

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-174759

(P2005-174759A)

(43) 公開日 平成17年6月30日(2005.6.30)

(51) Int.Cl.⁷

H01M 8/02

F I

H01M 8/02

L

テーマコード (参考)

5H026

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2003-413584 (P2003-413584)

(22) 出願日 平成15年12月11日 (2003.12.11)

(71) 出願人 800000080

タマティーエルオー株式会社

東京都八王子市旭町9番1号 八王子スク

エアビル11階

(74) 代理人 100091513

弁理士 井上 俊夫

(72) 発明者 劉 賓虹

東京都八王子市中野町2665-1 工学

院大学八王子学舎 株式会社水素エネルギ

ー研究所八王子研究所内

(72) 発明者 李 洲鵬

東京都八王子市中野町2665-1 工学

院大学八王子学舎 株式会社水素エネルギ

ー研究所八王子研究所内

最終頁に続く

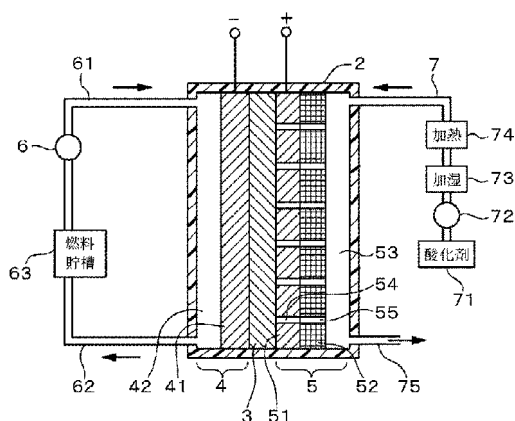
(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物例えば水素化ホウ素ナトリウムのアルカリ水溶液を用い、酸化剤として例えば水分を含んだ空気を用いる燃料電池において、酸化剤極の表面における金属水酸化物例えば水酸化ナトリウムの付着量を抑え、出力の安定化を図ること。

【解決手段】 酸化剤極の厚さ方向に多数の透孔を形成し、空気の負圧により酸化剤極内に生成した水酸化ナトリウムを、前記透孔を介して排出する。或いは酸化剤極と透過膜との間にプレート进行介在させ、このプレートに上下に連通する切り欠きを多数形成して、この中に水酸化ナトリウムを含浸させた吸収部材を設け、ここに水酸化ナトリウムをトラップして落液排出させる。また切り欠きに例えば水酸化ナトリウムを通流させて、これにより排出するようにしてもよい。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

前記酸化剤極における透過膜の反対側に設けられ、酸素含有ガスを通流するための通流部と、

前記酸化剤極における透過膜側の面から、その反対側の面に貫通して多数形成され、酸化剤極で生成された生成物が排出されるための第 1 の透孔と、を備えたことを特徴する燃料電池。

【請求項 2】

10

前記通流部は、前記酸化剤極における透過膜の反対側の面に積層して設けられたガス拡散層と、このガス拡散層における酸化剤極の反対側に形成された通流空間と、から構成され、

前記ガス拡散層には、前記多数の第 1 の透孔に夫々対向し、前記通流空間に開口する多数の第 2 の透孔が形成されたことを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】

透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させてなる単位セルをセパレータを介して複数積層させて構成し、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

前記セパレータに形成され、酸化剤の通流空間をなす凹部と、

20

前記酸化剤極における透過膜側の面から、その反対側の面に貫通して多数形成され、酸化剤極で生成された生成物が排出されるための第 1 の透孔と、

前記酸化剤極とセパレータとの間に設けられたガス拡散層と、

前記多数の第 1 の透孔に夫々対向すると共に前記凹部に開口するように前記ガス拡散層に形成された多数の第 2 の透孔と、を備えたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 4】

透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

酸化剤極と透過膜との間に設けられ、燃料極側から透過膜を透過した金属イオンが酸化剤極側へ移動すると共に酸化剤極で生成された生成物を吸収させる吸収部材と、

30

この吸収部材に吸収され、重力により降下した前記生成物を排出するために当該吸収部材の下端側に設けられた排出路と、を備えたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 5】

酸化剤極と透過膜との間にプレートを設置、このプレートにその両面を貫通すると共に上部側から下部側まで連続する空間を形成し、この空間に吸収部材を設けたことを特徴とする請求項 4 記載の燃料電池。

【請求項 6】

透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

酸化剤極と透過膜との間に設けられ、酸化剤極の面に沿って電解質液を通流させる電解質液通流部と、

40

この電解質液通流部に電解質液を供給する供給口と、

前記電解質液通流部から電解質液を排出する排出口と、

燃料極側から透過膜を透過した金属イオンが前記電解質液を介して酸化剤極側へ移動すると共に、酸化剤極側で生成された生成物が電解質液と共に排出されることを特徴とする燃料電池。

【請求項 7】

金属水素錯化合物が水素化ホウ素錯化合物であることを特徴とする請求項 1 ないし 6 のいずれかに記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

50

【技術分野】

【0001】

本発明は、例えばテトラヒドロホウ酸塩などの金属水素錯化合物のアルカリ水溶液からなる燃料液が供給される燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、負極及び正極に夫々燃料及び酸化剤を連続的に供給し、そのときに起こる化学反応により得られるエネルギーを電氣的エネルギーに変換する装置であり、環境にやさしいクリーンな動力源として注目を集めている。例えばメタノールを改質して水素リッチなガスを取り出し、この水素リッチなガスを燃料として用いる燃料電池は従来から良く知られているが、最近において水素化ホウ素ナトリウム（ NaBH_4 ）などの水素化ホウ素錯化合物の液体燃料を用いた燃料電池（ボロハイドライド燃料電池）が検討されている。例えば水素化ホウ素ナトリウムはアルカリ水溶液中において安定しており、 BH_4^- を BO_2^- に変換するときの電気化学的電位がより卑になることから理論電圧が高く、また水素を発生させる改質器が不要であるなどの利点がある。この種の燃料電池は特許文献1及び2に記載されている。

