

(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2010-73562

(P2010-73562A)

(43) 公開日 平成22年4月2日(2010.4.2)

(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
HO 1 M	8/10	(2006.01)	HO 1 M 8/02	P
			HO 1 M 8/10	
				5 H O 2 6

審査請求 有 請求項の数 8 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2008-241090 (P2008-241090)
 (22) 出願日 平成20年9月19日 (2008.9.19)

(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 100068618
 弁理士 粁 経夫
 (74) 代理人 100104145
 弁理士 宮崎 嘉夫
 (74) 代理人 100109690
 弁理士 小野塚 薫
 (74) 代理人 100135035
 弁理士 田上 明夫
 (74) 代理人 100131266
 弁理士 ▲高▼ 昌宏

最終頁に続く

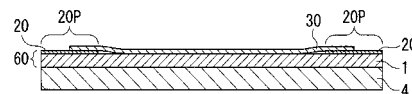
(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池の製造方法、及び該方法によって製造される固体高分子型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】電解質膜と、触媒層と、保護層と、を含む固体高分子型燃料電池において、保護層が触媒層、電解質膜にダメージを与えないようにする。

【解決手段】保護層20を、インクジェット法により、額縁状かつ薄膜状に、触媒層30の周縁部30と電解質膜1の間に、インクを塗布し形成するようにした。その際、薄膜の保護層20の厚さを0.1μmから5.0μmの範囲程度に直接的に電解質膜1に形成したため、触媒層30が坐屈したり、極端な変形をすることがなく、電解質膜、触媒層が傷むことなくなり、ひいては固体高分子型燃料電池の耐久性が向上した。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電解質膜と、触媒層と、保護層と、を含む固体高分子型燃料電池の製造方法であって、前記電解質膜の周縁部に、インクジェット法によって塗布される樹脂材料からなる薄膜状の保護層を、額縁状に形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池の製造方法。

【請求項 2】

電解質膜の面寸法よりも該触媒層の面寸法が小さく設定されている膜電極接合体を含む固体高分子型燃料電池の製造方法であって、

該触媒層の周縁部から該電解質膜に沿って延在するように、インクジェット法によって塗布される樹脂材料からなる薄膜状の保護層を、該触媒層の周縁部から該電解質膜に沿って額縁状に形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池の製造方法。

10

【請求項 3】

前記樹脂材料は、耐熱温度が少なくとも 100 を超える温度であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

【請求項 4】

前記樹脂材料は、フッ素系樹脂を含むことを特徴とする請求項 3 に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

【請求項 5】

前記樹脂材料は、ポリイミド系樹脂を含むことを特徴とする請求項 3 に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

20

【請求項 6】

前記樹脂材料は、炭化水素系電解質樹脂を含むことを特徴とする請求項 3 に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

【請求項 7】

請求項 1 から請求項 6 のいずれか 1 項に記載の製造方法によって得られることを特徴とする固体高分子型燃料電池の半セル構造体。

【請求項 8】

請求項 7 に記載の半セル構造体を 2 個用いて単位セル構造体を形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

30

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体高分子型燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell、以下「PEFC」と略す。) の製造方法、及び該 PEFC に関し、さらに詳細には、PEFC の単位セル構造体において、保護層を備えた PEFC の製造方法、及び該 PEFC に関する。

【背景技術】

【0002】

PEFC は、一般に、電解質膜と、該電解質膜を挟持するアノード電極用及びカソード極用の触媒層と、該触媒層を外側からサンドイッチするアノード及びカソード極用の拡散層とを構成要素として含む基本的な第 1 のユニットと、電解質膜と該電解質層を挟持する同触媒層とが一体化した膜電極接合体 (Membrane Electrode Assembly、以下「MEA」と略す。) と、触媒層を外側からサンドイッチする同拡散層とを構成要素とするより工業的、実用的な第 2 のユニットと、に大別される。そして、第 1 及び第 2 のユニットの構成要素を含むラミネート体が、ホットプレスされて接合され、単位セル構造体に相当する部分が作製される。

40

【0003】

ところで、第 2 のユニット (MEA を含む場合) を例に採ると、MEA の周縁部を額縁状に包囲するガスシール材 (保護層) の間に電解質膜を支持するものが設けられていないと、燃料ガスや酸化性ガスの差圧で、当該燃料電池を電力源とする動力体の運転中におい

