



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2012년02월29일  
(11) 등록번호 10-1122473  
(24) 등록일자 2012년01월30일

(51) Int. Cl.

*H01M 4/86* (2006.01) *H01M 8/02* (2006.01)

*H01M 8/10* (2006.01)

(21) 출원번호 10-2006-7003958

(22) 출원일자(국제출원일자) 2004년08월27일

심사청구일자 2009년07월30일

(85) 번역문제출일자 2006년02월27일

(65) 공개번호 10-2006-0120624

(43) 공개일자 2006년11월27일

(86) 국제출원번호 PCT/US2004/028133

(87) 국제공개번호 WO 2005/035247

국제공개일자 2005년04월21일

(30) 우선권주장

60/498,818 2003년08월29일 미국(US)

(56) 선행기술조사문헌

WO2002025753 A1

WO2003058731 A1

US6423439 B1

US5464700 A

전체 청구항 수 : 총 18 항

심사관 : 양경식

(54) 단위화된 막 전극 조립체 및 그의 제조 방법

### (57) 요 약

본 발명은 1 단계의 압축 성형 방법에 의한 연부 밀폐가 향상된 단위화된 막 전극 조립체를 제공한다.

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

- (a) 유체 불투과성 중합체가 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제1 다공성 기체 확산 배면층,
- (b) 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 외부 연부 내에 외부 연부를 갖는 중합체 전해질 막,
- (c) 상기 제1 확산 배면층과 상기 중합체 전해질 막 사이에 위치하며, 상기 중합체 전해질 막 표면과 동연 (coextensive)되어 있는 제1 전기촉매층,
- (d) 유체 불투과성 중합체가 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제2 다공성 기체 확산 배면층,
- (e) 상기 제2 확산 배면층과 상기 중합체 전해질 막 사이에 위치하고, 상기 중합체 전해질 막 표면과 동연되어 있는 제2 전기촉매층,
- (f) 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 방지하도록 단위화된 막 전극 조립체 내에 위치하며, 그의 내부 연부가 중합체 전해질 막의 외부 연부와 겹쳐져 있는 하나 이상의 틀 형상 절연층, 및
- (g) 중합체 전해질 막의 외부 연부를 감싸는 유체 불투과성 중합체의 밀폐물  
을 포함하는 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 상기 제1 및 제2 전기촉매층이 중합체 전해질 막 표면에 존재하는 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 3

제2항에 있어서, 틀형 절연층이 두 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이에 존재하는 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 4

제1항에 있어서, 밀폐 중합체가 열가소성 중합체인 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 5

제1항에 있어서, 절연층이 섬유 유리 천, 파라-아라미드 섬유 기재 종이, 폴리이미드 필름, 폴리아미드 필름, 폴리에스테르 필름, 개질 선형 저밀도 폴리올레핀, 및 수지 매트릭스 중의 입자 또는 섬유로 구성된 군으로부터 선택된 것인 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 6

- (a) 유체 불투과성 중합체가 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제1 다공성 기체 확산 배면층,
- (b) 상기 제1 기체 확산 배면층의 내부 표면에 존재하는 제1 전기촉매층,
- (c) 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 외부 연부 내에 외부 연부를 갖는 중합체 전해질 막,
- (d) 유체 불투과성 중합체가 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제2 다공성 기체 확산 배면층,
- (e) 제2 기체 확산 배면층의 내부 표면에 존재하는 제2 전기촉매층,
- (f) 상기 중합체 전해질 막과 제2 전기촉매층 사이에 위치하고, 그의 내부 연부가 상기 중합체 전해질 막의 외부 연부와 겹쳐져 있으며, 그의 외부 연부가 기체 확산 배면층의 연부와 일치하는 하나 이상의 틀 형상 절연층, 및
- (g) 중합체 전해질 막의 외부 연부를 감싸는 유체 불투과성 중합체 밀폐물  
을 포함하는 단위화된 막 전극 조립체.

### 청구항 7

- (a) 밀폐 연부와 제1 및 제2 표면을 갖는 제1 기체 확산 배면층, 제1 전기촉매층, 외부 연부를 갖는 중합체 전해질 막, 제2 전기촉매층, 및 밀폐 연부와 제1 및 제2 표면을 갖는 제2 기체 확산 배면층을 이 순서대로 포함하

고,

제1 틀 형상 밀폐 중합체 층은 제1 기체 확산 배면층의 어느 한 측면에 위치할 수 있고 제2 틀 형상 밀폐 중합체 층은 제2 기체 확산 배면층의 어느 한 측면에 위치할 수 있으며 이들 틀 형상 밀폐 중합체 층이 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부와 겹쳐져 있는, 내부 및 외부 연부를 갖는 제1 및 제2의 틀 형상 밀폐 중합체 층을 더 포함하며,

제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이에 위치하며 그의 내부 연부가 중합체 막의 외부 연부와 겹쳐져 있는, 내부 및 외부 층 연부를 갖는 틀 형상 절연층을 더 포함하는,

다층 샌드위치를 형성하는 단계, 및

(b) 다층 샌드위치를 압축 성형하며, 이 때 밀폐 중합체가 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부 내에 함침되고, 밀폐 중합체가 중합체 전해질 막을 감싸 중합체 유체 불투과성 밀폐물을 형성하고, 틀 형상 절연층이 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 방지하는 단계를 포함하는,

압축 성형을 사용한 단위화된 막 전극 조립체의 제조 방법.

#### 청구항 8

제7항에 있어서, 제1 및 제2 전기촉매층이 중합체 전해질 막 상에 존재하여 촉매 코팅된 막을 형성하는 방법.

#### 청구항 9

제8항에 있어서, 제1 및 제2 전기촉매층이 중합체 전해질 막의 외부 연부로 연장되어 있는 방법.

#### 청구항 10

제7항에 있어서, 제1 및 제2 전기촉매층이 중합체 전해질 막과 대면하는 측면 상의 제1 및 제2 기체 확산 배면층 상에 존재하여 기체 확산 전극을 형성하는 방법.

#### 청구항 11

제7항에 있어서, 제1 또는 제2 기체 확산 배면층 또는 이들 두 기체 확산 배면층의 양 측면 상에 위치하는 추가적인 틀형 밀폐 중합체 층을 더 포함하는 방법.

#### 청구항 12

제7항에 있어서, 절연층이 섬유 유리 천, 파라-아라미드 섬유 기재 종이, 폴리이미드 필름, 폴리아미드 필름, 폴리에스테르 필름, 개질 선형 저밀도 폴리올레핀, 및 수지 매트릭스 중의 입자 또는 섬유로 구성된 군으로부터 선택된 것인 방법.

#### 청구항 13

제7항에 있어서, 다층 샌드위치 주위에 위치한 하나 이상의 이형층을 더 포함하는 방법.

#### 청구항 14

제13항에 있어서, 하나 이상의 쉼(shim)이 다층 샌드위치로부터 떨어진 표면의 이형층 상에 존재하는 방법.

#### 청구항 15

제14항에 있어서, 쉼이 틀 형상의 형태를 갖는 것인 방법.

#### 청구항 16

제7항에 있어서, 단계 (b) 이후에 압축 성형된 다층 샌드위치가 손질되는 방법.

#### 청구항 17

제15항에 있어서, 단계 (b) 이후에 압축 성형된 다층 샌드위치가 손질되는 방법.

청구항 18

제1항의 단위화된 막 전극 조립체를 포함하는 전기화학 전지.

청구항 19

삭제

청구항 20

삭제

청구항 21

삭제

청구항 22

삭제

청구항 23

삭제

청구항 24

삭제

청구항 25

삭제

청구항 26

삭제

청구항 27

삭제

청구항 28

삭제

청구항 29

삭제

청구항 30

삭제

청구항 31

삭제

청구항 32

삭제

청구항 33

삭제

## 청구항 34

삭제

## 청구항 35

삭제

## 청구항 36

삭제

## 청구항 37

삭제

## 청구항 38

삭제

## 청구항 39

삭제

## 청구항 40

삭제

## 명세서

## 기술분야

[0001]

본 발명은 전기화학 전지에 사용되는 단위화된 막 전극 조립체(UMEA), 보다 구체적으로는 절연층을 사용하여 성분을 서로 전기적으로 단리시킨 단위화된 막 전극 조립체에 관한 것이다. 또한, 본 발명은 높은 생산성을 제공하는, 단위화된 막 전극 조립체를 제조하기 위한 1 단계 압축 성형 방법에 관한 것이다.

## 배경기술

[0002]

각종 전기화학 전지는 종종 고체 중합체 전해질("SPE") 전지로서 언급되는 전지의 범주에 포함된다. SPE 전지는 전형적으로 양극(anode)과 음극(cathode) 사이의 물리적 격리판으로서 역할을 하는 반면 또한 전해질로서 역할을 하는 양이온 교환 중합체의 막을 사용한다. SPE 전지는 전기화학 제품의 생산을 위한 전해질 전지로서 작용할 수 있거나 또는 연료 전지로서 작용할 수 있다.

[0003]

연료 전지는 반응물, 즉 연료 및 산화제 유체의 흐름을 전환시켜 전력과 반응 생성물을 발생시키는 전기화학 전지이다. 넓은 범위의 반응물이 연료 전지에 사용될 수 있으며, 기체 또는 액체의 흐름 중에서 운반된다. 예를 들면, 연료의 흐름은 실질적으로 순수한 수소 기체, 기체 수소 개질유의 흐름, 또는 수성 알콜, 예를 들면 직접 메탄을 연료 전지(DMFC)의 메탄올일 수 있다. 산화제는, 예를 들면 실질적으로 순수한 산소, 또는 공기와 같은 희석된 산소의 흐름일 수 있다.

