

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6963008号
(P6963008)

(45) 発行日 令和3年11月5日 (2021. 11. 5)

(24) 登録日 令和3年10月18日 (2021. 10. 18)

(51) Int. Cl.	F I
HO 1 M 4/86 (2006. 01)	HO 1 M 4/86 M
HO 1 M 8/1004 (2016. 01)	HO 1 M 4/86 B
BO 1 J 23/745 (2006. 01)	HO 1 M 8/1004
HO 1 M 4/90 (2006. 01)	BO 1 J 23/745 M
HO 1 M 8/10 (2016. 01)	HO 1 M 4/90 X
請求項の数 20 (全 28 頁) 最終頁に続く	

(21) 出願番号	特願2019-511651 (P2019-511651)	(73) 特許権者	000004374
(86) (22) 出願日	平成29年9月29日 (2017. 9. 29)		日清紡ホールディングス株式会社
(65) 公表番号	特表2020-503638 (P2020-503638A)		東京都中央区日本橋人形町二丁目3番1号
(43) 公表日	令和2年1月30日 (2020. 1. 30)	(74) 代理人	110000154
(86) 国際出願番号	PCT/US2017/054501		特許業務法人はるか国際特許事務所
(87) 国際公開番号	W02018/064576	(72) 発明者	バンハム ダスティン ウィリアム エイチ
(87) 国際公開日	平成30年4月5日 (2018. 4. 5)		カナダ ブリティッシュコロンビア州、ウエストバンクーバー、ワイルドウッドレーン 990
審査請求日	令和2年7月16日 (2020. 7. 16)	(72) 発明者	イエ シュ
(31) 優先権主張番号	62/402, 338		カナダ ブリティッシュコロンビア州、バーナービー、オークランド ストリート 5683
(32) 優先日	平成28年9月30日 (2016. 9. 30)		最終頁に続く
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)		

(54) 【発明の名称】 多層触媒設計

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

非貴金属触媒とアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、
非貴金属触媒とアイオノマーとを含む第2の副層と、
を有し、

前記第1の副層の前記アイオノマーは、第1のアイオノマー又は前記第1のアイオノマーを含む第1のアイオノマー混合物から構成され、

前記第2の副層の前記アイオノマーは、第2のアイオノマー又は前記第2のアイオノマーを含む第2のアイオノマー混合物から構成され、

前記第1の副層の前記アイオノマーが前記第1のアイオノマーから構成される場合の前記第1のアイオノマーの等価質量、又は前記第1の副層の前記アイオノマーが前記第1のアイオノマー混合物から構成される場合の前記第1のアイオノマー混合物に含まれる各アイオノマーの等価質量と重量パーセントとの積の和で求められる前記第1のアイオノマー混合物の等価質量は、700 g/mol未満であり、

前記第2の副層の前記アイオノマーが前記第2のアイオノマーから構成される場合の前記第2のアイオノマーの等価質量、又は前記第2の副層の前記アイオノマーが前記第2のアイオノマー混合物から構成される場合の前記第2のアイオノマー混合物に含まれる各アイオノマーの等価質量と重量パーセントとの積の和で求められる前記第2のアイオノマー混合物の等価質量は、700 g/mol～950 g/molである、

カソード触媒層。

10

20

【請求項 2】

前記第 2 のアイオノマーの等価質量又は前記第 2 のアイオノマー混合物の等価質量は、前記第 1 のアイオノマーの等価質量又は前記第 1 のアイオノマー混合物の等価質量より少なくとも 10 g/mol 高い、請求項 1 に記載のカソード触媒層。

【請求項 3】

前記第 1 の副層が、前記第 2 のアイオノマーを更に含む、請求項 1 又は 2 に記載のカソード触媒層。

【請求項 4】

前記第 1 の副層が、前記第 1 のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第 3 のアイオノマーを更に含む、請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載のカソード触媒層。

10

【請求項 5】

前記第 2 の副層が、前記第 1 のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第 3 のアイオノマーを更に含む、請求項 1 乃至 4 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 6】

前記第 2 の副層が、前記第 2 のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第 4 のアイオノマーを更に含む、請求項 1 乃至 5 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 7】

前記第 2 の副層がガス拡散層 (GDL) と接触する、請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 8】

20

前記第 2 のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第 4 のアイオノマーを含む第 3 の副層を更に有する、請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 9】

前記第 1 の副層が、前記第 1 のアイオノマーを少なくとも 5% (w/w) 含む、請求項 1 乃至 8 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 10】

前記第 1 の副層が、前記第 1 のアイオノマーを少なくとも 25% (w/w) 含む、請求項 1 乃至 9 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 11】

前記第 2 の副層が、前記第 2 のアイオノマーを少なくとも 5% (w/w) 含む、請求項 1 乃至 10 のいずれかに記載のカソード触媒層。

30

【請求項 12】

前記第 1 の副層が、 $1 \text{ g/sm} \sim 100 \text{ g/sm}$ の範囲の触媒充填量を有する、請求項 1 乃至 11 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 13】

前記第 2 の副層が、 $1 \text{ g/sm} \sim 100 \text{ g/sm}$ の範囲の触媒充填量を有する、請求項 1 乃至 12 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 14】

前記第 1 の副層が、 $5 \text{ g/sm} \sim 15 \text{ g/sm}$ の範囲の触媒充填量を有し、前記第 2 の副層が、 $10 \text{ g/sm} \sim 20 \text{ g/sm}$ の範囲の触媒充填量を有する、請求項 1 乃至 13 のいずれかに記載のカソード触媒層。

40

【請求項 15】

前記第 1 の副層が少なくとも $5 \mu\text{m}$ の厚さを有する、請求項 1 乃至 14 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 16】

前記第 2 の副層が少なくとも $35 \mu\text{m}$ の厚さを有する、請求項 1 乃至 15 のいずれかに記載のカソード触媒層。

【請求項 17】

前記第 1 の副層が少なくとも $20 \mu\text{m}$ の厚さを有し、前記第 2 の副層が少なくとも $35 \mu\text{m}$ の厚さを有する、請求項 1 乃至 16 のいずれかに記載のカソード触媒層。

50

【請求項 18】

前記第 1 の副層と前記第 2 の副層とを含む 2 以上の副層を含み、

前記 2 以上の副層において、前記第 1 のアイオノマー又は前記第 1 のアイオノマー混合物は、最も低い等価質量を有する、請求項 1 乃至 17 のいずれかに記載のカソード触媒層

【請求項 19】

プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを有する膜電極接合体であって、

前記カソードは、ガス拡散層（GDL）と、請求項 1 乃至 18 のいずれかに記載のカソード触媒層（CCL）と、
を含む、膜電極接合体。

10

【請求項 20】

請求項 19 に記載の膜電極接合体を含む、燃料電池システム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、燃料電池及びその他の電気化学装置における非貴金属触媒の性能及び／又は安定性の向上に関し、それらの装置やそれらの装置の製造及び使用の方法の実施形態を含む。

【背景技術】

【0002】

20

燃料電池は、燃料（例えば、水素及び酸素）の外部供給から電気を作り出す、電気化学エネルギー変換装置である。固体高分子電気化学燃料電池は、通常、膜電極接合体（MEA）を採用する燃料電池の一種である。MEA は、典型的に、2 つの電極（すなわち、アノード及びカソード）の間に配置される固体高分子電解質膜を有する。

【0003】

このような燃料電池において、水素は燃料としてアノードに供給され、酸素は酸化剤としてカソードに供給される。アノード及びカソードは、典型的に、多孔質導電性材料、例えば、グラファイト織物、黒鉛化シート、又はカーボン紙から形成される。これにより、膜のアノード及びカソードに対向する表面上に、燃料（例えば、水素）及び酸化剤（例えば、酸素）を、各々、分散させることができる。アノード及びカソードは、各々、触媒層（すなわち、それぞれアノード触媒層及びカソード触媒層）を有する。触媒層は、典型的に、金属触媒、合金触媒、又は金属／合金担持触媒を含む。触媒層は、イオン導電性材料（例えば、パーフルオロスルホン酸ポリマー）を含むこともある。アノードからカソードへと膜を介して移動したプロトンは、次いで、酸素と結合して水を生成し、燃料電池から除去される。また、アノード及びカソードは、各々、典型的に、多孔質ガス拡散層（GDL）を含む。

30

【0004】

水素ガス燃料電池におけるアノード及びカソードの半電池反応は、以下の式で表される：



40



【0005】

アノードの主要な機能は、水素燃料を酸化し、プロトン及び電子を生成することである（上記式 1）。カソードの主要な機能は、酸素を還元し、水を生成することである（上記式 2）。

【0006】

カソードにおける反応は、本質的にずっと遅い。そのため、カソード触媒充填量は、典型的に、アノード触媒充填量よりも高い。

【0007】

燃料電池において、MEA は 2 枚の導電性流れ場プレートの上に配置される。この導電

50

性流れ場プレートは、集電体として作用し、電極を機械的に支持することができ、燃料電池動作における反応物及び生成物の通路を提供する。流れ場プレートは、典型的に、燃料反応物及び酸化剤反応物の流れを、各々、アノード及びカソードへ誘導する流路を有し、過剰な反応物及び反応生成物を除去する流路を有する。典型的に、多数の燃料電池を電氣的に直列接続して、所望の出力を有する燃料電池スタックを形成する。

【0008】

商業用途の燃料電池においては、触媒及び触媒層の性能を中心とした課題がある。燃料電池では、典型的に、カソードでの酸素還元反応（ORR）を促進するために、希少で高価な貴金属（例えば、白金）が必要となる。しばしば、所望の作動電圧を得るために、大量の貴金属が必要となり、これにより、材料コストが跳ね上がる。燃料電池によっては、非貴金属触媒（NPMC）によって材料コストを低減することができるが、当該触媒の性能、安定性、及び耐久性に関して更なる課題が存在する。

10

【0009】

非貴金属触媒燃料電池においては、極めて高い充填量が必要となる。そのため、触媒層は、貴金属触媒燃料電池における通常の厚さと比較して、ずっと厚いものとなる。貴金属触媒を使用する燃料電池においては、触媒層の厚さは、約 $1\ \mu\text{m}$ ～約 $15\ \mu\text{m}$ の範囲である。これに対し、NPMC燃料電池において、触媒層の厚さは、通常、 $100\ \mu\text{m}$ を超える。

【0010】

このような厚さの大きい触媒層は、特に、相対湿度が高い状況において、深刻な水管理問題を引き起こし得る。カソードで生成した水は、性能を低下させ、反応点への酸素輸送を低下させ、これにより、有効触媒面積が低減される。

20

【0011】

従来、触媒層は1種類のアイオノマーを用いて形成されてきた。低等価質量のアイオノマーで形成された触媒層は、相対湿度が低い場合には、優れた性能特性を有するが、相対湿度が高い場合には、著しいフラッディングに見舞われる傾向がある。これに対して、高等価質量のアイオノマーで形成された触媒層は、相対湿度が低い場合には、性能が低い、相対湿度が高い場合には、優れた性能を有する。また、高等価質量のアイオノマーを含む触媒層は、触媒付着性及び触媒凝集性に劣り、プロトン伝導性に限界がある。

【0012】

上記の分野において、様々な相対湿度において非貴金属燃料電池触媒の性能及び水管理を向上させるために多大な努力が行われてきた。これらの領域において進歩が見られるが、燃料電池設計、並びに、それらの製造及び使用の方法を、改良する必要がある。本開示は、これらの問題に取り組む、関連する利点を提供するものである。

30

【発明の概要】

【0013】

本開示の実施の形態は、非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、当該非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層と、を有するカソード触媒層を含む。本開示の更なる実施の形態は、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の層と、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の層とを有するカソード触媒層を含む。

