

# 發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：96121382

※申請日期：96年06月13日

※IPC分類：H01M8/02 (2006.01)

## 一、發明名稱：

(中) 燃料電池用燃料卡匣及燃料電池  
(英)

## 二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 東芝股份有限公司  
(英) KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
代表人：(中) 1. 西田厚聰  
(英) 1. NISHIDA, ATSUTOSHI  
地址：(中) 日本國東京都港區芝浦一丁目一番一號  
(英) 1-1, Shibaura 1-chome, Minato-ku, Tokyo 105-8001, Japan  
國籍：(中英) 日本 JAPAN

## 三、發明人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 瀧澤由美子  
(英) TAKIZAWA, YUMIKO  
國籍：(中) 日本  
(英) JAPAN

## 四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2006/06/15 ; 2006-166047  有主張優先權

# 發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：96121382

※申請日期：96年06月13日

※IPC分類：H01M8/02 (2006.01)

## 一、發明名稱：

(中) 燃料電池用燃料卡匣及燃料電池  
(英)

## 二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 東芝股份有限公司  
(英) KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
代表人：(中) 1. 西田厚聰  
(英) 1. NISHIDA, ATSUTOSHI  
地址：(中) 日本國東京都港區芝浦一丁目一番一號  
(英) 1-1, Shibaura 1-chome, Minato-ku, Tokyo 105-8001, Japan  
國籍：(中英) 日本 JAPAN

## 三、發明人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 瀧澤由美子  
(英) TAKIZAWA, YUMIKO  
國籍：(中) 日本  
(英) JAPAN

## 四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2006/06/15 ; 2006-166047  有主張優先權

## 九、發明說明

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係有關燃料電池用燃料卡匣及燃料電池。

### 【先前技術】

近年來，個人電腦、行動電話等各種電子機器，隨著半導體技術之發達而小型化，於是嘗試將燃料電池使用於此等小型機器用的電源。燃料電池只要供給燃料與氧化劑就可發電，具有只要更換燃料就可連續發電的優點。尤其，直接甲醇型燃料電池（DMFC：Direct Methanol Fuel Cell），係使用能量密度較高之甲醇做為燃料，在電極觸媒上直接從甲醇取出電流，故不需要改質器而可小型化。又，直接甲醇型燃料電池的燃料處置比氫氣燃料簡單。由以上說明來看，直接甲醇型燃料電池很有希望成為小型機器用電源。

做為 DMFC 之燃料供給方法，已知有將液體燃料汽化後以噴出器等送入燃料電池內的氣體供給型 DMFC，和將液體燃料依原樣以泵等送入燃料電池內的液體供給型 DMFC，還有在燃料電池內將液體燃料汽化加以使用的內部汽化型 DMFC。其中內部汽化型 DMFC，不需要設置用來供給燃料之泵或噴出器等大型裝備，只要可讓燃料濃度更濃而達成液體燃料槽的小型化，就可實現高能量密度的小型燃料電池。

然而，日本特開 2004-311163 號公報中，記載有為了

防止用以得到燃料電池之電極而使用為觸媒塗料的乙醇或甲醇氧化，係於觸媒塗料添加氧化防止劑，藉此將觸媒層所包含之有機系化合物成分（蟻酸、醋酸、草酸）的濃度抑制在 200ppm 以下，來抑制觸媒電極黏接體的電壓劣化。

### 【發明內容】

發明所欲解決之課題

本發明之目的，係提供一種可改善發電之長期安定性的燃料電池用燃料卡匣及燃料電池。

用以解決課題之手段

本發明之燃料電池用燃料卡匣，係具備燃料收容容器，和收容於上述容器內之液體燃料；其特徵係上述液體燃料，係包含由甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇的最少一種，和由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種有機化合物，而上述有機化合物之濃度為 40ppm 以上，1500ppm 以下。

本發明之燃料電池，係具備：包含燃料極、與氧化劑極、與配置在上述燃料極及氧化劑極之間之電解質膜的膜電極黏接體；和貯藏有包含從甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇之最少一種液體燃料的燃料貯藏部；和用以將上述液體燃料之汽化成分供給到上述燃料極的汽化燃

料供給手段；其特徵係：於上述燃料貯藏部、上述汽化燃料供給手段及上述膜電極黏接體，係包含由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種有機化合物，其比 200ppm 多，而在 1500ppm 以下。

### 【實施方式】

說明燃料卡匣。

做為燃料卡匣，可舉出具有液體燃料收容容器、和設置於上述容器之液體燃料出口部的型式。燃料卡匣可以是可自由裝卸者，也可以是裝設型、可補充燃料者。

做為形成液體燃料收容容器之高分子材料，例如可舉出低密度聚乙烯（LDPE）、直鏈低密度聚乙烯（LLDPE）、變性聚乙烯、聚丙烯（PP）、聚醯胺（PA）、聚對苯二甲酸乙二酯（PET）等。

液體燃料，係包含由甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇的最少一種有機燃料。液體燃料可以由上述有機燃料來實質構成，也可以是有機燃料之水溶液。例如選擇甲醇做為有機燃料時，可以使用甲醇水溶液或純甲醇所構成的甲醇燃料。液體燃料中之甲醇濃度，以 50 莫耳%以上為佳，更理想之範圍係超過 50 莫耳%之濃度，更佳之範圍係 80 莫耳%以上，最理想的就是使用純甲醇。藉此可謀求液體燃料收容部之小型化，同時可提高能量密度。純甲醇之濃度以 95 重量%以上 100 重量%以下為佳。

液體燃料係包含由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種有機化合物，其濃度為 40ppm 以上，1500ppm 以下。另外，液體燃料中所包含之有機化合物種類在 2 種以上時，係使用各種有機化合物濃度的合計值。

