

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2009年4月2日 (02.04.2009)

PCT

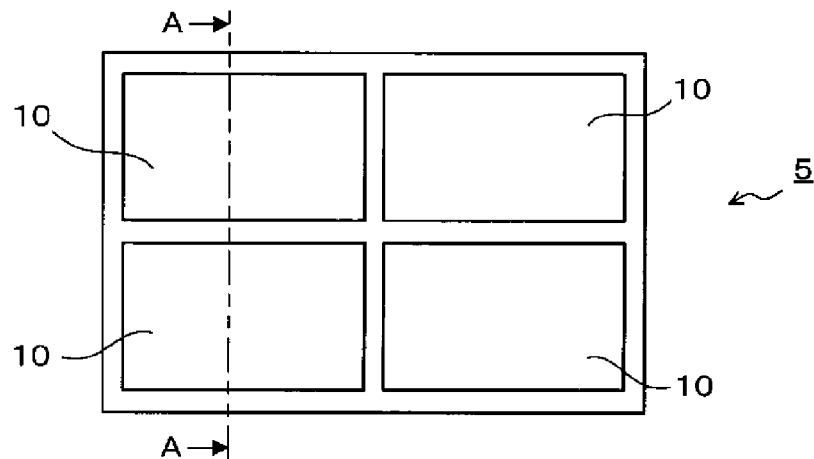
(10) 国際公開番号
WO 2009/041027 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/02 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/002635
- (22) 国際出願日: 2008年9月24日 (24.09.2008)
- (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2007-251654 2007年9月27日 (27.09.2007) JP
特願2008-147076 2008年6月4日 (04.06.2008) JP
- (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): 矢嶋亨 (YAJIMA, Akira) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 大関良江 (OZEKI, Yoshie) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 根岸信保 (NEGISHI, Nobuyasu) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 川村公一 (KAWAMURA, Koichi) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 下山田啓 (SHIMOYAMADA, Takashi) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 後藤基伊 (GOTO, Motoi) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 高橋賢一 (TAKAHASHI, Kenichi) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP).
- [続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池

[図2]



(57) Abstract: Intended is to provide a fuel cell comprising a plurality of unit film electrode joints having an electrolyte film clamped between a fuel pole and an air pole. In recent years, a trial has been made to use the fuel cell in a power source for a mobile electrode device. If the fuel cell can be small-sized, it is possible to provide a power source system for a remarkably advantageous mobile electrode device. Generally in the fuel cell, the unit film electrode joints are connected electrically in series. In case the unit film electrode joints of different outputs are connected in series, there arises a problem that the unit film electrode joints of low outputs are subjected to pole changes so that they are degraded. This problem is solved by the fuel cell comprising a film electrode joint group made by arranging the unit film electrode joints such that the same poles are on the same side and at a predetermined spacing planarly and in the circumferential direction on an arbitrary point, and a fuel feed mechanism arranged on the fuel pole side of the film electrode joint group for feeding the fuel to the fuel pole.

(57) 要約: 本発明は、燃料極と空気極とに挟持された電解質膜を有する複数の単位膜電極接合体を具備する、燃料電池に関する。近年、携帯用電子機器の電源に燃料電池を用いる試みがなされており、燃料電池を小型化できれば極

[続葉有]



WO 2009/041027 A1



1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP). 岩村直樹 (IWAMURA, Naoki) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 株式会社 東芝 知的財産部内 Tokyo (JP).

ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(74) 代理人: 須山佐一 (SUYAMA, Saichi); 〒1010046 東京都千代田区神田多町 2 丁目 1 番地 神田東山ビル Tokyo (JP).

(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, 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, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(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, 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,

添付公開書類:
— 国際調査報告書

めて有利な携帯用電子機器用の電源システムとなる。前記燃料電池では、一般に、複数の単位膜電極接合体は電気的に直列に接続されるが、出力の異なる単位膜電極接合体が直列に接続された場合には、出力の低い単位膜電極接合体が転極し、劣化していく等の問題があった。本発明は、前記燃料電池に、前記複数の単位膜電極接合体を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて配置してなる膜電極接合体群と、前記膜電極接合体群の燃料極側に配置され、前記燃料極に燃料を供給する燃料供給機構とを具備すること等によって、上記問題の解決を図ったものである。

明 細 書

燃料電池

技術分野

[0001] 本発明は、液体燃料を用いた燃料電池に関する。

背景技術

[0002] 近年、ノートパソコンや携帯電話等の各種携帯用電子機器を長時間充電なしで使用可能とするために、これら携帯用電子機器の電源に燃料電池を用いる試みがなされている。燃料電池は、燃料と空気を供給するだけで発電することができ、燃料を補給すれば連続して長時間発電することが可能であるという特徴を有している。このため、燃料電池を小型化できれば、携帯用電子機器の電源として極めて有利なシステムとなる。

[0003] 直接メタノール型燃料電池（Direct Methanol Fuel Cell：DMFC）は、小型化が可能であり、さらに燃料の取り扱いも容易であるため、携帯用電子機器の電源として有望視されている。DMFCにおける液体燃料の供給方式としては、気体供給型や液体供給型等のアクティブ方式や、燃料収容部内の液体燃料を電池内部で気化させて燃料極に供給する内部気化型等のパッシブ方式が知られている。また、例えば、特許第3413111号公報には、内部気化型等のパッシブ方式を用いた燃料電池が記載されている。

[0004] これらのうち、内部気化型等のパッシブ方式はDMFCの小型化に対して特に有利である。パッシブ型DMFCに関して、例えば国際公開第2005/112172号パンフレットにおいて、アノード（燃料極）、電解質膜およびカソード（空気極）を有する膜電極接合体（燃料電池セル）を、樹脂製の箱状容器からなる燃料収容部上に配置した構造が提案されている。燃料収容部から気化した燃料を直接燃料電池セルに供給する場合、燃料電池の出力の制御性を高めることが重要となるが、現状のパッシブ型DMFCでは必ずしも十分な出力制御性は得られていない。

[0005] 一方、例えば、特表2005-518646号公報、特開2006-08

5952号公報、米国特許公開第2006/0029851号公報では、DMFCの燃料電池セルと燃料収容部とを流路を介して接続することが検討されている。燃料収容部から供給された液体燃料を燃料電池セルに流路を介して供給することによって、流路の形状や径等に基づいて液体燃料の供給量を調整することができる。例えば、特開2006-085952号公報には、燃料収容部から流路にポンプで液体燃料を供給する燃料電池が記載されている。また、例えば、米国特許公開第2006/0029851号公報には、電気浸透流ポンプを用いて液体燃料等を供給する燃料電池が記載されている。

[0006] また、上記した膜電極接合体を平面的に配置してなる燃料電池において、膜電極接合体の縁辺部は、周囲の大気等への熱の放散が多いため温度が低くなり、この縁辺部におけるアノード触媒層およびカソード触媒層における化学反応が促進されないことがある。また、燃料電池の内部で燃料を気化させて気体燃料を生じる内部気化型の燃料電池では、燃料を気化させる熱源として、膜電極接合体で発生する熱を利用することが多いが、この場合に、縁辺部では膜電極接合体自体の温度が低いため、燃料を気化させるための熱量が十分に得られないことがある。燃料を気化させるための熱量が不十分な膜電極接合体の縁辺部では、供給される気体燃料の量が少なくなり、さらに出力が低下することがある。逆に、膜電極接合体の中央部では、周囲の大気等へ熱を放散し難いために温度が高くなり、供給される気体燃料の供給も多くなり、出力が高くなる傾向がある。

[0007] また、燃料電池の熱サイクル耐性の向上を図ることを目的として、例えば、特開2004-235060号公報では、膜電極接合体の内部で発生する熱や応力の分布を均一化できる中央貫通孔と複数の周囲貫通孔をもつリング状の膜電極接合体が提案されている。この文献には、中央貫通孔とその周囲に配置した複数の周囲貫通孔とにより膜電極接合体の内部の温度差を低減させ、膜電極接合体全体に生じる熱応力を小さくすることができる燃料電池が記載されている。

- [0008] 複数の各単位膜電極接合体を有して構成される膜電極接合体群では、一般に、各単位膜電極接合体は電氣的に直列に接続される。したがって、各単位膜電極接合体に流れる電流は等しい。ここで、例えば、特開平6-52881号公報には、固体電解質型の燃料電池では、単セル集合体における各単セルを隣接する単セルごとに極性が異なるように配置し、上下に積層された単セル群の相互間の電氣的接続を、隣接する積層された単セル群の上端および下端を接続することで行う技術が開示されている。
- [0009] また、上記した膜電極接合体群において、出力の異なる単位膜電極接合体が直列に接続された場合、出力の高い単位膜電極接合体は電圧が高く、出力の低い単位膜電極接合体は電圧が低くなる。単位膜電極接合体の電圧が低くなって「0」以下になる、いわゆる「転極」を生じると、その単位膜電極接合体では、特にアノード触媒層を構成する触媒や、触媒を担持する炭素材料等が電氣化学的に異常な反応を生じ、劣化していくことが知られている。この劣化を防ぐためには、全ての単位膜電極接合体において転極を生じる可能性が無いほどに、電流値を小さくすることが考えられるが、燃料電池全体として得られる出力は小さくなる。
- [0010] また、燃料電池を構成する各種の部材を積層して固定する際に、ネジ、ボルト、カシメ、溶着等によって縁辺部を強固に固定することは容易であり、これによって膜電極接合体群とアノード及びカソード導電層との間の接触抵抗や、その他の抵抗成分を小さくすることができる。逆に、中央部では、縁辺部と同様の固定を行なうことは難しく、接触抵抗やその他の抵抗成分は縁辺部よりも大きくなる傾向がある。
- [0011] 従来の膜電極接合体において、上記した、温度や燃料供給量の不均一と接触抵抗等の不均一のどちらが主として燃料電池の出力特性等に影響を及ぼすかは、膜電極接合体の構成のみならず、燃料電池全体の構成や、さらには使用する環境（大気の温度等）等によっても変化し、一概に決めることはできない。
- [0012] 例えば、膜電極接合体群の上下を、強固でかつ撓みの少ない部材で挟んだ

場合には、上記した接触抵抗の不均一は殆ど無視できる。しかしながら、この構成では、燃料電池全体の重量や体積が過大となり、携帯機器の電源として適切ではなくなる。

- [0013] また、燃料電池を携帯機器の電源として用いた場合、周囲の気温が高く、気温と燃料電池の膜電極接合体群との温度差が小さいときには、温度の不均一が燃料電池の出力特性等に及ぼす影響は小さくなるが、周囲の気温が低く、気温と燃料電池の膜電極接合体群との温度差が大きいときには、温度の不均一が燃料電池の出力特性等に及ぼす影響が大きくなり、安定した出力が得られないこともある。

特許文献1: 特許第3413111号公報

特許文献2: 国際公開第2005/112172号パンフレット

特許文献3: 特表2005-518646公報

特許文献4: 特開2006-085952公報

特許文献5: 米国特許公開第2006/0029851号公報

特許文献6: 特開2004-235060公報

特許文献7: 特開平6-52881号公報

発明の開示

- [0014] そこで、本発明の目的は、各単位膜電極接合体の出力を均一にし、高い出力を安定して維持することができる燃料電池を提供することである。

- [0015] 本発明の一態様によれば、燃料極、空気極、および前記燃料極と前記空気極とに挟持された電解質膜を有する複数の単位膜電極接合体を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて配置してなる膜電極接合体群と、前記膜電極接合体群の前記燃料極側に配置され、前記燃料極に燃料を供給する燃料供給機構とを具備することを特徴とする燃料電池が提供される。

図面の簡単な説明

- [0016] [図1]本発明に係る一実施の形態の燃料電池の構成を示す断面図である。

[図2]本発明に係る一実施の形態の燃料電池における膜電極接合体群を図1に

示した燃料電池の上方からみたときの平面図である。

[図3] 本発明に係る一実施の形態の燃料電池における他の構成の膜電極接合体群を図1の燃料電池に示した上方からみたときの平面図である。

[図4] 各単位膜電極接合体の面積 1 cm^2 あたりに流れる電流の値（電流密度）と、そのときに単位膜電極接合体で発生する電圧との関係を示した図である。

[図5] 本発明に係る一実施の形態の燃料電池にポンプを備えた場合の構成を示す断面図である。

[図6A] アノード導電層およびカソード導電層を構成する導電層形成シートの展開図である。

[図6B] 図6Aに示された導電層形成シートからアノード導電層およびカソード導電層を構成する工程を説明するための図である。

[図7A] アノード導電層およびカソード導電層を構成する他の形態の導電層形成シートの展開図である。

[図7B] 図7Aに示された導電層形成シートからアノード導電層およびカソード導電層を構成する工程を説明するための図である。

[図8] アノード導電層およびカソード導電層を構成するさらに他の形態の導電層形成シートからアノード導電層およびカソード導電層を構成する工程を説明するための図である。