50

て乾湿による機械ストレスや熱応力による構成要素の歪みが生じ、周縁部が破れることがあった。

【 0 0 0 4 】

そこで、特許文献 1 により、図 4 (a) の分解図に示される構成要素からなる、電解質膜に加わる差圧や機械的ストレスにより電解質膜の破損を防止することができる構造体 5 0 (単位セル構造体の半分に相当するため、以下「半セル構造体 5 0」という) が提示された。この半セル構造体 5 0 は、キャリア膜 4 の上に電解質膜 1 を重ね、この電解質膜 1 の面 1 S の周縁部 1 E (電解質膜 1 の端部と、仮想鎖線 S との間の額縁状箇所) の上に、別途成形された額縁状の保護層 2 を重ね、さらにこの額縁状の保護層 2 の上に触媒層 (触媒電極部) 3 をラミネートし、そのラミネート体を、ホットプレスにより一体化して作製される。

10

【 0 0 0 5 】

ところで、保護膜 2 に相当する当該膜は、厚み 5 0 μm 以下のフッ素系樹脂シートであった。保護膜 2 がこのような厚膜の場合、図 4 (b) に示されるように、2 5 μm 厚の額縁状の保護層 2 が電解質膜 1 にホットプレスされると、電解質膜 1 との間で大きな段差が発生することで、触媒層 3 の周端部に坐屈箇所 5、6 が発生し、かつ、電解質膜 1 のクリープ変形を引き起こし、ひいては、燃料電池の信頼性が確保できなくなるといった不具合があった。

【 0 0 0 6 】

また、特許文献 2 には、額縁状の保護層 2 をホットプレスするときのプロセス温度で溶融する合成樹脂、例えば、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂を用いた例が、開示されている。しかしながら、燃料電池用システムの小型化・高性能化を図るためには高温運転が望まれるところ、熱変形温度や連続運転温度が 1 0 0 と低いポリエチレン材料では、燃料電池の信頼性を確保できない。さらに、特許文献 3 に、エッジシール (保護層部に該当) にアクリル系接着剤、オレフィン系接着剤のホットメルト接着剤を使用する旨を開示する。しかし、ホットメルト接着剤はそもそも熱によって融ける性質を持つため、熱変形温度や連続運転温度が低くなり、ポリエチレン材料の場合と同様に、燃料電池の信頼性を確保できない。

20

【特許文献 1】特許第 3 3 6 8 9 0 7 号公報

【特許文献 2】特許第 3 6 9 0 6 8 2 号公報

30

【特許文献 3】特開 2 0 0 7 - 6 6 7 6 6 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 7 】

そこで、本発明は、かかる実情に鑑み、P E F C 内において、触媒層の周端部に坐屈箇所が発生し、かつ、電解質膜のクリープ変形を引き起こすといったことを防止し、燃料電池の信頼性を確保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 8 】

本発明に係る固体高分子型燃料電池、及び固体高分子型燃料電池の製造方法の各種態様、並びに、それらの作用および効果について、以下の、発明の態様の項において詳しく説明する。

40

【 0 0 0 9 】

(発明の態様)

以下、発明の態様を示し、それらについて説明する。(1) から (8) の項の各々が、請求項 1 から請求項 8 の各々に相当する。

【 0 0 1 0 】

(1) 電解質膜と、触媒層と、保護層とを含む固体高分子型燃料電池の製造方法であって、前記電解質膜の周縁部に、インクジェット法によって塗布される樹脂材料からなる薄膜状の保護層を、額縁状に形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池の製造方法。

50

【 0 0 1 1 】

本項の固体高分子型燃料電池（ P E F C ）は、基本構成は特許文献 1 と同様のものであるが、額縁状の保護層（同文献では保護膜。）を、薄膜状、好ましくはインクジェット塗布後の厚さを 0 . 1 μ m から 5 . 0 μ m に形成し、しかも、この薄膜状の保護層を、インクジェット法を用いて、直接、電解質膜の周縁部に形成した。これにより、従来は、例えば 2 5 μ m もあった厚膜の保護層が薄膜化されることで、触媒層や電解質膜にダメージを与えることがなくなり、ひいては燃料電池の信頼性も向上する。また、保護層を電解質膜に、インクジェット法によるインクで直接的に形成するので、従来のように別途、額縁状の保護層を、樹脂製の板材を打ち抜き加工する工程を省くことができる。よって、額縁状の保護層の無駄なストックがなくなり、コスト低減、生産性向上につながる。

