

(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2005-294098

(P2005-294098A)

(43) 公開日 平成17年10月20日(2005. 10. 20)

(51) Int. Cl.⁷

H O 1 M 8/02

// H O 1 M 8/10

F I

H O 1 M 8/02

H O 1 M 8/02

H O 1 M 8/10

テーマコード (参考)

5 H O 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2004-108873 (P2004-108873)

(22) 出願日 平成16年4月1日(2004. 4. 1)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(74) 代理人 100083091

弁理士 田淵 経雄

(72) 発明者 秋山 史郎

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 CC03 CC08 CX04

CX07 EE05 HH03 HH10

(54) 【発明の名称】 燃料電池の製造方法

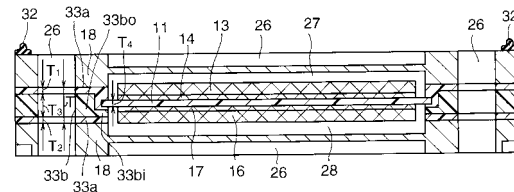
(57) 【要約】

【課題】 セパレータの外周部間の接着剤の硬化時間を短くして生産性をあげることができ、しかも接着剤層切れなどによる接着不良、シール不良を生じない燃料電池の製造方法の提供。

【解決手段】 2枚のセパレータ18の外周部の対向面に液状接着剤33aを塗布する第1工程と、該2枚のセパレータ間にMEAの電解質膜11の周縁部を挟む第2工程と、液状接着剤33aを硬化させて単セル19を製造する第3工程と、を有する燃料電池の製造方法であって、

第2工程で、予め成形され硬化された成形体33bを2枚のセパレータの外周部に挿入し、ほぼ該成形体の厚み分、第1工程でセパレータに塗布する液状接着剤33aの塗布厚さを薄くし、該液状接着剤33aの塗布厚さを薄くした分、第3工程での接着剤33a硬化時間を短くする、燃料電池の製造方法。

【選択図】 図2



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布し、セパレータの外周部の対向面間に電解質膜の周縁部と予め成形され硬化された成形体を挟み、液状接着剤を硬化させて2枚のセパレータを接着する燃料電池の製造方法。

【請求項 2】

2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布する第1工程と、
該2枚のセパレータ間にMEAの電解質膜の周縁部を挟む第2工程と、
前記液状接着剤を硬化させて単セルを製造する第3工程と、
を有する燃料電池の製造方法であって、

10

前記第2工程で予め成形され硬化された成形体を前記2枚のセパレータの外周部間に挿入し、ほぼ該成形体の厚み分、前記第1工程でセパレータに塗布する液状接着剤の塗布厚さを薄くし、該液状接着剤の塗布厚さを薄くした分、前記第3工程での接着剤硬化時間を短くする、請求項1記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 3】

前記成形体と前記2枚のセパレータの何れのセパレータの外周部との間にも前記接着剤が存在する請求項1または請求項2記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 4】

前記成形体を、前記2枚のセパレータの外周部間に1層だけ挿入する請求項1または請求項2記載の燃料電池の製造方法。

20

【請求項 5】

前記成形体の材料と、前記液状接着剤の材料とは、同じ種類の材料である請求項1または請求項2記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 6】

前記成形体は厚み方向に弾性を有する請求項1または請求項2記載の燃料電池の製造方法。

【請求項 7】

前記セパレータはカーボンセパレータである請求項1または請求項2記載の燃料電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

30

【技術分野】

【0001】

本発明は燃料電池の製造方法に関し、とくにセパレータ間接着剤の硬化時間を短縮させる燃料電池の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池（単セル）は、電解質膜の一面にアノードを設け、他面にカソードを設けた膜一電極アッセンブリ（MEA）をセパレータで挟んだものから構成される。アノードには燃料ガス（水素含有ガス）が供給され、カソードには酸化剤ガス（酸素含有ガス、通常、エア）が供給される。電解質膜を挟む2枚のセパレータの外周部間は接着剤によりシール

