

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4511610号
(P4511610)

(45) 発行日 平成22年7月28日(2010.7.28)

(24) 登録日 平成22年5月14日(2010.5.14)

(51) Int. Cl. F I
 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 R
 HO 1 M 8/10

請求項の数 8 (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2008-136905 (P2008-136905)	(73) 特許権者	506239784
(22) 出願日	平成20年5月26日(2008.5.26)		アクアフェアリー株式会社
(65) 公開番号	特開2009-283412 (P2009-283412A)		京都府京都市西京区御陵大原1-39 京大桂ベンチャープラザ南館2115号室
(43) 公開日	平成21年12月3日(2009.12.3)	(74) 代理人	110000729
審査請求日	平成22年2月26日(2010.2.26)		特許業務法人 ユニ阿斯国際特許事務所
早期審査対象出願		(72) 発明者	杉本 正和
			京都府京都市西京区御陵大原1-39京大桂ベンチャープラザ南館 アクアフェアリー株式会社内
		(72) 発明者	矢野 雅也
			京都府京都市西京区御陵大原1-39京大桂ベンチャープラザ南館 アクアフェアリー株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

固体高分子電解質層と、この固体高分子電解質層の両側に設けられた第1電極層及び第2電極層と、これら電極層の更に外側に各々配置された第1導電層及び第2導電層とを備え、これら各層をインサート成形した樹脂成形体で一体化してあり、前記第1導電層は、前記第1電極層を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層からなり、前記第2導電層は、前記第2電極層を部分的に露出させる露出部を有する第2金属層からなり、
 前記樹脂成形体は、前記第1電極層及び第2電極層に気体又は液体を供給するための開孔を有する燃料電池。

【請求項2】

前記樹脂成形体の開孔は、前記第1金属層又は第2金属層の露出部に対応する位置に設けられている請求項1に記載の燃料電池。

【請求項3】

前記樹脂成形体の開孔と前記第1電極層又は第2電極層との間には、多孔質層が介在する請求項1又は2に記載の燃料電池。

【請求項4】

請求項1～3いずれかに記載の燃料電池を単位セルとして、その単位セルの複数が同じ面内に並設されるように、前記樹脂成形体で一体化してある燃料電池。

【請求項5】

固体高分子電解質層と、その両側に配される第1電極層及び第2電極層と、これら電極層の更に外側に配され、前記第1電極層及び第2電極層を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層及び第2金属層との積層物を、成形型内に配置する工程と、前記第1金属層及び第2金属層を両側から加圧した状態で、その成形型内に樹脂を注入することで、第1電極層及び第2電極層に気体又は液体を供給するための前記第1金属層又は第2金属層の露出部に対応する位置に設けられた開孔を有し、前記積層物を一体化する樹脂成形体を成形する工程とを含む燃料電池の製造方法。

【請求項6】

前記成形体を分割構造にして分割した型部材の内面に凸部を設け、その凸部を前記第1金属層又は第2金属層に圧接させた状態で、前記成形型内に樹脂を注入する請求項5に記載の燃料電池の製造方法。

10

【請求項7】

前記第1金属層又は第2金属層の表面には複数の開孔が設けられており、前記分割した型部材には、前記開孔よりやや大きい上面を有する複数の凸部を前記複数の開孔に対応する位置にそれぞれ設けてある請求項5に記載の燃料電池の製造方法。

【請求項8】

前記積層物を成形型内に配置する工程で、前記積層物を複数用いて、それらの積層物の各々を電氣的に接続した状態で成形型内に並設する請求項5～7いずれかに記載の燃料電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池を構成する各層を樹脂により一体化してある燃料電池、及びその製造方法に関し、特にモバイル機器（携帯機器）等に使用する燃料電池として有用である。

【背景技術】

【0002】

近年のITの発展に伴い、携帯電話、ノートパソコン、デジタルカメラ等のモバイル機器のほとんどの電源は、リチウムイオン二次電池が用いられている。しかし、これらのモバイル機器の高機能化に伴い、消費電力がますます増加する傾向にあり、その電源用あるいは充電用としてクリーンで高効率な燃料電池に注目が集まっている。

30

【0003】

このような小型・軽量の燃料電池としては、例えば下記の特許文献1のように、板状の固体高分子電解質と、その一方側に配置されたアノード側電極板と、他方側に配置されたカソード側電極板と、アノード側電極板の外側に配置されたアノード側金属板と、カソード側電極板の外側に配置されたカソード側金属板とを備え、これら金属板の外周部を絶縁材を介してカシメることにより、封止したものが知られている。しかし、金属板のカシメによる封止では、工程が複雑化し、カシメ部分の厚み制御にも精度を要するという問題があった。

【0004】

そこで、封止工程を簡略化すべく、下記の特許文献2には、上記と同様の板状の固体高分子電解質と電極板と金属板とを備える燃料電池において、エポキシ系樹脂等の封止材料を用いて、絶縁材を介在させつつ、両側の金属板の周縁領域のみを封止したものが提案されている。

40

【0005】

また、下記の特許文献3には、板状の固体高分子電解質と、その両側に設けた電極板（触媒層＋導電性多孔質体）とを備え、それら各層の周囲をインサート成形した樹脂枠で一体化した燃料電池用セル部材が提案されている。この発明では、電気を外部に取り出すための導電部材（接続部材18等）は、樹脂の外側に配置されて、少ない面積で導電性多孔質体と接触しており、導電部材は樹脂で覆われていない。

【0006】

50

【特許文献1】特開2005-150008号公報

【特許文献2】実用新案登録第3115434号公報

【特許文献3】特開2005-11624号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながら、特許文献2の燃料電池では、両側の金属板の周縁領域のみを封止する構造のため、両側の金属板と内側の電極板との接触面の圧力が低くなる傾向があり、これが電池抵抗となって電池の出力が低下するなどの問題があった。また仮に、製造時に両側の金属板を加圧した状態で周縁領域を封止しても、徐々に接触面の圧力が低くなる傾向があ

10

【0008】

また、特許文献3の燃料電池用セル部材では、インサート成形しているため、簡易な構造・製法になるものの、樹脂枠により周囲のみが固着された構造のため、電気を外部に効率良く取り出すのが困難であった。つまり、電気の取り出しには、導電性多孔質体に導電部材を接触させる必要があるが、樹脂枠により周囲のみを固着させ、樹脂の外側に導電部材を配置する構造では、導電部材と電極板とを十分な圧力で接触させることができず、これが電池抵抗となって電池の出力が低下するなどの問題があった。

【0009】

そこで、本発明の目的は、簡易な構造でありながら、電極層と金属層等の接触圧力を高めて、電池出力を向上させることができる燃料電池及びその製造方法を提供することである。

