



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 603 04 517 T2** 2006.12.14

(12)

## Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) **EP 1 383 185 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **603 04 517.0**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **03 253 865.4**

(96) Europäischer Anmeldetag: **18.06.2003**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **21.01.2004**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **12.04.2006**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **14.12.2006**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **H01M 4/86** (2006.01)  
**H01M 4/88** (2006.01)

(30) Unionspriorität:

**2002180105      20.06.2002      JP**

(73) Patentinhaber:

**Tanaka Kikinzoku Kogyo K.K., Tokio/Tokyo, JP;  
Honda Motor Co., Ltd., Tokyo, JP**

(74) Vertreter:

**Patent- und Rechtsanwälte Bardehle, Pagenberg,  
Dost, Altenburg, Geissler, 81679 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**DE, GB**

(72) Erfinder:

**Tada, Tomoyuki, Hiratsuka-shi, Kanagawa  
254-0076, JP; Inoue, Masahiko, Hiratsuka-shi,  
Kanagawa 254-0076, JP**

(54) Bezeichnung: **Anode für Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung**

## HINTERGRUND DER ERFINDUNG

## GEBIET DER ERFINDUNG

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft eine Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle. Insbesondere betrifft die vorliegende Erfindung eine Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle, in welcher die Reduktion der Elektrodenleitungsfähigkeit auch unter durch eine Unterbrechung der Brennstoffzufuhr oder dergleichen verursachten Bedingungen eines niedrigen Brennstoffstands erschwert stattfindet.

## BESCHREIBUNG DER VERWANDTEN TECHNIK

**[0002]** Brennstoffzellen sind für ein Energieerzeugungssystem der nächsten Generation sehr aussichtsreich. Insbesondere ist eine feste Polymerelektrolytbrennstoffzelle unter Verwendung eines festen Polymerelektrolyten als Elektrolyt als Energieversorgung für elektrische Fahrzeuge viel versprechend, da sie verglichen mit anderen Brennstoffzelltypen wie eine Phosphorsäurebrennstoffzelle bei relativ geringen Temperaturen arbeitet und kompakt ist.

**[0003]** [Fig. 3](#) zeigt schematisch die Struktur einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle. Wie in [Fig. 3](#) dargestellt, weist die feste Elektrolytbrennstoffzelle **1** eine laminierte Struktur auf, die aus zwei Elektroden, einer Brennstoffelektrode **10** und einer Lufolektrode **11**, und einer zwischen diesen Elektroden eng gehaltenen festen Polymerelektrolytmembran **12** besteht. Zudem ist eine Dispersionsschicht **13** zum Zuführen von Brennstoff über jede der Elektroden bereitgestellt, und des Weiteren ist eine Mehrzahl an Brennelementen **14** zum Unterteilen der Zellen der Brennstoffzelle eingebaut. In dieser festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle **1** wird der aus Wasserstoff oder Methanol bestehende Brennstoff der Brennstoffelektrode **10** zugeführt, um zum Erzeugen eines Protons oxidiert zu werden; wird Sauerstoff oder Luft der anderen Lufolektrode **11** zugeführt, um zu einem Sauerstoffion reduziert zu werden; und wird das Sauerstoffion mit dem von der Brennstoffelektrode **10** an der festen Polymerelektrolytmembran **12** vorbei gewanderten Proton kombiniert, um Wasser zu bilden, wobei diese Reaktionen zur Erzeugung von elektrischer Energie führen.

**[0004]** Die festen Polymerelektrolytbrennstoffzellen, die Anforderungen wie ausreichende Energieerzeugungsleistungsfähigkeit oder Reduktion der Gerätgröße erfüllen, wurden entwickelt und werden zur praktischen Verwendung weiterentwickelt. Jedoch wurde in den letzten Jahren das neue Problem erkannt, dass die Zelleistungsfähigkeit unter Brennstoffmangel beim Betrieb der Brennstoffzelle reduziert wird. Spezieller wird, wenn aus gewissen Gründen während des Normalbetriebs der Brennstoffzelle abnormale Zustände der Brennstoffzufuhr auftreten, die Elektrodenleistungsfähigkeit in der Brennstoffelektrode durch den Brennstoffmangel reduziert, wodurch die Zelleistungsfähigkeit reduziert und dadurch die konstante Zufuhr von elektrischer Energie unterbrochen wird.

**[0005]** Beim Auftreten einer derartigen Reduktion der Elektrodenleistungsfähigkeit aufgrund von Brennstoffmangel wäre die Aufhebung der elektrischen Energiezufuhr zeitlich begrenzt und nicht kritisch, wenn die Leistungsfähigkeit durch die erneute Normalisierung der Brennstoffzufuhr wieder hergestellt werden könnte. Jedoch wurde gemäß den früheren Berichten erkannt, dass die Reduktion der Elektrodenleistungsfähigkeit aufgrund von Brennstoffmangel unumkehrbar ist und nicht vollständig wieder hergestellt werden kann, wenn die Brennstoffzufuhr wieder anläuft.

**[0006]** Unter den Maßnahmen für diese Probleme der unumkehrbaren Leistungsfähigkeitsreduktion aufgrund von Brennstoffmangel würde es sich erstens darum handeln, ein Zufuhrsystem zu errichten, in welchem die Brennstoffzufuhr niemals stoppt. Jedoch wäre es auch dann, wenn Verbesserungen eines derartigen peripheren Systems möglich wären, bevorzugt, Verbesserungen auch an einer Brennstoffzelle oder an einer Elektrode selbst durchzuführen, die die Leistungsfähigkeitsreduktion während des Brennstoffmangels verhindern, wenn mögliche Störfälle vermutet werden.

**[0007]** Als Maßnahmen für eine Brennstoffzelle oder eine Elektrode selbst wurden Verbesserungen der die Elektroden oder die Elektrodenstruktur zusammensetzenden Katalysatoren genannt. Als Verbesserung von Katalysatoren ist es z.B. bekannt, einer Katalysatorschicht Rutheniumoxid ( $\text{RuO}_2$ ) oder Iridiumoxid ( $\text{IrO}_2$ ) zuzusetzen. Als zusätzliche Maßnahmen zur Verbesserung ist es wirksam, dass der aufzubringende Träger aus denjenigen Trägern, die stabile Oxidationseigenschaften aufweisen, wie graphitischem Kohlenstoff oder Titan-

oxid ( $\text{Ti}_4\text{O}_7$ ) ausgewählt wird, und dass zudem die Ladung der Katalysatorpartikel auf dem Träger erhöht wird (verwiesen wird auf die internationalen Veröffentlichungen WO 01/15247 und WO 01/15254 für Einzelheiten über die Verbesserungsmodelle in Bezug auf diese Katalysatoren).

**[0008]** Des Weiteren ist es als Maßnahmen in Bezug auf die Verbesserung von Elektrodenstrukturen möglich, die Leistungsfähigkeitsreduktion während eines Brennstoffmangels durch das Verfahren zum Erhöhen des Wassergehalts in Elektroden oder durch Ermöglichen der Unterdrückung der Abfuhr von Wasser für die Katalysatorschicht oder die Diffusionsschicht, die die Elektroden zusammensetzt, zu minimieren (verwiesen wird auf die internationale Veröffentlichung WO 01/15255 für Details über das Verbesserungsmodell).

