 電極 1 1 5 を配置することは次の点で有利である。

[0077] (a) たとえば、第 3 電極 1 1 0 に還元剤を供給するとともに、第 4 電極 1 1 5 に酸化剤を供給し、第 3 電極 1 1 0 と第 4 電極 1 1 5 とを電氣的に接続すると、第 3 電極 1 1 0 と第 4 電極 1 1 5 との間に電流（イオン電流）が流れるが、この電流は、必ず第 1 電極 1 0 3 と第 2 電極 1 0 2 との間に介在するアニオン伝導性電解質膜 1 0 1 内を通ることとなる。したがって、1 回のセルフパージ工程でも、アニオン伝導性電解質膜 1 0 1 のかなり広い領域（第 3 電極 1 1 0 および第 4 電極 1 1 5 を膜電極複合体のほぼ端部に配置した場合にはアニオン伝導性電解質膜 1 0 1 のほとんどの領域）についてセルフパージを行なうことができる。

[0078] (b) 膜電極複体内の広範囲にわたるセルフパージは、たとえば上記第 2 の実施形態や第 4 の実施形態によっても可能であるが、本実施形態によれば、隣り合う電極同士を接触しないように形成する構造の複雑さや製造の煩雑さを低減することができ、また、製造コストを低減することもできる。

[0079] 本実施形態において、第 3 電極 1 1 0 と第 4 電極 1 1 5 との配置構成およびこれら電極の形状は図 1 3、図 1 4 および図 1 6 に示されるものに限定されず、第 3 電極 1 1 0 から第 4 電極 1 1 5 に至る最短経路が、第 1 電極 1 0 3 と第 2 電極 1 0 2 との間に介在するアニオン伝導性電解質膜 1 0 1 内を通るように配置されるように第 3 電極 1 1 0 および第 4 電極 1 1 5 を設けることで、上述の (a) および (b) で示した有利な効果を得ることができる。

[0080] 第 3 電極 1 1 0 および第 4 電極 1 1 5 は複数個設けられてもよく、たとえば、図 1 3 に示される膜電極複合体 5 0 に対し、アニオン伝導性電解質膜 1

01を介して第4電極115と対向する位置に2つ目の第3電極110を設け、アニオン伝導性電解質膜101を介して第3電極110と対向する位置に2つ目の第4電極115を設ける構成などを挙げることができる。

[0081] (2) アルカリ形燃料電池の使用法

次に、本実施形態のアルカリ形燃料電池の使用法について説明する。本実施形態では、まず、第3集電層120の第1流路105aを通して第3電極110に還元剤を供給するとともに、第4集電層125の第2流路104aを通して第4電極115に酸化剤を供給し、さらに切り替え手段140により(図13に示される端子B1とB2とを接続する)、第3集電層120と第4集電層125(したがって、第3電極110と第4電極115)とを電氣的に接続して、第3電極110と第4電極115との間に一定時間電流(イオン電流)を流す〔セルフパージ工程〕。この工程により、第4電極115では上記式(1)のような触媒反応が生じ、一方、第3電極110では、上記式(5)および(6)のようなセルフパージ反応が生じる(一部、上記式(2)のような触媒反応も生じ得る)。これらの反応によって、第1電極103と第2電極102との間に介在する領域を含めたアニオン伝導性電解質膜101内のCO₂由来アニオンは第3電極110に移動し、還元剤によって還元され、CO₂ガスとして第3電極110から排出されることとなる。このセルフパージ工程において、第4電極115はカソード極として機能している。

[0082] セルフパージ工程においては、第3電極110に還元剤を供給し、第4電極115に酸化剤を供給する代わりに、第3電極110に酸化剤を供給し、第4電極115に還元剤を供給するようにしてもよい。この場合、第3電極110がカソード極として機能する。

[0083] セルフパージ工程の実施により、アニオン伝導性電解質膜101の広い範囲にわたってセルフパージが行なわれるため、セル抵抗の増大を効果的に抑制することができるとともに、発電時においてアノード極として機能する第1電極103における反応過電圧を効果的に低下させることができ、したが

って、良好な発電効率を発揮することができる。

[0084] セルフパージ工程後、第3電極110と第4電極115との間の電氣的接続を切断し、ついで、第1集電層105の第1流路105aを通して第1電極103に還元剤を供給するとともに、第2集電層104の第2流路104aを通して第2電極102に酸化剤を供給し、さらに切り替え手段140により（図13に示される端子B3とB4とを接続する）、第1集電層105と第2集電層104（したがって、第1電極103と第2電極102）とを電氣的に接続することにより、電力を得る〔発電工程〕。上述のように、セルフパージによっても第1電極103にCO₂由来アニオンの蓄積は生じにくいため、良好な発電効率を発揮することができる。

[0085] 本発明のアルカリ形燃料電池は、たとえば自動車、家庭用コジェネレーション、携帯型電子機器などの電源として好適に適用することができる。

実施例

[0086] 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。

[0087] <実施例1>

以下の手順で、図18に示される構造（図1と同様の構造）を有するアルカリ形燃料電池100を作製した。図19および図20はそれぞれ、図18に示されるX1-X1線、X2-X2線における概略断面図である。

[0088] （1）膜電極複合体の作製

芳香族ポリエーテルスルホン酸と芳香族ポリチオエーテルスルホン酸との共重合体をクロロメチル化した後、アミノ化することにより、アニオン伝導性固体高分子電解質を得た。これをテトラヒドロフランに添加することにより、5重量%アニオン伝導性固体高分子電解質溶液を得た。

[0089] Pt担持量が50重量%のPt/Cである触媒担持カーボン粒子（田中貴金属社製「TEC10E50E」）と、上記で得られた電解質溶液とを、重量比で2/0.2となるように混合し、さらにイオン交換水およびエタノールを添加することにより、第1電極103、第2電極102および第3電極

110用の触媒ペーストを調製した。

[0090] 次に、縦8 cm×横8 cmのサイズに切り出したフッ素樹脂系高分子電解質（旭化成社製「アシプレックス」）をアニオン伝導性電解質膜101として用い、アニオン伝導性電解質膜101の一方の面（第2表面）の中央に、上記触媒ペーストを、縦5 cm×横5 cm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、第2電極102（カソード極）の触媒層を形成した。第2電極102の触媒層のサイズは、縦5 cm×横5 cm×厚み約10 μmである。

[0091] また、アニオン伝導性電解質膜101の他方の面（第1表面）の中央に、上記触媒ペーストを、縦1 cm×横5 cm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、第3電極110の触媒層を形成した。第3電極110の触媒層のサイズは、縦1 cm×横5 cm×厚み約10 μmである。さらに、上記触媒ペーストを、縦1.5 cm×横5 cm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、第3電極110の触媒層の左右両側に、第1電極103（アノード極）の触媒層を形成して、膜電極複合体10を得た。第1電極103の触媒層のサイズは、縦1.5 cm×横5 cm×厚み約10 μmであり、第1電極103の触媒層と第3電極110の触媒層との間隔は0.5 cmである。第2電極102の触媒層が形成された領域と、第1電極103および第3電極110の触媒層が形成された領域とは、アニオン伝導性電解質膜101の面内において一致している。

[0092] （2）アルカリ形燃料電池の作製

縦8 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板の片面にサーペントイン状の溝（第2流路104a、深さ0.3 cm）を切削加工により形成し、第2集電層104（カソード側の集電層）とした。また、縦3 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板／縦1 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板／縦3 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板をこの順で絶縁性接着剤を用いて接合した後、その片面にサーペントイン状の溝（第1流路10

5 a、深さ0.3 cm)を切削加工により形成し、アノード側の集電層（すなわち、図18の第1集電層105／絶縁層130／第3集電層120／絶縁層130／第1集電層105に相当）とした。

[0093] 上記得られた膜電極複合体10の第2電極102の触媒層上に、縦5 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた第2電極102の外周部にガスケット106として、外形が縦8 cm×横8 cm×厚み200 μmであり、中央に縦5 cm×横5 cmの開口が形成されたシリコンゴムシートを配置した。さらに、第2流路104 a側が第2電極102に対向するように第2集電層104を積層した。また、第1電極103の触媒層上に、縦1.5 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を、第3電極110の触媒層上に、縦1 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた電極の外周部にガスケット106として、外形が縦8 cm×横8 cm×厚み200 μmであり、中央に縦5 cm×横5 cmの開口が形成されたシリコンゴムシートを配置した。第1流路105 a側が第1電極103および第3電極110に対向するようにアノード側集電層を積層した。アノード側の集電層とカソード側の集電層との間を、絶縁被覆したボルト150とナット155により締結し、集電層間を外部配線145および切り替え手段140を用いて、図18のように配線接続し、アルカリ形燃料電池100を得た。

[0094] <比較例1>

アニオン伝導性電解質膜101の第1表面の中央に、第2電極102と同一のサイズ（縦5 cm×横5 cm×厚み約10 μm）の第1電極103のみを形成したこと以外は、実施例1と同様にして膜電極複合体を作製し、アルカリ形燃料電池を得た。

[0095] <実施例2>

以下の手順で、図21に示される構造（図7と同様の構造）を有するアルカリ形燃料電池300を作製した。図22および図23はそれぞれ、図21

に示されるXXII—XXII線、XXIII—XXIII線における概略断面図である（アノード極側の断面構造は図19および図20と同様である。）。

[0096] (1) 膜電極複合体の作製

芳香族ポリエーテルスルホン酸と芳香族ポリチオエーテルスルホン酸との共重合体をクロロメチル化した後、アミノ化することにより、アニオン伝導性固体高分子電解質を得た。これをテトラヒドロフランに添加することにより、5重量%アニオン伝導性固体高分子電解質溶液を得た。

[0097] Pt担持量が50重量%のPt/Cである触媒担持カーボン粒子（田中貴金属社製「TEC10E50E」）と、上記で得られた電解質溶液とを、重量比で2/0.2となるように混合し、さらにイオン交換水およびエタノールを添加することにより、第1電極103、第2電極102、第3電極110および第4電極115用の触媒ペーストを調製した。

[0098] 次に、縦8cm×横8cmのサイズに切り出したフッ素樹脂系高分子電解質（旭化成社製「アシプレックス」）をアニオン伝導性電解質膜101として用い、アニオン伝導性電解質膜の一方の面（第2表面）の中央に、上記触媒ペーストを、縦1cm×横5cm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、第4電極115の触媒層を形成した。第4電極115の触媒層のサイズは、縦1cm×横5cm×厚み約10μmである。さらに、上記触媒ペーストを、縦1.5cm×横5cm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、第4電極115の触媒層の左右両側に、第2電極102（カソード極）の触媒層を形成した。第2電極102の触媒層のサイズは、縦1.5cm×横5cm×厚み約10μmである。第2電極102の触媒層と第4電極115の触媒層との間隔は0.5cmである。

[0099] また、アニオン伝導性電解質膜101の他方の面（第1表面）の中央に、上記触媒ペーストを、縦1cm×横5cm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、第3電極110の触媒層を

形成した。第3電極110の触媒層のサイズは、縦1cm×横5cm×厚み約10 μ mである。さらに、上記触媒ペーストを、縦1.5cm×横5cm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、第3電極110の触媒層の左右両側に、第1電極103（アノード極）の触媒層を形成して、膜電極複合体30を得た。第1電極103の触媒層のサイズは、縦1.5cm×横5cm×厚み約10 μ mであり、第1電極103の触媒層と第3電極110の触媒層との間隔は0.5cmである。第2電極102の触媒層が形成された領域と、第1電極103の触媒層が形成された領域とは、アニオン伝導性電解質膜101の面内において一致している。また、第4電極115の触媒層が形成された領域と、第3電極110の触媒層が形成された領域とは、アニオン伝導性電解質膜101の面内において一致している。

[0100] （2）アルカリ形燃料電池の作製

縦3cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板／縦1cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板／縦3cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板をこの順で絶縁性接着剤を用いて接合した後、その片面にサーペント状の溝（第2流路104a、深さ0.3cm）を切削加工により形成し、カソード側の集電層とした。また、縦3cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板／縦1cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板／縦3cm×横8cm×厚み1.5cmのSUS板をこの順で絶縁性接着剤を用いて接合した後、その片面にサーペント状の溝（第1流路105a、深さ0.3cm）を切削加工により形成し、アノード側の集電層とした。

