

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2019-508865
(P2019-508865A)

(43) 公表日 平成31年3月28日(2019.3.28)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/18 (2006.01)	HO 1 M 8/18	5 H 0 1 8
HO 1 M 4/86 (2006.01)	HO 1 M 4/86 M	5 H 1 2 6
HO 1 M 4/88 (2006.01)	HO 1 M 4/88 C	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 76 頁)

(21) 出願番号 特願2018-548798 (P2018-548798)
 (86) (22) 出願日 平成29年3月15日 (2017. 3. 15)
 (85) 翻訳文提出日 平成30年10月25日 (2018. 10. 25)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2017/022492
 (87) 国際公開番号 W02017/160972
 (87) 国際公開日 平成29年9月21日 (2017. 9. 21)
 (31) 優先権主張番号 62/309, 721
 (32) 優先日 平成28年3月17日 (2016. 3. 17)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)
 (31) 優先権主張番号 62/373, 628
 (32) 優先日 平成28年8月11日 (2016. 8. 11)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 505005049
 スリーエム イノベイティブ プロパティ
 ズ カンパニー
 アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3
 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オ
 フィス ボックス 3 3 4 2 7, スリーエ
 ム センター
 (74) 代理人 100088155
 弁理士 長谷川 芳樹
 (74) 代理人 100107456
 弁理士 池田 成人
 (74) 代理人 100128381
 弁理士 清水 義憲
 (74) 代理人 100162352
 弁理士 酒巻 順一郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電極アセンブリ、膜電極アセンブリ、並びにこれらによる電気化学セル及び液体フロー電池

(57) 【要約】

本開示は、電極アセンブリ、膜電極アセンブリ、並びにこれらから生成した電気化学セル及び液体フロー電池に関する。電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、(i) 第 1 の表面積 A_e を有する第 1 の主面、反対側を向いた第 2 の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極と、(i i) ポリマーを含み、第 1 の主面上に配置され、第 1 の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層と、(i i i) 複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む界面領域と、を含む。ここで、 $0.02 A_e$
 $A_p \leq 0.85 A_e$ であり、多孔質電極及び不連続輸送保護層は一体構造を形成する。本開示は、電極アセンブリ及び膜電極アセンブリを製造する方法を更に提供する。

【選択図】 図 1 A

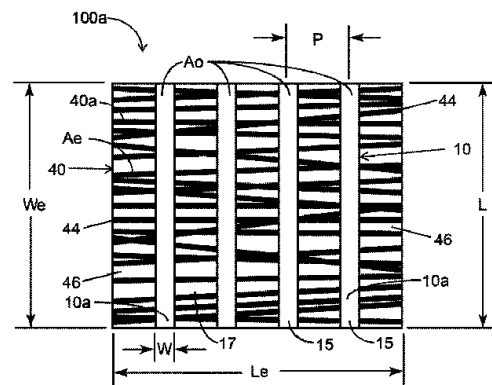


Fig. 1A

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第 1 の表面積 A_e を有する第 1 の主面、反対側を向いた第 2 の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極と、

ポリマーを含み、前記第 1 の主面上に配置され、前記第 1 の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層と、

前記複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれた前記ポリマーの一部、前記ポリマーの一部に埋め込まれた前記多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む界面領域と、

を含み、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ であり、前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層は一体構造を形成する、電極アセンブリ。 10

【請求項 2】

前記複数の空隙が、前記多孔質電極の前記第 1 の主面の少なくとも一部と反対側を向いた前記第 2 の主面との間の流体連通を可能にする、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 3】

前記不連続輸送保護層が非導電性である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 4】

$0.02 A_e \leq A_p \leq 0.5 A_e$ である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 5】

$0.02 A_e \leq A_p \leq 0.3 A_e$ である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。 20

【請求項 6】

前記不連続輸送保護層の厚さが T_p であり、前記界面領域の厚さが T_i であり、比 T_i / T_p が約 $0.005 \sim$ 約 0.8 である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 7】

前記不連続輸送保護層が、複数の個別の構造体、メッシュ構造体、織布構造体、及び不織布構造体のうちの少なくとも 1 つを含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 8】

前記不連続輸送保護層が、複数の個別の構造体を含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 9】

前記複数の個別の構造体が、約 0.050 ミクロン \sim 約 3000 ミクロンの厚さを有する、請求項 8 に記載の電極アセンブリ。 30

【請求項 10】

前記複数の個別の構造体がパターンになっている、請求項 8 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 11】

前記複数の個別の構造体が、複数の非交差連続ラインを含む、請求項 8 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 12】

前記複数の非交差連続ラインが直線である、請求項 11 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 13】

前記複数の非交差連続ラインが、約 0.3 mm \sim 約 1.1 mm のピッチを有する、請求項 11 に記載の電極アセンブリ。 40

【請求項 14】

前記複数の非交差連続ラインの幅が約 0.01 mm \sim 約 1.0 mm である、請求項 11 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 15】

前記複数の非交差連続ラインが、約 2 cm \sim 概ね前記多孔質電極の長さである長さスケールにわたって実質的に平行である、請求項 11 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 16】

前記複数の個別の構造体が、約 10 ミクロン \sim 約 5000 ミクロンまでの最長寸法を有 50

する、請求項 8 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 17】

前記不連続輸送保護層が、メッシュ構造体、織布構造体、及び不織布構造体のうちの少なくとも 1 つを含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 18】

織布、不織布、及びメッシュ構造体のうちの前記少なくとも 1 つについて、体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも 1 つが約 0.10 ~ 約 0.995 である、請求項 17 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 19】

前記不連続輸送保護層が、導電性微粒子及び非導電性微粒子のうちの少なくとも 1 つを 0 重量% ~ 5 重量% 含有する、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

10

【請求項 20】

前記不連続輸送保護層が、熱可撓性物質及び B ステージの熱硬化性物質のうちの少なくとも 1 つを含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 21】

前記不連続輸送保護層が 25 において非粘着性である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 22】

前記不連続輸送保護層の前記ポリマーが、約 50 ~ 約 400 の軟化温度を有する、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

20

【請求項 23】

前記不連続輸送保護層の前記ポリマーが、約 0 ~ 約 5 体積% の多孔率を有する固体である、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 24】

前記不連続輸送保護層が、約 5 重量% ~ 約 100 重量% の親水性ポリマーを含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 25】

前記不連続輸送保護層が親水性コーティングを更に含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 26】

前記多孔質電極が、黒鉛粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維、及び黒鉛デンドライトのうちの少なくとも 1 つを、約 5 重量% ~ 約 100 重量% 含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

30

【請求項 27】

前記多孔質電極が、約 30 重量% ~ 約 100 重量% の導電性炭素微粒子を含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 28】

前記導電性炭素微粒子は、炭素粒子、片状炭素、カーボンデンドライト、カーボンナノチューブ、及び分枝カーボンナノチューブのうち少なくとも 1 つである、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 29】

前記導電性炭素微粒子は、黒鉛粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維、及び黒鉛デンドライトのうち少なくとも 1 つである、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

40

【請求項 30】

前記多孔質電極が、約 50 重量% ~ 約 100 重量% の炭素繊維を含む、請求項 1 に記載の電極アセンブリ。

【請求項 31】

電極アセンブリを製造する方法であって、

第 1 の表面積 A_e を有する第 1 の主面、反対側を向いた第 2 の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極を準備することと、

ポリマーを含み、前記第 1 の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する不連続輸送保護

50

層を、前記第 1 の主面上に配置することと、

前記不連続輸送保護層の一部が前記複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれているか、前記多孔質電極の一部が前記ポリマーの一部に埋め込まれているか、又はそれらの組み合わせである、界面領域を形成することと、

を含み、 0.02 Ae Ap 0.85 Ae であり、前記多孔質電極及びポリマー層は一体構造を形成する、電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 2】

前記配置するステップが、押出し成形、印刷、及び転写積層のうちの少なくとも 1 つを含む、請求項 3 1 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 3】

前記配置するステップが、熔融ポリマーを押出し成形することを含む、請求項 3 1 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 4】

前記形成するステップが、前記配置するステップに含まれる、請求項 3 1 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 5】

前記形成するステップが、圧力及び熱のうちの少なくとも 1 つを前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つに加えることを含む、請求項 3 1 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 6】

圧力及び熱のうちの少なくとも 1 つを前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つに加えることが、前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つを、ニップロールの少なくとも 1 つのセット内に付勢することによって実行され、任意で前記ニップロールのうちの少なくとも 1 つは加熱される、請求項 3 5 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 7】

前記形成するステップは、圧力及び熱のうちの少なくとも 1 つを前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層に加えることを含む、請求項 3 1 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 8】

圧力及び熱のうちの少なくとも 1 つを前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層に加えることが、前記多孔質電極及びポリマー層を、ニップロールの少なくとも 1 つのセット内に付勢することによって実行され、任意で前記ニップロールの少なくとも 1 つは加熱される、請求項 3 7 に記載の電極アセンブリを製造する方法。

【請求項 3 9】

請求項 1 に記載の第 1 の電極アセンブリと、

第 1 の表面及び反対側を向いた第 2 の表面を有し、界面領域とは反対側にある不連続輸送保護層の主表面に隣接して、又はその上に配置された、イオン透過膜と、

を含み、前記第 1 の電極アセンブリ及び前記イオン透過膜は一体構造を形成する、膜電極アセンブリ。

【請求項 4 0】

前記イオン透過膜と、前記第 1 の電極アセンブリの多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つとの間に配置された第 1 の接着層を更に含み、前記第 1 の接着層が、前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、請求項 3 9 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 4 1】

前記第 1 の接着層が、環形状であるか、又は前記膜電極アセンブリの周辺部の両側にある 2 つの個別の接着ラインである、請求項 4 0 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 4 2】

前記第 1 の接着層が、前記イオン透過膜の前記第 1 の表面と、前記第 1 の電極アセンブリ

10

20

30

40

50

りの前記不連続輸送保護層とに接触している、請求項 40 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 43】

第 2 の接着層及び第 2 の電極アセンブリを更に含み、前記第 2 の接着層は、前記イオン透過膜の前記第 2 の表面と、前記第 2 の電極アセンブリの前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つとの間に配置され、前記第 2 の電極アセンブリ及び前記イオン透過膜は一体構造を形成する、請求項 40 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 44】

第 2 の接着層及び第 2 の電極アセンブリを更に含み、前記第 2 の接着層は、前記イオン透過膜の前記第 2 の表面と、前記第 2 の電極アセンブリの前記不連続輸送保護層とに接触し、前記第 2 の電極アセンブリ及び前記イオン透過膜は一体構造を形成する、請求項 40 に記載の膜電極アセンブリ。

10

【請求項 45】

前記イオン透過膜と、前記第 1 の接着層との間に配置された第 1 のガスケットを更に含み、前記第 1 のガスケットは、前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、請求項 40 又は 43 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 46】

前記イオン透過膜と、前記第 1 の接着層との間に配置された第 1 のガスケットを更に含み、前記第 1 のガスケットは前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置され、前記イオン透過膜と前記第 2 の接着層との間に配置された第 2 のガスケットを更に含み、前記第 2 のガスケットは前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置され、任意で前記第 1 のガスケットは環形状であり、前記第 2 のガスケットは環形状である、請求項 43 に記載の膜電極アセンブリ。

20

【請求項 47】

前記第 1 のガスケットは環形状である、請求項 45 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 48】

前記イオン透過膜と、第 1 の電極アセンブリの前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つとの間に配置された第 1 の接着層を更に含み、前記第 1 の接着層は、前記膜電極アセンブリの少なくとも内側の中に配置された複数の第 1 の接着領域であり、前記膜電極アセンブリの面における前記複数の第 1 の接着領域の面積は、前記膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも 50 パーセント未満である、請求項 39 に記載の膜電極アセンブリ。

30

【請求項 49】

第 2 の接着層及び第 2 の電極アセンブリを更に含み、前記第 2 の接着層は、前記イオン透過膜の前記第 2 の表面と、前記第 2 の電極アセンブリの前記多孔質電極及び前記不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つとの間に配置され、前記第 2 の電極アセンブリ及び前記イオン透過膜は一体構造を形成する、請求項 48 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 50】

前記第 2 の接着層は、前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、請求項 49 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 51】

前記第 2 の接着層は、前記膜電極アセンブリの少なくとも内側の中に設置された複数の第 1 の接着領域であり、前記膜電極アセンブリの面における前記複数の第 1 の接着領域の面積は、前記膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも 50 パーセント未満である、請求項 49 に記載の膜電極アセンブリ。

40

【請求項 52】

前記イオン透過膜と、前記第 1 の電極アセンブリの前記不連続輸送保護層との間に配置された第 1 のガスケットを更に含み、前記第 1 のガスケットは、前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、請求項 48 に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項 53】

前記イオン透過膜と、前記第 2 の電極アセンブリの前記不連続輸送保護層との間に配置

50

された第2のガスケットを更に含み、前記第2のガスケットは前記膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、請求項52に記載の膜電極アセンブリ。

【請求項54】

請求項1に記載の電極アセンブリを含む、電気化学セル。

【請求項55】

請求項39に記載の膜電極アセンブリを含む、電気化学セル。

【請求項56】

請求項1に記載の電極アセンブリを含む、液体フロー電池。

【請求項57】

請求項39に記載の膜電極アセンブリを含む、液体フロー電池。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、概して、電気化学セル及び電池を作製するのに有用なアセンブリに関する。特に、本発明は、電極アセンブリ、膜電極アセンブリ、並びにこれらから生成される電気化学セル及び液体フロー電池に関する。本開示は、電極アセンブリ及び膜電極アセンブリの製造方法を更に提供する。

【背景技術】

【0002】

電気化学セル及びレドックスフロー電池の形成に有用な様々な構成要素が、当技術分野において開示されている。このような構成要素は、例えば米国特許第5,648,184号、同第8,518,572号、及び同第8,882,057号に記載されている。

20

【発明の概要】

【0003】

一実施形態において、本開示は、第1の表面積 A_e を有する第1の主面、反対側を向いた第2の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極と、ポリマーを含み、第1の主面上に配置され、第1の主面と実質的に平行で断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層と、複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを有する界面領域と、を含む、電極アセンブリを提供する。ここで、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ であり、多孔質電極及び不連続輸送保護層は一体構造を形成する。

30

【0004】

別の実施形態において、本開示は、第1の表面積 A_e を有する第1の主面、反対側を向いた第2の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極を準備することと、ポリマーを含み、第1の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層を、第1の主面上に配置することと、不連続輸送保護層の一部が、複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれているか、多孔質電極の一部がポリマーの一部に埋め込まれているか、又はそれらの組み合わせである、界面領域を形成することとを、含む、電極アセンブリを製造する方法を提供する。ここで、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ であり、多孔質電極及びポリマー層は一体構造を形成する。

40

【0005】

更に別の実施形態において、本開示は、本開示の電極アセンブリのうちのいずれか1つによる第1の電極アセンブリと、界面領域とは反対側にある不連続輸送保護層の主面に隣接して、又はその上に配置されたイオン透過膜と、を含む膜電極アセンブリを提供する。第1の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。いくつかの実施形態において、膜電極アセンブリは、少なくとも1つの接着層及び/又は少なくとも1つのガスケットを更に含んでもよい。

【0006】

別の実施形態において、本開示は、本開示の電極アセンブリのうちのいずれか1つによる電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。

50

【 0 0 0 7 】

別の実施形態において、本開示は、本開示の膜電極アセンブリのいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。

【 0 0 0 8 】

別の実施形態において、本開示は、本開示の電極アセンブリのいずれか1つによる電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。

【 0 0 0 9 】

別の実施形態において、本開示は、本開示の膜電極アセンブリのいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。

【 図面の簡単な説明 】

10

【 0 0 1 0 】

【 図 1 A 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 B 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 A の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 1 C 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 D 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 C の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 1 E 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

20

【 図 1 F 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 E の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 1 G 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 H 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 G の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 1 I 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 J 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 I の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

30

【 図 1 K 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 L 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 K の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 1 M 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの概略上面図である。

【 図 1 N 】本開示の例示的な一実施形態による、図 1 M の例示的な電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 2 A 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

40

【 図 2 B 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【 図 3 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電気化学セルの概略側断面図である。

【 図 4 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電気化学セル積層体の概略側断面図である。

【 図 5 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な単セルの液体フロー電池の概略図である。

【 図 6 】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の SEM 画

50

像である。

【図 7】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の S E M 画像である。

【図 8】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の S E M 画像である。

【図 9】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の S E M 画像である。

【図 10】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の S E M 画像である。

【図 11】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電極アセンブリの断面の S E M 画像である。

【図 12 A】本開示の例示的な一実施形態による、図 12 B のライン 12 A における、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 B】本開示の例示的な一実施形態による、図 12 A の例示的な膜電極アセンブリの接着層の面における概略上面図である。

【図 12 C】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 D】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 E】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 F】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 G】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 12 H】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 A】本開示の例示的な一実施形態による、図 13 B のライン 13 A における、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 B】本開示の例示的な一実施形態による、図 13 A の例示的な膜電極アセンブリの接着層の面における概略上面図である。

【図 13 C】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 D】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 E】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 F】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 G】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 13 H】本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 14 A】本開示の例示的な一実施形態による、図 14 B のライン 14 A における、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。

【図 14 B】本開示の例示的な一実施形態による、図 14 A の例示的な膜電極アセンブリの接着層の面における概略上面図である。

【発明を実施するための形態】

【0011】

明細書及び図面中の参照文字が繰り返して使用されている場合、本開示の同じ又は類似

10

20

30

40

50

の特徴又は要素を表すことを意図している。図面は、縮尺どおりに描かれていない場合がある。本明細書で使用する時、記号「～」は、数値範囲に適用されるとき、別途明記しない限り、範囲の端点を含む。端点による数の範囲の記述は、その範囲内の全ての数を含み（例えば、1～5は、1、1.5、2、2.75、3、3.80、4及び5を含む。）かつその範囲内の任意の範囲を含む。特に指示のない限り、本明細書及び特許請求の範囲で使用する特徴部のサイズ、量、及び物理的特性を表す全ての数は、全ての場合において、「約」という用語によって修飾されていると理解するべきである。したがって、特に反対の指示のない限り、上記明細書及び添付の特許請求の範囲に記載されている数値パラメータは、本明細書で開示される教示を利用して当業者が得ようとする所望の特性に応じて変動し得る、近似値である。

10

【0012】

当業者であれば多くの他の変更形態及び実施形態を考案することができ、それらは本開示の原理の範囲及び趣旨内であることを理解するべきである。本明細書で用いる全ての科学用語及び技術用語は、別途明記しない限り、当技術分野で通常用いられる意味を有する。本明細書で与えられる定義は、本明細書で頻繁に用いる特定の用語の理解を助けるためのものであり、本開示の範囲を限定することを意図するものではない。本明細書及び添付の特許請求の範囲において使用するとき、単数形「a」、「an」及び「the」は、文脈上で別途明記しない限り、複数の対象を有する実施形態を包含する。本明細書及び添付の特許請求の範囲において使用するとき、用語「又は」は、文脈上で別途明記しない限り、一般的に「及び/又は」を含む意味で使用される。

20

【0013】

本開示の全体を通じて、1つの基材の表面が別の基材の表面と「接触している」とき、2つの基材間に介在層はなく、2つの基材の表面の少なくとも一部分は物理的に接触している。

【0014】

本開示の全体を通じて、基材又は基材の表面が第2の基材又は第2の基材の表面に「隣接している (adjacent)」場合、この2つの基材の最も近い2つの表面は互いに面していると見なされる。2つの表面は互いに接触していてもよく、又は介在する第3の層若しくは基材が2つの表面の間に配置され、互いに接触していなくてもよい。

【0015】

本開示の全体を通じて、用語「非導電性」は、別途明記しない限り、電気的に非導電性の材料又は基材を指す。いくつかの実施形態において、電気抵抗率が約1000 Ω・mより大きい場合、その材料又は基板は非導電性である。

30

【0016】

本開示の全体を通じて、水性溶液は、溶媒が少なくとも50重量%の水を含む溶液と定義される。非水性溶液は、溶媒が50重量%未満の水を含む溶液と定義される。

【0017】

本開示を通じて、別途指示しない限り、「繊維」という用語は単数形及び複数形の両方を含むものを意味する。

【0018】

本開示の全体を通じて、基材の第1の表面と第2の表面との間の流体連通とは、例えばガス及び/又は液体などの流体が、基材の厚さを貫通して、基材の第1の表面から基材の第2の表面に流れることができることを意味する。これは、基材の第1の表面から基材の厚さを貫通して基材の第2の表面に延びる連続空隙領域が存在することを本質的に示唆する。

