

(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2015-79639

(P2015-79639A)

(43) 公開日 平成27年4月23日(2015.4.23)

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード (参考)		
HO 1M	8/02	(2006.01)	HO 1M	8/02	E	5HO 18		
HO 1M	8/10	(2006.01)	HO 1M	8/10		5HO 26		
HO 1M	4/86	(2006.01)	HO 1M	4/86	M			

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 20 頁)

(21) 出願番号	特願2013-215925 (P2013-215925)	(71) 出願人	000005326 本田技研工業株式会社 東京都港区南青山二丁目1番1号
(22) 出願日	平成25年10月17日(2013.10.17)	(74) 代理人	100077665 弁理士 千葉 剛宏
		(74) 代理人	100116676 弁理士 宮寺 利幸
		(74) 代理人	100149261 弁理士 大内 秀治
		(74) 代理人	100136548 弁理士 仲宗根 康晴
		(74) 代理人	100136641 弁理士 坂井 志郎
		(74) 代理人	100169225 弁理士 山野 明

最終頁に続く

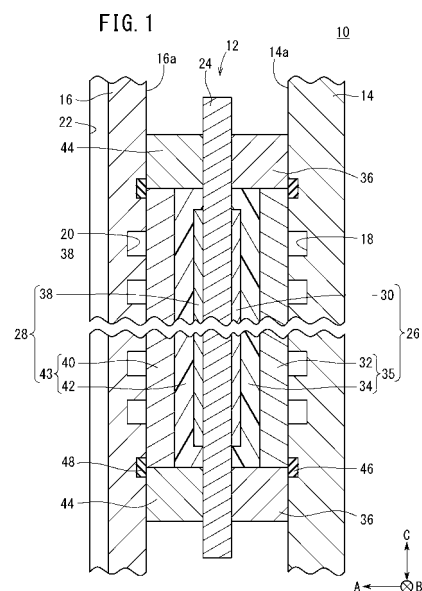
(54) 【発明の名称】 電解質膜・電極構造体

(57) 【要約】

【課題】電解質膜の物理的な変形を簡素な構成で抑制可能であり、且つ優れた発電特性を得ることが可能な電解質膜・電極構造体を提供する。

【解決手段】電解質膜・電極構造体12は、電解質膜24をアノード電極26とカソード電極28で挟持して構成される。アノード電極26は、電解質膜24に臨むアノード電極触媒層30と、アノードガス拡散層35とを有する。また、カソード電極28は、電解質膜24に臨むカソード電極触媒層38と、カソードガス拡散層43とを有する。アノードガス拡散層35は、カソードガス拡散層43に比して、電解質膜24に臨む側の表面うねりが小さい。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

固体高分子膜からなる電解質膜をアノード電極とカソード電極で挟持して構成される電解質膜・電極構造体であって、

前記アノード電極は、前記電解質膜に臨むアノード電極触媒層と、アノードガス拡散層とを有し、

前記カソード電極は、前記電解質膜に臨むカソード電極触媒層と、カソードガス拡散層とを有し、

前記アノードガス拡散層は、前記カソードガス拡散層に比して、前記電解質膜に臨む側の表面うねりが小さいことを特徴とする電解質膜・電極構造体。

10

【請求項 2】

請求項 1 記載の電解質膜・電極構造体において、

前記アノードガス拡散層の最大高さうねりが $10.0 \mu\text{m}$ 以下であり、

前記カソードガス拡散層の最大高さうねりが $20.0 \sim 50.0 \mu\text{m}$ であることを特徴とする電解質膜・電極構造体。

【請求項 3】

請求項 1 又は 2 記載の電解質膜・電極構造体において、

前記アノードガス拡散層の算術平均うねりが $1.5 \mu\text{m}$ 以下であり、

前記カソードガス拡散層の算術平均うねりが $3.0 \sim 5.0 \mu\text{m}$ であることを特徴とする電解質膜・電極構造体。

20

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の電解質膜・電極構造体において、

前記アノードガス拡散層は、前記アノード電極触媒層に臨むアノード多孔質層と、カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなり、

前記カソードガス拡散層は、前記カソード電極触媒層に臨むカソード多孔質層と、カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなることを特徴とする電解質膜・電極構造体。

【請求項 5】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の電解質膜・電極構造体において、

前記アノードガス拡散層は、電子伝導性物質及び撥水性樹脂を含むアノード多孔質層からなり、

前記カソードガス拡散層は、カーボンペーパー又はカーボクロスを含むことを特徴とする電解質膜・電極構造体。

30

【請求項 6】

請求項 5 記載の電解質膜・電極構造体において、

前記カソードガス拡散層は、前記カソード電極触媒層に臨むカソード多孔質層と、前記カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなることを特徴とする電解質膜・電極構造体。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】**

40

【0001】

本発明は、固体高分子電解質膜の両側にそれぞれ、電極触媒層及びガス拡散層を有する電極を備える電解質膜・電極構造体に関する。

【背景技術】**【0002】**

固体高分子型燃料電池のガス拡散層は、一般的に、カーボンペーパーやカーボクロス等から構成され、電解質膜・電極構造体の製造過程等において、電極触媒層を介して電解質膜に押圧される。この際、ガス拡散層のうねり等によって、電解質膜が物理的に変形する懸念がある。また、ガス拡散層の繊維が電極触媒層を貫通して電解質膜に突き刺さること等によって、電解質膜が物理的に損傷する懸念もある。以上のような事態が発生すると、

50

電解質膜の劣化が促進されたり、反応ガスに対するガスバリア性が低下したりしてしまう可能性がある。従って、この種の燃料電池の電解質膜・電極構造体では、ガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形及び損傷を十分に抑制する必要がある。

【0003】

そこで、例えば、特許文献1には、電極触媒層の面方向の結合状態を強固にすることで、ガス拡散層の繊維が電極触媒層越しに電解質膜に突き刺さることを防止する方法が提案されている。具体的には、電極触媒層の積層方向に不連続な電解質高比率部を設けている。

【0004】

また、特許文献2では、電解質膜の外周縁部に対して、ガス拡散層の繊維が通過することを阻止するための補強材料を設けることが提案されている。一般的に、電解質膜・電極構造体では、電解質膜に比して電極触媒層の外形寸法が小さくなるように形成されている。このため、電解質膜の外周縁部は、電極触媒層の外周から外部に露呈しており、ガス拡散層の影響を受け易い。従って、上記の補強材料は、この電解質膜の外周縁部とガス拡散層の外周縁部との間に配置されて、該ガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形や損傷を抑制する。具体的には、電解質膜の対向する2辺のみを電極触媒層の外周から外部に露出させる形状とし、該2辺側に補強材料を配置している。

【0005】

しかしながら、特許文献1、2のいずれに示す技術も、上記の通り、電極触媒層や電解質膜を特別な構成とする必要があること等から、電解質膜・電極構造体の構成が複雑となる。このため、電解質膜・電極構造体の生産性の低下や、製造コストの増加等が問題となる。また、特許文献2記載の方法では、電解質膜の外周縁部以外の部位について、ガス拡散層の影響による物理的な変形や損傷を抑制することが十分に考慮されていない。

【0006】

このような不都合を回避するべく、特許文献3には、電解質膜の全体と、電極触媒層ないしガス拡散層との間に補強層を介在させることが提案されている。この補強層は、電解質膜をガス拡散層から保護するものであり、アノード電極又はカソード電極の少なくともいずれか一方側に設けられている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開2010-40377号公報

