

(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



(10) 国際公開番号

WO 2009/144871 A1

(43) 国際公開日

2009年12月3日(03.12.2009)

PCT

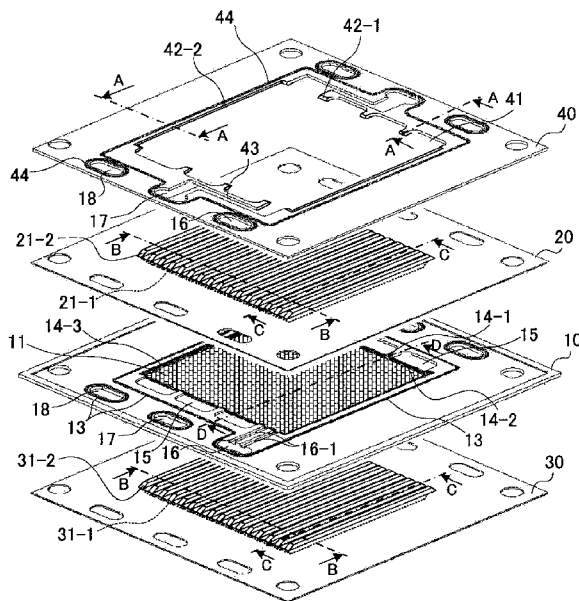
- (51) 国際特許分類:  
H01M 8/02 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/001671
- (22) 国際出願日: 2009年4月10日(10.04.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2008-140111 2008年5月28日(28.05.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): パナソニック株式会社 (PANASONIC CORPORATION) [JP/JP]; 〒5718501 大阪府門真市大字門真1006番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 川畑 徳彦 (KAWABATA, Norihiko), 日下部 弘樹 (KUSAKABE, Hiroki), 松本 敏宏 (MATSUMOTO, Toshihiro), 永井 宏幸 (NAGAI, Hiroyuki), 長尾 善輝 (NAGAO, Yoshiaki).
- (74) 代理人: 鷺田 公一 (WASHIDA, Kimihito); 〒2060034 東京都多摩市鶴牧1丁目24-1 新都市センタービル5階 Tokyo (JP).
- (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, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池

[図1A]



(57) Abstract: Provided is a fuel cell using a metal separator, wherein the fuel cell more reliably suppresses leaks of the reaction gas without using excessive tightening force and has a simple structure. In a solid polymer single fuel cell having a frame protecting a membrane electrode assembly (MEA) and a metal separator: 1) The center portion of the separator faces the electrodes and forms a linear flow path, the outer periphery of the separator has a planar structure with a manifold hole. 2) The frame protecting the MEA is a sealing material covering the periphery of each electrode, and has the sealing material in contact with the rib at the boundary of the center part and the outer periphery of the separator to regulate the flow of the reaction gas. 3) Each contact surface of the sealing material covering the electrode peripheries and the rib at the boundary between the center part and the outer periphery of the separator is inclined with respect to the layering direction from the frame to the separator.

(57) 要約: 金属セパレータを用いた燃料電池であって、簡易な構造でありながら、過剰な締結力を要せずに、反応ガスのリークがより確実に抑制された燃料電池を提供することを目的とする。すなわち本発明は、MEAを保持する枠体と、金属セパレータとを有する固体高分子型燃料電池であって、1) セパレータの中央部分は電極と対向かつ直線状の流路を形成されて

おり、セパレータの外周部分はマニホールド穴を有する平板構造であり、2) MEAを保持する枠体は、電極それぞれの周囲を覆うシール材であって、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触して、反応ガスの流れを規制するシール材を有し、3) 電極の周囲を覆うシール材と、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、枠体からセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池に関する。

WO 2009/144871 A1

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、固体高分子電解質膜を用いる固体高分子型燃料電池に関する。

**背景技術**

[0002] 固体高分子電解質膜を用いる燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気などの酸素を含有する酸化剤ガスを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させる電池である。基本的な構成部材として、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜；および前記高分子電解質膜を挟む一対の電極を有する。電極は、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触媒層；および触媒層の外側に配置され、通気性と電子導電性を併せもつガス拡散層からなることが多い。

[0003] 供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外部にリークしたり、2種のガスが互いに混合したりしないようにするため、電極の周囲には高分子電解質を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。このシール材やガスケットは、電極および高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。この組み立て体を、MEA（電解質膜電極接合体）と称する。

[0004] さらにMEAの両面には、MEAを機械的に固定するとともに、隣接するMEAどうしを互いに電氣的に直列に接続するための、導電性セパレータが配置される。セパレータの表面のうち、MEAと接触する面には、電極面に反応ガスを供給し、反応により生じた水や余剰ガスを運び去るための流路が形成される。流路は、セパレータとは別個の部材に設けられてもよいが、一般的にはセパレータの表面に溝を設けて流路を形成する。

[0005] 燃料電池は運転中に発熱するので、電池を適切な温度に維持するためには、冷却水を流して冷却する必要がある。通常、1～3つの単電池毎に、冷却水を流す冷却部が設けられる。セパレータとセパレータとの間に別個の冷却部材を挿入する場合と、セパレータの背面（電極に接する面とは反対側の面

)に冷却水路を形成する場合とがあり、後者を採用する場合が多い。

- [0006] 通常、10～200の燃料単電池（各燃料単電池は、MEAと、一对のセパレータと、必要に応じて冷却部を含む）を積層して得られる積層体を、集電板と絶縁板を介して端板で挟み、さらに締結ボルトで締結して、一般的な積層構造の燃料電池を得る。
- [0007] 固体高分子型燃料電池のセパレータは、導電率が高いこと、燃料ガスに対して気密性が高いこと、更に水素や酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐腐食性を有することが必要とされる。このような理由から、通常のセパレータは、グラッシーカーボンや膨張黒鉛などのカーボン材料で構成され、カーボン素材の切削や型による成形で反応ガス流路が形成されていた。
- [0008] しかしながらカーボン材料自体のコストは高く、またカーボン材料に切削や成形により複雑な反応ガス流路を形成するための時間を短縮することは困難である。それらが、カーボン材料のセパレータの実用化の障害となっていた。
- [0009] そのため近年、カーボン材料のセパレータに代わって、ステンレス鋼などの金属製のセパレータが開発されている。金属製のセパレータは、プレス成形により、その表面に溝とリブを交互に形成される。
- [0010] カーボンセパレータと比較すると金属セパレータは、セパレータの断面が波形であるため、その流路端部においてガスがリークしやすく、互いのガスが混合しやすい。そのため、ガスのリークを防止する工夫が必要である。
- [0011] ガスのリークを防止する工夫の一つに、図6に示されるように、セパレータの波形（凹凸）流路121の長手方向の両端に、凹の深さよりも浅く凸の高さよりも低くして設けた一对のヘッダ一部122aと122bと、を有する金属セパレータ120が提案されている（特許文献1を参照）。このヘッダ一部122aと122bを密閉空間とするためのシール材（不図示）を配置して、酸化剤ガスや燃料ガスを漏洩させることなく波形流路に流通させる。
- [0012] ガスのリークを防止する工夫の他の一つに、図7に示されるように、金属

セパレータ 100 のガス流路 101 の流路端部において、その裏の溝をシール材 102 で封止することが提案されている（特許文献 2 を参照）。また図 8 に示されるように、金属セパレータ 110 のガス流路 111 の流路端部付近において、その裏の溝をゴムシート 112 によって封止することが提案されている（特許文献 3 を参照）。それにより、ガス流路の流路端部でのリークを抑制し、反応ガスの混合を防止する。

[0013] このように従来は、薄板金属セパレータの流路端部でのガスリークを防止するため、流路を形成する溝の内部にシール材やゴムシートを密着させて封止していた。ところが、燃料電池の駆動状態によって燃料電池の内圧は変化するため、シール材 102（図 7）またはゴムシート 112（図 8）による封止状態も、燃料電池の駆動状態に応じて変化する。しかしながら前記封止性は、封止される流路と、他の流路または外気の圧力差が最大の際でも維持されなければならない。通常は、150 kPa の圧力差が生じたときであっても、ガスのリーク量が 20 SCCM 以下であることが要求される。

[0014] このため金属セパレータを用いた燃料電池は、積層体を大きい力で締結する必要がある。そのために、積層体を締結するための端板やボルト構造が大型化し、コスト高や重量の増大が生じやすいという問題があった。

[0015] さらに図 9 に示されるように、MEA のシール部材を延長して（図 9 の 122 参照）、延長シール部分をセパレータ流路にはめ込むことにより、金属マニホールドの流路端部における反応ガスのリークを防止する工夫が提案されている（特許文献 4 を参照）。この延長シール部分は、流路群の境界となり、流体の流れを適切に規制する。ところが、この延長シール部分は、セパレータと電極を電氣的に絶縁させる。そのため、延長されたシールと電極との接触部は電流通過に寄与せず、全体として接触抵抗が増大し、出力電圧が低下する。その結果、燃料電池システム全体としての発電効率が低下するという問題が生じた。また、MEA とセパレータを積層するときに、延長されたシールが適切に流路にはめ込まれない、つまり位置ずれを起こすこともあった。

## 先行技術文献

## 特許文献

- [0016] 特許文献1：特開2003-203644号公報  
特許文献2：国際公開第01/059864号パンフレット  
特許文献3：特開2000-133291号公報  
特許文献4：特開2002-124275号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

- [0017] 前述の通り、金属セパレータを用いた燃料電池を実用化させるには、金属セパレータのガス流路端部におけるガスのリークを抑制して、反応ガスの混合を防止するための工夫が必要とされる。また、MEAとセパレータを積層したときの位置ずれを抑制して、確実かつ容易にガスのリークを防止することが求められる。そこで本発明は、金属セパレータを用いた燃料電池であって、簡易な構造でありながら、過剰な締結力を要せずに、反応ガスのリークがより確実に抑制された燃料電池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

- [0018] すなわち本発明は、以下に示される燃料単電池、またはその積層体を含む燃料電池に関する。

- [0019] [1] 高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟む燃料極および酸化極とを枠内部に保持する枠体と；前記燃料極に積層された、燃料ガスを供給および排出する流路を有するアノードセパレータと；前記酸化極に積層された、酸化剤ガスを供給および排出する流路を有するカソードセパレータと、を含む固体高分子型燃料単電池であって、

前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの中央部分は、前記燃料極および酸化極と相対し、表裏に溝とリブを交互に形成され、厚さが一定の波形断面を有し、かつ直線状の流路を形成されており；前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの外周部分は、マニホールド穴を有する平

板構造であり、

前記枠体の両面には、

前記アノードセパレータまたはカソードセパレータが形成する流路が折り返すための凹部が形成されており、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置され、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触して、燃料ガスまたは酸化剤ガスの流れを規制するシール材が配置され、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池。

[0020] [2] [1] に記載の燃料電池の複数個を積層して構成される固体高分子型燃料電池であって、

前記燃料電池同士の間積層されたスペーサ枠体であって、燃料電池同士の間セパレータ流路に冷却水を流すための枠体をさらに有し、

前記スペーサ枠体の両面には、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触し、冷却水の流れを規制するシール材が形成され、

前記スペーサ枠体に形成されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記スペーサ枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池。

[0021] [3] [1] に記載の燃料電池の複数個を積層して構成される固体高分子型燃料電池であって、

前記燃料電池同士の間積層されたスペーサ枠体であって、燃料電池同士の間セパレータ流路に冷却水を流さない枠体をさらに有し、

前記スペーサ枠体の両面には、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触するシール材が形成され

、  
前記スペーサ枠体に形成されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記スペーサ枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池。

[0022] [4] 高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟む燃料極および酸化極とを枠内部に保持する枠体と；前記燃料極に積層された、燃料ガスを供給および排出する流路を有するアノードセパレータと；前記酸化極に積層された、酸化剤ガスを供給および排出する流路を有するカソードセパレータと、を含む固体高分子型燃料単電池であって、

前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの中央部分は、前記燃料極および酸化極と相対し、表裏に溝とリブを交互に形成され、厚さが一定の波形断面を有し、かつサーペンタイン状の流路を形成されており；前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの外周部分は、マニホールド穴を有する平板構造であり、

前記枠体の両面には、前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置され、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触して、燃料ガスまたは酸化剤ガスの流れを規制するシール材が配置され、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料単電池。