40

【0019】

軟化温度は、ガラス転移温度及び/又はポリマーの融解温度である。

【0020】

体積多孔率：不連続輸送保護層の総体積すなわちバルク体積によって除算された、不連続輸送保護層の開放領域の体積である。

50

【0021】

開放面積多孔率：織布、不織布、又はメッシュ構造の主面に関して、主面における開放領域の総面積の、主面の全表面積すなわち投影表面に対する率である。

【0022】

いくつかの実施形態において、一体構造は、空間内の任意の向きに保持することができ、重力の力によって少なくとも2つの構成要素には分離しない構造を含む。

【0023】

一般的に、液体フロー電池（例えばレドックスフロー電池）の作製に使用され得る単一の電気化学セルは、アノード及びカソードの2つの多孔質電極と、これら2つの電極間に配置されて電極間に電気絶縁をもたらす、アノード半電池及びカソード半電池間を通過する1つ以上の選択イオン種の経路を準備するイオン透過膜と、アノードフロー板及びカソードフロー板であって、前者はアノードに隣接して位置され、後者はカソードに隣接して位置され、各々が、陽極液及び陰極液の電解質溶液をアノード及びカソードそれぞれに接触及び浸透させることができる1つ以上のチャンネルを含んでいる、アノードフロー板及びカソードフロー板と、を含む。イオン透過膜は、アノード及びカソードのうちの少なくとも1つと併せて、本明細書では膜電極アセンブリ（MEA）と呼ぶ。単一の電気化学セルを含むレドックスフロー電池では、例えば、セルは2つの集電体も含む。2つの集電体の1つは、アノードフロー板の外部表面に隣接し、かつ接触しており、1つはカソードフロー板の外部表面に隣接し、かつ接触している。集電体は、セルの放電中に発生した電子が外部回路に接続し、有用な仕事を行うことを可能にする。機能しているレドックスフロー電池又は電気化学セルは、陽極液、陽極液リザーバ、及びアノード半電池への陽極液の流れを促進するための対応する流体分配システム（配管及び少なくとも1つ以上のポンプ）、並びに陰極液、陰極液リザーバ、及びカソード半電池への陰極液の流れを促進するための対応する流体分配システムも含む。通常はポンプが用いられるが、重力供給システムも使用してよい。放電中、陽極液中の活性種、例えば、陽イオンが酸化し、対応する電子が外部回路及び負荷を流れ抜け、カソードに至り、カソードで陰極液中の活性種を還元する。電気化学的酸化及び還元のための活性種は陽極液及び陰極液中に含有されるため、レドックスフローセル及び電池は、そのエネルギーを電気化学セルの本体外部に、すなわち、陽極液中に蓄積することができるという固有の特徴を有する。蓄積容量は、主に陽極液及び陰極液の量、並びにこれら溶液中の活性種の濃度によって制限される。したがって、レドックスフロー電池は、例えば、リザーバタンクのサイズ及び活性種の濃度を適宜拡大縮小することによって、ウィンドファーム及び太陽エネルギープラントに関連付けられた大規模エネルギー蓄積需要のために使用され得る。レドックスフローセルは、その蓄積容量がその電力に依存しないという利点も有する。レドックスフロー電池又はセルの電力は、一般に、電池内の膜電極アセンブリ並びにその対応するフロー板（全体で「積層体」と呼ばれる場合がある）のサイズ及び数によって決定される。更に、レドックスフロー電池は電力供給網用途に設計されるために、電圧は高くなければならない。しかしながら、単一のレドックスフロー電気化学セルの電圧は、一般的には、3ボルト未満である（セルを作り上げる半電池反応の電位における差）。したがって、実用性を有するのに十分に大きい電圧を発生させるためには、数百個のセルが直列に接続される必要があり、セル又は電池のコストの相当な量が、個々のセルを作る構成要素のコストに関連する。

【0024】

レドックスフロー電気化学セル及び電池のコアには、膜電極アセンブリ（例えばアノード、カソード及びそれらの間に配置されたイオン透過膜）がある。MEAの設計は、レドックスフローセル及び電池の電力出力において重要である。次いで、これら構成要素のために選択される材料が性能にとって重要である。電極に使用する材料は、炭素をベースにしてもよい。炭素は、酸化/還元反応を発生させるための望ましい触媒活性をもたらす、導電性であり、フロー板への電子移動をもたらす。電極材料は、酸化/還元反応を発生させるため、より広い表面積をもたらす多孔質であってもよい。多孔質電極として、炭素繊維ベースの紙、フェルト及び布を挙げることができる。多孔質電極を使用する場合、電解

10

20

30

40

50

質が電極の本体に浸透し、反応のために更なる表面積に接近するため、電極の単位容積あたりのエネルギー生成率が増加する。また、陽極液及び陰極液の一方又は両方が水系、すなわち水溶液である場合があるので、多孔質電極の本体への電解質の浸透を促進するために、電極が親水性表面を有する必要がある場合がある。表面処理を用いて、レドックスフロー電極の親水性を増強してもよい。これは、電極及び対応する触媒層／領域に水分が入ることを防止するために、並びに例えば、水素／酸素系燃料電池の電極領域からの水分除去を促進するために、通常、疎水性であるように設計されている燃料電池の電極とは対照的である。

【0025】

イオン透過膜に使用する材料は、1種以上の選択イオンが膜を通過することを可能にする一方で、良好な電気絶縁体であることが必要とされる。これらの材料は、多くの場合、ポリマーから作製され、イオン透過膜を通過するイオンの移動を促進するためのイオン種を含んでもよい。したがって、イオン透過膜を構成する材料は高価な特殊ポリマーとなる場合がある。1つのセル積層体及び電池につき数百のMEAを必要とする場合があるため、イオン透過膜は、MEAの総体的なコスト並びにセル及び電池の総体的なコストに対して、大きなコスト要因となり得る。MEAのコストを最小にすることが望ましいので、そのコストを最小に抑えるための1つの手法は、MEAに使用されるイオン透過膜の体積を低減することである。しかしながら、セルの電力出力要件が、その長さ及び幅寸法（一般に、長さ及び幅が大きいほど好ましい）に対する所与のMEAのサイズ要件、したがって膜のサイズを規定するので、MEAのコストを低減するためにはイオン透過膜の厚さを低減することしかできない場合がある。しかしながら、イオン透過膜の厚さを低減することによって問題が明らかとなった。膜の厚さが減少すると、多孔質電極を作製するために使用される比較的硬い材料、例えば炭素繊維がより薄い膜を通して貫入し、対向する半電池の対応する電極に接触し得ることが分かった。このことは、セルの有害な局所的短絡、セルによって生成された電力の損失、及び電池全体の電力の損失を引き起こす。このため、膜電極アセンブリから作製された電気化学セル及び電池の必要な酸化／還元反応を阻害することなく膜を通過する、必要なイオン輸送を維持する一方で、この局所的短絡を防止することができる、改善された膜電極アセンブリが要望されている。

【0026】

本開示は、電極の主面上に配置された少なくとも1つの不連続輸送保護層を含む電極アセンブリを提供する。不連続輸送保護層及び電極は一体構造を形成し、電極アセンブリと称される。電極アセンブリは、膜電極アセンブリ、電気化学セル及び／又は液体フロー電池に使用することができる。使用時には、電極アセンブリは、不連続輸送保護層の外部表面がイオン透過膜に隣接するように位置決めされる。不連続輸送保護層は、イオン透過膜を電極の繊維による刺し傷から保護し、それによって他のMEA、電気化学セル、及び液体フロー電池の設計において問題であると判明している、局所的短絡を防止する。本開示の不連続輸送保護層はまた、膜電極アセンブリ内の流体フロー、続いて電気化学セル及び／又は電池内の流体フローを改善することができる。「輸送保護層」という文言中の用語「輸送」は、保護層内の流体輸送及び／又は保護層を貫通する流体輸送を指す。これは、膜電極アセンブリ内に追加の層を含み、次いで電気化学セル及び／又は電池内に追加の層を含むことによって、セル抵抗が発生するものと予想し得ることとは反対に、セル抵抗を改善すなわち低減するか、又は少なくともセル抵抗を大きく変えない。少なくとも1つの不連続輸送保護層を有する電極アセンブリは、例えばレドックスフロー、電気化学セル及び電池などの液体フローの作製において有用である。液体フロー電気化学セル及び電池は、液体フロータイプである単一の半電池又は液体フロータイプである両半電池を有するセル及び電池を含んでもよい。不連続輸送保護層は、MEAを作製するために使用される膜電極アセンブリ及び／又は電極アセンブリの構成要素であってよい。本開示は、少なくとも1つの不連続輸送保護層を含む電極アセンブリ及び／又はMEAを含有する、液体フロー電気化学セル及び電池も含む。本開示は、液体フロー電気化学セル及び電池の作製において有用な、電極アセンブリ及び膜電極アセンブリを作製する方法を更に提供する。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 7 】

本開示は、(i) 第 1 の表面積 A_e を有する第 1 の主面、反対側を向いた第 2 の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極と、(i i) ポリマーを含み、第 1 の主面上に配置され、第 1 の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層と、(i i i) 複数の空隙のうち少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを有する界面領域と、を含む電極アセンブリを提供する。ここで、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ であり、多孔質電極及び不連続輸送保護層は一体構造を形成する。いくつかの実施形態において、多孔質電極の複数の空隙は、多孔質電極の第 1 の主面の少なくとも一部分と、反対側を向いた第 2 の主面との間の流体連通を可能にする。多孔質電極の表面積は、投影表面積で表してもよい。界面領域は、面積 A_I を有してよく、 A_I は A_p と同じであるか、又は A_p 未満であってもよい。本開示の多孔質電極は、 $0.01 A_e \leq A_I \leq 0.85 A_e$ であってよい。界面領域 A_I は、多孔質電極上に配置された不連続輸送保護層の表面の全てが多孔質電極との界面領域を形成する場合、面積 A_p と等しくなり得る。不連続輸送保護層の主面の一部のみが界面領域を形成する場合は、 A_I は A_p 未満であり、 A_I は、界面領域を形成した不連続輸送保護層の部分の個々の面積 A_i の合計となる。不連続輸送保護層は、界面領域とは反対側を向いた主面を有する。

10

【 0 0 2 8 】

図 1 A ~ 図 1 N は、本開示の電極アセンブリの様々な非制限の実施形態を開示する。図 1 A は、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図 1 B はそれに対応する概略側断面図である。電極アセンブリ 100 a は、第 1 の表面積 A_e を有する第 1 の主面 40 a、反対側を向いた第 2 の主面 40 b、及び複数の空隙 46 を有する多孔質電極 40 を含む。この例示的な実施形態において、多孔質電極 40 は、炭素繊維などの繊維 44、及び複数の空隙 46 すなわち繊維間の空隙領域を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第 1 の表面積 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含んで第 1 の主面と実質的に平行である断面積 A_p 及び厚さ T_p を有する、不連続輸送保護層 10 を更に含む。不連続輸送保護層 10 は、多孔質電極 40 の第 1 の主面 40 a 上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層 10 は、幅 W 及び長さ L を有し、開放領域 17 によって分離された、複数の個別の構造体 15 (例えば、隣接するラインの間の中心間距離、すなわちピッチ P を有する個別の非交差連続ライン) を含む。個々の個別の構造体の各々は、第 1 の主面と実質的に平行な断面積 A_o (この例示的な実施形態では $W \times L$ に相当) を有する。 A_o はまた、多孔質電極 40 の第 1 の主面 40 a 上への、個別の構造体の投影にも対応し得る。不連続輸送保護層 10 の断面積 A_p は、個別の構造体 15 の断面積 A_o の合計から決定することができる。本開示の不連続輸送保護層のいずれかにおいて、例えば個別の構造体などの構造体断面積が厚さにわたって変化する場合は、面積 A_p は、(i) 不連続輸送保護層の構造体と多孔質電極の第 1 の主面との交差部の面積、(i i) 例えば個々の個別の構造体の各々のうちの最大断面積など、多孔質電極の第 1 の主面と実質的に平行である面内の構造体の最大断面積、に基づいてもよい。 A_p の決定では、界面領域を除外することができる。電極アセンブリは界面領域を更に含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ 100 a は界面領域 90 を含む。界面領域 90 は、多孔質電極 40 の複数の空隙 46 の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層 10 のポリマーの一部を含む。界面領域 90 は、厚さ T_i を有する。いくつかの実施形態において、界面領域で、多孔質電極 40 を構成する材料の一部、例えば繊維 44 の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによってカプセル化されてもよい。界面領域 90 は、第 1 の主面 40 a との交差部で面積 A_I を有してもよく、面積 A_I は、例えば個別のラインなど、各個別の構造体に関連付けられた界面領域の表面積 A_i の合計であってもよい。不連続輸送保護層 10 は、界面領域 90 とは反対側を向いた主面 10 a を有する。

20

30

40

50

【0029】

図1Cは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Dはそれに対応する概略側断面図である。図1C及び図1Dはそれぞれ、界面領域を除いて図1A及び図1Bと同一である。図1C及び図1Dにおいて、電極アセンブリ100bの界面領域90は、不連続輸送保護層10のポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極40の一部、例えば不連続輸送保護層10のポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極40の繊維44の一部を含む(図1D)。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層の厚さ T_p は、一般的に多孔質電極の第1の主面の上方の不連続輸送保護層の高さであるので、 T_p は界面領域 T_i の厚さを含む。不連続輸送保護層10は、界面領域90とは反対側を向いた主面10aを有する。

10

【0030】

図1E~図1Nは、本開示の追加の例示的な電極アセンブリの実施形態を開示する。これらの図を簡略化する目的のため、多孔質電極40はブロック図として描出され、先の図における繊維44は除かれている。

【0031】

図1Eは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Fはそれに対応する、図1Eのライン1Fにおける概略側断面図である。電極アセンブリ100cは、第1の表面積 A_e を有する第1の主面40a、反対側を向いた第2の主面40b、及び複数の空隙(図示せず)を有する多孔質電極40を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第1の表面領域 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含んで第1の主面と実質的に平行である断面積 A_p 及び厚さ T_p を有する、不連続輸送保護層10を更を含む。不連続輸送保護層10は、多孔質電極40の第1の主面40a上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層10は、開放領域17によって分離された幅 W (例えば直径)及び厚さ T_p を有する複数の個別の構造体15(第1の主面40aに対して実質的に垂直な円筒の軸を有する円筒)を含む。個々の個別の構造体の各々は、第1の主面に対して実質的に平行な断面積 A_o (この例示的な実施形態では、 $[W/2]^2$ に相当)を有する。 A_o は、多孔質電極40の第1の主面40a上への個別の構造体の投影に対応し得る。断面積 A_p は、個別の構造体15の断面積 A_o の合計から決定してもよい。電極アセンブリは界面領域を更を含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ100cは界面領域90を含む。界面領域90は、厚さ T_i を有する。界面領域90は、多孔質電極40の複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層10のポリマーの一部を含む。いくつかの実施形態では、界面領域において、多孔質電極40を構成する材料の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによってカプセル化されてもよい。界面領域90は、第1の主面40aとの交差部で面積 A_I を有してもよく、面積 A_I は、例えば円筒など、各個別の構造体に関連付けられた界面領域の面積 A_i の合計であってもよい。不連続輸送保護層10は、界面領域90とは反対側を向いた主面10aを有する。

20

30

【0032】

図1Gは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Hはそれに対応する、図1Gのライン1Hにおける概略側断面図である。電極アセンブリ100dは、第1の表面積 A_e を有する第1の主面40a、反対側を向いた第2の主面40b、及び複数の空隙(図示せず)を有する多孔質電極40を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第1の表面領域 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含み第1の主面と実質的に平行である面積 A_p 及び厚さ T_p を有する、不連続輸送保護層10を更を含む。不連続輸送保護層10は、第1の主面上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層10は、幅 W_h (例えば径)、厚さ T_p 、及び面積 A_h ($[W_h/2]^2$ に相当)を有する、開放領域17(複数の貫通孔、第1の主面40aと実質的に垂

40

50

直である円筒の軸を伴う円形の円筒、六角配列パターン)を含む、メッシュ構造体15aである。電極アセンブリは界面領域を更に含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ100dは界面領域90を含む。界面領域90は厚さ T_i を有し、不連続輸送保護層の開放領域17(貫通孔)は界面領域90を貫通して延びる。界面領域90は、多孔質電極40の複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層10のポリマーの一部を含む。いくつかの実施形態において、界面領域で、多孔質電極40を構成する材料の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによってカプセル化されてもよい。多孔質電極40と隣接した不連続輸送保護層10の主面全体が多孔質電極40との界面領域を形成する場合、界面領域90は、面積 A_p と等しくあり得る面積 A_I を有する。不連続輸送保護層10の主面の一部のみが界面領域を形成する場合は、 A_I は A_p 未満であり、 A_I は、界面領域を形成した輸送保護層の部分の個々の面積 A_i の合計となる。不連続輸送保護層10は、界面領域90とは反対側を向いた主面10aを有する。

10

20

30

40

50

【0033】

図1Iは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Jはそれに対応する、図1Iのライン1Jにおける概略側断面図である。電極アセンブリ100eは、第1の表面積 A_e を有する第1の主面40a、反対側を向いた第2の主面40b、及び複数の空隙(図示せず)を有する多孔質電極40を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第1の表面領域 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含み第1の主面と実質的に平行である断面積 A_p 及び厚さ T_p を有する、不連続輸送保護層10を更に含む。不連続輸送保護層10は、多孔質電極40の第1の主面40a上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層10は、幅 W_h 、厚さ T_p を有して、複数の開放領域17(複数の貫通孔、第1の主面40aと実質的に垂直である円筒の軸を伴う正方形の円筒、方形グリッドアレイパターンの円筒)を含む、メッシュ構造体15aである。電極アセンブリは界面領域を更に含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ100eは界面領域90を含む。界面領域90は厚さ T_i を有し、不連続輸送保護層の開放領域17(貫通孔)は界面領域90を貫通して延びる。界面領域90は、多孔質電極40の複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層10のポリマーの一部を含む。いくつかの実施形態において、界面領域で、多孔質電極40を構成する材料の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによってカプセル化されてもよい。多孔質電極40と隣接した不連続輸送保護層10の主面全体が多孔質電極40を伴う界面領域を形成する場合、界面領域90は、面積 A_p と等しくあり得る面積 A_I を有する。不連続輸送保護層10の主面の一部のみが界面領域を形成する場合は、 A_I は A_p 未満であり、 A_I は、界面領域を形成した輸送保護層の部分の個々の面積 A_i の合計となる。不連続輸送保護層10は、界面領域90とは反対側を向いた主面10aを有する。

【0034】

図1Kは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Lはそれに対応する、図1Kのライン1Lにおける概略側断面図である。電極アセンブリ100fは、第1の表面積 A_e を有する第1の主面40a、反対側を向いた第2の主面40b、及び複数の空隙(図示せず)を有する多孔質電極40を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第1の表面領域 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含んで第1の主面と実質的に平行である面積 A_p 及び厚さ $2T_p$ を有する、不連続輸送保護層10を更に含む。不連続輸送保護層10は、多孔質電極40の第1の主面40a上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層10は、幅 W_h 、厚さ $2T_p$ を有して複数の開放領域17(複数の貫通孔、第1の主面40aと実質的に垂直である円筒の軸を伴

う正方形の円筒、方形グリッドアレイパターンの円筒)を含む、織布構造体15bである。この特定の実施形態において、開放領域の高さは、織布構造体15bを構成する経系繊維及び横系繊維の厚さの合計と等しく設定され得ることを理解されたい。図1K及び図1Lにおいて、経系繊維及び横系繊維の厚さは同じであると見なされるが、それは必要条件ではない。電極アセンブリは界面領域を更に含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ100fは界面領域90を含む。界面領域90は厚さ T_i を有し、不連続輸送保護層の開放領域17(貫通孔)は界面領域90を貫通して延びる。界面領域90は、多孔質電極40の複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層10のポリマーの一部を含む。いくつかの実施形態では、界面領域において、多孔質電極40を構成する材料の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによってカプセル化されてもよい。多孔質電極40と隣接した不連続輸送保護層10の主面全体が多孔質電極40を伴う界面領域を形成する場合、界面領域90は、面積 A_p と等しくあり得る面積 A_I を有する。不連続輸送保護層10の主面の一部のみが界面領域を形成する場合は、 A_I は A_p 未満であり、 A_I は、界面領域を形成した輸送保護層の部分の個々の面積 A_i の合計となる。不連続輸送保護層10は、界面領域90とは反対側を向いた主面10aを有する。

10

【0035】

図1Mは、本開示の一実施形態による例示的な電極アセンブリの概略上面図であり、図1Nはそれに対応する概略側断面図である。電極アセンブリ100gは、第1の表面積 A_e を有する第1の主面40a、反対側を向いた第2の主面40b、及び複数の空隙(図示せず)を有する多孔質電極40を含む。多孔質電極は、長さ L_e 、幅 W_e 、及び厚さ T_e を有する。第1の表面領域 A_e は、多孔質電極の投影表面積、すなわち $L_e \times W_e$ で表してもよい。電極アセンブリは、ポリマーを含み、第1の主面と実質的に平行である面積 A_p 及び厚さ T_p を有する、不連続輸送保護層10を更に含む。不連続輸送保護層10は、多孔質電極40の第1の主面40a上に配置される。この例示的な実施形態において、不連続輸送保護層10は、開放領域17を含む不織布構造体15cである。そのランダムな構造のために、不織布の断面積 A_p は測定するには若干曖昧であり、以降では計算された値が用いられてもよい。不織布の断面積 A_p の平均値を次式から算出してもよい。

20

$$A_p = M_p / (D_p \times T_p)$$

30

式中、

M_p は、(所与の面積内の)不織布のポリマーの質量である。

D_p は、不織布を形成するために用いるポリマーの密度である。

T_p は、(所与の面積内の)不織布の厚みである。

【0036】

不織布が複数の繊維タイプを含む場合、密度 D_p は、不織布を構成する繊維の、不織布に存在する質量含有率によって調整された平均密度に基づいたものとなる。 D_p は、当技術分野における公知の技術を使用して測定することもできる。厚さ T_p が均一でない場合は、厚さの平均値を使用してよい。

【0037】

上記の式を一般化して、本開示の任意の不連続輸送保護層の断面積 A_p の平均値を計算してもよい。ここで、 M_p は不連続輸送保護層のポリマーの質量、 D_p は不連続輸送保護層のポリマーの密度、及び T_p は不連続輸送保護層の厚さである。 D_p は、当技術分野における公知の技術を使用して測定することができる。厚さ T_p が均一でない場合は、厚さの平均値を使用してよい。いくつかの実施形態において、 A_p は計算された断面積の平均値、 $A_p = M_p / (D_p \times T_p)$ であってもよく、パラメータは上記の定義による。

40

【0038】

電極アセンブリは界面領域を更に含む。界面領域は、複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。この例示的な実施形態において、電極アセンブリ100gは界面領

50

域 90 を含む。界面領域 90 は、厚さ T_i を有する。界面領域 90 は、多孔質電極 40 の複数の空隙の少なくとも一部に埋め込まれた、不連続輸送保護層 10 のポリマーの一部を含む。いくつかの実施形態において、界面領域で、多孔質電極 40 を構成する材料の一部は、不連続輸送保護層のポリマーによって囲まれてよく、及び / 又は接触してもよい。多孔質電極 40 と隣接した不連続輸送保護層 10 の主面全体が多孔質電極 40 との界面領域を形成する場合、界面領域 90 は、面積 A_p と等しくあり得る表面積 A_I を有する。不連続輸送保護層 10 の主面の一部のみが界面領域を形成する場合、 A_I は A_p 未満であり、 A_I は、界面領域を形成した輸送保護層の部分の個々の面積 A_i の合計となる。不連続輸送保護層 10 は、界面領域 90 とは反対側を向いた主面 10a を有する。

