

(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2005-183232

(P2005-183232A)

(43) 公開日 平成17年7月7日(2005.7.7)

(51) Int.Cl.⁷

H O 1 M 4/88

H O 1 M 8/02

// H O 1 M 8/10

F I

H O 1 M 4/88

H O 1 M 8/02

H O 1 M 8/10

テーマコード (参考)

5 H O 1 8

5 H O 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2003-423728 (P2003-423728)

(22) 出願日 平成15年12月19日 (2003.12.19)

(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 100067356

弁理士 下田 容一郎

(74) 代理人 100094020

弁理士 田宮 寛祉

(72) 発明者 沖山 玄

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1

ホンダエンジニアリング株式会社内

(72) 発明者 伊達 知子

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1

ホンダエンジニアリング株式会社内

最終頁に続く

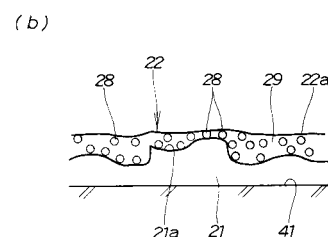
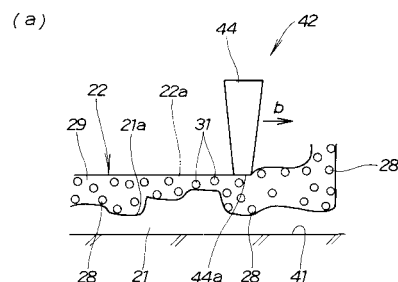
(54) 【発明の名称】 燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 燃料電池用電極 - 膜接合体の発電性能を確保することができる燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法を提供する。

【解決手段】 燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法は、負極側拡散層21に塗布する負極側下地層22を、カーボン28、バインダーおよび溶媒29で構成し、カーボン28とバインダーと溶媒29との質量和を分母とし、カーボン28とバインダーとの質量和を分子として得る値を、負極側下地層22の固形分率と呼び、カーボン28の粒径を0.1~10 μ mとし、負極側下地層22の固形分率を2~20wt%とし、負極側下地層22の粘度を0.05~1Pa $\cdot$ sとし、負極側下地層22を、表面22aをブレード44でならすことで負極側拡散層21に塗布するものである。

【選択図】 図4



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

正・負極の一方側の拡散層に下地層を塗布し、この下地層が未乾燥のうちに、正・負極の一方の電極層を塗布し、この電極層が未乾燥のうちに電解質膜を塗布し、この電解質膜が未乾燥のうちに、正・負極の他方の電極層を塗布し、この電極層が未乾燥のうちに、正・負極の他方側の拡散層に下地層を塗布した二層体を重ね合わせて未乾燥状態の電極 - 膜接合体を得、この未乾燥状態の電極 - 膜接合体を乾燥する燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法であって、

前記正・負極の一方側の拡散層に塗布する下地層を、カーボン粒、バインダーおよび溶媒で構成し、

カーボン粒とバインダーと溶媒との質量和を分母とし、カーボン粒とバインダーとの質量和を分子として得る値を、この下地層の固形分率と呼び、

このカーボン粒の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とし、

この下地層の固形分率を $2 \sim 20 \text{ wt} \%$ とし、

この下地層の粘度を $0.05 \sim 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ とし、

この下地層の表面をブレードでならすことで前記正・負極の一方側の拡散層に塗布することを特徴とする燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法に係り、特に、正・負極側の拡散層、正・負極側の下地層、正・負極側の電極層および電解質膜を積層した燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

図10は従来の燃料電池用電極 - 膜接合体を示す断面図である。

燃料電池用電極 - 膜接合体100は、負極側拡散層101に負極側下地層102を積層し、負極側下地層102に負電極層103を積層し、負電極層103に電解質膜104を積層し、電解質膜104に正電極層105を積層し、正電極層105に正極側下地層106を積層し、正極側下地層106に正極側拡散層107を積層したものである。

【0003】

この燃料電池用電極 - 膜接合体100を製造する際に、一例としてアルコールを用いて燃料電池用電極 - 膜接合体100の接合性を保つ製造方法が知られている（例えば、特許文献1参照。）。

【特許文献1】特開平7 - 130375号公報

【0004】

この公報の技術は、例えば正電極層106のカーボン108...に触媒として白金を担持し、この表面にナフィオン（登録商標：デュポン社）製の膜を形成し、このナフィオン膜の一部をアルコールでゲル状に溶解し、白金を担持したカーボン108...同士の結着性を良好に確保するものである。

【0005】

通常、燃料電池用電極 - 膜接合体100には、負極側拡散層101として多孔質のカーボンペーパーを用い、負極側下地層102としてカーボン108とバインダー（図示せず）とを混合したものを用いる。

このカーボンペーパーは多孔質のシートである。このため、カーボンペーパーの表面に孔が形成され、表面は比較的大きな凹凸状になっている。

【0006】

このため、負極側拡散層101に塗布した負極側下地層102の表面が、比較的大きな凹凸状になり、負極側下地層102に塗布した負電極層103の表面が、比較的大きな凹凸状になる。

10

20

30

40

50

よって、負電極層 103 の表面に塗布する電解質膜 104 の膜厚を均一に確保することは難しい。

次図で、電解質膜 104 の膜厚について詳しく説明する。

【0007】

図 11 は図 10 の 11 部拡大図であり、電解質膜 104 を形成する工程を説明する図である。

まず、負極側拡散層 101 としてのカーボンペーパーの表面 101a に、負極側下地層 102 をスクリーン印刷（図示せず）で塗布する。

ここで、スクリーン印刷とは、網目状のスクリーンをカーボンペーパーの上方に配置し、このスクリーンの表面をスキージで加圧しながら、スキージを負極側拡散層 101 に沿って移動することで、スクリーンの網目から負極側拡散層 101 に負極側下地層 102 を塗布することをいう。