[0004]

SPE 연료 전지에서, 고체 중합체 전해질 막은 전형적으로 산 형태의 퍼플루오르화된 셀론산 중합체 막이다. 이러한 연료 전지는 양성자 교환 막("PEM") 연료 전지로 종종 언급된다. 막은 양극과 음극 사이 및 양극과 음극에 접촉하여 배치된다. 양극 및 음극의 전극촉매는 목적하는 전기화학 반응을 유도하고, 예를 들면 기관상에 지지된 금속 블랙(metal black), 합금 또는 금속 촉매(예를 들어, 탄소상의 백금)일 수 있다. SPE 연료 전지는 또한 전형적으로 각 전극과 전기적으로 접촉하고 있는, 다공성이며 전기적으로 전도성인 쉬트 물질을 가지며, 이는 전극으로의 반응물의 확산을 가능케 한다. 기체 반응물을 사용하는 연료 전지에서, 상기 다공성 전도성 쉬트 물질은 때때로 기체 확산 배면물("GDB")로 언급되는데, 이는 전형적으로 탄소 섬유 종이이거나 탄소 천이다. 막, 양극, 음극 및 각 전극의 기체 확산 배면층을 포함하는 조립체는 일반적으로 막 전극 조립체("MEA")라 불리운다. 반응물에 대한 유동장(flow field)을 제공하는 전도성 물질로 제조된 유동장 판은 인접한 MEA 사이에 위치한다. 다수의 MEA 및 유동장 판이 이러한 방식으로 조립되어 연료 전지 스택(fuel cell stack)을 제공

한다.

[0005] 2004년 6월 17일자로 공개된 US 2004/0112532 A1에는 연부 밀폐된 MEA 제조 방법이 개시되어 있다. 한 실시양태에서, 열가소성 물질의 2개의 환상 층, 측매 코팅된 막(CCM), 및 측매 코팅이 없는 주변부가 GDL의 연부 너머로 연장된 2개의 연부 비밀폐된 기체 확산 층(GDL)은 1 단계 방법으로 서로 결합된다. 상기 공개된 출원에는 또한 열가소성 물질의 2개의 환상 층, CCM, 1개의 연부 비밀폐된 GDL, 제2의 연부 밀폐된 GDL을 사용하는 2 단계 방법이 기술되어 있으며, 여기서 (측매 코팅이 없는) 막의 주변부는 GDL의 연부 내에 체류한다. 이 2 단계 방법에서 연부 코팅된 GDL은 별도의 선행 단계에서 제작된다. 대안적으로, 상기 공개된 출원에는 환상 스크림 (scrim) 층이 CCM의 주위를 둘러싸고, 스크림은 GDL의 연부내에 체류하는 방법이 개시되어 있다.

[0006] US 2004/0112532 A1에 개시된 대부분의 단일 제조 단계의 실시양태는 막의 연부가 MEA의 외부 연부까지 연장되어 있는 것처럼 기술하고 있다. 이 고안에서, 막의 연장된 부분은 GDL이 서로 접촉하는 것을 방지하고, 따라서 원하지 않는 전기 경로를 피한다. 그러나, 이러한 막의 연장은 연료 전지 냉각제가 그의 노출된 연부와 접촉하여 MEA의 분해를 야기할 수 있기 때문에 종종 바람직하지 않다.

[0007] 상기 공개된 출원에는 GDL의 연부로 연장되지 않는 막의 주위를 둘러싸는 환상 스크림의 사용이 추가로 개시되어 있다. 그러나, 이러한 구조는 환상 스크림 층의 연부와 중합체 막의 연부 사이의 틈을 발생시킬 수 있는 정렬 또는 크기조정(sizing)에서의 부정확성을 피하기 위해 주의해야 하기 때문에 제조하기가 어렵다. 이러한 틈으로 인해 기체 확산 배면층이 서로 접촉할 수 있고, 그 결과 원하지 않는 전기 경로가 생성될 수 있다. 게다가, 용융 열가소성 물질은 고온 압착 동안 측면으로 흐르는 경향이 있어, 막의 경계가 이동하여 스크림 층으로부터 분리될 수 있다. 이러한 분리는 원하지 않는 전기 경로의 잠재성을 증가시킨다.

[0008] 상기 공개된 출원에는 열가소성 물질의 환상 층과 형상 및 크기가 실질적으로 동일한 쉼(shim)의 사용이 개시되어 있고, 이로 인해 쉼의 내부 연부와 열가소성 물질의 환상 층은 동연(coextensive)되어 있다. 내부 연부가 동연되어 있음으로써 발생하는 단점은 고온 압착 단계 동안 쉼의 연부 너머로 용융 열가소성 물질이 측면으로 흘러 전기화학 활성 영역의 근처에서 밀폐 영역의 두께가 불균일하게 된다는 것이다.

[0009] 따라서, 단순한 도구를 이용하여, 적은 양 또는 많은 양의 UMEA를 제조하는 단순하고도 경제적인 방법이 여전히 요구되고 있다. 또한, 폭넓게 다양한 여러 연료 전지 고안에 적용할 수 있는 제작 방법이 여전히 요구되고 있다.

[0010] <발명의 개요>

[0011] 첫번째 면에서, 본 발명은

[0012] (a) 유체 불투과성 중합체가 실질적으로 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제1 다공성 기체 확산 배면층,

[0013] (b) 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 외부 연부 내에 외부 연부를 갖는 중합체 전해질 막,

[0014] (c) 상기 제1 확산 배면층과 상기 중합체 전해질 막 사이에 위치하며, 상기 중합체 전해질 막 표면과 본질적으로 동연(coextensive)되어 있는 제1 전기촉매층,

[0015] (d) 유체 불투과성 중합체가 실질적으로 균일하게 함침된 밀폐 연부를 갖는 제2 다공성 기체 확산 배면층,

[0016] (e) 상기 제2 확산 배면층과 상기 중합체 전해질 막 사이에 위치하고, 상기 중합체 전해질 막 표면과 본질적으로 동연되어 있으며, 제1 기체 확산 배면층 및 중합체 전해질 막의 계면에 존재하는 제2 전기촉매층,

[0017] (f) 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 방지하도록 단위화된 막 전극 조립체 내에 위치하며, 그의 내부 연부가 중합체 전해질 막의 외부 연부와 겹쳐져 있는 하나 이상의 틀 형상 절연층, 및

[0018] (g) 중합체 전해질 막의 외부 연부를 감싸는 유체 불투과성 중합체 밀폐물

[0019] 을 포함하는 단위화된 막 전극 조립체를 제공한다.

[0020] 틀형 절연층은 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부 사이에 존재하고, 틀형 절연층의 내부 연부는 중합체 막의 외부 연부와 겹쳐진다. 압축 성형될 적층 샌드위치의 조립에 앞서, 제1 및 제2 전기촉매 코팅 조성물을 중합체 막에 적용하여 촉매 코팅된 막을 형성할 수 있다. 이 실시양태는 촉매 코팅된 막(CCM)의 하위조립체를 사용하여 단위화된 막 전극 조립체를 제작할 경우 사용된다. 본 발명자들은 촉매 코팅이 막의 연부로 연장하는

연부 밀폐된 MEA 구조가 전형적으로 막 자체가 밀폐 물질과 접촉할 경우 겪게 되는 정도로 밀폐 물질과 CCM 사이에서 충돌을 보이지는 않는다는 것을 발견했다. 대안적으로, 압축 성형될 샌드위치의 조립에 앞서, 제1 및 제2 전기촉매 코팅 조성물을 중합체 막과 대면하는 측면 상의 제1 및 제2 기체 확산 배면층에 적용하여 기체 확산 전극을 형성할 수 있다. 그 후, 틀형 절연층은 제1 및 제2 전기촉매 코팅 조성물 사이에 존재할 것이다.

- [0021] 열가소성 중합체는 "압력 및 열의 적용에 의해 연화되고 흐르는 물질"이다.
- [0022] "밀폐 연부"는 UMEA 제작 동안 밀폐 중합체가 함침될 기체 확산 배면층의 구역으로서 정의된다. 밀폐 연부는 기체 확산 배면층의 외부 주위, 및 UMEA의 목적하는 활성 영역의 외부 주위(즉, 연료 전지의 작동 중 반응물을 전환하고 양성자를 수송하도록 고안된 막/촉매 코팅의 일부분)에 의해 물리적으로 규정된다.
- [0023] "유체 불투과성 밀폐물"이란 기체 또는 액체의 이동을 차단하는 장벽으로서 정의된다.
- [0024] "제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 방지한다"는 것은 코팅되거나 또는 코팅되지 않은 제1 및 제2의 기체 확산 배면층 사이의 전기적 도통이 효과적으로 차단된다는 것을 의미한다.
- [0025] "중합체 막의 외부 연부와 절연층의 내부 연부가 겹쳐진다"는 것은 중합체 막의 외부 연부가 절연층의 내부 연부를 지나 단위화된 막 전극 조립체의 외부 연부를 향하는 방향으로 연장한다는 것을 의미한다.
- [0026] "실질적으로 균일하게 함침된"이란 모든 밀폐 표면의 연부가 본원에 기술된 발명의 이점을 성취하기 위해 필요 한 정도로 함침되어 있고, UMEA의 성능 또는 내구성에 영향을 줄 밀폐 영역 전반에 걸쳐 함침 수준의 차이가 없다는 것을 의미한다.
- [0027] 두번째 면에서, 본 발명은 기체 확산 배면층이 전기촉매층을 갖는 구조의 기체 확산 전극(GDE)을 사용하여 제조한 UMEA를 제공한다. 전기촉매층은 적어도 UMEA의 활성 표면이 될 기체 확산 배면층의 일부를 덮고, 그와 동연되어 있을 수 있다. 이 실시양태에서, 절연층은 하나 이상의 전기촉매층 및 중합체 전해질 막 사이에 놓이고, 그 외부 연부는 기체 확산 배면층의 외부 연부와 동연되어 있고, 내부 연부는 중합체 전해질 막의 외부 연부와 겹쳐진다. 생성된 UMEA는 다른 점에서 상기 기술한 첫번째 UMEA와 실질적으로 동일하다.
- [0028] 세번째 면에서, 본 발명은
- [0029] (a) 밀폐 연부와 제1 및 제2 표면을 갖는 제1 기체 확산 배면층, 제1 전기촉매층, 외부 연부를 갖는 중합체 전해질 막, 제2 전기촉매층, 및 밀폐 연부와 제1 및 제2 표면을 갖는 제2 기체 확산 배면층을 이 순서대로 포함하고,
- [0030] 제1 틀 형상 밀폐 중합체 층은 제1 기체 확산 배면층의 어느 한 측면에 위치할 수 있고 제2 틀 형상 밀폐 중합체 층은 제2 기체 확산 배면층의 어느 한 측면에 위치할 수 있으며 이들 틀 형상 밀폐 중합체 층이 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부와 겹쳐져 있는, 내부 및 외부 연부를 갖는 제1 및 제2의 틀 형상 밀폐 중합체 층을 추가로 포함하며,
- [0031] 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이에 위치하며 내부 연부가 중합체 막의 외부 연부와 겹쳐져 있는, 내부 및 외부 층 연부를 갖는 틀 형상 절연층을 추가로 포함하는,
- [0032] 다층 샌드위치를 형성하고,
- [0033] (b) 다층 샌드위치를 판 사이에서 압축 성형하고(이 때, 밀폐 중합체가 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부 내에 함침되고, 밀폐 중합체는 제1 및 제2 기체 확산 배면층과 중합체 막 모두의 주변 영역을 감싸 유체 불투과성 밀폐물을 형성하고, 내부 연부와 외부 연부를 갖는 틀 형상 절연층은 제1 및 제2 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 방지함),
- [0034] (c) 과잉 물질을 손질하여 제거함으로써 최종 목적하는 형상을 형성하는 것을 포함하는,
- [0035] 압축 성형을 이용한 단위화된 막 전극 조립체의 제조 방법을 제공한다.
- [0036] 밀폐 중합체는 열경화성 또는 경화성 수지 중합체 또는 열가소성 중합체일 수 있다. 다층 샌드위치의 형성은 하나 이상의 쉼 및(또는) 이형층을 사용할 수 있다. 전형적인 접근법은 환상 열가소성 층의 내부 연부 너머로 쉼의 내부 연부를 연장시키는 것이다. 압축 성형될 샌드위치의 조립에 앞서, 제1 및 제2 전기촉매 조성물을 중합체 막에 적용하여 촉매 코팅된 막을 형성할 수 있다.