【0039】

図 1N に示されるように、電極アセンブリ 100g は、1 つ以上の任意の剥離ライナー 30、32 を更にも含む。任意の剥離ライナー 30 及び 32 は、例えば膜電極アセンブリ、電気化学セル、及び液体フロー電池を作製するために使用されるまで、不連続輸送保護層の外面及び多孔質電極を埃及びごみから保護するために、電極アセンブリに残してもよい。剥離ライナーはまた、機械的支持をもたらし、使用前に、不連続輸送保護層及び多孔質電極の裂傷、及び / 又はそれらの表面の擦傷を防ぐことができる。当技術分野において公知である従来の剥離ライナーを、任意の剥離ライナー 30 及び 32 に使用することができる。任意の剥離ライナー 30 及び 32 は、図 1M には示されない。

【0040】

本開示の電極アセンブリのいずれかは、図 1N に記載されるように、任意の剥離ライナーを含んでもよい。

【0041】

本開示の電極アセンブリは、不連続輸送保護層を含む。「不連続」とは、輸送保護層が、不連続輸送保護層の第 1 の主面と第 2 の主面との間の流体連通を可能にする、少なくとも 1 つの開放領域及び / 又は複数の開放領域を含むことを意味する。不連続輸送保護層は、図 1A ~ 図 1F の個別の構造体 15 などの複数の個別の構造体と、図 1G ~ 図 1J のメッシュ構造体 15a などのメッシュ構造体と、図 1K 及び図 1L の織布構造体 15b などの織布構造体と、図 1M 及び図 1N の不織布構造体 15c などの不織布構造体とのうちの、少なくとも 1 つを含み得る。不連続輸送保護層は、構造体の組み合わせを含んでもよい。不連続輸送保護層の構造体のサイズ及び形状は、多孔質電極の第 1 の表面積 A_e 、及び不連続輸送保護層の断面積 A_p に関して、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ の関係を満たす必要があることを除き、特に限定されない。いくつかの実施形態において、多孔質電極の第 1 の表面積 A_e と、不連続輸送保護層の断面積 A_p との関係は、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ 、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.7 A_e$ 、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.6 A_e$ 、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.5 A_e$ 、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.3 A_e$ 、 $0.05 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ 、 $0.05 A_e \leq A_p \leq 0.7 A_e$ 、 $0.05 A_e \leq A_p \leq 0.6 A_e$ 、 $0.05 A_e \leq A_p \leq 0.5 A_e$ 、 $0.05 A_e \leq A_p \leq 0.3 A_e$ 、 $0.10 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ 、 $0.10 A_e \leq A_p \leq 0.7 A_e$ 、 $0.10 A_e \leq A_p \leq 0.6 A_e$ 、 $0.10 A_e \leq A_p \leq 0.5 A_e$ 、又は更には $0.10 A_e \leq A_p \leq 0.3 A_e$ であってもよい。

【0042】

不連続輸送保護層は、ポリマーを含む。不連続輸送保護層のポリマーは、特に限定されない。しかし、使用中に露出され得る、陽極液及び / 又は陰極液中のポリマーの長期間にわたる安定を確実にするために、不連続輸送保護層のポリマーは、関連する溶媒、酸化 / 還元活性種、塩及び / 又はそれらに含まれる他の添加物を含む陽極液及び / 又は陰極液に対して良好な耐化学薬品性を有するように選択され得る。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、熱可塑性物質及び熱硬化性物質のうちの少なくとも 1 つを含み得る。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、熱可塑性物質を含んでもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、

10

20

30

40

50

熱可塑性物質を主成分とすることができる。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、熱硬化性物質を主成分とすることができる。熱可塑性物質は、熱可塑性エラストマーを含み得る。熱硬化性物質は、例えば最終硬化後のBステージの熱硬化物質など、Bステージの熱硬化物質を含み得る。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、熱可塑性物質及びBステージの熱硬化性物質のうち少なくとも1つを含み得る。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、例えば最終硬化後のBステージの熱硬化物質など、Bステージの熱硬化物質を主成分とすることができる。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、イオン性ポリマー、ポリウレタン、ユリアホルムアルデヒド樹脂、メラミン樹脂、例えばポリエチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリアミド、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、例えば、ポリエチレン及びポリプロピレン等のポリオレフィン、例えばスチレン-ブタジエン-スチレン等のスチレン並びにスチレン系ランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ポリ塩化ビニル、並びに例えばポリフッ化ビニリデン及びポリテトラフルオロエチレン等のフッ素化ポリマー類のうち少なくとも1つを含み得るが、これらに限定されない。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、ポリウレタン、ポリエステル、ポリアミド、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリオレフィン、スチレン並びにスチレン系ランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ポリ塩化ビニル、並びにフッ素化ポリマーのうち少なくとも1つであってよい。不連続輸送保護層のポリマーは、ポリマーブレンド又はポリマー複合体であってよい。いくつかの実施形態において、ポリマーブレンド及び/又はポリマー複合体は、本開示のポリマーから選択される少なくとも2種のポリマーを含み得る。

10

20

30

40

50

【0043】

いくつかの実施形態において、ポリマーを含む不連続輸送保護層は、例えば、無機織布構造体、及び/又はガラス繊維などの無機繊維を含む無機不織布構造体などの無機材料を含み得る。これらの実施形態において、無機織布構造体及び無機不織布構造体は、ポリマーコーティングを含んでもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、約5重量%～約100重量%、約10重量%～約100重量%、約20重量%～約100重量%、約30重量%～約100重量%、約40重量%～約100重量%、約50重量%～約100重量%、約60重量%～約100重量%、約70重量%～約100重量%、又は更には約80重量%～約100重量%のポリマーを含む。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、低コスト、低重量、及び処理の容易さのうち少なくとも1つのために、少なくとも約70重量%～約100重量%のポリマーを含むことが望ましいことがある。

【0044】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、約50～約400、約50～約350、約50～約300、又は更には約50～約250の軟化温度を有する。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、25、30、40、又は更には50でも非粘着性である。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、約0重量%～約15重量%、約0重量%～約10重量%、約0重量%～約5重量%、約0重量%～約3重量%、約0重量%～約1重量%、又は更には実質的に0重量%の感圧性接着剤を、ポリマーブレンドの形態で含有する。感圧性接着剤などの低率の弾性及び/又は高粘弾性材料は、電気化学セル又は液体フロー電池内の圧縮力によって使用中に流れることがあり、セル又は電池構成要素同士の間所望の分離を得ることを困難にすることがある。いくつかの実施形態において、電極アセンブリ及び/又は膜電極アセンブリは、実質的に感圧性接着剤及び/又は感圧性接着層を含まない。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーの係数、例えばヤング率は、約0.010GPa～約10GPa、約0.1GPa～約10GPa、約0.5GPa～約10GPa、約0.010GPa～約5GPa、約0.1GPa～約5GPa、又は更には約0

・ 5 G P a ~ 約 5 G P a であってよい。

【 0 0 4 5 】

不連続輸送保護層のポリマーは、イオン性ポリマーであってもよい。イオン性ポリマーとして、イオン交換樹脂、イオノマー樹脂及びこれらの組み合わせが挙げられるが、これらに限定されない。イオン交換樹脂が特に有用であり得る。不連続輸送保護層のイオン性ポリマーは、繰り返し単位の一部が電氣的に中性であり、繰り返し単位の一部がイオン性官能基すなわちイオン性繰り返し単位を有するポリマーを含んでもよい。いくつかの実施形態において、イオン性ポリマーは、イオン性官能基を有する繰り返し単位のモル分率が、約 0 . 0 0 5 ~ 約 1 である。

【 0 0 4 6 】

イオン性ポリマーは、従来技術で改変された従来の熱可塑性物質及び熱硬化性物質を含み、例えば陰イオン及び / 又は陽イオンのイオン性官能基のタイプのうちの少なくとも 1 つを含み得る。改変され得る有用な熱可塑性樹脂は、例えば高分子量ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超高分子量ポリエチレンなどのポリエチレン、例えば高分子量のポリプロピレンなどのポリプロピレン、ポリスチレン、例えばアルカリ金属に交換された酸官能基を有し得るアクリル酸をベースにしたポリアクリレートなどのポリ(メタ)アクリレート、塩素化ポリ塩化ビニル、例えば過フッ化フルオロポリマー及び各々が半結晶及び / 又は非結晶であり得るポリテトラフルオロエチレン (P T F E) 及びフッ化ポリビニリデン (P V D F) など部分的にフッ化されたフルオロポリマーなどのフルオロポリマー、ポリエーテルイミド、並びにポリケトンのうちの少なくとも 1 つを含むが、これらに限定されない。有用な熱硬化性樹脂は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリウレタン、ユリアホルムアデヒド樹脂及びメラミン樹脂のうち少なくとも 1 つを含むが、これらに限定されない。イオン性ポリマーとして、イオン交換樹脂、イオノマー樹脂及びこれらの組み合わせが挙げられるが、これらに限定されない。イオン交換樹脂が特に有用であり得る。

【 0 0 4 7 】

本明細書で定義されるように、イオン性ポリマーは、繰り返し単位の一部が電氣的に中性であり、繰り返し単位の一部がイオン性官能基を有するポリマーを含む。いくつかの実施形態において、イオン性ポリマーは、イオン性官能基を有する繰り返し単位のモル分率が約 0 . 0 0 5 ~ 1 である。いくつかの実施形態において、イオン性ポリマーは陽イオン樹脂、すなわち、そのイオン性官能基が負の電荷を有して、陽イオン例えばプロトンの移動を促進する。任意で、陽イオン樹脂はプロトン陽イオン樹脂である。いくつかの実施形態では、イオン性ポリマーは陰イオン交換樹脂、すなわち、そのイオン性官能基が正の電荷を有し、陰イオンの移動を促進する。イオン性ポリマーのイオン性官能基としては、カルボキシレート基、スルホネート基、スルホンアミド基、四級アンモニウム基、チウロニウム基、グアニジニウム基、イミダゾリウム基及びピリジニウム基が挙げることができるが、これらに限定されない。イオン性ポリマーに、イオン性官能基の組み合わせを使用してもよい。

【 0 0 4 8 】

イオノマー樹脂は、繰り返し単位の一部が電氣的に中性であり、繰り返し単位の一部がイオン性官能基を有する樹脂を含む。本明細書で定義されるように、イオノマー樹脂は、イオン性官能基を有する繰り返し単位のモル分率が約 0 . 1 5 以下である樹脂と見なされる。いくつかの実施形態において、イオノマー樹脂は、イオン性官能基を有する繰り返し単位のモル分率が、約 0 . 0 0 5 ~ 約 0 . 1 5 、 約 0 . 0 1 ~ 約 0 . 1 5 、 又は更には約 0 . 0 3 ~ 約 0 . 1 5 である。いくつかの実施形態において、イオノマー樹脂は、陽極液及び陰極液のうち少なくとも 1 つに不溶である。イオノマー樹脂のイオン性官能基としては、カルボキシレート基、スルホネート基、スルホンアミド基、四級アンモニウム基、チウロニウム基、グアニジニウム基、イミダゾリウム基及びピリジニウム基を挙げることができるが、これらに限定されない。イオノマー樹脂にイオン性官能基の組み合わせを使用してもよい。イオノマー樹脂の混合物を用いてもよい。イオノマー樹脂は、陽イオン樹脂又は陰イオン樹脂であってもよい。有用なイオノマー樹脂として、限定はしないが、デラウ

10

20

30

40

50

エア州ウィルミントンの Dupont 社から入手可能な NAFION と、ベルギー国ブリュッセルの SOLVAY 社から入手可能なパーフルオロスルホン酸である AQUIVION と、日本国東京の旭硝子社のフルオロポリマーイオン交換樹脂である FLEMION 及び SELEMION と、独国 Bietigheim-Bissingen の Fumatek 社から入手可能な、FKS、FKB、FKL、FKE 陽イオン交換樹脂並びに FAB、FAA、FAP、及び FAD 陰イオン交換樹脂を含む FUMASEP イオン交換樹脂と、ミネソタ州セントポールの 3M Company 社から粉末又は水溶液として、「3M 825EW」の登録商標で入手可能な、825 当量を有するポリベンゾイミダゾール、パーフルオロスルホン酸イオノマーと、3M Company 社から粉末又は水溶液として、「3M 725EW」の登録商標で入手可能な、725 当量を有するパーフルオロスルホン酸イオノマーと、その全体が本明細書に参照として組み込まれている、米国特許第 7,348,088 号に記載されているイオン交換材料及び膜と、が挙げられる。

10

20

30

40

50

【0049】

イオン交換樹脂は、繰り返し単位の一部が電氣的に中性であり、繰り返し単位の一部がイオン性官能基を有する樹脂を含む。本明細書中に定義されるように、イオン交換樹脂は、イオン性官能基を有する繰り返し単位のリモル分率が約 0.15 より大きく約 1.00 未満である樹脂と見なされる。いくつかの実施形態では、イオン交換樹脂は、イオン性官能基を有する繰り返し単位のリモル分率が、約 0.15 より大きく約 0.90 未満、約 0.15 より大きく約 0.80 未満、約 0.15 より大きく約 0.70 未満、約 0.30 より大きく約 0.90 未満、約 0.30 より大きく約 0.80 未満、約 0.30 より大きく約 0.70 未満、約 0.45 より大きく約 0.90 未満、約 0.45 より大きく約 0.80 未満、及び更には約 0.45 より大きく約 0.70 未満である。イオン交換樹脂は、陽イオン交換樹脂であってもよく、又は陰イオン交換樹脂であってもよい。イオン交換樹脂は、任意で、プロトンイオン交換樹脂であってもよい。イオン交換樹脂のタイプは、例えばイオン交換膜など、イオン透過膜を介して陽極液と陰極液との間で移動される必要がある、イオンのタイプに基づいて選択してもよい。いくつかの実施形態において、イオン交換樹脂は、陽極液及び陰極液のうちの少なくとも 1 つに不溶である。イオン交換樹脂のイオン性官能基としては、カルボキシレート基、スルホネート基、スルホンアミド基、四級アンモニウム基、チウロニウム基、グアニジニウム基、イミダゾリウム基、及びピリジニウム基が挙げられ得るが、これらに限定されない。イオン交換樹脂にイオン性官能基の組み合わせを使用してもよい。イオン交換樹脂の混合物を用いてもよい。有用なイオン交換樹脂としては、フッ素化イオン交換樹脂、例えば、パーフルオロスルホン酸コポリマー及びパーフルオロスルホンイミドコポリマー、スルホン化ポリスルホン、四級アンモニウム基を含むポリマー又はコポリマー、グアニジニウム基若しくはチウロニウム基のうち少なくとも 1 つを含むポリマー又はコポリマー、イミダゾリウム基を含むポリマー又はコポリマー、ピリジニウム基を含むポリマー又はコポリマーが挙げられるが、これらに限定されない。このイオン性ポリマーは、イオノマー樹脂とイオン交換樹脂との混合物であってもよい。

【0050】

不連続輸送保護層のポリマーは、例えばイオン性官能基を有する繰り返し単位のリモル分率が、約 0.03 ~ 約 1、約 0.05 ~ 約 1、約 0.10 ~ 1、約 0.03 ~ 約 0.8、約 0.05 ~ 0.80、又は更には約 0.1 ~ 0.80 である、本明細書で先に開示したイオン性ポリマーなどの親水性ポリマーを含んでもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、約 5 重量% ~ 約 100 重量%、約 10 重量% ~ 100 重量%、約 25 重量% ~ 約 100 重量%、約 5 重量% ~ 約 80 重量%、約 10 重量% ~ 80 重量%、約 25 重量% ~ 約 80 重量%、約 5 重量% ~ 約 60 重量%、約 10 重量% ~ 約 60 重量%、又は更には約 25 重量% ~ 約 60 重量% の親水性ポリマーを含む。いくつかの実施形態において、親水性ポリマーを、ポリマーブレンドとしてポリマーに含んでもよく、又はポリマーコーティングとして含んでもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、親水性ポリマーコーティングを含む。当技術分野で公知である、使用され得る親水性ポリマーとして、ポリアクリル酸と、ポリメタクリル酸と、ポリビニルアルコールと、ポ

リビニルアセテートと、ポリエチレングリコールと、ポリエチレンオキシドと、ポリプロピレンオキシドと、ポリアクリルアミドと、無水マレイン酸ポリマーと、セルロースポリマーと、高分子電解質並びに主鎖又は側鎖にアミン基、例えばナイロン6, 6、ナイロン7, 7、及びナイロン12を伴うポリマーと、ポリスルホンと、エポキシと、ポリエステルと、ポリカーボネートと、が挙げられるが、これらに限定されない。

【0051】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は親水性コーティングを含む。親水性コーティングは、有機材料又は無機材料であってよい。親水性コーティングは、高分子量分子種(10000g/molより大きい数平均分子量)、オリゴマー分子種(1000g/molより大きく10000g/mol未満の数平均分子量)、低分子量分子種(1000g/mol以下で20g/mol以上の数平均分子量)、及びそれらの組み合わせのうち少なくとも1つを含み得る。親水性コーティングは、例えば酸、ヒドロキシル、エステル、エーテル及び/又はアミンなど、1つ以上の極性官能基を含む分子種を含むことができる。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の親水性ポリマー及び/又は親水性コーティングは、約90°~0°、約85°~約0°、約70°~約0°、約50°~約0°、約30°~約0°、約20°~約0°、又は更には約10°~約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との表面接触角を有してもよい。接触角は、後退接触角測定及び前進接触角測定を含む、公知の技術で測定することができる。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の親水性ポリマー及び/又は親水性コーティングは、約90°~0°、約85°~約0°、約70°~約0°、約50°~約0°、約30°~約0°、約20°~約0°、又は更には約10°~約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との後退接触角を有してもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の親水性ポリマー及び/又は親水性コーティングは、約90°~0°、約85°~約0°、約70°~約0°、約50°~約0°、約30°~約0°、約20°~約0°、又は更には約10°~約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との前進接触角を有してもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、約90°~0°、約85°~約0°、約70°~約0°、約50°~約0°、約30°~約0°、約20°~約0°若しくは更には約10°~約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との前進接触角並びに/又は後退接触角を有してもよい。不連続輸送保護層のための親水性ポリマー及び/又は親水コーティングの使用は、例えば陽極液及び/又は陰極液の流れなどの、層を介した液体輸送を改善し、電気化学セル及び/又は液体フロー電池の性能を改善し得る。

【0052】

不連続輸送保護層のポリマーは、空隙又は孔を実質的に含まない中実であってもよい。例えば、図1A及び図1Bの個別の構造体15は、各々ポリマーから形成されてもよく、このポリマーは空隙又は孔を実質的に含まない中実であってもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーは、約0~約5体積%の多孔率、約0体積%~約3体積%の多孔率、又は更には約0体積%~約1体積%の多孔率を有する。いくつかの実施形態において、電気化学セル又は液体フロー電池で使用する際に存在する圧縮力により良好に抵抗することができ、及び/又は、例えば多孔質電極とイオン透過膜との間など、構成要素間の所望の間隔を維持することができる、より高い弾性率の材料を準備するために、不連続輸送保護層のポリマー内に低い多孔率を維持することが望ましいことがある。

【0053】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は非導電性である。不連続輸送保護層は、少量の導電性材料又は他の充填剤、例えば非導電性微粒子を含有してよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、導電性微粒子及び非導電性微粒子のうち少なくとも1つを、約0重量%~約5重量%、約0~約3重量%、約0~約1重量%、又は更には実質的に0重量%を含有する。

【0054】

不連続輸送保護層の厚さTpは、特に限定されない。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の厚さ、例えば複数の個別の構造体と、メッシュ構造体と、織布構造体と

、不織布構造体のうちの少なくとも1つの厚さは、約0.05ミクロン～約3000ミクロン、約0.05ミクロン～約2000ミクロン、約0.05ミクロン～約1000ミクロン、約0.05ミクロン～約500ミクロン、約1ミクロン～約3000ミクロン、約1ミクロン～約2000ミクロン、約1ミクロン～約1000ミクロン、約1ミクロン～約500ミクロン、約10ミクロン～約3000ミクロン、約10ミクロン～約2000ミクロン、約10ミクロン～約1000ミクロン、約10ミクロン～約500ミクロン、約50ミクロン～約3000ミクロン、約50ミクロン～約2000ミクロン、約50ミクロン～約1000ミクロン、又は更には約50ミクロン～約500ミクロンである。

【0055】

いくつかの実施形態において、セル又は電池の短絡に対する抵抗性（例えば、イオン透過膜の炭素繊維貫入に関連付けられた）を最大にするために、より厚い不連続輸送保護層を有することが望ましいことがある。これらの実施形態において、不連続輸送保護層の厚さは、上述した厚さの範囲の上端のものであってよい。例えば、不連続輸送保護層の厚さは、約25ミクロン～約3000ミクロン、約25ミクロン～約2000ミクロン、約25ミクロン～約1000ミクロン、約25ミクロン～約500ミクロン、約50ミクロン～約3000ミクロン、約50ミクロン～約2000ミクロン、約50ミクロン～約1000ミクロン、約50ミクロン～約500ミクロン、約75ミクロン～約3000ミクロン、約75ミクロン～約2000ミクロン、約75ミクロン～約1000ミクロン、約75ミクロン～約500ミクロン、約100ミクロン～約3000ミクロン、約100ミクロン～約2000ミクロン、約100ミクロン～約1000ミクロン、又は更には約100ミクロン～約500ミクロンであってよい。

【0056】

いくつかの実施形態において、セル抵抗及び/又は短絡抵抗を強化するため、多孔質保護層の厚さは、約25ミクロン～約500ミクロン、約50ミクロン～約500ミクロン、約75ミクロン～約500ミクロン、約100ミクロン～約500ミクロン、約25ミクロン～約400ミクロン、約50ミクロン～約400ミクロン、約75ミクロン～約400ミクロン、約100ミクロン～約400ミクロン、約25ミクロン～約300ミクロン、約50ミクロン～約300ミクロン、約75ミクロン～約300ミクロン、又は更には約100ミクロン～約300ミクロンであってよい。

【0057】

いくつかの実施形態において、セル抵抗を向上させる（セル抵抗を低下させる）ために、より薄い不連続輸送保護層を有することが望ましいことがある。これらの実施形態において、不連続輸送保護層の厚さは、上述した厚さの範囲の下端のものであってよく、約25ミクロン～約500ミクロン、約50ミクロン～約500ミクロン、約75ミクロン～約500ミクロン、約100ミクロン～約500ミクロン、約25ミクロン～約400ミクロン、約50ミクロン～約400ミクロン、約75ミクロン～約400ミクロン、約100ミクロン～約400ミクロン、約25ミクロン～約300ミクロン、約50ミクロン～約300ミクロン、約75ミクロン～約300ミクロン、又は更には約100ミクロン～約300ミクロンであってよい。