10

【 0 0 1 2 】

また、インクジェット法の塗布すべき箇所に、 P C の画面で画像処理ソフトウェアを用いて容易に様々な寸法、形状に描くことができるため汎用性が高い。また従来のように厚膜樹脂の板材ではなく、濡れ性が高くかつ流動性のあるインクで保護層を形成していくため、保護層と電解質膜との段差箇所（絶壁部）にも空間を作ることなく密に形成することも可能であり、シーリング性や耐久性に優れた保護層を形成できる。

【 0 0 1 3 】

さらに、従来の 2 5 μ m といった厚膜のポリイミドフィルムでは、エッジ部が触媒層と鋭利に接触し、触媒層にダメージを与えがちであったが、インクによる保護層（インク塗膜層）では、周辺部が電解質膜に対して濡れ性が高く、インクが電解質膜の面に沿って裾野状に流れるためエッジ部がそもそも発生しない。

20

【 0 0 1 4 】

インクジェット塗布後の保護層の厚さは、紫外可視吸収スペクトルの吸光度変化から測定することができる。当該保護層の厚さを、 0 . 1 μ m から 5 . 0 μ m が好ましい理由は、 0 . 1 μ m より薄いと、保護層としての機能を果たせず、一方、 5 . 0 μ m より厚いと、従来発生していた上記不具合を発生させるおそれが高くなるためである。

【 0 0 1 5 】

（ 2 ） 電解質膜の面寸法よりも該触媒層の面寸法が小さく設定されている膜電極接合体を含む固体高分子型燃料電池の製造方法であって、該触媒層の周縁部から該電解質膜に沿って延在するように、インクジェット法によって塗布される樹脂材料からなる薄膜状の保護層を、該触媒層の周縁部から該電解質膜に沿って額縁状に形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池の製造方法。

30

【 0 0 1 6 】

本項は、触媒層と電解質膜とがあらかじめ一体化されている膜電極接合体（ M E A ）を含む固体高分子型燃料電池に係る態様である。この場合は、該触媒層の周縁部から該電解質膜に沿って延在するように、（ 1 ）と同様の保護層をインクジェット法によって直接、形成する。他の特徴、効果、その他の内容は（ 1 ）と同様であるのでその記載を省略する。

【 0 0 1 7 】

（ 3 ） 前記樹脂材料は、耐熱温度が少なくとも 1 0 0 を超える温度であることを特徴とする（ 1 ）又は（ 2 ）に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

40

保護層の材料となる樹脂材料の、耐熱温度を少なくとも 1 0 0 を超えると規定したのは、燃料電池用システムの小型化、高性能化を図るために高温運転が望まれており、少なくとも 1 0 0 を超える樹脂を用いなければ、当該要請に応えられないためである。

【 0 0 1 8 】

（ 4 ） 前記樹脂材料は、フッ素系樹脂を含むことを特徴とする（ 3 ）に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

本項は、（ 3 ）の最低限の耐熱性を持つ樹脂に、さらに撥水性をもたらすためにフッ素系樹脂を含むようにするものである。保護層が撥水性であれば、燃料電池（単位セル構造体）内部に内在する水分に関し、保護層部分についても水はけを良くすることができる。

50

これはフラッディングの発生を抑制するためである。例えば、フッ素系樹脂として、ポリフッ化ビニリデン（P V D F）を用いることが好ましい。その他の好適例は後述する。

【 0 0 1 9 】

（ 5 ） 前記樹脂材料は、ポリイミド系樹脂を含むことを特徴とする（ 3 ）に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

本項は、（ 3 ）の保護層よりも、さらに高い温度に耐えうる保護層を形成するためにポリイミド系樹脂を含むようにするものである。例えば、ポリイミド系樹脂として、スルホン化ポリイミドなどのプロトン輸送能を有するものが好適である。その他の好適例は後述する。