## 발명의 상세한 설명

[0039] 단위화된 막 전극 조립체(UMEA):

[0040] UMEA는 도 1A, 1B 및 1C에 나타낸, 밀폐 연부를 갖는 제1 기체 확산 배면층(13), 제1 밀폐 중합체(15), 제1 전기촉매층(12), 중합체 전해질 막(11), 절연층(14), 제2 밀폐 중합체(15'), 제2 전기촉매층(12'), 및 밀폐 연부를 갖는 제2 기체 확산 배면층(13')을 포함하는 다층 샌드위치(10)를 사용하여 제조된다. 바람직한 실시양태에서, 제1 및 제2 전기촉매층과 중합체 전해질 막은 미리 조립된 측매 코팅된 막으로서 제공된다. 도 2에 나타낸 UMEA는 UMEA의 내부 및 외부 영역 사이의 누전 경로를 방지하는 중합체 유체 불투과성 밀폐물(18)을 갖는다.

[0041] 밀폐 중합체는 열가소성 중합체이거나 또는 열경화성 또는 경화성 수지이다. 성형 동안, 밀폐 중합체는 제1 및 제2 기체 확산 배면층 (13) 및 (13')의 밀폐 연부내에 균일하게 함침된다. 생성된 밀폐물(18)은 중합체 막(11)을 감싼다. 성형 후에, UMEA는 손질되어 과잉 밀폐 중합체 및 기체 확산 배면층의 과잉 부분이 제거될 수 있으나, 단 이러한 손질은 중합체 전해질 막이 노출될 만큼 격심하지 않아야 한다.

[0042] 또 다른 실시양태에서, 전기촉매층은 기체 확산 배면층 상의 코팅으로서 제공된다(당업계에서 GDE로 공지됨). 이 실시양태에서, 절연층은 하나 이상의 GDE에 인접하고 그와 실질적으로 동연되어 있도록 제공된다. 절연층의 내부 연부는 상기에서 기술한 중합체 전해질 막과 겹쳐져 있다.

[0043] 기체 확산 배면물:

[0044] 기체 확산 배면층은 밀폐 연부 (13) 및 (13')를 갖고, 전형적으로 상호연결된 기공 또는 공극 구조를 갖는 다공성이며 전기적으로 전도성인 물질을 구성 요소로 한다. 전형적으로, 기체 확산 배면층은 물질의 르 또는 쉬트로부터 절단된다. 이 전기적으로 전도성인 물질은 탄소와 같은 내부식성 물질이며, 이는 섬유로 형성될 수 있다. 이러한 섬유상 탄소 구조물은 종이, 제작물 또는 부직물의 형태일 수 있다. 대안적으로, 전기적으로 전도성인 물질은 입자의 형태일 수 있다. 섬유상 탄소 구조물 및 전기적으로 전도성인 미립자 형태의 물질의 혼합물이 사용될 수 있다. 특정 적용에 따라, 전기적으로 전도성인 물질을 표면 처리하여 그의 표면 에너지를 증가시키거나 감소시켜, 소수성을 증가시키거나 감소시킬 수 있다.

[0045] 강도 또는 강성과 같은 목적하는 기계적 특성을 가진 구조물을 제공하기 위해 결합제가 존재할 수 있다. 결합제 자체는 상기 언급한 표면 처리의 부가적인 목적에 도움이 되도록 선택될 수 있다.

[0046] 미다공성 조성물이 또한 기체 확산 배면층의 하나 또는 둘 상에 임의로 존재할 수 있다. 이 조성물은 기체 확산 배면층의 한 표면 또는 두 표면 상에 위치하거나 또는 그 내에 함침되거나 또는 위치하고 함침되어, 전기촉매 코팅과의 미세한 정도의 전기적 접촉 및(또는) 유체 접촉을 제공할 수 있다. 추가로 이 조성물은 직접 메탄올 연료 전지의 양극 흐름 중의 이산화탄소 기포의 발산 또는 음극 산화제 흐름 중의 액체 물의 발산과 같은, 연료 전지 작동 동안 2상 유체 흐름을 허용하는 기체 확산 배면물의 능력을 강화시킬 수 있다. 이 조성물은 전기적으로 전도성인 입자와 결합제를 전형적으로 포함한다. 그 입자는 예를 들면, 캐보트사(Cabot Corporation)에서 제조한 불칸(Vulcan, 등록상표) XC72와 같은 높은 구조의 카본 블랙(high-structure carbon black)이거나 또는 아세틸렌 카본 블랙일 수 있다. 결합제는 예를 들면, 미국 델라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디네모아 앤드 컴파니(E.I. DuPont de Nemours & Company, Inc.)에서 제조한 테플론(Teflon, 등록상표) 폴리테트라플루오로에틸렌과 같은 중합체일 수 있다.

[0047] 제1 및 제2 전기촉매 코팅 조성물:

[0048] 나피온(Nafion, 등록상표) 중합체를 사용하여 제작한 것과 같은 양성자 전도성 막은 일반적으로 열가소성 중합체에 열악하게 부착되고, 연료 전지의 연장된 사용 및 반복적인 열과 습기의 순환 후에 밀폐 물질로부터 막이 충균열되는 경향이 있다. 이러한 충균열은 전형적으로 막 경계를 따라 교차 또는 측면 연부의 누전 경로를 발생시킨다. 그러나, 전기촉매 조성물과의 양호한 결합을 달성하는 것은 상대적으로 쉽다. 따라서, 코팅 조성물 (12) 및 (12')은 측매 코팅된 막(CCM)을 사용하는 실시양태에서 전해질 막과 실질적으로 동연되어 있다.

[0049] 전기촉매 코팅 조성물 (12) 및 (12')은 전기촉매 및 이온 교환 중합체를 함유하며, 상기 두 코팅 조성물은 동일 할 수도 있고 상이할 수도 있다. 이온 교환 중합체는 생성된 전극에서, 전기촉매용 결합제로서 역할을 하고 측매 장소에의 이온 전도성을 향상시키는 것과 같은 여러가지 기능을 수행할 수 있다. 임의로는, 다른 성분들, 예를 들면 당업자에게 친숙할 것이라는 이유로 입자 형태의 PTFE가 조성물에 포함된다.

[0050] 조성물 중의 전기촉매는 측매층에 대해 특별히 의도된 적용을 기초로 하여 선택된다. 본 발명에서 사용하기에 적합한 전기촉매는 백금, 루테늄, 로듐 및 이리듐, 및 이들의 전기전도성 산화물, 및 이들의 전기전도성 환원산화물과 같은 1종 이상의 백금족 금속을 포함한다. 측매는 지지되거나 또는 지지되지 않을 수 있다. 직접 매

탄올 연료 전지의 경우, (Pt-Ru)O<sub>x</sub> 전기촉매가 일반적으로 선택된다. 수소 연료 전지를 위한 특히 바람직한 촉매 조성물 중 하나는 탄소 상의 백금이며, 예를 들면 미국 매사추세츠주 나틱 소재의 이-텍사(E-Tek Corporation)에서 시판되는 60 중량% 탄소, 40 중량% 백금이 있다.

[0051] 전기촉매 코팅 조성물에 사용되는 이온 교환 중합체는 전기촉매 입자용 결합제로서 역할을 할 뿐만 아니라, 전극을 막에 고정하는 데 조력할 수 있기 때문에, 조성물 중의 이온 교환 중합체가 막 중의 이온 교환 중합체와 상용성이 있는 것이 바람직하다. 가장 바람직하게는, 전기촉매 코팅 조성물 중 교환 중합체는 막에 사용하기 위해 선택되는 이온 교환 중합체와 동일한 종류이다.