【0058】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、複数の個別の構造体、メッシュ構造、織布構造体、及び不織布構造体のうちの少なくとも1つを含むことができ、構造体の組み合わせを使用してもよい。個別の構造体は、互いに独立していることを特徴とする。これらの間には相互連結したポリマー材料は存在せず、例えば、ランド部すなわち個別の構造体を連結するポリマーの薄いフィルムは存在しない。複数の個別の構造体の形状は、特に限定されない。複数の個別の構造体の形状として、限定ではないが、円筒、半球体、立方体、直方柱、三角柱、六角柱、三角錐、四、五及び六角錐、切頭角錐、円錐、切頭円錐、例えば直線、波線、非交差線、非交差直線、非交差波線、平行線、平行直線、平行波線などのラインが挙げられる。個別の構造体がラインの形態である場合、ラインの断面形状は任意の形状でよい。複数の個別の構造体は、形状の組み合わせを含むことができる。いく

10

20

30

40

50

つかの実施形態において、不連続輸送保護層の複数の個別の構造体はランダムに配置してもよく、又は例えば繰り返しパターンなどのパターンで配置してもよい。パターンとして、正方配列、六方配列、等ピッチの平行線のパターンなどが挙げられるが、これらに限定されない。パターンの組み合わせを用いてもよい。

【0059】

不連続輸送保護層の複数の個別の構造体のサイズは、特に限定されない。いくつかの実施形態において、個別の構造体は、約10ミクロン～約5000ミクロン、約10ミクロン～約3000ミクロン、約10ミクロン～約1000ミクロン、約10ミクロン～約500ミクロン、約30ミクロン～約5000ミクロン、約30ミクロン～約3000ミクロン、約30ミクロン～約1000ミクロン、約30ミクロン～約500ミクロン、約50ミクロン～約5000ミクロン、約50ミクロン～約3000ミクロン、約50ミクロン～約1000ミクロン、約50ミクロン～約500ミクロン、約100ミクロン～約5000ミクロン、約100ミクロン～約3000ミクロン、約100ミクロン～約1000ミクロン、又は更には約100ミクロン～約500ミクロンの最長寸法、例えば長さ、幅、又は厚さを有する。

10

【0060】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、複数の非交差連続ラインを含む。いくつかの実施形態において、複数の非交差連続ラインは、約2cm～約100cm、約5cm～約100cm、約10cm～約100cm、約2cm～概ね多孔質電極の長さ、約5cm～概ね多孔質電極の長さ、又は更には10cm～概ね多孔質電極の長さである、長さスケールにわたって実質的に平行である。いくつかの実施形態において、複数の非交差連続ラインは直線である。いくつかの実施形態において、複数の非交差連続ラインは曲線である。いくつかの実施形態において、複数の非交差連続ラインは、約0.3mm～約11mm、約0.5mm～約11mm、約1.0mm～約11mm、約0.3mm～約9mm、約0.5mm～約9mm、約1.0mm～約9mm、約0.3mm～約7mm、約0.5mm～約7mm、又は更には約1.0mm～約7mmのピッチを有する。いくつかの実施形態において、このピッチは隣接するライン同士の間で同じであってもよい。いくつかの実施形態において、このピッチは2つ以上の隣接するライン同士の間で変化してもよい。いくつかの実施形態において、複数の非交差連続ラインは、約0.01mm～約10mm、約0.025mm～約10mm、約0.05mm～約10mm、約0.1mm～約10mm、約0.3mm～約10mm、約0.5mm～約10mm、約1mm～約10mm、0.01mm～約8mm、0.025mm～約8mm、0.05mm～約8mm、約0.1mm～約8mm、約0.3mm～約8mm、約0.5mm～約8mm、約1mm～約8mm、0.01mm～約6mm、0.025mm～約6mm、0.05mm～約6mm、約0.1mm～約6mm、約0.3mm～約6mm、約0.5mm～約6mm、約1mm～約6mm、又は更には約10ミクロン～約1000ミクロンの幅を有する。ラインの幅は同じでもよく、又は変化してもよい。

20

30

【0061】

個別の構造体は、限定しないが、押出し成形、3Dプリンティング、セグメント化された転写テープを用いた転写積層、マイクロ複製などを含む、当技術分野で公知である様々な技術によって作製され得る。

40

【0062】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、メッシュ構造(図1I及び図1J参照)を含むことができる。メッシュ構造体は、例えば複数の貫通孔など、複数の開放領域を有する連続シート又は層を含む。メッシュ構造体は、例えば、複数の貫通孔を有するポリマーフィルムを含むことができる。本開示のメッシュ構造体は、従来の織布及び不織布構造体すなわち織布基材及び不織布基材を含まない。メッシュ構造体の複数の開放領域の形状は、特に限定されず、円形、楕円形、不規則な多角形、規則的な多角形、例えば三角形、四角形(正方形、矩形、菱形、台形)、五角形、六角形、八角形が挙げられるが、これらに限定しない。形状の組み合わせを用いてもよい。いくつかの実施形態において、メ

50

メッシュ構造体の複数の開放領域は、約10ミクロン～約10mm、50ミクロン～約10mm、100ミクロン～10mm、約200ミクロン～約10mm、約500ミクロン～約10mm、約1000ミクロン～約10mm、10ミクロン～約8mm、50ミクロン～約8mm、約100ミクロン～約8mm、約200ミクロン～約8mm、約500ミクロン～約8mm、約1000ミクロン～約8mm、10ミクロン～約6mm、50ミクロン～約6mm、約100ミクロン～約6mm、約200ミクロン～約6mm、約500ミクロン～約6mm、約1000ミクロン～約6mm、又は更には約10ミクロン～約10000ミクロンの長さ及び/又は幅を有してよい。複数の開放領域の深さは、上述したように不連続輸送保護層の厚さTpに対応してもよい。各開放領域の寸法すなわち長さ、幅及び/又は深さは、実質的に同一であってもよく、又は異なってもよい。メッシュ構造体の複数の開放領域は、ランダムであってもよく、パターンであってもよい。パターンとして、正方配列、及び六方配列等が挙げられるが、これらに限定されない。パターンの組み合わせを用いてもよい。

10

20

30

40

50

【0063】

メッシュ構造体は、当技術分野の公知の技術によって作製され得る。例えば、ポリマーフィルムは押出し成形プロセスによって作製することができ、複数の開放領域が、限定しないが、ダイカット、レーザ切断、ウォータージェット切断、ニードルパンチ、エッチングなど、当技術分野で公知の技術を介してポリマーフィルムに形成することができる。メッシュ構造体もまた押出し成形プロセスによって形成することができる。押出し成形プロセスは、例えば、互いに実質的に平行なポリマーのストランドの第1のセットが、多孔質電極上で1つの方向で押出され、互いに実質的に平行で更にストランドの第1のセットに対して角度だけオフセットされた、ポリマーストランドの第2のセットが、多孔質電極上に押出され、それによってメッシュ構造体を形成する。は、約5°～約90°、約15°～約90°、約30°～約90°、又は更には約45°～約90°であってよい。

【0064】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、織布構造体、すなわち複数の開放領域を有する織布基材(図1K及び図1Lを参照)を含んでもよい。当技術分野で公知である従来の織布構造体、例えば織物布及び織布が使用され得る。いくつかの実施形態において、織布構造体の複数の開放領域は、約10ミクロン～約10mm、約50ミクロン～約10mm、約100ミクロン～約10mm、約200ミクロン～約10mm、約500ミクロン～約10mm、約1000ミクロン～約10mm、約10ミクロン～約8mm、約50ミクロン～約8mm、約100ミクロン～約8mm、約200ミクロン～約8mm、約500ミクロン～約8mm、約1000ミクロン～約8mm、約10ミクロン～約6mm、約50ミクロン～約6mm、約100ミクロン～約6mm、約200ミクロン～約6mm、約500ミクロン～約6mm、約1000ミクロン～約6mmの長さ及び/又は幅を有してよい。複数の開放領域の深さは、前述したように不連続輸送保護層の厚さTpに対応し得る。

【0065】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、不織布構造体、すなわち実質的に相互連結した開放領域を有する不織布基材(図1M及び図1Nを参照)を含んでもよい。例えば不織布紙、不織布フェルト、及び不織布ウェブなど、当技術分野で公知である従来の不織布構造体を使用され得る。

【0066】

本開示における不連続輸送保護層の織布及び不織布構造体は、非導電性の構造体であってもよい。不連続輸送保護層の織布及び不織布構造体は、一般に繊維を含む。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、非導電性の織布構造体を含み、非導電性の不織布構造体を含まない。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は、非導電性の不織布構造体を含み、非導電性の織布構造体を含まない。不連続輸送保護層における、非導電性の織布及び不織布構造体は、ポリマーを含み、任意で無機物を含み得る。織布及び不織布構造体は、非導電性ポリマー材料を含んでよく、任意で非導電性の無機材料を含み得

る。非導電性の織布基材及び不織布基材は、例えば複数の繊維など、繊維を含んでよい。織布及び不織布構造体は、例えば非導電性ポリマー繊維などのポリマー繊維から、及び任意で、例えば非導電性の無機繊維などの無機繊維から作製され得る。いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体は、ポリマー繊維を含み、無機繊維を除外してよい。

【0067】

いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体の繊維は、長さ対幅のアスペクト比、及び長さ対厚さのアスペクト比の両方が約10より大きくてよく、幅対厚さのアスペクト比が約5未満であってよい。円の形状の断面積を有する繊維の場合、幅及び厚さは同一であり、円形断面の直径に等しくなる。繊維の長さ対幅及び長さ対厚さのアスペクト比に関する特定の上限はない。繊維の長さ対厚さ及び長さ対幅のアスペクト比の両方は、約10～約1000000、10～約1000000、10～約10000、約10～約500、10～約250、10～約100、約10～約50、約20～約1000000、20～約1000000、20～約10000、20～約500、20～約250、20～約100、又は更には約20～約50であってよい。繊維の幅及び厚さはそれぞれ、約0.001～約500ミクロン、約0.001～約250ミクロン、約0.001～約100ミクロン、約0.001ミクロン～約50ミクロン、約0.001～約25ミクロン、約0.001ミクロン～約10ミクロン、約0.001ミクロン～約1ミクロン、約0.01～約500ミクロン、約0.01～約250ミクロン、約0.01～約100ミクロン、約0.01ミクロン～約50ミクロン、約0.01～約25ミクロン、約0.01ミクロン～約10ミクロン、約0.01ミクロン～約1ミクロン、約0.05～約500ミクロン、約0.05～約250ミクロン、約0.05～約100ミクロン、約0.05ミクロン～約50ミクロン、約0.05～約25ミクロン、約0.05ミクロン～約10ミクロン、約0.05ミクロン～約1ミクロン、約0.1～約100ミクロン、約0.1～約500ミクロン、約0.1～約250ミクロン、約0.1ミクロン～約50ミクロン、約0.1～約25ミクロン、約0.1ミクロン～約10ミクロン、又は更には約0.1ミクロン～約1ミクロンであってよい。いくつかの実施形態において、繊維の厚さと幅とは、同一であってよい。いくつかの実施形態において、より小さいマイクロファイバーと一緒に織られるか又は結合されて、構成する個々の繊維よりも大きな寸法、例えば幅及び/又は厚さを有するマクロファイバーを形成し得る。

10

20

30

【0068】

繊維は、従来の技術を用いて、織布及び不織布構造体に作製され得る。不織布構造体は、メルトブローン繊維プロセス、スパンボンドプロセス、カーディングプロセスなどによって作製され得る。いくつかの実施形態において、繊維の長さ対厚さのアスペクト比、及び長さ対幅のアスペクト比は、1000000より大きく、約100000000より大きく、約1000000000より大きく、又は更には1000000000より大きくてよい。いくつかの実施形態において、繊維の長さ対厚さのアスペクト比、及び長さ対幅のアスペクト比は、約10～約100000000000、約10～約100000000000、約10～約100000000000、約20～約100000000000000、約20～約100000000000000、約20～約100000000000000、約50～約1000000000000000、約50～約1000000000000000、又は更には約50～約1000000000000000であってよい。

40

【0069】

織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つは、従来の織布紙及び不織布紙、フェルト、マット、及び当技術分野で公知である布(布地)を含んでよい。織布及び不織布構造体は、ポリマー繊維、及び任意でセラミック繊維を含んでよい。非導電性の織布及び不織布基材のうちの少なくとも1つを形成するために使用されるタイプの数、ポリマー繊維のタイプ及びセラミック繊維のタイプの数は、特に限定されない。ポリマー繊維は、例えばポリマー組成物又は1つのポリマータイプなど、少なくとも1つのポリマーを含んでよい。ポリマー繊維は、少なくとも2つのポリマー、すなわち2つのポリマー組成物又は2つのポリマータイプを含んでよい。ポリマー繊維は、少なくとも2つの異なるポリマータイプからなる芯鞘ポリマー繊維であってよい。例えば、ポリマー繊維は、ポリエチレンか

50

ら成る一方のセットの繊維、及びポリプロピレンから成る他方のセットの繊維を含んでよい。少なくとも2つのポリマーが使用される場合、第1のポリマー繊維は、第2のポリマー繊維よりも低いガラス転移温度及び/又は融解温度を有し得る。第1のポリマー繊維は、織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つのポリマー繊維と一緒に融合させ、例えば織布及び不織布構造体の機械的特性を改善するために使用され得る。第1のポリマー繊維は、多孔質電極の複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれてよく、若しくは多孔質電極の一部が第1のポリマー繊維の一部に埋め込まれてよく、又はそれらの組み合わせであってもよい。任意のセラミック繊維は、例えば1つのセラミック組成物又は1つのセラミックタイプなど、少なくとも1つのセラミックを含んでよい。任意のセラミック繊維は、少なくとも2つのセラミック、すなわち2つのセラミック組成物又は2つのセラミックタイプを含んでよい。織布及び不織布構造体は、例えば1つのポリマー組成物又はポリマータイプなどの、少なくとも1つのポリマー繊維、及び、例えば1つのセラミック組成物又は1つのセラミックタイプなどの、少なくとも1つのセラミック繊維を含んでよい。例えば、織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つは、ポリエチレン繊維及びガラス繊維を含んでよい。

10

20

30

40

50

【0070】

織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つの基本重量は、特に限定されない。いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つの基本重量は、材料のグラム/平方メートル(gsm)で測定され、約4gsm~約60gsm、約4gsm~約50gsm、約4gsm~約40gsm、約4gsm~約32gsm、約6gsm~約60gsm、約6gsm~約50gsm、約6gsm~約40gsm、約6gsm~約32gsm、約8gsm~約60gsm、約8gsm~約50gsm、約8gsm~約40gsm、又は更には約8gsm~約32gsmであってよい。

【0071】

いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体は、導電性材料が非導電性の織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つを導電性に変えない限りは、少量の1つ以上の導電性材料を含んでもよい。いくつかの実施形態において、非導電性の織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つは、実質的に導電性材料を含まない。この場合、「導電性材料を実質的に含まない」とは、非導電性の織布及び不織布基材のうちの少なくとも1つが、約25重量%未満、約20重量%未満、約15重量%未満、約10重量%未満、約5重量%未満、約3重量%未満、約2重量%未満、約1重量%未満、約0.5重量%未満、約0.25重量%未満、約0.1重量%未満、又は更には0.0重量%未満の導電性材料を含むことを意味する。

【0072】

織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つのポリマー繊維は、特に限定されない。いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体のうちの少なくとも1つのポリマー繊維は、非導電性である。いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体のポリマー繊維は、熱可塑性物質及び熱硬化性物質のうちの少なくとも1つを含んでよい。熱可塑性物質は、熱可塑性エラストマーを含み得る。熱硬化性物質は、Bステージのポリマーを含み得る。いくつかの実施形態において、織布及び不織布構造体のポリマー繊維は、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリウレタン、ユリアホルムアルデヒド樹脂、メラミン樹脂、例えばポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル、ポリエチレンナフタレート、ポリアミド、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、例えばポリエチレン及びポリプロピレンなどのポリオレフィン、例えばスチレン-ブタジエン-スチレン等のスチレン並びにスチレン系ランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ポリ塩化ビニル、例えばフッ化ポリビニリデン及びポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素化ポリマーのうちの少なくとも1つを含むが、これらに限定されない。いくつかの実施形態において、ポリマー繊維は、ポリウレタン、ポリエステル、ポリアミド、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリアクリレート、ポリメタクリ

レート、ポリオレフィン、スチレン並びにスチレン系ランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ポリ塩化ビニル、並びにフッ素化ポリマーのうちの少なくとも1つを含む。

【0073】

織布及び不織布構造体の任意のセラミック繊維は、特に限定されない。セラミック繊維のセラミックとして、金属酸化物、例えばガラス及びドープガラスなどの酸化ケイ素、及び酸化アルミニウムを挙げることができるが、これらに限定されない。

【0074】

不連続輸送保護層は、多層構造体であってもよい。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は少なくとも1つの層を含む。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は2層以上を含む。不連続輸送保護層の層は、同じ組成物及び/若しくは構造体であつてもよく、又は2つ以上の異なる組成物及び/若しくは2つ以上の異なる構造体を含んでもよい。

10

【0075】

本開示の不連続輸送保護層は、不連続輸送保護層の少なくとも一部分にイオン性樹脂コーティングを更に含んでもよい。不連続輸送保護層のイオン性樹脂コーティングは、電解質の選択イオンが不連続輸送保護層を貫通して移動することを可能にする。これは、電解質が所与の不連続輸送保護層を容易に濡らして吸収されるようにすることによって達成され得る。材料特性、特に不連続輸送保護層の表面濡れ性は、陽極溶液及び陰極溶液の種類、すなわち、陽極溶液及び陰極溶液が水性系であるか非水性系であるかに基づいて選択してもよい。いくつかの実施形態において、イオン性樹脂コーティングのイオン性樹脂は、約90°~0°、約85°~約0°、約70°~約0°、約50°~約0°、約30°~約0°、約20°~約0°、又は更には約10°~約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との表面接触角を有してもよい。いくつかの実施形態において、イオン性樹脂は不連続輸送保護層の表面積の、少なくとも10%、少なくとも20%、少なくとも30%、少なくとも40%、少なくとも50%、少なくとも60%、少なくとも70%、少なくとも75%、少なくとも80%、少なくとも85%、少なくとも90%、少なくとも95%、又は更には少なくとも100%を、コーティングする。濡れ性の改善は一般にイオン性樹脂コーティングの適用面積と共に増大するので、より大きい適用面積が好ましい可能性がある。

20

【0076】

イオン性樹脂コーティングは、イオン性樹脂コーティングを形成するために硬化され得る1つ以上のモノマー及びオリゴマーを含有する、前駆体イオン性樹脂から形成することができる。前駆体イオン性樹脂は、溶解したポリマーを更に含有してもよい。前駆体イオン性樹脂は、前駆体イオン性樹脂の硬化前又は硬化後に除去される溶媒を含んでもよい。イオン性樹脂は、イオン性樹脂粒子の分散体から形成してもよく、分散体の溶媒を除去して不連続輸送保護層のイオン性樹脂コーティングを形成してもよい。イオン性樹脂コーティングはイオン性ポリマーを含むことができ、イオン性ポリマーは溶媒に分散又は溶解してもよく、この溶媒を除去して不連続輸送保護層のイオン性樹脂コーティングを形成してもよい。本明細書で前述したように、イオン性樹脂コーティングは、イオン性ポリマー、イオノマー樹脂、及びイオン交換樹脂のうちの少なくとも1つを含み得る。

30

40

【0077】

不連続輸送保護層の総重量に対する、イオン性樹脂の重量の比率は特に限定されない。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の総重量に対するイオン性樹脂の重量の比率は、約0.03~約0.95、約0.03~約0.90、約0.03~約0.85、約0.03~約0.80、約0.03~約0.70、約0.05~約0.95、約0.05~約0.90、約0.05~約0.85、約0.05~約0.80、約0.05~約0.70、約0.10~約0.95、約0.10~約0.90、約0.10~約0.85、約0.10~約0.80、約0.10~約0.70、約0.20~約0.95、約0.20~約0.90、約0.20~約0.85、約0.20~約0.80、約0.20~約0.70、約0.30~約0.95、約0.30~約0.90、約0.30~約0.85、

50

約 0.30 ~ 約 0.80、約 0.30 ~ 約 0.70、約 0.40 ~ 約 0.95、約 0.40 ~ 約 0.90、約 0.40 ~ 約 0.85、約 0.40 ~ 約 0.80、又は更には約 0.40 ~ 約 0.70 である。

【0078】

使用され得る、当技術分野で公知であるコーティング技術として、ブラシコーティング、ディップコーティング、スプレーコーティング、例えばスロット供給ナイフコーティングなどのナイフコーティング、ノッチバーコーティング、例えばメイヤーバーコーティングなどのメーティングロッドコーティング、例えば流体軸受ダイコーティングなどのダイコーティング、例えば 3 ロールコーティングなどのロールコーティング、カーテンコーティングなどが挙げられるが、これらに限定されない。

10

【0079】

いくつかの実施形態において、イオン性樹脂は、例えばイオン性樹脂、溶媒、及び他の任意の望ましい添加剤を含む溶液などの、イオン性樹脂コーティング溶液の形態で、不連続輸送保護層の繊維表面の少なくとも一部にコーティングされる。例えば溶媒など、イオン性樹脂コーティング溶液の揮発性の構成成分は、不連続輸送保護層の表面の少なくとも一部にイオン性樹脂を残して、乾燥させることによって除去する。イオン性樹脂コーティング溶液は、樹脂と、適切な溶媒と、任意の他の添加剤とを組み合わせ、その後所望の剪断速度で混合することを含む溶液配合によって調製することができる。混合は、例えばブレードミキサ、及びボールミリング加工などの従来のミリング加工を含む、当技術分野で公知である任意の技術を使用することを含み得る。イオン性樹脂コーティング溶液への他の添加剤として、界面活性剤、分散剤、増粘剤、湿潤剤などを挙げることができるが、これらに限定されない。界面活性剤、分散剤及び増粘剤は、イオン性樹脂コーティング溶液が、不連続輸送保護層の表面を湿潤させる能力を促進するのを助けることができる。それらは粘度調節剤としても機能することができる。コーティング溶液を作る前に、イオン性樹脂は、例えば、エマルジョン重合技術又は懸濁重合技術を介して、イオン性樹脂を調製した場合に生成されるように、分散液又は懸濁液の形態であってもよい。イオン性樹脂分散体又は懸濁液を溶媒中で安定させるために、界面活性剤などの添加剤を使用してもよい。

