

(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2010-62009

(P2010-62009A)

(43) 公開日 平成22年3月18日(2010.3.18)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/02 E	5 H O 2 6
HO 1 M 8/10 (2006.01)	HO 1 M 8/02 Z	
	HO 1 M 8/02 S	
	HO 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願2008-226761 (P2008-226761)
 (22) 出願日 平成20年9月4日(2008.9.4)

(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
 (74) 代理人 100064414
 弁理士 磯野 道造
 (74) 代理人 100111545
 弁理士 多田 悦夫
 (72) 発明者 石田 堅太郎
 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 磯辺 武揚
 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

最終頁に続く

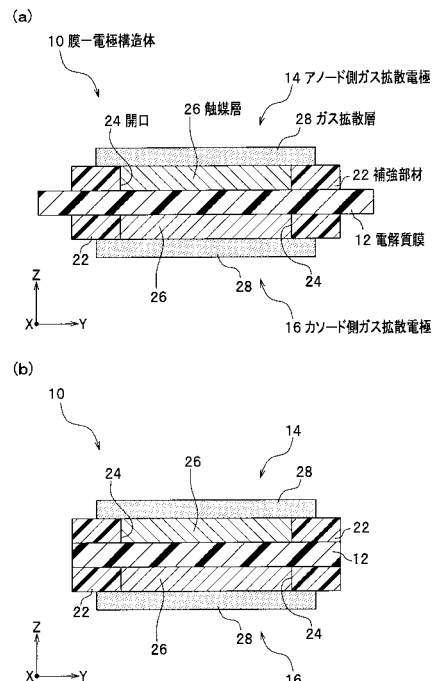
(54) 【発明の名称】 燃料電池用膜-電極構造体の製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】補強部材における皺の発生を抑制し、量産性に優れた燃料電池用膜-電極構造体の製造方法を提供する。

【解決手段】膜-電極構造体10は、電解質膜12を補強するための帯状の補強部材22と、補強部材22を被覆する帯状の被覆部材と、被覆部材を支持する帯状のバックアップ部材とからなる積層体を作製し(積層体作製工程)、補強部材22とバックアップ部材に共通の開口24を形成し(開口形成工程)、電解質膜12を補強部材22と接着されるように積層体と貼り合わせ(貼り合わせ工程)、作製された貼合体からバックアップ部材を剥離し(バックアップ部材剥離工程)、露出した開口24の内側の電解質膜12表面に触媒層26を形成し(触媒層形成工程)、被覆部材を剥離して(被覆部材剥離工程)、製造される。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

固体高分子型燃料電池に用いられる燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法であって、
固体高分子電解質膜を補強するための帯状の第 1 の部材と、前記第 1 の部材を被覆するための帯状の第 2 の部材と、前記第 2 の部材を支持するための帯状の第 3 の部材とをこの順序で、後に剥離可能となるように積層接着して積層体を作製する積層体作製工程と、
前記積層体作製工程によって得られた積層体の前記第 1 の部材と前記第 2 の部材に共通の開口を設ける開口形成工程と、
帯状の固体高分子電解質膜を、前記第 1 部材と接着されるように前記積層体に貼り合わせて貼合体を作製する貼り合わせ工程と、
前記貼り合わせ工程によって得られた貼合体から前記第 3 の部材を剥離除去する第 1 の剥離工程と、
前記第 1 の剥離工程後の貼合体の表面に現れた前記開口の内側に触媒層を形成する触媒層形成工程と、
前記触媒層形成工程後の貼合体から前記第 2 の部材を剥離する第 2 の剥離工程と、を有することを特徴とする燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

10

【請求項 2】

前記積層体作製工程において、
前記第 1 の部材と前記第 2 の部材との間の接着強度を、前記第 2 の部材と前記第 3 の部材との間の接着強度より大きくすることを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

20

【請求項 3】

前記貼り合わせ工程において、
前記固体高分子電解質膜と前記第 1 の部材との接着を、熱硬化性接着剤を用いて熱プレスにより行うことを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

【請求項 4】

前記第 2 の部材と前記第 3 の部材の熱膨張係数が同じであることを特徴とする請求項 3 に記載の燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

【請求項 5】

前記第 1 の部材の幅が前記固体高分子電解質膜と第 2 の部材の両方の幅よりも狭いことを特徴とする請求項 1 から請求項 4 のいずれか 1 項に記載の燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

30

【請求項 6】

前記固体高分子電解質膜は帯状の基材の一面に形成されており、前記貼り合わせ工程以降の工程は、前記固体高分子電解質膜が前記基材表面に形成された状態で行われ、
前記第 2 の部材の幅が、前記第 1 の部材の幅と前記固体高分子電解質膜の幅のいずれの幅よりも広いことを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか 1 項に記載の燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

40

【技術分野】**【0001】**

本発明は、固体高分子型燃料電池の構成要素の 1 つである膜 - 電極構造体の製造方法に関する。

【背景技術】**【0002】**

固体高分子型燃料電池は、プロトン導電性を有する固体高分子電解質膜（以下「電解質膜」という）の両面に触媒層が設けられ、この触媒層上にガス拡散層が設けられた構造を有する膜 - 電極構造体（MEA；Membrane Electrode Assembly）を備えている。固体高分子型燃料電池の内部抵抗を低減する観点から、電解質膜の厚さは薄いことが好ましい。

