

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 11 月 29 日(29.11.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/160779 A1

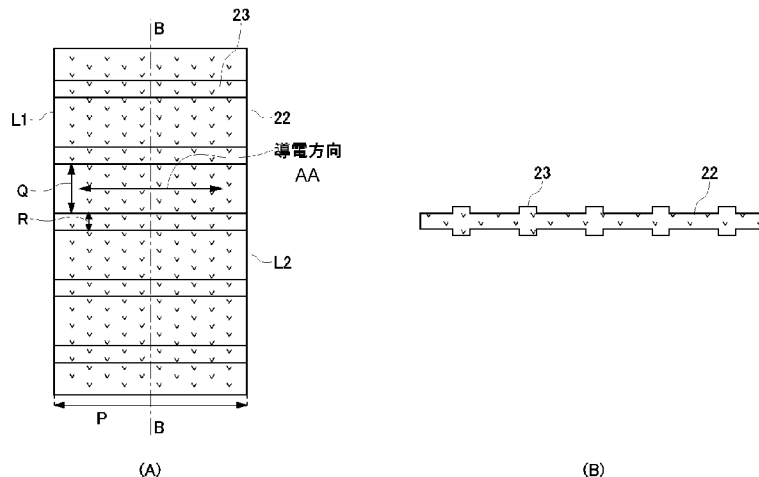
- (51) 国際特許分類:
H01M 8/02 (2006.01) *H01M 8/10* (2006.01) 5 番 5 号三洋電機株式会社知的財産本部内 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/003199 (74) 代理人: 森下 賢樹 (MORISHITA, Sakaki); 〒1500021 東京都渋谷区恵比寿西 2-11-12 Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2012 年 5 月 16 日(16.05.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-113545 2011 年 5 月 20 日(20.05.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三洋電機株式会社 (SANYO ELECTRIC CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 藤田 悟朗 (FUJITA, Goro) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号三洋電機株式会社知的財産本部内 Osaka (JP). 鈴木 博晶 (SUZUKI, Hiroaki) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通 2 丁目
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池

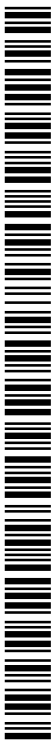
【図3】



AA Direction of electroconduction

(57) Abstract: Thick film sections (23), having a relatively large film thickness, are formed on an electrolyte film (22) constituting a film electrode body. The thick film sections (23) have a strip shape formed at a predetermined interval along the direction of electroconduction, and extend from one side (L1) of the electrolyte film (22) extending in a direction intersecting the direction of electroconduction to the other side (L2) of the electrolyte film (22) extending in a direction intersecting the direction of electroconduction. The thick film sections (23) are formed in a convex shape on both the anode-side surface and the cathode-side surface of the electrolyte film (22).

(57) 要約: 膜電極体を構成する電解質膜 22 に相対的に膜厚が厚い厚膜部 23 が形成されている。厚膜部 23 は導電方向に沿って所定の間隔で形成された帯状の形態であり、導電方向と交差する方向に延在する電解質膜 22 の一方の辺 L1 から導電方向と交差する方向に延在する電解質膜 22 の他方の辺 L2 にかけて延在している。厚膜部 23 は、電解質膜 22 のアノード側の面およびカソード側の面の両方に凸状に形成されている。



WO 2012/160779 A1



GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,
NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称： 燃料電池

技術分野

[0001] 本発明は、燃料電池に関する。

背景技術

[0002] 燃料電池は水素と酸素とから電気エネルギーを発生させる装置であり、高い発電効率を得ることができる。燃料電池の主な特徴としては、従来の発電方式のように熱エネルギーや運動エネルギーの過程を経ない直接発電であるので、小規模でも高い発電効率が期待できること、窒素化合物等の排出が少なく、騒音や振動も小さいので環境性が良いことなどが挙げられる。このように、燃料電池は燃料のもつ化学エネルギーを有効に利用でき、環境にやさしい特性を持っているので、21世紀を担うエネルギー供給システムとして期待され、宇宙用から自動車用、携帯機器用まで、大規模発電から小規模発電まで、種々の用途に使用できる将来有望な新しい発電システムとして注目され、実用化に向けて技術開発が本格化している。

[0003] 中でも、固体高分子形燃料電池は、他の種類の燃料電池に比べて、作動温度が低く、高い出力密度を持つ特徴があり、特に近年、携帯機器（携帯電話、ノート型パーソナルコンピュータ、PDA、MP3プレーヤ、デジタルカメラあるいは電子辞書、電子書籍）などの電源への利用が期待されている。携帯機器用の固体高分子形燃料電池としては、複数の単セルを平面状に配列した平面配列型の燃料電池が知られている。平面配列型の燃料電池として、各単セルの電極（アノードおよびカソード）との導通を得るための集電部材を電極の露出面ではなく、電極の周縁部分に設ける形態が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平10-312815号公報

特許文献2：特開2006-252967号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] このような形態の燃料電池では、電気化学反応に伴って生じる生成水によって電解質が膨潤するなどの理由により電解質が変形すると、電極にクラックが生じ、電極の導電性が低下するという課題がある。電極にクラックが発生することを防止する技術として、電解質膜に発電に寄与しない補強材を加えることで、電解質膜の変形を防止する技術が知られている（特許文献 1、2 参照）。ところが、発電に寄与しない補強材を用いて電解質の変形を防止しようとする、補強材によって導電抵抗が増加するため、セルの発電性能が低下するという新たな課題が生じる。

[0006] 本発明はこうした課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、燃料電池の発電性能を損なうことなく、電極の導電性が低下することを抑制することができる技術の提供にある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明のある態様は、燃料電池である。当該燃料電池は、電解質膜と当該電解質膜の一方の面に設けられたアノードと電解質膜の他方の面に設けられたカソードとを含む膜電極接合体と、膜電極接合体の周縁部に設けられた集電部と、を備え、電解質膜に膜厚が相対的に厚い厚膜部が形成されており、アノード、カソードの少なくとも一方の電極に形成された個々のクラックについて、電解質膜上における集電部に向かう導電方向の成分の長さの総和が、導電方向に直交する成分の長さの総和より大きくなるように、厚膜部によってクラックの形成が制限されていることを特徴とする。

[0008] この態様の燃料電池によれば、電解質膜に設けた厚膜部により、電解質膜の変形が抑制され、電極に生じるクラックは、隣接する厚膜部の間の領域において、導電方向に形成されるように制限される。この結果、発電に寄与しない部材を用いることなく、電極において導電方向と直交する方向のクラックが進展することを抑制され、ひいては、導電方向の導電経路をより確実に確保することができる。

[0009] 上記態様の燃料電池において、電解質膜の面内で、厚膜部と厚膜部以外の各領域が、電解質膜上の導電方向に直交する方向に、交互に配置されていてもよい。電解質膜の面内の厚膜部と厚膜部以外の各領域が、電解質膜上の導電方向に直交する方向に交互に配置されている領域で、導電方向と直交する線上において、厚膜部以外の領域が連続する長さの最大値Qが、導電方向の電解質膜の長さPより小さくてもよい。電解質膜の面内で導電方向と直交する線上において、厚膜部が連続する長さの最大値Rが、最大値Qより小さくてもよい。電解質膜の面内で導電方向に、厚膜部がいずれか一方の端部より離れて配置されており、離間距離の最大値Sが最大値Qまたは導電方向の電解質膜の長さPの $1/3$ のいずれか小さい方より小さくてもよい。

[0010] なお、上述した各要素を適宜組み合わせたものも、本件特許出願によって特許による保護を求める発明の範囲に含まれる。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、燃料電池の発電性能を損なうことなく、電極の導電性が低下することを抑制することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]実施の形態1に係る燃料電池の構造を示す分解斜視図である。

[図2]図1のA-A線に沿った燃料電池の断面図である。

[図3]図3(A)は、電解質膜22の構造を示す平面図である。図3(B)は、図3(A)のB-B線に沿った断面図である。

[図4]実施の形態1に係る触媒層に生じるクラックの発生方向を示す平面図である。

[図5]実施の形態1に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図6]実施の形態1に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図7]実施の形態1に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図8]実施の形態１に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図9]実施の形態１に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図10]実施の形態１に係る燃料電池に用いられる複合膜を作製する方法を示す工程図である。

[図11]図１１（Ａ）は実施の形態２に係る電解質膜の平面図である。図１１（Ｂ）は実施の形態２に係る電解質膜の平面図である。

[図12]図１２（Ａ）は実施の形態２に係る電解質膜の平面図である。図１２（Ｂ）は実施の形態２に係る電解質膜の平面図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明の実施の形態を図面を参照して説明する。なお、すべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0014] （実施の形態１）

図１は、実施の形態１に係る燃料電池の構造を示す分解斜視図である。図２は、図１のＡ－Ａ線に沿った断面図である。図１および図２に示すように、燃料電池１０は、膜電極接合体（ＭＥＡ、触媒塗布プロトン交換膜（ＣＣＭ）ともいう）２０が組み込まれた複合膜１２、アノード用ハウジング４０およびカソード用ハウジング４２を備える。また、複合膜１２の周縁部に後述する封止部材５０が設けられている。

[0015] 複合膜１２は、基材１４および複数の膜電極接合体２０を含む。基材１４は、ポリアクリレートなどの絶縁性の材料により形成されている。基材１４には、膜電極接合体２０と同数の開口部１６が設けられている。

[0016] 膜電極接合体２０は、電解質膜２２、電解質膜２２の一方の面に設けられたアノード触媒層２４、電解質膜２２の他方の面に設けられたカソード触媒層２６を備える。電解質膜２２は、基材１４に設けられた開口部１６に充填するように設けられている。アノード触媒層２４には、燃料ガスとして水素が供給される。一方、カソード触媒層２６には酸化剤として空気が供給され