10

【0003】

例えば特許文献1には、図15に示すボロハイドライド燃料電池が記載されている。この燃料電池は、樹脂などの絶縁性のケース体11内を高分子電解質膜からなる透過膜12により2つの領域に区画し、一方の領域には酸化剤極13が透過膜12の一面側に接触して設けられ、また他方の領域には燃料極14が透過膜12の他面側に接触して設けられている。酸化剤極13及び燃料極14は、例えばニッケルなどの粒状焼結体或いは発泡体などの多孔質体を基材とし、その表面に電極触媒である白金、パラジウムなどの貴金属をメッキしたものなどが用いられる。更に酸化剤極13とケース体11の一方の側面との間には、酸化剤例えば空気を通流させる第1の通流部15が形成され、また燃料極14とケース体11の他方の側面との間には燃料を通流させる第2の通流部16が形成されている。

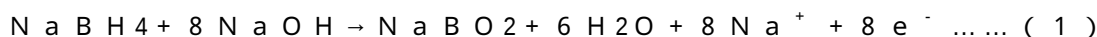
20

【0004】

このような燃料電池においては、第1の通流部15に例えば加湿された空気を通流させると共に第2の通流部16に水素化ホウ素ナトリウムのアルカリ水溶液である燃料を通流させると、燃料極14では8電子反応である(1)式の反応が主として起こる。

30

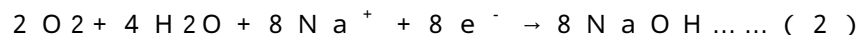
【0005】



燃料極14で生成したナトリウムイオン（ Na^+ ）は、透過膜12を通過して酸化剤極13に移動し、電子は外部に接続された図示しない回路を通して酸化剤極13に受け渡される。そして、酸化剤極13では、下記の(2)式に示すように、外部に接続された回路を通して電子が受け渡され、外部から酸化剤として供給された酸素（ O_2 ）及び水（ H_2O ）と、透過膜12から移動してきたナトリウムイオンとが触媒作用により反応して水酸化ナトリウム（ NaOH ）を生成する。また透過膜12から移動してきた水素イオンが酸素と反応して水を生成する反応も起こっている。

【0006】

40



【特許文献1】特表2000-502832（図1）

【特許文献2】特開2002-50375（図2）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながらボロハイドライド燃料電池は、実施レベルとして技術が確立されているとは言い難く、電氣的特性及び使用寿命などにおいて改善すべきところが多い。例えばある負荷を接続したときに負荷の大きさが変わらなければ一定電流が流れ、出力電圧が安定していることが理想であるが、この燃料電池では、酸化剤極13での電極反応が進むにつれ

50

て酸化剤極 1 3 で生成された水酸化ナトリウムが当該電極 1 3 の白金、パラジウムなどの貴金属の表面を被覆し、その被覆量が時間と共に増加することによって、(2) 式の反応が阻害され、時間の経過と共に燃料電池の出力電圧が低下するという課題がある。

【 0 0 0 8 】

本発明はかかる事情に鑑みてなされたものであって、その目的は、金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用いる燃料電池において、酸化剤極の表面における生成物の付着量を抑え、出力電圧の安定化を図ることにある。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 9 】

本発明は、透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

前記酸化剤極における透過膜の反対側に設けられ、酸素含有ガスを通流するための通流部と、

前記酸化剤極における透過膜側の面から、その反対側の面に貫通して多数形成され、酸化剤極で生成された生成物が排出されるための第 1 の透孔と、を備えたことを特徴とする。

【 0 0 1 0 】

またこの発明において、前記通流部は、前記酸化剤極における透過膜の反対側の面に積層して設けられたガス拡散層と、このガス拡散層における酸化剤極の反対側に形成された通流空間と、から構成され、

前記ガス拡散層には、前記多数の第 1 の透孔に夫々対向し、前記通流空間に開口する多数の第 2 の透孔が形成された構成とすることができる。

【 0 0 1 1 】

他の本発明は、透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させてなる単位セルをセパレータを介して複数積層させて構成し、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

前記セパレータに形成され、酸化剤の通流空間をなす凹部と、

前記酸化剤極におけ透過膜側の面から、その反対側の面に貫通して多数形成され、酸化剤極で生成された生成物が排出されるための第 1 の透孔と、

前記酸化剤極とセパレータとの間に設けられたガス拡散層と、

前記多数の第 1 の透孔に夫々対向すると共に前記凹部に開口するように前記ガス拡散層に形成された多数の第 2 の透孔と、を備えたことを特徴とする。

【 0 0 1 2 】

更に他の本発明は、透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

酸化剤極と透過膜との間に設けられ、燃料極側から透過膜を透過した金属イオンが酸化剤極側へ移動すると共に酸化剤極で生成された生成物を吸収させる吸収部材と、

この吸収部材に吸収され、重力により降下した前記生成物を排出するために当該吸収部材の下端側に設けられた排出路と、を備えたことを特徴とする。またこの燃料電池は、酸化剤極と透過膜との間にプレートを設け、このプレートにその両面を貫通すると共に上部側から下部側まで連続する空間を形成し、この空間に吸収部材を設けてもよい。

【 0 0 1 3 】

更にまた他の発明は、透過膜を燃料極と酸化剤極との間に介在させ、燃料として金属水素錯化合物のアルカリ水溶液を用い、酸化剤として酸素含有ガスを用いる燃料電池において、

酸化剤極と透過膜との間に設けられ、酸化剤極の面に沿って電解質液を通流させる電解質液通流部と、

この電解質液通流部に電解質を供給する供給口と、

前記電解質液通流部から電解質液を排出する排出口と、

10

20

30

40

50

燃料極側から透過膜を透過した金属イオンが電解質液を介して酸化剤極側へ移動すると共に、酸化剤極側で生成された生成物が電解質液と共に排出されることを特徴とする。上記で述べた燃料電池の燃料として使用される金属水素錯化合物は例えば水素化ホウ素ナトリウムである。

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、酸化剤極に多数の透孔を形成しているため、酸化剤極で生成された生成物がこれら透孔に拡散して、酸化剤極に供給された酸化剤と共に排出される。また他の発明によれば、酸化剤極で生成された生成物が吸収部材によって吸収され、重力により下降して排出される。更にまた他の発明によれば、酸化剤極で生成された生成物が外部から供給される電解質液により排出される。このため酸化剤極の表面に付着した付着物が低減し、燃料電池の出力特性の安定化を図ることができる。