50

しかし、電解質膜を薄くすると機械的強度が低下し、固体高分子型燃料電池の製造工程における膜 - 電極構造体のハンドリング性が低下する。

【 0 0 0 3 】

そこで、膜 - 電極構造体として、開口を囲むように枠部が形成された部材（以下「補強部材」という）が、電解質膜の一方の面の周縁部を被覆するように接着された構造を有するものが提案されている（例えば、特許文献 1 参照）。この特許文献 1 に開示された膜 - 電極構造体は、補強部材と同形状の部材（以下「被覆部材」という）と補強部材とを予め積層した状態で、補強部材を電解質膜に接着し、開口の内部に触媒層を塗工した後、被覆部材を除去することで、補強部材の内部に触媒層が形成された構造を実現している。

【特許文献 1】特開 2 0 0 7 - 3 5 6 1 2 号公報（段落 [0 0 2 1]、[0 0 2 2]、図 3 A ~ 3 E、図 4 等）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 4 】

特許文献 1 に開示された構造の膜 - 電極構造体を作製する際には、電解質膜と補強部材とをそれぞれ、一定の力で引っ張った状態で貼り合わせする必要がある。しかし、補強部材は枠状であって、厚さも数十ミクロン程度であるために、補強部材を引っ張ると開口の四隅付近に歪みが生じやすく、その結果、電解質膜に貼り合わせされたときに開口の四隅付近に皺が発生しやすくなる。この皺は、補強部材の平滑性を低下させるため、補強部材に貼り合わせされるカーボンペーパー（ガス拡散層）に応力が掛かるようになり、カーボンペーパーが劣化しやすくなる。また、補強部材に皺が発生した状態で電解質膜に触媒ペーストを塗布して触媒層を形成すると、皺の溝となっている触媒ペーストが溜まり、この部分で、補強部材とカーボンペーパーとの接着不良が生じやすくなる。さらに電解質膜と補強部材の密着性が悪くなり補強効果が得られなくなる。

【 0 0 0 5 】

本発明はかかる事情に鑑みてなされたものであり、補強部材における皺の発生を抑制し、しかも、膜 - 電極構造体の量産性に優れた燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法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】

【 0 0 0 6 】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法は、固体高分子型燃料電池に用いられる膜 - 電極構造体の製造方法であって、固体高分子電解質膜を補強するための帯状の第 1 の部材と、前記第 1 の部材を被覆するための帯状の第 2 の部材と、前記第 2 の部材を支持するための帯状の第 3 の部材とをこの順序で、後に剥離可能となるように積層接着して積層体を作製する積層体作製工程と、前記積層体作製工程によって得られた積層体の前記第 1 の部材と前記第 2 の部材に共通の開口を設ける開口形成工程と、帯状の固体高分子電解質膜を、前記第 1 部材と接着されるように前記積層体に貼り合わせて、貼合体を作製する貼り合わせ工程と、前記貼り合わせ工程によって得られた貼合体から前記第 3 の部材を剥離除去する第 1 の剥離工程と、前記第 1 の剥離工程後の貼合体の表面に現れた前記開口の内側に触媒層を形成する触媒層形成工程と、前記触媒層形成工程後の貼合体から前記第 2 の部材を剥離する第 2 の剥離工程と、を有することを特徴とする。

【 0 0 0 7 】

このような構成によれば、第 1 の部材と第 2 の部材に開口を形成したときにはこれらは第 3 の部材に支持されているため、積層体において第 1 の部材における皺の発生が抑制される。そして、このような積層体を用いることで、固体高分子電解質膜に接着された第 1 の部材における皺の発生を抑制することができる。また、膜 - 電極構造体の全製造工程を通じて、取り扱われる各種の部材（積層体、貼合体を含む）の自立性が高く、ハンドリングが容易であるため、生産性に優れている。さらに、帯状の部材等を用いることで、各工程を連続的に行うことができるため、量産性にも優れている。

【 0 0 0 8 】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法では、前記積層体作製工程において、前記第 1 の部材と前記第 2 の部材との間の接着強度を、前記第 2 の部材と前記第 3 の部材との間の接着強度より大きくすることが好ましい。

【0009】

このような構成によれば、第 1 の剥離工程において、第 3 の部材を剥離する際に、第 2 の部材が同時に剥離することを抑制することができる。

【0010】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法では、前記貼り合わせ工程において、前記固体高分子電解質膜と前記第 1 の部材との貼り合わせを、熱硬化性接着剤を用いて熱プレスにより行うことが好ましい。また、このように熱プレスを用いる場合には、前記第 2 の部材と前記第 3 の部材の熱膨張係数は、同じであることが好ましい。

10

【0011】

このような構成によれば、熱硬化性接着剤を用いて固体高分子電解質膜と第 1 の部材とをより強固かつ緊密に接着することができる。なお、熱プレスとして熱ロールプレスを用いることで、固体高分子電解質膜と積層体とを長さ方向で連続して接着を行うことができるため、生産性が高められる。そして、第 2 の部材と第 3 の部材の熱膨張係数が同じであると、熱プレスを行ったときに、第 2 の部材に皺が入りにくくなる。

【0012】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法においては、前記第 1 の部材の幅が、前記固体高分子電解質膜と第 2 の部材の両方の幅よりも狭いことが好ましい。

20

【0013】

このような構成によれば、第 2 の部材が固体高分子電解質膜の表面に直接固定されるため、第 1 の部材の位置ずれを抑制することができる。

【0014】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法においては、前記固体高分子電解質膜は帯状の基材の一面に形成されており、前記貼り合わせ工程以降の工程は、前記固体高分子電解質膜が前記基材表面に形成された状態で行われ、前記第 2 の部材の幅が、前記第 1 の部材の幅と前記固体高分子電解質膜の幅のいずれの幅よりも広いことが好ましい。