[0052] 본 발명에 따라 사용되는 이온 교환 중합체는 바람직하게는 고도로 플루오르화된 이온 교환 중합체이다. "고도로 플루오르화된"이란 중합체 중의 1가 원자의 총 개수의 90% 이상이 불소 원자임을 의미한다. 가장 바람직하게는, 중합체가 퍼플루오르화되어 있다. 또한, 연료 전지에서 사용하기 위해 중합체가 설포네이트 이온 교환기를 갖는 것이 바람직하다. 용어 "설포네이트 이온 교환기"는 설폰산기 또는 설폰산기의 염, 바람직하게는 알칼리 금속 또는 암모늄염을 지칭하고자 하는 의도이다. 중합체가 연료 전지에서처럼 양성자 교환을 위해 사용되는 적용의 경우에, 중합체의 설폰산 형태가 바람직하다. 만약 전기촉매 코팅 조성물 중의 중합체가 사용될 때 설폰산 형태가 아니라면, 사용에 앞서 중합체를 산 형태로 전환시키기 위해 후처리 산 교환 단계가 필요할 것이다.

[0053] 바람직하게는, 이온 교환 중합체는 이온 교환기를 함유하는 측쇄와 함께 골격에 부착된 반복적인 측쇄를 갖는 중합체 골격을 가진다. 가능한 중합체로는 단일중합체 또는 2종 이상의 단량체의 공중합체가 포함된다. 공중합체는 전형적으로 비관능성 단량체이며 중합체 골격에 탄소 원자를 제공하는 한 단량체로부터 형성된다. 제2 단량체는 중합체 골격에 2개의 탄소 원자를 제공하고 또한 양이온 교환기 또는 그의 전구체, 예를 들면 차후에 설포네이트 이온 교환기로 가수분해될 수 있는 설포닐 플루오라이드(-SO<sub>2</sub>F)와 같은 설포닐 할라이드기를 함유하는 측쇄를 제공한다. 예를 들면, 제1 플루오르화 비닐 단량체와 설포닐 플루오라이드기(-SO<sub>2</sub>F)를 갖는 제2 플루오르화 비닐 단량체의 공중합체가 사용될 수 있다. 가능한 제1 단량체로는 테트라플루오로에틸렌(TFE), 헥사플루오로프로필렌, 비닐 플루오라이드, 비닐리딘 플루오라이드, 트리플루오로에틸렌, 클로로트리플루오로에틸렌, 퍼플루오로(알킬 비닐 에테르), 및 이들의 혼합물이 포함된다. 가능한 제2 단량체로는 중합체 중의 목적하는 측쇄를 제공하는 설포네이트 이온 교환기 또는 그의 전구체기를 갖는 각종 플루오르화 비닐 에테르가 포함된다. 제1 단량체는 또한 측쇄를 가질 수 있으나, 단 측쇄가 설포네이트 이온 교환기의 이온 교환 기능을 방해하지 말아야 한다. 추가적인 단량체가 또한 원한다면 이들 중합체 내로 혼입될 수 있다.

[0054] 본 발명에서 사용하기에 특별히 바람직한 중합체는 화학식 -(0-CF<sub>2</sub>CFR<sub>f</sub>)<sub>a</sub>-0-CF<sub>2</sub>CFR'<sub>f</sub>SO<sub>3</sub>H(여기서, R<sub>f</sub> 및 R'<sub>f</sub>는 독립적으로 F, Cl 또는 1개 내지 10개의 탄소 원자를 가진 퍼플루오르화 알킬기로부터 선택되며, a는 0, 1 또는 2임)으로 나타내지는 측쇄를 가지며 고도로 플루오르화된, 가장 바람직하게는 퍼플루오르화된, 탄소 골격을 포함한다. 바람직한 중합체로는, 예를 들면 미국 특허 3,282,875 및 동 4,358,545 및 동 4,940,525에 개시된 중합체가 포함된다.

[0055] 전기촉매 코팅 또는 전기촉매층은 슬러리 또는 잉크로부터 형성될 수 있다. 잉크용 액체 매질은 적용 방법과 조화되도록 선택된다. 잉크는 촉매 코팅된 막을 형성하기 위해 공지된 임의의 기술로 막에 적용될 수 있다. 몇몇 공지된 적용 기술로는 스크린, 오프셋, 그라비어, 플렉소그래피 또는 패드 인쇄, 또는 슬롯-다이, 닉터-블레이드, 딥 또는 분무 코팅이 있다. 매질은 사용된 방법 조건하에서 전극 층의 빠른 건조가 가능하도록 충분히 낮은 비점율을 갖는 것이 유리하다. 플렉소그래피 또는 패드 인쇄 기술을 사용하는 경우, 조성물이 너무 빨리 건조되지 않고 막 월동으로 이동되기 전에 플렉소그래피 판 또는 클리쉐이 판 또는 패드 상에서 건조되는 것이 중요하다.

[0056] 폭넓게 다양한 극성 유기 액체 또는 그의 혼합물은 적합한 잉크용 액체 매질로서 역할을 할 수 있다. 미량의 물이 만약 인쇄 공정에 방해가 되지 않는다면 매질 내에 존재할 수 있다. 일부 바람직한 극성 유기 액체는 비록 본 발명에 따라 적용되는 전기촉매 코팅 조성물의 액체량이 공정 동안 팽창으로 인한 역효과가 극미하거나 감지되지 않을 정도로 충분히 제한되더라도 많은 양에서는 막을 팽창시킬 수 있는 능력을 가지고 있다. 중합체 막을 팽창시킬 수 있는 능력을 가진 용매는 막에 대한 전극의 보다 양호한 접촉과 보다 확실한 적용을 제공할 수 있다고 생각한다. 각종 알콜이 액체 매질로서 사용하기에 매우 적합하다.

[0057] 바람직한 액체 매질로는 n-, iso-, sec- 및 tert-부틸 알콜, 이성질체 5-탄소 알콜, 예를 들면 1-, 2- 및 3-펜탄올, 2-메틸-1-부탄올, 3-메틸-1-부탄올 등, 이성질체 6-탄소 알콜, 예를 들면 1-, 2-, 및 3-헥산올, 2-메틸-

1-펜탄올, 3-메틸-1-펜탄올, 2-메틸-1-펜탄올, 3-메틸-1-펜탄올, 4-메틸-1-펜탄올 등, 이성질체 C7 알콜 및 이성질체 C8 알콜을 비롯한 적합한 C4 내지 C8 알킬 알콜이 포함된다. 환형 알콜도 또한 적합하다. 바람직한 알콜은 n-부탄올 및 n-헥산올이다. n-헥산올이 가장 바람직하다.

[0058] 만약 전기촉매 코팅 조성물 중의 중합체가 사용될 때 설피산 형태가 아니라면, 다른 액체 매질이 잉크에 바람직 할 수 있다. 예를 들면, 만약 상기에서 기술된 바람직한 중합체 중 하나가 설피닐 플루오라이드의 형태인 그의 설피화기를 갖는다면, 바람직한 액체 매질은 3M에서 제조한 "플루오리너트(Fluorinert)" FC-40과 같은 고 비점의 플루오로카본이다.

[0059] 잉크의 취급성, 예를 들면 건조 성능은 액체 매질의 총 중량을 기준으로 하여 25 중량% 이하로 에틸렌 글리콜 또는 글리세린과 같은 상용성 첨가제를 포함함으로써 개질될 수 있다.

[0060] 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 컴파니에서 상표명 나피온(등록상표)으로 시판하는, 물/알콜의 분산액 중의 퍼플루오르화 설피산 중합체의 산 형태의 시판용 분산물이 플렉소그래피 또는 패드 인쇄에서 사용하기에 적합한 전기촉매 코팅 조성물의 제조를 위한 출발 물질로 사용될 수 있다. 다른 인쇄 방법, 예를 들면 스크린 인쇄 또한 사용될 수 있다.

[0061] 전기촉매 코팅 조성물에서, 전기촉매, 이온 교환 중합체 및 기타 성분(존재할 경우)의 양을, 전기촉매가 중량으로 생성된 전극의 주성분이 되도록 조절하는 것이 바람직하다. 가장 바람직하게는, 전극 중의 전기촉매 대 이온 교환 중합체의 중량비는 약 2:1 내지 약 10:1이다.

[0062] 본 발명의 방법에 따른 전기촉매 코팅 기술을 이용하면 매우 두꺼운, 예를 들면 20  $\mu\text{m}$  이상 또는 매우 얇은, 예를 들면 1  $\mu\text{m}$  이하의 범위인 본질적으로 임의의 두께일 수 있는 폭넓게 다양한 인쇄 층을 생성할 수 있다. 이러한 충분한 범위의 두께는 균열, 접착성의 손실 또는 기타 불균일성의 흔적 없이 생성될 수 있다. 두꺼운 층, 또는 복잡한 다층 구조물은 플렉소그래피 또는 패드 인쇄 기술을 사용하여 이용가능한 패턴 등록을 사용함으로써 목적하는 최종의 두께를 얻을 수 있도록 동일한 영역 위에 퇴적시킨 다수층을 제공하여 쉽게 달성할 수 있다. 반면에, 단지 몇 층 또는 아마도 단일층이 매우 얇은 전극을 제조하는데 사용될 수 있다. 전형적으로, 전기촉매 코팅 조성물은 그의 외부 연부까지 막에 적용될 수 있다. 전형적으로, 1 내지 2  $\mu\text{m}$ 의 얇은 층은 고형분이 보다 낮은 %인 재형의 각 인쇄로 제조될 수 있다. 일부 전형적인 전기촉매 코팅 조성물 또는 잉크는 US 5,330,860에 개시되어 있다.

[0063] 상기에서 언급한 다층 구조물은 전기촉매 코팅의 다양한 조성을 가능하게 한다. 예를 들면, 귀금속 층의 농도는 기판, 예를 들면 막, 표면과의 거리에 따라 다양할 수 있다. 게다가, 친수성은 코팅 두께에 따라 변화시킬 수 있다. 예를 들면, 이온 교환 중합체 EW가 다양한 층을 사용할 수 있다. 또한, 보호성 또는 내마모성의 상부층이 전기촉매 코팅의 최종 층 적용에서 적용될 수 있다.