【 0 0 2 0 】

（ 6 ） 前記樹脂材料は、炭化水素系電解質樹脂を含むことを特徴とする（ 3 ）に記載の固体高分子型燃料電池の製造方法。

【 0 0 2 1 】

本項は、（ 3 ）の最低限の耐熱性を持つ樹脂が、隣接して接合される触媒層の中にも浸入、浸透して、より優れたプロトン伝導性を付加するものである。すなわち、炭化水素系電解質樹脂としては、プロトン輸送能を有するものが好ましく、例えば、スルホン化されたポリフェニレンスルフィドを用いることが好ましい。その他の好適例は後述する。

【 0 0 2 2 】

（ 7 ） （ 1 ）から（ 6 ）のいずれか 1 項に記載の製造方法によって得られることを特徴とする固体高分子型燃料電池の半セル構造体。

【 0 0 2 3 】

本項は、前記（ 1 ）から（ 6 ）の製造方法に従って製造される P E F C の構成要素となる半セル構造体を規定する。

【 0 0 2 4 】

（ 8 ） （ 7 ）に記載の半セル構造体を 2 個用いて単位セル構造体を形成することを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【 0 0 2 5 】

本項は、（ 7 ）の半セル構造体の 2 個について、電解質膜を共通にして、あるいは、張り合わせるにより製造される単位セル構造体を規定する。この単位セル構造体を、常法によりスタックして、所望の発電能を有する固体高分子型燃料電池（ P E F C ）を得る。この P E F C は、保護層が上記のようにインクジェット法で額縁状かつ薄膜状に触媒層、電解質膜を好適に保護できるため、従来の厚膜（例えば 2 5 μ m から 5 0 μ m ）の保護層に起因した不具合が発生することがなくなり、 P E F C の耐久性を向上させることができる。

【発明の効果】

【 0 0 2 6 】

本発明によれば、触媒層、電解質膜の損傷や、電解質膜のクリープ変形といった不具合を防止し、ひいては、固体高分子型燃料電池（ P E F C ）の耐久性を向上させることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【 0 0 2 7 】

以下、本発明の実施の形態を、図 1、図 2 を参照して説明する。

図 1、図 2 は、本発明に係る、燃料電池、及び当該燃料電池の製造方法を実施する形態を示すための図である。図中、同一の符号を付した部分は同一物を表わし、基本的な構成は図に示す従来のものと同様である。当該製造方法は、下記の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々変更を加え得ることは勿論である。

【 0 0 2 8 】

< 実施形態 >

図 1 及び図 2 は、本発明に係る P E F C のアノード側又はカソード側のいずれかの側の

10

20

30

40

50

部分の半セル構造体を製造する方法を説明するための概略的な断面図である。

【0029】

実施形態1：図1を参照しながら、第1半セル構造体60（実施形態1に対応する半セル構造体を「第1半セル構造体」とする）を製造する方法を説明する。

図1に示されるように、第1半セル構造体60は、キャリアフィルム4の上に形成されており、電解質膜1と、額縁状保護層20と、触媒層30とを含む。

【0030】

キャリアフィルム4は、ポリイミド、PET（ポリエチレンテレフタレート）、PEN（ポリエチレンテレナフタレート）等のポリエステル、ETFE（4-フッ化エチレン共重合体）やPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）等のフッ素系樹脂、及びPE（ポリエチレン）やPP（ポリプロピレン）等のポリオレフィンを一部含む樹脂フィルムであって、40μmから60μmの厚さのものが好ましい。あまりに薄いと支持体としての機能を果たせず、一方これ以上厚い支持体は不要でありコスト高を招来するためである。また、キャリアフィルム4と電解質膜1とがホットプレス処理で、融着、化学的結合、物理的結合も起きないように表面物性を持つことが好ましい。途中工程の作業上、キャリアフィルム4は、電解質膜1から容易に剥離されることが望ましいからである。

10

【0031】

電解質膜1は、例えば、デュポン社のナフィオンを用いて、キャリアフィルム4上に、厚さ10μmから30μmになるように塗布し形成される。ナフィオン以外のプロトン透過性のある電解質のものが適宜代替可能である。

20

【0032】

額縁状保護層20は、電解質膜1の上にインクジェット法で額縁状に、好ましくは厚さが0.1μmから0.5μmの薄膜状に、直接、形成される。従来（図4参照）の額縁状保護層2は、このように、直接、形成されたものではなく、別体として厚膜の樹脂製板材を額縁状に打ち抜き加工したものであり、本実施形態に係る額縁状保護層20とは異なる。

