

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第1区分

【発行日】平成17年8月11日(2005.8.11)

【公開番号】特開2003-151567(P2003-151567A)

【公開日】平成15年5月23日(2003.5.23)

【出願番号】特願2002-246983(P2002-246983)

【国際特許分類第7版】

H 0 1 M 4/90

H 0 1 M 8/08

H 0 1 M 12/06

【F I】

H 0 1 M 4/90 B

H 0 1 M 8/08

H 0 1 M 12/06 F

【手続補正書】

【提出日】平成17年1月18日(2005.1.18)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

酸素の電気化学還元により過酸化水素を生成する2電子還元反応を触媒する電気化学触媒Aと、

生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒Bとを少なくとも含有する酸素還元用複合電極であって、

上記の複合電極の電極電位は電気化学触媒Aの酸素還元電位であり、触媒Bにより過酸化水素を分解して再生された酸素を、電気化学触媒Aが2電子還元して過酸化水素を繰返し生成し、

上記電気化学触媒Aと触媒Bとが、導電性基材に保持されて成り、

上記触媒Bと、導電性基材及び/又は電気化学触媒Aとの間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒Bを電氣的に絶縁して成る酸素還元用複合電極

【請求項2】

上記電気化学触媒Aが  $L_n$  (nは配位する配位子の数) で表される中心金属原子と、該金属原子に配位する配位子Lとを有する金属錯体である請求項1記載の酸素還元用複合電極。

【請求項3】

上記金属錯体の配位子が、窒素原子を有する単座あるいは多座配位子である請求項2記載の酸素還元用複合電極。

【請求項4】

上記配位子が、ポルフィリン環又はフタロシアン環を有する請求項3記載の酸素還元用複合電極。

【請求項5】

上記のポルフィリン環又はフタロシアン環が、重合性の置換基を有する請求項4記載の酸素還元用複合電極。

【請求項6】

上記触媒 B が過酸化水素分解酵素又は  $O_x$  (  $\quad$  は金属元素、 $x$  は金属元素の価数によって決まる酸素の原子数 ) で表される金属酸化物である請求項 1 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 7】

上記金属酸化物が、ペロブスカイト酸化物又は  $MnO_y$  (  $y$  はマンガンの価数によって決まる酸素の原子数 ) で表されるマンガン酸化物である請求項 6 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 8】

金属材料、炭素材料、金属酸化物、そして  $L_n$  (  $n$  は配位する配位子の数 ) で表される中心金属原子 と該金属原子 に配位する配位子  $L$  とを有する金属錯体、から成る群から選択された 1 種であり、酸素の電気化学的還元により過酸化水素を生成する 2 電子還元反応を触媒する電気化学触媒 A と、

過酸化水素分解酵素又は  $O_x$  (  $\quad$  は金属元素、 $x$  は金属元素の価数によって決まる酸素の原子数 ) で表される金属酸化物から成り、電気化学触媒 A により生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒 B と、を少なくとも含み、

上記電気化学触媒 A と触媒 B とが、導電性基材に保持されて成り、

上記触媒 B と、導電性基材及び / 又は電気化学触媒 A との間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒 B を電氣的に絶縁して成る酸素還元用複合電極

【請求項 9】

上記電気化学触媒 A が、導電性基材を兼ねる請求項 8 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 10】

上記触媒 B が、プロトン導電性のポリマーに分散されて成る請求項 8 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 11】

上記電気化学触媒は  $L_n$  (  $n$  は配位する配位子の数 ) で表される中心金属原子 と該金属原子 に配位する配位子  $L$  とを有する金属錯体であり、

上記金属錯体の配位子が、窒素原子を有する単座あるいは多座配位子である請求項 8 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 12】

上記配位子が、ポルフィリン環又はフタロシアニン環を有する請求項 11 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 13】

上記のポルフィリン環又はフタロシアン環が、重合性の置換基を有する請求項 12 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 14】

上記触媒 B は  $O_x$  (  $\quad$  は金属元素、 $x$  は金属元素の価数によって決まる酸素の原子数 ) で表される金属酸化物からなり、

上記金属酸化物が、ペロブスカイト酸化物又は  $MnO_y$  (  $y$  はマンガンの価数によって決まる酸素の原子数 ) で表されるマンガン酸化物である請求項 8 から 13 のいずれか一つに記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 15】

上記金属酸化物はペロブスカイト酸化物であり、

上記ペロブスカイト酸化物が、 $La_xSr_{1-x}MnO_3$  (  $x = 0 \sim 0.5$  ) である請求項 14 に記載の酸素還元用複合電極。

【請求項 16】

酸素の電気化学還元により過酸化水素を生成する 2 電子還元反応を触媒する電気化学触媒 A と、生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒 B と、を少なくとも含有する酸素還元用複合電極から成り、

上記の複合電極の電極電位は電気化学触媒 A の酸素還元電位であり、

触媒 B により過酸化水素を分解して再生された酸素を電気化学触媒 A が 2 電子還元して過酸化水素を繰返し生成する正極と、

負極活物質あるいは燃料物質の酸化反応をする負極と、  
電解質と、

を有する発電セルであって、

上記電気化学触媒 A と触媒 B とが、導電性基材に保持されて成り、

上記触媒 B と、導電性基材及び / 又は電気化学触媒 A との間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒 B を電氣的に絶縁して成る、発電セル。