[0101] 上記得られた膜電極複合体の第2電極102の触媒層上に、縦1.5cm×横5cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を、第4電極115の触媒層上に、縦1cm×横5cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた電極の外周部にガスケット106として、外形が縦8cm×横8cm×厚み200 μ mであり、中央に縦5cm×横5cmの開口が形成されたシリコーンゴム

シートを配置した。さらに、第2流路104a側が第2電極102および第4電極115に対向するようにカソード側の集電層を積層した。また、第1電極103の触媒層上に、縦1.5cm×横5cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を、第3電極110の触媒層上に、縦1cm×横5cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた電極の外周部にガスケット106として、外形が縦8cm×横8cm×厚み200μmであり、中央に縦5cm×横5cmの開口が形成されたシリコンゴムシートを配置した。さらに、第1流路105a側が第1電極103および第3電極110に対向するようにアノード側の集電層を積層した。アノード側の集電層とカソード側の集電層との間を、絶縁被覆したボルト150とナット155により締結し、集電層間を外部配線145および切り替え手段140を用いて、図21のように配線接続し、アルカリ形燃料電池300を得た。

[0102] <実施例3>

以下の手順で、図24に示される構造（図13と同様の構造）を有するアルカリ形燃料電池500を作製した。図25～図28はそれぞれ、図24に示されるXXV-XXV線、XXVI-XXVI線、XXVII-XXVII線、XXVIII-XXVIII線における概略断面図である。

[0103] （1）膜電極複合体の作製

芳香族ポリエーテルスルホン酸と芳香族ポリチオエーテルスルホン酸との共重合体をクロロメチル化した後、アミノ化することにより、アニオン伝導性固体高分子電解質を得た。これをテトラヒドロフランに添加することにより、5重量%アニオン伝導性固体高分子電解質溶液を得た。

[0104] Pt担持量が50重量%のPt/Cである触媒担持カーボン粒子（田中貴金属社製「TEC10E50E」）と、上記で得られた電解質溶液とを、重量比で2/0.2となるように混合し、さらにイオン交換水およびエタノールを添加することにより、第1電極103、第2電極102、第3電極110および第4電極115用の触媒ペーストを調製した。

[0105] 次に、縦8 cm×横8 cmのサイズに切り出したフッ素樹脂系高分子電解質（旭化成社製「アシプレックス」）をアニオン伝導性電解質膜101として用い、アニオン伝導性電解質膜の一方の面（第2表面）の右寄りに、上記触媒ペーストを、縦1 cm×横5 cm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、第4電極115の触媒層を形成した。第4電極の触媒層のサイズは、縦1 cm×横5 cm×厚み約10 μ mである。さらに、上記触媒ペーストを、縦3.5 cm×横5 cm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、第4電極115の触媒層の左側に、第2電極102（カソード極）の触媒層を形成した。第2電極102の触媒層のサイズは、縦3.5 cm×横5 cm×厚み約10 μ mであり、第2電極102の触媒層と第4電極115の触媒層との間隔は0.5 cmである。

[0106] また、アニオン伝導性電解質膜101の他方の面（第1表面）の左寄りに、上記触媒ペーストを、縦1 cm×横5 cm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、第3電極110の触媒層を形成した。第3電極110の触媒層のサイズは、縦1 cm×横5 cm×厚み約10 μ mである。さらに、上記触媒ペーストを、縦3.5 cm×横5 cm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、第3電極110の触媒層の右側に、第1電極103（アノード極）の触媒層を形成して、膜電極複合体50を得た。第1電極103の触媒層のサイズは、縦3.5 cm×横5 cm×厚み約10 μ mであり、第1電極103の触媒層と第3電極110の触媒層との間隔は0.5 cmである。第2電極102の触媒層が形成された領域と、第1電極103の触媒層が形成された領域とは、アニオン伝導性電解質膜101の面内において一致している。

[0107] （2）アルカリ形燃料電池の作製

縦2.5 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板／縦5 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板をこの順で絶縁性接着剤を用いて接合した後、その片面にサーペントイン状の溝（第2流路104a、深さ0.3 cm）

を切削加工により形成し、カソード側の集電層とした。また、縦5 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板／縦2.5 cm×横8 cm×厚み1.5 cmのSUS板をこの順で絶縁性接着剤を用いて接合した後、その片面にサーペンタイン状の溝（第1流路105a、深さ0.3 cm）を切削加工により形成し、アノード側の集電層とした。

[0108] 上記得られた膜電極複合体の第2電極102の触媒層上に、縦3.5 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を、第4電極115の触媒層上に、縦1 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた電極の外周部にガスケット106として、外形が縦8 cm×横8 cm×厚み200 μ mであり、中央右寄りに縦5 cm×横5 cmの開口が形成されたシリコーンゴムシートを配置した。さらに、第2流路104a側が第2電極102および第4電極115に対向するようにカソード側の集電層を積層した。また、第1電極103の触媒層上に、縦3.5 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を、第3電極110の触媒層上に、縦1 cm×横5 cmサイズに切り出したガス拡散層（SGL社製 GDL 35BC）を積層し、得られた電極の外周部にガスケット106として、外形が縦8 cm×横8 cm×厚み200 μ mであり、中央左寄りに縦5 cm×横5 cmの開口が形成されたシリコーンゴムシートを配置した。さらに、第1流路105a側が第1電極103および第3電極110に対向するようにアノード側の集電層を積層した。アノード側の集電層とカソード側の集電層との間を、絶縁被覆したボルト150とナット155により締結し、集電層間を外部配線145および切り替え手段140を用いて、図24のように配線接続し、アルカリ形燃料電池500を得た。

[0109] [燃料電池の発電特性評価]

（1）実施例1のアルカリ形燃料電池

実施例1のアルカリ形燃料電池を、50℃の恒温層に入れ、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿したH₂ガスを、アルカリ形燃料電池の第1流路

105aに100mL／分の流量で供給するとともに、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿した酸素を、アルカリ形燃料電池の第2流路104aに100mL／分の流量で供給し、切り替え手段140を用いて、第2集電層104と第3集電層120との間を接続し、3Aの電流を10分流通させた。ついで、切り替え手段140を切り替え、第1集電層105と第2集電層104の間とを接続し、0.2A／cm²の電流を流し、5分後の電池出力を計測したところ、0.142W／cm²の出力が得られた。この時の電圧は0.71Vであり、発電効率は58%であった。日置電機株式会社製「バッテリーハイテスタ3554」を用いて、燃料電池のオーミック抵抗を計測したところ、150mΩ cm²であった。

[0110] (2) 実施例2のアルカリ形燃料電池

実施例2のアルカリ形燃料電池を、50℃の恒温層に入れ、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿したH₂ガスを、アルカリ形燃料電池の第2流路104aに100mL／分の流量で供給するとともに、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿した酸素を、アルカリ形燃料電池の第1流路105aに100mL／分の流量で供給し、切り替え手段140を用いて、第1集電層105と第4集電層125との間を接続し、3Aの電流を10分流通させた。ついで、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿したH₂ガスを、アルカリ形燃料電池の第1流路105aに100mL／分の流量で供給するとともに、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿した酸素を、アルカリ形燃料電池の第2流路104aに100mL／分の流量で供給し、切り替え手段140を切り替え、第2集電層104と第3集電層120との間を接続し、3Aの電流を10分流通させた後、切り替え手段140を切り替え、第1集電層105と第2集電層104との間を接続し、0.2A／cm²の電流を流し、5分後の電池出力を計測したところ、0.144W／cm²の出力が得られた。この時の電圧は0.72Vであり、発電効率は59%であった。日置電機株式会社製「バッテリーハイテスタ3554」を用いて、燃料電池のオーミック抵抗を計測したところ、150mΩ cm²であった。

[0111] (3) 実施例3のアルカリ形燃料電池

実施例3のアルカリ形燃料電池を、50℃の恒温層に入れ、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿したH₂ガスを、アルカリ形燃料電池の第1流路105aに100mL／分の流量で供給するとともに、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿した酸素を、アルカリ形燃料電池の第2流路104aに100mL／分の流量で供給し、切り替え手段140を用いて、第3集電層120と第4集電層125とを接続し、3Aの電流を10分流通させた。ついで、切り替え手段140を切り替え、第1集電層105と第2集電層104との間を接続し、0.2A／cm²の電流を流し、5分後の電池出力を計測したところ、0.138W／cm²の出力が得られた。この時の電圧は0.69Vであり、発電効率は58%であった。日置電機株式会社製「バッテリーハイテスタ3554」を用いて、燃料電池のオーミック抵抗を計測したところ、162mΩ cm²であった。

[0112] (4) 比較例1のアルカリ形燃料電池

比較例1のアルカリ形燃料電池を、50℃の恒温層に入れ、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿したH₂ガスを、アルカリ形燃料電池の第1流路105aに100mL／分の流量で供給するとともに、水温48℃に設定した加湿器を用いて加湿した酸素を、アルカリ形燃料電池の第2流路104aに100mL／分の流量で供給し、切り替え手段140を用いて、第1集電層105と第2集電層104の間を接続し、0.2A／cm²の電流を流し、5分後の電池出力を計測したところ、0.134W／cm²の出力が得られた。この時の電圧は0.67Vであり、発電効率は55%であった。日置電機株式会社製「バッテリーハイテスタ3554」を用いて、燃料電池のオーミック抵抗を計測したところ、200mΩ cm²であった。

符号の説明

[0113] 10, 20, 30, 40, 50 膜電極複合体、100, 200, 300, 400, 500 アルカリ形燃料電池、101 アニオン伝導性電解質膜、102 第2電極、103 第1電極、104 第2集電層、104a

第2流路、105 第1集電層、105a 第1流路、106 ガスケット、110 第3電極、115 第4電極、120 第3集電層、125 第4集電層、130 絶縁層、140 切り替え手段、145 外部配線、150 ボルト、155 ナット。

請求の範囲

- [請求項1] アニオン伝導性電解質膜と、
 前記アニオン伝導性電解質膜の第1表面に積層される第1電極と、
 前記アニオン伝導性電解質膜の前記第1表面に対向する第2表面に
 積層される第2電極と、
 を含むアルカリ形燃料電池用膜電極複合体であって、
 前記第1電極と離間して、前記第1表面に積層される第3電極をさ
 らに備える膜電極複合体。
- [請求項2] 前記アニオン伝導性電解質膜を介して、前記第1電極と前記第2電
 極とが対向して設けられる請求項1に記載の膜電極複合体。
- [請求項3] 互いに離間して配置される複数の第3電極を備える請求項1に記載
 の膜電極複合体。
- [請求項4] 前記複数の第3電極は、第1表面内において略均等に分散して配置
 される請求項3に記載の膜電極複合体。
- [請求項5] 前記第2電極と離間して、前記第2表面に積層される第4電極をさ
 らに備える請求項1に記載の膜電極複合体。
- [請求項6] 互いに離間して配置される複数の第4電極を備える請求項5に記載
 の膜電極複合体。
- [請求項7] 前記複数の第4電極は、第2表面内において略均等に分散して配置
 される請求項6に記載の膜電極複合体。
- [請求項8] 前記アニオン伝導性電解質膜を介して、前記第1電極と前記第2電
 極とが対向して設けられ、
 前記第3電極から前記第4電極に至る最短経路が、前記第1電極と
 前記第2電極との間に介在するアニオン伝導性電解質膜内を通るよう
 に配置される前記第3電極および前記第4電極を備える請求項5に記
 載の膜電極複合体。
- [請求項9] 前記第3電極は、前記第1電極の外側側方に配置されるとともに、
 前記第4電極は、前記第2電極における前記第3電極に対向する側と

は反対側の外側側方に配置される請求項 8 に記載の膜電極複合体。

[請求項10]

請求項 1 に記載の膜電極複合体と、
前記第 1 電極上に積層される第 1 集電層と、
前記第 2 電極上に積層される第 2 集電層と、
前記第 3 電極上に積層される第 3 集電層と
を備え、
前記第 1 集電層と前記第 3 集電層とが電氣的に絶縁されているアルカリ形燃料電池。

[請求項11]