**[0009]** Obwohl diese Maßnahmen wirksam sind, sind sie nach Meinung der Erfinder jedoch nicht ausreichend, und eine messbare Reduktion der Leistungsfähigkeit während eines Brennstoffmangels ist auch dann zu erkennen, wenn diese Maßnahmen ergriffen werden. Deshalb besteht Bedarf danach, nach weiteren Verbesserungen zu suchen, die sich von diesen Maßnahmen unterscheiden.

**[0010]** WO 00/72391 beschreibt eine Membran-Elektroden-Anordnung zur Verwendung in einer Brennstoffzelle, die ein Gemisch aus einem ionomeren Material, einem elektrisch leitenden Material und einem Katalysator umfasst.

**[0011]** US 2002/0015879 offenbart eine ein Substrat und einen Bestandteil auf Kohlenstoffbasis umfassende Brennstoffzellen-Anoden-Struktur, die angeblich wenig oder keine Korrosionsfestigkeit aufweist.

**[0012]** Die vorliegende Erfindung wurde unter dem vorstehend beschriebenen Hintergrund gebildet, und die Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle bereitzustellen, in welcher die Reduktion der Elektrodenleistungsfähigkeit auch bei der möglichen Bildung von Brennstoffmangel erschwert stattfindet.

**[0013]** WO-A-01/15247 offenbart eine Brennstoffzelle mit einer Anodenstruktur für einen Spannungsumkehrspielraum. Eine Zellspannungsumkehr kann auftreten, wenn die Zelle eine unangemessene Brennstoffzufuhr erhält (d.h. Brennstoffentkräftung). Während der Entkräftung können andere Reaktionen als Brennstoffoxidation an der Brennstoffzellanode, einschließlich Wasserelektrolyse und Oxidation von Anodenbestandteilen stattfinden. Den Brennstoffzellen kann durch gegenüber der Oxidation von Anodenbestandteilen begünstigte Wasserelektrolyse durch Einbringen einer Katalysatorzusammensetzung an der Anode zum Begünstigen der Wasserelektrolyse zusätzlich zu dem typischen Anodenelektrokatalysator zum Begünstigen von Brennstoffoxidation ein zusätzlicher Spielraum geschaffen werden. Die Brennstoffelektrode dieses früheren Dokuments schließt mindestens eine Reaktionsschicht und mindestens eine wasserzersetzende Schicht ein. Dieses Dokument bildet den vorcharakterisierenden Teil von Anspruch 1.

**[0014]** Erfindungsgemäß ist eine Apparatur und ein Verfahren wie in den beigefügten Ansprüchen dargelegt bereitgestellt. Bevorzugte Merkmale der Erfindung werden aus den abhängigen Ansprüchen und der folgenden Beschreibung klar.

**[0015]** Zum Erzielen der vorstehenden Aufgabe untersuchten die Erfinder zuerst die Faktoren der Leistungsfähigkeitsreduktion von Brennstoffelektroden während eines Brennstoffmangels und überlegten, dass der Faktor die Tatsache beinhaltet, dass eine in den Brennstoffelektroden erzeugte dominante Reaktion während des Brennstoffmangels variiert.

**[0016]** Dieser Punkt wird nun erklärt, indem als Beispiel ein Fall verwendet wird, in welchem Wasserstoff als Brennstoff angewandt wird. An der Brennstoffelektrode in einem Zustand, in welchem Brennstoff zugeführt wird, wird durch eine katalytische Oxidation von Wasserstoffmolekülen ein Proton erzeugt, und diese Zersetzungsreaktion von Wasserstoffmolekülen ist gewöhnlich dominant. Das Potential der Brennstoffelektrode in diesem Zustand beträgt etwa 0 V (in Bezug auf die Wasserstoffelektrode). Dem gegenüber erfolgt beim Bilden des Brennstoffmangels die Elektrolyse des im Brennstoff enthaltenen oder von der Brennstoffelektrode oder einem festen Polymerelektrolyten festgehaltenen Wassers an der Brennstoffelektrode, um ein fehlendes Proton zuzuführen, und diese Reaktion wird dominant. Das Potential der Elektrolyse von Wasser beträgt 1,23 V oder höher (in Bezug auf die Wasserstoffelektrode). Deshalb erhöht die Bildung des Brennstoffmangels das Potential der Brennstoffelektrode.

**[0017]** Die Erfinder überlegten, dass derartige Veränderungen der Umgebung für die Brennstoffelektrode (Zunahme des Potentials) eine gewisse Veränderung im Brennstoffelektrodenkatalysator verursachten, was zur

Reduktion der Aktivierung führte. Folglich untersuchten die Erfinder die am Katalysator erfolgende Veränderung und überlegten, dass die Potentialzunahme die Bildung eines gewissen Films auf der Oberfläche des Katalysators verursacht und der Film die Aktivität des Katalysators reduziert. Zudem überlegten die Erfinder, dass die Bildung des Films unumkehrbar ist und der Film sich auch dann nicht zersetzt oder verschwindet, wenn die Brennstoffzufuhr nach dem Brennstoffmangel normalisiert wird, sondern auf der Oberfläche des Katalysators zurück bleibt, wodurch die Reaktivierung des Katalysators verhindert wird.

**[0018]** Nach der vorstehend beschriebenen Überlegung fanden die Erfinder, dass das durch die vorliegende Erfindung zu lösende Problem durch Bereitstellen einer Brennstoffelektrode mit einer mehrschichtigen Struktur gelöst werden kann, in welcher als Mittel zum Unterdrücken der Leistungsfähigkeitsreaktion der Brennstoffelektrode aufgrund von Brennstoffmangel eine Schicht zum bevorzugten Begünstigen der Elektrolysereaktion von Wasser während eines Brennstoffmangels bereitgestellt wird, so dass das Auftreten der Elektrolysereaktion von Wasser in dem Bereich zum Beschleunigen der Brennstoffzellreaktion verhindert wird, und stießen auf die vorliegende Erfindung.

**[0019]** Die vorliegende Erfindung stellt eine Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle zum Beschleunigen einer Brennstoffzellreaktion zum Oxidieren des durch die Diffusionsschicht eingebrachten Brennstoffs bereit, umfassend mindestens eine Reaktionsschicht, welche mit einer festen Polymerelektrolytmembran in Kontakt ist und die Brennstoffzellreaktion beschleunigt, und mindestens eine wasserzersetzende Schicht, die mit der Diffusionsschicht in Kontakt ist und das Wasser in der Brennstoffelektrode elektrolytisch zersetzt und welche ein Gemisch aus einem Edelmetallkatalysator und einem wasserabweisenden Harz umfasst.