スクリーン印刷の際に、スキージを負極側拡散層 101 に沿って移動するので、負極側下地層 102 を負極側拡散層 101 の表面 101a に倣わせて塗布することになる。

【0008】

負極側拡散層 101 としてカーボンペーパーを用いることで、表面 101 が比較的大きな凹凸状になる。この負極側拡散層 101 の表面 101a に沿って負極側下地層 102 をスクリーン印刷することで、負極側下地層 102 の表面 102a が大きな凹凸状になる。

さらに、スクリーン印刷完了後、スクリーンを負極側下地層 101 の表面 101a から離す際に、スクリーンの網目が負極側下地層 101 の表面 101a に残る。

加えて、負極側下地層 102 は、比較的大粒のカーボン 109...（...は複数を示す）を含んでいる。このため、大粒のカーボン 109...で負極側拡散層 101 の表面 101a を凹凸状にする虞がある。

以上の理由から、負極側下地層 102 の表面 102a はさらに大きな凹凸状になることが考えられる。

【0009】

この負極側下地層 102 の表面 102a に負電極層 103 をスプレー塗工で塗布する。このため、負電極層 103 の表面 103a が負極側下地層 102 の表面 102a と同様に比較的大きな凹凸状になる。

この負電極層 103 の表面 103a に、電解質膜 104 をブレード塗工で塗布する。

【0010】

ここで、ブレード塗工とは、電解質膜 104 を塗布した直後に、塗布した電解質膜 104 の表面 104a に沿って、ブレードを移動することで塗布量を制御することをいう。

よって、電解質膜 104 をブレード塗工で塗布することで、電解質膜 104 の塗布量を好適に調整することが可能になり、加えて電解質膜 104 の表面 104a を平坦にできるという利点がある。

【0011】

しかし、電解質膜 104 をブレード塗工すると、電解質膜 104 の表面 104a をブレードで平坦に形成することになり、負電極層 103 の凸部 103b の箇所で電解質膜 104 の膜厚 t_1 が薄くなる。

このように、電解質膜 104 の膜厚 t_1 が、負電極層 103 の凸部 103b の箇所で薄くなる。電解質膜 104 の膜厚 104a に局部的に膜厚 t_1 の薄い箇所があると、燃料電池用電極 - 膜接合体 100 を発電する際に、燃料電池用電極 - 膜接合体 100 の発電性能を確保することは難しい。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

本発明は、燃料電池用電極 - 膜接合体の発電性能を確保することができる燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

【0013】

請求項1に係る発明は、正・負極の一方側の拡散層に下地層を塗布し、この下地層が未乾燥のうちに、正・負極の一方の電極層を塗布し、この電極層が未乾燥のうちに電解質膜を塗布し、この電解質膜が未乾燥のうちに、正・負極の他方の電極層を塗布し、この電極層が未乾燥のうちに、正・負極の他方側の拡散層に下地層を塗布した二層体を重ね合わせて未乾燥状態の電極・膜接合体を得、この未乾燥状態の電極・膜接合体を乾燥する燃料電池用電極・膜接合体の製造方法であって、前記正・負極の一方側の拡散層に塗布する下地層を、カーボン粒、バインダーおよび溶媒で構成し、カーボン粒とバインダーと溶媒との質量和を分母とし、カーボン粒とバインダーとの質量和を分子として得る値を、この下地層の固形分率と呼び、このカーボン粒の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とし、この下地層の固形分率を $2 \sim 20 \text{wt}\%$ とし、この下地層の粘度を $0.05 \sim 1 \text{Pa} \cdot \text{s}$ とし、この下地層の表面をブレードでならすことで前記正・負極の一方側の拡散層に塗布することを特徴とする。

【0014】

粘度には、パスカル秒 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$)、ポアズ (P)、センチポアズ (cP)、重量キロウラム秒毎平方メートル ($\text{kgf} \cdot \text{s} / \text{m}^2$) などの単位が用いられているが、ここではSI単位のパスカル秒 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$) を使用する。

【0015】

正・負極の一方側の拡散層に下地層を塗布する。この下地層に含むカーボン粒の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とすることでカーボン粒を小径にし、この下地層の固形分率を $2 \sim 20 \text{wt}\%$ とすることで粘度を $0.05 \sim 1 \text{Pa} \cdot \text{s}$ と下げた。

加えて、正・負極の一方側の拡散層に下地層を塗布する際に、この下地層の表面をブレードでならすようにした。

【0016】

このように、カーボン粒を小径にするとともに下地層の粘度を下げ、かつ下地層を塗布する際に下地層の表面をブレードでならすことで、下地層の表面を平坦にする。

この下地層に、正・負極の一方の電極層を塗布し、この電極層に電解質膜を塗布することで、電解質膜を平坦に塗布する。

【0017】

ここで、下地層に含むカーボン粒の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とした理由は以下の通りである。

すなわち、カーボン粒の粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 未満になると、カーボン粒の粒径が小さくなりすぎて、正・負極の一方側の拡散層にカーボン粒が染み込んでしまう。

よって、多孔質の拡散層に目詰まりが生じてしまい、発電の際にガスの拡散性が低下する。

【0018】

加えて、カーボン粒の粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 未満になると、カーボン粒の粒径が小さくなりすぎて、下地層の密度が密になりすぎて、発電の際にガスの拡散性が低下する。

そこで、カーボン粒の粒径を $0.1 \mu\text{m}$ 以上にすることで、拡散層の目詰まりを抑え、かつ下地層の密度をある程度粗に保つようにした。これにより、発電の際にガスの拡散性を好適に保つことができる。

