(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2012-182153
(P2012-182153A)
(43)公開日　平成24年9月20日(2012.9.20)

(51)Int.Cl.			F I			テーマコード（参考）
H01M	***4/86***	***(2006.01)***	H01M	4/86	B	5H018
H01M	***4/88***	***(2006.01)***	H01M	4/88	K	5H026
H01M	*8/10*	*(2006.01)*	H01M	8/10		

審査請求 有　請求項の数 6　ＯＬ　（全 11 頁）

(21)出願番号　特願2012-140439 (P2012-140439)
(22)出願日　平成24年6月22日 (2012.6.22)
(62)分割の表示　特願2006-258679 (P2006-258679)の分割
原出願日　平成18年9月25日 (2006.9.25)

(71)出願人　000002897
大日本印刷株式会社
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号
(74)代理人　110000796
特許業務法人三枝国際特許事務所
(72)発明者　長田　美和
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号
大日本印刷株式会社内
(72)発明者　弘光　礼
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号
大日本印刷株式会社内

Ｆターム(参考)　5H018 AA06　BB06　BB08　EE16　EE18
HH05
5H026 AA06

(54)【発明の名称】触媒層形成用ペースト組成物及び触媒層－電解質膜積層体

(57)【要約】
【課題】本発明は、触媒の分散性が良好で、発火の危険性を低くした触媒層形成用ペースト組成物を提供することを課題とする。
【解決手段】本発明の触媒層形成用ペースト組成物は、（１）触媒担持炭素粒子の水分散液に（２）水素イオン伝導性高分子電解質、（３）ｔ－ブタノール及び（４）１－ブタノールを配合した触媒層形成用ペースト組成物であって、ペーストの固形分濃度が９～２０重量％であり、ｔ－ブタノール１重量部に対して１－ブタノールが２．５～９重量部の割合で含有されている。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
（１）触媒担持炭素粒子の水分散液に（２）水素イオン伝導性高分子電解質、（３）ｔ－ブタノール及び（４）１－ブタノールを配合した触媒層形成用ペースト組成物であって、
ペーストの固形分濃度が９～２０重量％であり、ｔ－ブタノール１重量部に対して１－ブタノールが２．５～９重量部の割合で含有されている、
触媒層形成用ペースト組成物。
【請求項２】
水１重量部に対して、ｔ－ブタノール及び１－ブタノールが合計量で１．２５～２．５重量部含有されている、請求項１に記載のペースト組成物。
【請求項３】
ｔ－ブタノール１重量部に対して、１－ブタノールが３重量部以上の割合で含有されている、請求項１又は２に記載のペースト組成物。
【請求項４】
基材の少なくとも一方面上に、請求項１～３のいずれかに記載のペースト組成物を塗布し、乾燥することにより触媒層を形成させてなる触媒層－電解質膜積層体製造用転写シート。
【請求項５】
請求項４に記載の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートを用いて作成した触媒層－電解質膜積層体。
【請求項６】
電解質膜の少なくとも一方面上に、請求項１～３のいずれかに記載のペースト組成物を塗布し、乾燥することにより触媒層を形成させてなる触媒層－電解質膜積層体。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、触媒層形成用ペースト組成物及び触媒層－電解質膜積層体に関する。
【背景技術】
【０００２】
燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層を配置し、水素と酸素の電気化学反応により発電するシステムであり、発電時に発生するのは水のみである。燃料電池は従来の内燃機関と異なり、二酸化炭素など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注目されている。
【０００３】
固体高分子形燃料電池は、電解質膜層として水素イオン伝導性高分子電解質膜を用い、その両面に触媒層を配置し、次いでその両面に電極基材を配置し、更にこれをセパレータで挟んだ構造をしている。電解質膜層の両面に触媒層を配置し、次いでその両面に電極基材を配置したもの（即ち、電極基材／触媒層／電解質膜／触媒層／電極基材の層構成のもの）は、電極－電解質膜接合体と称されている。
【０００４】
従来、電極－電解質膜接合体の製造方法としては、（１）片面に印刷法又はスプレー法を適用して触媒層を形成した２個の電極基材を用い、該電極基材の触媒層面が電解質膜の両面に接するように配置し、熱プレスする方法（例えば、特許文献１、特許文献２等）、（２）電解質膜の両面に印刷法又はスプレー法を適用して触媒層を形成し、各々の触媒層面に電極基材が接するように配置し、熱プレスする方法（例えば、特許文献３等）等が知られている。
【０００５】
上記各種の方法で使用される触媒層形成用ペースト組成物は、いずれも触媒を担持した炭素粒子及び水素イオン伝導性電解質を低級脂肪族アルコールに溶解ないし分散させたも