40

【0003】

単セルは、通常、2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布し、該2枚のセパレータ間にMEAの電解質膜の周縁部を挟み、液状接着剤を硬化させて、製造される。しかし、液状接着剤の硬化に時間がかかり（約1.5mmの接着剤層を熱と圧力をかけて硬化させるのに約1時間弱かかる）、生産性が悪い。液状接着剤の硬化時間を短縮するために液状接着剤の塗布厚さを薄くすると、接着剤層を挟んで対向するセパレータに電氣的短絡が生じてしまって単セルが成立しなくなる。

【0004】

特開平7-65847号公報は、電解質膜を両面側から樹脂の補強枠で挟み、その両面

50

側に、カーボンセパレータとの間にシール体を配置した、補強シール構造を開示している。補強枠を設けた構造では、シーラントが極薄となってシーラント硬化時間は短い、反面、以下の問題を伴う。

補強枠と膜との間、補強枠とセパレータの間、補強枠とシール体との間、等にあるシーラントの層の厚さが極薄となり、あるいは補強枠の面のうねりや凹凸をシーラントの層で吸収しきれずシーラント層切れが生じ、その結果、接着不良、リーク（シール不良）が生じるおそれがある。また、補強枠とシール体とシーラントは種類の異なる樹脂材からなるので、接着性が常に良好であるとは限らない。

【特許文献1】特開平7-65847号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明が解決しようとする課題は、通常の単セルの製造方法における、液状接着剤の硬化に時間がかかり、生産性が悪いという問題であり、特開平7-65847号公報のように膜を補強枠で挟むシール構造では、接着不良やシール不良が生じるおそれがあるという問題である。

【0006】

本発明の目的は、単セルの電解質膜を挟むセパレータの外周部間の接着剤の硬化時間を（上記の通常の燃料電池製造方法の接着剤硬化時間より）短くして生産性をあげることができ、しかも接着剤層切れなどによる接着不良、シール不良を生じない燃料電池の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記課題を解決し、上記目的を達成する本発明はつぎの通りである。

（1） 2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布し、セパレータの外周部の対向面間に電解質膜の周縁部と予め成形され硬化された成形体を挟み、液状接着剤を硬化させて2枚のセパレータを接着する燃料電池の製造方法。

（2） 2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布する第1工程と、

該2枚のセパレータ間にMEAの電解質膜の周縁部を挟む第2工程と、

前記液状接着剤を硬化させて単セルを製造する第3工程と、
を有する燃料電池の製造方法であって、

前記第2工程で予め成形され硬化された成形体を前記2枚のセパレータの外周部間に挿入し、ほぼ該成形体の厚み分、前記第1工程でセパレータに塗布する液状接着剤の塗布厚さを薄くし、該液状接着剤の塗布厚さを薄くした分、前記第3工程での接着剤硬化時間を短くする、（1）記載の燃料電池の製造方法。

（3） 前記成形体と前記2枚のセパレータの何れのセパレータの外周部との間にも前記接着剤が存在する（1）または（2）記載の燃料電池の製造方法。

（4） 前記成形体を、前記2枚のセパレータの外周部間に1層だけ挿入する（1）または（2）記載の燃料電池の製造方法。

（5） 前記成形体の材料と、前記液状接着剤の材料とは、同じ種類の材料である（1）または（2）記載の燃料電池の製造方法。

（6） 前記成形体は厚み方向に弾性を有する（1）または（2）記載の燃料電池の製造方法。

（7） 前記セパレータはカーボンセパレータである（1）または（2）記載の燃料電池の製造方法。

【発明の効果】

【0008】

上記（1）または（2）の燃料電池の製造方法によれば、予め成形され硬化された成形体を挟むので、液状接着剤の層を薄くすることができ液状接着剤の硬化時間を短縮し生産性を上げることができる。また、2枚のセパレータの外周部の対向面に液状接着剤を塗布

10

20

30

40

50

した後成形体および膜を挟むので、セパレータが、直接、成形体や膜に接触して接着剤の層切れが生じるおそれはなく、接着剤層の厚みも成形体の厚みを適当に選定することによって必要厚さを確保できるので、接着不良やシール不良は生じない。