40

【0014】

いくつかの実施の形態においては、第1の層が第2のアイオノマーを更に含む。他の実施の形態においては、第1の層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む。更なる実施の形態においては、第2の層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む。他の実施の形態においては、第2の層が、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを更に含む。実施の形態においては、カソード触媒層は、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを含む第3の層

50

を更に有する。

【0015】

本開示の更なる実施の形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを有する膜電極接合体であって、当該カソードは、ガス拡散層（GDL）と、カソード触媒層（CCL）とを含み、当該カソード触媒層（CCL）は、非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを含む膜電極接合体を含む。また、本開示の実施の形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを有する膜電極接合体であって、当該カソードは、ガス拡散層と、カソード触媒層とを含み、当該カソード触媒層は、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触する第1の層と、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の層とを含む膜電極接合体を含む。

10

【0016】

いくつかの実施の形態においては、当該第1の層が当該第2のアイオノマーを更に含む。他の実施の形態においては、当該第1の層が、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む。更なる実施の形態においては、当該第2の層が、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む。他の実施の形態においては、当該第2の層が、当該第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを更に含む。実施の形態においては、当該膜電極接合体のカソード触媒層は、当該第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを含む第3の層を更に有する。

20

【0017】

本開示の更なる実施の形態は、本明細書に記載の膜電極接合体を備える燃料電池システムを含む。

【0018】

図面において、同じ参照符号は、同じ要素又は動作を示す。図面における各要素のサイズ及び相対的な位置は、必ずしも縮尺通りではない。例えば、種々の要素の形状及び角度は縮尺通りではなく、図面が見やすいように、これらの要素のうちのいくつかを任意に拡大し、配置している。さらに、図面に示された要素の特定の形状は、その特定要素の実際形状に関して情報を伝えることを意図するものではなく、図面での認識しやすさのみを考慮して選択されたものである。

30

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】膜電極接合体の一例を模式的に示す断面図である。

【図2】2層触媒層を有するカソード、及びPEMの実施形態を示す模式図である。

【図3】2つの試作品（40 g s mのカソード触媒層（CCL）充填量を有する試作品と、25 g s mのCCL充填量を有する試作品）の性能を比較した試験の結果を示す図である。

【図4】2つの試作品（低等価質量のアイオノマーを含むCCLを有する試作品と、高等価質量のアイオノマーを含むCCLを有する試作品）の性能を、2つの相対湿度において比較した試験の結果を示す図である。

40

【図5】2つの試作品（低等価質量のアイオノマーを含むCCLを有する試作品と、2種類のアイオノマーの混合物を含むCCLを有する試作品）の性能を、2つの相対湿度において比較した試験の結果を示す図である。

【図6】2つの試作品（低等価質量のアイオノマーを含むCCLを有する試作品と、2層設計のCCLを有する試作品）の性能を、2つの相対湿度において比較した試験の結果を示す図である。

【図7】2つの試作品（2層設計のCCLを有する試作品と、2種類のアイオノマーの混合物を含むCCLを有する試作品）の性能を、2つの相対湿度において比較した試験の結果を示す図である。

50

【発明を実施するための形態】

【0020】

本明細書に記載の詳細は例として記載してあり、本開示の実施形態の例示的な検討を行うことだけを目的とする。本明細書中に提示される実施例又は例示的な用語（例えば、「等の」）の使用は全て、本開示の理解をより容易にすることのみを意図しており、本開示の特許請求の範囲を限定するものではない。本明細書中のいかなる用語も、本開示で非請求の要素が本開示の実施に不可欠であることを示唆すると解釈されるべきではない。さらに、本明細書に記載の方法は全て、本明細書中で特段の指示がない限り、又は文脈から明らかに矛盾しない限りは、任意の適切な順序で実施することができる。

【0021】

択一表現（例えば、「又は」）の使用は、選択肢のうち、一方、両方、又はその組合せのうち任意の組合せを意味するものと理解されるべきである。上述の種々の実施形態を組合せて更なる実施形態を提供することができる。本明細書に記載の選択的要素又は本開示の実施形態の分類は、限定的に解釈されるべきではない。或るグループの各メンバーは、個々に言及され、特許請求され得るものであり、又は、そのグループの他のメンバー若しくは本明細書に記載の他の要素との任意の組合せで、言及され、特許請求され得るものである。

【0022】

本明細書中に開示の各実施形態は、言及される特定の要素、工程、原料、若しくは成分を含むか、言及される特定の要素、工程、原料、若しくは成分から基本的になるか、又は言及される特定の要素、工程、材料、若しくは成分からなる。本明細書中で使用されるとき、「含む("comprise" or "comprises")」の語は、「含むが、限定されるものではない」を意味し、非特定の要素、工程、材料、又は成分が包含されることを、主要な量であっても許容するものである。本明細書中で使用されるとき、「からなる」の語は、非特定の要素、工程、原料、又は成分を除外するものであり、「から基本的になる」の語は、実施形態の範囲を、特定の要素、工程、原料、又は成分であって、請求された本開示の基本的及び新規な特性に実質的に影響しないものに限定するものである。

【0023】

本開示を説明する文脈で（特に、特許請求の範囲の文脈で）使用する数量を特定しない語（The terms "a," "an," "the,"）、及び同様の冠詞又は語は、本明細書中で特段の指示がない限り、又は文脈から明らかに矛盾しない限りは、単数及び複数の両方を網羅する（すなわち、「1つ以上」）と解釈されるべきである。本明細書で列举された値の範囲は、その範囲内の各値に個々に言及する簡素な方法であることを意図している。本明細書中、濃度範囲、パーセント範囲、割合範囲、又は整数範囲は、いずれも、特段の指示がない限り、列举範囲中の任意の整数の値を含み、適宜、その小数点以下（fractions）（その整数の $1/10$ 、 $1/100$ 等）も含むと理解される。また、本明細書中に列举される、サイズ又は厚さ等の任意の物理的特徴に関する数字範囲は、特段の指示がない限り、列举範囲内の任意の整数を含むものと理解される。本明細書において特段の指示がない限り、個々の値は、本明細書中で個々に列举されているかのように本明細書に組込まれる。

【0024】

「約」の語は、数値又は範囲と共に使用する場合、当業者にとってその語を使用するのに妥当であり、例えば、言及した値又は範囲よりいくらか高い又はいくらか低いこと、すなわち、言及した値の $\pm 20\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 19\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 18\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 17\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 16\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 15\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 14\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 13\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 12\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 11\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 10\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 9\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 8\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 7\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 6\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 5\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 4\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 3\%$ の範囲内、言及した値の $\pm 2\%$ の範囲内、又は言及した値の $\pm 1\%$ の範囲内であることを意味する。

【0025】

本開示で使用する定義は、実施例において明確かつ一義的に修正されない限り、又は意味の適用が、任意の構造を無意味又は本質的に無意味にしない限り、今後の任意の構造において調整されることを意味及び意図している。用語の構造がそれを無意味又は本質的に無意味にする場合には、定義は、ウェブスター辞典第3版又は当業者に既知の辞書から引用するものとする。

【0026】

本開示は、概して、性能が改良された非貴金属触媒（NPMC）を使用した、高分子電解質膜（PEM）燃料電池、メタノール燃料電池、アルカリ燃料電池、又はリン酸型燃料電池等の燃料電池、及び他の電気化学装置に関し、また、それらの製造方法及びそれらの使用方法に関する。本明細書中で使用されるとき、「高分子電解質膜燃料電池」、「プロトン交換膜燃料電池」、「PEMFC」、又は「PEM燃料電池」の語は、電解質として固体高分子を含み、多孔質電極を有する燃料電池を指す。実施形態において、PEMFCは、水素ガスを燃料とし、作動するのに水素、酸素、及び水を使用する。「リン酸型燃料電池」は、電解質として液体リン酸を含む燃料電池を指す。例えば、リン酸型燃料電池は、結合炭化ケイ素マトリックス中にリン酸を含み、多孔質電極を有する。

【0027】

「非貴金属」又は「NPM」は、ルテニウム、オスミウム、ロジウム、イリジウム、パラジウム、白金、金、又は銀以外の金属を指す。例えば、非貴金属は、ニッケル、鉄、コバルト、クロム、銅、タングステン、セレン、及びスズを含む。いくつかの実施形態において、NPMは遷移金属である。いくつかの実施形態において、NPMは第8族金属、第9族金属、第10族金属、又はその組合せである。他の実施形態において、NPMは、第4周期金属である。実施形態においては、NPMは、鉄（Fe）、コバルト（Co）、又はニッケル（Ni）である。実施形態において、NPMは鉄である。他の実施形態において、NPMはニッケルである。実施形態において、NPMCは、遷移金属／窒素／炭素（M／N／C）触媒（ここで、金属はFe又はCoである）を含む。ある実施形態において、NPMは、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、又は金属カルコゲニドの形態をとる。いくつかの実施形態において、NPMCは、特有のナノ構造を有する炭素材料、例えば、ナノチューブ、ナノコーン、グラフェン、ナノホーン、フラーレン等を含む。いくつかの特定の実施形態において、NPMCは、ドーブ炭素材料、例えば、窒素及び／又はホウ素ドーブ炭素材料を含む。

【0028】

「遷移金属」は、スカンジウム（Sc）、チタン（Ti）、バナジウム（V）、クロム（Cr）、マンガン（Mn）、鉄（Fe）、コバルト（Co）、ニッケル（Ni）、銅（Cu）、亜鉛（Zn）、イットリウム（Y）、ジルコニウム（Zr）、ニオブ（Nb）、モリブデン（Mo）、テクニチウム（Tc）、ルテニウム（Ru）、ロジウム（Rh）、パラジウム（Pd）、銀（Ag）、カドミウム（Cd）、ハフニウム（Hf）、タンタル（Ta）、タングステン（W）、レニウム（Re）、オスミウム（Os）、イリジウム（Ir）、白金（Pt）、金（Au）、水銀（Hg）、ラザホージウム（Rf）、ドブニウム（Db）、シーボーギウム（Sg）、ボーリウム（Bh）、ハッシウム（Hs）、マイトネリウム（Mt）、ダームスタチウム（Ds）、レントゲニウム（Rg）及びコペルニシウム（Cn）を含む。

【0029】

「第8族」元素は、鉄（Fe）、ルテニウム（Ru）、オスミウム（Os）、及びハッシウム（Hs）が挙げられる。「第9族」元素としては、コバルト（Co）、ロジウム（Rh）、イリジウム（Ir）、及びマイトネリウム（Mt）が挙げられる。「第10族」元素としては、ニッケル（Ni）、パラジウム（Pd）、白金（Pt）及びダームスタチウム（Ds）を含む。

【0030】

「第4周期金属」は、スカンジウム（Sc）、チタン（Ti）、バナジウム（V）、ク

10

20

30

40

50

ロム (C r)、マンガン (M n)、鉄 (F e)、コバルト (C o)、ニッケル (N i)、銅 (C u)、亜鉛 (Z n) 及びガリウム (G a) を含む。

【0031】

本開示の装置及び方法の特定の実施形態を説明するために、添付の図面を参照する。本明細書に記載の実施形態の詳細は例として記載してあり、本開示の実施形態の例示的な検討を行うことを目的とするものであるため、以下の検討は限定的に解釈されるべきではない。