請求項 5 に記載の膜電極複合体と、
前記第 1 電極上に積層される第 1 集電層と、
前記第 2 電極上に積層される第 2 集電層と、
前記第 3 電極上に積層される第 3 集電層と、
前記第 4 電極上に積層される第 4 集電層と、
を備え、
前記第 1 集電層と前記第 3 集電層とが電氣的に絶縁されており、前記第 2 集電層と前記第 4 集電層とが電氣的に絶縁されているアルカリ形燃料電池。

[請求項12]

請求項 8 に記載の膜電極複合体と、
前記第 1 電極上に積層される第 1 集電層と、
前記第 2 電極上に積層される第 2 集電層と、
前記第 3 電極上に積層される第 3 集電層と、
前記第 4 電極上に積層される第 4 集電層と、
を備え、
前記第 1 集電層と前記第 3 集電層とが電氣的に絶縁されており、前記第 2 集電層と前記第 4 集電層とが電氣的に絶縁されているアルカリ形燃料電池。

[請求項13]

請求項 10 に記載のアルカリ形燃料電池の使用方法であって、
前記第 2 電極に酸化剤を供給し、前記第 3 電極に還元剤を供給する

とともに、前記第 2 電極と前記第 3 電極とを電氣的に接続して、前記第 2 電極と前記第 3 電極との間に電流を流す工程と、

前記第 2 電極と前記第 3 電極との間の電氣的接続を切断する工程と、

前記第 1 電極に還元剤を供給し、前記第 2 電極に酸化剤を供給するとともに、前記第 1 電極と前記第 2 電極とを電氣的に接続して、電力を得る工程と、

を含む使用方法。

[請求項14]

請求項 1 1 に記載のアルカリ形燃料電池の使用方法であって、

前記第 1 電極に酸化剤を供給し、前記第 4 電極に還元剤を供給するとともに、前記第 1 電極と前記第 4 電極とを電氣的に接続して、前記第 1 電極と前記第 4 電極との間に電流を流す工程と、

前記第 1 電極と前記第 4 電極との間の電氣的接続を切断する工程と、

前記第 2 電極に酸化剤を供給し、前記第 3 電極に還元剤を供給するとともに、前記第 2 電極と前記第 3 電極とを電氣的に接続して、前記第 2 電極と前記第 3 電極との間に電流を流す工程と、

前記第 2 電極と前記第 3 電極との間の電氣的接続を切断する工程と、

前記第 1 電極に還元剤を供給し、前記第 2 電極に酸化剤を供給するとともに、前記第 1 電極と前記第 2 電極とを電氣的に接続して、電力を得る工程と、

を含む使用方法。

[請求項15]

請求項 1 2 に記載のアルカリ形燃料電池の使用方法であって、

前記第 3 電極に還元剤または酸化剤のいずれか一方を供給し、前記第 4 電極に還元剤または酸化剤のいずれか一方であって、前記第 3 電極に供給される剤とは異なる剤を供給するとともに、前記第 3 電極と前記第 4 電極とを電氣的に接続して、前記第 3 電極と前記第 4 電極と

の間に電流を流す工程と、

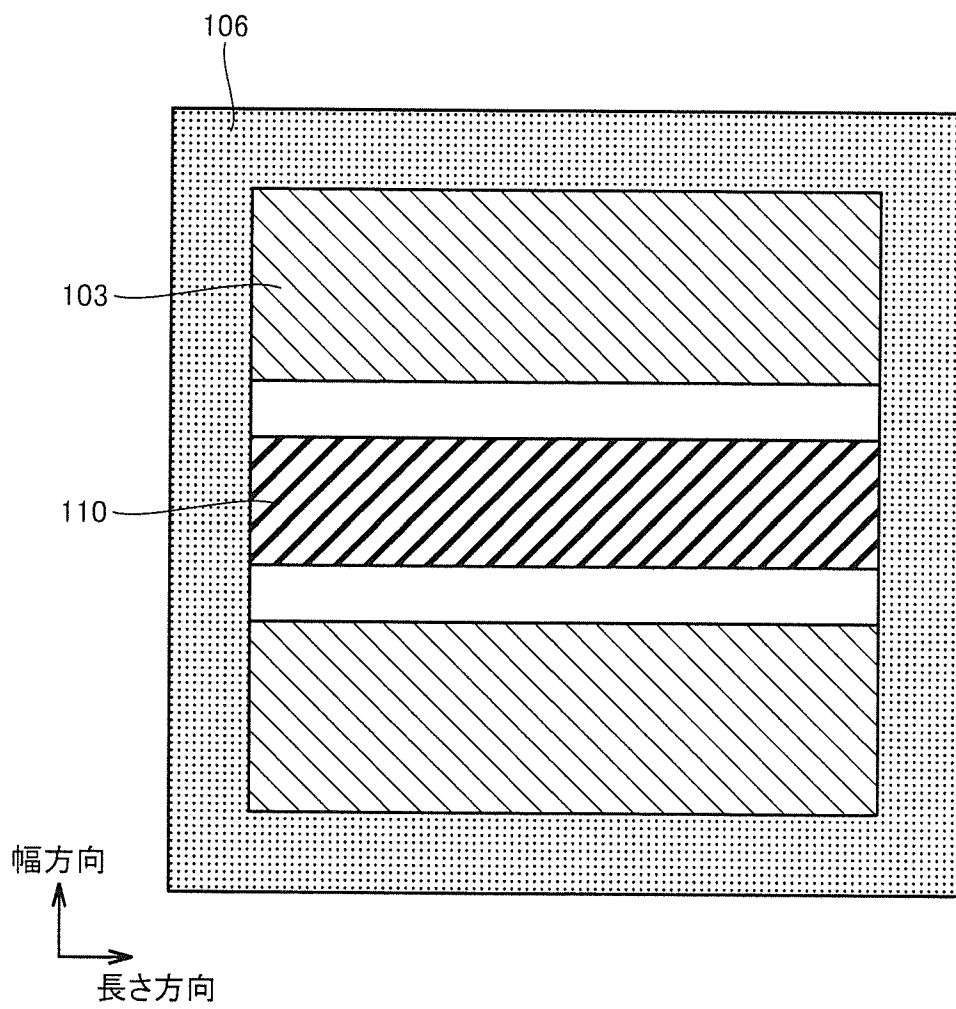
前記第 3 電極と前記第 4 電極との間の電氣的接続を切断する工程と

、

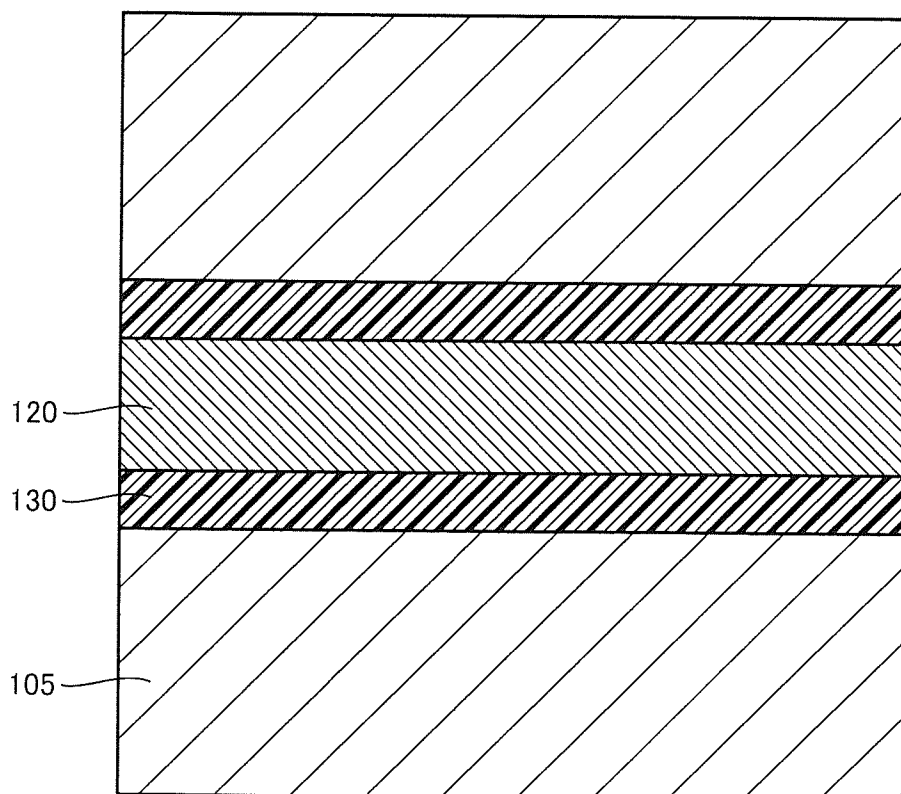
前記第 1 電極に還元剤を供給し、前記第 2 電極に酸化剤を供給するとともに、前記第 1 電極と前記第 2 電極とを電氣的に接続して、電力を得る工程と、

を含む使用方法。

[図2]

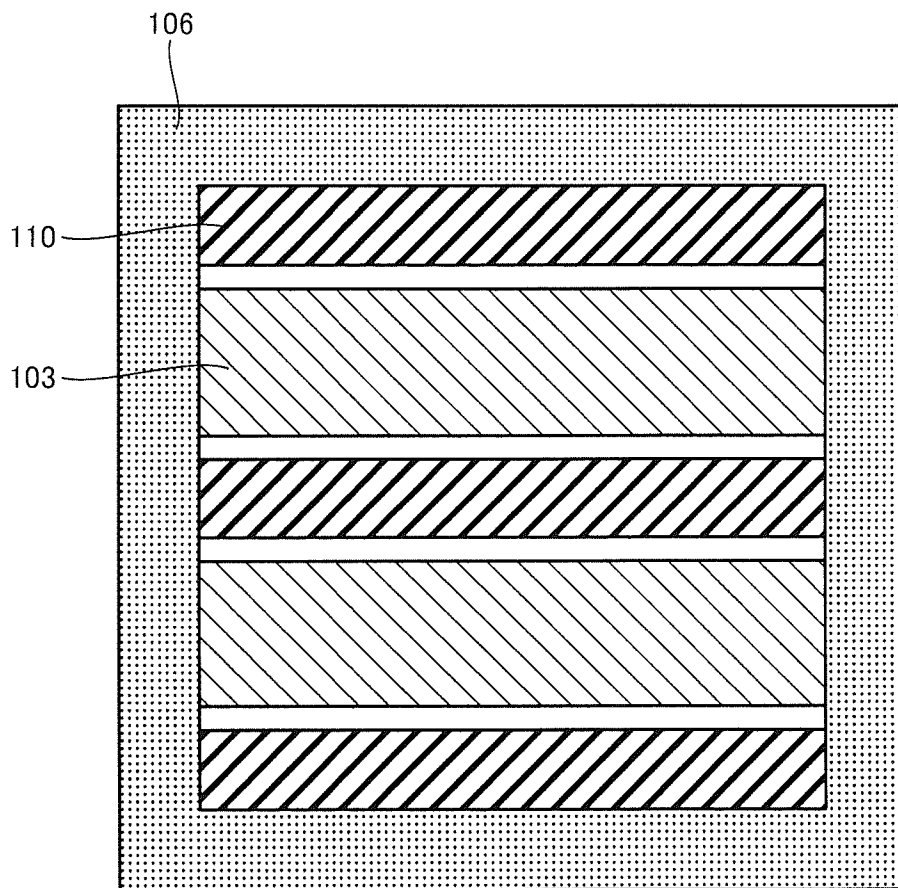


[図3]