る。一对のアノード触媒層 24 とカソード触媒層 26 との間に電解質膜 22 が挟持されることによりセルが構成され、各セルは水素と空気中の酸素との電気化学反応により発電する。

[0017] このように、本実施の形態の燃料電池では、アノード触媒層 24 にカソード触媒層 26 が対となり、複数のセルが平面状に形成されている。

[0018] 本実施の形態のインターコネクタ（集電部材）18は、膜電極接合体 20 の周縁部に設けられており、電解質膜 22 とは反対側のアノード触媒層 24 の主表面および電解質膜 22 とは反対側のカソード触媒層 26 はインターコネクタ 18 で被覆されずに露出している。具体的には、インターコネクタ 18 は、隣接する膜電極接合体 20 の間において、基材 14 を貫通して設けられている。隣接するセルにおいて、一方のセルの電解質膜 22 に被覆されたアノード触媒層 24 は、インターコネクタ 18 の方へ延在して設けられており、インターコネクタ 18 と一方のセルの電解質膜 22 との間の基材 14 を被覆し、インターコネクタ 18 に接続されている。また、隣接するセルにおいて、他方のセルの電解質膜 22 に被覆されたカソード触媒層 26 は、インターコネクタ 18 の方へ延在して設けられており、インターコネクタ 18 と他方のセルの電解質膜 22 との間の基材 14 を被覆し、インターコネクタ 18 に接続されている。インターコネクタ 18 は導電性の材料で形成され、たとえば、カーボンなどが用いられる。以上の構成により、隣接するセル同士はインターコネクタ 18 により直列接続されている。

[0019] なお、カソード触媒層 26 においてインターコネクタ 18 に向かって流れる電流の向き、および、インターコネクタ 18 からアノード触媒層 24 に向けて流れる電流の向きを導電方向とよぶ。

[0020] 電解質膜 22 は、湿潤状態において良好なイオン伝導性を示すことが好ましく、アノード触媒層 24 とカソード触媒層 26 との間でプロトンを移動させるイオン交換膜として機能する。電解質膜 22 は、含フッ素重合体や非フッ素重合体等の固体高分子材料によって形成され、例えば、スルホン酸型パーフルオロカーボン重合体、ポリサルホン樹脂、ホスホン酸基又はカルボン

酸基を有するパーフルオロカーボン重合体等を用いることができる。スルホン酸型パーフルオロカーボン重合体の例として、ナフィオン（デュポン社製：登録商標）112などが挙げられる。また、非フッ素重合体の例として、スルホン化された、芳香族ポリエーテルエーテルケトン、ポリスルホンなどが挙げられる。

[0021] 図3（A）は、電解質膜22の構造を示す平面図である。図3（B）は、図3（A）のB-B線に沿った断面図である。電解質膜22は、膜厚が部分的に異なっており、相対的に膜厚が厚い厚膜部23を有する。本実施の形態では、厚膜部23は導電方向に沿って所定の間隔で形成された帯状の形態であり、導電方向と交差する方向に延在する電解質膜22の一方の辺L1から導電方向と交差する方向に延在する電解質膜22の他方の辺L2にかけて延在している。厚膜部23は、電解質膜22のアノード側の面およびカソード側の面の両方に凸状に形成されている。厚膜部23の厚さは、たとえば、 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ であり、厚膜部23以外の電解質膜22の厚さは、たとえば、 $15 \sim 30 \mu\text{m}$ である。電解質膜22の厚さは燃料電池の性能を引き出すための最適な厚みに設定され、厚膜部23は燃料電池の性能を著しく損ねない範囲において、電解質膜22より厚く形成される。

[0022] 電解質膜22の面内で導電方向と直交する線上において、厚膜部23以外の領域が連続する長さの最大値Qは、導電方向の電解質膜22の長さPより小さい（ $P/Q > 1$ ）。本意実施の形態では、厚膜部23の間隔が均等である場合には、最大値Qは隣接する厚膜部23の間隔に相当する。また、厚膜部23の間隔にばらつきがある場合には、最大値Qは隣接する厚膜部23の間隔のうち、最大の長さとなる。また、導電方向と直交する線上において、厚膜部23が連続する幅の最大値Rは、上記最大値Qより小さい（ $Q/R > 1$ ）。厚膜部23の幅が均等である場合には、最大値Rは厚膜部23の幅自体となる。また、厚膜部23の幅にばらつきがある場合には、最大値Rは厚膜部23の幅のうち、最大の幅となる。

[0023] 図1および図2に戻り、アノード触媒層24およびカソード触媒層26は

、イオン交換樹脂ならびに触媒粒子、場合によって炭素粒子を有する。

[0024] アノード触媒層 24 およびカソード触媒層 26 が有するイオン交換樹脂は、触媒粒子と電解質膜 22 を接続し、両者間においてプロトンを伝達する役割を持つ。このイオン交換樹脂は、電解質膜 22 と同様の高分子材料から形成されてよい。触媒金属としては、Sc、Y、Ti、Zr、V、Nb、Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Pt、Os、Ir、ランタノイド系列元素やアクチノイド系列の元素の中から選ばれる合金や単体が挙げられる。また触媒を担持する場合には炭素粒子として、アセチレンブラック、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブなどを用いてもよい。

[0025] 図 4 に例示するように、厚膜部 23 では、電解質膜の変形が抑制されるため、アノード触媒層 24 に生じるクラック 200 は、隣接する厚膜部 23 の間の領域において、導電方向に形成されるように制限される。このため、アノード触媒層 24 に形成された個々のクラック 200 の導電方向の成分を a_i とし、アノード触媒層 24 に形成された個々のクラック 200 の導電方向に直交する方向の成分を b_i とすると、 $\sum a_i > \sum b_i$ なる関係が成立している。また、図示しないが、カソード触媒層 26 に生じるクラックについても、アノード触媒層 24 と同様に、 $\sum a_i > \sum b_i$ なる関係が成立している。

[0026] なお、アノード触媒層 24 およびカソード触媒層 26 が有するイオン交換樹脂は、たとえば、炭化水素系イオン交換樹脂のように、基材 14 に含まれる樹脂に比べて C-F 結合の数が少なくてもよい。

[0027] アノード用ハウジング 40 により、燃料貯蔵用の燃料貯蔵部 37 が形成されている。なお、アノード用ハウジング 40 に燃料供給口（図示せず）を設置することにより、燃料カートリッジなどから燃料を適宜補充可能である。

[0028] 一方、カソード用ハウジング 42 には、外部から空気を取り込むための空気取入口 44 が設けられている。

[0029] アノード用ハウジング 40 とカソード用ハウジング 42 とは、複合膜 12 の周縁部に設けられた封止部材 50 を介して、ボルト、ナットなどの締結部

材（図示せず）を用いて締結されている。これにより、封止部材５０に圧力が加えられ、封止部材５０によるシール性が高められる。

[0030] 本実施の形態に係る複合膜１２では、アノード触媒層２４の周囲、特に隣接するアノード触媒層２４の間の基材１４の上に絶縁性の保護層３０aが設けられている。また、カソード触媒層２６の周囲、特に隣接するカソード触媒層２６の間の基材１４の上に保護層３０bが設けられている。以下、保護層３０a、bをまとめて保護層３０という場合がある。保護層３０としては、たとえばポリイミド、ナフィオンなどを用いることができる。

[0031] 保護層３０により、隣接する膜電極接合体２０の間の絶縁性が高められている。この結果、隣接する膜電極接合体２０、言い換えると隣接するセルの間隔を狭めても、隣接するセル間で短絡が生じることが抑制される。

[0032] 本実施の形態の燃料電池によれば、電解質膜２２に上述したような異方性を有する厚膜部２３を設けることで、電解質膜２２の変形が抑制されるため、電極に生じるクラックは、隣接する厚膜部２３の間の領域において、導電方向に形成されるように制限される。言い換えると、導電方向の比率が導電方向に直交する方向の比率に対して長くになるような異方性を有するクラックが形成される。このため、発電に寄与しない部材を用いることなく、電極において導電方向と直交する方向のクラックが進展することを抑制でき、ひいては、導電方向の導電経路をより確実に確保することができる。

[0033] （複合膜の作製方法）

実施の形態１に係る燃料電池に用いられる複合膜１２の作製方法について、図５乃至図１０を参照して説明する。図５乃至図１０は、実施の形態１に係る複合膜１２を作製する方法を示す工程図である。なお、図５乃至図１０において、左側（i）に平面図を示し、右側（i i）に平面図のA-A線に沿った断面図を示す。

[0034] まず、図５（A）に示すように、基材１４を用意する。基材１４の厚さは、 $20 \sim 150 \mu\text{m}$ である。基材１４として、たとえば、ポリアクリレートを用いることができる。

[0035] 次に、図5（B）に示すように、基材に複数の開口部16、17を作製する。開口部17は、隣接する開口部16の間に形成される。開口部16と開口部17との間隔は500 μ m以下である。開口部16、17を形成する方法として例えば、赤外レーザ、可視光レーザ、紫外レーザによるレーザ加工あるいは金型を用いた打ち抜き法などの手法を用いることができる。

