

(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2017-103129

(P2017-103129A)

(43) 公開日 平成29年6月8日(2017.6.8)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1M 8/02 (2016.01)	HO 1M 8/02 E	5H026
HO 1M 8/10 (2016.01)	HO 1M 8/10	5H126

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2015-236235 (P2015-236235)	(71) 出願人	314012076 パナソニックIPマネジメント株式会社 大阪府大阪市中央区城見2丁目1番61号
(22) 出願日	平成27年12月3日(2015.12.3)	(74) 代理人	100106116 弁理士 鎌田 健司
		(74) 代理人	100170494 弁理士 前田 浩夫
		(72) 発明者	杉本 和彦 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内
		(72) 発明者	山本 雅夫 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内
		Fターム(参考)	5H026 AA06 CX04 CX05 CX07 HH00 HH03

最終頁に続く

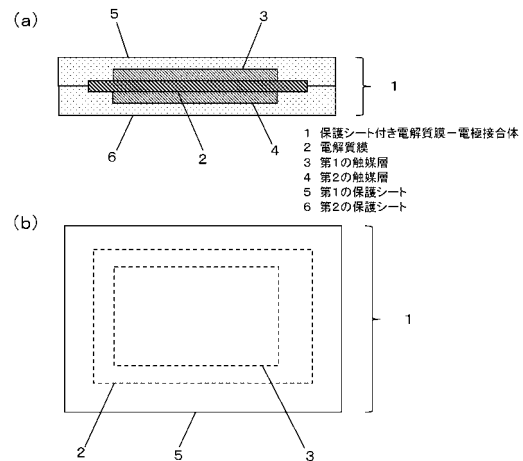
(54) 【発明の名称】 保護シート付き電解質膜-電極接合体

(57) 【要約】

【課題】保管環境における水蒸気成分が多かったり、少なかったりする場合においても、保護シート剥離時のシワの発生や寸法変化を抑制することができる保護シート付き電解質膜-電極接合体を提供する。

【解決手段】保護シート付き電解質膜-電極接合体1は、電解質膜2と、この電解質膜2の両面に形成された第1の触媒層3及び第2の触媒層4と、第1の触媒層3を覆った状態で電解質膜2に密着された第1の保護シート5と、第2の触媒層4を覆った状態で電解質膜2に密着された第2の保護シート6と、を備えている。第1の保護シート5及び第2の保護シート6は、水蒸気透過度が $5\text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24\text{ h})$ 以下であり、電解質膜2よりも大きく、電解質膜2の外周部の全部を覆い、電解質膜2の外周部において、電解質膜2を挟まない部分の保護シート同士が密着している。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

少なくとも一方の面に触媒層が形成された電解質膜 - 電極接合体と、前記電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う 2 枚の保護シートと、を備えた、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、

前記保護シートの水蒸気透過度が所定値以下である、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体。

【請求項 2】

前記保護シート付き電解質膜 - 電極接合体は、2 枚の保護シートの間に、前記電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の前記保護シート同士が密着している、請求項 1 に記載の、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体。

10

【請求項 3】

前記保護シートは、前記電解質膜 - 電極接合体と対向する面に接着層を有する、請求項 1 または 2 に記載の、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体。

【請求項 4】

前記電解質膜 - 電極接合体と、前記保護シートが長尺状である、請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体。

【請求項 5】

前記保護シートは、前記電解質膜 - 電極接合体よりも幅が広い、請求項 4 に記載の、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体。

20

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、電解質膜に触媒層が形成された保護シート付き電解質膜 - 電極接合体に関するものである。

【背景技術】**【0002】**

燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層が配置され、水素と酸素の電気化学反応により発電する電池であり、発電時に発生するのは水のみである。このように従来の内燃機関と異なり、二酸化炭素等の環境負荷ガスを発生しないために次世代のクリーンエネルギーシステムとして普及が見込まれている。

30

【0003】

その中でも特に固体高分子形燃料電池は、作動温度が低く、電解質膜の抵抗が少ないことに加え、活性の高い触媒層を用いるので小型でも高出力を得ることができ、家庭用コージェネレーションシステム等の用途として実用化されている。

【0004】

固体高分子形燃料電池用の電解質膜 - 電極接合体は、水素イオン伝導性固体高分子電解質からなる電解質膜と、電解質膜の両側にそれぞれ積層して形成された触媒層からなる構造になっている。燃料極となるアノード触媒層には例えば白金とルテニウムの合金が用いられ、酸素極となるカソード触媒層には例えば白金が用いられている。

40

【0005】

このような構造を持つ電解質膜 - 電極接合体において、燃料極側に供給された水素ガスは、アノード触媒層上で水素イオン化され、水素イオンは電解質膜中を水の存在のもと水合状態で酸素極へ移動し、カソード触媒層上で、酸素及び電子と反応して水を生成する。

【0006】

固体高分子形燃料電池が高い耐久性能や初期特性を有するためには、触媒層中の構造や電解質膜の構造が、製造時の状態を維持することが必要である。電解質膜 - 電極接合体にシワが発生した場合には、電圧電流特性などの初期特性や長期の耐久特性の低下が見られる。

【0007】

50

電解質膜 - 電極接合体は、このままの状態では保管されたりすることがあるが、生産性の観点から長尺状の電解質膜の両面に触媒層が形成されてロール状に巻き取られた状態とすることがある。

【0008】

ロール状に巻かれた電解質膜 - 電極接合体は、触媒層同士が接触した状態となる。そして、電解質膜 - 電極接合体の保管中又は輸送中に、隣接する触媒層が擦れることによって触媒層が損傷したり欠落したりするというような問題が生じる可能性がある。

【0009】

そこで、長尺状の電解質膜 - 電極接合体に対して、触媒層を覆った状態で電解質膜の両面に密着された長尺状の保護シートを備えることがある。

10

【0010】

この保護シート付き電解質膜 - 電極接合体は、電解質膜が2枚の保護シートに覆われた状態となっているため、この状態で保護シート付き電解質膜 - 電極接合体をロール状にすると、触媒層と触媒層との間に保護シートが介在する状態となる。この結果、触媒層同士が直接擦れることを防止でき、ひいては触媒層の損傷や欠落を防止することができる。

【0011】

また、触媒層と保護シートとを密着することによって、長期間の保管時の電解質膜の膨潤や収縮によるシワの発生を抑制することができる（例えば、特許文献1参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

20

【0012】

【特許文献1】特開2012-69462号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

しかしながら、上記従来構成では、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かったり、少なかったりする場合に、電解質膜が保護シートを通して水蒸気成分の吸着、脱着を起こし、保護シートを剥離した際に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こす、という課題を有していた。

【0014】

30

これは、固体高分子形燃料電池用の電解質膜 - 電極接合体は、スルホン酸基を持つフッ素樹脂系イオン交換膜のような高分子イオン交換膜からなる電解質膜を用いており、この電解質膜は、水蒸気成分が過剰に多い雰囲気では膨潤し、水蒸気成分が過剰に少ない雰囲気では収縮する傾向があり、保護シートと密着している時には、密着力により電解質膜の形状が維持されるが、電解質膜には、内部に応力が残留しており、保護シート剥離時に、残留応力により、シワを発生させたり、寸法変化を起こすためである。

【0015】

本発明は、上記従来課題を解決するもので、保管環境における水蒸気成分が多かったり、少なかったりする場合においても、保護シート剥離時のシワの発生や寸法変化を抑制することができる保護シート付き電解質膜 - 電極接合体を提供することを目的とする。

40

【課題を解決するための手段】

【0016】

上記従来課題を解決するために、本発明の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体は、少なくとも一方の面に触媒層が形成された電解質膜 - 電極接合体と、電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う2枚の保護シートと、を備えた、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、保護シートの水蒸気透過度を所定値以下としたものである。

