【公報種別】特許法第１７条の２の規定による補正の掲載
【部門区分】第７部門第１区分
【発行日】平成19年8月23日(2007.8.23)

【公開番号】特開2007-180050(P2007-180050A)
【公開日】平成19年7月12日(2007.7.12)
【年通号数】公開・登録公報2007-026
【出願番号】特願2007-58384(P2007-58384)
【国際特許分類】
Ｈ０１Ｍ　8/04　(2006.01)
Ｈ０１Ｍ　8/10　(2006.01)
【ＦＩ】
Ｈ０１Ｍ　8/04　Ｙ
Ｈ０１Ｍ　8/10
Ｈ０１Ｍ　8/04　Ｈ

【手続補正書】
【提出日】平成19年5月31日(2007.5.31)
【手続補正１】
【補正対象書類名】特許請求の範囲
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更
【補正の内容】
【特許請求の範囲】
【請求項１】
入口及び出口を有しカソードを経由する酸化剤流路と入口及び出口を有しアノードを経由する還元剤流路とを有し、前記酸化剤流路の入口より酸化剤物質が供給され、前記還元剤流路の入口より還元剤物質が供給され、前記酸化剤物質及び前記還元剤物質が前記カソード及び前記アノードにおいて電気化学反応をして、発電を行うように構成された高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法であって、
未設置状態の前記高分子電解質型燃料電池スタックを、前記カソード及び前記アノードの触媒層の面積あたり０．１Ａ／ｃｍ^{2}以上、０．４Ａ／ｃｍ^{2}以下の電流密度において所定の発電継続時間の間継続して発電させる発電処理ステップと、
前記発電処理ステップ後に前記酸化剤流路内及び前記還元剤流路内を減圧状態とする揮発除去ステップと、
前記減圧状態を維持する維持ステップと、を有する、高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法。
【請求項２】
前記発電継続時間は、３時間以上である、請求項１に記載の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法。
【請求項３】
前記発電継続時間は、電圧変動が２ｍＶ／ｈ以下になるまでの時間である、請求項１に記載の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法。
【請求項４】
前記発電処理ステップが前記高分子電解質型燃料電池スタック製造後３００時間以内に行われる、請求項１に記載の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法。
【手続補正２】
【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更

【補正の内容】
【発明の詳細な説明】
【発明の名称】高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法
【技術分野】
【０００１】
本発明は、高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
従来の高分子電解質型燃料電池（以下ＰＥＦＣと略称する）の停止方法においては、酸化剤物質及び還元剤物質の供給を遮断すると共に、ＰＥＦＣスタック内に残存するこれら物質を窒素等の不活性ガス等によってパージを行っている（特許文献１参照）。また、その後のＰＥＦＣの停止中においても、一般的には、空気がＰＥＦＣスタック内に侵入しないように酸化剤流路及び還元剤流路に不活性ガス等を充填している（特許文献２参照）。これによって、ＰＥＦＣスタック内の電極触媒層の酸化が防止され、ＰＥＦＣの性能の劣化を防止することができる。また、ＰＥＦＣの発電停止中に、セパレータの電位を所定の値に保って保管する方法も提案されている（特許文献３参照）。
【０００３】
他方で、高分子電解質膜－電極接合体（ＭＥＡ；Ｍｅｍｂｒａｎｅ－Ｅｌｅｃｔｒｏｄｅ－Ａｓｓｅｍｂｌｙ）の作製において、電極触媒層は、例えば、触媒層形成用塗料を調製し、当該塗料を高分子電解質膜表面に塗布することにより形成される。触媒層形成用塗料には溶媒としてアルコール成分が含有されている。例えば、白金－ルテニウム合金粒子、あるいは白金粒子を担持したカーボン粉末が触媒粉末とされ、この触媒粉末がパーフルオロカーボンスルホン酸高分子を含有するエチルアルコール分散液と混合されてペーストとされる。このペーストが、高分子電解質膜表面に塗工されることによって、電極触媒層が形成される。このアルコール成分からなる溶媒はＭＥＡ製造後も多孔質の電極触媒層の一部に入り込んで残存する。
【０００４】
ここで、高分子電解質膜と電極触媒層との界面のイオン抵抗が高くなるという欠点、さらには、電極触媒層と拡散電極層とが十分に接合されず、電極触媒層と拡散電極層との界面の電子抵抗が高くなるという欠点を改善する方法として、２枚の電極で高分子電解質膜を挟んだ挟持体を溶媒中で加熱、加圧し、一体化する方法が提案されている（例えば、特許文献４参照）。また、予め溶媒を含んだ高分子電解質膜および／または電極触媒層を用い、実質上溶媒には浸漬しない状態で加熱および加圧する方法が提案されている（例えば、特許文献５参照）。この方法によると、一体化工程中にＭＥＡ内の溶媒が蒸発する為、溶媒による高分子電解質膜の膨潤が抑制され、高分子電解質膜と触媒層との界面の接合状態が良好なまま維持されるという効果が記載されている。
【特許文献１】特開平６－２５１７８８号公報
【特許文献２】特開平７－２７２７３８号公報
【特許文献３】特開平５－２５８７６２号公報
【特許文献４】特開平３－２０８２６２号公報
【特許文献５】特開２００２－９３４２４号公報
【発明の開示】
【発明が解決しようとする課題】
【０００５】
特許文献１乃至３に例示されるように、発電開始後において電極触媒層が触媒活性温度に達している状況において空気など酸化物が接触すると電極触媒層が酸化し、性能が低下することは知られていた。
【０００６】
しかし、ＰＥＦＣは、発電開始前であっても、ＰＥＦＣスタックの組立製造後発電開始までの期間が長くなると、出力電圧の低下などの性能の劣化、特に出力電圧の電圧降下率

の上昇が顕著に発現することを本発明者は見出した。本発明者の検証の結果、かかる性能の劣化は電極触媒上に残存する残留溶媒の酸化物がひとつの要因であることが分かった。

【０００７】

従来、このようなＰＥＦＣの発電開始前における性能の劣化については、当業者の間でもさほど関心が払われていなかった。このため、従来のＰＥＦＣの停止方法等は、供用開始後の対応であり、ＰＥＦＣスタックの製造後からＰＥＦＣシステムに組み込まれる前までの電極触媒層の劣化の防止を図るものではなかった。つまり、従来のＰＥＦＣの性能劣化の防止方法は、ＰＥＦＣシステムとしてＰＥＦＣの性能劣化の防止を図る方法となっている。具体的には、ＰＥＦＣスタックの酸化剤流路及び還元剤流路に接続された配管等を通じて外部の周辺機器より不活性ガス等を供給する仕組みであるので、ＰＥＦＣシステムに組み込まれる前、特に在庫時、運搬時のように単体状態のＰＥＦＣスタックには適用できないものであった。

【０００８】

そこで、本発明は、上記のような課題を解決するためになされたもので、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を抑制する高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【０００９】