[図9A] 本発明に係る燃料電池を空気極側から見たときの平面図である。

[図9B] 本発明に係る燃料電池の側面を示す平面図である。

[図10] 本発明に係る燃料電池の概要を示す部分断面図である。

[図11] 本発明に係る燃料電池を各構成要素に分解して示す分解斜視図である。

[図12] 膜電極接合体／集電体アセンブリをさらに各構成要素に分解して示す分解斜視図である。

[図13] 6つの膜電極接合体セグメントを有する六角形状の膜電極接合体／集電体アセンブリを示す平面図である。

[図14]隣接する膜電極接合体セグメント間に配置されたシール部材を示す要部斜視図である。

[図15]隣接する膜電極接合体セグメント間に配置されたシール部材を示す要部断面図である。

[図16]電流の制御に伴う各单位膜電極接合体の電圧の計測結果を示す図である。

[図17]比較例1で使用した燃料電池の構成を示す断面図である。

[図18]比較例1で使用した燃料電池における膜電極接合体群を図10に示した燃料電池の上方からみたときの平面図である。

符号の説明

[0017] 1…燃料電池、5…膜電極接合体群、10…単位膜電極接合体、11…アノード触媒層、12…アノードガス拡散層、13…アノード（燃料極）、14…カソード触媒層、15…カソードガス拡散層、16…カソード（空気極）、17…電解質膜、18…アノード導電層、19…カソード導電層、20…リング、30…燃料分配層、31…開口部、40…燃料供給機構、41…燃料収容部、42…燃料供給部本体、43…燃料供給部、44…流路、50…保湿層、60…表面カバー、61…空気導入口、F…液体燃料。

発明を実施するための最良の形態

[0018] 以下、本発明の実施の形態について、図面を参照して説明する。

[0019] 図1は、本発明に係る一実施の形態の燃料電池1の構成を示す断面図である。図2は、本発明に係る一実施の形態の燃料電池1における膜電極接合体群5を図1に示した燃料電池1の上方からみたときの平面図である。図3は、本発明に係る一実施の形態の燃料電池1における他の構成の膜電極接合体群5を図1に示した燃料電池1の上方からみたときの平面図である。図4は、各单位膜電極接合体10の面積 1 cm^2 あたりに流れる電流の値（電流密度）と、そのときに単位膜電極接合体10で発生する電圧との関係を示した図である。図5は、本発明に係る一実施の形態の燃料電池1にポンプ80を備えた場合の構成を示す断面図である。

[0020] 図1に示すように、燃料電池1は、起電部を構成する単体からなる膜電極接合体（Membrane Electrode Assembly：MEA）（以下、単位膜電極接合体10という）を複数有する膜電極接合体群5を備え、各単位膜電極接合体10のアノード（燃料極）側およびカソード（空気極）側には、それぞれアノード導電層18とカソード導電層19が設けられている。また、燃料電池1は、このアノード導電層18に対向させて設けられた複数の開口部31を有する燃料分配層30と、この燃料分配層30の単位膜電極接合体10側とは異なる側に配置され、燃料分配層30に液体燃料Fを供給する燃料供給機構40と、カソード導電層19に積層された保温層50と、この保温層50に積層された、複数の空気導入口61を有する表面カバー60とを備える。なお、図1に示す燃料電池1の断面は、図2のA-A断面、すなわち2つの単位膜電極接合体10に対応する燃料電池1の構成を示したものであり、図1には示されていない他の単位膜電極接合体に対応する燃料電池1の構成も同じ構成である。

[0021] 単位膜電極接合体10は、アノード触媒層11とアノードガス拡散層12とを有するアノード（燃料極）13と、カソード触媒層14とカソードガス拡散層15とを有するカソード（空気極）16と、アノード触媒層11とカソード触媒層14とで挟持されたプロトン（水素イオン）伝導性を有する電解質膜17とから構成される。

[0022] また、図2に示すように、膜電極接合体群5は、複数の単位膜電極接合体10を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて均等に配置して構成されている。図2には、その構成の一例である、4つの矩形の単位膜電極接合体10を任意の一点を中心として所定の間隔をあけて田字状に配置した構成を示している。すなわち、4つの単位膜電極接合体10は、燃料電池1の中央部および縁辺部に位置する各単位膜電極接合体10の割合が同じになるように配置構成されている。なお、各単位膜電極接合体10が電氣的に直列に接続されるように、各単位膜電極接合体10に対応するアノード導電層18やカソード導電層19

は、電氣的に接続されている。また、各単位膜電極接合体 10 間の所定の間隔、すなわち各単位膜電極接合体 10 間に形成された隙間は、各単位膜電極接合体 10 間を電氣的に絶縁するためのものである。

[0023] また、各単位膜電極接合体 10 の表面の面積、すなわち発電部の面積は、等しく構成されることが好ましい。通常、燃料電池 1 では、中央部の温度が高くなり、縁辺部の温度が低くなる。上記した単位膜電極接合体 10 の配置構成とすることで、各単位膜電極接合体 10 における温度分布状態、すなわち温度の不均一状態が同じとなり、各単位膜電極接合体 10 において、ほぼ同じ出力特性が得られる。これによって、前述した、各単位膜電極接合体 10 を電氣的に直列に接続した場合に、各単位膜電極接合体 10 の出力の不均一によって生じる転極の発生を防止することができる。

[0024] また、単位膜電極接合体 10 の配置構成は、図 2 に示された配置構成に限られるものではなく、例えば、1 つの単位膜電極接合体 10 の形状を、図 3 に示すように、三角形として、平面的かつ任意の一点を中心として所定の間隔をあけて均等に配置し、膜電極接合体群 5 を矩形に形成してもよい。また、1 つの単位膜電極接合体 10 の形状を三角形として、平面的かつ任意の一点を中心として所定の間隔をあけて均等に配置し、膜電極接合体群 5 を多角形に形成してもよい。さらに、1 つの単位膜電極接合体 10 の形状を扇形として、平面的かつ任意の一点を中心として所定の間隔をあけて均等に配置し、膜電極接合体群 5 を円形に形成してもよい。

[0025] ここで、図 3 に示した、1 つの単位膜電極接合体 10 の形状を三角形として、平面的かつ任意の一点を中心として均等に配置し、膜電極接合体群 5 を矩形に形成した例を参照してさらに具体的に説明する。

[0026] この場合においても、各単位膜電極接合体 10 の表面の面積、すなわち発電部の面積は、等しく構成されることが好ましい。さらに言及すれば、図 3 に示すように、三角形の形状が異なるものを含む場合には、各単位膜電極接合体 10 の表面の面積を等しく構成するとともに、各単位膜電極接合体 10 において、高温となる領域と低温となる領域の割合が、ほぼ等しくなるよう

に形状を考慮することが好ましい。ここで、高温となる領域と低温となる領域の区分は、例えば、各単位膜電極接合体 10 の表面の温度の平均値を境界値とし、この境界値よりも温度の高い領域を高温となる領域とし、この境界値以下の温度の領域を低温となる領域としてもよい。なお、この高温となる領域と低温となる領域の区分は、これに限られず、燃料電池 1 の形態や特性などに応じて適宜に変更することができる。

[0027] 一方、4つの三角形の面積を等しく構成できない場合には、表面の面積が最小の単位膜電極接合体 10（以下、面積最小の単位膜電極接合体 10 という）における表面の面積が、表面の面積が最大の単位膜電極接合体 10（以下、面積最大の単位膜電極接合体 10 という）の表面の面積の 90%以上となるように、各単位膜電極接合体 10 を構成することが好ましい。ここで、面積最小の単位膜電極接合体 10 における表面の面積が、面積最大の単位膜電極接合体 10 における表面の面積の 90%以上となるように各単位膜電極接合体 10 を構成することが好ましい理由を、図 4 を参照して説明する。

[0028] ここで、図 4 において、各単位膜電極接合体 10 のうち、面積最大の単位膜電極接合体 10 における電流密度を I_1 、この単位膜電極接合体 10 で発生する電圧を V_1 、同様に、面積最小の単位膜電極接合体 10 における電流密度を I_2 、この単位膜電極接合体 10 で発生する電圧を V_2 とする。また、電圧が「0」になるときの電流密度の値（以下、限界電流密度という）を I_{max} で示す。

[0029] 図 4 に示すように、各単位膜電極接合体 10 の面積 1 cm^2 あたりに流れる電流の値である電流密度が大きいほど、単位膜電極接合体 10 で発生する電圧は低くなるという関係がある。各単位膜電極接合体 10 は、電氣的に直列に接続されているため、全ての単位膜電極接合体 10 に流れる電流値は等しい。仮に、面積最小の単位膜電極接合体 10 における表面の面積が、面積最大の単位膜電極接合体 10 の表面の面積の 90% とすると、面積最小の単位膜電極接合体 10 の電流密度 I_2 は、面積最大の単位膜電極接合体 10 の電流密度 I_1 の 1.11 倍になり、図 4 に示すように、面積最小の単位膜電極接合

体 10 で発生する電圧 V_2 は、面積最大の単位膜電極接合体 10 で発生する電圧 V_1 よりも低い値となる。

[0030] このとき、電圧 V_2 が電圧 V_1 に対してどれだけ低くなるかは、電流密度 I_1 および電流密度 I_2 の、電流密度 I_{max} に対する比率によって変わる。通常、燃料電池 1 において発生する電力（電圧と電流の積）を最大にするために、電流密度 I_1 および電流密度 I_2 は、電流密度 I_{max} の 60～90% 前後になるよう設定されることが多い。このような場合、電圧 V_2 と電圧 V_1 の比（ V_2/V_1 ）は、電流密度 I_2 と電流密度 I_1 の比（ I_2/I_1 、ここでは 1.11 とした）よりも拡大し、最大の単位膜電極接合体 10 では高い電圧で発電が行なわれ、最小の単位膜電極接合体 10 では低い電圧で発電が行なわれることになる。

[0031] このような状態を防ぐために、各単位膜電極接合体 10 の表面の面積は実質的に等しいことが好ましく、等しくない場合であっても、上記した電流密度比（1.11）以下であることが好ましく、最小の単位膜電極接合体 10 の表面の面積は、最大の単位膜電極接合体 10 の表面の面積の値の 90% 以上とした。また、この比率は、100% に近付くことが好ましく、95% 以上であればさらに好ましい。

[0032] なお、上記した膜電極接合体群 5 では、4 つの単位膜電極接合体 10 を備えた一例を示しているが、膜電極接合体群 5 を構成する単位膜電極接合体 10 の数はこれに限らず、複数備えていけばよい。

[0033] また、単位膜電極接合体 10 のアノード触媒層 11 やカソード触媒層 14 に含有される触媒としては、例えば Pt、Ru、Rh、Ir、Os、Pd 等の白金族元素の単体、白金族元素を含有する合金等が挙げられる。アノード触媒層 11 として、例えば、メタノールや一酸化炭素等に対して強い耐性を有する Pt-Ru や Pt-Mo 等を用いることが好ましい。カソード触媒層 14 として、例えば、Pt、Pt-Ni、Pt-Co 等を用いることが好ましい。ただし、触媒は、これらに限定されるものではなく、触媒活性を有する各種の物質を使用することができる。触媒は、炭素材料のような導電性担

持体を使用した担持触媒、あるいは無担持触媒のいずれであってもよい。

[0034] 電解質膜 17 を構成するプロトン伝導性材料としては、例えばスルホン酸基を有するパーフルオロスルホン酸重合体のようなフッ素系樹脂（ナフィオン（商品名、デュポン社製）、フレミオン（商品名、旭硝子社製）、アシプレックス（商品名、旭化成工業社製）等）、スルホン酸基を有する炭化水素系樹脂等の有機系材料、あるいはタングステン酸やリントングステン酸等の無機系材料が挙げられる。また、電解質膜 17 を構成するプロトン伝導性材料として、トリフルオロスチレン誘導体の共重合膜、リン酸を含浸させたポリベンズイミダゾール膜、芳香族ポリエーテルケトンスルホン酸膜、あるいは脂肪族炭化水素系樹脂膜なども挙げられる。ただし、プロトン伝導性の電解質膜 17 は、これらに限られるものではなく、プロトンを輸送可能なものであればよい。

[0035] なお、図 1 に示すように、ここでは、膜電極接合体群 5 における電解質膜 17 を 1 枚の膜、すなわち全ての単位膜電極接合体 10 における電解質膜 17 を 1 枚の共通な膜で構成しているが、単位膜電極接合体 10 ごとに独立した電解質膜 17 を備えてもよい。