のである。
【０００６】
しかしながら、斯かる触媒層形成用ペースト組成物は、触媒と低級脂肪族アルコールとが直接接触し、触媒の活性により発火する危険性を有している。そのためペースト組成物を調製する際、予め触媒を水に溶解ないし分散させておき、これに低級脂肪族アルコールを配合することで、触媒と低級脂肪族アルコールとが直接接触することを防止する措置が講じられている。しかるに、このような措置を講じた場合には、発火の危険性をある程度抑えることができるが、発火の危険性をゼロにすることはできない。
【０００７】
上記アルコールに対する水の含有割合を多くすることにより、発火の危険性をより一層低くすることができる。しかし、水の含有量が多くなると、逆にペースト組成物調製の際に触媒の分散性が悪くなり、その結果、該ペースト組成物を用いて形成される触媒層の性能が低下するのが避けられなくなる。
【０００８】
触媒の分散性が良好で、発火の危険性を低くしたペースト組成物として、(1)ｔ－ブタノール、(2)１－ブタノール、(3)水及び(4)触媒担持カーボン粉末を含有する触媒層形成用ペースト組成物であって、ｔ－ブタノール１重量部に対して、１－ブタノールが０．５～２重量部程度の範囲で含有されているペースト組成物が提案されている（特許文献４）。この触媒層形成用ペースト組成物は、従来の上記欠点を大幅に解消したものである。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００９】
【特許文献１】特公昭６２－６１１１８号公報（第１～２頁）
【特許文献２】特公昭６２－６１１１９号公報（第１～２頁）
【特許文献３】特公平２－４８６３２号公報（特許請求の範囲）
【特許文献４】特開２００６－７３３１３号公報（特許請求の範囲）
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【００１０】
本発明は、触媒の分散性が良好で、発火の危険性を低くしたペースト組成物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】
【００１１】
本発明者は、特許文献４に記載されているペースト組成物に着目し、触媒の分散性が良好で、発火の危険性を低減した新規ペースト組成物を開発すべく鋭意研究を重ねてきた。本発明者は、その研究過程で、特許文献４のペースト組成物について、ｔ－ブタノールに対する１－ブタノールの配合比を高くすると、触媒の凝集及び触媒層形成後のクラックの発生を大幅に低減でき、触媒層の膜質が向上するが、その一方において、ｔ－ブタノール１重量部に対して１－ブタノールが２重量部以上になると、触媒層にピンホールが発生する問題を再確認した。本発明者は、斯かるペースト組成物について更に検討を重ねるうち、ペーストの固形分濃度が特定の範囲内にある場合において、１－ブタノールの配合量を多くしても、ピンホールが発生せず、良好な触媒層を形成できる所望のペースト組成物が得られることを見い出した。本発明は、このような知見に基づき完成されたものである。
【００１２】
本発明は、項１～６に係る触媒層形成用ペースト組成物、触媒層－電解質膜積層体製造用転写シート及び触媒層－電解質膜積層体を提供する。
項１．（１）触媒担持炭素粒子の水分散液に（２）水素イオン伝導性高分子電解質、（３）ｔ－ブタノール及び（４）１－ブタノールを配合した触媒層形成用ペースト組成物であって、
ペーストの固形分濃度が９～２０重量％であり、ｔ－ブタノール１重量部に対して１－