[0036] 基材14の準備と並行して、図6（A）および図6（B）に示すように、保護層30a、保護層30bを用意する。保護層30aには、アノード触媒層が設けられる領域に対応する開口部31aが設けられている。一方、保護層30bには、カソードが設けられる領域に対応する開口部31bが設けられている。保護層30a、30bの作製方法として、たとえば、シート状の保護層にレーザや金型を用いて開口部を設ける方法が挙げられる。なお、保護層30aおよび保護層30bは、後述するレーザ加工の際に用いられるレーザに対する遮蔽性、耐熱性、熱伝導性を有することが好ましく、保護層30aおよび保護層30bの材料として、たとえば、フェノール樹脂、ポリイミド、セルロースが挙げられる。

[0037] 次に、図7（A）に示すように、基材14の一方の面（アノード形成側）に保護層30aを重ね合わせ、基材14の他方の面（カソード形成側）に保護層30bを重ね合わせた後、ホットプレスなどを用いて基材14に保護層30a、bを接着する。なお、本作製方法では、開口部が予め形成された保護層30を基材14に貼り付ける手順が取られているが、保護層30を形成する領域が開口となるようなマスクを用いて、保護層の材料となる樹脂をスプレー法などを用いて基材14に塗布する手順も適用可能である。

[0038] 次に、図7（B）に示すように、電解質膜22の厚膜部23に対応したパターンの溝302が形成された台座300を用意し、この台座300の所定領域に基材14を位置合わせして載置する。

[0039] 次に、図8（A）に示すように、基材14に設けられた開口部16（図7（A）参照）に電解質膜22を形成する。具体的には、ナフィオン溶液を開口部16に充填する。このとき、台座300に形成された溝302にもナフ

イオン溶液を充填する。

[0040] 次に、図 8 (B) に示すように、溶媒を蒸発させることにより厚膜部 23 を有する電解質膜 22 を形成する。なお、溶媒が蒸発する過程で、ナフィオン溶液に表面張力が働くことにより、厚膜部 23 は電解質膜 22 の両主表面もしくは片側の主平面に対して凸になる。

[0041] 次に図 9 (A) に示すように、基材 14 に設けられた開口部 17 (図 7 (B) 参照) にたとえばカーボンペーストなどのペーストを充填させる。ペーストを充填した後に乾燥させることによりインターコネクタ 18 が形成される。

[0042] 次に、図 9 (B) に示すように、基材 14 の一方の面側において、複数の電解質膜 22 を跨ぐように、基材 14 の長手方向に沿って触媒層 80 を形成する。具体的には、水 10 g、ナフィオン溶液 5 g、白金ブラックまたは白金担持カーボン 5 g、1-プロパノール 5 g を十分攪拌することにより触媒スラリーを調整し、この触媒スラリーをスプレー塗布することにより触媒層 80 を形成する。同様に、基材 14 の他方の主表面側において、複数の電解質膜 22 を跨ぐように、基材 14 の長手方向に沿って触媒層 82 を形成する。具体的には、上述した触媒スラリーをスプレー塗布することにより触媒層 82 を形成する。

[0043] 次に、図 10 (A) に示すように、基材 14 の一方の面側に設けられた触媒層 80 の所定領域、すなわち、隣接する電解質膜 22 に挟まれた領域に位置する保護層 30a に対応する触媒層 80 をエキシマレーザなどのレーザを用いて部分的に除去する（触媒層 80 を除去する幅は、1~500 μm 好ましくは 50~200 μm ）。触媒層 80 が分断されることで、隣接する電解質膜 22 に挟まれた領域に保護層 30a が露出し、アノード触媒層 24 が形成される。

[0044] また、基材 14 の他方の面側に設けられた触媒層 82 の所定領域、すなわち、隣接する電解質膜 22 に挟まれた領域に位置する保護層 30b に対応する触媒層 82 をエキシマレーザなどのレーザを用いて部分的に除去する（触

媒層 8 2 を除去する幅は、 $1 \sim 500 \mu\text{m}$ 好ましくは $50 \sim 200 \mu\text{m}$) 。
触媒層 8 2 が分断されることで、隣接する電解質膜 2 2 に挟まれた領域に保護層 3 0 b が露出し、カソード触媒層 2 6 が形成される。

[0045] なお、触媒層除去に用いるレーザにはエキシマレーザの他にその発振波長が 180 nm 以上 550 nm 以下である YAG 第 3 高周波レーザや YVO₄ 第 4 高周波グリーンレーザなどを用いてもよい。レーザの出力は、レーザ照射部分の触媒層を完全に除去するのに十分であればよく、触媒層の材質や厚さに応じて適宜調整すればよい。

[0046] これによれば、レーザ加工により触媒層 8 0 を部分的に除去する際に、基材 1 4 が保護層 3 0 a により保護されるため、基材 1 4 の劣化が抑制される。また、レーザ加工により触媒層 8 2 を部分的に除去する際に、基材 1 4 が保護層 3 0 b により保護されるため、基材 1 4 の劣化が抑制される。

[0047] 以上の製造工程により、実施の形態 1 に係る膜電極接合体 2 0 が組み込まれた複合膜 1 2 が作製される。なお、上述した製造工程では、各工程でアノードおよびカソードに同様な工程を実施した後、次の工程に移行しているが、たとえば、アノードに一連の工程を施した後、カソードに一連の工程を施してもよい。また、保護層 3 0 を形成する工程は、基材 1 4 に電解質膜 2 2 を予め充填させた後でもよい。

[0048] (電解質膜に形成される厚膜部の形態)

実施の形態 1 では、電解質膜 2 2 の厚膜部 2 3 は直線的な帯状に形成されているが、厚膜部 2 3 の形態はこれに限られず、様々な形態を取りうる。以下の実施の形態では、電解質膜 2 2 に形成される厚膜部 2 3 について例示する。

[0049] (実施の形態 2)

図 1 1 (A) は、実施の形態 2 に係る電解質膜 2 2 を示す平面図である。本実施の形態では、厚膜部 2 3 a と厚膜部 2 3 b が導電方向と直交する方向に間隔を置いて交互に形成されている。厚膜部 2 3 a および厚膜部 2 3 b は、導電方向に延在する横断領域と湾曲領域が組み合わされた帯状の形態であ

る。厚膜部 2 3 a の一方の端部（横断領域の端部）は、導電方向と交差する方向に延在する電解質膜 2 2 の一方の辺 L 1 に達しており、厚膜部 2 3 a の他方の端部（湾曲領域の端部）は、導電方向と交差する方向に延在する電解質膜 2 2 の他方の辺 L 2 と離間している。厚膜部 2 3 b の一方の端部（横断領域の端部）は、辺 L 2 に達しており、厚膜部 2 3 b の他方の端部（湾曲領域の端部）は、辺 L 1 と離間している。また、厚膜部 2 3 a の湾曲領域の湾曲の向きは、導電方向と直交する方向において、厚膜部 2 3 b の湾曲領域の湾曲の向きと反対側になっている。厚膜部 2 3 a の湾曲領域の端部と、隣接する厚膜部 2 3 b の横断領域との間隔が、厚膜部 2 3 a の横断領域と厚膜部 2 3 b の横断領域との間隔に比べて狭くなっている。また、厚膜部 2 3 b の湾曲領域の端部と、隣接する厚膜部 2 3 a の横断領域との間隔が、厚膜部 2 3 a の横断領域と厚膜部 2 3 b の横断領域との間隔に比べて狭くなっている。

[0050] （実施の形態 3）

図 1 1 （B）は、実施の形態 3 に係る電解質膜 2 2 を示す平面図である。本実施の形態では、厚膜部 2 3 は横断領域と湾曲領域とが組み合わされた S 字形状をなしており、その一方の端部は辺 L 1 と離間した状態で辺 L 1 に近接している。また、厚膜部 2 3 の他方の端部は辺 L 2 と離間した状態で辺 L 2 に近接している。厚膜部 2 3 の横断領域は所定の間隔で並設されている。

[0051] （実施の形態 4）

図 1 2 （A）は、実施の形態 4 に係る電解質膜 2 2 を示す平面図である。本実施の形態では、厚膜部 2 3 a および厚膜部 2 3 b は 2 つの横断領域と湾曲領域とが組み合わされた U 字形状をなしており、厚膜部 2 3 a の湾曲領域は辺 L 1 と離間した状態で辺 L 1 に近接している。また、厚膜部 2 3 a の 2 つの横断領域は湾曲領域から辺 L 2 の方へ延在し、横断領域の端部は辺 L 2 と離間している。また、厚膜部 2 3 b の湾曲領域は辺 L 2 と離間した状態で辺 L 2 に近接している。厚膜部 2 3 b の 2 つの横断領域は湾曲領域から辺 L 1 の方へ延在し、横断領域の端部は辺 L 1 と離間している。厚膜部 2 3 a の

横断領域と、厚膜部 23 b の横断領域とは、導電方向に直交する方向で重畳するように配置されている。

[0052] 実施の形態 2 乃至 4 の厚膜部 23 は辺 L1 から辺 L2 まで延在せず、辺 L1 側において辺 L1 から離れていること、辺 L2 側において辺 L2 から離れていることの一方、または両方の形態を有し、帯状の厚膜部 23 が湾曲している点で実施の形態 1 と異なる。電解質膜 22 の面内で導電方向に辺 L1 から厚膜部 23 まで最大の長さ $S1$ と、辺 L2 から厚膜部 23 まで最大の長さ $S2$ のうち大きい方が、 Q または $P/3$ の小さい方より小さい ($\max(S1, S2) > \min(Q, P/3)$) 条件を満たし、 $S1$ から $S2$ の範囲で厚膜部 23 の横断領域が、導電方向に直交する方向で重畳する範囲において、実施の形態 1 で説明したように、 $P/Q > 1$ や $Q/R > 1$ という関係を満たせば、厚膜部 23 辺が L1 から辺 L2 に延在する必要はなく、厚膜部 23 の横断領域は直線状である必要もない。実施の形態 2 乃至 4 によれば、実施の形態 1 に比べて、電解質膜 22 において厚膜部 23 が占める領域を低減することができるため、発電性能をより損なうことなく、実施の形態 1 で説明したような、導電方向のクラック進展抑制効果を得ることができる。なお、実施の形態 2 乃至 4 における最大値 R は、導電方向に延在する直線領域において、導電方向と直交する線上で厚膜部 23 が連続する幅の最大値として定義される。