[0064] 조성물은 적용 영역 중심으로부터의 거리에 따라 적용되는 양을 조절함으로써, 또한 적용시(pass)마다 적용되는 코팅을 변화시킴으로써, 전기촉매 코팅 영역의 길이 및 폭에 따라 또한 다양할 수 있다. 상기 조절은 활성도가 급격하게 0으로 떨어지는 연료 전지의 연부 및 모서리에서 발생하는 불연속성을 다루는 데 유용하다. 코팅 조성물 또는 판 이미지 특성을 변경함으로써, 0 활성도로의 전이를 점차적으로 만들 수 있다. 게다가, 액체 공급연료 전지에서, 유입구부터 배출구까지의 농도 변화는 막의 길이 및 폭을 가로지르는 전기촉매 코팅을 변경시킴으로써 보상될 수 있다.

[0065] 대안적으로, 전기촉매 조성물은 기체 확산 배면층(기체 확산 전극 또는 GDE 예비조립체) 상의 코팅으로서 적용될 수 있고, 또는 격리층으로서 제공될 수도 있다. 예를 들면, 전기촉매 조성물은 필름으로서 제공될 수 있다. 만약 필름이 자체 지지하기에 충분한 강도를 갖지 못한다면, 전기촉매 조성물은 예를 들면 도 1에 나타낸 성분의 조립 중 전기촉매 조성물 후에 제거되는 이형층 상에서 캐스팅될 수 있다.

[0066] 중합체 전해질 막:

[0067] 중합체 전해질 막(11)은 전기촉매층에 사용하기 위해 상기에서 논의한 동일한 이온 교환 중합체로 만들어질 수 있다. 막은 공지된 압출 또는 캐스팅 기술로 만들어질 수 있고 용도에 따라 다양할 수 있는 두께를 가질 수 있으며 전형적으로는 약 350  $\mu\text{m}$  이하의 두께를 가질 수 있다. 매우 얇은, 즉 약 50  $\mu\text{m}$  이하인 막을 사용하는 추세이다. 본 발명에 따른 방법은 코팅 동안 많은 양의 용매와 관련된 문제점이 특히 두드러지는 상기 얇은 막에 전극을 형성하는데 이용하기에 매우 적합하다. 중합체는 플렉소그래피 또는 패드 인쇄 과정 동안 알칼리 금속 또는 암모늄염 형태일 수 있으나, 후처리 산 교환 단계를 피하기 위해서는 막 중의 중합체가 산 형태인 것이 바람직하다. 산 형태인 적합한 퍼플루오르화 설피산 중합체 막은 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 컴파니의 상표명

나피온(등록상표)으로 이용가능하다. 대안적으로, 다양한 기타의 이온 전도성 중합체로 만들어진 막이 사용될 수 있으며, 예를 들면 국제 특허 WO 00/15691에 기술된 설포화 폴리방향족 화합물이 있다.

[0068] 강화 퍼플루오르화 이온 교환 중합체 막이 또한 본 발명의 인쇄 방법에 의해 제조된 측면 코팅된 막(CCM)에 이용될 수 있다. 당업계에서 "복합 막"이라고도 공지된 강화 막은, 이온 교환 중합체를 다공성의 연장된 PTFE(ePTFE)에 함침시킴으로써 만들어질 수 있다. 연장된 PTFE는 미국 메릴랜드주 엘크톤 소재의 더블유. 엘. 고어 앤드 어소시에이츠(W.L. Gore and Associates, Inc.)의 상품명 "고어텍스(Goretex)", 및 미국 펜실바니아주 피스터빌 소재의 테트라텍(Tetratec)의 상품명 "테트라텍스(Tetratex)"로 이용가능하다. ePTFE로의 퍼플루오르화 설포산 중합체의 함침은 미국 특허 5,547,551 및 동 6,110,333에 개시되어 있다.

[0069] 전기촉매 코팅 조성물로 코팅된 기체 확산 배면층 또는 측면 코팅된 막에는 캘린더링, 물 수송에 영향을 주기 위한 증기 처리, 또는 상기 전단계 중 임의의 단계로부터의 미량 잔여물을 제거하기 위한 액체 추출과 같은 후처리가 제공될 수 있다. 만약 사용된 막 분산액 또는 용액이 고도로 플루오르화된 이오노머의 전구체라면, 용액 또는 분산액의 적용 후에, 형성된 샌드위치를 화학 처리하여 전구체를 이오노머로 변환시킬 수 있다.

[0070] 절연층:

[0071] 절연층은 기체 확산 배면층 사이의 원치않는 접촉을 방지한다. 절연층은 CCM 하위조립체를 사용할 때, MEA의 기능 영역 내로 연장되지 않으면서, 그의 내부 연부가 전기촉매층의 외부 연부와 실질적으로 겹치도록 위치한다. 절연층의 외부 연부는 인접한 기체 확산 배면층의 외부 연부와 실질적으로 동연되어 있다. 단지 하나의 절연층 만이 전형적으로 요구되지만, 예를 들어 CCM 하위조립체의 두 표면에 인접하는 것과 같이 추가적인 절연층이 존재할 수도 있다. 절연층이 전기촉매층과 겹치기 때문에 정렬 또는 크기조정에 있어서의 부정확성으로부터 발생하는 문제점들을 피한다. 이러한 부정확성은 환상 스크립 층의 연부와 중합체 막의 연부 사이에 틈을 발생시킬 수 있다. 이 틈은 기체 확산 배면층이 서로 접촉하게 할 수 있으며, 그 결과 원하지 않는 전기 경로가 발생할 수 있다. 게다가, 용융 열가소성 물질은 고온 압착 동안 측면으로 흐르는 경향이 있고 이로 인해 막 경계가 이동하고 스크립 층으로부터 분리될 수 있다. 이러한 분리는 원하지 않는 전기 경로의 잠재성을 증가시킨다.

[0072] 기체 확산 전극(GDE)의 하위조립체를 사용할 때, 절연층은 그의 외부 연부가 GDE의 외부 연부와 일치하도록 GDE 전기촉매층에 인접하게 위치된다. CCM 하위조립체를 이용하여 제작한 UMEA에 대해 상기 기술한 것과 동일한 방식으로 절연층의 내부 연부는 중합체 전해질 막의 외부 연부와 겹쳐진다.

[0073] 절연층(14)에 존재하는 물질은 비전도성이고 연료 전지를 오염시키지 않으며, 연료 전지 작동 온도에서 열적으로 그리고 치수적으로 안정하다. 일반적으로, 약 10E4 ohm-cm보다 큰 저항성, 더욱 전형적으로는 약 10E6 ohm-cm보다 큰 저항성, 가장 전형적으로는 약 10E9 ohm-cm보다 큰 저항성을 갖는 물질이 본 발명의 실시에 유용하다. 물질은 필름, 제작물 또는 부작물 또는 종이의 형태일 수 있다. 선택된 물질은 추후의 취급 동안 및 연료 전지에서의 사용 동안 조립체의 충균열을 방지하기에 매우 충분하게 밀폐 중합체에 부착 또는 결합될 수 있다. 이 결과는 밀폐 중합체가 직물 또는 종이 절연층의 기공에 침투하여 고화되는 기계적 결합을 통해 또는 화학적 결합을 통해 달성될 수 있다.

[0074] 상기 기준에 부합되는 한, 절연층의 두께는 중요하지 않다. 최소 두께는 물질의 처리 실용성, 및 침투하여 기체 확산 배면층 사이의 접촉을 가능하게 하는 가공력에 대하여 기계적 일치성을 유지하는데 필요한 양에 의해서만 제한된다. 최대 두께는 연료 전지 고안의 요건, 및 UMEA 중의 기타 성분에 부여되는 응력에 의해서 제한된다. 막에 비해 두께가 두꺼울 경우, 기체 확산 배면층은 굽힘 응력으로 인해 손상될 수 있다. 중합체 막의 두께와 대략 유사한 두께를 가진 절연층이 본 발명의 실시에 특히 유용하다는 것을 발견하였다.

[0075] 선택될 수 있는 유용한 절연층 물질의 몇 가지 예로는 섬유 유리 천, 듀폰의 케블라(Kevlar, 등록상표) 종이와 같은 파라-아라미드 섬유 기재 종이, 듀폰의 캡톤(Kapton, 등록상표) 필름과 같은 폴리이미드 필름, 듀폰의 다르텍(Dartek, 등록상표) 필름과 같은 폴리아미드 필름, 폴리에틸렌 테레프탈레이트 및 폴리에틸렌 나프타네이트와 같은 폴리에스테르 필름이 포함된다. 폴리에틸렌 테레프탈레이트 필름의 몇 가지 예로는 듀폰의 멜리넥스(Melinex, 등록상표) 및 마일라(Mylar, 등록상표)가 포함된다.

[0076] 한 실시양태에서, 절연층은 듀폰의 바이넬(Bynel, 등록상표) 4105 개질 폴리에스테르 필름과 같은 개질 선형 저밀도 폴리올레핀이다. 절연 물질은 또한 수지 매트릭스 중의 섬유 또는 입자 형태일 수 있다. 절연층은 격리층으로 제공될 수 있거나, 또는 밀폐 중합체와 같은 기타 성분과 공압출되거나 또는 적층될 수 있다.

[0077] 밀폐 중합체:

본 발명자들은 밀폐 중합체의 환상 층의 최적 개수, 및 그들의 두께는 두께, 다공성, 또는 미다공성 층의 존재의 특성, 및 두께, 폭, 저항 및 허용가능한 누전율과 같은 밀폐물의 고안 명세에 기초하여 선택된다는 것을 발견하였다. 도 1A 및 1B에 예시되어 있는, 밀폐 중합체의 두 환상층을 사용할 경우 때때로 발명의 목적이 달성될 것이다. 즉, 밀폐 영역에만 분포되게 제한하면서, 다공성 GDB 층 내에 열가소성 밀폐 물질을 균일하게 분포시킬 수 있다. GDB 층 내에서의 밀폐 중합체의 조절되지 않은 분포는 MEA 활성 영역으로의 밀폐 중합체의 침투, 불충분한 밀폐를 발생시키는 불완전한 함침, 과도하게 두껍거나 또는 얇은 밀폐 영역, 및 열악한 표면 처리와 같은 다수의 바람직하지 않은 결과를 야기할 수 있다. 이는 특히 GDB 층이 전극 층에 인접한 한 측면 또는 양 측면 상에서 미다공성 층으로 코팅되어 있을 경우 그러하다. 그러나, 생산 방법은 더욱 관대하며, 밀폐 중합체의 4개층(15 및 15')이 밀폐 중합체의 조절된 균일한 분포를 용이하게 하기 위해 제공된 도 1C에 예시된 바람직한 실시양태에서 조절하기가 보다 용이하다.