說明將有機化合物之濃度規定在上述範圍的理由。

上述種類之有機化合物，係在發電時會產生為副產生物的有機雜質。此等有機化合物，隨著發電反應之進行會累積於膜電極黏接體（MEA），導致電阻上升，而成為電極之氣體擴散層之孔洞堵塞的原因。本發明者等精心研究之結果，發現若在燃料卡匣內預先微量存在，則可抑制發電時之有機化合物的產生反應，並發現濃度在 40ppm 以上會提高長期安定性。但是濃度若超過 1500ppm，則有因電阻上升或氣體擴散性降低而無法得到高輸出之虞。

從而，將有機化合物（有機雜質）之濃度做為 40ppm 以上，1500ppm 以下，可維持高輸出，提高長期安定性。理想範圍為 40ppm 以上、200ppm 以下。

以下說明有機化合物濃度的測定方法。

液體燃料中除了有機酸之外的有機物（蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯）之濃度，係由以下（1）所說明之方法來測定。

（1）使用氣體層析圖（GC）來實施分析。分析圓柱係使用 DB-WAX（30m×0.25mmΦ）或具有等效功能者。噴射溫度做為 200℃，圓柱溫度做為從 40℃~180℃ 為止的

多段升溫分析；升溫速度係設定在第 1 段升溫為每分鐘 4~10℃ 範圍，第 2 段升溫為每分鐘 15~20℃ 範圍。檢測係由 GC 分析裝置之 FID 檢測器來進行。

就 GC 來說，特定成份之存在比例在 50% 以上時，則將有機化合物做為該特定成份所構成之單一成分，來算出濃度。另外存在比例係由 GC 之峰值面積來算出。

當不存在有存在比例在 50% 以上者，而由多數成分所構成之情況下，則將有機化合物當作  $\text{HCOOC}_2\text{H}_5$ （蟻酸甲酯）來算出濃度。

液體燃料中之有機酸（蟻酸）的濃度，係由以下（2）所說明之方法來測定。

（2）有機酸之分析係將試料以超純水稀釋 10~100 倍之後，使用離子層析圖（IC）來實施分析。分析圓柱係使用 IonPacAG17-AS17 或具有等效功能者。圓柱溫度做為 30℃。檢測係使用遏止器方式之電氣傳導度檢測器來進行。

就 IC 來說，特定成份之存在比例在 50% 以上時，則將有機酸做為該特定成份所構成之單一成分，來算出濃度。另外存在比例係由 IC 之峰值面積來算出。

將上述（1）之測定所得到之有機酸以外之有機物的濃度，與（2）之測定所得到之有機酸濃度，合計則為所求濃度。

做為使用燃料卡匣之燃料電池，可舉出液體燃料供給型、內部汽化型等。內部汽化型，係將液體燃料之氣化成

分供給到燃料極，液體燃料中之有機化合物會藉由汽化而濃縮，故容易發生電阻上升或燃料汽化部的堵塞，藉由規範有機化合物的濃度可期待大幅度之特性改善。

第 1 圖表示內部汽化型燃料電池的一種實施方式。第 1 圖，係表示本發明一種實施方式之直接甲醇型燃料電池的示意圖。

第 1 圖所示之燃料電池 1，係具備做為發電部，而主要由燃料電池胞 2 與燃料槽所構成的燃料電池本體 4，和對燃料槽 3 供給液體燃料的附屬型（外部注入式）燃料卡匣 5。燃料槽 3 之下面側，設置有具有做為液體燃料之供給口之插座部 6 的燃料供給部 7。插座部 6 係內裝有閥機構，在被供給液體燃料的時間以外為關閉狀態。

另一方面，燃料卡匣 5 具有收容燃料電池用之液體燃料，而做為液體燃料收容容器的卡匣本體 8。卡匣本體 8 之前端，設置有噴嘴部 9，在將收容於內部之液體燃料供給到燃料電池本體 4 之際做為燃料注出口。噴嘴部 9 內裝有閥機構，在供給液體燃料的時間以外為關閉狀態。此種燃料卡匣 5，係只有在例如對燃料槽 3 注入液體燃料時才連接於燃料電池本體 4。

上述燃料電池本體 4 中設置於燃料槽 3 之插座部 6，和燃料卡匣 5 中設置於燃料卡匣本體 8 的噴嘴部 9，係構成一對的連接機構（coupler）。

主要由燃料電池胞 2 與燃料槽 3 所構成之燃料電池本體 4 的實施方式，用第 2 圖表示之。

如第 2 圖所示，做為燃料電池胞 2 之膜電極黏接體（MEA），係具備陰極觸媒層 10 及陰極氣體擴散層 11 所構成的陰極（空氣極），和陽極觸媒層 12 及陽極氣體擴散層 13 所構成的陽極（燃料極），和配置在陰極觸媒層 10 與陽極觸媒層 12 之間，具有質子傳導性的電解質膜 14。

做為包含於陰極觸媒層 10 與陽極觸媒層 12 的觸媒，可舉出例如白金族元素支單體金屬（Pt、Ru、Rh、Ir、Os、Pd 等）、含有白金族元素之合金等。陽極觸媒使用對甲醇或一氧化碳之耐性較強的 Pt-Ru，而陰極觸媒則使用白金為佳，但並不限定於此。也可使用一種使用碳材料般之導電性支載體的支載觸媒，或是無支載觸媒。陰極氣體擴散層 11 及陽極氣體擴散層 13，例如可使用碳紙。

做為構成質子傳導性電解質膜 14 的質子傳導性材料，可舉出例如具有磺酸基之氟系樹脂（例如全氟磺酸聚合物），含有磺酸基之氫化碳系樹脂，鎢酸或磷鎢酸等無機物等，但並不限定於此。