**[0020]** Folglich stellt die vorliegende Erfindung eine Brennstoffzellelektrode mit einer mehrschichtigen Struktur bereit, die im Allgemeinen eine einzelne Schicht und mindestens eine Elektrodenschicht (wasserzersetzende Schicht), zum bevorzugten Durchführen der Wasserersetzung, aufweist, wodurch das Vermeiden des Einflusses der Elektrolyse von Wasser auf die andere Elektrodenschicht (Reaktionsschicht) die die Ladung der Brennstoffzellreaktion annimmt, ermöglicht wird. Mit dieser Struktur erfolgt auch während eines Brennstoffmangels keine Wasserersatzungsreaktion an der Reaktionsschicht, so dass die Reduktion der Leistungsfähigkeit, insbesondere die unumkehrbare Reaktion der Leistungsfähigkeit erschwert stattfindet.

**[0021]** Folglich enthalten derartige Strukturen der wasserzersetzenden Schicht, die die Wasserelektrolyse bevorzugt durchführen, ein wasserabweisendes Harz zusätzlich zu dem Katalysator, der die Elektrolysereaktion von Wasser begünstigen kann. Die Elektrode für Brennstoffzellen schließt typischerweise ein Gemisch aus einem Katalysator zum Begünstigen der Brennstoffzellreaktion und ein Ionenaustauschharz ein. Wie hier nachstehend beschrieben, schließt die Reaktionsschicht zum Beschleunigen der Brennstoffzellreaktion in der vorliegenden Erfindung häufig eine derartige Konstruktion ein. Dem gegenüber ist es nötig, das das Ionenaustauschharz ersetzende wasserabweisende Harz zuzumischen, um eine Funktion als wasserzersetzende Schicht aufzuweisen. Obwohl der Faktor zum Begünstigen der Wasserersetzung durch Annehmen einer derartigen Konstruktion nicht unbedingt klar ist, überlegen die Erfinder, dass das Mischen des Katalysators mit dem wasserabweisenden Harz die Besetzung von Wasser in den Löchern der Gemischschicht unterdrückt. Insbesondere werden die Löcher in der Gemischschicht des Katalysators und des Ionenaustauschharzes leicht von Wasser besetzt, und sind die Löcher mit Wasser gefüllt, wird die Diffusion von durch die Elektrolyse von Wasser gebildetem Sauerstoff verhindert, so dass das Fortschreiten der Elektrolysereaktion von Wasser unterbrochen wird, wodurch die bevorzugte Wasserersatzungsreaktion verhindert wird. Dem gegenüber wird erwogen, dass das Mischen des wasserabweisenden Harzes die Besetzung der Löcher in der Schicht mit Wasser vermeiden und den Diffusionsweg des herzustellenden Wassers gewährleisten kann, wodurch die Elektrolysereaktion von Wasser begünstigt wird.

**[0022]** Die Katalysatoren zum Zusammensetzen der wasserzersetzenden Schicht schließen vorzugsweise Edelmetallkatalysatoren in Bezug auf die katalytische Aktivität und vorzugsweise diejenigen, in welchen ein oder mehrere Edelmetalle, ausgewählt aus Platin, Ruthenium, Iridium und Silber auf einem Träger als Katalysatorbestandteile getragen werden, ein. Des Weiteren schließen die Katalysatoren besonders bevorzugt diejenigen ein, in welchen eine Legierung aus mindestens zwei Metallen von diesen Edelmetallen wie Platin-Ruthenium oder Platin-Iridium getragen werden. Daher sind diese Legierungskatalysatoren in Bezug auf die katalytische Aktivität und Stabilität ausgezeichnet. Kohlenstofffeinpulver, die als Katalysatorträger allgemein verwendet wurden, sind für den Träger bevorzugt. Weiterhin beträgt die Beladung der katalytischen Bestandteile zu dem Träger vorzugsweise 10 bis 60% in Bezug auf das Gewährleisten von Aktivität und Reduzierung der Größe der gesamten Elektrode.

**[0023]** Wasserabweisende Harze wie PTFE, PFA, PVDF und PFEP können angewandt werden. Das Verhältnis des Katalysators zu dem wasserabweisenden Harz zum Zusammensetzen der wasserzersetzenden Schicht beträgt vorzugsweise 4:1 bis 1:4 in Bezug auf das Gewichtsverhältnis des Katalysatorträgergewichts zu dem Gewicht des wasserabweisenden Harzes. Damit die wasserzersetzende Schicht die Elektrolyse von Wasser bevorzugt durchführt, ist es nötig, dass ein gewisser Gehalt an wasserabweisendem Harz zugemischt wird, da das Eindringen von Wasser in die Löcher unterdrückt werden muss. Ist jedoch der Gehalt an wasserabweisendem Harz zu hoch, nimmt das Vermögen der wasserzersetzenden Schicht zum Tragen von Wasser ab, was dazu führt, dass zugelassen wird, dass die Elektrolyse von Wasser nur schwer stattfindet. In Bezug auf das Gleichgewicht der Beiden ist der vorstehend beschriebene Bereich geeignet.

**[0024]** Die wasserzersetzende Schicht kann auch eine kleine Menge des Ionenaustauschharzes einschließen. Jedoch ist der Gehalt (das Verhältnis) des Ionenaustauschharzes in diesem Falle vorzugsweise kleiner als der Gehalt des Ionenaustauschharzes in der nachstehend zu beschreibenden Brennstoffelektrode. Dies liegt daran, dass ein zu hoher Gehalt des Ionenaustauschharzes die Besetzung der Löcher in der wasserzersetzenden Schicht erhöht und eine Sauerstoffdiffusion verhindern kann. Folglich beträgt der Gehalt des Ionenaustauschharzes speziell vorzugsweise 33 Gew.-% oder weniger in Bezug auf das Gesamte des Katalysators und des wasserabweisenden Harzes.

**[0025]** Zudem wird gemäß den Erfindern die Wirkung zum Zersetzen des Wassers in der wasserzersetzenden Schicht durch Versehen der wasserzersetzenden Schicht mit einer porösen Struktur, die poröser als die Reaktionsschicht ist, beachtlich. Dies ist deutlich zu beobachten, wenn die wasserzersetzende Schicht ein Gemisch aus dem Katalysator, dem wasserabweisenden Harz und dem Ionenaustauschharz ist und die Reaktionsschicht auch in einer ähnlichen Struktur wie vorstehend beschrieben gebildet wird. Die Wirksamkeit zum Zersetzen von Wasser in der wasserzersetzenden Schicht wird verbessert, da die poröse Struktur die Löcher zum Verbessern der Diffusion von Sauerstoff erhöht wird, wodurch die Wasserelektrolyse begünstigt wird.

**[0026]** Verglichen mit der vorstehend beschriebenen wasserzersetzenden Schicht werden diejenigen mit einer ähnlichen Konstruktion wie herkömmliche Brennstoffelektroden für Brennstoffzellen auf die Reaktionsschicht in Kontakt mit der festen Polymerelektrolytmembran aufgebracht. Hier schließt die Konstruktion für die Reaktionsschicht grundsätzlich ein Gemisch aus dem Katalysator zum Begünstigen der Brennstoffzellreaktion und dem Ionenaustauschharz ein. Für den Katalysator werden Edelmetallkatalysatoren wie ein Platinkatalysator und ein Platin-Ruthenium-Legierungskatalysator verwendet. Die Beladung des Katalysators beträgt vorzugsweise 30 bis 60%. Des Weiteren schließen die aufzubringenden Austauschharze diejenigen mit denselben Eigenschaften wie diejenigen, die in der festen Polymerelektrolytmembran verwendet werden, z.B. Perfluorsulfonsäure ein. Das Mischverhältnis des Katalysators zu dem Ionenaustauschharz beträgt vorzugsweise 1:0,5 bis 1:2,0 in Bezug auf das Gewichtsverhältnis des Gewichts des Trägers des Katalysators zu dem Gewicht des Ionenaustauschharzes.