【特許文献2】特開2010-146769号公報

【特許文献3】特開2005-332672号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

ところで、電解質膜・電極構造体では、アノード電極に比してカソード電極側の活性化過電圧が大きい。このため、カソード電極側の触媒量を多くして、活性化過電圧を低減させること、すなわち、アノード電極に比してカソード電極側の電極触媒層を厚く形成することが一般的である。換言すれば、アノード電極の電極触媒層は肉薄である。この分、電解質膜がアノード電極のガス拡散層のうねりや繊維等の影響を受け易い。一方で、カソード電極側では、燃料電池の発電反応に伴って生成水が生じるため、アノード電極に比して、いわゆるフラッディングが生じ易い。

【0009】

従って、特許文献3のように、アノード電極又はカソード電極の少なくともいずれか一方側に補強層を設けるのみでは、電解質膜の物理的な変形や損傷を十分に抑制することができない場合がある。さらには、補強層が上記のフラッディングを促進してしまうことや、電解質膜を乾燥させる一因になってしまう懸念がある。すなわち、電解質膜を適切に保護しつつ、燃料電池の発電特性を維持することについて、十分な考慮がなされていなかっ

10

20

30

40

50

た。

【0010】

本発明は、この種の問題を解決するものであり、ガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形や損傷を簡素な構成で適切に抑制しつつ、優れた発電性能を示す電解質膜・電極構造体を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

前記の目的を達成するために、本発明は、固体高分子膜からなる電解質膜をアノード電極とカソード電極で挟持して構成される電解質膜・電極構造体であって、前記アノード電極は、前記電解質膜に臨むアノード電極触媒層と、アノードガス拡散層とを有し、前記カソード電極は、前記電解質膜に臨むカソード電極触媒層と、カソードガス拡散層とを有し、前記アノードガス拡散層は、前記カソードガス拡散層に比して、前記電解質膜に臨む側の表面うねりが小さいことを特徴とする。

10

【0012】

一般的に、カソード電極の活性化過電圧は、アノード電極の活性化過電圧に比して大きい。このため、カソード電極では、活性化過電圧を低減させるべく、アノード電極に比して触媒量を多くしている。すなわち、アノード電極触媒層は、カソード電極触媒層に比して薄く形成されている。

【0013】

具体的な一例を挙げると、白金(Pt)等を触媒とした場合、電極触媒層が単位面積あたりに含有する触媒量は、アノード電極側で $0.01 \sim 0.20 \text{ mg/cm}^2$ 、カソード電極側で $0.05 \sim 1.00 \text{ mg/cm}^2$ である。また、この場合の電極触媒層の典型的な厚さは、アノード電極側が $0.5 \sim 10.0 \mu\text{m}$ 、カソード電極側が $1.0 \sim 50.0 \mu\text{m}$ である。

20

【0014】

従って、電解質膜では、アノード電極に臨む側の一面が、カソード電極に臨む側の面に比して、ガス拡散層のうねりや繊維等の影響を受け易い。一方で、カソード電極では、発電反応によって生成水が生じるため、アノード電極に比してフラッキングが生じ易い。

【0015】

本発明に係る電解質膜・電極構造体では、上記の通り、電解質膜に臨む側の表面うねりが、カソードガス拡散層に比して、アノードガス拡散層において小さく設定されている。ここで、表面うねりとは、表面粗さよりも低く且つ幾何偏差より高い周期からなる幾何形状であり、JIS B 0601:2013に示すように、例えば、最大高さうねり W_z 及び算術平均うねり W_a をパラメータとして定義される。

30

【0016】

これによって、アノード電極では、アノードガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形や損傷を効果的に抑制することができる。従って、電解質膜の劣化を抑制することや、反応ガスに対するガスバリア性を向上させることができ、電解質膜・電極構造体の耐久性を向上させることができる。

【0017】

また、電解質膜の変形が抑制される分、該電解質膜とアノード電極触媒層との接触面積が大きくなる。これによって、電解質膜とアノード電極触媒層との間でプロトンが効率よく授受されるようになるので、プロトン伝導の経路が確保され、燃料電池としての発電特性が向上する。

40

【0018】

一方で、カソード電極は、カソードガス拡散層として、空隙や細孔を十分に維持することができ、ガス拡散性を良好に維持することができる。すなわち、カソード電極では、余剰の水を排出して反応ガスを迅速に拡散させることができ、フラッキングを効果的に抑制することができる。

【0019】

50

つまり、この電解質膜・電極構造体では、アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の各々の電解質膜に臨む側が互いに異なる表面うねりを有するように形成される。これによって、電解質膜の物理的な変形や損傷を簡素な構成で効果的に抑制して、優れた耐久性及び発電性能を示すことができる。

【0020】

前記電解質膜・電極構造体において、前記アノードガス拡散層の最大高さうねりが10.0 μm以下であり、前記カソードガス拡散層の最大高さうねりが20.0～50.0 μmであることが好ましい。また、前記アノードガス拡散層の算術平均うねりが1.5 μm以下であり、前記カソードガス拡散層の算術平均うねりが3.0～5.0 μmであることが好ましい。

10

【0021】

この電解質膜・電極構造体では、アノードガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形や損傷を効果的に抑制しつつ、カソードガス拡散層のガス拡散性を良好に維持して、優れた耐久性及び発電性能を示すことができる。

【0022】

前記電解質膜・電極構造体において、前記アノードガス拡散層は、前記アノード電極触媒層に臨むアノード多孔質層と、カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなり、前記カソードガス拡散層は、前記カソード電極触媒層に臨むカソード多孔質層と、カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなることが好ましい。

20

【0023】

このようにアノード多孔質層及びカソード多孔質層を備えることによって、アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の表面うねりを上記の範囲内に容易に設定することが可能になる。また、カーボンペーパー又はカーボクロスと電解質膜との間に、アノード多孔質層及びカソード多孔質層が介在する。これによって、カーボンペーパー又はカーボクロスの良好なガス拡散性を維持しつつ、該カーボンペーパー又はカーボクロスのうねりや繊維等が電解質膜に影響することを効果的に抑制できる。以降、アノード多孔質層及びカソード多孔質層を総称して多孔質層ともいう。

【0024】

さらに、この多孔質層によって、アノード電極及びカソード電極間の保水性及び排水性の均衡を一層適切に図ることができる。従って、電解質膜の物理的な変形や損傷を効果的に抑制して耐久性を向上させつつ、より良好な発電性能を示す電解質膜・電極構造体を得ることができる。

30

【0025】

前記電解質膜・電極構造体において、前記アノードガス拡散層は、電子伝導性物質及び撥水性樹脂を含むアノード多孔質層からなり、前記カソードガス拡散層は、カーボンペーパー又はカーボクロスを含むものであってもよい。この場合、アノード電極がアノードガス拡散層としてアノード多孔質層を有している。このアノード多孔質層は、カソード電極のカソードガス拡散層に含まれるカーボンペーパーやカーボクロスに比して、平滑且つ柔軟に形成することができる。

【0026】

すなわち、アノード多孔質層をアノードガス拡散層として有するアノード電極では、該アノードガス拡散層の影響による電解質膜の物理的な変形や損傷を効果的に抑制することができる。これによって、電解質膜とアノード電極触媒層との間でプロトンが効率よく授受されるようになるので、燃料電池としての発電特性が向上する。

40

【0027】

一方で、カソード電極は、カソードガス拡散層としてカーボンペーパーやカーボクロスを有する。カーボンペーパーやカーボクロスは、ガス拡散性が高くなるように形成することができる。従って、カソード電極では、余剰の水を排出して反応ガスを迅速に拡散させることができ、フラディングを効果的に抑制することができる。