[0053] (実施の形態 5)

図 12 (B) は、実施の形態 5 に係る電解質膜 22 を示す平面図である。本実施の形態の厚膜部 23 が辺 L1 から辺 L2 に延在する帯状の形態である点では、実施の形態 1 の電解質膜 22 と共通するが、帯状の厚膜部 23 がうねっている点で実施の形態 1 と異なる。このように、実施の形態 1 で説明したように、 $P/Q > 1$ や $Q/R > 1$ という関係を満たせば、厚膜部 23 は直線状である必要はない。

[0054] 本発明は、上述の各実施の形態に限定されるものではなく、当業者の知識に基づいて各種の設計変更等の変形を加えることも可能であり、そのような

変形が加えられた実施の形態も本発明の範囲に含まれるものである。

[0055] たとえば、上述の各実施の形態では、アノード触媒層 24 およびカソード触媒層 26 の両方に厚膜部 23 に起因して導電方向の比率が導電方向に直交する方向の比率に対して優勢になるような異方性を有するクラックが形成されているが、このようなクラックは、アノード触媒層 24、カソード触媒層 26 のいずれか一方に形成されている場合でも、上述したような効果を奏する。

符号の説明

[0056] 10 燃料電池、12 複合膜、14 基材、16 開口部、17 開口部、18 インターコネクタ、20 膜電極接合体、22 電解質膜、23 厚膜部、24 アノード触媒層、26 カソード触媒層、30 保護層、31 開口部、37 燃料貯蔵部、40 アノード用ハウジング、42 カソード用ハウジング、44 空気取入口、50 封止部材、80 触媒層、82 触媒層

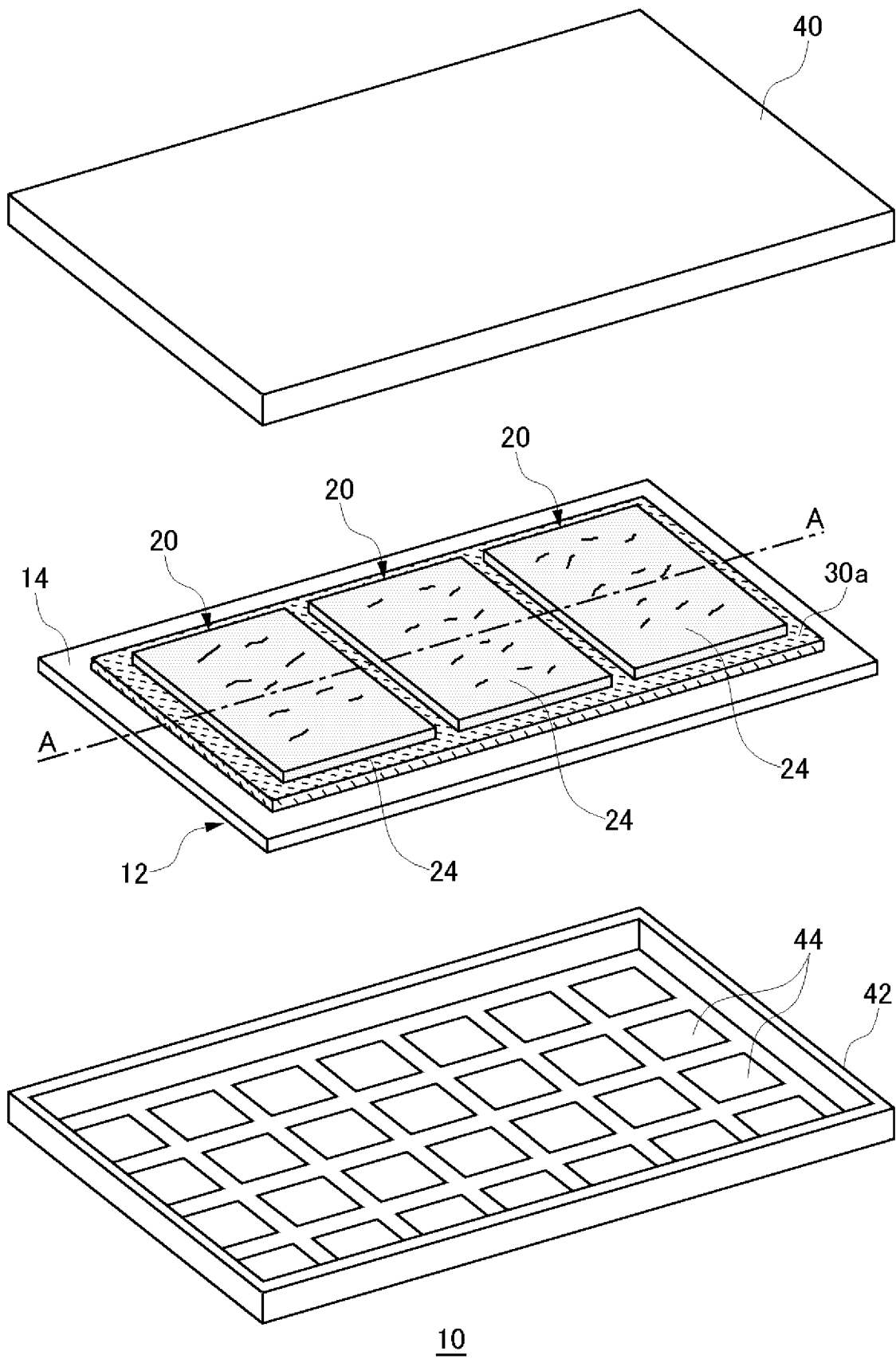
産業上の利用可能性

[0057] 本発明は、燃料電池分野で利用可能である。

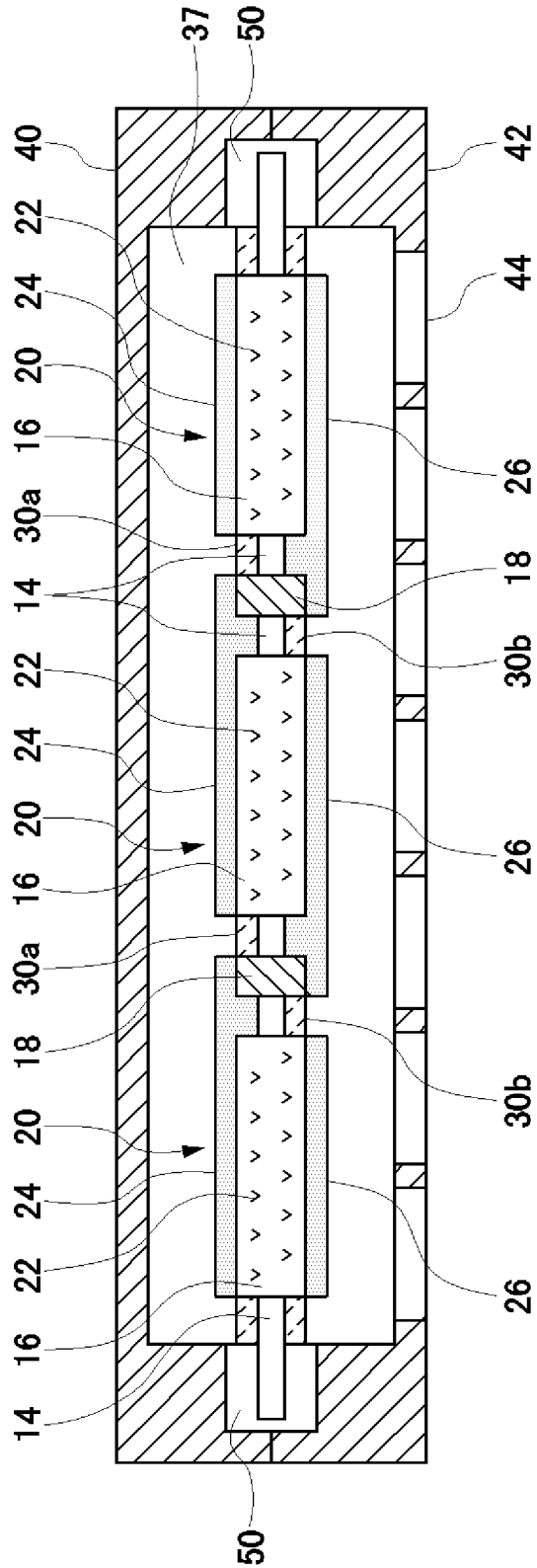
請求の範囲

- [請求項1] 電解質膜と前記電解質膜の一方の面に設けられたアノードと前記電解質膜の他方の面に設けられたカソードとを含む膜電極接合体と、
前記膜電極接合体の周縁部に設けられた集電部と、
を備え、
前記電解質膜に膜厚が相対的に厚い厚膜部が形成されており、
前記アノード、前記カソードの少なくとも一方の電極に形成された個々のクラックについて、電解質膜上における前記集電部に向かう導電方向の成分の長さの総和が、前記導電方向に直交する成分の長さの総和より大きくなるように、前記厚膜部によってクラックの形成が制限されていることを特徴とする燃料電池。
- [請求項2] 前記電解質膜の面内で、前記厚膜部と厚膜部以外の各領域が、電解質膜上の前記導電方向に直交する方向に、交互に配置されている請求項1に記載の燃料電池。
- [請求項3] 前記電解質膜の面内の前記厚膜部と厚膜部以外の各領域が、電解質膜上の前記導電方向に直交する方向に交互に配置されている領域で、前記導電方向と直交する線上において、厚膜部以外の領域が連続する長さの最大値 Q が、前記導電方向の電解質膜の長さ P より小さい請求項2に記載の燃料電池。
- [請求項4] 前記電解質膜の面内で前記導電方向と直交する線上において、厚膜部が連続する長さの最大値 R が、前記最大値 Q より小さい請求項3に記載の燃料電池。
- [請求項5] 前記電解質膜の面内で前記導電方向に、前記厚膜部がいずれか一方の端部より離れて配置されており、離間距離の最大値 S が前記最大値 Q または前記導電方向の電解質膜の長さ P の $1/3$ のいずれか小さい方より小さい請求項4に記載の燃料電池。