10

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

〔第1の実施の形態〕

本発明に係る燃料電池の第1の実施の形態について説明するが、初めに図1及び図2を参照しながらこの第1の実施の形態の基本的な構成について述べておく。図1において、2はケース体であり、このケース体2内には透過膜3により燃料極（負極）室4と酸化剤極（正極）室5とに区画されている。燃料極室4には、板状の燃料極41がその一面側を透過膜3に接触するように設けられると共に、燃料極41の他面側とケース体2との間には、燃料の通流部42をなす通流空間が形成されている。この通流部42の一端側に対応する部位には、燃料供給口が形成されており、ここに供給ポンプ6が介設された燃料供給路61が接続されている。また通流部42の他端側に対応する部位には、燃料排出口が形成されており、ここには排出路62が接続されている。そしてこの例では、燃料供給路61の上流側と排出路62の下流側との間には燃料供給源である燃料貯槽63が介在しており、燃料供給路61及び排出路62により燃料の循環路が構成されている。

20

【0016】

前記酸化剤極室5には、板状の酸化剤極51がその一面側を透過膜3に接触するように設けられており、酸化剤極51の他面側には酸化剤である酸素含有ガスを拡散し易くするための多孔質マット例えばカーボン繊維からなるガス拡散層52が積層して設けられている。このガス拡散層52とケース体2との間には、通流空間53が形成されおり、この例ではガス拡散層52と通流空間53とにより酸化剤の通流部が構成される。このように酸化剤極室5側にガス拡散層52を設けることで、通流空間53に供給された酸化剤はガス拡散層52によって拡散され、酸化剤極51に酸化剤を効率よく供給することができる。

30

【0017】

また前記酸化剤極51には、酸化剤極51で生成された生成物この例では水酸化ナトリウム（ NaOH ）を除去するための第1の透孔54が酸化剤極51における透過膜3側の面から、その反対側の面に貫通して多数形成されている。更に前記ガス拡散層52には、第1の透孔内の生成物が排出されるための第2の透孔55が多数の第1の透孔54に夫々対向するように、つまり連通するように形成されている。従って酸化剤極51で生成された生成物は、第1の透孔54及び第2の透孔55を通して、通流空間53を介して排出されることになる。この第1の透孔54及び第2の透孔55の孔径は、例えば1mmであり、第1の透孔54及び第2の透孔55において互に隣接する孔と孔との中心間距離は、例えば5mmである。前記通流空間53の一端側に対応する部位には酸化剤供給口が形成されており、この酸化剤供給口には酸化剤供給路7が接続されている。そしてこの酸化剤供給路7には上流側から酸化剤供給源71、供給ポンプ72、加湿手段73及び加熱手段74がこの順に設けられている。また前記通流空間53の他端側に対応する部位には酸化剤排出口が形成されており、この酸化剤排出口には排出路75が接続されている。

40

【0018】

以上の燃料電池において、ケース体2を構成する材料としては、絶縁材が有利であり、

50

例えば絶縁性セラミックス、樹脂及び金属酸化物などが用いられる。透過膜 3 としては例えば陽イオン透過性膜などからなる高分子電解質膜を用いることができ、陽イオン透過性膜としては例えば商品名「ナフィオン」(デュポン株式会社製)を用いることができるが、陰イオン透過性膜或いは陽イオン、陰イオンの両方を透過する双極性透過膜などを用いることができる。この実施の形態では、沸騰している水酸化ナトリウム水溶液に前記「ナフィオン」を浸漬して煮沸処理したものを使用している。「ナフィオン」はフッ素樹脂を骨格としてこのフッ素樹脂中の炭素に SO_3^- イオンが結合しており、このイオンに水素イオン (H^+) が吸着している状態である。そこで水酸化ナトリウムにより煮沸処理すると水素イオン (H^+) がナトリウムイオン (Na^+) により置き換わる。即ち市販の上記の透過膜は交換基がスルホン酸型 (SO_3H) であるが、水酸化ナトリウム水溶液により処理することでナトリウム型 (SO_3Na) に変わったことになる。 10

【0019】

燃料極 4 1 及び酸化剤極 5 1 としては、白金を分散した炭素又は鉄、ニッケル、クロム、銅、白金、パラジウムなどの金属或いはそれらの金属の合金が用いられ、発電効率や耐久性がよく、低コストという点でニッケル又はニッケル・クロム合金の多孔体、例えば粒状焼結体や発泡材を基材とし、その表面に白金、パラジウムなどの貴金属からなる触媒をメッキして触媒層を形成したものなどが用いられる。この実施の形態では例えば両面に触媒層が形成された燃料極 4 1 及び酸化剤極 5 1 を用いる。

【0020】

また燃料極 4 1 としては、上記の電極材料を用いてもよいが、特に好ましいのは水素吸蔵合金又はその水素化物である。この水素吸蔵合金又はその水素化物は、水素を可逆的に吸収、放出し得るものであれば特に制限はなく、例えば Mg_2Ni 合金、 Mg_2Ni と Mg との共晶合金のような Mg_2Ni 系合金の A2B 型合金、 ZrNi_2 系合金、 TiNi_2 系合金などのラベス相系 AB2 型合金、 TiFe 系合金のような AB 型合金、 LaNi_5 系合金のような AB5 型合金、 TiV_2 系合金のような BCC 型合金の中から任意に選ぶことができる。 20

【0021】

この中で好ましいのは、 $\text{LaNi}_{4.7}\text{Al}_{0.3}$ 合金、 $\text{MmNi}_{0.35}\text{Mn}_{0.4}\text{Al}_{0.3}\text{Co}_{0.75}$ 合金 (但し、Mm はミッシュメタル)、 $\text{MmNi}_{3.75}\text{Co}_{0.75}\text{Mn}_{0.20}\text{Al}_{0.30}$ 合金 (但し、Mm はミッシュメタル)、 $\text{Ti}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{Mn}_{0.8}\text{Cr}_{0.8}\text{Ni}_{0.4}$ 、 $\text{Ti}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{Ni}$ 、 $\text{Ti}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{V}_{0.75}\text{Ni}_{1.25}$ 、 $\text{Ti}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{Ni}_{1.5}$ 、 $\text{Ti}_{0.1}\text{Zr}_{0.9}\text{V}_{0.2}\text{Mn}_{0.6}\text{Co}_{0.1}\text{Ni}_{1.1}$ 、 $\text{MnNi}_{3.87}\text{Co}_{0.78}\text{Mn}_{0.10}\text{Al}_{0.38}$ (但し、Mm はミッシュメタル) などである。 30

【0022】

これらの水素吸蔵合金又はその水素化物は、表面をフッ素処理することにより、その性能を著しく高めることができる。即ち、このようなフッ素化処理を行うことにより、接触する負極液 (燃料液) に対する耐腐食性が付与され、且つ長時間に亘って高い発電容量を維持しうる。このフッ素処理は、例えば水素吸蔵合金又はその水素化物をフッ素化剤含有水溶液中に浸漬し、その表面をフッ素化することによって行われる。

