

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4481813号  
(P4481813)

(45) 発行日 平成22年6月16日 (2010. 6. 16)

(24) 登録日 平成22年3月26日 (2010. 3. 26)

(51) Int. Cl.	F I	
HO 1 M 4/86 (2006. 01)	HO 1 M 4/86	M
HO 1 M 4/88 (2006. 01)	HO 1 M 4/88	Z
HO 1 M 8/02 (2006. 01)	HO 1 M 8/02	B
HO 1 M 8/10 (2006. 01)	HO 1 M 8/02	E
	HO 1 M 8/02	R

請求項の数 14 (全 17 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2004-504322 (P2004-504322)	(73) 特許権者	000005326 本田技研工業株式会社 東京都港区南青山二丁目1番1号
(86) (22) 出願日	平成15年5月2日 (2003. 5. 2)	(74) 代理人	100089266 弁理士 大島 陽一
(65) 公表番号	特表2005-529454 (P2005-529454A)	(72) 発明者	笹原 潤 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会 社 本田技術研究所内
(43) 公表日	平成17年9月29日 (2005. 9. 29)	(72) 発明者	鈴木 敏文 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会 社 本田技術研究所内
(86) 国際出願番号	PCT/JP2003/005631	(72) 発明者	久保田 忠弘 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会 社 本田技術研究所内
(87) 国際公開番号	W02003/096454		
(87) 国際公開日	平成15年11月20日 (2003. 11. 20)		
審査請求日	平成17年12月1日 (2005. 12. 1)		
(31) 優先権主張番号	60/379, 524		
(32) 優先日	平成14年5月9日 (2002. 5. 9)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ・拡散層アセンブリ及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリであって、  
燃料流体または酸化剤流体が通る凹部が形成された第1面と、該第1面に相対する第2面とを有するセパレータと、

前記セパレータの前記第1面に一体に形成された拡散層とを有し、

前記拡散層は導電膜を含むとともに、その厚み方向に貫通して前記セパレータの前記凹部と連通し、前記凹部内の流体を、前記拡散層の前記セパレータの前記第1面から離反する側の面において拡散させるための複数の流体通路が形成されていることを特徴とするセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項2】

前記拡散層の前記導電膜が物理蒸着、化学蒸着、スピンコート、スパッタリングまたはスクリーン印刷を含むプロセスにより形成されたものであることを特徴とする、請求項1に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項3】

各セパレータが、シリコン基板またはガラス基板を含むことを特徴とする、請求項1に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項4】

各拡散層の前記複数の流体通路が、前記セパレータの前記凹部上において前記拡散層の

前記導電膜に形成された複数の開口を含むことを特徴とする、請求項 1 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項 5】

各セパレータの前記凹部が所定の方向に延在し、各セパレータに対応する前記導電膜の前記複数の開口が前記凹部の延在方向に配列されて開口列をなし、前記開口列内の隣接する開口同士が前記開口列の延在方向に部分的に重なっていることを特徴とする、請求項 4 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項 6】

各拡散層が積層された複数の導電膜を有し、各導電膜に複数の開口が形成され、各導電膜の前記開口が隣接する導電膜の前記開口と連通することにより、前記拡散層の前記複数の流体通路が形成されていることを特徴とする、請求項 1 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

10

【請求項 7】

各拡散層が、前記導電膜と対応する前記セパレータとの間に形成された構造補強材を有することを特徴とする、請求項 1 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項 8】

各セパレータがシリコン材料からなり、前記構造補強材が窒化シリコン膜または酸化シリコン膜からなることを特徴とする、請求項 7 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項 9】

各拡散層の前記複数の流体通路が、対応する前記セパレータの前記凹部上において前記拡散層の前記構造補強材に形成された複数の開口を含むことを特徴とする、請求項 7 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

20

【請求項 10】

各セパレータの前記凹部が所定の方向に延在し、各セパレータに対応する前記構造補強材の前記複数の開口が前記凹部の延在方向に配列されて開口列をなし、前記開口列内の隣接する開口同士が前記開口列の延在方向に部分的に重なっていることを特徴とする、請求項 9 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリ。

【請求項 11】

燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法であって、  
無機材料からなる基板の一面に、前記基板と一体な導電膜を有し且つ厚み方向に貫通する流体通路を備えた拡散層を形成する過程と、  
前記拡散層の前記流体通路を通じてエッチング剤を前記基板の前記一面に接触させ、前記基板の前記一面に燃料流体または酸化剤流体を流すための凹部を形成してセパレータを形成する過程と  
を含むことを特徴とする燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法。

30

【請求項 12】

前記拡散層形成過程が、前記導電膜を前記基板の前記一面に物理蒸着、化学蒸着、スピコート、スパッタリングまたはスクリーン印刷を含むプロセスにより形成する過程を含むことを特徴とする、請求項 11 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法。

【請求項 13】

前記拡散層形成過程が、前記導電膜に複数の開口を形成する過程を有し、  
前記拡散層の前記流体通路は前記導電膜に形成された前記複数の開口を含み、前記導電膜の前記複数の開口は 1 以上の開口列をなすように配列され、各開口列内の隣接する開口同士が前記開口列の延在方向に部分的に重なっていることを特徴とする、請求項 11 に記載のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法。

40

【請求項 14】

前記拡散層形成過程が、  
前記基板と前記導電膜との間に構造補強材を形成する過程と、  
前記構造補強材に複数の開口を形成する過程とを有し、  
前記拡散層の前記流体通路は前記構造補強材に形成された複数の開口を含み、前記構造

50

補強材の前記複数の開口は1以上の開口列をなすように配列され、各開口列内の隣接する開口同士が前記開口列の延在方向に部分的に重なっていることを特徴とする、請求項11に記載のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池の構成部品に係り、特にバッテリー等の代わりに用いられるような小型燃料電池に用いられるセパレータ・拡散層アセンブリ及びその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、電解質層の両側に一对の触媒を担持した電極（触媒電極層という）を取り付け、一方の触媒電極層に水素やアルコール等の燃料流体、他方の触媒電極層に酸素や酸素を含む空気などの酸化剤流体を供給し、電気化学反応を起こさせて電気を発生させるものである。