ブタノールが２．５～９重量部の割合で含有されている、
触媒層形成用ペースト組成物。
項２．水１重量部に対して、ｔ－ブタノール及び１－ブタノールが合計量で１．２５～２．５重量部含有されている、項１に記載のペースト組成物。
項３．ｔ－ブタノール１重量部に対して、１－ブタノールが３重量部以上の割合で含有されている、項１又は２に記載のペースト組成物。
項４．基材の少なくとも一方面上に、項１～３のいずれかに記載のペースト組成物を塗布し、乾燥することにより触媒層を形成させてなる触媒層－電解質膜積層体製造用転写シート。
項５．項４に記載の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートを用いて作成した触媒層－電解質膜積層体。
項６．電解質膜の少なくとも一方面上に、項１～３のいずれかに記載のペースト組成物を塗布し、乾燥することにより触媒層を形成させてなる触媒層－電解質膜積層体。

【００１３】

触媒層形成用ペースト組成物

本発明の触媒層形成用ペースト組成物は、（１）触媒担持炭素粒子の水分散液に（２）水素イオン伝導性高分子電解質、（３）ｔ－ブタノール及び（４）１－ブタノールを配合した触媒層形成用ペースト組成物である。

【００１４】

本発明の触媒層形成用ペースト組成物は、ペーストの固形分濃度が９～２０重量％であり、ｔ－ブタノール１重量部に対して１－ブタノールが２．５～９重量部の割合で含有されている。

【００１５】

（１）の触媒担持炭素粒子は、公知である。

【００１６】

触媒としては、例えば白金、白金化合物等が挙げられる。白金化合物としては、例えば、白金と、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種の金属との合金等が挙げられる。

【００１７】

触媒担持炭素粒子の水分散液は、触媒担持炭素粒子を水に分散させることにより得られる。触媒担持炭素粒子を水に分散させるに当たっては、公知の方法を広く用いることができる。

【００１８】

本発明においては、予め、触媒担持炭素粒子を水に分散させておくことが必須である。これによって、触媒の発火が実質的に起こらないようにすることができる。

【００１９】

（２）の水素イオン伝導性高分子電解質は、公知である。

【００２０】

水素イオン伝導性高分子電解質としては、例えば、パーフルオロスルホン酸系のフッ素イオン交換樹脂等、炭化水素系のイオン交換樹脂等が挙げられる。

【００２１】

パーフルオロスルホン酸系のフッ素イオン交換樹脂の具体例としては、例えば、テトラフルオロエチレンに基づく重合単位と、スルホン酸基（－SO_3H）及びカルボン酸基（－ＣＯＯＨ）からなる群より選ばれた少なくとも１種の官能基を有するパーフルオロビニルエーテルに基づく重合単位とを含む共重合体等を例示することができる。

【００２２】

通常、（２）の水素イオン伝導性電解質は、電解質を５～３０重量％程度含むアルコール水溶液として使用されることが公知である。

【００２３】

（１）触媒担持炭素水分散液と（２）水素イオン伝導性高分子電解質の固形分濃度は、

９～２０重量％、好ましくは１０～１３重量％である。固形分濃度が上記範囲より低くなると、ペースト粘度が低くなり、乾燥過程のインキの流動性が高くなるため、固形分が凝集したり、基材上のインキはじきが原因となってピンホールが発生するのが避けられなくなる。固形分濃度が上記範囲より高くなると、ペーストの伸びが悪いために塗工面の平滑性が悪くなり、顕著なクラック及び欠落が生ずる。

【００２４】

上記（１）成分中の固形分（触媒担持炭素）と（２）成分中の固形分（水素イオン伝導性高分子電解質）との配合割合は、前者１００重量部に対して、後者が２０～２００重量部程度、好ましくは３０～９０重量部程度であるのが好ましい。水素イオン伝導性高分子電解質の割合が上記範囲より多くなると、触媒層の抵抗が増大して高出力が得られない、フラッディングが増大する等の問題が生ずる傾向になり、逆に、触媒担持炭素の割合が上記範囲より多くなると、炭素同士の結着性が低くなり触媒層の強度が低下する、十分なプロトン伝導性が得られない等の問題が生ずる傾向になる。