20

【課題を解決するための手段】

【0010】

上記目的は、次の如き本発明により達成できる。

即ち、本発明の燃料電池は、固体高分子電解質層と、この固体高分子電解質層の両側に設けられた第1電極層及び第2電極層と、これら電極層の更に外側に各々配置された第1導電層及び第2導電層とを備え、これら各層をインサート成形した樹脂成形体で一体化してあることを特徴とする。

30

【0011】

本発明の燃料電池によると、固体高分子電解質層、電極層、及び導電層を、これらを用いてインサート成形した樹脂成形体で一体化してあるため、樹脂成形体で導電層が保持されて電極層との接触圧力を高めることができ、接触抵抗を低減して電池出力を向上させることができる。つまり、各層を用いてインサート成形した簡易な構造でありながら、電池出力が高い燃料電池とすることができる。なお、インサート成形する際に、樹脂の注入圧力により、第1導電層及び第2導電層が両側から加圧されるが、成型型の内面に設けた凸部で別途加圧することにより、導電層と電極層との接触圧力を更に高めることができる。発電の際には、例えば樹脂成形体に設けた開孔や流路を介して、第1電極層及び第2電極層に燃料及び酸素等を供給することで、各々の電極での反応と固体高分子電解質でのイオン伝導とにより、発電を行うことができる。

40

【0012】

つまり、本発明では、前記樹脂成形体が、第1電極層及び第2電極層に気体又は液体を供給するための供給部を有することが好ましい。供給される気体としては水素ガス等の燃料ガス、空気等の酸素含有ガス等が挙げられ、液体としてはメタノール等が挙げられる。

【0013】

上記において、前記第1導電層は、前記第1電極層を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層からなり、前記第2導電層は、前記第2電極層を部分的に露出させる露出部を有する第2金属層からなることが好ましい。導電層としては、ガス透過性を有するものなども使用可能であるが、露出部を有することにより、露出部を介して電極層に気体又は

50

液体を供給することができる。また、金属層を用いることにより、他の材料に比べて大電流の取り出しが可能となる。

【0014】

その際、前記樹脂成形体の供給部は、前記第1金属層又は第2金属層の露出部に対応する位置に設けられた開孔であることが好ましい。この構成によると、金属層の露出部に対応する位置に樹脂成形体の開孔が設けられるため、この開孔と露出部とを介して電極層に気体又は液体を供給することができ、より効率良く発電を行うことができる。

【0015】

また、前記樹脂成形体の開孔と前記第1電極層又は第2電極層との間には、多孔質層が介在することが好ましい。これにより、気体又は液体の供給を可能にしながら、ゴミの付着等による電極層の劣化を防止することができる。

10

【0016】

更に、上記いずれかに記載の燃料電池を単位セルとして、その単位セルの複数が同じ内に並設されるように、前記樹脂成形体で一体化してあることが好ましい。例えば単位セル同士を直列接続することで、出力電圧を高めることができ、高出力電圧の燃料電池を一体のものとして得ることができる。

【0017】

一方、本発明の燃料電池の製造方法は、固体高分子電解質層と、その両側に配される第1電極層及び第2電極層と、それらの外側に配される第1導電層及び第2導電層との積層物を成形型内に配置する工程と、その成形型内に樹脂を注入することで、前記積層物を一体化する樹脂成形体を成形する工程とを含むことを特徴とする。

20

【0018】

本発明の燃料電池の製造方法によると、固体高分子電解質層、電極層、及び導電層の積層物を用いて、インサート成形した樹脂成形体で一体化してあるため、樹脂成形体で導電層が保持されて電極層との接触圧力を高めることができ、接触抵抗を低減して電池出力を向上させることができる。つまり、各層を用いてインサート成形するという簡易な構造、製法でありながら、電池出力が高い燃料電池を得ることができる。

【0019】

本発明の燃料電池の製造方法としては、固体高分子電解質層と、その両側に配される第1電極層及び第2電極層と、それらの外側に配され、前記第1電極層及び第2電極層を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層及び第2金属層との積層物を、成形型内に配置する工程と、前記第1金属層及び第2金属層を両側から加圧した状態で、その成形型内に樹脂を注入することで、第1電極層及び第2電極層に気体又は液体を供給するための供給部を有し、前記積層物を一体化する樹脂成形体を成形する工程とを含むことが好ましい。

30

【0020】

この製造方法によると、第1金属層及び第2金属層が第1電極層及び第2電極層を露出させる露出部を有し、その積層物を成形型内に配置して樹脂を注入して、電極層に気体又は液体を供給するための供給部を有する樹脂成形体を成形する。この供給部を介して燃料及び酸素等を電極層に供給することができ、各々の電極での反応と固体高分子電解質でのイオン伝導とにより、発電を行うことができる。その際、前記第1金属層及び第2金属層を両側から加圧した状態で、インサート成形しているため、両側の金属層が電極層に接触する際の圧力が大きくなり、電池抵抗が小さくなって電池の出力が向上する。

40

【0021】

上記において、前記成形型を分割構造にして分割した型部材の内面に凸部を設け、その凸部を前記第1金属層又は第2金属層に圧接させた状態で、前記成形型内に樹脂を注入することが好ましい。この場合、型部材の内面の凸部によって、第1金属層又は第2金属層を加圧した状態で、樹脂により封止して一体化されるため、両側の金属層が電極層に接触する際の圧力がより確実に大きくなる。

【0022】

50

また、前記第1金属層又は第2金属層の表面には複数の開孔が設けられており、前記分割した型部材には、前記開孔よりやや大きい上面を有する複数の凸部を前記複数の開孔に対応する位置にそれぞれ設けてあることが好ましい。この場合、型部材の内面の凸部によって、金属層の開孔の周囲を加圧することができ、これにより金属層と電極層との接触圧力を高くすることができる。また、同時に金属層の露出部を凸部で閉塞させることで、樹脂による被覆を防止して、露出部から第1電極層又は第2電極層を露出させることができる。

【0023】

また、前記積層物を成型型内に配置する工程で、前記積層物を複数用いて、それらの積層物の各々を電気的に接続した状態で成型型内に並設することが好ましい。この製造方法によると、例えば積層物同士を直列接続することで、出力電圧を高めることができ、高出力電圧の燃料電池を一体のものとして製造することができ、製造効率も高めることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

本発明に係る燃料電池の好適な実施形態を図面を用いて説明する。図1は、本発明の燃料電池の一例を示す図であり、(a)は上面図、(b)は正面視断面図、(c)は底面図である。