【0032】

膜電極接合体 (M E A) 1 の一実施形態の構造を図 1 に示す。第 1 の電極 5 は、高分子電解質膜 4 の一方側に配置される。本明細書中で使用されるとき、「高分子電解質膜」又は「プロトン交換膜」(P E M) の語は、反応物バリアとして作用するアイオノマーから形成された半透膜を指す。P E M は、N a f i o n (商標)、B A M (商標)、F l e m i o n (商標)、A q u i v i o n (商標)、D y n e o n (商標)、G O R E - S E L E C T (商標)、及び A c i p l e x (商標) 等の、任意の好適なプロトン伝導性材料又はアイオノマーから形成することができる。いくつかの実施形態において、P E M は N a f i o n (商標) から形成される。

【0033】

「アイオノマー」の語は、繰り返し単位を含み、電氣的に中性かつイオン化しているか、又は、ポリマー骨格に結合したイオン架橋により安定化した、熱可塑性樹脂を含むポリマー材料の任意の種類を示して使用するものである。アイオノマーの例としては、パーフルオロスルホン酸アイオノマー (P F S A)、N a f i o n (商標)、N a f i o n (商標) ポリアニリン、スルホン化ポリスルホン、スルホン化ポリ (エーテルスルホン)、ポリフッ化 (ビニリデン) (P V D F)、N a f i o n (商標) P T F E、N a f i o n (商標) K r y t o x、ポリフッ化ビニリデン-クロロテトラフルオロエチレン (P V D F - C T F E) コポリマー、ポリ (エチレングリコール) / 4-ドデシルベンゼンスルホン酸 (P E G) / (D B S A)、スルホン化スチレン (エチレン-ブチレン) -スルホン化スチレン (S E B S S)、ポリ (エチレンオキシド) (P E O)、ポリビニルアルコール (P V A)、ポリフッ化ビニリデン / ポリアクリロニトリル (P V D F / P A N)、P V D F - g - P S S A、ポリ (スチレンスルホン酸)、スルホン化ポリ (エーテルエーテルケトン) (S P E E K) 又はそれらの組合せが挙げられる。種々の実施形態において、好適な膜及び / 又はアイオノマーは、旭化成 (商標)、3 M (商標)、D u P o n t (商標)、B a l l a r d A d v a n c e d M a t e r i a l s (商標)、S o l v a y (商標)、及び G o r e (商標) によって製造されている。

【0034】

電極 5、5' は、各々、電極基板 2、2' と、触媒層 3、3' とを有する。電極基板 2、2' は、各々、ガス拡散層を有する。「ガス拡散層」又は「G D L」は、触媒と集電体とを接続する多孔質導電性層を指す。アノードガス拡散層及びカソードガス拡散層は、典型的に、熱伝導性を有し、触媒層及び膜を機械的に支持できるための適度な硬さを有し、化学的に不活性であり、ガス拡散が可能となるよう十分に多孔質であり、高電力密度のため薄くて軽量である。実施形態において、G D L は、燃料電池におけるフラッドイングを防ぐため、生成した水を除去するのに役立つ。

【0035】

G D L に使用する材料の例は、炭素繊維紙及びカーボンファブリック等の、織布多孔質炭素質基板及び不織布多孔質炭素質基板、並びに炭化又は黒鉛化炭素繊維不織布マットを含む。好適な多孔質基板は、T G P - H - 0 6 0、T G P - H - 0 9 0、A v C a r b (商標) P 5 0、A v C a r b (商標) E P - 4 0、G D L 2 4 系材料、及び G D L 2 5 系材料を含む。実施形態において、G D L は疎水化 (例えば、ポリテトラフルオロエチレンで被覆) されていてもよい。いくつかの実施形態において、G D L は、繊維状又は粒子状の炭素又はグラファイトを含むガス拡散副層を少なくとも 1 つ有する。

【0036】

10

20

30

40

50

GDLは、触媒層と接触する微多孔質層を有する。「微多孔質層」又は「MPL」は、GDLと触媒層との界面の滑らかさを向上させ、触媒層へのガス拡散の均一性を向上させるために使用する層である。いくつかの実施形態においては、メソ多孔質炭素、カーボンナノチューブ、カーボンナノファイバー、又はグラフェン等の添加材がMPLに存在する。

【0037】

カソード触媒層3'は、NPM触媒、NPM合金触媒、NPM担持触媒、又はNPM合金担持触媒を含み、アノード触媒層3は、貴金属触媒を含む。各触媒層は、イオン導電性材料（例えば、パーフルオロスルホン酸ポリマー）を含んでもよい。実施形態において、アノード触媒層及びカソード触媒層は、各々、疎水性のバインダー（例えば、PTFE）等のバインダー、アイオノマー、又はその組合せを含む。更なる実施形態において、これらの触媒層は、各々独立して、シリカ、アルミナ、ジルコニア、チタニア、及び三酸化タングステン等の吸湿性のフィラーを1つ以上含むこととしてもよい。

【0038】

本開示の実施形態を更に説明するため、PEM4及びカソード5'の実施形態の拡大図を図2に示す。図からわかるように、本実施形態において、触媒層3'は、2つの層、すなわち、第1の触媒副層6と、第1の触媒副層6と電極基板2'との間に配置される第2の触媒副層7とを有する。図2においては2つの触媒副層6、7が示されているが、それ以上の副層が存在してもよい。いくつかの実施形態において、カソード触媒副層は、2つの副層、3つの副層、4つの副層、又は5つの副層から形成される。各カソード触媒層は、同じ触媒を含んでも、異なる触媒を含んでもよい。

【0039】

各触媒層又は各副層は、アイオノマーを少なくとも1種含む。実施形態においては、1つ以上の触媒副層が、2種以上のアイオノマーの混合物を含む。いくつかの実施形態においては、1つ以上の触媒副層が、2種類のアイオノマーの混合物、3種類のアイオノマーの混合物、4種類のアイオノマーの混合物、又は5種類のアイオノマーの混合物を含む。そのような実施形態において、混合物は均質とすることができる。ここで、「均質」とは、混合物中、その構成要素が実質的に均一に分散していることを意味する。

【0040】

実施形態において、第1の触媒副層は第1のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーを含む。よって、本開示の実施形態は、非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有するカソード触媒層を含む。

【0041】

用語「等価質量 (Equivalent Weight)」又は「EW」は、NaOHの1等価質量を中和するのに必要な、酸の形態（例えば、スルホン酸基）のポリマーの重量を意味する。より高い等価質量のアイオノマーは、低等価質量のアイオノマーより少ない酸基を有する。一般に、低等価質量のアイオノマーは、高い伝導性を有する。

【0042】

特定の実施形態において、本開示の実施形態において使用されるアイオノマーは、400 g/mol、425 g/mol、450 g/mol、475 g/mol、500 g/mol、525 g/mol、550 g/mol、575 g/mol、600 g/mol、625 g/mol、650 g/mol、675 g/mol、700 g/mol、725 g/mol、750 g/mol、775 g/mol、800 g/mol、825 g/mol、850 g/mol、875 g/mol、900 g/mol、925 g/mol、950 g/mol、975 g/mol、1000 g/mol、1050 g/mol、1100 g/mol、1150 g/mol、又は1200 g/molの等価質量を有する。

【0043】

いくつかの実施形態において、本発明の実施形態において使用されるアイオノマーは、約300g/mol～約400g/mol、約300g/mol～約500g/mol、約300g/mol～約600g/mol、約300g/mol～約700g/mol、約300g/mol～約800g/mol、約300g/mol～約900g/mol、約300g/mol～約1000g/mol、約300g/mol～約1100g/mol、約300g/mol～約1200g/mol、約350g/mol～約450g/mol、約350g/mol～約550g/mol、約350g/mol～約650g/mol、約350g/mol～約750g/mol、約350g/mol～約850g/mol、約350g/mol～約950g/mol、約350g/mol～約1050g/mol、約350g/mol～約1150g/mol、約400g/mol～約500g/mol、約400g/mol～約600g/mol、約400g/mol～約700g/mol、約400g/mol～約800g/mol、約400g/mol～約900g/mol、約400g/mol～約1000g/mol、約400g/mol～約1100g/mol、約400g/mol～約1200g/mol、約450g/mol～約550g/mol、約450g/mol～約650g/mol、約450g/mol～約750g/mol、約450g/mol～約850g/mol、約450g/mol～約950g/mol、約450g/mol～約1050g/mol、約450g/mol～約1150g/mol、約500g/mol～約600g/mol、約500g/mol～約700g/mol、約500g/mol～約800g/mol、約500g/mol～約900g/mol、約500g/mol～約1000g/mol、約500g/mol～約1100g/mol、約500g/mol～約1200g/mol、約550g/mol～約650g/mol、約550g/mol～約750g/mol、約550g/mol～約850g/mol、約550g/mol～約950g/mol、約550g/mol～約1050g/mol、約550g/mol～約1150g/mol、約600g/mol～約700g/mol、約600g/mol～約800g/mol、約600g/mol～約900g/mol、約600g/mol～約1000g/mol、約600g/mol～約1100g/mol、約600g/mol～約1200g/mol、約650g/mol～約750g/mol、約650g/mol～約850g/mol、約650g/mol～約950g/mol、約650g/mol～約1050g/mol、約650g/mol～約1150g/mol、約700g/mol～約800g/mol、約700g/mol～約900g/mol、約700g/mol～約1000g/mol、約700g/mol～約1100g/mol、約700g/mol～約1200g/mol、約750g/mol～約850g/mol、約750g/mol～約950g/mol、約750g/mol～約1050g/mol、約750g/mol～約1150g/mol、約800g/mol～約900g/mol、約800g/mol～約1000g/mol、約800g/mol～約1100g/mol、約800g/mol～約1200g/mol、約850g/mol～約950g/mol、約850g/mol～約1050g/mol、約850g/mol～約1150g/mol、約900g/mol～約1000g/mol、約900g/mol～約1100g/mol、約900g/mol～約1200g/mol、約950g/mol～約1050g/mol、約950g/mol～約1150g/mol、約1000g/mol～約1100g/mol、約1000g/mol～約1200g/mol、又は約1050g/mol～約1150g/molの範囲の等価質量を有する。

【0044】

「より低い」の語は、2種類のアイオノマーの等価質量の比較に関連して使用する場合（例えば、第1のアイオノマーが、第2のアイオノマー「より低い」等価質量を有する、又は第3のアイオノマーが、第1のアイオノマー「より高い」等価質量を有する）、言及した値が、比較対象の値より、少なくとも約10g/mol、少なくとも約25g/mol、少なくとも約50g/mol、少なくとも約75g/mol、少なくとも約100g/mol、又は少なくとも約150g/mol小さいことを意味し得る。特定の実施形態

10

20

30

40

50

において、「より低い」の語は、言及した値が、比較対象の値より少なくとも約100 g/mol小さいことを意味する。同様に、「より高い」の語は、2種類のアイオノマーの等価質量の比較に関連して使用する場合、言及した値が、比較対象の値より、少なくとも約10 g/mol、少なくとも約25 g/mol、少なくとも約50 g/mol、少なくとも約75 g/mol、少なくとも約100 g/mol、又は少なくとも約150 g/mol大きいことを意味し得る。特定の実施形態において、「より高い」の語は、言及した値が、比較対象の値より少なくとも約100 g/mol大きいことを意味する。

【0045】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は低等価質量のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、より高い等価質量を有するアイオノマーを含む。実施形態において、第1の触媒副層は低等価質量のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は高等価質量のアイオノマーを含む。よって、本開示の実施形態は、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有するカソード触媒層を含む。

10

【0046】

「低等価質量の」アイオノマーは、700 g/mol未満の等価質量を有する。実施形態において、本開示の実施形態で使用される低等価質量のアイオノマーは、400 g/mol～600 g/molの等価質量を有する。