【0019】

一方、カーボン粒の粒径が $10 \mu\text{m}$ を超えると、カーボン粒の粒径が大きくなりすぎて、下地層の表面を平坦することが難しい。

そこで、カーボン粒の粒径を $10 \mu\text{m}$ 以下にすることで、下地層の表面を平坦にするようにした。

【0020】

さらに、下地層の固形分率を $2 \sim 20 \text{wt}\%$ とした理由は以下の通りである。

すなわち、下地層の固形分率が $2 \text{wt}\%$ 未満になると、カーボン粒およびバインダーが少量になり、粘度が下がりすぎる。

10

20

30

40

50

よって、下地層が拡散層に染み込み易くなり、多孔質の拡散層に目詰まりが生じてしまい、ガスの拡散性が低下する。そこで、下地層の固形分率を2wt%以上にする事で、拡散層の目詰まりを抑え、発電の際にガスの拡散性を好適に保つようにした。

【0021】

一方、下地層の固形分率が20wt%を超えると、カーボン粒およびバインダーが多量になり、粘度が上がりすぎる。このため、下地層の表面張力が大きくなりすぎて、下地層の表面を平坦することが難しい。

そこで、下地層の固形分率を20wt%以下にする事で、下地層の表面を平坦にするようにした。

【0022】

10

加えて、下地層の粘度を0.05~1Pa・sとした理由は以下の通りである。

すなわち、下地層の粘度が0.05Pa・s未満になると、下地層の粘度が下がりすぎてしまう。よって、下地層が拡散層に染み込み易くなり、多孔質の拡散層に目詰まりが生じてしまい、発電の際にガスの拡散性が低下する。

そこで、下地層の粘度を0.05Pa・s以上にすることで、拡散層の目詰まりを抑え、ガスの拡散性を好適に保つようにした。

【0023】

一方、下地層の粘度が1Pa・sを超えると、下地層の粘度が上がりすぎる。このため、下地層の表面張力が大きくなりすぎて、下地層の表面を平坦することが難しい。

そこで、下地層の粘度が1Pa・s以下にする事で、下地層の表面を平坦にするようにした。

20

【発明の効果】

【0024】

請求項1に係る発明では、下地層の表面を平坦にする事で、電解質膜の膜厚を均一にして、燃料電池用電極-膜接合体の発電性能を確保することができるという利点がある。

【発明を実施するための最良の形態】

【0025】

本発明を実施するための最良の形態を添付図に基づいて以下に説明する。なお、図面は符号の向きに見るものとする。

図1は本発明に係る燃料電池用電極-膜接合体を備えた燃料電池ユニットを示す分解斜視図である。

30

燃料電池ユニット10は、複数(2個)の燃料電池単体(セル)11, 11で構成したものである。

この燃料電池単体11は、燃料電池用電極-膜接合体12の両側にそれぞれ負極側セパレータ13および正極側セパレータ14を備える。

【0026】

燃料電池用電極-膜接合体12は、負極側拡散層21、負極側下地層22、負電極層23、電解質膜24、正電極層25、正極側下地層26、正極側拡散層27を積層したものである。

負極側拡散層21および正極側拡散層27で燃料電池用電極-膜接合体12の両側を構成する。

40

【0027】

負極側拡散層21に負極側セパレータ13を積層する。負極側セパレータ13の流路溝15を負極側拡散層21で覆い、負極側拡散層21および流路溝15で水素ガス流路17を形成する。

また、正極側拡散層27に正極側セパレータ14を積層する。正極側セパレータ14の流路溝16を正極側拡散層27で覆い、正極側拡散層27および流路溝16で酸素ガス流路18を形成する。

【0028】

燃料電池用電極-膜接合体12は、負極側拡散層21、負極側下地層22、負電極層2

50

3、電解膜質 24、正電極層 25、正極側下地層 26、正極側拡散層 27 を積層したものである。

このように、構成した燃料電池単体 11 を複数個 (図 1 では 2 個のみを示す) 備えることで、燃料電池ユニット 10 を構成する。

なお、燃料電池用電極 - 膜接合体 12 については図 2 で詳しく説明する。

【0029】

燃料電池ユニット 10 によれば、水素ガス流路 17 に水素ガスを供給するとともに、酸素ガス流路 18 に酸素ガスを供給することで、電子 (e^-) を矢印の如く流して電流を発生する。

【0030】

図 2 は本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体を示す説明図である。

燃料電池用電極 - 膜接合体 12 は、負極側拡散層 21 に負極側下地層 22 を積層し、負極側下地層 22 に負電極層 23 を積層し、負電極層 23 に電解質膜 24 を積層し、電解質膜 24 に正電極層 25 を積層し、正電極層 25 に正極側下地層 26 を積層し、正極側下地層 26 に正極側拡散層 27 を積層したものである。

【0031】

負極側拡散層 21 および正極側拡散層 27 は、一例として多孔質のカーボンペーパーに撥水性処理を施したものである。

負極側下地層 22 は、一例として粒状のカーボン (カーボン粒) 28、バインダー (図示せず) および溶媒 29 で構成したものである。

負極側下地層 22 のバインダーとして、例えば熱可塑性フッ素樹脂 (THV) を用い、溶媒 29 として、NMP (N - メチル・2 - ピロリドン)、メチルエチルケトン (MEK) などを用いる。

【0032】

負極側下地層 22 のバインダーとして、熱可塑性フッ素樹脂 (THV) を用いることで、負極側下地層 22 を撥水性に優れた層とする。

なお、負極側下地層 22 のバインダーは、熱可塑性フッ素樹脂 (THV) に限定するものではなく、溶媒 29 は、NMP (N - メチル・2 - ピロリドン)、メチルエチルケトン (MEK) に限定するものではない。