上記(3)の燃料電池の製造方法によれば、成形体と前記2枚のセパレータの何れのセパレータの外周部との間にも接着剤が存在させるので、セパレータが、直接、成形体に接触して接着剤の層切れと、それによる接着不良やシール不良が生じることはない。

上記(4)の燃料電池の製造方法によれば、成形体を、2枚のセパレータの外周部間に1層だけ挿入するので、2層以上挿入した場合の、成形体間の接着剤塗布が必要でなく、成形体挿入による接着剤塗布時間や塗布作業の増加はない。従来の補強枠挿入シール方法では、複数の補強枠を挿入するので、接着剤塗布時間や塗布作業の増加する。

10

上記(5)の燃料電池の製造方法によれば、成形体の材料と、液状接着剤の材料とを、同じ種類の材料としておけば、接着剤層と成形体との接着性、シール性は、単一接着剤層の場合と同じ程度に高くなり、成形体挿入による接着性、シール性の低下はない。従来の補強枠挿入シール方法では、補強枠とシール体とシーラントが別種類の材料となっているため、接着性、シール性が単一種類のシール構造に比べて低下しやすい。

上記(6)の燃料電池の製造方法によれば、成形体は厚み方向に弾性を有するので、液状接着剤には硬化後の弾性をもたす必要がなく、接着剤選定の自由度が増大する。

上記(7)の燃料電池の製造方法によれば、本発明を単セルの2枚のカーボンセパレータ間のシール接着に適用することにより、カーボンセパレータをもつ単セルの生産性を上げることができる。メタルセパレータと樹脂フレームの組み合わせ構造では、樹脂フレームの膜側にも接着剤を塗布する必要があるが、本発明の生産性向上のメリットはカーボンセパレータの場合ほどにが得られない。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

以下に、本発明の燃料電池の製造方法を、図1～図4を参照して説明する。

本発明の燃料電池の製造方法が適用される燃料電池は、低温型燃料電池であり、たとえば、固体高分子電解質型燃料電池1である。該燃料電池1は、たとえば燃料電池自動車に搭載される。ただし、自動車以外に用いられてもよい。

【0010】

固体高分子電解質型燃料電池10は、図1～図4に示すように、膜－電極アッセンブリ(MEA: Membrane-Electrode Assembly)とセパレータ18との積層体からなる。積層方向は上下方向に限るものではなく、任意の方向でよい。

30

膜－電極アッセンブリは、イオン交換膜からなる電解質膜11とこの電解質膜の一面に配置された触媒層からなる電極(アノード、燃料極)14および電解質膜の他面に配置された触媒層からなる電極(カソード、空気極)17とからなる。膜－電極アッセンブリとセパレータ18との間には、アノード側、カソード側にそれぞれ拡散層13、16が設けられる。

【0011】

セパレータ18には、アノード14、カソード17に燃料ガス(水素)および酸化ガス(酸素、通常は空気)を供給するための反応ガス流路27、28(燃料ガス流路27、酸化ガス流路28)と、その裏面に冷媒(通常、冷却水)を流すための冷媒流路26が形成されている。セパレータ18には、燃料ガス流路27に燃料ガスを供給、排出するための燃料ガスマニホールド30、酸化ガス流路28に酸化ガスを供給、排出するための酸化ガスマニホールド31、冷媒流路26に冷媒を供給、排出するための冷媒マニホールド29が形成されている。流体流路26、27、28、29、30、31をシールするために、ゴムガasket 32や接着剤シール33が設けられている。単セル19の、膜11を挟む2枚のセパレータ18同志は、セパレータ18の外周部の対向面間にある接着剤シール33によってシール接着され、かつ、絶縁されている。隣接するモジュール同志は電氣的に導通され、かつ、セパレータ間がガasket 32によってシールされている。

40

セパレータ18は、望ましくは、カーボンセパレータである。ただし、セパレータ18

50

は、メタルセパレータであってもよいし、導電性樹脂セパレータであってもよいし、メタルセパレータと樹脂フレームの組合せであってもよいし、あるいは、これらのセパレータの組合せであってもよい。