【0003】

従来の燃料電池の例を図1に示す。図示されているように、この燃料電池1は電解質層10と、その両側に設けられた一对の触媒電極層11、12と、触媒電極層11、12の外側に設けられた一对の拡散層13、14と、拡散層13、14の外側に設けられた一对のセパレータ（配流板ともいう）15、16とを有する。セパレータ15、16は例えばシリコンからなる基板をエッチングして形成することができ、セパレータ15、16の拡散層13、14に向いた面には燃料流体（例えば水素ガス）または酸化剤流体（例えば酸素ガス）を流す流路を定める溝（凹部）20が形成されている。拡散層13、14は流体を電解質層10上に均一に拡散させるとともに、触媒電極層11、12に接触して触媒電極層11、12の電位を外部に伝達するためのものであり、通常、カーボンペーパー、カーボンクロス等の多孔質で導電性を有する材料からなる。セパレータ15、16が導電性材料からなる場合や導電膜で覆われた絶縁性または高抵抗材料からなる場合、セパレータ15、16に外部電極を取り付けることができる。また流体が不所望に漏れ出るのを防止するべく、拡散層13、14を周囲するようにシール材17、18が電解質層10と各セパレータ15、16との間に設けられている。

【0004】

燃料電池1は、これら部品を積層した後、積層方向に締め付けて隣接する部品を密着させることで組み立てられる。そのため、セパレータ15、16の外側に一对のバックアッププレート21、22が設けられるとともに、これらバックアッププレート21、22を貫通するロッド23のねじ切りされた端部にナット24が螺合され、ナット24を回転することで部品の積層方向に圧力を加えることが可能となっている。必要な締め付け圧力は密着される部品に応じて異なるが、カーボンペーパー/クロス等で形成された拡散層13、14は表面が粗いことから、流体が不所望に漏れることなく拡散層13、14を通過するようにするためには拡散層13、14とセパレータ15、16との間の接触圧力を特に大きくすることが必要である。また、セパレータ15、16を金属などの導電材料から形成したり、あるいは、セパレータ15、16の表面を導電膜で覆い、拡散層13、14からセパレータ15、16を通じて外部に電圧を取り出すことができるようにする場合、セパレータ15、16と拡散層13、14との間の接触抵抗を小さくするためにも大きな圧力で両部品を接触させる必要がある。

【0005】

しかしながら、大きな圧力に耐えるためには拡散層13、14及びセパレータ15、16の機械的強度を上げる必要があり、部品の大型化またはコストアップにつながる。更に、上記構造においては、セパレータ15、16と拡散層13、14に加えられる締め付け圧力は他のそれほど高い締め付け圧力を要しない部品にも加えられるため、他の部品も大きな機械的強度が必要となる。また、締結構造（バックアッププレート21、ロッド23及びナット24）も大がかりなものが必要となる。これらもまた、燃料電池1の重量、体積

10

20

30

40

50

、製造コストの増加につながる。

【0006】

電解質層10が固体高分子電解質(SPE)からなる場合、SPEは含水することによりイオン導電膜として機能するが、含水すると体積が変化する。また温度によってもSPEの体積は変化し得る。このようなSPEの体積変化は運転時の燃料電池1の内部において応力を発生させる。そのため、外から加えられる締め付け圧力が大きい場合、圧力が高くなりすぎてシール材17、18が破壊されるなどの問題が生じ得る。圧力を一定に制御しようとするると運転管理が煩雑となる。

【0007】

一般に燃料電池1では、拡散層13、14は触媒電極層11、12の電位を外部に伝達するため極力高い導電率を有することが好ましい。また、接触する部品(例えば触媒電極層11、12またはセパレータ15、16)との間の接触抵抗を小さくするため表面粗度が小さい方が好ましい。更に、良好な拡散機能が得られる限り、燃料電池1の小型化(薄型化)のため拡散層13、14は極力薄いことが望ましい。しかしながら、カーボンペーパーあるいはカーボンクロスからなる従来の拡散層13、14では導電率の向上、表面粗度及び厚さの低減に限界があった。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明は上記したような従来の問題を解決するためのものであり、その主たる目的は、燃料電池の組み立て時にセパレータと拡散層に大きな締め付け圧力をかける必要のない燃料電池を提供することである。

【0009】

本発明の第2の目的は、表面粗度が小さく隣接する部品との間の接触抵抗を低減した拡散層を有する燃料電池を提供することである。

【0010】

本発明の第3の目的は、高い導電性を有する拡散層を備えた燃料電池を提供することである。

【0011】

本発明の第4の目的は、良好な拡散機能を有し且つ従来に比べて大幅に薄い拡散層を有する燃料電池を提供することである。

【0012】

本発明の第5の目的は、上記したような燃料電池に適したセパレータ・拡散層アセンブリ及びその製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0013】

上記課題を解決するため、本発明の一側面に基くと、燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリ(130、131、130a、203)であって、燃料流体または酸化剤流体が通る凹部(120)が形成された第1面と、該第1面に相対する第2面とを有するセパレータ(115、116、115a)と、セパレータの第1面に一体に形成された拡散層(113、114、201)とを有し、拡散層は導電膜(133、133a、133b)を含むとともに、その厚み方向に貫通してセパレータの凹部と連通し、凹部内の流体を、拡散層のセパレータの第1面から離反する側の面において拡散させるための複数の流体通路(125、125a、125b)が形成されていることを特徴とするセパレータ・拡散層アセンブリが提供される。

【0014】

このように、拡散層とセパレータとを一体化してセパレータ・拡散層アセンブリとしたことにより、拡散層とセパレータとを密着させるべく大きな圧力をかける必要がないため、燃料電池に外から加える締め付け圧力を大きく低減することができる。これにより燃料電池の各部品に必要とされる機械強度を低減して、製造コストを下げることができる。ま

10

20

30

40

50

た、運転時に電解質層の膨張によって生じ得る応力の影響も軽減されるため、締め付け圧力を制御する必要がなく運転管理が簡便になる。更に、拡散層とセパレータが一体化されているため、部品点数及び組み立て工数も低減される。

#### 【0015】

拡散層の導電膜は物理蒸着、化学蒸着、スピコート、スパッタリングまたはスクリーン印刷を含むプロセスによりセパレータ上に好適に形成することができる。このように拡散層の導電膜は半導体製造やマイクロマシン製造などで用いられている成膜プロセスにより形成可能であることから極めて薄くできるため、燃料電池の寸法(厚さ)を小さくすることができる。燃料電池の厚さを小さくすることは、特にそのような燃料電池を複数個重ねて直列接続して使用する場合に、形成される燃料電池スタックの厚さを小さくできるため好適である。また、導電膜を金属や合金などの導電性の高い材料からなるものとする

