

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3734134号

(P3734134)

(45) 発行日 平成18年1月11日(2006.1.11)

(24) 登録日 平成17年10月28日(2005.10.28)

(51) Int. Cl.	F I
HO 1 M 8/04 (2006.01)	HO 1 M 8/04 K
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/04 T
HO 1 M 8/06 (2006.01)	HO 1 M 8/02 B
HO 1 M 8/10 (2006.01)	HO 1 M 8/02 C
	HO 1 M 8/06 W

請求項の数 8 (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平11-185375	(73) 特許権者	000005234
(22) 出願日	平成11年6月30日(1999.6.30)		富士電機ホールディングス株式会社
(65) 公開番号	特開2001-15138(P2001-15138A)		神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
(43) 公開日	平成13年1月19日(2001.1.19)	(74) 代理人	100077481
審査請求日	平成16年1月15日(2004.1.15)		弁理士 谷 義一
		(74) 代理人	100088915
			弁理士 阿部 和夫
		(72) 発明者	中川 匡
			神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
			富士電機株式会社内
		審査官	守安 太郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

ガス流路を有するセパレータ板と、アノード電極と、電解質膜と、カソード電極と、ガス流路を有するセパレータ板とを順次積層した単セルを複数積層した固体高分子型燃料電池において、アノード電極側のセパレータのガス流路およびカソード電極側のセパレータのガス流路の一方に低加湿ガスが流通し、前記低加湿ガスが流通する側の電極の温度よりも他方の電極の温度を高くする手段を有することを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【請求項2】

ガス流路を有するセパレータ板と、アノード電極と、電解質膜と、カソード電極と、ガス流路を有するセパレータ板とを順次積層した単セルを複数積層した固体高分子型燃料電池において、前記各ガス流路に無加湿ガスが流通し、カソード電極の温度をアノード電極の温度よりも高くする手段を有することを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【請求項3】

前記手段が、それぞれ異なる熱伝導率を有する前記アノード電極に隣接するセパレータ板および前記カソード電極に隣接するセパレータ板を用いることであることを特徴とする請求項1または2に記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項4】

前記アノード電極に隣接するセパレータ板および前記カソード電極に隣接するセパレータ板のいずれか一方にグラッシカーボンを用い、他方にグラファイトを用いることを特徴とする請求項3に記載の固体高分子型燃料電池。

10

20

## 【請求項 5】

前記アノード電極に隣接するセパレータ板および前記カソード電極に隣接するセパレータ板のいずれか一方により多くの樹脂を含浸させた黒鉛を用いることを特徴とする請求項 3 に記載の固体高分子型燃料電池。

## 【請求項 6】

前記手段が、前記アノード電極に隣接するセパレータ板の外側と、前記カソード電極に隣接するセパレータ板の外側に、冷却水をそれぞれ別系統で流し、一方の冷却水温度を他方の冷却水温度より高くすることであることを特徴とする請求項 1 から 5 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

## 【請求項 7】

前記手段が、前記アノード電極に隣接するセパレータ板の外側および前記カソード電極に隣接するセパレータ板の外側に、冷却水をそれぞれ別系統で流し、一方の冷却水流速を他方の冷却水流速より速くすることであることを特徴とする請求項 1 から 5 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

## 【請求項 8】

前記手段が、セパレータ板に隣接して積層された冷却板が冷却水流路を片側のみに有し、前記冷却板の中央部が熱伝導性の低い材料であり、その中央部の外側部分が熱伝導性および導電性の高い材料であることを特徴とする請求項 1 から 5 のいずれかに記載の固体高分子型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子型燃料電池のセル構造技術に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

固体高分子型燃料電池は、水素と酸素とを利用して直流電力を発生する燃料電池の一種である。この燃料電池は、電解質に高分子膜を用いており、出力が高く電池寿命が長いことなどの特徴を具えている。

