



# [12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 200310115940.7

[43] 公开日 2004 年 11 月 17 日

[11] 公开号 CN 1547280A

[22] 申请日 2003.12.16

[21] 申请号 200310115940.7

[71] 申请人 中国科学院长春应用化学研究所  
地址 130022 吉林省长春市人民大街 5625 号

[72] 发明人 韩 飞 刘飞鹏 邢 巍 陆天虹

权利要求书 1 页 说明书 6 页

[54] 发明名称 直接甲醇燃料电池电极的制备方法

[57] 摘要

本发明属于直接甲醇燃料电池电极的制备方法。采用催化剂为 Pt/C、PtRu/C，加入分散剂异丙醇和重量比为 10% 的聚四氟乙烯乳液，以重量百分比计，催化剂：异丙醇：聚四氟乙烯乳液 = 10mg : 1 - 8g : 10 - 65mg，用超声波发生器分散及机械搅拌，将分散好的混合物转移到丝网上，通过刮涂，均匀地转移到碳纸或碳布上，真空干燥，烧结，然后表面喷上用乙醇稀释后的 Nafion 原液，再经真空干燥，最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 10 - 40wt%，聚合物电解质 Nafion 占 5 - 25wt%。本发明的方法催化剂分布均匀，不降低或提高电极的性能，可以快速、大量制备各种面积的电极，减少电极的铂载量，使电极制造成本显著降低。

I S S N 1 0 0 8 - 4 2 7 4

1. 一种直接甲醇燃料电池电极的制备方法，其特征在于采用直接甲醇燃料电池使用的催化剂为 Pt/C、PtRu/C，加入分散剂异丙醇和重量比为 10% 的聚四氟乙烯乳液，以重量百分比计，催化剂：异丙醇：聚四氟乙烯乳液=10mg：1-8g：10-65mg，用超声波发生器分散及机械搅拌 1-30 分钟，将分散好的混合物转移到 80-200 目的丝网上，通过刮涂，均匀地转移到碳纸或碳布上，在 30-130℃ 下真空干燥 2-24 小时，再于 150-350℃ 空气或氩气保护下烧结 0.5-2 小时，然后表面喷上用乙醇稀释后的 Nafion 原液，再于 30-130℃ 下真空干燥 2-24 小时，最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 10-40wt%，聚合物电解质 Nafion 占 5-25wt%。

## 直接甲醇燃料电池电极的制备方法

### 技术领域

本发明属于直接甲醇燃料电池电极的制备方法。

### 背景技术

直接甲醇燃料电池 (DMFC) 以其燃料来源丰富、储存方便、结构简单、操作安全、持续供电时间长等优点获得了越来越广泛的关注, 预计在小型家用电器、笔记本电脑、手机以及军事移动性仪器具有极其广泛的应用前景。在直接甲醇燃料电池中, 电极的制备工艺是影响电池性能的关键之一。在燃料电池 30 多年的发展过程中, 人们先后研究了涂膏法 [Makoto Uchida, *J. Electrochem Soc*, 142, 2(1995)]、浇铸法 [A. C. Ferreira, S. Srinivasan, *Extd. Abs. 94-1, The Electrochemical Society*, NJ1994]、滚压法 [E. J. Taylor, *J. Electrochem Soc* 139, L45 (1993)]、电化学催化技术 [M. S. Wilson, S. Gottesfeld, *J Electrochem Soc*, 22, 1(1992)] 等多种电极制备工艺, 使得直接甲醇燃料电池性能得到了不断提高。

然而, 上述这些方法存在的问题是: 第一, 由于制备电极所采用的催化剂绝大多数为金属铂, 而铂价格昂贵, 且资源有限, 这样在实际应用中 DMFC 的成本很高。第二, 上述方法制备的电极厚度较大, 而模型计算结果表明, DMFC 电极催化层的有效厚度约为 0.4-4 $\mu\text{m}$ , 如果厚度过大, 则催化层内传质距离增加, 导致大电流放电时电极产生严重