[0036] アノード触媒層 11 に積層されるアノードガス拡散層 12 は、アノード触媒層 11 に燃料を均一に供給する役割を果たすと同時に、アノード触媒層 11 の集電体も兼ねている。カソード触媒層 14 に積層されるカソードガス拡散層 15 は、カソード触媒層 14 に酸化剤を均一に供給する役割を果たすと同時に、カソード触媒層 14 の集電体も兼ねている。また、アノードガス拡散層 12 およびカソードガス拡散層 15 は、カーボンペーパー、カーボンクロス、カーボンシルク等の多孔性炭素質材、チタン、チタン合金、ステンレス、金などの金属材料からなる多孔質体またはメッシュなどで構成される。

[0037] アノードガス拡散層 12 の表面に積層されたアノード導電層 18、およびカソードガス拡散層 15 の表面に積層されたカソード導電層 19 は、例えば、金、ニッケルなどの金属材料からなる多孔質層（例えば、メッシュなど）または箔体、あるいはステンレス鋼（SUS）などの導電性金属材料に金な

どの良導電性金属を被覆した複合材などで構成される。これらの中でも、アノード導電層 18 やカソード導電層 19 は、単位膜電極接合体 10 に対応して開口された複数の開口部を有する薄膜で構成されることが好ましく、この開口部を介して、単位膜電極接合体 10 に対向して設けられている燃料分配層 30 の開口部 31 からの燃料を単位膜電極接合体 10 に導く。なお、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 は、それらの周縁から燃料や酸化剤が漏れないように構成されている。また、電解質膜 17 とアノード導電層 18 およびカソード導電層 19 との間には、それぞれゴム製のリング 20 が介在されており、これらによって単位膜電極接合体 10 からの燃料漏れや酸化剤漏れを防止している。なお、ここでは、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を備えた燃料電池 1 を示しているが、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を設けずに、上記したようにアノードガス拡散層 12 およびカソードガス拡散層 15 を拡散層として機能させるとともに、導電層として機能させてもよい。また、図 1 に示した燃料電池 1 では、リング 20 を単位膜電極接合体 10 ごとに個々に設けているが、隣接する単位膜電極接合体 10 の間では、電解質膜 17 とアノード導電層 18 との間のリング 20、電解質膜 17 とカソード導電層 19 との間のリング 20 を共通としてもよい。

[0038] 保湿層 50 は、カソード触媒層 14 で生成された水の一部が含浸して、水の蒸散を抑制するとともに、カソード触媒層 14 への空気の均一拡散を促進するものである。この保湿層 50 は、例えば、ポリエチレン多孔質膜等からなる平板で構成される。

[0039] 表面カバー 60 は、空気の取入れ量を調整するものであり、その調整は、空気導入口 61 の個数や大きさ等を変更することで行われる。また、表面カバー 60 は、膜電極接合体群 5 を含む積層体を加圧して、各構成部間の密着性を高める役割も果たしているため、例えば、SUS304 のような金属で構成されることが好ましいが、これに限定されるものではない。

[0040] 燃料供給機構 40 は、燃料収容部 41 と、燃料供給部本体 42 と、流路 4

4 とを主に備える。

[0041] 燃料収容部 4 1 には、単位膜電極接合体 1 0 に対応した液体燃料 F が収容されている。この燃料収容部 4 1 は、液体燃料 F によって溶解や変質を生じることがない材料で構成される。燃料収容部 4 1 を構成する材料として、具体的には、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK；ヴィクトレックス社商標）などが使用される。なお、図示しないが、燃料収容部 4 1 には、液体燃料 F を供給するための燃料供給口が設けられている。

[0042] 液体燃料 F としては、各種濃度のメタノール水溶液や純メタノール等のメタノール燃料が挙げられる。液体燃料 F は、必ずしもメタノール燃料に限られるものではない。液体燃料 F は、例えばエタノール水溶液や純エタノール等のエタノール燃料、プロパノール水溶液や純プロパノール等のプロパノール燃料、グリコール水溶液や純グリコール等のグリコール燃料、ジメチルエーテル、ギ酸、その他の液体燃料であってもよい。いずれにしても、燃料収容部 4 1 には、単位膜電極接合体 1 0 に応じた液体燃料が収容される。特に、燃料濃度が 8 0 モル%を超えるメタノール水溶液または純メタノール液であることが好適である。

[0043] 燃料供給部本体 4 2 は、供給された液体燃料 F を燃料分配層 3 0 に対して均一に供給するために、液体燃料 F を平坦に分散させるための凹部からなる燃料供給部 4 3 を備えている。この燃料供給部 4 3 は、配管等で構成される液体燃料 F の流路 4 4 を介して燃料収容部 4 1 と接続されている。燃料供給部 4 3 には、燃料収容部 4 1 から流路 4 4 を介して液体燃料 F が導入され、導入された液体燃料 F および／またはこの液体燃料 F が気化した気化成分は、燃料分配層 3 0 および各アノード導電層 1 8 を介して各单位膜電極接合体 1 0 に供給される。

[0044] 流路 4 4 は、液体燃料 F によって溶解や変質を生じることがない材料で構成される。流路 4 4 を構成する材料として、具体的には、ステンレス、銅、アルミニウム等の金属、またはこれら金属の内面を金などでメッキした材料

、樹脂、ゴム、塗料等でコーティングした材料、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、ポリスチレン（PS）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ナイロン、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、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）、ポリ塩化ビニル（PVC）、ポリイミド（PI）、シリコーン樹脂等の樹脂、エチレン・プロピレンゴム（EPDM）、フッ素ゴム等のゴムなどが使用される。また、流路44は、燃料供給部43や燃料収容部41と独立した配管に限られるものではない。例えば、燃料供給部43や燃料収容部41を積層して一体化する場合、これらを繋ぐ液体燃料Fの流路であってもよい。すなわち、燃料供給部43は、流路等を介して燃料収容部41と連通されていればよい。

[0045] 燃料収容部41に収容された液体燃料Fは、重力を利用して流路44を介して燃料供給部43まで落下させて送液することができる。また、流路44に多孔体等を充填して、毛細管現象により燃料収容部41に収容された液体燃料Fを燃料供給部43まで送液してもよい。さらに、図5に示すように、流路44の一部にポンプ80を介在させて、燃料収容部41に収容された液体燃料Fを燃料供給部43まで強制的に送液してもよい。

[0046] このポンプ80は、燃料収容部41から燃料供給部43に液体燃料Fを単に送液する供給ポンプとして機能するものであり、単位膜電極接合体10に供給された過剰な液体燃料Fを循環する循環ポンプとしての機能を備えるものではない。このポンプ80を備えた燃料電池1は、燃料を循環しないことから、従来のアクティブ方式とは構成が異なり、従来の内部気化型のような純パッシブ方式とも構成が異なる、いわゆるセミパッシブ型と呼ばれる方式に該当する。なお、燃料供給手段として機能するポンプ80の種類は、特に限定されるものではないが、少量の液体燃料Fを制御性よく送液することができ、さらに小型軽量化が可能という観点から、ロータリベーンポンプ、電気浸透流ポンプ、ダイヤフラムポンプ、しごきポンプ等を使用することが好ましい。ロータリベーンポンプは、モータで羽を回転させて送液するもので

ある。電気浸透流ポンプは、電気浸透流現象を起こすシリカ等の焼結多孔体を用いたものである。ダイヤフラムポンプは、電磁石や圧電セラミックスによりダイヤフラムを駆動して送液するものである。しごきポンプは、柔軟性を有する燃料流路の一部を圧迫し、燃料をしごき送るものである。これらのうち、駆動電力や大きさ等の観点から、電気浸透流ポンプや圧電セラミックスを有するダイヤフラムポンプを使用することがより好ましい。上記したようにポンプ80を設ける場合、ポンプ80は、制御手段（図示しない）と電氣的に接続され、この制御手段によって、燃料供給部43に供給される液体燃料Fの供給量が制御される。

[0047] 燃料分配層30は、例えば、複数の開口部31が形成された平板で構成され、各单位膜電極接合体10のアノードガス拡散層12と燃料供給部43との間に挟持される。この燃料分配層30は、液体燃料Fの気化成分や液体燃料Fを透過させない材料で構成され、具体的には、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、ポリイミド系樹脂等で構成される。また、燃料分配層30は、例えば、液体燃料Fの気化成分と液体燃料Fとを分離し、その気化成分を単位膜電極接合体10側へ透過させる気液分離膜で構成されてもよい。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。

[0048] 次に、燃料電池1において、アノード導電層18およびカソード導電層19を構成する場合における、アノード導電層18およびカソード導電層19の構成例について、図6A～図8を参照して説明する。

[0049] 図6Aは、アノード導電層18およびカソード導電層19を構成する導電層形成シート100の展開図であり、図6Bは、図6Aに示された導電層形成シート100からアノード導電層18およびカソード導電層19を構成す

る工程を説明するための図である。図 7 A は、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を構成する他の形態の導電層形成シート 110 の展開図であり、図 7 B は、図 7 A に示された導電層形成シート 110 からアノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を構成する工程を説明するための図である。図 8 は、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を構成するさらに他の形態の導電層形成シート 120 a、120 b からアノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を構成する工程を説明するための図である。

[0050] なお、ここでは、4つの矩形の単位膜電極接合体 10 を任意の一点を中心として所定の間隔をあけて田字状に配置した構成（図 2 参照）における、導電層形成シートの構成例を示している。また、図中の（１）～（４）は、単位膜電極接合体 10 を示す記号であり、「A」は、アノード導電層 18 を、「C」は、カソード導電層 19 を意味する。例えば、（１）－「A」と示されている部分は、（１）の単位膜電極接合体 10 のアノード導電層 18 を構成するための導電シートであり、（１）－「C」と示されている部分は、（１）の単位膜電極接合体 10 のカソード導電層 19 を構成するための導電シートである。

[0051] まず、図 6 A および図 6 B に示された導電層形成シート 100 について説明する。

[0052] 図 6 A に示すように、1枚の絶縁シート 101 上に平面的に、（１）～（４）の各単位膜電極接合体 10 のアノード（燃料極）13 およびカソード（空気極）16 のそれぞれに対応するように導電シート（（（１）－「A」）～（（４）－「C」））を所定の構成で配置する。

[0053] 続いて、前述したように、（１）～（４）の各単位膜電極接合体 10 を電氣的に直列に接続するために、所定の導電シートどうしを電氣的に接続する。ここでは、導電シート（（１）－「C」）と導電シート（（２）－「A」）、導電シート（（２）－「C」）と導電シート（（３）－「A」）、導電シート（（３）－「C」）と導電シート（（４）－「A」）が電氣的に接続される。また、導電シート（（１）－「A」）には出力端子 102 が、導電

シート（（４）－「Ｃ」）には出力端子１０３が設けられている。

[0054] 図６Ｂに示すように、上記した導電層形成シート１００を、（１）～（４）の単位膜電極接合体１０で構成される膜電極接合体群５を介在させた状態で、図６Ａおよび図６Ｂに示した折り曲げ線Ｌで折り曲げることで、（１）～（４）の各単位膜電極接合体１０に対応するアノード導電層１８およびカソード導電層１９が形成され、さらに各単位膜電極接合体１０が電氣的に直列に接続される。

[0055] 次に、図７Ａおよび図７Ｂに示された導電層形成シート１１０について説明する。

[0056] 図７Ａに示すように、１枚の絶縁シート１１１上に平面的に、（１）～（４）の各単位膜電極接合体１０のアノード（燃料極）１３およびカソード（空気極）１６のそれぞれに対応するように導電シート（（１）－「Ａ」）～（（４）－「Ｃ」）を所定の構成で配置する。

[0057] 続いて、前述したように、（１）～（４）の各単位膜電極接合体１０を電氣的に直列に接続するために、所定の導電シートどうしを電氣的に接続する。ここでは、導電シート（（２）－「Ｃ」）と導電シート（（３）－「Ａ」）が電氣的に接続される。また、導電シート（（１）－「Ｃ」）、導電シート（（２）－「Ａ」）、導電シート（（３）－「Ｃ」）および導電シート（（４）－「Ａ」）には、それぞれ接点端子１１２ａ、１１２ｂ、１１２ｃ、１１２ｄが設けられ、組み立ての際、導電シート（（１）－「Ｃ」）と導電シート（（２）－「Ａ」）が接点端子１１２ａ、１１２ｂによって、導電シート（（３）－「Ｃ」）と導電シート（（４）－「Ａ」）が接点端子１１２ｃ、１１２ｄによって電氣的に接続される。また、導電シート（（１）－「Ａ」）には出力端子１１３が、導電シート（（４）－「Ｃ」）には出力端子１１４が設けられている。

[0058] 図７Ｂに示すように、上記した導電層形成シート１１０を、（１）～（４）の単位膜電極接合体１０で構成される膜電極接合体群５を介在させた状態で、図７Ａおよび図７Ｂに示した折り曲げ線Ｌで折り曲げ、上記したように