20

【0080】

イオン性樹脂コーティング溶液で有用な溶媒は、イオン性樹脂のタイプに基づいて選択してもよい。イオン性樹脂コーティング溶液で有用な溶媒としては、水、アルコール類（例えば、メタノール、エタノール及びプロパノール）、アセトン、酢酸エチル、アルキル溶媒（例えば、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン及びオクタン）、メチルエチルケトン、エチルエチルケトン、ジメチルエーテル、石油エーテル、トルエン、ベンゼン、キシレン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン及びこれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。

30

【0081】

イオン性樹脂コーティング溶液中の溶媒の量は、重量基準で、約 5 ~ 約 95 パーセント、約 10 ~ 約 95 パーセント、約 20 ~ 約 95 パーセント、約 30 ~ 約 95 パーセント、約 40 ~ 約 95 パーセント、約 50 ~ 約 95 パーセント、約 60 ~ 約 95 パーセント、約 5 ~ 約 90 パーセント、約 10 ~ 約 90 パーセント、約 20 パーセント ~ 約 90 パーセント、約 30 ~ 約 90 パーセント、約 40 ~ 約 90 パーセント、約 50 ~ 約 90 パーセント、約 60 ~ 約 90 パーセント、約 5 ~ 約 80 パーセント、約 10 ~ 約 80 パーセント、約 20 パーセント ~ 約 80 パーセント、約 30 ~ 約 80 パーセント、約 40 ~ 約 80 パーセント、約 50 ~ 約 80 パーセント、約 60 ~ 約 80 パーセント、約 5 パーセント ~ 約 70 パーセント、約 10 パーセント ~ 約 70 パーセント、約 20 パーセント ~ 約 70 パーセント、約 30 ~ 約 70 パーセント、約 40 ~ 約 70 パーセント、又は更には約 50 ~ 約 70 パーセントであってもよい。

40

【0082】

例えば湿潤性を向上させるために、界面活性剤をイオン性樹脂コーティング溶液に使用してもよい。界面活性剤には、陽イオン性、陰イオン性及び非イオン性界面活性剤を含ん

50

でもよい。イオン性樹脂コーティング溶液に有用な界面活性剤として、ミシガン州ミッドランドのDow Chemical Company社から入手可能なTRITON X-100と、独国WesellのBYK Chemie GmbH社から入手可能なDISPERSBYK 190と、例えばオレイルアミン(olyelamine)及びドデシルアミンなどのアミンと、例えば3-(N,N-ジメチルドデシルアンモニオ(dimethyldodecylammonio))プロパンスルホン酸(SB12)などの主鎖に8以上の炭素を有するアミンと、ペンシルバニア州ExtonのCray Valley USA LLC社から入手可能なSMA1000と、1,2-プロパンジオール、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノールと、その全体が本明細書に参照として組み込まれている米国特許出願公開第2013/0011764号に記載されている第四級アミノ及び界面活性剤と、が挙げられるが、これらに限定されない。イオン性樹脂コーティング溶液中に1種以上の界面活性剤が使用される場合、界面活性剤は熱プロセスによって不連続輸送保護層から除去してもよい。界面活性剤は熱処理の温度で揮発するか又は分解し、得られた化合物は熱処理の温度で揮発する。いくつかの実施形態において、イオン性樹脂は界面活性剤を実質的に含まない。「実質的に含まない」とは、イオン性樹脂が、0重量%~0.5重量%、0重量%~0.1重量%、0重量%~0.05重量%、又は更には0重量%~0.01重量%の界面活性剤を含有することを意味する。いくつかの実施形態において、イオン性樹脂は界面活性剤を含有しない。界面活性剤は、界面活性剤の溶媒を用いた洗浄又はすすぎによってイオン性樹脂から除去してもよい。溶媒としては、水、アルコール類(例えば、メタノール、エタノール及びプロパノール)、アセトン、酢酸エチル、アルキル溶媒(例えば、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン及びオクタン)、メチルエチルケトン、エチルエチルケトン、ジメチルエーテル、石油エーテル、トルエン、ベンゼン、キシレン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン及びこれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。

10

20

30

40

50

【0083】

不連続輸送保護層は、ライナー又は剥離ライナー上に溶液をコーティングすることによってイオン性樹脂コーティング溶液で形成することができる。次に、不連続輸送保護層の第1の主面、例えば織布及び不織布構造体の第1の主面は、イオン性樹脂コーティング溶液に接触させて設置され得る。不連続輸送保護層はライナーから取り外され、不連続輸送保護層の第1の主面の少なくとも一部は、イオン性樹脂コーティング溶液でコーティングされる。任意で、新しいライナー又は同じライナーに、同一又は異なるイオン性樹脂コーティング溶液でコーティングしてもよく、次に不連続輸送保護層の第2の主面をイオン性樹脂コーティング溶液に接触させて設置してもよい。不連続輸送保護層はライナーから取り外され、不連続輸送保護層の第2の主面の少なくとも一部は、イオン性樹脂コーティング溶液でコーティングされる。次に、不連続輸送保護層は、例えば溶媒などの揮発性化合物をイオン性樹脂コーティング溶液から除去するために、例えばオープンから又はオープンを介した空気流からの熱などの熱処理のために露出され、ポリマー、及び不連続輸送保護層のポリマーの表面の少なくとも一部をコーティングするイオン性樹脂を含む、不連続輸送保護層を生成する。不連続輸送保護層を作製する代替の方法として、イオン性樹脂コーティング溶液を、不連続輸送保護層の第1の主面及び/又は第2の主面上に直接コーティングし、その後、例えば溶媒などの揮発性化合物をイオン性樹脂コーティング溶液から除去するために、例えばオープンから又はオープンを介した空気流からの熱などの熱処理を行い、ポリマーと、不連続輸送保護層のポリマーの表面の少なくとも一部をコーティングするイオン性樹脂とを含む、不連続輸送保護層を生成する。コーティング後に、コーティング溶液の量が多すぎる場合には、熱処理の前に、不連続輸送保護層を例えば2つのロールコータのニップに通して、イオン性樹脂コーティング溶液の一部を除去してもよい。

【0084】

イオン性樹脂が前駆体イオン性樹脂の形態である場合、不連続輸送保護層は、前駆体樹脂を伴うポリマーを含む不連続輸送保護層の、少なくとも一方の主面をコーティングすることによって形成することができる。不連続輸送保護層のポリマー表面の少なくとも一部

は、前駆体イオン性樹脂でコーティングされる。次いで、不連続輸送保護層の前駆体イオン樹脂コーティングは、限定ではないが、熱硬化、化学線硬化、及びeビーム硬化を含む、当技術分野で公知である技術によって硬化させることができる。前駆イオン性樹脂は、前駆性イオン性樹脂の硬化化学作用及びイオン性樹脂の所望の最終特性によって、硬化剤、触媒、連鎖移動剤、連鎖延長剤などのうちの1つ以上を含有してもよい。イオン性樹脂前駆体を硬化させることにより、ポリマーと、不連続輸送保護層のポリマー表面の少なくとも一部をコーティングするイオン性樹脂とを含む、不連続輸送保護層を生成する。

【0085】

いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層の体積多孔率、及び開放面積多孔率のうち少なくとも1つは、約0.10～約0.995、約0.10～約0.95、約0.10～約0.90、約0.10～約0.85、約0.10～約0.75、約0.15～約0.995、約0.15～約0.95、約0.15～約0.90、約0.15～約0.85、約0.15～約0.75、約0.25～約0.995、約0.25～約0.95、約0.25～約0.90、約0.25～約0.85、約0.25～約0.75、約0.35～約0.995、約0.35～約0.95、約0.35～約0.90、約0.35～約0.85、約0.35～約0.75、約0.45～約0.995、約0.45～約0.95、約0.45～約0.90、約0.45～約0.85、約0.45～約0.75、約0.50～約0.995、約0.50～約0.95、約0.50～約0.90、約0.50～約0.85、約0.50～約0.75、約0.65～約0.995、約0.65～約0.95、約0.65～約0.90、約0.65～約0.85、又は更には約0.65～約0.75であってよい。

10

20

【0086】

不連続輸送保護層の体積多孔率は、不連続輸送保護層の総体積すなわちバルク体積によって除算された、不連続輸送層の空隙空間の体積と定義される。体積多孔率は、例えば直接方法、光学的方法、及びガス膨脹方法など、当技術分野で公知である従来技術によって定義することができる。例えば、体積多孔率を次式から算出してもよい。

$$\text{体積多孔率} = 1 - (D_s / D_m)$$

式中、

D_s = 基材の密度 (バルク密度)、例えば g / cm^3

D_m = 基材を構成する材料の密度、例えば g / cm^3

30

【0087】

基材が2種以上の繊維タイプを含有する織布及び不織布基材である場合、 D_m は重み付けされた平均密度である。

$$\text{重み付けされた平均密度} = D_1 (w_1 / w_3) + D_2 (w_2 / w_3)$$

式中、

D_1 は構成成分1の密度である。

D_2 は構成成分2の密度である。

w_1 は構成成分1の重量である。

w_2 は構成成分2の重量である。

w_3 は総重量 ($w_3 = w_1 + w_2$) である。

40

【0088】

例えば、 $0.95 g / cm^3$ の密度を有するポリエチレン繊維から作られた、 $0.3 g / cm^3$ の密度 D_s を有する不織布基材について、多孔率は $(1 - 0.3 / 0.95)$ すなわち0.684である。体積多孔率は、基材内の孔又は開放体積の体積率である。

【0089】

開放面積多効率は、不連続輸送保護層の主面における不連続輸送保護層の表面の総面積 (貫通孔の面積と対応するポリマーの面積) に対する、例えば貫通孔などの空隙面積の比率である。開放面積多効率は、当技術分野で公知である従来技術によって決定され得る。開放面積多効率は、例えば矩形貫通孔の長さ l 、及び幅 w 、並びに横系繊維の繊維幅又は径 D_{we} 、及び経系繊維の繊維幅又は径 D_{wa} を有するメッシュについて、以下のように

50

計算され得る（孔の長さは経系の方向に対応し、穴の幅は横系の方向に対応するものと見なす）。

$$\text{開放面積多効率} = (l \times w) / [(l + D w e) (w + D w a)]$$

【0090】

いくつかの実施形態において、セル又は電池の短絡に対する抵抗性（イオン透過膜の炭素繊維貫入に関連付けられた）を最大にするために、孔の少ない不連続輸送保護層を有することが望ましいことがある。これらの実施形態において、不連続輸送保護層の体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つは、上述した体積多孔率及び/又は開放面積多孔率の範囲の下端にあってもよい。例えば、不連続輸送保護層の体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つは、約0.10～約0.65、約0.10～約0.55、約0.10～約0.45、約0.10～約0.35、約0.15～約0.65、約0.15～約0.55、約0.15～約0.45、又は更には約0.15～約0.35であってよい。

10

【0091】

いくつかの実施形態において、セル抵抗を最大にする（セル抵抗を下げる）ため、セル又は電池の中での流体の流れ、すなわち陽極液及び/又は陰極液の流れを増加させるために、より多孔質な不連続輸送保護層を用いることが望ましいことがある。これらの実施形態において、不連続輸送保護層の体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つは、上述した体積多孔率及び/又は開放面積多孔率の範囲の上端にあってもよい。例えば、不連続輸送保護層の体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つは、約0.35～約0.995、約0.35～約0.95、約0.35～約0.90、約0.35～約0.85、約0.35～約0.75、約0.45～約0.995、約0.45～約0.95、約0.45～約0.90、約0.45～約0.85、又は更には約0.45～約0.75であってよい。

20

【0092】

本開示の不連続輸送保護層を含有する電気化学セル又は電池の短絡抵抗及びセル抵抗を改善することに関して、増加又は減少させるかのいずれかの多孔率の変更は、一般的に、パラメータの1つを改善する一方で、他のパラメータに悪影響を与える。しかし、驚くことに、電気化学セルの短絡に対する抵抗（イオン透過膜の炭素繊維貫入に関連付けられた）は、本開示の不連続輸送保護層を含有する電気化学セルのセル抵抗を、少なくとも著しくではないが変化させ、場合によっては改善させつつ、改善させ得ることが判明した。これらの実施形態において、不連続輸送保護層の体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つは、約0.35～約0.995、約0.35～約0.95、約0.35～約0.90、約0.35～約0.85、又は更には約0.35～約0.75であってよい。

30

【0093】

本開示はまた、膜電極アセンブリを提供する。膜電極アセンブリは、本開示の電極アセンブリのうちのいずれか1つによる、例えば第1の電極アセンブリなどの電極アセンブリを含んでよく、例えば界面領域とは反対側を向いた不連続輸送保護層の主面に隣接して、又はその上に配置されたイオン交換膜など、第1の表面及び反対側を向いた第2の表面を有するイオン透過膜を、更に含み得る。電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成してもよい。いくつかの実施形態において、界面領域とは反対側を向いた不連続輸送保護層の主面を、圧力及び熱のうちの少なくとも1つを含み得る従来の積層技術を用いて、イオン透過膜（例えば、イオン交換膜）の第1の主面に積層して、膜電極アセンブリを形成してもよい。第2の不連続輸送保護層を、イオン透過膜の反対側の第2の主面に積層して、膜電極アセンブリを形成してもよい。

40

【0094】

図2Aは、本開示の例示的な一実施形態による、膜電極アセンブリの概略側断面図を示す。膜電極アセンブリ200aは、例えば第1の主面20a及び反対側を向いた第2の主面20bを有するイオン交換膜などの、イオン透過膜20と、図1A及び図1Bで前述した第1の電極アセンブリ100aとを含む。イオン透過膜20は、界面領域90とは反対

50

側にある、不連続輸送保護層 10 の主面 10 a 上に配置される。イオン透過膜 20 の第 1 の主面 20 a は、界面領域 90 とは反対側にある、電極アセンブリ 100 a の第 1 の不連続輸送保護層 10 の主面に接触していてもよい。第 1 の電極アセンブリ 100 a を、例えば図 1 C ~ 図 1 N で開示されたものなど本開示の電極アセンブリのいずれかと交換してもよい。膜電極アセンブリ 200 a は、1 つ以上の任意の剥離ライナー 30、32 を更にも含んでもよい。当技術分野において公知である従来剥離ライナーを、任意の剥離ライナー 30 及び 32 に使用することができる。

【0095】

図 2 B は、本開示の例示的な一実施形態による例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図を示す。図 2 B は、図 1 D で前述したような第 2 の電極アセンブリ 100 b を含むことを除いて、前述した図 2 A と同一である。膜電極アセンブリ 200 b は、例えば第 1 の表面 20 a 及び反対側を向いた第 2 の表面 20 b を有するイオン交換膜などの、イオン透過膜 20 と、図 1 B で前述した第 1 の電極アセンブリ 100 a と、図 1 D で前述した第 2 の電極アセンブリ 100 b とを含む。イオン透過膜 20 (表面 20 b) は、界面領域 90 とは反対側にある第 2 の電極アセンブリ 100 b の、不連続輸送保護層 10 の主面 10 a 上に配置される。イオン透過膜 20 の第 1 の表面 20 b は、界面領域 90 とは反対側にある、電極アセンブリ 100 b の不連続輸送保護層 10 の主面 10 a に接触していてもよい。第 1 の電極アセンブリ 100 a 及び / 又は第 2 の電極アセンブリ 100 b を、例えば図 1 B、図 1 D、図 1 F、図 1 H、図 1 J、図 1 L、及び図 1 N で開示された、本開示の電極アセンブリのいずれかと交換してもよい。膜電極アセンブリ 200 b は、1 つ以上の任意の剥離ライナー 30、32 を更にも含んでもよい。当技術分野において公知である従来剥離ライナーを、任意の剥離ライナー 30 及び 32 に使用することができる。

【0096】

本開示の膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第 1 の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層の少なくとも 1 つとの間に配置された (例えば、イオン透過膜の第 1 の表面と、第 1 の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置された) 第 1 の接着層を更にも含む。第 1 の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置され、例えば第 1 の接着層の少なくとも一部は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。いくつかの実施形態において、第 1 の接着層は、イオン透過膜の第 1 の表面と、第 1 の電極アセンブリの不連続輸送保護層とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第 1 の接着層は、イオン透過膜の第 1 の表面と、第 1 の電極アセンブリの多孔質電極とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。本開示の膜電極アセンブリは、第 2 の接着層及び第 2 の電極アセンブリを任意で含んでもよい。第 2 の接着層は、イオン透過膜と、第 2 の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも 1 つとの間に配置される (例えば、イオン透過膜の第 2 の表面と、第 2 の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置される)。第 2 の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置され、例えば第 2 の接着層の少なくとも一部が、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。いくつかの実施形態において、第 2 の接着層は、イオン透過膜の第 2 の表面と、第 2 の電極アセンブリの不連続輸送保護層とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第 2 の接着層は、イオン透過膜の第 2 の表面と、第 2 の電極アセンブリの多孔質電極とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第 1 及び / 又は第 2 の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されるが、それぞれ第 1 の電極アセンブリ及び / 又は第 2 の電極アセンブリの周縁部までは延びない。

【0097】

第 1 の接着層及び / 又は第 2 の接着層は、環の形状、すなわち環形状の第 1 の接着層及び / 又は環形状の第 2 の接着層であってもよい。用語「環」及び / 又は「環状」は、一般に、2 つの同心円によって境界付けされたリング状の物体を説明するために使用される。いくつかの実施形態において、第 1 及び / 又は第 2 の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されるが、それぞれは第 1 の電極アセンブリ及び / 又は第 2 の電極アセン

10

20

30

40

50

ブリの中心部までは延びない。しかし、本開示において、用語「環」及び／又は「環状」はリング状の物体を指す。環の形状は特に限定されず、円、正方形、長方形、三角形、楕円形、及びダイヤモンド形を含み得るが、これら限定されない。接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されていてもよい。いくつかの実施形態において、例えば第1の接着層及び第2の接着層などの接着層の1つ以上は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されてよく、不連続なライン又はストリップの連続であってよい。いくつかの実施形態において、例えば第1の接着層及び第2の接着層などの接着層の1つ以上は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されてよく、膜電極アセンブリの周辺部の両側に、例えば2つの個別の接着ラインなどの2つの接着領域を含み得る。

【0098】

いくつかの実施形態において、第1及び／又は第2の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿った、又は周辺部の近くの環形状の領域に配置され、環形状の領域の内部は、第1及び／又は第2の接着層をそれぞれ含まない。いくつかの実施形態において、第1の接着層の少なくとも一部及び／又は第2の接着層の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ及び／又は第2の電極アセンブリそれぞれの、不連続輸送保護層に埋め込まれてもよい。いくつかの実施形態において、第1の接着層の実質的に全体、及び／又は第2の接着層の実質的に全体は、第1の電極アセンブリ及び／又は第2の電極アセンブリそれぞれの、不連続輸送保護層に埋め込まれてもよい。「実質的に全体」とは、第1の接着層の体積の、少なくとも80パーセント、少なくとも90パーセント、少なくとも95パーセント、少なくとも99パーセント、又は更には少なくとも100パーセントが、示された一つ又は複数の層に埋め込まれていることを意味する。いくつかの実施形態において、第1の接着層の少なくとも一部、及び／又は第2の接着層の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ及び／又は第2の電極アセンブリそれぞれの、不連続輸送保護層及び多孔質電極に埋め込まれてもよい。いくつかの実施形態において、第1の接着層の実質的に全体、及び／又は第2の接着層の実質的に全体は、第1の電極アセンブリ及び／又は第2の電極アセンブリそれぞれの、不連続輸送保護層及び多孔質電極に埋め込まれてもよい。第1の接着層及び／又は第2の接着層は、例えば図12Bに示される第1の接着層1000のように、連続した接着層であってよい。第1の接着層及び／又は第2の接着層は、例えば図13Bに示される第1の接着層1000のように、不連続の接着層であってよい。いくつかの実施形態において、第1の接着剤層及び／又は第2の接着剤層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って位置する第1の接着領域及び第2の接着領域の2つの接着領域を含む、不連続な接着層であってよい。第1の接着領域は、第2の接着領域の反対側にある。すなわち第1の接着領域は、第2の接着領域が位置する周辺部の部分の反対側にある周辺部の一部に沿って位置する。膜電極アセンブリは一体構造であってよい。いくつかの実施形態において、電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。第1の接着層は、第1の電極アセンブリをイオン透過膜に接着するために使用してよく、それによって第1の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。第2の接着層がある場合、第2の電極アセンブリをイオン透過膜に接着するために使用してよく、それによって第2の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。第1及び第2の電極アセンブリは、例えば図1A～図1Nの電極100a～100gなど、本開示の電極アセンブリのいずれかであってよい。

【0099】

本開示において、例えば第1の接着層及び／又は第2の接着層などの接着層、並びに第1及び／又は第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層などの不連続輸送保護層に関して、「イオン透過膜と、電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置された接着層」という文言は、接着層の実質的に全体までを含む接着層の少なくとも一部が、電極アセンブリ（不連続輸送保護層、又は電極アセンブリの不連続輸送保護層及び多孔質電極の両方に埋め込まれている）及び／又はイオン透過膜に埋め込まれている実施形態を含む。いくつかの実施形態において、イオン透過膜は、その中に埋め込まれた接着層を含まない固体フィルムであり、すなわちイオン透過膜は孔を含まず、したがって接着層をその中に埋め込

