

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006年7月20日 (20.07.2006)

PCT

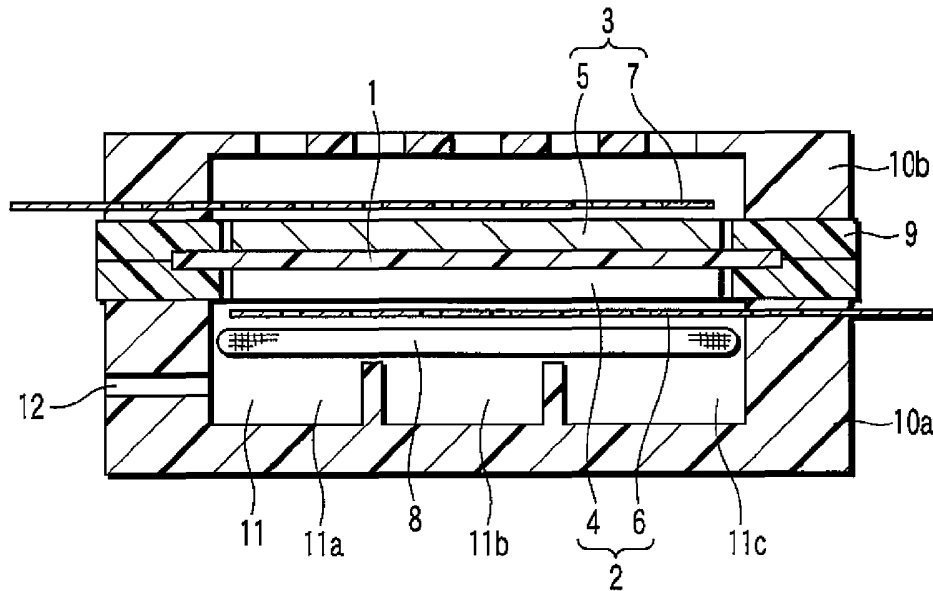
(10) 国際公開番号
WO 2006/075595 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/04 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
H01M 8/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/300182
- (22) 国際出願日: 2006年1月11日 (11.01.2006)
- (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2005-004176 2005年1月11日 (11.01.2005) JP
特願2005-004177 2005年1月11日 (11.01.2005) 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): 下山田 啓 (SHI-MOYAMADA, Takashi) [JP/JP]. 根岸 信保 (NEGISHI, Nobuyasu) [JP/JP]. 菅 博史 (KAN, Hirofumi) [JP/JP].
- (74) 代理人: 鈴江 武彦, 外 (SUZUYE, Takehiko et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門1丁目12番9号 鈴榮特許総合事務所内 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池



(57) Abstract: A fuel cell, comprising an electrode membrane structure having a solid electrolyte membrane (1) formed of a high polymer material, a fuel electrode (2) stacked on its both sides, and an air electrode (3). The fuel electrode (2) comprises an anode catalyst layer (4) and a fuel pole collector (6). The air electrode (3) comprises a cathode catalyst layer (5) and an air pole collector (7). A fuel tank (11) is formed at the rear of the fuel pole collector (6) and between a casing (10a) and a fuel holding membrane (8). To uniformize a liquid fuel supplied to the fuel electrode (2), the inside of the fuel tank (11) is partitioned into a plurality of parts through partition walls. The liquid fuel (methanol) in the fuel tank (11) is absorbed and held by the fuel holding membrane (8), dispersed through the fuel holding membrane (8), and reaches each part of the fuel electrode (2).

(57) 要約: 電極膜構造体は、高分子材からなる固体電解質膜 (1) と、その両側に積層された燃料極 (2) 及び空気極 (3) から構成される。燃料極 (2) はアノード触媒層 (4) 及

[続葉有]



WO 2006/075595 A1



(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, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

燃料極集電体 (6) から構成され、空気極 (3) はカソード触媒層 (5) 及び空気極集電体 (7) から構成される。燃料極集電体 (6) の背面には、ケーシング (10a) と燃料保持膜 (8) の間に燃料タンク 11 が構成される。燃料タンク (11) の内部は、燃料極 (2) へ供給される液体燃料の均等化を図るために、隔壁により複数の区画に分けられている。燃料タンク (11) 内の液体燃料 (メタノール) は、燃料保持膜 (8) に吸収されて保持されるとともに、燃料保持膜 8 の中を通過して分散されて燃料極 (2) の各部に到達する。

明 細 書

燃料電池

技術分野

- [0001] 本発明は、燃料極で触媒を用いて液体燃料から分離された水素イオンを用いて、発電を行う燃料電池に係り、特に、燃料極へ液体燃料を供給するためにポンプなどの、能動的な移送手段を使用しない燃料電池に係る。

背景技術

- [0002] 近年、ノートパソコンや携帯電話などの各種の携帯用電子機器を長時間充電無しで使用可能にすることを目的として、これらの携帯用機器の電源に燃料電池を用いる試みが、各所で進められている。燃料電池は、燃料と空気を供給するだけで発電が行われ、燃料のみを補給すれば、連続して長時間発電することができるという特徴を有している。このため燃料電池は、小型化が実現されれば、携帯用機器の電源として極めて有利なシステムである。
- [0003] 直接メタノール型燃料電池 (DMFC; direct methanol fuel cell) では、エネルギー密度の高いメタノールを燃料として使用し、また、触媒層及び固体電解質膜を用いてメタノールから直接的に電流を取り出している。このため、直接メタノール型燃料電池は、改質器が不要で、小型化が可能であり、且つ、燃料の取り扱いも水素ガスに比べて容易なことから、小型の携帯用機器用の電源として有望視されている。
- [0004] DMFCの燃料の供給方式として、液体燃料を気化させてブロー等で燃料電池内に送り込む気体供給型DMFC、液体燃料をそのままポンプ等で燃料電池内に送り込む液体供給型DMFC、更に、送り込まれた液体燃料を燃料電池の内部で気化させて燃料極に供給する内部気化型DMFC、などが知られている。
- [0005] 特開2004-319430号公報には、液体供給型DMFCの例が記載されている。この燃料電池は、複数の起電部より構成され、各起電部に燃料ポンプから偏りなく燃料を供給するために、還流型の燃料流路が設けられている。
- [0006] 特開2000-106201号公報に、内部気化型DMFCの例が記載されている。この内部気化型DMFCは、液体燃料を保持する燃料浸透層と、燃料浸透層中に保持さ