【0017】

ここで、水蒸気透過度は、透湿度とも呼ばれ、規定の温度及び湿度の条件で、単位時間中に試験片を通過する単位面積当たりの水蒸気の量であり、24時間に透過した面積1平方メートル当たりの水蒸気のグラム数「 $g / (m^2 \cdot 24h)$ 」で表す、と、JIS K

50

7129に定義されており、試験方法としては、乾湿センサ法、赤外センサ法、ガスクロマトグラフ法などがある。

【0018】

保護シートの水蒸気透過度を所定値以下とすることによって、保管環境と電解質膜の間の水蒸気成分の移動が一定量以下に制限され、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かたり、少なかたりする場合に、電解質膜が保護シートを通して水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことを抑制し、保護シート剥離時に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

【発明の効果】

【0019】

本発明の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体は、保管環境における水蒸気成分が多かたり、少なかたりする場合において、保護シート剥離時のシワの発生や寸法変化を、抑制することができ、製造時における不良率を低減することができる。また、製造後のハンドリング時の不具合を無くすことができ、これを用いて組み立てた燃料電池において高い耐久性能や初期特性を有することができる。

【図面の簡単な説明】

【0020】

【図1】(a)本発明の実施の形態1に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図 (b)本発明の実施の形態1に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の平面図

【図2】本発明の実施の形態1に係る電解質膜の片側の面に第3の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜の側面の断面図

【図3】本発明の実施の形態1に係る図2の状態からさらに、第3の保護シートが密着されていない面に第1の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図4】本発明の実施の形態1に係る図3の状態からさらに、第1の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図5】本発明の実施の形態1に係る図4の状態からさらに、第3の保護シートを剥離した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図6】本発明の実施の形態1に係る図5の状態からさらに、第1の保護シートが密着されていない面に第2の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図7】(a)本発明の実施の形態2に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図 (b)本発明の実施の形態2に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の平面図

【図8】本発明の実施の形態2に係る電解質膜の片側の面に第3の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜の側面の断面図

【図9】本発明の実施の形態2に係る図8の状態からさらに、第3の保護シートが密着されていない面に第1の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図10】本発明の実施の形態2に係る図9の状態からさらに、第1の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図11】本発明の実施の形態2に係る図10の状態からさらに、第3の保護シートを剥離した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図12】本発明の実施の形態2に係る図11の状態からさらに、第1の保護シートが密着されていない面に第2の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図13】(a)本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体を長尺状に展開した側面の断面図 (b)本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の模式図 (c)本発明の実施の形態3に係るロール状

10

20

30

40

50

の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体を長尺状に展開した平面図

【図 1 4】本発明の実施の形態 3 の第 1 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜の製造装置の概略図

【図 1 5】本発明の実施の形態 3 の第 2 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置の概略図

【図 1 6】本発明の実施の形態 3 の第 3 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置の概略図

【図 1 7】本発明の実施の形態 3 に係る長尺状の電解質膜の片側の面に第 3 の長尺状の保護シートを形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜の側面の断面図

【図 1 8】本発明の実施の形態 3 に係る図 1 7 の状態からさらに、第 3 の長尺状の保護シートが密着されていない面に第 1 の触媒層を形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図 1 9】本発明の実施の形態 3 に係る図 1 8 の状態からさらに、第 1 の長尺状の保護シートを形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図 2 0】本発明の実施の形態 3 に係る図 1 9 の状態からさらに、第 3 の長尺状の保護シートを剥離した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【図 2 1】本発明の実施の形態 3 に係る図 2 0 の状態からさらに、第 1 の長尺状の保護シートが密着されていない面に第 2 の触媒層を形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図

【発明を実施するための形態】

【0021】

第 1 の発明は、少なくとも一方の面に触媒層が形成された電解質膜 - 電極接合体と、電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う 2 枚の保護シートと、を備えた、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、保護シートの水蒸気透過度が所定値以下であることを特徴とする。

【0022】

これによって保管環境と電解質膜の間の水蒸気成分の移動が一定量以下に制限されることで、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かたり、少なかつたりする場合に、電解質膜が保護シートを通して水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことを抑制し、保護シート剥離時に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

【0023】

第 2 の発明は、特に第 1 の発明において、2 枚の保護シートの間に電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が密着していることを特徴とする。

【0024】

これによって、電解質膜 - 電極接合体の外周部において、電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が密着し、電解質膜 - 電極接合体の外周部における、電解質膜と水蒸気成分が接する部分が少なくなり、保管環境と電解質膜 - 電極接合体の外周部の間の水蒸気成分の移動が制限され、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことをより一層抑制し、保護シート剥離時の寸法変化をより一層抑制することができる。

【0025】

第 3 の発明は、特に第 1 の発明において、保護シートは、電解質膜 - 電極接合体と対向する面に接着層を有することを特徴とする。

【0026】

これによって保護シートの接着層により保護シートと電解質膜 - 電極接合体とが接着され、保護シートと電解質膜 - 電極接合体の間の面を移動する水蒸気成分の量が制限され、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことをより一層抑制し、保護シート剥離時の寸法変化をより一層抑制することができる。

10

20

30

40

50

【0027】

第4の発明は、特に第1の発明において、電解質膜 - 電極接合体と、保護シートが長尺状であることを特徴とする。

【0028】

これによって、生産性に優れた保護シート付き電解質膜 - 電極接合体で、かつ、保護シート剥離時の寸法変化を抑制することができる。

【0029】

第5の発明は、特に第4の発明において、保護シートは、電解質膜 - 電極接合体よりも幅が広いことを特徴とする。

【0030】

これによって電解質膜 - 電極接合体の外周部の長辺部において、電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が密着し、電解質膜 - 電極接合体の外周部の長辺部における、電解質膜と水蒸気成分が接する部分がなくなり、電解質膜 - 電極接合体の外周部の長辺部の水蒸気成分の移動が制限され、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことをより一層抑制し、保護シート剥離時の寸法変化を抑制することができ、生産性に優れ、良好な電解質膜 - 電極接合体を作製できる。

【0031】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。なお、本発明の実施の形態によって本発明が限定されるものではない。

【0032】

(実施の形態1)

図1(a)は、本発明の実施の形態1に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。図1(b)は、本発明の実施の形態1に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の平面図であり、電解質膜と触媒層の位置が分かるように、保護シートによって覆われている電解質膜と触媒層も図示している。

【0033】

図2は、本発明の実施の形態1に係る電解質膜の片側の面に第3の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜の側面の断面図である。

【0034】

図3は、本発明の実施の形態1に係る図2の状態からさらに、第3の保護シートが密着されていない面に第1の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0035】

図4は、本発明の実施の形態1に係る図3の状態からさらに、第1の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0036】

図5は、本発明の実施の形態1に係る図4の状態からさらに、第3の保護シートを剥離した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0037】

図6は、本発明の実施の形態1に係る図5の状態からさらに、第1の保護シートが密着されていない面に第2の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0038】

図1(a)に示すように、実施の形態1に係る、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体1は、電解質膜2と、この電解質膜2の両面に形成された第1の触媒層3及び第2の触媒層4と、第1の触媒層3を覆った状態で電解質膜2に密着された第1の保護シート5と、第2の触媒層4を覆った状態で電解質膜2に密着された第2の保護シート6と、を備えている。

【0039】

また、図1(b)に示すように、電解質膜2は長形状であり、電解質膜2の一部分上

10

20

30

40

50

に第1の触媒層3が形成されている。第2の触媒層4は、電解質膜2を介して、第1の触媒層3に対応する位置に形成されている。

【0040】

また、第1の保護シート5及び第2の保護シート6は、電解質膜2よりも大きく、電解質膜2の外周部の全部を覆い、電解質膜2の外周部において、電解質膜2を挟まない部分の保護シート同士が密着している。第2の保護シート6は、電解質膜2を介して、第1の保護シート5に対応する位置に形成されている。