本発明者らは、上記目的を達成するべく鋭意研究を重ねた結果、未設置状態のＰＥＦＣスタックの性能劣化の原因は、ＭＥＡの電極触媒層においてアルコール等の残留溶媒と酸素とが反応して酢酸等の酸化物が生成され、この酸化物によって触媒は被毒され、かかる被毒が長期に及ぶと電極触媒層の変質が進展して、電極触媒の性能が劣化しているものと推測した。また、特許文献４及び５においては、溶媒の蒸発によってＭＥＡ製造時における高分子電解質膜の膨潤を抑制することができるとしている。しかし、発明者らが検証した結果では未設置状態のＰＥＦＣスタックの性能劣化にはほとんど効果がなかった。これは、触媒電極層は多孔質体であることから、触媒電極層内部に入り込んでいる溶媒が蒸発せずに残留しているものと推測された。

【００１０】

発明者らは、これら推測に基づいて本発明に想到して、その効果を検証したところ、その効果があることを見出した。

【００１１】

すなわち、上記課題を解決するために、第１の本発明の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法は、入口及び出口を有しカソードを経由する酸化剤流路と入口及び出口を有しアノードを経由する還元剤流路とを有し、前記酸化剤流路の入口より酸化剤物質が供給され、前記還元剤流路の入口より還元剤物質が供給され、前記酸化剤物質及び前記還元剤物質が前記カソード及び前記アノードにおいて電気化学反応をして、発電を行うように構成された高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法であって、未設置状態の前記高分子電解質型燃料電池スタックを、前記カソード及び前記アノードの触媒層の面積あたり０．１Ａ／ｃｍ^{2}以上、０．４Ａ／ｃｍ^{2}以下の電流密度において所定の発電継続時間の間継続して発電させる発電処理ステップと、

前記発電処理ステップ後に前記酸化剤流路内及び前記還元剤流路内を減圧状態とする揮発除去ステップと、

前記減圧状態を維持する維持ステップと、を有する。このような構成とすると、減圧状態において酸化剤側電極触媒層及び還元剤側電極触媒層に残留する溶媒が揮発状態となるので、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を十分に抑制することができる。また、減圧状態においては、酸化剤流路及び還元剤流路中の酸素濃度を大気中の酸素濃度未満に容易に保つことができ、電極触媒層に残存する有機溶媒成分の部分酸化反応、脱水縮合反応（有機溶媒成分同士の反応、部分酸化物同士の反応、有機溶媒成分と部分酸化物との反応を含む）

等を十分に防止できるので、この観点からも、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を十分に抑制することができる。

【００１２】

ここで、未設置状態とは、高分子電解質型燃料電池スタックの組立製造後燃料電池システムに組み込まれる前までの状態をいう。具体的には、高分子電解質型燃料電池スタックの酸化剤流路に酸化剤物質供給装置が接続される前までの状態、あるいは還元剤流路に還元剤物質供給装置が接続される前までの状態をいい、例えば、高分子電解質型燃料電池スタックが保存あるいは運搬される状態を言う。また、高分子電解質型燃料電池スタックの製造工程において本発明の保存方法を組み込むような場合も未設置状態の高分子電解質型燃料電池スタックに含まれる。例えば、ＭＥＡが積層されて仮締結状態で保存され、高分子電解質型燃料電池システムへの組込時あるいはその直前において、集電板、端板等が両端に配設されて高分子電解質型燃料電池スタックが最終的に組み上げられるという製造方法においては、この仮締結状態が実質的に高分子電解質型燃料電池スタックの未設置状態に該当する。

【００１３】

また、このような構成とすると、揮発除去ステップにおいて酸化剤側電極触媒層及び還元剤側電極触媒層に残留する溶媒の揮発が促進されるとともに、揮発した溶媒が高分子電解質型燃料電池スタック外に除去され、かつ維持ステップにおいて溶媒の揮発状態が維持されるので、高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を抑制することができる。

【００１４】

さらに、このように高分子電解質型燃料電池スタックを発電させることにより、高分子電解質型燃料電池スタック内に残留している溶媒や金属等の異物を、電気化学反応による生成水とともに除去することができるので、高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化をさらに抑制することができる。

【００１５】

本発明の効果をより確実に得る観点から、第２の本発明の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法は、前記発電継続時間は、３時間以上であるとよい。

【００１６】

本発明の効果をより確実に得る観点から、第３の本発明の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法は、前記発電継続時間は、電圧変動が２ｍＶ／ｈ以下になるまでの時間であるとよい。

【００１７】

本発明の効果をより確実に得る観点から、第４の本発明の高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法は、前記発電処理ステップが前記高分子電解質型燃料電池スタック製造後３００時間以内に行われるとよい。

【発明の効果】

【００１８】

以上のように、本発明によれば、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を抑制する高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法を提供することができる。また、本発明によれば、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を十分に防止できる高分子電解質型燃料電池スタックの保存処理体を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１９】

以下、本発明を実施するための最良の形態について図面を参照しながら説明する。本発明の上記効果、他の効果、特徴及び利点は、添付図面参照の下、以下の好適な実施態様の詳細な説明から明らかにされる。

【００２０】

（第１参考形態）
本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存方法について説明する。
【００２１】
図１は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。図２は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体にふくまれるＰＥＦＣスタックの構造を示す分解斜視図である。
【００２２】
第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体３００にふくまれるＰＥＦＣスタック２００は、電気化学反応により発電する単電池（セル）１００を積層して構成されている。図２に示すように、単電池（セル）１００は、互いにほぼ同型の平面を有する、矩形板状のＭＥＡ１００、カソードセパレータ１５及びアノードセパレータ２０を有して構成されている。そして、ＭＥＡ１０は、一方の面をカソードセパレータ１５、他方の面をアノードセパレータ２０が接するようにして挟まれている。セル１００の積層方向端部は、集電板４１，４１、及び絶縁板４２，４２を介して端板４３，４３で挟まれ、端板４３，４３間が締結ボルト（図示せず）で両側から締結されて構成されている。ＰＥＦＣスタック２００は、家庭用コージェネレーションシステム、自動二輪車、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、家電製品、携帯用コンピュータ装置、携帯電話、携帯用音響機器、携帯用情報端末などの携帯電気装置等のＰＥＦＣシステムに用いられる。
【００２３】
集電板４１，４１の電気端子４１ａ，４１ａは、電気機器等の外部負荷と接続されて電気を出力する。ＰＥＦＣスタック２００には、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０が形成されている。
【００２４】
酸化剤流路３０は、酸化剤物質が、酸化剤流路入口部３０ａから供給され、各セル１００に分岐し、各セル１００流通後は、再び合流して酸化剤流路出口部３０ｂよりＰＥＦＣスタック２００外に排出されるように構成されている。また、一般的に、酸化剤流路３０は、他の流路との交流はなく、酸化剤流路入口部３０ａ及び酸化剤流路出口部３０ｂが封止されると閉塞されるように構成されている。還元剤流路４０も同様にして構成されている。本実施の形態では、酸化剤物質として、酸素あるいは空気が用いられる。また、還元剤物質として水素あるいは水素を含む物質が用いられる。
【００２５】
ここでは、ＰＥＦＣスタック２００片側の端板４３に酸化剤流路入口部３０ａ及び還元剤流路入口部４０ａが形成されている。還元剤流路４０も同様にして構成されている。
【００２６】
なお、ＰＥＦＣスタック２００には、ＰＥＦＣスタック２００の温度を調整するために、水などの冷却剤が流通する冷却剤流路４５も構成されている。冷却剤流路４５は、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０とは別個に構成されていて、冷却剤が、冷却剤流路入口部４５ａからＰＥＦＣスタック２００内に供給され、ＰＥＦＣスタック２００内で分岐して積層された各セル１００の間を流通して冷却剤流路出口部４５ｂから外部に排出されるように構成されている。
【００２７】
ここで、セル１００は、ＭＥＡ１０と、カソードセパレータ１５と、アノードセパレータ２０とを積層して構成されている。そして、図２に示すようにＭＥＡ１０とカソードセパレータ１５との間には酸化剤流路３０が形成され、ＭＥＡ１０とアノードセパレータ２０との間には還元剤流路４０が形成されている。
【００２８】
図３は、ＭＥＡの基本構造を示す模式図である。
【００２９】
ＭＥＡ１０は、水素イオンを選択的に透過するイオン交換膜からなる高分子電解質膜１と、高分子電解質膜１を挟むように形成された、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末