10

ことにより、拡散層が高い導電性を有することができる。  
セパレータは好適にはシリコン基板またはガラス基板を含む。半導体製造用のシリコン基板やガラス基板は表面粗度が非常に低いため、その上に成膜プロセスにより形成される拡散層の触媒電極層に向けた側の表面粗度も容易に小さくできる。これにより、拡散層と触媒電極層との間の接触抵抗を低減するとともに、接触抵抗を締め付け圧力によらず概ね一定とすることができる。

#### 【0016】

拡散層の複数の流体通路は、セパレータの凹部上において導電膜に形成された複数の開口(125)を含むものとする。或いは拡散層が積層された複数の導電膜(133、133a、133b)を有し、各導電膜に複数の開口(125、125a、125b)が形成され、各導電膜の開口が隣接する導電膜の開口と連通することにより、拡散層の複数の流体通路が形成されるようにすることもできる。各セパレータの凹部が所定の方向に延在する場合、各セパレータに対応する導電膜の複数の開口が凹部の延在方向に配列されて開口列をなし、開口列内の隣接する開口同士が開口列の延在方向に部分的に重なっているようにするとよい。これにより、導電膜の開口をエッチング用窓として用い、シリコンなどの無機材料からなる基板をエッチングすることで開口列に沿って延在する凹部を複雑なプロセスを要することなく形成することができる。

20

#### 【0017】

拡散層の機械的強度を増すため、各拡散層がその導電膜と対応するセパレータとの間に構造補強材(132)を有することが好ましい。各セパレータがシリコン材料からなる場合、構造補強材は窒化シリコン膜または酸化シリコン膜からなるものとする。各拡散層の流体通路は、セパレータの凹部上において構造補強材に形成された複数の開口を含むこともできる。即ち、構造補強材に形成された開口も燃料流体または酸化剤流体を触媒電極表面に均一に拡散させるのに寄与し得る。各セパレータの凹部が所定の方向に延在する場合、各セパレータに対応する構造補強材の複数の開口が凹部の延在方向に配列されて開口列をなし、開口列内の隣接する開口同士が開口列の延在方向に部分的に重なっているようにするとよい。このようにすると、構造補強材の開口をエッチング用窓として用い、シリコンなどの無機材料からなる基板をエッチングすることで開口列に沿って延在する凹部を複雑なプロセスを要することなく形成することができる。

30

40

#### 【0019】

また本発明の更に別の側面によると、燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法であって、無機材料からなる基板(150)の一面に、基板と一体な導電膜(133、133a、133b)を有し且つ厚み方向に貫通する流体通路(125、125a、125b)を備えた拡散層(113、114、201)を形成する過程と、拡散層の流体通路を通じてエッチング剤を基板の表面に接触させ、基板の一面に燃料流体または酸化剤流体を流すための凹部(120)を形成してセパレータ(115、116、115a)を形成する過程とを含むことを特徴とする燃料電池用のセパレータ・拡散層アセンブリの製造方法が提供される。

#### 【0020】

50

このように、拡散層に形成される流体通路を通じてエッチング剤を基板表面に到達させることにより、複雑な機械加工を要することなく基板を加工して燃料流体または酸化剤流体の流路を定める凹部を形成することができる。好適には、拡散層形成過程は、導電膜を基板の一面に物理蒸着、化学蒸着、スピコート、スパッタリングまたはスクリーン印刷を含むプロセスにより形成する過程を含む。

#### 【0021】

また好適には、拡散層形成過程は導電膜に複数の開口(125)を形成する過程を有し、拡散層の流体通路は導電膜に形成された複数の開口を含み、導電膜の複数の開口は1以上の開口列をなすように配列され、各開口列内の隣接する開口同士が開口列の延在方向に部分的に重なるようにすることができる。別の方法として、または、それに加えて、拡散層形成過程は基板と導電膜との間に構造補強材(132)を形成する過程と、構造補強材に複数の開口を形成する過程とを有し、拡散層の流体通路は構造補強材に形成された複数の開口を含み、構造補強材の複数の開口は1以上の開口列をなすように配列され、各開口列内の隣接する開口同士が開口列の延在方向に部分的に重なるようにすることもできる。このようにすることで、導電膜または構造補強材の開口列に沿って延在する凹部をエッチングにより容易に基板内に形成することができる。

10

#### 【0022】

本発明の特徴、目的及び作用効果は、添付図面を参照しつつ好適実施例について説明することにより一層明らかとなるだろう。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

20

#### 【0023】

図2は、本発明に基づく燃料電池の好適実施例を示す模式的な断面図である。この燃料電池100は、図1に示した従来の燃料電池1と同様に、中央の電解質層110と、電解質層110の両面に設けられた一对の触媒電極層111、112と、触媒電極層111、112に向けた面に燃料流体または酸化剤流体が流れる流路(凹部)120を定める例えばシリコンやガラスなどの無機材料からなる一对のセパレータ115、116と、セパレータ115、116と電解質層110との間に設けられたシール材117、118と、組み付けの際各部に締め付け圧力を与えるためのバックアッププレート121、122、ロッド123及びナット124とを有する。図示は省略するが、各流路120の底面には流体の出入りを可能とするための流体ポートが形成されている。

30

#### 【0024】

この燃料電池100では、流体を電解質層110上に均一に拡散させるとともに、触媒電極層111、112に接触して触媒電極層111、112の電位を外部に伝達するための一对の拡散層113、114が、対応するセパレータ115、116に一体に形成され、セパレータ・拡散層アセンブリ130、131を形成している点が図1に示した従来例と異なる。また、各拡散層113、114には、厚み方向に貫通して対応するセパレータ115、116の流路120と連通し、流路120内の流体を対応する触媒電極層111、112の表面に拡散させる複数の微小開口125が形成されている。

#### 【0025】

図2の部分拡大断面図に示すように、各拡散層113、114は、好適には、セパレータ115、116上に形成された構造補強材132と、構造補強材132上に形成された導電膜133とを有する。セパレータ115、116が単結晶シリコンからなる場合、構造補強材132は例えばセパレータ115、116の表面に被着された窒化シリコン膜や酸化シリコン膜からなるものとすることができる。また後に詳述するように導電膜133は、物理蒸着(PVD)、化学蒸着(CVD)、スピコートなどの半導体製造やマイクロマシン製造などで用いられている成膜プロセスにより形成することができる。微小開口125は、構造補強材132及び導電膜133を、例えばエッチングなどによりパターンニングすることで形成することができる。