【0025】

本発明の燃料電池は、図1に示すように、固体高分子電解質層1と、この固体高分子電解質層1の両側に設けられた第1電極層2及び第2電極層3と、これら電極層2,3の更に外側に各々配置された第1導電層及び第2導電層とを備えている。本実施形態では、第1導電層及び第2導電層が、第1電極層2及び第2電極層3を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層4及び第2金属層5とからなる例を示す。

【0026】

なお、導電層の材質としては、金属、導電性高分子、導電性ゴム、導電性繊維、導電性ペースト、導電性塗料などが挙げられる。

【0027】

固体高分子電解質層1としては、従来の固体高分子膜型の燃料電池に用いられるものであれば何れでもよいが、化学的安定性及び導電性の点から、超強酸であるスルホン酸基を有するパーフルオロカーボン重合体からなる陽イオン交換膜が好適に用いられる。このような陽イオン交換膜としては、ナフィオン(登録商標)が好適に用いられる。その他、例えば、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素樹脂からなる多孔質膜に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を含浸させたものや、ポリエチレンやポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂からなる多孔質膜や不織布に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を担持させたものでもよい。

【0028】

固体高分子電解質層1の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、イオン伝導機能、強度、ハンドリング性などを考慮すると、10~300 μm が使用可能であるが、25~50 μm が好ましい。

【0029】

電極層2,3は、固体高分子電解質層1の表面付近でアノード側およびカソード側の電極反応を生じさせるものであれば何れでもよい。なかでも、ガス拡散層としての機能を発揮して、燃料ガス、燃料液、酸化ガス及び水蒸気の供給・排出を行なうと同時に、集電の機能を発揮するものが好適に使用できる。電極層2,3としては、同一又は異なるものを使用でき、その基材には電極触媒作用を有する触媒を担持させることが好ましい。触媒は、固体高分子電解質層1と接する内面側に少なくとも担持させるのが好ましい。

【0030】

電極層2,3の電極基材としては、例えば、カーボンペーパー、カーボン繊維不織布などの繊維質カーボン、導電性高分子繊維の集合体などの電導性多孔質材が使用できる。ま

10

20

30

40

50

た、固体高分子電解質層 1 に触媒を直接附着させたり、カーボンブラックなどの導電性粒子に担持させて固体高分子電解質層 1 に附着させた電極層 2, 3 を用いることも可能である。

【0031】

一般に、電極層 2, 3 は、このような電導性多孔質材にフッ素樹脂等の撥水性物質を添加して作製されるものであって、触媒を担持させる場合、白金微粒子などの触媒とフッ素樹脂等の撥水性物質とを混合し、これに溶媒を混合して、ペースト状或いはインク状とした後、これを固体高分子電解質膜と対向すべき電極基材の片面に塗布して形成される。

【0032】

一般に、電極層 2, 3 や固体高分子電解質層 1 は、燃料電池に供給される還元ガスと酸化ガスに応じた設計がなされる。本発明では、酸化ガスとして空気が用いられると共に、還元ガスとして水素ガスを用いるのが好ましい。なお、還元ガスの代わりにメタノール等の燃料液を使用することも可能である。

【0033】

例えば、水素ガスと空気を使用する場合、空気が自然供給される側のカソード側の第 2 電極層 3 (本明細書では、アノード側を第 1 電極層、カソード側を第 2 電極層と仮定する) では、酸素と水素イオンの反応が生じて水が生成するため、かかる電極反応に応じた設計をするのが好ましい。特に、低作動温度、高電流密度及び高ガス利用率の運転条件では、特に水が生成する空気極において水蒸気の凝縮による電極多孔体の閉塞(フラッディング)現象が起こりやすい。したがって、長期にわたって燃料電池の安定な特性を得るためには、フラッディング現象が起こらないように電極の撥水性を確保することが有効である。

【0034】

触媒としては、白金、パラジウム、ルテニウム、ロジウム、銀、ニッケル、鉄、銅、コバルト及びモリブデンから選ばれる少なくとも 1 種の金属か、又はその酸化物が使用でき、これらの触媒をカーボンブラック等に予め担持させたものも使用できる。

【0035】

電極層 2, 3 の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、電極反応、強度、ハンドリング性などを考慮すると、1 ~ 500 μm が好ましく、100 ~ 300 μm がより好ましい。電極層 2, 3 と固体高分子電解質層 1 とは、予め接着、融着、又は塗布形成等を行って積層一体化しておいてもよいが、単に積層配置されているだけでもよい。このような積層体は、膜/電極接合体(Membrane Electrode Assembly: MEA)として入手することもでき、これを使用してもよい。

【0036】

本発明では、第 1 電極層 2 及び第 2 電極層 3 の外形が固体高分子電解質層 1 の外形より小さいものでもよいが、第 1 電極層 2 及び第 2 電極層 3 の外形と固体高分子電解質層 1 の外形とが同じであることが好ましい。電極層の外形と固体高分子電解質層の外形とが同じであると、電極板と固体高分子電解質の積層体を打ち抜いて、固体高分子電解質・電極・接合体を製造することができ、量産効果により当該接合体のコストを低減することができる。また、電極層の外周より金属層の外周が内側に形成されていることで、電極層の外周及び固体高分子電解質層の外周をより確実に封止することができる。

【0037】

アノード側電極層 2 の表面にはアノード側の第 1 金属層 4 が配置され、カソード側電極層 3 の表面にはカソード側の第 2 金属層 5 が配置される(本明細書では、アノード側を第 1 金属層、カソード側を第 2 金属層と仮定する)。第 1 金属層 4 は、第 1 電極層 2 を部分的に露出させる露出部を有するが、本実施形態では、アノード側金属層 4 には燃料ガス等を供給するための開孔 4 a が設けられている例を示す。

【0038】

第 1 金属層 4 の露出部は、アノード側電極層 2 が露出可能であれば、その個数、形状、大きさ、形成位置などは何れでもよい。アノード側金属層 4 の開孔 4 a は、例えば、規則

10

20

30

40

50

的又はランダムに複数の円孔やスリット等を設けたり、または金属メッシュによって開孔 4 a を設けたり、第 1 金属層 4 を櫛形電極のような形状にしてアノード側電極層 2 を露出させてもよい。開孔 4 a 部分の面積が締める割合（開孔率）は、電極との接触面積とガスの供給面積のバランスなどの観点から、10～50%が好ましく、15～30%がより好ましい。