【００２５】

（３）のｔ－ブタノール１重量部に対して、（４）の１－ブタノールは２．５～９重量部の割合で含有されている。（３）のｔ－ブタノール１重量部に対して、（４）の１－ブタノールは３～９重量部の割合で含有されているのが好ましい。１－ブタノールの含有量が上記範囲より少なくなると、ペースト固形分量が上記範囲内であっても固形分が凝集し、触媒の分散性が低下する。逆に、１－ブタノールの含有量が上記範囲より多くなると、クラックが生じる。

【００２６】

本発明の触媒層形成用ペースト組成物には、上記（１）～（４）成分の他に、本発明の効果を損なわない範囲内でアルコール系溶剤、その他の添加剤を配合することができる。

【００２７】

アルコール系溶剤としては、公知のアルコールを広く使用できる。このようなアルコールとしては、例えば、沸点１５０℃以下のアルコール、より具体的には、１－プロパノール、２－プロパノール、２－ブタノール、プロピレングリコール・エチレングリコール等の多価アルコールが挙げられる。これらアルコール系溶剤は、１種単独で又は２種以上混合して使用される。

【００２８】

その他の添加剤としては、例えば、フッ化カーボン、カーボンナノチューブ、カーボンナノワイヤー、触媒未担持のカーボンブラック等が挙げられる。

【００２９】

（１）～（４）成分の混合順序は、特に制限されない。例えば、（１）成分、（２）成分、（３）成分及び（４）成分を順次又は同時に混合し、分散させることにより、本発明ペースト組成物を調製できる。混合には、公知の混合手段を広く適用できる。

【００３０】

触媒層－電解質膜積層体製造用転写シート

本発明の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートは、基材上に上記ペースト組成物を塗布し、乾燥することにより触媒層を形成したものである。

【００３１】

触媒層は、基材の一方面に形成されていてもよく、又は基材の両面に形成されていてもよい。

【００３２】

また、本発明の転写シートは、基材の一方面又は両面に、複数個の触媒層、好ましくは同一形状の複数個の触媒層が一定間隔で形成されていてもよい。

【００３３】

本発明の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートの一例を図１に示す。図１は、本発明の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートの断面図である。

【００３４】

基材としては、例えば、ポリイミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリパルバン酸アラミド、ポリアミド（ナイロン）、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテル・エーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリアリレート、ポリエチレンナフタレート等の高分子フィルムを挙げることができる。

【００３５】

また、エチレンテトラフルオロエチレン共重合体（ＥＴＦＥ）、テトラフルオロエチレン－ヘキサフルオロプロピレン共重合体（ＦＥＰ）、テトラフルオロパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（ＰＦＡ）、ポリテトラフルオロエチレン（ＰＴＦＥ）等の耐熱性フッ素樹脂を用いることもできる。

【００３６】

更に、基材は、高分子フィルム以外に、アート紙、コート紙、軽量コート紙等の塗工紙、ノート用紙、コピー用紙等の非塗工紙等の紙であってもよい。また、基材は、カーボンクロス、カーボンペーパー等の炭素繊維からなるシートであってもよい。

【００３７】

基材の厚さは、取り扱い性及び経済性の観点から、通常６～１００μｍ程度、好ましくは１０～５０μｍ程度、より好ましくは１５～３０μｍ程度とするのがよい。

【００３８】

従って、基材としては、安価で入手が容易な高分子フィルムが好ましく、ポリエチレンテレフタレート等がより好ましい。

【００３９】

本発明の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートは、基材の少なくとも一方面上に、本発明ペースト組成物からなる塗膜を形成することにより製造される。

【００４０】

基材の少なくとも一方面上に、本発明ペースト組成物からなる塗膜を形成させるに当たっては、形成される塗膜が所望の層厚になるように、本発明ペースト組成物を公知の方法に従い基材上に塗布するのがよい。