## 【0003】

図 1 に固体高分子型燃料電池スタックを構成する基本構成を上面よりみた断面図の一部を示す。燃料電池スタックは、単セル 1 および冷却板 2 を直列に多数積層したものである。この単セル 1 は、電解質膜 3 をアノード電極 4 およびカソード電極 5 で挟んで積層した M E A (膜電極接合体) 6 と、その両側に設けたセパレータ板 7 および 7 からなる。アノード電極 4 に接して設けられたセパレータ板 7 は、燃料ガスのガス流路 8 を有しており、カソード電極 5 に接して設けられたセパレータ板 7 は、酸化剤ガスのガス流路 9 が設けられている。

## 【0004】

冷却板 2 は、電池温度を一定に保つため、1 ~ 数セルごとに挿入される。冷却手段としては、冷却水の循環による水冷方式や、空気による空冷方式などがある。

## 【0005】

ここで、固体高分子型燃料電池の電解質膜として、固体高分子電解質膜が用いられており、このため固体高分子型燃料電池では、電解質膜の中の電気抵抗率を低下させプロトン導電性を十分に発揮させるために電解質膜が十分に湿潤している必要がある。従来法では、電解質膜の乾燥を防ぎ、電解質膜を十分に湿潤させるために膜加湿法や、セル温度に近い飽和水蒸気を有する反応ガスを用いる方法を採用している。そして、その反応ガスを加湿して電池に用いる方法としては、外部加湿方法と内部加湿方法が挙げられる。

## 【0006】

外部加湿方法は、加湿水が流れる外部に備えた加湿タンク内に反応ガスを吹き込み、通過させることによりガスを加湿する。しかし、この方法を用いた場合、加湿したガスを加湿タンクから配管内を通して電池内に流す間に、高露点のガスを凝縮してしまうので、これ

10

20

30

40

50

を防ぐために配管の加熱保温を必要とし、電池システムとしての構造の複雑化、コストアップという問題が生じてくる。

【0007】

一方、内部加湿方法としては、特開平9-35737号公報および特開平9-92309号公報などに記載の方法が挙げられる。特開平9-35737号公報には、複数個の単位燃料電池と、単位燃料電池で発生した熱を除去する熱媒が通流する熱交換体の複数個とが積層された積層体の両側に反応ガスを加湿するための加湿器を有した燃料電池スタックが記載されている。特開平9-92309号公報には、各単セルにそれぞれ隣接して加湿部を設け、多孔質支持体と水透過膜を通してセパレータのガス通流部に通流されるガスを加湿する手段を有する燃料電池スタックが記載されている。しかし、内部加湿部の温度は、通常電池の運転温度と等しいかそれ以下であるため、高露点の加湿ガスを得ることは難しい。

10

【0008】

また、上述した加湿方法ではシステム全体の効率を考えると、加湿のために供給する水分を所定の温度に昇温するエネルギーが必要となり、システムの効率を下げる原因となるため、加湿温度は低いことが要求される。従って、電池システムを複雑化することなく、安定した電池特性にて電池を運転するためには、低加湿ガスの供給によって、安定運転を可能とする固体高分子型電池であることが望ましい。さらに、上述したように供給するガスを加湿して電池に用いるのではなく、ガスを加湿することなく電池に供給し、運転が可能となるならば、加湿タンクなど加湿のための部分が不要となり、電池システムの簡略化、コストダウンが可能となり、さらに好ましい。

20

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、低加湿運転においては、ガス入口においてMEA（膜電極接合体）が乾燥する。MEAの乾燥したセルはセル内部抵抗を増大させ、セル特性を低下させる。本発明は、セル構造の改良により、低加湿条件においても安定に電池の運転ができることを目的としている。

【0010】

【課題を解決するための手段】

上記の問題、つまり低加湿運転においても電池を安定に運転するためには、湿潤側の電極温度を乾燥側の電極温度より高くすることにより、湿潤側の電極から乾燥側の電極へのMEA内での水の拡散を良好にし、MEA内部での水の移動により乾燥を防ぐ。

30

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明の固体高分子型燃料電池は、ガス流路を有するセパレータ板と、アノード電極と、電解質膜と、カソード電極と、ガス流路を有するセパレータ板とを順次積層した単セルを複数積層した固体高分子型燃料電池において、アノード電極側のセパレータのガス流路およびカソード電極側のセパレータのガス流路の一方に低加湿ガスが流通し、上記低加湿ガスが流通する側の電極の温度よりも他方の電極の温度を高くする手段を有する。