【0041】

また、第1の保護シート5は、電解質膜2と第1の触媒層3とに密着し、第2の保護シート6は、電解質膜2と第2の触媒層4とに密着している。

10

【0042】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体1の製造方法について説明する。

【0043】

まず、電解質膜2の片側の面に、第3の保護シート7をラミネート装置を用いて密着することで図2に示す保護シート付き電解質膜8を作製する。

【0044】

次に、白金を担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金を担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第1の触媒層3用の触媒インクを作製する。

20

【0045】

作製した第1の触媒層3用の触媒インクを、保護シート付き電解質膜8の第3の保護シート7が密着されていない面にダイコート塗布法の塗布装置を用いて塗布し、ボックス型の乾燥炉を用いて乾燥することにより触媒インク中の分散媒を除去する。これにより、第1の触媒層3を、電解質膜2上に、形成することで図3に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体9を作製する。

【0046】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体9の、第1の触媒層3が形成された面に、第1の保護シート5をラミネート装置を用いて密着することで図4に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体10を作製する。

【0047】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体10から、第3の保護シート7を剥離することで、図5に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体11を作製する。次に、白金とルテニウムを担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金とルテニウムを担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第2の触媒層4用の触媒インクを作製する。

30

【0048】

そして、作製した第2の触媒層4用の触媒インクを保護シート付き電解質膜 - 電極接合体11の第1の保護シート5が密着されていない面にダイコート塗布法の塗布装置を用いて塗布し、ボックス型の乾燥炉を用いて乾燥することにより触媒インク中の分散媒を除去する。これにより、第2の触媒層4を、電解質膜2上に、形成することで図6に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体12を作製する。

40

【0049】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体12における、第2の触媒層4が形成された面に、第2の保護シート6をラミネート装置を用いて密着することで図1に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体1を作製する。

【0050】

以下、本実施の形態に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体について、具体的な実施例に基づき、さらに詳細に説明するが、本発明は、以下で用いた特定の材料等の内容に必ずしも制限されるものではない。

【0051】

50

(実施例 1)

電解質膜 2 はナフィオン 115 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC10E50E)、第 2 の触媒層 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 wt % 分散液、分散媒はエタノールである。

【0052】

第 1 の保護シート 5、第 2 の保護シート 6 及び第 3 の保護シート 7 は、JIS K7129 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $3 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がポリエチレンテレフタレート、厚さ $250 \mu\text{m}$ のルミラー (東レ (株) 製) を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を作製した。

10

【0053】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を、25 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で 6 ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

【0054】

(実施例 2)

電解質膜 2 はナフィオン 115 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC10E50E)、第 2 の触媒層 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 wt % 分散液、分散媒はエタノールである。

20

【0055】

第 1 の保護シート 5、第 2 の保護シート 6 及び第 3 の保護シート 7 は、JIS K7129 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $5 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がポリプロピレン、厚さ $100 \mu\text{m}$ のトレファン (東レ (株) 製) を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を作製した。

【0056】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を、25 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で 6 ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

30

【0057】

(比較例 1)

電解質膜 2 はナフィオン 115 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC10E50E)、第 2 の触媒層 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 wt % 分散液、分散媒はエタノールである。

40

【0058】

第 1 の保護シート 5、第 2 の保護シート 6 及び第 3 の保護シート 7 は、JIS K7129 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $70 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がナイロン 6、厚さ $30 \mu\text{m}$ のレイファン (東レ (株) 製) を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を作製した。

【0059】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 を、25 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で 6 ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体が収縮し、シワが発生した。

【0060】

50

上記の結果より、本実施の形態に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体において、保護シートの水蒸気透過度を $5 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下とすることで、25 で、ドライ室素を流したデシケータの中で6ヶ月間保管した際の、保護シート剥離時の電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

【0061】

以上のように本実施の形態においては、両面に触媒層が形成された電解質膜 - 電極接合体と、電解質膜 - 電極接合体に密着した状態で電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う2枚の保護シートと、を備えた、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、2枚の保護シートの上に電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が密着し、保護シートの水蒸気透過度が所定値以下である、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体、とすることにより、保管環境と電解質膜の水蒸気成分の移動が一定量以下に制限されることで、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かたり、少なかたりする場合に、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことを抑制し、保護シートを剥離した際に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

10

【0062】

(実施の形態2)

図7(a)は、本発明の実施の形態2に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。図7(b)は、本発明の実施の形態2に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の平面図であり、電解質膜と触媒層の位置が分かるように、保護シートによって覆われている電解質膜と触媒層も図示している。

20

【0063】

図8は、本発明の実施の形態2に係る電解質膜の片側の面に第3の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜の側面の断面図である。

【0064】

図9は、本発明の実施の形態2に係る図8の状態からさらに、第3の保護シートが密着されていない面に第1の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0065】

図10は、本発明の実施の形態2に係る図9の状態からさらに、第1の保護シートを形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

30

【0066】

図11は、本発明の実施の形態2に係る図10の状態からさらに、第3の保護シートを剥離した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0067】

図12は、本発明の実施の形態2に係る図11の状態からさらに、第1の保護シートが密着されていない面に第2の触媒層を形成した構造を有する保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0068】

図7(a)に示すように、実施の形態2に係る、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体21は、第1の保護シート25が接着層33を有し、第2の保護シート26が、接着層34を有し、電解質膜22と、この電解質膜22の両面に形成された第1の触媒層23及び第2の触媒層24と、第1の触媒層23を覆った状態で電解質膜22に接着された第1の保護シート25と、第2の触媒層24を覆った状態で電解質膜22に接着された第2の保護シート26と、を備えている。

40

【0069】

また、図7(b)に示すように、電解質膜22は長形状であり、電解質膜22の一部上には第1の触媒層23が形成されている。第2の触媒層24は、電解質膜22を介して第1の触媒層23に対応する位置に形成されている。

【0070】

また、第1の保護シート25、及び第2の保護シート26は、電解質膜22よりも大き

50

く、電解質膜 2 2 の外周部の長辺側を覆い、電解質膜 2 2 の長辺側において、電解質膜 2 2 を挟まない部分の保護シート同士が、保護シートの接着層 3 3、及び、接着層 3 4 を介して接着している。第 2 の保護シート 2 6 は、電解質膜 2 2 を介して、第 1 の保護シート 2 5 に対応する位置に形成されている。

【 0 0 7 1 】

また、第 1 の保護シート 2 5 は、電解質膜 2 2 と第 1 の触媒層 2 3 とに接着層 3 3 を介して接着し、第 2 の保護シート 2 6 は、電解質膜 2 2 と第 2 の触媒層 2 4 とに接着層 3 4 を介して接着している。

【 0 0 7 2 】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 の製造方法について説明する。

10

【 0 0 7 3 】

まず、電解質膜 2 2 の片側の面に、第 3 の保護シート 2 7 をラミネート装置を用いて密着することで図 8 に示す保護シート付き電解質膜 2 8 を作製する。

【 0 0 7 4 】

次に、白金を担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金を担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第 1 の触媒層 2 3 用の触媒インクを作製する。

【 0 0 7 5 】

作製した第 1 の触媒層 2 3 用の触媒インクを、保護シート付き電解質膜 2 8 の第 3 の保護シート 2 7 が密着されていない面にダイコート塗布法の塗布装置を用いて塗布し、ボックス型の乾燥炉を用いて乾燥することにより触媒インク中の分散媒を除去する。これにより、第 1 の触媒層 2 3 を、電解質膜 2 2 上に、形成することで図 9 に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 9 を作製する。

20

【 0 0 7 6 】

次に、第 1 の保護シート 2 5 の片側の面に接着層 3 3 を形成し、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 9 の、第 1 の触媒層 2 3 が形成された面に、接着層 3 3 が形成された第 1 の保護シート 2 5 をラミネート装置を用いて接着することで図 1 0 に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 0 を作製する。

【 0 0 7 7 】

次に、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 0 から、第 3 の保護シート 2 7 を剥離することで、図 1 1 に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 1 を作製する。次に、白金とルテニウムを担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金とルテニウムを担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第 2 の触媒層 2 4 用の触媒インクを作製する。