陰極觸媒層 10 係被層積於陰極氣體擴散層 11，且陽極觸媒層 12 係被層積於陽極氣體擴散層 13。陰極氣體擴散層 11 係負責對陰極觸媒層 10 平均供給氧化劑，但也兼作陰極觸媒層 10 的集電體。另一方面，陽極氣體擴散層 13 係負責對陽極觸媒層 12 平均供給燃料，同時也兼作陽極觸媒層 12 的集電體。陰極導電層 15a 及陽極導電層 15b，係分別接觸於陰極氣體擴散層 11 及陽極氣體擴散層 13。陰極導電層 15a 及陽極導電層 15b，可分別使用例如金

、鎳等金屬材料所構成的多孔質層（例如網格），上述金屬材料所構成的箔，或是對不鏽鋼（SUS）等導電性金屬材料覆蓋上金等優良導電性金屬的複合材料。

矩形框狀之陰極密封材 16a，係位於陰極導電層 15a 與質子傳導性電解質膜 14 之間，同時包圍陰極觸媒層 10 與陰極氣體擴散層 11 的周圍。另一方面，矩形框狀之陽極密封材 16b，係位於陽極導電層 15b 與質子傳導性電解質膜 14 之間，同時包圍陽極觸媒層 12 與陽極氣體擴散層 13 的周圍。陰極密封材 16a 及陽極密封材 16b，係防止從膜電極黏接體 2 發生燃料洩漏或氧化劑洩漏的封環。

膜電極黏接體 2 之下方，配置有做為燃料貯藏部的液體燃料槽 3。液體燃料槽 3 內，收容有液體燃料 17。液體燃料槽 3 與陽極之間，配置有用以將液體燃料之汽化成分供給到陽極的汽化燃料供給手段，例如氣液分離膜 18。氣液分離膜 18，係僅讓液體燃料之汽化成分通過，而液體燃料無法通過的膜。液體燃料中只會有汽化成分透過氣液分離膜 18，而可對陽極供給汽化燃料。氣液分離膜 18 例如可使用具有甲醇透過性的撥液性膜。做為具有甲醇透過性的撥液性膜，例如有矽膠薄片、聚乙烯多孔膜、聚丙烯多孔膜、聚乙烯-聚丙烯多孔膜、聚四全氟乙烯多孔膜等。

氣液分離膜 18 與陽極導電層 15b 之間，配置有框體 19。框體 19 所包圍之空間，係工作為用以調整對陽極之汽化燃料供給量的汽化燃料收容室 20。

另一方面，膜電極黏接體 2 之陰極導電層 15a，層積

有框體 21。框體 21 上，層積有抑制陰極觸媒層 10 所產生之水之蒸發的保濕板 22。保濕板 22，係工作為用以將陽極所產生之水供給到陰極的水供給手段。亦即保濕板 22，係為了抑制水分從陰極蒸發，隨著發電反應之進行而增加陰極觸媒層 10 中的水分保持量。因此可做出陰極觸媒層 10 之水分保持量比陽極觸媒層 12 之水分保持量要多的狀態。結果會促進滲透壓現象，使產生於陰極觸媒層 10 之水通過質子傳導性膜 14 而供給到陽極觸媒層 12。

保濕板 22，係以對甲醇為非活性，並具有耐溶解性、氧透過性及透濕性的絕緣材料來形成為佳。做為此種絕緣材料，可舉出例如聚乙烯或聚丙烯等聚烯烴。

保濕板 22，以 JIS P-8117-1998 所規定之透氣度在 50 秒 /  $100\text{cm}^3$  以下為佳。這是因為透氣度若超過 50 秒 /  $100\text{cm}^3$ ，則有阻礙從空氣導入口 23 對陰極之空氣擴散，而無法得到高輸出之虞。透氣度更理想之範圍，係 10 秒 /  $100\text{cm}^3$  以下。

保濕板 22，以 JIS P-1099-1993 A-1 法所規定之透溼度在  $6000\text{g}/\text{m}^2$  24h 以下為佳。另外上述透溼度之值，如 JIS P-1099-1993 A-1 法所示般，係  $40\pm 2^\circ\text{C}$  之溫度的值。透溼度若超過  $6000\text{g}/\text{m}^2$  24h，則來自陰極之水分蒸發量會變多，有可能無法促進從陰極到陽極之水擴散的效果，故透溼度以  $500\sim 6000\text{g}/\text{m}^2$  24h 的範圍為佳。透溼度更理想之範圍，係  $1000\sim 4000\text{g}/\text{m}^2$  24h。

複數形成有用來取入氧化劑亦即空氣之空氣導入口 23

的蓋 24，係層積於保濕板 22 上。蓋 24 係將包含膜電極黏接體 2 之堆疊加壓，負責提高其密合性，故由例如 SUS304、碳鋼、不鏽鋼、合金鋼、鈦合金、鎳合金等金屬所形成。

上述第 1 圖、第 2 圖所示之構造的燃料電池中，燃料貯藏部亦即液體燃料槽 3 內之液體燃料 17，和汽化燃料供給手段亦即氣液分離膜 18 及膜電極黏接體 2 中，所包含的有機化合物（由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種所構成）量做為比 200ppm 多（不含 200ppm），而在 1500ppm 以下。本發明者等，發現藉由使有機化合物量比 200ppm 多，可抑制燃料成分氧化造成之蟻醛產生等副反應。結果可抑制發電反應效率之降低，提高長期安定性。但是，有機化合物量若超過 1500ppm，則會導致電阻上升，或成為電極之氣體擴散層堵塞的原因，故會降低長期安定性。有機化合物量之更理想範圍，係比 200ppm 多（不含 200ppm），而在 800ppm 以下。