【0028】

50

つまり、この電解質膜・電極構造体では、アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の各々が上記の通り適切な表面うねりを示すように互いに異なる材料から形成される。これによって、電解質膜の物理的な変形や損傷を簡素な構成で効果的に抑制して、優れた耐久性及び発電性能を示すことができる。

【0029】

また、この場合には、前記カソードガス拡散層は、前記カソード電極触媒層に臨むカソード多孔質層と、前記カーボンペーパー又はカーボクロスを積層した積層体からなることが好ましい。このようにカソードガス拡散層がカソード多孔質層を備えることによって、該カソードガス拡散層のカーボンペーパー又はカーボクロスのうねりや繊維等が電解質膜に影響することについても効果的に抑制できる。また、アノード多孔質層とカソード多孔質層とによって、アノード電極及びカソード電極間の保水性及び排水性の均衡を一層適切に図ることができる。従って、電解質膜の物理的な変形や損傷を効果的に抑制して、より良好な耐久性及び発電性能を示す電解質膜・電極構造体を得ることができる。

10

【発明の効果】

【0030】

本発明によれば、アノード電極のアノードガス拡散層と、カソード電極のカソードガス拡散層とが各々適切な性質を示すように互いに異なる表面うねりを有する。その結果、電解質膜の物理的な変形を簡素な構成で効果的に抑制することができ、優れた耐久性及び発電性能を示す電解質膜・電極構造体を得ることができる。

20

【図面の簡単な説明】

【0031】

【図1】本発明の実施形態に係る電解質膜・電極構造体が組み込まれる燃料電池の要部概略縦断面図である。

【図2】アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の表面うねりとして、最大高さうねり W_z 及び算術平均うねり W_a を算出する方法を説明するための説明図である。

【図3】実施例1～3及び比較例1～5の電解質膜・電極構造体について、アノード多孔質層及びカソード多孔質層それぞれの作製条件、最大高さうねり W_z 、算術平均うねり W_a 、膜圧分散、セル電圧を示す図表である。

【発明を実施するための形態】

【0032】

以下、本発明に係る電解質膜・電極構造体につき好適な実施形態を挙げ、添付の図面を参照して詳細に説明する。

30

【0033】

図1は、固体高分子型燃料電池（以下、単に「燃料電池」とも表記する）10の要部概略縦断面図である。この燃料電池10は、本実施形態に係る電解質膜・電極構造体12が組み込まれて構成される。

【0034】

先ず、燃料電池10の構成につき説明する。この燃料電池10では、電解質膜・電極構造体12と、アノード側セパレータ14と、カソード側セパレータ16とが、例えば、立位姿勢で積層される。この積層方向（図1の矢印A方向）に、燃料電池10が複数積層されることにより、例えば、車載用燃料電池スタック（不図示）が構成される。なお、アノード側セパレータ14及びカソード側セパレータ16としては、例えば、カーボンセパレータが使用されるが、これに代えて金属セパレータを用いてもよい。

40

【0035】

アノード側セパレータ14の電解質膜・電極構造体12に臨む面14aには、燃料ガス流路18が、水平方向（図1の紙面に直交する方向。以下、便宜的にB方向という）に延在して設けられる。燃料ガス流路18は、水素含有ガス等の燃料ガスを供給するための燃料ガス入口連通孔（不図示）と、該燃料ガスを排出するための燃料ガス出口連通孔（不図示）とに連通する。

【0036】

50

同様に、カソード側セパレータ 16 の電解質膜・電極構造体 12 に臨む面 16a には、酸化剤ガス流路 20 が水平方向（前記 B 方向）に延在して設けられる。酸化剤ガス流路 20 は、酸素含有ガス等の酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス入口連通孔（不図示）と、該酸化剤ガスを排出するための酸化剤ガス出口連通孔（不図示）とに連通する。なお、燃料ガス流路 18 中の燃料ガスと、酸化剤ガス流路 20 中の酸化剤ガスとは、互いに対向する向きに流通する。

【0037】

燃料電池 10 を複数積層した際にアノード側セパレータ 14 とカソード側セパレータ 16 とが互いに対向する面同士の間には、冷却媒体流路 22 が一体的に形成されている。冷却媒体流路 22 は、冷却媒体を供給するための冷却媒体入口連通孔（不図示）と、冷却媒体を排出するための冷却媒体出口連通孔（不図示）とに連通する。

10

【0038】

電解質膜・電極構造体 12 は、固体高分子膜からなる電解質膜 24 と、該電解質膜 24 を挟持するアノード電極 26 及びカソード電極 28 とを備える。電解質膜 24 の外形寸法（表面積）は、アノード電極 26 及びカソード電極 28 の外形寸法よりも大きく設定される。これによって、アノード電極 26 及びカソード電極 28 の一方の電極に供給された反応ガスが他方の電極に移動することを防止できる。また、後述するシール部材 46、48 によって、電解質膜・電極構造体 12 からその外部へ反応ガスが漏れること（アウトリーク）を防止できる。

【0039】

電解質膜 24 は、例えば、陽イオン交換樹脂に属してプロトン伝導性を備えるポリマーを、フィルム状に形成したものをを用いることができる。陽イオン交換樹脂としては、例えば、ポリスチレンスルホン酸等のビニル系ポリマーのスルホン化物や、パーフルオロアルキルスルホン酸ポリマー、パーフルオロアルキルカルボン酸ポリマー、ポリベンズイミダゾール、ポリエーテルエーテルケトン等の耐熱性高分子にスルホン酸基又はリン酸基を導入したポリマーや、フェニレン連鎖からなる芳香族化合物を重合して得られる剛直ポリフェニレンを主成分として、これにスルホン酸基を導入したポリマー等が挙げられる。

20

【0040】

アノード電極 26 及びカソード電極 28 は、電解質膜 24 を挟持するように設けられる。アノード電極 26 は、電解質膜 24 の一方の面に臨むアノード電極触媒層 30 と、アノードガス拡散層 35 とを有している。一方、カソード電極 28 は、電解質膜 24 の他方の面に臨むカソード電極触媒層 38 と、カソードガス拡散層 43 とを有している。

30

【0041】

アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 は、電解質膜 24 に接合して設けられ、外形寸法が該電解質膜 24 に比して小さく設定される。また、アノード電極触媒層 30 とカソード電極触媒層 38 は、外形寸法（表面積）が互いに異なってもよい。さらに、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 は、電解質膜 24 を介して積層される際、互いの外周端部の位置が一致しないように配置されることが好ましい。この場合、電解質膜 24 に対して、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 の外周端部による応力が集中することを防止できる。その結果、電解質膜 24 の物理的な変形や損傷を効果的に防止することができる。

40

【0042】

アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 は、カーボンブラック等の触媒担体に白金等の触媒金属を担持してなる触媒粒子と、イオン伝導性高分子バインダとを含んで構成されている。なお、前記触媒粒子に代替し、触媒金属の粒子のみからなり、触媒担体を含まない触媒粒子（例えば、白金黒等）を採用するようにしてもよい。また、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 のそれぞれは、組成の異なる 2 層以上の触媒層から構成されていてもよい。

【0043】

本実施形態に係る電解質膜・電極構造体 12 では、アノード電極触媒層 30 がカソード

50

電極触媒層 38 よりも薄く形成されている。すなわち、アノード電極触媒層 30 の含有する前記触媒粒子の量は、カソード電極触媒層 38 に比して少なくなっている。これによって、カソード電極 28 の活性化過電圧を低減させることができる。