また、本発明の固体高分子型燃料電池は、ガス流路を有するセパレータ板と、アノード電極と、電解質膜と、カソード電極と、ガス流路を有するセパレータ板とを順次積層した単セルを複数積層した固体高分子型燃料電池において、上記各ガス流路に無加湿ガスが流通し、カソード電極の温度をアノード電極の温度よりも高くする手段を有する。

40

【0012】

さらに、アノード電極側のセパレータのガス流路およびカソード電極側のセパレータのガス流路の一方に低加湿ガスが流通し、上記低加湿ガスが流通する側の電極の温度よりも他方の電極の温度を高くする手段、および上記各ガス流路に無加湿ガスが流通し、カソード電極の温度をアノード電極の温度よりも高くする手段としては、以下にあげる手段好ましい。

【0013】

50

1) それぞれ異なる熱伝導率を有するアノード電極に隣接するセパレータ板およびカソード電極に隣接するセパレータ板を用いる。

【0014】

ここで、異なる熱伝導率を有するために、アノード電極に隣接するセパレータ板およびカソード電極に隣接するセパレータ板のいずれか一方にグラッシカーボンを用い、他方にグラファイトを用いることが好ましい。または、アノード電極に隣接するセパレータ板およびカソード電極に隣接するセパレータ板のいずれか一方により多くの樹脂を含浸させた黒鉛を用いることも好ましい。

【0015】

2) アノード電極に隣接するセパレータ板の外側と、カソード電極に隣接するセパレータ板の外側に、冷却水をそれぞれ別系統で流し、一方の冷却水温度を他方の冷却水温度より高くする。

10

【0016】

3) アノード電極に隣接するセパレータ板の外側およびカソード電極に隣接するセパレータ板の外側に、冷却水をそれぞれ別系統で流し、一方の冷却水流速を他方の冷却水流速より速くする。

【0017】

4) セパレータ板に隣接して積層された冷却板が冷却水流路を片側のみに有し、冷却板の中央部が熱伝導性の低い材料であり、その中央部の外側部分が熱伝導性および導電性の両方が高い材料であること。

20

【0018】

以下に、本発明についてより詳細に記載する。

【0019】

【発明の実施の形態】

本発明は、低加湿運転においても電池を安定に運転するために、湿潤側の電極温度を乾燥側の電極温度より高くすることを特徴としている。電極間に温度差を付けることによって、湿潤側の電極から乾燥側の電極のMEA内での水の拡散を良好にし、MEA内部での水の移動により乾燥を防ぐことが可能となる。なお、本明細書でいう「低加湿ガス」とはセル温度より低い露点のガスのことをいい、「低加湿運転」とはアノードおよびカソードの少なくとも一方に低加湿ガスを用いる運転のことをいう。

30

【0020】

電極間の温度差によるMEA内部での水の移動について、図5を参照しながら説明する。図5に電解質膜中の含水率分布の模式図を示す。

【0021】

電解質膜は、高温ほど多くの水を含むことができるという特徴を持つ。湿潤側の電極a)の温度を乾燥側の電極b)より高くすると、電極a)近傍の電解質膜は、電極b)近傍の電解質膜より多く含水し得る。a)側が十分に加湿されている場合、a)の温度が高いことにより、a)近傍の電解質膜は、a)とb)の温度が等しい場合より多く含水し、図5のように、より大きな水濃度勾配ができる。この濃度勾配により、温度の高い電極a)側から温度の低いb)側へMEAの電解質膜中の水の拡散が容易となる。これにより、低加湿条件においても安定な電池の運転が可能となる。

40

【0022】

よって、一方の電極に低加湿ガスを用いた場合には、低加湿ガスの流れる側の電極の温度を下げるようにすればよい。また、無加湿ガスを用いて電池を運転した場合には、反応の結果、水が発生するカソード電極の温度を、アノード電極の温度より高くすればよい。