【0039】

また、カソード側の第 2 金属層 5 は、第 2 電極層 3 を部分的に露出させる露出部を有するが、本実施形態では、カソード側金属層 5 には、空気中の酸素を供給（自然吸気）するための多数の開孔 5 a が設けられている例を示す。開孔 5 a は、カソード側電極層 3 が露出可能であれば、その個数、形状、大きさ、形成位置などは何れでもよい。カソード側金属層 5 の開孔 5 a は、例えば、規則的又はランダムに複数の円孔やスリット等を設けたり、または金属メッシュによって開孔 5 a を設けたり、第 2 金属層 5 を櫛形電極のような形状にしてカソード側電極層 3 を露出させてもよい。開孔 5 a 部分の面積が締める割合（開孔率）は、電極との接触面積とガスの供給面積のバランスなどの観点から、10～50%が好ましく、15～30%がより好ましい。

10

【0040】

金属層 4, 5 としては、電極反応に悪影響がないものであれば何れの金属も使用でき、例えばステンレス板、ニッケル、銅、銅合金などが挙げられる。但し、導電性、コスト、形状付与性、加圧のための強度などの観点から、銅、銅合金、ステンレス板などが好ましい。また、上記の金属に金メッキなどの金属メッキを施したものでよい。

20

【0041】

なお、金属層 4, 5 の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、導電性、コスト、重量、形状付与性、加圧のための強度などを考慮すると、10～1000 μm が好ましく、50～200 μm がより好ましい。

【0042】

本発明では、電極層 2, 3 と金属層 4, 5 とを良好に樹脂で一体化する観点から、第 1 電極層 2 の外周より、第 1 金属層 4 の外周が内側に形成されていることが好ましく、第 2 電極層 3 の外周より、第 2 金属層 5 の外周が内側に形成されていることが好ましい。なお、第 1 電極層 2 の外周より、第 1 金属層 4 の外周が外側に形成されていてもよく、第 2 電極層 3 の外周より、第 2 金属層 5 の外周が外側に形成されていてもよい。

30

【0043】

金属層 4 及び金属層 5 は、少なくとも一部が樹脂から露出することにより、その部分を電極として電気を外部に取り出すことができる。このため、樹脂成形体 6 に対して、金属層 4 及び金属層 5 を一部露出させた端子部を設けてもよいが、本発明では、金属層 4 及び金属層 5 が、単位セルの電極となる突出部 4 b, 5 b を備え、これが樹脂成形体 6 から外部に出ていることが好ましい。この突出部 4 b, 5 b は、インサート成形を行う際に、金属層 4, 5 等（積層物 L）を成形型内に保持するためにも利用できる。

【0044】

金属層 4 及び金属層 5 の形成や開孔 5 a, 4 a の形成は、プレス加工（プレス打ち抜き加工）を利用して行うことができる。また、金属層 4 及び金属層 5 の突出部 4 b, 5 b には、樹脂の流動や密着性を良好にする目的で、インサート成形される部分に貫通孔を設けてもよい。更に、接続や固定を良好に行うために、突出部 4 b, 5 b の露出した部分に貫通孔を設けてもよい。

40

【0045】

本発明の燃料電池は、図 1 に示すように、以上のような各層 1～5 をインサート成形した樹脂成形体 6 で一体化してある。本発明では、第 1 導電層及び/又は第 2 導電層の全面又は略全面を樹脂成形体 6 で覆うことが好ましく、第 1 導電層及び第 2 導電層の全面又は略全面を樹脂成形体 6 で覆うことがより好ましい。その場合、後述するように、樹脂成形体 6 は部分的に予備成形体を含むものであってもよい。樹脂成形体 6 は、第 1 電極層 2 及び第 2 電極層 3 に気体又は液体を供給するための供給部を有することが好ましく、この供

50

給部は、第1金属層4又は第2金属層5の露出部に対応する位置に設けられた開孔6aであることが好ましい。

【0046】

本実施形態では、前記第1電極層2及び第2電極層3が開孔6aから露出するように、前記第1金属層4及び第2金属層5を両側から加圧した状態で、樹脂成形体6によりインサート成形して一体化してある例を示す。

【0047】

本発明では、金属層4,5の露出部に相当する開孔4a,5aの大きさが、樹脂成形体6の開孔6aの大きさより、大きくてもよく、同じ大きさでもよく、小さくてもよい。但し、第1金属層4及び/又は第2金属層5の露出部の大きさと、開孔6aの大きさとがほぼ等しくなるように、樹脂成形体6を成形してあることが好ましい。具体的には、各々の開孔6aの面積は、各々の露出部の面積の60~150%が好ましく、80~130%がより好ましい。

10

【0048】

本実施形態では、金属層4,5の露出部に相当する開孔4a,5aの大きさが、樹脂成形体6の開孔6aの大きさより小さい場合の例を示す。これにより金属層4,5の開孔4a,5aの周囲に対して、樹脂成形体6の開孔6aに相当する部分を利用して、成型時に加圧することができる(図2(c)参照)。

【0049】

樹脂成形体6の材質としては、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、耐熱性樹脂などが挙げられるが、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂が好ましい。なお、熱可塑性樹脂としては、ポリカーボネート樹脂、ABS樹脂、液晶ポリマー、ポリプロピレン、ポリスチレン、アクリル樹脂、フッ素樹脂、ポリエステル、ポリアミドなどが挙げられる。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、アミノ樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコン樹脂、または熱硬化性ポリイミド樹脂等が挙げられる。なかでも、成型内での樹脂の流動性、強度、熔融温度などの観点から、ポリエステル、ポリプロピレン、アクリル樹脂が好ましく、これらはアプリケーションによって選択することが可能である。

20

【0050】

樹脂成形体6としては、熱可塑性エラストマーやゴム等を用いることも可能である。その場合、他の材料にも可とう性の有るものを使用することで、燃料電池全体を可とう性にすることが可能である。

30

【0051】

樹脂成形体6の全体の厚みとしては、樹脂による一体化の強度や、金属層を加圧する圧力、薄型化などの観点から、0.3~4mmが好ましく0.5~2mmがより好ましい。特に、金属層を覆う部分の樹脂成形体6の厚みとしては、金属層を加圧する圧力の観点から、0.2~1.5mmが好ましく、0.3~1.0mmがより好ましい。

【0052】

樹脂成形体6の外形の面積としては、樹脂による一体化の強度や、金属層を加圧する圧力の観点から、固体高分子電解質層1の外形の面積の101~200%が好ましく、150~180%がより好ましい。

40

【0053】

本発明の燃料電池は、次のようにして燃料等を供給して発電させることができる。例えばカソード側は、そのまま大気開放にしておき、アノード側に設けた空間に水素ガス等の燃料を供給したり、アノード側に設けた空間内で水素ガス等の燃料を発生させることで発電を行うことができる。また、アノード側及び/又はカソード側に対して、流路を形成するための流路形成部材を取り付けて、その流路に酸素含有ガスや燃料を供給することも可能である。流路形成部材としては、例えば流路溝と供給口と排出口を設けた板状体や、スタック型燃料電池のセパレータと類似の構造のものが使用できる。後者を使用するとスタック型燃料電池を構成することができる。