### 発明の効果

[0023] 本発明の高分子電解質型燃料電池によれば、金属セパレータを用いるにも係わらず、積層体を通常の力で締結すれば、大きい圧力差（例えば150 kPa）が生じても、ガスのリーク量を20 SCCM以下に維持することができ、ガスの混合を抑制できる。また、MEAとセパレータとを積層するとき

の位置決めがしやすく、位置ずれも生じにくい。

### 図面の簡単な説明

[0024] [図1A]実施の形態1の燃料単電池の、MEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、およびスペーサ枠体の鳥瞰図であり、積層前の燃料単電池の様子が示される。

[図1B]図1Aに示された燃料電池の2つを積層した積層体の断面図である。

[図2]実施の形態2の燃料単電池の、MEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、およびスペーサ枠体の鳥瞰図であり、積層前の燃料単電池の様子が示される。

[図3]実施の形態3の燃料単電池の、MEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、およびスペーサ枠体の鳥瞰図であり、積層前の燃料単電池の様子が示される。

[図4A]実施の形態4の燃料単電池の、MEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、およびスペーサ枠体の鳥瞰図であり、積層前の燃料単電池の様子が示される。

[図4B]図4Aのアノードセパレータとスペーサ枠体の、互いの接触面を示す。

[図4C]図4AのMEA保持枠体とアノードセパレータの、互いの接触面を示す。

[図4D]図4Aのカソードセパレータとスペーサ枠体の、互いの接触面を示す。

[図4E]図4の燃料電池の断面図である。

[図4F]図4の燃料電池の断面図である。

[図5]図5Aは、図1におけるスペーサ枠体のAの断面を；図5Bは、図1におけるセパレータのBの断面を、図5Cは、図1におけるセパレータのCの断面を、図5Dは、図1におけるMEA保持枠体のDの断面を示す図である。それに含まれる各部材が積層方向に対して傾斜している状態を示す。

[図6]従来の金属セパレータを示す図である。

[図7]従来の金属セパレータを示す図である。

[図8]従来の金属セパレータを示す図である。

[図9]比較例の燃料単電池の、MEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、およびスペーサ枠体の鳥瞰図であり、積層前の燃料単電池の様子が示される。

[図10]複数の燃料単電池の積層体を締結して、燃料電池スタックを作製する様子を示す図である。

### 発明を実施するための形態

#### [0025] 1. 本発明の燃料単電池について

本発明の燃料単電池は、1) 高分子電解質膜と、高分子電解質膜を挟む燃料極および酸化極とを枠内に保持する枠体、2) 燃料極に積層された、燃料ガスを供給および排出する流路を有するアノードセパレータ、3) 酸化極に積層された、酸化剤ガスを供給および排出する流路を有するカソードセパレータとを有し、「固体高分子型燃料電池」などと称される。

#### [0026] アノードセパレータおよびカソードセパレータについて：

本発明の燃料単電池のアノードセパレータおよびカソードセパレータは、金属製のセパレータ（「金属セパレータ」とも称する）であることが好ましい。金属セパレータの断面は波形形状を有し、セパレータの表面には溝とリブが交互に形成されている。金属セパレータの厚さはほぼ一定であり、波形断面の厚さもほぼ一定である。つまり、金属セパレータの第1面には、溝とリブが交互に形成されており；その溝とリブに対応する箇所第1の面の裏面には、リブと溝がそれぞれ形成されている。金属セパレータは、金属板をプレス加工して波形形状とすることにより作製される。セパレータに形成された溝とリブのうち、溝に流体（燃料ガスまたは酸化ガス、あるいは冷却水）が流れる。つまり、溝がセパレータ流路となる。

#### [0027] アノードセパレータおよびカソードセパレータの中央部分には流路が形成され、つまり溝とリブが形成され；外周部分は平板状であり、マニホールド穴が形成されているが、流路は形成されていない。マニホールド穴とは、燃

料電池のマニホールドを構成する穴であり、燃料ガス、酸化剤ガスまたは冷媒（例えば冷却水）が流れる穴である。

[0028] 流路が形成されているセパレータの中央部分は、後述の枠体の内部に保持されるMEAの電極（燃料極または酸化極）に相對し、その電極面と同一の形状と同一の面積を有することが好ましい。

[0029] また、セパレータの中央部分に形成される流路は、直線状であってもよく（図1Aなど参照）、サーペンタイン状であってもよい（図4Aなど参照）。セパレータの中央部分に形成される流路が直線状である場合には、MEAを保持する枠体（後述）に、流路が折り返すための凹部が形成されている必要がある（図1Aにおける15を参照）。

[0030] 一方、セパレータの中央部分に形成される流路がサーペンタイン状である場合には、流路自体が折り返しているため、MEAを保持する枠体（後述）に、流路が折り返すための部材（凹部）を設ける必要はない（図4Aを参照）。流路をサーペンタイン状とすれば、マニホールド穴から流路への連絡口以外からの外部へのガスのリークがより確実に防止できる。

[0031] アノードセパレータは、燃料極に積層される。アノードセパレータの燃料極と接する面の流路には、燃料ガスが流される。一方、カソードセパレータは、酸化極に積層される。カソードセパレータの酸化極と接する面の流路には、酸化剤ガスが流される。

[0032] セパレータの中央部分に形成されたリブのうち、少なくとも中央部分と外周部分の境界にあるリブは、セパレータの面に対して垂直ではなく、傾斜して出っ張っていることが好ましい（図1や、図5B、図5Cを参照）。例えば図1Aに示されるように、「リブの長手方向の端面（図5C参照）」や「リブの側面（図5B参照）」が、セパレータ面から傾斜して出っ張っている。少なくとも「リブの長手方向の端面」は、傾斜して出っ張っていることが好ましい。過剰な力で締結することなく、流路端部からのガスのリークを抑制するためである。もちろん、「リブの側面」も傾斜していることが好ましい。セパレータをMEAに積層するときの位置決めがより容易になるからで

ある。

[0033] セパレータの中央部分と外周部分の境界にあるリブは、MEAを保持する枠体（後述）の電極（酸化極または燃料極）の周囲に沿って配置されたシール材（図1Aや図1Bにおける14や、図5Dを参照）と当接する。MEAの電極の周囲に沿って配置されたシール材も傾斜しており、その傾斜角度が、前記リブの傾斜角度に対応して一致している。

[0034] 一方、セパレータの外周部分（中央部分を覆う周りの領域）は平板状であり、マニホールド穴が形成されている。アノードセパレータの外周部分には、少なくとも燃料ガスマニホールド穴と冷却水マニホールド穴が形成されていることが好ましいが；一方で、酸化剤ガスマニホールド穴はあっても（図1Aなど参照）、なくても（図3参照）よい。また、カソードセパレータの外周部分には、少なくとも酸化剤ガスマニホールド穴と冷却水マニホールド穴が形成されていることが好ましいが、一方で、燃料ガスマニホールド穴はあっても（図1Aなど参照）、なくても（図3参照）よい。図3に示されるように、マニホールド穴を省略することで、枠体やMEAに比べて比重の大きい金属製部材の体積を減らし、燃料電池の重量を軽減することができる。

[0035] MEAを保持する枠体について：

MEAを保持する枠体は、枠内部に高分子電解質膜と、それを挟み込む燃料極と酸化極とを枠内部に保持する。高分子電解質膜ならびに燃料極および酸化極は、互いに積層されて一体化されることによりMEAとされていることが好ましく、MEAの外周に枠体は配置され、MEAを保持していることが好ましい。

[0036] MEAを保持する枠体の枠内部は、前述のセパレータの中央部分と同一の形状と面積を有する。つまり、枠内部に露出する電極（燃料極および酸化極）は、セパレータの中央部分（流路が形成された領域）に相対する。

枠の内周にはシール材が配置される。つまり、枠内部に保持された燃料極または酸化極の外周に沿ってシール材が配置される。そのため、枠の内周に配置されたシール材と、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとが

当接する。

- [0037] 枠の内周に配置されたシール材（すなわち、電極の周囲に沿って配置されたシール材）の少なくとも一部は、傾斜されていることを特徴とする。前述の通り、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブは傾斜しているので、リブに当接するシール材もリブの傾斜にあわせて傾斜されている。つまり、セパレータの中央部分に形成されたリブの「長手方向の端面」が傾斜されている場合には、「長手方向の端面」に接触する箇所のシール材が傾斜していればよく、「リブの側面」が傾斜しているのであれば、「リブの側面」に接触する箇所のシール材が傾斜していればよい。
- [0038] 「リブの長手方向の端面」と、それに接触するシール材との接触面が傾斜していれば、流路端部からのガスのリークが効果的に抑制される。また、「リブの側面」と、それに接触するシール材との接触面が傾斜していれば、MEAとセパレータとの位置決めが容易となる。
- [0039] セパレータの中央部分に形成された流路が直線状であるときは、MEAを保持する枠体に「流路が折り返すための凹部」が形成されている（図1Aの15などを参照）。「流路が折り返すための凹部」は、枠体のうち、セパレータの直線状の流路の流路端に対応する部分に形成されている。流路が折り返すための凹部は、流路を流れる流体（反応ガスまたは冷却水）が、電極面の全体に順に行き渡るように流体の流れを規制する。流体の流れを規制するには「流路が折り返すための凹部」を複数の領域に区切ればよい。図1Aに示されるMEAを保持する枠体（符号10参照）の流路の流路端に対応する部分には、流路が折り返すための凹部が3つずつ形成されている。したがって、供給マニホールドから流路に供給される流体は、3.5往復して、排出マニホールドから排出される。
- [0040] 一方、セパレータの流路がサーペンタイン状であるときは、MEAを保持する枠体に流路が折り返すための凹部が形成されている必要はない。
- [0041] 前記MEAを保持する枠体には、枠の内周に配置されたシール材とともに、流路を外部や他の流路から密閉するシール材が形成されていてもよい（図

1 Aにおける符号 1 3 参照)。これらのシール材と、枠体とは、同一の素材で一体成形されていることが好ましい。一体成形することにより、シール材の変形量が低減されて、圧縮永久歪を小さくできるので、シール材の耐久性が向上する。

[0042] セパレータのリブと、MEAを保持する枠体の枠内周に配置されたシール材との関係について：

前述の通り、本発明の燃料単電池のセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと、MEAを保持する枠体の枠内周に配置されたシール材とが接触している。本発明の燃料単電池は、この接触面が、燃料単電池の積層方向に対して、平行ではなく傾斜していることを特徴とする。より具体的に、この接触面の法線が、接触しているセパレータに向いており、かつ枠の内周に向かっている。

特に、セパレータのリブの長手方向の端面と、枠体のシール材との接触面が、枠体からセパレータへの積層方向に対して傾斜していることが好ましい。

[0043] 傾斜の程度は、厳密に規定されるわけではないが、積層方向に対して30°～45°傾斜していることが好ましい。

[0044] 前記接触面が、燃料単電池の積層方向に対して傾斜していることにより、以下の効果が得られる。

1) 燃料単電池を通常の締結力で締結すれば、枠体の枠内周に配置されたシール材が、セパレータ流路をより確実にシールすることができる。接触面を斜めにするにより、締結力が、枠体のシール材とセパレータのリブとに両者の全接触面にわたって均一に伝わりやすくなるからである。特に、リブの長手方向の端面と、シール材との接触面が傾斜していると、流体のシールがより確実になる。

2) MEAを保持する枠体と、セパレータとの積層における位置ずれが生じにくくなる。傾斜に沿って積層すれば、適切な位置に配置しやすいからである。

[0045] 2. 本発明の燃料電池について

本発明の燃料単電池の2以上を積層して、燃料電池を作製することができる。このとき、燃料単電池同士の中に「スペーサ枠体」を配置してもよい。スペーサ枠体は、冷却水マニホールド穴を有し、1) 冷却水マニホールドから、単電池同士の間のカパレータ流路に、冷却水を流すための枠体であってもよい(図1A参照)、2) 単電池同士の間のカパレータ流路に、冷却水を流さない枠体であってもよい(図2参照)。

[0046] 図1Aに示されるように、冷却水を流すためのスペーサ枠体は、冷却水マニホールドから、電極面と接しない面に形成されたカパレータ流路へ冷却水を導くための連絡路を有する。一方、図2に示されるように、冷却水を流路に流さないスペーサ枠体は、冷却水マニホールドと流路との連絡路を有さない。

[0047] スペーサ枠体について：

スペーサ枠体は、枠の内周にシール材が配置されており、かつそのシール材がカパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触する。シール材と枠体とは、同一の素材で、一体成形されていることが好ましい。