[0079] UMEA를 밀폐하고 결합하기 위해 사용되는 선택된 밀폐 중합체 (15) 및 (15')는, 연료 전지에서 도달할 수 있는 최대 온도(현재 ~95°C)보다 높으며 중합체 전해질 막이 견딜 수 있는 온도(나피온(등록상표)의 경우 150°C)보다 낮은 용점을 갖는다. 이는 연료 전지를 오염시키지 말아야 한다. 물질은 중합체 전해질 막 및 전기촉매층이 동연되어 있는 바람직한 실시양태에서 중합체 전해질 막 및(또는) 전기촉매층에 부착하여야 한다. 물질은 또한 압축 성형할 때 인접한 GDB에 완전히 함침되도록 하는 공정 조건에서 흐르는 특성이 있어야 한다.

[0080] 밀폐 중합체는 열가소성 중합체 또는 열경화성 중합체, 보다 전형적으로는 열가소성 중합체일 수 있다. 열가소성 중합체는 "압력 및 열의 적용시 연화되고 흐르는 물질"이다. 화학적으로, 열가소성 가공은 매우 낮은 방출 및 거의 없거나 또는 감지할 수 없는 화학 반응의 발생과 함께 본질적으로 비활성이다. 따라서 환경 영향, 작업자에게의 노출, 및 부품에서의 기포 형성과 같은 문제점들이 극미하다. 한 부류로서 열가소성 중합체는 일반적 용법에서 가장 화학적으로 비활성인 물질 중 일부, 예를 들면 플루오로중합체 및 방향족 폴리(에테르 케톤)을 포함한다. 이러한 밀폐 중합체는 금속, 촉매, 및 반응성 관능기와 같은 임의의 잠재적 연료 전지 오염물의 극히 낮은 수준으로 이용가능하다.

[0081] 열가소성 중합체는 연료 전지 고안자에게 흥미로운 매우 다양한 물성을 제공한다. 고밀도 폴리에틸렌 및 폴리비닐리덴 플루오라이드와 같은 반결정성 형태는 기체 및 액체에 대한 특히 낮은 투과성 및 높은 기계적 인성을 갖는다. 많은 것들이 순수한 또는 강화된 형태에서 높은 압축률(compressive modulus)을 가지고 있어, MEA의 두께의 큰 변화 없이 연료 전지 스택의 압력을 완고하게 지탱하기 위해 사용될 수 있다. 마지막으로, 용융 가공성 플루오로중합체와 같은 열가소성 중합체는 절연내력 및 전기저항성을 비롯한 매우 지속성있는 전기적 특성을 제공한다.

[0082] 본 발명의 실시에 선택될 수 있는 폭넓게 다양한 물질로는, 듀폰 텤플론(등록상표) FEP 100 및 듀폰 텤플론(등록상표) PFA 340과 같은 용융 가공성 플루오로중합체 뿐만 아니라, 부분적으로 플루오르화된 중합체, 예를 들면 미국 웬실바니아주 킹 오브 프리시아 소재의 아토피나 케미칼즈(Atofina Chemicals)에서 제조한 키나르(Kynar, 등록상표) 710 및 키나르 플렉스(Kynar Flex, 등록상표) 2801과 같은 폴리비닐리덴 플루오라이드가 포함된다. 미국 델라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 컴파니에서 제조한 칼레즈(Kalrez, 등록상표) 및 비톤(Viton, 등록상표)과 같은 열가소성 플루오로엘라스토머 또한 상기 부류에 속한다. 폴리아릴(에테르 케톤)과 같은 방향족의 축합 중합체의 예로는 영국 탕캐시어 소재의 빅트렉스사(Victrex Manufacturing Limited)에서 제조한 폴리아릴(에테르 에테르 케톤), 듀폰에서 제조한 바이넬(등록상표) 4105와 같은 개질 폴리에틸렌, 바이넬(등록상표) 50E561과 같은 개질 폴리프로필렌, 캐나다 알베르타 칼거리 소재의 노바 케미칼즈사(NOVA Chemicals Corporation)에서 제조한 스클라이어(Sclair, 등록상표) 2318과 같은 폴리에틸렌, 듀폰의 하이트렐(Hytrel, 등록상표)과 같은 열가소성 엘라스토머, 듀폰의 제니트(Zenite, 등록상표) 액정 폴리에스테르와 같은 액정 중합체, 및 듀폰의 지텔(Zytel, 등록상표) HTN과 같은 방향족 폴리아미드가 있다.

[0083] 밀폐 중합체는 또한 임의로는 섬유, 직물, 또는 무기질 충전제로 강화될 수 있고, 이는 압축 성형 공정 중 금형에 위치시키거나 또는 미리 밀폐 중합체에 캠파운딩될 수 있다.

[0084] 단위화된 MEA의 제조 방법:

[0085] UMEA 제조 방법은, 밀폐 중합체가 열가소성일 때, 전형적으로 도 1에 예시되어 있는 것처럼 샌드위치 형태로 층을 함께 조립하고, 가열하여 밀폐 중합체를 용융시키면서 이들을 함께 압착한 후, 압력을 유지하면서 냉각하여 밀폐 중합체를 응고시키는 것을 포함한다. 본 목적을 위해 이용되는 압축 성형은 전형적으로 밀폐 중합체의 내

부 연부를 덮고 그 내부 연부 너머 내부로 연장된 센을 갖는다. 전형적으로, 마지막 손질 작업은 최종의 형상을 이루기 위해 과잉 물질을 제거한다. 밀폐 중합체의 둘 이상의 층이 사용될 수 있고, 그들은 전형적으로 중앙이 "사진-틀(picture-frame)"을 생성하도록 제거된 쉬트 형태(예를 들면, 압출 필름)로 존재한다. 적층 동안에, 층은 사진 틀의 개구가 MEA의 활성 영역과 정렬되도록 배치된다. 2개를 초과하는 밀폐 중합체 층을 사용하는 것이 종종 가장 유리하다. 층의 개수, 각 층의 두께 및 위치를 조정함으로써, MEA의 활성 영역 상으로의 밀폐 중합체의 침입을 유발하지 않으면서, 구조물 전반에 걸쳐 밀폐 중합체의 최적의 대략적으로 균일한 분포를 달성할 수 있다. 밀폐 중합체의 열악한 분포는 불충분한 밀폐를 발생시키는 불완전한 함침, 과도하게 두껍거나 또는 얇은 밀폐 영역, 및 열악한 표면 처리와 같은 다수의 바람직하지 않은 결과를 야기할 수 있다.

[0086] 틀형 절연층은 제1 및 제2 기체 확산 배면층의 밀폐 연부 사이에 위치하고, 틀형 절연층의 내부 연부는 중합체 막의 외부 연부와 약 1 내지 약 10 mm, 더욱 전형적으로는 약 2 내지 약 4 mm 겹쳐진다. 이러한 겹침은 절연층 및 중합체 막의 레지스트리 정렬의 요구되는 정확성, 중합체 막의 외부 연부의 크기조정의 요구되는 정확성, 및 틀형 절연층의 내부 연부 크기조정의 요구되는 정확성을 감소시키기 때문에, 이러한 겹침은 UMEA의 제조에 유리하다. 겹침이 없으면, 정렬 또는 크기조정의 부정확성은 절연층의 연부 및 중합체 막의 연부 사이에 틈을 발생시켜, 기체 확산 배면층이 서로 접촉할 기회를 제공할 수 있으며, 그 결과 원치 않는 전기 경로가 생성될 수 있다. 하나를 초과하는 절연층을 사용할 수 있고 중합체 막의 한 측면 또는 양 측면에 배치시킬 수 있다. 추가적인 절연층은 양극 및 음극 기체 확산 배면층 사이의 전기 경로에 대한 보호를 증가시키고, 이는 고도의 다공성 절연층을 사용할 때 더욱 그러하다.

[0087] 전기촉매층 및 중합체 전해질 막은 실질적으로 동연되어 있다. 비록 이로 인해 밀폐물에 삽입되는 전기촉매의 유효 손실이 발생되지만, 이러한 손실은 제조의 편리성 및 전기촉매층 및 밀폐 중합체 사이에서 달성되는 우수한 결합에 의해 훨씬 상쇄된다. 원할 경우, 중합체 전해질 막 층 및 전기촉매층은 복합체로서 손쉽게 제작되고, 이 후 목적하는 크기로 절단되며 다층 샌드위치에 위치된다. 목적하는 크기는 MEA 고안에 따라 다양할 것이지만, 중합체 전해질 막/전기촉매층 하위조립체가, 불필요한 양의 전기촉매의 삽입 없이, 도 2에 예시되어 있는 밀폐물(18)에 완전하게 삽입되도록 선택된다.

[0088] 밀폐 중합체가 열경화성 중합체일 때, 공정 조건은 열경화성 중합체의 경화 특성 및 열경화성 중합체의 굳어짐(용융의 반대) 특성 간 차이를 조절하도록 조정하여야 할 것이다.