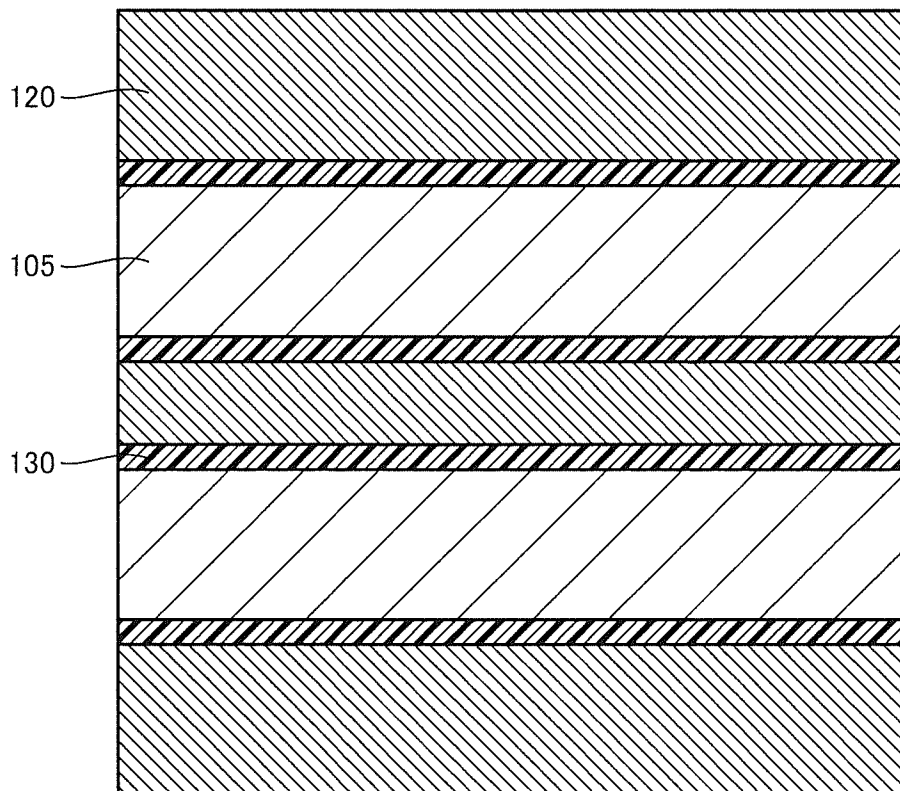


[illegible]

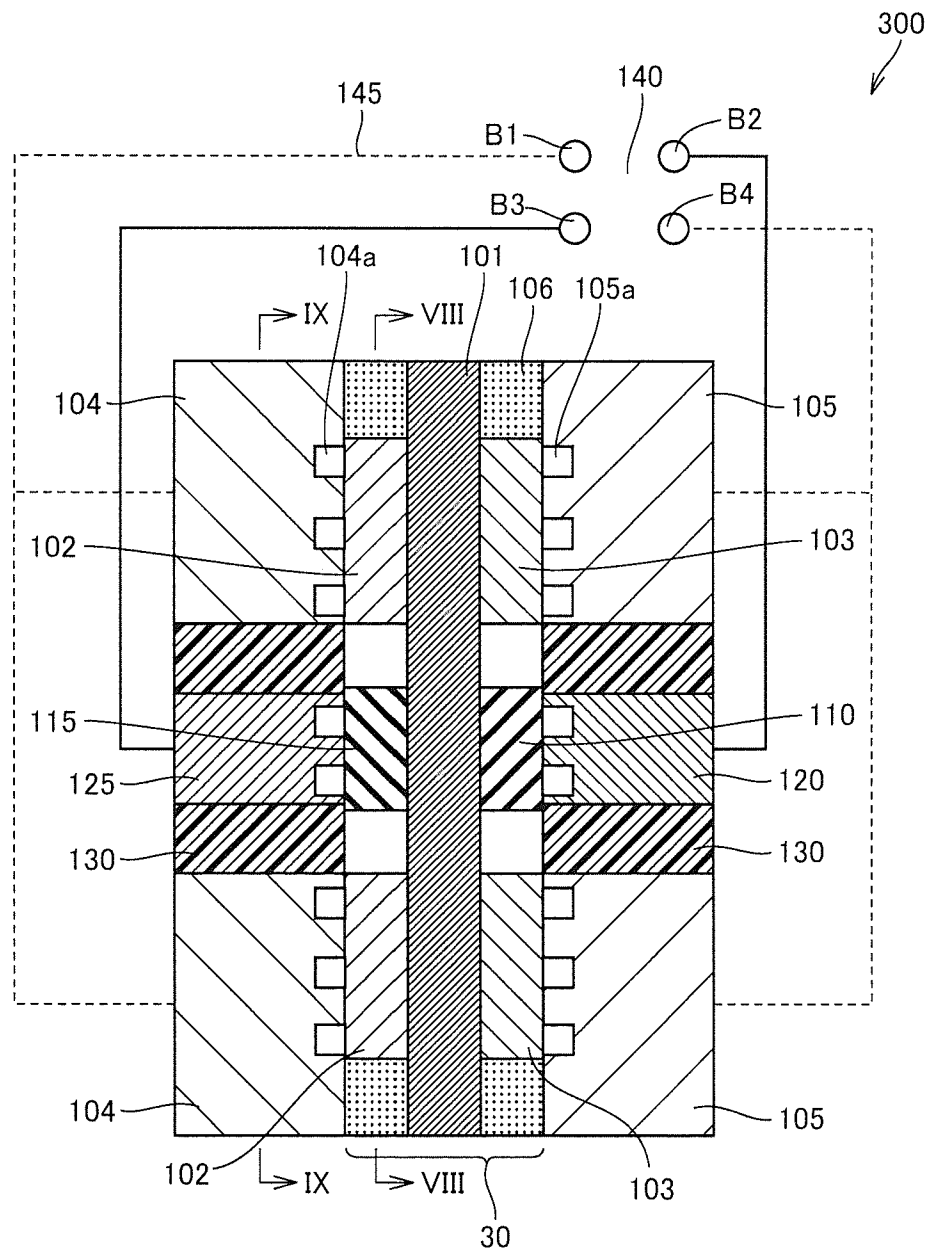
[図5]



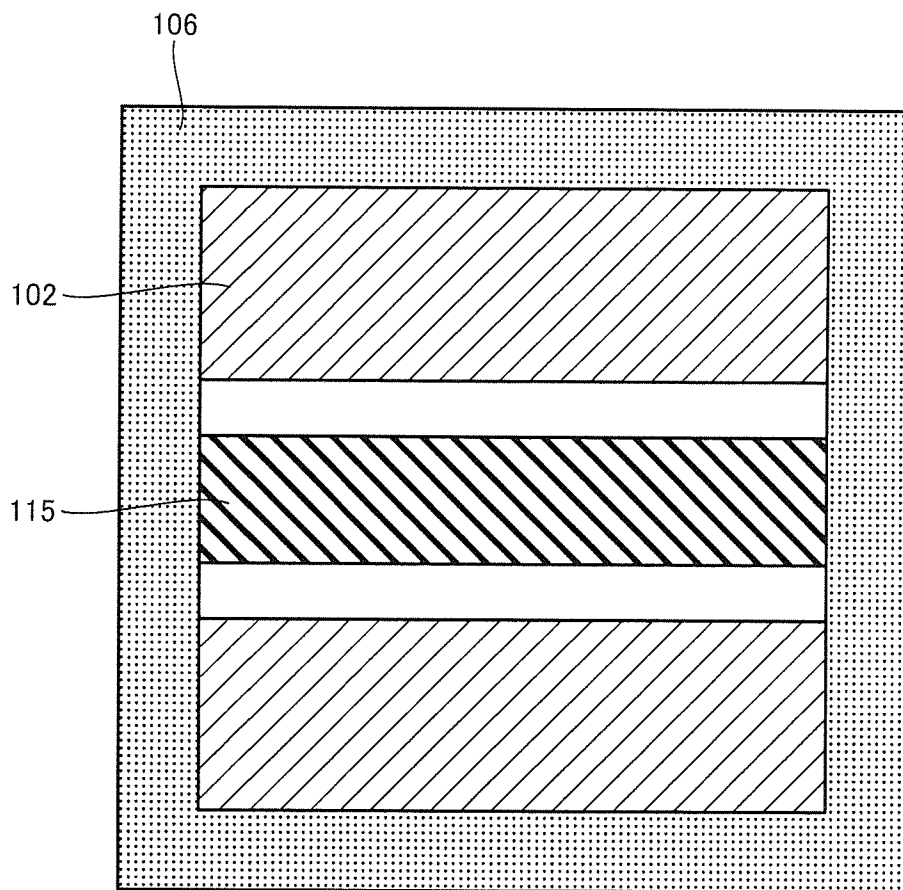
[図6]



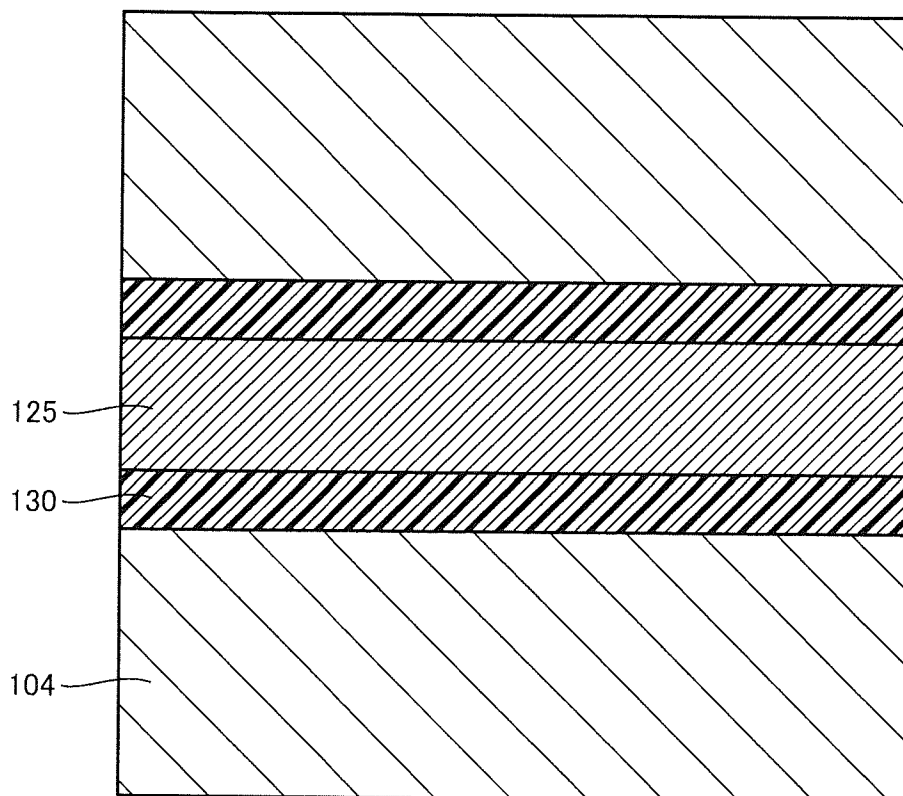
[図7]