【0015】

このような構成によれば、第 2 の部材を基材に直接接着することができ、これによって、第 1 の部材の位置ずれを抑制することができる。なお、第 2 の部材と基材との間の接着は、第 2 の部材と基材とが剥離可能な接着力を有する粘着剤を用いて行われる。

30

【発明の効果】

【0016】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法によれば、固体高分子電解質膜にこれを補強するための第 1 の部材を接着する際に、皺の発生が抑えられた第 1 の部材を備えた積層体を用いることで、固体高分子電解質膜に第 1 の部材が接着されたときの第 1 の部材における皺の発生が抑制される。こうして第 1 の部材の表面の平滑性が高められるため、第 1 の部材に貼り付けられるカーボンペーパー等のガス拡散層用部材に不均一な応力が掛かり難くなって、カーボンペーパー等を長寿命化することができる。また、第 1 の部材の表面に触媒ペーストが溜まり難くなるために、カーボンペーパー等と良好な接着性を確保することができる。

40

【0017】

本発明に係る燃料電池用膜 - 電極構造体の製造方法は、全製造工程を通じて、取り扱われる各種の部材（積層体、貼合体を含む）の自立性が高く、ハンドリングが容易であるため、生産性に優れている。さらに、帯状の部材等を用いることで、連続的な処理を容易に行うことができるために、量産性にも優れている。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

以下、本発明の実施の形態について図面を参照して詳細に説明する。

50

< 膜 - 電極構造体の構造 >

図 1 に固体高分子型燃料電池の構成要素である膜 - 電極構造体の概略断面図を示す。図 1 (a) , (b) にそれぞれ示される 2 つの膜 - 電極構造体 1 0 は共に、プロトン導電性を有する固体高分子電解質膜 (以下「電解質膜」という) 1 2 を挟んで、一方の主面にアノード側ガス拡散電極 1 4 が設けられ、他方の主面にカソード側ガス拡散電極 1 6 が設けられた構造を有している。なお、図 1 (a) , (b) に示されるように三次元直交座標 (X - Y - Z) を定め、電解質膜 1 2 の長さ方向を X 方向とし、電解質膜 1 2 の幅方向を Y 方向とし、電解質膜 1 2 の厚さ方向を Z 方向とする。

【 0 0 1 9 】

アノード側ガス拡散電極 1 4 は、矩形の開口 2 4 を囲む枠状の形状 (図 1 (a) , (b) では Y 方向側の部分しか明示されていない) を有し、電解質膜 1 2 の主面に接着された補強部材 2 2 と、補強部材 2 2 の開口 2 4 内において電解質膜 1 2 表面に形成された触媒層 2 6 と、補強部材 2 2 と触媒層 2 6 とを覆うガス拡散層 2 8 とを備えている。カソード側ガス拡散電極 1 6 は、アノード側ガス拡散電極 1 4 と実質的に同じ構造を有している。1 つの膜 - 電極構造体 1 0 は、1 つの開口 2 4 を有する矩形形状を有している。

10

【 0 0 2 0 】

なお、図 1 (a) に示される膜 - 電極構造体 1 0 では、電解質膜 1 2 の幅が補強部材 2 2 の幅よりも広くなっており、図 1 (b) に示される膜 - 電極構造体 1 0 では、電解質膜 1 2 の幅と補強部材 2 2 の幅とが同じになっている。後記するように、図 1 (a) に示される膜 - 電極構造体 1 0 の電解質膜 1 2 の幅方向端を切断することにより、図 1 (b) に示される膜 - 電極構造体 1 0 を得ることができる。また、図 1 (b) に示される膜 - 電極構造体 1 0 は、これを製造するために用いる電解質膜 1 2 の幅と補強部材 2 2 の幅とを同じとすることによって、電解質膜 1 2 の幅方向端を切断することなく、製造することもできる。

20

【 0 0 2 1 】

例えば、触媒層 2 6 は白金を主成分とする材料で構成され、ガス拡散層 2 8 には多孔質カーボンクロスや多孔質カーボンペーパーが用いられ、電解質膜 1 2 にはフッ素系樹脂の一種であるパーフルオロカーボンスルホン酸ポリマー等が用いられる。補強部材 2 2 としては、ポリイミド樹脂 (P I) , ポリテトラフルオロオロエチレン (P T F E) , ポリエーテルエーテルケトン (P E E K) , ポリフェニレンサルファイド (P P S) 等が好適に用いられ、その厚さは、5 ~ 5 0 μ m とすることができる。電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 とは、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂接着剤 (接着層を図示せず) によって接着されており、ガス拡散層 2 8 も接着剤を用いて補強部材 2 2 に接着されている。

30

【 0 0 2 2 】

< 膜 - 電極構造体の製造方法 >

図 2 に膜 - 電極構造体の製造工程を表したフローチャートを示す。膜 - 電極構造体 1 0 の製造工程は、概略、電解質膜準備工程 S 1、積層体作製工程 S 2、開口形成工程 S 3、仮固定工程 S 4、貼り合わせ工程 S 5、バックアップ部材剥離工程 (第 1 の剥離工程) S 6、触媒層形成工程 S 7、被覆部材剥離工程 (第 2 の剥離工程) S 8、基材剥離工程 S 9、裏面処理工程 S 1 0 (電解質膜 1 2 の裏面に対して仮固定工程 S 4 から触媒層形成工程 S 7 までを繰り返し行う工程)、被覆部材剥離工程 (S 8 を飛ばした場合には電解質膜 1 2 の両面の被覆部材を剥離) S 1 1、ガス拡散層形成工程 S 1 2、の各工程からなる。