【００４１】

本発明ペースト組成物の塗布方法としては、特に限定されるものではなく、例えば、ナイフコーター、バーコーター、ブレードコーター、スプレー、ディップコーター、スピンコーター、ロールコーター、ダイコーター、カーテンコーター、スクリーン印刷等の一般的な方法を適用できる。

【００４２】

本発明ペースト組成物を塗布した後、乾燥することにより、塗膜が形成される。乾燥温度は、通常４０～１２０℃程度、好ましくは７５～９５℃程度である。乾燥時間は、乾燥温度にもよるが、通常５分～２時間程度、好ましくは３０分～１時間程度である。

【００４３】

塗膜の膜厚は、通常１０～５０μｍ程度、好ましくは１５～３０μｍ程度がよい。

【００４４】

触媒層－電解質膜積層体

本発明の触媒層－電解質膜積層体の一例を図２に示す。図２は、本発明の触媒層－電解質膜積層体の断面図である。

【００４５】

触媒層－電解質膜積層体は、電解質膜の両面に、触媒層が形成されている。触媒層－電解質膜積層体は、電解質膜の両面の各々に、複数個の触媒層（好ましくは同一形状の複数個の触媒層）が一定間隔で形成されていてもよい。

【００４６】

電解質膜は、公知のものである。電解質膜の膜厚は、通常２０～２５０μｍ程度、好ましくは２０～８０μｍ程度である。電解質膜の具体例としては、デュポン社製の「Ｎａｆｉｏｎ」膜、旭硝子（株）製の「Ｆｌｅｍｉｏｎ」膜、旭化成（株）製の「Ａｃｉｐｌｅｘ」膜等が挙げられる。

【００４７】
本発明の触媒層－電解質膜積層体は、例えば本発明転写シートの触媒層面が電解質膜面に対面するように転写シートを配置し、加圧した後、該転写シートの基材を触媒層面から剥離することにより製造される。この操作を２回繰り返すことにより、触媒層面が電解質膜の両面に積層された触媒層－電解質膜積層体が製造される。
【００４８】
作業性を考慮すると、触媒層面を電解質膜の両面に同時に積層するのがよい。この場合には、例えば、本発明転写シートの触媒層面が電解質膜の両面に対面するように転写シートを配置し、加圧した後、該転写シートの基材を剥離すればよい。
【００４９】
加圧レベルは、転写不良を避けるために、通常０．５～２０Ｍｐａ程度、好ましくは１～１０Ｍｐａ程度がよい。また、この加圧操作の際に、転写不良を避けるために、加圧面を加熱するのが好ましい。加熱温度は、電解質膜の破損、変性等を避けるために、通常２００℃以下、好ましくは１２０～１５０℃程度がよい。
【００５０】
また、本発明の触媒層－電解質膜積層体は、電解質膜の少なくとも一方面上に、触媒層形成用ペースト組成物を塗布し、乾燥することにより製造することができる。塗布及び乾燥条件は、上記と同じでよい。
【００５１】
電極－電解質膜接合体
電極－電解質膜接合体は、上記で製造された触媒層－電解質膜積層体の両面に電極基材を配置し、加圧することにより製造される。
【００５２】
電極基材は、公知であり、燃料極、空気極を構成する各種の電極基材を使用できる。
【００５３】
加圧レベルは、通常０．１～１００Ｍｐａ程度、好ましくは５～１５Ｍｐａ程度がよい。この加圧操作の際に加熱するのが好ましく、加熱温度は通常１２０～１５０℃程度でよい。
【発明の効果】
【００５４】
本発明によれば、触媒の分散性が良好で、発火の危険性を低くしたペースト組成物を提供できる。
【００５５】
本発明によれば、クラック、ピンホール等が実質的に生じない触媒層を形成するためのペースト組成物を提供できる。
【００５６】
本発明のペースト組成物を用いて得られる転写シートを使用すれば、触媒層－電解質膜積層体を容易に、効率的に製造することができる。
【００５７】
本発明転写シートを使用すれば、触媒層が多孔質の電極基材の中に入り込む虞れがないので、触媒層の膜厚調整が容易となり、また均一な触媒層を電極基材上に容易に形成させることができる。
【００５８】
また、本発明転写シートを使用すれば、電極素材表面乃至内部の孔を塞ぐことはないので、ガスの通流性能を阻害する虞れがない。
【００５９】
従って、本発明転写シートを用いて得られる電極－電解質膜接合体を使用すれば、発電効率が高く優れた電池性能、電池寿命等を備えた高品質の燃料電池を製造することができる。
【図面の簡単な説明】