れた液体燃料のうち気化成分を拡散させるための燃料気化層とを備え、気化された液体燃料が燃料気化層から燃料極に供給される。この文献では、液体燃料として、メタノールと水が1:1のモル比で混合されたメタノール水溶液が使用され、メタノールと水の双方がガスの状態で燃料極に供給される。このようなメタノール水溶液を燃料として用いる燃料電池は、メタノールと水の気化速度の間の相違に起因して、十分な出力特性を得ることが難しいと言う問題がある。そこで、燃料電池の出力特性の向上及び一層の小型化を図る目的で、純メタノールを燃料に用いる燃料電池の開発が進められている。

- [0007] それに加えて、主にモバイル機器で使用される小型燃料電池として、燃料極へ液体燃料を供給するために燃料ポンプなどの能動的な移送手段を使用しないパッシブ型燃料電池が開発されている。そのような燃料電池では、使用時の姿勢を一つに限定することは、その使用の態様を考慮すれば困難である。例えば、持ち運び自由な小型の音楽再生機器では、衣服のポケットや手荷物の中で使用される場合が多く、機器そのものの姿勢を限定することができず、従って、その中で使用される燃料電池の姿勢についても同様である。このため、液体燃料を使用するパッシブ型燃料電池をモバイル機器で使用する場合、どのようにして燃料電池の燃料極に均等に液体燃料を供給するかが、重要な技術的課題となる。燃料極に均等に液体燃料が供給されない場合、出力の低下などの不具合が生じる。更に、そのような状態が長く続くと、固体電解質膜内でのプロトンの経路に偏りが生じ、あるいは、固体電解質膜が部分的に乾燥することなどにより、電池の寿命が短くなる恐れがある。

発明の開示

- [0008] 本発明は、燃料極へ液体燃料を供給するためにポンプなどの能動的な移送手段を使用しないパッシブ型燃料電池における、以上のような問題点に鑑み成されたものである。本発明の目的は、パッシブ型燃料電池において、使用時の姿勢を一つに限定することが困難な場合にも、燃料極へ供給される液体燃料の場所的な偏りを抑え、それによって、出力特性の向上及び電池寿命の増大を図ることにある。
- [0009] 本発明の一つの実施態様による燃料電池は、
液体燃料の燃料成分を、燃料タンクから燃料極に供給する燃料電池であって、

イオン伝導性を備えた固体電解質膜と、
固体電解質膜の一方の側に積層され、燃料成分が供給されるアノード触媒層を有する燃料極と、
固体電解質膜のもう一方の側に積層され、カソード触媒層を有する空気極と、
燃料極を間に挟んで固体電解質膜の反対側に設けられ、液体燃料を貯える燃料タンクと、を備え、
前記燃料タンクは、燃料極を一方の壁面にして形成される複数の区画によって構成されている。

- [0010] このように、燃料タンクの内部を複数の区画に分けることによって、燃料電池の使用時の姿勢(従って、燃料極及び燃料タンクの姿勢)が水平でない場合にも、液体燃料が燃料タンクの中で一箇所に集まることなく、各区画に分散して保持されるようにすることが可能になる。このようにして、燃料タンク内での液体燃料の場所的な偏りが抑えられることにより、出力の低下や電池寿命の低下を防ぐことができる。
- [0011] 好ましくは、前記燃料極の前記燃料タンクに向かう側の面に、液体燃料を吸収し且つ分散させて前記燃料極に到達させる燃料保持膜を積層する。このように、燃料極に燃料保持膜を取り付けることによって、前記燃料極へ供給される液体燃料の量の均等化を更に進めることができる。
- [0012] 好ましくは、前記複数の区画は、1つの共通の燃料注液孔から同時に燃料を注入できるように構成される。
- [0013] 更に、好ましくは、前記複数の区画の各々は、各区画を仕切る隔壁に設けられた開口部を介して他の少なくとも一つの区画と互いにつながられるように構成される。
- [0014] このように、複数の区画を互いにつなげることによって、燃料電池の姿勢の変化に伴い、液体燃料の全量が移動しない程度の範囲で、複数の区画の相互間での燃料の移動を可能にする。これにより、各区画内に保持されている液体燃料の残量の均等化を図ることができる。
- [0015] 本発明のもう一つの実施態様による燃料電池は、
液体燃料の燃料成分を、燃料タンクから燃料極に供給する燃料電池であって、
イオン伝導性を備えた固体電解質膜と、

固体電解質膜の一方の側に積層され、燃料成分が供給されるアノード触媒層を有する燃料極と、

固体電解質膜のもう一方の側に積層され、カソード触媒層を有する空気極と、燃料極を間に挟んで固体電解質膜の反対側に設けられ、液体燃料を貯える燃料タンクと、を備え、

前記燃料タンクは、燃料極に対して平行な面内で折れ曲がる流路によって構成されている。

[0016] このように、燃料タンクを折れ曲がる流路により構成することによって、燃料電池の使用時等の姿勢(従って、燃料極及び燃料タンクの姿勢)が水平でない場合にも、液体燃料が燃料タンクの中で一箇所に集まることなく、流路内の複数の箇所に分散して保持されるようにすることが可能になる。このようにして、燃料タンク内での液体燃料の場所的な偏りが抑えられることにより、出力の低下や電池寿命の低下を防ぐことができる。

[0017] 好ましくは、前記燃料極の前記燃料タンクに向かう側の面に、液体燃料を吸収し且つ分散させて前記燃料極に到達させる燃料保持膜を積層する。このように、燃料極に燃料保持膜を取り付けることによって、前記燃料極へ供給される液体燃料の量の均等化を更に進めることができる。

[0018] 好ましくは、前記燃料タンクを、燃料極に対して平行な面内で複数回折れ曲がる複数の流路によって構成する。

[0019] 好ましくは、前記流路を、液体燃料の入口から末端に行くに従って、その断面積が次第に、即ち、断続的にあるいは連続的に拡大するように構成する。

[0020] 本発明の燃料電池によれば、燃料極へ供給される液体燃料の場所的な偏りを抑え、それによって、出力特性の向上や電池寿命の増大を図ることができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図1は、本発明による燃料電池の一実施形態を示す断面図である。

[図2]図2は、図1に示した燃料電池における燃料タンクのレイアウトを示す図である。

[図3]図3は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの例を示す図である。

。

[図4]図4は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの他の例を示す図である。

[図5]図5は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの更に他の例示す図である。

[図6]図6は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの更に他の例を示す図である。

[図7]図7は、比較例の燃料電池における燃料タンクのレイアウトを示す図である。

[図8]図8は、図3に示した燃料タンクにおける隔壁の形状を示す斜視図である。

[図9]図9は、本発明による燃料電池の他の実施形態を示す断面図である。

[図10]図10は、図9に示した燃料電池における燃料タンクのレイアウトを示す図である。

[図11]図11は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの例を示す図である。

[図12]図12は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの他の例を示す図である。

[図13]図13は、本発明の燃料電池における燃料タンクのレイアウトの更に他の例を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