【0023】

酸化剤極 5 1 に供給される酸化剤としては、酸素ガス又は空気であってもよいが、既述の (3) の反応が進行するためには図 1 に示すように、これら酸化剤ガス中に例えば加湿器 7 3 により水分を含ませることが好ましい。 40

【0024】

酸化剤極室 5 側のガス拡散層 5 2 は、多孔質マット例えばカーボン繊維に限られず、酸化剤極 5 1 に接触する酸化剤ができるだけ全体に拡散できる構造のものが好ましく、例えば網状構造体が好ましい。この他に多孔質シート、発泡シートなどを挙げることができる。

【0025】

また燃料としては、金属水素錯化合物のアルカリ水溶液が用いられ、金属水素錯化合物 50

としては例えば水素化ホウ素ナトリウム、水素化ホウ素カリウム (KBH_4)、又は水素化ホウ素リチウム (LiBH_4) などの水素化ホウ素錯化合物を挙げることができるが、その他に水素化アルミニウムリチウム (LiAlH_4)、水素化ホウ素亜鉛 ($\text{Zn}(\text{BH}_4)_2$) などを挙げることができる。アルカリ水溶液としては、例えば水酸化ナトリウムや水酸化カリウムなどのアルカリ金属水酸化物を用いることができる。アルカリ水溶液の濃度は、あまり高濃度にすると金属水素錯化合物が溶解しにくくなるので、例えば 30 重量 % の範囲で選択することがこの好ましく、例えば 20 重量 % に調製される。金属水素錯化合物は、目的とする発電容量及びアルカリ水溶液に対する溶解性を考慮して例えば 0.1 ~ 50 重量 % の濃度で用いることが好ましい。

【0026】

10

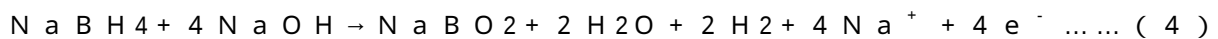
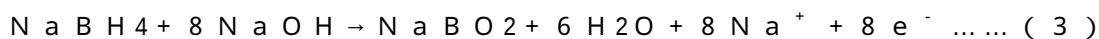
次にこの実施の形態の作用について図 1 及び図 2 を参照しながら説明する。酸化剤供給源 71 からの酸化剤例えば空気を供給ポンプ 72 により酸化剤極室 5 の通流空間 53 に供給する。ここで酸化剤を通流空間 53 に供給する前に加湿器 73 により例えば絶対温度で 30 ~ 70 % 程度に加湿し、更に加熱器 74 で必要な温度、例えば 40 ~ 90 °C に加熱する。通流空間 53 を通流した空気は、ガス拡散層 52 により拡散されながら酸化剤極 51 にまで達する。

【0027】

一方燃料貯槽 63 から例えば水素化ホウ素ナトリウムを水酸化ナトリウムに溶解させる燃料を供給ポンプ 6 により燃料極室 4 の通流部 42 に供給する。この例では、通流部 42 から排出された燃料は燃料貯槽 63 に戻され、循環される。燃料極室 4 内に供給された燃料は燃料極 41 内に浸透していき、このとき従来技術の項目でも述べたように (3) 式 (既述の (1) 式に相当する。) で示される 8 電子反応が主として起こり、また (4) 式で示される 4 電子反応も起こっていると考えられる。

20

【0028】



このようにして燃料極 41 から電子が、外部に接続された回路に取り出されると共に、燃料中のナトリウムイオン (Na^+) が透過膜 3 を通って酸化剤極室 5 側に移動して既述の (2) 式に示したようにナトリウムイオンと酸素及び水分とから水酸化ナトリウム (NaOH) が酸化剤極 51 の表面に生成される。そして酸化剤極 51 に生成された水酸化ナトリウムが各第 1 の透孔 54 内の周面部に染み出て、前記ケース体 2 内に生じた気流 (負圧) によって周面部に染み出た水酸化ナトリウムが飛ばされる。そのことによって周面部の水酸化ナトリウム濃度が減少するので、酸化剤極 51 内部の水酸化ナトリウムが周面部へと移動し、同様にして気流 (負圧) によって水酸化ナトリウムが飛ばされることになる。このように気流 (負圧) によって飛ばされた水酸化ナトリウムは、ガス拡散層 52 に形成された多数の第 2 の透孔 55 を通って通流空間 53 側へと流れ、そして通流空間 53 に供給された酸素含有ガスと共に排出される。

30

【0029】

このように上述の実施の形態によれば、酸化剤極 51 の表面に生成された水酸化ナトリウムが気流 (負圧) によって排除されるので、触媒表面への水酸化ナトリウムの被覆 (付着量) が抑えられて、広い活性領域を確保でき、水酸化ナトリウムによる反応の阻害が緩和されるため安定した出力特性を得ることができる。

40

【0030】

次に上述の実施の形態をより具体化した例について図 3 ~ 図 7 を参照しながら説明する。この例は図 1 に示す単位セルを積層して燃料電池スタックとして構成したものである。但し、この明細書では燃料電池スタックを燃料電池と呼ぶことにする。以下の説明において、図 1 に相当する部分については便宜上同じ符号を付しておく。図 3 中の 6A、6B は、例えば導電性材料からなるセパレータ (バイポーラプレート) であり、これらセパレータ 6A、6B の間には透過膜 3 が配置される。透過膜 3 と一方のセパレータ 6A との間には燃料極 41 が配置されると共に透過膜 3 と他方のセパレータ 6B との間には酸化剤極 5

50

1 及びガス拡散層 5 2 が配置され、燃料極 4 1、透過膜 3、酸化剤極 5 1、ガス拡散層 5 2 及び後述のガスケット 7 A、7 B を含む単位セル 8 A が図 4 に示すようにセパレータ 6 A 及び 6 B を介して複数個積層され、この積層体がエンドプレート 9 A 及び 9 B の間に固定される。燃料極 4 1、透過膜 3、酸化剤極 5 1 及びガス拡散層 5 2 は例えば接着剤などで互いに固定され、膜・電極接合体 (MEA: Membrane Electrode Assembly) を構成している。