【００６０】
【図１】図１は、本発明の触媒層－電解質膜積層体製造用転写シートの一例を示す断面図である。
【図２】図２は、本発明の触媒層－電解質膜積層体の一例を示す断面図である。
【発明を実施するための形態】
【００６１】
以下に実施例を掲げて、本発明をより一層明らかにする。
【００６２】
実施例１（ペースト組成物の調製）
白金触媒担持カーボン（Ｐｔ：５０ｗｔ％、田中貴金属工業製のＴＥＣ１０Ｅ５０Ｅ）１０ｇを水３０ｇに分散機にて攪拌混合して、白金担持カーボンの水分散液を調製した。
【００６３】
上記で調製された水分散液にｔ－ブタノール（キシダ化学製）１２．５ｇ、１－ブタノール６７．５ｇ及び２０ｗｔ％ナフィオン（Ｎａｆｉｏｎ　ＤＥ２０２１）溶液（水素イオン伝導性高分子電解質、デュポン社製、溶剤：水／１－プロパノール＝１／１（重量比））２５ｇを配合し、分散機にて攪拌混合することにより、本発明のペースト組成物を調製した。
【００６４】
実施例２（ペースト組成物の調製）
ｔ－ブタノールを１２．５ｇの代わりに１０ｇ、１－ブタノールを６７．５ｇの代わりに９０ｇ用いる以外は、実施例１と同様にして本発明のペースト組成物を調製した。
【００６５】
実施例３（ペースト組成物の調製）
１－ブタノールを６７．５ｇの代わりに３７．５ｇ用いる以外は、実施例１と同様にして本発明のペースト組成物を調製した。
【００６６】
実施例４（ペースト組成物の調製）
白金触媒担持カーボン（Ｐｔ：５０ｗｔ％、田中貴金属工業製のＴＥＣ１０Ｅ５０Ｅ）１０ｇを水３０ｇに分散機にて攪拌混合して、白金担持カーボンの水分散液を調製した。
【００６７】
上記で調製された水分散液にｔ－ブタノール（キシダ化学製）１２．５ｇ、１－ブタノール６７．５ｇ、２０ｗｔ％ナフィオン（Ｎａｆｉｏｎ　ＤＥ２０２１）溶液（水素イオン伝導性高分子電解質、デュポン社製、溶剤：水、プロパノール）２５ｇ及びカーボン繊維（ＶＧＣＦ：昭和電工社製、平均繊維径１５０ｎｍ、平均繊維長約９μｍ、アスペクト比６０）１ｇを配合し、分散機にて攪拌混合することにより、本発明のペースト組成物を調製した。
【００６８】
比較例１（ペースト組成物の調製）
ｔ－ブタノールを１２．５ｇの代わりに３０ｇ、１－ブタノールを６７．５ｇの代わりに１３０ｇ用いる以外は、実施例１と同様にしてペースト組成物を調製した。
【００６９】
比較例２（ペースト組成物の調製）
ｔ－ブタノールを１２．５ｇの代わりに３０ｇ、１－ブタノールを６７．５ｇの代わりに２０ｇ用いる以外は、実施例１と同様にしてペースト組成物を調製した。
【００７０】
比較例３（ペースト組成物の調製）
ｔ－ブタノールを１２．５ｇの代わりに５ｇ、１－ブタノールを６７．５ｇの代わりに９０ｇ用いる以外は、実施例１と同様にしてペースト組成物を調製した。
【００７１】
実施例１～４及び比較例１～３で調製した各ペースト組成物の固形分濃度及び１－ブタ