[0048] 前記の通り、カパレータの中央部分と外周部分の境界のリブ(少なくとも、直線状のリブの長手方向の端面)は、カパレータの平面に対して垂直ではなく、傾斜して出っ張っている。したがって、スペーサ枠体の内周に配置されたシール材も、カパレータの中央部分と外周部分の境界のリブにあわせて、傾斜していることが好ましい。

より具体的には、スペーサ枠体のシール材と、カパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面が、積層方向に対して傾斜しており；接触面の法線が、接触しているカパレータに向いており、かつスペーサ枠体の内側に向いていることが好ましい。積層方向に対する傾斜角度は、約 $30^{\circ}$ ～ $45^{\circ}$ が好ましい。

[0049] スペーサ枠体の一方の面にはアノードカパレータが、もう一方の面にはカソードカパレータが積層される。したがって、スペーサ枠体の内周に配置さ

れたシール材は、V字状になっていることが好ましい（図1Aや図5Aなど参照）。シール材をV字状とすることで、アノードセパレータおよびカソードセパレータいずれのリブとの接触面も、傾斜させることができる。

[0050] 前記の通り、単電池同士の上に配置されるスペーサ枠体は、単電池同士の上のセパレータ流路に、冷却水を流すための枠体であってもよいし、流さない枠体であってもよい。冷却水を流すためのスペーサ枠体が、1つの燃料単電池毎に配置されていてもよく、2以上の燃料単電池毎に配置されていてもよい。

[0051] 冷却水をセパレータ流路に流すためのスペーサ枠体について：

セパレータの中央部分に形成された流路が直線状であるときに、単電池同士の上のセパレータ流路に冷却水を流すためのスペーサ枠体は、流路を流れる冷却水が折り返すためのへこみ（図1Aにおける符号41参照）を有していることが好ましい。冷却水が折り返すためのへこみは、冷却水が面全体に順に行き渡るように流れを規制することが好ましい。そのため図1Aに示されるように、スペーサ枠体に、折り返すためのへこみが複数形成されている。その折り返すためのへこみの境界となるシール材と、セパレータのリブの長手方向の端面とが、積層方向に対して斜めに当接すると、シール効果が高まり、過剰な締結力が不要となる。

[0052] さらに、スペーサ枠体のシール材（図1Aにおける符号42-1および42-2を参照）と、セパレータのリブとが斜めに接触をすることで、スペーサ枠体とセパレータとの積層における位置ずれが生じにくくなる。

[0053] 冷却水をセパレータ流路に流さないスペーサ枠体について：

単電池同士の上のセパレータ流路に冷却水を流さないスペーサ枠体は、セパレータ流路の形状に係わらず、セパレータの中央部分と外周部分の境界全体のリブ（リブの長手方向の端面や、リブの側面を含む）と接触するシール材を有することが好ましい。そして、スペーサ枠体のシール材と、境界のリブとの接触面が、積層方向に対して傾斜していれば、シール効果が向上し、かつ位置決めが容易となる。

## [0054] [実施の形態 1]

図 1 A には、1) 各セパレータの中央部分に直線状の流路が形成され、MEA を保持する枠体に流路の折り返し部が形成され、かつ 2) 燃料単電池同士の間配置されたセパレータ流路に、冷却水を流すためのスペーサ枠体が配置された燃料単電池の、積層前の様子が示される。

[0055] 図 1 A には、MEA を保持する枠体 (MEA 保持枠体) 10、アノードセパレータ 20、カソードセパレータ 30、スペーサ枠体 40 のそれぞれの鳥瞰図が示される。

図 5 A はスペーサ枠体 40 の A の断面を、図 5 B はセパレータ 20 および 30 の B の断面を、図 5 C はセパレータ 20 および 30 の C の断面を、図 5 D は MEA 保持枠体 10 の D の断面を示す。

[0056] MEA 保持枠体 10 は、MEA 11 (例えば、縦 150 mm × 横 150 mm) の周囲に、ポリプロピレン製の枠体 (縦 220 mm × 横 220 mm) をインサート成形することにより作製されうる。

[0057] MEA 保持枠体 10 の枠には、複数の凹部 15 が形成されている。凹部 15 はセパレータの流路を流れる反応ガスが折り返すための領域となる。凹部 15 は、枠体 10 の両面 (アノード側とカソード側) のいずれにも設けられている (カソード側は不図示)。

[0058] MEA 保持枠体 10 は、枠の内周に配置された (つまり、枠体 10 に保持された MEA 11 の外周に沿って配置された) シール材 14 (14-1, 14-2, 14-3 を含む) を有する。さらに、外部へのガスのリークを防止するシール材 13 も有する。各シール材は、フッ素ゴムを 2 色成形することにより形成されうる。

[0059] シール材 13 は、外部にガスが漏れないように、各マニホールド穴 16 ~ 18 (燃料ガスマニホールド穴 16、冷却水マニホールド穴 17、酸化剤ガスマニホールド穴 18)、および MEA 11 をそれぞれ囲い込む。シール材 13 およびシール材 14 は、枠体 10 の両面 (アノード側とカソード側) に設けられている (アノード側は不図示)。

- [0060] シール材 14 の一部 (14-1 および 14-3) の厚さ (MEA からの高さ) は、セパレータ 20 および 30 に形成された流路の高さ (リブの高さ) と同じであることが好ましいが; 一方で、シール材 14 のうちの別の一部、つまり枠体 10 の凹部 15 に形成されたシール材 14-2 や、燃料ガスマニホールド穴 16 との連絡路 16-1 に形成されたシール材 14 や、酸化剤ガスマニホールド穴 18 との連絡路 (不図示) に形成されたシール材 14 の厚さは、セパレータに形成された流路の高さよりも低いことが必要である。反応ガスの流れを確保するためである。
- [0061] シール材 14 (14-1, 14-2, 14-3 を含む) は、各部材 (10, 20, 30 および 40) の積層方向と平行ではなく、傾斜して形成され (図 5D を参照)、テーパ状とされている。具体的には、MEA を保持する枠体 10 から、各セパレータ (アノードセパレータ 20 またはカソードセパレータ 30) への積層方向に対してシール材 14 はテーパ状に傾斜している。
- [0062] アノードセパレータ 20 とカソードセパレータ 30 は、その中央部分に複数の直線状の溝とリブが形成されている。形成されたリブの端面および側面は、セパレータ面から垂直ではなく、垂直方向に対して約 30° 傾斜させて突出されている。
- [0063] アノードセパレータ 20 は、MEA 保持枠体 10 の燃料極側に積層され、アノード側に形成された流路のリブの端部 21-1 および側面が、MEA 保持枠体 10 のシール材 14 に当接する。一方、カソードセパレータ 30 は、MEA 保持枠体 10 の酸化極側に積層され、カソード側に形成された流路のリブの端面 31-2 および側面は、MEA 保持枠体 10 のシール材 14 (不図示) と当接する。
- [0064] スペーサ枠体 40 は、ポリプロピレン製枠体 (たとえば、縦 210mm × 横 210mm) の枠内周にシール材 42 (42-1 および 42-2 を含む) を形成し、さらに燃料ガスマニホールド穴 16 および酸化剤ガスマニホールド穴 18、ならびにスペーサ枠体 40 の枠の空洞を囲むシール材 44 を形成することにより得られる。シール材 44 は、冷却水や反応ガスが外部に漏れ

ることを防止する。各シール材は、フッ素ゴムを2色成形することにより形成される。

[0065] スペーサ枠体40の枠内周に配置されたシール材42は、アノードセパレータ20およびカソードセパレータ30の中央部分に形成されているリブ外周（リブの端面および側面）と当接する。そのため、各部材（10, 20, 30, 40）の積層方向と平行ではなく、V字状に形成されている（図5Aを参照）。

[0066] 図1Bは、図1Aに示され燃料単電池の2つを積層した積層体の、流路端部付近（燃料ガスマニホールド穴16付近）の断面図である。図1Bに示されるように、アノードセパレータ20、カソードセパレータ30、およびスペーサ枠体40の外枠を、MEA保持枠体10の外枠より小さくすることが好ましい。つまり、燃料単電池の側面は、MEA保持枠体10の外周面で覆われるようにして、セパレータ（20, 30）やスペーサ枠体40の外周面が露出しないようにすることが好ましい。

[0067] 図1Bに示されるように、単電池同士が積層されると、アノードセパレータ20の冷却水側のリブの端面21-2は、スペーサ枠体40のシール材42-1と当接する。一方、カソード側セパレータ30の冷却水側のリブの端面31-2も、スペーサ枠体40のシール材42-1と当接する。このように、シール材42-1はV字状にされている。

[0068] 燃料ガスは、マニホールド穴16から連絡路16-1を通り、アノードセパレータ20の流路（MEA11と、アノードセパレータ20のリブの側面に囲まれた領域）に入る。MEA保持枠体10の凹部15に到達した燃料ガスは（凹部15は、アノードセパレータ20の外周部で規定された空間である）、進行方向を180°転換して隣接する流路へ流入する。この動作を繰り返し、排出マニホールド穴（図示せず）から排出される。

[0069] 酸化剤ガスも、同様にマニホールド穴18からカソードセパレータ30の流路に入り、さらに流路を通過して排出される。

[0070] 冷却水は、冷却水マニホールド穴17から連絡路43を通り、カソードセ

パレータ 30 の流路（冷却水側）と、アノードセパレータ 20 の流路（冷却水側）に入る。へこみ 41 に到達した冷却水は、進行方向を 180° 転換して、隣接する流路に流入する。この動作を繰り返し、マニホールド穴 17（排出側）から排出される。

[0071] 図 10 には、2 以上の燃料単電池の積層体を集電板で挟みこみ、燃料電池とする様子が示される。各燃料単電池は、MEA 保持枠体 10、アノードセパレータ 20、カソードセパレータ 30、およびスペーサ枠体 40 を含む。具体的には、2 以上の燃料単電池の積層体の両端を、集電板 90、絶縁板 91、さらに配管付端板 92 で挟みこみ、ボルト 93 とナット 94 で締結して、燃料電池（燃料電池スタック）を得る。

[0072] [実施の形態 2]

図 2 は、1) 各セパレータに直線状の流路が形成され、MEA を保持する枠体に流路の折り返し部が形成され、かつ 2) 燃料単電池同士の間配置された、燃料単電池同士の間冷却水を流さないスペーサ枠体を有する燃料単電池の積層前の様子が示される。

[0073] 図 2 は、MEA 保持枠体 10、アノードセパレータ 20、カソードセパレータ 30、スペーサ枠体 40' の鳥瞰図である。MEA 保持枠体 10、アノードセパレータ 20、カソードセパレータ 30 は、実施の形態 1 の燃料単電池（図 1A）と同一である。

[0074] 一方、図 1A に示される燃料単電池はスペーサ枠体 40 を有するのに対して、図 2 に示される燃料単電池はスペーサ枠体 40' を有する点で異なる。つまり、実施の形態 2 の燃料電池の冷却水は、積層される燃料単電池同士の間の流路には流されない。つまり、冷却水は燃料単電池の外周を流れる。

[0075] スペーサ枠体 40' は、燃料ガスマニホールド穴 16、冷却水マニホールド穴 17、および酸化剤ガスマニホールド穴 18 の周りを囲むシール 44 を有する。また、スペーサ枠体 40' の枠内周に配置されたシール材 42' も、図 1 におけるシール材 42（42-1 と 42-2 を含む）と異なり、枠体 40' の枠の全内周に設けられている。そのため、スペーサ枠体 40' は、

冷却水マニホールド穴 17 と冷却水流路との連結路（図 1 の連絡路 43 を参照）を有さない。

[0076] [実施の形態 3]

図 3 は、1) 各セパレータに直線状の流路が形成され、MEA を保持する枠体に流路の折り返し部が形成され、2) 燃料単電池同士の間配置され、セパレータの流路に冷却水を流すためのスペーサ枠体が配置され、3) 各セパレータには、燃料ガスマニホールド穴または酸化剤ガスマニホールド穴のいずれかだけが形成されている燃料単電池の積層前の様子を示す。

[0077] 図 3 は、MEA 保持枠体 10、アノードセパレータ 20'、カソードセパレータ 30'、スペーサ枠体 40 の鳥瞰図である。MEA 保持枠体 10、スペーサ枠体 40 は、実施の形態 1 の燃料単電池（図 1 A）と同一である。