[0022] 図1に、本発明による燃料電池の一実施形態(断面図)を示す。図中、1は固体電解質膜、2は燃料極、3は空気極、11は燃料タンクを表す。

[0023] 発電部となる電極膜構造体(MEA:Membrane Electrode Assembly)は、高分子材からなる固体電解質膜1と、その両側に積層された燃料極2(アノード極)及び空気極3(カソード極)から構成される。燃料極2は、アノード触媒層4及び燃料極集電体6から構成される。空気極3は、カソード触媒層5及び空気極集電体7から構成される。

[0024] アノード触媒層4及びカソード触媒層5には、触媒が塗布されたカーボンペーパーが使用される。カーボンペーパーの触媒の塗布された面が固体電解質膜1と接触するように熱圧着されている。触媒層は、例えば、次のようにして得られる。アノード触媒粒子あるいはカソード触媒粒子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、分散媒として水及びメキシプロパノールを添加して、前記触媒担持カーボンブラックを分散させたペーストを調製する。このペーストを、カソードガス拡散層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、触媒層が得られる。

[0025] アノード触媒層4の背面(固体電解質膜1と反対側の面)には、電流を外部に取り出すために、燃料極集電体6が積層されている。同様に、カソード触媒層5の背面(固体電解質膜1と反対側の面)には、電流を外部に取り出すために、空気極集電体7が積層されている。アノード触媒層4への燃料の供給及びカソード触媒層5への空気の供給のために、燃料極集電体6及び空気極集電体7には多数の貫通孔が形成されている。アノード触媒層4及びカソード触媒層5には、例えば、金メッキをした銅板が使用される。以上のようにして、固体電解質膜1、燃料極2及び空気極3が一体化されて、電極膜構造体が構成されている。

[0026] このような電極膜構造体は、ゴムシール9を介してプラスチック製(例えば、PPS製)のケーシング10a、10bの間に挟み込まれ、例えばネジなどで固定されている。ゴムシール9は、アノード触媒層4及びカソード触媒層5から固体電解質膜1がはみ出した部分に当たるように設置され、その部分でケーシング10a、10bの内部がシールされる。

[0027] 燃料極集電体6の背面(アノード触媒層4と反対側の面)には、液体燃料を気化させるための気化膜(気液分離膜)(図示せず)を介して、不織布からなる燃料保持膜8が更に取り付けられている。燃料極2側のケーシング10aと燃料保持膜8の間に、燃料タンク11が形成されている。燃料タンク11の中の液体燃料(メタノール)は、燃料保持膜8に吸収され、その一部が燃料保持膜8の中に一時的に保持されるとともに、燃料保持膜8の中を通り、更に気化膜(気液分離膜)を介して、液体燃料の気化成分が燃料極2の各部に到達する。

[0028] なお、この明細書において、「燃料極を一方の壁面にして形成される」とは、燃料タンク11と燃料極の間に他の層が配置される場合には、燃料タンクに最も近い層を壁面にすることも含まれる。

[0029] 燃料極2側のケーシング10aの側壁には、燃料タンク11の中に液体燃料を補給す

るための燃料注入孔12が設けられている。空気極3側のケーシング10bには、外部から空気を取り入れるように、多数の小孔が設けられている。

- [0030] 図2に、図1に示した燃料電池の燃料タンク11の平面図を示す。この例では、燃料タンク11は、三つの区画11a～11cから構成されている。燃料注入孔12は区画11aに設けられ、区画11aと11b及び区画11bと11cは、それぞれ、隔壁に設けられた開口部を介して互いにつながっている。
- [0031] 燃料注入孔12から注入された液体燃料は、区画11aから、隔壁に設けられた開口部を経由して、区画11b、11cに流れ込む。また、燃料電池の姿勢の変化及び各区画11a～11c内の液体燃料の残量のバランスなどの影響を受けて、液体燃料が区画11a～11cの間で相互に移動する。その結果、燃料タンク11内での液体燃料の場所的な偏りを抑えることができる。
- [0032] このように、本発明による燃料電池では、燃料極2への液体燃料の供給の均等化を図るべく、燃料タンク11が複数の区画に分割されている。図3～6に、燃料タンク11のレイアウトの他の例を示す。
- [0033] 図3に示した例では、燃料タンク11は二つの区画11d、11eから構成されている。燃料注入孔12は、一方の区画11dに設けられている。二つの区画11d、11eは、隔壁に設けられた開口部を介して互いにつながっている。液体燃料は、燃料注入孔12から一方の区画11dに入り、上記の開口部を通して、もう一方の区画11eに流れ込む。
- [0034] 図4に示した例では、図3と同様に、燃料タンク11は二つの区画11f、11gから構成されている。但し、燃料注入孔12は二つの区画11f、11gの境界部に設けられ、液体燃料が燃料注入孔12から直接、二つの区画11f、11gに補給されるように構成されている。二つの区画11f、11gは、燃料注入孔12の正面に隣接する位置で隔壁に設けられた開口部を介して互いにつながっている。
- [0035] 図5に示した例では、図4と同様に、燃料タンク11は二つの区画11h、11iから構成されている。但し、燃料注入孔12は、二つの区画11h、11iの境界線上を通して燃料タンク11の中央に至り、隔壁の中央に開口している。これによって、液体燃料が、燃料注入孔12から直接、二つの区画11h、11iに補給されるように構成されている。二

つの区画11h、11iは、隔壁の中央に設けられた開口部を介して互いにつながっている。

[0036] 図6に示した例では、燃料タンク11は四つの区画11j、11k、11m、11nから構成されている。即ち、燃料タンク11の内部は、縦方向及び横方向に区切る隔壁によって四つに分割されている。燃料注入孔12は、二つの区画11j、11kの境界線上を通過して燃料タンク11の中央に至り、上記隔壁の交点の近傍に開口している。これによって、液体燃料を、燃料注入孔12から直接、四つの区画11j、11k、11m、11nに補給することができる。四つの区画11j、11k、11m、11nは、上記隔壁の交点の近傍で隔壁に設けられた開口部を介して互いにつながっている。

[0037] なお、燃料注入孔は、ケーシングの側壁中央に限らず、側壁端部などその燃料電池に応じた位置に配置することもできる。

[0038] 燃料タンクを複数の区画に区切る隔壁は、燃料タンクと一体で形成することも、あるいは燃料タンクとは別に製作した後に燃料タンクと組み合わせることも可能である。特に、液体燃料の移動を隔壁の開口部で効率的に行うため、あるいは製造容易性の観点などからは、燃料タンクと一体で形成することが好ましい。