【0012】

膜－電極アッセンブリとセパレータ18を重ねて単位燃料電池（「単セル」ともいう）19を構成し、少なくとも1つのセル（たとえば、1～3個のセルから1モジュールを構成する）からモジュールを構成し、モジュールを積層してセル積層体とし、セル積層体のセル積層方向両端に、ターミナル20、インシュレータ21、エンドプレート22を配置し、セル積層体をセル積層方向に締め付け、セル積層体の外側でセル積層方向に延びる締結部材（たとえば、テンションプレート24）、ボルト・ナット25により固定して、燃料電池スタック23を構成する。 10

【0013】

各セル19の、アノード側14では、水素を水素イオン（プロトン）と電子にする反応が行われ、水素イオンは電解質膜11中をカソード側に移動し、カソード17側では酸素と水素イオンおよび電子（隣のMEAのアノードで生成した電子がセパレータを通してくる、またはセル積層方向一端のセルのアノードで生成した電子が外部回路を通して他端のセルのカソードにくる）から水を生成する反応が行われ、かくして発電が行われる。

アノード側： $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$

カソード側： $2H^+ + 2e^- + (1/2)O_2 \rightarrow H_2O$

【0014】

本発明の単セル19の製造方法は、2枚のセパレータ18の外周部（セパレータの周縁部と各マニホールド29、30、31のまわり）の対向面に液状接着剤33aを塗布し、セパレータの外周部の対向面間にMEAの電解質膜11の周縁部と予め成形され硬化された成形体33bを挟み、液状接着剤33aを硬化させて2枚のセパレータ18を接着する方法である。 20

【0015】

さらに詳しくは、本発明の単セル19の製造方法は、単セル19の2枚のセパレータ18の外周部（セパレータの周縁部と各マニホールド29、30、31のまわり）の対向面に液状接着剤33aを塗布する第1工程と、該2枚のセパレータ18間にMEAの電解質膜11の周縁部を挟む第2工程と、液状接着剤33aを硬化させて単セル19を製造する第3工程と、を有する燃料電池19の製造方法であって、第2工程で、予め成形され硬化された成形体33bを2枚のセパレータ18の外周部間に挿入する方法である。この方法では、ほぼ成形体33bの厚み分、第1工程でセパレータに塗布する液状接着剤33aの塗布厚さを薄くし（第1のセパレータ18に塗布した液状接着剤33aの硬化後の厚さT1と、第2のセパレータ18に塗布した液状接着剤33aの硬化後の厚さT2と、成形体33bの厚みT3との和が、成形体33bを挿入しない通常のセルのセパレータ間の接着剤層33の厚さTとほぼ等しくなるようにする）、液状接着剤の塗布厚さを薄くした分（TをT1、T2と薄くした分）、第3工程での接着剤硬化時間（熱と圧力をかけて接着剤を硬化する時間）を短くする。T1、T2は、約0.02mm以上確保する。膜11の厚みT4は40～60μmである。 30 40

【0016】

たとえば、Tが約0.15mm、T3が約0.1mm、T1、T2が0.025mmである場合には、成形体を挿入しない場合の、0.15mm厚さの液状接着剤を硬化する時間（約1時間弱）が、成形体を挿入する場合は、0.025mm厚さの液状接着剤を硬化する時間に大幅に短くなる。

【0017】

予め成形され硬化された成形体33bを2枚のセパレータ18の外周部間に挿入する場合、図2に示すように、成形体33bの電解質膜11の周縁部と重なる部分33biはその他の成形体部分33boより、厚さを薄くしてもよいし、あるいは、図4に示すように、成形体33bの厚さを、成形体全域において一定で薄くしてもよい。 50

【0018】

第2、第3工程において、成形体33bと2枚のセパレータ18の何れのセパレータ18の外周部との間にも、接着剤33aが存在する。したがって、成形体33bが直接、セパレータ18に接触することはない。