を主成分とする一対の電極触媒層（酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３）と、この一対の電極触媒層の外面に配設された一対の拡散電極層（酸化剤側拡散電極層４及び還元剤側拡散電極層５）とを備えて構成されている。この拡散電極層４，５は、通気性と電子伝導性を併せ持つように構成されている。例えば、多孔性構造を有している。

【００３０】

そして、酸化剤側電極触媒層２，酸化剤側拡散電極層４及びカソードセパレータ１５がカソードを構成している。

【００３１】

また、還元剤側電極触媒層３，還元剤側拡散電極層５及びアノードセパレータ２０がアノードを構成している。

【００３２】

次に以上のように構成されたＰＥＦＣスタック２００の動作を説明する。酸化剤物質が酸化剤流路３０を経由して各セル１００に分岐して供給される。各セル１００では、酸化剤物質がカソードに供給される。ここでは、酸化剤側拡散電極層４に曝露される。また、水素、あるいは水素を含む還元剤物質も同様にして、アノードに供給される。ここでは、還元剤流路４０を経由して還元剤側拡散電極層５に曝露される。

【００３３】

そして、酸化剤物質は、酸化剤側拡散電極層４を透過し、酸化剤側電極触媒層２に到達する。同様にして、還元剤物質も、還元剤側拡散電極層５を透過し、還元剤側電極触媒層３に到達する。

【００３４】

カソードセパレータ１５、アノードセパレータ２０、集電板４１、４１（図１参照）及び外部の電気回路（図示せず）を経由して酸化剤側電極触媒層２と還元剤側電極触媒層３との電気的な接続回路が構成されると、還元剤側電極触媒層３において、水素がイオン化する。

【００３５】

水素イオンは高分子電解質膜１を透過して酸化剤側電極触媒層２において、酸素イオンと結合し、水を生成する。また、水素のイオン化に伴い還元剤側電極触媒層３において発生した電子は、還元剤側拡散電極層５を経由して外部の電気回路（図示せず）を流れ、電気出力を生じさせる。

【００３６】

ところで、酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３は、以上の動作から明らかなように、酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内に充満する物質に暴露される。従って、製造直後の燃料電池においては、酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３は酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内に充満する空気に暴露される。そして、酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３が空気に暴露されると、酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３中に残存している残留溶媒が酸化反応を起こし、酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３の触媒を被毒させる可能性がある。

【００３７】

そこで、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体３００は次のように構成されている。

【００３８】

ＰＥＦＣスタックの保存処理体３００は、ＰＥＦＣスタック２００と、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０を減圧状態に維持する気密性容器５０と、を有する。

【００３９】

気密性容器５０は、高真空に耐えることが可能な袋又は箱で構成され、排気口５０ｂが形成されている。排気口５０ｂには、排気装置６１が気密的に装着されている。

【００４０】

気密性容器５０は、例えば、ナイロン、ポリエチレン等の樹脂製の袋、金属製の箱で構成されている。ここでは、気密性容器５０は、多重のポリエチレン製の袋で構成されてい

る。
【００４１】
ここで、気密性容器５０と排気装置６１とが維持ユニットを構成している。維持ユニットに排気装置６１を有することによって、排気装置６１の断続的な作動によって酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の減圧状態を長期に亘って継続することが可能となるので、ＰＥＦＣスタック２００の性能劣化が長期に亘って抑制することができる。
【００４２】
また、排気口５０ｂには、外部から気体が流入せずに気密性容器５０内部の減圧状態が維持されるように逆止弁（図示せず）が構成されてもよい。この逆止弁によって、排気装置６１の脱落あるいは気密的装着の損壊によっても、気密性容器５０内の減圧状態の崩壊を抑制することができる。
【００４３】
また、ＰＥＦＣスタック２００は、未設置状態のＰＥＦＣスタックである。未設置状態とは、ＰＥＦＣスタックの組立製造後燃料電池システムに組み込まれる前までの状態をいう。具体的には、ＰＥＦＣスタックの酸化剤流路に酸化剤物質供給装置が接続される前までの状態、あるいは還元剤流路に還元剤物質供給装置が接続される前までの状態をいい、例えば、ＰＥＦＣスタックが保存あるいは運搬される状態を言う。また、ＰＥＦＣスタックの製造工程において本発明の保存方法を施すような場合も未設置状態のＰＥＦＣスタックに含まれる。例えば、ＭＥＡが積層されて仮締結状態で保存され、ＰＥＦＣシステムへの組込時あるいはその直前において、集電板、端板等が両端に配設されてＰＥＦＣスタックが最終的に組み上げられるという製造方法においては、この仮締結状態が実質的にＰＥＦＣスタックの未設置状態に該当する。
【００４４】
次に、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を説明する。
【００４５】
図４は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を示すフローチャートである。
【００４６】
まず、ステップ（揮発除去ステップ）Ｓ１においては、未設置状態のＰＥＦＣスタック２００の酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内を減圧して、減圧状態にする。ここでは、図１に示すように排気口５０ｂに排気装置６１が気密的に装着されて、排気装置６１によって、気密性容器５０内部、すなわち酸化剤流路３０及び還元剤流路４０が排気されて減圧される。
【００４７】
ここで、減圧は、真空度10^{-5}Ｐａ～10^{-1}Ｐａの範囲内に到達するように行う。このような減圧には、例えば、排気装置６１としてＵＬＶＡＣ社製Ｇ－１００Ｄを用いることができる。なお、真空度は高い方がアルコール等溶媒の揮発が促進されるので好ましい。しかし、真空度を高め過ぎるとＰＥＦＣスタック２００の内部構造が損壊するおそれがあるので、真空度は10^{-5}Ｐａまでが好ましい。
【００４８】
なお、多重のポリエチレン製の気密性容器５０は以下のようにして完成される。すなわち、多重のポリエチレン製フィルムからなる筒体５０’の一端が、溶着により、耳部５０ｃを形成するようにして閉鎖され、他端が開放されて開口部５０ａを構成している。そして、筒体５０’の外周面に樹脂製の小さい筒体が筒体５０’の内部に連通するように固着されて排気口５０ｂを形成している。そして、開口部５０ａからＰＥＦＣスタック２００が内部に収容されて、開口部５０ａが耳部５０ａを形成するようにして、開口部５０ａが溶着して閉鎖される。
【００４９】
次に、ステップ（維持ステップ）Ｓ２においては、排気口５０ｂに装着された排気装置６１を断続的に作動させる。これによって、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の減圧状