30

【 0 0 7 8 】

作製した第 2 の触媒層 2 4 用の触媒インクを保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 1 の第 1 の保護シート 2 5 が密着されていない面にダイコート塗布法の塗布装置を用いて塗布し、ボックス型の乾燥炉を用いて乾燥することにより、触媒インク中の分散媒を除去する。これにより、第 2 の触媒層 2 4 を、電解質膜 2 2 上に、形成することで図 1 2 に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 2 を作製する。

40

【 0 0 7 9 】

次に、第 2 の保護シート 2 6 の片側の面に接着層 3 4 を形成し、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 3 2 の、第 2 の触媒層 2 4 が形成された面に、接着層 3 4 が形成された第 2 の保護シート 2 6 をラミネート装置を用いて接着することで図 7 に示す保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を作製する。

【 0 0 8 0 】

以下、本実施の形態に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体について、具体的な実施例に基づき、さらに詳細に説明するが、本発明は、以下で用いた特定の材料等の内容に必ずしも制限されるものではない。

【 0 0 8 1 】

50

(実施例 3)

電解質膜 2 2 はナフィオン 1 1 5 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 2 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 1 0 E 5 0 E)、第 2 の触媒層 2 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 6 6 E 5 0)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 w t % 分散液、分散媒はエタノールである。

【0082】

第 1 の保護シート 2 5、第 2 の保護シート 2 6 及び第 3 の保護シート 2 7 は、J I S K 7 1 2 9 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $4 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がポリエチレンテレフタレート、厚さ $200 \mu\text{m}$ のルミラー (東レ (株) 製)、接着層 3 3、及び、接着層 3 4 はウレタン樹脂、を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を作製した。

10

【0083】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を、2 5 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で 3 ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

【0084】

(実施例 4)

電解質膜 2 2 はナフィオン 1 1 5 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 2 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 1 0 E 5 0 E)、第 2 の触媒層 2 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 6 6 E 5 0)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 w t % 分散液、分散媒はエタノールである。

20

【0085】

第 1 の保護シート 2 5、第 2 の保護シート 2 6 及び第 3 の保護シート 2 7 は、J I S K 7 1 2 9 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $10 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がポリエチレンテレフタレート、厚さ $80 \mu\text{m}$ のルミラー (東レ (株) 製)、接着層 3 3、及び、接着層 3 4 はウレタン樹脂、を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を作製した。

30

【0086】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を、2 5 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で 3 ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

【0087】

(比較例 2)

電解質膜 2 2 はナフィオン 1 1 5 (デュボン (株) 製)、第 1 の触媒層 2 3 は白金を担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 1 0 E 5 0 E)、第 2 の触媒層 2 4 は白金とルテニウムを担持した炭素粉末 (田中貴金属 (株) 製、品番: TEC 6 6 E 5 0)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン 5 w t % 分散液、分散媒はエタノールである。

40

【0088】

第 1 の保護シート 2 5、第 2 の保護シート 2 6 及び第 3 の保護シート 2 7 は、J I S K 7 1 2 9 に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $70 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 、材質がナイロン 6、厚さ $30 \mu\text{m}$ のレイファン (東レ (株) 製)、接着層 3 3、及び、接着層 3 4 はウレタン樹脂、を使用して、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を作製した。

【0089】

作製した保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 を、2 5 で、ドライ窒素を流した

50

デシケータの中で3ヶ月間保管し、保管後の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体 2 1 の保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体が収縮し、シワが発生した。

【0090】

上記の結果より、本実施の形態に係る保護シート付き電解質膜 - 電極接合体において、保護シートの水蒸気透過度を $10 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h})$ 以下とすることで、25 で、ドライ窒素を流したデシケータの中で3ヶ月間保管した際の、保護シート剥離時の電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

【0091】

以上のように、本実施の形態においては、両面に触媒層が形成された電解質膜 - 電極接合体と、電解質膜 - 電極接合体に、保護シートの接着層を介して接着した状態で電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う2枚の保護シートと、を備えた、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、電解質膜 - 電極接合体の外周部の長辺側において、2枚の保護シートの間に電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が、保護シートの接着層を介して接着し、保護シートの水蒸気透過度が所定値以下である、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体、とすることにより、保護シートと電解質膜 - 電極接合体の間の面を移動する水蒸気成分の量が制限され、保管環境と電解質膜 - 電極接合体の水蒸気成分の移動が一定量以下に制限されることで、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かったり、少なかったりする場合に、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことを抑制し、保護シートを剥離した際に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

10

20

【0092】

(実施の形態3)

図13(a)は、本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体を長尺状に展開した側面の断面図である。図13(b)は、本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の模式図である。

【0093】

図13(c)は、本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体を長尺状に展開した平面図であり、電解質膜と触媒層の位置が分かるように、保護シートによって覆われている電解質膜と触媒層も図示している。

【0094】

図14は、本発明の実施の形態3の第1の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜の製造装置の概略図である。

30

【0095】

図15は、本発明の実施の形態3の第2の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置の概略図である。

【0096】

図16は、本発明の実施の形態3の第3の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置の概略図である。

【0097】

図17は、本発明の実施の形態3に係る長尺状の電解質膜の片側の面に第3の長尺状の保護シートを形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜の側面の断面図である。

40

【0098】

図18は、本発明の実施の形態3に係る図17の状態からさらに、第3の長尺状の保護シートが密着されていない面に第1の触媒層を形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0099】

図19は、本発明の実施の形態3に係る図18の状態からさらに、第1の長尺状の保護シートを形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

50

【0100】

図20は、本発明の実施の形態3に係る図19の状態からさらに、第3の長尺状の保護シートを剥離した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0101】

図21は、本発明の実施の形態3に係る図20の状態からさらに、第1の長尺状の保護シートが密着されていない面に第2の触媒層を形成した構造を有する長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の側面の断面図である。

【0102】

図13(a)に示すように、実施の形態3に係る長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体50は、長尺状の電解質膜51と、長尺状の電解質膜51の両面に形成された第1の触媒層52及び第2の触媒層53と、第1の触媒層52を覆った状態で長尺状の電解質膜51に密着された第1の長尺状の保護シート54と、第2の触媒層53を覆った状態で長尺状の電解質膜51に密着された第2の長尺状の保護シート55と、を備えている。

10

【0103】

また、図13(b)に示すように、実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56は、長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体50をロール状に巻き取ったものである。

【0104】

また、図13(c)に示すように、実施の形態3に係る長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体50は、長尺状の電解質膜51の一部分上に第1の触媒層52が長さ方向に間隔をあけて形成されている。第2の触媒層53は、長尺状の電解質膜51を介して、第1の触媒層52に対応する位置に形成されている。

20

【0105】

また、第1の長尺状の保護シート54及び第2の長尺状の保護シート55は、長尺状の電解質膜51よりも幅が広く、長尺状の電解質膜51の外周部の全部を覆い、長尺状の電解質膜51の外周部において、長尺状の電解質膜51を挟まない部分の長尺状の保護シート同士が密着している。第2の長尺状の保護シート55は、長尺状の電解質膜51を介して、第1の長尺状の保護シート54に対応する位置に形成されている。

【0106】

また、第1の長尺状の保護シート54は、長尺状の電解質膜51と第1の触媒層52とに密着し、第2の長尺状の保護シート55は、長尺状の電解質膜51と第2の触媒層53とに密着している。

30

【0107】

次に、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56の製造方法について説明する。

【0108】

本発明の実施の形態3に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56の製造工程は、ロール状の保護シート付き電解質膜68を製造する第1の工程、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体70を製造する第2の工程、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を製造する第3の工程からなる。

40

【0109】

第1の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜68の製造装置200は、図14に示すように、シート供給装置100と、剥離装置101と、保護シート供給装置102と、貼付装置103と、シート巻取装置104とを備えている。