【0044】

単位面積あたりの前記触媒粒子の含有量は、アノード電極触媒層 30 では $0.01 \sim 0.20 \text{ mg/cm}^2$ であり、カソード電極触媒層 38 では $0.05 \sim 1.00 \text{ mg/cm}^2$ であることが好ましい。この場合、アノード電極触媒層 30 の厚さは $0.5 \sim 10.0 \mu\text{m}$ であり、カソード電極触媒層 38 の厚さは $1.0 \sim 50.0 \mu\text{m}$ であることが好ましい。

【0045】

アノードガス拡散層 35 は、基材 32 と、アノード多孔質層 34 とが積層された積層体から構成され、アノード多孔質層 34 がアノード電極触媒層 30 に臨む。一方、カソードガス拡散層 43 は、基材 40 と、カソード多孔質層 42 とが積層された積層体から構成され、カソード多孔質層 42 がカソード電極触媒層 38 に臨む。

【0046】

アノード多孔質層 34 及びカソード多孔質層 42 は、電子伝導性物質と撥水性樹脂とを含む多孔質性の層であり、該電子伝導性物質に基づいて伝導性を示す。この電子伝導性物質の好適な例としては、ファーンブラック（ケッチェン・ブラック社製「ケッチェンブラック EC」及び「ケッチェンブラック EC - 600」JD）、Carbont 社製「バルカン XC - 72」、東海カーボン社製「トーカブラック」、旭カーボン社製「旭 AX」等；いずれも商品名）、アセチレンブラック（電気化学工業社製「デンカブラック」等；商品名）、グラッシーカーボンの粉碎品、気相法炭素繊維（昭和電工社製「VGC F」及び「VGC F - H」等；いずれも商品名）、カーボンナノチューブ、及びこれらを黒鉛化処理した粉末を単独又は 2 種以上混合したものが挙げられる。

【0047】

一方の撥水性樹脂の素材としては、ETFE（テトラフルオロエチレン・エチレン共重合体）、PVDF（ポリフッ化ビニリデン）、PVF（ポリフッ化ビニル）、ECTFE（クロロトリフルオロエチレン・エチレン共重合体）、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、PFA（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）、FEP（テトラフルオロエチレン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体）をはじめとする結晶性フッ素樹脂や、旭硝子社製の「ルミフロン」及び「サイトップ」（いずれも商品名）等の非晶質フッ素樹脂、シリコーン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン等が例示され、これらを単独で又は 2 種以上組み合わせ使用することができる。

【0048】

基材 32、40 は、多数の繊維状カーボンがセルロース質に含有されて得られるカーボンペーパー又はカーボンクロスからなる。また、基材 32、40 は、例えば、FEP（テトラフルオロエチレン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体）等からなる撥水性樹脂を含有してもよい。基材 32、40、アノード多孔質層 34、カソード多孔質層 42 はそれぞれ略同等の外形寸法に形成されて互いに積層されている。

【0049】

アノードガス拡散層 35 の表面うねりは、カソードガス拡散層 43 に比して小さい。具体的には、アノードガス拡散層 35 のアノード電極触媒層 30 に臨む側、すなわち、アノード多孔質層 34 の最大高さうねり Wz が $10.0 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。このとき、カソードガス拡散層 43 のカソード電極触媒層 38 側、すなわち、カソード多孔質層 42 の最大高さうねり Wz が $20.0 \sim 50.0 \mu\text{m}$ であることが好ましい。

【0050】

又は、アノード多孔質層 34 の算術平均うねり Wa を $1.5 \mu\text{m}$ 以下とし、且つ、カソード多孔質層 42 の算術平均うねりを $3.0 \sim 5.0 \mu\text{m}$ とするようによい。

【0051】

さらに、上記の両条件を同時に満足することが好ましい。すなわち、アノード多孔質層

10

20

30

40

50

34の最大高さ W_z が $10.0\mu\text{m}$ 以下、算術平均うねり W_a が $1.5\mu\text{m}$ 以下であり、且つ、カソード多孔質層42の最大高さ W_z が $20.0\sim 50.0\mu\text{m}$ 、算術平均うねりが $3.0\sim 5.0\mu\text{m}$ であることが最も好ましい。

【0052】

これらの物性値は、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の最大細孔径、平均細孔径、細孔径分布、撥水性樹脂の種類や量等が適宜調整されることによって設定することができる。この場合、後述するように、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の影響によって電解質膜24に物理的な変形や損傷が生じることを適切に抑制しつつ、燃料電池10の発電性能を向上させることができる。

【0053】

なお、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の表面うねりは、例えば、オリンパス社製のレーザ顕微鏡「LEXTOLS4000」（商品名）を用いて求めることができる。具体的な算出方法については、後述する。

【0054】

アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の外形寸法は、アノード電極触媒層30及びカソード電極触媒層38に比して大きく設定される。すなわち、アノード電極触媒層30及びカソード電極触媒層38は、上記の通り、電解質膜24、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43に比して外形寸法が小さく設定される。このため、電解質膜24の外周縁部は、アノード電極触媒層30及びカソード電極触媒層38の外周から外部に露呈する。この電解質膜24の露呈する部位を、以下、露呈部位ともいう。

【0055】

電解質膜・電極構造体12では、露呈部位の一方側の面及びアノード電極触媒層30に対して、アノードガス拡散層35を構成するアノード多孔質層34が接触している。また、露呈部位の他方側の面及びカソード電極触媒層38に対して、カソードガス拡散層43のカソード多孔質層42が接触している。

【0056】

また、電解質膜24の露呈部位のうち、さらにアノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の外周から外部に露呈する部位のアノード側セパレータ14に臨む側の面には、額縁形状をなすアノード絶縁シート36が当接するように設けられる。同様に、前記露呈する部位のカソード側セパレータ16に臨む側の面には、額縁形状をなすカソード絶縁シート44が当接するように設けられる。

【0057】

アノード絶縁シート36及びカソード絶縁シート44は、ガス不透過性を有し、例えば、PEN（ポリエチレンナフタレート）製の略平坦なフィルム等で構成される。また、アノード絶縁シート36の厚さとアノードガス拡散層35の厚さは略同等であるため、アノード絶縁シート36及びアノードガス拡散層35の面同士が面一の状態、アノード側セパレータ14に当接している。同様に、カソード絶縁シート44及びカソードガス拡散層43の面同士が面一の状態、カソード側セパレータ16に当接している。

【0058】

このように、アノード絶縁シート36及びカソード絶縁シート44を設けることによって、アノード電極26とカソード電極28との間で反応ガスが移動して混在してしまうことや、アウトリークが起こることを効果的に回避できる。

【0059】

アノード側セパレータ14及びカソード側セパレータ16には、それぞれ、アノードガス拡散層35、カソードガス拡散層43の縁部を囲繞するようにしてシール部材46、48が設けられる。これらシール部材46、48により、アウトリークを有効に防止することができる。

【0060】

次に、上記した電解質膜・電極構造体12を作製する方法について説明する。

【0061】

10

20

30

40

50

電解質膜・電極構造体 12 を作製するに際しては、はじめに、前述した陽イオン交換樹脂に属してプロトン伝導性を備えるポリマーから選択したポリマーを長方形のシート形状として電解質膜 24 を作製する。

【0062】

そして、この電解質膜 24 の一方の面にアノード電極触媒層 30 を形成し、且つ他方の面にカソード電極触媒層 38 を形成する。具体的には、先ず、電解質膜 24 に用いたポリマーと同種のポリマーの溶液（高分子電解質）中に、前記触媒粒子及び有機溶媒を添加、混合することにより触媒ペーストを調製する。