態を長期に亘って継続することが可能となるので、ＰＥＦＣスタック２００の性能劣化を長期に亘って抑制することができる。

【００５０】

なお、排気装置６１はステップＳ１及びステップＳ２において付け替えることもできる。すなわち、ステップＳ１においては、排気装置６１として比較的大型の真空ポンプ（例えば、ＵＬＶＡＣ社製Ｇ－１００Ｄ）を配管を介して排気口５０ｂに接続し、ステップＳ２においては、該配管を排気口５０から取り外して小型の真空ポンプ（例えば、ＵＬＶＡＣ社製ＧＨＤ－０３０）を排気口５０ｂに気密的に装着することができる。この付け替えにおいては、排気口５０ｂに配置された3方弁の切り替え操作によって、気密性容器５０内の減圧状態を維持したまま、切り替えることができる。つまり、3方弁の第１ポートにステップＳ１遂行用の配管を接続し、第２ポートにステップＳ２遂行用の排気装置を装着し、第３ポートに気密性容器５０を接続しておく。そして、ステップＳ１においては第３ポートが第１ポートに接続するように切り替える。ステップＳ２においては第３ポートが第２ポートに接続するように切り替える。これによって、ステップＳ１において大型の排気装置を用いることができるのでステップＳ１にかかる時間を短縮することができる。

【００５１】

以下、本発明の第1参考形態を参考例に基づいて具体的に説明するが、本発明は以下の参考例に限定されるものではない。

【００５２】

[参考例１－１]

参考例１－１のＰＥＦＣスタックの保存処理体３００は、以下のように作製した。ＰＥＦＣスタック２００において、セル１００の積層数を５０とし、カソードセパレータ１５及びアノードセパレータ２０には、厚さ３ｍｍの等方性黒鉛板を用いた。カソードセパレータ１５及びアノードセパレータ２０の主面周囲には複数のマニフォルド孔を形成し、セル１００積層時には、かかるマニフォルド孔が連通し、酸化剤流路３０、還元剤流路４０及び冷却剤流路４５を構成するようにした。

【００５３】

セル１００に用いられたＭＥＡ１０は以下のように作製した。まず、酸化剤側電極触媒層２には、アセチレンブラック系カーボン粉末（電気化学工業株式会社製デンカブラックＦＸ－３５）に、平均粒径約３０Åの白金粒子を２５ｗｔ％担持した触媒粉末を用いた。また、還元剤側電極触媒層３には、アセチレンブラック系カーボン粉末（電気化学工業株式会社製デンカブラックＦＸ－３５）に、平均粒径約３０Åの白金－ルテニウム合金粒子（重量比でＰｔ：Ｒｕ＝１：１）を２５ｗｔ％担持した触媒粉末を用いた。これらの触媒粉末をイソプロパノールに分散させ、パーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエチルアルコール分散液（旭硝子株式会社製フレミオンＦＳＳ－１）と混合してペースト状にした。これらのペーストをスクリーン印刷法をもちいてそれぞれ厚み２５０μｍのカーボン不織布（東レ株式会社製ＴＧＰ－Ｈ－０９０）の一方の主面に塗工して、それぞれ酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３を製作した。これらの電極触媒層に含まれる触媒金属量は０．３ｍｇ／ｃｍ^2、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は１．２ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。

【００５４】

高分子電解質膜１には、厚さ５０μｍのパーフルオロカーボンスルホン酸膜（米国Ｄｕｐｏｎｔ社製Ｎａｆｉｏｎ１１２）を用いた。

【００５５】

高分子電解質膜１の中心部の両側の主面には、それぞれ酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３をホットプレスによって接合した。さらに、厚さ２５０μｍのフッ素系ゴムシートを切り抜いて、一対のガスケットを作製し、これを酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３が露出するようにして、高分子電解質膜１を挟み、これらをホットプレス（１３５℃、１ＭＰａ、１０分の条件）によって高分子電解質膜１に接合一体化させた。

【００５６】
排気装置には、ステップＳ１においては、ＵＬＶＡＣ社製Ｇ－１００Ｄを用い、ステップＳ２においては、小型の真空ポンプＵＬＶＡＣ社製ＧＨＤ－０３０を用いた。
【００５７】
気密性容器５０には、多重のポリエチレンの袋を用いた。
【００５８】
ステップＳ１においては、酸化剤流路及び還元剤流路の入口及び出口３０ａ，４０ａ、出口３０ｂ、４０ｂを封止栓７０及び排気装置６１によって気密的に封止した。そして、排気装置６１によって、酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内の真空度を10^{-3}Ｐａにまで減圧した。
【００５９】
ステップ２においては、排気装置６１を断続的に作動させることによって酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内の真空度を10^{-2}Ｐａに維持しながら、ＰＥＦＣスタックの保存処理体３００を２５℃の温度で５０００時間保存した。
【００６０】
保存後のＰＥＦＣスタック２００を７０℃に保持し、露点６５℃に加湿された還元剤物質（８０％水素ガス／２０％二酸化炭素／１０ｐｐｍ一酸化炭素）を６５℃に加温して還元剤流路４０に供給し、露点７０℃に加湿された空気を７０℃に加温して酸化剤流路３０に供給し、ＰＥＦＣスタック２００の定格運転を行った。
【００６１】
ＰＥＦＣスタック２００の定格運転は、燃料利用率８０％、酸素利用率４０％、電流密度０．３Ａ／cm^2とした。
【００６２】
［参考例１－２］
参考例１－１と同様にして、ＰＥＦＣスタックの保存処理体３００を製作し、ステップＳ１を行った。そして、ステップＳ２においては、参考例１－１と同様に保存した。ただし、保存時の温度は２５℃ではなく、６０℃とした。
【００６３】
そして、参考例１－１と同様の条件で定格運転を行った。
【００６４】
[比較例１－１]
比較例１－１として、参考例１－１と同型のＰＥＦＣスタック２００を、ステップＳ１及びステップＳ２を行わずに、つまり、酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内を排気しない状態で保存した。そして、参考例１－１と同様に、２５℃の温度で５０００時間保存した。
【００６５】
そして、参考例１－１と同様の条件で定格運転を行った。
【００６６】
［比較例１－２］
比較例１－２として、参考例１－１と同型のＰＥＦＣスタック２００を、ステップＳ１及びステップＳ２を行わずに、つまり、酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内を排気しない状態で保存した。そして、参考例１－２と同様に、６０℃の温度で５０００時間保存した。
【００６７】
そして、参考例１－１と同様の条件で定格運転を行った。
【００６８】
図５は、定格運転における参考例１－１及び参考例１－２ならびに比較例１－１及び比較例１－２のＰＥＦＣスタック２００の平均セル電圧の経時的変化を示す図である。
【００６９】
図に示すように、参考例１－１及び参考例１－２の平均セル電圧Ｖの差は小さく、平均