【0110】

また、第2の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体70の製造装置201は、図15に示すように、シート供給装置105と、バックアップロール106と、タンク107と、ポンプ108と、ダイ109と、乾燥装置110と、保護シート供給装置111と、貼付装置112と、シート巻取装置113とを備えている。

50

【0111】

また、第3の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56の製造装置202は、図16に示すように、シート供給装置114と、剥離装置115と、バックアップロール116と、タンク117と、ポンプ118と、ダイ119と、乾燥装置120と、保護シート供給装置121と、貼付装置122と、シート巻取装置123とを備えている。

【0112】

次に、ロール状の保護シート付き電解質膜68を製造する第1の工程、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体70を製造する第2の工程、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を製造する第3の工程の順に具体的に説明する。

10

【0113】

まず、ロール状の基材付き電解質膜64をシート供給装置100に、ロール状の第3の長尺状の保護シート65を保護シート供給装置102に取り付ける。シート供給装置100から引き出された基材付き電解質膜66は、剥離装置101で基材が剥離される。

【0114】

保護シート供給装置102から引き出された第3の長尺状の保護シート57は、貼付装置103で基材を剥離された長尺状の電解質膜67と密着され、シート巻取装置104に巻き取られる。このようにして、図17に示す長尺状の保護シート付き電解質膜58をロール状にした、ロール状の保護シート付き電解質膜68を作製する。

20

【0115】

次に、白金を担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金を担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第1の触媒層52用の触媒インクを作製する。

【0116】

次に、作製したロール状の保護シート付き電解質膜68をシート供給装置105に、ロール状の第1の長尺状の保護シート69を保護シート供給装置111に取り付ける。

【0117】

シート供給装置105から引き出された長尺状の保護シート付き電解質膜58は、第3の長尺状の保護シート57が密着されていない面に、バックアップロール106上で、タンク107からポンプ108によってダイ109に供給された第1の触媒層52用の触媒インクを塗布された後、乾燥装置110で触媒インク中の分散媒が除去される。

30

【0118】

このようにして、図18に示す長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体59を作製する。

【0119】

次に、保護シート供給装置111から引き出された第1の長尺状の保護シート54は、貼付装置112で、長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体59における、第1の触媒層52が形成された面に密着され、シート巻取装置113に巻き取られる。このようにして、図19に示す長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体60をロール状にした、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体70を作製する。

40

【0120】

次に白金とルテニウムを担持した炭素粉末と、水素イオン伝導性固体高分子電解質と、分散媒を混練することで、白金とルテニウムを担持した炭素粉末が分散媒に均一に分散した第2の触媒層53用の触媒インクを作製する。

【0121】

次に、作製した、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体70をシート供給装置114に、ロール状の第2の長尺状の保護シート71を保護シート供給装置121に取り付ける。

【0122】

シート供給装置114から引き出された長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体

50

60は、剥離装置115で、第3の長尺状の保護シート57が剥離される。このようにして、図20に示す長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体61を作製する。

【0123】

次に、長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体61は、第1の長尺状の保護シート54が密着されていない面に、バックアップロール116上で、タンク117からポンプ118によってダイ119に供給された第2の触媒層53用の触媒インクを塗布された後、乾燥装置120で触媒インク中の分散媒が除去される。このようにして、図21に示す長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体62を作製する。

【0124】

次に、保護シート供給装置121から引き出された第2の長尺状の保護シート55は、貼付装置122で、長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体62における、第2の触媒層53が形成された面に密着され、シート巻取装置123に巻き取られる。このようにして、図13に示すロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を作製する。

10

【0125】

以下、本実施の形態にかかる保護シート付き電解質膜 - 電極接合体について、具体的な実施例に基づき、さらに詳細に説明するが、本発明は、以下で用いた特定の材料等の内容に必ずしも制限されるものではない。

【0126】

(実施例5)

長尺状の電解質膜51はナフィオン115(デュボン(株)製)、第1の触媒層52は白金を担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC10E50E)、第2の触媒層53は白金とルテニウムを担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン5wt%分散液、分散媒はエタノールである。

20

【0127】

第1の長尺状の保護シート54、第2の長尺状の保護シート55及び第3の長尺状の保護シート57は、JIS K7129に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $8\text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24\text{ h})$ 、材質がポリエチレンテレフタレート、厚さ $100\text{ }\mu\text{m}$ のルミラー(東レ(株)製)を使用して、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を作製した。

30

【0128】

作製したロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を、25℃で、ドライ窒素を流したデシケータの中で1ヶ月間保管し、保管後のロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を切り出し、保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

【0129】

(実施例6)

長尺状の電解質膜51はナフィオン115(デュボン(株)製)、第1の触媒層52は白金を担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC10E50E)、第2の触媒層53は白金とルテニウムを担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン5wt%分散液、分散媒はエタノールである。

40

【0130】

第1の長尺状の保護シート54、第2の長尺状の保護シート55及び第3の長尺状の保護シート57は、JIS K7129に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $16\text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24\text{ h})$ 、材質がポリエチレンテレフタレート、厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ のルミラー(東レ(株)製)を使用して、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を作製した。

【0131】

作製したロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を、25℃で、ドライ窒

50

素を流したデシケータの中で1ヶ月間保管し、保管後のロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を切り出し、保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体の寸法変化は、発生しておらず良好な状態であった。

【0132】

(比較例3)

長尺状の電解質膜51はナフィオン115(デュボン(株)製)、第1の触媒層52は白金を担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC10E50E)、第2の触媒層53は白金とルテニウムを担持した炭素粉末(田中貴金属(株)製、品番:TEC66E50)、水素イオン伝導性固体高分子電解質はナフィオン5wt%分散液、分散媒はエタノールである。

10

【0133】

第1の長尺状の保護シート54、第2の長尺状の保護シート55及び第3の長尺状の保護シート57は、JIS K7129に基づいて乾湿センサ法を用いて測定した水蒸気透過度 $70\text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24\text{ h})$ 、材質がナイロン6、厚さ $30\text{ }\mu\text{m}$ のレイファン(東レ(株)製)を使用して、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を作製した。

【0134】

作製したロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を、25で、ドライ窒素を流したデシケータの中で1ヶ月間保管し、保管後のロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56を切り出し、保護シートを剥離したところ、電解質膜 - 電極接合体が収縮し、シワが発生した。

20

【0135】

上記の結果より、本実施の形態に係る長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体において、保護シートの水蒸気透過度を $16\text{ g}/(\text{m}^2 \cdot 24\text{ h})$ 以下とすることで、25で、ドライ窒素を流したデシケータの中で1ヶ月間保管した際の、保護シート剥離時の電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

【0136】

以上のように、本実施の形態においては、両面に触媒層が形成された長尺状の電解質膜 - 電極接合体と、電解質膜 - 電極接合体に密着した状態で電解質膜 - 電極接合体の両面を覆う2枚の長尺状の保護シートと、を備えた、長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体であって、保護シートが、長尺状の電解質膜 - 電極接合体よりも幅が広く、2枚の保護シートの上に電解質膜 - 電極接合体を挟まない部分の保護シート同士が密着し、保護シートの水蒸気透過度が所定値以下である、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体、とすることにより、生産性に優れた保護シート付き電解質膜 - 電極接合体に対して、保管環境と電解質膜との水蒸気成分の移動が一定量以下に制限されることで、特に保管環境における水蒸気成分が極端に多かたり、少なかたりする場合に、電解質膜が水蒸気成分の吸着、脱着を起こすことを抑制し、保護シートを剥離した際に、電解質膜 - 電極接合体にシワを発生させたり、寸法変化を起こすことを抑制することができる。