【0023】

このことを考慮し、本発明の固体高分子型燃料電池(スタック)を図1から図4を用いて説明する。

【0024】

図1は固体高分子型燃料電池スタックを構成する基本構成を上面から見た断面図であり、

50

図2は固体高分子型燃料電池スタックの簡易図である。

【0025】

本発明の固体高分子型燃料電池は、図1に示すように単セル1と冷却板2が直列に多数積層したものであり、各単セル1は互いに冷却板2を介して対向する面で積層している。単セル1は電解質膜3をアノード電極4とカソード電極5で挟んで形成されるMEAを、燃料ガスのガス流路8を有するセパレータ板7と酸化剤ガス（燃料ガスおよび酸化ガスを合わせて反応ガスとする）のガス流路9を有するセパレータ板7で挟んで形成される。

【0026】

この単セル1と冷却板2を直列に多数積層し、図2に示すようにその両端に集電板12、電気絶縁板13を設けることによって固体高分子型燃料電池が形成される。

10

【0027】

本発明より得られる両電極4および5の間に温度差をつける手段は、主に2つに分けられる。

【0028】

第一の手段は、各電極4および5に隣接するセパレータ板7および7'に、異なる熱伝導率を示す材料を用いるか異なる熱伝導率を示す構造を用いるかである。乾燥側の電極に隣接するセパレータ板の熱伝導率が高くなるようにし、他方、つまり湿潤側の電極に隣接するセパレータ板の熱伝導率が劣るようにする。このような手段をとることによって、熱導電性に劣る側、つまり湿潤電極側では、電池反応により発生する熱を十分に除去できないため、乾燥電極側との間には温度差を生じる。具体的には、異なる熱伝導率を与えるために、熱伝導性に優れたセパレータ板にグラファイトを用い、これに対して熱伝導性に劣るセパレータ板にグラッシーカーボンなどを用いるなど、異なる材料を用いる。また、樹脂含浸黒鉛を用いた両セパレータに対し、熱伝導性に劣るセパレータには樹脂含浸量をより多くすることにより、熱伝導率の異なる構造をとる。

20

【0029】

両電極間に温度差をつける第二の手段としては、セパレータ板に差異をつけるのではなく、以下に記載するように冷却板および冷却板を流通する冷却水に差異をつける。

【0030】

図3に示したような構造の冷却板を流れる冷却水を利用する。図3(a)は、図1のA-A部分を表しており、図3(b)は、冷却板2をセパレータ板7側からみた斜視図を表している。冷却板2はアノード電極に隣接するセパレータ板7に接触する面に冷却水流路10を、カソード電極に隣接するセパレータ板7'に接触する面に冷却水流路11を有している。この冷却水流路10および11を流れる冷却水において、一方の冷却水を他方の冷却水より高くすることによって各電極の温度差が生じる。

30

【0031】

または、冷却水流路10および11を流れる冷却水において、一方の冷却水流速を他方の冷却水流速より速くすることにより流速が速い側の温度が、流速の遅い側の温度より低くなり、各電極間に温度差を生じる。

【0032】

さらに、図4に示すような構造の冷却板を利用することもできる。図4(a)は、図1のA-A部分を表しており、図4(b)は、冷却板2をセパレータ板7側から見た断面図を表している。冷却板2は、アノード電極に隣接するセパレータ板7に接触する面に冷却水流路10を有している。そして、冷却板2の中央部2aにプラスチックなどの熱伝導性の低い材料を用い、その中央部の外側部分2bにカーボンなどの熱伝導性および導電性の高い材料を用いている。このようにすることによって、冷却水流路10と直接に接しているアノード電極側の温度が下がることになり、各電極間に温度差を生じる。また、ここでは、アノード電極側のみ冷却水流路10を設けた場合を示したが、カソード電極側が乾燥しているのであれば、アノード電極側ではなく、カソード電極側に冷却水流路を設けることもできる。

40

【0033】

50

本発明の固体高分子型燃料電池は、もちろん両セパレータ板に差異をつける第一の手段と、冷却板およびそこを流通する冷却水に特徴のある第二の手段を同時に具えた手段を有してもよい。