[0078] 一方、図 3 に示される燃料単電池はアノードセパレータ 20' とカソードセパレータ 30' を有する点で、アノードセパレータ 20 とカソードセパレータ 30 とを有する燃料単電池（図 1）と相違する。つまり、アノードセパレータ 20' には、燃料ガスマニホールド穴 16 と冷却水マニホールド穴 17 が形成されているが、酸化剤ガスマニホールド穴を有さず、酸化剤ガスマニホールド穴が形成されるべき部位が削除されている。一方、カソードセパレータ 30' は、酸化剤ガスマニホールド穴 18 と冷却水マニホールド穴 17 が形成されているが、燃料ガスマニホールド穴を有さず、燃料ガスマニホールド穴が形成されるべき部位が削除されている。

[0079] [実施の形態 4]

図 4 A には、1) セパレータにサーペンタイン状の流路が形成され、MEA を保持する枠体に流路の折り返し部がなく、2) 燃料単電池同士の間配置され、セパレータ流路に冷却水を流すためのスペーサ枠体が配置される燃料単電池の積層前の様子が示される。

[0080] 図 4 A は、MEA 保持枠体 10'、アノードセパレータ 20''、カソードセパレータ 30''、スペーサ枠体 40'' の鳥瞰図である。

[0081] アノードセパレータ 20'' のアノード面とその裏の冷却水面、およびカ

ソードセパレータ 30' のカソード面とその裏の冷却水面の電極に相対する領域（中央部分）には、入口から出口までのターン部を有する流路が形成されている。このため、MEA保持枠体 10' と、スペーサ枠体 40' は、図 1 における凹部 15 やへこみ 41（流体が折り返すための領域）を有さない。

[0082] 図 4 B には、アノードセパレータ 20' の冷却水路側の面と、スペーサ枠体 40' のアノード側の面とが示される。つまり、アノードセパレータ 20' とスペーサ枠体 40' の、互いに接触する面が示されている。スペーサ枠体 40' のシール材 42 が、セパレータ 20' の中央部分と外周部分の境界のリブに接触する。矢印 Z は、冷却水の流れる方向を示す。

図 4 C には、アノードセパレータ 20' のMEA側の面と、MEA保持枠体 10' の電極面とが示される。つまり、アノードセパレータ 20' とMEA保持枠体 10' の、互いに接触する面が示されている。MEA保持枠体 10' のシール材 14 が、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブに接触する。

図 4 D には、カソードセパレータ 30' の冷却水路側の面と、スペーサ枠体 40' のカソード側の面とが示される。つまり、カソードセパレータ 30' とスペーサ枠体 40' の、互いに接触する面が示されている。スペーサ枠体 40' のシール材 42 が、カソードセパレータ 30' の中央部分と外周部分の境界のリブに接触する。

[0083] 図 4 E および図 4 F は、2つの燃料単電池（MEA保持枠体 10'、アノードセパレータ 20'、カソードセパレータ 30'、スペーサ枠体 40' の積層体）の積層体の断面図である。図 4 E は、図 4 B～D の X に沿った断面であり、一方、図 4 F は、図 4 B～D の Y に沿った断面である。

## 実施例

[0084] 以下において本発明を、実施例を参照して説明するが、本発明の範囲はこれらによって限定されない。

[0085] [実施例 1]

実施の形態1に対応するMEA保持枠体、アノードセパレータ、カソードセパレータ、冷却水を流すためのスペーサ枠体（図1）を作製した。

[0086] MEA保持枠体の作製：

アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒度約30Åの白金粒子を25重量%担持して、カソード触媒を得た。また、アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒度約30Åの白金-ルテニウム合金粒子を25重量%担持して、アノード触媒を得た。

これらの触媒粉末をイソプロピールアルコールに分散させ、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と混合してペースト状にした。得られたペーストのそれぞれを、スクリーン印刷法を用いて、厚さ250μmのカーボン不織布の一方の面に塗工して触媒層を形成した。得られた各々の電極の触媒層に含まれる触媒金属量を0.3mg/cm<sup>2</sup>、パーフルオロスルホン酸の量を1.2mg/cm<sup>2</sup>とした。得られたカソード電極とアノード電極とは、触媒材料以外は同一構造とした。

[0087] これらの電極のそれぞれを、それよりひとまわり大きい面積を有する高分子電解質膜の中心部の両面に配置した。高分子電解質膜は、パーフルオロスルホン酸の薄膜（厚さ：30μm）とした。さらに、所定の大きさ（155mm×155mm）に切り抜かれたフッ素系ゴムシート（厚さ：250μm）を、露出している高分子電解質膜の両側の外周部に、電極の一部を挟んで配置し、ホットプレスによって接合一体化させ、MEAとした。

[0088] このように作製したMEAを用いて、実施の形態1で説明したMEA保持枠体を作製した。

[0089] セパレータの作製：

厚さ0.3mmのSUS316板（220mm×220mm）の中央部（155mm×155mm）をプレス加工して、5.6mmピッチ（溝幅2.8mm）の波状とした。溝の深さ（リブの高さ）は約1mmとした。プレス加工は、SUS316板材の圧延方向と波状溝の長手方向が平行となるようにして行った。

- [0090] SUS板の中央部に形成されたリブの端面および側面は、SUS板の表面から垂直ではなく、傾斜させて突出させた。具体的には、表面からの垂直軸に対して、外側に30°傾斜させた。
- [0091] SUS板の中央部をプレス加工（第一工程）した後に、さらにSUS板の周辺部（平面）の歪取りのための加圧と、マニホールド穴の形成のための打ち抜きを同時に行った（第二工程）。
- [0092] MEA保持枠体に保持されたMEAの外周（つまり、MEA保持枠体の枠内周）にシール材を配置した。配置されたシール材は、セパレータの中央部分と外周部分の境界のリブ（リブの端面または側面）と当接するようにした。つまり、シール材と、セパレータのリブの端面または側面との接触面は、積層方向に対して30°傾斜していた。
- [0093] カソードセパレータと、MEA保持枠体と、アノードセパレータと、冷却水を流すためのスペーサ枠体との積層体である単電池を、50セル積層した。さらに、50セル積層体を、表面に金メッキを施した銅板からなる集電板をポリフェニレンサルファイド製の絶縁板を介して、ステンレス製の端板で挟み、両端板を締結ロッドで締結した。このとき、電極の単位面積あたりの締結圧が100N/cm<sup>2</sup>となるように感圧紙で調整した。電極への圧縮力とシールへの加圧力との合計である全締結力は、15kNであった。
- [0094] 燃料ガス流路、酸化剤ガス流路、および冷却水流路のそれぞれを、150kPaの窒素ガスで加圧したところ、いずれの流路についても、外部への窒素ガス漏れ量は20SCCM以下であった。
- [0095] 以上のように作製した固体高分子型燃料電池に、水素利用率70%、酸素利用率20%で水素と空気を供給し、性能試験を行った。電池温度を75℃、水素側の露点を80℃、空気側の露点を75℃とした。その結果、1050W（35V-30A）の電力出力を得た。この出力を通常出力（100%）したときに、低出力（約50%）、つまり525W（35V-15A）の出力を得るには、水素利用率65%、酸素利用率15%で水素と空気を供給する必要があった。

## [0096] [比較例 1]

図 7 に示されたセパレータをアノードセパレータおよびカソードセパレータとすること以外は、実施例 1 と同様にして燃料電池を作製した。ただし、MEA 保持枠体およびスペーサ枠体のシール材（図 1 A における符号 1 4 や 4 2）を省略した。電極単位面積あたり  $100\text{ N/cm}^2$  の締結圧を付与して、かつ実施例 1 と同様の気密性を維持するには、セパレータの流路溝にシール（図 7 の符号 1 0 2）を密着させる必要があり、 $50\text{ kN}$  の全締結力が必要であった。

[0097] また、セパレータ流路が直線状であるため、各流路への燃料ガスおよび酸化剤ガスの流入量にバラツキが生じ、特に低負荷運転時に外周に近い流路においてフラッシングが生じやすくなった。このため、実施例 1 と同様に、水素利用率  $70\%$ 、酸素利用率  $20\%$  で通常出力が得られたものの；低出力を得るには、水素利用率  $60\%$ 、酸素利用率  $12\%$  で水素と空気を流す必要があった。

## [0098] [比較例 2]

図 8 に示されたセパレータをアノードセパレータおよびカソードセパレータとすること以外は、実施例 1 と同様にして燃料電池を作製した（MEA 保持枠体およびスペーサ枠体のシール材（図 1 A における符号 1 4 や 4 2）を省略した）。セパレータ流路は、サーペンタイン状とした。電極単位面積あたり  $100\text{ N/cm}^2$  の締結圧を付与して、かつ実施例 1 と同様の気密性を維持するには、セパレータの流路溝にシール（図 8 の 1 1 2）を密着させる必要があり、 $20\text{ kN}$  の全締結力が必要であった。

[0099] また、セパレータ流路がサーペンタイン状であるため、各流路への燃料ガスおよび酸化剤ガスの流入量にバラツキが生じにくく、比較例 1 と比べると、低負荷運転時でフラッシングが生じにくかった。実施例 1 と同様のガス利用率で、通常出力および低出力が得られた。

## [0100] [比較例 3]

図 9 に示されたセパレータと MEA 保持枠体を用いること以外は、実施例

1と同様にして燃料電池を作製した。MEA保持枠体の流路群の境界部分のシール材122は絶縁性部材とした。電極単位面積あたり $100\text{N}/\text{cm}^2$ の締結圧を付与して、かつ実施例1と同様の気密性を維持するには、 $12\text{kN}$ の全締結力が必要であった。しかしながら、接触抵抗が増大したため所定の電圧を得ることができず、水素利用率70%、酸素利用率20%で水素と空気を流したときに、 $900\text{W}$  ( $30\text{V}-30\text{A}$ ) の出力しか得ることができなかった。

このように、実施例1の有効性が確認された。

[0101] [実施例2]

実施例2では、実施の形態1で説明した冷却水を流すスペーサ枠体を含む燃料単電池（「冷却単電池」と称する）と、実施の形態2で説明した冷却水を流さないスペーサ枠体を含む燃料単電池（「非冷却単電池」と称する）とを交互に積層し、両端は冷却単電池とした。実施例1と同様にして、積層体を締結ロッドで締結した。

[0102] 通常負荷においては、スタックの温度を所定温度に維持するには、冷却水圧損が大きくなり過ぎ、かえってシステム全体の発電効率を低下させる要因となった。一方、低負荷においては、冷却水圧損が実施例1と比べて大きいことで、積層位置ごとの冷却水の流量のばらつきが少なくなった。そのため、冷却水の流量の不足により温度が高くなり過ぎた単電池で、相対湿度が低下して、発電性能が低下する（電圧が下がる）ことが防止できた。1000時間の発電経過時における電圧低下が、実施例1に比べて5%低減できた。

[0103] [実施例3]

実施例3では、実施の形態3（図3参照）で説明したMEA保持枠体とセパレータを用いた。

アノードセパレータは、電極に対応する部分と、燃料ガスマニホールド穴の周囲5mmと、冷却水マニホールド穴の周囲5mmだけとして、酸化剤ガスマニホールド穴が形成される部分の金属板を省略した。同様に、カソードセパレータは、電極に対応する部分と、酸化剤ガスマニホールド穴の周囲5

mmと、冷却水マニホールド穴の周囲5mmだけとして、燃料ガスマニホールド穴が形成される部分の金属板を省略した。

それにより、実施例1と比較して、セパレータ単体の重量が15%軽減され、積層スタック全体の重量が11%軽減された。

[0104] 実施例1と同様にして単電池を積層した積層体を締結した。このときの締結圧を、電極の単位面積あたり100N/cm<sup>2</sup>とした。電極への圧縮力とシールへの加圧力を合わせた全締結力は15kNとなった。

[0105] 燃料ガス流路、酸化剤ガス流路、および冷却水流路のそれぞれを、150kPaの窒素ガスで加圧したところ、外部への漏れ量はそれぞれ20SCCM以下であった。発電性能は実施例1とほぼ同等であった。

[0106] [実施例4]

実施例4では、実施の形態4（図4A～Fを参照）で説明したMEA保持枠体とセパレータを用いた。アノードセパレータのアノード面と冷却水面の流路、およびカソードセパレータのカソード面と冷却水面の流路は、流路の入口から出口まで、サーペンタイン状に形成されている。