50

【0054】

以上のような燃料電池は、例えば本発明の製造方法により製造することができる。即ち、本発明の燃料電池の製造方法は、図2(a)~(d)に示すように、固体高分子電解質層1と、その両側に配される第1導電層及び第2導電層と、それらの外側に配される第1金属層4及び第2金属層5との積層物Lを成型型10内に配置する工程を含む。本実施形態では、第1導電層及び第2導電層が第1電極層2及び第2電極層3を部分的に露出させる露出部(例えば開孔4a, 5a)を有する第1金属層4及び第2金属層5であり、その露出部が成型型10の凸部11a, 12aにより閉塞した状態で成型型10内に配置する例を示す。

【0055】

また、本発明の燃料電池の製造方法は、上記の成型型10内に樹脂を注入することで、積層物Lを一体化する樹脂成形体6を成形する工程を含む。本実施形態では、第1金属層4及び第2金属層5を両側から加圧した状態で、その成型型10内に樹脂を注入することで、第1電極層2及び第2電極層3に気体又は液体を供給するための供給部を有し、積層物Lを一体化する樹脂成形体6を成形する工程を含む例を示す。つまり、前記供給部に相当する開孔6aを除いて、積層物Lのほぼ全体を樹脂成形体6で覆う例を示す。

【0056】

まず、例えば、図2(a)に示すように、底面に凸部11aを有する下金型11を準備する。本実施形態では、成型型10を分割構造にして分割した型部材の内面に凸部11a, 12aを設け、その凸部11a, 12aを第1金属層4及び第2金属層5圧接させる場合の例を示す。凸部11aは、積層物Lの下側の第1金属層4の開孔4aを閉塞させる大きさの上面を有し、各々の開孔4aに対向する位置に設けている。下金型11は、底面の周囲に側壁を有しており、側壁の内面に沿って上金型12が挿入できる。

【0057】

下金型11(又は上金型12)には、樹脂の注入口11bが設けられているが、注入口11bは複数設けてもよい。また、成型時の樹脂の流れを良好にするために、樹脂の小排出口を1箇所以上に設けてもよい。

【0058】

更に、第1金属層4及び第2金属層5の突出部4b, 5bを、成形後に樹脂成形体6から露出させるために、下金型11の側壁は分割構造になっている(図示省略)。積層物Lを成型型10内に配置する際に、下金型11の側壁に設けた矩形の切欠き部に、第1金属層4及び第2金属層5の突出部4b, 5bが位置決めされ、その突出部4b, 5bを型部材が押さえる構造になっている。これにより、突出部4b, 5bを樹脂成形体6から露出させることができる。

【0059】

次に、例えば、図2(b)に示すように、積層物Lを下金型11の底面に配置する。その際、底面の凸部11aの上面が、第1金属層4の開孔4aを閉塞可能な位置に配置する。積層物Lを配置する際には、各層の一部又は全部が一体化されていてもよく、一体化されていなくてもよい。また、一部が一体化されていない場合、各層を別々に配置しても、同時に配置してもよい。配置する積層物Lの構成は、前述の通りであるが、配置を行う際に、最終的な樹脂成形体6の形状の一部を予め成形した予備成形体を用いて、この予備成形体を積層物Lと共に成型型10内に配置することも可能である(例えば図4参照)。

【0060】

次に、例えば、図2(c)に示すように、下金型11の側壁の内面に沿って上金型12を挿入するが、上金型12の下面には凸部12aが設けてある。この凸部12aは、積層物Lの上側の第2金属層5の開孔5aを閉塞させる大きさの上面を有し、各々の開孔5aに対向する位置に設けている。そして、下金型11の凸部11aと上金型12凸部12aとで、金属層4, 5を加圧した状態で、積層物Lを成型型10内に配置する。その際、第1金属層4及び第2金属層5の突出部4b, 5bが成型型10の内部空間から外側に配置されるようにしてもよい。

10

20

30

40

50

【0061】

その状態で、成型型10内に樹脂（「樹脂」には樹脂の原料液や未硬化物を含む）を注入するが、露出部（例えば開孔4a, 5a）が凸部11aと凸部12aによって閉塞されているため、図2（d）に示すように、得られた成形体では第1電極層2及び第2電極層3が開孔6aから露出する。また、樹脂の注入により、固体高分子電解質層1、電極層2, 3、第1金属層4及び第2金属層5を、インサート形成により一体化することができる。

【0062】

〔別の実施形態〕

（1）先の実施形態では、樹脂の成形体中に1つの単位セルを含む燃料電池の例を示したが、本発明では、図3（a）～（c）に示すように、樹脂の成形体中に2つ以上の単位セルを含むものでもよい。この実施形態では、樹脂の成形体中に、第1金属層4及び第2金属層5を一体化した金属板Jを用いて接続された4つの単位セルC1～C4を含む例を示す。

10

【0063】

この燃料電池は、先の実施形態で示したような燃料電池を単位セルCとし、その単位セルCの複数を同じ面内に並設して、各々を電氣的に接続した状態で、前記樹脂成形体6を一体に成形して複数の単位セルC1～C4を一体化したものである。このような燃料電池は、図2に示すような前述の製造方法において、積層物Lを成型型10内に配置する工程で、積層物Lを複数用いて、それらの積層物Lの各々を電氣的に接続した状態で成型型10内に並設する方法により製造することができる。

20

【0064】

各単位セルC1～C4の構成は基本的には、前述の通りであるが、金属層の突出部4b, 5bと、第1金属層4及び第2金属層5を一体化した金属板Jとが相違している。この実施形態では、各単位セルC1～C4が直列に接続されているため、金属層の突出部4b, 5bは、単位セルC1と単位セルC4とにだけ設けられている。つまり、単位セルC1の第1金属層4の突出部4bと、単位セルC4の第2金属層5の突出部5bとだけが存在する。金属層の突出部4b, 5bの必要性や形状等は、前述の通りである。

【0065】

第1金属層4及び第2金属層5を一体化した金属板Jは、隣り合う単位セルC同士を直列に接続するための部材である。第1金属層4及び第2金属層5を独立して配置する代わりに、この金属板Jを用いることにより、これを成型型10内に配置するだけで、単位セルC1～C4が直列に接続された燃料電池を製造することができる。

30

【0066】

金属板Jは、図3（c）に示すように、相互に平行な面内に隣接して配置された第1金属層4及び第2金属層5が、同じ面内で外側に各々延設された延出部4j, 5jを有しており、延出部4j, 5jを段差部4sによって連結一体化してある。このような段差部は、金属板を板金加工することで作製することができる。