【0033】

正極側下地層 26 は、一例として粒状のカーボン (カーボン粒) 31、バインダー (図示せず) および溶媒 32 で構成したものである。

正極側下地層 26 のバインダーとして、例えばパーフルオロスルホン酸系ポリマーを用い、溶媒 32 として、エタノール、メタノール、1 - プロパノール、2 - プロパノールなどを用いる。

【0034】

正極側下地層 26 のバインダーとして、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを用いることで、正極側下地層 26 を吸水性に優れた層とする。

なお、正極側下地層 26 のバインダーは、パーフルオロスルホン酸系ポリマーに限定するものではなく、溶媒 32 は、エタノール、メタノール、1 - プロパノール、2 - プロパノールに限定するものではない。

【0035】

負電極層 23 は、負極用の溶媒に触媒 (電極粒) を混合し、塗布後に溶媒を乾燥することで固化したものである。負電極層 23 の触媒は、カーボンの表面に触媒として白金 - ルテニウム合金を担持したものである。

正電極層 25 は、正極用の溶媒に触媒 (電極粒) を混合し、塗布後に溶媒を乾燥することで固化したものである。正電極層 25 の触媒は、カーボンの表面に触媒として白金を担持したものである。

【0036】

電解質膜 24 は、炭化水素系固体高分子に溶媒を加えてペースト状にしたものを負電極

10

20

30

40

50

層 2 3 に塗布した後、溶媒を除去するとともに乾燥することで、負電極層 2 3 および正電極層 2 5 と一体に固化したものである。

なお、電解質膜 2 4 は、膜厚 t を略均一に形成したものである。

以下、燃料電池用電極 - 膜接合体 1 2 の製造方法を図 3 ~ 図 9 に基づいて説明する。

【0037】

図 3 (a) , (b) は本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側拡散層に負極側下地層を塗布する例を説明する図である。

(a) において、載置台 4 1 に負極側拡散層 2 1 をセットする。負極側拡散層 2 1 は、多孔質のカーボンペーパーであり、その表面 2 1 a は比較的大きな凹凸状になっている。

【0038】

(b) において、負極側拡散層 2 1 に負極側下地層 2 2 をブレード塗布装置 4 2 でブレード塗工 (blade coating) する。

すなわち、ブレード塗布装置 4 2 の吐出ノズル 4 3 から、負極側拡散層 2 1 に、スラリー状の負極側下地層 2 2 を吐出させながら、吐出ノズル 4 3 を矢印 a の如く移動する。

吐出ノズル 4 3 の後方からブレード 4 4 を矢印 b の如く移動する。

【0039】

ここで、負極側下地層 2 2 に含むカーボン 2 8 の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とすることでカーボン 2 8 を小径にした。

加えて、負極側下地層 2 2 の固形分率を $2 \sim 20 \text{ wt} \%$ とすることで粘度を $0.05 \sim 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ($50 \sim 1000$ センチポアズ (cP)) に下げた。

【0040】

図 4 (a) , (b) は本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側拡散層に負極側下地層を塗布した状態を説明する図である。

(a) において、ブレード 4 4 を矢印 b の如く移動することで、ブレード 4 4 の下辺 4 4 a で負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a をならす。

【0041】

負極側下地層 2 2 に含むカーボン 2 8 の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ と小径にし、負極側下地層 2 2 の固形分率を $2 \sim 20 \text{ wt} \%$ として粘度を $0.05 \sim 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ と下げ、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a をブレード 4 4 の下辺 4 4 a でならす。

これにより、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を、負極側拡散層 2 1 の凹凸状の表面 2 1 a の影響を受けないで平坦にすることができる。

【0042】

ここで、負極側下地層 2 2 の固形分率とは、負極側下地層 2 2 のカーボン 2 8 とバインダー (図示せず) と溶媒 2 9 との質量和を分母とし、カーボン 2 8 とバインダー (図示せず) との質量和を分子として得る値である。

すなわち、負極側下地層 2 2 の固形分率 ($\text{wt} \%$) =

$$\frac{[(\text{カーボン 2 8 の質量}) + (\text{バインダーの質量})]}{[(\text{カーボン 2 8 の質量}) + (\text{バインダーの質量}) + (\text{溶媒 2 9 の質量})]}$$
 の関係が成立する。

【0043】

ここで、負極側下地層 2 2 に含むカーボン 2 8 の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とした理由は以下の通りである。

すなわち、カーボン 2 8 の粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 未満になると、カーボン 2 8 の粒径が小さくなりすぎて、負極側拡散層 2 1 にカーボン 2 8 が染み込んでしまう。

よって、多孔質の負極側拡散層 2 1 に目詰まりが生じてしまい、発電の際にガスの拡散性が低下する。

【0044】

加えて、カーボン 2 8 の粒径が $0.1 \mu\text{m}$ 未満になると、カーボン 2 8 の粒径が小さくなりすぎて、負極側下地層 2 2 の密度が密になりすぎて、発電の際にガスの拡散性が低下する。

そこで、カーボン 2 8 の粒径を $0.1 \mu\text{m}$ 以上にすることで、負極側拡散層 2 1 の目詰

10

20

30

40

50

まりを抑え、かつ負極側下地層 2 2 の密度をある程度粗に保つようにした。

これにより、発電の際にガスの拡散性を好適に保つことができる。

【0045】

一方、カーボン 2 8 の粒径が $10\ \mu\text{m}$ を超えると、カーボン 2 8 の粒径が大きくなりすぎて、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦することが難しい。

そこで、カーボン 2 8 の粒径を $10\ \mu\text{m}$ 以下にすることで、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦にするようにした。

【0046】

さらに、負極側下地層 2 2 の固形分率を 2 ~ 20 wt % とした理由は以下の通りである。

すなわち、負極側下地層 2 2 の固形分率が 2 wt % 未満になると、カーボン 2 8 およびバインダー（図示せず）が少量になり、粘度が下がりすぎる。

よって、負極側下地層 2 2 が負極側拡散層 2 1 に染み込み易くなり、多孔質の負極側拡散層 2 1 に目詰まりが生じてしまい、発電の際にガスの拡散性が低下する。

そこで、負極側下地層 2 2 の固形分率を 2 wt % 以上にすることで、負極側拡散層 2 1 の目詰まりを抑え、発電の際にガスの拡散性を好適に保つようにした。

【0047】

一方、負極側下地層 2 2 の固形分率が 20 wt % を超えると、カーボン 2 8 およびバインダー（図示せず）が多量になり、粘度が上がりすぎる。

このため、負極側下地層 2 2 の表面張力が大きくなりすぎて、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦することが難しい。

そこで、負極側下地層 2 2 の固形分率を 20 wt % 以下にすることで、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦にするようにした。

【0048】

加えて、負極側下地層 2 2 の粘度を $0.05 \sim 1\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ とした理由は以下の通りである。

すなわち、負極側下地層 2 2 の粘度が $0.05\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ 未満になると、負極側下地層 2 2 の粘度が下がりすぎてしまう。

よって、負極側下地層 2 2 が負極側拡散層 2 1 に染み込み易くなり、多孔質の負極側拡散層 2 1 に目詰まりが生じてしまい、発電の際にガスの拡散性が低下する。

そこで、負極側下地層 2 2 の粘度を $0.05\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ 以上にすることで、負極側拡散層 2 1 の目詰まりを抑え、発電の際にガスの拡散性を好適に保つようにした。

【0049】

一方、負極側下地層 2 2 の粘度が $1\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ を超えると、負極側下地層 2 2 の粘度が上がりすぎる。このため、負極側下地層 2 2 の表面張力が大きくなりすぎて、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦することが難しい。

そこで、負極側下地層 2 2 の粘度が $1\ \text{Pa} \cdot \text{s}$ 以下にすることで、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を平坦にするようにした。

【0050】

（b）において、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a をブレード 4 4 の下辺 4 4 a（（a）参照）で平坦にならした後、負極側下地層 2 2 が、負極側拡散層 2 1 の凹凸状の表面 2 1 a に倣って僅かに凹凸状になる。

しかし、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a をブレード 4 4 で平坦にならしてあるので、負極側下地層 2 2 が、負極側拡散層 2 1 の凹凸状の表面 2 1 a に倣っても、負極側下地層 2 2 の表面 2 2 a を略平坦の状態に保つ。

【0051】

図 5（a）、（b）は本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側下地層に負電極層を塗布する例を説明する図である。

（a）において、負極側下地層 2 2 が未乾燥のうちに、負極側下地層 2 2 の上方に、スプレー塗布装置 4 7 の噴射ノズル 4 8 を配置する。

10

20

30

40

50

噴射ノズル４８から、スラリー状の負電極層２３を噴射させながら、噴射ノズル４８を矢印ｃの如く負極側下地層２２の表面２２ａに沿って移動する。

【００５２】

（ｂ）において、噴射ノズル４８（（ａ）参照）から負電極層２３を噴射させて、未乾燥状態の負極側下地層２２の表面２２ａに負電極層２３をスプレー塗布する。

負極側下地層２２の表面２２ａが略平坦なので、負電極層２３の表面２３ａを、負極側下地層２２の表面２２ａと同様に略平坦の状態に保つ。

【００５３】

図６（ａ），（ｂ）は本発明に係る燃料電池用電極・膜接合体の負電極層に電解質膜を塗布する例を説明する図である。

（ａ）において、負電極層２３が未乾燥のうちに、負電極層２３に、ワニス状の電解膜質２４をブレード塗布装置５１でブレード塗工する。

すなわち、ブレード塗布装置５１の吐出ノズル５２から、未乾燥状態の負電極層２３に電解膜質２４を吐出させながら、吐出ノズル５２を矢印ｄの如く移動する。

【００５４】

吐出ノズル５２の後方からブレード５３を矢印ｅの如く移動することで、ブレード５３の下辺５３ａで負電極層２４の表面２４ａをならす。

電解質膜２４をブレード塗工で塗布することで、電解質膜２４の塗布量を好適に調整することが可能になり、加えて電解質膜２４の表面２４ａを平坦にできるという利点がある。

【００５５】

（ｂ）において、負電極層２３の表面２３ａが略平坦の状態に形成されているので、電解質膜２４の表面２４ａを、ブレード５３の下辺５３ａでならした状態、すなわち平坦の状態を保つ。

ここで、負電極層２３の表面２３ａに電解質膜２４の下側の表面２４ｂが接触する。電解質膜２４の下側の表面２４ｂは、負電極層２３の表面２３ａと同様に、略平坦の状態を保つ。