セル電圧Ｖの低下は小さかった。比較例１－１及び比較例１－２の平均セル電圧Ｖは定格運転開始当初から双方とも参考例１－１及び参考例１－２よりも低かった。そして定格運転の継続とともに、比較例１－１及び比較例１－２の平均セル電圧Ｖは、双方とも参考例１－１及び参考例１－２よりも大きく低下した。

【００７０】

[変形例１]

図６は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。

【００７１】

本変形例では排気装置６１の代わりに、気密性容器５０の排気口５０ｂに排気口５０ｂを気密的に開閉するように配置されている気密型開閉弁６２が配設されている。

【００７２】

つまり、気密型開閉弁６２と気密性容器５０とが維持ユニットを構成する。また、気密型開閉弁は、開閉弁は保存時に駆動動力の不要な手動が好ましい。あるいは、駆動動力喪失時には閉止状態となる、いわゆるノーマルクローズドタイプの電導開閉弁であってもよい。

【００７３】

つまり、揮発除去ステップＳ１においては、排気口５０ｂに排気装置６１、あるいは排気装置６１に接続された配管が接続され、気密型開閉弁６２が開放された状態において、排気装置６１によって気密性容器５０内部、すなわち酸化剤流路３０及び還元剤流路４０が排気されて減圧される。

【００７４】

そして、維持ステップＳ２において気密型開閉弁６２が閉止されて、排気装置６１、あるいは排気装置６１に接続された配管が排気口５０ｂから取り外される。

【００７５】

これによって、維持ユニットは気密性容器５０に一体化されて構成されることになり、封止栓等別部材の管理及び処分を不要とすることができる。

【００７６】

（第２参考形態）

図７は、本発明の第２参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。図７において図１に示した構成要素と同一の構成要素には各々同一の符号を付してその説明を省略する。

【００７７】

図に示すように、本発明の第２参考形態は、酸化剤流路入口３０ａあるいは出口３０ｂ及び還元剤流路入口４０ａあるいは出口４０ｂに、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の入口３０ａ，４０ａ及び出口３０ｂ、４０ｂの何れか一方に気密的に装着されている排気装置６１と、その他方に気密的に装着されている封止栓７０とを有する参考形態である。すなわち、本参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体３１０においては、封止栓７０と排気装置６１とが維持ユニットを構成している。

【００７８】

排気装置６１は、ここでは酸化剤流路入口３０ａ及び還元剤流路入口４０ａに気密的に装着されている。排気装置６１には第１参考形態と同型の真空ポンプを用いる。

【００７９】

封止栓７０は、ここでは酸化剤流路出口３０ｂ及び還元剤流路出口４０ｂに封止栓７０が気密的に装着されている。ここでは、図７に示すように排気装置６１の接合部及び封止栓７０にＯリング等のスクイーズドパッキン８０が配設されて、スクイーズドパッキン８０が酸化剤流路出口部３０ｂ、還元剤流路出口部４０ｂ、酸化剤流路入口部３０ａ及び還元剤流路入口部４０ａと排気装置６１の接合部及び封止栓７０との間隙をシールすることによって気密的に装着されている。

【００８０】

本参考形態のＰＥＦＣスタック２００の保存方法は、図４に示すように、ステップＳ１

において、ＰＥＦＣスタック２００の酸化剤流路出口３０ｂ及び還元剤流路出口４０ｂを封止栓７０で気密的に封止し、酸化剤流路入口３０ａ及び還元剤流路入口４０ａを排気装置６１で気密的に封止する。そして、排気装置６１によって酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内を減圧する。

【００８１】

ステップＳ２においては、排気装置６１を断続的に作動させる。これによって、酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の減圧状態を長期に亘って継続することが可能となるので、ＰＥＦＣスタック２００の性能劣化を長期に亘って抑制することができる。

【００８２】

以上、本発明によって、第１参考形態と同様にして、未設置状態の高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を抑制することができる。

【００８３】

なお、第１参考形態と同様にして、排気装置６１は、ステップＳ２において、小型の排気装置に交換するようにしてもよい。これによって、排気装置６１を装着した状態でＰＥＦＣスタックの保存処理体３１０の運搬が容易となる。

【００８４】

また、図７においては、酸化剤流路入口３０ａ及び還元剤流路入口４０ａに一対の排気装置６１が気密的に装着されているが、排気装置６１の吸引口から延びる二股の配管が、酸化剤流路出口３０ｂ及び還元剤流路出口４０ｂに気密的に接続するように構成することもできる。これによって、ステップＳ１において大型の排気装置を用いることができるのでステップＳ１にかかる時間を短縮することができる。

【００８５】

さらに、ステップ２において、排気装置６１を封止栓に付け替えることもできる。つまり、維持ユニットは酸化剤流路及び還元剤流路の入口及び出口３０ａ，４０ａ、３０ｂ、４０ｂに装着された４つの封止栓から構成することができる。これによって、維持ユニットがＰＥＦＣスタック２００に一体化されて構成されることになり、封止栓等別部材の管理及び処分を不要とすることができる。

［変形例２］

図示しないが、第１参考形態の変形例１と同様にして、封止栓７０の代わりに、ＰＥＦＣスタック２００が、酸化剤流路及び還元剤流路の入口及び出口３０ａ，４０ａ、３０ｂ、４０ｂに気密型開閉弁を有するように構成することもできる。これによって、封止栓７０を省略することができるとともに、ＰＥＦＣスタック２００がＰＥＦＣシステムに組み込まれた後も、これら気密型開閉弁をＰＥＦＣスタック２００の隔離弁として利用することもできる。

【００８６】

また、ステップ２において、気密型開閉弁を閉止した後、排気装置６１を取り外すこともできる。つまり、維持ユニットは気密型開閉弁のみとなる。これによって、維持ユニットがＰＥＦＣスタック２００に一体化されて構成されることになり、封止栓等別部材の管理及び処分を不要とすることができる。