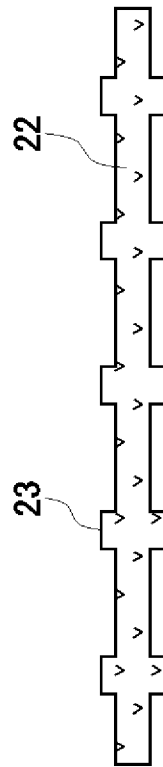
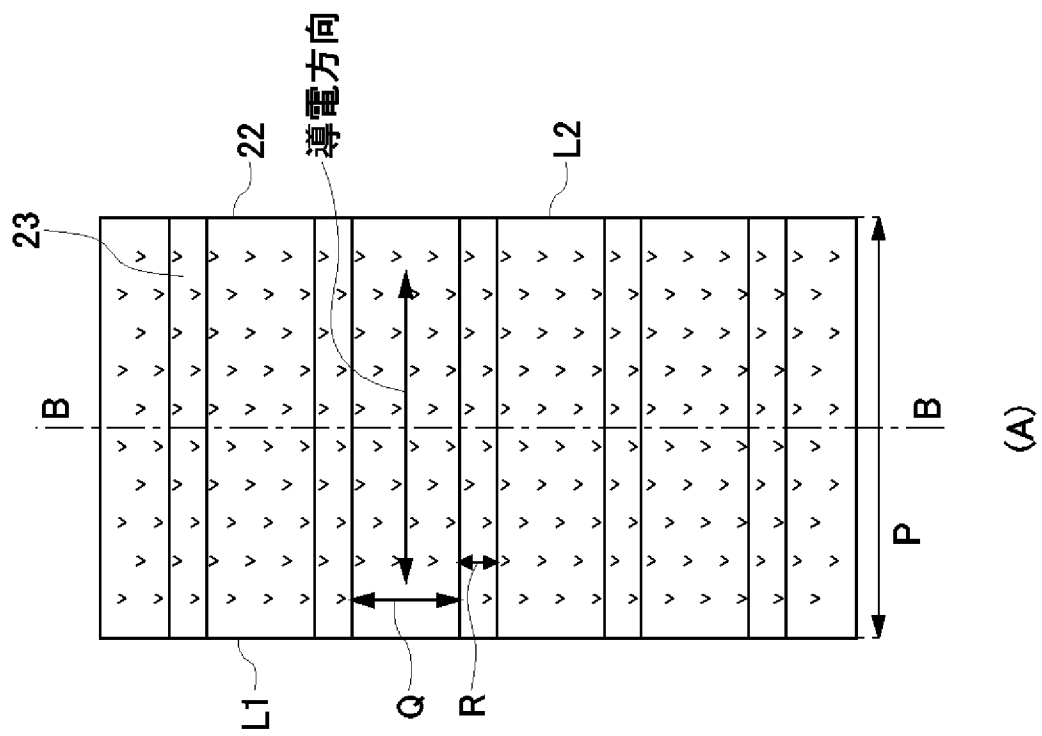
[図1]



[図2]

10

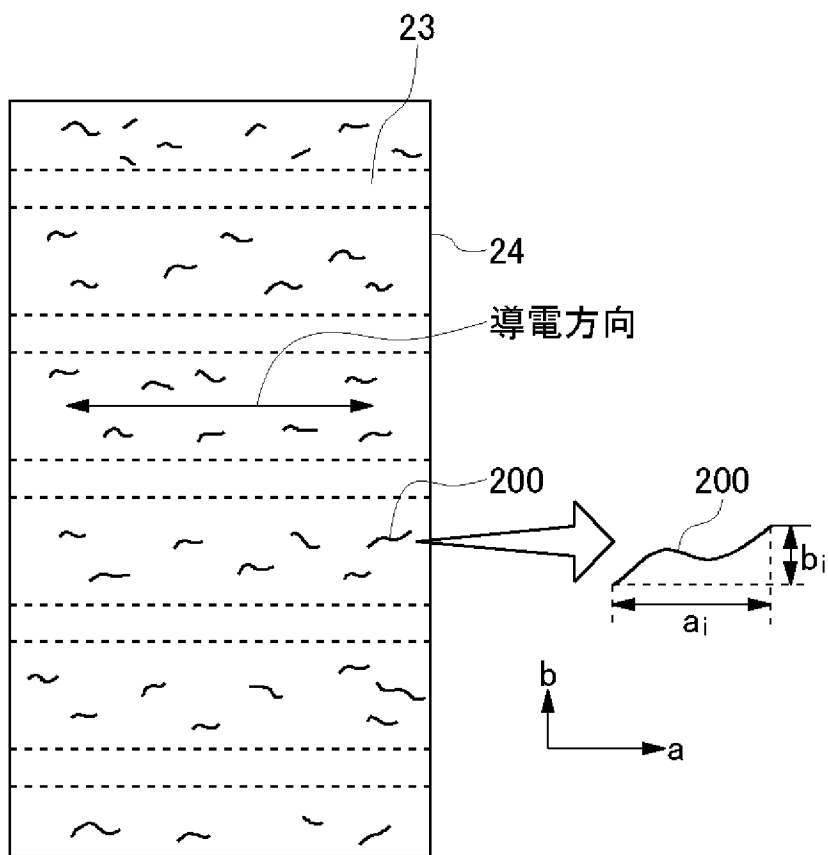
[図3]



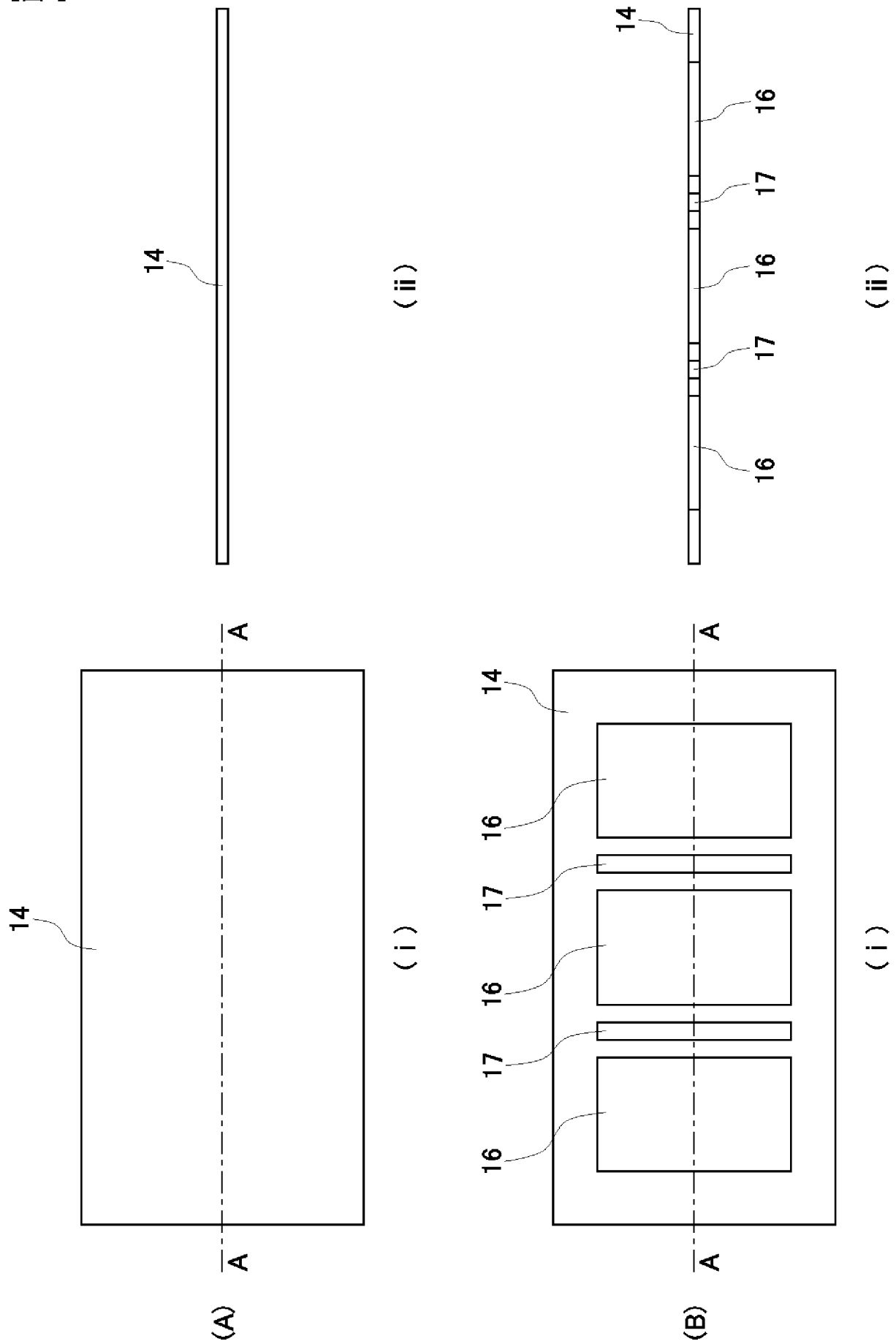
(B)