【0067】

本発明では、第1金属層4及び第2金属層5を一体化した金属板Jを用いて、単位セルCを接続する代わりに、第1金属層4及び第2金属層5に各々の端子部を設けて、接続板や接続配線などで両者を接続してもよい。

40

【0068】

（2）先の実施形態では、予備成形体を使用せずに、上下の成型型の凸部により開孔を形成する例を示したが、本発明では、図4に示すように、予め開孔6aを形成した予備成形体7を使用して、一方の成型型12のみの凸部12aにより開孔6aを形成するようにしてよい。このような予備成形体7を使用することで、積層物Lを成型型10内に配置する際の位置決めを容易にし、樹脂成形体6の開孔6aの形成を容易にすることができる。なお、予備成形体7を使用する場合、これによって一方の金属層が加圧され、他方の金属層は成型型の凸部により加圧される。

50

【0069】

まず、図4(a)に示すように、予備成形体7を予め成形する。予備成形体7は、樹脂成形体6の開孔6aに相当する開孔7aを有している。つまり、この開孔7aは、後の樹脂成形の際に開孔7aが維持される。予備成形体7の外形は特に限定されないが、インサート形成後の樹脂成形体6より小さく、固体高分子電解質層1より若干大きい程度でよい。

【0070】

また、予備成形体7は、第1金属層4を位置決めするための段差部7b又は電極層2、3及び固体高分子電解質層1を位置決めするための段差部7cを有することが好ましい。また、第2金属層5の突出部5bを支持するための支持部7dを有することが好ましい。

10

【0071】

次に、図4(b)に示すように、予備成形体7を成形型(図示省略)内に配置し、更に第1金属層4を段差部7bに沿って位置決め配置する。このとき、第1金属層4の開孔4aの位置は、予備成形体7の開孔7aの位置と略一致する。

【0072】

次に、図4(c)~(e)に示すように、予備成形体7の段差部7cに沿って、第1電極層2、固体高分子電解質層1、及び第2電極層3を、順次位置決めして配置する。その際、予めこれらが積層一体化されたものを位置決め配置してもよい。その際、段差部7cの大きさに少し余裕をもたせることで、後に樹脂を注入した際に、電極層2、3の外周及び前記固体高分子電解質層1の外周を封止することができる。

20

【0073】

次に、図4(f)に示すように、第2金属層5を積層配置する。このとき、第2金属層5の突出部5bは、支持部7dによって支持され、また、第2金属層5の開孔5aが、上金型12の下面に設けた凸部12aの位置と略一致するように配置される。

【0074】

次に、図4(g)に示すように、セット後の成形型内に樹脂を注入して、予備成形体7が樹脂成形体6と一体化した燃料電池を成形する。そのとき、開孔5aが凸部12aによって閉塞されており、また、予備成形体7の開孔7aが樹脂で塞がれないため、得られた成形体では第1電極層2及び第2電極層3が開孔6aから露出する。なお、予備成形体7によって一方の金属層4が加圧され、他方の金属層5は成形型10の凸部12aにより加圧されるため、第1金属層4及び第2金属層5を両側から加圧した状態で、樹脂成形体6により一体化された構造となる。

30

【0075】

(3)先の実施形態では、金属層の露出部に相当する開孔の大きさが、樹脂の開孔の大きさより小さい例を示したが、図5(a)に示すように、金属層4、5の開孔4a、5aの大きさより、樹脂成形体6の開孔6aの大きさを小さくすることも可能である。その場合、開孔4a、5aから露出する電極層2、3の一部(例えば周囲)が樹脂成形体6により封止されるため、樹脂成形体6と電極層2、3との接着力によって、電極層2、3と金属層4、5との密着性を高めることができる。開孔4a、5aの大きさより、樹脂成形体6の開孔6aの大きさを小さくするには、上面の大きさが開孔4a、5aの大きさより小さい凸部を形成した成形型を使用して、その凸部が電極層2、3と接触した状態で、樹脂による封止を行えばよい。

40

【0076】

上記の場合、金属層4、5の開孔4a、5aの周囲に対して、樹脂成形体6の開孔6aに相当する部分を利用して、成型時に加圧できない。このため、図5(b)に示すように、金属層4、5の開孔4a、5a以外の部分を、例えば別のピンを用いて成型時に加圧することで、第1金属層4及び第2金属層5を両側から加圧した状態で、樹脂成形体6により一体化することができる。このような加圧を行う場合、ピン等を圧接した部分に加圧用開孔6bが形成される。

【0077】

50

更に、図5(c)に示すように、発電に寄与しない貫通孔6cを樹脂成形体6に設けることも可能である。この貫通孔6cは、固体高分子電解質層1、電極層2,3等にも貫通孔を設けておき、その孔より小さい貫通孔6cを設けて、その周囲の樹脂成形体6により電極層2,3等を一体化したものである。この貫通孔6cによると、その周囲の樹脂成形体6によって、固体高分子電解質層1、電極層2,3、及び金属層4,5が一体化するため、電極層2,3と金属層4,5との圧接力を高めることができる。

【0078】

このような発電に寄与しない貫通孔6cは、発電のための電極層2,3の露出部と共に設けられる。また、貫通孔6c以外の部分を、例えば別のピン等を用いて成型時に加圧することで、第1金属層4及び第2金属層5を両側から加圧した状態で、樹脂成形体6により一体化することができる。その場合にも、ピン等を圧接した部分に加圧用開孔6bが形成される。

10

【0079】

(4)先の実施形態では、水素供給型の燃料電池の例を主に示したが、本発明に用いられる燃料電池としては、燃料により発電可能な燃料電池であれば何れでもよく、例えばメタノール改質型、ダイレクトメタノール型、炭化水素供給型などが挙げられる。その他の燃料を用いる燃料電池も各種知られており、それらを何れも採用できる。

【0080】

その場合、各種の燃料電池に応じた固体高分子電解質層、および電極層等が使用される。例えば、ダイレクトメタノール型の場合、一般的には、ナフイオン系ではクロスオーバーが大きくこれを抑止するために、芳香族炭化水素系の固体高分子電解質を使うことが好ましい。また、電極層には触媒は二種混合(Pt、Ru)を使用することが好ましい。

20

【0081】

(5)先の実施形態では、第1金属層及び/又は第2金属層の露出部の大きさと、開孔の大きさとがほぼ等しくなるように、樹脂成形体により一体化してある例を示したが、本発明では、図7(a)~(b)に示すように、片面に1つの大きな開孔6aを設けることで、第1金属層4及び/又は第2金属層5の複数の露出部の全数又は一部を露出させるようにしてもよい。