40

【 0 0 2 3 】

図 3 (a) に電解質膜準備工程で準備する電解質膜の形態を表した平面図と断面図 (平面図に示す A - A 位置での断面図) を示し、図 3 (b) に積層体作製工程と開口形成工程における処理の態様を模式的に表した平面図と断面図 (平面図に示す A - A 位置での断面図) を示す。また、図 4 に仮固定工程と貼り合わせ工程における処理の態様を模式的に表した平面図と断面図 (平面図に示す B - B 位置での断面図) を示し、図 5 にバックアップ部材剥離工程から被覆部材剥離工程までの処理の態様を模式的に表した平面図と断面図 (平面図に示す B - B 位置での断面図) を示す。これらの図 3 ~ 5 に示す三次元直交座標 (

50

X - Y - Z) は、図 1 (a) , (b) に示した三次元直交座標 (X - Y - Z) と対応している。以下、これらの図面を参照しながら各工程について説明する。

【 0 0 2 4 】

[電解質膜準備工程 S 1]

膜 - 電極構造体 1 0 を製造するために電解質膜 1 2 を準備する。本製造方法では、図 3 (a) に示されるように、電解質膜 1 2 として、帯状の電解質膜支持基材 (以下「基材」という) 5 0 の一面に支持された状態にあるものが好適に用いられる。電解質膜 1 2 を基材 5 0 で支持しておくことにより、膜 - 電極構造体 1 0 の製造工程における電解質膜 1 2 のハンドリング性が向上する。基材 5 0 としては、例えば、電解質膜 1 2 との密着性と剥離性のバランスがよく、熱的にも安定な P E T フィルム等が好適に用いられ、その厚さは、ハンドリング性等を考慮して、約数十ミクロン程度とすることが好ましい。

10

【 0 0 2 5 】

電解質膜 1 2 の幅は基材 5 0 の幅よりも狭いことが好ましく、例えば、基材 5 0 の幅方向端から一定距離の位置に電解質膜 1 2 の幅方向端が位置するようにする。これにより、後に行われる仮固定工程 S 4 において、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 との位置合わせを簡単に行うことができる。このような基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 は、ロール状に巻回された状態で準備することができ、仮固定工程 S 4 以降に用いられる。

【 0 0 2 6 】

[積層体作製工程 S 2]

図 3 (b) に示すように、積層体作製工程 S 2 は、電解質膜 1 2 を補強するための帯状の補強部材 (第 1 の部材) 2 2 と、補強部材 2 2 を被覆するための帯状の被覆部材 (第 2 の部材) 6 2 と、被覆部材 6 2 を支持するための帯状のバックアップ部材 (第 3 の部材) 6 4 とをこの順序で長さ方向を合わせ、後に剥離可能となるように積層接着して、積層体 6 0 を作製する工程である。ここで、被覆部材 6 2 は、積層体 6 0 においては中間層であるが、後に行われるバックアップ部材剥離工程 S 6 後に補強部材 2 2 を被覆した状態になる部材であることから、これを「被覆部材」ということとする。

20

【 0 0 2 7 】

補強部材 2 2 には、前記した所定厚さのポリイミド樹脂等が用いられる。被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 には P E T 樹脂等が好適に用いられ、その厚さは 1 0 ~ 8 0 μ m とすることができる。

30

【 0 0 2 8 】

補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 との接着と、被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 との接着にはそれぞれ、市販の粘着剤が用いられる。この粘着剤としては、後に行われる貼り合わせ工程 S 5 における加熱処理によって変質しない性質を有しているものが、工程管理上、好適である。積層体 6 0 において、補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 との間の接着強度は、被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 との間の接着強度よりも大きいことが好ましい。これは、後に行われるバックアップ部材剥離工程 (第 1 の剥離工程) S 6 において、バックアップ部材 6 4 を剥離する際に、被覆部材 6 2 がバックアップ部材 6 4 と一緒に剥離してしまうのを防止するためである。使用する粘着剤の種類 (粘着成分の化学種や濃度等) や粘着層の厚さを制御することによって、これらの接着強度に差を設けることができる。

40

【 0 0 2 9 】

補強部材 2 2 、被覆部材 6 2 及びバックアップ部材 6 4 を積層接着する際には、通常、各接着面に空気が入らないように、各部材に一定の張力を加えることが好ましい。図 3 (b) に示されるように、積層体作製工程 S 2 の段階では、補強部材 2 2 には開口 2 4 は形成されていない。また、被覆部材 6 2 にも後工程の開口形成工程 S 3 で開口 6 8 が形成されるが、積層体作製工程 S 2 の段階では、被覆部材 6 2 にも開口 6 8 は形成されていない。このように、開口 2 4 が形成されていない補強部材 2 2 と、開口 6 8 が形成されていない被覆部材 6 2 を用いて積層体 6 0 を作製することにより、補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 に局所的に皺等が発生することが抑制され、その平坦性を高めることができる。