【0031】

各セパレータ 6 A、6 B の表面 (図 3 中の手前側の面) 及び裏面 (奥側の面) には、各々屈曲した燃料及び酸化剤の通流空間をなす凹部である溝流路が形成されている。各セパレータ 6 A、6 B の表面側の溝流路は酸化剤供給流路 8 0 であり、裏面側の溝流路は燃料供給流路 8 1 である。前記酸化剤供給流路 8 0 及び前記燃料供給流路 8 1 は先の実施の形態の通流空間 5 3 及び通流部 4 2 に夫々相当する。なお図 3 において左端には、セパレータ 6 A の裏面側を見せている。7 A、7 B はガスケットであり、これらガスケット 7 A、7 B には各々窓 8 2 が形成されている。一方のガスケット 7 A の窓 8 2 には、燃料極 4 1 が密に嵌合され、他方のガスケット 7 B の窓 8 2 には酸化剤極 5 1 及びガス拡散層 5 2 が密に嵌合される。

【0032】

図 3 の手前側のセパレート 6 A の酸化剤供給流路 8 0 の左上端から供給された酸化剤は、当該酸化剤供給流路 8 0 内を流れて右下の孔部 8 0 a に到達し、ガスケット 7 A の孔 8 0 b、透過膜 3 の孔 8 0 c 及びガスケット 7 B の孔 8 0 d を通ってセパレータ 6 B の酸化剤供給流路 8 0 の右下端に到達し、当該酸化剤供給流路 8 0 を通って孔部 8 0 e に流れる。また燃料は、セパレータ 6 A の左下の孔部 8 1 a から燃料供給流路 8 1 内を流れて上端に到達し、ここからガスケット 7 A の孔 8 1 b、透過膜 3 の孔 8 1 c、ガスケット 7 B の孔 8 1 d 及びセパレータ 6 B の孔 8 1 e を通って当該セパレータ 6 B の裏面側の図では見えない燃料液供給流路 8 1 を流れることとなる。

【0033】

ここで酸化剤極 5 1 の表面に生成された水酸化ナトリウムの排出経路を図 5 に示すと、ガス拡散層 5 2 に形成された第 2 の透孔 5 5 は、酸化剤供給流路 8 0 に開口しているので、生成された水酸化ナトリウムは、酸化剤供給流路 8 0 に流れる空気の負圧によって酸化剤極 5 1 の第 1 の透孔 5 4 及び前記第 2 の透孔 5 5 を通って酸化剤供給路 8 0 へと流れ、空気と共に孔部 8 0 e から排出される。

【0034】

また図 1 及び図 5 では、便宜上透孔 5 4、5 5 を大きく記載してあるが、実際には第 1 の透孔 5 4 は、例えば図 6 (a) に示すように、酸化剤極 5 1 の表面に縦横に並べて設けられている。また第 1 の透孔 5 4 は、図 6 (b) に示すように酸化剤極 5 1 の一辺に対して傾斜し、互に並行に伸びる多数のスリットとして形成してもよい。なおガス拡散層 5 2 に形成された第 2 の透孔 5 5 は、図 6 (a) 及び図 6 (b) と同じ配列パターンで形成されている。図 6 (a) の構成では、酸化剤極 5 1 の電気伝導性を減らさずに、水酸化ナトリウムの通路を形成することができる。また図 6 (b) の構成では、酸化剤極 5 1 の有効電極面積を減らさずに水酸化ナトリウムの通路を形成することができる。後述の実施例に示すように、このような構成であれば、酸化剤極 5 1 の表面に生成した水酸化ナトリウムの排出が促進され、安定した出力特性を得ることができる。

〔第 2 の実施の形態〕

本発明に係る燃料電池の第 2 の実施の形態について図 7 ~ 図 10 を参照しながら説明する。この実施の形態は、図 3 に示した例のように単位セルを複数積層した燃料電池 (燃料電池スタック) として構成されたものであるが、酸化剤極側における水酸化ナトリウムを除去するための構成が異なる。

【0035】

図 7 において透過膜 3 と一方のセパレータ 6 A との間には燃料極 4 1 が配置されると共に透過膜 3 と他方のセパレータ 6 B との間にはプレート 9、酸化剤極 5 1 及びガス拡散層

10

20

30

40

50

５２が配置される。そして燃料極４１、透過膜３、プレート９、酸化剤極５１、ガス拡散層５２及びガasket ７Ａ、７Ｂを含む単位セル８Ａがセパレータ６Ａ及び６Ｂを介して複数個積層され、この積層体がエンドプレート９Ａ及び９Ｂの間に固定される。燃料極４１、透過膜３、プレート９、酸化剤極５１及びガス拡散層５２は例えば接着剤などで互いに固定され、膜・電極接合体を構成している。またこのプレート９は、酸化剤極５１及びガス拡散層５２と共に他方のガasket ７Ｂの窓８２に密に嵌合されている。

【００３６】

前記プレート９には、その両面を貫通すると共に上部側から下部側まで連続する空間（切り欠き空間）Ｓを形成し、この空間Ｓに吸収部材９０が嵌入されている。この吸収部材９０は、燃料極４１側から透過膜３を透過した金属イオン例えばナトリウムイオンが酸化剤極５１側に移動すると共に酸化剤極５１で生成された生成物例えば水酸化ナトリウムを吸収する構造となっている。またこの吸収部材９０を構成する材料としては、例えばカーボン紙、カーボン繊維などが用いられる。なお前記吸収部材９０には、例えば予め水酸化ナトリウムが含浸されているが、他の電解質液例えば水を浸漬させてもよい。このように吸収部材９０に予め水酸化ナトリウムを浸漬させておくと、この燃料電池において運転初期時の出力の立ち上がり時間が早くなるという効果がある。

【００３７】

図８に示すように前記プレート９内の切り欠き空間Ｓは、吸収部材９０によって吸収された水酸化ナトリウムが重力により降下し易いように、例えば櫛形状に形成されると共に横に伸びる部位が基端側に近づく程低くなる傾斜空間として形成されている。この櫛形状の空間Ｓの下端側は、ガasket ７Ｂの下端側に縦に形成された排出口９１と連通しており、この排出口９１は、図７に示すように透過膜３、セパレータ６Ａ、６Ｂ及びガasket ７Ａ、７Ｂを夫々貫通して設けられた排出路９２（図７中では、穴で表示）に接続され、この排出路９２を介して外部へ水酸化ナトリウムが排出される構成となっている。なお図７及び図８では、切り欠き空間Ｓのパターンは便宜上の記載としてあるが、実際には例えば２ｍｍ程度の横長の傾斜空間が例えば２ｍｍ間隔で形成される。また図９は、図７に示した単位セルの概略断面図である。