[0107] 実施例1の燃料単電池と比較して、MEA保持枠体やスペーサ枠体のシール材のテーバー部分と、セパレータのリブとの接触距離が長くなるため、シール性が向上した。特に、低負荷においてフラッシングが生じにくく、実施例1で低出力525W（35V－15A）を得るには、水素利用率65%、酸素利用率15%で水素と空気を流す必要があったのに対し；実施例4では、水素利用率67%、酸素利用率18%で水素と空気を流すことにより低出力が得られた。

[0108] しかしながら、SUS316の板材をサーペンタイン状にプレス加工すると、流路ターン部において金属板の破断が生じやすかった。そのため、実施例1におけるセパレータ作製の歩留まりがほぼ100%であったのに対し、実施例4におけるセパレータ作製の歩留まりは85%であった。

### 産業上の利用可能性

[0109] 本発明の高分子電解質型燃料単電池または燃料電池は、波形断面の金属セ

パレータを採用するにも係わらず、過大な締結力を要することなく、また接触抵抗の増大を招くことなく、セパレータ流路を流れるガスの流れを規制し、互いの混合を確実に防止する。本発明の高分子電解質型燃料電池は、例えばポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネレーションシステムに使用される。

[0110] 本出願は、2008年5月28日出願の特願2008-140111に基づく優先権を主張する。当該出願の明細書および図面に開示された内容は、全て本願に援用される。

### 符号の説明

- [0111] 10, 10', 10'' MEA保持枠体  
11 MEA  
13 シール材  
14-1, 14-2, 14-3 枠の内周に配置されたシール材  
15 折り返すための凹部  
16 燃料ガスマニホールド穴  
16-1 連絡路  
17 冷却水マニホールド穴  
18 酸化剤ガスマニホールド穴  
20, 20', 20'' アノードセパレータ  
21-1, 21-2 リブの長手方向の端面  
30, 30', 30'' カソードセパレータ  
31-1, 31-2 リブの長手方向の端面  
40, 40', 40'' スペーサ枠体  
41 折り返すためのへこみ  
42, 42', 42-1, 42-2 枠の内周に配置されたシール材  
43 連絡路  
44 シール材  
90 集電板

9 1 絶縁板

9 2 配管付端板

9 3 ボルト

9 4 ナット

1 0 0, 1 1 0, 1 2 0 金属セパレータ

1 0 1, 1 1 1, 1 2 1 セパレータ流路

1 0 2, 1 1 2, 1 2 2 シール材

## 請求の範囲

[請求項1]

高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟む燃料極および酸化極とを枠内部に保持する枠体と；前記燃料極に積層された、燃料ガスを供給および排出する流路を有するアノードセパレータと；前記酸化極に積層された、酸化剤ガスを供給および排出する流路を有するカソードセパレータと、を含む固体高分子型燃料単電池であって、

前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの中央部分は、前記燃料極および酸化極と相対し、表裏に溝とリブを交互に形成され、厚さが一定の波形断面を有し、かつ直線状の流路を形成されており；前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの外周部分は、マニホールド穴を有する平板構造であり、

前記枠体の両面には、

前記アノードセパレータまたはカソードセパレータが形成する流路が折り返すための凹部が形成されており、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置され、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分との境界のリブと接触して、燃料ガスまたは酸化剤ガスの流れを規制するシール材が配置され、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料単電池。

[請求項2]

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面の法線は、接触しているセパレータに向いており、かつ枠体内側に向いている、請求項1に記載の固体高分子型燃料単電池。

[請求項3] 前記アノードセパレータおよびカソードセパレータは、金属製セパレータである、請求項1に記載の固体高分子型燃料単電池。

[請求項4] 請求項1に記載の燃料単電池の複数個を積層して構成される固体高分子型燃料電池。

[請求項5] 請求項1に記載の燃料単電池の複数個を積層して構成される固体高分子型燃料電池であって、

前記燃料単電池同士の間には積層されたスペーサ枠体であって、燃料単電池同士の間の前記セパレータ流路に冷却水を流すための枠体をさらに有し、

前記スペーサ枠体の両面には、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触し、冷却水の流れを規制するシール材が形成され、

前記スペーサ枠体に形成されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記スペーサ枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池。

[請求項6] 請求項1に記載の燃料単電池の複数個を積層して構成される固体高分子型燃料電池であって、

前記燃料単電池同士の間には積層されたスペーサ枠体であって、燃料単電池同士の間の前記セパレータ流路に冷却水を流さない枠体をさらに有し、

前記スペーサ枠体の両面には、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分との境界のリブと接触するシール材が形成され、

前記スペーサ枠体に形成されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記スペーサ枠体からアノードセパレータまたは

カソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料電池。

[請求項7] 前記アノードセパレータは、燃料ガスマニホールド穴と冷却水マニホールド穴を有し、かつ酸化剤ガスマニホールド穴を有さず、

前記カソードセパレータは、酸化剤ガスマニホールド穴と冷却水マニホールド穴を有し、かつ燃料ガスマニホールド穴を有さない、

請求項1に記載の固体高分子型燃料単電池。

[請求項8] 高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟む燃料極および酸化極とを枠内部に保持する枠体と；前記燃料極に積層された、燃料ガスを供給および排出する流路を有するアノードセパレータと；前記酸化極に積層された、酸化剤ガスを供給および排出する流路を有するカソードセパレータと、を含む固体高分子型燃料単電池であって、

前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの中央部分は、前記燃料極および酸化極と相対し、表裏に溝とリブを交互に形成され、厚さが一定の波形断面を有し、かつサーペンタイン状の流路を形成されており；前記アノードセパレータおよびカソードセパレータの外周部分は、マニホールド穴を有する平板構造であり、

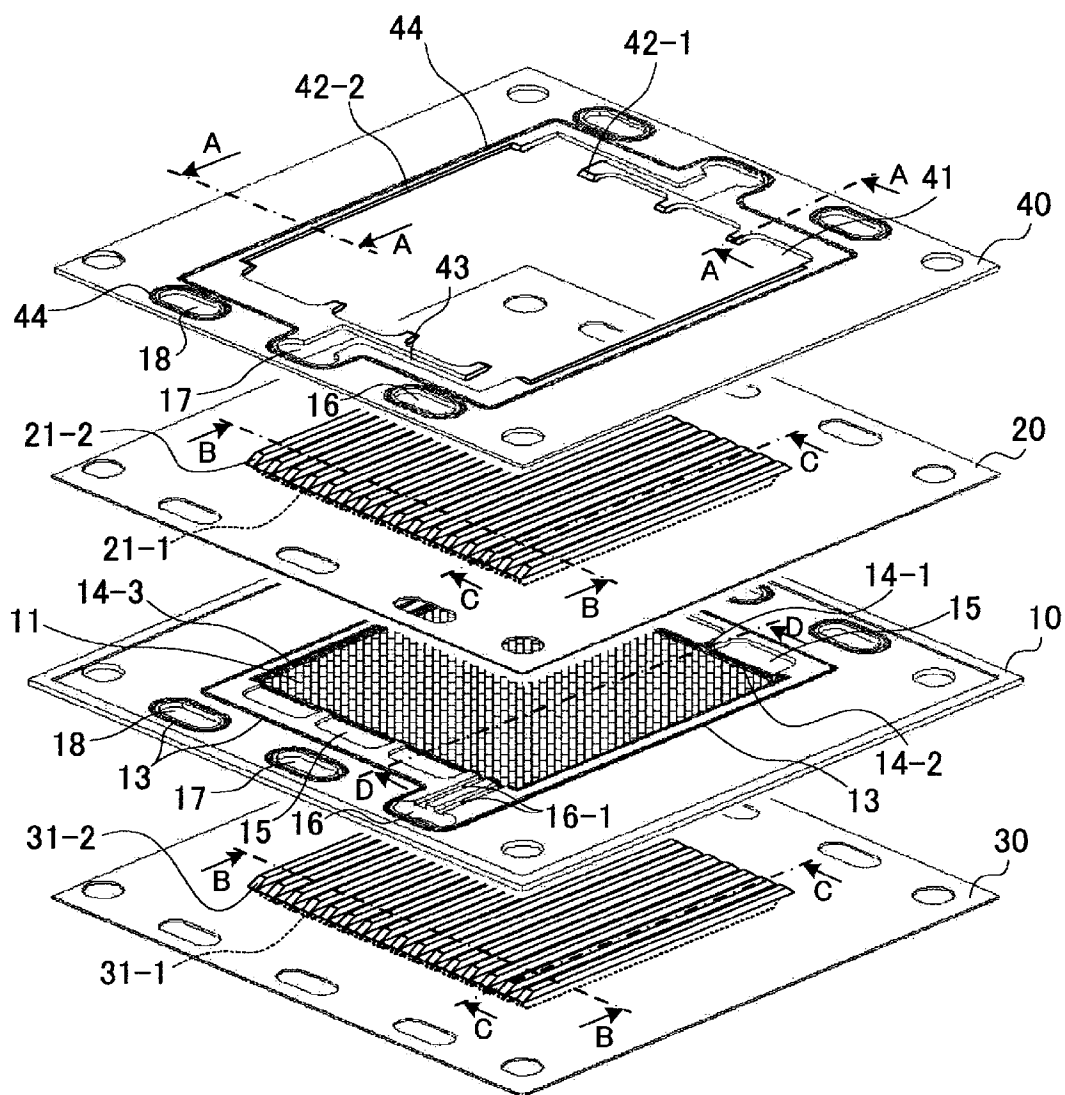
前記枠体の両面には、前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置され、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブと接触して、燃料ガスまたは酸化剤ガスの流れを規制するシール材が配置され、

前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部分の境界のリブとの接触面はそれぞれ、前記枠体からアノードセパレータまたはカソードセパレータへの積層方向に対して傾斜している、固体高分子型燃料単電池。

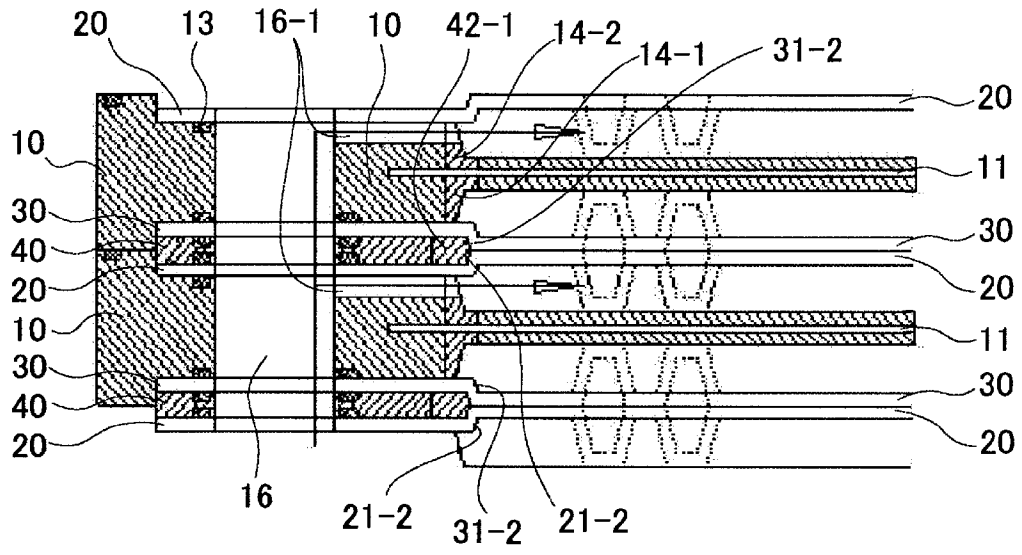
[請求項9] 前記燃料極または酸化極の周囲に沿って配置されたシール材と、前記アノードセパレータまたはカソードセパレータの中央部分と外周部