【0063】

次に、この触媒ペーストを、PTFE 等から形成したフィルム的一方の面上に所定量塗布する。そして、前記フィルムにおける触媒ペーストを塗布した面を電解質膜 24 の一方の面に対して熱圧着する。その後、フィルムを剥離すれば、触媒ペーストが電解質膜 24 の一方の面に転写される。これによって、アノード電極触媒層 30 を形成することができる。また、電解質膜 24 の他方の面に対しても同様にして、前記触媒ペーストを転写することで、カソード電極触媒層 38 を形成することができる。この際、フィルムに対する触媒ペーストの塗布量を調整することによって、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 の触媒粒子の含有量や厚さが上記の範囲となるように調整することができる。すなわち、上記の通り、アノード電極触媒層 30 がカソード電極触媒層 38 に比して薄く形成される。

【0064】

これとは別に、基材 32 上にアノード多孔質層 34 を形成してアノードガス拡散層 35 を得るとともに、基材 40 上にカソード多孔質層 42 を形成してカソードガス拡散層 43 を得る。

【0065】

具体的には、例えば、前記電子伝導性物質と、前記撥水性樹脂とを、エタノール、プロパノール、エチレングリコール等の有機溶媒中で混合することにより多孔質層用ペーストを調製する。そして、この多孔質層用ペーストの所定量を、基材 32 上に塗布した後、熱処理することでアノード多孔質層 34 を形成する。これによって、アノードガス拡散層 35 を得ることができる。

【0066】

前記多孔質層用ペーストと同様に、前記電子伝導性物質及び前記撥水性樹脂を前記有機溶媒中で混合することにより多孔質層用ペーストを調製する。そして、この多孔質層用ペーストの所定量を、基材 40 上に塗布した後、熱処理することでカソード多孔質層 42 を形成する。これによって、カソードガス拡散層 43 を得ることができる。

【0067】

この際、例えば、基材 32、40 上に塗布する多孔質層用ペーストの塗布量や、該多孔質層用ペーストの固形分濃度等を適宜調整する。これにより、アノードガス拡散層 35 及びカソードガス拡散層 43 の各々の表面うねりが上記の範囲内となるように調整することができる。さらには、アノードガス拡散層 35 及びカソードガス拡散層 43 の物性値を調整するべく、基材 32、40 の各々の物性値や、該基材 32、40 に含浸させる撥水性樹脂の濃度等を調整してもよい。また、基材 32 上に塗布する多孔質層用ペーストと、基材 40 上に塗布する多孔質層用ペーストとは、互いに異なる成分から調製されてもよい。

【0068】

上記の作製方法に代えて、アノード多孔質層 34 及びカソード多孔質層 42 を、シート状成形体として得るようにしてもよい。この場合、例えば、前記多孔質層用ペーストを固形分濃度が高くなるように調製した後、さらに溶媒を抽出して延伸処理等を行う。これによって、シート状成形体として得られたアノード多孔質層 34 及びカソード多孔質層 42 をそれぞれ、基材 32、40 に重畳して、加圧及び加熱（ホットプレス）する。その結果、アノード多孔質層 34 と基材 32 と熱圧着してアノードガス拡散層 35 を得ることができる。同様に、カソード多孔質層 42 と基材 40 とを熱圧着してカソードガス拡散層 43

10

20

30

40

50

を得ることができる。

【0069】

この際、例えば、多孔質層用ペーストの量や、該多孔質層用ペーストの有機溶媒に対する電子伝導性物質及び撥水性樹脂の濃度（固形分濃度）、延伸処理後のシート状成形体の厚さ等を適宜調整する。これによって、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の各々の表面うねりを上記の範囲内となるように調整することができる。

【0070】

以上のようにして得られたアノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43と、アノード電極触媒層30及びカソード電極触媒層38が形成された電解質膜24とを重畳する。具体的には、アノードガス拡散層35のアノード多孔質層34とアノード電極触媒層30とが対向し、カソードガス拡散層43のカソード多孔質層42とカソード電極触媒層38とが対向するように上記の構成要素を重畳する。そして、得られた重畳体を熱圧着等により一体化することで、電解質膜・電極構造体12が得られるに至る。

10

【0071】

この際、上記した通り、電解質膜24に対して、直接ないしアノード電極触媒層30又はカソード電極触媒層38を介して当接するのは、アノード多孔質層34とカソード多孔質層42である。アノード多孔質層34及びカソード多孔質層42は、電子伝導性物質及び撥水性樹脂から主に構成されるため、多数の繊維状カーボンから主に構成されるカーボンペーパーやカーボンクロスに比して、平滑且つ柔軟に形成される。

【0072】

さらに、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43の電解質膜24側、すなわち、アノード多孔質層34及びカソード多孔質層42の表面うねりはそれぞれ上記の通り設定されている。これによって、アノードガス拡散層35及びカソードガス拡散層43は、電解質膜24を物理的に変形させるようなうねりが抑制されている。特に、カソード電極触媒層38に比して、厚さが小さいアノード電極触媒層30に当接するアノード多孔質層34の表面うねりは、上記の通り小さく設定されている。

20

【0073】

従って、電解質膜・電極構造体12の製造過程において、熱圧着による荷重が前記重畳体に付与されても、電解質膜24が物理的に変形すること及び損傷することを効果的に抑制できる。

30

【0074】

また、基材32と、電解質膜24ないしアノード電極触媒層30との間にアノード多孔質層34が介在し、且つ基材40と、電解質膜24ないしカソード電極触媒層38との間にカソード多孔質層42が介在している。これによって、基材32、40の繊維等が電解質膜24に物理的な変形や損傷が生じることを抑制できる。

【0075】

基本的に以上のように構成される電解質膜・電極構造体12をアノード側セパレータ14とカソード側セパレータ16で挟持することにより、燃料電池10が構成される。

【0076】

次に、燃料電池10の発電時の動作について説明する。燃料電池10を発電させるに際しては、酸化剤ガス入口連通孔に酸素含有ガス等の酸化剤ガスが供給されるとともに、燃料ガス入口連通孔に水素含有ガス等の燃料ガスが供給される。さらに、冷却媒体入口連通孔に純水やエチレングリコール等の冷却媒体が供給される。

40

【0077】

冷却媒体入口連通孔に供給された冷却媒体は、アノード側セパレータ14及びカソード側セパレータ16間に形成された冷却媒体流路22に導入される。この冷却媒体流路22では、冷却媒体が重力方向（図1中矢印C方向）に移動する。従って、冷却媒体は、電解質膜・電極構造体12の発電面全面にわたって冷却した後、冷却媒体出口連通孔に排出される。

【0078】

50

酸化剤ガスは、酸化剤ガス入口連通孔からカソード側セパレータ 16 の酸化剤ガス流路 20 に導入される。酸化剤ガスは、酸化剤ガス流路 20 に沿って矢印 B 方向に流通し、電解質膜・電極構造体 12 のカソード電極 28 に沿って移動する。

【0079】

一方、燃料ガスは、燃料ガス入口連通孔からアノード側セパレータ 14 の燃料ガス流路 18 に導入される。この燃料ガス流路 18 では、燃料ガスが矢印 B 方向に流通することにより、電解質膜・電極構造体 12 のアノード電極 26 に沿って移動する。

【0080】

従って、電解質膜・電極構造体 12 では、アノード電極 26 に供給された燃料ガスがアノードガス拡散層 35 を通過し、カソード電極 28 に供給された酸化剤ガスがカソードガス拡散層 43 を通過する。その結果、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 内で、燃料ガス及び酸化剤ガスが電気化学反応（電極反応）によってそれぞれ消費され、発電が行われる。