【００３８】

この例においては、次のような作用効果がある。即ち、既述の（２）式に示す正極反応は酸化剤極５１における透過膜３側の面で主として起こり、ここで水酸化ナトリウムが生成される。一方吸収部材９０に吸収されている水酸化ナトリウムは図１０に示すように重力により降下し、排出口９１を介して排出路９２に排出されるので、酸化剤極５１の面に付着している水酸化ナトリウムが吸収部材９０内に濃度拡散していく。このため酸化剤極５１における水酸化ナトリウムの被覆が抑えられ、燃料電池の出力が安定する。

【００３９】

また本発明では、プレート９を用いる代わりに、プレート９と同等の大きさの吸収部材を設けてもよい。即ち、この例では酸化剤極５１と透過膜との間全体に吸収層を介在させた構成となる。

〔第３の実施の形態〕

本発明に係る燃料電池の第３の実施の形態について図１１を参照しながら説明する。図１１では、単位セルを複数積層した燃料電池（燃料電池スタック）において、その一つの単位セルについて説明を行っている。この実施の形態も同様に、酸化剤極側における水酸化ナトリウムを除去するための構成に工夫がされている。図１１（ａ）において、透過膜３と酸化剤極５１との間には、酸化剤極５１の面に沿って電解質液例えば水酸化ナトリウムを通流させる電解質液通流部９４が設けられている。この前記電解質液通流部９４の上端側には電解質液を供給する供給口９５が形成され、下端側には電解質液を排出する排出口９６が形成されている。電解質液通流部９４としては、図１１（ｂ）に示すようにプレート９４ａに屈曲路９４ｂをなす切り欠き空間を形成して構成される。前記供給口９５及び排出口９６は、夫々接続路９７を介して燃料電池スタック外部の電解質液貯槽９８に接続されており、電解質液貯槽９８に貯まった電解質液を前記接続路９７に介設されたポン

10

20

30

40

50

ブ 9 9 によって電解質液通流部 9 4 に通流させ、電解質液を循環させる構成になっている。

【 0 0 4 0 】

このような構成であれば、酸化剤極 5 1 で生成された生成物例えば水酸化ナトリウムが電解質液通流部 9 4 に通流された電解質と共に排出されることで、上述と同様の効果を得ることができる。

【 0 0 4 1 】

なお、本発明の第 1 ～ 第 3 の実施の形態で説明した燃料電池において、酸化剤極 5 1 に生成される生成物は、燃料極 4 1 に供給する燃料の種類によって決まるものであり、燃料に含まれる金属の水酸化物である。

10

【 実施例 】

【 0 0 4 2 】

次に本発明の効果を確認するために行った実験について述べる。

A . 実施例 1

図 1 に示す単位セル構造の燃料電池に上述の図 6 (a) で示した酸化剤極を用いて、この燃料電池の出力電力の経時変化を調べた。電力の測定方法は、図 1 2 に示すように燃料電池 2 0 0 に定電流回路 2 0 1 を介して負荷抵抗 2 0 2 を接続し、負荷抵抗 2 0 2 に流れる電流を一定にして燃料電池 2 0 0 の出力電圧を測定し、定電流の大きさと出力電圧とに基づいて燃料電池 2 0 0 の出力電力の経時変化を求めた。測定条件は次の通りである。酸化剤極に供給する酸化剤は、空気を加湿器で 6 0 にまで加湿し、5 リットル / 分の流量で酸化剤極に供給した。燃料極に供給する燃料は、2 0 重量 % の水酸化ナトリウム水溶液に 1 0 重量 % の水素化ホウ素ナトリウムを溶解させて、温度を 6 0 に調節し、1 . 0 リットル / 分の流量で燃料極に供給した。

20

B . 実施例 2

上述の図 6 (b) で示した酸化剤極を用いた他は、実施例 1 と全く同様にして燃料電池 2 0 0 の出力電力の経時変化を求めた。

C . 比較例 1

図 1 に示す単位セルの燃料電池において酸化剤極及びガス拡散層に夫々透孔を形成しない従来構造の燃料電池を用いて、実施例 1 と全く同様にして出力電力の経時変化を求めた。

30

〔 結果及び考察 〕

図 1 3 は、実施例 1 (○)、実施例 2 () 及び比較例 1 (□) の結果を示し、縦軸に電力 (W) をとり、横軸に測定時間 (分) をとった特性図である。測定時間 1 7 0 分までの出力低下を夫々比較すると、酸化剤極に夫々水酸化ナトリウム液の排出用の透孔を形成している実施例 1 及び実施例 2 は、何れも約 3 W であるが、排出用の透孔を形成しない比較例 1 は、約 6 . 5 W と大きい値を示すことが分かる。よって酸化剤極に生成された水酸化ナトリウム液を除去する構成にある実施例 1 及び実施例 2 は、従来構造の燃料電池である比較例 1 よりも出力の経時変化が小さいことが理解できる。

D . 実施例 3

図 1 0 に示す酸化剤極側の構造を用いて単位セルの燃料電池を構成し、酸化剤極の酸化剤は、室温で空気をそのままの状態 (流動・供給することなく) 使用し、燃料極の燃料は、実施例 1 と同じ条件であるが、室温で燃料をそのままの状態 (流動・供給することなく) 使用した。この燃料電池の出力電圧を測定したところ図 1 4 に示す結果が得られた。なお酸化剤極における吸収部材とは反対側の面に、図 1 と同様のガス拡散層が設けられている。前記吸収部材は、予め水酸化ナトリウムを含浸させたカーボン繊維を用いた。

40

E . 比較例 2

吸収部材を設けない他は、実施例 3 と全く同様にして出力電圧を測定した。

〔 結果及び考察 〕

図 1 4 は、実施例 3 (■) 及び比較例 2 (▲) の結果を示し、縦軸に出力電圧 (V) をとり、横軸に測定時間 (分) をとった特性図である。実施例 3 は、酸化剤極 5 1 と接触す

50

るように吸収部材 90 が設けられているため経過時間に対して燃料電池の電圧の低下が小さいことが分かる。比較例 2 では、酸化剤（空気）が流動していないため経過時間と共に燃料電池の電圧が大幅に低下していることが分かる。よって酸化剤極に生成された水酸化ナトリウム液を吸収部材 90 で吸収することで燃料電池における出力の経時変化を小さくすることが理解できる。