[0089] 대안적으로, 밀폐 중합체는 분말, 스트립, 섬유, 직물, 액체, 또는 페이스트를 비롯한 다양한 형태로 도입될 수 있다. 이는 제어된 두께의 다이-컷 필름 또는 액체의 경우 자동 제어(robotic control) 계량 펌프와 같은, 정확하게 계량되는 방식으로 도입하는 것이 바람직하다. 밀폐 중합체는 도 1A, 1B 및 1C에 나타낸 바와 같이 막 전극 조립체 성분의 상부 및 하부에 위치된다. 도 1A에 나타나 있는 바와 같이, 밀폐 중합체 (15) 및 (15')는 전기촉매 코팅 구성을 (12) 및 (12')로부터 떨어진 표면 위에서 기체 확산 배면층 (13) 및 (13')의 밀폐 연부에 걸쳐 존재한다. 대안적으로, 도 1B에 나타나 있는 바와 같이, 밀폐 중합체는 기체 확산 배면층 (13) 및 (13')와 중합체 막(11) 사이에, 또는 만약 전기 촉매 코팅 조성을 (12) 및 (12')가 기체 확산 배면층 (13) 및 (13')의 밀폐 연부로 연장되어 있다면, 전기촉매 코팅 조성을 (12)와 (12') 사이에 존재할 수 있다. 도 1C에 나타나 있는 바와 같이, 밀폐 중합체는 기체 확산 배면층 (13) 및 (13')의 밀폐 연부의 양 표면에 인접하게 위치될 수 있다.

[0090] 절연층(14)는 GDB (13)과 (13') 사이에 배치된다. 도 1C에 나타나 있는 바와 같이, 하나를 초과하는 절연층 (14) 및 (14')이 존재할 수 있다.

[0091] 본 발명자들은 이를, 모든 MEA의 조립 및 밀폐가 단일 작업으로 일어나기 때문에, "1 단계 방법"이라 언급한다. 공정에서 적용되는 압력은 용융 중합체가 기체 확산 배면물에 완전히 함침되고 그를 밀폐할 수 있도록 충분하여야 한다. 전형적으로, 사용되는 압력은 300 내지 1000 kPa, 더욱 전형적으로 500 내지 600 kPa이다. 많은 연료 전지 고안에서, MEA가 연료 전지에서 조립되고 압축될 때, MEA의 활성 영역의 두께와 같거나 또는 그보다 얇은 밀폐된 경계 영역의 두께를 가지는 것이 바람직하다. 이 요건은 공정에 적용되는 압력이 경계 영역의 목적하는 두께를 달성하기 위해 GDB를 압축하기에 충분히 클 것을 요한다. 냉각할 때, 고형화된 중합체가 목적하는 두께를 유지한다.

[0092] 다층 MEA 샌드위치(10)는 전형적으로 흑연판인 2개의 금형판 사이에 위치되고, 샌드위치/판 조합물은 열가소성 중합체를 용해시키기에 충분한 온도로 가열된 유압식 압착기로 이동된다. 그 후, 약 100 내지 약 140 kPa의 압력이 약 120 내지 약 240초 동안 금형판에 적용되고, 이어서 약 10 내지 약 120초 동안 500 내지 약 600 kPa의 압력이 적용된다. 조립체는 판에 적용된 힘이 유지되면서 상온으로 냉각된다.

- [0093] 열가소성 밀폐 물질의 가열 및 용융에 적합한 임의의 압착 장치가 본 발명에서 사용될 수 있다. 몇몇 공지된 압착기로는 미국 인디애나주 와바쉬 소재의 카버사(Carver Inc.), 미국 캘리포니아주 시티 오브 인더스트리 소재의 피에이치아이(PHI), 및 미국 뉴저지주 블룸菲尔드 소재의 존슨 머시너리사(Johnson Machinery Company)의 압착기가 포함된다. 쉼(나타내지 않음)은 MEA 성분이 압축되는 정도를 측정하기 위해 상부 플런저와 틀 사이의 틀 상에 위치될 수 있다. 밀폐 중합체는 바람직하게는 냉각이 개시되기 전 완전히 용해되는 시점까지 가열된다. 밀폐 중합체가 구조 일체성을 갖도록 충분히 냉각된 후, 도 2에 나타낸 단위화된 MEA가 금형판 사이에서 제거된다. 명확히 알 수 있는 바와 같이, 단위화된 MEA(30)는 MEA 샌드위치 성분 및 압축 성형된 밀폐 중합체로부터 형성된 일체형 밀폐물(18)을 포함한다. 대안적으로, 샌드위치는 가열된 틀 사이에 적층될 수 있다.
- [0094] 리지(ridge), 립(rib) 및 기타 기구(feature)(나타내지 않음)가 밀폐물에 인접한 판에 오목한 곳을 가짐으로써 밀폐물 위에 제공될 수 있다.
- [0095] 압축 성형의 널리 공지된 산업적 방법의 일 예는, 컴파운딩된 폴리비닐 클로라이드로부터 전형적으로 만들어진 레코드 판(phonograph record)의 생산이다. 이러한 방법의 일 예가 문헌 [Principles of Polymer Systems, 2nd Ed., Ferdinand Rodriguez, McGraw-Hill, New York, 1982]에 기술되어 있다.
- [0096] 도 1C에 나타나 있는 바와 같이, 방법은 장치에의 부착을 방지하기 위해 이형 물질의 하나를 초과하는 쉬트(16) 및 (16')를 압착 장치와 다행 샌드위치 사이에 개재시키는 것을 포함할 수 있다. 전형적으로, 상기 이형 물질은, 최종 형태로 손질되기 전 또는 후에 단위화된 막 전극 조립체로부터 쉽게 제거될 수 있도록 밀폐 중합체에 대해 낮은 부착성을 갖는다.
- [0097] 때때로, 일부 연료 전지 시스템의 고안에서 요구되듯이, 최종 UMEA에서 밀폐 연부의 두께가 UMEA의 활성 영역의 두께보다 얇도록 하기 위하여, 조립체의 나머지 부분보다 더 큰 압력을 경계 영역에 적용할 필요가 있다. 이는 금형판의 적절한 고안에 의해, 또는 한 측면 또는 양 측면 위에 하나 이상의 적절하게 성형된 쉼(17) 및 (17')(도 1C에 나타남)을 압착 장치와 다행 샌드위치 사이에 개재시킴으로써 달성될 수 있다. 쉼은 감소된 두께가 최종 UMEA에서 목적하는 경우 밀폐 연부에 추가적인 압축이 제공되는 한 임의의 형상일 수 있다. 결과적으로, 쉼은 전형적으로 틀 형상 쉬트 물질을 포함하며, 쉼의 내부 연부는 틀 개구의 중심으로 향하여 밀폐 중합체의 내부 연부 너머로 연장한다. 쉼이 밀폐 중합체의 내부 연부 너머로 연장되어 있지 않을 경우, 압축 성형 단계 동안 밀폐 중합체는 쉼의 내부 연부 너머로 측면으로 흘러, 추가적으로 압축되지 않은 기체 확산 배면물의 영역에 함침될 것이다. 압축 성형 공정 후, 이 영역은 밀폐 연부의 나머지보다 두꺼울 수 있다. 이와 같이 국부적으로 더 두꺼운 영역은 연료 전지에 흡입될 때 UMEA의 기능을 방해할 수 있다.
- [0098] 만약 쉼이 이형 물질로 구성된다면, 이중 기능을 할 수 있고 그것이 존재하는 측면 또는 측면들 상의 별도의 이형 쉬트에 대한 필요성을 제거할 수 있다.
- [0099] 전형적으로, 상기에서 기술한 공정 단계는 그로부터 최종 UMEA가 절단되는 반완성 부분을 생산하는데 사용된다. 이 마지막 손질 작업은 과잉 물질을 제거하는데 사용될 수 있고, 밀폐 영역 중의 개구와 같은 기구를 생성할 수 있으며, 이는 많은 연료 전지 고안에 유리하다. 일부 밀폐 중합체가 압축 성형 공정 동안에 측면으로 흘러기 때문에 마지막 손질 작업 없이 최종 UMEA를 생산하는 것은 실행 불가능할 것이다.
- [0100] 연료 전지:
- [0101] 단위화된 MEA(30)는 연료 전지를 조립하는데 사용될 수 있다. 유동장 판(나타내지 않음)은 밀폐 연부를 갖는 제1 및 제2(음극 및 양극) 기체 확산 배면층(13) 및 (13')의 외부 표면 위에 위치한다. 만약 밀폐물(18)에 리지, 둠, 립, 또는 기타 구조상 기구(나타내지 않음)가 제공된다면, 유동장 판에는 밀폐물(18)위에 이러한 기구와 조화하는 오목부가 제공될 수 있다.
- [0102] 연료 전지는 연료를 양극으로 전달하는 수단, 산소를 음극으로 전달하는 수단, 양극 및 음극을 외부 전기 부하, 양극과 접촉하는 액체 또는 기체 상태의 수소 또는 메탄올, 음극과 접촉하는 산소에 연결하는 수단을 추가로 포함한다. 연료는 액체 또는 증기 상이다. 몇몇 적합한 연료로는 수소, 메탄올 및 에탄올과 같은 알코올, 디에틸 에테르 등과 같은 에테르 등이 포함된다.
- [0103] 여러 연료 전지는 전형적으로는 직렬로 함께 연결되어, 조립체의 총 전압을 증가시킬 수 있다. 이 조립체는 전형적으로 연료 전지 스택이라 공지되어 있다.
- [0104] 본 발명은 다음 실시예를 참조하면 좀더 명확해 질 것이다. 실시예는 단지 예시를 위한 것이며 발명의 범위를 제한하고자 하는 의도는 아니다.

[0105] <실시예>

[0106] 실시예 1:

[0107] 다음의 절차에 따라 단위화된 MEA를 제조하였다.