40

#### 【0026】

図3は、図2に示したセパレータ・拡散層アセンブリ130(131)の拡散層113

50

(114)が設けられた側の面(第1面)を示す部分平面図である。尚、本図では、セパレータ115(116)の流路120を示すため拡散層113(114)の一部が切除されている。図示されているように、拡散層113(114)に形成された複数の開口125はセパレータ115(116)の各流路120に沿って整列されている。各開口125は長寸の形状を有するとともに流路120の延在方向に対して傾斜し、流路120の延在方向に隣接する開口125は一部重なっている。尚、図2は、図3におけるラインI-Iに沿った断面図であり、そのため、流路120の延在方向に重なった2つの開口125が各流路120上に現れているが、切断面の位置に応じて開口125が現れる位置及び個数は変わり得る。このように各流路120上に位置するように複数の開口125を拡散層113(114)に形成し、各流路120を流れる燃料流体または酸化剤流体が開口125を通して触媒電極層111(112)上に供給されるようにすることで、これら流体を触媒電極層111(112)上に概ね均一に拡散させることができる。また、後述するように、拡散層113(114)に設けた複数の開口125を、エッチングによりセパレータ115(116)に流路120を形成する際のエッチング用窓として好適に用いることが可能である。

10

**【0027】**

図2に示した燃料電池100は、従来と同様に、ナット124を回転させて隣接する部品同士を密着させることで形成される。しかしながら、上記したように、拡散層113、114がセパレータ115、116と一体化されセパレータ・拡散層アセンブリ130、131を形成していることから、拡散層113、114とセパレータ115、116とを密着させるべく大きな圧力をかける必要がないため、燃料電池100に外から加える締め付け圧力を大きく低減することができる。これにより燃料電池100の各部品に必要とされる機械強度を低減して、製造コストを下げるができる。また、運転時に電解質層10の膨張によって生じ得る応力の影響も軽減されるため、締め付け圧力を制御する必要がなく運転管理が簡便になる。拡散層113、114とセパレータ115、116が一体化されているため、部品点数及び組み立て工数も低減される。

20

**【0028】**

拡散層113、114の導電膜133及び構造補強材132は半導体製造やマイクロマシン製造などで用いられている成膜プロセスにより形成可能であることから極めて薄くできるため、燃料電池100の寸法(厚さ)を小さくすることができる。燃料電池100の厚さを小さくすることは、特にそのような燃料電池100を複数個重ねて直列接続して使用する場合に、形成される燃料電池スタックの厚さを小さくするため好適である。また、金属や合金などの導電性の高い材料から形成することにより、拡散層113、114の導電膜133は高い導電性を有することができる。

30

**【0029】**

更に、セパレータ115、116が、表面粗度が非常に低い半導体デバイス用シリコン基板やガラス基板等からなる場合、その上に成膜プロセスにより形成される拡散層113、114の触媒電極層111、112に向けた側の表面粗度も容易に小さくできる。これにより、拡散層113、114と触媒電極層111、112との間の接触抵抗を低減するとともに、接触抵抗を締め付け圧力によらず概ね一定とすることができる。

40

**【0030】**

本分野ではよく知られているように、燃料電池100の電気極性は流路120に流れる流体によって決定される。即ち、水素( $H_2$ )などの燃料流体に接触する触媒電極層111、112(及びそれに接する拡散層113、114)は負極となり、酸素( $O_2$ )などの酸化剤流体に接する触媒電極層111、112(及びそれに接する拡散層113、114)は正極となる。図4の模式図に示すように、拡散層113、114に直接外部電極134を取り付けることができる。

**【0031】**

図5はセパレータ・拡散層アセンブリの別の実施例を示す模式的な断面図である。本図において、図4と同様の部分には同じ符号を付した。このセパレータ・拡散層アセンブリ

50

130aでは、セパレータ115aが厚さ方向に貫通する貫通導電路140を有し、セパレータ115aの拡散層113が形成される面(第1面)とは反対の面(外面または第2面)に導電膜141が形成されている。拡散層113(より詳細にはその導電膜133)と導電膜141は貫通導電路140を介して接続され、それにより、セパレータ115aの外面の導電膜141に拡散層113の電位が現れる。このようにすることにより、セパレータ115aの外面の導電膜141に外部電極134を取り付けることが可能である。図5に示したセパレータ・拡散層アセンブリ130aを有する燃料電池では、例えば複数の燃料電池を直列接続する場合、隣接する燃料電池のセパレータ外面同士を接触させればよいため、そのような直列接続の形成が容易である。また、拡散層113とセパレータ115aとが機械的及び電氣的に一体化されているため接触抵抗について心配する必要がなく、締め付け圧力によらず抵抗が一定となる。更に、拡散層113とセパレータ115aの外面の導電膜141とは貫通導電路140により最短経路で接続されるため燃料電池の内部抵抗を最小化することができる。

10

#### 【0032】

図6a~図7cを参照して図2~図4に示したようなセパレータ115(116)と拡散層113(114)が一体的に形成されたセパレータ・拡散層アセンブリ130(131)の好適な製造方法について説明する。

#### 【0033】

まず、図6aに示すように、例えば単結晶シリコンからなる厚さ約400 $\mu\text{m}$ の基板150を硫酸等を用いて洗浄した後、図6bに示すようにスパッタリングにより上面及び下

20

#### 【0034】

続いて図6cに示すように、例えば物理蒸着(PVD)により基板150の上面に厚さ約2 $\mu\text{m}$ の導電膜153を形成する。導電膜153は例えば約0.1 $\mu\text{m}$ の厚さのチタン(Ti)層155の上に約2 $\mu\text{m}$ の厚さの金(Au)層154を設けた2層構造とするとよい。チタンは窒化シリコンと金の密着性を高める働きをし、アルミニウム(Al)、ニッケル(Ni)、クロム(Cr)を代わりに用いることもできる。また、金の代わりにニッケル(Ni)、銅(Cu)、プラチナ(Pt)、鉄(Fe)、タングステン(W)、モリブデン(Mo)、ドーパしたシリコン、ポリシリコンなどの他の導電性材料を用いることもできる。物理蒸着の他に化学蒸着(CVD)、スピコート、スパッタリング、スクリーン印刷などの他の成膜方法を用いてもよい。