【0047】

いくつかの実施形態において、低等価質量のアイオノマーは、約300 g/mol～約650 g/mol、約300 g/mol～約600 g/mol、約300 g/mol～約550 g/mol、約300 g/mol～約500 g/mol、約300 g/mol～約450 g/mol、約300 g/mol～約400 g/mol、約300 g/mol～約350 g/mol、約350 g/mol～約650 g/mol、約350 g/mol～約600 g/mol、約350 g/mol～約550 g/mol、約350 g/mol～約500 g/mol、約350 g/mol～約450 g/mol、約350 g/mol～約400 g/mol、約400 g/mol～約650 g/mol、約400 g/mol～約600 g/mol、約400 g/mol～約550 g/mol、約400 g/mol～約500 g/mol、約400 g/mol～約450 g/mol、約450 g/mol～約650 g/mol、約450 g/mol～約600 g/mol、約450 g/mol～約550 g/mol、約450 g/mol～約500 g/mol、約500 g/mol～約650 g/mol、約500 g/mol～約600 g/mol、約500 g/mol～約550 g/mol、約550 g/mol～約650 g/mol、約550 g/mol～約600 g/mol、又は約600 g/mol～約650 g/molの範囲の等価質量を有する。

20

30

【0048】

特定の実施形態において、本開示の実施形態において使用される低等価質量のアイオノマーは、400 g/mol、425 g/mol、450 g/mol、475 g/mol、500 g/mol、525 g/mol、550 g/mol、575 g/mol、600 g/mol、625 g/mol、650 g/mol、又は675 g/molの等価質量を有する。

40

【0049】

「高等価質量の」アイオノマーは、少なくとも700 g/molの等価質量を有する。実施形態において、本開示の実施形態で使用される高等価質量のアイオノマーは、700 g/mol～1200 g/molの等価質量を有する。

【0050】

いくつかの実施形態において、高等価質量のアイオノマーは、約700 g/mol～約1100 g/mol、約700 g/mol～約1000 g/mol、約700 g/mol～約950 g/mol、約700 g/mol～約900 g/mol、約700 g/mol～約850 g/mol、約700 g/mol～約800 g/mol、約700 g/mol

50

～約750 g/mol、約750 g/mol～約1000 g/mol、約750 g/mol～約950 g/mol、約750 g/mol～約900 g/mol、約750 g/mol～約850 g/mol、約750 g/mol～約800 g/mol、約800 g/mol～約1100 g/mol、約800 g/mol～約1000 g/mol、約800 g/mol～約950 g/mol、約800 g/mol～約900 g/mol、約800 g/mol～約850 g/mol、約850 g/mol～約1000 g/mol、約850 g/mol～約950 g/mol、約850 g/mol～約900 g/mol、約900 g/mol～約1100 g/mol、約900 g/mol～約1000 g/mol、約900 g/mol～約950 g/mol、又は約950 g/mol～約1000 g/molの範囲の等価質量を有する。

10

【0051】

特定の実施形態において、本開示の実施形態において使用される高等価質量のアイオノマーは、700 g/mol、725 g/mol、750 g/mol、775 g/mol、800 g/mol、825 g/mol、850 g/mol、875 g/mol、900 g/mol、925 g/mol、950 g/mol、975 g/mol、1000 g/mol、1050 g/mol、1100 g/mol、1150 g/mol、又は1200 g/molの等価質量を有する。

【0052】

1つ以上の触媒副層がアイオノマーの混合物を含む実施形態においては、第1の触媒副層、第2の触媒副層、第3の触媒副層、第4の触媒副層、及び第5の触媒副層の1つ以上がアイオノマーの混合物を含む。1つの副層におけるアイオノマーの混合物の等価質量を、他の触媒副層におけるアイオノマー又はアイオノマーの混合物の等価質量と比較するため、混合物の等価質量は以下の式によって計算することとしてもよい：混合物の等価質量 = (アイオノマー1の重量パーセント) × (アイオノマー1の等価質量) + (アイオノマー2の重量パーセント) × (アイオノマー2の等価質量) + ... (アイオノマーnの重量パーセント) × (アイオノマーnの等価質量)。

20

【0053】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、第2の触媒副層のアイオノマー又はアイオノマーの混合物より低い等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含み、第2の触媒副層は、第1の触媒副層のアイオノマー又はアイオノマーの混合物より高い等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含む。

30

【0054】

特定の実施形態において、第1の触媒副層は、500 g/mol～600 g/molの範囲の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含み、第2の触媒副層は、700 g/mol～900 g/molの範囲の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含む。特定の実施形態において、第1の触媒副層は、500 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、700 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含む。

【0055】

実施形態において、第1の触媒副層は、700 g/mol以下の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含み、第2の触媒副層は、700 g/mol超の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含む。他の実施形態において、第1の触媒副層は、500 g/mol～700 g/molの範囲の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含み、第2の触媒副層は、900 g/mol～1100 g/molの範囲の等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含む。特定の実施形態においては、第1の触媒副層は、700 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、1100 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含む。

40

【0056】

第1の触媒副層及び第2の触媒副層より多い触媒副層を有する実施形態においては、電

50

解質膜に最も近い触媒副層が、最も低い等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含み、他の触媒副層は、基板により近い触媒副層（複数の場合もある）に存在するアイオノマー又はアイオノマーの混合物よりも、低い等価質量を有するアイオノマー又はアイオノマーの混合物を含む。

【0057】

実施形態において、第1の触媒副層は、第1のアイオノマーと、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含み、第2の触媒副層は第2のアイオノマーを含む。

【0058】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、第1のアイオノマーと、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含み、第2の触媒副層は、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーを含む。

10

【0059】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は第1のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーと、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含む。

【0060】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、第2のアイオノマーより低い等価質量を有する第1のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、第3のアイオノマーより低い等価質量を有する第2のアイオノマーと、第3のアイオノマーとを含む。

20

【0061】

実施形態において、第2の触媒副層は第2のアイオノマーを含み、第1の触媒副層は、第2のアイオノマーの等価質量より低い等価質量を有する第1のアイオノマーと、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含む。

【0062】

実施形態において、第1の触媒副層は、低等価質量の第1のアイオノマーと高等価質量の第2のアイオノマーとを含み、第2の触媒副層は第2のアイオノマーを含む。

【0063】

30

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、低等価質量の第1のアイオノマーと、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含み、第2の触媒副層は、高等価質量の第2のアイオノマーを含む。

【0064】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、低等価質量の第1のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、高等価質量の第2のアイオノマーと、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含む。

【0065】

いくつかの実施形態において、第1の触媒副層は、低等価質量の第1のアイオノマーを含み、第2の触媒副層は、高等価質量の第2のアイオノマーと、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含む。

40

【0066】

実施形態において、第2の触媒副層は、高等価質量のアイオノマー（第2のアイオノマー）を含み、第1の触媒副層は、低等価質量のアイオノマー（第1のアイオノマー）と、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーとを含む。

【0067】

実施形態において、アイオノマーの混合物は、より低い等価質量を有するアイオノマーと、より高い等価質量を有するアイオノマーとを、約1：1、約1：2、約1：3、約1：4、約1：5、約2：3、約2：4、約2：5、約3：4、約3：5、又は約4：5の重量割合で含む。

50

【0068】

いくつかの実施形態において、触媒副層は、少なくとも5% (w/w)、少なくとも10% (w/w)、少なくとも15% (w/w)、少なくとも20% (w/w)、少なくとも25% (w/w)、少なくとも30% (w/w)、少なくとも35% (w/w)、少なくとも40% (w/w)、少なくとも45% (w/w)、少なくとも50% (w/w)、少なくとも55% (w/w)、少なくとも60% (w/w)、少なくとも65% (w/w)、少なくとも70% (w/w)、少なくとも75% (w/w)、少なくとも80% (w/w)、少なくとも85% (w/w)、少なくとも90% (w/w)、又は少なくとも95% (w/w) の特定の等価質量のアイオノマーを含む。

【0069】

実施形態において、触媒副層は、約5%～約10% (w/w)、約5%～約20% (w/w)、約5%～約25% (w/w)、約5%～約30% (w/w)、約5%～約40% (w/w)、約5%～約50% (w/w)、約5%～約60% (w/w)、約5%～約70% (w/w)、約5%～約75% (w/w)、約5%～約80% (w/w)、約5%～約90% (w/w)、約10%～約20% (w/w)、約10%～約30% (w/w)、約10%～約40% (w/w)、約10%～約50% (w/w)、約10%～約55% (w/w)、約10%～約60% (w/w)、約10%～約70% (w/w)、約10%～約80% (w/w)、約10%～約90% (w/w)、約15%～約35% (w/w)、約15%～約60% (w/w)、約15%～約85% (w/w)、約20%～約30% (w/w)、約20%～約40% (w/w)、約20%～約50% (w/w)、約20%～約60% (w/w)、約20%～約65% (w/w)、約20%～約70% (w/w)、約20%～約80% (w/w)、約20%～約90% (w/w)、約25%～約45% (w/w)、約25%～約70% (w/w)、約25%～約95% (w/w)、約30%～約40% (w/w)、約30%～約50% (w/w)、約30%～約60% (w/w)、約30%～約70% (w/w)、約30%～約75% (w/w)、約30%～約80% (w/w)、約30%～約90% (w/w)、約35%～約45% (w/w)、約35%～約55% (w/w)、約35%～約65% (w/w)、約35%～約75% (w/w)、約35%～約80% (w/w)、約35%～約85% (w/w)、約40%～約50% (w/w)、約40%～約60% (w/w)、約40%～約70% (w/w)、約40%～約80% (w/w)、約40%～約85% (w/w)、約40%～約90% (w/w)、約45%～約55% (w/w)、約45%～約65% (w/w)、約45%～約75% (w/w)、約45%～約85% (w/w)、約45%～約90% (w/w)、約45%～約95% (w/w)、約50%～約60% (w/w)、約50%～約70% (w/w)、約50%～約80% (w/w)、約50%～約90% (w/w)、約50%～約95% (w/w)、約55%～約65% (w/w)、約55%～約75% (w/w)、約55%～約85% (w/w)、約55%～約95% (w/w)、約60%～約70% (w/w)、約60%～約80% (w/w)、約60%～約90% (w/w)、約65%～約75% (w/w)、約65%～約85% (w/w)、約65%～約95% (w/w)、約70%～約80% (w/w)、約70%～約90% (w/w)、約75%～約85% (w/w)、約75%～約95% (w/w)、約80%～約90% (w/w)、約85%～約95% (w/w) の特定の等価質量のアイオノマーを含む。

【0070】

各触媒層又は各副層は、この技術分野で既知の任意の好適な方法によって形成することができる。例えば、触媒インクは、スクリーン印刷法、ナイフコート法、スプレー法、グラビアコート法、デカール転写法、塗装法、スプレー法、ドクターブレード法、エアブラシ法、デスクジェットプリント法、インクジェットプリント法、又はこれらの組合せ等の種々の方法によって、GDL、膜、又は担体若しくは離型剤に適用することができる。

【0071】

「触媒インク」とは、アイオノマー溶液と非貴金属触媒粒子との混合物を指す。好適な溶媒の例は、水、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、ヘキサン、クロシン

10

20

30

40

50

、及びテトラヒドロフランを含む。いくつかの実施形態において、触媒インクは、テトラブチルアンモニウムヒドロキシドを含んでもよい。

【0072】

触媒インクは、単一の塗布、又は、複数の薄層で適用して、所望の触媒充填量及び／又は触媒構造を達成することとしてもよい。いくつかの実施形態において、触媒層（複数の場合もある）は、PEM上に直接適用され、触媒被覆膜が形成される。他の実施形態において、触媒層（複数の場合もある）は、GDL基板上に直接適用され、触媒被覆基板を形成する。