(A)

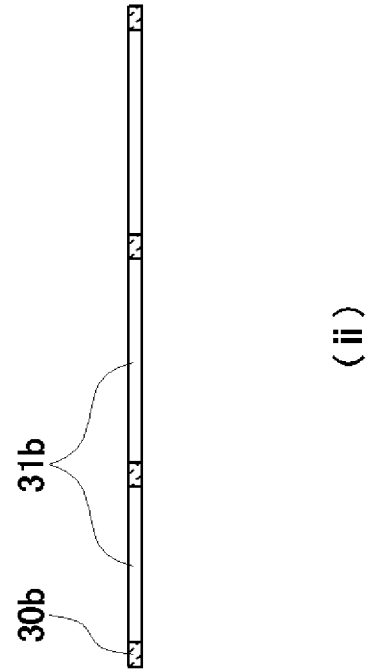
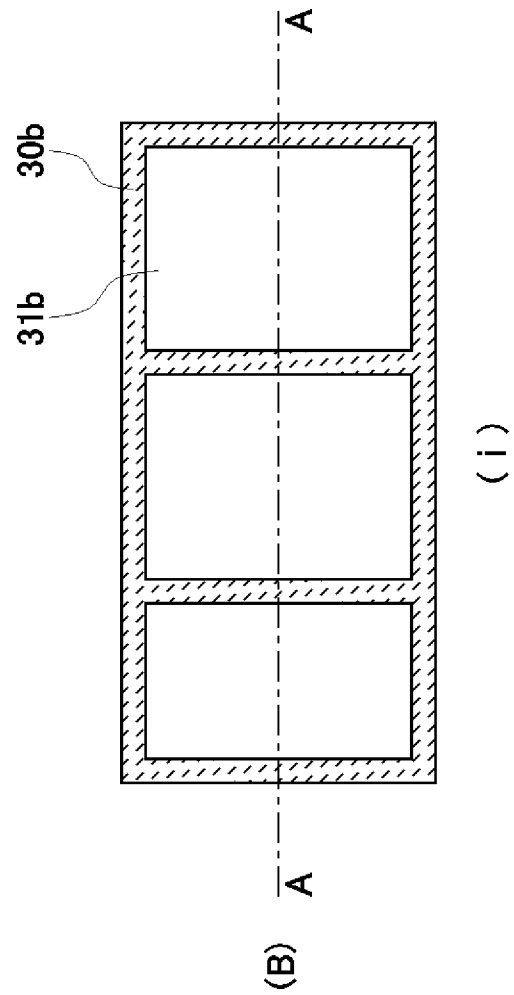
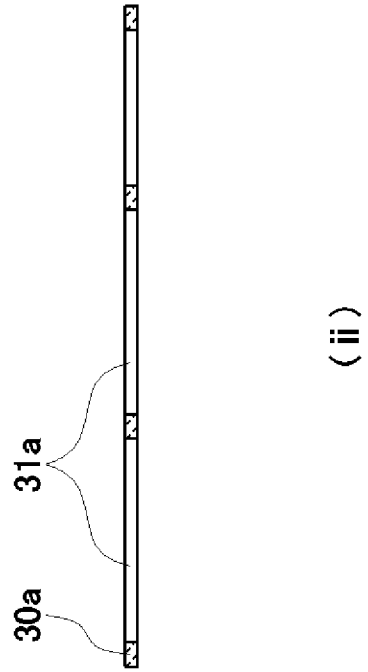
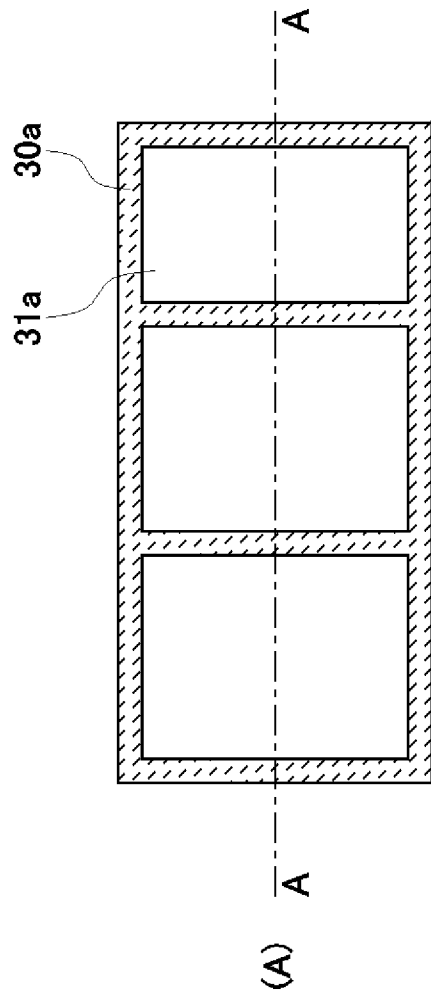
[図4]



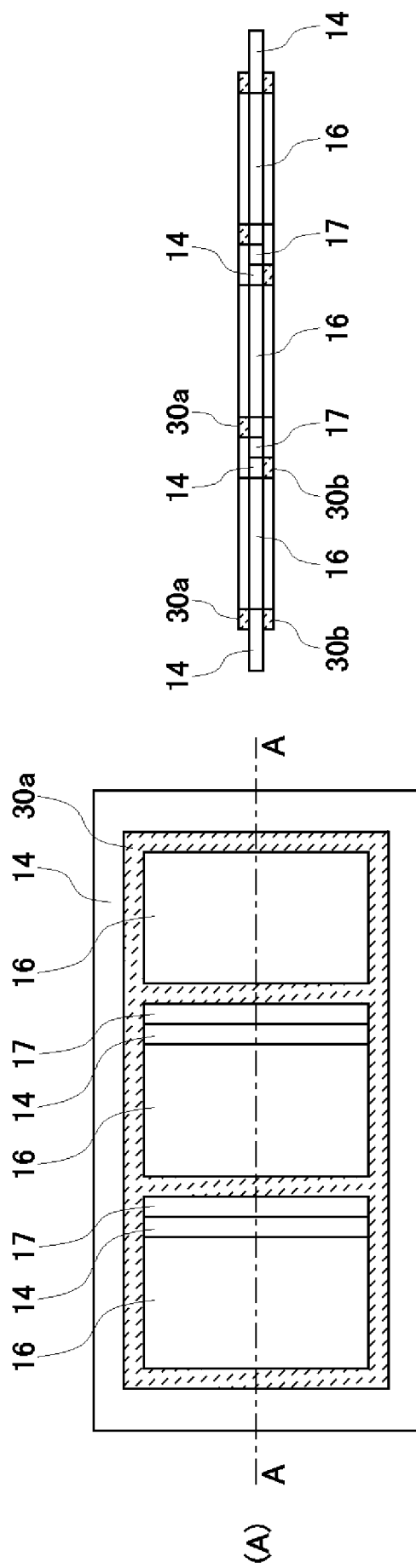
[図5]



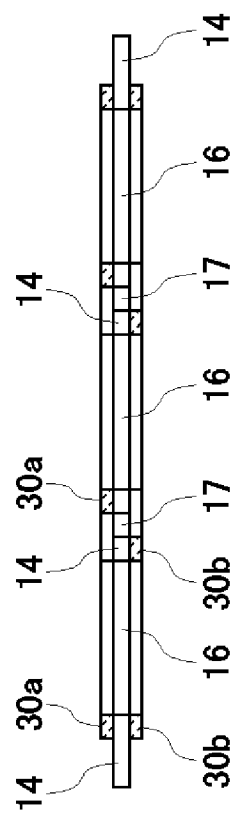
[図6]



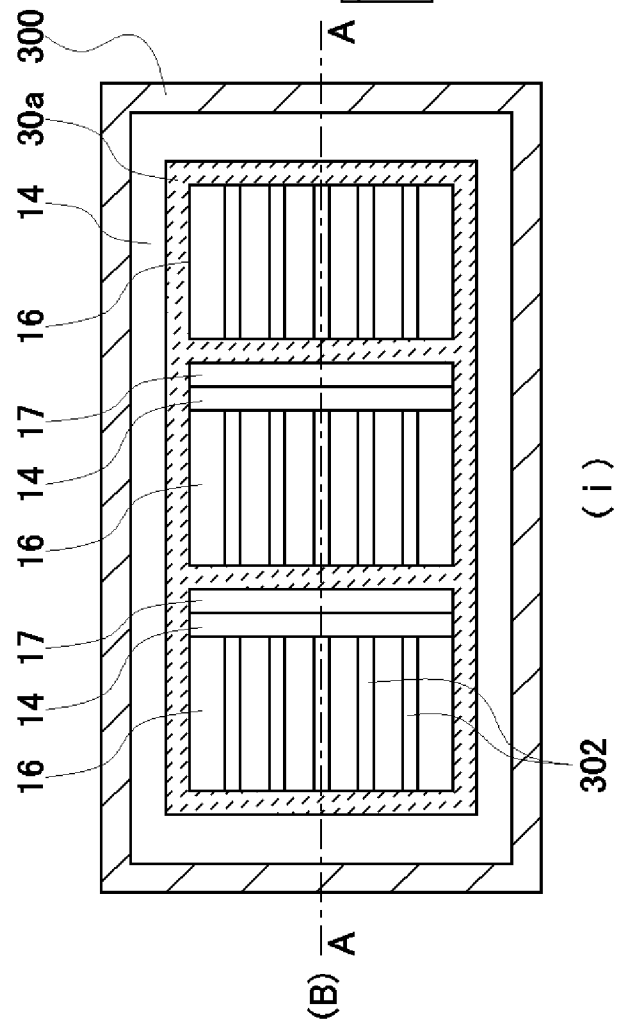
[図7]