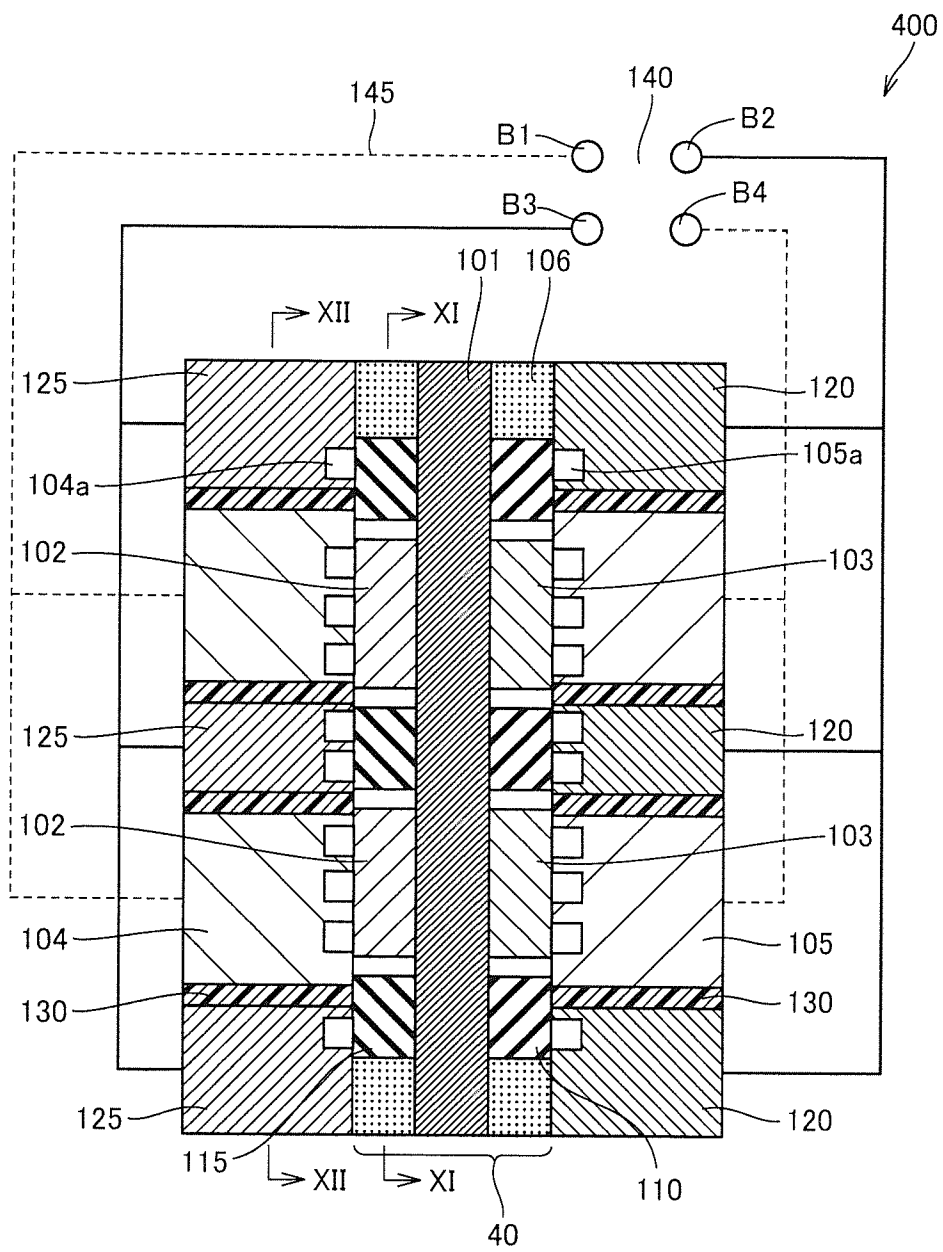
[図8]



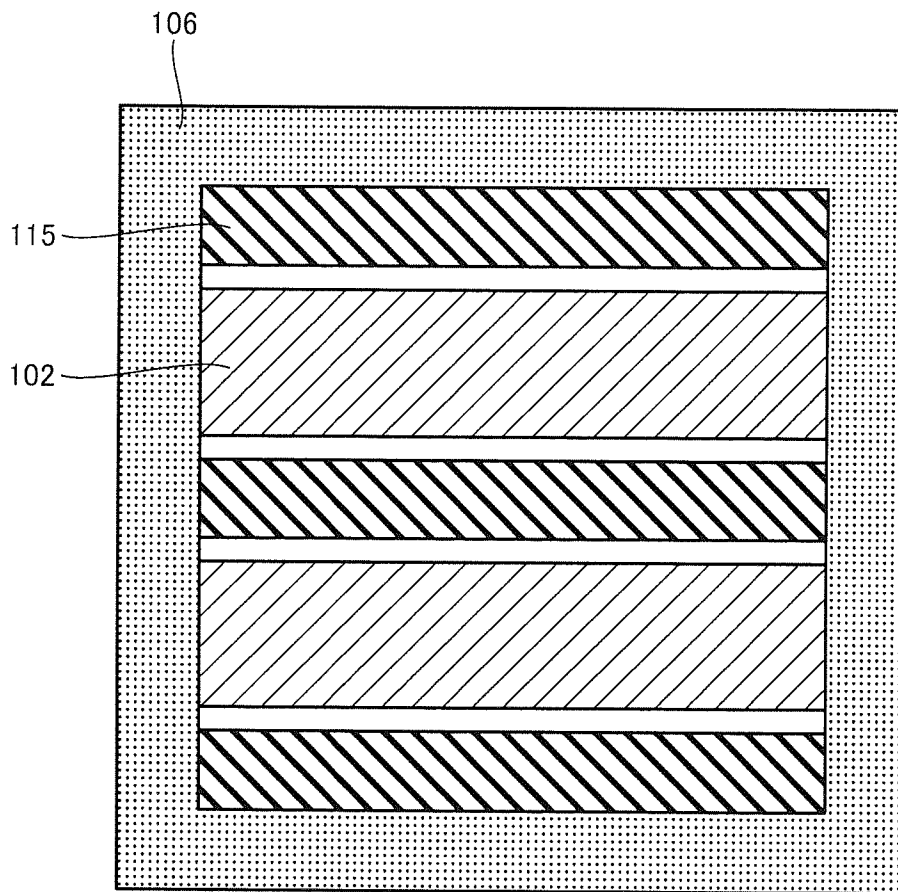
[図9]



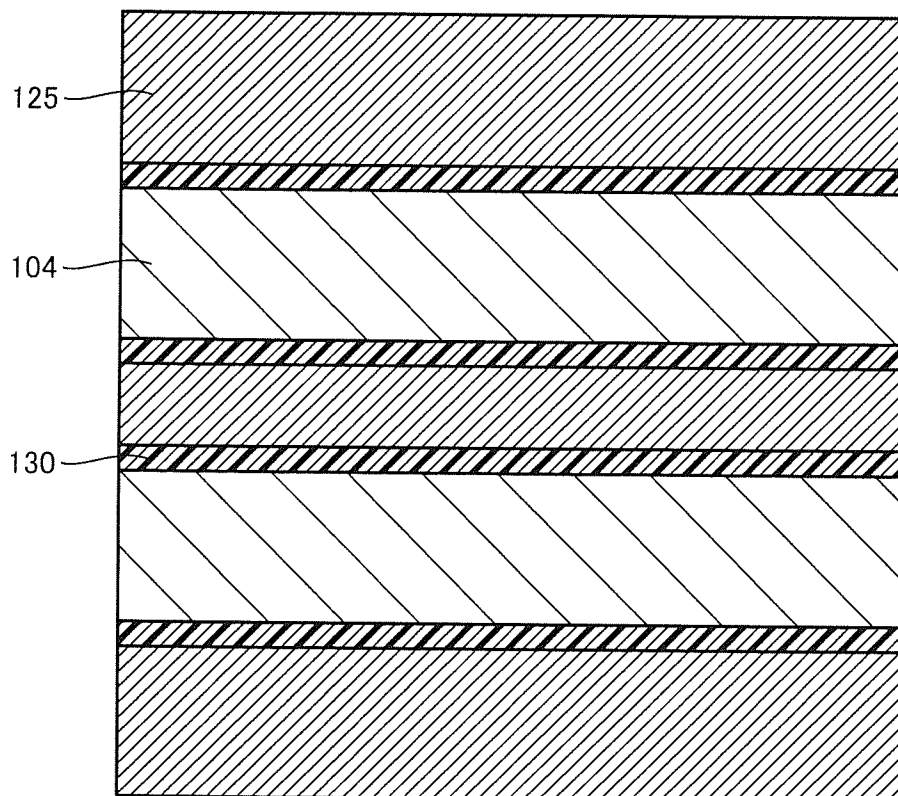
[図10]



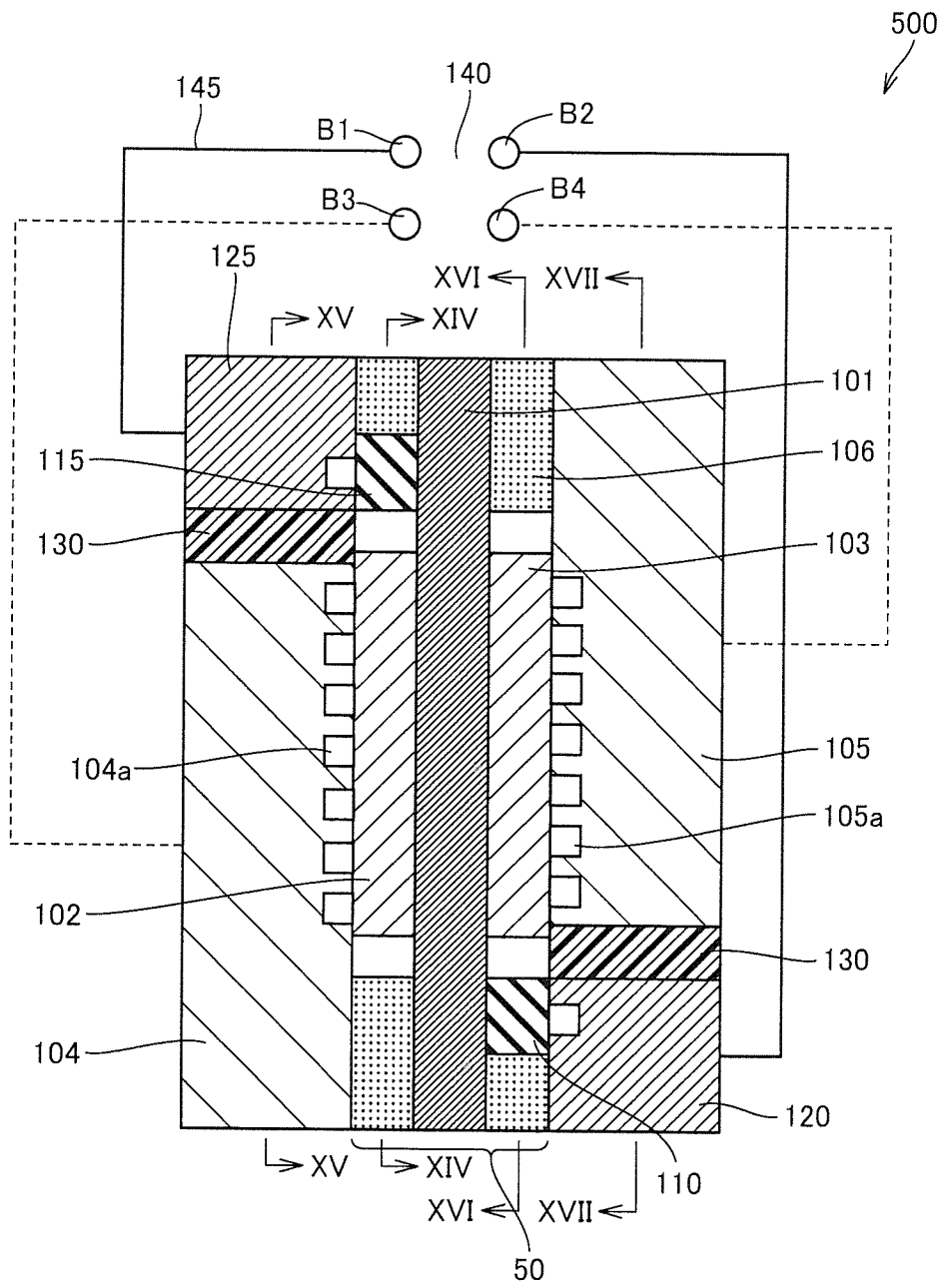
[図11]



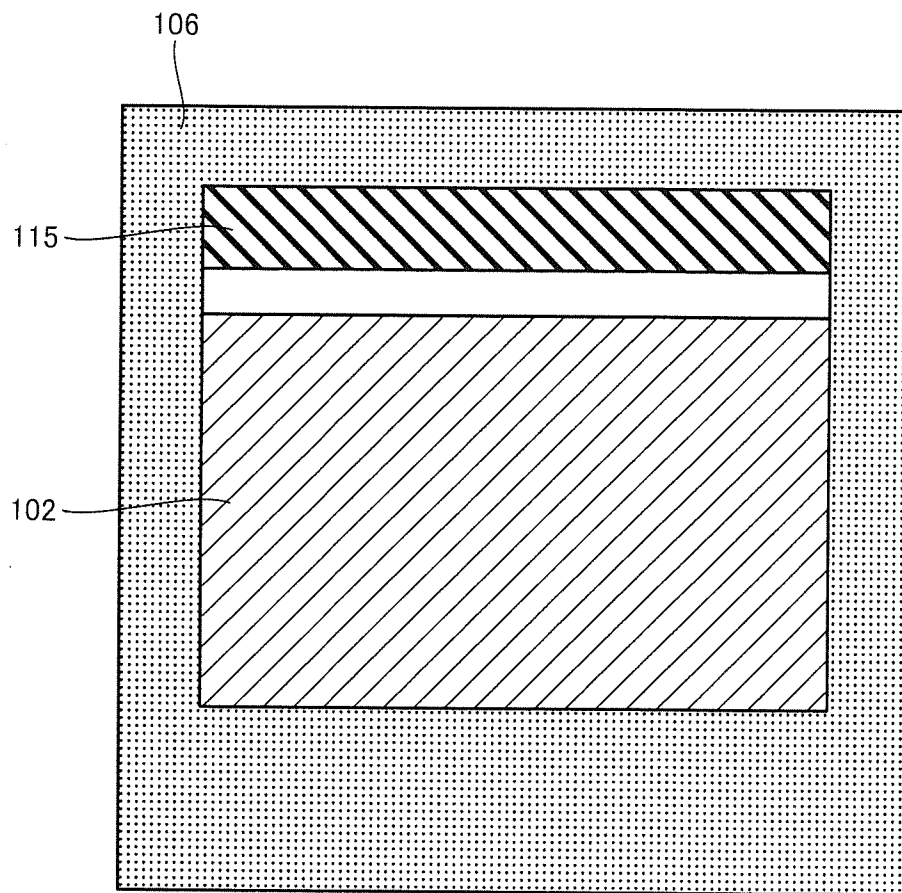
[図12]