【0082】

また、片面に2つ以上の大きな開孔6aを設けることで、第1金属層4及び/又は第2金属層5の複数の露出部の半数又はそれ以下を露出させるようにしてもよい。つまり、本発明では1つの開孔6aから、2つ以上の露出部が露出するように成形してもよい。

30

【0083】

(6)先の実施形態では、第1導電層及び第2導電層が、第1電極層及び第2電極層を部分的に露出させる露出部を有する第1金属層及び第2金属層とからなる例を示したが、本発明では、露出部を有さない導電層を第1導電層及び/又は第2導電層として使用することも可能である。その場合、ガス透過性やガス拡散性を有する導電層が使用でき、このような導電層としては、例えば多孔質金属層、多孔質導電性高分子層、導電性ゴム層、導電性繊維層、導電性ペースト、導電性塗料などが挙げられる。

【0084】

40

(7)先の実施形態では、第1電極層及び第2電極層が樹脂成形体の開孔から露出する例を示したが、本発明では、樹脂成形体の開孔と第1電極層又は第2電極層との間に、多孔質層を介在させてもよい。多孔質層を介在させるには、インサート成形に使用する積層物として、金属層又は導電層の外側に多孔質層を予め設けておけばよい。多孔質層と金属層又は導電層とは予め接着等していてもよいが、積層配置するだけでもよい。

【0085】

多孔質層を形成する材料としては、インサート成形時の温度に耐え得る多孔質膜、不織布、織布などが挙げられる。

【0086】

(8)先の実施形態では、第1電極層及び第2電極層を外部に露出させる開孔を樹脂成

50

形体に設ける例を示したが、本発明では、樹脂成形体の内部に気体又は液体を供給するための流路を設けることも可能である。その場合、導電層に接触する側の内面に流路を設けた予備成形体を用いて、前述のようなインサート成形を行うことで、その流路に電極層を露出させることができる。

【実施例】

【0087】

以下、本発明の構成と効果を具体的に示す実施例等について説明する。

【0088】

実施例 1

厚み 0.2 mm の銅板を図 1 に示す形状（小判状部の長径 3.1 mm、短径 1.0 mm、突出部の開孔径 2.0 mm × 2 個）にプレスして打ち抜き、金属層となる銅板を 2 枚作製した。

10

【0089】

また、図 1 に示す形状の薄膜電極組立体（3.3 mm × 1.2 mm）は、下記のようにして作製した。白金触媒は、米国エレクトロケム社製 20% 白金担持カーボン触媒（EC-20-PTC）を用いた。この白金触媒と、カーボンブラック（アクゾ社ケッチェンブラック EC）、ポリフッ化ビニリデン（カイナー）を、それぞれ 75 重量%、15 重量%、10 重量% の割合で混合し、ジメチルホルムアミドを、2.5 重量% のポリフッ化ビニリデン溶液となるような割合で、上記白金触媒、カーボンブラック、ポリフッ化ビニリデンの混合物中に加え、乳鉢中で溶解・混合して、触媒ペーストを作製した。カーボンペーパー（東レ製 TGP-H-90、厚み 370 μm）を 3.3 mm × 1.2 mm に切断し、この上に、上記のようにして作製した触媒ペースト約 20 mg をスパチュラにて塗布し、80 の熱風循環式乾燥機中で乾燥した。このようにして 4 mg の触媒組成物が担持されたカーボンペーパーを作製した。白金担持量は、0.6 mg / cm² である。

20

【0090】

上記のようにして作製した白金触媒担持カーボンペーパーと、固体高分子電解質（陽イオン交換膜）としてナフィオンフィルム（デュポン社製ナフィオン 112、3.3 mm × 1.2 mm、厚み 50 μm）を用い、その両面に、金型を用いて、135、2 MPa の条件にて 2 分間ホットプレスした。こうして得られた薄膜電極組立体を上記の銅板 2 枚の中央で挟み込み、図 2 に示すような金型を用いて、2 枚の銅板の両側から圧力（1 トン）がかかる状態で、金型内に配置した。その状態で、樹脂（（株）プライムポリマー製、ポリプロピレン樹脂、J-700GP）を 195 で型内に注入して（射出圧力 400 kgf / cm²）、冷却した後金型から取り出すことで、樹脂成形体の外寸 3.9 mm × 1.8 mm × 2.1 mm 厚の燃料電池を得た。

30

【0091】

この燃料電池を用い、アノード側に内部空間を有しカソード側が大気開放となる評価治具にセットして、アノード側の内部空間に水素を 1.2 mL / 分で供給することで発電を行い、そのときの電池特性を評価した。電池特性は、東陽テクニカ製燃料電池評価システムを用い、電流を変化させながら出力電圧の変化を測定した。その際の出力電圧の変化を図 6 に示す。この結果から、金属板同士をカシメにより封止した燃料電池（比較例 1）と比較して出力電圧が約 20% 向上することが判った。

40

【0092】

比較例 1

実施例 1 において、銅板の代わりに金メッキした SUS 板を用いて、その大きさを電極より大きくし（カソード側 3.5 mm × 1.4 mm、アノード側 3.9 mm × 1.8 mm）、ナフィオンフィルムもカーボンペーパーより大きくし（3.9 mm × 1.8 mm）、ナフィオンフィルムを介在させて短絡しないように、SUS 板の周囲をカシメて封止したこと以外は実施例 1 と同様にして、燃料電池を作製し、評価した。その際の出力電圧の変化を図 6 に示す。

【図面の簡単な説明】

50

【 0 0 9 3 】

【図 1】本発明の燃料電池の一例を示す図であり、(a) は上面図、(b) は正面視断面図、(c) は底面図

【図 2】本発明の燃料電池の製造方法の一例を示す正面視断面図

【図 3】本発明の燃料電池の他の例を示す図であり、(a) は斜視図、(b) は上面図、(c) は要部を示す斜視図

【図 4】本発明の燃料電池の製造方法の他の例を示す斜視図

【図 5】本発明の燃料電池の他の例を示す正面視断面図

【図 6】実施例 1 等における燃料電池の出力電圧の変化を示すグラフ

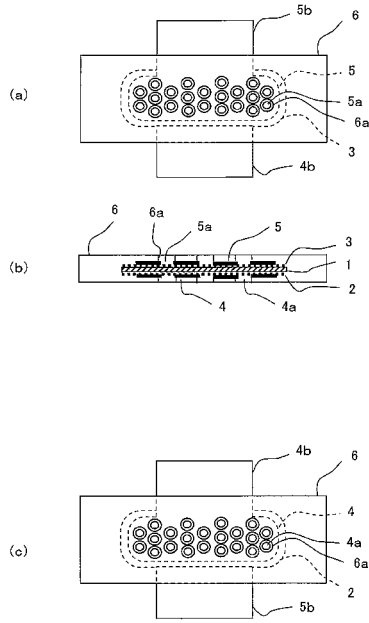
【図 7】本発明の燃料電池の他の例を示す図であり、(a) は上面図、(b) は正面視断面図 10