10

【0081】

一層詳細には、燃料ガス中の水素ガスがアノード電極 26 のアノード電極触媒層 30 で電離し、プロトン（ H^+ ）と電子が生成される。電子は、燃料電池 10 に電氣的に接続された外部負荷（図示せず）を付勢するための電気エネルギーとして取り出される。一方、プロトンは、電解質膜 24 を介してカソード電極 28 に到達する。なお、プロトンは、電解質膜 24 に含まれる水を伴って、アノード電極 26 側からカソード電極 28 側へ移動する。

20

【0082】

カソード電極 28 のカソード電極触媒層 38 では、前記プロトンと、外部負荷を付勢した後に該カソード電極 28 に到達した電子と、前記酸化剤ガス中の酸素ガスとが結合する。この結果、水が生成される。以下、この水を生成水ともいう。

【0083】

以上の電極反応の最中、電解質膜 24 に良好なプロトン伝導性を発現させるためには、該電解質膜 24 を湿潤状態に維持する必要がある。その一方で、生成水等がアノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 や、アノードガス拡散層 35 及びカソードガス拡散層 43 の細孔内に滞留すると、反応ガスの流路が閉塞されてフラッディングが生じる。この場合、電極反応の進行が阻害される懸念がある。

30

【0084】

従って、燃料電池 10 が良好な発電性能を示すためには、電解質膜 24 を湿潤状態に保つための保水性と、反応ガスを円滑に拡散させるよう生成水を速やかに除去する排水性という、互いに相反する特性が適切に均衡していることが求められる。

【0085】

特に、カソード電極 28 では、生成水が生じる分、アノード電極 26 に比してフラッディングが生じ易い。このため、アノード電極 26 及びカソード電極 28 において、上記の保水性及び排水性の均衡を保つ場合、アノードガス拡散層 35 に比して、カソードガス拡散層 43 のガス拡散性が高いことが求められる。

40

【0086】

電解質膜・電極構造体 12 においては、上記の通り、カソードガス拡散層 43 の表面うねりが、アノードガス拡散層 35 に比して大きく設定されている。従って、カソードガス拡散層 43 では、アノードガス拡散層 35 に比して、十分な空隙や細孔を維持することができ、良好なガス拡散性を示す。

【0087】

なお、アノードガス拡散層 35 及びカソードガス拡散層 43 の各々は、アノード多孔質層 34 及びカソード多孔質層 42 を備えることで、容易に表面うねり等の物性値を調整することができる。

【0088】

これらによって、アノード電極 26 及びカソード電極 28 の間で、保水性と排水性との

50

均衡を適切に図ることができる。その結果、電解質膜 24 に良好なプロトン伝導性を発現させることができるとともに、反応ガスの拡散性を向上させて発電反応を促すことができる。ひいては、電解質膜・電極構造体 12 を備える燃料電池 10 の発電特性を向上させることができる。

【0089】

なお、本発明は、上記した実施形態に特に限定されるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲で種々の変形が可能である。

【0090】

例えば、上記の実施形態では、アノードガス拡散層 35 は、基材 32 と、アノード多孔質層 34 との積層体から構成されることとしたが、アノード多孔質層 34 のみから構成されていてもよい。また、上記の実施形態では、カソードガス拡散層 43 は、基材 40 と、カソード多孔質層 42 との積層体から構成されることとしたが、基材 40 のみから構成されていてもよい。つまり、アノードガス拡散層 35 及びカソードガス拡散層 43 の各々が上記の通り適切な表面うねりを示すように互いに異なる材料から形成されてもよい。

10

【0091】

アノードガス拡散層 35 がアノード多孔質層 34 のみから構成される場合、該アノードガス拡散層 35 がカーボンペーパーやカーボンクロスを含まないこととなる。従って、アノードガス拡散層 35 が、上記の通り厚さが小さいアノード電極触媒層 30 を介して電解質膜 24 と積層されても、該電解質膜 24 に物理的な変形や損傷を生じさせることを効果的に抑制できる。

20

【0092】

一方で、カソードガス拡散層 43 では、主にカーボンペーパー又はカーボンクロスから構成される基材 40 によって、良好なガス拡散性を維持することができる。その結果、電解質膜 24 の物理的な変形や損傷を簡素な構成で効果的に抑制して、優れた耐久性及び発電性能を示すことができる。

【0093】

また、上記の実施形態では、カソード電極触媒層 38 に比して、アノード電極触媒層 30 の電極触媒の量を少なくしたが、アノード電極触媒層 30 及びカソード電極触媒層 38 の互いの電極触媒の量は略同等であってもよい。

30

【実施例】

【0094】

[実施例 1]

(1) 基材と多孔質層とを積層した積層体から、アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の各々を構成した。すなわち、先ず、基材として、嵩密度が 0.31 g/m^2 、厚さが $190 \mu\text{m}$ のカーボンペーパーに、三井・デュポンフロロケミカル社製のテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体 (FEP) の分散液「FEP 120-JRB Dispersion」(商品名) を含浸させ、120 で 30 分間乾燥させた。この際、カーボンペーパーは、該カーボンペーパーに対する FEP の乾燥重量が、2.4 重量% となるように分散液に含浸させた。

40

【0095】

(2) 多孔質層用ペースト A は、昭和電工社製の気相成長カーボン「VGC F」(商品名) を 12 g と、三井・デュポンフロロケミカル社製の FEP 分散液(固形分濃度 54%)「FEP 120 JRB」(商品名) を 20 g と、エチレングリコールを 200 g とをボールミルで攪拌して混合することにより調製した。

【0096】

(3) 前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペースト A を、アノード多孔質層の厚さが $30 \mu\text{m}$ となるようにブレード塗工器を利用して塗布した。そして、380 で 30 分間の熱処理を行うことによりアノード多孔質層を形成し、アノードガス拡散層を得た。

50

【0097】

(4) 前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAをインクとして、カソード多孔質層の厚さが $30\mu\text{m}$ となるようにスクリーン印刷を行った。そして、 380°C で30分間の熱処理を行うことによってカソード多孔質層を形成し、カソードガス拡散層を得た。

【0098】

(5) 触媒ペーストは、デュポン社製のイオン伝導性ポリマー溶液「DE2020CS」(商品名)に対し、BASF社製の白金触媒「LSA」(商品名)の重量比が0.1となるように添加し、さらに、ボールミルで攪拌して混合することにより調製した。

【0099】

(6) PTFEシート上に、前記(5)で調製した触媒ペーストを白金の重量が $0.1\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように塗布した後、 120°C で60分間の熱処理を行うことにより、アノード電極触媒層を電解質膜の一方の面に転写するためのシートを作製した。

10

【0100】

(7) PTFEシート上に、前記(5)で調製した触媒ペーストを白金の重量が $0.7\text{mg}/\text{cm}^2$ となるように塗布した後、 120°C で60分間の熱処理を行うことにより、カソード電極触媒層を電解質膜の他方の面に転写するためのシートを作製した。

【0101】

(8) 前記(6)及び(7)で作製したシートの触媒ペースト塗布側を、厚さ $24\mu\text{m}$ 、イオン交換容量 $1.05\text{meq}/\text{g}$ としたフッ素系の電解質膜の面に熱圧着させた後、PTFEシートを剥離した。すなわち、デカル法により、電解質膜の一方の面にアノード電極触媒層を形成するとともに、他方の面にカソード電極触媒層を形成した。

20

【0102】

(9) 前記(8)で作製した電解質膜に形成されたアノード電極触媒層及びカソード電極触媒層にそれぞれ、前記(3)で作製したアノードガス拡散層のアノード多孔質層及び前記(4)で作製したカソードガス拡散層のカソード多孔質層を 120°C で面圧 $30\text{kgf}/\text{cm}^2$ の条件で熱圧着させた。これによって、電解質膜・電極構造体を作製した。これを実施例1とする。