有機化合物量超過 200pp 且在 1500ppm 以下的燃料電池，可藉由例如使用本發明之燃料卡匣來得到。

有關於滲透或附著在氣液分離膜 18 及膜電極黏接體 2 中的有機物，係將各構件浸泡於可充分浸泡之最少量的 100% 甲醇中，將有機物溶解於甲醇中，然後使用上述（1）及（2）之方法分析此甲醇中的有機物。有關液體燃料槽 3 內之液體燃料 17，係使用上述（1）及（2）之方法分

析從燃料槽 3 採取的液體燃料。另外，分析係在將燃料電池運轉 1~3 小時之後，加以分解，取出氣液分離膜、膜電極黏接體及燃料槽來進行為佳。

以下，參考圖示詳細說明本發明之實施例。

( 實施例 1 )

<陽極之製作>

對陽極用觸媒 ( Pt : Ru = 1 : 1 ) 支載碳黑添加全氟化碳磺酸溶液和水以及甲氧基丙醇，分散上述觸媒支載碳黑來調製黏膠。將所得到之黏膠塗佈於做為陽極氣體擴散層之多孔質碳紙，來得到陽極觸媒層。

<陰極之製作>

對陰極用觸媒 ( Pt ) 支載碳黑添加全氟化碳磺酸溶液和水以及甲氧基丙醇，分散上述觸媒支載碳黑來調製黏膠。將所得到之黏膠塗佈於做為陰極氣體擴散層之多孔質碳紙，來得到陽極觸媒層。

在陽極觸媒層與陰極觸媒層之間，配置含水率在 10~20 重量 % 之全氟化碳磺酸膜 ( nafion 膜，日本 DUPON 公司製造 ) 來做為質子傳導性電解質膜，對此等施加熱擠壓，來得到膜電極黏接體 ( MEA ) 。

做為氣液分離膜，係準備矽膠薄片。

使用所得到之膜電極黏接體及氣液分離膜，組裝出具有上述第 1 圖~第 2 圖所示之構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

於燃料卡匣中，收容有包含蟻酸 40ppm 做為有機化合物之純度 99.9 重量%的甲醇。使用此燃料卡匣來對燃料電池之液體燃料槽供給液體燃料。

(實施例 2)

除了將液體燃料中之有機化合物濃度做為 150ppm 以外，組裝出與實施例 1 具有相同構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

(實施例 3)

除了將液體燃料中之有機化合物濃度做為 1500ppm 以外，組裝出與實施例 1 具有相同構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

(比較例 1)

除了將液體燃料中之有機化合物濃度做為 35ppm 以外，組裝出與實施例 1 具有相同構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

(比較例 2)

除了將液體燃料中之有機化合物濃度做為 1505ppm 以外，組裝出與實施例 1 具有相同構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

將所得到之燃料電池運轉 3 小時之後，使用上述條件

來測定保持在氣液分離膜及膜電極黏接體之液體燃料中的有機化合物濃度，將結果表示於以下第 1 表。

第 1 表

	卡匣之液體燃料中的有機化合物 濃度 (ppm)	燃料電池之有機化合物濃度 (ppm)
實施例 1	40	201
實施例 2	150	800
實施例 3	1500	1500
比較例 1	35	195
比較例 2	1505	1505

又，將所得到之燃料電池連續運轉 1000 小時，以初期輸出做為 100% 將其輸出做為輸出保持率 (%) 來表示於第 3 圖。第 3 圖中，橫軸為運轉時間 (hour)，縱軸為保持率 (%)。

從第 3 圖可明白發現，使用有機化合物濃度在 40ppm 以上、1500ppm 以下之燃料卡匣之實施例 1~3 的燃料電池，在連續運轉實驗中，可維持以長期安定性限度線所表示之數值以上的保持率。

相對地，使用有機化合物濃度未滿 40ppm 之燃料卡匣之比較例 1 的燃料電池，在運轉開始後其保持率急遽降低。另一方面，使用有機化合物濃度超過 1500ppm 之燃料卡匣之比較例 2 的燃料電池，從運轉開始之後，保持率就一直比以長期安定性限度線所表示之數值更低。

( 實施例 4~13 及比較例 3~9 )

除了將有機化合物之種類及濃度設定為以下第 2 表所示之外，組裝出與實施例 1 具有相同構造之內部汽化型的直接甲醇型燃料電池。

第 2 表

	有機化合物種類	卡匣之液體燃料中的有機化合物濃度 (ppm)	燃料電池之有機化合物濃度 (ppm)
比較例 3	無添加	0	0
實施例 1	蟻酸	40	201
實施例 4	蟻酸	100	500
實施例 5	蟻酸	500	800
實施例 3	蟻酸	1500	1500
比較例 2	蟻酸	1505	1505
實施例 6	蟻醛	40	201
實施例 7	蟻醛	100	500
實施例 8	蟻醛	500	800
實施例 9	蟻醛	1500	1500
比較例 4	蟻醛	1505	1505
實施例 10	蟻酸甲酯	40	201
實施例 11	蟻酸甲酯	100	500
實施例 12	蟻酸甲酯	500	800
實施例 13	蟻酸甲酯	1500	1500
比較例 5	蟻酸甲酯	1505	1505
比較例 6	異丁烯酸甲酯	40	201
比較例 7	異丁烯酸甲酯	100	500
比較例 8	異丁烯酸甲酯	500	800
比較例 9	異丁烯酸甲酯	1500	1500

以比較例 3 之初期輸出密度為 100%，將所得到之燃料電池之初期輸出密度，做為輸出密度比 (%) 來表示於

第 4 圖。第 4 圖中，橫軸為卡匣之液體燃料中的有機化合物濃度（ppm），縱軸為輸出密度比（%）。第 4 圖中，一併記錄有實施例 1、3 及比較例 2 的結果。