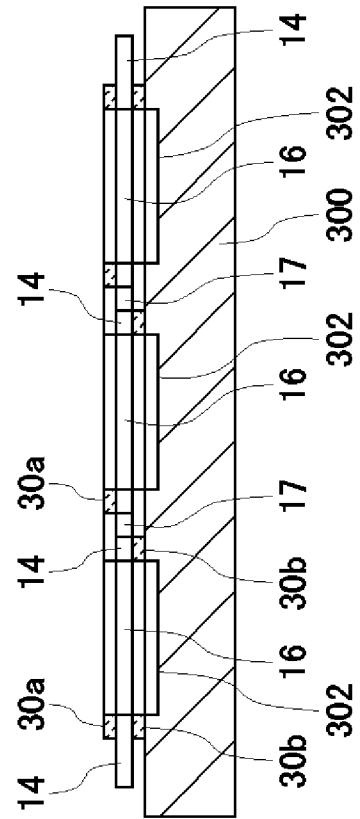
(i)



(ii)

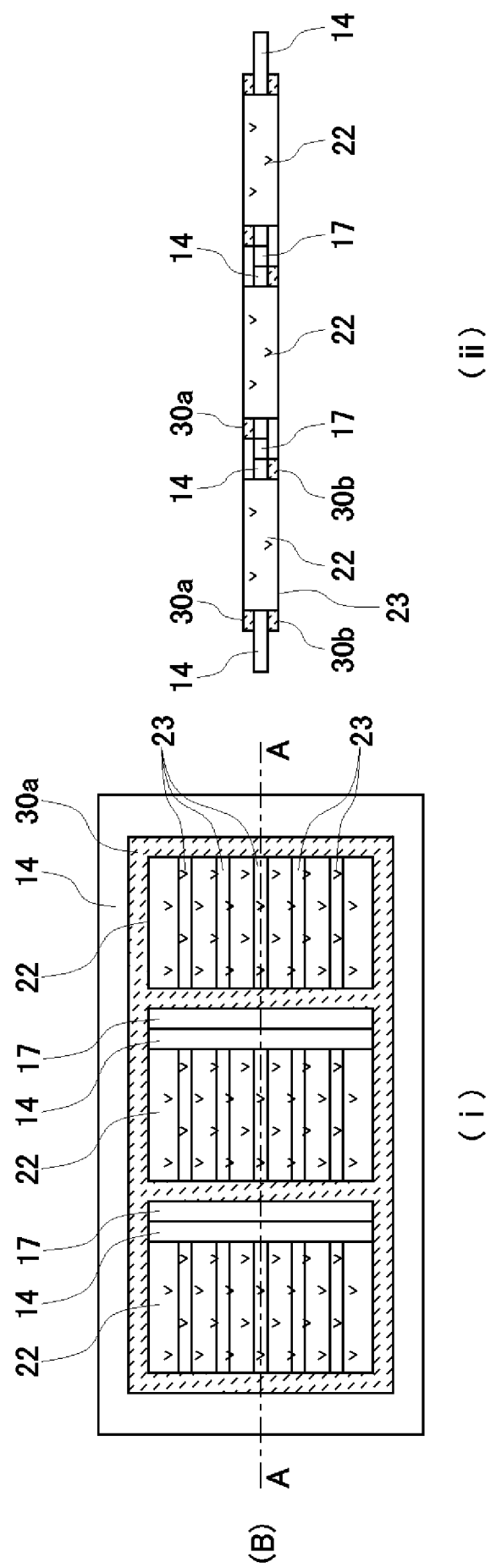
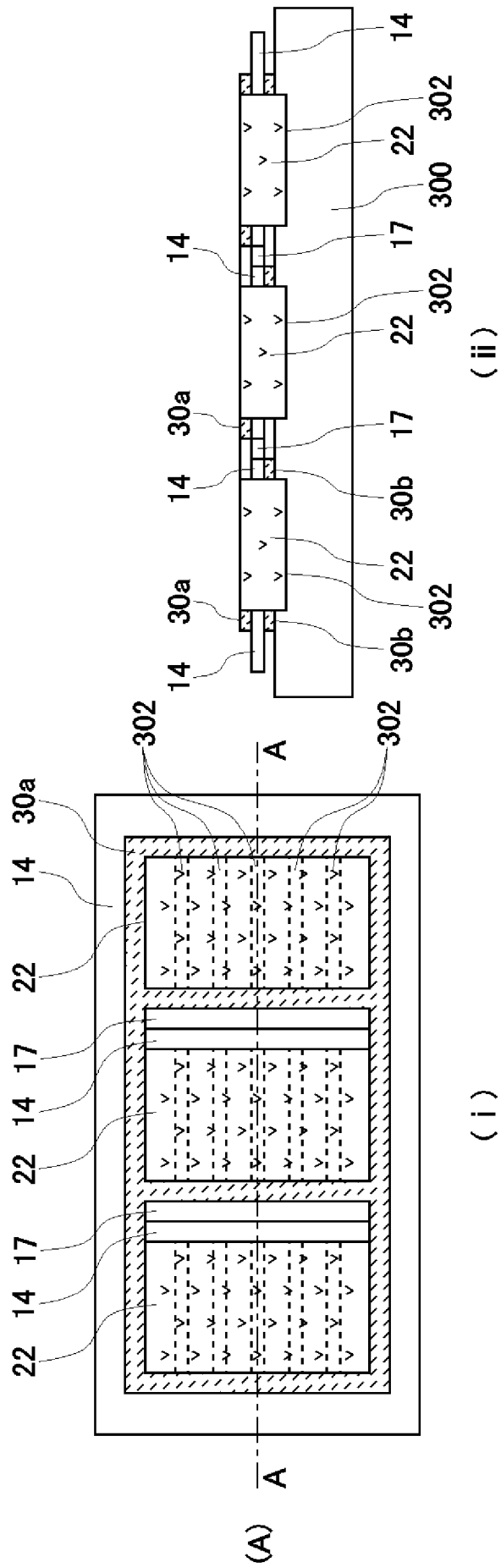


(i)

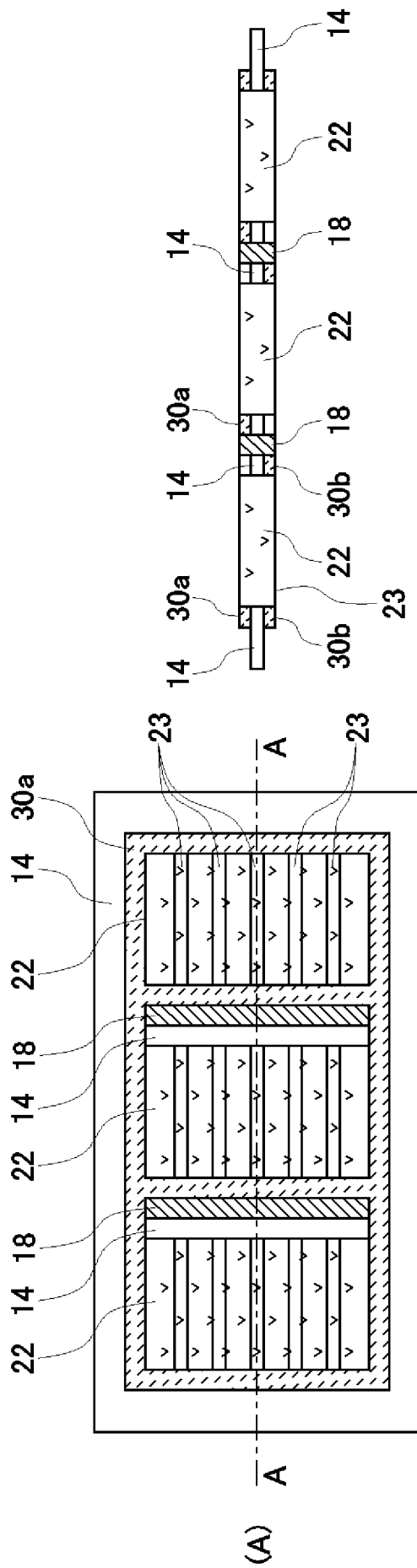


(ii)