30

【0137】

なお、電解質膜2の一部分上に、第1の触媒層3及び第2の触媒層4が形成されているが、電解質膜2の全面を覆うように形成されていても良い。

40

【0138】

また、電解質膜22の一部分上に第1の触媒層23及び第2の触媒層24が形成されているが、電解質膜22の全面を覆うように形成されていても良い。

【0139】

また、長尺状の電解質膜51の一部分上に第1の触媒層52及び第2の触媒層53が形成されているが、長尺状の電解質膜51の全面を覆うように形成されていても良い。

【0140】

また、第2の触媒層4は、電解質膜2を介して、第1の触媒層3に対応する位置に形成されているが、第1の触媒層3と第2の触媒層4の大きさが異なっていたり、対応する位

50

置に形成されていなくても良い。

【0141】

また、第2の触媒層24は、電解質膜22を介して、第1の触媒層23に対応する位置に形成されているが、第1の触媒層23と第2の触媒層24の大きさが異なっていたり、対応する位置に形成されていなくても良い。

【0142】

また、第2の触媒層53は、長尺状の電解質膜51を介して、第1の触媒層52に対応する位置に形成されているが、第1の触媒層52と第2の触媒層53の大きさが異なっていたり、対応する位置に形成されていなくても良い。

【0143】

また、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体1は、第1の触媒層3もしくは第2の触媒層4のいずれか一方が形成されていなくても良く、また、第1の触媒層3と第2の触媒層4の両方が、形成されていなくても良い。

【0144】

また、保護シート付き電解質膜 - 電極接合体21は、第1の触媒層23もしくは第2の触媒層24のいずれか一方が形成されていなくても良く、また、第1の触媒層23と第2の触媒層24の両方が、形成されていなくても良い。

【0145】

また、ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体56は、第1の触媒層52もしくは第2の触媒層53のいずれか一方が形成されていなくても良く、また、第1の触媒層52と第2の触媒層53の両方が形成されていなくても良い。

【0146】

また、電解質膜2、及び、電解質膜22、及び、長尺状の電解質膜51として、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる電解質膜を用いたが、フッ素系、炭化水素系など従来から用いられている多種多様な電解質膜を用いることができる。

【0147】

また、第1の触媒層3、及び、第1の触媒層23、及び、第1の触媒層52に白金を担持した炭素粉末を使用し、第2の触媒層4、及び、第2の触媒層24、及び、第2の触媒層53に白金とルテニウムを担持した炭素粉末を使用したが、この他にも、白金や白金化合物を担持した炭素粉末を用いることができる。白金化合物としては、例えば、ルテニウム、パラジウム、ニッケル、モリブデン、イリジウム、鉄等からなる群から選ばれる少なくとも1種の金属と、白金との合金等を用いることができる。

【0148】

また、炭素粉末としては、導電性を有しているものであれば限定的ではなく、公知又は市販のものを広く使用できる。例えば、カーボンブラックや、黒鉛、活性炭等を1種又は2種以上で用いることができる。カーボンブラックの例としては、チャンネルブラック、ファネスブラック、ケッチェンブラック、アセチレンブラック、ランプブラック等を用いることができる。

【0149】

また、水素イオン伝導性固体高分子電解質は、電解質膜2、電解質膜22及び長尺状の電解質膜51に使用されるものと同じ材料を用いることができる。

【0150】

また、第1の保護シート5、第1の保護シート25、第2の保護シート6、第2の保護シート26、第3の保護シート7、第3の保護シート27、第1の長尺状の保護シート54、第2の長尺状の保護シート55、第3の長尺状の保護シート57は、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエーテルイミド、ポリイミド、フッ素樹脂、などのフィルムやアルミニウム、銅、ステンレス等の金属箔を用いることができる。

【0151】

また、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエーテルイミド、ポリイミド、フッ素樹脂、などのフィルムに、アルミニウム、銅等の金属を蒸着した金属蒸着フィ

10

20

30

40

50

ルム等や、アルミニウム、銅等の金属を接着したフィルムを用いることもできる。また、フィルムや金属箔に接着層を積層していても良い。

【0152】

また、第1の触媒層3、第1の触媒層23、第2の触媒層4、第2の触媒層24、第1の触媒層52、及び、第2の触媒層53は、ダイコート塗布法の塗布装置を用いて形成しているが、スクリーン印刷法、スプレー塗布法、ノズル塗布法などの塗布装置を用いても良い。

【0153】

また、接着層33及び接着層34は、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、シリコーン樹脂、ゴムなどを用いることができる。

10

【0154】

また、長尺状の電解質膜51の一部分上に第1の触媒層52及び第2の触媒層53が長さ方向に間隔をあけて形成されているが、この間隔は特に限定されるものではない。

【0155】

また、保護シートの水蒸気透過度の所定値は、保管時の温度、湿度、保管期間や電解質膜の種類や保管期間などによって、適宜、選定すれば良い。また、保護シートを剥離した際のシワの発生や寸法変化を、どこまで許容するかによっても適宜、選定することができる。

【産業上の利用可能性】

【0156】

以上のように、本発明にかかる保護シート付き電解質膜 - 電極接合体は、保管環境における水蒸気成分が多かったり、少なかったりする場合において、保護シート剥離時のシワの発生や寸法変化を、抑制することが可能となり、これを用いた高性能な燃料電池を提供できる。

20

【符号の説明】

【0157】

1、9、10、11、12 保護シート付き電解質膜 - 電極接合体

2 電解質膜

3 第1の触媒層

4 第2の触媒層

5 第1の保護シート

6 第2の保護シート

7 第3の保護シート

8 保護シート付き電解質膜

21、29、30、31、32 保護シート付き電解質膜 - 電極接合体

22 電解質膜

23 第1の触媒層

24 第2の触媒層

25 第1の保護シート

26 第2の保護シート

27 第3の保護シート

28 保護シート付き電解質膜

33、34 接着層

50、59、60、61、62 長尺状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体

51 長尺状の電解質膜

52 第1の触媒層

53 第2の触媒層

54 第1の長尺状の保護シート

55 第2の長尺状の保護シート

56 ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体

30

40

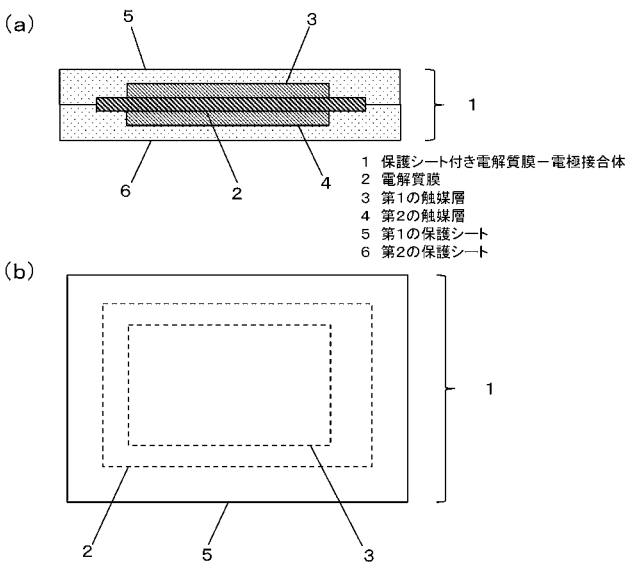
50

- 5 7 第 3 の長尺状の保護シート
- 5 8 長尺状の保護シート付き電解質膜
- 6 4 ロール状の基材付き電解質膜
- 6 5 ロール状の第 3 の長尺状の保護シート
- 6 6 基材付き電解質膜
- 6 7 基材を剥離された長尺状の電解質膜
- 6 8 ロール状の保護シート付き電解質膜
- 6 9 ロール状の第 1 の長尺状の保護シート
- 7 0 ロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体
- 7 1 ロール状の第 2 の長尺状の保護シート
- 1 0 0、1 0 5、1 1 4 シート供給装置
- 1 0 1、1 1 5 剥離装置
- 1 0 2、1 1 1、1 2 1 保護シート供給装置
- 1 0 3、1 1 2、1 2 2 貼付装置
- 1 0 4、1 1 3、1 2 3 シート巻取装置
- 1 0 6、1 1 6 バックアップロール
- 1 0 7、1 1 7 タンク
- 1 0 8、1 1 8 ポンプ
- 1 0 9、1 1 9 ダイ
- 1 1 0、1 2 0 乾燥装置
- 2 0 0 第 1 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜の製造装置
- 2 0 1 第 2 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置
- 2 0 2 第 3 の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜 - 電極接合体の製造装置