【符号の説明】

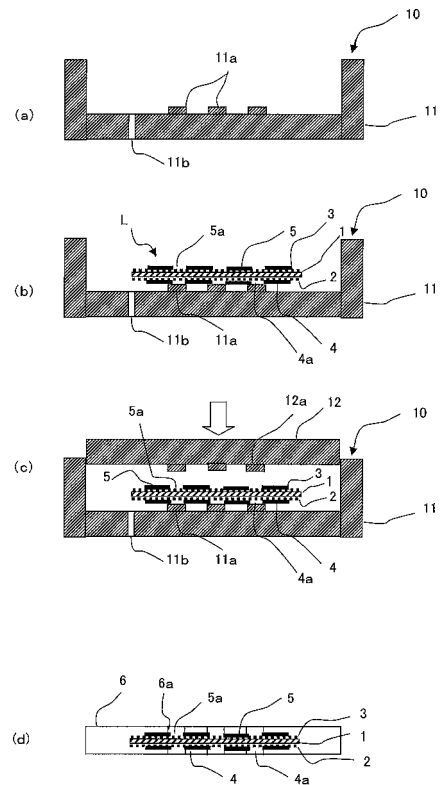
【 0 0 9 4 】

- 1 固体高分子電解質層
- 2 第 1 電極層
- 3 第 2 電極層
- 4 第 1 金属層 (第 1 導電層)
- 4 a 開孔 (露出部)
- 5 第 2 金属層 (第 2 導電層)
- 5 a 開孔 (露出部)
- 6 樹脂成形体
- 6 a 開孔
- 7 予備成形体
- 7 a 開孔
- 1 0 成形型
- 1 1 a 凸部
- 1 2 a 凸部
- C 単位セル
- L 積層物

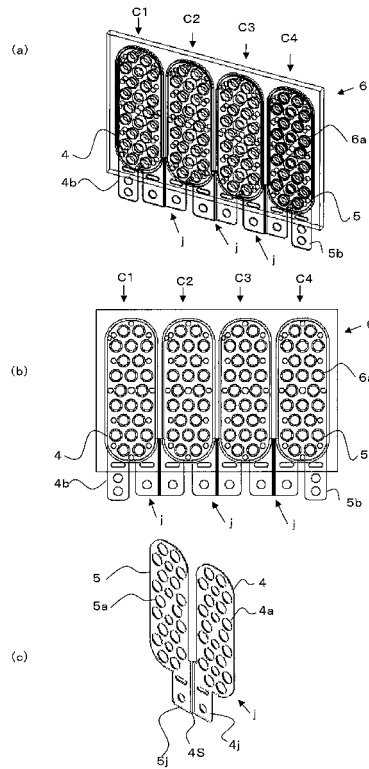
【 図 1 】



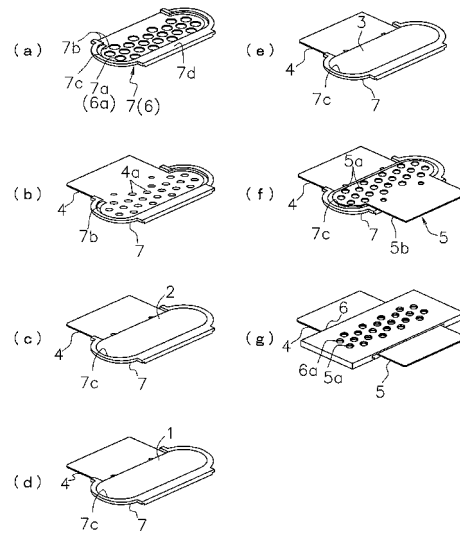
【 図 2 】



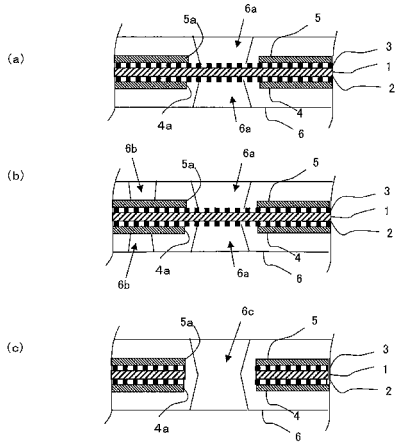
【 図 3 】



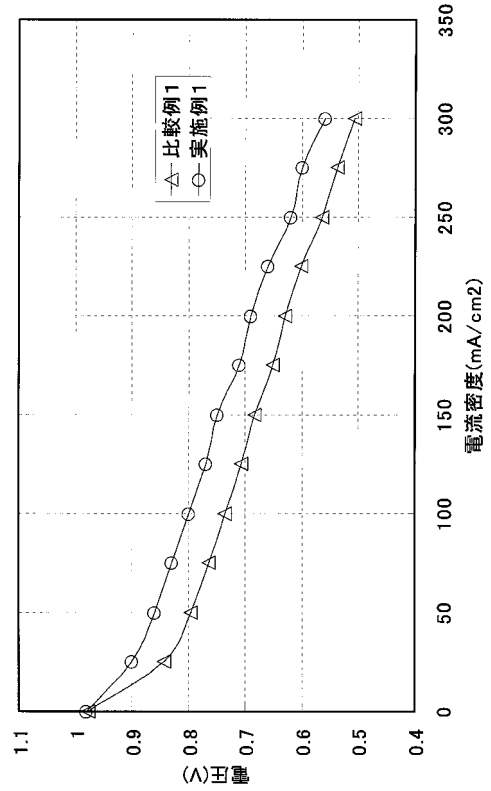
【 図 4 】



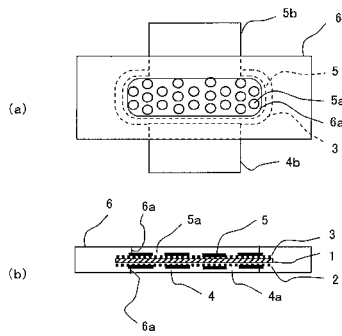
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

審査官 國島 明弘

- (56)参考文献 特開2005-011624(JP,A)
特開2007-157438(JP,A)
登録実用新案第3115434(JP,U)
特開2008-218304(JP,A)
特開2008-181889(JP,A)
特開2008-052953(JP,A)
特開2008-047437(JP,A)
特開2007-265918(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/02
H01M 8/10