【0033】

インクジェット法により、PCにより画像処理やCAD用のソフトウェアを用いて、適当な寸法の額縁状の画像を描き、その画像データをインクジェットプリンターに送り、その画像に対応するようにインクジェットプリンターのノズルから保護層20を形成するためのインクを塗布する。その結果、電解質膜1の周縁部20Pに、額縁状の保護層20が形成される。インクジェットプリンターの画像ピッチ（dpi）は、当該層20を稠密にすることが望ましいため、例えば400dpiから1200dpiが望ましい。

30

【0034】

インクジェット法による塗布は、保護層20を本実施形態のように薄膜の保護層にするために好適である。また、PCの画面上で任意の寸法、任意の形状に簡易に変更できる。また、従来のように、予め別体として、額縁状の保護層2を成形加工する必要もない。薄膜の樹脂板材は、一定の強度、靱性がないため、矩形の薄膜の樹脂板材を額縁状にする際、打ち抜き加工を行うことは難しく、裁断くず等の付着に注意が必要である。また、所望の薄膜の厚さを得るためには、インクを噴射するノズルを同一部分に往復運動させることで重ね塗りをすればよい。

40

【0035】

次に、保護層20を形成するためのインクの材質について詳述する。当該材質は、耐熱温度が少なくとも100℃を超えるものであり、さらには、優れた耐酸性、より優れた耐熱性、及び、優れたプロトン導電性を有するものが好ましい。より具体的には、当該材質には、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、炭化水素系電解質樹脂のいずれか、又はこれらのいずれかを組み合わせた樹脂を用いることができる。既に述べたが、特に、良好な耐酸性をもたらすポリフッ化ビニリデン（PVDF）、良好な耐熱性をもたらすポリイミドが好適である。

【0036】

50

その他の材質種としては、ポリアミド、ポリエステル、熱可塑性フッ素ゴム、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(E T F E)、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-ヘキサフルオロプロピレン-ビニリデンフロライド三共重合体(T H V)、テトラフルオロプロピレン共重合体(F E P)、又はテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-パーフロロアルキルビニルエーテルの三元共重合体(E P A)等を含む樹脂が好適である。

【0037】

さらに、触媒層30へと潜入しつつプロトン伝導性を強化する場合には、炭化水素系電解質(プロトン輸送能を有するもの)を含むものを適用すればよい。

より具体的には、既に述べたスルホン化されたポリフェニレンスルフィド以外に、ポリベンズイミダゾール、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン等のポリマー又は共重合体がいずれも適用可能であり、加えて、そのポリマー溶液を作製する際も、炭化水素系電解質が溶解する溶液を用いることで、アルコール、水の他に、N-メチル-ピロリドン(NMP)、ジメチルホルムアルデヒド(DMF)、ジメチルスルホキシド(DMSO)等も併せて用いることができる。その他、インクの処方に必要な粘度調整やポットライフ等を最適にするためのその他の物質、溶液等は常法による。

【0038】

最後に、キャリアフィルム4を電解質膜1から剥離する。そうすると、電解質膜1の周縁部に、厚さが0.1μmから5.0μmのインクジェット法によって塗布される樹脂材料からなる保護層20が、額縁状に直接、形成されている、電解質膜1と、触媒層30と、保護層20と、を含むキャリアフィルム4が除去された半セル構造体60が作製される。

実施形態2：

次に、図2を参照しながら、第1半セル構造体70を製造する方法を説明する(但し、第1実施形態と重複内容は適宜省略する)。

図2に示されるように、第1半セル構造体60は、キャリアフィルム4の上に形成されており、電解質膜1及び触媒層31からなるMEAと、額縁状保護層21とを含む。

該MEAは、製造方法の便宜上、アノード極側又はカソード極側のいずれかの半分側のものであるため、以降、適宜ハーフMEA体311と称する。

【0039】

ハーフMEA体311は、電解質膜1の面寸法よりも該触媒層31の面寸法が小さく設定されており、触媒層31は、矩形状の電解質膜1の周縁部が一定幅で露出部を形成するようにして電解質膜1に形成されている。

このハーフMEA体311に対して、触媒層31の周縁部と上記電解質膜1の周縁部の露出部とを同時に覆うようにインクジェット法で、実施形態1と同様のインクを、触媒層31の周縁部と上記露出部上に、額縁状に塗布する。