【００８７】

以下、本発明の第２参考形態を参考例に基づいて具体的に説明するが、本発明は以下の参考例に限定されるものではない。

【００８８】

［参考例２－１］

参考例２－１のＰＥＦＣスタックの保存処理体３１０を以下のように作製し、保存した。ＰＥＦＣスタック２００は参考例１－１と同型のものを用いた。

【００８９】

排気装置６１には、ステップＳ１においては、ＵＬＶＡＣ社製Ｇ－１００Ｄを用い、ステップＳ２においては、小型の真空ポンプＵＬＶＡＣ社製ＧＨＤ－０３０を用いた。

【００９０】

気密性容器５０には、多重のポリエチレンの袋を用いた。
【００９１】
ステップＳ１においては、酸化剤流路及び還元剤流路の入口及び出口３０ａ，４０ａ、３０ｂ、４０ｂを封止栓７０及び排気装置６１によって気密的に封止した。そして、排気装置６１によって、酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内の真空度を10^{-2}Ｐａにまで減圧した。
【００９２】
ステップ２においては、排気装置６１を断続的に作動させることによって酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内の真空度を10^{-2}Ｐａに維持しながら、ＰＥＦＣスタックの保存処理体３００を２５℃の温度で５０００時間保存した。
【００９３】
保存後のＰＥＦＣスタック２００を、参考例１－１と同様の条件で定格運転を行った。
【００９４】
[参考例２－２]
参考例２－２のＰＥＦＣスタックの保存処理体３１０のＰＥＦＣスタック２００、排気装置６１、気密性容器５０は、参考例２－１と同型のものを用いた。
【００９５】
そして、ステップＳ１においては、参考例２－１と同様に減圧した。
【００９６】
ステップＳ２においては、排気装置６１を封止栓７０に取り替えて、参考例２－１と同様に保存した。つまり、維持ユニットは４つの封止栓７０によって構成され、酸化剤流路及び還元剤流路の入口及び出口３０ａ，４０ａ、３０ｂ、４０ｂ全てを封止栓７０よって気密的に封止して保存した。
【００９７】
保存後のＰＥＦＣスタック２００を、参考例１－１と同様の条件で定格運転を行った。
【００９８】
ステップＳ２開始時における酸化剤流路３０及び還元剤流路４０内の真空度は10^{-2}Ｐａであったが、保存期間終了時における酸化剤流路３０及び還元剤流路４０内の真空度は10^{4}Ｐａに低下していた。
【００９９】
図８は、定格運転における参考例２－１及び参考例２－２のＰＥＦＣスタック２００の平均セル電圧の経時的変化を示す図である。
【０１００】
図に示すように、参考例２－２の平均セル電圧Ｖの低下は抑制されている。また、参考例２－１の平均セル電圧Ｖのさらに抑制されている。
【０１０１】
（第３実施形態）
本発明の第３実施形態は、ＰＥＦＣスタック２００が発電処理された後に第１参考形態乃至第２参考形態と同様にして、ステップＳ１及びステップＳ２を行う実施の形態である。すなわち、本実施形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体３２０の構成は、第１参考形態乃至第２参考形態と同様である。そこで、本実施形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体３２０の構成の説明を省略し、本実施形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を説明する。
【０１０２】
図９は、本発明の第３実施形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を示すフローチャートである。図に示すように、本実施形態のＰＥＦＣスタックの保存方法では、ステップ（発電処理ステップ）Ｓ０において、未設置状態のＰＥＦＣスタック２００を所定の電流密度において所定の発電継続時間の間継続して発電させる。そして、第１参考形態あるいは第２参考形態と同様にして、ステップＳ１乃至ステップＳ２を行う。
【０１０３】
ここで、ステップＳ０においては、具体的には、ＰＥＦＣスタック２００を作動温度に

維持し、集電板４１，４１間に電力負荷を電気的に接続し、かつアノード側に還元剤物質を、カソード側に酸化剤物質をそれぞれ供給することによって、ＰＥＦＣスタック２００における電気化学反応を引き起こす。電気化学反応は所定の電流密度Ｉにおいて所定の発電継続時間Ｔ継続させる。

【０１０４】

本実施形態のＰＥＦＣスタック２００の保存方法によって、ＭＥＡの触媒細孔中等ＰＥＦＣスタック内に残留している溶媒や金属等の異物を、発電処理における電気化学反応による生成水とともにＰＥＦＣスタック２００外へ排出させることができるので、ＰＥＦＣスタック２００の性能の劣化をより確実に抑制することができる。

【０１０５】

また、発電処理における電流密度Ｉは、ＭＥＡ１０の触媒層２，３の面積あたり０．１Ａ／ｃｍ^{2}以上、０．４Ａ／ｃｍ^{2}以下が好適である。この程度の電流密度であると、ＭＥＡ１０における電気化学反応による水の生成が均一になるものと思われる。

【０１０６】

また、発電処理の発電継続時間Ｔは少なくとも３時間あると好適である。これは、溶媒及び異物が生成水とともにＰＥＦＣスタック２００から排出するにはある程度の時間を要するからである。

【０１０７】

また、発電処理時における発電継続時間Ｔは、発電処理終了時における１セルあたりの電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）が２ｍＶ／ｈ以下に低下するまでの時間に設定すると好適である。溶媒及び異物の除去によって電圧が安定するものと考えられるので、電圧変化の低下によってＰＥＦＣスタック２００からの溶媒及び異物の除去を判断することができるからである。

【０１０８】

また、発電処理の時期は、ＰＥＦＣスタック２００製造後３００時間以内が好適である。溶媒及び異物による触媒の劣化進行、および／あるいは高分子電解質膜１と電極触媒層２，３との接合状態の劣化進行を考慮すると、発電処理の時期はＰＥＦＣスタック製造後早い時期が好ましい。具体的には、ＰＥＦＣスタック製造後３００時間以内であれば、ＰＥＦＣスタック２００の性能劣化の進行を未然に抑制することができるからである。

【０１０９】

また、発電処理における酸化剤物質及び還元剤物質の露点は、発電処理時におけるＭＥＡ１０の温度の－１０℃以上、＋１０℃以下の範囲内が好適である。このような露点とすることにより、ＭＥＡ１０には過不足のない水分が供給され、かつ水による酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の閉塞、いわゆるフラッディング現象を抑制することができるので、全てのＭＥＡ１０において均一な電気化学反応を確保することができる。つまり、全てのＭＥＡ１０において溶媒及び異物の排出を円滑に行うことが可能となるので、ＰＥＦＣスタックの性能の劣化をより確実に抑制することができる。

【０１１０】

以下、本発明の第３実施形態のステップＳ０を実施例に基づいて具体的に説明するが、本発明のステップＳ０は以下の実施例に限定されるものではない。

【０１１１】

なお、以下の実施例及び比較例においては、発電処理において、還元剤物質には水素ガス、酸化剤物質には空気を用いた。また、発電処理は、ＰＥＦＣスタック２００を７０℃に保持し、加温及び加湿された空気及び水素ガスをそれぞれ酸化剤流路３０及び還元剤流路４０に供給し、還元剤物質利用率が７０％、酸化剤物質利用率が４０％となるように酸化剤流路３０及び還元剤流路４０の供給を調節した。さらに、発電処理後に、ステップＳ１を経て８週間常温常湿で保存している。この保存期間（８週間）は、本発明の、溶媒及び異物の影響により高分子電解質膜１の性能が劣化する期間としての一例である。

【０１１２】

［実施例３－１］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとした。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１１３】

［比較例３－１］

実施例３－１と同時期に製造されたＰＥＦＣスタック２００を、常温常湿にて保存し続けた。すなわち、実施例３－１のＰＥＦＣスタック２００の製造後から発電処理後の保存期間満了までの期間を常温常湿で保存した。

【０１１４】

［比較例３－２］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して３時間供給した。供給終了後、常温常湿で８週間保存した。この間発電処理は行わなかった。

【０１１５】

実施例３－１、比較例３－１及び比較例３－２のＰＥＦＣスタック２００について、ＰＥＦＣスタックの温度を７０℃に保持して、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温してそれぞれ還元剤流路４０及び酸化剤流路３０に供給し、燃料ガス利用率を７０％、酸化ガス利用率を４０％、電流密度を０．２Ａ／ｃｍ^{2}にして１０００時間定格運転を継続した。表１に、定格運転における実施例３－１、比較例３－１及び比較例３－２の電圧低下量ΔＶを示す。