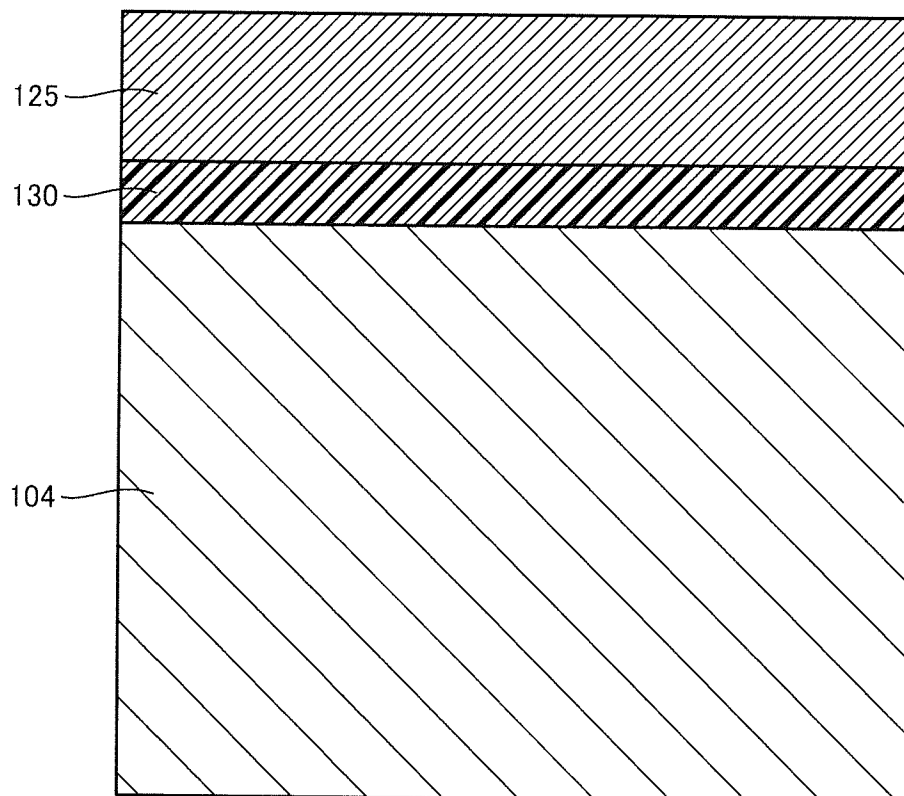
[図13]



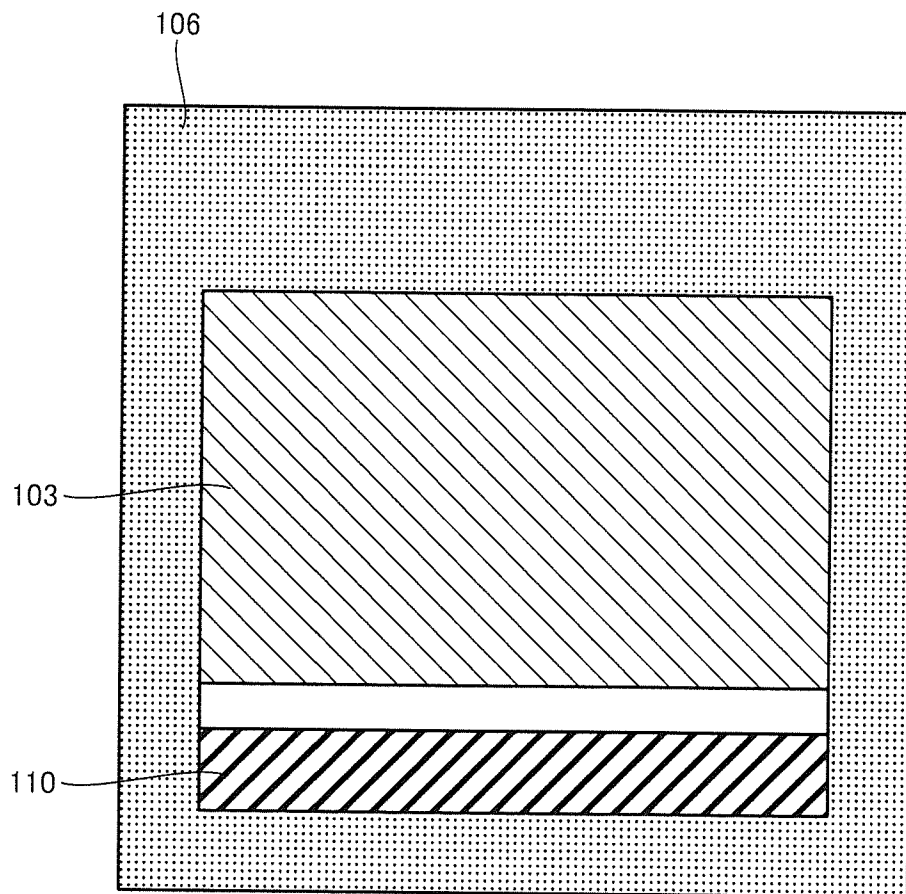
[図14]



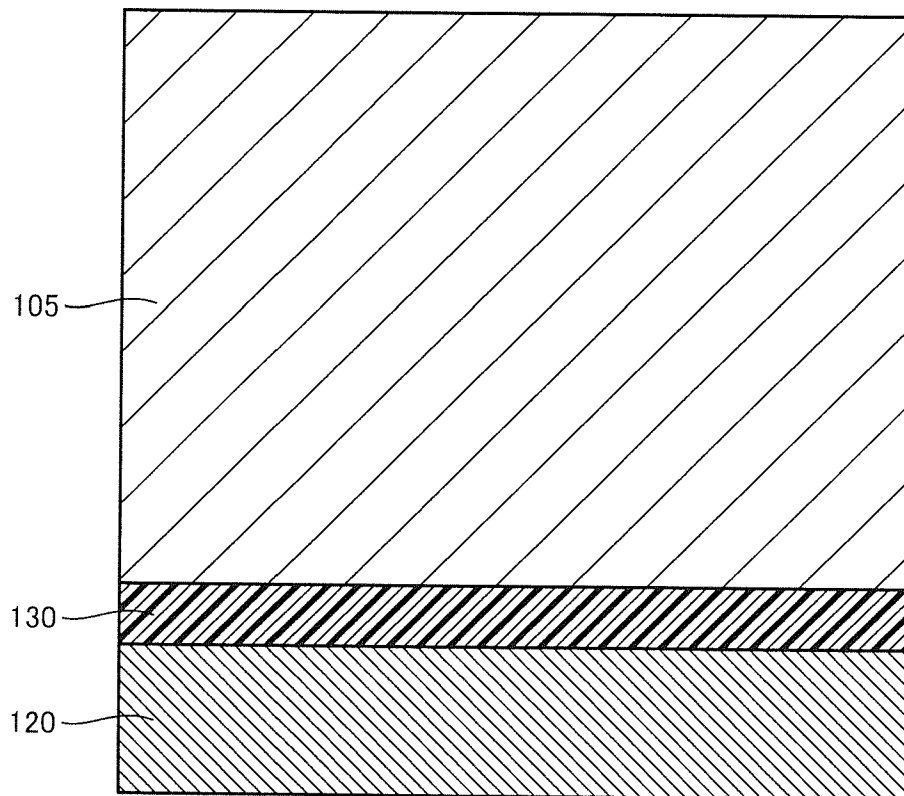
[図15]



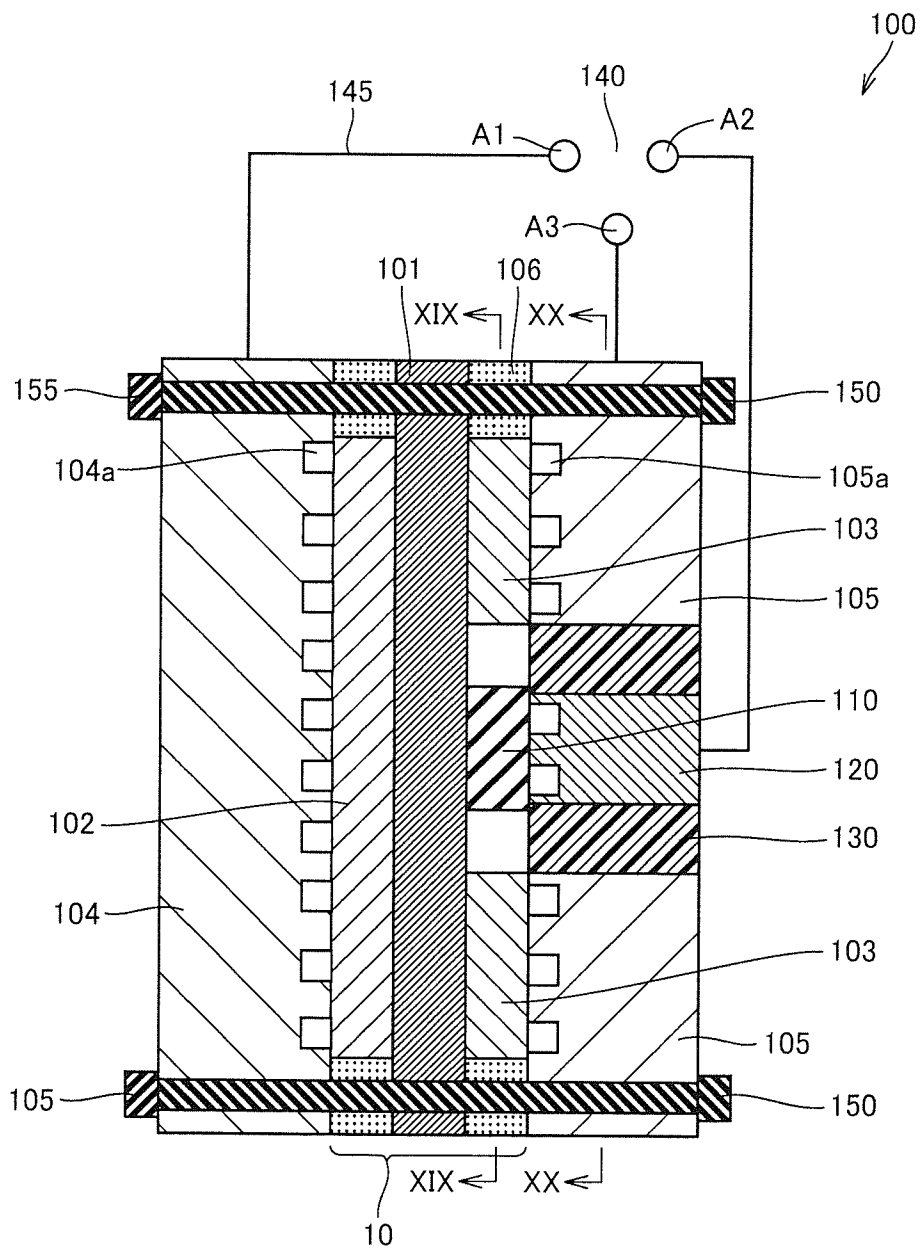
[図16]