30

#### 【0035】

次のステップでは、図6dに示すように、マスク(図示せず)を用いて導電膜153をエッチングし、複数の開口156を形成する。図3に示した開口125と同様に、開口156は基板150に互いに並列な複数の流路159(図7c)を形成するべく各流路159の延在方向(図6dでは紙面に垂直な方向)に複数個整列して形成され、複数の開口列をなしている。また、各開口156は長寸の形状を有するとともに整列方向に対して傾斜し、各列において隣接する開口156の端部は整列方向に重なり合っている。図6dの断面図では、図2と同様に、整列方向に重なり合った2つの開口156が現れている。

#### 【0036】

40

続いて、図7aに示すように、導電膜153の開口156と整合した位置において基板150の上面の窒化シリコン膜151に微小開口157を形成するべくマスク(図示せず)を用いて $\text{CF}_4$ を用いた反応性イオンエッチング(RIE)を行う。これら微小開口157は、流路159(図7c)形成のためのシリコンエッチング用窓としても働く。これら開口157も、導電膜153の開口156と同様に、長寸形状を有するとともに整列方向に対して傾斜し、各列において隣接する開口157の端部は整列方向に重なり合っている。

#### 【0037】

更に、図7bに示すように、基板150に形成される流路159への流体の出入りを可能とするための流体ポート160(図7c)が形成される部分において基板150下面の

50



窒化シリコン膜 152 を除去し、シリコンエッチング用窓 158 を形成するべく、マスク（図示せず）を用いて同様にエッチングを行う。

【0038】

そうして、図7cに示すように、例えばKOH水溶液などのアルカリ水溶液を用いてシリコン基板150のウェットエッチングを行い、流路159及び流体ポート160を形成する。このプロセスは異方性エッチングであるため、シリコンの結晶方位を反映して流路159及び流体ポート160の側壁が所定の角度で傾斜してエッチングされる。また、エッチング用窓として働く基板150の上面側の窒化シリコン膜151の開口157が流路159の延在方向に複数個整列され且つ整列方向に隣接する開口157同士が一部重なり合っていることにより、開口157の各列の下に連続的な流路159をエッチングにより好適に形成することができる。こうして、図2～図4に示したような、一体的なセパレータ・拡散層アセンブリ130（131）が得られる。尚、図7cにおいて開口156、157が、図2～図4における開口125に対応する。また、上側の窒化シリコン膜151は、図2の部分拡大図に示した構造補強材132として働く。

10

【0039】

次に、図5に示したような、貫通導電路140を有するセパレータ・拡散層アセンブリ130aの好適な製造方法について図8a～図8eを参照して説明する。尚、これらの図において図6a～図7cに示したのと同様の部分には同じ符号を付して詳しい説明を省略する。

【0040】

20

図6bに示したステップでシリコン基板150の両面に窒化シリコン膜151、152を形成した後、図8aに示すように、マスク（図示せず）を用いてエッチングし、貫通導電路162（図8d）を形成する部分において基板150上面の窒化シリコン膜151を除去する。

【0041】

続いて図8bに示すステップにおいて、蒸着やスピコートなどにより基板150上面に導電膜153を形成する。上記実施例と同様に、導電膜153は金属154及びチタン層155を含む2層構造とするとよい。

【0042】

次に図8cに示すように、マスク（図示せず）を用い貫通導電路162（図8d）を形成する部分において基板150の下面側の窒化シリコン膜152をエッチングにより除去した後、例えばKOH水溶液などのアルカリ水溶液を用いたウェットエッチングを行い、シリコン基板150の上面を覆う導電膜153に達する貫通孔161を形成する。このプロセスも異方性エッチングであるため、シリコンの結晶方位を反映して貫通孔161の側壁は所定の角度で傾斜し、貫通孔161の断面形状は基板150の上面から下面へ向かって（即ち、セパレータ115aの第1面から第2面へ向かって）拡開した形状となる。

30

【0043】

そうして、図8dに示すように、金属材料を基板の下面側から蒸着などにより成膜し、貫通孔161の側壁及び基板150の下面に、好適には基板150に隣接したチタン層とチタン層に隣接した金属とからなる2層構造の導電膜162、163をそれぞれ形成する。このとき貫通孔161の上側開口を覆っている導電膜153にも下側から金属が蒸着され、導電膜153と貫通孔161の側壁上の導電膜162が接続される。また、上記したように貫通孔161の側壁が傾斜しているため蒸着金属が付着しやすく、十分な厚さのむらのない導電膜162を側壁上に好適に成膜することができる。尚、図8cのステップでウェットエッチングの代わりにドライエッチングなどにより貫通孔161を形成し、側壁が傾斜しないようにすることもできるが、側壁上に導電膜162を均一に形成することはウェットエッチングにより貫通孔161を形成した場合に比べると困難となり得る。

40

【0044】

このようにして、貫通孔161の側壁の導電膜162により、基板150の上面の導電膜153と下面の導電膜163とが接続される。即ち、貫通孔161の側面の導電膜16

50

2は、図5に示した貫通導電路140として働く。この後、図6d~図7cに示したステップを同様に行うことで、図8eに示すように、流路159、流体ポート160等を形成する。これにより、図5に示したような貫通導電路140(導電膜162)を有するセパレータ・拡散層アセンブリ130aが得られる。

【0045】

上記実施例では、拡散層113(114)は、複数の開口125(156)が形成されるようパターンニングされた単一の導電膜133(153)を有していた。しかしながら、流体をより均一に拡散することが可能な複雑な流体通路を備えた拡散層を形成するべく、パターンニングされた複数の導電膜を積層してもよい。例えば、図2に示したセパレータ・拡散層アセンブリ130(131)の導電膜133の上に、第2及び第3の導電膜133a、133bを形成し、3層の導電膜133、133a及び133bを有する拡散層201を備えたセパレータ・拡散層アセンブリ203を形成することができる。

10

【0046】

図9a~図9cに、導電膜133、133a、133bのパターンニングの一例を示す。図9aは図3と実質的に同じであり、導電膜133の開口125の形状及び配置をセパレータ115(116)の流路120と共に示している。図9bに示すように、この実施例では、第2導電膜133aは、セパレータ115(116)の流路120の延在方向に対する傾斜角度が第1導電膜133の開口125と異なる開口125aが形成されている。一方、図9cに示すように、第3導電膜133bは、第1導電膜133の開口125と同じ形状及び配置で開口125bが形成されている。