[0039] 燃料タンクを複数の区画に区切る隔壁の開口部の形状、個数などは、その燃料電池に応じて適宜変更することが可能である。

[0040] 燃料タンクを複数の区画に区切る隔壁は、電極膜構造体が同一平面上に複数個配置されている場合には、それぞれの電極膜構造体間に配置することが好ましいが、その区画の構成によっては、電極膜構造体直下に配置しても良い。

[0041] 以上においては、アノード触媒層に供給される燃料成分が気化された気体である場合について説明したが、この燃料成分は、気体に限られるものではなく、液体であってもよく、その対象とする燃料電池の構成によって種々のものを使用できる。

[0042] また、燃料タンク11に収容される液体燃料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ってもよい。いずれにしても、燃料電池に応じた液体燃料が収容される。

- [0043] 次に、本発明に基づく燃料電池の性能を評価するために行われた試験の結果について説明する。なお、この試験では、固体電解質膜1を70mm角の正方形とし、アノード触媒層4及びカソード触媒層5を60mm角の正方形とした。従って、アノード触媒層4及びカソード触媒層5は、各辺において5mmの幅で固体電解質膜1からはみ出す構造となる。また、燃料タンク11は、60mm角の大きさで、深さを3mmとした。
- [0044] (供試体1)
先に図3に示したレイアウトの燃料タンクを備えた燃料電池を作成した。図8に隔壁の形状を示す。隔壁には、隔壁の反対側の区画との間で燃料の相互移動ができるように、その中央部に開口部が加工されている。この開口部は、長さが5mm、高さが1.5mmであって、燃料タンク11の底側に高さ1.5mmの隔壁が残るように設計されている。
- [0045] (供試体2)
先に図4に示したレイアウトの燃料タンクを備えた燃料電池を作成した。この例では、燃料の注入口の正面に当たる隔壁の端部に、燃料の相互移動のための開口部が、供試体1の場合と同様な寸法で加工されている。
- [0046] (供試体3)
先に図5に示したレイアウトの燃料タンクを備えた燃料電池を作成した。この例では、隔壁の燃料タンクの中央部に当たる部分に、燃料の相互移動のための開口部が、供試体1の場合と同様な寸法で加工されている。
- [0047] (供試体4)
先に図6に示したレイアウトの燃料タンクを備えた燃料電池を作成した。この例では、隔壁の燃料タンクの中央部に当たる部分に、燃料の相互移動のための開口部が、供試体1の場合と同様な寸法で加工されている。
- [0048] (供試体5)
比較のため、図7に示すように、燃料タンクの内部が複数の区画に分割されていない燃料電池が作成された。
- [0049] 図3から7に示した各形状の燃料タンクを備えた燃料電池をそれぞれ50個ずつ作成して、以下のように評価試験を行った。

[0050] 最初に、平坦な台の上に燃料電池を水平に置き、初期の出力を測定した。このとき、燃料には20質量%のメタノール水溶液を使用し、1Aの電流で放電したときの出力を初期出力とした。

[0051] 初期出力を確認後、燃料を燃料タンクの容積の約半分である5cc注入し、1Aの定電流放電を、電圧が0.2Vとなるまで実施した。このとき、燃料電池本体を15度の角度に傾けた状態で固定して、発電を行った。但し、50個の内の25個は、燃料の入り口側から見て左側が低くなるように横向きに傾斜させ、残りの25個は、燃料入り口の反対側の部分が低くなるよう縦向きに傾斜させた。電圧が0.2Vに低下した時点で放電を停止した。その後、燃料5ccを再注入して、再度同じ条件の放電を、放電時間が積算値で500時間となるまで繰り返した。

[0052] 積算値で500時間の発電後、初期出力を確認した時と同様に、水平状態にて出力を確認した。各供試体の、初期出力に対する500時間放電後の出力の割合(平均値)を表1に示す。

[0053] 表1. 500時間駆動後の出力維持率

	横向き	縦向き
供試体1	76.0%	86.5%
供試体2	88.8%	77.1%
供試体3	92.8%	77.8%
供試体4	93.5%	92.8%
供試体5	76.2%	75.9%

表1から分かるように、燃料タンクの内部が複数の区画に分割されていない供試体5(図7)の500時間放電後出力維持率は、傾斜の向きに関係なく約76%であった。これに対して、2等分となるように隔壁を設けた供試体1~3(図3~5)では、隔壁に対して直角方向の傾きに対して効果が確認され、それぞれ、500時間放電後の出力維持率が向上することが確認された。これは、供試体5は、傾斜による燃料の移動が

自由なため燃料分布に偏りが生じ、出力の低下が大きいのに対し、隔壁を設けることにより燃料の移動をある程度制限した供試体1～3では、燃料分布の偏りが比較的小さいため、供試体5と比較して出力の低下が小さくなったためと考えられる。

[0054] また、供試体1と比較すると、供試体2及び3の方が出力低下が小さくなっている。これは、燃料を複数の燃料タンクに同時に注入することや、電極の中央付近に注入することにより、燃料分布の偏りがさらに小さくなり、出力の維持率が向上したと考えられる。更に、燃料タンクの内部を4等分に分割した供試体4では、4分割にしたこと、さらには4分割されることによりタンク中央付近から各区画への燃料の注入が行われるため燃料分布の偏りがさらに小さくなることにより、横方向及び縦方向のいずれの傾斜の場合にも、出力の低下が小さくなった。

[0055] 図9に、本発明による燃料電池の他の実施形態(断面図)を示す。図中、1は固体電解質膜、2は燃料極、3は空気極、21は燃料タンクを表す。

[0056] 発電部となる電極膜構造体(MEA:Membrane Electrode Assembly)は、高分子材からなる固体電解質膜1と、その両側に積層された燃料極2(アノード極)及び空気極3(カソード極)から構成される。燃料極2は、アノード触媒層4及び燃料極集電体6から構成される。空気極3は、カソード触媒層5及び空気極集電体7から構成される。

[0057] アノード触媒層4及びカソード触媒層5には、触媒が塗布されたカーボンペーパーが使用される。カーボンペーパーの触媒の塗布された面が固体電解質膜1と接触するように熱圧着されている。触媒層は、例えば、次のようにして得られる。アノード触媒粒子あるいはカソード触媒粒子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、分散媒として水及びメキシプロパノールを添加して、前記触媒担持カーボンブラックを分散させたペーストを調製する。このペーストを、カソードガス拡散層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、触媒層が得られる。

[0058] アノード触媒層4の背面(固体電解質膜1と反対側の面)には、電流を外部に取り出すために、燃料極集電体6が積層されている。同様に、カソード触媒層5の背面(固体電解質膜1と反対側の面)には、電流を外部に取り出すために、空気極集電体7が積層されている。アノード触媒層4への燃料の供給及びカソード触媒層5への空気の