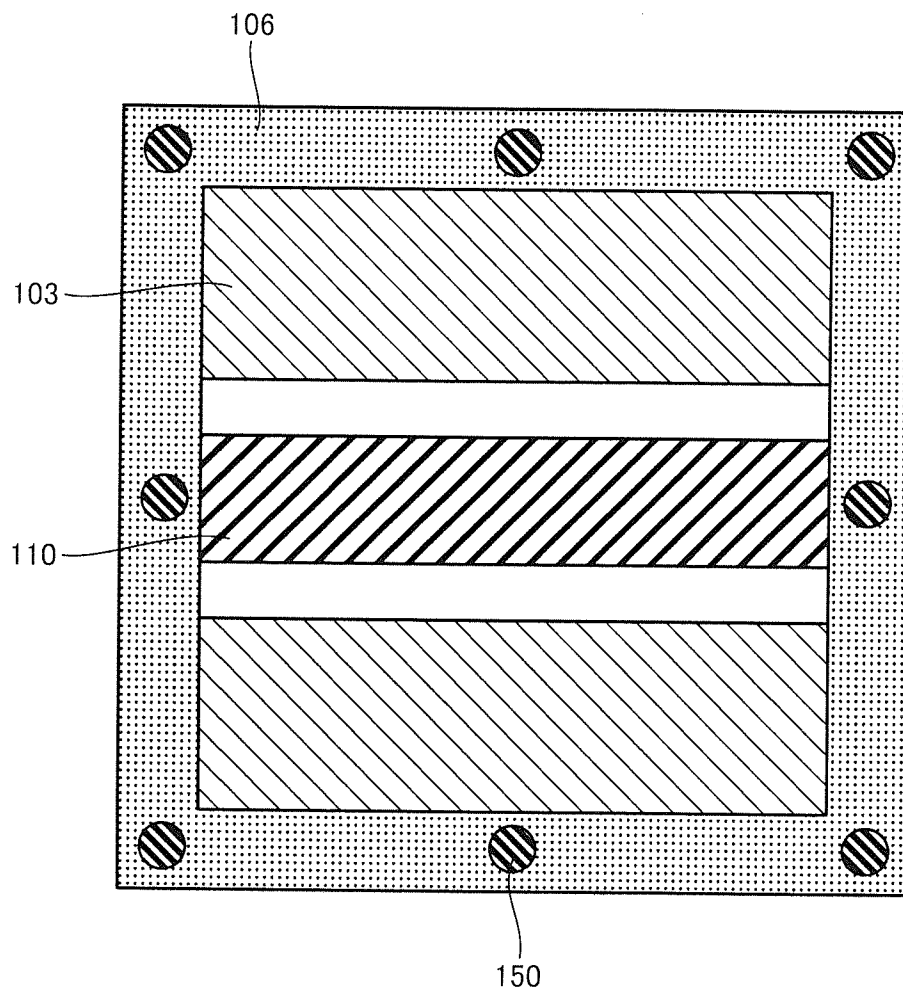
[図17]



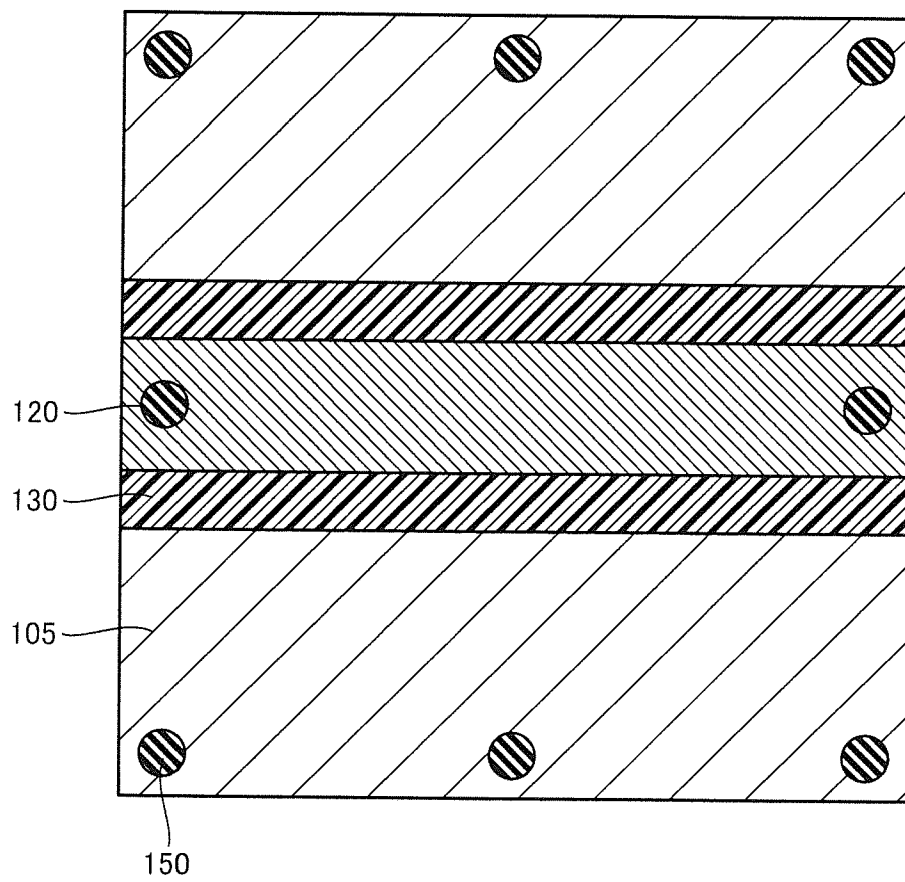
[図18]



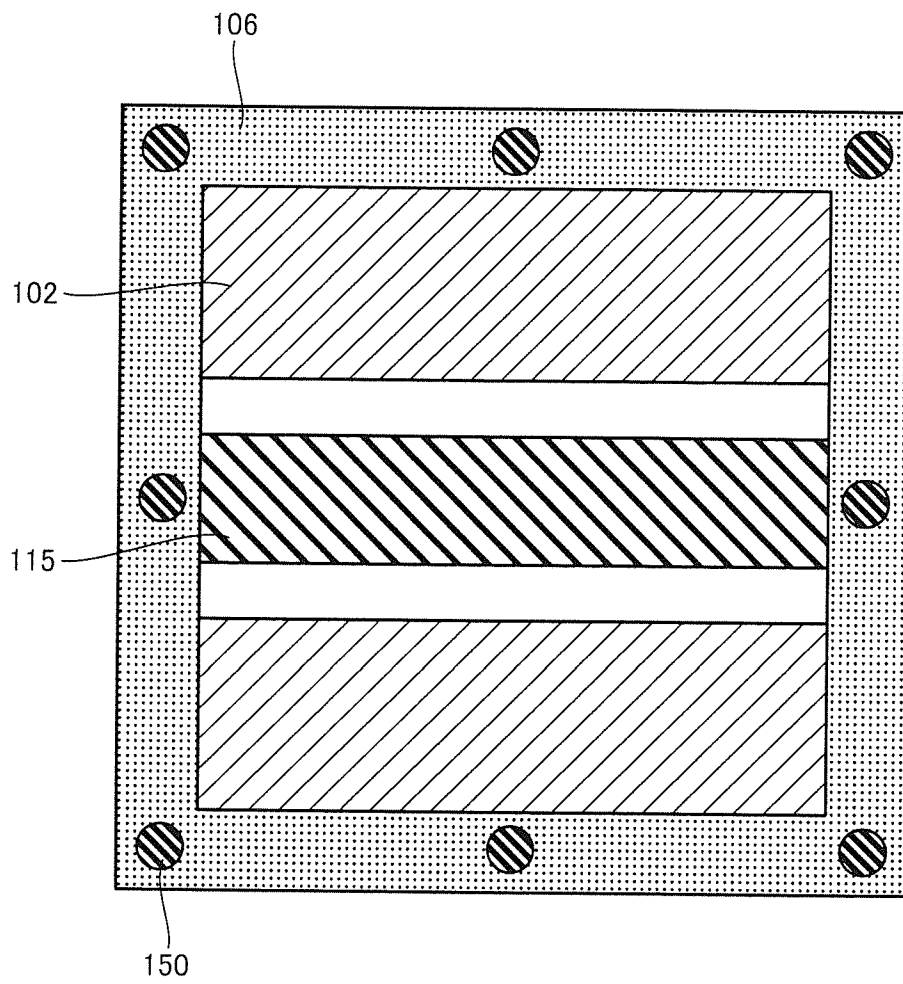
[図19]



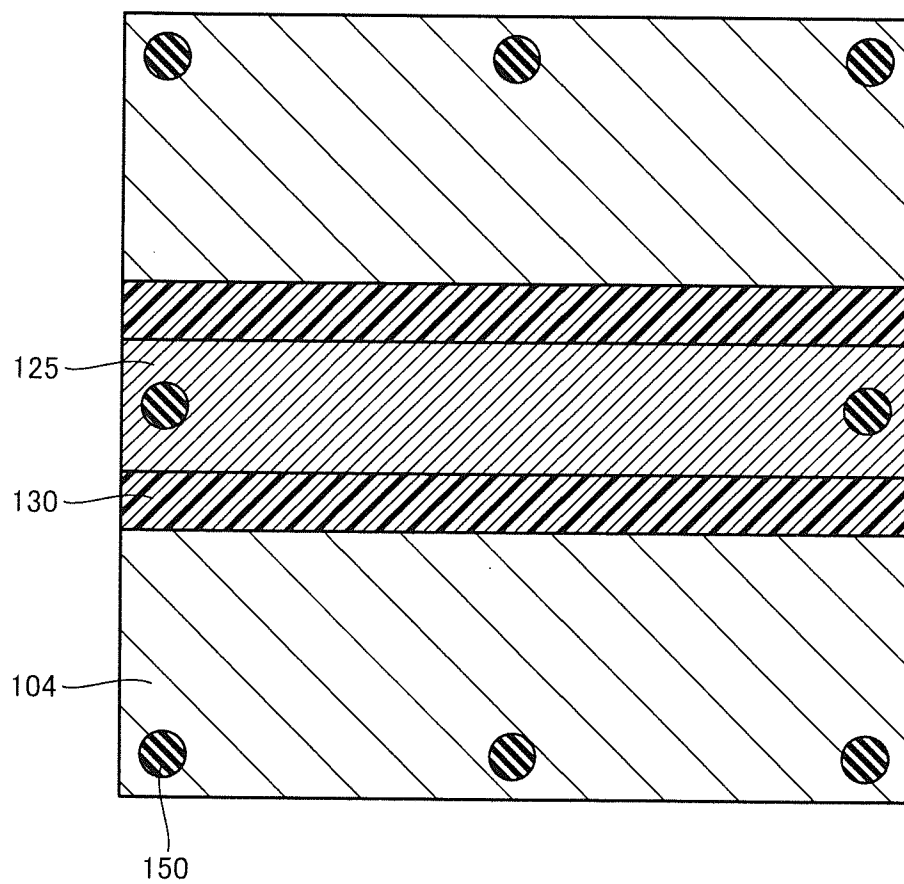
[図20]