【0019】

第2工程において、成形体33bを、膜11を挟んで対向する2枚のセパレータ18の外周部間に1層だけ挿入する。成形体33bを複数層挿入することはしない。成形体33bを複数層挿入すると成形体33間のシールのために成形体33同士の対向面に接着剤を塗布しなければならないので、作業が複雑かつ長時間になるから、それを避けるためである。

10

【0020】

望ましくは、成形体33bの材料と、液状接着剤33aの材料とは、同じ種類の材料である。ただし、成形体33bの材料と、液状接着剤33aの材料とを互いに異ならせてもよい。

成形体33bの材料と、液状接着剤33aの材料とが、同じ種類の材料である場合は、単セル製造後、すなわち、液状接着剤33a硬化後は、成形体33bの部分と硬化液状接着剤33aの部分とは、一体不可分となり、区別がなくなり、製品としては、通常の、接着剤全厚が液状接着剤33aの硬化したものからなるセルと変わりがなくなる。

【0021】

成形体33bは厚み方向（セルの厚み方向と同じ方向）に、弾性を有するような材料にて形成されている。その理由は、燃料電池スタックとした時には、スタック締めつけ荷重が各セル19にかかり、接着剤にもかかる。膜11が厚さが薄くなる方向にクリープすると接着剤33も弾性変形して厚さが薄くなって、電極と拡散層とセパレータの各接触抵抗を小に維持するためである。成形体33bに弾性をもたせておけば、液状接着剤33aは必ずしも弾性をもつ必要がなく、硬化後は硬質となってもよく、自由な材料選定ができ、液状接着剤33aの材料選択の自由度が上がる。

20

【0022】

望ましくは、セパレータ18はカーボンセパレータである。メタルセパレータの場合は、通常、樹脂フレームと組み合わせて使用されるが、樹脂フレームは硬質であって、本発明の成形体33bにはなり得ない。また、樹脂フレームの両面に接着剤を塗布しなければならず、接着剤塗布工数が増えて、本発明のメリットが少なくなる。

30

【0023】

つぎに、本発明の燃料電池の製造方法の作用・効果を説明する。

本発明の燃料電池の製造方法では、セパレータ18の外周部の対向面間に、予め成形され硬化された成形体33bを挟むので、セパレータ18の外周部に塗布する液状接着剤33aの層を（成形体33bを挟まず接着剤全厚を液状接着剤33aとする場合に比べて）薄くすることができ、液状接着剤33aの硬化時間を（接着剤全厚が液状接着剤33aとする場合に比べて）短縮でき、生産性を上げることができる。

【0024】

また、単セル19の膜11を挟む2枚のセパレータ18の外周部の対向面に液状接着剤33aを塗布した後、液状接着剤33aを塗布したセパレータ面で成形体33aおよび膜11を挟むので、セパレータ18が、直接、成形体33bや膜11に接触して液状接着剤33aの層切れを起こすおそれはない。また、液状接着剤33aの硬化後の成形体33bと接着剤層33aの和の厚さは、成形体33bの厚みを適当に選定することによって必要厚さ（約0.15mm以上は確保したい）を確保できるので、接着不良やシール不良は生じない。

40

【0025】

また、成形体33bを、2枚のセパレータ18の外周部間に1層だけ挿入するので、2層以上挿入した場合に必要となる、成形体33b間の接着剤塗布が必要でなく、成形体33b挿入による接着剤塗布時間や塗布作業の増加はない。すなわち、セパレータ18の対

50

向面に液状接着剤 3 3 a を塗布するだけでよく、成形体 3 3 b の方には液状接着剤 3 3 a を塗布する必要はない。

【0026】

また、成形体 3 3 b の材料と、液状接着剤 3 3 a の材料とを、同じ種類の材料としておけば、接着剤層 3 3 a と成形体 3 3 b との接着性、シール性は、通常の単セル製造の単一接着剤層の場合と同じ程度に高くなり、成形体 3 3 b 挿入による接着性、シール性の低下はない。

また、成形体 3 3 b は厚み方向に弾性を有するので、液状接着剤 3 3 a には硬化後の弾性をもたす必要がなく、液状接着剤 3 3 a の材料選定の自由度が増大する。