從第 4 圖可明白發現，從使用蟻酸、蟻醛或蟻酸甲酯做為有機化合物之實施例 1、3~13 及比較例 2~5 的比較來看，在有機化合物濃度為 40ppm 以上、1500ppm 以下的範圍內，可以在初期就得到較高的輸出密度比。

另一方面，使用異丁烯酸甲酯之比較例 6~9 的燃料電池，輸出密度比係隨著異丁烯酸甲酯之濃度增加而急遽降低。

使用收容有有機化合物濃度為 40ppm 之液體燃料的燃料卡匣，針對此種實施例 1、6、10 及比較例 6 的燃料電池，測定初期之電流電壓特性，將結果表示於第 5 圖。第 5 圖之橫軸為電流密度（mA/cm<sup>2</sup>），右側縱軸為輸出密度（mW/cm<sup>2</sup>），左側縱軸為電壓（V）。第 5 圖中，以實施例 1（P）、實施例 6（P）、實施例 10（P）及比較例 6（P）所示之曲線來表示輸出密度，而以實施例 1（V）、實施例 6（V）、實施例 10（V）及比較例 6（V）所示之曲線來表示胞電壓。

從第 5 圖可明白得知，有機化合物為蟻酸、蟻醛或蟻酸甲酯之實施例 1、6、10 的燃料電池，比起使用異丁烯酸甲酯之比較例 6 的燃料電池，其峰值電流密度較大，且胞電壓的降低情況較小。

如以上第 3 圖~第 5 圖的結果所示，若依本實施方式

，則不會損及初期之電流電壓特性及輸出密度，就可改善長期安定性。另外確認了在使用蟻酸乙酯、醋酸甲酯、醋酸乙酯做為有機化合物的情況下，也可得到相同效果。

另外，本發明並非依上述實施方式所限定者，在實施階段中，於不脫離該主旨之範圍內，可改變該構成要素而具體化。又，藉由上述實施方式所揭示之複數構成要素的適當組合，可形成各種發明。例如可以從實施方式所示之全部構成要素中刪除幾個。更且，可以組合不同實施方式中的構成要素。

例如上述之說明中，做為燃料電池的構造，係說明了在膜電極黏接體（MEA）之下部具有做為燃料貯藏部之燃料槽的構造，但是燃料貯藏部也可具備收容有液體燃料之燃料收容部，和配置在燃料收容部與膜電極黏接體之間的流路。此時從燃料收容部到膜電極黏接體的燃料供給，係藉由流路來進行。

又，做為燃料電池本體之構造，雖舉例說明了被動型燃料電池，但是對於在燃料供給等一部分使用泵的所謂半被動型燃料電池，也可適用本發明。半被動型燃料電池中，從燃料收容部被供給到MEA之燃料係用於發電反應，此時未使用之燃料並不會循環回到燃料收容部。半被動型燃料電池中，因為不使燃料循環，故與主動方式不同，不會損及裝置的小型化。又因為半被動型燃料電池對燃料供給使用泵，故與內部汽化型之純被動方式也不同。因此被稱為半被動方式。另外此半被動型燃料電池，如果是進行

從燃料收容部對 MEA 的燃料供給，則也可做為使用燃料切斷閥來取代泵的構造。此時之燃料切斷閥，係為了控制以流路進行之液體燃料供給而設置者。

又，對 MEA 供給之液體燃料的蒸氣中，不管是供給所有液體燃料蒸氣，或者一部分以液體狀態供給的情況，都可適用本發明。

#### 產業上之可利用性

若依本發明，則可提供一種可改善發電之長期安定性的燃料電池用燃料卡匣及燃料電池。

#### 【圖式簡單說明】

〔第 1 圖〕第 1 圖，係表示本發明一種實施方式之直接甲醇型燃料電池的示意圖。

〔第 2 圖〕第 2 圖，係模式化表示第 1 圖之燃料電池本體之實施方式的剖面圖。

〔第 3 圖〕第 3 圖，係實施例 1~3 及比較例 1~2 之燃料電池在長期實驗時，表示輸出保持率之變化的特性圖。

〔第 4 圖〕第 4 圖，係針對實施例 1、3~13 及比較例 2~9 之燃料電池，表示有機化合物濃度與出其輸出密度比之關係的特性圖。

〔第 5 圖〕第 5 圖，係針對實施例 1、6、10 及比較例 6 之燃料電池，表示初期之電流電壓特性的特性圖。

【主要元件符號說明】

- 1：燃料電池
- 2：燃料電池胞
- 3：燃料槽
- 4：燃料電池本體
- 5：燃料卡匣
- 6：插座部
- 7：燃料供給部
- 8：卡匣本體
- 9：噴嘴部
- 10：陰極觸媒層
- 11：陰極氣體擴散層
- 12：陽極觸媒層
- 13：陽極氣體擴散層
- 14：電解質膜
- 15a：陰極導電層
- 15b：陽極導電層
- 16a：陰極密封材
- 16b：陽極密封材
- 17：液體燃料
- 18：氣液分離膜
- 19：框體
- 20：汽化燃料收容室
- 21：框體

200818583

22 : 保 濕 板

### 五、中文發明摘要

發明之名稱：燃料電池用燃料卡匣及燃料電池

一種燃料電池用燃料卡匣 5，係具備燃料收容容器 8，和收容於上述容器 8 內之液體燃料；其中上述液體燃料，係包含由甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇的最少一種，和由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種有機化合物；上述有機化合物之濃度為 40ppm 以上，1500ppm 以下。

### 六、英文發明摘要

發明之名稱：

## 十、申請專利範圍

1. 一種燃料電池用燃料卡匣，係具備燃料收容容器，和收容於上述容器內之液體燃料；其特徵係

上述液體燃料，係包含由甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇的最少一種，和由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的最少一種有機化合物，而上述有機化合物之濃度為 40ppm 以上，1500ppm 以下。