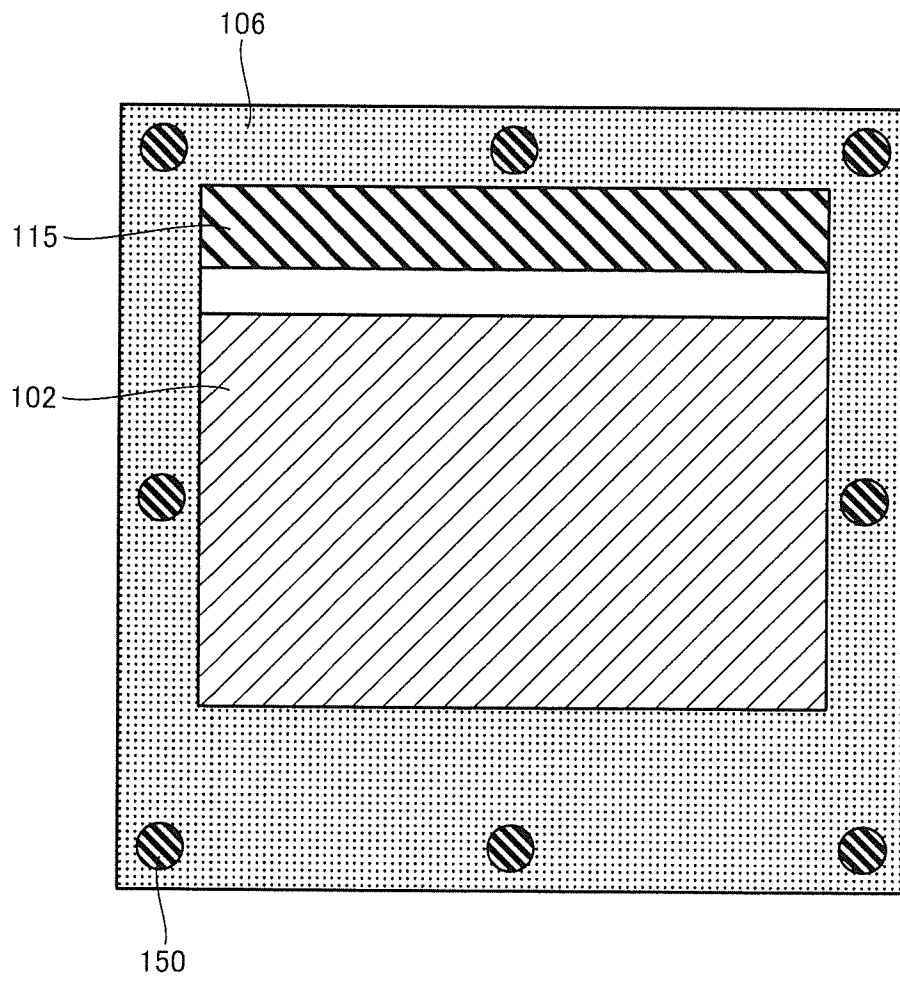
[図22]



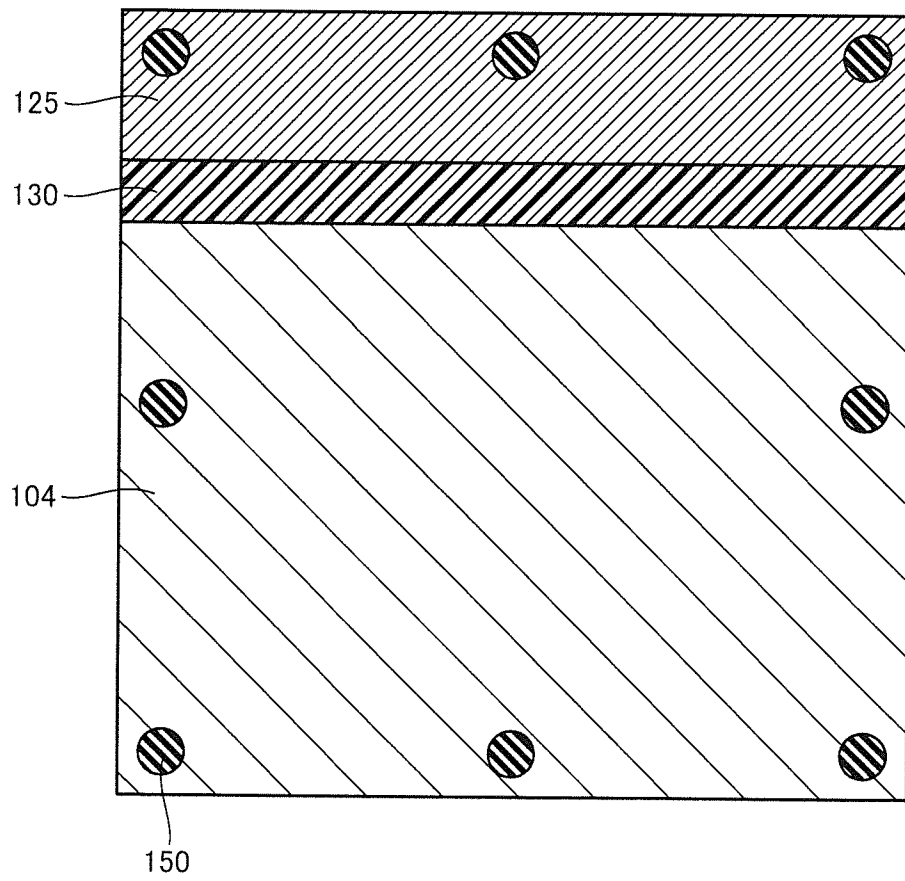
[図23]



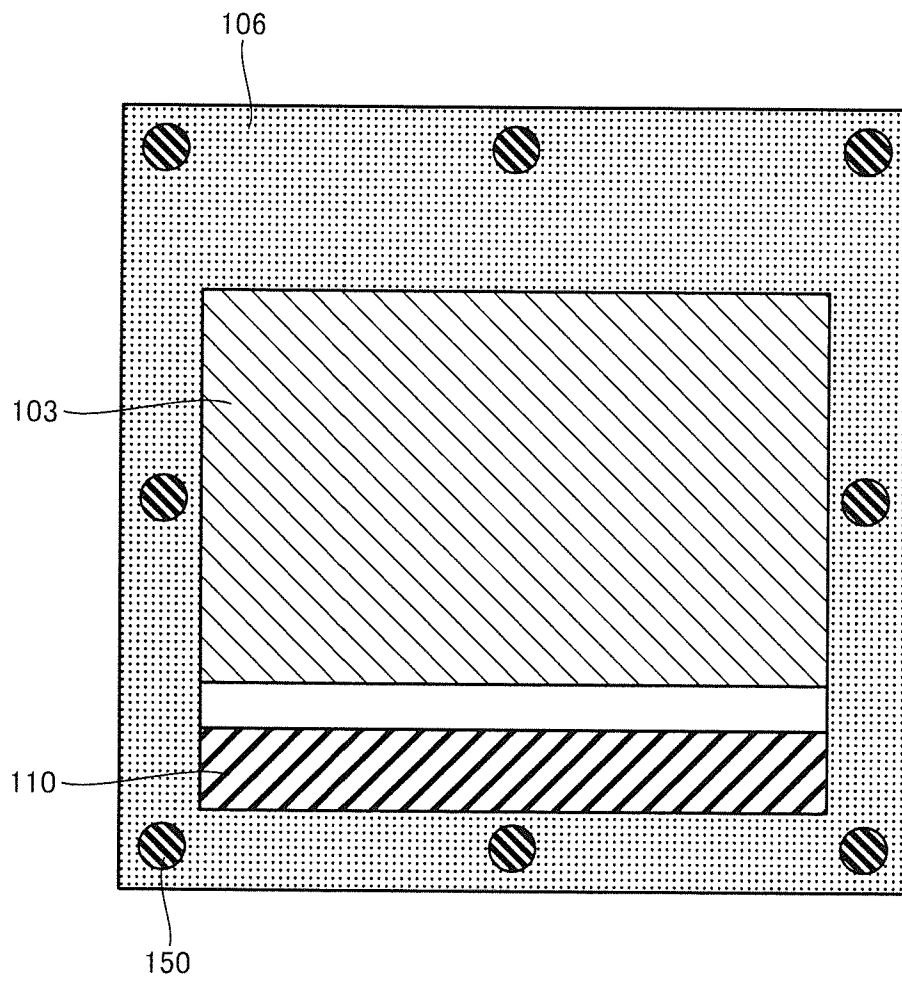
[図25]



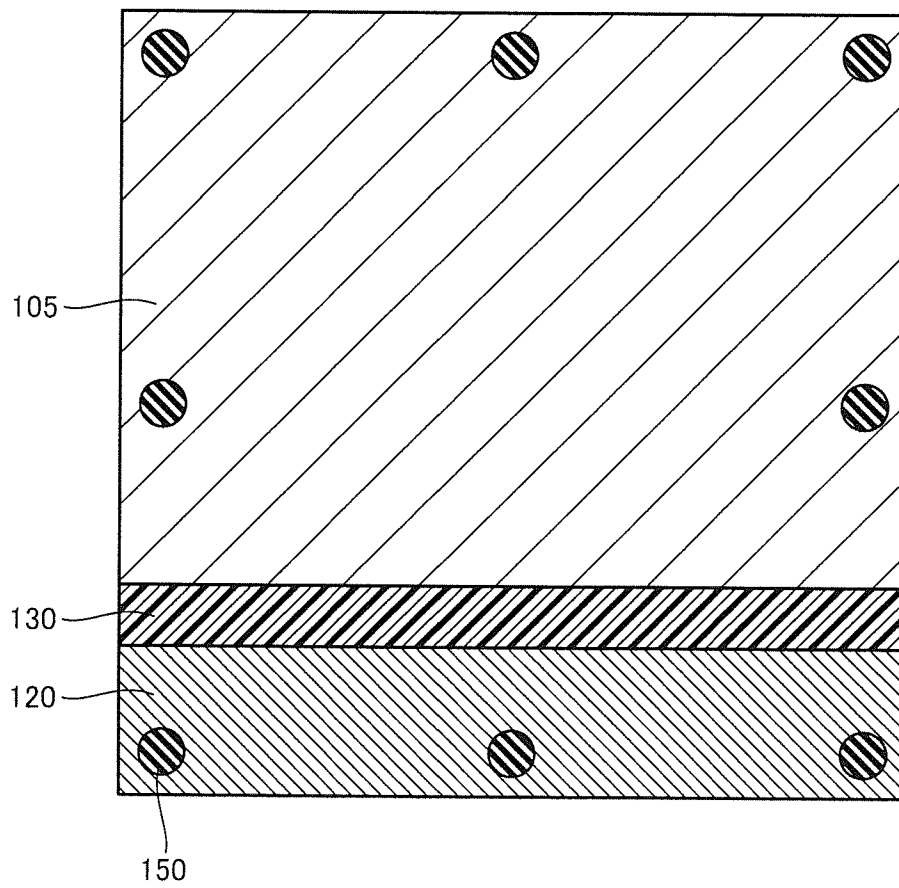
[図26]



[図27]



[図28]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051971

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)

H01M8/00-8/24

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 A	JP 2007-073428 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 22 March 2007 (22.03.2007), paragraphs [0019] to [0026], [0032], [0037], [0040]; fig. 1 to 3, 6 (Family: none)	1-12 13-15
A	JP 7-169499 A (IVAC Corp.), 04 July 1995 (04.07.1995), entire text & JP 62-002466 A & US 4648955 A & EP 0198483 A2	1-15
A	JP 2010-182589 A (Toyota Motor Corp.), 19 August 2010 (19.08.2010), entire text (Family: none)	1-15

☒ 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 April, 2012 (20.04.12)Date of mailing of the international search report
01 May, 2012 (01.05.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051971

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 2009-054538 A (Toshiba Corp.), 12 March 2009 (12.03.2009), entire text (Family: none)	1-15
A	JP 2009-535790 A (Georgia Tech Research Corp.), 01 October 2009 (01.10.2009), entire text & US 2007/0259236 A1 & EP 2033257 A2 & WO 2008/054858 A2	1-15
A	JP 2010-009934 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 14 January 2010 (14.01.2010), entire text (Family: none)	1-15

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. H01M8/00-8/24

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 A	JP 2007-073428 A（三洋電機株式会社）2007.03.22, 【0019】-【0026】, 【0032】, 【0037】, 【0040】, 図 1-3, 6（ファミリーなし）	1-12 13-15
A	JP 7-169499 A（アイヴァック コーポレーション）1995.07.04, 全文 & JP 62-002466 A & US 4648955 A & EP 0198483 A2	1-15
A	JP 2010-182589 A（トヨタ自動車株式会社）2010.08.19, 全文（ファミリーなし）	1-15

☒ 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 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

0 1 . 0 5 . 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）

長谷川 真一

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

4 X

4 0 3 8

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 2009-054538 A (株式会社東芝) 2009.03.12, 全文 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2009-535790 A (ジョージア テック リサーチ コーポレイション) 2009.10.01, 全文 & US 2007/0259236 A1 & EP 2033257 A2 & WO 2008/054858 A2	1-15
A	JP 2010-009934 A (大日本印刷株式会社) 2010.01.14, 全文 (ファミリーなし)	1-15