【０１１６】

【表１】

	ΔＶ（ｍＶ）
実施例３－１	１０
比較例３－１	１００
比較例３－２	９０

【０１１７】

表１から明らかなように、実施例３－１は、比較例３－１及び比較例３－２と比較すると、電圧低下量ΔＶが小さいことがわかる。この結果から、発電処理により、ＰＥＦＣスタックの性能の劣化をより確実に抑制することができることを確認できた。

【０１１８】

［実施例３－２］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．１Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝１２ｈとして発電処理を行った。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１１９】

［実施例３－６］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．０５Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝１２ｈとして発電処理を行った。発電
処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１２０】

［実施例３－７］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存し

た。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．５Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１２１】

［実施例３－８］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝２ｈとして発電処理を行った。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１２２】

実施例３－２ならびに実施例３－６、実施例３－７及び実施例３－８のＰＥＦＣスタック２００について、実施例３－１と同様にして、ＰＥＦＣスタックの温度を７０℃に保持して、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温してそれぞれ還元剤流路４０及び酸化剤流路３０に供給し、燃料ガス利用率を７０％、酸化ガス利用率を４０％、電流密度を０．２Ａ／ｃｍ^{2}にして１０００時間定格運転を継続した。

【０１２３】

表２に、実施例３－１、実施例３－２，実施例３－６、実施例３－７及び実施例３－８の発電処理時の電流密度Ｉ及び発電継続時間Ｔ、発電処理終了時の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）、ならびに定格運転における電圧低下量ΔＶを示す。

【０１２４】

【表２】

	Ｉ(A/cm^2)	Ｔ(h)	dV/dt(mV/h)	ΔＶ（ｍＶ）
実施例３－１	０．４	３	１．５	１０
実施例３－２	０．１	１２	０．０	８
実施例３－６	０．０５	１２	５．０	５０
実施例３－７	０．５	３	３．０	７０
実施例３－８	０．４	２	４．５	６０

【０１２５】

実施例３－１と実施例３－７との比較、及び実施例３－２と実施例３－６との比較から明らかなように、実施例３－１および実施例３－２は、実施例３－６および実施例３－７と比較すると、電圧低下量ΔＶが小さい。したがって、発電処理時の電流密度範囲は０．１Ａ／ｃｍ^2～０．４Ａ／ｃｍ^{2}が好適である。これは、この電流密度の電気化学反応であれば、ＭＥＡ１０における電気化学反応による水の生成が均一になるものと思われる。

【０１２６】

また、実施例３－１および実施例３－２は、実施例３－６、実施例３－７および実施例３－８と比較すると、発電処理終了時の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）が１．５ｍＶ／ｈ以下にまで低下している。これは、この電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）は、ＰＥＦＣスタック２００内、特に電極触媒層２，３内の細孔中にある溶媒及び異物を、電気化学反応による生成水とともにＰＥＦＣスタック２００外へ排出する際に発生するので、電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）が１．５ｍＶ／ｈ程度以下にまで低下した場合には、ＰＥＦＣスタック２００内の溶媒及び異物の排出が十分にできているものと考えられる

また、実施例３－１と実施例３－８との比較から明らかなように、実施例３－１は、実施例３－８と比較すると、電圧低下量ΔＶが小さい。したがって、発電処理時の発電継続時間Ｔは３時間以上が好適である。これは、溶媒及び異物が生成水とともにＰＥＦＣスタック２００から排出するには少なくとも３時間は要することが原因と思われる。

【０１２７】

［実施例３－３］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を３００時間、すなわち２週間程度保存した。ここでは、発電処理前期間Ｗ（ｗｅｅｋ）＝２と表記した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１２８】

［実施例３－９］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を５００時間、すなわち約３週間保存した。ここでは、発電処理前期間Ｗ（ｗｅｅｋ）＝３と表記した。そして、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１２９】

実施例３－３及び実施例３－９のＰＥＦＣスタック２００について、実施例３－１と同様にして、ＰＥＦＣスタックの温度を７０℃に保持して、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温してそれぞれ還元剤流路４０及び酸化剤流路３０に供給し、燃料ガス利用率を７０％、酸化ガス利用率を４０％、電流密度を０．２Ａ／ｃｍ^{2}にして１０００時間定格運転を継続した。

【０１３０】

表３に、実施例３－１、実施例３－３及び実施例３－９の発電処理前期間Ｗ、発電処理時の電流密度Ｉ及び発電継続時間Ｔ、発電処理終了時の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）、ならびに定格運転における電圧低下量ΔＶを示す。なお、前述したように、実施例３－１では、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を約１週間、正確には１５０時間保存した。実施例３－１の発電処理前期間Ｗ（ｗｅｅｋ）は、Ｗ＝１と表記した。

【０１３１】

【表３】

	W(week)	I (A/cm^2)	T(h)	dV/dt(mV/h)	ΔＶ（mV）
実施例３－１	１	０．４	３	１．５	１０
実施例３－３	２	０．４	３	２．０	１２
実施例３－９	３	０．４	３	１．５	８０

【０１３２】

実施例３－１及び実施例３－３と実施例３－９との比較から明らかなように、実施例３－１および実施例３－３は、実施例３－９と比較すると、電圧低下量ΔＶが小さい。したがって、発電処理前期間Ｗ＝２以内が好適である。つまり、発電処理はＰＥＦＣスタック２００製造後３００時間以内に実施することが望ましい。

【０１３３】

［実施例３－４］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、発電処理時には、ＰＥＦＣスタック２００を７０℃に維持しながら、露点６０℃に加湿された水素ガスおよび空気を６０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。つまり、発電処理時のＰＥＦＣスタック２００を基準としたＰＥＦＣスタック２００と酸化剤物質および還元剤物質との温度差ΔＳを－１０℃とした。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１３４】

［実施例３－５］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、発電処理時には、ＰＥＦＣスタック２００を７０℃に維持しながら、露点８０℃に加湿された水素ガスおよび空気を８０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。つまり、発電処理時のＰＥＦＣスタック２００を基準としたＰＥＦＣスタック２００と酸化剤物質および還元剤物質との温度差ΔＳを＋１０℃とした。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１３５】

［実施例３－１０］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、発電処理時には、ＰＥＦＣスタック２００を７０℃に維持しながら、露点５０℃に加湿された水素ガスおよび空気を５０℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。つまり、発電処理時のＰＥＦＣスタック２００を基準としたＰＥＦＣスタック２００と酸化剤物質および還元剤物質との温度差ΔＳを－２０℃とした。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１３６】

［実施例３－１１］

ＰＥＦＣスタック２００製造後、常温常湿にてＰＥＦＣスタック２００を１週間保存した。そして、発電処理時には、ＰＥＦＣスタック２００を７０℃に維持しながら、露点８５℃に加湿された水素ガスおよび空気を８５℃に加温して供給し、電流密度Ｉ＝０．４Ａ／ｃｍ^{2}で発電継続時間Ｔ＝３ｈとして発電処理を行った。つまり、発電処理時のＰＥＦＣスタック２００を基準としたＰＥＦＣスタック２００と酸化剤物質および還元剤物質との温度差ΔＳを＋１５℃とした。発電処理後、ステップＳ１を経て常温常湿で８週間保存した。