【0034】

なお、各電極間に温度差を付ける手段を上述したが、これに限定されるものではなく、各電極間に温度差がつくのであれば本発明の固体高分子型燃料電池はその他の手段を有してもよい。

【0035】

【実施例】

[実施例1]

図1に示すように、アノード電極とカソード電極で電解質膜を挟んでMEAを形成し、このMEAを反応ガス流路を有するセパレータ板で挟み、これを単セルとして複数積層して、固体高分子型燃料電池を製造した。このときグラッシーカーボンを電極の温度を高くする電極に接するセパレータ板の材料とし、もう一方の電極に隣接するセパレータ板としてグラファイトを用いた。この電池は、両電極間に温度差を生じた。

10

【0036】

次いで、この固体高分子型燃料電池を用いて、カソード低加湿運転で試験を行った。つまりグラファイトを用いたセパレータ板をカソード電極に隣接させ、グラッシーカーボンをういた電極をアノード電極に隣接させた。この結果を図6に示す。ア)に示す従来の温度差をつけない電池を運転させたときに比較して、イ)に示す本発明の温度差をつけた電池

20

【0037】

次に、反応ガスを加湿せずに用いた無加湿運転において試験を行った。この際、グラッシーカーボンをういたセパレータ板を、生成水ができるカソード電極に隣接したセパレータ板とし、カソード電極の温度を高くすることにより、セル電圧の低下なく運転することができた。

【0038】

[実施例2]

図1に示すように、電極で電解質膜を挟んでMEAを形成し、このMEAをグラファイトからなる反応ガス流路を有するセパレータ板で挟み、これを単セルとして複数積層し、この両側を図3に示すように冷却水流路が両面に設けてある冷却板で挟んで固体高分子型燃料電池を製造した。製造した固体高分子型燃料電池の冷却水流路にそれぞれ温度の異なる冷却水を流すことにより両電極間に温度差を得た。

30

【0039】

次いで、この固体高分子型燃料電池を用いて、カソード低加湿運転で試験を行った。つまりカソード電極側の冷却水流路に温度の低い冷却水を流し、アノード電極側の冷却水流路に温度の高い冷却水を流した。そして、実施例1と同様の結果を得た。

【0040】

次に、反応ガスを加湿せずに用いた無加湿運転において試験を行った。この際、生成水ができるカソード電極側の冷却水流路に温度の高い冷却水を流した。このようにすることにより、セル電圧の低下なく運転することができた。

40

【0041】

[実施例3]

図1に示すように、電極で電解質膜を挟んでMEAを形成し、このMEAをグラファイトからなる反応ガス流路を有するセパレータ板で挟み、これを単セルとして積層し、この両側を図3に示すように冷却水流路が両面に設けてある冷却板で挟んで固体高分子型燃料電池を製造した。製造した固体高分子型燃料電池の冷却水流路にそれぞれの流速の異なる冷却水を流すことにより両電極間に温度差を得た。

【0042】

次いで、この固体高分子型燃料電池を用いて、カソード低加湿運転で試験を行った。つま

50

リカソード電極側の冷却水流路にアノード電極側の冷却水流路に流す冷却水の流速より流速の速い冷却水を流した。そして、実施例 1 と同様の結果を得た。

【 0 0 4 3 】

次に、反応ガスを加湿せずに用いた無加湿運転において試験を行った。この際、生成水のできるカソード電極側の冷却水流路にアノード電極側冷却水流路に流した冷却水の流速より流速の遅い冷却水を流した。このようにすることにより、セル電圧の低下なく運転することができた。

【 0 0 4 4 】

[ 実施例 4 ]

図 1 に示すように、電極で電解質膜を挟み M E A を形成し、この M E A をグラファイトからなる反応ガス流路を有するセパレータ板で挟み、これを単セルとして積層し、この両側を図 4 に示すように冷却水流路が片面にのみ設けてある冷却板で挟んで固体高分子型燃料電池を製造した。この冷却板は、中央部がプラスチックであり、周囲部がカーボン材である。製造した固体高分子型燃料電池の冷却水流路に冷却水を流すことにより冷却水流路が設けてある側の電極温度を低くすることができ、両電極間に温度差を得た。