【 0 0 3 0 】

50

こうして、補強部材 2 2 の平坦性が確保されると、後に行われる触媒層形成工程 S 7 において、補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 との間に触媒材料が侵入することを抑制することができるため、後に、補強部材 2 2 にガス拡散層 2 8 としてのカーボンペーパー等を貼り付けたときに接着不良が発生することを回避することができる。また、作製した膜 - 電極構造体 1 0 を用いてセルを組む際に、補強部材 2 2 に貼り付けられたガス拡散層 2 8 としてのカーボンペーパー等に応力が掛かり難くなり、カーボンペーパー等の破壊を抑制することができる。

【 0 0 3 1 】

積層体 6 0 は、後に行われる仮固定工程 S 4 と貼り合わせ工程 S 5 によって、基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 と接着され、貼合体 8 0 (図 4 , 5 参照) が作製される。この貼合体 8 0 の作製を容易かつ正確に行うことができるように、電解質膜 1 2 と基材 5 0 の幅を踏まえて、補強部材 2 2、被覆部材 6 2 及びバックアップ部材 6 4 の各幅を設定することが好ましい。その設定条件は、後記する仮固定工程 S 4 についての説明において述べる。

10

【 0 0 3 2 】

[開口形成工程 S 3]

図 3 (b) に示されるように、開口形成工程 S 3 は、積層体作製工程 S 2 によって得られた積層体 6 0 の補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 に共通の開口 2 4 , 6 8 をそれぞれ設ける工程である。例えば、開口 2 4 , 6 8 の外周形状を有する刃を、補強部材 2 2 側から被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 との接着面までの深さで挿入し、補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 に切れ目を設けた後、開口 2 4 , 6 8 の領域部分を剥離することにより、開口 2 4 , 6 8 を形成することができる。開口 2 4 , 6 8 が形成された積層体 6 0 は、ロール状に巻回された状態で保管してもよい。また、開口 2 4 , 6 8 が形成された後に、速やかに、次の仮固定工程 S 4 に供給されるようにしてもよい。ここでは、積層体作製工程 S 2 と開口形成工程 S 3 によって、電解質膜 1 2 の表面と裏面のそれぞれに貼り合わせることができるだけの長さの積層体 6 0 が作製されたものとする。

20

【 0 0 3 3 】

[仮固定工程 S 4]

仮固定工程 S 4 は、図 4 に示されるように、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 とを接着するために、基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 と積層体 6 0 とを位置合わせして、これらを密着させる工程である。仮固定工程 S 4 の前に、補強部材 2 2 の表面に熱硬化性樹脂接着剤を所定の厚さ (例えば、数ミクロン) で塗布しておく。但し、仮固定工程 S 4 では、この熱硬化性樹脂接着剤を硬化させない。なお、図 4 の平面図には、帯状の積層体 6 0 の長さ方向 (X 方向) の一部のみが描かれている (図 5 についても同様) 。

30

【 0 0 3 4 】

本実施形態では、図 4 に示されるように、電解質膜 1 2 の幅を基材 5 0 の幅よりも狭くしていることを踏まえて、積層体作製工程 S 2 において、基材 5 0 の幅とバックアップ部材 6 4 の幅とを同じとし、被覆部材 6 2 の幅をバックアップ部材 6 4 の幅と同じとし、補強部材 2 2 の幅を電解質膜 1 2 の幅よりも狭くしている。その結果、被覆部材 6 2 の幅は補強部材 2 2 幅と電解質膜 1 2 の幅のいずれの幅よりも広がっている。このとき、被覆部材 6 2 の露出面には、積層体作製工程 S 2 で用いた粘着剤が塗布された状態で残っていることが好ましい。

40

【 0 0 3 5 】

基材 5 0 の幅とバックアップ部材 6 4 の幅とを同じとすることにより、基材 5 0 と積層体 6 0 との位置合わせが容易となる。被覆部材 6 2 の幅をバックアップ部材 6 4 の幅と同じとすることにより、積層体 6 0 における幅方向の厚さの変化が小さくなるため、後工程の貼り合わせ工程 S 5 において積層体 6 0 と基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 とを貼り合わせた際に、貼合体 8 0 (図 4 , 5 参照) において生じる幅方向での歪みを小さく抑えることができる。補強部材 2 2 の幅を電解質膜 1 2 の幅よりも狭くすることにより、補強部材 2 2 を直接かつ確実に電解質膜 1 2 と密着させることができる。

50

【 0 0 3 6 】

被覆部材 6 2 の幅が補強部材 2 2 の幅と電解質膜 1 2 の幅のいずれの幅よりも広がっていることにより、補強部材 2 2 の全面を被覆部材 6 2 によって支持することができ、被覆部材 6 2 の露出面に粘着剤が塗布されていることにより、被覆部材 6 2 が基材 5 0 と接着されて被覆部材 6 2 の位置が安定する。これらの効果によって、補強部材 2 2 の位置を安定して保持することができ、補強部材 2 2 の位置ずれを抑制することができる。

【 0 0 3 7 】

[貼り合わせ工程 S 5]

貼り合わせ工程 S 5 は、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 とを強固に接着する工程である。貼り合わせ工程 S 5 は、図 4 に示されるように、例えば、仮固定工程 S 4 で基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 と積層体 6 0 とを仮固定したものを熱ロール 7 0 の間に通して、一定の圧力をかけながら加熱することによって行われる。これによって、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 との間の熱硬化性樹脂接着剤が一定の厚さで硬化し、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 とが強固に接着されると共に、基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 と積層体 6 0 とが貼り合わせされた貼合体 8 0 が作製される。