各接点端子を接続することで、(1)～(4)の各单位膜電極接合体10に対応するアノード導電層18およびカソード導電層19が形成され、さらに(1)～(4)の各单位膜電極接合体10が電氣的に直列に接続される。

[0059] 次に、図8に示された導電層形成シート120a、120bについて説明する。

[0060] 図8に示すように、1枚の絶縁シート121上に平面的に、(1)～(4)の各单位膜電極接合体10のアノード(燃料極)13に対応するように導電シート((1)－「A」)～((4)－「A」))を配置して燃料極側の導電層形成シート120aを構成する。また、1枚の絶縁シート122上に平面的に、(1)～(4)の各单位膜電極接合体10のカソード(空気極)16に対応するように導電シート((1)－「C」)～((4)－「C」))を配置して空気極側の導電層形成シート120bを構成する。また、導電シート((1)－「A」)および導電シート((4)－「C」)を除く導電シートには、それぞれ接点端子123a、123b、123c、123d、123e、123fが設けられ、組み立ての際、導電シート((1)－「C」)と導電シート((2)－「A」)が接点端子123a、123bによって、導電シート((2)－「C」)と導電シート((3)－「A」)が接点端子123c、123dによって、導電シート((3)－「C」)と導電シート((4)－「A」)が接点端子123e、123fによって電氣的に接続される。また、導電シート((1)－「A」)には出力端子124が、導電シート((4)－「C」)には出力端子125が設けられている。

[0061] 上記した導電層形成シート120a、120bを、(1)～(4)の各单位膜電極接合体10で構成される膜電極接合体群5を介して対向させ、上記したように各接点端子を接続することで、(1)～(4)の各单位膜電極接合体10に対応するアノード導電層18およびカソード導電層19が形成され、さらに各单位膜電極接合体10が電氣的に直列に接続される。

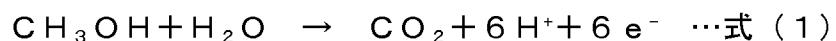
[0062] なお、上記した隣接するアノード導電層18とカソード導電層19との間を電氣的に接続する方法以外にも、例えば、単純に、隣接するアノード導電

層 18 とカソード導電層 19 との間をリード線等を用いて接続してもよいが、上記した方法により接続することで、燃料電池 1 の作製が容易となり、かつ燃料電池全体の体積を小さくすることができる。

[0063] また、上記した絶縁シートは、例えばポリエチレンテレフタレート（PET）などで構成される。また、絶縁シートの導電シートが配置される部分には、燃料や空気などを通過させるための穴が複数形成されている。

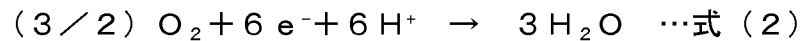
[0064] 次に、上記した燃料電池 1 における作用について、図 1 を参照して説明する。

[0065] 燃料収容部 41 から流路 44 を介して燃料供給部 43 に向かって導出された液体燃料 F は、液体燃料 F のまま、もしくは液体燃料 F と液体燃料 F が気化した気化燃料が混在する状態で、燃料分配層 30 から各単位膜電極接合体 10 のアノード導電層 18 に導かれる。各単位膜電極接合体 10 のアノード導電層 18 に導かれた燃料は、アノードガス拡散層 12 に供給され、アノードガス拡散層 12 で拡散してアノード触媒層 11 に供給される。液体燃料としてメタノール燃料を用いた場合、アノード触媒層 11 で次の式（1）に示すメタノールの内部改質反応が生じる。



[0066] なお、メタノール燃料として純メタノールを使用した場合には、メタノールは、カソード触媒層 14 で生成した水や電解質膜 17 中の水と上記した式（1）の内部改質反応によって改質されるか、または水を必要としない他の反応機構により改質される。

[0067] この反応で生成した電子（ e^- ）は、集電体を經由して外部に導かれ、いわゆる電気として携帯用電子機器等を動作させた後、カソード（空気極）16 に導かれる。また、式（1）の内部改質反応で生成したプロトン（ H^+ ）は、電解質膜 17 を経てカソード（空気極）16 に導かれる。カソード（空気極）16 には酸化剤として空気が供給される。カソード（空気極）16 に到達した電子（ e^- ）とプロトン（ H^+ ）は、カソード触媒層 14 で空気中の酸素と次の式（2）に示す反応を生じ、この発電反応に伴って水が生成する。



[0068] 上記した内部改質反応が円滑に行なわれ、高出力で安定した出力を燃料電池 1 において得ることができる。

[0069] 上記した本発明に係る一実施の形態の燃料電池 1 によれば、複数の単位膜電極接合体 10 を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて均等に配置して膜電極接合体群 5 を構成することができる。これによって、各単位膜電極接合体 10 における温度分布状態、すなわち温度の不均一状態が同じとなり、各単位膜電極接合体 10 において、ほぼ同じ出力特性が得られる。また、各単位膜電極接合体 10 においてほぼ同じ出力特性が得られるので、各単位膜電極接合体 10 を電氣的に直列に接続した場合に、各単位膜電極接合体 10 の出力の不均一によって生じる転極の発生を防止することができる。また、転極の発生を防止することで、アノード触媒層を構成する触媒や、触媒を担持する炭素材料等が電気化学的に生じる異常な反応を防止し、これらの材料の劣化を防止することができる。

[0070] また、上記したように、導電層形成シートを用いて、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を構成し、所定のアノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を電氣的に接続することで、各単位膜電極接合体 10 を電氣的に直列に接続することができる。また、燃料電池 1 の作製が容易となり、かつ燃料電池全体の体積を小さくすることができる。

[0071] (他の単位膜電極接合体の配置構成を備える燃料電池 300)

ここでは、本発明に係る、上記した燃料電池 1 の単位膜電極接合体の配置構成と異なる単位膜電極接合体の配置構成を備える燃料電池 300 について説明する。

[0072] 図 9 A は、本発明に係る燃料電池 300 を空気極側から見たときの平面図である。図 9 B は、本発明に係る燃料電池 300 の側面を示す平面図である。図 10 は、本発明に係る燃料電池 300 の概要を示す部分断面図である。図 11 は、本発明に係る燃料電池 300 を各構成要素に分解して示す分解斜

視図である。図 12 は、膜電極接合体／集電体アセンブリをさらに各構成要素に分解して示す分解斜視図である。図 13 は、6つの膜電極接合体セグメントを有する六角形状の膜電極接合体／集電体アセンブリを示す平面図である。図 14 は、隣接する膜電極接合体セグメント間に配置されたシール部材を示す要部斜視図である。図 15 は、隣接する膜電極接合体セグメント間に配置されたシール部材を示す要部断面図である。

[0073] 燃料電池 300 は、図 9A および図 9B に示すように、外側が円形状の外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 で覆われ、図 10 に示すように、外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の内部に保温板 302、膜電極接合体／集電体アセンブリ（MEA／CCアセンブリ）303 および気液分離膜／拡散層ユニット 308 が順次積層された状態で収納されている。ここで、集電体は導電層として機能し、ここでいう膜電極接合体は、複数の単位膜電極接合体を配置して構成される膜電極接合体群である。

[0074] また、外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の中心には、ボルト穴 330 がそれぞれ形成されている。図 11 に示すように、外装ケース蓋 309 のボルト穴 330 にボルト 311 をねじ込み、外装ケース箱 310 側の図示しないナットにボルト 311 を螺合させることにより外装ケース蓋 309 と外装ケース箱 310 とが締結されて一体化されている。このようなボルト締結構造により、内部に収納された保温板 302、膜電極接合体／集電体アセンブリ（MEA／CCアセンブリ）303 および気液分離膜／拡散層ユニット 308 からなる積層体に所定の面圧を均一に負荷している。

[0075] なお、図示を省略しているが、円形状の外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の主面の周縁部にも同様のボルト穴が複数個所に形成されている。そして、ボルトおよびナットを用いて、外装ケース蓋 309 と外装ケース箱 310 とを所定の押圧力で締結するような構造としている。さらに、図示を省略しているが、円形状の外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の外周端部の全部または一部をカシメ加工することもできる。なお、外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の外周端部のすぐ内側には、図示

しないＯリングが嵌め込まれている。これによって、内部の液体燃料（純メタノール液またはメタノール水溶液）が燃料電池の外部に漏れ出さないように全周が液密にシールされている。このようなＯリングのシール構造を二段構えのＯリングを用いる二重シール構造とすることもできる。

[0076] また、外装ケース蓋３０９および外装ケース箱３１０は、ステンレス鋼（例えばＳＵＳ３０４）のような金属板により形成される。保湿板３０２は、空気極において生成した水の蒸散を防止する役割を果たすと共に、空気極に酸化剤としての空気を均一に導入することにより空気極の触媒層への酸化剤の均一拡散を促す補助拡散層としての役割も果たしている。この保湿板３０２には、好ましくは気孔率が例えば２０～６０％の多孔性フィルムなどが用いられる。

[0077] 図９Ａ、図９Ｂおよび図１１に示すように、外装ケース蓋３０９の主面には、複数の通気孔３３５が開口されている。これらの通気孔３３５は、保湿板３０２を介してMEA／CCアッセンブリ３０３のカソード（空気極）側に酸化剤としての空気を供給するためのものである。

[0078] 一方、図示を省略しているが、外装ケース箱３１０には所定容量の燃料収容室が形成され、この燃料収容室に図示しない燃料供給機構の液注入口が連通している。燃料収容室内には、カーボンペーパーのような繊維質または多孔質の拡散層３０５、３０６、３０７が収容されている。これらの拡散層３０５、３０６、３０７は、液体燃料を膜電極接合体のアノード（燃料極）側に毛管力の作用により輸送するためのパッシブ送液部材であり、任意に配置されるものである。これらの拡散層３０５、３０６、３０７は、アノード（燃料極）に燃料を供給する燃料供給機構の一部として機能する。

[0079] また、これらの拡散層３０５、３０６、３０７のうちの一部を液体燃料含浸層としてもよい。例えば最下層の拡散層３０７を液体燃料含浸層とすることができる。この最下層の拡散層３０７を、例えば多孔質ポリエステル繊維、多孔質オレフィン系樹脂等多硬質繊維、連続気泡多孔質体樹脂などで構成することができる。液体燃料含浸層は、燃料供給源の液体燃料が減少した場

合や燃料電池本体が傾斜して載置され、燃料供給が偏った場合においても、気液分離膜 304 に均等に液体燃料を供給することができる。その結果、膜電極接合体のアノード触媒層に均等に気化された液体燃料を供給することが可能となる。なお、拡散層 307 は、ポリエステル繊維以外にも、アクリル酸系の樹脂などの各種吸水性ポリマーで構成されてもよい。すなわち、拡散層 307 は、スポンジまたは繊維の集合体など液体の浸透性を利用して液体を保持することができる材料で構成されればよい。なお、上記したように、液体燃料含浸部は、燃料電池本体の姿勢に関わらず適量の液体燃料を供給するのに有効である。

[0080] さらに、複数の拡散層 305、306、307 と MEA/CC アッセンブリ 303 のアノード（燃料極）との間には任意に気液分離膜 304 が挿入されている。この気液分離膜 304 は、拡散層 305、306、307 を拡散移動してきた燃料のうち気化成分のみを透過させ、液体燃料の液体成分を遮断する性質を有する。この気液分離膜 304 は、例えば多数の細孔を有する、シリコンシートやポリテトラフルオロエチレン（PTFE）シートなどで構成される。具体的には、例えば、厚さ 0.01 mm のポリテトラフルオロエチレン（PTFE）シートなどで構成される。

[0081] 液体燃料は、図示しない燃料カートリッジから燃料供給機構に注入され、燃料供給機構から燃料収容室に移動し、毛管力により拡散層 305、306、307 を順次透過して、気液分離膜 304 に到達する。そして、気化した燃料が、気液分離膜 304 を透過して膜電極接合体のアノード（燃料極）に到達する構成となっている。

[0082] なお、上記実施形態では膜電極接合体の下部に燃料収容室を有する構造としたが、本発明はこれのみに限定されず、燃料収容部から膜電極接合体への燃料の供給は、流路を配して接続された構造としてもよい。また、燃料電池本体の構成としてパッシブ型の燃料電池を例に挙げて説明したが、アクティブ型の燃料電池、さらには燃料供給など一部にポンプ等を用いたセミパッシブと称される型の燃料電池に対しても本発明を適用することができる。セミ