2. 如申請專利範圍第 1 項所記載之燃料電池用燃料卡匣，其中，上述液體燃料，係包含甲醇燃料和上述有機化合物。

3. 如申請專利範圍第 2 項所記載之燃料電池用燃料卡匣，其中，上述甲醇燃料，係甲醇濃度在 80 莫耳%以上之甲醇水溶液或純甲醇。

4. 一種燃料電池，係具備：

包含燃料極、與氧化劑極、與配置在上述燃料極及氧化劑極之間之電解質膜的膜電極黏接體；

和貯藏有包含從甲醇、乙醇、二甲基醚所構成之群中所選擇之最少一種液體燃料的燃料貯藏部；

和用以將上述液體燃料之汽化成分供給到上述燃料極的汽化燃料供給手段；

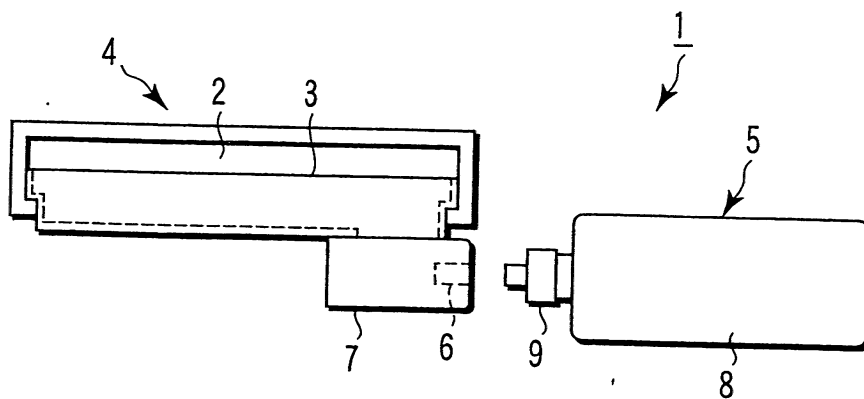
其特徵係：於上述燃料貯藏部、上述汽化燃料供給手段及上述膜電極黏接體，係包含由蟻酸、蟻醛、蟻酸甲酯、蟻酸乙酯、醋酸甲酯及醋酸乙酯所構成之群中所選擇的

最少一種有機化合物，其比 200ppm 多，而在 1500ppm 以下。

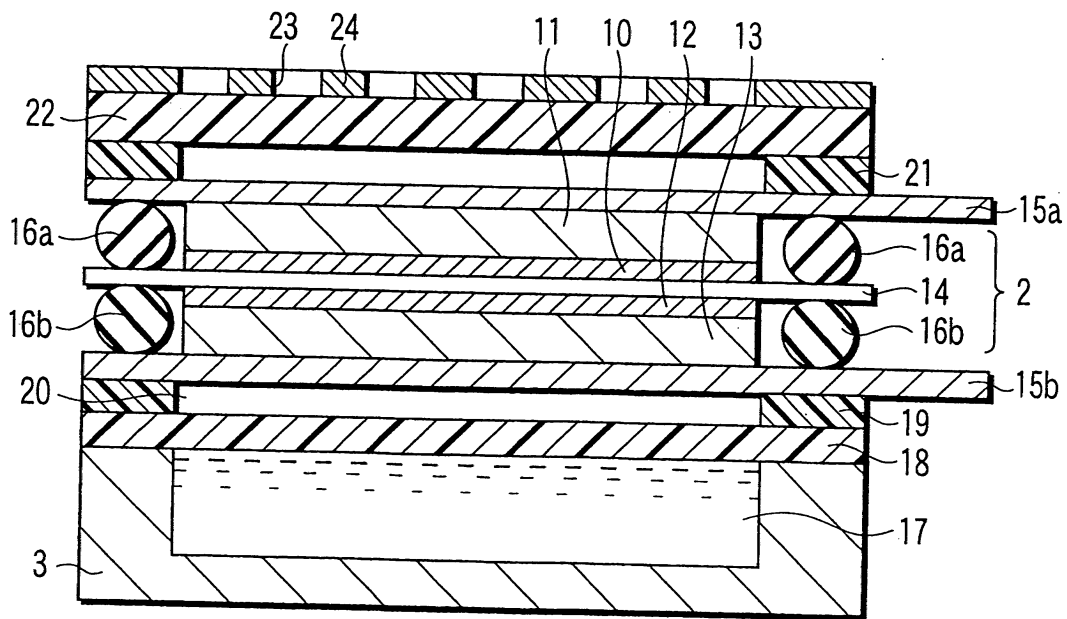
5. 如申請專利範圍第 4 項所記載之燃料電池，其中，上述液體燃料，係包含甲醇燃料和上述有機化合物。