**[0027]** Die Reaktionsschicht kann in einigen Fällen wasserabweisende Harze einschließen. Für das wasserabweisende Harz kann in diesen Fällen dasjenige verwendet werden, das denjenigen, die in der wasserzersetzenden Schicht verwendet werden, gleicht. Die zuzusetzende Menge des wasserabweisenden Harzes beträgt vorzugsweise 33 Gew.-% oder weniger in Bezug auf das Gesamte des Katalysators und des Ionenaustauschharzes.

**[0028]** Die erfindungsgemäße Brennstoffelektrode kann sowohl für die Reaktionsschicht als auch die wasserzersetzende Schicht mindestens eine Schicht einschließen, jedoch kann jede der Schichten eine Mehrzahl an Schichten einschließen. Zum Beispiel kann die wasserzersetzende Schicht ein Laminat aus einer Mehrzahl an wasserzersetzenden Schichten mit unterschiedlichen Mischverhältnissen oder dergleichen des Katalysators zu dem wasserabweisenden Harz einschließen. Auch waren für die Reaktionsschicht Brennstoffelektroden mit einer mehrschichtigen Struktur mit unterschiedlichen Katalysatortypen und Mischverhältnissen bekannt, und die Reaktionsschicht der vorliegenden Erfindung kann eine derartige Struktur einschließen. Jedoch schließt eine bevorzugte Form diejenige ein, bei welcher beide Schichten einzelne Schichten einschließen, und besonders bevorzugt ist diejenige, in welcher die wasserzersetzende Schicht einzeln vorliegt. Da die Herstellung der Elektrode durch die einzelne Schicht leichter wird, und zum Unterdrücken der Leistungsfähigkeitsreduktion während eines Brennstoffmangels ist dadurch, dass eine Mehrzahl an wasserzersetzenden Schichten vorliegt, keine besondere Verbesserung in der Wirkung zu beobachten.

**[0029]** Gemäß der vorstehenden Beschreibung schließen die Modi der Brennstoffelektrode für eine erfindungsgemäße feste Polymerelektrolytbrennstoffzelle vier in [Fig. 1](#) dargestellte Typen ein. [Fig. 1](#) veranschaulicht insgesamt vier Muster, einschließlich zwei Mustern ((a) und (b)) für die Fälle des Aufbringens eines Ge-

mischs aus einem Katalysator und einem Ionenaustauschharz auf eine Reaktionsschicht, und zwei Muster ((c) und (d)) für die Fälle, in welchen die Reaktionsschicht des Weiteren ein wasserabweisendes Harz einschließt. Diese vier Muster werden als Grundmuster verwendet, in welchen die Typen und Mischverhältnisse für jeden der Bestandteile geeignet eingestellt werden können, um Brennstoffelektroden abhängig von verschiedenen Verwendungen von Brennstoffzellen herzustellen.

**[0030]** Die erfindungsgemäße Brennstoffelektrode weist eine mehrschichtige Struktur auf, die aus mindestens zwei Schichten besteht. Zur Herstellung derselben ist es bevorzugt, eine Reaktionsschicht auf der Oberfläche einer festen Polymerelektrolytmembran zu bilden, eine wasserzersetzende Schicht auf einer Diffusionsschicht zu bilden und die Reaktionsschicht und die wasserzersetzende Schicht zu verbinden. Bei der Herstellung von Brennstoffzellelektroden wird im allgemeinen eine gemischte Paste (Katalysatorpaste) eines Katalysators mit einem Harz hergestellt und die Paste auf die Oberfläche entweder einer festen Polymerelektrolytmembran oder einer Diffusionsschicht aufgebracht, getrocknet und heißgepresst, um eine feste Elektrode zu bilden. In diesem Fall hängt die Dichte der Elektrode von dem Substrat, auf welches die Paste aufgebracht wird, ab, und eine poröse Elektrode kann durch Aufbringen der Paste auf ein poröses Substrat und Ausbrennen hergestellt werden. Wie vorstehend beschrieben, ist die wasserzersetzende Schicht vorzugsweise porös. Nach dieser Überlegung ist es möglich, eine poröse wasserzersetzende Schicht unter Verwendung einer porösen Diffusionsschicht als Substrat zum Aufbringen der Paste herzustellen. Folglich ist es möglich, eine Elektrode mit mehrschichtiger Struktur einer bevorzugten Ausführungsform durch Bilden einer porösen wasserzersetzenden Schicht auf der Diffusionsschichtseite und Bilden einer Reaktionsschicht auf der Polymerelektrolytmembranseite zu erzielen, wodurch ein Unterschied in den Dichten zwischen den beiden Schichten bereitgestellt wird.

**[0031]** Jedoch erkannten die Erfinder, dass die Wirkung der vorliegenden Erfindung unter Verwendung z.B. eines Katalysator/Ionenaustauschharz-Gemischs für die Reaktionsschicht und eines Gemischs aus Katalysator/wasserabweisendem Harz für die wasserzersetzende Schicht ohne die Verwendung einer porösen wasserzersetzenden Schicht gezeigt wird. Folglich kann, wenn die Dichte der wasserzersetzenden Schicht erwägunghalber nicht verschlechtert ist, die Brennstoffelektrode durch Bilden sowohl der Reaktionsschicht als auch der wasserzersetzenden Schicht auf entweder einer Polymerelektrolytmembran oder einer Diffusionsschicht bereitgestellt werden.

**[0032]** Des Weiteren ist der Brennstoff, der der erfindungsgemäßen Brennstoffelektrode zuzuführen ist, nicht besonders beschränkt und kann so genannten Spaltwasserstoff, der direkt von einer flüssigen Brennstoffzelle zugeführt wird, natürliches Gas oder dergleichen einschließen. Jedoch enthält der Spaltwasserstoff häufig eine sehr kleine Menge Verunreinigungen wie Kohlenmonoxid. Deshalb ist es unter Berücksichtigung der Beständigkeit gegenüber Katalysatorvergiftung durch Kohlenmonoxid schwierig, dass die Brennstoffzelle, welcher der Spaltwasserstoff direkt zugeführt wird, auch durch die vorliegende Erfindung die Leistungsfähigkeit während eines Brennstoffmangels beibehält. Folglich ist es zum Gewährleisten des Aufweisens der Wirkung der vorliegenden Erfindung bevorzugt, als Brennstoff Wasserstoff anzuwenden, der kein Kohlenmonoxid enthält (reinen Wasserstoff).

#### KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

**[0033]** [Fig. 1](#) veranschaulicht die Typen der Brennstoffelektrode der erfindungsgemäßen festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle;

**[0034]** [Fig. 2](#) veranschaulicht die Einzelzelleistungsfähigkeit vor und nach einem Brennstoffmangeltest für Vergleichsbeispiel 1; und

**[0035]** [Fig. 3](#) veranschaulicht die Konstruktion einer typischen festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle.

#### DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORMEN

**[0036]** Bevorzugte Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung werden nun zusammen mit Zeichnungen und Vergleichsbeispielen beschrieben. In den folgenden Ausführungsformen werden eine Reaktionsschicht und eine wasserzersetzende Schicht mit einem spezifischen Mischverhältnis für vier Modi der in [Fig. 1](#) dargestellten Brennstoffelektroden gebildet, und die Brennstoffelektroden wurden für jeden der Modi für die Untersuchung der Leistungsfähigkeit hergestellt. Für die Katalysatoren, die Ionenaustauschharze und die wasserabweisenden Harze zum Zusammensetzen von jeder der Schichten werden Folgende bereitgestellt.

**[0037]** Erstens wurde ein Platin-Ruthenium-Katalysator für den Katalysator für die Reaktionsschicht verwen-

det. Der Platin-Ruthenium-Katalysator wurde hergestellt, indem zuerst ein Platinkatalysator hergestellt wurde und man den Platinkatalysator dann Ruthenium tragen sowie das Platin und Ruthenium legieren ließ. Der Platinkatalysator wurde durch Imprägnieren von im Handel erhältlichen Kohlenstofffeinpulvern (Markenbezeichnung: Ketjenblack EC, spezifischer Oberflächenbereich  $800 \text{ m}^2/\text{g}$ ) als Träger mit einer Lösung von Dinitrodiamminplatin in Salpetersäure mit einer Platinkonzentration von 2,2 Gew.-%, Zugabe eines Reduktionsmittels (Ethanol), Rühren bei  $95^\circ\text{C}$  für eine Dauer von 6 Stunden, Filtrieren und Trocknen hergestellt. Der Platin-Ruthenium-Legierungskatalysator wurde durch Imprägnieren des Platinkatalysators mit einer Rutheniumchloridlösung, enthaltend 6,24 Gew.-% Ruthenium, und Trocknen zum Tragen von Ruthenium auf dem Platinkatalysator und des Weiteren durch Beibehalten dessen bei  $900^\circ\text{C}$  für eine Dauer von 1 Stunde in 50%igem Wasserstoffgas (Rest: Stickstoffgas) zum Legieren hergestellt. Der Platin-Ruthenium-Katalysator wies ein Beladungsverhältnis (Molverhältnis) von Platin zu Ruthenium von 1:1 und eine Beladung der Katalysatorbestandteile von 50% auf.

**[0038]** Ein Platinkatalysator wurde für den Katalysator in der wasserzersetzenden Schicht verwendet. Für diesen Platinkatalysator wurde der Platinkatalysator verwendet, der im vorstehenden beschriebenen Verfahren zur Herstellung des Platin-Ruthenium-Legierungskatalysators erhalten wurde (Beladung 40%). Zudem wurden Perfluorsulfonsäure (Markenbezeichnung: Nafion, erhältlich von DuPont Corporation) für das Ionenaustauschharz und PTFE (Markenbezeichnung: Lubron, erhältlich von Daikin Industries, Ltd.) für das wasserabweisende Harz verwendet.

**[0039]** Erste Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Brennstoffelektrode, entsprechend (a) in [Fig. 1](#), hergestellt. Zuerst wurde 1 g Feinpulver des Harzes, hergestellt durch Sprühtrocknen einer 5%igen Lösung des vorstehend beschriebenen Ionenaustauschharzes und 2 g des vorstehend beschriebenen Platin-Ruthenium-Katalysators, zu 25 ml einer wässrigen Lösung von 1-Propanol zugesetzt, und sie wurden für eine Dauer von 50 Minuten mit einer Kugelmühle unter Herstellung einer Katalysatorpaste gemischt. Als nächstes wurde die Katalysatorpaste zum Drucken auf die Oberfläche einer Polymerelektrolytmembran (Nafion 112) derart, dass die Beladung von Platin  $0,2 \text{ mg}/\text{cm}^2$  betrug, unter Bildung der Reaktionsschicht aufgebracht.

**[0040]** Dem gegenüber wurden für die wasserzersetzende Schicht 1 g des vorstehend beschriebenen Feinpulvers des wasserabweisenden Harzes und 1,7 g des vorstehend beschriebenen Platinkatalysators zu 25 ml einer wässrigen Lösung von 1-Propanol zugesetzt, und sie wurden für eine Dauer von 50 Minuten mit einer Kugelmühle unter Herstellung einer Katalysatorpaste gemischt. Als nächstes wurde die Katalysatorpaste durch Drucken auf die Oberfläche einer Diffusionsschicht derart, dass die Beladung von Platin  $0,1 \text{ mg}/\text{cm}^2$  betrug, unter Bildung der wasserzersetzenden Schicht aufgebracht. Anzumerken ist, dass für die Diffusionsschicht ein Kohlenstoffpapier mit Kohlenstoff und auf der oberen Schicht aufgetragenem PTFE verwendet wurde.

**[0041]** Dann wurden die Reaktionsschicht (Polymerelektrolytmembran) und die wasserzersetzende Schicht (Diffusionsschicht), die in dem vorstehenden Verfahren hergestellt wurden, einander gegenüber aufeinander gelegt und in eine Messzelle für den nachstehend zu beschreibenden Test eingebracht, indem die beiden Schichten unter Bildung der Brennstoffelektrode miteinander verbunden wurden.

**[0042]** Zweite Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Brennstoffelektrode, entsprechend (b) in [Fig. 1](#), hergestellt. Die Reaktionsschicht wurde in einer ähnlichen Weise wie die erste Ausführungsform hergestellt. Dem gegenüber wurde des Weiteren ein Ionenaustauschharz der wasserzersetzenden Schicht in der vorliegenden Erfindung zugesetzt. Insbesondere wurde des Weiteren 1 g Feinpulver des Ionenaustauschharzes zugesetzt, als die Katalysatorpaste für die wasserzersetzende Schicht hergestellt wurde, wobei andere Verfahren der ersten Ausführungsform ähnelten. Die hergestellte Reaktionsschicht und wasserzersetzende Schicht wurden unter Bildung der Brennstoffelektrode durch ein ähnliches Verfahren wie die erste Ausführungsform verbunden.

**[0043]** Dritte Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Brennstoffelektrode, entsprechend (c) in [Fig. 1](#), hergestellt. Ein wasserabweisendes Harz wurde des Weiteren der Reaktionsschicht dieser Ausführungsform zugesetzt. Insbesondere wurde des Weiteren 1 g Feinpulver des wasserabweisenden Harzes zugesetzt, als die Katalysatorpaste für die Reaktionsschicht hergestellt wurde, wobei andere Verfahren denjenigen der ersten Ausführungsform ähnelten. Dem gegenüber wurde die wasserzersetzende Schicht in einer ähnlichen Weise wie die erste Ausführungsform hergestellt. Die hergestellte Reaktionsschicht und wasserzersetzende Schicht wurden unter Bildung der Brennstoffelektrode durch ein ähnliches Verfahren wie die erste Ausführungsform verbunden.