20

【0047】

これら導電膜133、133a、133bを重ねた状態の平面図を図10aに示す。また、図10bに、図10aのラインXb-Xbに沿った断面図を示す。これらの図に示されているように、第1導電膜133の開口125は、第2導電膜133aの開口125aを介して第3導電膜133bの開口125bに連通しており、これにより拡散層201を厚さ方向に貫通する流体通路が形成されている。また、第2導電膜133aの各開口125aは第1導電膜133の複数の開口125と第3導電膜133bの複数の開口125bとに連通しており、これにより流体通路は複雑なラビリンス構造を有し、これら流体通路を通じてセパレータ115(116)の凹部120を流れる燃料流体または酸化剤流体が触媒電極層111(112)の表面に好適に拡散される。

30

【0048】

図11a~図11e及び図12a~図12dの模式的な部分断面図を参照して、上記したような複数の導電膜を有するセパレータ・拡散層アセンブリ203を形成するための好適な製造方法について以下に説明する。尚、これらの図において、図6a~図7cに示したのに対応する部分には同じ符号を付した。

まず図6a~図7aを参照して説明したのと同様のステップによりシリコン基板150の両面に窒化シリコン膜151、152を形成し上面側に金属154とチタン層155を含む導電膜(第1導電膜)153を形成した後、第1導電膜153及び窒化シリコン膜151をエッチング等によりパターンニングして、図11aに示すように複数の開口156、157をそれぞれ形成する。

40

【0049】

図11bのステップでは、例えば酸化シリコン( $SiO_2$ )からなる犠牲層258を成膜して、上面の窒化シリコン膜151の開口157及び第1導電膜153の開口156を犠牲層258で埋める。

【0050】

更に図11cに示すように犠牲層258の上にレジスト259を形成した後、図11dに示すようにドライエッチングによりレジスト259及び犠牲層258を第1導電膜153の上面が露出するまでエッチングし、上面を平坦化する。

【0051】

そうして、平坦化した上面の上に、上記したのと同様の手順により、図11eに示すよ

50

うに第2導電膜153aを形成し、パターンニングして複数の開口156aを形成する。また、図11b～図11dに示したのと同様のステップに基づき、犠牲層258aにより第2導電膜153a中の開口156aを埋め、レジスト(図示せず)を成膜した後、エッチングして上面を平坦化する(図12a)。

#### 【0052】

更に、上記したのと同様の手順により、第3導電膜153bの形成及びパターンニングを行い開口156bを形成した後、図12bに示すようにエッチングにより窒化シリコン膜151の開口157及び第1導電膜153の開口156を埋める犠牲層258と第2導電膜153aの開口156aを埋める犠牲層258aを除去する。これにより、各導電膜153、153a、153bの開口156、156a、156b及び窒化シリコン膜151の開口157が連通し、拡散層201を貫通する流体通路が形成される。

10

#### 【0053】

続いて、図12cに示すようにマスク(図示せず)を用いてエッチングし、流体ポート160(図12d)を形成する位置において基板150の下面の窒化シリコン膜152にシリコンエッチング用窓158を形成する。

#### 【0054】

そうして、図12dに示すようにKOH水溶液を用いてシリコン基板150のウェットエッチングを行うことにより、流路159及び流体ポート160を形成する。これにより、一体的なセパレータ・拡散層アセンブリ203が得られる。このとき、拡散層201を貫通する流体通路を形成する各導電膜153、153a、153bの開口156、156a、156b及び窒化シリコン膜151の開口157を通してエッチング剤がシリコン基板150の表面に達することが可能であり、そのような拡散層201が設けられていても基板150のエッチングを行うことができる。

20

#### 【0055】

本発明を実施例に基づいて詳細に説明したが、これらの実施例はあくまでも例示であって本発明は実施例によって限定されるものではない。当業者であれば特許請求の範囲によって画定される本発明の技術的思想を逸脱することなく様々な変形若しくは変更が可能であることは言うまでもない。例えば、上記実施例では例えば導電膜を形成した後、エッチングにより導電膜のパターンニングを行ったが、フォトリソグラフィ、リフトオフ等により所定パターンを有する導電膜を形成することも可能である。また、上記実施例ではセパレータと一体に形成される拡散層の導電膜及び構造補強材に、セパレータの各流路(凹部)に沿って配列された複数の長寸の開口を各開口が配列方向に対して傾斜するように設けたが、開口の形状は様々な変更可能であり、例えば各開口をV字形やW形としてもよい。その場合も、配列方向に隣接する開口が部分的に重なるようにすると、これら開口をエッチング用窓として用いてセパレータをエッチングすることで、開口の配列方向に延在する流路を容易に形成できるため好適である。

30

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0056】

上記した説明から明らかなように、本発明によれば、燃料電池の拡散層がセパレータに一体に形成されたパターンニングされた導電膜を有し、それによりセパレータと拡散層が一体的なセパレータ・拡散層アセンブリを形成するものとしたことにより、セパレータと拡散層の間を密着させるべく大きな圧力を外から加える必要がない。これにより、燃料電池の他の部品にかかる圧力も低減することができ、必要な機械的強度を軽減して製造コストを低減することができる。拡散層とセパレータが一体化されているため、部品点数及び組み立て工数も低減される。また、導電膜を半導体製造やマイクロマシン製造などで用いられている成膜プロセスにより形成することにより、導電膜を有する拡散層を極めて薄くできるため、形成される燃料電池の寸法(厚さ)を小さくすることができる。

40

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0057】

【図1】図1は、従来の燃料電池の例を示す模式的な断面図である。

50

【図 2】図 2 は、本発明に基づく燃料電池の好適実施例を示す模式的な断面図である。

【図 3】図 3 は、図 2 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリの部分平面図である。

【図 4】図 4 は、図 2 に示した燃料電池における拡散層の外部電極との接続形態の一例を示すセパレータ・拡散層アセンブリの模式的な断面図である。

【図 5】図 5 は、本発明に基づくセパレータ・拡散層アセンブリの別の実施例を示す模式的な断面図である。

【図 6 a】図 6 a は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 6 b】図 6 b は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 6 c】図 6 c は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 6 d】図 6 d は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 7 a】図 7 a は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 7 b】図 7 b は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 7 c】図 7 c は、図 2 ~ 図 4 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 8 a】図 8 a は、図 5 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 8 b】図 8 b は、図 5 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 8 c】図 8 c は、図 5 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 8 d】図 8 d は、図 5 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 8 e】図 8 e は、図 5 に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 9 a】図 9 a は、本発明に基づく燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリの別の好適実施における 3 つの導電膜を示す部分平面図である。