【0103】

[実施例2]

前記(3)の工程に代えて、前記(1)で作製した基材上に、多孔質層用ペーストBを、アノード多孔質層の厚さが $30\mu\text{m}$ となるようにブレード塗工器を利用して塗布した。

30

【0104】

多孔質層用ペーストBは、Cabot社製のカーボン「Vulcan XC72R」(商品名)を 12g と、三井・デュポンフロロケミカル社製のFEP分散液(固形分濃度 54%)「FEP120JRB」(商品名)を 20g と、エチレングリコールを 155g とをボールミルで攪拌して混合することにより調製した。

【0105】

また、前記(4)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAをインクとして、カソード多孔質層の厚さが $30\mu\text{m}$ となるようにスクリーン印刷を行った。

40

【0106】

それ以外は、実施例1と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを実施例2とする。

【0107】

[実施例3]

前記(3)の工程に代えて、先ず、電気化学工業社製のアセチレンブラック 10g を含む水溶液 100ml をボールミルにて攪拌分散させてカーボンブラック分散液を得た。この分散液に、三井・デュポンフロロケミカル社製のポリテトラフルオロエチレン(PTFE)ディスパージョン溶液を混合した。この際、PTFEとカーボンブラックとが質量比で $70:30$ となるように添加した。得られた分散液に対して、イソプロピルアルコール

50

を50質量%添加することにより、PTFEとカーボンブラックとを凝集させた後、ろ別した。

【0108】

これにより得られた凝集体を120℃で3時間乾燥させた後、溶剤としてソルベントナフサを50質量%添加することにより多孔質層用ペーストを作製した。この多孔質層用ペーストをロール機で厚さが1mmとなるようにロールした後、前記ソルベントナフサを120℃で2時間乾燥させて蒸発させた。その後、同時二軸延伸装置を用いて、延伸温度300℃として1軸方向に1.5倍延伸処理した後、熱収縮しないように延伸シートの延伸方向の長さを固定した状態で350℃に加熱して、完全焼成処理を行った。これにより、アノード多孔質層として、厚さが30μmのシート状成形体を得た。

10

【0109】

このアノード多孔質層を前記(1)で作製した基材上に積層した状態で、プレスすることで、厚さが160μmのアノードガス拡散層を得た。

【0110】

また、前記(4)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAをインクとして、カソード多孔質層の厚さが30μmとなるようにスクリーン印刷を行った。

【0111】

それ以外は、実施例1と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを実施例3とする。

20

【0112】

[比較例1]

前記(3)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAをインクとして、アノード多孔質層の厚さが30μmとなるようにスクリーン印刷を行った。

【0113】

また、前記(4)の工程に代えて、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAをインクとして、カソード多孔質層の厚さが30μmとなるようにスクリーン印刷を行った。

【0114】

それ以外は、実施例1と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを比較例1とする。

30

【0115】

[比較例2]

前記(3)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAを、アノード多孔質層の厚さが40μmとなるようにブレード塗工器を利用して塗布した。

【0116】

また、前記(4)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペーストAを、カソード多孔質層の厚さが20μmとなるようにブレード塗工器を利用して塗布した。

40

【0117】

それ以外は、実施例1と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを比較例2とする。

【0118】

[比較例3]

前記(3)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記多孔質層用ペーストBをインクとして、アノード多孔質層の厚さが30μmとなるようにスクリーン印刷を行った。

【0119】

また、前記(4)の工程で、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多

50

孔質層用ペースト A を、カソード多孔質層の厚さが $40 \mu\text{m}$ となるようにブレード塗工器を利用して塗布した。

【0120】

それ以外は、実施例 1 と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを比較例 3 とする。

【0121】

[比較例 4]

前記(3)の工程に代えて、実施例 3 と同様に、アノード多孔質層として、厚さが $30 \mu\text{m}$ のシート状成形体を得て、このアノード多孔質層を、前記(1)で作製した基材上に積層した状態で、プレスすることで、アノードガス拡散層を得た。

10

【0122】

また、前記(4)の工程に代えて、実施例 3 と同様に、カソード多孔質層として、厚さが $30 \mu\text{m}$ のシート状成形体を得て、このカソード多孔質層を、前記(1)で作製した基材上に積層した状態で、プレスすることで、カソードガス拡散層を得た。

【0123】

それ以外は、実施例 1 と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを比較例 4 とする。

【0124】

[比較例 5]

前記(3)の工程に代えて、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペースト A を、アノード多孔質層の厚さが $30 \mu\text{m}$ となるようにブレード塗工器を利用して塗布した。

20

【0125】

また、前記(4)の工程に代えて、前記(1)で作製した基材上に、前記(2)で調製した多孔質層用ペースト A をインクとして、カソード多孔質層の厚さが $40 \mu\text{m}$ となるようにスクリーン印刷を行った。

【0126】

それ以外は、実施例 1 と同様にして、電解質膜・電極構造体を得た。これを比較例 5 とする。

【0127】

まず、上記の実施例 1 ~ 3 及び比較例 1 ~ 5 に係る電解質膜・電極構造体について、それぞれのアノードガス拡散層及びカソードガス拡散層の表面うねりとして、最大高さうねり W_z (μm) 及び算術平均うねり W_a (μm) を求めた。

30

【0128】

具体的には、最大高さうねり W_z 及び算術平均うねり W_a は、オリンパス社製のレーザー顕微鏡「LEXTEL S 4000」(商品名)を用いて求めた。すなわち、まず、上記のように作製したアノードガス拡散層及びカソードガス拡散層のそれぞれを測定試料とした。この測定試料を打ち抜いて、 $5\text{cm} \times 5\text{cm}$ のアノード多孔質層側及びカソード多孔質層側の面を測定対象面とした。この測定対象面に対して、測定倍率 100 倍とした $129 \mu\text{m} \times 129 \mu\text{m}$ の視野において、1 視野つき x y 方向(面内方向)に各 3 カ所の線分析を行い、合計 100 視野の測定を行った。

40

【0129】

そして、各視野について、最大高さうねり W_z 及び算術平均うねり W_a を算出した。この最大高さうねり W_z 及び算術平均うねり W_a の算出方法について、図 2 を参照しつつ説明する。まず、図 2 に示す長さ l を基準長として、高域フィルタのカットオフ値を $8.0 \mu\text{m}$ に設定し、JIS B 0632 : 1994 に準じて、断面曲線からうねり曲線 $y = f(x)$ を得る。

【0130】

最大高さうねり W_z は、うねり曲線 $y = f(x)$ におけるうねりの最大値 $W_z 1$ から最小値 $W_z 2$ を引いた差で示される。すなわち、次式(1)で定義される。

50

$$Wz = Wz1 - Wz2 \dots (1)$$

【0131】

また、算術平均うねり Wa は、うねり曲線 $y = f(x)$ の平均線 $M1$ から測定曲線 $M2$ までの偏差の絶対値を合計した平均値であり、次式(2)で示される。

【0132】

【数1】

$$Wa = \frac{1}{\ell} \int_0^{\ell} |f(x)| dx \dots (2)$$

10

【0133】

上記の100視野について同様に測定を行って得られた最大高さうねり Wz の最大値を、測定試料の最大高さうねり Wz (μm) とした。また、上記100視野についての算術平均うねり Wa の平均を、測定試料の算術平均うねり Wa (μm) とした。