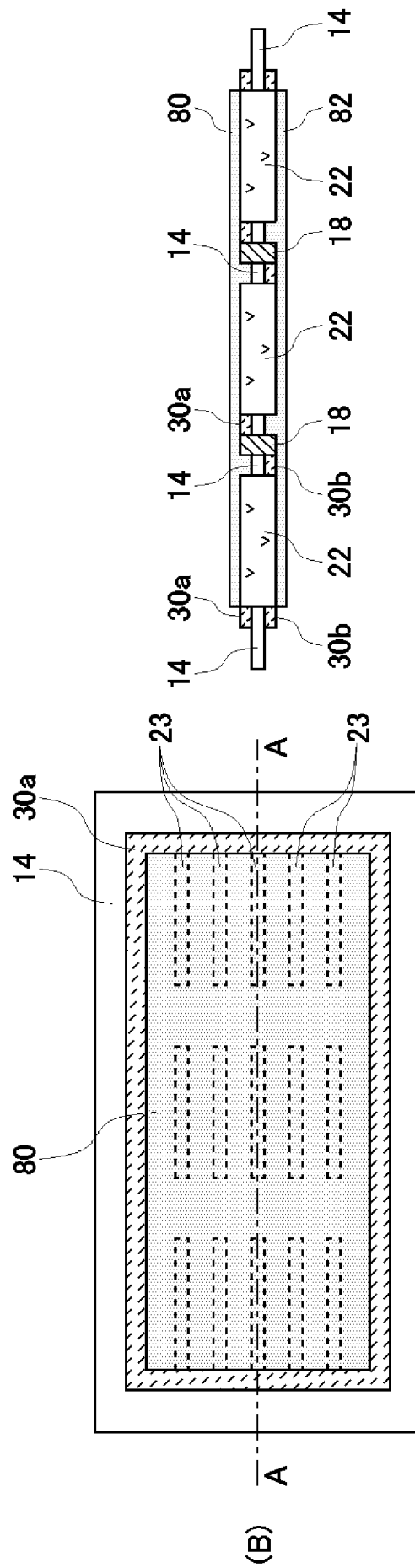
[図8]



[図9]

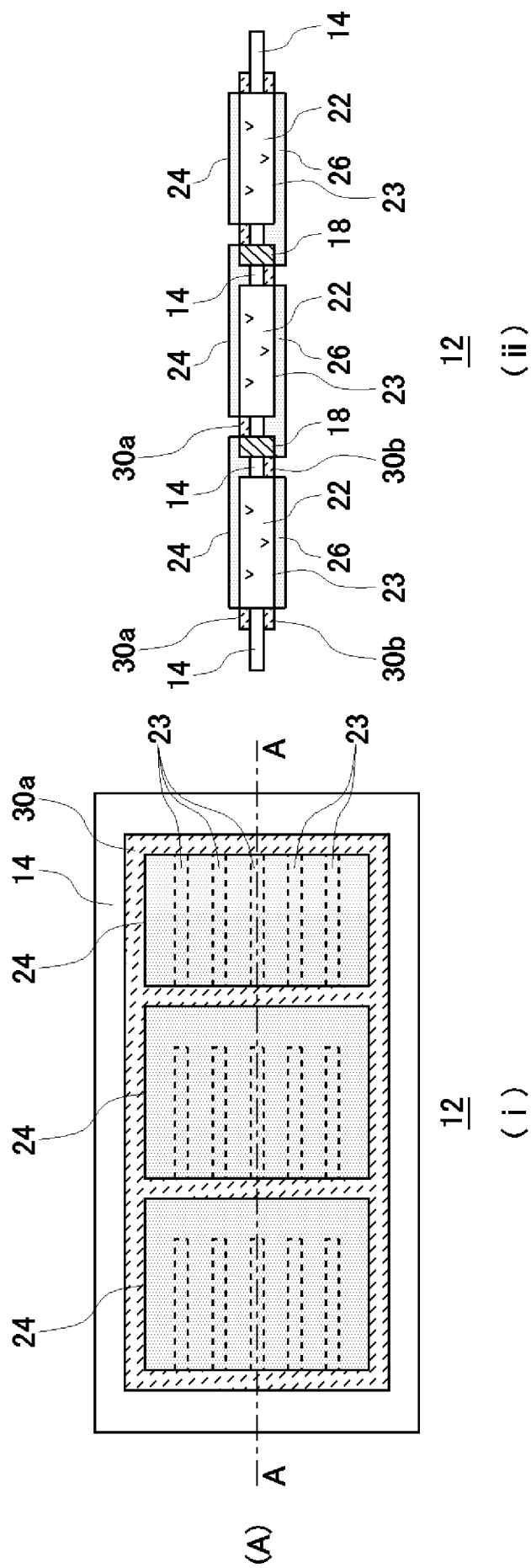


(ii)



(ii)

[図10]



[図11]

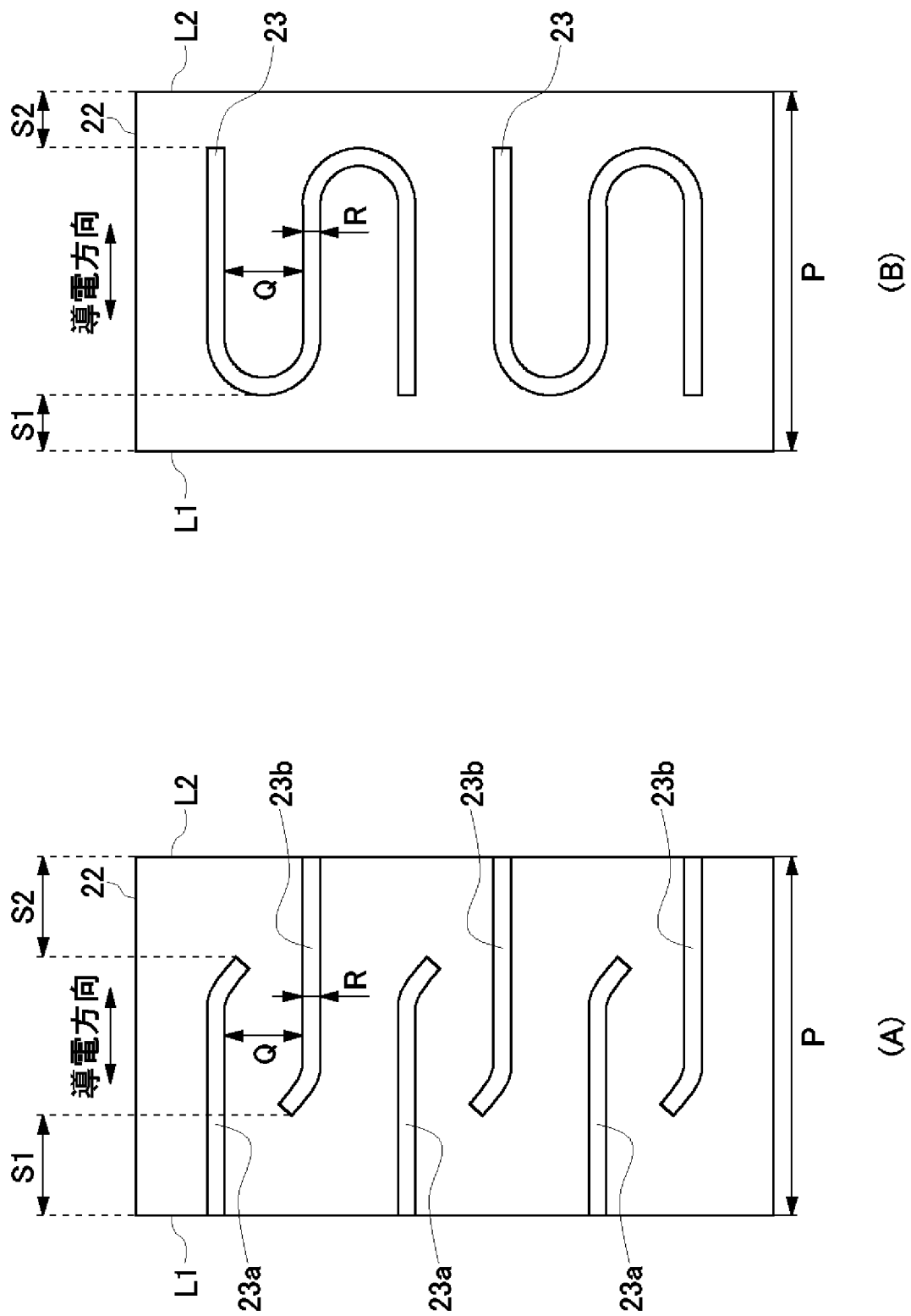


Figure 1 illustrates a plan view of a semiconductor device, showing two cross-sectional views, (A) and (B).

View (A) shows a top layer 22 with a wavy boundary 23a and a bottom layer 23b. The device has a width P and a height S1. A conductive direction is indicated by an arrow. Dimensions S1 and S2 are shown, along with a wavy boundary 23a and a bottom layer 23b. A conductive direction is indicated by an arrow. Dimensions S1 and S2 are shown, along with a wavy boundary 23a and a bottom layer 23b.

View (B) shows a top layer 22 with a wavy boundary 23 and a bottom layer 23. The device has a width P and a height S1. A conductive direction is indicated by an arrow. Dimensions P, Q, and R are shown, along with a wavy boundary 23 and a bottom layer 23. A conductive direction is indicated by an arrow.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/003199

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M8/02(2006.01) i, H01M8/10(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M8/02, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2012

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-174770 A (NEC Corp.), 30 June 2005 (30.06.2005), claims; fig. 1 (Family: none)	1-5
A	JP 2006-331720 A (Hitachi, Ltd.), 07 December 2006 (07.12.2006), claims; fig. 1 (Family: none)	1-5
A	JP 2005-174620 A (Hitachi, Ltd.), 30 June 2005 (30.06.2005), claims; fig. 1 (Family: none)	1-5



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

29 June, 2012 (29.06.12)

Date of mailing of the international search report

10 July, 2012 (10.07.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01M8/02(2006.01)i, H01M8/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01M8/02, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2005-174770 A (日本電気株式会社) 2005.06.30, 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2006-331720 A (株式会社日立製作所) 2006.12.07, 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2005-174620 A (株式会社日立製作所) 2005.06.30, 【特許請求の範囲】、【図1】 (ファミリーなし)	1-5

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29.06.2012

国際調査報告の発送日

10.07.2012

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 寛之

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4 X

2930