パッシブ型の燃料電池は、燃料収容室から膜電極接合体に供給された燃料は、発電反応に使用され、その後に循環して燃料収容部に戻されることはない。セミパッシブ型の燃料電池は、燃料を循環しないことから、従来のアクティブ方式とは異なるものであり、装置の小型化等を損なうものではない。また、燃料電池は、燃料の供給にポンプを使用しており、従来の内部気化型のような純パッシブ方式とも異なる。このため、燃料電池は、上述したようにセミパッシブ方式と呼称される。なお、このセミパッシブ型の燃料電池では、燃料収容部から膜電極接合体への燃料供給が行われる構成であればポンプに代えて燃料遮断バルブを配置する構成とすることも可能である。この場合には、燃料遮断バルブは、流路による液体燃料の供給を制御するために設けられるものである。

[0083] 次に、外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の内部に収納される膜電極接合体／集電体アッセンブリ（MEA／CCアッセンブリ）303 および気液分離膜／拡散層ユニット 308 について詳しく説明する。

[0084] 図 11 に示すように、外装ケース蓋 309 の側から順に保温板 302、MEA／CCアッセンブリ 303、気液分離膜 304、および 3 つの拡散層 305、306、307 が外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 内に積層された状態で収納されている。図 9A および図 9B に示すように、正負両極の端子 320 が外装ケース蓋 309 および外装ケース箱 310 の外周側面から外方に突出している。これら一対の端子 320 は、図 11 と図 12 に示すように、MEA／CCアッセンブリ 303 の正極集電体 303a および負極集電体 303b の外周端部から外側に向けて延び出したものである。なお、負極集電体 303b は、前述したアノード導電層に相当し、正極集電体 303a は、前述したカソード導電層に相当するものである。

[0085] 正極集電体 303a、負極集電体 303b および膜電極接合体セグメント（MEAセグメント）303m は、本実施の形態では 6 つの単電極（単位セル）を有する多極構造の発電要素である。ここで、MEAセグメント 303m は、前述した単位膜電極接合体に相当するものである。これらの単位セルは、実質

的に同一平面上に並んで配置され、図示しない配線により直列に電気接続されている。すなわち、図 1 2 に示すように、正極集電体 3 0 3 a、負極集電体 3 0 3 b、MEA セグメント 3 0 3 m および シール部材 3 0 3 s の各々は、ボルト穴 3 3 0 を中心として扇形状に均等に 6 分割されている。

[0086] 図 1 3 に示すように、6 つの MEA セグメント 3 0 3 m は、外周が絶縁材で縁取りされた状態で互いに所定の間隔をあけて離間して配置され、全体として円形状の形状となっている。なお、本実施の形態の MEA セグメント 3 0 3 m 等では、円形を 6 分割して 6 つの小単位としているが、本発明はこれのみに限られず、円形を 2 分割、3 分割、4 分割、5 分割、7 分割、8 分割、9 分割、10 分割、11 分割、12 分割としてもよい。また、本実施の形態では、全体の形状を円形としているが、三角形、四角形、五角形、七角形、八角形、九角形、十角形、十一角形、十二角形のように多角形としてもよい。

[0087] 図 1 2 に示すように、シール部材 3 0 3 s を除いて、正極集電体 3 0 3 a、負極集電体 3 0 3 b および MEA セグメント 3 0 3 m には、複数の通流孔が開口し、気化燃料または酸化剤としての空気が膜電極接合体の内部で自由に流通できるようにしている。

[0088] 燃料供給機構から注入された燃料は、MEA/CC アッセンブリ 3 0 3 のアノード（燃料極）側に供給される。MEA/CC アッセンブリ 3 0 3 内において、燃料は、アノードガス拡散層にて拡散してアノード触媒層に供給される。液体燃料としてメタノール燃料を用いた場合、アノード触媒層でメタノールの内部改質反応が生じる。なお、メタノール燃料として純メタノールを使用した場合には、カソード触媒層で生成した水や電解質膜中の水をメタノールと反応させて内部改質反応を生起させる。あるいは、水を必要としない他の反応機構により内部改質反応を生じさせる。

[0089] この反応で生成した電子（ e^- ）は集電体を經由して外部に導かれ、いわゆる電気として携帯用電子機器等を動作させた後、空気極に導かれる。また、内部改質反応で生成したプロトン（ H^+ ）は電解質膜を経て空気極に導かれる。空気極には酸化剤として空気が供給される。空気極に到達した電子（ e^- ）

とプロトン (H^+) は、カソード触媒層で空気中の酸素と反応し、この反応に伴って水が生成する。

[0090] 液体燃料としてメタノール燃料を用いた場合、アノード触媒層で前述した式 (1) に示すメタノールの内部改質反応が生じる。なお、メタノール燃料として純メタノールを使用した場合には、カソード触媒層で生成した水や電解質膜中の水をメタノールと反応させて前述した式 (1) の内部改質反応を生起させる。あるいは、水を必要としない他の反応機構により内部改質反応を生じさせる。

[0091] この反応で生成した電子 (e^-) は集電体を經由して外部に導かれ、いわゆる電気として携帯用電子機器等を動作させた後、カソード (空気極) に導かれる。また、式 (1) の内部改質反応で生成したプロトン (H^+) は、電解質膜を経てカソード (空気極) に導かれる。カソード (空気極) には、酸化剤として空気が供給される。カソード (空気極) に到達した電子 (e^-) とプロトン (H^+) は、カソード触媒層で空気中の酸素と前述した式 (2) に従って反応し、この反応に伴って水が生成する。

[0092] MEA/CCアッセンブリ 303 の膜電極接合体 (MEA) は、カソード触媒層およびカソードガス拡散層からなるカソード (空気極) と、アノード触媒層およびアノードガス拡散層からなるアノード (燃料極) と、カソード触媒層とアノード触媒層との間に配置されるプロトン伝導性の電解質膜とを備えている。カソード触媒層およびアノード触媒層に含有される触媒は、前述した燃料電池 1 を構成するアノード触媒層 11 およびカソード触媒層 14 に含まれる触媒と同様である。

[0093] 電解質膜は、アノード触媒層において発生したプロトンのカソード触媒層に輸送するためのものであり、電子伝導性を持たず、プロトンを輸送することが可能な材料により構成されている。この電解質膜は、前述した燃料電池 1 を構成する電解質膜 17 と同様の材料で構成される。

[0094] カソード触媒層は、カソードガス拡散層上に積層され、かつアノード触媒層は、アノードガス拡散層上に積層されている。カソードガス拡散層は、カ

ソード触媒層に酸化剤を均一に供給する役割を担うものであるが、カソード触媒層の集電体も兼ねている。一方、アノードガス拡散層は、アノード触媒層に燃料を均一に供給する役割を果たすと同時に、アノード触媒層の集電体も兼ねている。

[0095] 正極集電体 303a の内側の面は、カソードガス拡散層に接し、負極集電体 303b の内側の面は、アノードガス拡散層に接している。これら負極集電体 303b および正極集電体 303a は、前述した燃料電池 1 を構成するアノード導電層 18 およびカソード導電層 19 と同様の材料で構成される。

[0096] 図 14 および図 15 に示すように、シール部材 303s は、絶縁部材として機能し、屈曲部 303t を有し、隣り合う MEA セグメント 303m の間を互いに絶縁シールしている。また、シール部材 303s は、各 MEA セグメント 303m のアノード（燃料極）側とカソード（空気極）側とを仕切って未反応の燃料が空気極側に漏れ出すクロスオーバーの発生を防止するものでもある。シール部材 303s は、燃料に対する透過量が $9 \times 10^{-7} \text{ g/m}^3 \cdot 24 \text{ h} \cdot \text{atm}$ 以下で、体積固有抵抗が $10^{11} \sim 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ のゴム系材料からなることが望ましい。透過量が多いと発電に寄与する燃料の量が少なくなり燃料電池性能を低下させ、シート抵抗が低いと絶縁破壊して短絡を生じやすくなるからである。ゴム系材料には、EPDM（エチレンプロピレンゴム）、フッ素系ゴム、シリコン系ゴムなどを用いることができる。

[0097] 液体燃料としては、液体のメタノール等のメタノール燃料、またはメタノール水溶液を用いることができる。ここで、液体燃料の気化成分とは、液体燃料として液体のメタノールを使用した場合、気化したメタノールを意味し、液体燃料としてメタノール水溶液を使用した場合にはメタノールの気化成分と水の気化成分からなる混合ガスを意味するものとする。なお、液体燃料としては、必ずしもメタノール燃料に限られるものではなく、例えばエタノール水溶液や純エタノール等のエタノール燃料、プロパノール水溶液や純プロパノール等のプロパノール燃料、グリコール水溶液や純グリコール等のグリコール燃料、ジメチルエーテル、ギ酸、もしくはその他の液体燃料であつ

てもよい。いずれにしても、燃料電池に応じた液体燃料が使用される。特に、燃料濃度が80モル%を超えるメタノール水溶液または純メタノール液であることが好適である。

[0098] 上記の実施の形態によれば、分割した小単位のMEAセグメントを円形状または多角形状に平面配置し、これらを直列に接続した多電極直列回路とするため、空間利用率に非常に優れた構造になる。また、携帯電子機器の駆動に必要な電圧を十分に確保することができる。これにより燃料電池の発電部における体積エネルギー密度を向上させることが可能となる。そのため、携帯電話、携帯オーディオ、携帯ゲーム機、ノートパソコンなどのコードレス携帯機器を動作させるために十分に高い出力特性を得ることができ、小型で高パワーのモバイル機器用電源となる。また、本実施の形態において、MEAセグメントを互換性のある部品にすると、部品の種類が減少し、部品をモジュール化して組み立てやすくなる。そのため、組立作業時のミスが大幅に低減されるとともに、製造コストを削減することができる。

[0099] 次に、本発明に係る燃料電池が優れた出力特性を有することを実施例1～実施例2、比較例1に基づいて説明する。

[0100] (実施例1)

実施例1で使用した燃料電池は、図1および図2に示した燃料電池1と同一の構成を備えるものであるので、図1および図2を参照して説明する。また、アノード導電層18およびカソード導電層19は、前述した導電層形成シート100を用いて形成したので、これらの導電層の形成については、図6Aおよび図6Bを参照して説明する。

[0101] まず、膜電極接合体群5の作製方法について説明する。

[0102] アノード用触媒粒子(Pt:Ru=1:1)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、アノ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てペーストを調製した。得られたペーストをアノードガス拡散層12としての多孔質カーボンペーパー(39.5m

m×21mmの長方形)に塗布することにより、厚さが100 μ mのアノード触媒層11を得た。

[0103] 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、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てペーストを調製した。得られたペーストをカソードガス拡散層15としての多孔質カーボンペーパーに塗布することにより、厚さが100 μ mのカソード触媒層14を得た。なお、アノードガス拡散層12と、カソードガス拡散層15とは、同形同大であり、これらのガス拡散層に塗布されたアノード触媒層11およびカソード触媒層14も同形同大である。

[0104] 上記したように作製したアノード触媒層11とカソード触媒層14を4枚用意し、アノード触媒層11とカソード触媒層14を対向させ、その間に電解質膜17を介在させ、同一の触媒層が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて田字状に均等に配置した。電解質膜17として、厚さが30 μ mで、含水率が10～20重量%のパーフルオロカーボンスルホン酸膜(商品名:nafion膜、デュポン社製)を使用した。そして、アノード触媒層11とカソード触媒層14とが対向するように位置を合わせた状態でホットプレスを施すことにより、膜電極接合体群5を得た。

[0105] 続いて、図6Aに示すように、1枚の絶縁シート101上に平面的に、各単位膜電極接合体10のアノード(燃料極)13およびカソード(空気極)16のそれぞれに対応するように導電シート(((1)―「A」)～((4)―「C」))を配置した。導電シートとして、複数の開孔を有する金箔を使用し、絶縁シートとしてポリエチレンテレフタレート(PET)を使用した。また、導電シートが配置された部分の絶縁シートには、導電シート1枚につき32個ずつ2.5mm×2.5mmの矩形の穴を形成した。この導電層形成シート100を用いて、前述した方法で、膜電極接合体群5を構成す

る各单位膜電極接合体 10 に、アノード導電層 18 およびカソード導電層 19 を形成した。ここで、導電シート ((1) - 「C」) と導電シート ((2) - 「A」)、導電シート ((2) - 「C」) と導電シート ((3) - 「A」)、導電シート ((3) - 「C」) と導電シート ((4) - 「A」) を電氣的に接続し、各单位膜電極接合体 10 を電氣的に直列に接続した。なお、電解質膜 17 とアノード導電層 18 との間、電解質膜 17 とカソード導電層 19 との間には、それぞれゴム製のリング 20 を挟持してシールを施した。

[0106] また、保湿層 50 として、厚さが $500\ \mu\text{m}$ で、透気度が $2\ \text{秒}/100\ \text{cm}^3$ (JIS P-8117 に規定の測定方法による) で、透湿度が $4000\ \text{g}/(\text{m}^2 \cdot 24\ \text{h})$ (JIS L-1099 A-1 に規定の測定方法による) のポリエチレン製多孔質フィルムを用いた。