このように、電解質膜２４の下側の表面２４ｂを略平坦に形成するとともに、電解質膜２４の表面２４ａを平坦に形成することで、電解質膜２４の膜厚ｔを略均一にする。

【００５６】

図７（ａ），（ｂ）は本発明に係る燃料電池用電極・膜接合体の電解質膜に正電極層を塗布する例を説明する図である。

（ａ）において、電解質膜２４が未乾燥のうちに、電解質膜２４の上方に、スプレー塗布装置５６の噴射ノズル５７を配置する。

噴射ノズル５７から、スラリー状の正電極層２５を噴射させながら、噴射ノズル５７を矢印ｆの如く電解質膜２４の表面２４ａに沿って移動する。

【００５７】

（ｂ）において、噴射ノズル５７（（ａ）参照）から正電極層２５を噴射させて、未乾燥状態の電解質膜２４に正電極層２５をスプレー塗布する。

電解質膜２４の表面２４ａが平坦なので、正電極層２５の表面２５ａを、電解質膜２４の表面２４ａと同様に平坦の状態に保つ。

【００５８】

図８（ａ），（ｂ）は本発明に係る燃料電池用電極・膜接合体の正電極層に、正極側拡散層に正極側下地層を塗布した二層体を重ね合わせる例を説明する図である。

（ａ）において、正電極層２５が未乾燥のうちに、正極側拡散層２７に正極側下地層２６を塗布した二層体６１を矢印ｇの如くを重ね合わせる。なお、正極側下地層２６も未乾燥状態を保つ。

このように、正電極層２５に二層体６１を重ね合わせることで、未乾燥状態の電極・膜接合体１２を得る。

【００５９】

10

20

30

40

50

ここで、正極側拡散層 2 7 に正極側下地層 2 6 を塗布する方法は任意である。

すなわち、正極側拡散層 2 7 に正極側下地層 2 6 を塗布する方法は、図 3 (b) および図 4 (a) で示す負極側拡散層 2 1 に負極側下地層 2 2 を塗布する方法と同一でなくともよい。

【 0 0 6 0 】

しかしながら、正極側拡散層 2 7 に正極側下地層 2 6 を塗布する方法を、図 3 (b) および図 4 (a) で示す方法と同一にすることも可能である。

すなわち、正極側下地層 2 6 に含むカーボン 3 1 の粒径を $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ と小径にし、正極側下地層 2 6 の固形分率を $2 \sim 20 \text{wt}\%$ として粘度を $0.05 \sim 1 \text{Pa} \cdot \text{s}$ と下げ、この正極側下地層 2 6 を塗布する際に、正極側下地層 2 6 の表面 2 6 a をブレードで

10

ならすことも可能である。
これにより、正極側下地層 2 6 の表面 2 6 a を、正極側拡散層 2 7 の凹凸状の表面 2 7 a の影響を受けないで平坦にすることができる。

【 0 0 6 1 】

(b) において、未乾燥状態の電極 - 膜接合体 1 2 を得た後、未乾燥状態の電極 - 膜接合体 1 2 に荷重 F をかけた状態でヒータ 6 3 で矢印 h の如く加熱する。

未乾燥状態の電極 - 膜接合体 1 2 をヒータ 6 3 で加熱することで、未乾燥状態の電極 - 膜接合体 1 2 から溶媒を矢印 i の如く蒸発させて、未乾燥状態の電極 - 膜接合体 1 2 を乾燥する。

【 0 0 6 2 】

20

図 9 は図 8 (b) の 9 部拡大図を示す図である。

電極 - 膜接合体 1 2 を乾燥して電極 - 膜接合体 1 2 から溶媒 (図示せず) を除去した後において、電極 - 膜接合体 1 2 を乾燥する前の状態と同様に、電解質膜 2 4 の下側の表面 2 4 b を略平坦に保つとともに、電解質膜 2 4 の表面 2 4 a を平坦に保つ。

このため、電解質膜 2 4 の膜厚を、乾燥前の膜厚 t と同様あるいは、乾燥前の膜厚 t より僅かに薄くなった状態で、略均一に保つことが可能である。

これにより、燃料電池用電極 - 膜接合体 1 2 の発電性能を確保することができる。

【 0 0 6 3 】

なお、前記実施の形態では、燃料電池用電極 - 膜接合体 1 2 を、負極側拡散層 2 1、負極側下地層 2 2、負電極層 2 3、電解質膜 2 4、正電極層 2 5、正極側下地層 2 6、正極側拡散層 2 7 の順に積層したものを例に説明したが、これに限らないで、燃料電池用電極 - 膜接合体 1 2 を、正極側拡散層 2 7、正極側下地層 2 6、正電極層 2 5、電解質膜 2 4、負電極層 2 3、負極側下地層 2 2、負極側拡散層 2 1 の順に積層することも可能である。

30

【 0 0 6 4 】

また、前記実施の形態では、ブレード塗布装置 4 2 を移動して負極側下地層 2 2 を塗布し、ブレード塗布装置 5 1 を移動して電解質膜 2 4 を塗布する例について説明したが、これに限らないで、ブレード塗布装置 4 2、5 1 を固定し、被塗布層側を移動して、負極側下地層 2 2 や電解質膜 2 4 を塗布することも可能である。

【 0 0 6 5 】

40

さらに、前記実施の形態では、スプレー塗布装置 4 7、5 6 などの噴射ノズル 4 8、5 7 などを移動して、負電極層 2 3 や正電極層 2 5 などを塗布する例について説明したが、これに限らないで、スプレー塗布装置 4 7、5 6 などを固定し、被塗布層側を移動して、負電極層 2 3 や正電極層 2 5 などを塗布することも可能である。

【 0 0 6 6 】

また、前記実施の形態では、電解質膜 2 4 をブレード塗布装置 5 1 を用いて塗布した例について説明したが、これに限らないで、スプレー塗布装置を用いて電解質膜 2 4 を塗布することも可能である。

【 産業上の利用可能性 】

【 0 0 6 7 】

50

本発明は、正・負極側の拡散層、正・負極側の下地層、正・負極側の電極層および電解質膜を積層した燃料電池用電極 - 膜接合体の製造方法に好適である。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 6 8 】

【図 1】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体を備えた燃料電池ユニットを示す分解斜視図である。

【図 2】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体を示す説明図である。

【図 3】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側拡散層に負極側下地層を塗布する例を説明する図である。