この後、実施形態1と同様に、キャリアフィルム4をハーフMEA体311から剥離し、半セル構造体70が作製される。

【0040】

なお、実施形態1で作製される半セル構造体60、実施形態2で作製される半セル構造体70のそれぞれを同様にして作製し、電解質成分の接着剤により電解質膜1を背中合わせにして張り合わせて、それぞれ、単位セル構造体を作製する。

あるいは、半セル構造体60及び半セル構造体70を作製した後、それぞれの電解質膜1の上にいずれの層も形成されていない面の上に、同様にして半セル構造体60、実施形態2で作製される半セル構造体70を形成し、両端面側からサンドイッチしながらホットプレス処理を施して、単位セル構造体を作製するようにしてもよい。

【0041】

<実施例・比較例>

次に、本発明に係る実施例1A、2Aについて以下説明する。

図3に示されるように、キャリアフィルム4と、電解質膜1と、額縁状の保護層20と

10

20

30

40

50

、ガス拡散層（GDL）40とを構成要素とする半セル構造体60を作製した。この際、電解質膜の材料は、ナフィオンDE2020CS（デュポン社製）液を用い、キャスト法により、10 μ mから20 μ m厚の電解質膜1を、38 μ m厚のPETフィルム4（キャリアフィルム）に塗布して形成した。その後、PETフィルム4を、50mm角に裁断した。

【0042】

保護層20の材質に関し、実施例1AではPVDFを含むインクを、実施例2Aでは、スルホン化ポリイミドを含むインクを、インクジェット法により、約10mm幅で額縁状に0.13 μ mの厚さで、電解質膜1上に形成した（当該厚さは、紫外可視吸収スペクトルの吸光度変化から求めた）。

さらに、白金担持炭素粒子からなる粉体を含む樹脂材料を用いて、転写法により、面寸法が40mm角の触媒層30を形成した。そして、この時点で、PETフィルム4（キャリアフィルム）を剥離した。

【0043】

さらに、ガス拡散層（GDL）40を、45mm幅に裁断し、図3に示すように、GDL40が、触媒層30よりも広い面寸法をもち、かつ、電解質膜20より狭い面寸法になるように加工した。上側は、この加工済みGDL40の中心とが額縁状保護層20の空間部の中心とが略一致し、かつ、縦辺、横辺が互いに平行となるように、一方、下側は、上側のGDLと縦辺、横辺が平行になるように、2枚のGDL40で、触媒層30、額縁状の保護層20、及び電解質膜20をサンドイッチした。そして、130、4MPaの圧力で、5分間、ホットプレスを行った。

【0044】

このようにして作製した電解質膜1、保護層20および2枚のGDL40からなる構造体を、温度25、湿度50%の雰囲気下に1時間以上静置させて、その後、不図示の導電性金属ブロックで当該構造体を2.3Ma圧でサンドイッチし、該導電性金属ブロックを通じて0.2Vの電圧を印加して、リーク電流の測定を行った。

【0045】

さらに、実施例1B、2Bとして、上記と同様にして得た構造体（半セル構造体）の二つを、電解質膜同士を背中合わせに接合して、実際に発電可能な単セル構造体を形成し、アノード側に水素をカソード側に空気を流入し、0.1A/cm²の定電流密度で、20分間発電し、単セル構造体の中に水を溜めた。この後、2時間放置した後、-20と70の間を繰り返す熱衝撃試験を行った。

比較例は、実施例の保護層20に相当する層を、25 μ mのポリイミドフィルム（商品名：カプトン）を別体として額縁状に成形加工したものに替えて作製した構造体を用いて、実施例1B、2Bと同様の熱衝撃試験を行った。

<測定結果・評価結果>

実施例1及び実施例2のリーク電流の測定結果を、以下の表1にまとめた。

【表1】

	処理条件	リーク電流値 (mA)
実施例 1A	10 μ m電解質膜+インクジェット法によるPVDF 保護層 (厚さ0.13 μ m)	0.69
実施例 2A	10 μ m電解質膜+インクジェット法によるスルホン 化ポリイミド保護層(厚さ0.13 μ m)	1.89