[0107] この保湿層 50 の上に、空気取り入れのための空気導入口 61 ($2.5\ \text{mm} \times 2.5\ \text{mm}$ の矩形、口数 128 個) が形成された厚さが $1\ \text{mm}$ のステンレス板 (SUS304) を配置して表面カバー 60 とした。

[0108] そして、温度が 25°C 、相対湿度が 50% の環境の下、上記した燃料電池 1 に、純度 99.9 重量% の純メタノールを供給した。外部負荷としての定電圧電源を接続して、燃料電池 1 に流れる電流が「0」から次第に増加するように制御した。電流の制御は、単位膜電極接合体 10 の面積 $1\ \text{cm}^2$ あたりに流れる電流の値 (電流密度) が、1 分間につき $10\ \text{mA}$ ずつ増加するように行った。例えば、電流を流し始めてから 15 分後には、単位膜電極接合体 10 の面積 $1\ \text{cm}^2$ あたり、 $150\ \text{mA}$ の電流が流れるように電流を制御した。そして、この電流の制御に伴う各单位膜電極接合体 10 で発生する電圧を計測した。計測した電圧の平均値が $0.2\ \text{V}$ (すなわち、膜電極接合体群 5 の全体で発生する電圧が $0.8\ \text{V}$) に達したところで、電流の増加を終了させた。

[0109] 実施例 1 における電流の制御に伴う各单位膜電極接合体 10 の電圧の計測結果を図 16 に示す。

[0110] (実施例 2)

実施例 2 で使用した燃料電池では、図 3 に示した膜電極接合体群 5 と同一の構成を備える膜電極接合体群を使用した以外は、実施例 1 で使用した燃料電池 1 の構成と同じとした。

[0111] 使用した膜電極接合体群 5 は、図 3 に示すように、1 つの単位膜電極接合体 10 の形状を三角形として、平面的かつ任意の一点を中心として均等に配置し、膜電極接合体群 5 を矩形に形成した。また、膜電極接合体群 5 を、2 種類の三角形の形状を有する単位膜電極接合体 10 で構成し、面積最小の単位膜電極接合体 10 における表面の面積が、面積最大の単位膜電極接合体 10 における表面の面積の 98.8 % となるように各単位膜電極接合体 10 を構成した。また、膜電極接合体群 5 を構成する単位膜電極接合体全体の表面の面積は、3219.5 mm²とした。

[0112] 上記した以外の構成や設定値については、実施例 1 で使用された燃料電池 1 と同様である。また、電流の制御、電流の制御に伴う各単位膜電極接合体 10 の電圧の計測方法および計測条件等は、実施例 1 におけるものと同じである。

[0113] 実施例 2 における電流の制御に伴う各単位膜電極接合体 10 の電圧の計測結果を図 16 に示す。

[0114] (比較例 1)

図 17 は、比較例 1 で使用した燃料電池 200 の構成を示す断面図である。図 18 は、比較例 1 で使用した燃料電池 200 における膜電極接合体群 210 を図 17 に示した燃料電池 200 の上方からみたときの平面図である。なお、本発明に係る一実施の形態の燃料電池 1 の構成と同一の部分には同一の符号を付して、重複する説明を省略または簡略する。

[0115] 比較例 1 で使用した燃料電池 200 では、図 17 および図 18 に示すように、単位膜電極接合体 220 を横一列に配置して膜電極接合体群 210 を構成した。比較例 1 で使用した燃料電池 200 では、このように膜電極接合体群 210 を構成した以外は、実施例 1 で使用した燃料電池 1 の構成と同じと

した。

[0116] 図 1 8 に示すように、長方形の単位膜電極接合体 2 2 0 を横一列に配置し、膜電極接合体群 2 1 0 を矩形に形成した。また、膜電極接合体群 2 1 0 を構成する単位膜電極接合体全体の表面の面積は、 3200mm^2 とした。

[0117] 上記した以外の構成や設定値については、実施例 1 で使用された燃料電池 1 と同様である。また、電流の制御、電流の制御に伴う各単位膜電極接合体 2 2 0 の電圧の計測方法および計測条件等は、実施例 1 におけるものと同じである。

[0118] 比較例 1 における電流の制御に伴う各単位膜電極接合体 2 2 0 の電圧の計測結果を図 1 6 に示す。

[0119] (実施例 1 ～実施例 2、比較例 1 のまとめ)

図 1 6 に示すように、実施例 1 および実施例 2 で使用した燃料電池では、4 つの単位膜電極接合体の電圧は、ほぼ等しかった。なお、実施例 1 および実施例 2 において、4 つの単位膜電極接合体の電圧はほぼ等しかったので、図 1 6 では、実施例 1 および実施例 2 における計測結果を 1 本のラインで示している。

[0120] 一方、比較例 1 で使用した燃料電池では、外側に配置、すなわち図 1 8 に示す両端に配置された 2 つの単位膜電極接合体（以下、外側配置単位膜電極接合体という）の電圧は、所定の電流値を超えると急激に低下したが、内側に配置、すなわち外側配置単位膜電極接合体の間に配置された 2 つの単位膜電極接合体（以下、内側配置単位膜電極接合体という）の電圧は、急激に低下することなく、外側配置単位膜電極接合体における電圧よりも高い状態を維持することがわかった。なお、2 つの外側配置単位膜電極接合体における電圧はほぼ等しく、2 つの内側配置単位膜電極接合体における電圧はほぼ等しかったので、図 1 6 では、それぞれの計測結果を 1 本のラインで示している。このように、比較例 1 で使用した燃料電池では、単位膜電極接合体を配置する位置によって、電圧特性が異なることがわかった。また、比較例 1 における計測結果から、外側配置単位膜電極接合体では、発電を行なっている

間に転極を生じたものと考えられる。

[0121] 上記した結果から、本発明に係る膜電極接合体群の構成を備える実施例 1 および実施例 2 で使用した燃料電池では、各单位膜電極接合体の電圧が常にほぼ等しいため、大きな電流を流しても転極を生じることなく、膜電極接合体群全体として大きな出力が得られることがわかった。

[0122] 以上、種々の実施の形態を挙げて説明したが、本発明は上記各実施の形態のみに限定されるものではなく、実施段階では、本発明の技術的思想を逸脱しない範囲で構成要素を変形して具体化することができる。さらに、上記実施形態に示される複数の構成要素を適宜に組み合わせたり、また実施形態に示される全構成要素から幾つかの構成要素を削除する等、種々の変形が可能である。本発明の実施形態は本発明の技術的思想の範囲内で拡張もしくは変更することができ、この拡張、変更した実施形態も本発明の技術的範囲に含まれるものである

[0123] 例えば、膜電極接合体へ供給される液体燃料の蒸気においても、全て液体燃料の蒸気を供給してもよいが、一部が液体状態で供給される場合であっても本発明を適用することができる。また、このセミパッシブ型の燃料電池では、燃料収容部から膜電極接合体への燃料供給が行われる構成であればポンプに代えて燃料遮断バルブを配置する構成とすることも可能である。この場合には、燃料遮断バルブは、流路による液体燃料の供給を制御するために設けられるものである。

[0124] また、燃料電池の具体的な構成や燃料の供給状態等も特に限定されるものではなく、例えば、液体燃料をアノード導電層の下に直接流通させる方式、燃料電池の外部で液体燃料を蒸発させ、気化した気体燃料をアノード導電層の下に流通させる外部気化型、燃料収容部に液体燃料を収容し、液体燃料を電池内部で気化させてアノード触媒層に供給する内部気化型等、種々形態に本発明を適用することができる。

産業上の利用可能性

[0125] 本発明の態様に係る燃料電池によれば、複数の単位膜電極接合体を、同一

の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて均等に配置して膜電極接合体群を構成することができる。これによって、各単位膜電極接合体における温度分布状態、すなわち温度の不均一状態が同じとなり、各単位膜電極接合体において、ほぼ同じ出力特性が得られる燃料電池を実現することができる。また、各単位膜電極接合体においてほぼ同じ出力特性が得られるので、各単位膜電極接合体を電氣的に直列に接続した場合に、各単位膜電極接合体の出力の不均一によって生じる転極の発生を防止することができる燃料電池を実現することができる。また、本発明の態様に係る燃料電池は、例えば、液体燃料直接供給型の燃料電池等に有効に利用される。

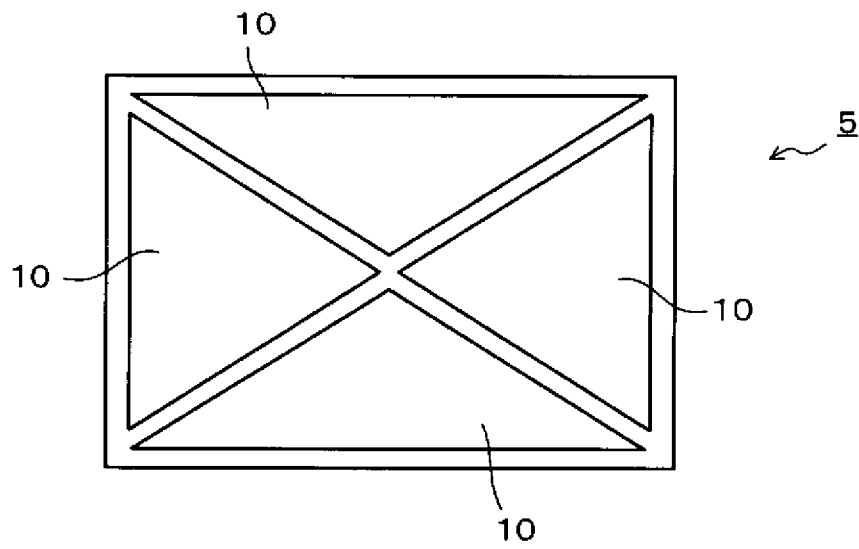
請求の範囲

- [1] 燃料極、空気極、および前記燃料極と前記空気極とに挟持された電解質膜を有する複数の単位膜電極接合体を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて配置してなる膜電極接合体群と、
- 前記膜電極接合体群の前記燃料極側に配置され、前記燃料極に燃料を供給する燃料供給機構と
- を具備することを特徴とする燃料電池。
- [2] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記各単位膜電極接合体の表面の面積が等しいことを特徴とする燃料電池。
- [3] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記複数の単位膜電極接合体のうち、表面の面積が最小の単位膜電極接合体における表面の面積が、表面の面積が最大の単位膜電極接合体の表面の面積の 90% 以上であることを特徴とする燃料電池。
- [4] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記膜電極接合体群は、前記単位膜電極接合体を、同一の平面上に、円形状、四角形状または多角形状に配置して構成されていることを特徴とする燃料電池。
- [5] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記各単位膜電極接合体の燃料極および空気極のそれぞれに対応する導電層をさらに具備し、
- 前記導電層が、
- 1つの絶縁シート上に平面的に、前記各単位膜電極接合体の燃料極および空気極のそれぞれに対応するように導電シートを所定の構成で配置し、かつ各単位膜電極接合体が電氣的に直列に接続されるように、燃料極側の導電層と空気極側の導電層とを電氣的に接続して構成されたシートを、前記膜電極接合体群を介在させた状態で、前記導電シートの境界に沿って折り曲げて形

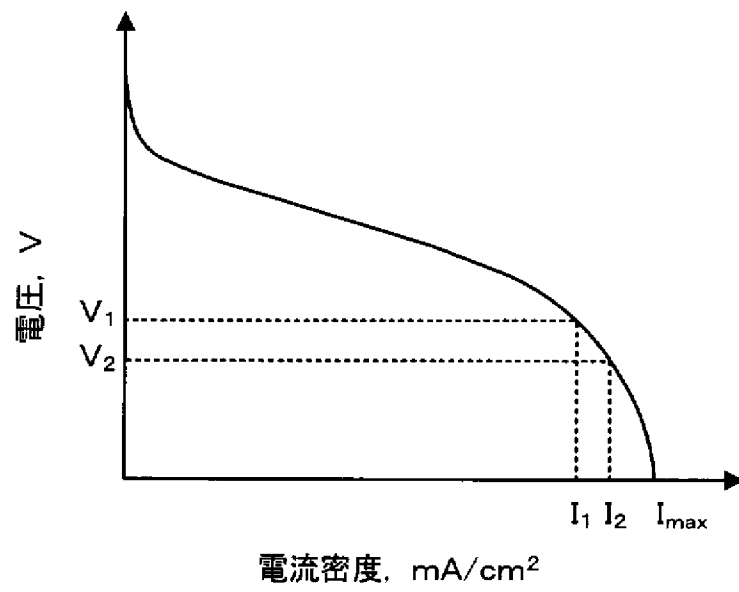
成されていることを特徴とする燃料電池。

- [6] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記各単位膜電極接合体の燃料極および空気極のそれぞれに対応する導電層をさらに具備し、
- 前記導電層が、
- 1つの絶縁シート上に平面的に、前記各単位膜電極接合体の燃料極のそれぞれに対応するように導電シートを配置してなる燃料極側シートと、1つの絶縁シート上に平面的に、前記各単位膜電極接合体の空気極のそれぞれに対応するように導電シートを配置してなる空気極側シートとを、前記膜電極接合体群を介して対向させ、各単位膜電極接合体が電氣的に直列に接続されるように、燃料極側の導電層と空気極側の導電層とを電氣的に接続して形成されていることを特徴とする燃料電池。
- [7] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 前記各単位膜電極接合体の燃料極および空気極のそれぞれに対応して設けられた導電層と、
- 前記導電層を備えた前記膜電極接合体群を覆う外装ケースと、
- 前記外装ケース、前記導電層を備えた前記膜電極接合体群からなる積層体の中心を貫通する締結ボルトと
- をさらに具備することを特徴とする燃料電池。
- [8] 請求項 1 記載の燃料電池において、
- 隣接する前記各単位膜電極接合体の相互間を電氣的に絶縁する絶縁部材をさらに具備することを特徴とする燃料電池。