【図面の簡単な説明】

10

【0027】

【図1】本発明の燃料電池の製造方法の（第2工程の）斜視図である。

【図2】本発明の燃料電池の製造方法の（第3工程の）、第1の例の、断面図である。

【図3】本発明の燃料電池の製造方法の（第3工程の）、第2の例の、断面図である。

【図4】本発明の燃料電池の製造方法で製造された単セルを積層した燃料電池スタックの側面図である。

【符号の説明】

【0028】

10 （固体高分子電解質型）燃料電池

11 電解質膜

13 拡散層

14 電極（アノード、燃料極）

16 拡散層

17 電極（カソード、空気極）

18 セパレータ

19 セル

20 ターミナル

21 インシュレータ

22 エンドプレート

23 スタック

24 外側部材または締結部材（テンションプレート）

25 ボルト

26 冷媒流路

27 燃料ガス流路

28 酸化ガス流路

29 冷媒マニホールド

30 燃料ガスマニホールド

31 酸化ガスマニホールド

32 ガスケット

33 接着剤シール

33 a 液状ガスケット（硬化前または硬化後）

33 b 成形体

33 b i 成形体 3 3 b の、電解質膜 1 1 の周縁部と重なる部分

33 b o 成形体 3 3 b の、3 3 b i 以外の部分

T 成形体 3 3 b を挿入しない通常のセルのセパレータ間の接着剤層 3 3 の厚さ

T 1 第1のセパレータ 1 8 に塗布した液状接着剤 3 3 a の硬化後の厚さ

T 2 第2のセパレータ 1 8 に塗布した液状接着剤 3 3 a の硬化後の厚さ

T 3 成形体 3 3 b の厚み

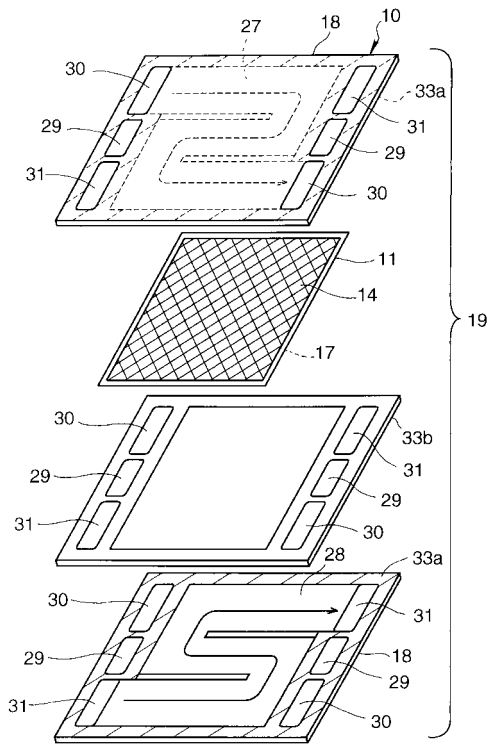
T 4 膜 1 1 の厚み

20

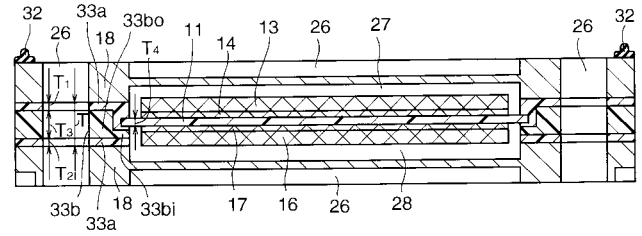
30

40

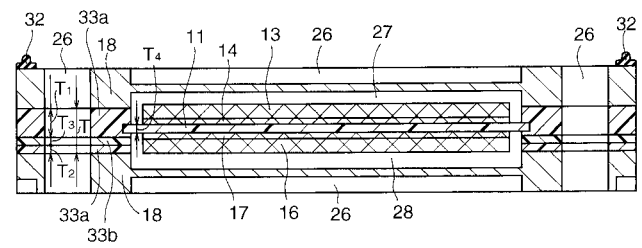
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【図 4】