供給のために、燃料極集電体6及び空気極集電体7には多数の貫通孔が形成されている。アノード触媒層4及びカソード触媒層5には、例えば、金メッキをした銅板が使用される。以上のようにして、固体電解質膜1、燃料極2及び空気極3が一体化されて、電極膜構造体が構成されている。

[0059] このような電極膜構造体は、ゴムシール9を介してプラスチック製(例えば、PPS製)のケーシング10a、10bの間に挟み込まれ、例えばネジなどで固定されている。ゴムシール9は、アノード触媒層4及びカソード触媒層5から固体電解質膜1がはみ出した部分に当たるように設置され、その部分でケーシング10a、10bの内部がシールされる。

[0060] 燃料極集電体6の背面(アノード触媒層4と反対側の面)には、液体燃料を気化させるための気化膜(気液分離膜)(図示せず)を介して、不織布からなる燃料保持膜8が更に取り付けられている。燃料極2側のケーシング10aと燃料保持膜8の間に燃料タンク21が形成されている。燃料タンク21の中の液体燃料(メタノール)は、燃料保持膜8に吸収され、その一部が燃料保持膜8の中に一時的に保持されるとともに、燃料保持膜8の中を通り、更に気化膜(気液分離膜)を介して液体燃料の気化成分が燃料極2の各部に到達する。

[0061] なお、この明細書において、「燃料極を一方の壁面にして形成される」とは、燃料タンク21と燃料極の間に他の層が配置される場合には、燃料タンクに最も近い層を壁面にする場合も含まれる。

[0062] 燃料極2側のケーシング10aの側壁には、燃料タンク21の中に液体燃料を補給するための燃料注入孔22が設けられている。空気極3側のケーシング10bには、外部から空気を取り入れるように、多数の小孔が設けられている。

[0063] 図10に、本発明に基づく燃料電池の燃料タンク21の平面図の一例を示す。この例では、燃料タンク21は、二つの流路21a、21bから構成されている。燃料注入孔22は、二つの流路21a、21bに対して共通に設けられ、二つの流路21a、21bは入り口部分で互いにつながっている。この図において、流路21aは、入り口から先ず上方に向かい、燃料タンク21の上辺に到達して左に曲がり、次いで、燃料タンク21の右辺に到達して下に曲がり、更に、燃料タンク21の下辺に到達して右に曲がり、その直後

に上に曲がって、上辺及び左辺から若干離れた位置で終了している。流路21bは、流路21aに対して鏡対象の経路を辿って、上辺及び右辺から若干離れた位置で終了している。このように、各流路21a、21bは、燃料極2に対して平行な面内で4回折れ曲り、それぞれ、燃料極2の面積の半分をカバーするように配置されている。

- [0064] 燃料タンク21内の液体燃料は、燃料電池の姿勢の変化及び各流路21a、21b内の液体燃料の残量のバランスなどの影響を受けて、流路内を適宜移動し、流路内の複数の箇所分散して保持される。このようにして、燃料タンク21内での液体燃料の場所的な偏りが抑えられることにより、出力の低下や電池寿命の低下を防ぐことができる。
- [0065] なお、燃料注入孔は、ケーシングの側壁中央に限らず、側壁端部などその燃料電池に応じた位置に配置することもできる。
- [0066] 燃料タンクの流路を形成するための隔壁は、燃料タンクと一体で形成することも、あるいは燃料タンクとは別に製作した後に燃料タンクと組み合わせることも可能である。特に、液体燃料の移動を効率的に行うため、あるいは製造容易性の観点などから、燃料タンクと一体で形成することが好ましい。
- [0067] 燃料タンクの流路を形成するための隔壁は、電極膜構造体が同一平面上に複数個配置されている場合には、それぞれの電極膜構造体間になるべく配置することが好ましいが、その流路の構成によっては、電極膜構造体直下に配置してもよい。
- [0068] 更に、図2に示したような複数の区画によって構成される燃料タンクと、図10に示したような流路によって構成される燃料タンクは、上記のようにそれぞれ個別に使用することが可能であるが、それらを組合せた構成の燃料タンクを使用することも可能である。
- [0069] なお、以上においては、アノード触媒層に供給される燃料成分が気化された気体である場合について説明したが、この燃料成分は、気体に限られるものではなく、液体であってもよく、その対象とする燃料電池の構成によって種々のものを使用できる。
- [0070] なお、燃料タンク11に収容する液体燃料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ってもよい。いずれにしても、燃料電池に応じた液体燃料が収容される。

[0071] 次に、本発明に基づくパッシブ型燃料電池の性能を評価するために行われた試験の結果について説明する。なお、この試験では、固体電解質膜1を70mm角の正方形とし、アノード触媒層4及びカソード触媒層5を60mm角の正方形とした。従って、アノード触媒層4及びカソード触媒層5は、各辺において5mmの幅で固体電解質膜1からはみ出す構造となる。また、燃料タンク21は、60mm角の大きさで、深さを3mmとした。

[0072] (供試体6)

図11に示すレイアウトの燃料タンク21を備えた燃料電池を作成した。なお、このレイアウトは、先に図10に示したものと基本的に同様である。二つの流路21a、21bの幅は、10mmで一定である。

[0073] (供試体7)

図12に示すレイアウトの燃料タンク21を備えた燃料電池を作成した。図12に示されているように、二つの流路21c、21dは、液体燃料の入口から末端に行くに従って、その幅が、断続的に拡大するように構成されている。即ち、各流路21c、21dの幅は、入り口部分が5mm、中間部分が10mm、末端部分が15mmである。

[0074] (供試体8)

比較のため、図13に示すように、燃料タンク21の内部が流路によって仕切られていない燃料電池を作成した。

[0075] 図11から図13に示した各形状の燃料タンクを備えた燃料電池をそれぞれ50個ずつ作成して、以下のように評価試験を行った。

[0076] 最初に、平坦な台の上に燃料電池を水平に置き、初期の出力を測定した。このとき、燃料には20質量%のメタノール水溶液を使用し、1Aの電流で放電したときの出力を初期出力とした。

[0077] 初期出力を確認後、燃料を燃料タンクの容積の約半分である5cc注入し、1Aの定電流放電を電圧が0.2Vとなるまで実施した。このとき、燃料電池本体を15度の角度に傾けた状態で固定して、発電を行った。但し、50個の内の25個は燃料の入り口か

ら見て左側が低くなるように横向きに傾斜させ、残りの25個は燃料入り口の反対側の部分が低くなるよう縦向きに傾斜させた。電圧が0.2Vに低下した時点で放電を停止した。その後、燃料5ccを再注入して、再度同じ条件の放電を、放電時間が積算値で500時間となるまで繰り返した。