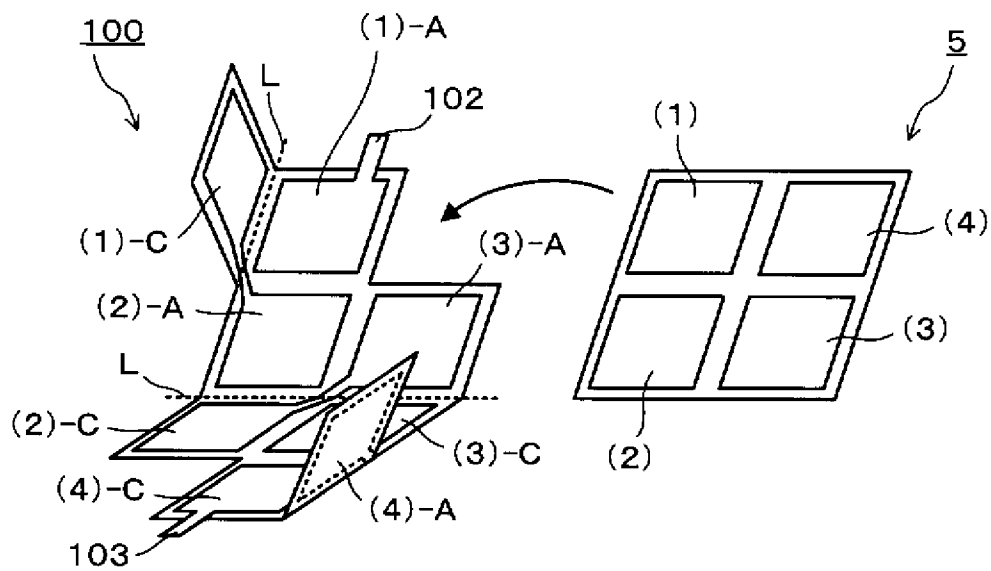
[図3]



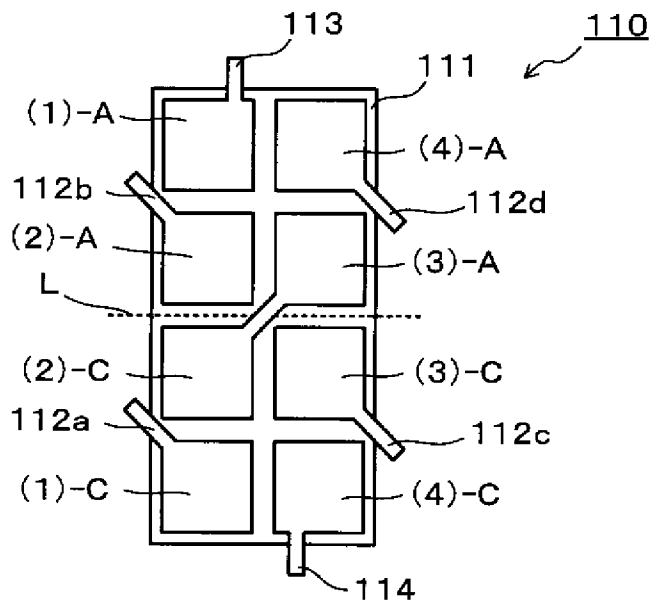
[図4]



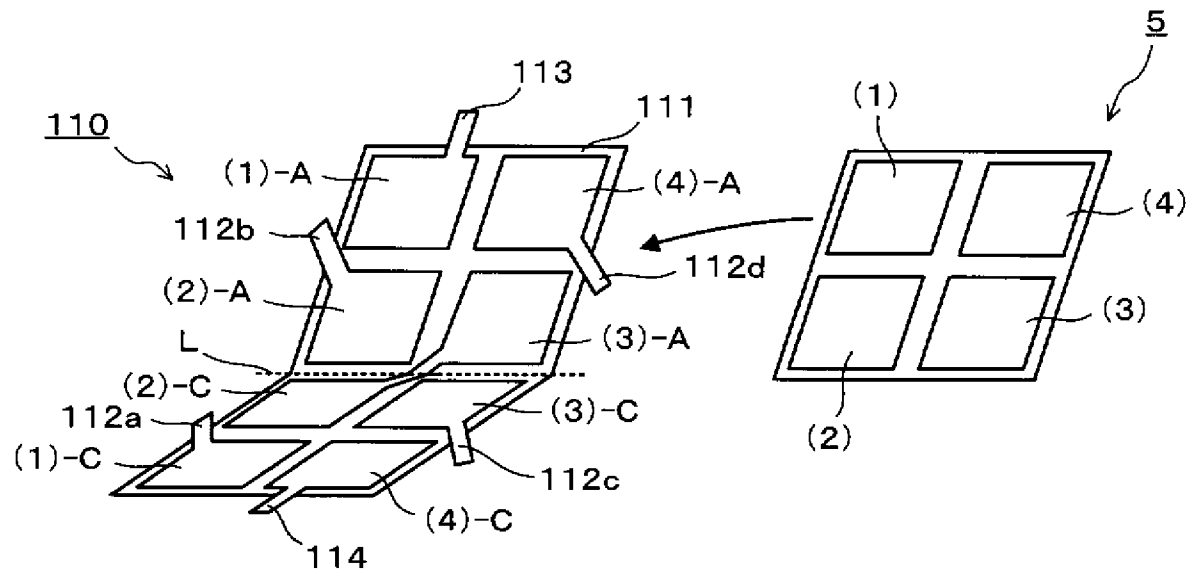
[図6B]



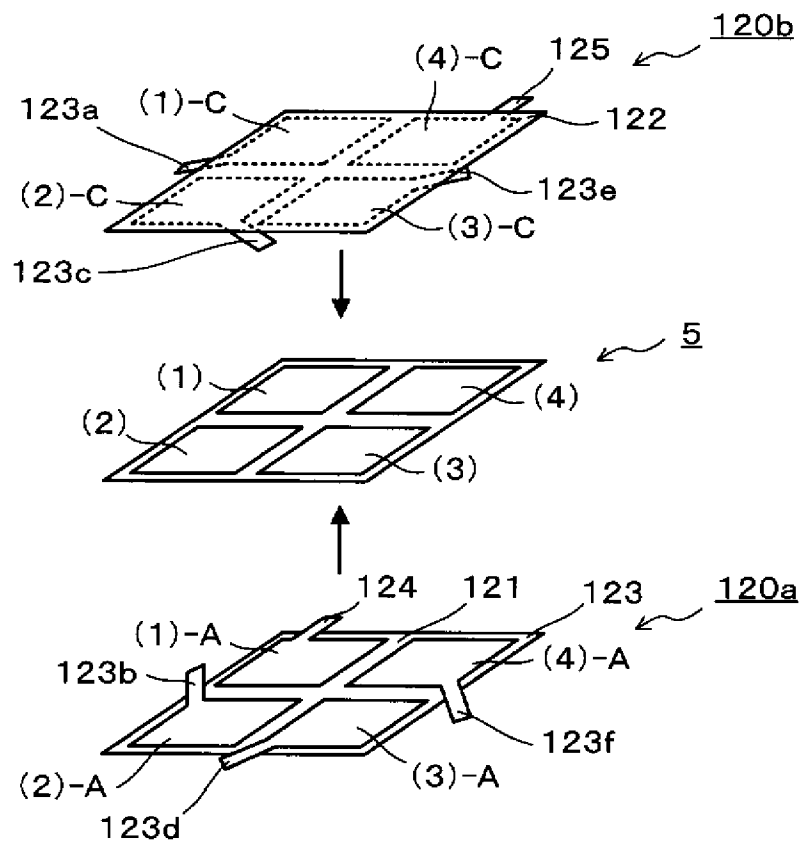
[図7A]



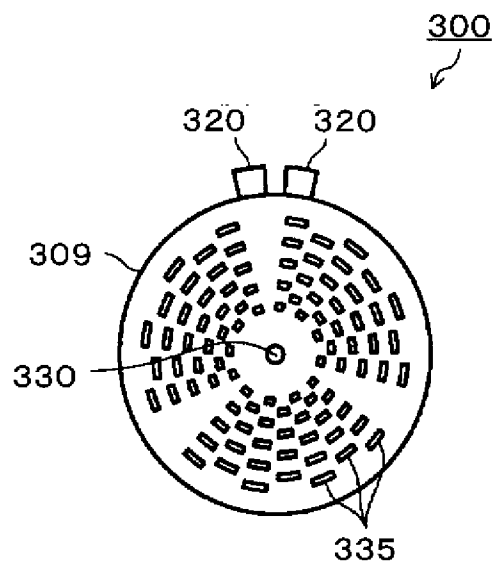
[図7B]



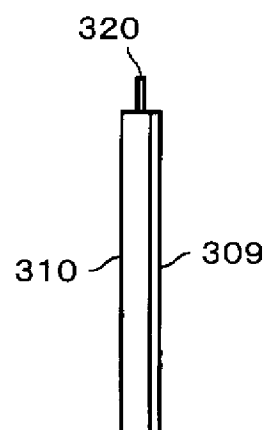
[図8]



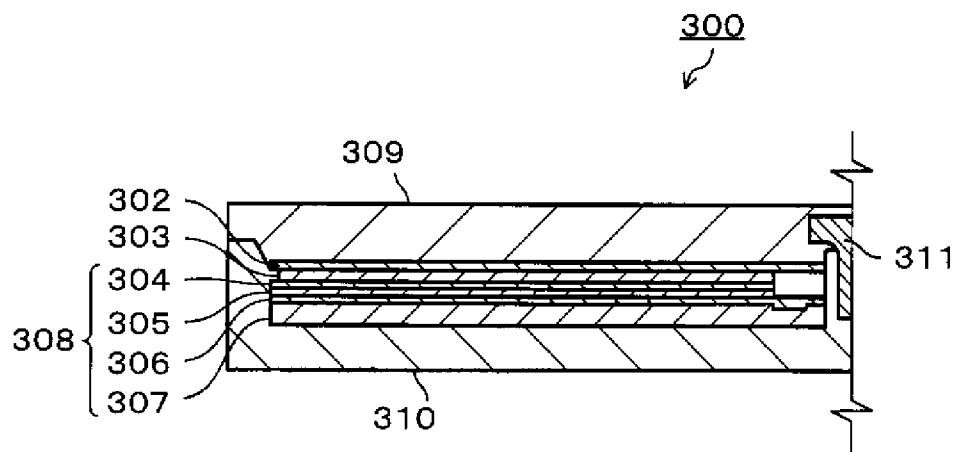
[図9A]



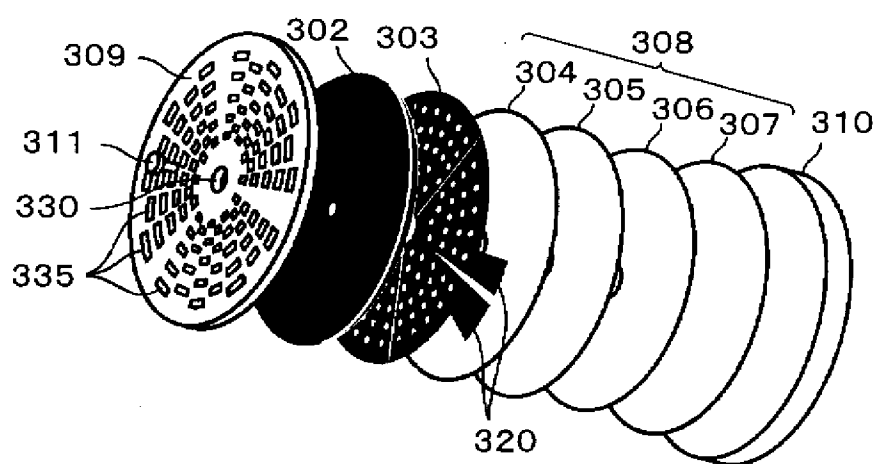
[図9B]