的浓差极化，且分布不均匀，制备过程中增加催化剂用量，造成浪费，降低铂的利用率，提高了制备成本。第三，有些方法如滚压法、溅射法、电化学催化技术等方法的制备工艺相对复杂，需要特殊的设备，增加了制备时间和费用。

#### 发明内容

本发明的目的是提供了一种直接甲醇燃料电池电极的制备方法。

采用将催化剂、聚四氟乙烯乳液（PTFE）和异丙醇进行混合，用80—200目的丝网在平整的玻璃板上通过刮涂的方法制备直接甲醇燃料电池电极。制备的电极在使用较少催化剂的情况下，降低电极厚度，使得催化剂分布均匀，不降低或提高电极的性能，可以快速、大量制备各种面积的电极。从而减少电极的铂载量，提高铂的利用效率，使电极制造成本显著降低。

本发明采用直接甲醇燃料电池使用的催化剂为Pt/C、PtRu/C，加入分散剂异丙醇和重量比为10%的聚四氟乙烯乳液，以重量百分比计，催化剂：异丙醇：聚四氟乙烯乳液=10mg：1-8g：10-65mg，用超声波发生器分散及机械搅拌1-30分钟，将分散好的混合物转移到80—200目的丝网上，通过刮涂，均匀地转移到碳纸或碳布上，在30-130℃下真空干燥2-24小时，再于150-350℃空气或氩气保护下烧结0.5-2小时，然后表面喷上用乙醇稀释后的Nafion原液，再于30-130℃下真空干燥2-24小时，最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占10-40wt%，聚合物电解质Nafion占5-25wt%。

由于本发明首先将催化剂和聚四氟乙烯乳液（PTFE）用异丙醇高度分散，充分超声振荡搅拌，然后透过80—200目丝网刮涂到支撑层上碳纸或碳布，因此催化剂颗粒均匀地分布到了催化层中，并且转移

到气体扩散层上的催化层的厚度得以大大降低且十分均匀。并且由于在刮涂的过程中丝网的孔径均匀，使得催化剂层颗粒之间分布均匀，PTFE 更易形成网状结构，在随后的热压过程中与质子交换膜结合更为牢固。同时，采用丝网刮涂电极技术制备电极，显著地降低了贵金属催化剂的载量，而且电极性能也得以提高。这种方法适用于制备各种面积的电极，对大面积的电极更简洁方便，无需特殊设备，可操作性高，制备过程迅速，操作简便易行；制得的电极重现性好。

#### 具体实施方式

实施例 1：将 40mgPt/C、40mgPtRu/C 催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和异丙醇混合，用超声波发生器分散、同时机械搅拌 1 分钟，将分散好的混合物转移到 80 目丝网上，通过刮涂均匀地转移到面积为 4 cm<sup>2</sup> 的碳纸上，30°C 下真空干燥 12 小时，200°C 热处理 1 小时，表面喷涂用乙醇稀释后的 Nafion 原液，再于 80°C 下真空干燥 2 小时，分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 30wt%，聚合物电解质 Nafion 占 15wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工作物质，阴极氧气作为氧化剂，电极放电电流可达到 0.15A/cm<sup>2</sup>，电极功率密度可达 40-50mw/cm<sup>2</sup>。比采用涂膏法制备的电极性能高出 20%。

实施例 2：将 100mgPt/C、100mgPtRu/C 催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和异丙醇混合，用超声波发生器分散、同时机械搅拌 2 分钟，将分散好的混合物转移到 80 目丝网上，通过刮涂均匀地转移到面积为 16 cm<sup>2</sup> 的碳纸上，80°C 下真空干燥 2 小时，250°C 下热处理 1 小时，表面喷涂用异丙醇稀释后的 Nafion 原液，再于 80°C 下真空干燥 2 小时，分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占

25wt%，聚合物电解质 Nafion 占 20wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工作物质，阴极氧气作为氧化剂，电极放电电流可达到  $0.16\text{A}/\text{cm}^2$ ，电极功率密度可达  $40\text{--}60\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 30%。