【0073】

実施形態においては、触媒層又は副層を形成するために異なる塗布プロセスが利用される。例えば、アノード触媒層をスクリーン印刷法によって塗布し、カソード触媒層をエアブラシ法によって塗布することができる。他の例においては、アノード触媒層をエアブラシ法によって塗布し、第1のカソード触媒副層をインクジェットプリント法によって塗布し、第2のカソード触媒副層をエアブラシ法によって塗布することができる。触媒層又は副層が複数の薄層塗布によって形成される実施形態においては、1つ以上の薄層塗布を形成するために異なる塗布プロセスを用いることができる。

【0074】

実施形態においては、デカル転写法を用いて触媒層（複数の場合もある）又は副層（複数の場合もある）を形成する。そのような実施形態においては、各層又は各副層を生成するために複数の塗布を適用することができる。種々の実施形態において、触媒インクは、Kaptonフィルム又はTeflonフィルム等の滑らかな離型剤上に、ドクターブレード法、エアブラシ法、スクリーン印刷法、デスクジェットプリント法、レーザープリント法、又は任意の他の好適な方法によって、塗布される。インクの塗布後、デカルをオープン中で乾燥して、溶媒を蒸発させることができる。インクが乾燥したら、次いで、PEM上にホットプレスで転写する。アノード及びカソードを、同時にPEM上にホットプレスしてもよく、又は、順番にPEM上にホットプレスしてもよい。当業者にはわかることであるが、ホットプレスに用いる圧力及び時間はMEAの種類によって変化する。

【0075】

「充填量」は、基板上に形成又は塗布された材料の量を指し、通常、基板の単位表面積当たりの材料の質量で表される。触媒充填量は、X線蛍光分光法（XRF）によってシート状のサンプルの重量分析及び／又は元素分析を行うことによって求めることができる。

【0076】

いくつかの実施形態において、各触媒層又は各副層の充填量は、1グラム／平方メートル（gsm）～100gsmの範囲である。更なる実施形態において、各触媒層の充填量は、約1gsm～約50gsm、約1gsm～約25gsm、約5gsm～約100gsm、約5gsm～約50gsm、約5gsm～約25gsm、約10gsm～約100gsm、約10gsm～約50gsm、約10gsm～約25gsm、約10gsm～約20gsm、約15gsm～約100gsm、約15gsm～約50gsm、約15gsm～約25gsm、約20gsm～約100gsm、約20gsm～約50gsm、約20gsm～約25gsm、約25gsm～約100gsm、約25gsm～約50gsm、約30gsm～約100gsm、約30gsm～約50gsm、約35gsm～約100gsm、約35gsm～約50gsm、約40gsm～約100gsm、約40gsm～約50gsm、約45gsm～約100gsm、約45gsm～約50gsm、約50gsm～約100gsm、約75gsm～約100gsm、約5gsm～約15gsm、約5gsm～約25gsm、約5gsm～約35gsm、約5gsm～約45gsm、約5gsm～約55gsm、約5gsm～約65gsm、約5gsm～約75gsm、約5gsm～約85gsm、約5gsm～約95gsm、約10gsm～約20gsm、約10gsm～約30gsm、約10gsm～約40gsm、約10gsm～約50gsm、約10gsm～約60gsm、約10gsm～約70gsm、約10gsm～約80gsm、約10gsm～約90gsm、約20gsm～約30gsm、約20gsm～約40g

10

20

30

40

50

sm、約20gsm～約50gsm、約20gsm～約60gsm、約20gsm～約70gsm、約20gsm～約80gsm、約20gsm～約90gsm、約25gsm～約35gsm、約25gsm～約45gsm、約25gsm～約55gsm、約25gsm～約65gsm、約25gsm～約75gsm、約25gsm～約85gsm、又は約25gsm～約95gsmの範囲である。

【0077】

いくつかの実施形態において、各触媒層又は副層の充填量は、約10gsm、約15gsm、約20gsm、約25gsm、約30gsm、約35gsm、約40gsm、約45gsm、約50gsm、約55gsm、約60gsm、約65gsm、約70gsm、約75gsm、約80gsm、約85gsm、約90gsm、約95gsm、又は約100gsmである。

10

【0078】

また、本開示の各触媒層又は各副層を形成するのに、任意で圧縮工程を採用し、得られた触媒層又は副層が所望の厚さを有するようにすることができる。そのような実施形態においては、圧縮工程は、約0.5psi～4000psi、100psi～3000psi、200psi～2000psi、又は300psi～1500psiでの圧縮を含む。

【0079】

実施形態においては、いずれの触媒副層も、他の触媒副層と同じ厚さを有さない。他の実施形態においては、ある触媒副層が他の触媒副層と同じ厚さを有する。いくつかの実施形態においては、ある触媒副層が他の触媒副層と異なる厚さを有する。

20

【0080】

実施形態において、各触媒副層は、約5μm、約10μm、約15μm、約20μm、約25μm、約30μm、約35μm、約40μm、約45μm、約50μm、約55μm、約60μm、約65μm、約70μm、約75μm、約80μm、約85μm、約90μm、約95μm、約100μm、約105μm、約110μm、約115μm、約120μm、約125μm、約130μm、約135μm、約140μm、約145μm、又は約150μmの厚さを有する。

【0081】

実施形態において、各触媒副層は、少なくとも約5μm、少なくとも約10μm、少なくとも約15μm、少なくとも約20μm、少なくとも約25μm、少なくとも約30μm、少なくとも約35μm、少なくとも約40μm、少なくとも約45μm、少なくとも約50μm、少なくとも約55μm、少なくとも約60μm、少なくとも約65μm、少なくとも約70μm、少なくとも約75μm、少なくとも約80μm、少なくとも約85μm、少なくとも約90μm、少なくとも約95μm、少なくとも約100μm、少なくとも約105μm、少なくとも約110μm、少なくとも約115μm、少なくとも約120μm、少なくとも約125μm、少なくとも約130μm、少なくとも約135μm、少なくとも約140μm、少なくとも約145μm、又は少なくとも約150μmの厚さを有する。

30

【0082】

いくつかの実施形態において、各触媒副層は、約5μm～約25μm、約5μm～約50μm、約5μm～約75μm、約5μm～約100μm、約5μm～約125μm、約5μm～約145μm、約10μm～約25μm、約10μm～約50μm、約10μm～約75μm、約10μm～約100μm、約10μm～約125μm、約10μm～約145μm、約20μm～約30μm、約20μm～約40μm、約20μm～約50μm、約20μm～約60μm、約20μm～約70μm、約20μm～約80μm、約20μm～約90μm、約25μm～約35μm、約25μm～約45μm、約25μm～約50μm、約25μm～約55μm、約25μm～約65μm、約25μm～約75μm、約25μm～約75μm、約25μm～約85μm、約25μm～約95μm、約25μm～約100μm、約25μm～約125μm、約25μm～約145μm、約30

40

50

μm ～約 $40\mu\text{m}$ 、約 $30\mu\text{m}$ ～約 $50\mu\text{m}$ 、約 $30\mu\text{m}$ ～約 $60\mu\text{m}$ 、約 $30\mu\text{m}$ ～約 $70\mu\text{m}$ 、約 $30\mu\text{m}$ ～約 $80\mu\text{m}$ 、約 $30\mu\text{m}$ ～約 $90\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $45\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $55\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $65\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $75\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $85\mu\text{m}$ 、約 $35\mu\text{m}$ ～約 $95\mu\text{m}$ 、約 $40\mu\text{m}$ ～約 $50\mu\text{m}$ 、約 $40\mu\text{m}$ ～約 $60\mu\text{m}$ 、約 $40\mu\text{m}$ ～約 $70\mu\text{m}$ 、約 $40\mu\text{m}$ ～約 $80\mu\text{m}$ 、約 $40\mu\text{m}$ ～約 $90\mu\text{m}$ 、約 $45\mu\text{m}$ ～約 $55\mu\text{m}$ 、約 $45\mu\text{m}$ ～約 $65\mu\text{m}$ 、約 $45\mu\text{m}$ ～約 $75\mu\text{m}$ 、約 $45\mu\text{m}$ ～約 $85\mu\text{m}$ 、約 $45\mu\text{m}$ ～約 $95\mu\text{m}$ 、約 $50\mu\text{m}$ ～約 $75\mu\text{m}$ 、約 $50\mu\text{m}$ ～約 $100\mu\text{m}$ 、約 $50\mu\text{m}$ ～約 $125\mu\text{m}$ 、約 $50\mu\text{m}$ ～約 $145\mu\text{m}$ 、約 $55\mu\text{m}$ ～約 $65\mu\text{m}$ 、約 $55\mu\text{m}$ ～約 $75\mu\text{m}$ 、約 $55\mu\text{m}$ ～約 $85\mu\text{m}$ 、約 $55\mu\text{m}$ ～約 $95\mu\text{m}$ 、約 $60\mu\text{m}$ ～約 $70\mu\text{m}$ 、約 $60\mu\text{m}$ ～約 $80\mu\text{m}$ 、約 $60\mu\text{m}$ ～約 $90\mu\text{m}$ 、約 $75\mu\text{m}$ ～約 $100\mu\text{m}$ 、約 $75\mu\text{m}$ ～約 $125\mu\text{m}$ 、約 $75\mu\text{m}$ ～約 $145\mu\text{m}$ 、約 $100\mu\text{m}$ ～約 $125\mu\text{m}$ 、約 $100\mu\text{m}$ ～約 $145\mu\text{m}$ 、又は約 $125\mu\text{m}$ ～約 $145\mu\text{m}$ の範囲の厚さを有する。

10

【0083】

実施形態において、触媒層は、少なくとも約 $90\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $95\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $100\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $105\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $110\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $115\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $120\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $125\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $130\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $135\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $140\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $145\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $150\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $155\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $160\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $165\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $170\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $175\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $180\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $185\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $190\mu\text{m}$ 、少なくとも約 $195\mu\text{m}$ 、又は少なくとも約 $200\mu\text{m}$ の総厚さを有する。

20

【0084】

更なる実施形態において、触媒層は、 $195\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $190\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $185\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $180\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $175\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $170\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $170\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $165\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $165\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $160\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $160\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $155\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $155\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $150\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $150\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $145\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $145\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $145\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $140\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $140\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $140\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $135\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $135\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $135\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $130\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $130\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $130\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $125\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $125\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $125\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $120\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $120\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $120\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $120\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $115\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $115\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $115\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $115\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $110\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $110\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $110\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $110\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $105\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $105\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $105\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $105\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $100\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、 $75\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ ～ $175\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ ～ $150\mu\text{m}$ 、又は $50\mu\text{m}$ ～ $125\mu\text{m}$ の範囲の総厚さを有する。

30

40

【0085】

種々の実施形態において、本開示は、上述のCC Lのうち任意のCC Lを有するMEAを提供する。よって、本開示の実施形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを有する膜電極接合体であって、当該カソードは、ガス拡散層(GDL)と、カソード触媒層(CCL)とを含み、当該カソード触媒層(CCL)は第1の副層と第2の副層とを含み、当該第1の副層は、非貴金属触媒と、第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触し、当該第2の副層は、非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む、膜電極接合体を含む。さらに、本開示の実施形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを有する膜電極接合

50

体であって、当該カソードは、GDLとCCLとを含み、当該CCLは、第1の副層と第2の副層とを含み、当該第1の副層は、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触し、当該第2の副層は、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む、膜電極接合体を含む。