【図 4】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側拡散層に負極側下地層を塗布した状態を説明する図である。 10

【図 5】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負極側下地層に負電極層を塗布する例を説明する図である。

【図 6】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の負電極層に電解質膜を塗布する例を説明する図である。

【図 7】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の電解質膜に正電極層を塗布する例を説明する図である。

【図 8】本発明に係る燃料電池用電極 - 膜接合体の正電極層に、正極側拡散層に正極側下地層を塗布した二層体を重ね合わせる例を説明する図である。

【図 9】図 8 (b) の 9 部拡大図を示す図である。 20

【図 10】従来の燃料電池用電極 - 膜接合体を示す断面図である。

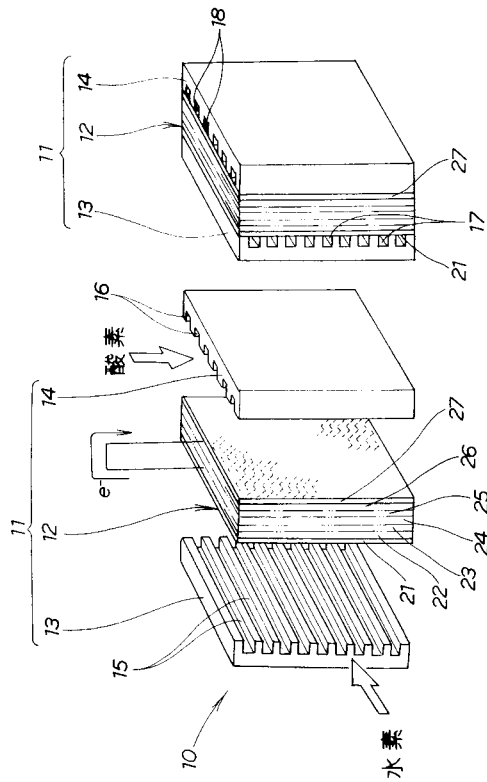
【図 11】図 10 の 11 部拡大図である。

【符号の説明】

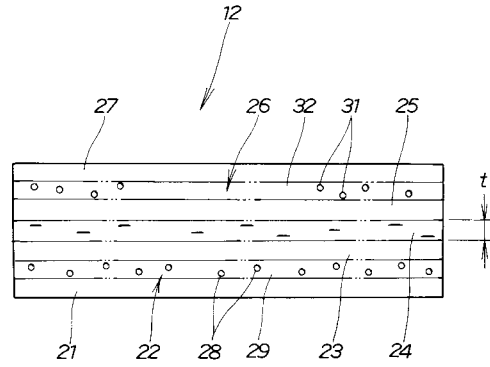
【 0 0 6 9 】

1 0 ... 燃料電池ユニット、 1 2 ... 燃料電池用電極 - 膜接合体、 2 1 ... 負極側拡散層、 2 2 ... 負極側下地層、 2 3 ... 負電極層、 2 4 ... 電解質膜、 2 5 ... 正電極層、 2 6 ... 正極側下地層、 2 7 ... 正極側拡散層、 2 8 , 3 1 ... カーボン (カーボン粒) 、 2 9 , 3 2 ... 溶媒。

【図 1】

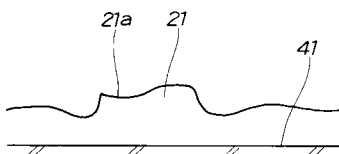


【図 2】

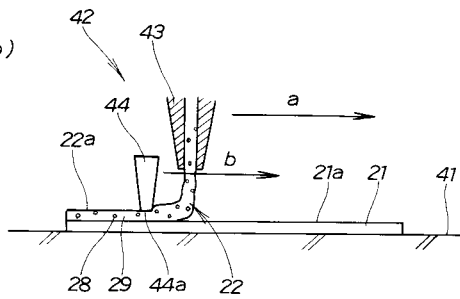


【図 3】

(a)

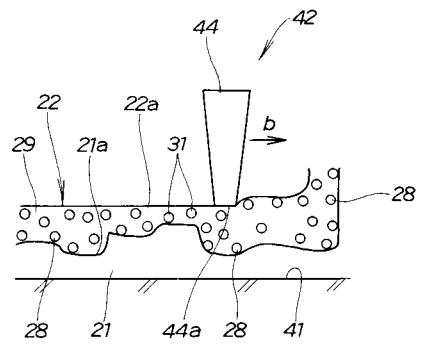


(b)

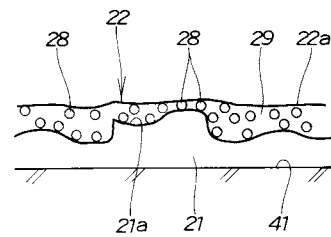


【図 4】

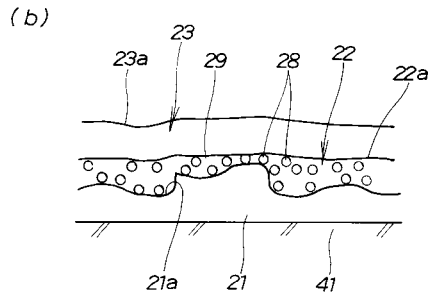
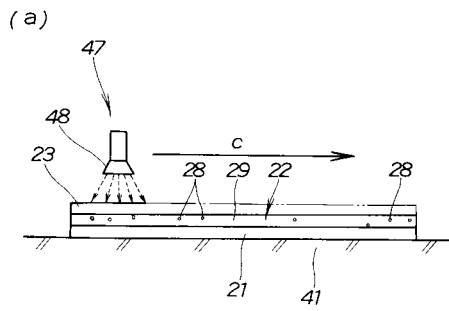
(a)