【０１３７】

実施例３－４、実施例３－５、実施例３－１０及び実施例３－１１のＰＥＦＣスタック２００について、ＰＥＦＣスタックの温度を７０℃に保持して、露点７０℃に加湿された水素ガスおよび空気を、７０℃に加温してそれぞれ還元剤流路４０及び酸化剤流路３０に供給し、燃料ガス利用率を７０％、酸化ガス利用率を４０％、電流密度を０．２Ａ／ｃｍ^{2}にして１０００時間定格運転を継続した。表４に、実施例３－４、実施例３－５、実施例３－１０及び実施例３－１１の発電処理時の電流密度Ｉ、発電継続時間Ｔおよび温度差ΔＳ、発電処理終了時の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）、ならびに定格運転における電圧低下量ΔＶを示す。

【０１３８】

【表４】

	Ｉ(A/cm^2)	Ｔ(h)	ΔＳ(℃)	dV/dt(mV/h)	ΔV(mV)
実施例３－４	０．４	３	－１０	１．５	１５
実施例３－５	０．４	３	＋１０	２．０	１４
実施例３－１０	０．４	３	－２０	３．０	５５
実施例３－１１	０．４	３	＋１５	５．０	６５

【０１３９】

表４から明らかなように、実施例３－４および実施例３－５は、実施例３－１０及び実施例３－１１と比較すると、電圧低下量ΔＶが小さいことがわかる。したがって、発電処理時においては、温度差ΔＳが＋１０℃乃至－１０℃の範囲内であると好適である。これ

は、温度差ΔＳが＋１０℃乃至－１０℃の範囲より拡大している場合には、ＰＥＦＣスタック２００内において水分の過不足が生じて、ＭＥＡ１０における電気化学反応が不均一になり、ＰＥＦＣスタック２００内、特に電極触媒層２，３内の細孔中にある溶媒および異物をＰＥＦＣスタック２００外へ十分には排出させることができなかったものと考えられる。

【０１４０】

なお、表４から明らかなように、実施例３－４および実施例３－５の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）は２．０ｍＶ／ｈ以下であり、実施例３－１０および実施例３－１１の電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）は２．０ｍＶ／ｈを上回る。前述の表２の結果及びこの結果から、電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）が２．０ｍＶ／ｈ程度以下にまで低下した場合には、ＰＥＦＣスタック２００内の溶媒及び異物の排出が十分にできているものと考えられる。したがって、発電処理は、電圧変化（ｄＶ／ｄｔ）が２．０ｍＶ／ｈ以下となるまで継続することが望ましいことがわかる。

【０１４１】

以上、第３実施形態によって、本発明のＰＥＦＣスタック２００の保存方法及びＰＥＦＣスタックの保存処理体を説明した。

【０１４２】

なお、

以上に説明したように、本発明のＰＥＦＣスタックの保存方法及びＰＥＦＣスタックの保存処理体においては、未設置状態のＰＥＦＣスタックの酸化剤流路３０内及び還元剤流路４０内が減圧状態として保存されるので、減圧状態において酸化剤側電極触媒層及び還元剤側電極触媒層に残留する溶媒が揮発状態となる。例示として、第１参考形態及び第２参考形態のＰＥＦＣスタック２００の保存方法においては、ステップＳ１において酸化剤側電極触媒層２及び還元剤側電極触媒層３に残留する溶媒の揮発が促進されるとともに、揮発した溶媒がＰＥＦＣスタック２００外に除去され、かつステップ（維持ステップ）Ｓ２において溶媒の揮発状態が維持される。これによって、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を十分に抑制することができる。また、減圧状態においては、酸化剤流路及び還元剤流路中の酸素濃度を大気中の酸素濃度未満に容易に保つことができ、電極触媒層に残存する有機溶媒成分の部分酸化反応、脱水縮合反応（有機溶媒成分同士の反応、部分酸化物同士の反応、有機溶媒成分と部分酸化物との反応を含む）等を十分に防止できるので、この観点からも、特に、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を十分に抑制することができる。

【０１４３】

上記説明から、当業者にとっては、本発明の多くの改良や他の実施形態が明らかである。したがって、上記説明は、例示としてのみ解釈されるべきであり、本発明を実行する最良の形態を当業者に教示する目的で提供されたものである。本発明の精神を逸脱することなく、その構造及び／又は機能の詳細を実質的に変更できる。例えば、第１参考形態及び第２参考形態においては、ステップ（揮発排除ステップ）Ｓ１を不要とすることができる。つまり、真空チャンバ内で製造する等により、ＰＥＦＣスタックの保存処理体３００、３１０を減圧状態下で製造することもできる。

【産業上の利用可能性】

【０１４４】

本発明は、未設置状態から設置場所に設置され使用されるまでの期間における高分子電解質型燃料電池スタックの性能の劣化を抑制する高分子電解質型燃料電池スタックの保存方法として有用である。

【図面の簡単な説明】

【０１４５】

【図１】図１は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。

【図２】図２は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体にふくまれるＰＥＦＣスタックの構造を示す分解斜視図である。
【図３】図３は、セルの基本構成を示す模式図である。
【図４】図４は、本発明の第１参考形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を示すフローチャートである。
【図５】図５は、定格運転における参考例１－１乃至参考例１－４のＰＥＦＣスタックの平均セル電圧の経時的変化を示す図である。
【図６】図６は、本発明の第１参考形態の変形例１のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。
【図７】図７は、本発明の第２参考形態のＰＥＦＣスタックの保存処理体の模式図である。
【図８】図８は、定格運転における参考例２－１及び参考例２－２のＰＥＦＣスタックの平均セル電圧の経時的変化を示す図である。
【図９】図９は、本発明の第３実施形態のＰＥＦＣスタックの保存方法を示すフローチャートである。
【符号の説明】
【０１４６】
１　高分子電解質膜
２　酸化剤側電極触媒層
３　還元剤側電極触媒層
４　酸化剤側拡散電極層
５　還元剤側拡散電極層
１０　ＭＥＡ
１５　カソードセパレータ
２０　アノードセパレータ
３０　酸化剤流路
３０ａ　酸化剤流路入口部
３０ｂ　酸化剤流路出口部
４０　還元剤流路
４０ａ　還元剤流路入口部
４０ｂ　還元剤流路出口部
４１　集電板
４２　絶縁板
４３　端板
４５　冷却剤流路
４５ａ　冷却剤流路入口
４５ｂ　冷却剤流路出口
５０　気密性容器
５０’　筒体
５０ａ　開口部（耳部）
５０ｂ　排気口
５０ｃ　耳部
６１　真空ポンプ
７０　封止栓
８０　スクイーズドパッキン
１００　セル
２００　ＰＥＦＣスタック
３００、３１０，３２０　ＰＥＦＣスタックの保存処理体
Ｓ０、Ｓ１，Ｓ２　ステップ
Ｖ　平均セル電圧

H　運転時間