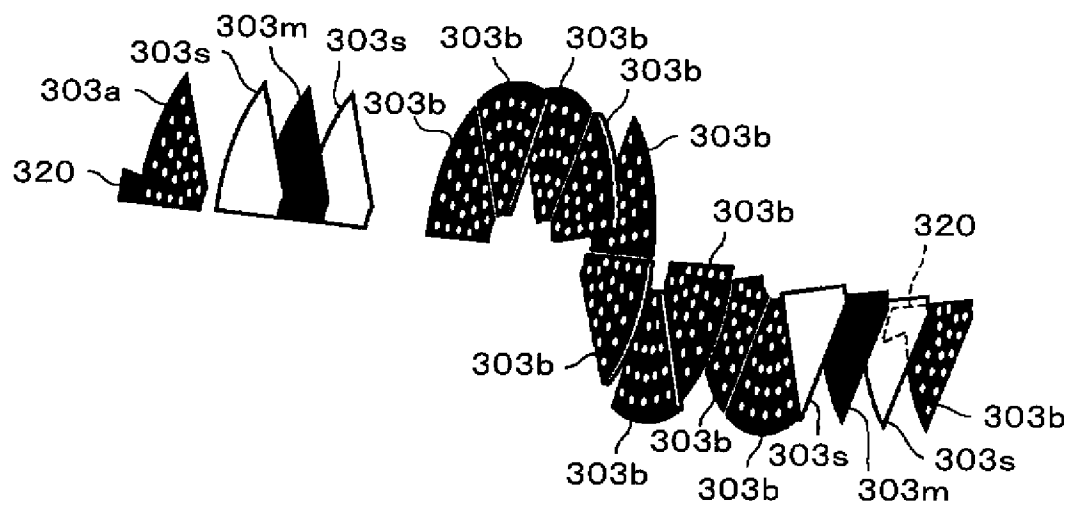
[図10]



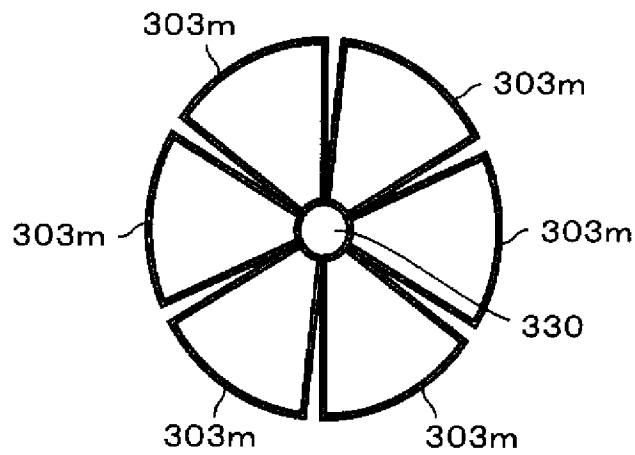
[図11]



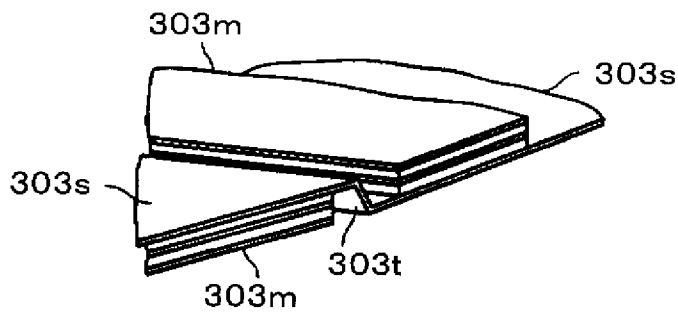
[図12]



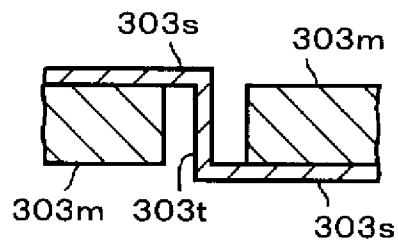
[図13]



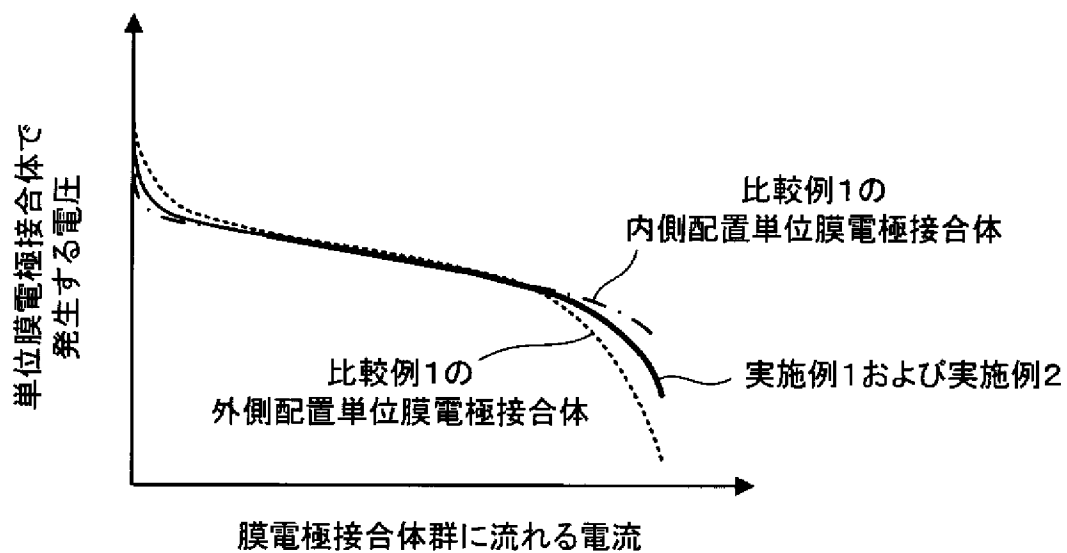
[図14]

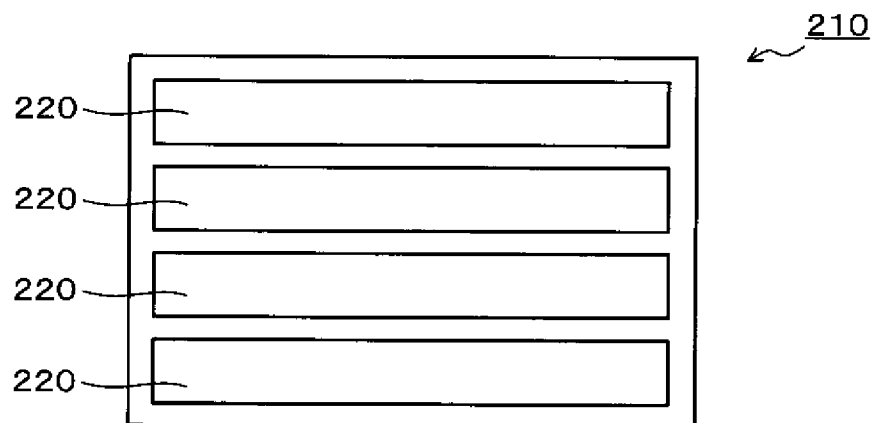


[図15]



[図16]





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/002635

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

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

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M8/02, H01M8/10

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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	JP 2005-135774 A (Kyocera Corp.), 26 May, 2005 (26.05.05), Par. Nos. [0044] to [0079]; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-2
X	JP 2005-174770 A (NEC Corp.), 30 June, 2005 (30.06.05), Par. Nos. [0022] to [0043]; Figs. 1 to 9 (Family: none)	1-2
X	JP 2005-93274 A (Mitsubishi Materials Corp.), 07 April, 2005 (07.04.05), Par. Nos. [0010] to [0023]; Figs. 1 to 4 (Family: none)	1-2

☒ 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
18 December, 2008 (18.12.08)

Date of mailing of the international search report
06 January, 2009 (06.01.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/002635

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-207505 A (Honda Motor Co., Ltd.), 16 August, 2007 (16.08.07), Par. Nos. [0023] to [0060]; Figs. 1 to 6 & US 2007/0178362 A1 & WO 2007/089009 A1	1-2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/002635

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

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

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

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

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

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

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

In order that a group of inventions of claims may comply with the requirement of unity of invention, the existence of special technical features is needed for making the group of inventions so relative as to form a single general inventive concept. It is considered that the group of inventions of claims 1 - 8 are correlated only in the matter of claim 1 of a fuel cell "comprising a film electrode joint group made by arranging the unit film electrode joints having a fuel pole, an air electrode and an electrolyte film clamped between said fuel pole and said air pole, such that the same poles are on the same side and at a predetermined spacing planarly and in the circumferential direction on an (continued to extra sheet)

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

4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Claims 1 - 2.

Remark on Protest
the

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/002635

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

arbitrary point, and a fuel feed mechanism arranged on said fuel pole side of said film electrode joint group for feeding the fuel to said fuel pole."

However, this matter cannot be the special technical feature, since it was disclosed in a prior art document such as JP 2005-135774 A (Kyocera Corp.), 26 May, 2005 (26.05.05), or JP 2005-174770 A (NEC Corp.), 30 June, 2005 (30.06.05). Thus, the group of inventions of claims 1 - 8 does not have any special technical feature that is so linked as to form a single general inventive concept.

Hence, it is apparent that the inventions of claims 1 - 8 do not comply with the requirement of unity of invention.

Next, the investigation is made on the number of inventions in the claims of this international patent application, that is, the number of groups of inventions which are so linked as to form a single general inventive concept. Of the inventions of claims 1 - 8, what is described without referring to the matter described in other claims is only the invention described in claim 1. The invention of claims 2 - 8 is described with reference to only the description of claim 1. Excepting the aforementioned matters, however, there cannot be found any matter that correlates a plurality of inventions.

Hence, it is considered that the claims of this international patent application describe seven inventions divided into [1 - 2], [3], [4], [5], [6], [7] and [8].

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, H01M8/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01M8/02, H01M8/10

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 0 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 8 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 請求の範囲の番号
X	JP 2005-135774 A（京セラ株式会社）2005.05.26, 【0044】～【0079】, 【図1】～【図3】（ファミリーなし）	1-2
X	JP 2005-174770 A（日本電気株式会社）2005.06.30, 【0022】～【0043】, 【図1】～【図9】（ファミリーなし）	1-2
X	JP 2005-93274 A（三菱マテリアル株式会社）2005.04.07, 【0010】～【0023】, 【図1】～【図4】（ファミリーなし）	1-2

☒ 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

1 8 . 1 2 . 2 0 0 8

国際調査報告の発送日

0 6 . 0 1 . 2 0 0 9

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）

小川 進

4 X

8 4 1 4

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2007-207505 A (本田技研工業株式会社) 2007. 08. 16, 【0023】 ～【0060】, 【図 1】～【図 6】 & US 2007/0178362 A1 & W0 2007/089009 A1	1-2

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

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

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

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

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1～8に記載されている一群の発明は、請求の範囲1に記載されている、「燃料極と、空気極および前記燃料極と前記空気極とに挟持された電解質膜を有する複数の単位膜電極接合体を、同一の極が同一側になるように、平面的かつ任意の一点を中心とした周方向に所定の間隔をあけて配置してなる膜電極接合体群と、前記膜電極接合体群の前記燃料極側に配置され、前記燃料極に燃料を供給する燃料供給機構とを具備する」燃料電池という事項のみ連関していると認める。

（特別ページに続く）

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

請求の範囲 1－2

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

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

しかしながら、この事項は、先行技術文献、例えば、JP 2005-135774 A(京セラ株式会社)2005.05.26、JP 2005-174770 A(日本電気株式会社)2005.06.30 等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。そうすると、請求の範囲1～8に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存しないこととなる。

よって、請求の範囲1～8に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討するに、請求の範囲1～8の発明のうち、他の請求の範囲に記載されている事項を引用することなく記載されているのは、請求の範囲1に記載されている発明だけであり、請求の範囲2～8の発明は請求の範囲1の記載のみを引用して記載されているところ、上記の事項以外に複数の発明を連関させている事項は見出し得ない。

そのため、この国際出願の請求の範囲には、「1～2」と「3」と「4」と「5」と「6」と「7」と「8」に区分される7個の発明が記載されていることとなると認める