10

【 0 0 3 8 】

貼り合わせ工程 S 5 において、被覆部材 6 2 に皺等の変形が生じないように、被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 には、同じ熱膨張率の材料を用いることが好ましい。熱ロール 7 0 の設定温度や回転速度（電解質膜 1 2 を支持した基材 5 0 と積層体 6 0 とを通過させる速さ）は、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 との間に介在している不図示の熱硬化性樹脂接着剤の熱硬化特性等を考慮して、適宜、定められる。

20

【 0 0 3 9 】

なお、基材 5 0（電解質膜 1 2）と積層体 6 0 とが帯状であるため、熱ロール 7 0 を用いる方法は、電解質膜 1 2 と補強部材 2 2 との接着を連続的に行うことができる点で、生産性に優れている。

【 0 0 4 0 】

[バックアップ部材剥離工程（第 1 の剥離工程）S 6]

図 5 に示されるように、バックアップ部材剥離工程（第 1 の剥離工程）S 6 は、貼り合わせ工程 S 5 で作製した貼合体 8 0 からバックアップ部材 6 4 を剥離して、開口 2 4, 6 8 内の電解質膜 1 2 の表面を露出させる工程である。このバックアップ部材 6 4 の剥離は、室温で行うことができる。前記したように、補強部材 2 2 と被覆部材 6 2 との間の接着強度を、被覆部材 6 2 とバックアップ部材 6 4 との間の接着強度よりも大きくしておくこと、補強部材 2 2 を剥離させることなく、バックアップ部材 6 4 のみを剥離することが容易となる。

30

【 0 0 4 1 】

[触媒層形成工程 S 7]

触媒層形成工程 S 7 は、バックアップ部材剥離工程 S 6 によって開口 2 4, 6 8 内に露出した電解質膜 1 2 に対して、触媒層 2 6 となるペースト等の材料（以下「触媒材料」という）を塗布し、触媒層 2 6 を形成する工程である。このとき、補強部材 2 2 の全面が被覆部材 6 2 によって覆われているために、被覆材料 6 2 の開口 6 8 の近傍の表面に余分な触媒塗布部 2 6 a が形成されることはあっても、補強部材 2 2 の表面に触媒材料が付着することがない。これにより、後に行われるガス拡散層形成工程 S 1 2 において、補強部材 2 2 にガス拡散層 2 8 としてのカーボンペーパー等を貼り付けたときに接着不良が発生すること回避することができる。

40

【 0 0 4 2 】

本製造方法によれば、触媒層形成工程 S 7 によって形成される触媒層 2 6 の外縁は開口 2 4 の内縁と一致するため、従来の電解質膜に触媒層を先に設け、その触媒層を囲むように補強部材を設ける方法において必要とされる補強部材の精密な位置決めを必要としない。これにより、歩留まりが高くなり、生産性が向上する。

【 0 0 4 3 】

50

〔被覆部材剥離工程（第2の剥離工程）S8〕

被覆部材剥離工程S8は、図5に示されるように、触媒層26が形成された後に、被覆部材62を基材50等から剥離する工程である。被覆部材剥離工程S8の終了によって、電解質膜の表面の触媒層26の形成までの工程が終了する。なお、貼合体80から剥離した被覆部材62に付着した余分な触媒塗布部26aの触媒材料は、化学的手段（例えば、溶解等）や物理的手段（例えば、剥離等）によって、簡単に高い効率で回収することができるため、触媒材料の再生利用効率を高めることができる。

【0044】

ところで、図1(a)、(b)を参照して説明したように、膜-電極構造体10では、電解質膜12の両面に補強部材22が設けられ、その開口24内に触媒層26が形成されている。そのためには、被覆部材剥離工程S8を行った後に、基材50を電解質膜12から剥離する基材剥離工程S9を経て、裏面処理工程S10（電解質膜12の裏面に対して仮固定工程S4から触媒層形成工程S7までを繰り返し行う工程）を実行してもよいし、被覆部材剥離工程S8を飛ばして、基材剥離工程S9と裏面処理工程S10とを逐次行ってもよい。なお、裏面処理工程を仮固定工程S4から触媒層形成工程S7までとしたのは、裏面処理工程S10に用いる積層体60が既に準備されていることを前提としている。

10

【0045】

被覆部材剥離工程S8を行った後に基材剥離工程S9を経てこの裏面処理工程S10に進んだ場合でも、電解質膜12の裏面に触媒層26を形成した際の電解質膜12の膨潤による寸法変化は、電解質膜12の表面に先に設けられた補強部材22によって抑制され、補助的には触媒層26によっても抑制されうる。また、被覆部材剥離工程S8を飛ばして基材剥離工程S9を経てこの裏面処理工程S10に進んだ場合には、電解質膜12の裏面に触媒層26を形成した際の電解質膜12の膨潤による寸法変化が、電解質膜12の表面に先に設けられた触媒層26のみならず、被覆部材62によっても抑制され、また、被覆部材62が貼り付けられたままの状態にあることで、電解質膜12のハンドリング性が向上する。

20

【0046】

〔基材剥離工程S9〕

基材剥離工程S9は、基材50を電解質膜12から剥離する工程であり、これにより基材50と接触していた電解質膜12の裏面が露出し、積層体60との貼り合わせが可能になる。

30

【0047】

〔裏面処理工程S10〕

裏面処理工程S10は、基材剥離工程S9によって露出した電解質膜12の裏面に、積層体60を位置合わせして仮固定し（仮固定工程S4）、積層体60を貼り合わせ（貼り合わせ工程S5）、作製された貼合体80からバックアップ部材64を剥離し（バックアップ部材剥離工程S6）、触媒層26を形成する（触媒層形成工程S7）一連の工程である。