**[0044]** Vierte Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Brennstoffelektrode entsprechend (d) in [Fig. 1](#), hergestellt. Die Reaktionsschicht und die wasserzersetzende Schicht wurden durch ein ähnliches Verfahren wie die dritte Ausführungsform bzw. die zweite Ausführungsform hergestellt, und die endgültige Bindung der beiden Schichten wurde in einer ähnlichen Weise wie die erste Ausführungsform durchgeführt.

**[0045]** Fünfte Ausführungsform: In der vorliegenden Erfindung wurde die Brennstoffzellelektrode, die (d) in [Fig. 1](#) entspricht, wie die vierte Ausführungsform hergestellt, die derart eingestellt wird, dass der Gehalt des Ionenaustauschharzes in der wasserzersetzenden Schicht kleiner als derjenige in der Reaktionsschicht ist. Die wasserzersetzende Schicht wurde in einer ähnlichen Weise wie die zweite Ausführungsform hergestellt, jedoch wurde das Ionenaustauschharz in einer Menge von 0,5 g (15,6%) zum Einstellen des Gehalts zugesetzt.

**[0046]** Vergleichsbeispiel 1: Als Vergleichsbeispiel für die vorstehend beschriebenen Ausführungsformen wurde eine herkömmliche Brennstoffelektrode (einzelne Schicht) hergestellt. Die in einem ähnlichen Verfahren wie die erste Ausführungsform hergestellte Katalysatorpaste für die Reaktionsschicht wurde durch Drucken auf die Oberfläche einer Polymerelektrolytmembran (Nafion 112) derart, dass die Beladung von Platin 0,2 mg/cm<sup>2</sup> betrug, unter Bildung der Brennstoffelektrode aufgebracht.

**[0047]** Vergleichsbeispiele 2 und 3: Diese Vergleichsbeispiele sollen die Wirkung der erfindungsgemäßen mehrschichtigen Elektrode bestätigen, die einzelne Elektroden (Katalysator/wasserabweisendes Harz und Katalysator/wasserabweisendes Harz/Ionenaustauschharz), einschließlich ein wasserabweisendes Harz aufweisen. Vergleichsbeispiel 2 wird in einer einzelnen Schicht in einer ähnlichen Konstruktion wie die wasserzersetzende Schicht der ersten Ausführungsform (Katalysator/wasserabweisendes Harz) gebildet. Auch wird Vergleichsbeispiel 3 in einer einzelnen Schicht in einer ähnlichen Konstruktion wie die Reaktionsschicht der dritten Ausführungsform (Katalysator/wasserabweisendes Harz/Ionenaustauschharz) gebildet. Die Katalysatorpaste wurde durch Drucken auf die Diffusionsschicht für Vergleichsbeispiel 2 bzw. auf die Polymerelektrolytmembran für Vergleichsbeispiel 3 derart, dass die Beladung von Platin 0,2 mg/cm<sup>2</sup> betrug, unter Bildung dieser Brennstoffelektroden aufgebracht.

**[0048]** Dann wurden die Brennstoffelektroden gemäß den vorstehend beschriebenen ersten bis fünften Ausführungsformen und Vergleichsbeispielen 1 bis 3 bzw. mit Luftpolektroden unter Bildung von Brennstoffzellen kombiniert, um die Veränderung der Einzelzelleistungsfähigkeit während eines Brennstoffmangels zu untersuchen, wobei ein Gemisch aus dem Platinkatalysator und dem Ionenaustauschharz für die Elektrode verwendet wurde.

**[0049]** Der Brennstoffmangeltest wurde gemäß dem folgenden Verfahren durchgeführt. Zuerst wurden Wasserstoff und Sauerstoff durch die Brennstoffelektrode bzw. die Luftpolektrode zugeführt (Fließgeschwindigkeit 1l/Min. bzw. 1l/Min.), und die Einzelzelleistungsfähigkeit (Stromdichte-Potential-Leistungsfähigkeit) wurde zu diesem Zeitpunkt gemessen. Dann wurde die Gaszufuhr zu beiden Elektroden unterbrochen; nasses Stickstoffgas wurde beiden Elektroden zugeführt; und Strom mit 200 mA/cm<sup>2</sup> wurde für eine Dauer von 11 Minuten zwangsweise durchgeleitet (hier nachstehend wird dieser Schritt als Brennstoffmangeltest bezeichnet). Zu diesem Zeitpunkt wurde das Potential der Brennstoffelektrode bei 1,4 V oder darüber (dem Potential des elektrolytischen Potentials von Wasser oder darüber) gehalten. Nach diesem Brennstoffmangeltest wurden der Brennstoffelektrode bzw. der Luftpolektrode wieder Wasserstoff und Sauerstoff zugeführt, und die Einzelzelleistungsfähigkeit zu diesem Zeitpunkt wurde gemessen. Bei der Messung der Einzelzelleistungsfähigkeit vor und nach dem Brennstoffmangeltest wurden jeweils die Potentialwerte mit spezifischen Stromdichten (1 A/cm<sup>2</sup>, 2 A/cm<sup>2</sup> und 3 A/cm<sup>2</sup>) bestimmt, und der Unterschied der Potentialwerte bei jeder Stromdichte,  $\Delta V$ , wurde berechnet. Die Gegenwart oder Abwesenheit der Leistungsfähigkeitsreduktion nach dem Brennstoffmangeltest ist als die Größenordnung des  $\Delta V$  zu bestimmen.

**[0050]** [Fig. 2](#) zeigt die Ergebnisse des Brennstoffmangeltests für Vergleichsbeispiel 1. Wie aus [Fig. 2](#) klar, ist das Potential nach dem Brennstoffmangeltest geringer als vor dem Brennstoffmangel in der Brennstoffelektrode für Vergleichsbeispiel 1. Spezieller betragen die  $\Delta V$ s für die Stromdichten von 1 A/cm<sup>2</sup>, 2 A/cm<sup>2</sup> und 3 A/cm<sup>2</sup> 18 mV, 78 mV bzw. 400 mV oder mehr. Diese Ergebnisse weisen darauf hin, dass der Verlust der Elektrodenleistungsfähigkeit in Vergleichsbeispiel 1 aufgrund des Brennstoffmangels erfolgte.