分の境界のリブとの接触面の法線は、接触しているセパレータに向いており、かつ枠体内側に向いている、請求項 8 に記載の固体高分子型燃料単電池。

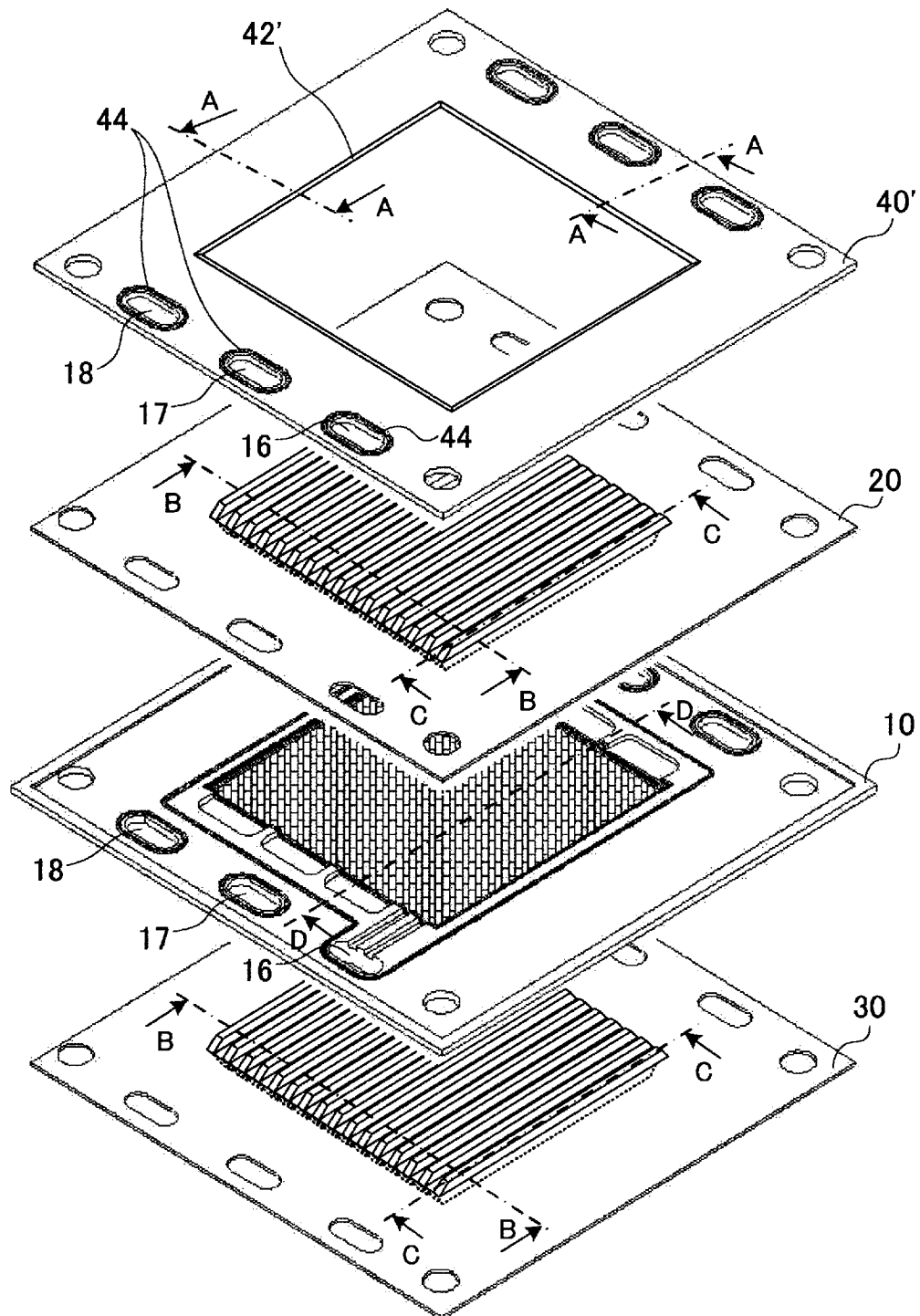
[図1A]



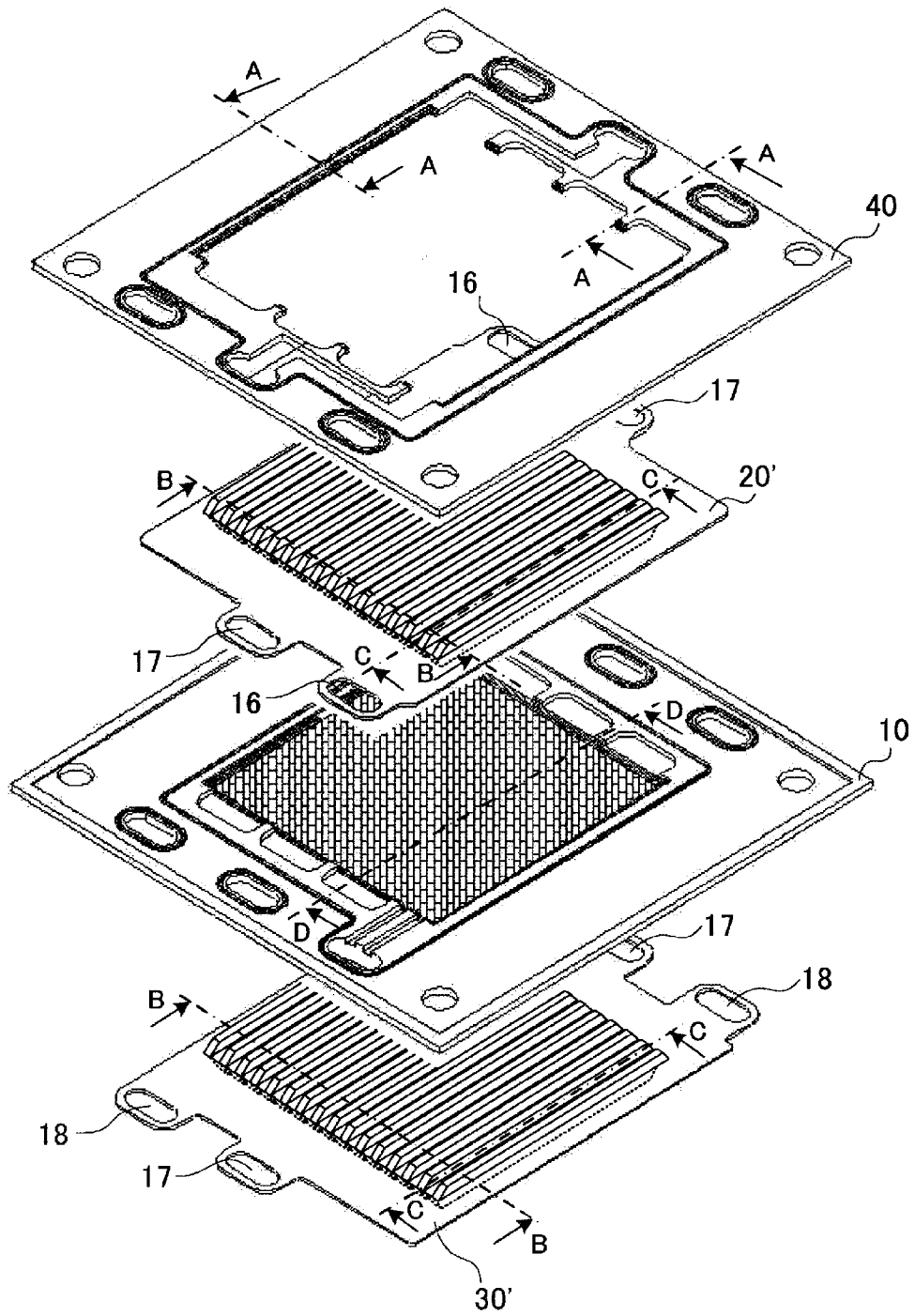
[図1B]



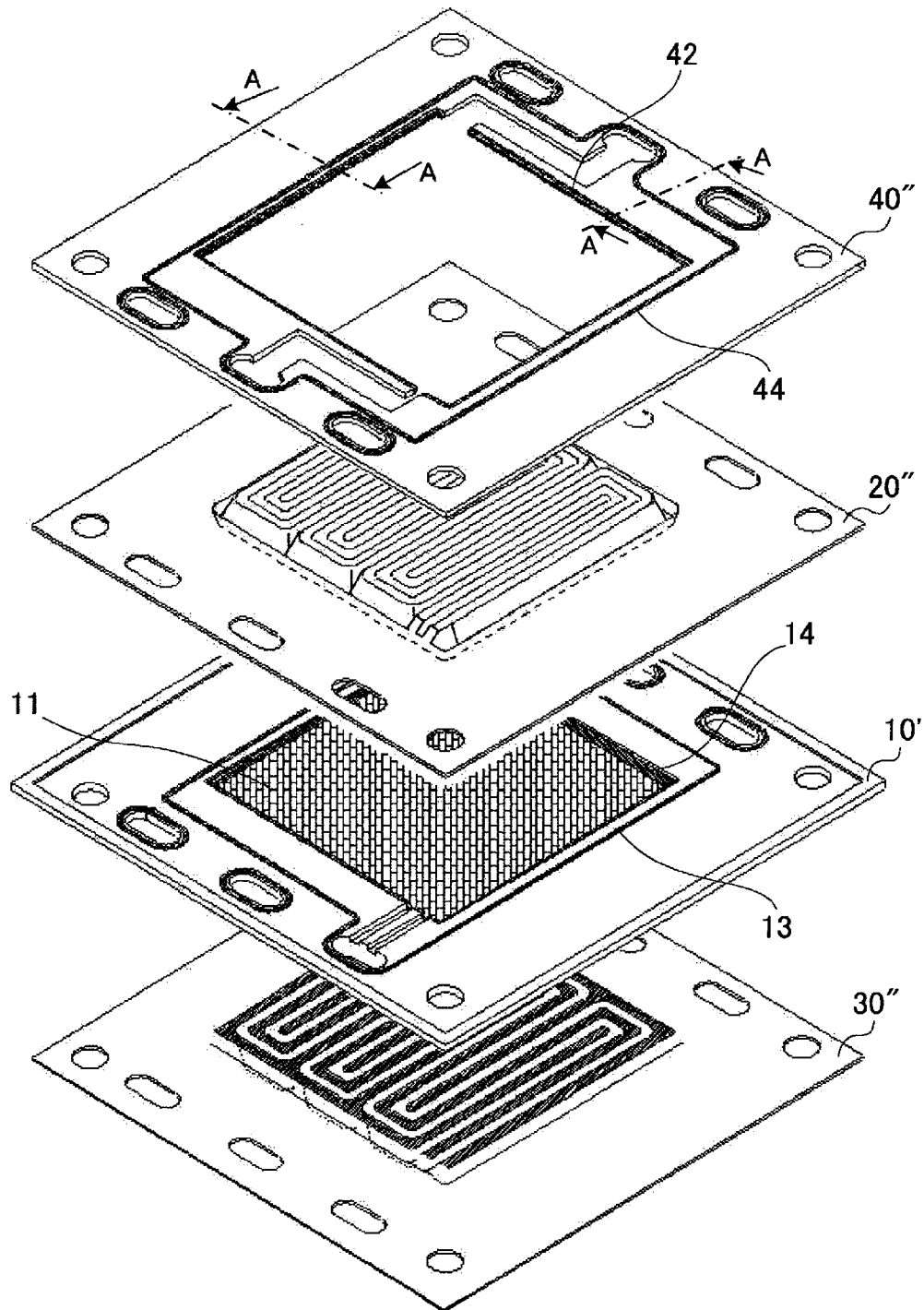
[圖2]



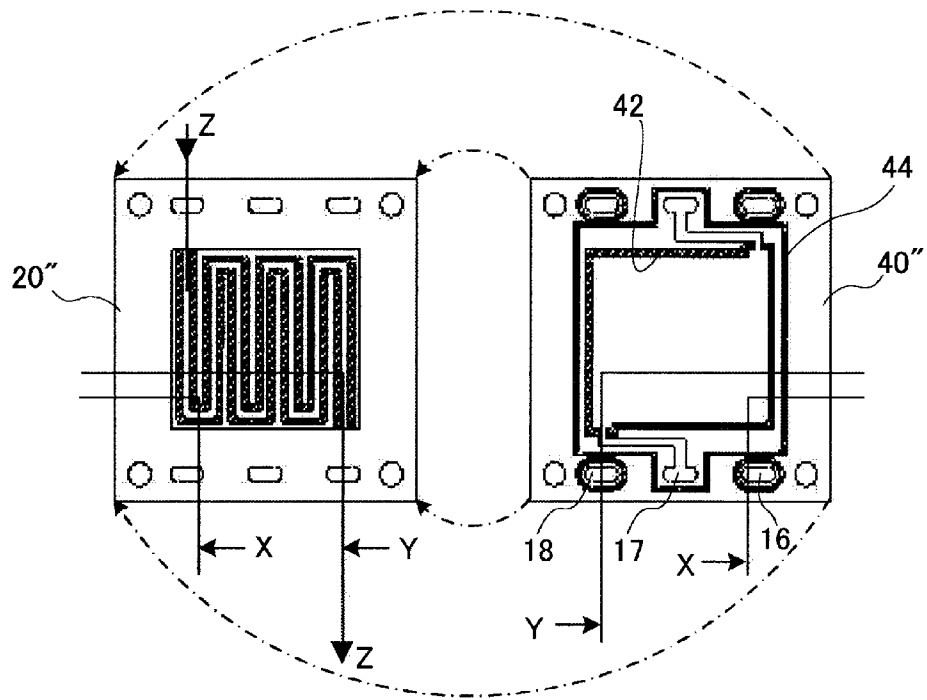
[図3]