ノール／ｔ－ブタノール比（重量比）を、表１に示す。

【００７２】

【表１】

	固形分濃度(%)	１－ブタノール／ｔ－ブタノール比
実施例１	１０．３	５．４
実施例２	９．０	７．５
実施例３	１３．０	３
実施例４	１０．３	５．４
比較例１	５．０	４．３
比較例２	１０．２	０．７
比較例３	９．４	１８

【００７３】

実施例５（転写シートの製造）

上記実施例１で調製した本発明ペースト組成物を、ドクターブレードにより乾燥後の白金量が０．５ｍｇＰｔ／ｃｍ^{2}になるように、大気雰囲気中の加熱乾燥（１００℃以下）により、本発明の転写シートを製造した。

【００７４】

実施例６（転写シートの製造）

実施例２で調製した本発明ペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして本発明の転写シートを製造した。

【００７５】

実施例７（転写シートの製造）

実施例３で調製した本発明ペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして本発明の転写シートを製造した。

【００７６】

実施例８（転写シートの製造）

実施例４で調製した本発明ペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして本発明の転写シートを製造した。

【００７７】

比較例４（転写シートの製造）

比較例１で調製したペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして比較のための転写シートを製造した。

【００７８】

比較例５（転写シートの製造）

比較例２で調製したペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして比較のための転写シートを製造した。

【００７９】

比較例６（転写シートの製造）

比較例３で調製したペースト組成物を用いる以外は、実施例５と同様にして比較のための転写シートを製造した。

【００８０】

試験例１

実施例５～８及び比較例４～６で製造した転写シート（５０ｍｍ×５０ｍｍ）の乾燥状態を目視により以下の３つの観点から観察した。

ピンホール；塗膜に目視可能なピンホールが２つ以上発生していないものを○、塗膜に目視可能なピンホールが２つ以上発生しているものを×として評価した。

凝集物；塗膜に３ｍｍ×３ｍｍ以上の海島状の濃淡が生じていないものを○、塗膜に３ｍｍ×３ｍｍ以上の海島状の濃淡が生じているものを×として評価した。

クラック；触媒層を写真に取り込み、２値化（白／黒）し、それぞれの面積率（％）を算出した。２値化は、写真の色彩を２５５段階に分割し、０～５０までを触媒層部、５１～２５５までを触媒層のない部分（＝クレバス状の亀裂）と判断した。写真は、デジタルマイクロスコープにて撮影した。このときの触媒層部が４０％以上のものを○、４０％以下のものを×として評価した。

【００８１】

結果を表２に示す。

【００８２】

【表２】

	ピンホール	凝集物	クラック
実施例１	○	○	○
実施例２	○	○	○
実施例３	○	○	○
実施例４	○	○	○
比較例１	×	○	○
比較例２	○	×	○
比較例３	○	○	×

【００８３】

実施例９

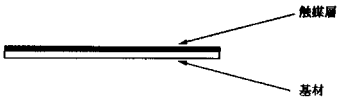
実施例５～９で製造した各転写シート（５０ｍｍ×５０ｍｍ）を電解質膜（ナフィオン１１２、７５ｍｍ×７５ｍｍ）の両側に設置し、ホットプレスすることにより、本発明の触媒層－電解質膜積層体を製造した。

【００８４】

実施例１０

実施例１～４で調製した各触媒層形成用ペースト組成物を、ドクターブレードにより乾燥後の白金量が０．５ｍｇＰｔ／ｃｍ^{2}になるように、電解質膜（ナフィオン１１２）の片面に大気雰囲気中で塗布し、乾燥した。更に、塗布及び乾燥した側が基材側になるように基材（１００μｍのポリエチレンテレフタレートフィルム）に固定した後、上記電解質膜の反対側に上記触媒層形成用ペースト組成物を同様に乾燥後の白金量が０．５ｍｇＰｔ／ｃｍ^{2}となるように塗布し、乾燥した後、基材から切り離して、本発明の触媒層－電解質膜積層体を製造した。

【図１】



【図２】