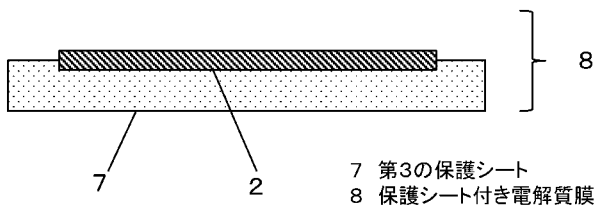
10

20

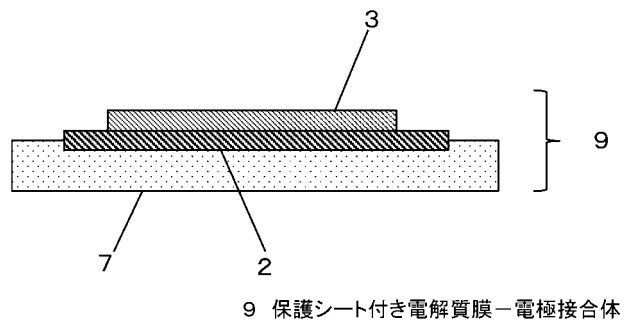
【 図 1 】



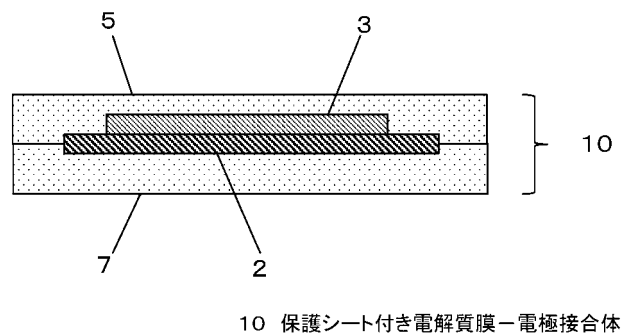
【 図 2 】



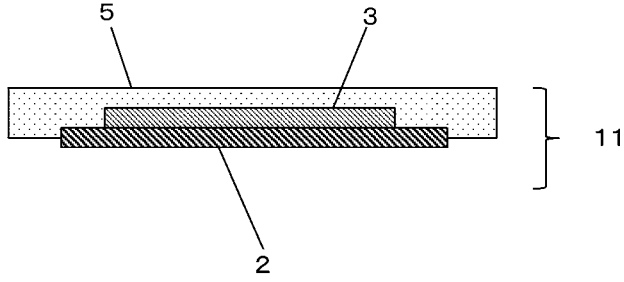
【 図 3 】



【 図 4 】

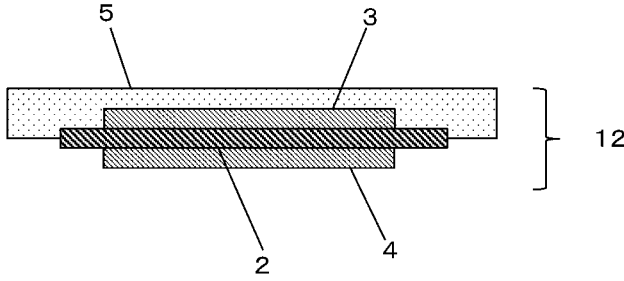


【図5】



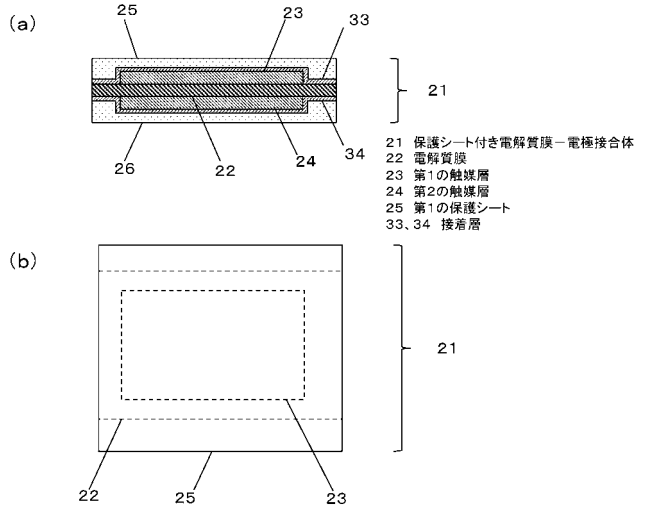
11 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図6】



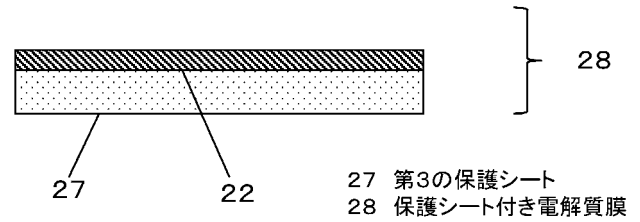
12 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図7】



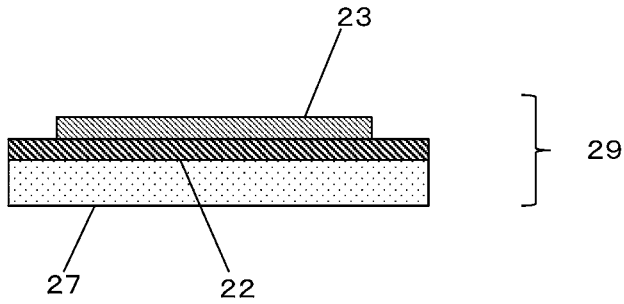
21 保護シート付き電解質膜-電極接合体
 22 電解質膜
 23 第1の触媒層
 24 第2の触媒層
 25 第1の保護シート
 33, 34 接層層

【図8】



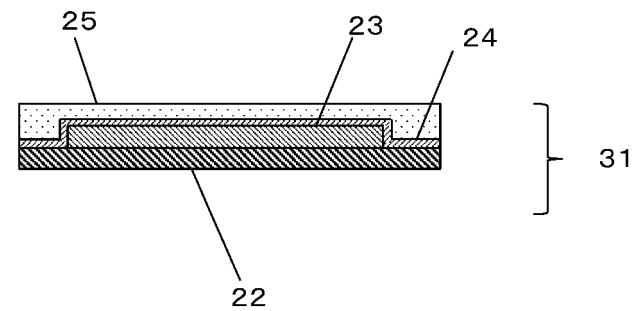
27 第3の保護シート
 28 保護シート付き電解質膜

【図9】



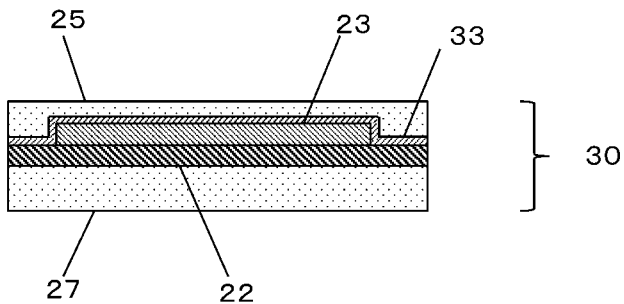
29 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図11】



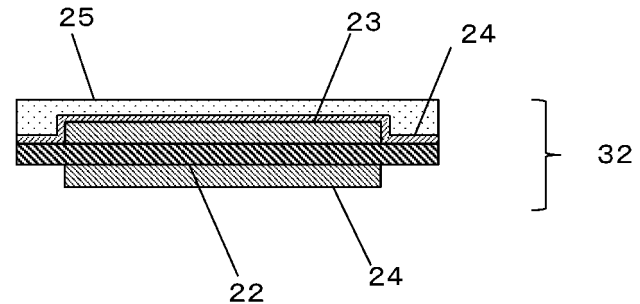
31 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図10】