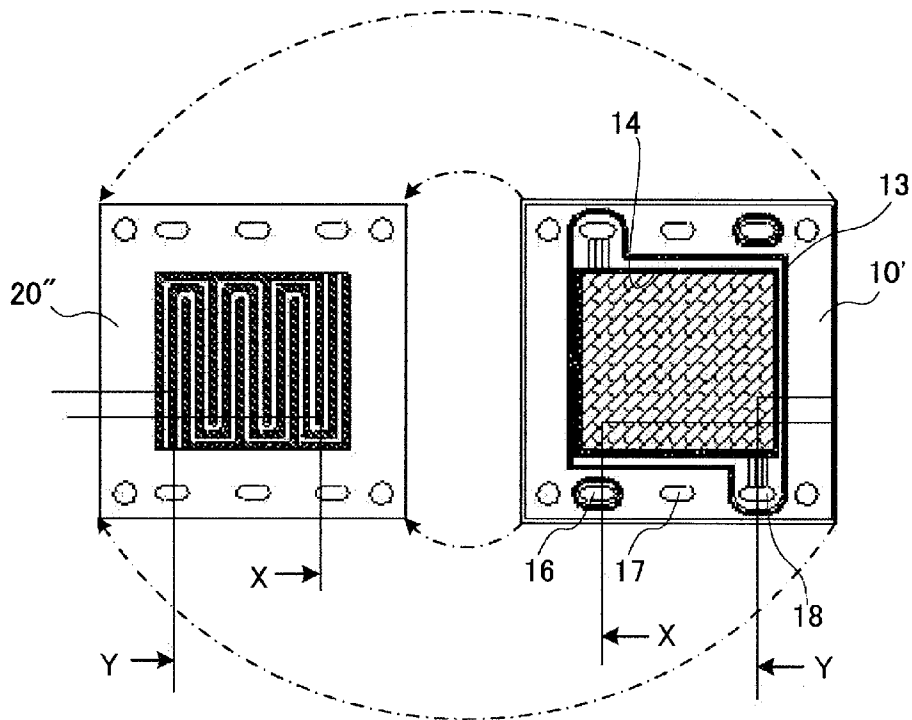
[図4A]



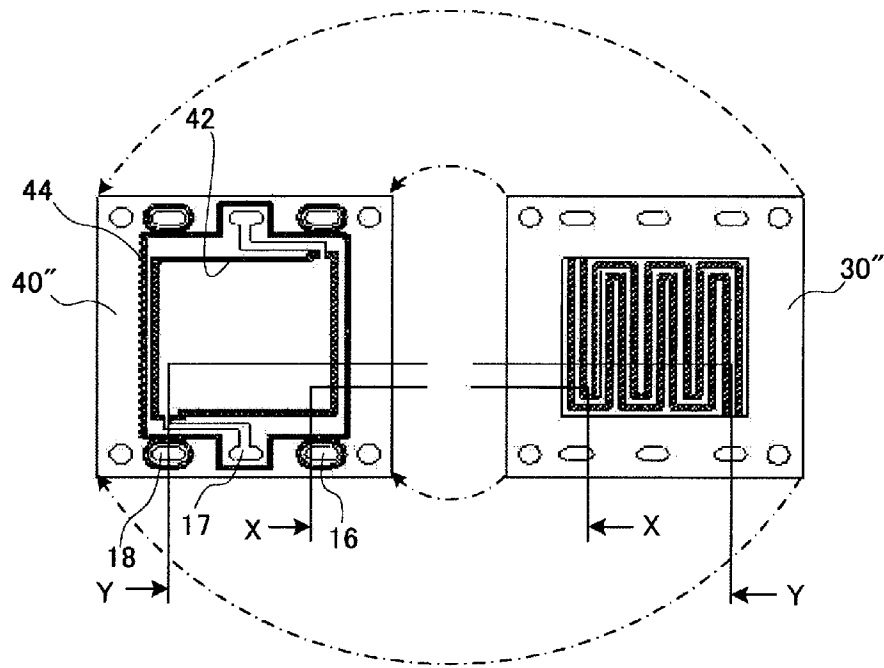
[図4B]



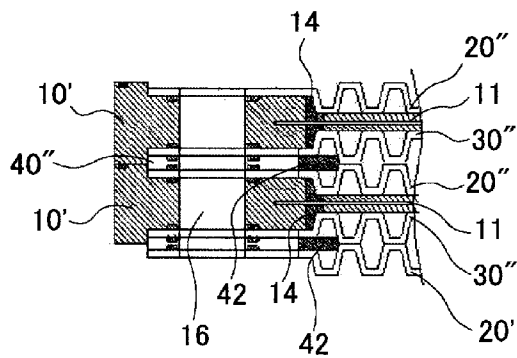
[図4C]



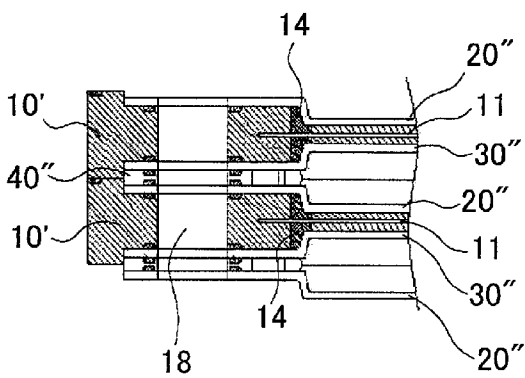
[図4D]



[図4E]



[図4F]



[図5]

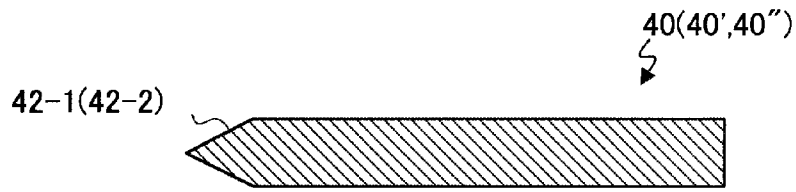


図5A

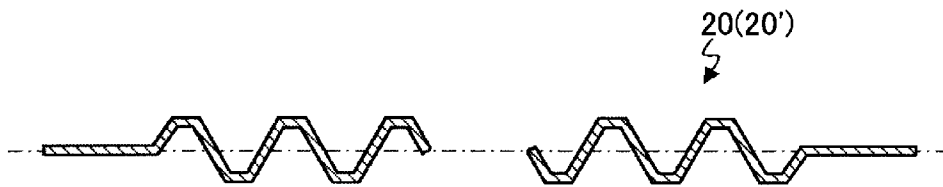


図5B

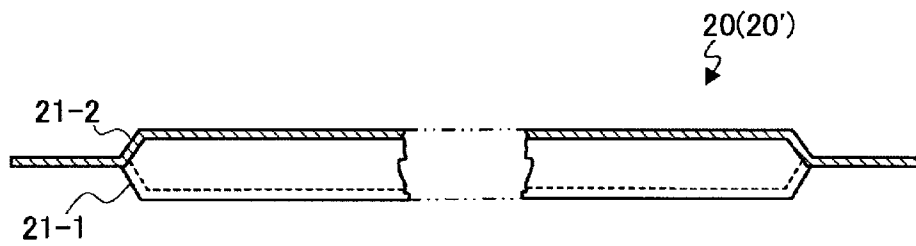


図5C

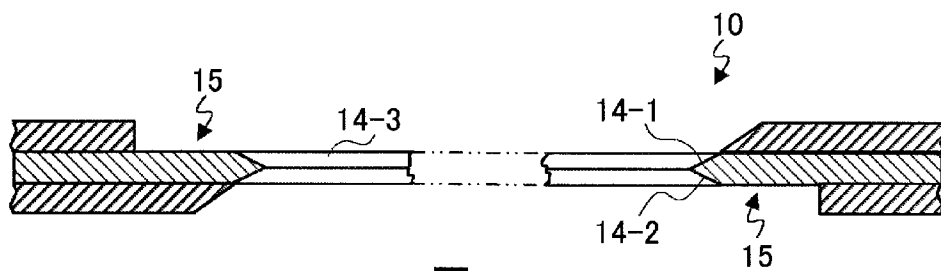
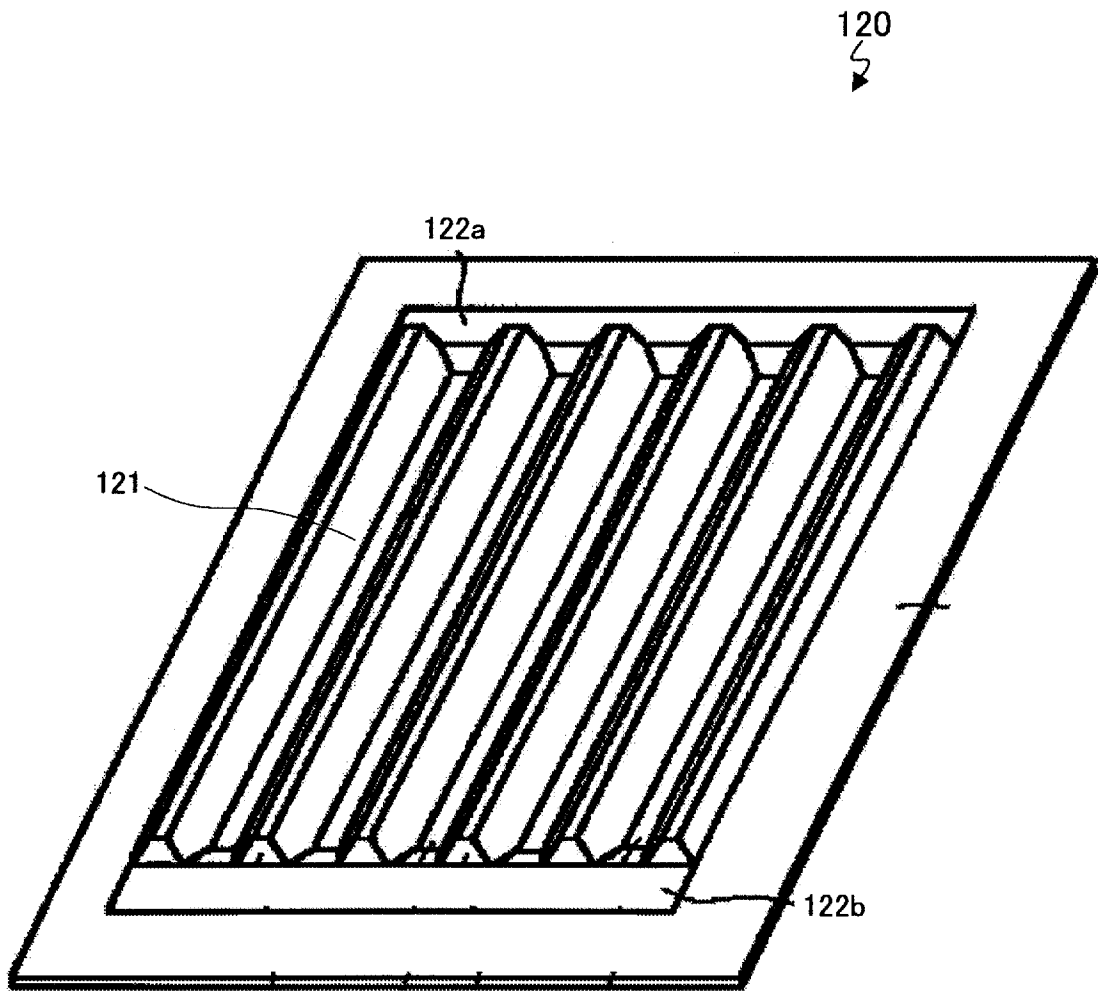
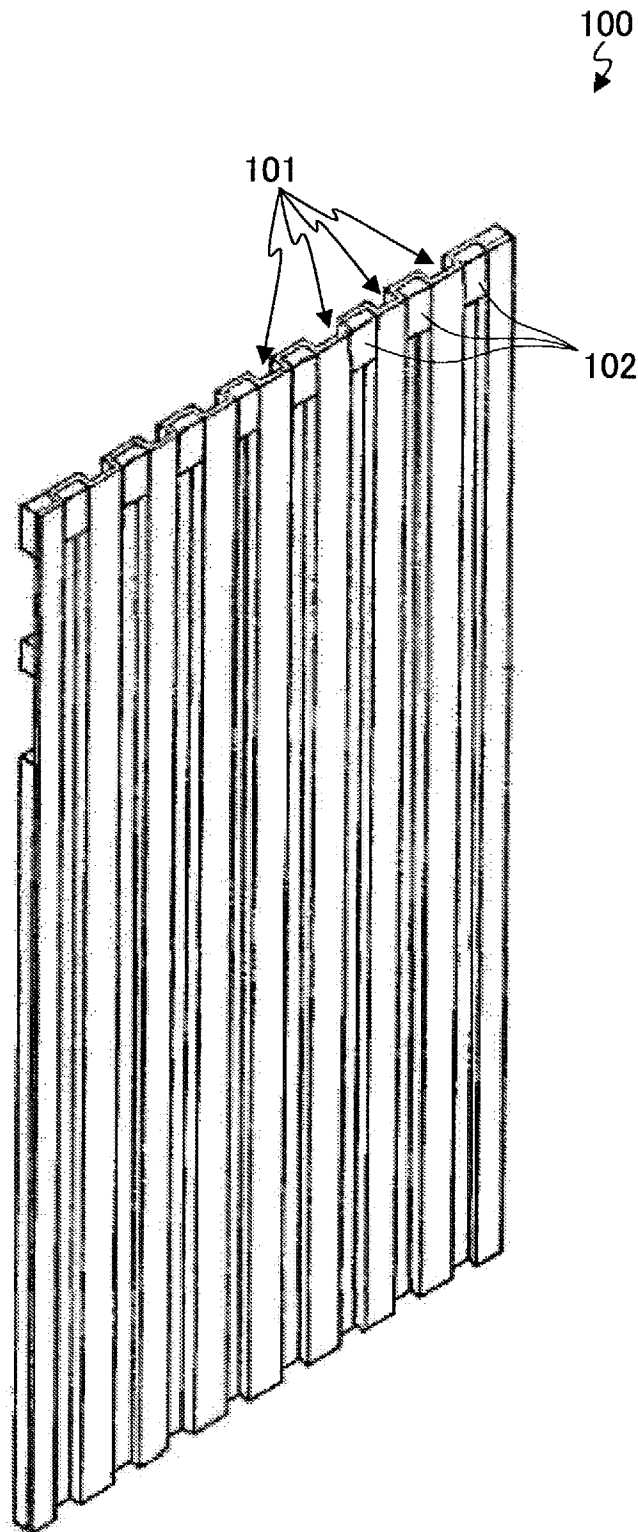