[0108] 1. 295 mm × 189 mm인 두 조각의 기체 확산 배면물(미국 워싱턴주 타코마 소재의 도레이 컴포지츠 (어메리카) 사(Toray Composites (America) Inc.)에서 도레이(Toray) TGP-H-060으로 시판되는 두께 190 마이크론, 기본 중량 85.5 gm/m<sup>2</sup>의 탄소 섬유 기재 종이)을 절단하고,

[0109] 2. 외부 치수 295 mm × 189 mm 및 내부 치수 240 mm × 138 mm의 2개의 사진-틀형 밀폐 중합체 필름(130 마이크론 두께, 미국 멜라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 컴파니에서 바이넬(등록상표) 4105로 시판되는 선형 저밀도 폴리에틸렌 수지로부터 압출됨)을 절단하고,

[0110] 3. 외부 치수가 295 mm × 189 mm이고 내부 치수가 240 mm × 138 mm이며 두께가 60 마이크론인 2개의 사진-틀형 밀폐 중합체 필름을 절단하고,

[0111] 4. 외부 치수가 295 mm × 189 mm이고 내부 치수가 240 mm × 138 mm이며 두께가 0.03 mm인 1개의 사진-틀형 절연층(파라-아라미드 섬유 기재 종이, 기본 중량 24 gm/m<sup>2</sup>)을 절단하고,

[0112] 5. 다음의 층을 적층하여 샌드위치를 형성하였다.

[0113] 1개의 이형 필름(미국 멜라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 컴파니에서 텤플론(등록상표) FEP 1000A 필름으로 시판되는 FEP 플루오로중합체(폴리(테트라플루오로-에틸렌-CO-헥사플루오로프로필렌) 필름, 250 마이크론 두께)

[0114] 1개의 사진-틀형 60 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0115] 1개의 기체 확산 배면물

[0116] 1개의 사진-틀형 130 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0117] 1개의 사진-틀형 절연층

[0118] 중합체 막 상에 2개의 전기촉매층을 포함하는 1개의 촉매 코팅된 막(240 mm × 134 mm 활성 영역 및 251 mm × 145 mm 막 영역)

[0119] 1개의 사진-틀형 130 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0120] 1개의 기체 확산 배면물

[0121] 1개의 사진-틀형 60 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0122] 상기 언급한 1개의 이형 필름(이형층은 이전의 압축 성형 후 판으로부터 단위화된 MEA를 분리하기 위하여 존재함)

[0123] 6. 샌드위치를 (미국 펜실바니아주 세인트 메리스 소재의 에스지엘(SGL)에서 시판하는) 303 mm × 197 mm × 12.7 mm 두께의 한 쌍의 흑연판 사이에 위치시키고, 샌드위치/판의 조합물은 135°C로 예열된 유압식 압착기에 위치시키고(압착기는 미국 캘리포니아주 파사데나 소재의 피에이치아이에서 시판하는 100 톤 유압식 압착기임),

[0124] 7. 7100 N의 힘을 3분 동안 판에 적용하고,

[0125] 8. 28900 N의 힘을 2분 동안 판에 적용하고,

[0126] 9. 적용된 힘을 유지하면서, 판을 상온으로 냉각시키고,

[0127] 10. 단위화된 MEA를 최종의 크기로 손질하였다.

[0128] 실시예 2:

[0129] 다음의 절차에 따라 단위화된 MEA를 제조하였다.

[0130] 1. 420 mm × 237 mm인 두 조각의 기체 확산 배면물(미국 펜실바니아주 세인트 메리스 소재의 에스지엘 테크놀로지스(SGL Technologies)의 시그라셋(Sigracet, 등록상표) GDL 10-BB로 시판되는 두께 415 마이크론, 기본 중

량  $125 \text{ gm/m}^2$ 의 탄소 섬유 기재 종이)을 절단하고,

[0131] 2. 외부 치수  $416 \text{ mm} \times 233 \text{ mm}$  및 내부 치수  $307 \text{ mm} \times 175 \text{ mm}$ 의 2개의 사진-틀형 밀폐 중합체 필름(100 마이크론 두께, 미국 텔라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 캄파니에서 앤드 캄파니에서 바이넬(등록상표) 4105로 시판되는 선형 저밀도 폴리에틸렌 수지로부터 압출됨)을 절단하고,

[0132] 3. 외부 치수가  $416 \text{ mm} \times 233 \text{ mm}$ 이고 내부 치수가  $300 \text{ mm} \times 175 \text{ mm}$ 이며 두께가 75 마이크론인 2개의 사진-틀형 밀폐 중합체 필름을 절단하고,

[0133] 4. 외부 치수가  $416 \text{ mm} \times 233 \text{ mm}$ 이고 내부 치수가  $300 \text{ mm} \times 175 \text{ mm}$ 이며 두께가 0.03 mm인 2개의 사진-틀형 절연층(파라-아라미드 섬유 기재 종이, 기본 중량  $24 \text{ gm/m}^2$ )을 절단하고,

[0134] 5. 외부 치수가  $416 \text{ mm} \times 233 \text{ mm}$ 이고 내부 치수가  $294 \text{ mm} \times 169 \text{ mm}$ 인 2개의 사진-틀형 쉼을 두께 0.1 mm의 캡톤(등록상표) 필름(미국 텔라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 캄파니에서 시판함)으로부터 절단하고,

[0135] 6. 다음의 층을 적층하여 다층 샌드위치를 형성하였다.

[0136] 1개의 사진-틀형 쉼

[0137] 1개의 이형 필름(미국 텔라웨어주 월밍تون 소재의 이 아이 듀폰 디 네모아 앤드 캄파니의 텤플론(등록상표) FEP 1000A 필름으로 시판되는 FEP 폴루오로중합체(폴리(테트라플루오로-에틸렌-CO-헥사플루오로프로필렌)) 필름, 250 마이크론 두께)

[0138] 1개의 사진-틀형 100 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0139] 1개의 기체 확산 배면물

[0140] 1개의 사진-틀형 75 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0141] 1개의 사진-틀형 절연층

[0142] 중합체 막 상에 2개의 전기촉매층을 포함하고  $306 \text{ mm} \times 181 \text{ mm}$  크기인 1개의 촉매 코팅된 막

[0143] 1개의 사진-틀형 절연층

[0144] 1개의 사진-틀형 75 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0145] 1개의 기체 확산 배면물

[0146] 1개의 사진-틀형 100 마이크론 두께 밀폐 중합체 필름

[0147] 상기 언급한 1개의 이형 필름(이형층은 이전 압축 성형 후에 판으로부터 단위화된 MEA을 분리하기 위하여 존재함)

[0148] 1개의 사진-틀형 쉼

[0149] 7. 다층 샌드위치를 (미국 펜실바니아주 세인트 메리스 소재의 에스지엘에서 시판하는)  $424 \text{ mm} \times 242 \text{ mm} \times 12.7 \text{ mm}$  두께의 한 쌍의 흑연판 사이에 위치시키고, 다층 샌드위치/판의 조합물은  $135^\circ\text{C}$ 로 예열된 유압식 압착기에 위치시키고(압착기는 미국 캘리포니아주 파사데나 소재의 피에이치아이에서 시판하는 100 톤 유압식 압착기임),

[0150] 8. 7.1 kN의 힘을 3분 동안 판에 적용하고,

[0151] 9. 222 kN의 힘을 1분 동안 판에 적용하고,

[0152] 10. 적용된 힘을 유지하면서, 판을 상온으로 냉각시키고,

[0153] 11. 판을 압착기로부터 제거 및 분리하고, 단위화된 MEA를 제거하고,

[0154] 12. 연료 전지의 고안 요건에 따라 밀폐된 경계 영역에 매니폴드 개구부와 같은 기구를 첨가하는 방법으로, 단위화된 MEA를 최종의 크기와 형상으로 손질하였다.

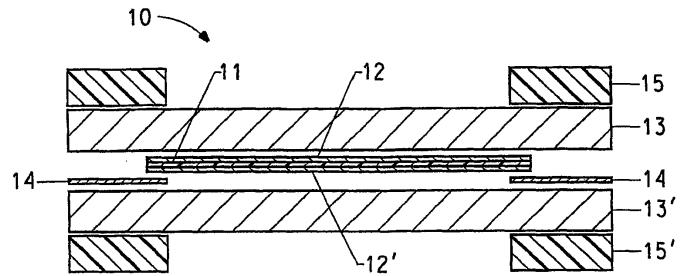
### 도면의 간단한 설명

[0037] 도 1A, 1B 및 1C는 단위화된 막 전극 조립체(MEA)를 형성하기 위해 사용되는 다층 샌드위치(10)의 다양한 구성에 대한 개략도이다.

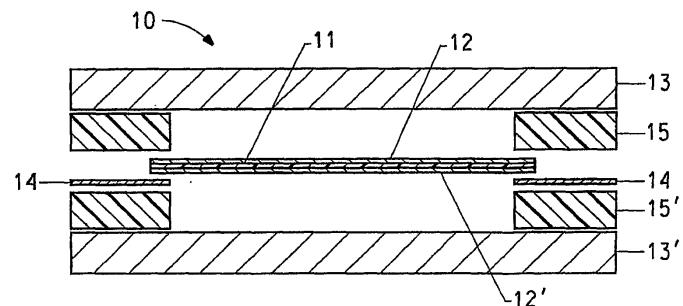
[0038] 도 2는 압축 성형 공정에서 금형으로부터 제거된 후의 단위화된 MEA(30)의 개략도이다.

### 도면

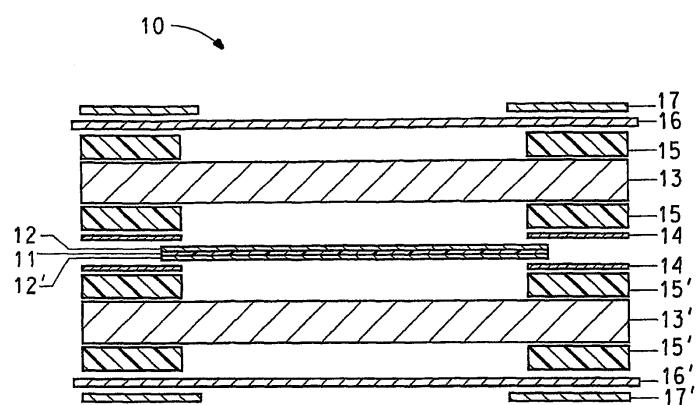
#### 도면1A



#### 도면1B



#### 도면1C



도면2