【0086】

実施形態において、本開示は、上述のMEAのうち任意のMEAを有する燃料電池を提供する。そのような実施形態において、上述のMEAは、2枚の導電性流れ場プレートの間に配置される。よって、本開示の実施形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを含む膜電極接合体を有する燃料電池であって、当該カソードは、GDLとカソード触媒層とを含み、当該カソード触媒層（CCL）は、第1の副層と第2の副層とを含み、当該第1の副層は、非貴金属触媒と、第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触し、当該第2の副層は、非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む、燃料電池を含む。また、本開示の実施形態は、プロトン交換膜と、カソードと、アノードとを含む膜電極接合体を有する燃料電池であって、当該カソードは、GDLとCCLとを含み、当該CCLは、第1の副層と第2の副層とを含み、当該第1の副層は、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触し、当該第2の副層は、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む、燃料電池を含む。

【0087】

更なる実施形態においては、2つ以上の燃料電池を接続して、燃料電池システムを製造することができる。

【0088】

また、本明細書には、本開示のMEA、燃料電池、又は燃料電池システムを製造する方法であって、（1）プロトン交換膜の第1側面に、GDLとCCLとを含むカソードであって、当該CCLは、非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーより高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有する当該カソードを形成することと、（2）アノードをプロトン交換膜の第2側面に形成することとを含む、方法も開示する。本開示の更なる方法は、本開示のMEA、燃料電池、又は燃料電池システムを製造する方法であって、（1）プロトン交換膜の第1側面に、GDLとCCLとを含むカソードであって、当該CCLは、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有する当該カソードを形成することと、（2）アノードを当該プロトン交換膜の第2側面に形成することとを含む、方法を含む。

【0089】

さらに、本明細書には、MEA、燃料電池、又は燃料電池システムの安定性及び／又は性能を向上させる方法であって、（1）プロトン交換膜の第1側面に、GDLとCCLとを含むカソードであって、当該CCLは、非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーより高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有する当該カソードを形成することと、（2）アノードを当該プロトン交換膜の第2側面に形成することとを含む、方法も開示する。付加的な方法としては、MEA、燃料電池、又は燃料電池システムの安定性及び／又は性能を向上させる方法であって、（1）プロトン交換膜の第1側面に、GDLとCCLとを含むカソードであって、当該CCLは、非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の副層とを有する当該カソードを形成することと、（2）アノードを当該プロトン交換膜の第2側面に形成することとを含む、方法を含む。いくつかの実施形態においては、MEA、燃料電池、又は燃料電池システムの向上した安定性及び／又は性能は、高相対湿度に曝される。「相対湿度」とは、同一温度において飽和に必要な量に対する、空気中に存在する水蒸気の量の割合をパーセン

トで表したものである。「高相対湿度」とは、75%超の相対湿度を指し、「低相対湿度」とは、75%以下の相対湿度を指す。

【実施例】

【0090】

[例1]

単一層CCLの利用性を試験するため、炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用した2つの試作品を作製して試験を行った。第1の試作品は、40gsmのCCL充填量を有し、第2の試作品は、25gsmのCCL充填量を有していた。CCL試作品は両方とも、700g/molの等価質量を有するアイオノマーを40% (w/w) 含んでおり、CCL充填量が異なることを除いては、同じ成分を含んでおり、同じ方法を使用した。

10

【0091】

性能試験の結果を図3に示す。図からわかるように、2つの設計は、同様の性能を示した。このことは、CCLが完全には利用されていないことを示唆している。

【0092】

[例2]

高等価質量 (EW) のアイオノマー及び低等価質量のアイオノマーの、高相対湿度下 (RH) 及び低相対湿度下における性能を試験するため、炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用した2つの試作品を作製して試験を行った。試作品は両方とも、25gsmのCCL充填量を有し、アイオノマーが異なることを除いては、同じ成分を含んでおり、同じ方法を使用した。一方の試作品 (「低等価質量試作品」) は、500g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでおり、他方の試作品 (「高等価質量試作品」) は、700g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでいた。これらの低等価質量試作品及び高等価質量試作品について、相対湿度50%及び相対湿度100%で試験を行った。

20

【0093】

性能試験の結果を図4に示す。図からわかるように、低等価質量試作品は、相対湿度50%で優れた性能を示したが、相対湿度100%で著しいフラiddingが生じた。これに対し、高等価質量試作品は、相対湿度100%で優れた性能を示したが、相対湿度50%では性能が低かった。

【0094】

[例3]

単一層設計で2種類のアイオノマーを混合することによって、CCLの相対湿度許容性が向上し得るかどうかを試験するため、炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用し、500g/molの等価質量を有するアイオノマーと、700g/molの等価質量を有するアイオノマーとを2:3の割合で含む混合単一層CCLを有する試作品を作製した。炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用し、500g/molの等価質量を有するアイオノマーのみを含むCCLを有する第2の試作品 (「低等価質量試作品」) も作製した。試作品は両方とも、25gsmのCCL総充填量を有し、CCLはアイオノマーを合計40% (w/w) 含んでいた。試作品は両方とも、CCL組成以外は、同じ成分を含んでおり、同じ方法を使用した。

30

【0095】

比較試験の結果を図5に示す。混合単層CCL設計の試作品は、低等価質量試作品とほぼ同じ性能を示した。これは、2:3の割合の混合物においても、500g/molの等価質量を有するアイオノマーが触媒層の挙動を支配していたことを示唆している。

40

【0096】

[例4]

従来の単層CCL設計のものと性能を比較するため、本開示の2層CCLを含む試作品を作製した。2層CCL設計の試作品は、第1の触媒副層と、第2の触媒副層とを有しており、電解質膜の最も近くに位置する第1の触媒副層は、10gsmの充填量を有し、500g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでおり、第2の触媒副層は、15gsmの充填量を有し、700g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでいた

50

。500 g/molの等価質量を有するアイオノマーのみを含むCC Lを有する第2の試作品（「低等価質量試作品」）も作製した。それ以外は、試作品は両方とも、同じ成分を含んでおり、同じ方法を使用した。試作品は両方とも、炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用しており、25 g/smのCC L総充填量を有しており、CC Lはアイオノマーを合計40%（w/w）含んでいた。

【0097】

これらの試作品を相対湿度50%及び相対湿度100%で試験し、その試験の結果を図6に示す。図からわかるように、2層CC L設計の試作品は、相対湿度50%及び相対湿度100%の両方で、低等価質量試作品より高い性能を示した。さらに、相対湿度50%での試験と、相対湿度100%での試験との間で目立った性能の低下はなかった。全体的に見て、2層設計の場合の相対湿度許容性は優れたものとなった。

10

【0098】

[例5]

2層CC L設計と混合単一層CC L設計とで性能を比較するために、炭素／窒素／酸素／鉄触媒を使用した試作品を2つ作製した。一方の試作品は、500 g/molの等価質量を有するアイオノマーと、700 g/molの等価質量を有するアイオノマーとの2：3混合物を含む単一層CC Lを有しており、他方の試作品は、第1の触媒副層と第2の触媒副層とを有する2層設計のCC Lを有していた。電解質膜の最も近くに位置する第1の触媒副層は、10 g/smの充填量を有しており、500 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでおり、第2の触媒副層は、15 g/smの充填量を有しており、700 g/molの等価質量を有するアイオノマーを含んでいた。試作品は両方とも、25 g/smのCC L総充填量を有しており、CC L組成以外は、同じ成分を含んでおり、同じ方法を使用した。

20

【0099】

混合アイオノマー単一層CC L試作品及び2層CC L試作品を、相対湿度50%及び相対湿度100%で試験した。その試験の結果を図7に示す。混合単一層CC L設計の場合は、相対湿度許容性に劣っており、例3及び図5に示す結果と一致した。混合単一層CC L設計は、相対湿度50%では優れた性能を示したが、相対湿度100%では性能がかなり劣っていた。2層CC L設計は、相対湿度50%及び相対湿度100%で優れた性能を示し、相対湿度50%と相対湿度100%との間で性能の変動がほとんどなく、例4及び図6に示す結果と一致した。

30

【0100】

以下の実施形態は、本開示の範囲に包含される：

1. 非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、

非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層と、
を有するカソード触媒層。

2. 非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、プロトン交換膜と接触する第1の副層と、

40

非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の副層と、
を有するカソード触媒層。

3. 第1の副層が、第2のアイオノマーを更に含む、実施形態1又は2のカソード触媒層。

4. 第1の副層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む、実施形態1乃至3のいずれか1つのカソード触媒層。

5. 第1の副層が、少なくとも25%（w/w）、少なくとも30%（w/w）、少なくとも35%（w/w）、少なくとも40%（w/w）、少なくとも45%（w/w）、少なくとも50%（w/w）、少なくとも55%（w/w）、少なくとも60%（w/w）、少なくとも65%（w/w）、少なくとも70%（w/w）、少なくとも75%（w/w）

50

w)、少なくとも80%(w/w)、少なくとも85%(w/w)、少なくとも90%(w/w)、又は少なくとも95%(w/w)の第1のアイオノマーを含む、実施形態1乃至4のいずれか1つのカソード触媒層。

6. 第1の副層が、25%~45%(w/w)、25%~70%(w/w)、25%~95%(w/w)、30%~40%(w/w)、30%~50%(w/w)、30%~60%(w/w)、30%~70%(w/w)、30%~75%(w/w)、30%~80%(w/w)、30%~90%(w/w)、35%~45%(w/w)、35%~55%(w/w)、35%~65%(w/w)、35%~75%(w/w)、35%~85%(w/w)、40%~50%(w/w)、40%~60%(w/w)、40%~70%(w/w)、40%~80%(w/w)、40%~90%(w/w)、45%~55%(w/w)、45%~65%(w/w)、45%~75%(w/w)、45%~85%(w/w)、45%~95%(w/w)、50%~60%(w/w)、50%~70%(w/w)、50%~80%(w/w)、50%~90%(w/w)、55%~65%(w/w)、55%~75%(w/w)、55%~85%(w/w)、55%~95%(w/w)、60%~70%(w/w)、60%~80%(w/w)、60%~90%(w/w)、65%~75%(w/w)、65%~85%(w/w)、65%~95%(w/w)、70%~80%(w/w)、70%~90%(w/w)、75%~85%(w/w)、75%~95%(w/w)、80%~90%(w/w)、又は85%~95%(w/w)の第1のアイオノマーを含む、実施形態1乃至5のいずれか1つのカソード触媒層。

7. 第2の副層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む、実施形態1乃至6のいずれか1つのカソード触媒層。

8. 第2の副層が、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを更に含む、実施形態1乃至7のいずれか1つのカソード触媒層。

9. 第2の副層が、少なくとも5%(w/w)、10%(w/w)、15%(w/w)、20%(w/w)、25%(w/w)、30%(w/w)、35%(w/w)、少なくとも40%(w/w)、少なくとも45%(w/w)、少なくとも50%(w/w)、少なくとも55%(w/w)、少なくとも60%(w/w)、少なくとも65%(w/w)、少なくとも70%(w/w)、少なくとも75%(w/w)、少なくとも80%(w/w)、少なくとも85%(w/w)、少なくとも90%(w/w)、又は少なくとも95%(w/w)の第2のアイオノマーを含む、実施形態1乃至8のいずれか1つのカソード触媒層。

10. 第2の副層が、5%~25%(w/w)、5%~50%(w/w)、5%~75%(w/w)、10%~30%(w/w)、10%~55%(w/w)、10%~80%(w/w)、15%~35%(w/w)、15%~60%(w/w)、15%~85%(w/w)、20%~40%(w/w)、20%~65%(w/w)、20%~90%(w/w)、25%~45%(w/w)、25%~70%(w/w)、25%~95%(w/w)、30%~50%(w/w)、30%~75%(w/w)、35%~55%(w/w)、35%~80%(w/w)、40%~60%(w/w)、40%~85%(w/w)、45%~65%(w/w)、45%~90%(w/w)、50%~70%(w/w)、50%~95%(w/w)、55%~75%(w/w)、60%~80%(w/w)、65%~85%(w/w)、70%~90%(w/w)、又は75%~95%(w/w)の第2のアイオノマーを含む、実施形態1乃至9のいずれか1つのカソード触媒層。