[0078] 積算値で500時間の発電後、初期出力を確認した時と同様に、水平状態にて出力を確認した。各供試体の、初期出力に対する500時間放電後の出力の割合(平均値)を表2に示す。

[0079] 表2. 500時間駆動後の出力維持率

	横向き	縦向き
供試体1	89.8%	80.0%
供試体2	94.8%	88.2%
供試体3	76.2%	75.9%

表2から分かるように、燃料タンクの内部が流路によって仕切られていない供試体8(図13:比較例)の500時間放電後出力維持率は、傾斜の向きに関係なく約76%であった。これに対して、燃料タンクが複数回折れ曲がる流路によって構成された供試体6及び7(図11及び12)では、500時間放電後の出力維持率が向上することが確認された。これは、供試体8は、傾斜による燃料の移動が自由なため燃料分布に偏りが生じ、出力の低下が大きいのにに対し、流路を設けることにより燃料の移動をある程度制限した供試体6及び7では、燃料分布の偏りが比較的小さいため、供試体8と比較して出力の低下が小さくなったためと考えられる。

[0080] また、供試体6と比較すると供試体7の方が、出力低下が小さくなっている。これは、燃料の注入量を燃料タンクの容積の約半分の量としたことから、流路の末端付近では燃料が不足気味となるが、供試体7では、入り口付近の流路の幅を狭くすることによって、流路の末端部分まで燃料が行き渡り易くなったためであると考えられる。

請求の範囲

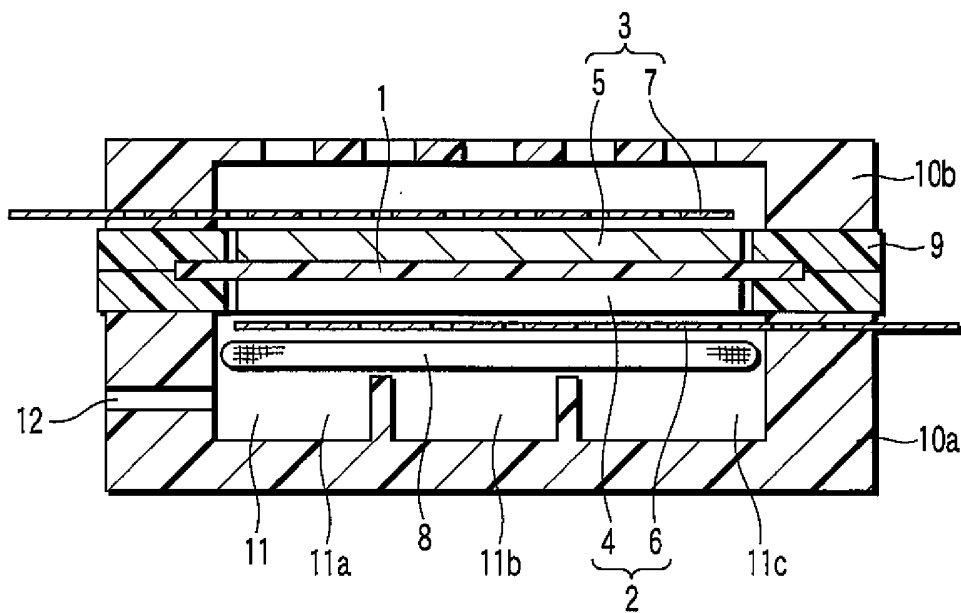
- [1] 液体燃料の燃料成分を、燃料タンクから燃料極に供給する燃料電池であって、イオン伝導性を備えた固体電解質膜と、固体電解質膜の一方の側に積層され、燃料成分が供給されるアノード触媒層を有する燃料極と、固体電解質膜のもう一方の側に積層され、カソード触媒層を有する空気極と、燃料極を間に挟んで固体電解質膜の反対側に設けられ、液体燃料を貯える燃料タンクと、を備え、前記燃料タンクは、燃料極を一方の壁面にして形成される複数の区画によって構成されている燃料電池。
- [2] 前記燃料極の前記燃料タンクに向かう側の面に、液体燃料を吸収し且つ分散させて前記燃料極に到達させる燃料保持膜が積層されている、請求項1に記載の燃料電池。
- [3] 前記複数の区画は、一つの共通の燃料注液孔から同時に燃料を注入できるように構成されている、請求項1に記載の燃料電池。
- [4] 前記複数の区画の各々は、各区画を仕切る隔壁に設けられた開口部を介して他の少なくとも一つの区画と互いにつながられている、請求項1に記載の燃料電池。
- [5] 前記燃料タンクの内部は、互いに交差する少なくとも2枚の隔壁によって少なくとも4つの区画に分割され、且つ、これらの区画の各々は、前記隔壁に設けられた開口部を介して他の少なくとも一つの区画と互いにつながられている、請求項1に記載の燃料電池。
- [6] 前記アノード触媒層に供給される燃料成分は、液体または気体である、請求項1に記載の燃料電池。
- [7] 液体燃料の燃料成分を、燃料タンクから燃料極に供給する燃料電池であって、イオン伝導性を備えた固体電解質膜と、固体電解質膜の一方の側に積層され、燃料成分が供給されるアノード触媒層を有する燃料極と、固体電解質膜のもう一方の側に積層され、カソード触媒層を有する空気極と、

燃料極を間に挟んで固体電解質膜の反対側に設けられ、液体燃料を貯える燃料タンクと、を備え、

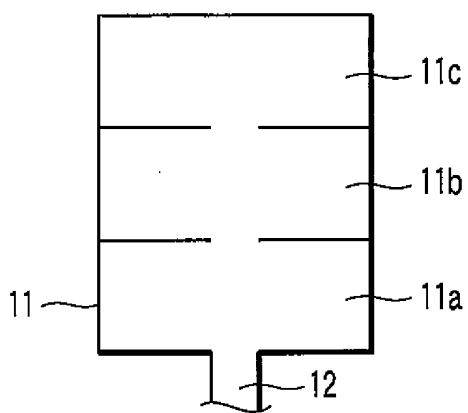
燃料タンクは、燃料極に対して平行な面内で折れ曲がる流路によって構成されている燃料電池。

- [8] 前記燃料極の前記燃料タンクに向かう側の面に、液体燃料を吸収し且つ分散させて前記燃料極に到達させる燃料保持膜が積層されている、請求項7に記載の燃料電池。
- [9] 前記燃料タンクが、燃料極に対して平行な面内で複数回折れ曲がる複数の流路によって構成されている、請求項7に記載の燃料電池。
- [10] 前記流路は、液体燃料の入口から末端に行くに従って、その断面積が断続的または連続的に拡大するように構成されている、請求項7に記載の燃料電池。
- [11] 前記アノード触媒層に供給される燃料成分は、液体または気体である、請求項7に記載の燃料電池。