【図 9 b】図 9 b は、本発明に基づく燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリの別の好適実施における 3 つの導電膜を示す部分平面図である。

【図 9 c】図 9 c は、本発明に基づく燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリの別の好適実施における 3 つの導電膜を示す部分平面図である。

【図 10 a】図 10 a は、図 9 a ~ 図 9 c に示した 3 つの導電膜を重ねて示した部分平面図である。

【図 10 b】図 10 b は、図 10 a のライン X b - X b に沿った断面図である。

【図 11 a】図 11 a は、図 9 a ~ 図 10 b に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 11 b】図 11 b は、図 9 a ~ 図 10 b に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 11 c】図 11 c は、図 9 a ~ 図 10 b に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 11 d】図 11 d は、図 9 a ~ 図 10 b に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図 11 e】図 11 e は、図 9 a ~ 図 10 b に示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

10

20

30

40

50

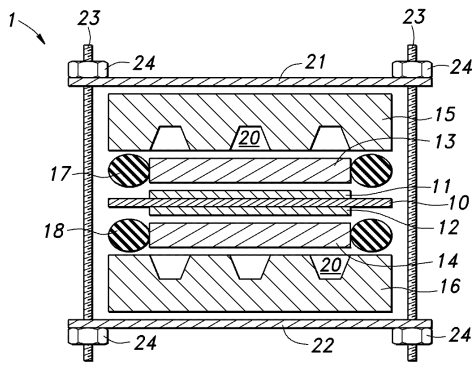
【図12a】図12aは、図9a～図10bに示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図12b】図12bは、図9a～図10bに示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図12c】図12cは、図9a～図10bに示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

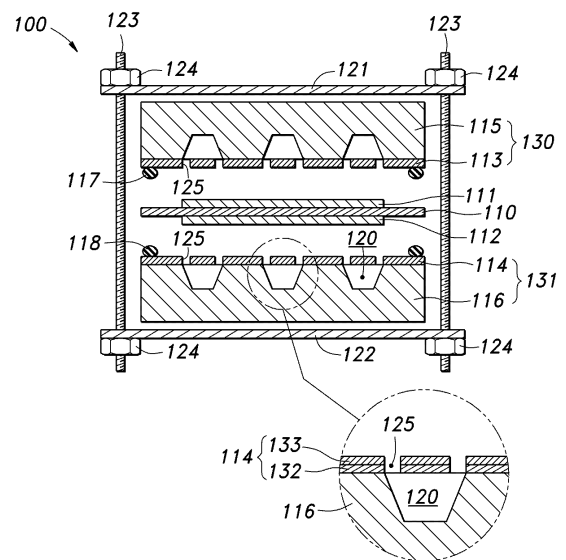
【図12d】図12dは、図9a～図10bに示した燃料電池のセパレータ・拡散層アセンブリを形成するための好適な方法を示す模式的な部分断面図である。