図5D

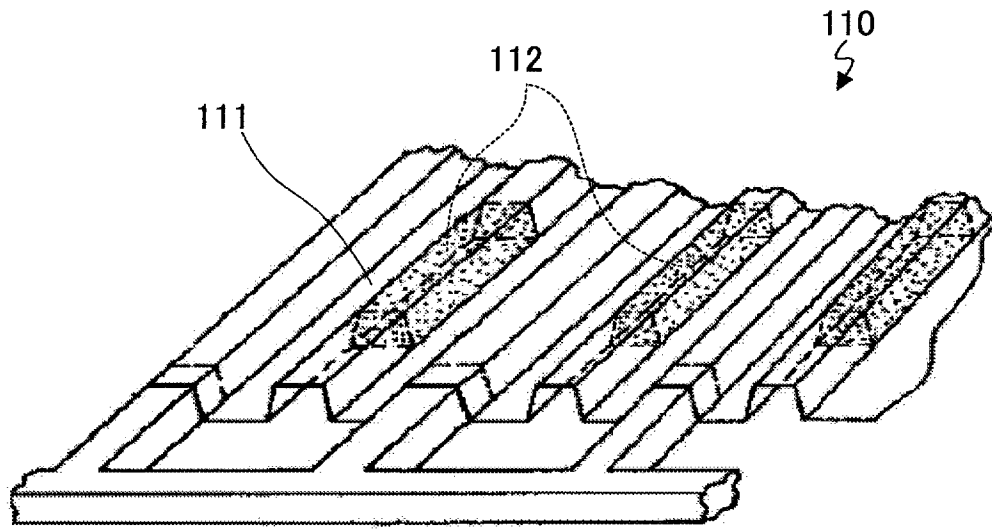
[図6]



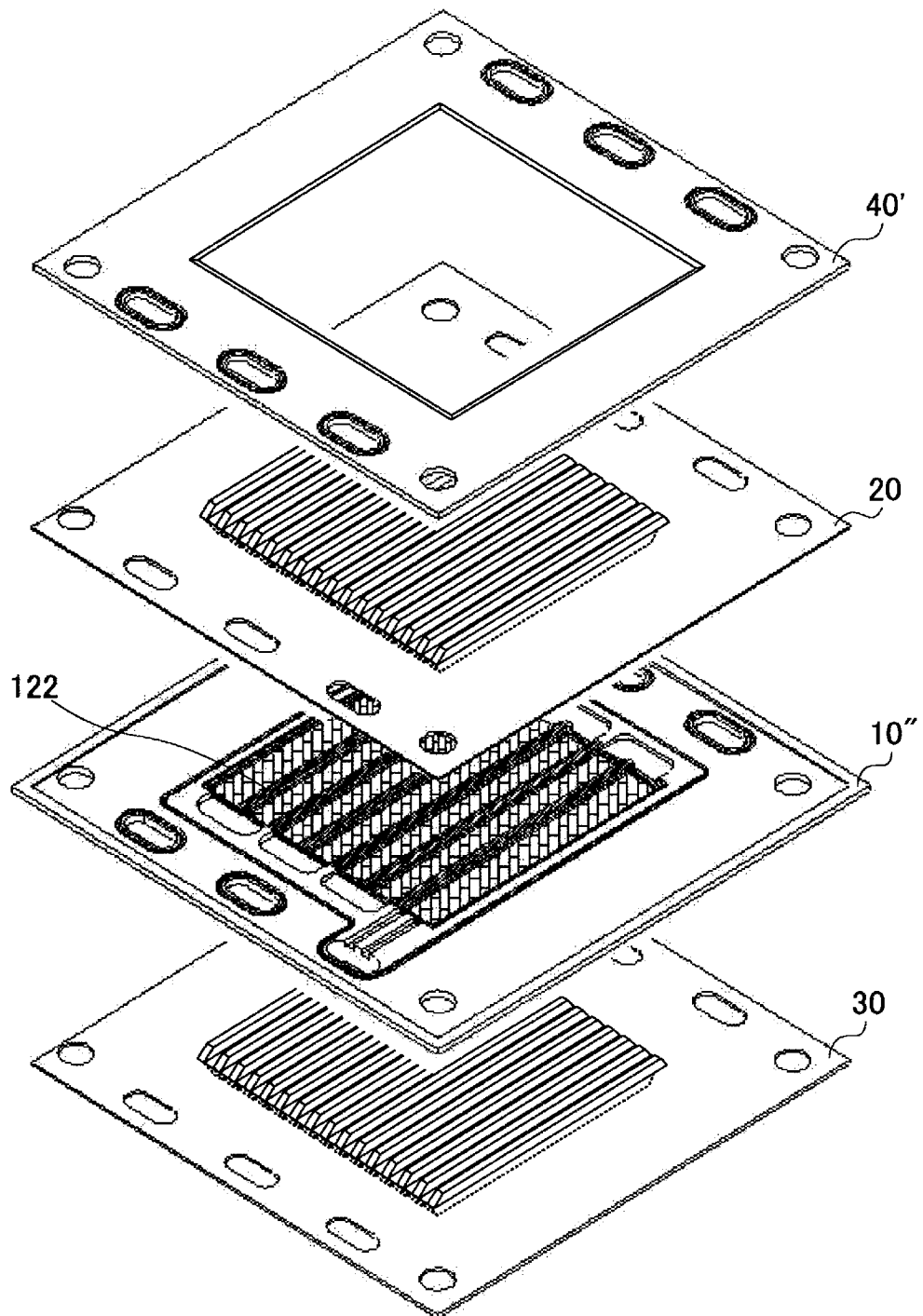
[図7]



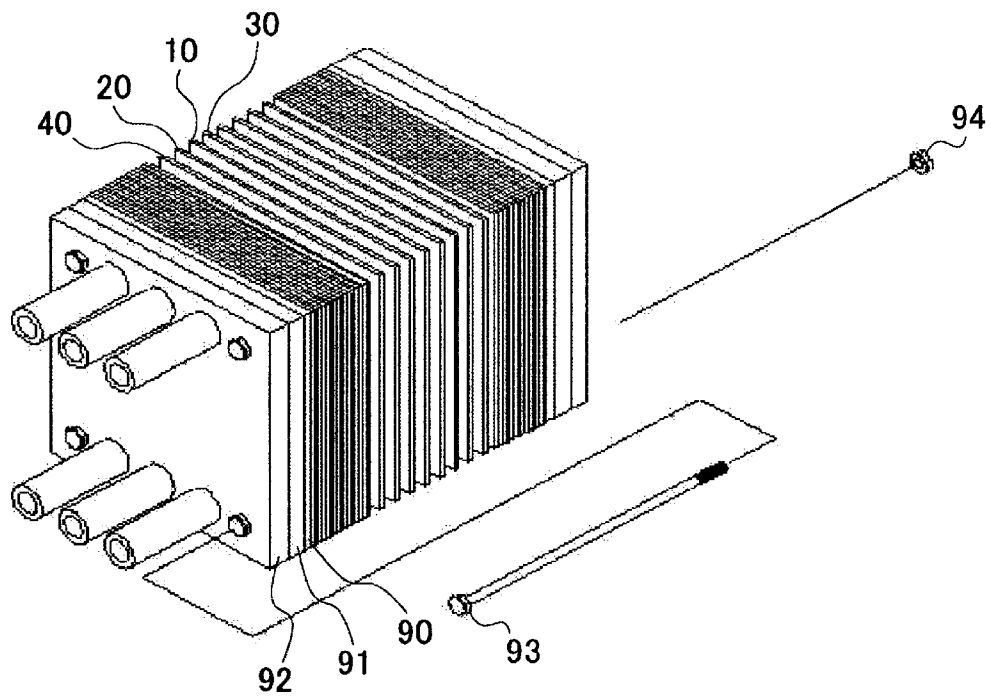
[図8]



[圖9]



[図10]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP2009/001671

**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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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	WO 01/059864 A1 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 16 August, 2001 (16.08.01), & JP 3690667 B & US 2004/0170882 A1 & EP 1255315 A1	1-9
A	JP 2002-124275 A (Honda Motor Co., Ltd.), 26 April, 2002 (26.04.02), & US 2002/0045084 A1	1-9
A	WO 2008/001755 A1 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 03 January, 2008 (03.01.08), & JP 4096027 B	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.       See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 17 July, 2009 (17.07.09)	Date of mailing of the international search report 28 July, 2009 (28.07.09)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2009/001671

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2007/129642 A1 (Honda Motor Co., Ltd.), 15 November, 2007 (15.11.07), & JP 2007-324108 A & JP 2007-324110 A & JP 2007-324114 A & JP 2007-324122 A	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

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 (IPC))

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	1971-2009年
日本国実用新案登録公報	1996-2009年
日本国登録実用新案公報	1994-2009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	WO 01/059864 A1 (松下電器産業株式会社) 2001.08.16, & JP 3690667 B & US 2004/0170882 A1 & EP 1255315 A1	1-9
A	JP 2002-124275 A (本田技研工業株式会社) 2002.04.26, & US 2002/0045084 A1	1-9
A	WO 2008/001755 A1 (松下電器産業株式会社) 2008.01.03, & JP 4096027 B	1-9

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、一般的な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

17.07.2009

国際調査報告の発送日

28.07.2009

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 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)

高木 康晴

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4X

9275

C (続き) . 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	WO 2007/129642 A1 (本田技研工業株式会社) 2007. 11. 15, & JP 2007-324108 A & JP 2007-324110 A & JP 2007-324114 A & JP 2007-324122 A	1 - 9