【 0 0 4 6 】

さらに、実施例 1 B、実施例 2 B、及び比較例の熱衝撃試験の評価結果を、以下の表 2 にまとめた。

【表 2】

	処理条件	熱衝撃試験後の状態
実施例 1 B	1 0 μ m 電解質膜+インクジェット法による P V D F 保護層 (厚さ 0 . 1 3 μ m)	○ (不具合の発生なし)
実施例 2 B	1 0 μ m 電解質膜+インクジェット法によるスルホン化ポリイミド保護層 (厚さ 0 . 1 3 μ m)	○ (不具合の発生なし)
比較例	1 0 μ m 電解質膜+ポリイミド保護層 (厚さ 2 5 μ m)	× (保護層と電解質膜とが接する境界部に保護層のエッジ部周辺が食い込んで、電解質膜に亀裂が発生した。)

10

20

【 0 0 4 7 】

< 評価 >

リーク電流値 (m A) の測定結果から、電解質膜が 1 0 μ m と薄くても、本発明に係るインクジェット法による薄膜の保護層が有ると、リーク電流が十分に軽減されることが分かった。これは、電解質膜が薄膜であっても、保護膜の支持により、電解質膜表面のみかけ硬度 (強度) が向上したことによると考えられる。

また、ヒートサイクルの試験結果から、保護層の膜厚 (インクジェット塗布後の膜厚) を薄膜状にしたため、従来発生した、触媒層の坐屈、電解質膜の損傷、又は電解質膜のクリーブ変形が起こらなくなったことによると考えられる。

30

【 0 0 4 8 】

< 変形例 >

本発明に係るの固体高分子型燃料電池の製造方法は、上述の実施形態に記載された態様に制限されることはなく、当業者により種々の変形例が採用されうる。

【産業上の利用可能性】

【 0 0 4 9 】

本発明は、固体高分子型燃料電池の単位セル構造体の中に保護層を設けるときに利用できる。

40

【図面の簡単な説明】

【 0 0 5 0 】

【図 1】第 1 実施形態を説明するための概略断面図である。

【図 2】第 2 実施形態を説明するための概略断面図である。

【図 3】本発明の効果を調査するための測定方法を説明するための概略断面図である。

【図 4】従来の製造方法の不具合を説明するための、概略的な、斜視図 (a) および断面図 (b) である。

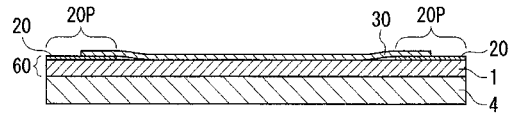
【符号の説明】

【 0 0 5 1 】

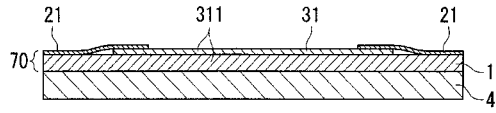
1 : 電解質膜、3 0、3 1 : 触媒層、2 0、2 1 : 保護層

50

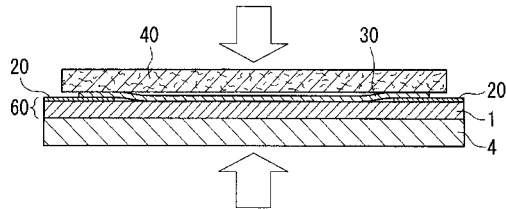
【 図 1 】



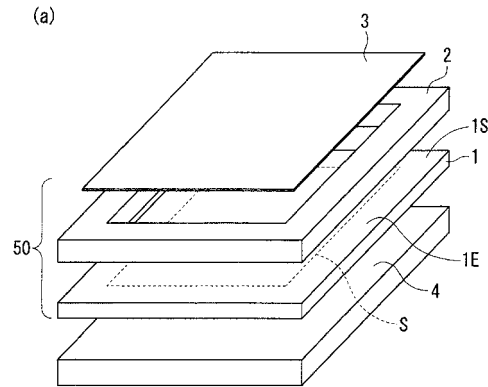
【 図 2 】



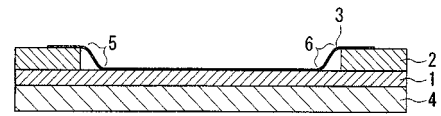
【 図 3 】



【 図 4 】



(b)



フロントページの続き

(72)発明者 秋田 靖浩

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 EE18 EE19 HH08