**[0051]** Der Brennstoffmangeltest wurde für jede Ausführungsform und jedes Vergleichsbeispiel in ähnlicher Weise wie in Vergleichsbeispiel 1 durchgeführt, und  $\Delta V$  wurde in jeder Stromdichte bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1

	$\Delta V$ (mV)		
	1 A/cm <sup>2</sup>	2 A/cm <sup>2</sup>	3 A/cm <sup>2</sup>
Erste Ausführungsform	6	34	77
Zweite Ausführungsform	7	32	76
Dritte Ausführungsform	9	33	90
Vierte Ausführungsform	17	37	85
Fünfte Ausführungsform	12	37	64
Vergleichsbeispiel 1	18	79	400 oder mehr
Vergleichsbeispiel 2	-	-	-
Vergleichsbeispiel 3	22	82	254

nicht messbar

**[0052]** Wie aus Tabelle 1 klar, sind die  $\Delta V$ -Werte in den Brennstoffelektroden gemäß jeder der Ausführungsformen als deutlich geringer diejenigen in Vergleichsbeispiel 1 (mit derselben Konstruktion wie herkömmliche Brennstoffelektroden). Diese Ergebnisse weisen darauf hin, dass die Leistungsfähigkeitsreduktion durch den Brennstoffmangel in der Brennstoffelektrode mit einer mehrschichtigen Struktur gemäß jeder der Ausführungsformen unterdrückt wird. Dem gegenüber zeigt Vergleichsbeispiel 3 ein ähnliches Verhalten wie Vergleichsbeispiel 1, was darauf hinweist, dass Vergleichsbeispiel 3 keine Wirkung auf den Brennstoffmangel aufweist. Vergleichsbeispiel 2 war nicht messbar. Dieses Ergebnis weist darauf hin, dass Vergleichsbeispiel 2, das kein Ionenaustauschharz einschließt, nicht die inhärente Wirkung der Brennstoffelektrode (zum Begünstigen der Brennstoffzellreaktion) aufweist.

**[0053]** Sechste Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Konstruktion der wasserzersetzenden Schicht von einem Platinkatalysator in der ersten Ausführungsform in einen Platin-Ruthenium-Legierungskatalysator zum Herstellen der Brennstoffelektrode geändert. Dieser Platin-Ruthenium-Legierungskatalysator gleicht demjenigen, der in der ersten Ausführungsform verwendet wird. Des Weiteren wurde die wasserzersetzende Schicht durch ein ähnliches Verfahren wie die erste Ausführungsform hergestellt, außer dass die Mischung des Katalysators in 2,0 g bei der Herstellung der Katalysatorpaste für die wasserzersetzende Schicht in der ersten Ausführungsform geändert wurde. Anzumerken ist, dass die Reaktionsschicht in einer ähnlichen Weise wie die erste Ausführungsform hergestellt wurde.

**[0054]** Siebte Ausführungsform: In der vorliegenden Ausführungsform wurde die Konstruktion der wasserzersetzenden Schicht von einem Platinkatalysator in der ersten Ausführungsform in einen Platin-Iridium-Legierungskatalysator zum Herstellen der Brennstoffelektrode geändert. Der Platin-Iridium-Legierungskatalysator wurde durch Imprägnieren des vorstehend beschriebenen Platinkatalysators mit einer Iridiumchloridlösung, enthaltend 6,0 Gew.-% Iridium, und Trocknen zum Tragen von Iridium auf dem Platin-Iridium-Katalysator und des Weiteren durch Beibehalten deren bei 900°C für eine Dauer von 1 Stunde in 50%igem Wasserstoffgas (Rest: Stickstoffgas) zum Legieren hergestellt. Der Platin-Iridium-Katalysator wies ein Beladungsverhältnis (Molverhältnis) von Platin zu Iridium von 1:1 und eine Beladung der Katalysatorbestandteile von 57% auf.

**[0055]** Der Platin-Iridium-Katalysator wurde zum Herstellen der wasserzersetzenden Schicht zum Herstellen der Brennstoffelektrode verwendet. Die wasserzersetzende Schicht wurde durch ein ähnliches Verfahren wie

die erste Ausführungsform hergestellt, außer dass die Mischungsmenge des Katalysators in 2,33 g, bei der Herstellung der Katalysatorpaste für die wasserzersetzende Schicht in der ersten Ausführungsform geändert wurde. Anzumerken ist, dass die Reaktionsschicht in einer ähnlichen Weise wie die erste Ausführungsform hergestellt wurde.

**[0056]** Der Brennstoffmangeltest wurde für die in den vorstehenden sechsten und siebten Ausführungsformen in einer ähnlichen Weise wie die ersten bis fünften Ausführungsformen hergestellten Brennstoffelektroden durchgeführt, und die  $\Delta V$ s wurden aus den Ergebnissen der Messungen der Einzelzelleistungsfähigkeit vor und nach dem Brennstoffmangeltest berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 dargestellt. Tabelle 2 zeigt auch dazu das Ergebnis der ersten Ausführungsform 1.

Tabelle 2

	$\Delta V$ (mV)		
	1 A/cm <sup>2</sup>	2 A/cm <sup>2</sup>	3 A/cm <sup>2</sup>
Sechste Ausführungsform	5	25	66
Siebte Ausführungsform	5	25	67
Erste Ausführungsform	6	34	77

**[0057]** Wie aus Tabelle 2 klar, sind die  $\Delta V$ -Werte in den Brennstoffelektroden gemäß der sechsten und siebten Ausführungsform deutlich niedriger als diejenigen in den Vergleichsbeispielen, was darauf hinweist, dass die Leistungsfähigkeitsreduktion durch den Brennstoffmangel unterdrückt wird. Insbesondere sind die  $\Delta V$ -Werte in diesen Ausführungsformen des Weiteren etwas geringer als diejenigen in der ersten Ausführungsform, was auf eine bessere Wirkung hinweist.

**[0058]** Wie vorstehend beschrieben kann die Brennstoffelektrode der erfindungsgemäßen festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle die Leistungsfähigkeitsreduktion aufgrund des Unterbrechens der Brennstoffzufuhr unterdrücken. Insbesondere bestätigte es sich, dass die Leistungsfähigkeit durch Normalisierung der Brennstoffzufuhr ohne die unumkehrbare in herkömmlichen Brennstoffelektroden beobachtete Reduktion der Leistungsfähigkeit reaktiviert wird. Die vorliegende Erfindung kann die Zuverlässigkeit der festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle verbessern und zu der Förderung ihrer Kommerzialisierung beitragen.

### Patentansprüche

1. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle zum Beschleunigen einer Brennstoffzellenreaktion zum Oxidieren des durch eine Diffusionsschicht eingebrachten Brennstoffs, umfassend: mindestens eine Reaktionsschicht, welche mit einer festen Polymerelektrolytmembran in Kontakt ist und die Brennstoffzellreaktion durch auf einen Katalysatorträger geladene Katalysatorbestandteile beschleunigt, und mindestens eine wasserzersetzende Schicht, welche mit der Diffusionsschicht in Kontakt ist und das Wasser in der Brennstoffelektrode durch darauf geladene Katalysatorbestandteile elektrolytisch zersetzt, **dadurch gekennzeichnet**, dass die wasserzersetzende Schicht ein Gemisch aus einem Edelmetallkatalysator und einem wasserabweisenden Harz umfasst, wobei das Gewichtsverhältnis des Gewichts des Katalysatorträgers zum Gewicht des wasserabweisenden Harzes 4:1 bis 1:4 beträgt.

2. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach Anspruch 1, wobei der Edelmetallkatalysator einen Träger umfasst, der ein beliebiges oder mehrere beliebige Edelmetalle, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Platin, Ruthenium, Iridium und Silber oder eine Legierung von mindestens zwei der Edelmetalle als Katalysatorbestandteil, darauf trägt.

3. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach Anspruch 2, wobei die wasserzersetzende Schicht des Weiteren ein Ionenaustauschharz umfasst.

4. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 bis 3,

wobei die Reaktionsschicht ein Gemisch aus dem Edelmetallkatalysator und dem Ionenaustauschharz ist.

5. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach Anspruch 4, wobei der Edelmetallkatalysator einen Träger und Platin umfasst, wobei das Platin als Katalysatorbestandteil auf dem Träger getragen wird.

6. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach Anspruch 4 oder 5, wobei die Reaktionsschicht des Weiteren das wasserabweisende Harz umfasst.

7. Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei der durch die Diffusionsschicht eingebrachte Brennstoff reiner Wasserstoff ist.

8. Verfahren zur Herstellung der Brennstoffelektrode einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 bis 7, umfassend die Schritte:

Bilden der Reaktionsschicht auf der Oberfläche der festen Polymerelektrolytmembran,

Bilden der wasserzersetzenden Schicht auf der Diffusionsschicht, und

Verbinden der Reaktionsschicht und der wasserzersetzenden Schicht.

9. Verfahren zum Betreiben einer festen Polymerelektrolytbrennstoffzelle, umfassend die Schritte des Bereitstellens von reinem Wasserstoff als Brennstoff und Zuführen des Brennstoffs zu einer Brennstoffelektrode durch eine Diffusionsschicht,

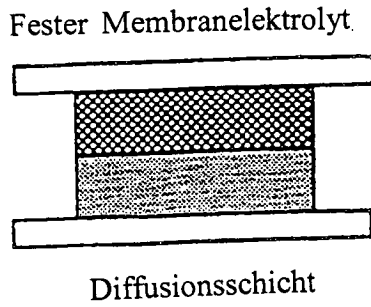
wobei die Brennstoffelektrode so konstruiert ist, dass sie eine mehrschichtige Struktur aufweist, umfassend: mindestens eine Reaktionsschicht, welche mit einer festen Polymerelektrolytmembran in Kontakt ist und die Brennstoffzellenreaktion durch auf einem Katalysatorträger geladene Katalysatorbestandteile beschleunigt, und

mindestens eine wasserzersetzende Schicht, welche mit der Diffusionsschicht in Kontakt ist und das Wasser in der Brennstoffelektrode durch darauf geladene Katalysatorbestandteile elektrolytisch zersetzt, dadurch gekennzeichnet, dass die wasserzersetzende Schicht ein Gemisch aus einem Edelmetallkatalysator und einem wasserabweisenden Harz umfasst, wobei das Gewichtsverhältnis des Gewichts des Katalysatorträgers zum Gewicht des wasserabweisenden Harzes 4:1 bis 1:4 beträgt.

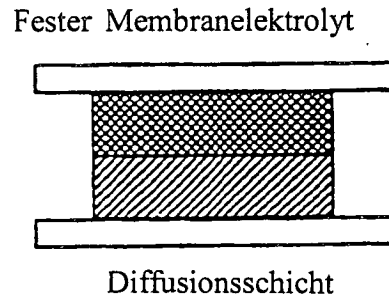
Es folgen 3 Blatt Zeichnungen

FIG. 1

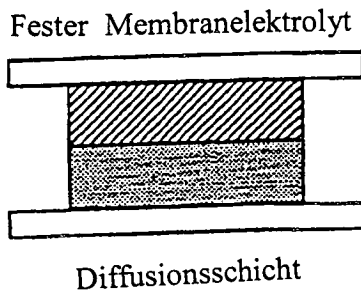
(a)



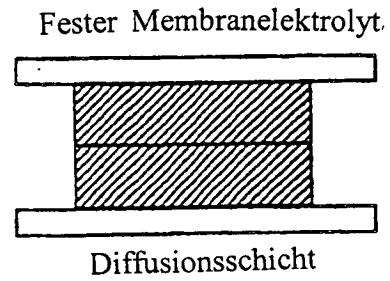
(b)



(c)



(d)



Katalysator/Ionenaustauschharz



Katalysator/wasserabweisendes Harz



Katalysator/Ionenaustauschharz/wasserabweisendes Harz

FIG. 2

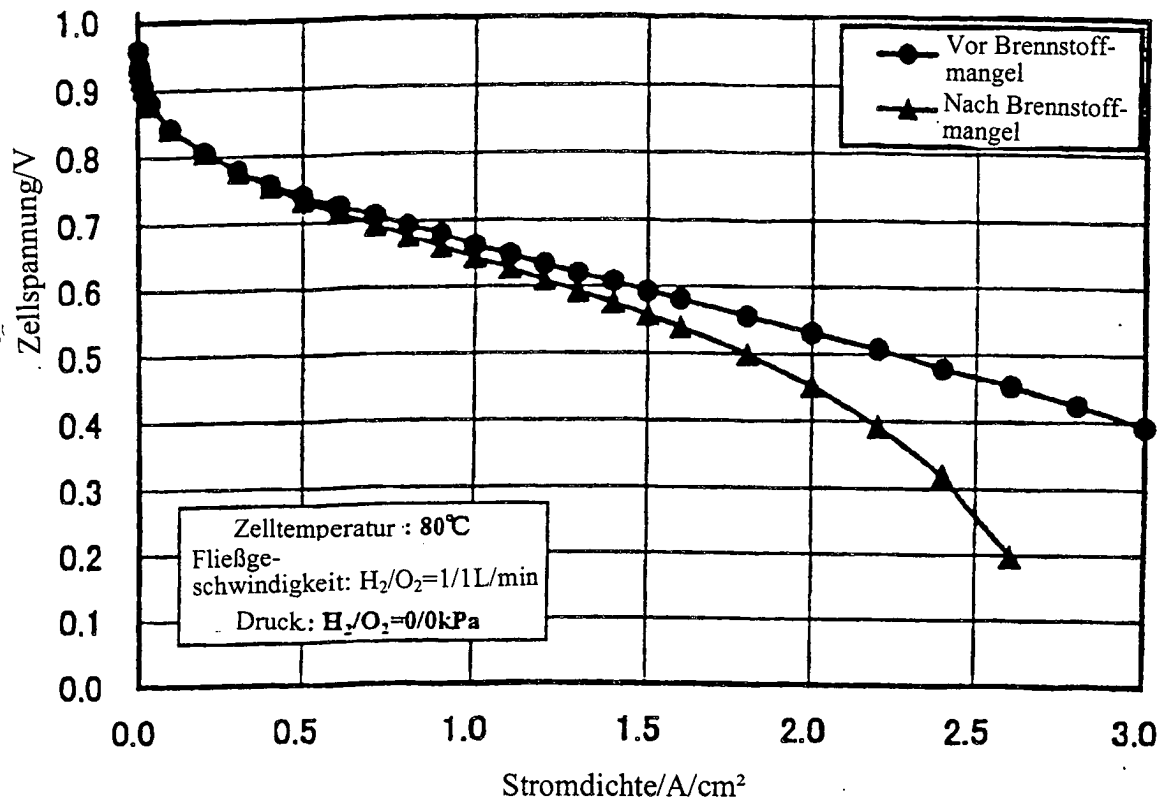


FIG. 3