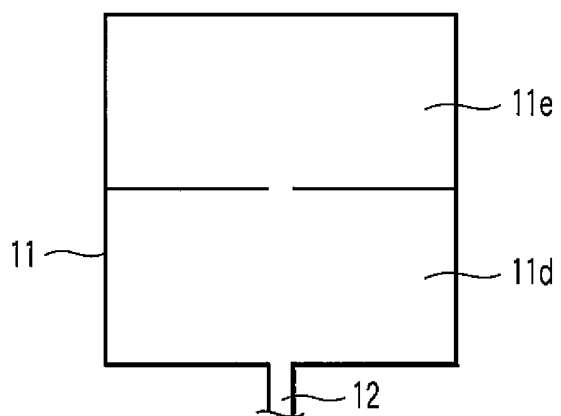
[図1]



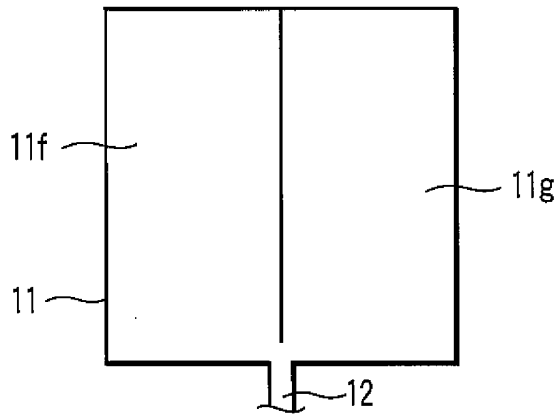
[図2]



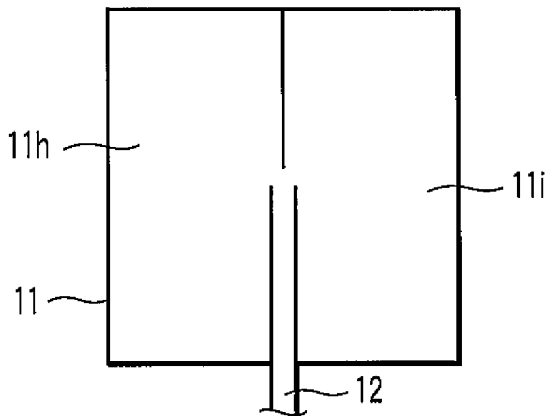
[図3]



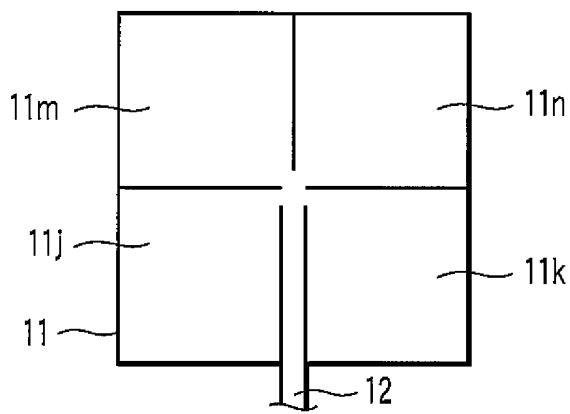
[図4]



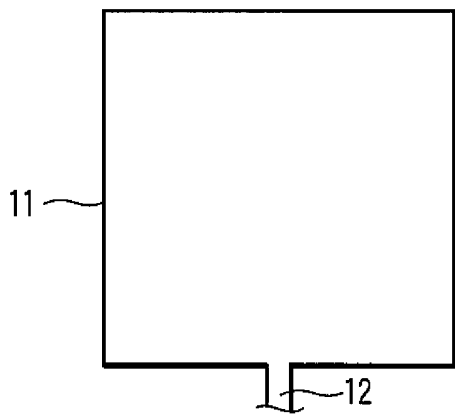
[図5]



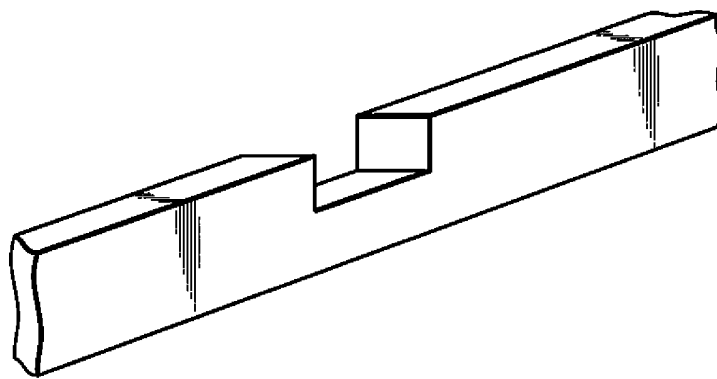
[図6]



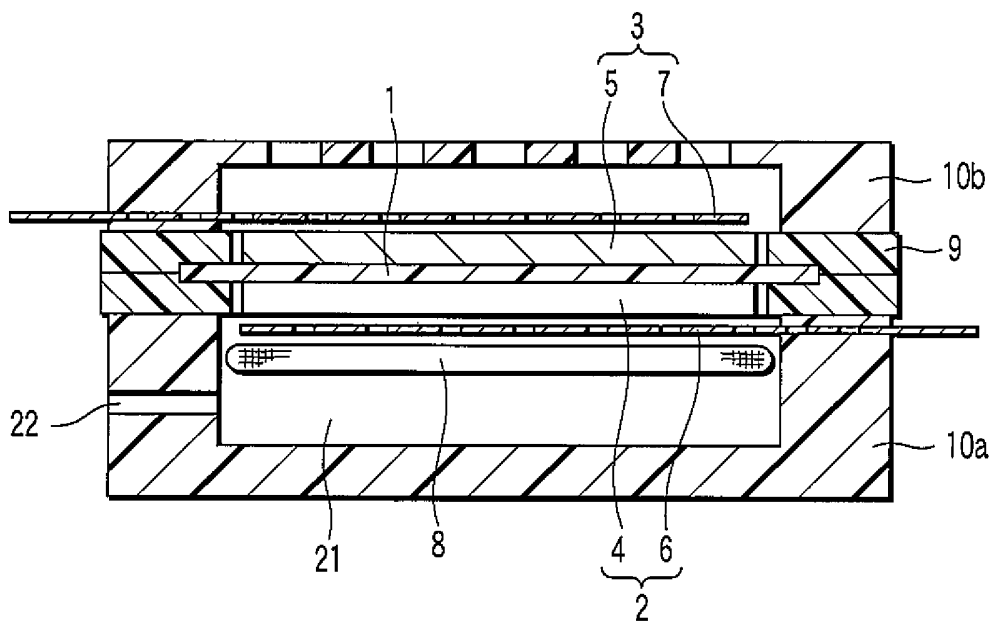
[図7]