10

20

30

40

50

むことができない。

【0100】

図12Aは、本開示の例示的な一実施形態による、図12Bのライン12Aにおける、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図12Aは、不連続輸送保護層10及び多孔質電極40を有する第1の電極アセンブリ100を含む、膜電極アセンブリ200cを示す。イオン透過膜20は第1の表面20a及び反対側を向いた第2の表面20bを有する。第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20aと、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。第1の接着層1000は、膜電極アセンブリの周辺部Pに沿って配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は連続した接着層である。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、環形状すなわち、ほぼ正方形の環形状である。環形状の第1の接着層の中央部は、膜電極アセンブリに間隙Gを形成している。図12Bは、本開示の例示的な一実施形態による、図12Aの例示的な膜電極アセンブリの接着層(図12Aに関してページに垂直な面)の面における、概略上面図である。図12Bは、膜電極アセンブリ200cの周辺部Pに沿って配置された第1の接着層1000を示す。使用中、通常は圧縮下にある電気化学セルにおいて、間隙Gは圧縮されるか若しくは完全に排除されるか、又はイオン透過膜及び電極アセンブリの不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つによって少なくとも一部が充填されてもよい。

10

20

【0101】

図12C~図12Fは、本開示の例示的な一実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図12C~図12Fは、以下で説明するように接着層を改変した以外、上述した図12Aと同様である。図12Cは、例示的な膜電極アセンブリ200dの概略側断面図である。膜電極アセンブリ200dは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20aと、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。第1の接着剤層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10に埋め込まれている。この例示的な実施形態によると、第1の接着層1000の一部が不連続輸送保護層100に埋め込まれているため、図12Aに比べて間隙Gが若干減少している。図12Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、不連続輸送保護層100に埋め込まれた接着層1000の部分を補うように、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。図12Cにおいて、第1の接着層は、不連続輸送保護層10の厚さの一部のみを通して埋め込まれているように図示されている。しかし、これは特に限定ではなく、第1の接着層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよく(図12D参照)、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さ及び多孔質電極40の厚さの一部に埋め込まれてもよく(図12E参照)、又は不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さ及び多孔質電極40の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい(図12F参照)。「実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい」という文言は、層の厚さの少なくとも約80パーセント、少なくとも約90パーセント、少なくとも約95パーセント、少なくとも約99パーセント、又は更には少なくとも100パーセントに接着剤が埋め込まれていることを含むことを意味する。

30

40

【0102】

図12Dは、例示的な膜電極アセンブリ200eの概略側断面図である。膜電極アセンブリ200eは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、イオン透過膜20と、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方に接触している。

50

第1の接着層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000の実質的に全体が、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10に埋め込まれている。第1の接着層1000の実質的に全体は、不連続輸送保護層10に埋め込まれており、間隙Gは図12Aと比較して非常に薄いか、又は存在しない。図12Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して埋め込まれている。例えば、図12Dの実施形態において、接着層は、不連続輸送保護層の周辺部を封止するガスケットとして作用することができる。

【0103】

代替の実施形態において、輸送保護層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って存在しないように設計されてもよい。この実施形態において、接着層は、イオン透過膜と電極アセンブリの多孔質電極との間に配置されてよく、接着層は膜電極アセンブリの周辺部に沿っている。接着層の内部領域は、輸送保護層が存在し得る空隙である。このような実施形態は図12Dに示され、接着層1000を不連続輸送保護層10に埋め込まれていない分離層として捉える場合、不連続輸送保護層10は、接着層の内部領域に位置される。この実施形態において、接着層は、イオン透過膜と電極アセンブリの多孔質電極との間に配置されることになる。この実施形態において、接着層は、不連続輸送保護層の周辺部を封止するガスケットとして作用することができる。

【0104】

図12Eは、例示的な膜電極アセンブリ200fの概略側断面図である。膜電極アセンブリ200fは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、イオン透過膜20と、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。第1の接着層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10、及び多孔質電極40に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000の実質的に全体が、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10及び多孔質電極40に埋め込まれている。第1の接着層1000の実質的に全体が、不連続輸送保護層100に埋め込まれているので、間隙Gは図12Aと比較して非常に薄いか、又は存在しない。図12Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、膜電極アセンブリ200fの周辺部Pに沿って配置される。しかし、この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、膜電極アセンブリ200fの周縁部までは延びない。この構成は、本開示の膜電極アセンブリのいずれかに使用され得る。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して、及び多孔質電極40の一部の厚さに埋め込まれている。例えば、図12Eの実施形態において、接着層は、不連続輸送保護層の周辺部を封止するガスケットとして作用することができる。

【0105】

図12Fは、例示的な膜電極アセンブリ200gの概略側断面図である。膜電極アセンブリ200gは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、イオン透過膜20と、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。第1の接着剤層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10、及び多孔質電極40に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000の実質的に全体が、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10及び多孔質電極40に埋め込まれている。第1の接着層1000の実質的に全体が、不連続輸送保護層100に埋め込まれているので、間隙Gは図12Aと比較して非常

10

20

30

40

50

に薄いか、又は存在しない。図12Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して、及び多孔質電極40の実質的な全体厚さを通して埋め込まれている。例えば、図12Fの実施形態において、接着層は、不連続輸送保護層及び多孔質電極のうちの少なくとも一方、又は両方の周辺部を封止するガスケットとして作用することができる。

【0106】

図12G及び図12Hは、本開示の例示的な実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図12Gの膜電極アセンブリ200hは、イオン透過膜20の第2の表面20bと、第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'との間に配置された第2の接着層1000'を更に含む以外は、前述した図12Fの膜電極アセンブリ200gと同様である。第2の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。この例示的な実施形態において、第2の接着層1000'は、イオン透過膜20の第2の表面20b、及び第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'の両方と接触している。図12Hの膜電極アセンブリ200iは、イオン透過膜20の第2の表面20bと、第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'との間に配置された第2の接着層1000'を更に含む以外は、前述した図12Eの膜電極アセンブリ200fと同様である。第2の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。この例示的な実施形態において、第2の接着層1000'は、イオン透過膜20の第2の表面20b、及び第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'の両方に接触している。単一の接着層を含む前述した膜電極アセンブリのいずれか、例えば図12A~図12Fで説明した膜電極アセンブリは、図12G及び図12Hに示されるものと同様の、2つの接着層及び2つの電極アセンブリを含む膜電極アセンブリを形成するために使用され得る。

10

20

【0107】

本開示の膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第1の接着層との間に配置された(すなわちイオン透過膜の第1の表面と第1の接着層との間に配置された)、第1のガスケットを更に含んでよい。第1のガスケットは、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。第1のガスケットは、イオン透過膜の第1の表面、及び第1の接着層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してもよい。本開示の膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第2の接着層との間に配置された(すなわちイオン透過膜の第2の表面と第2の接着層との間に配置された)、第2のガスケットを任意で含んでよい。第2のガスケットは、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置される。第2のガスケットは、イオン透過膜の第2の表面及び第2の接着層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してよい。いくつかの実施形態において、第1及び/又は第2の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されるが、それぞれ第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリの周縁部までは延びない。第1及び/又は第2のガスケットは、環の形状、すなわち環形状の第1のガスケット及び/又は環形状の第2のガスケットであってもよい。用語「環」及び/又は「環状」は、一般に、2つの同心円によって境界付けされたリング状の物体を説明するために使用される。しかし、本開示において、用語「環」及び/又は「環状」はリング状の物体を指す。環の形状は特に限定されず、円、正方形、長方形、三角形、楕円形及びダイヤモンド形を含み得るが、これら限定されない。

30

40

【0108】

図13Aは、本開示の例示的な一実施形態による、図13Bのライン13Aにおける、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図13Aは、第1の電極アセンブリ100を含む膜電極アセンブリ300aを示す。膜電極アセンブリ300aは、不連続輸送保護層10及び多孔質電極40と、第1の表面20a及び反対側を向いた第2の表面20bを有するイオン透過膜20と、第1の接着層1000と、第1の表面1040a及び反対側を向いた第2の表面1040bを有し、イオン透過膜20の第1の表面20a及び第1の接着層1000の間に配置された第1のガスケット1040と、を含む。第1の接着

50

層 1000 は、膜電極アセンブリの周辺部 P に沿って配置される。この例示的な実施形態において、第 1 のガスケット 1040 の第 1 の表面 1040 a は、イオン透過膜 20 の第 1 の表面 20 a に接触し、第 1 のガスケット 1040 の第 2 の表面 1040 b は、第 1 の接着層 1000 に接触している。この例示的な実施形態において、第 1 の接着層 1000 は、第 1 のガスケット 1040 の第 2 の表面 1040 b、及び第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 に接触している。更に、この例示的な実施形態において、第 1 の接着層 1000 は、不連続の接着層、例えば一連の接着剤の個別の領域である。この例示的な実施形態において、第 1 のガスケット 1040 は、環形状すなわち、ほぼ正方形の環形状である。環形状の第 1 のガスケットの中央部は、膜電極アセンブリにおいて、間隙 G を形成している。図 13 B は、本開示の例示的な一実施形態による、図 13 A の例示的な膜電極アセンブリの接着層の面の概略上面図である。図 13 B は、膜電極アセンブリ 300 a の周辺部 P に沿って配置された第 1 の接着層 1000 を示す。四角形状の点線は、第 1 のガスケット 1040 の内側縁部を表す仮想線であり、第 1 のガスケット 1040 の環状形状と位置との様相を提供する。

10

【0109】

図 13 C ~ 図 13 F は、本開示の例示的な実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図 13 C ~ 図 13 F は、接着層を以下に説明するように改変した以外、上述した図 13 A と同様である。図 13 C は、例示的な膜電極アセンブリ 300 c の概略側断面図である。膜電極アセンブリ 300 c は、第 1 の接着層 1000 を備える。第 1 の接着層 1000 は、第 1 のガスケット 1040 と、第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 との間に配置される。この例示的な実施形態において、第 1 の接着層 1000 は、第 1 のガスケット 1040 の第 2 の表面 1040 b、及び第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 の両方と接触している。第 1 の接着層 1000 の少なくとも一部は、第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 に埋め込まれている。この例示的な実施形態によると、第 1 の接着層 1000 の一部が不連続輸送保護層 100 に埋め込まれているため、図 13 A に比べて間隙 G が若干減少している。図 13 A と同様な間隙 G の厚さを維持したい場合は、不連続輸送保護層 100 に埋め込まれた接着層 1000 の部分を補うよう、第 1 の接着層 1000 の厚さを増加させることができる。図 13 A において、第 1 の接着層は、不連続輸送保護層 10 の厚さの一部のみを通して埋め込まれているように図示されている。しかし、これは特に限定ではなく、第 1 の接着層 1000 は、不連続輸送保護層 10 の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよく（図 13 D 参照）、不連続輸送保護層 10 の実質的に全体厚さ及び多孔質電極 40 の厚さの一部に埋め込まれてもよく（図 13 E 参照）、又は不連続輸送保護層 10 の実質的に全体厚さ及び多孔質電極 40 の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい（図 13 F 参照）。「実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい」という文言は、層の厚さの少なくとも約 80 パーセント、少なくとも約 90 パーセント、少なくとも約 95 パーセント、少なくとも約 99 パーセント、又は更には少なくとも 100 パーセントに接着剤が埋め込まれていることを意味する。

20

30

【0110】

図 13 D は、例示的な膜電極アセンブリ 300 d の概略側断面図である。膜電極アセンブリ 300 d は、第 1 の接着層 1000 を含む。第 1 の接着層 1000 は、第 1 のガスケット 1040 と、第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 との間に配置される。この例示的な実施形態において、第 1 の接着層 1000 は、第 1 のガスケット 1040 の第 2 の表面 1040 b、及び第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 の両方に接触している。第 1 の接着層 1000 の少なくとも一部は、第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第 1 の接着層 1000 の実質的に全体が、第 1 の電極アセンブリ 100 の不連続輸送保護層 10 に埋め込まれている。第 1 の接着層 1000 の実質的に全体が、不連続輸送保護層 10 に埋め込まれているため、間隙 G は図 13 A と比較して非常に薄いか、又は存在しない。図 13 A と同様な間隙 G の厚さを維持したい場合は、第 1 の接着層 1000 の厚さ

40

50

を増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して埋め込まれている。

【0111】

図13Eは、例示的な膜電極アセンブリ300eの概略側断面図である。膜電極アセンブリ300eは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、第1のガスケット1040と、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、第1のガスケット1040の第2の表面1040b、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。第1の接着層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10、及び多孔質電極40に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000の実質的に全体が、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10及び多孔質電極40に埋め込まれている。第1の接着層1000の実質的に全体が、不連続輸送保護層100に埋め込まれているので、間隙Gは図13Aと比較して非常に薄いか、又は存在しない。図13Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、膜電極アセンブリ300eの周辺部Pに沿って配置される。しかし、この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、膜電極アセンブリ200fの周縁部までは延びない。この構成は、本開示のいずれかの膜電極アセンブリに使用され得る。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して、及び多孔質電極40の一部の厚さに埋め込まれている。

10

20

【0112】

図13Fは、例示的な膜電極アセンブリ300fの概略側断面図である。膜電極アセンブリ300fは、第1の接着層1000を含む。第1の接着層1000は、第1のガスケット1040と、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、第1のガスケット1040の第2の表面1040b、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方に接触している。第1の接着剤層1000の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10、及び多孔質電極40に埋め込まれている。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000の実質的に全体が、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10及び多孔質電極40に埋め込まれている。第1の接着層1000の実質的に全体が、不連続輸送保護層100に埋め込まれているので、間隙Gは図13Aと比較して非常に薄いか、又は存在しない。図13Aと同様な間隙Gの厚さを維持したい場合は、第1の接着層1000の厚さを増加させることができる。この例示的な実施形態において、第1の接着剤層1000は、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して、及び多孔質電極40の実質的に全体厚さを通して埋め込まれている。

30

【0113】

図13G及び図13Hは、本開示の例示的な実施形態による、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図13Gの膜電極アセンブリ300gは、膜電極アセンブリ200hが第2の電極アセンブリ100'を更に含むこと以外は、前述したように図13Fの膜電極アセンブリ300fと同様である。第2の電極アセンブリは、不連続輸送保護層10'及び多孔質電極40'と、第2の接着層1000'と、第1の表面1040a'及び反対側を向いた第2の表面1040b'を有し、イオン透過膜20の第2の表面20b及び第2の接着層1000'の間に配置される、第2のガスケット1040'と、を含む。第2の接着層1000'は、膜電極アセンブリの周辺部Pに沿って配置される。この例示的な実施形態において、第2のガスケット1040'の第1の表面1040a'は、イオン透過膜20の第2の表面20bと接触し、第2のガスケット1040'の第2の表面1040b'は、第2の接着層1000'と接触している。この例示的な実施形態において、第2の接着層1000'は、第2のガスケット1040'の第2の表面1040b'、及び第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'と接触している。

40

50

【0114】

図13Hの膜電極アセンブリ300hは、第2の電極アセンブリ100'を更に含むこと以外は、前述したように図13Eの膜電極アセンブリ300eと同様である。第2のアセンブリは、不連続輸送保護層10'及び多孔質電極40'と、第2の接着層1000'と、第1の表面1040a'及び反対側を向いた第2の表面1040b'を有し、イオン透過膜20の第2の表面20b及び第2の接着層1000'の間に配置される、第2のガスケット1040'と、を含む。第2の接着層1000'は、膜電極アセンブリの周辺部Pに沿って配置される。この例示的な実施形態において、第2のガスケット1040'の第1の表面1040a'は、イオン透過膜20の第2の表面20bと接触し、第2のガスケット1040'の第2の表面1040b'は、第2の接着層1000'と接触している。この例示的な実施形態において、第2の接着層1000'は、第2のガスケット1040'の第2の表面1040b'、及び第2の電極アセンブリ100'の不連続輸送保護層10'と接触している。単一の接着層を含む前述した膜電極アセンブリのいずれか、例えば図13A~図13Fで説明した膜電極アセンブリは、図13G及び図13Hに示されるものと同様の、2つの接着層及び2つの電極アセンブリを含む膜電極アセンブリを形成するために使用され得る。

10

【0115】

本開示を通して、例えば接着層及びガスケット層などの膜電極アセンブリの様々な構成要素は「間隙」を含んでいる。実際の使用時に、電気化学セル又は液体フロー電池内で、間隙の1つ以上、最大で全ての間隙は、電気化学セル又は液体フロー電池を組み立てる間に膜電極アセンブリに適用される圧縮力などの力によって、厚さを減少させるか、又は完全に排除することができる。

20

【0116】

例えば図13A~図13Gで説明した膜電極アセンブリなど、イオン透過膜に接触する少なくとも1つのガスケットを含む膜電極アセンブリは、一体構造であってもよい。いくつかの実施形態において、ガスケットは、イオン透過膜に、必要に応じて熱及び/又は圧力下で積層されてもよく、それによって電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。いくつかの実施形態において、ガスケットは第3の接着層(図13A~図13Hには示さず)を介して膜電極アセンブリに接着されてもよく、それによって電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する。

30

【0117】

他の実施形態において、本開示の膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第1の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置される(例えば、イオン透過膜の第1の表面と、第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置される)第1の接着層を更に含む。第1の接着層は、少なくとも膜電極アセンブリの内側の中に配置された複数の第1の接着層であり、膜電極アセンブリの面における第1の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である。いくつかの実施形態において、膜電極アセンブリの面における第1の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満、少なくとも40パーセント未満、少なくとも30パーセント未満、少なくとも20パーセント未満、少なくとも10パーセント未満、又は更には少なくとも5パーセント未満である。「内側の中」とは、膜電極アセンブリの面に対して内側、すなわち周辺領域の反対側にある内側領域を意味する。いくつかの実施形態において、第1の接着層は、イオン透過膜の第1の表面と、第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第1の接着層は、イオン透過膜の第1の表面と、第1の電極アセンブリの多孔質電極とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。本開示の膜電極アセンブリは、第2の接着層及び第2の電極アセンブリを任意で含む。第2の接着層は、イオン透過層と、第2の電極アセンブリの多孔性電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置される(例えば、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置される)。第2

40

50

の接着層は、少なくとも膜電極アセンブリの内側の中に配置された複数の第2の接着領域であり、膜電極アセンブリの面における第2の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である。いくつかの実施形態において、膜電極アセンブリの面における第2の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満、少なくとも40パーセント未満、少なくとも30パーセント未満、少なくとも20パーセント未満、少なくとも10パーセント未満、又は更には少なくとも5パーセント未満である。いくつかの実施形態において、第2の接着層は、図12A～図12H及び図13A～図13Hのうちのいずれか1つで説明したものであってもよい。いくつかの実施形態において、第2の接着層は、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第2の接着層は、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの多孔質電極とのうちの少なくとも一方又は両方と接触してもよい。いくつかの実施形態において、第1及び/又は第2の接着層は、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置されるが、それぞれ第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリの周縁部までは延びない。いくつかの実施形態において、第1の接着層の少なくとも一部及び/又は第2の接着層の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリそれぞれの不連続輸送保護層に埋め込まれてもよい。いくつかの実施形態において、第1の接着層の実質的に全体及び/又は第2の接着層の実質的に全体は、第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリそれぞれの不連続輸送保護層に埋め込まれてもよい。「実質的に全体」とは、第1の接着層の体積の、少なくとも80パーセント、少なくとも90パーセント、少なくとも95パーセント、少なくとも99パーセント、又は更には少なくとも100パーセントが、示された一つ又は複数の層に埋め込まれていることを意味する。いくつかの実施形態において、第1の接着層の少なくとも一部及び/又は第2の接着層の少なくとも一部は、第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリそれぞれの不連続輸送保護層及び多孔質電極に埋め込まれてもよい。いくつかの実施形態において、第1の接着層の実質的に全体及び/又は第2の接着層の実質的に全体は、第1の電極アセンブリ及び/又は第2の電極アセンブリそれぞれの不連続輸送保護層及び多孔質電極に埋め込まれてもよい。

10

20

30

40

50

【0118】

少なくとも電極アセンブリの内側の中に配置された、複数の第1の接着領域を有する第1の接着層を含み、膜電極アセンブリの面における第1の複数の接着領域の面積が、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である膜電極アセンブリは、図13A～図13Hで前述した膜電極アセンブリと同様に、第1のガスケット、及び任意で第2のガスケットを更に含んでもよい。膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第1の接着層との間（すなわちイオン透過膜の第1の表面と第1の接着層との間に配置される）、又は不連続輸送保護層との間に配置される第1のガスケットを更に含んでもよい。一般に第1のガスケットは環形状で、膜電極アセンブリの周辺部Pに沿って位置決めされるので、第1の接着層が膜電極アセンブリの周辺部に沿って延びかつ配置される場合、すなわち第1のガスケットと第1の接着層とが重なり合う場合、第1のガスケットは、イオン透過膜の第1の表面と、第1の接着層との間に配置され得る。第1のガスケットと第1の接着層とが重なり合わない場合、第1のガスケットは、イオン透過膜の第1の表面と、第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置され得る。第1のガスケットは、イオン透過膜の第1の表面、及び第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してもよい。第1のガスケットは、イオン透過膜の第1の表面、及び第1の接着層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してもよい。本開示の膜電極アセンブリは、イオン透過膜と、第2の接着層との間に（すなわちイオン透過膜の第2の表面と第2の接着層との間に配置される）、又は第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置される第2のガスケットを任意で含んでもよい。一般に第2のガスケットは環形状で、膜電極アセンブリの周辺部Pに沿って位置決めされるので、第2の接着層が膜電極アセンブリの周辺部に沿って延びかつ配置される場合、すなわち第2のガスケットと

第2の接着層とが重なり合う場合、第2のガスケットは、イオン透過膜の第2の表面と、第2の接着層との間に配置され得る。第2のガスケットと第2の接着層とが重なり合わない場合、第2のガスケットは、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置され得る。第2のガスケットは、イオン透過膜の第2の表面、及び第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してもよい。第2のガスケットは、イオン透過膜の第2の表面、及び第2の接着層のうちの少なくとも一方、又は両方と接触してよい。第1及び/又は第2のガスケットは、前述したように環形状であってよい。第1及び第2の電極アセンブリは、例えば図1A～図1Nの電極100a～100gなど、本開示のいずれかの電極アセンブリであってよい。