【0048】

〔被覆部材剥離工程S11〕

電解質膜12の裏面側に触媒層26が形成された後には、先に被覆部材剥離工程S8が実行されている場合には、電解質膜12の裏面側に取り付けられている被覆部材62を剥離し、一方、先に被覆部材剥離工程S8を飛ばしている場合には、電解質膜12の両面（表面側と裏面側）にそれぞれ取り付けられている被覆部材62を剥離する。

40

【0049】

〔ガス拡散層形成工程S12〕

被覆部材剥離工程S11が終了した後には、補強部材22の表面が露出している。そこで、補強部材22の表面に接着剤等によりガス拡散層28となるカーボンペーパー等を貼り付けることにより、ガス拡散層28を形成し、その後、隣接する開口24（適宜、図2(b)参照）の中間位置でY方向と平行に切断することにより、図1(a)に示される膜

50

- 電極構造体 10 が得られる。なお、この切断処理は、被覆部材剥離工程 S 1 1 の終了後、ガス拡散層形成工程 S 1 2 の前に行ってもよい。その後、個々の膜 - 電極構造体 10 (図 1 (a) に示されるもの) における電解質膜 1 2 の幅方向端部を補強部材 2 2 の幅方向端とそろうように切断することで、図 1 (b) に示される膜 - 電極構造体 10 が製造される。この電解質膜 1 2 の端部の切断は、被覆部材剥離工程 S 1 1 の終了直後に前記した切断処理を行った場合には、その切断処理の直後、かつ、ガス拡散層 2 8 の形成前に行なってもよい。

【 0 0 5 0 】

このような膜 - 電極構造体 10 の製造方法によれば、全製造工程を通じて、取り扱われる各種の部材 (積層体 6 0、貼合体 8 0 を含む) の自立性が高く、ハンドリングが容易であるため、生産性に優れている。さらに、帯状の部材等を用いることで、各工程を一連の流れ作業として連続して行うことができるために、量産性にも優れている。

10

【 0 0 5 1 】

以上、本発明の実施の形態について説明したが、本発明は前記した形態に限定されるものではない。例えば、図 1 (a) , (b) に示される膜 - 電極構造体はガス拡散層 2 8 を有していなくてもよい。図 2 に示される膜 - 電極構造体 10 の製造工程では、貼合体 8 0 を作製した後にバックアップ部材 6 4 を剥離し、触媒層 2 6 を形成するとしたが、これに限られず、貼合体 8 0 を作製した後に基材 5 0 を剥離し、これにより露出した電解質膜 1 2 の裏面に積層体 6 0 を貼り付けることによって、2 つの積層体 6 0 で電解質膜 1 2 が挟持された構造を有する貼合体を作製し、その後、各積層体 6 0 のバックアップ部材 6 4 を剥離して触媒層 2 6 を形成するようにしてもよい。

20

【 0 0 5 2 】

また、膜 - 電極構造体 10 の製造工程として、基材 5 0 に支持された電解質膜 1 2 を用いた形態について説明したが、電解質膜 1 2 を自立膜として取り扱える場合には、積層体 6 0 に電解質膜 1 2 を貼り合わせてもよい。この場合、電解質膜 1 2 の両面に積層体 6 0 を位置決めして貼り合わせることにより、熱ロール 7 0 が直接に電解質膜 1 2 に接触することを防止することができる。こうして、例えば、熱ロール 7 0 の表面に凹凸等の欠陥があったときにも、その欠陥が電解質膜 1 2 に転写されるのを防止することができる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 5 3 】

【 図 1 】 (a) , (b) はそれぞれ固体高分子型燃料電池の構成要素である膜 - 電極構造体を示す概略断面図である。

30

【 図 2 】膜 - 電極構造体の製造工程を示すフローチャートである。

【 図 3 】 (a) は電解質膜準備工程で準備する電解質膜の形態を示す平面図と断面図であり、(b) は積層体作製工程と開口形成工程における処理の態様を模式的に示す平面図と断面図である。