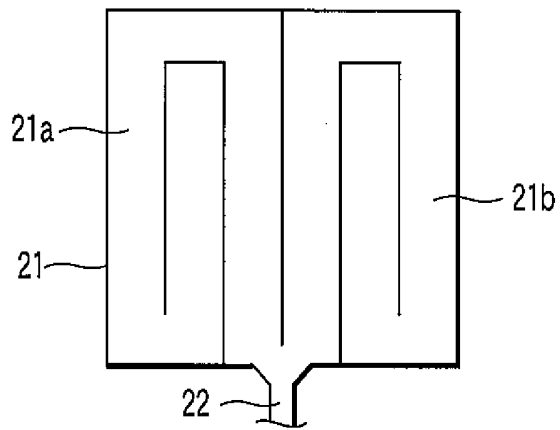
[図8]



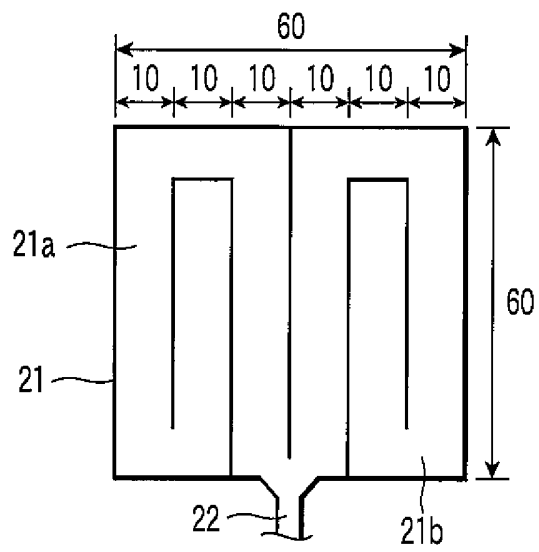
[図9]



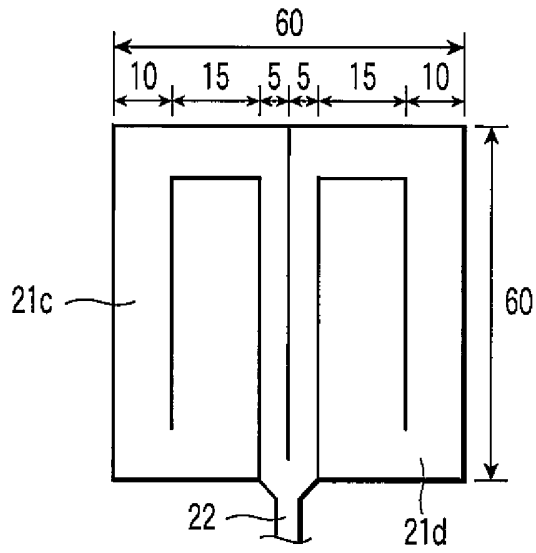
[図10]



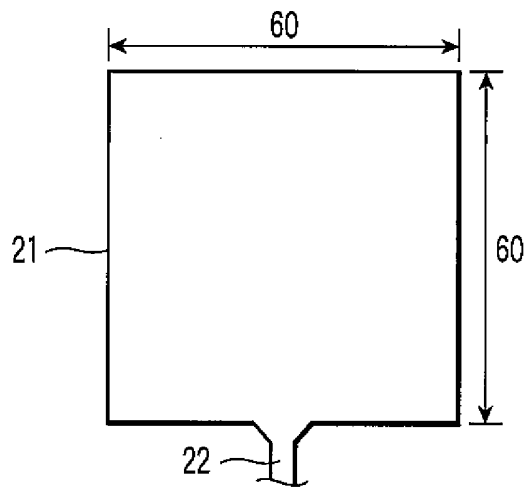
[図11]



[図12]



[図13]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/300182

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>H01M8/04</i> (2006.01), <i>H01M8/02</i> (2006.01), <i>H01M8/10</i> (2006.01)		
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) H01M8/04, H01M8/02		
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 1996-2006 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2006 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2006		
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.
A	JP 2000-268836 A (Sony Corp.), 29 September, 2000 (29.09.00), Par. Nos. [0019] to [0020], [0030] to [0031], [0039] to [0043], [0059]; Figs. 1, 4 (Family: none)	1-11
A	JP 2000-106201 A (Toshiba Corp.), 11 April, 2000 (11.04.00), Full text & US 6447941 B1	1-11
A	JP 2004-172111 A (Hitachi Maxell, Ltd.), 17 June, 2004 (17.06.04), Par. No. [0058]; Figs. 1, 2 & JP 2004-207208 A	7-11
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 March, 2006 (20.03.06)		Date of mailing of the international search report 28 March, 2006 (28.03.06)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/300182

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 64-17379 A (Hitachi, Ltd.), 20 January, 1989 (20.01.89), Page 2, upper right column, lines 8 to 13; Figs. 1, 2, 4 (Family: none)	1-6
A	JP 61-273865 A (Hitachi, Ltd.), 04 December, 1986 (04.12.86), Page 4, lower left column, lines 3 to 19; Fig. 9 (Family: none)	2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H01M8/04 (2006.01), H01M8/02 (2006.01), H01M8/10 (2006.01)

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 (IPC))
 Int.Cl. H01M 8/04, H01M 8/02

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006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
A	JP 2000-268836 A (ソニー株式会社) 2000.09.29, 段落 0019-0020, 段落 0030-0031, 段落 0039-0043, 段落 0059, 図 1, 図 4 (ファミリーなし)	1-11
A	JP 2000-106201 A (株式会社東芝) 2000.04.11, 全文 & US 6447941 B1	1-11

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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日
20.03.2006

国際調査報告の発送日
28.03.2006

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
 守安 太郎
 電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2004-172111 A (日立マクセル株式会社) 2004. 06. 17, 段落 0058, 図 1, 図 2 & JP 2004-207208 A	7-11
A	JP 64-17379 A (株式会社日立製作所) 1989. 01. 20, 第 2 頁右上欄第 8-13 行, 図 1, 図 2, 図 4 (ファミリーなし)	1-6
A	JP 61-273865 A (株式会社日立製作所) 1986. 12. 04, 第 4 頁左下欄第 3-19 行, 図 9 (ファミリーなし)	2