【請求項 17】

上記電気化学触媒 A が  $L_n$  ( $n$  は配位する配位子の数) で表される中心金属原子 と、該金属原子 に配位する配位子  $L$  とを有する金属錯体から成り、上記触媒 B が過酸化水素分解酵素又は  $O_x$  ( $L$  は金属元素、 $x$  は金属元素の価数によって決まる酸素の原子数) で表される金属酸化物から成る請求項 16 記載の発電セル。

【請求項 18】

酸素の電気化学還元により過酸化水素を生成する 2 電子還元反応を触媒する電気化学触媒 A と、生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒 B と、を少なくとも含有する酸素還元用複合電極から成り、

上記の複合電極の電極電位は電気化学触媒 A の酸素還元電位であり、

触媒 B により過酸化水素を分解して再生された酸素を電気化学触媒 A が 2 電子還元して過酸化水素を繰返し生成する正極と、

負極活物質あるいは燃料物質の酸化反応をする負極と、

電解質と、

を有する発電セルの駆動方法であって、

上記電気化学触媒 A と触媒 B とが、導電性基材に保持されて成り、

上記触媒 B と、導電性基材及び / 又は電気化学触媒 A との間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒 B を電氣的に絶縁して成り、

上記発電セルの駆動方法は、

上記負極及び電解質の少なくとも一方に、光吸収により励起されて炭水化物を電気化学的に酸化する分子が付与されており、

該分子に光照射しながら炭水化物を供給して、負極において該分子により炭水化物を酸化せしめて、正極と負極との間に起電力を発生させる工程を有する、発電セルの駆動方法。

【請求項 19】

上記発電セルが燃料電池であり、上記正極及び負極を、それぞれ空気極と燃料極とし、空気極と燃料極とがプロトン導電性のイオン交換膜を介して接続されて成る請求項 16 に記載の発電セル。

【請求項 20】

上記発電セルが空気電池であり、上記負極に亜鉛、マグネシウム及びアルミニウムから選択されたいずれか 1 種の金属を用いる請求項 16 に記載の発電セル。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0007】

【課題を解決するための手段】

上述の課題を解決するため本発明の酸素還元用複合電極は、酸素の電気化学還元により過酸化水素を生成する 2 電子還元反応を触媒する電気化学触媒 A と、生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒 B とを少なくとも含有する酸素還元用複合電極であって、上記の複合電極の電極電位は電気化学触媒 A の酸素還元電位であり、

触媒 B により過酸化水素を分解して再生された酸素を、電気化学触媒 A が 2 電子還元して過酸化水素を繰返し生成し、上記電気化学触媒 A と触媒 B とが、導電性基材に保持されて成り、上記触媒 B と、導電性基材及び / 又は電気化学触媒 A との間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒 B を電氣的に絶縁して成ることを特徴とする。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0014】

好ましくは、触媒 B が、プロトン導電性のポリマーに分散されていることである。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

本発明の酸素還元用複合電極を、酸素の還元反応を正極反応とする、空気電池の正極あるいは燃料電池の正極として用いることにより発電セルを構成することができる。

すなわち、本発明は、酸素の電気化学還元により過酸化水素を生成する 2 電子還元反応を触媒する電気化学触媒 A と、生成した過酸化水素を分解して酸素を生成する分解反応を触媒する触媒 B と、を少なくとも含有する酸素還元用複合電極から成り、上記の複合電極の電極電位は電気化学触媒 A の酸素還元電位であり、触媒 B により過酸化水素を分解して再生された酸素を電気化学触媒 A が 2 電子還元して過酸化水素を繰返し生成する正極と、負極活物質あるいは燃料物質の酸化反応をする負極と、電解質とを有し、上記電気化学触媒 A と触媒 B とが、導電性基材に保持されて成り、上記触媒 B と、導電性基材及び / 又は電気化学触媒 A との間を、直接もしくは電子伝導体を介して電子が移動しないように、触媒 B を電氣的に絶縁して成る発電セルを提供する。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0105

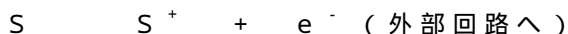
【補正方法】変更

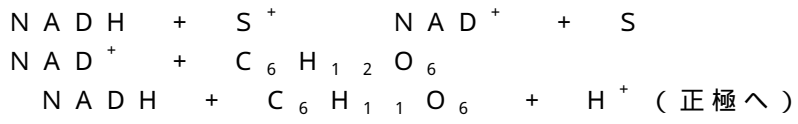
【補正の内容】

【0105】

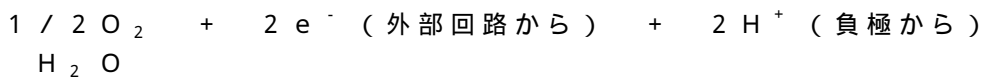
光触媒電極は光照射により光活性種 ( $S^+$ ) と電子を生成する。 $S^+$  は、NADH (還元体) より電子を受け取り、元の基底状態種 ( $S$ ) に戻る。電子を渡した NADH は酸化体 ( $NAD^+$ ) となり、この  $NAD^+$  は燃料であるグルコース ( $C_6H_{12}O_6$ ) を酸化してグルコースから電子を受け取り NADH に戻る。光触媒電極で生成した電子は、外部回路を通り正極である酸素極に至り、酸素 ( $O_2$ ) の還元反応に用いられる。以上の発電反応を以下の反応式で示す。

負極





正極



全体反応