【 0 0 4 5 】

次いで、この固体高分子型燃料電池を用いて、カソード低加湿運転で試験を行った。つまりカソード電極側の冷却水流路を設けた面がくるように冷却板を積層した。そして、実施例 1 と同様の結果を得た。

【 0 0 4 6 】

次に、反応ガスを加湿せずに用いた無加湿運転において試験を行った。この際、生成水のできるカソード電極側に、冷却水流路を設けていない面がくるように冷却板を積層し、冷却水を流した。このようにすることにより、セル電圧の低下なく運転することができた。

【 0 0 4 7 】

【 発明の効果 】

上述したように、アノード電極の温度とカソード電極の温度に差を付けることにより、M E A 内での水の移動が促進され、低加湿運転においても安定に電池を運転することができた。

【 図面の簡単な説明 】

【 図 1 】 燃料電池スタックの一部の上面からの断面図である。

【 図 2 】 燃料電池スタックの上面からの断面図である。

【 図 3 】 実施例 2 および実施例 3 における冷却板を示すものであり、( a ) は上面からの断面図であり、( b ) は、セパレータ 7 側からみた冷却板の斜視図である。

【 図 4 】 実施例 4 における冷却板を示すものであり、( a ) は上面からの断面図であり、( b ) は、セパレータ 7 側からみた冷却板の断面図である。

【 図 5 】 電解質膜中の温度による水の濃度勾配を表す図である。

【 図 6 】 無加湿運転における本発明のセル特性と従来セル特性との比較を表す図である。

【 符号の説明 】

- 1 単セル
- 2 冷却板
- 2 a 中央部
- 2 b 外側部
- 3 電解質膜
- 4 アノード電極
- 5 カソード電極
- 6 M E A ( 膜電極接合体 )
- 7、7 セパレータ板
- 8 ガス流路
- 9 ガス流路

10

20

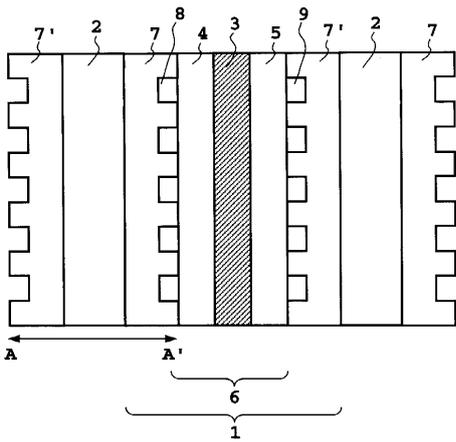
30

40

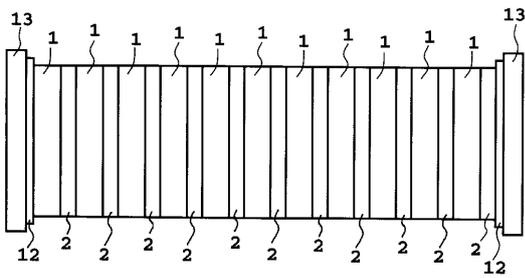
50

- 1 0、1 1 冷却水流路
- 1 2 集電板
- 1 3 電気絶縁板

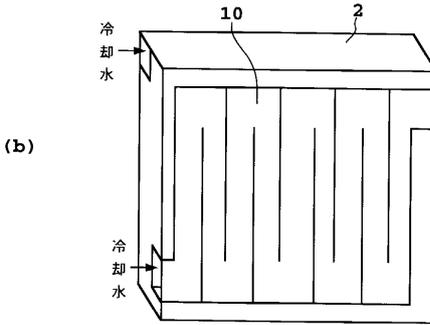
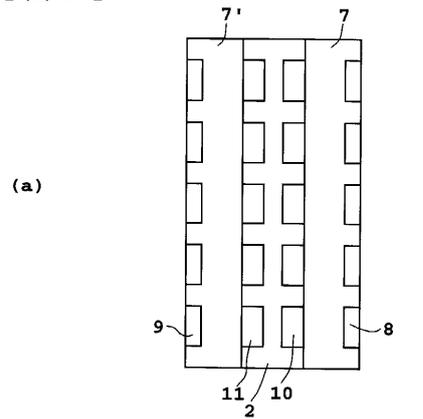
【図 1】