【図面の簡単な説明】

【0043】

【図 1】本発明に係る燃料電池の第 1 の実施の形態の概略を示す断面図である。

【図 2】上記実施の形態の作用を示す説明図である。

【図 3】上記第 1 の実施の形態を具体的に示す分解斜視図である。

10

【図 4】上記第 1 の実施の形態の概観を具体的に示す斜視図である。

【図 5】上記第 1 の実施の形態の断面を具体的に示す断面図である。

【図 6】図 3 に示す燃料電池の酸化剤極の表面を説明した概観図である。

【図 7】本発明に係る燃料電池の第 2 の実施の形態の概略を示す分解斜視図である。

【図 8】本発明に係る燃料電池の第 2 の実施の形態の概観を示す分解斜視図である。

【図 9】本発明に係る燃料電池の第 2 の実施の形態の概略を示す断面図である。

【図 10】上記第 2 の実施の形態の作用を示す説明図である。

【図 11】本発明に係る燃料電池の第 3 の実施の形態の概観を示す説明図である。

【図 12】燃料電池の出力電力及び出力電圧を測定するための回路図である。

【図 13】本発明の燃料電池及び従来の燃料電池の電力測定を示した特性図である。

20

【図 14】本発明の燃料電池及び従来の燃料電池の電圧測定を示した特性図である。

【図 15】従来の燃料電池の概略を示す断面図である。

【符号の説明】

【0044】

2 ケース体

3 透過膜

4 燃料極室

4 1 燃料極

4 2 通流部

5 酸化剤極室

30

5 1 酸化剤極

5 2 ガス拡散層

5 3 通流空間

5 4 第 1 の透孔

5 5 第 2 の透孔

6 供給ポンプ

6 1 燃料供給路

6 2 排出路

6 3 燃料貯槽

7 酸化剤供給路

40

7 1 酸化剤供給源

7 2 供給ポンプ

7 3 加湿器

7 4 加熱手段

8 0 酸化剤供給流路