【 図 4 】仮固定工程と貼り合わせ工程における処理の態様を模式的に示す平面図と断面図である。

【 図 5 】バックアップ部材剥離工程から被覆部材剥離工程までの処理の態様を模式的に示す平面図と断面図である。

40

【 符号の説明 】

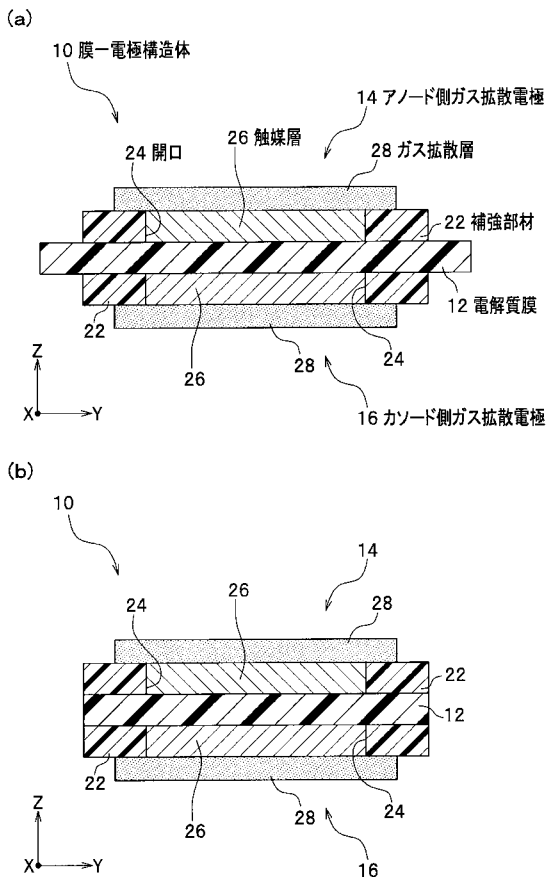
【 0 0 5 4 】

1 0	膜 - 電極構造体
1 2	電解質膜 (固体高分子電解質膜)
1 4	アノード側ガス拡散電極
1 6	カソード側ガス拡散電極
2 2	補強部材 (第 1 の部材)
2 4	開口
2 6	触媒層
2 6 a	(余分な) 触媒塗布部

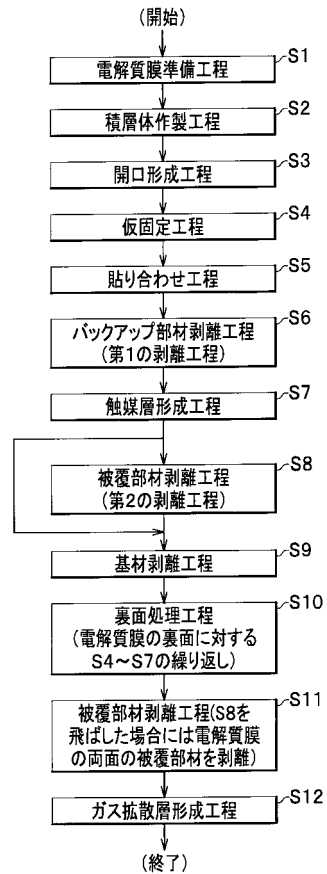
50

- 2 8 ガス拡散層
- 5 0 基材（電解質膜支持基材）
- 6 0 積層体
- 6 2 被覆部材（第2の部材）
- 6 4 バックアップ部材（第3の部材）
- 6 8 開口
- 7 0 熱ロール
- 8 0 貼合体

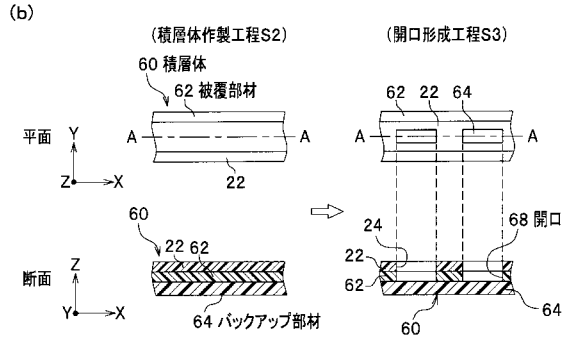
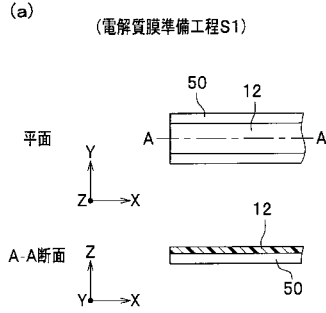
【 図 1 】



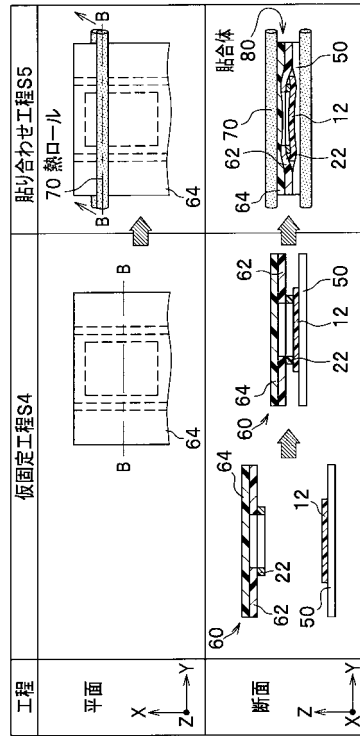
【 図 2 】



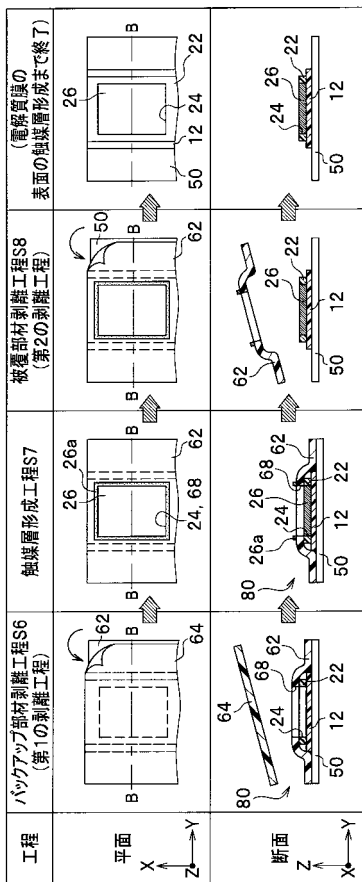
【 図 3 】



【 図 4 】



【 図 5 】



フロントページの続き

(72)発明者 七海 昌昭

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 松原 猛

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) 5H026 AA06 BB01 BB02 BB04 CX07 HH03 HH05