6. 如申請專利範圍第 5 項所記載之燃料電池，其中，上述甲醇燃料，係甲醇濃度在 80 莫耳%以上之甲醇水溶液或純甲醇。

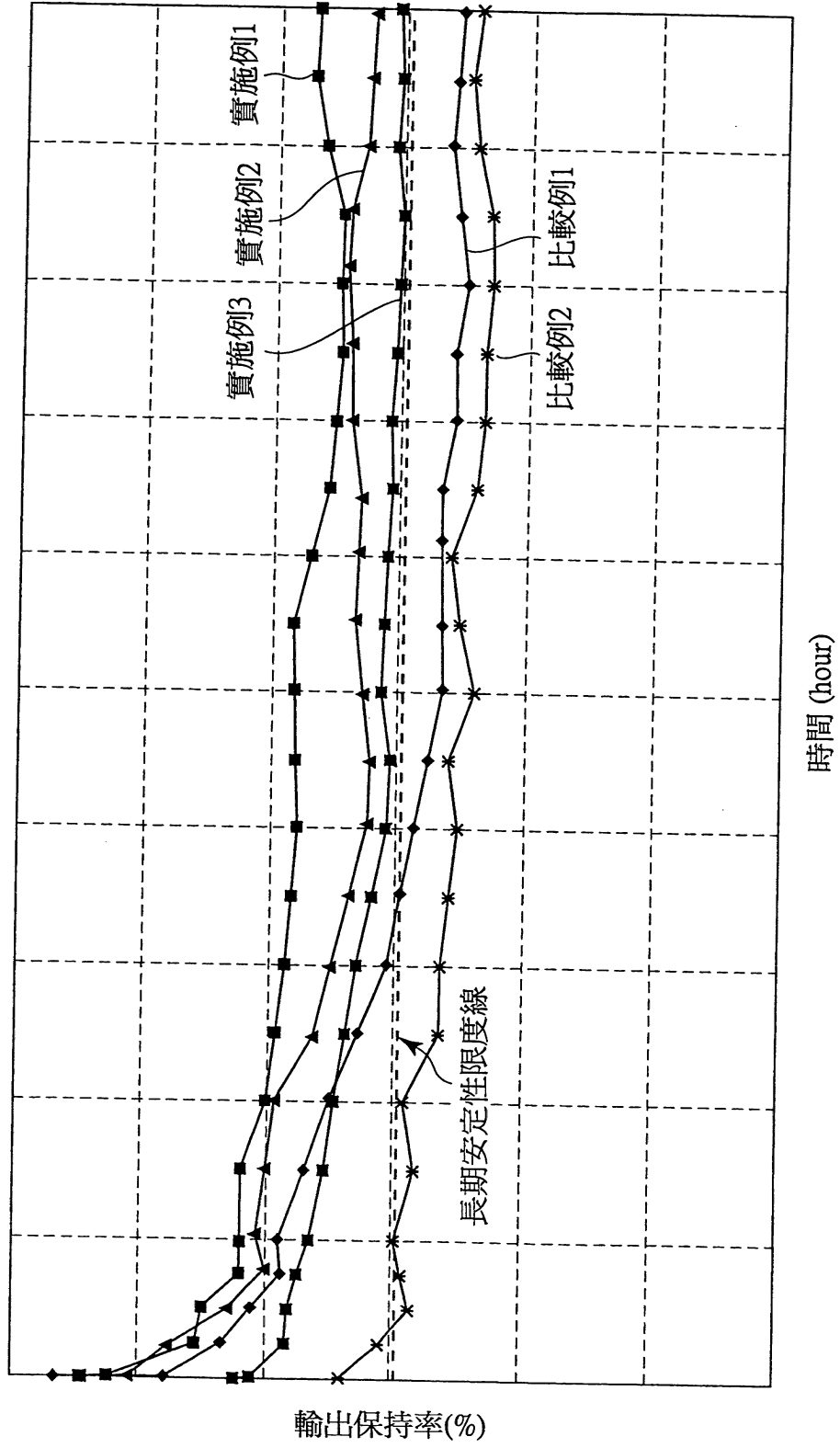
第1圖



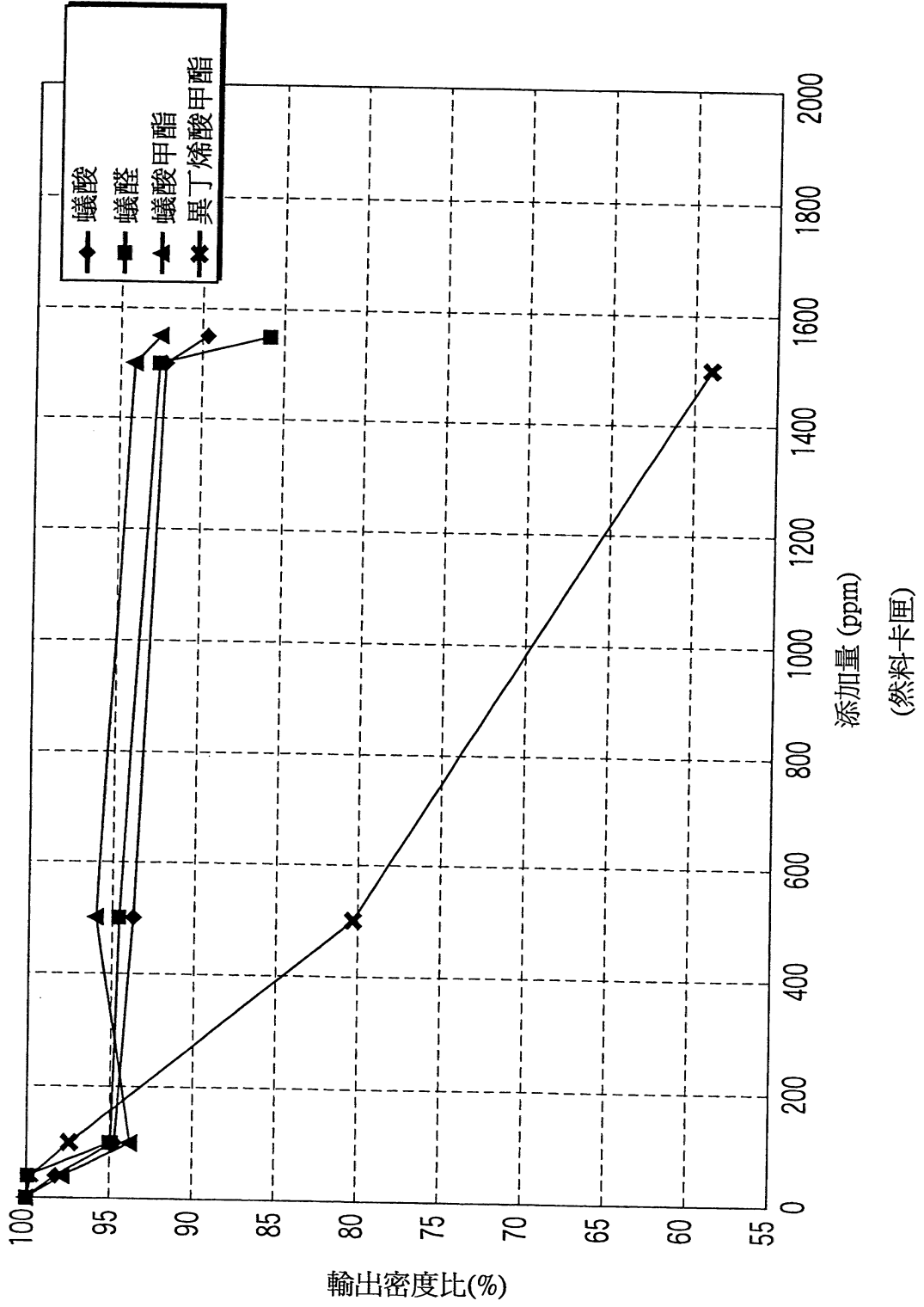
第2圖



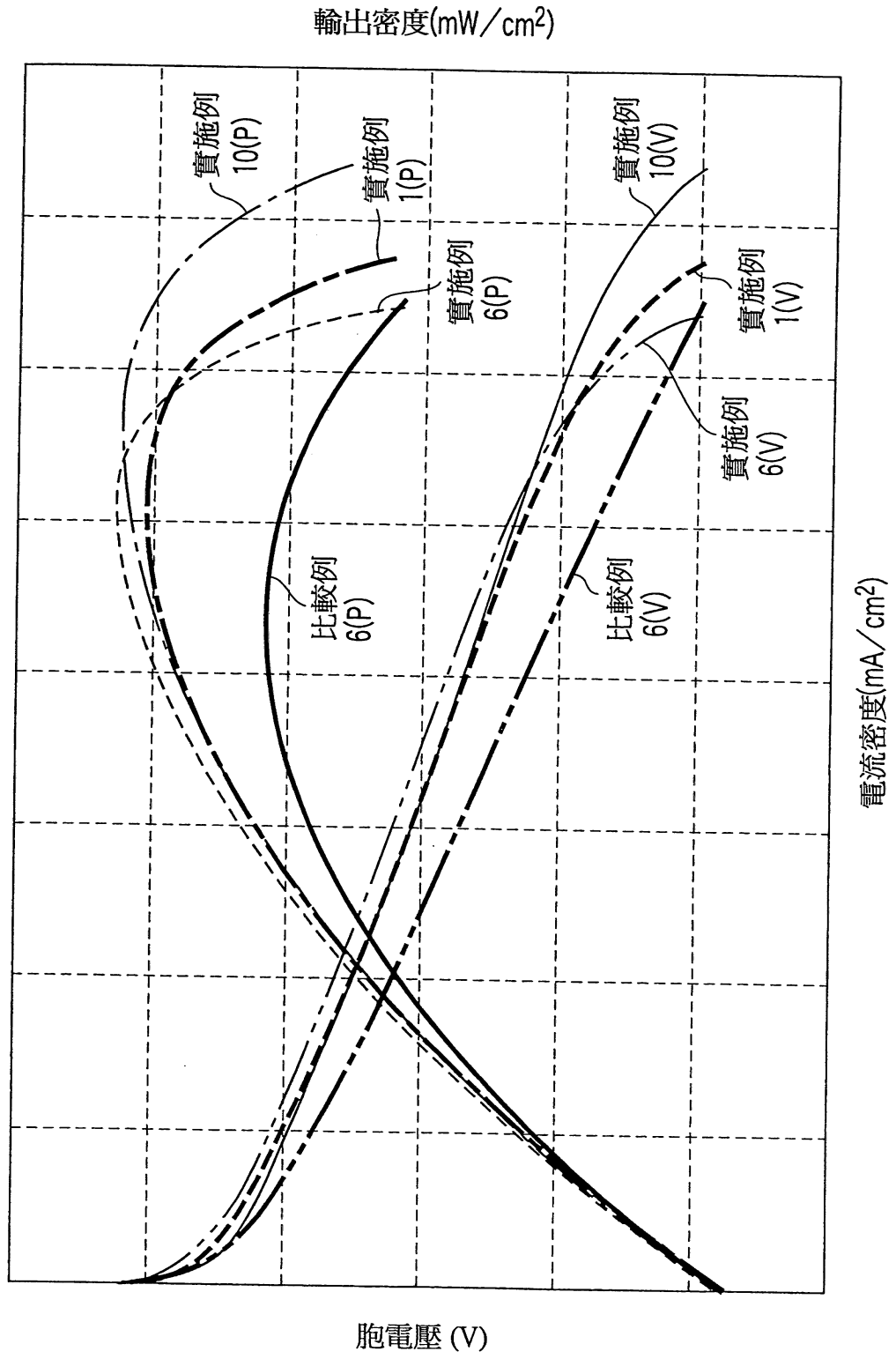
第3圖



第4圖



第5圖



七、指定代表圖：

(一)、本案指定代表圖為：第( 1 )圖

(二)、本代表圖之元件符號簡單說明：

- 1：燃料電池
- 2：燃料電池胞
- 3：燃料槽
- 4：燃料電池本體
- 5：燃料卡匣
- 6：插座部
- 7：燃料供給部
- 8：卡匣本體
- 9：噴嘴部

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：