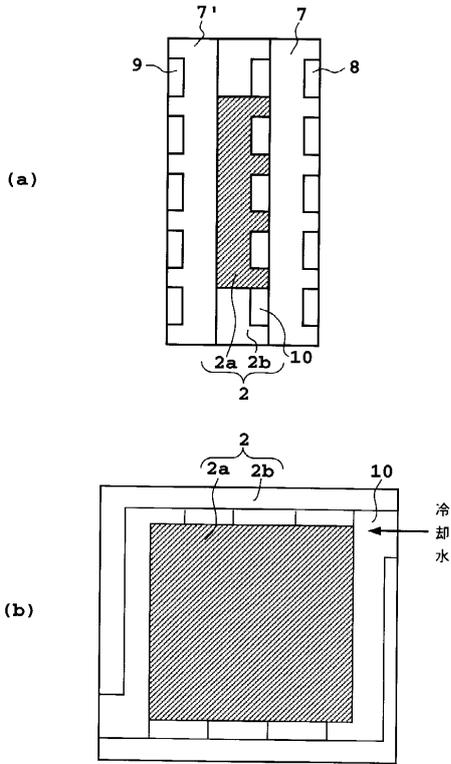
【図 2】



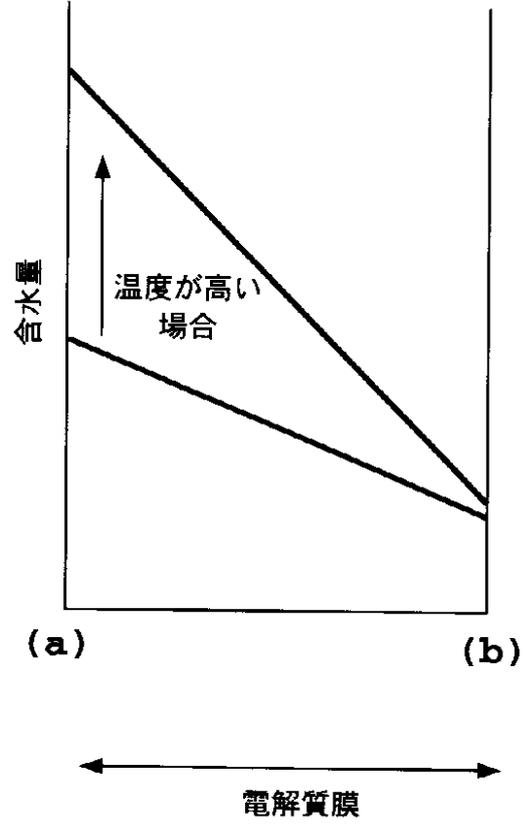
【図 3】



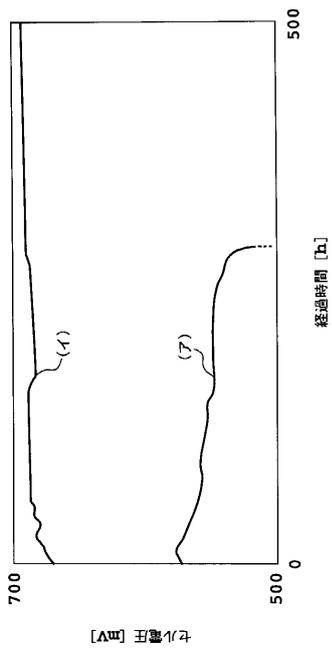
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



---

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

H 0 1 M 8/10

(56)参考文献 特開平09 - 283162 (JP, A)

特表平06 - 504403 (JP, A)

特表2003 - 535434 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

H01M 8/02-8/24