11. 第1の副層が、5 g sm~15 g smの範囲の触媒充填量を有する、実施形態1乃至10のいずれか1つのカソード触媒層。

12. 第1の副層が、約10 g smの触媒充填量を有する、実施形態1乃至11のいずれか1つのカソード触媒層。

13. 第1の副層が、少なくとも20 μm、少なくとも25 μm、少なくとも30 μm、少なくとも35 μm、少なくとも40 μm、少なくとも45 μm、少なくとも50 μm、少なくとも55 μm、少なくとも60 μm、又は少なくとも65 μmの厚さを有する、実施形態1乃至12のいずれか1つのカソード触媒層。

14. 第1の副層が、 $20\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ 、 $20\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ 、 $20\mu\text{m}\sim 60\mu\text{m}$ 、 $20\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $25\mu\text{m}\sim 45\mu\text{m}$ 、 $25\mu\text{m}\sim 55\mu\text{m}$ 、 $25\mu\text{m}\sim 65\mu\text{m}$ 、 $25\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}\sim 60\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $30\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 55\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 65\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 60\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $45\mu\text{m}\sim 65\mu\text{m}$ 、 $45\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $55\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、又は $60\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ の範囲の厚さを有する、実施形態1乃至13のいずれか1つのカソード触媒層。

15. 第1の副層が少なくとも $30\mu\text{m}$ の厚さを有する、実施形態1乃至14のいずれか1つのカソード触媒層。

16. 第2の副層が、 $10\text{gsm}\sim 20\text{gsm}$ の範囲の触媒充填量を有する、実施形態1乃至15のいずれか1つのカソード触媒層。

17. 第2の副層が、約 15gsm の触媒充填量を有する、実施形態1乃至16のいずれか1つのカソード触媒層。

18. 第2の副層が、少なくとも $35\mu\text{m}$ 、少なくとも $40\mu\text{m}$ 、少なくとも $45\mu\text{m}$ 、少なくとも $50\mu\text{m}$ 、少なくとも $55\mu\text{m}$ 、少なくとも $60\mu\text{m}$ 、少なくとも $65\mu\text{m}$ 、少なくとも $70\mu\text{m}$ 、少なくとも $75\mu\text{m}$ 、又は少なくとも $80\mu\text{m}$ の厚さを有する、実施形態1乃至17のいずれか1つのカソード触媒層。

19. 第2の副層が、 $35\mu\text{m}\sim 55\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 60\mu\text{m}$ 、 $45\mu\text{m}\sim 65\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $55\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $60\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $65\mu\text{m}\sim 85\mu\text{m}$ 、 $70\mu\text{m}\sim 90\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 65\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ 、 $45\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $55\mu\text{m}\sim 85\mu\text{m}$ 、 $60\mu\text{m}\sim 90\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 75\mu\text{m}$ 、 $40\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、 $45\mu\text{m}\sim 85\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}\sim 90\mu\text{m}$ 、 $35\mu\text{m}\sim 85\mu\text{m}$ 、又は $40\mu\text{m}\sim 90\mu\text{m}$ の範囲の厚さを有する、実施形態1乃至18のいずれか1つのカソード触媒層。

20. 第2の副層が約 $70\mu\text{m}$ の厚さを有する、実施形態1乃至19のいずれか1つのカソード触媒層。

21. 第2の副層がガス拡散層(GDL)と接触する、実施形態1乃至20のいずれか1つのカソード触媒層。

22. 第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを含む第3の副層を更に有する、実施形態1乃至20のいずれか1つのカソード触媒層。

23. 第1のアイオノマーの等価質量が 700g/mol 以下であり、第2のアイオノマーの等価質量が 700g/mol を超える、実施形態1又は3乃至22のいずれか1つのカソード触媒層。

24. 第1のアイオノマーの等価質量が $500\text{g/mol}\sim 700\text{g/mol}$ の範囲であり、第2のアイオノマーの等価質量が $900\text{g/mol}\sim 1100\text{g/mol}$ の範囲である、実施形態1又は3乃至23のいずれか1つのカソード触媒層。

25. 第1のアイオノマーの等価質量が約 700g/mol であり、第2のアイオノマーの等価質量が約 1100g/mol である、実施形態1又は3乃至24のいずれか1つのカソード触媒層。

26. 第1のアイオノマーが低等価質量である、実施形態1又は3乃至22のいずれか1つのカソード触媒層。

27. 低等価質量が $400\text{g/mol}\sim 600\text{g/mol}$ の範囲である、実施形態2乃至22又は26のいずれか1つのカソード触媒層。

28. 低等価質量が約 600g/mol である、実施形態2乃至22、26、又は27のいずれか1つのカソード触媒層。

29. 低等価質量が約 500g/mol である、実施形態2乃至22、26、又は27のいずれか1つのカソード触媒層。

30. 高等価質量が $700\text{g/mol}\sim 1100\text{g/mol}$ の範囲である、実施形態2乃至22又は27乃至29のいずれか1つのカソード触媒層。

10

20

30

40

50

31. 高等価質量が約700 g/molである、実施形態2乃至22、又は27乃至30のいずれか1つのカソード触媒層。

32. 高等価質量が約800 g/molである、実施形態2乃至22又は27乃至30のいずれか1つのカソード触媒層。

33. プロトン交換膜と、

カソードであって、

ガス拡散層(GDL)と、

カソード触媒層(CCL)と、

を有し、カソード触媒層(CCL)が、

非貴金属触媒と第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、

非貴金属触媒と、当該第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第2のアイオノマーとを含む第2の副層と、

を有する、カソードと、

アノードと、

を有する膜電極接合体。

34. プロトン交換膜と、

カソードであって、

ガス拡散層(GDL)と、

カソード触媒層(CCL)と、

を有し、当該カソード触媒層(CCL)が、

非貴金属触媒と低等価質量の第1のアイオノマーとを含み、当該プロトン交換膜と接触する第1の副層と、

非貴金属触媒と、高等価質量の第2のアイオノマーとを含む第2の副層と、

を有する、カソードと、

アノードと、

を有する膜電極接合体。

35. 第1の副層が、第2のアイオノマーを更に含む、実施形態33又は34の膜電極接合体。

36. 第1の副層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む、実施形態33乃至35のいずれか1つの膜電極接合体。

37. 第1の副層が、少なくとも25% (w/w)、少なくとも30% (w/w)、少なくとも35% (w/w)、少なくとも40% (w/w)、少なくとも45% (w/w)、少なくとも50% (w/w)、少なくとも55% (w/w)、少なくとも60% (w/w)、少なくとも65% (w/w)、少なくとも70% (w/w)、少なくとも75% (w/w)、少なくとも80% (w/w)、少なくとも85% (w/w)、少なくとも90% (w/w)、又は少なくとも95% (w/w)の第1のアイオノマーを含む、実施形態33乃至36のいずれか1つの膜電極接合体。

38. 第1の副層が、25%~45% (w/w)、25%~70% (w/w)、25%~95% (w/w)、30%~40% (w/w)、30%~50% (w/w)、30%~60% (w/w)、30%~70% (w/w)、30%~75% (w/w)、30%~80% (w/w)、30%~90% (w/w)、35%~45% (w/w)、35%~55% (w/w)、35%~65% (w/w)、35%~75% (w/w)、35%~85% (w/w)、40%~50% (w/w)、40%~60% (w/w)、40%~70% (w/w)、40%~80% (w/w)、40%~90% (w/w)、45%~55% (w/w)、45%~65% (w/w)、45%~75% (w/w)、45%~85% (w/w)、45%~95% (w/w)、50%~60% (w/w)、50%~70% (w/w)、50%~80% (w/w)、50%~90% (w/w)、55%~65% (w/w)、55%~75% (w/w)、55%~85% (w/w)、55%~95% (w/w)、60%~70% (w/w)、60%~80% (w/w)、60%~90% (w/w)、65

10

20

30

40

50

%～75% (w/w)、65%～85% (w/w)、65%～95% (w/w)、70%～80% (w/w)、70%～90% (w/w)、75%～85% (w/w)、75%～95% (w/w)、80%～90% (w/w)、又は85%～95% (w/w)の第1のアイオノマーを含む、実施形態33乃至37のいずれか1つの膜電極接合体。

39. 第2の副層が、第1のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第3のアイオノマーを更に含む、実施形態33乃至38のいずれか1つの膜電極接合体。

40. 第2の副層が、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを更に含む、実施形態33乃至39のいずれか1つの膜電極接合体。

41. 第2の副層が、少なくとも5% (w/w)、10% (w/w)、15% (w/w)、20% (w/w)、25% (w/w)、30% (w/w)、35% (w/w)、少なくとも40% (w/w)、少なくとも45% (w/w)、少なくとも50% (w/w)、少なくとも55% (w/w)、少なくとも60% (w/w)、少なくとも65% (w/w)、少なくとも70% (w/w)、少なくとも75% (w/w)、少なくとも80% (w/w)、少なくとも85% (w/w)、少なくとも90% (w/w)、又は少なくとも95% (w/w)の第2のアイオノマーを含む、実施形態33乃至40のいずれか1つの膜電極接合体。

10

42. 第2の副層が、5%～25% (w/w)、5%～50% (w/w)、5%～75% (w/w)、10%～30% (w/w)、10%～55% (w/w)、10%～80% (w/w)、15%～35% (w/w)、15%～60% (w/w)、15%～85% (w/w)、20%～40% (w/w)、20%～65% (w/w)、20%～90% (w/w)、25%～45% (w/w)、25%～70% (w/w)、25%～95% (w/w)、30%～50% (w/w)、30%～75% (w/w)、35%～55% (w/w)、35%～80% (w/w)、40%～60% (w/w)、40%～85% (w/w)、45%～65% (w/w)、45%～90% (w/w)、50%～70% (w/w)、50%～95% (w/w)、55%～75% (w/w)、60%～80% (w/w)、65%～85% (w/w)、70%～90% (w/w)、又は75%～95% (w/w)の第2のアイオノマーを含む、実施形態33乃至41のいずれか1つの膜電極接合体。

20

43. 第1の副層が、5 g sm～15 g smの範囲の触媒充填量を有する、実施形態33乃至42のいずれか1つの膜電極接合体。

44. 第1の副層が、約10 g smの触媒充填量を有する、実施形態33乃至43のいずれか1つの膜電極接合体。

30

45. 第1の副層が、少なくとも20 μm、少なくとも25 μm、少なくとも30 μm、少なくとも35 μm、少なくとも40 μm、少なくとも45 μm、少なくとも50 μm、少なくとも55 μm、少なくとも60 μm、又は少なくとも65 μmの厚さを有する、実施形態33乃至44のいずれか1つの膜電極接合体。

46. 第1の副層が、20 μm～40 μm、20 μm～50 μm、20 μm～60 μm、20 μm～70 μm、25 μm～45 μm、25 μm～55 μm、25 μm～65 μm、25 μm～75 μm、30 μm～50 μm、30 μm～60 μm、30 μm～70 μm、30 μm～80 μm、35 μm～55 μm、35 μm～65 μm、35 μm～75 μm、40 μm～60 μm、40 μm～70 μm、40 μm～80 μm、45 μm～65 μm、45 μm～75 μm、50 μm～70 μm、50 μm～80 μm、55 μm～75 μm、又は60 μm～80 μmの範囲の厚さを有する、実施形態33乃至45のいずれか1つの膜電極接合体。