【0134】

次に、上記の実施例1~3及び比較例1~5に係る電解質膜・電極構造体について、電解質膜の厚さの分散(膜厚分散)を求めた。

【0135】

具体的には、電解質膜の膜厚分散は、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて求めた。すなわち、電解質膜の略中央部について、5mmの直線範囲を測定区間とし、この測定区間で膜厚を10 μm 間隔で500点測定した。そして、この測定結果から、次式(3)によって、電解質膜の膜厚分散 $Q(X)$ を算出した。

20

$$Q(X) = E(X^2) - (E(X))^2 \dots (3)$$

ただし、 $E(X)$ は500点の膜厚測定値の平均の関数(期待値)であり、 $E(X^2)$ は500点の膜厚測定値の2乗平均の関数(期待値)である。なお、 $Q(X)$ の単位は μm^2 である。

【0136】

次に、実施例1~3及び比較例1~5の電解質膜・電極構造体を用いてセルを作製し、それぞれセル電圧(mV)を求めた。発電条件は、発電温度; 50、相対湿度(RH); 燃料ガス50%及び酸化剤ガス100%、ガス利用率; 燃料ガス70%及び酸化剤ガス60%、ガス圧; 燃料ガス及び酸化剤ガスともに100kPa、出力電流密度; 1.0A/cm²とした。

30

【0137】

上記のようにして求めた、実施例1~3及び比較例1~5のそれぞれにおける最大高さうねり Wz (μm) 及び算術平均うねり Wa (μm)、膜厚分散、セル電圧(mV)の値について、上記のアノード多孔質層及びカソード多孔質層の作成条件とともに図3に示す。

【0138】

図3から、実施例1~3の電解質膜・電極構造体では、比較例1~5の電解質膜・電極構造体に比して、電解質膜の膜厚分散を小さく且つ、セル電圧を大きくできることが分かる。

40

【0139】

実施例1~3の電解質膜・電極構造体では、アノードガス拡散層のアノード電極触媒層に臨む側、すなわち、アノード多孔質層の最大高さうねりが10.0 μm 以下であり、算術平均うねりが1.5 μm 以下である。また、カソードガス拡散層のカソード電極触媒層に臨む側、すなわち、カソード多孔質層の最大高さうねりが20.0~50.0 μm であり、算術平均うねりが3.0~5.0 μm である。つまり、実施例1~3の電解質膜・電極構造体では、カソードガス拡散層に比して、アノードガス拡散層の表面うねりが小さくなっている。

【0140】

50

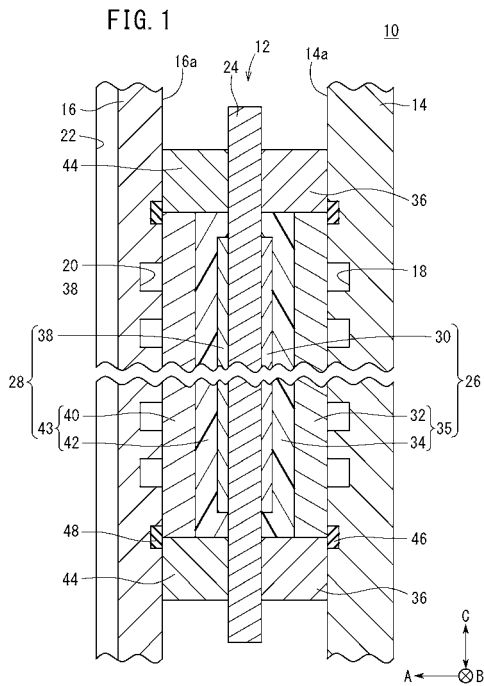
上記のようにカソードガス拡散層及びアノードガス拡散層の表面うねりを設定することによって、電解質膜の厚さのパラツキが適切に低減され、電解質膜の物理的な変形や損傷を簡素な構成で効果的に抑制できる。また、ガス拡散性を良好に維持して、フラッディングを効果的に抑制することができる。つまり、電解質膜の物理的な変形や損傷を簡素な構成で効果的に抑制して、優れた耐久性及び発電性能を示すことができる。

【符号の説明】

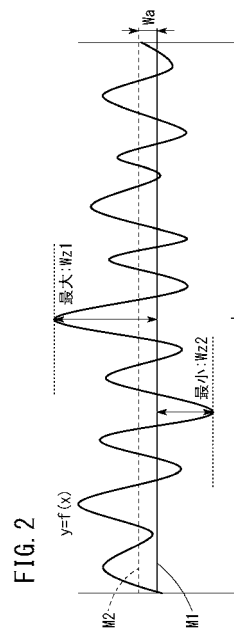
【 0 1 4 1 】

- | | |
|--------------------|--------------------|
| 1 0 ... 燃料電池 | 1 2 ... 電解質膜・電極構造体 |
| 1 4 ... アノード側セパレータ | 1 4 a、1 6 a ... 面 |
| 1 6 ... カソード側セパレータ | 1 8 ... 燃料ガス流路 |
| 2 0 ... 酸化剤ガス流路 | 2 2 ... 冷却媒体流路 |
| 2 4 ... 電解質膜 | 2 6 ... アノード電極 |
| 2 8 ... カソード電極 | 3 0 ... アノード電極触媒層 |
| 3 2、4 0 ... 基材 | 3 4 ... アノード多孔質層 |
| 3 5 ... アノードガス拡散層 | 3 6 ... アノード絶縁シート |
| 3 8 ... カソード電極触媒層 | 4 2 ... カソード多孔質層 |
| 4 3 ... カソードガス拡散層 | 4 4 ... カソード絶縁シート |
| 4 6、4 8 ... シール部材 | |

【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】

FIG. 3

	7/10 ⁵ 多孔質層			7/10 ⁴ 多孔質層			7/10 ³ 多孔質層			膜厚分散	膜電圧 (mV)
	作製条件		Wz (μm)	作製条件		Wz (μm)	作製条件		Wz (μm)		
	膜厚 (μm)	Wz (μm)	膜厚 (μm)	Wz (μm)	膜厚 (μm)	Wz (μm)	膜厚 (μm)	Wz (μm)			
実施例1	膜厚 A	7/10 ⁵	8.3	1.0	膜厚 A	7/10 ⁴	26.2	4.1	0.87	710	
実施例2	膜厚 B	7/10 ⁵	9.2	1.4	膜厚 A	7/10 ⁴	22.5	3.2	0.93	708	
実施例3	膜厚 A	7/10 ⁵	4.2	0.9	膜厚 A	7/10 ⁴	21.2	3.0	0.80	704	
比較例1	膜厚 A	7/10 ⁵	22.6	3.2	膜厚 A	7/10 ⁴	24.3	3.3	2.68	706	
比較例2	膜厚 A	7/10 ⁵	12.4	1.6	膜厚 A	7/10 ⁴	8.2	1.0	0.74	679	
比較例3	膜厚 B	7/10 ⁵	20.2	3.1	膜厚 A	7/10 ⁴	16.1	1.7	1.71	682	
比較例4	膜厚 A	7/10 ⁵	4.1	0.8	膜厚 A	7/10 ⁴	4.2	0.7	0.40	636	
比較例5	膜厚 A	7/10 ⁵	8.5	0.9	膜厚 A	7/10 ⁴	50.9	5.2	1.89	706	

フロントページの続き

- (72)発明者 福水 隆夫
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内
- (72)発明者 松森 裕史
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内
- (72)発明者 浅野 洋一
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内
- (72)発明者 山脇 琢磨
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内
- Fターム(参考) 5H018 AA06 CC06 DD06 EE05 EE17 HH00
5H026 AA06 CC03 CX01 CX03 CX05 EE05 HH03