8 1 燃料供給流路

9 プレート

9 0 吸収部材

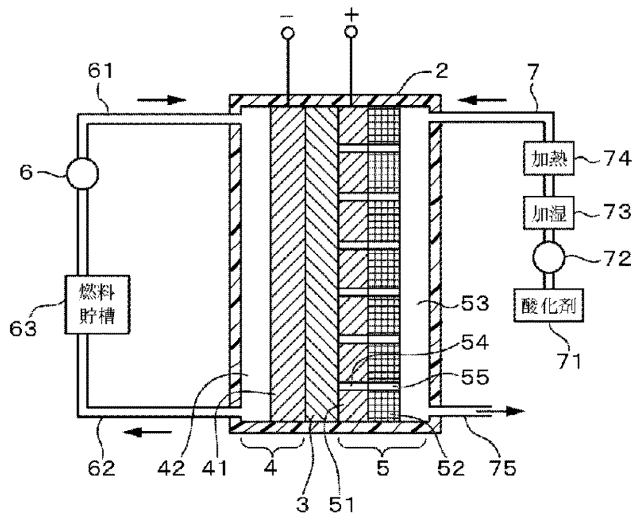
9 1 排出口

9 2 排出路

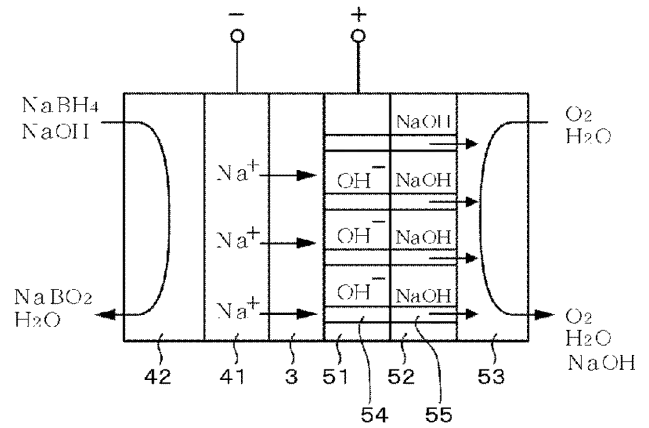
50

- 9 4 電解質液通流部
- 9 5 供給口
- 9 6 排出口
- 9 7 接続路
- 9 8 電解質液貯槽
- 9 9 ポンプ

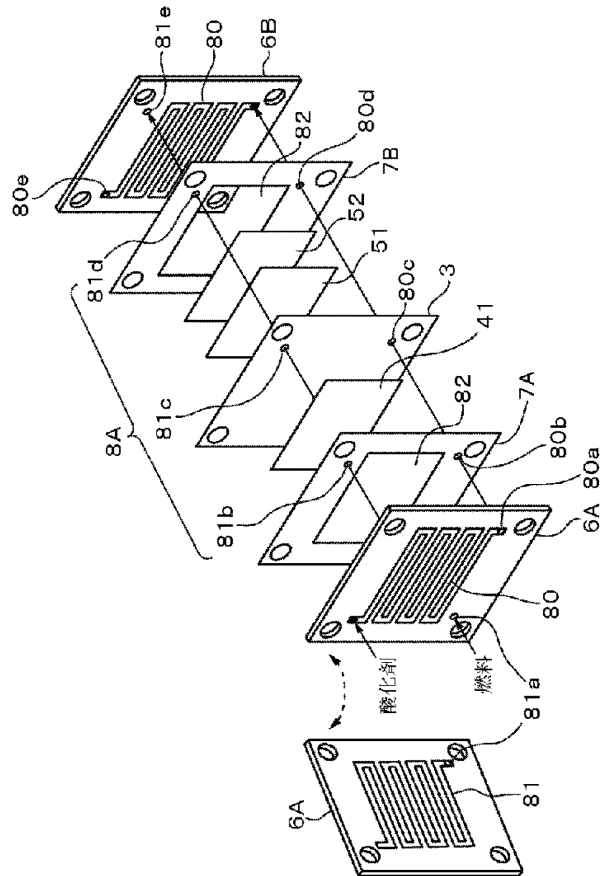
【図 1】



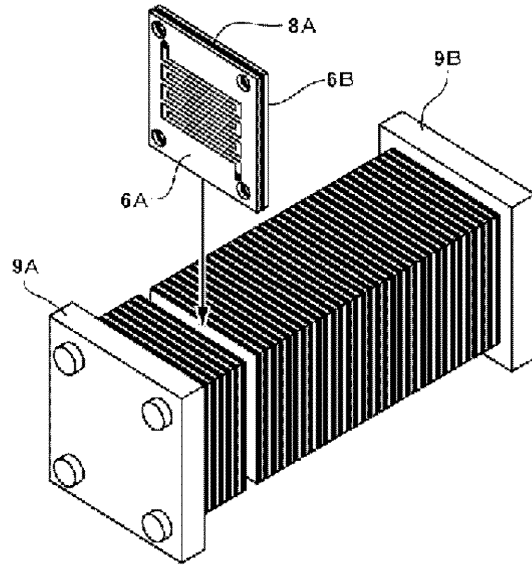
【図 2】



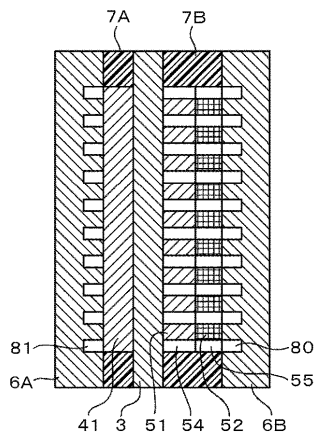
【図 3】



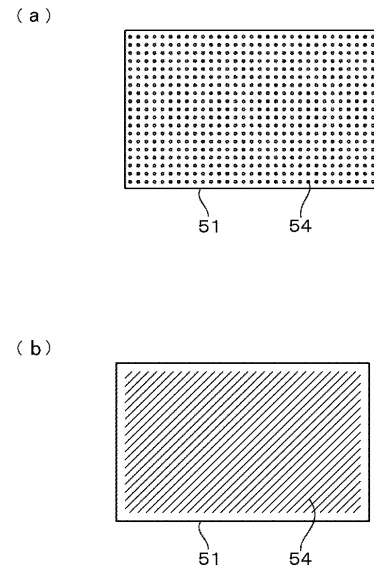
【図 4】



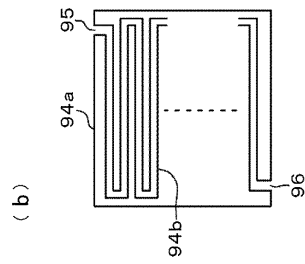
【図 5】



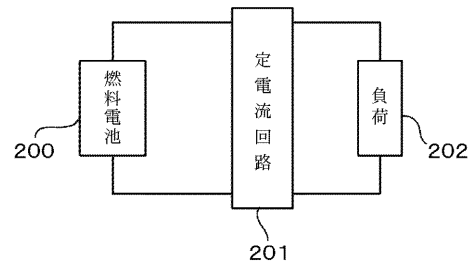
【図 6】



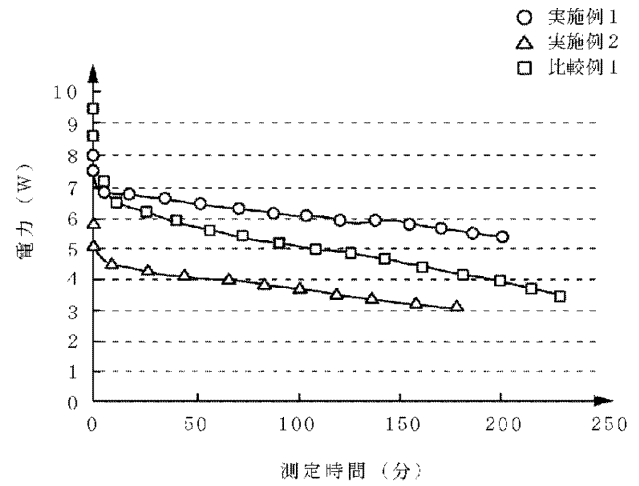
【図 1 1】



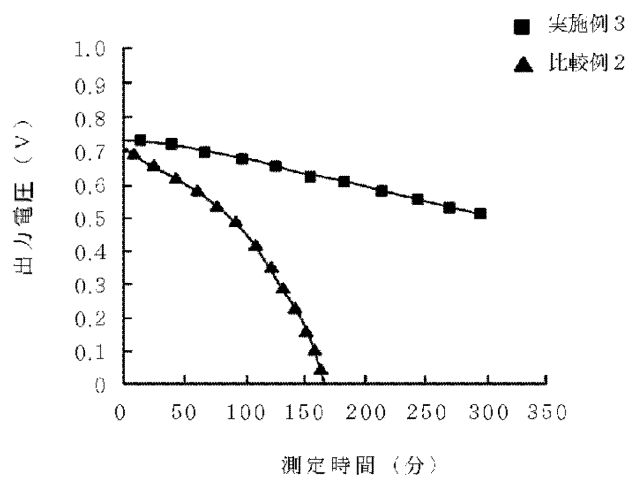
【図 1 2】



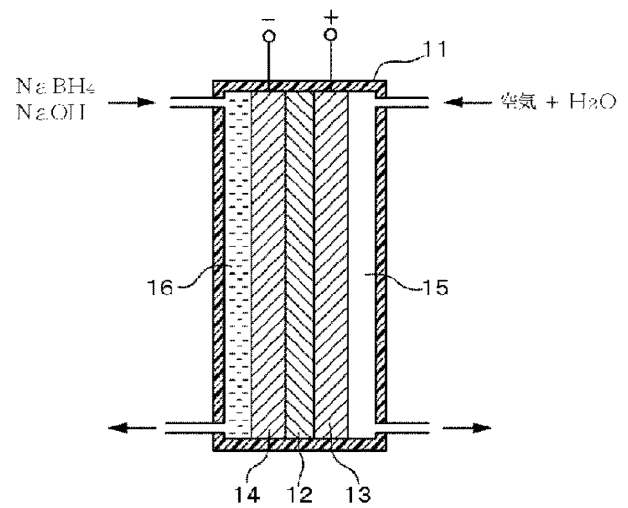
【図 1 3】



【図 1 4】



【図 1 5】



フロントページの続き

(72)発明者 荒井 邦仁
東京都八王子市中野町 2 6 6 5 - 1 工学院大学八王子学舎 株式会社水素エネルギー研究所八王
子研究所内

(72)発明者 須田 精二郎
神奈川県藤沢市辻堂太平台 2 - 1 - 4 8

Fターム(参考) 5H026 AA08 CX05 EE11