【0119】

図14Aは、本開示の例示的な一実施形態による、図14Bのライン14Aにおける、例示的な膜電極アセンブリの概略側断面図である。図14Aは、不連続輸送保護層10及び多孔質電極40を有する第1の電極アセンブリ100を含む、膜電極アセンブリ400aを示す。イオン透過膜20は第1の表面20a及び反対側を向いた第2の表面20bを有する。第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20aと、第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10との間に配置される。第1の接着層1000は、膜電極アセンブリ400aの内側の中に配置された複数の第1の接着領域1002である。膜電極アセンブリ400aの面における第1の複数の接着領域の面積(図14Bに示される円の面積の総面積)は、膜電極アセンブリの投影面積(図14Bに示された大きい正方形の面積)の少なくとも50パーセント未満である。この例示的な実施形態において、第1の接着層1000は、イオン透過膜20の第1の表面20a、及び第1の電極アセンブリ100の不連続輸送保護層10の両方と接触している。図14Bは、本開示の例示的な一実施形態による、図14Aの例示的な膜電極アセンブリの接着層の面の概略上面図である。図14Bは、膜電極アセンブリ400aの内側の中に配置された複数の第1の接着領域1002を含む、第1の接着層1000を示す。図14Aにおいて、第1の接着層が、電極アセンブリ100の輸送保護層10と接触しているが、その中に埋め込まれてはいないように図示されている。しかし、これは特に限定ではなく、第1の接着層1000は、不連続輸送保護層10の厚さの一部を通して埋め込まれてもよく(図12C参照)、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよく(図12D参照)、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さ及び多孔質電極40の一部の厚さを通して埋め込まれてもよく(図12E参照)、不連続輸送保護層10の実質的に全体厚さ及び多孔質電極40の実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい(図12F参照)。「実質的に全体厚さを通して埋め込まれてもよい」という文言は、層の厚さの少なくとも約80パーセント、少なくとも約90パーセント、少なくとも約95パーセント、少なくとも99パーセント、又は更には少なくとも100パーセントに接着剤が埋め込まれていることを意味する。膜電極アセンブリ400aは、例えば図12G及び図12H並びに図13G及び図13Hで前述したように、第2の接着層及び第2の電極アセンブリを更にも含む。第2の接着層はまた、図14A及び図14Bの第1の接着層で説明したものであってよい。第2の接着層は、膜電極アセンブリの内側の中に配置された第2の複数の接着領域であり、膜電極アセンブリの面における第2の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である。いくつかの実施形態において、膜電極アセンブリの面における第2の複数の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満、少なくとも40パーセント未満、少なくとも30パーセント未満、少なくとも20パーセント未満、少なくとも10パーセント未満、又は更には少なくとも5パーセント未満である。接着領域の形状は特に限定されず、立方体形、矩形の中実物、円筒形、球形、回転楕円体、角錐形、切頭角錐形、円錐形などを挙げることができるが、これらに限定されない。接着領域は、例えば矩形実線、円筒形線など、個別の線であってよい。

【0120】

本開示の接着層は、感圧性接着剤、熱溶融接着剤、及び熱硬化接着剤のうちの少なくと

10

20

30

40

50

も1つを含み得る。本開示の接着層に用いられ得る感圧性接着剤として、アクリレート、シリコン、ニトリル系ゴム、ブチル系ゴム、天然ゴム、スチレンブロックコポリマー、ウレタンなどをベースとするものが挙げられるが、これらに限定されない。ポリ(メタ)アクリレートをベースとする感圧性接着剤は、特に好適となり得る。

【0121】

加熱活性化接着剤は、周囲温度又は使用温度において、例えば感圧性接着剤又は構造用接着剤などの接着剤として作用することができ、一方では高温において、液体のように流動する機能を有する。加熱活性化接着剤は熱溶融接着剤を含み、半結晶又は非結晶の接着剤であり、それらの結晶融解温度 T_m 及び/又はガラス転移温度 T_g を超える温度まで加熱すると、流動できる性質を有する。一旦冷却して、温度を T_m 及び/又は T_g より低く戻すと、熱溶融接着剤は固化して接着性がもたらされる。熱溶融接着剤は、ポリウレタン、ポリアミド、ポリエステル、ポリアクリレート、ポリオレフィン、ポリカーボネート及びエポキシ樹脂のうちの少なくとも1つを含み得る。熱溶融接着剤は硬化され得る。熱溶融接着剤の硬化は、湿気硬化、熱硬化、及び化学線硬化のうちの少なくとも1つを含むことができる。加熱活性化接着剤は、その全てが本明細書に参照として組み込まれる、米国特許出願公開第2012/0325402号(Suwarによる)、並びに米国特許第7,008,680号(Everaertsらによる)、及び同第5,905,099号(Everaertsらによる)に開示されている接着剤を含んでよい。

10

【0122】

本開示の接着剤は、例えば、接着転写テープの使用を介して接着層を電極アセンブリの不連続輸送保護層に積層するなどの積層加工、並びに、例えば接着剤を電極アセンブリの不連続輸送保護層にスクリーン印刷するなどの、様々なコーティング及び印刷技術を含む、当技術分野で公知である技術によって、膜電極アセンブリに適用してもよい。

20

【0123】

第1及び第2のガスケットは、液体フロー電池の分野でガスケット材料として一般に使用される材料から調製され得る。ガスケットに使用される材料は特に限定されないが、一般的にガスケットの材料は、液体フロー電池に使用される陽極液及び/又は陰極液に対する良好な耐化学薬品性を有する。第1及び/又は第2のガスケットは、少なくとも1つのポリマーを含み得る。いくつかの実施形態において、第1及び第2のガスケットは、例えばポリエチレンテレフタレートなどのポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリエチレンナフタレート、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、例えばポリエチレン及びポリプロピレンなどのポリオレフィン、例えばスチレン-ブタジエン-スチレン等のスチレン並びにスチレン系ランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ポリ塩化ビニル、並びに例えばフッ化ポリビニリデン及びポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素化ポリマーのうちの、少なくとも1つを含むことができるが、これらに限定されない。

30

【0124】

本開示を通して、第1及び第2のガスケットは、膜電極アセンブリと同じ幅を有するように図示されてきたが(例えば図13C~図13H参照)、それは必要条件ではない。いくつかの実施形態において、第1及び/又は第2のガスケットの幅は、膜電極アセンブリ及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つの幅未満であってもよい。いくつかの実施形態において、第1及び/又は第2のガスケットの幅は、膜電極アセンブリ及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つの幅よりも大きくてもよい。第1及び/又は第2のガスケットの幅が、膜電極アセンブリ及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つの幅よりも大きい場合、ガスケットは、電気化学セル又は液体フロー電池に含まれる場合に、膜電極アセンブリを封止するために用いることができる。

40

【0125】

本開示の膜電極アセンブリはイオン透過膜を含むが、イオン交換膜は特に有用である。当技術分野において公知のイオン透過膜及びイオン交換膜を使用してもよい。例えばイオン交換膜などのイオン透過膜は、セパレータと称されることが多く、イオン性ポリマーか

50

ら調製されてよく、例えば、限定ではないが、イオン交換樹脂、イオノマー樹脂、及びこれらの組み合わせを含む、不連続輸送保護層のイオン性ポリマーについて前述したものであってよい。いくつかの実施形態において、例えばイオン交換膜などの膜は、フッ素化イオン交換樹脂を含んでもよい。本開示の実施形態において有用な、例えばイオン交換膜などの膜は、イオン交換樹脂及び/又は当技術分野で公知であるイオノマーから作製することができ、又は膜フィルムとして市販されているものもあり、デラウェア州ウィルミントンのDuPont社から入手可能なNAFION PFSA MEMBRANESと、ベルギー国ブリュッセルのSOLVAY社から入手可能なパーフルオロスルホン酸であるAQUIVION PFSAと、日本国東京の旭硝子社から入手可能なフルオロポリマーイオン交換膜であるFLEMION及びSELEMIONと、独国Bietigheim-BissingenのFumatek社から入手可能な、FKS、FKB、FKL、FKE陽イオン交換膜、並びにFAB、FAA、FAP、及びFAD陰イオン交換膜を含むFUMASEPイオン交換膜と、ミネソタ州セントポールの3M Company社から粉末又は水溶液として、「3M825EW」の登録商標で入手可能な、825当量を有するパーフルオロスルホン酸イオノマーのイオン交換膜と、3M Company社から粉末又は水溶液として、「3M725EW」の登録商標で入手可能な、725当量を有するパーフルオロスルホン酸イオノマーと、その全体が本明細書に参照として組み込まれている、米国特許第7,348,088号に記載されている材料とが挙げられるが、それらに限定されない。いくつかの実施形態において、イオン交換膜はフルオロポリマーを含む。いくつかの実施形態において、イオン交換膜のフルオロポリマーは、約10重量%～約90重量%、約20重量%～約90重量%、約30重量%～約90重量%、又は更には約40重量%～約90重量%のフッ素を含有してもよい。

【0126】

本開示の、例えばイオン透過膜などの膜は、民間供給業者から自立フィルムとして得てもよく、又は、適切な溶媒の中で、例えばイオン交換膜樹脂など、適切な膜の樹脂の溶液をコーティングし、次いで加熱して溶媒を除去することによって作製されてもよい。膜は、剥離ライナー上に溶液をコーティングし、次いで膜コーティング溶液のコーティングを乾燥させて、溶媒を除去することによって、コーティング溶液から形成することができる。

【0127】

任意の好適なコーティング方法を使用して、膜コーティング溶液を剥離ライナー上にコーティングしてもよい。典型的な方法には手動方法及び機械方法の両方が含まれ、これにはハンドブラッシング、ノッチパーコーティング、流体ベアリングダイコーティング、巻線ロッドコーティング、流体ベアリングコーティング、スロット供給ナイフコーティング、及び3ロールコーティングが含まれる。最も典型的には3ロールコーティングが使用される。コーティングは、1回の通過又は複数回の通過で行うことができる。対応するイオン透過膜の亀裂を増加させることなしに、コーティング重量を増加させるためには、複数回の通過によるコーティングが有用であり得る。

【0128】

膜コーティング溶液中の溶媒の量は、重量基準で、約5～約95パーセント、約10～約95パーセント、約20～約95パーセント、約30～約95パーセント、約40～約95パーセント、約50～約95パーセント、約60～約95パーセント、約5～約90パーセント、約10～約90パーセント、約20パーセント～約90パーセント、約30～約90パーセント、約40～約90パーセント、約50～約90パーセント、約60～約90パーセント、約5～約80パーセント、約10～約80パーセント、約20パーセント～約80パーセント、約30～約80パーセント、約40～約80パーセント、約50～約80パーセント、約60～約80パーセント、約5パーセント～約70パーセント、約10パーセント～約70パーセント、約20パーセント～約70パーセント、約30～約70パーセント、約40～約70パーセント、又は更には約50～約70パーセントであってもよい。

【0129】

膜コーティング溶液中の、例えばイオン交換樹脂及びイオノマー樹脂などの膜樹脂の量は、重量基準で、約5～約95パーセント、約5～約90パーセント、約5～約80パーセント、約5～約70パーセント、約5～約60パーセント、約5～約50パーセント、約5～約40パーセント、約10～約95パーセント、約10～約90パーセント、約10～約80パーセント、約10～約70パーセント、約10～約60パーセント、約10～約50パーセント、約10～約40パーセント、約20～約95パーセント、約20～約90パーセント、約20～約80パーセント、約20～約70パーセント、約20～約60パーセント、約20～約50パーセント、約20～約40パーセント、約30～約95パーセント、約30～約90パーセント、約30～約80パーセント、約30～約70パーセント、約30～約60パーセント、又は更には約30～約50パーセントであってもよい。

10

【0130】

イオン透過膜の厚さは、約5ミクロン～約250ミクロン、約5ミクロン～約200ミクロン、約5ミクロン～約150ミクロン、約5ミクロン～約100ミクロン、約10ミクロン～約250ミクロン、約10ミクロン～約200ミクロン、約10ミクロン～約150ミクロン、約5ミクロン～約10ミクロン、約15ミクロン～約250ミクロン、約15ミクロン～約200ミクロン、約15ミクロン～約150ミクロン、又は更には約15ミクロン～約100ミクロンであってもよい。

20

【0131】

本開示を通して、イオン透過膜は膜電極アセンブリの幅と同じ幅を有するように図示されてきたが（例えば図12A～図14B）、それは必要条件ではない。いくつかの実施形態において、イオン透過膜の幅は、膜電極アセンブリ及び不連続輸送保護層のうち少なくとも1つの幅未満であってもよい。いくつかの実施形態において、イオン透過膜の幅は、膜電極アセンブリ及び不連続輸送保護層のうち少なくとも1つの幅よりも大きくてもよい。

【0132】

本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、少なくとも1つの多孔質電極を含む。本開示の多孔質電極は導電性であり、多孔性は、電極の単位体積当たりの反応のための活性表面積を増加させ、陽極液及び陰極液を多孔質領域内に浸透させ、この付加表面積にアクセスさせることによって、その中に生じる酸化/還元反応を促進する。多孔質電極は、織布及び不織布繊維マット、織布及び不織布繊維紙、フェルト、及び布（布地）のうち少なくとも1つを含んでよい。いくつかの実施形態において、多孔質電極は炭素繊維を含む。多孔質電極の炭素繊維としては、焼成カーボン、無定形炭素、グラフェン、カーボンナノチューブ、黒鉛などが挙げることができるが、これらに限定されない。特に有用な多孔質電極材料として、炭素紙、炭素フェルト及び炭素布（布地）が挙げられる。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、炭素紙、炭素フェルト及び炭素布のうち少なくとも1つを含む。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、炭素繊維を約30重量%～約100%、約40重量%～約100%、約50重量%～約100重量%、約60重量%～約100重量%、約70重量%～約100重量%、約80重量%～約100重量%、約90重量%～約100重量%、又は更には約95重量%～約100重量%含む。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、導電性炭素微粒子の約50重量%～約100重量%、約60重量%～約100重量%、約70重量%～約100重量%、約80重量%～約100重量%、約90重量%～約100重量%、約95重量%～約100重量%、又は更には約97重量%～約100重量%含む。いくつかの実施形態において、導電性炭素微粒子は、炭素粒子、片状炭素、炭素繊維、カーボンデンドライト、カーボンナノチューブ、及び分枝カーボンナノチューブのうち少なくとも1つを含むことができ、組み合わせを使用することができる。いくつかの実施形態において、導電性炭素微粒子は、黒鉛粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維及び黒鉛デンドライトのうち少なくとも1つを含むことができ、組み合わせを使用することができる。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、重量で、黒鉛

30

40

50

粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維、及び黒鉛デンドライトのうちの少なくとも1つを、約5重量%～約100重量%、約10重量%～約100重量%、約20重量%～約100重量%、約35重量%～約100重量%、又は更には約50重量%～約100重量%含む。

【0133】

本開示の、電極アセンブリ及び膜電極アセンブリに有用な他の多孔質電極として、2015年6月23日に出願された「Porous Electrodes and Electrochemical Cells and Liquid Flow Batteries Therefrom」と題する、係争中の米国仮特許出願第62/183429号と、2015年6月23日に出願された「Porous Electrodes and Electrochemical Cells and Liquid Flow Batteries Therefrom」と題する、同第62/183441号と、2015年12月18日に出願された「Porous Electrodes, Membrane-Electrode Assemblies, Electrode Assemblies, and Electrochemical Cells and Liquid Flow Batteries Therefrom」と題する、同第62/269227号と、2015年12月18日に出願された「Porous Electrodes and Electrochemical Cells and Liquid Flow Batteries Therefrom」と題する、同第62/269239号とにおける多孔質電極が挙げられる。これらは、その全てが本明細書に参照として組み込まれている。

10

20

【0134】

多孔質電極の厚さは、約10ミクロン～約15000ミクロン、約10ミクロン～約10000ミクロン、約10ミクロン～約5000ミクロン、約10ミクロン～約1000ミクロン、約10ミクロン～約500ミクロン、約10ミクロン～約250ミクロン、約10ミクロン～約100ミクロン、約25ミクロン～約15000ミクロン、約25ミクロン～約10000ミクロン、約25ミクロン～約5000ミクロン、約25ミクロン～約1000ミクロン、約25ミクロン～約500ミクロン、約25ミクロン～約250ミクロン、又は更には約25ミクロン～約100ミクロンであってよい。多孔質電極の多孔率は、体積基準で、約5パーセント～約95パーセント、約5パーセント～約90パーセント、約5パーセント～約80パーセント、約5パーセント～約70パーセント、約10パーセント～約95パーセント、約10パーセント～90パーセント、約10パーセント～約80パーセント、約10パーセント～約70パーセント、約10パーセント～約70パーセント、約20パーセント～約95パーセント、約20パーセント～約90パーセント、約20パーセント～約80パーセント、約20パーセント～約70パーセント、約20パーセント～約70パーセント、約30パーセント～約95パーセント、約30パーセント～約90パーセント、約30パーセント～約80パーセント、又は更には約30パーセント～約70パーセントであってよい。

30

【0135】

多孔質電極は、織布及び不織布繊維マットの単層又は多層、織布及び不織布繊維紙、フェルト、及び布の単層又は多層、並びに特定の効用を有する多層紙及びフェルトの単層又は多層であってよい。多孔質電極が多層を含む場合、使用し得る層数に関して特に制限はない。しかしながら、コスト及び/又は組み立てステップ数を低減するため、本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリの層数を最小限にすることが一般に望まれるので、多孔質電極は、約2～約20層、約2～約10層、約2～約8層、約2～約5層、約3～約20層、約3～約10層、約3～約8層、又は更には約3～約5層の、織布及び不織布繊維マット並びに織布及び不織布繊維紙、フェルト、布、及び発泡体を含んでもよい。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、約2～約20層、約2～約10層、約2～約8層、約2～約5層、約3～約20層、約3～約10層、約3～約8層、又は更には約3～約5層の炭素紙、炭素フェルト及び/又は炭素布を含む。

40

【0136】

50

いくつかの実施形態において、多孔質電極に表面処理を施し、所与の陽極液若しくは陰極液に対する多孔質電極の濡れ性を高めてもよく、又は所与の陽極液若しくは陰極液の化学組成に関連付けられた酸化還元反応に対して、多孔質電極の電気化学活性を与えるか、若しくは増強してもよい。表面処理剤は、化学処理、熱処理及びプラズマ処理のうちの少なくとも1つを含むが、これらに限定されない。多孔質電極の熱処理として、例えば酸素及び空気などの酸化性雰囲気中で高温に加熱することを挙げることができる。熱処理は、約100～約1000、約100～約850、約100～約700、約200～約1000、約200～約850、約200～約700、約300～約1000、約300～約850、又は更には約300～約700であってよい。熱処理の期間は、約0.1時間～約60時間、約0.25時間～約60時間、約0.5時間～約60時間、約1時間～約60時間、約3時間～約60時間、約0.1時間～約48時間、約0.25時間～約48時間、約0.5時間～約48時間、約1時間～約48時間、約3時間～約48時間、約0.1時間～約24時間、約0.25時間～約24時間、約0.5時間～約24時間、約1時間～約24時間、約3時間～約24時間、約0.1時間～約12時間、約0.25時間～約12時間、約0.5時間～約12時間、約1時間～約12時間、又は更には約3時間～約48時間であってよい。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、空気、酸素、水素、窒素、アルゴン、及びアンモニアのうちの少なくとも1つの、約300～約700の温度における雰囲気中で約0.1時間～48時間熱処理された、炭素紙、炭素フェルト、炭素布のうちの少なくとも1つを含む。

10

【0137】

いくつかの実施形態において、多孔質電極は親水性であってよい。これは、多孔質電極が水性陽極溶液及び/又は陰極溶液と共に使用される場合に、特に有利となる場合がある。液体フロー電池の電極の孔への液体、例えば水、陰極液及び/又は陽極液の取り込みは、液体フロー電池の最適な動作のための重要な特性と考えてもよい。いくつかの実施形態では、電極の孔の100パーセントに液体を充填し、液体と電極表面との間に最大の界面を生成してもよい。他の実施形態において、電極の孔の約30パーセント～約100パーセント、約50パーセント～約100パーセント、約70パーセント～約100パーセント、又は更には約80パーセント～100パーセントに液体が充填されてもよい。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、水、陰極液及び/又は陽極液との90°未満の表面接触角を有してもよい。いくつかの実施形態において、多孔質電極は、約90°～約0°、約85°～約0°、約70°～約0°、約50°～約0°、約30°～約0°、約20°～約0°、又は更には約10°～約0°の、水、陰極液及び/若しくは陽極液との表面接触角を有してもよい。

20

30

【0138】

本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリの界面領域は、多孔質電極の複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれた不連続輸送保護層のポリマーの一部、不連続輸送保護層のポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含む。界面領域の厚さ T_i は、特に限定されない。いくつかの実施形態において、界面領域の厚さは、約10ミクロン～約300ミクロン、約10ミクロン～約200ミクロン、約10ミクロン～約150ミクロン、20ミクロン～約300ミクロン、約20ミクロン～約200ミクロン、約20ミクロン～約150ミクロン、30ミクロン～約300ミクロン、約30ミクロン～約200ミクロン、又は更には約30ミクロン～約150ミクロンである。いくつかの実施形態において、不連続輸送保護層は厚さ T_p を有し、界面領域は厚さ T_i を有し、比 T_i/T_p は、約0.005～約0.8、約0.01～約0.8、約0.025～約0.8、約0.05～約0.8、約0.1～約0.8、約0.005～約0.65、約0.01～約0.65、約0.025～約0.65、約0.05～約0.65、約0.1～約0.65、約0.005～約0.5、約0.01～約0.5、約0.025～約0.5、約0.05～約0.5、約0.1～約0.5、約0.005～約0.4、約0.01～約0.4、約0.025～約0.4、約0.05～約0.4、約0.1～約0.4、約0.005～約0.3、約0.01～約0.3、約0.025～約0.3、約

40

50

0.05～約0.3、又は更には約0.1～約0.3である。界面領域は、ポリマーと多孔質電極との間の機械的結合を含むことができる。電極アセンブリの一体構造は、不連続輸送保護層のポリマーと界面領域内の多孔質電極との間で、機械的結合などの結合によって形成することができる。いくつかの実施形態において、界面領域は、不連続輸送保護層を多孔質電極に結合して、一体構造を形成する。界面領域は、電極アセンブリの作製プロセス中に形成することができる。

【0139】

一実施形態において、不連続輸送保護は、多孔質電極の第1の主面上に配置されたポリマーの溶融押出しによって形成することができる。溶融ポリマーは、多孔質電極の複数の空隙のうち少なくとも一部の中に流れることができ、任意で、多孔質電極（存在する場合）の繊維をカプセル化し、冷却固化させることによって、例えば機械的結合などで、不連続輸送保護層を多孔質電極に結合して、一体構造を形成する。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は熱を適用して、溶融ポリマーを複数の空隙に追いやることができる。