【図1】

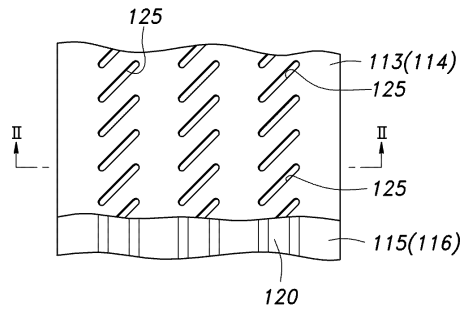


従来技術

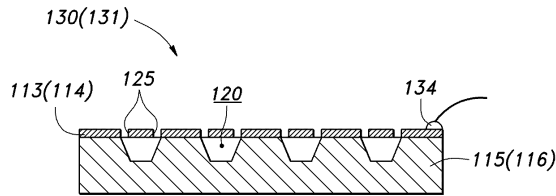
【図2】



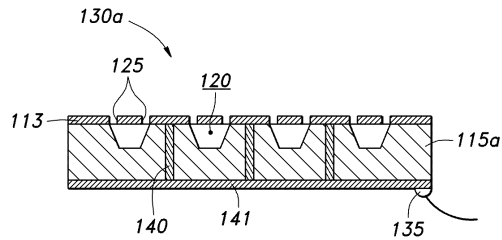
【図3】



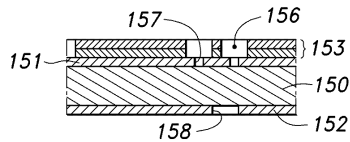
【図4】



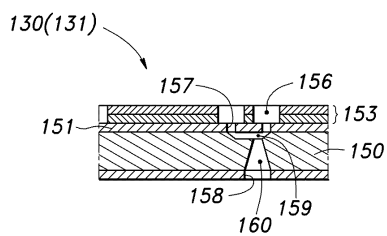
【図5】



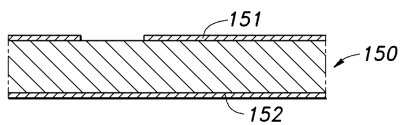
【図7b】



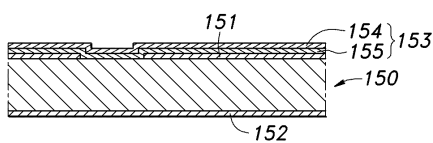
【図7c】



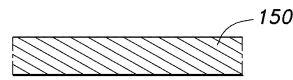
【図8a】



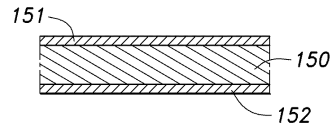
【図8b】



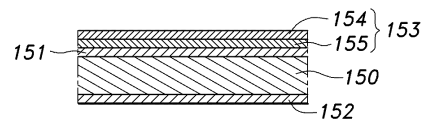
【図6a】



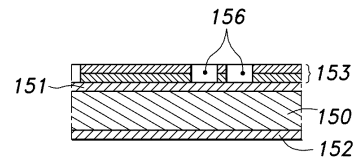
【図6b】



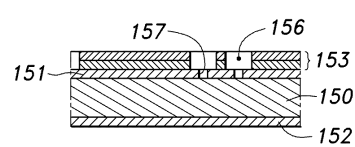
【図6c】



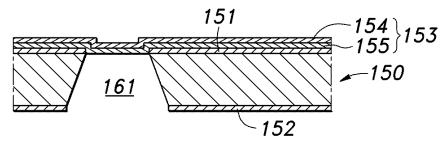
【図6d】



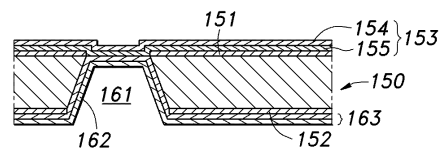
【図7a】



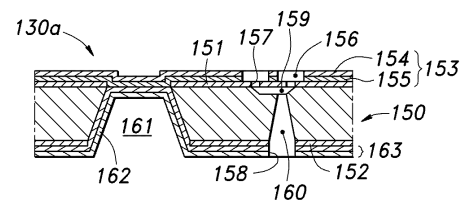
【図8c】



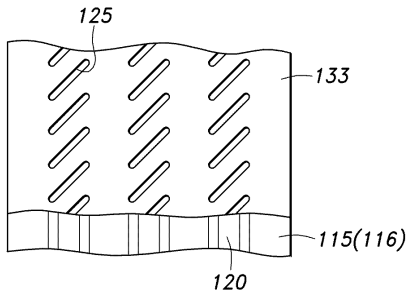
【図8d】



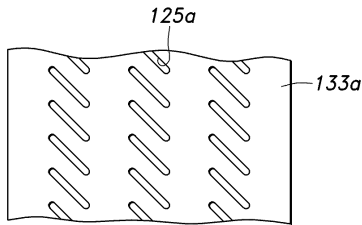
【図8e】



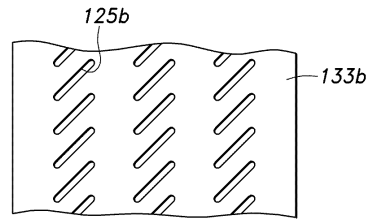
【図9a】



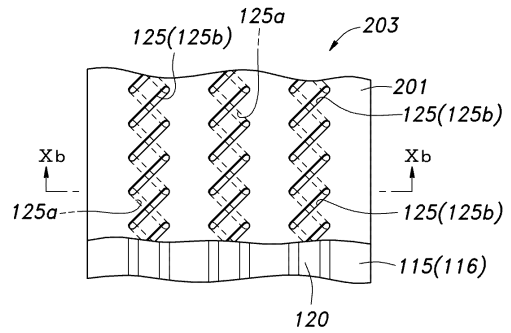
【図9b】



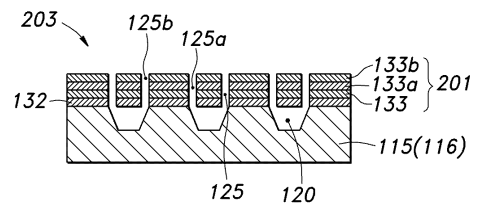
【図9c】



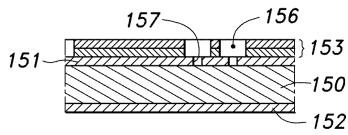
【図10a】



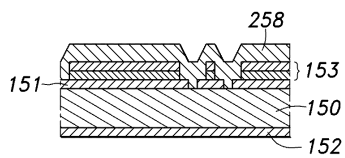
【図10b】



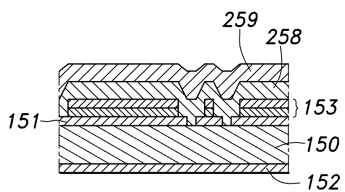
【図11a】



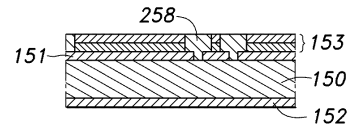
【図11b】



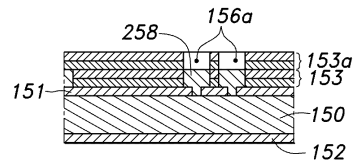
【図11c】



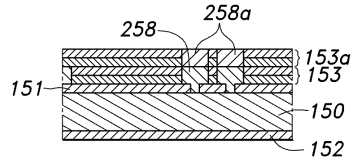
【図11d】



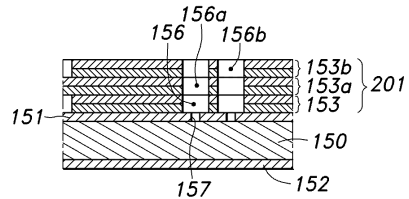
【図11e】



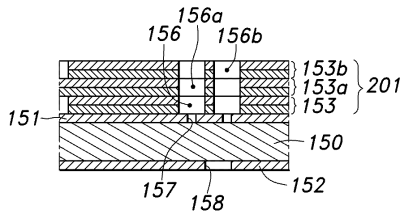
【図12a】



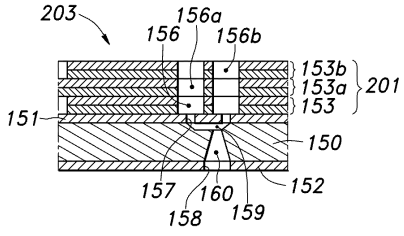
【図12b】



【 図 1 2 c 】



【 図 1 2 d 】





## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
H 0 1 M 8/02 Y  
H 0 1 M 8/10

(72)発明者 栗山 齊昭  
埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社 本田技術研究所内

(72)発明者 斉藤 祐司  
アメリカ合衆国カリフォルニア州94041-1270・マウンテンビュー・カリフォルニア ス  
トリート スイート300・800・ホンダ リサーチ インスティテュート ユーエスエー イ  
ンク内

審査官 國島 明弘

(56)参考文献 特開2000-113899(JP,A)  
特開2000-058072(JP,A)  
特表平11-511289(JP,A)  
特開平07-176307(JP,A)  
特開平08-064216(JP,A)  
特開平08-180884(JP,A)  
特開2003-151585(JP,A)  
特開2004-152584(JP,A)  
特開平03-119087(JP,A)  
特表2001-522522(JP,A)  
特開昭61-127883(JP,A)  
特開2003-173794(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 4/86  
H01M 4/88  
H01M 8/02  
H01M 8/10