实施例 3：将 200mgPt/C、200mgPtRu/C 催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和异丙醇混合，用超声波发生器分散、同时机械搅拌 3 分钟，将分散好的混合物转移到 160 目丝网上，通过刮涂均匀地转移到面积为  $50\text{ cm}^2$  的碳纸上， $80^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时， $340^\circ\text{C}$  下热处理 1 小时，表面喷涂用异丙醇稀释后的 Nafion 原液，再于  $80^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时，分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 20wt%，聚合物电解质 Nafion 占 20wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工作物质，阴极氧气作为氧化剂，电极放电电流可达到  $0.18\text{A}/\text{cm}^2$ ，电极功率密度可达  $40\text{--}75\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 25%。

实施例 4：将 300mgPt/C、300mgPtRu/C 催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和丙醇混合，用超声波发生器分散、同时机械搅拌 5 分钟，将分散好的混合物转移到 200 目丝网上，通过刮涂均匀地转移到面积为  $50\text{ cm}^2$  的碳布上， $80^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时， $340^\circ\text{C}$  下热处理 1 小时，表面喷涂用丙醇稀释后的 Nafion 原液，再于  $80^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时，分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 20wt%，聚合物电解质 Nafion 占 20wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工作物质，阴极氧气作为氧化剂，电极放电电流可达到  $0.16\text{A}/\text{cm}^2$ ，电极功率密度可达  $40\text{--}60\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 20%。

实施例 5: 除了将碳纸换成碳布外, 其余与实施例 4 相同, 电极放电电流可达到  $0.18\text{A}/\text{cm}^2$ , 电极功率密度可达  $40\text{--}70\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 30%。

实施例 6: 将  $800\text{mgPt}/\text{C}$ 、 $800\text{mgPtRu}/\text{C}$  催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和异丙醇混合, 用超声波发生器分散、同时机械搅拌 8 分钟, 将分散好的混合物转移到 160 目丝网上, 通过刮涂均匀地转移到面积为  $144\text{ cm}^2$  的碳纸上,  $100^\circ\text{C}$  下真空干燥 10 小时,  $340^\circ\text{C}$  下热处理 2 小时, 表面喷涂用异丙醇稀释后的 Nafion 原液, 再于  $100^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时, 分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 30wt%, 聚合物电解质 Nafion 占 20wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工作物质, 阴极氧气作为氧化剂, 电极放电电流可达到  $0.20\text{A}/\text{cm}^2$ , 电极功率密度可达  $60\text{--}80\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 35%。

实施例 7: 除了将碳纸换成碳布外, 其余与实施例 6 相同, 电极放电电流可达到  $0.18\text{A}/\text{cm}^2$ , 电极功率密度可达  $40\text{--}75\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 30%。

实施例 8: 将  $1500\text{mgPt}/\text{C}$ 、 $1500\text{mgPtRu}/\text{C}$  催化剂分别与浓度为 10wt% 的聚四氟乙烯乳液和异丙醇混合, 用超声波发生器分散、同时机械搅拌 10 分钟, 将分散好的混合物转移到 80 目丝网上, 通过刮涂均匀地转移到面积为  $225\text{ cm}^2$  的碳纸上,  $100^\circ\text{C}$  下真空干燥 10 小时,  $340^\circ\text{C}$  下热处理 2 小时, 表面喷涂用异丙醇稀释后的 Nafion 原液, 再于  $100^\circ\text{C}$  下真空干燥 2 小时, 分别制得阳极和阴极。最后得到的催化剂层中聚四氟乙烯占 30wt%, 聚合物电解质 Nafion 占 20wt%。将此电极制成电极/膜集合体后组装电池进行测试。阳极采用甲醇溶液作工

---

作物质，阴极氧气作为氧化剂，电极放电电流可达到  $0.20\text{A}/\text{cm}^2$ ，电极功率密度可达  $60\text{--}80\text{mw}/\text{cm}^2$ 。比采用涂膏法制备的电极性能高出 40%。