40

47. 第1の副層が少なくとも30 μmの厚さを有する、実施形態33乃至46のいずれか1つの膜電極接合体。

48. 第2の副層が、10 g sm～20 g smの範囲の触媒充填量を有する、実施形態33乃至47のいずれか1つの膜電極接合体。

49. 第2の副層が、約15 g smの触媒充填量を有する、実施形態33乃至48のいずれか1つの膜電極接合体。

50. 第2の副層が、少なくとも35 μm、少なくとも40 μm、少なくとも45 μm、

50

少なくとも50 μm 、少なくとも55 μm 、少なくとも60 μm 、少なくとも65 μm 、少なくとも70 μm 、少なくとも75 μm 、又は少なくとも80 μm の厚さを有する、実施形態33乃至49のいずれか1つの膜電極接合体。

51. 第2の副層が、35 μm ～55 μm 、40 μm ～60 μm 、45 μm ～65 μm 、50 μm ～70 μm 、55 μm ～75 μm 、60 μm ～80 μm 、65 μm ～85 μm 、70 μm ～90 μm 、35 μm ～65 μm 、40 μm ～70 μm 、45 μm ～75 μm 、50 μm ～80 μm 、55 μm ～85 μm 、60 μm ～90 μm 、35 μm ～75 μm 、40 μm ～80 μm 、45 μm ～85 μm 、50 μm ～90 μm 、35 μm ～85 μm 、又は40 μm ～90 μm の範囲の厚さを有する、実施形態33乃至50のいずれか1つの膜電極接合体。

10

52. 第2の副層が約70 μm の厚さを有する、実施形態33乃至51のいずれか1つの膜電極接合体。

53. 第2の副層がGDLと接触する、実施形態33乃至52のいずれか1つの膜電極接合体。

54. CCLが、第2のアイオノマーの等価質量より高い等価質量を有する第4のアイオノマーを含む第3の副層を更に有する、実施形態33乃至52のいずれか1つの膜電極接合体。

55. 第1のアイオノマーの等価質量が700 g/mol以下であり、第2のアイオノマーの等価質量が700 g/molを超える、実施形態33又は35乃至54のいずれか1つの膜電極接合体。

20

56. 第1のアイオノマーの等価質量が500 g/mol～700 g/molの範囲であり、第2のアイオノマーの等価質量が900 g/mol～1100 g/molの範囲である、実施形態33又は35乃至55のいずれか1つの膜電極接合体。

57. 第1のアイオノマーの等価質量が約700 g/molであり、第2のアイオノマーの等価質量が約1100 g/molである、実施形態33又は35乃至56のいずれか1つの膜電極接合体。

58. 第1のアイオノマーが低等価質量である、実施形態33又は35乃至54のいずれか1つの膜電極接合体。

59. 低等価質量が400 g/mol～600 g/molの範囲である、実施形態34乃至54又は58のいずれか1つの膜電極接合体。

30

60. 低等価質量が約600 g/molである、実施形態34乃至54、58、又は59のいずれか1つの膜電極接合体。

61. 低等価質量が約500 g/molである、実施形態34乃至54、58、又は59のいずれか1つの膜電極接合体。

62. 高等価質量が700 g/mol～1100 g/molの範囲である、実施形態34乃至54又は59乃至61のいずれか1つの膜電極接合体。

63. 高等価質量が約700 g/molである、実施形態34乃至54、又は59乃至62のいずれか1つの膜電極接合体。

64. 高等価質量が約800 g/molである、実施形態34乃至54又は59乃至62のいずれか1つの膜電極接合体。

40

65. 実施形態33乃至64のいずれか1つの膜電極接合体、又は実施形態1乃至32のいずれか1つのカソード触媒層を有する燃料電池システム。

【0101】

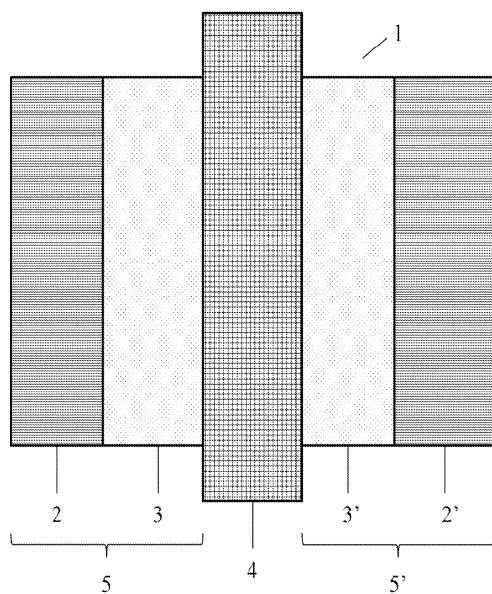
上述の種々の実施形態を組合せて更なる実施形態を提供してもよい。本明細書において引用された、及び／又は、出願データシートにおいて記載された、米国特許出願第62/402338号を含む全ての米国特許、米国特許出願公開、米国特許出願、外国特許、外国特許出願、及び非特許の出版物は、各々、その全体が、引用することにより本明細書の一部をなす。種々の特許、出願、及び出版物の概念を採用して更なる実施形態を提供するのに必要である場合は、上記実施形態の態様を修正することができる。

【0102】

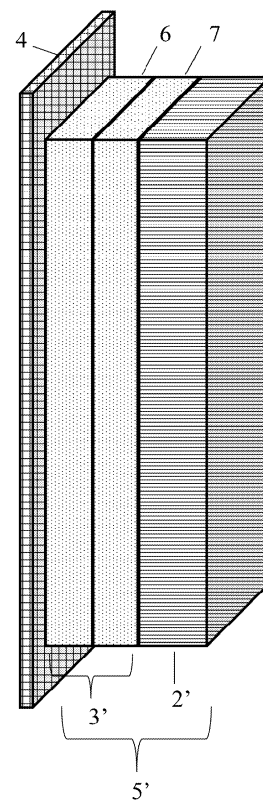
50

最後に、本明細書に開示された本開示の実施形態は、本開示の原理の実例であると理解されるべきである。本開示の範囲内であれば、他の修正を採用してもよい。よって、特許請求の範囲において使用する語は、その請求項を、本明細書及び特許請求の範囲に開示された特定の実施形態に限定すると解釈されるべきではなく、特許が付与される等価物の全範囲を網羅する全ての可能な実施形態を包含すると解釈されるべきである。したがって、特許請求の範囲は本開示によって限定されるものではない。

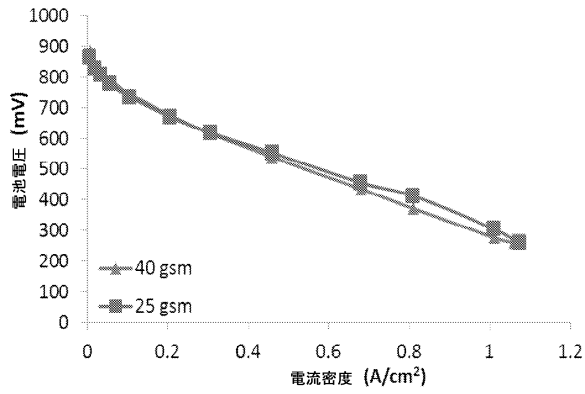
【図 1】



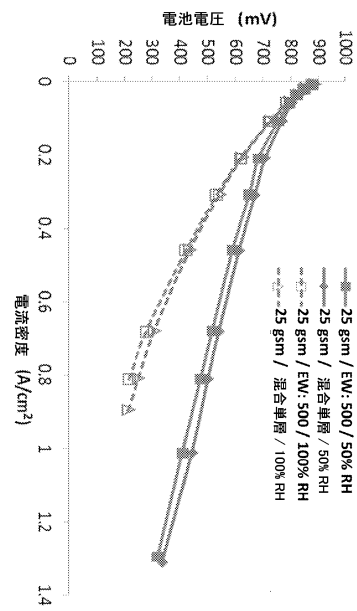
【図 2】



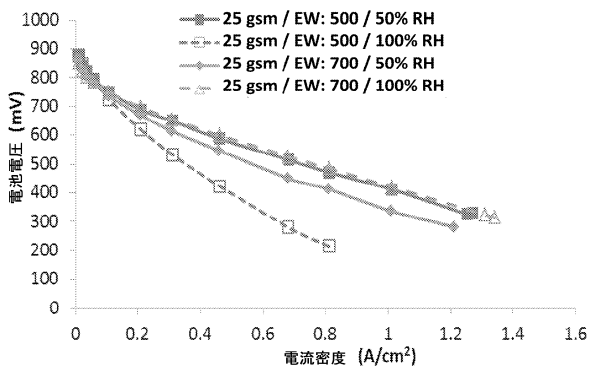
【図 3】



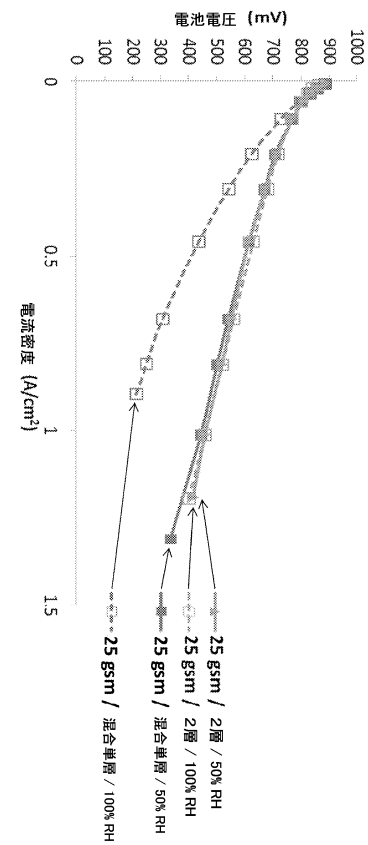
【図 5】



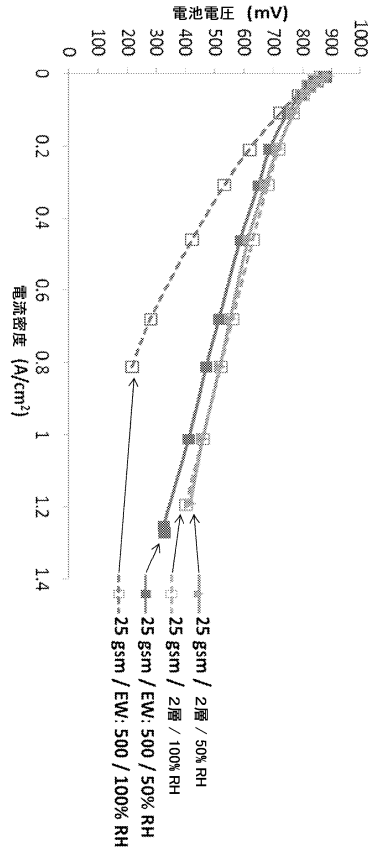
【図 4】



【図 7】



【図 6】



フロントページの続き

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

(72)発明者 岸本 武亮
千葉県千葉市緑区大野台1-2-3

(72)発明者 バイ キョン
カナダ プリティッシュコロンビア州、バンクーバー、イーストシックス ス アベニュー ナンバ
ー301-507

審査官 上野 文城

(56)参考文献 特開2008-176990 (JP, A)
特表平03-502982 (JP, A)
特開2011-124223 (JP, A)
国際公開第2016/007671 (WO, A1)
特開2001-338654 (JP, A)
特表2012-513659 (JP, A)
特開平10-284087 (JP, A)
特開2013-254714 (JP, A)
韓国公開特許第10-2007-0106303 (KR, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H 0 1 M 4/86
H 0 1 M 8/1004
B 0 1 J 23/745
H 0 1 M 4/90
H 0 1 M 8/10