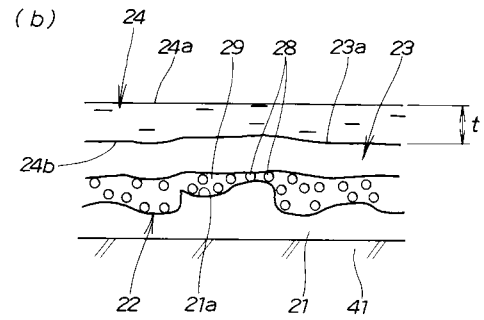
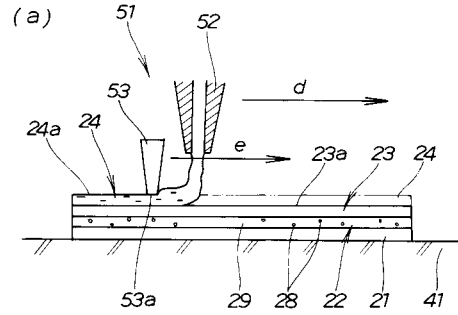
(b)



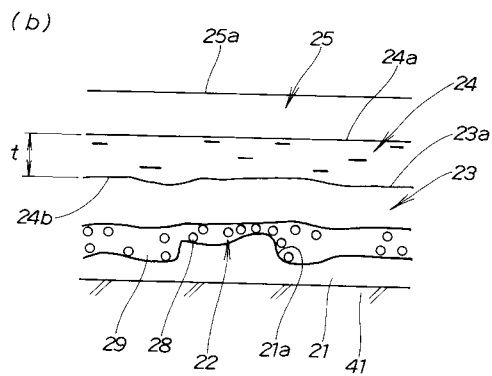
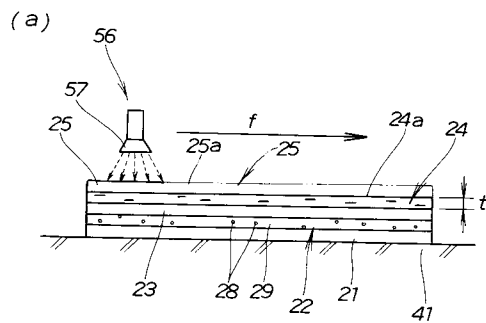
【図 5】



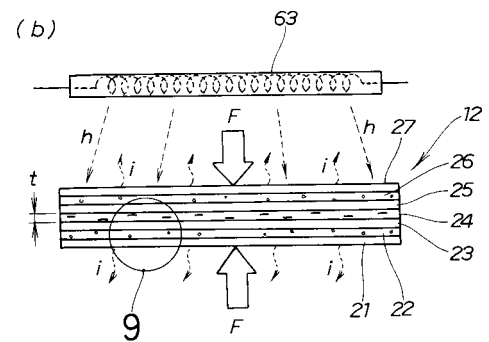
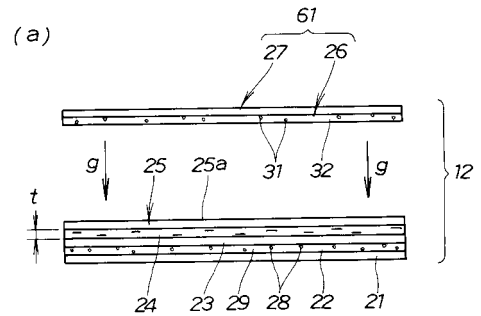
【図 6】



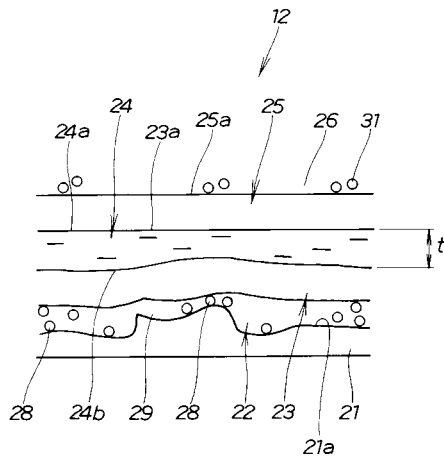
【図 7】



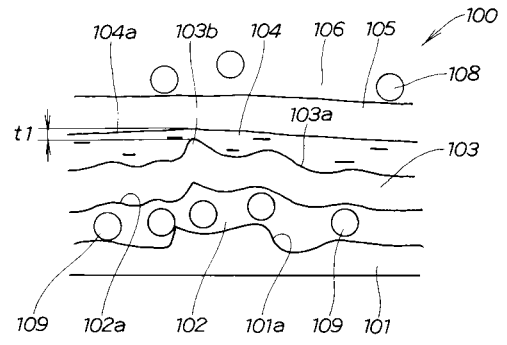
【図 8】



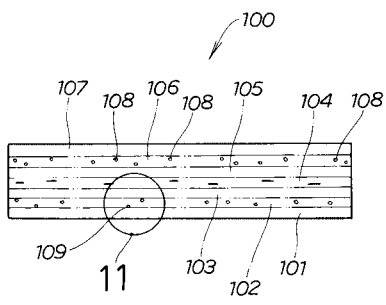
【図 9】



【図 11】



【図 10】



フロントページの続き

(72)発明者 中尾 靖宏

埼玉県狭山市新狭山 1 丁目 1 0 番地 1 ホンダエンジニアリング株式会社内

(72)発明者 角谷 修

埼玉県狭山市新狭山 1 丁目 1 0 番地 1 ホンダエンジニアリング株式会社内

F ターム(参考) 5H018 AA06 AS02 AS03 BB06 BB08 CC06 EE05 EE18 HH00 HH01
HH05

5H026 AA06 BB03 BB04 CC03 EE05 EE19 HH00 HH01 HH05