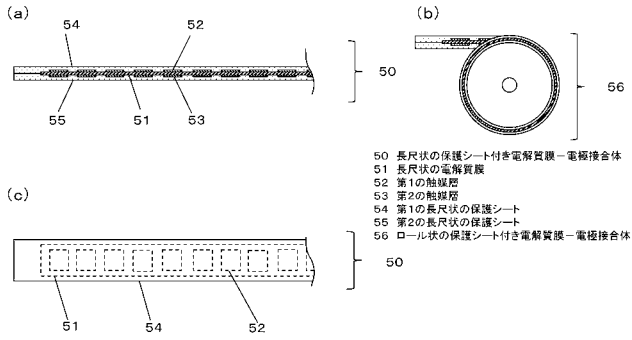
30 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図12】



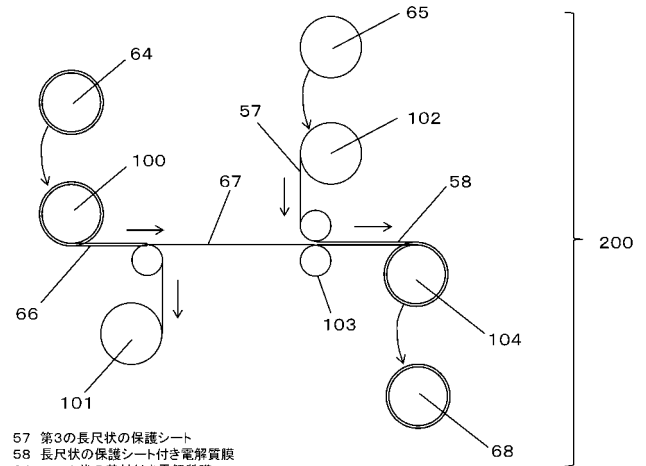
32 保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図13】



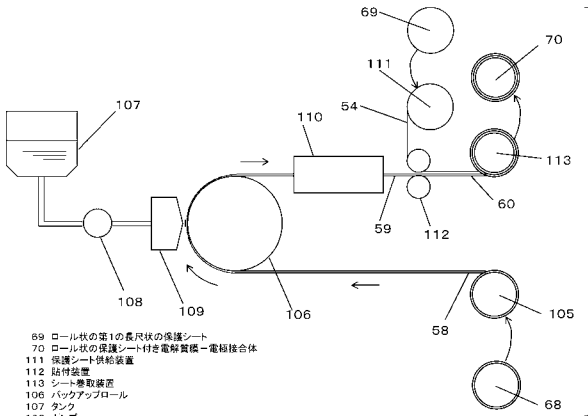
- 50 長尺状の保護シート付き電解質膜-電極接合体
- 51 長尺状の電解質膜
- 52 第1の触媒層
- 53 第2の触媒層
- 54 第1の長尺状の保護シート
- 55 第2の長尺状の保護シート
- 56 ロール状の保護シート付き電解質膜-電極接合体

【図14】



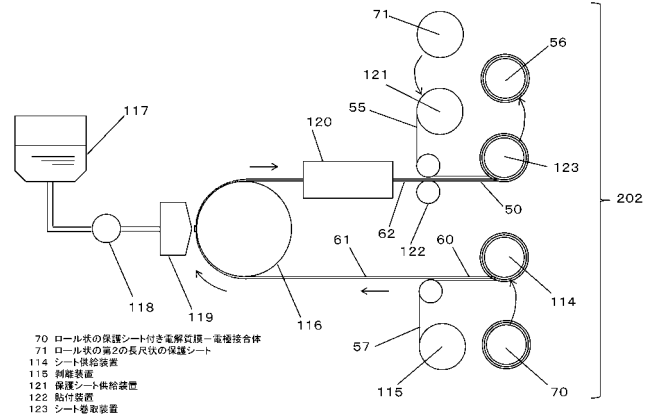
- 57 第3の長尺状の保護シート
- 58 長尺状の保護シート付き電解質膜
- 64 ロール状の基材付き電解質膜
- 65 ロール状の第3の長尺状の保護シート
- 66 基材付き電解質膜
- 67 基材を剥離された長尺状の電解質膜
- 68 ロール状の保護シート付き電解質膜
- 100 シート供給装置
- 101 剥離装置
- 102 保護シート供給装置
- 103 貼付装置
- 104 シート巻取装置
- 200 第1の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜の製造装置

【図15】



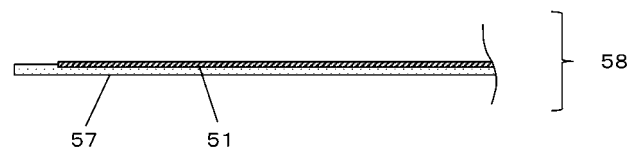
- 69 ロール状の第1の長尺状の保護シート
- 70 ロール状の保護シート付き電解質膜-電極接合体
- 111 保護シート供給装置
- 112 貼付装置
- 113 シート巻取装置
- 114 バックアップロール
- 107 タンク
- 108ポンプ
- 109 ダイ
- 110 乾燥装置
- 201 第2の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜-電極接合体の製造装置

【図16】

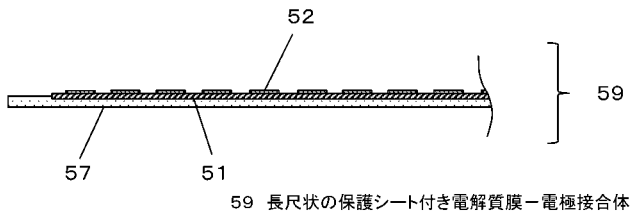


- 70 ロール状の保護シート付き電解質膜-電極接合体
- 71 ロール状の第2の長尺状の保護シート
- 114 シート供給装置
- 115 剥離装置
- 121 保護シート供給装置
- 122 貼付装置
- 123 シート巻取装置
- 116 バックアップロール
- 117 タンク
- 118 ポンプ
- 119 ダイ
- 120 乾燥装置
- 202 第3の工程に係るロール状の保護シート付き電解質膜-電極接合体の製造装置

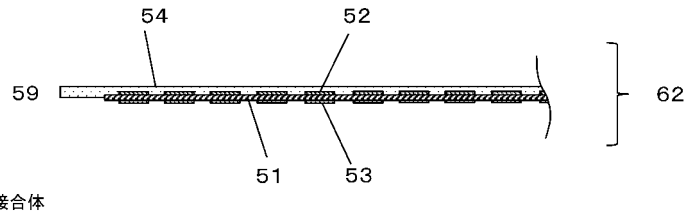
【図17】



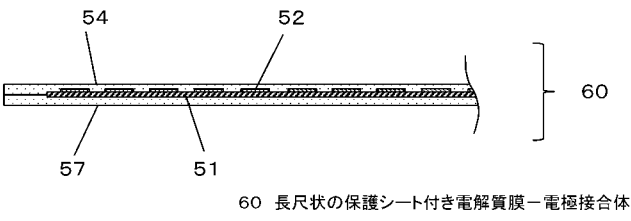
【図18】



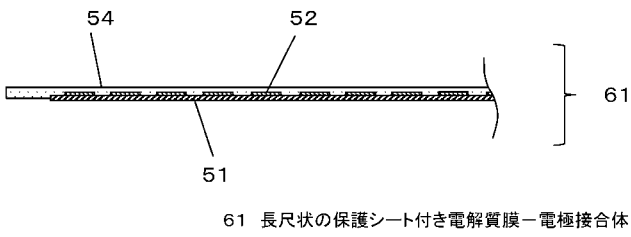
【図21】



【図19】



【図20】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H126 AA02 BB06 FF04 FF05 FF07 JJ00 JJ03