10

【0140】

別の実施形態において、適当な粘度のポリマー溶液が、多孔質電極の第1の主面上に所望のパターンでスクリーン印刷されてもよい。ポリマー溶液は、多孔質電極の複数の空隙のうち少なくとも一部の中に流れることができ、任意で、多孔質電極（存在する場合）の繊維をカプセル化し、乾燥、硬化、及び/又はせん断応力を除去して固化させることによって、例えば機械的結合などで、不連続輸送保護層を多孔質電極に結合して、一体構造を形成する。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は熱を適用して、ポリマー溶液を複数の空隙に追いやることができる。

20

【0141】

更に別の実施形態において、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質の連続フィルムは、例えば所望の開放領域を連続フィルムにダイカットすることによって、不連続輸送保護層の中に形成することができ、メッシュ構造体を形成する。不連続輸送保護層は、多孔質電極の第1の主面に、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質の軟化温度を超える適切な温度で積層されてよく、それによって熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質は、多孔質電極の複数の空隙のうち少なくとも一部の中に流れ、任意で、多孔質電極（存在する場合）の繊維をカプセル化して、次に、加熱又は化学線で、（Bステージの熱硬化性物質を）冷却又は硬化で固化し、それによって不連続輸送保護層を多孔質電極に例えば機械的結合などで結合して、一体構造を形成する。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は追加の熱を適用して、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質を複数の空隙に追いやることができる。

30

【0142】

別の実施形態において、熱可塑性繊維又はBステージの熱硬化性繊維の織布構造体若しくは不織布構造体は、例えば、従来技術を用いて織布構造体又は不織布構造体を作製することによって、不連続輸送保護層の中に形成することができる。不連続輸送保護層は、多孔質電極の第1の主面に、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質の軟化温度を超える適切な温度で積層されてよく、それによって熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質は、多孔質電極の複数の空隙のうち少なくとも一部の中に流れ、任意で、多孔質電極（存在する場合）の繊維をカプセル化して、次に、加熱又は化学線で、（Bステージの熱硬化性物質を）冷却又は硬化で固化し、それによって不連続輸送保護層を多孔質電極に例えば機械的結合などで結合して、一体構造を形成する。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は追加の加熱を適用して、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質を複数の空隙に追いやることができる。

40

【0143】

いくつかの実施形態において、多孔質電極の表面は粗くてよく、その表面の上方に突起を含んでもよく、例えば多孔質電極を構成する繊維が、多孔質電極の表面の上方に突出してもよい。これらの実施形態において、不連続輸送保護層のポリマーがその軟化温度を超

50

えているとき、及び/又は流動可能な溶液の形状にあるとき、不連続輸送保護層のポリマーは流れて突起をカプセル化することができ、(例えば熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質などのポリマー溶融物を)冷却によって固化させる際、若しくは(例えばポリマー溶液を)乾燥させる際、又は(ポリマー溶液若しくはBステージの熱硬化性物質を)硬化させる際に、不連続輸送保護層を多孔質電極に例えば機械的結合などで結合して、一体構造を形成する。

【0144】

いくつかの実施形態において、界面領域の厚さと組み合わされた多孔質電極の厚さ、すなわち $T_e + T_i$ は、約10ミクロン~約1000ミクロン、約10ミクロン~約500ミクロン、約10ミクロン~約250ミクロン、約10ミクロン~約100ミクロン、約25ミクロン~約1000ミクロン、約25ミクロン~約500ミクロン、約25ミクロン~約250ミクロン、又は更には約25ミクロン~約100ミクロンであってよい。

10

【0145】

本開示の不連続輸送保護層、多孔質電極、膜、並びに対応する電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、例えばレドックスフロー電池などの液体フロー電池で使用される電気化学セルを作製するために用いることができる。いくつかの実施形態において、本開示は、少なくとも1つの電極アセンブリ又は少なくとも1つの膜電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。一実施形態において、本開示は、本開示の電極アセンブリのうちのいずれか1つによる電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。別の実施形態において、本開示は、本開示の膜電極アセンブリのいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。

20

【0146】

図3は、本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電気化学セルの概略側断面図である。電気化学セル300は、全て前述したような、多孔質電極40と、不連続輸送保護層10と、界面領域90と、イオン透過膜20と、を含む。電気化学セル300は、流体入口ポート51a及び51a'のそれぞれ、流体出口ポート51b及び51b'のそれぞれ、フローチャンネル55及び55'のそれぞれ、並びに第1の表面50a及び52aを有するエンドプレート50及び50'のそれぞれを含む。電気化学セル300は、集電体60及び62も含む。エンドプレート50及び51は、それぞれ表面50a及び52aを介して、多孔質電極40と電気通信している。図示されていない支持プレートが、集電体60及び62の外部表面に隣接して配置されてもよい。支持プレートは集電体から電氣的に絶縁され、機械的強度及び支持を与え、セルアセンブリの圧縮を容易にする。いくつかの実施形態において、電気化学セル300は、多孔質電極40と、不連続輸送保護層10と、界面領域90とを含む、少なくとも1つの電極アセンブリ100を含む。電極アセンブリ100は、例えば電極アセンブリ100a~100g(図1A~図1N)など、本開示の電極アセンブリのいずれかであってよい。図3は、例えば第1の電極アセンブリ及び第2の電極アセンブリなど、2つの電極アセンブリ100を示す。2つの電極アセンブリは、同じであってもよく、又は異なってもよい。例えば、第1の電極アセンブリは電極アセンブリ100a(図1A及び図1B)であってもよく、一方で第2の電極アセンブリは電極アセンブリ100f(図1K及び図1L)であってもよい。電気化学セル300はまた、膜電極アセンブリ200及び/又は200'を含んでもよい。膜電極アセンブリ200は、例えば膜電極アセンブリ200a(図2A)など、本明細書で説明した単一の多孔質電極を有する膜電極アセンブリのいずれかであってよい。膜電極アセンブリ200'は、例えば膜電極アセンブリ200b(図2B)など、本明細書で説明した2つの多孔質電極を有する膜電極アセンブリのいずれかであってよい。

30

40

【0147】

個々の電気化学セルは、電気化学セル積層体を形成するように配置されてもよい。本開示の電気化学セル積層体は、本明細書で前述したように、複数の電極アセンブリ及び/又は複数の膜電極アセンブリを含むことができる。一実施形態において、本開示は、本開示の電極アセンブリのうちのいずれか1つによる、少なくとも2つ、少なくとも3つ、又は

50

更には少なくとも4つの電極アセンブリを含む、電気化学セル積層体を提供する。別の実施形態において、本開示は、本開示の膜電極アセンブリのうちのいずれか1つによる、少なくとも2つ、少なくとも3つ、少なくとも4つの膜電極アセンブリを含む、電気化学セル積層体を提供する。図4は、本開示の例示的な一実施形態による、例示的な電気化学セル積層体の概略側断面図を示す。電気化学セル積層体310は、バイポーラプレート50'、並びにフローチャネル55及び55'を有するエンドプレート50及び50'によって分離された、膜電極アセンブリ200'を含む。バイポーラプレート50'は、例えば、陽極液が1つの流路55のセットを流れて、陰極液が流路55'の第2のセットを流れることを可能にする。セル積層体310は、複数の電気化学セルを含み、各セルは膜電極アセンブリ並びに対応する隣接したバイポーラプレート及び/又はエンドプレートによって表されている。膜電極アセンブリ200'は上記で説明されている。いくつかの実施形態において、各膜電極アセンブリ200'は、本開示の2つの電極アセンブリ、例えば電極アセンブリ100a~100gのうちの少なくとも2つを含み得る。いくつかの実施形態において、膜電極アセンブリ200'の電極アセンブリのうちの1つは、不連続輸送保護層を含有しない電極アセンブリに置き換えることができる。電気化学セル積層体内において、膜電極アセンブリは同じであっても又は異なってもよい。電気化学セル積層体内において、電極アセンブリは同じであっても又は異なってもよい。図示されていない支持プレートが、集電体60及び62の外部表面に隣接して配置されてもよい。支持プレートは集電体から電氣的に絶縁され、機械的強度及び支持を与え、セルアセンブリの圧縮を容易にする。陽極液及び陰極液の入口ポート及び出口ポート、並びに対応する流体分配システムについては図示しない。これらの特徴部は、当該技術分野において知られているように提供され得る。

10

20

【0148】

本開示の不連続輸送保護層、多孔質電極、及びイオン透過膜、並びにそれらに対応する電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、例えばレドックスフロー電池などの液体フロー電池を作製するために使用され得る。いくつかの実施形態において、本開示は、本開示の少なくとも1つの電極アセンブリ、及び/又は少なくとも1つの膜電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。一実施形態において、本開示は、例えば電極アセンブリ100a~100gなど、本開示の電極アセンブリのいずれか1つによる電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。別の実施形態において、本開示は、例えば膜電極アセンブリ200a及び200bなど、本開示の膜電極アセンブリのいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。図5は、本開示の例示的な一実施形態による、例示的な単セル液体フロー電池の概略図を示す。液体フロー電池400は、全て前述したような、多孔質電極40、不連続輸送保護層10、界面領域90、及びイオン透過膜20を含む。多孔質電極40及び不連続輸送保護層10は、前述したような電極アセンブリ100として液体フロー電池400に含まれてもよく、例えば電極アセンブリ100a~100gなどの、本開示の電極アセンブリのいずれかであってもよい。多孔質電極40、不連続輸送保護層10、及び膜20は、前述したような膜電極アセンブリ200、200'として液体フロー電池400に含まれてもよく、例えば電極アセンブリ200a及び200bなどの、本開示の膜電極アセンブリのいずれかであってもよい。液体フロー電池400はまた、フローチャネル(図示せず)を有するエンドプレート50及び50'、集電体60、62、陽極液リザーバ70及び陽極液流体分配70'、並びに陰極液リザーバ72及び陰極液流体分配システム72'を含む。流体分配システムのポンプは図示しない。集電体60及び62は、電気負荷(図示せず)を含む外部回路に接続してもよい。図示されていない支持プレートが、集電体60及び62の外部表面に隣接して配置されてもよい。支持プレートは集電体から電氣的に絶縁され、機械的強度及び支持を与え、セルアセンブリの圧縮を容易にする。単セル液体フロー電池が図示されているが、液体フロー電池が、複数の電気化学セル、すなわちセル積層体を含み得ることは、当該技術分野において公知である。複数のセル積層体を使用して、液体フロー電池、例えば、連続で接続された複数のセル積層体を形成してもよい。本開示の不連続輸送保護層、多孔質電極、及びイオン

30

40

50

交換膜、並びにそれらに対応する電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、例えば図5の複数セルの積層体など、複数セルを有する液体フロー電池を作製するために使用することができる。流れ場が存在してもよいが、これは必要条件ではない。

【0149】

本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリは、向上したセル短絡抵抗及びセル抵抗をもたらすことができる。セル短絡抵抗は、例えば、電極の導電性繊維による膜の破壊に起因する短絡に対して電気化学セルが有する抵抗の尺度である。いくつかの実施形態において、本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリのうちの少なくとも1つを含む、本開示の実施例セクションで説明するような試験セルは、 1000 cm^2 より大きい、 5000 cm^2 より大きい、又は更には 10000 cm^2 より大きいセル短絡抵抗を有し得る。いくつかの実施形態において、セル短絡抵抗は、約 10000000 cm^2 未満であってもよい。セル抵抗は、膜を貫通する、すなわち図3又は図5に示されるセルを横断する電気化学セルの電気抵抗の尺度である。いくつかの実施形態において、本開示の実施例セクションで説明するように、本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリのうちの少なくとも1つを含む試験セルは、約 $0.01 \sim 10 \text{ cm}^2$ 、 $0.01 \sim 5 \text{ cm}^2$ 、約 $0.01 \sim 3 \text{ cm}^2$ 、約 $0.01 \sim 1 \text{ cm}^2$ 、約 $0.04 \sim 5 \text{ cm}^2$ 、約 $0.04 \sim 3 \text{ cm}^2$ 、約 $0.04 \sim 0.5 \text{ cm}^2$ 、約 $0.07 \sim 5 \text{ cm}^2$ 、約 $0.07 \sim 3 \text{ cm}^2$ 、又は更には約 $0.07 \sim 0.1 \text{ cm}^2$ のセル抵抗を有し得る。

【0150】

本開示のいくつかの実施形態において、液体フロー電池は、レドックスフロー電池、例えば、バナジウムレドックスフロー電池(VRFB)であってもよく、ここでは、 V^{3+}/V^{2+} 硫酸塩溶液が負電解液(「陽極液」として機能し、 V^{5+}/V^{4+} 硫酸塩溶液が正電解液(「陰極液」として機能する。しかしながら、他のレドックス化学作用が想定され、本開示の範囲内であり、例えば、 V^{2+}/V^{3+} 対 $Br^-/ClBr_2$ 、 Br_2/Br^- 対 S/S^{2-} 、 Br^-/Br_2 対 Zn^{2+}/Zn 、 Ce^{4+}/Ce^{3+} 対 V^{2+}/V^{3+} 、 Fe^{3+}/Fe^{2+} 対 Br_2/Br^- 、 Mn^{2+}/Mn^{3+} 対 Br_2/Br^- 、 Fe^{3+}/Fe^{2+} 対 Ti^{2+}/Ti^{4+} 及び Cr^{3+}/Cr^{2+} の酸性/塩基性の化学作用が含まれるが、これらに限定されないことを理解するべきである。液体フロー電池に有用である他の化学作用として、例えば、米国特許出願公開第2014/0028260号、同2014/0099569号、及び同2014/0193687号に記載されている配位化学作用と、例えば米国特許出願公開第2014/0370403号及び特許協力条約下の国際出願公開WO2014/052682号の有機複合体が挙げられる。これらはその全てが本明細書に参照として組み込まれている。

【0151】

本開示はまた、電極アセンブリの製造方法を提供する。いくつかの実施形態において、電極アセンブリの製造方法は、(i)第1の表面積 A_e を有する第1の主面、反対側を向いた第2の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極を準備することと、(ii)ポリマーを含み、第1の主面と実質的に平行な断面積 A_p を有する不連続輸送保護層を第1の主面上に配置することと、(iii)不連続輸送保護層の一部が、複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれているか、多孔質電極の一部が、ポリマーの一部に埋め込まれているか、又はそれらの組み合わせである、界面領域を形成することと、を含む。ここで、 $0.02 A_e/A_p \sim 0.85 A_e$ であり、多孔質電極及びポリマー層は一体構造を形成する。任意で、方法は、界面領域とは反対側にある不連続輸送保護層の主面上にイオン透過膜を配置することを更に含んでよく、これにより、膜電極アセンブリが形成される。

【0152】

いくつかの実施形態において、配置するステップは、例えばポリマーを溶融押し成形する押し成形と、例えばポリマーを3Dプリンティング及びインクジェット印刷するポリマーの印刷と、例えばポリマーをセグメント化転写積層するポリマーの転写積層とのうちの、少なくとも1つを含む。例えばポリマー溶融押し成形などの押し成形プロセス

、及びポリマー印刷は当技術分野で公知であり、従来の技術を、本開示の電極アセンブリ及び膜電極アセンブリの作製に利用することができる。ポリマーを転写積層することは当技術分野で公知であり、例えばセグメント化された転写積層、及び従来の技術を用いてもよい。セグメント化転写積層方法の一例は、連続ポリマーフィルムを剥離ライナー上に形成し、転写するセグメントの所望のパターンを形成するためにポリマーフィルムをキスカットし、セグメント化されたポリマーフィルムのウィード、すなわちセグメント化されたポリマーフィルムの不要部分を除去して、剥離ライナーを伴う不連続輸送保護層を形成し、多孔質電極を提供し、（例えば熱積層など）不連続輸送保護層の露出させた主面を多孔質電極の表面に積層させて界面領域を形成するものである。多孔質電極とポリマー層は一体構造を形成する。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は熱を適用して、溶解ポリマーを複数の空隙に追いやることができる。不連続輸送保護層及び多孔質電極のうち的一方又は両方に圧力及び/又は熱を適用して、ポリマーを複数の空隙に追いやることができる。剥離ライナーは、所望のときに取り外すことができる。

【0153】

電極アセンブリを製造する方法のいくつかの実施形態において、界面領域を形成するステップは、配置するステップに含まれる。いくつかの実施形態において、形成するステップは、圧力及び熱のうち少なくとも1つを、多孔質電極及び不連続輸送保護層のうち少なくとも1つに加えることを含む。圧力及び熱のうち少なくとも1つを、多孔質電極及び不連続輸送保護層のうち少なくとも1つに加えることは、多孔質電極及び不連続輸送保護層のうち少なくとも1つを、ニップロールの少なくとも1つのセット内に付勢することによって行うことができ、任意でニップロールのうち少なくとも1つは加熱される。いくつかの実施形態において、形成するステップは、圧力及び熱のうち少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層に加えることを含む。圧力及び熱のうち少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層に加えることは、多孔質電極及びポリマー層を、ニップロールの少なくとも1つのセット内に付勢することによって行うことができ、任意でニップロールのうち少なくとも1つは加熱される。

【0154】

本開示の選択した実施形態は、以下を含むがそれらに限定されない。

【0155】

第1の実施形態において、本開示は、
 第1の表面積 A_e を有する第1の主面、反対側を向いた第2の主面、及び複数の空隙を有する、多孔質電極と、
 ポリマーを含み、第1の主面上に配置され、第1の主面に実質的に平行である断面積 A_p を有する、不連続輸送保護層と、
 複数の空隙のうち少なくとも一部に埋め込まれたポリマーの一部、ポリマーの一部に埋め込まれた多孔質電極の一部、又はそれらの組み合わせを含み、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.85 A_e$ で、多孔質電極及び不連続輸送保護層は一体構造を形成する、界面領域と、
 を含む電極アセンブリを提供する。

【0156】

第2の実施形態において、本開示は、複数の空隙が、多孔質電極の第1の主面の少なくとも一部と反対側を向いた第2の主面との間の流体連通を可能にする、第1の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0157】

第3の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が非導電性である、第1又は第2の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0158】

第4の実施形態において、本開示は、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.5 A_e$ である、第1～第3の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0159】

第5の実施形態において、本開示は、 $0.02 A_e \leq A_p \leq 0.3 A_e$ である、第1～

10

20

30

40

50

第4の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0160】

第6の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層の厚が T_p であり、界面領域の厚さが T_i であり、比 T_i/T_p が約0.005~約0.8である、第1~第5の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0161】

第7の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が、複数の個別の構造体、メッシュ構造体、織布構造体、及び不織布構造体のうちの少なくとも1つを含む、第1~第6の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0162】

第8の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が複数の個別の構造体を含む、第1~第6の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0163】

第9の実施形態において、本開示は、複数の個別の構造体が、約0.050ミクロン~約3000ミクロンの厚さを有する、第8の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0164】

第10の実施形態において、本開示は、複数の個別の構造体がパターンになっている、第8又は第9の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0165】

第11の実施形態において、本開示は、複数の個別の構造体が、複数の非交差連続ラインを含む、第8~第10の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0166】

第12の実施形態において、本開示は、複数の非交差連続ラインが直線である、第11の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0167】

第13の実施形態において、本開示は、複数の非交差連続ラインが、約0.3mm~約11mmのピッチを有する、第11又は第12の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0168】

第14の実施形態において、本開示は、複数の非交差連続ラインが、約0.01mm~約10mmの幅を有する、第11~第13の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0169】

第15の実施形態において、本開示は、複数の非交差連続ラインが、約2cm~概ね多孔質電極の長さである長さスケールにわたって実質的に平行である、第11~第14の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0170】

第16の実施形態において、本開示は、複数の個別の構造体が、約10ミクロン~約5000ミクロンまでの最長寸法を有する、第8~第14の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0171】

第17の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が、メッシュ構造体、織布構造体、及び不織布構造体のうちの少なくとも1つを含む、第1~第6の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0172】

第18の実施形態において、本開示は、織布構造体、不織布構造体、及びメッシュ構造体のうちの少なくとも1つについて、体積多孔率及び開放面積多孔率のうちの少なくとも1つが約0.10~約0.995である、第17の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0173】

10

20

30

40

50

第19の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が、導電性微粒子及び非導電性微粒子のうちの少なくとも1つを0重量%～5重量%を含有する、第1～第18の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0174】

第20の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が、熱可塑性物質又はBステージの熱硬化性物質のうちの少なくとも1つを含む、第1～第19の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0175】

第21の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が25において非粘着性である、第1～第20の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

10

【0176】

第22の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層のポリマーが、約50～約400の軟化温度を有する、第1～第21の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0177】

第23の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層のポリマーが約0～約5体積%の多孔率を有する固体である、第1～第22の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0178】

第24の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が5重量%～約100重量%の親水性ポリマーを含む、第1～第23の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

20

【0179】

第25の実施形態において、本開示は、不連続輸送保護層が親水性コーティングを更に含む、第1～第24の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0180】

第26の実施形態において、本開示は、多孔質電極が、黒鉛粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維、及び黒鉛デンドライトのうちの少なくとも1つを、約5重量%～約100重量%含む、第1～第25の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0181】

第27の実施形態において、本開示は、多孔質電極が、約30重量%～約100重量%の導電性炭素微粒子を含む、第1～第25の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

30

【0182】

第28の実施形態において、本開示は、導電性炭素微粒子が、炭素粒子、片状炭素、カーボンデンドライト、カーボンナノチューブ、及び分枝カーボンナノチューブのうちの少なくとも1つである、第27の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0183】

第29の実施形態において、本開示は、導電性炭素微粒子が、黒鉛粒子、片状黒鉛、黒鉛繊維、及び黒鉛デンドライトのうち少なくとも1つである、第27の実施形態による電極アセンブリを提供する。

40

【0184】

第30の実施形態において、本開示は、多孔質電極が、約50重量%～約100重量%の炭素繊維を含む、第1～第25の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0185】

第31の実施形態において、本開示は、
第1の表面積 A_e を有する第1の主面、反対側を向いた第2の主面、及び複数の空隙を有する多孔質電極を準備することと、
ポリマーを有し、第1の主面に実質的に平行である断面積 A_p を有する不連続輸送保護

50

層を、第1の主面上に配置することと、

不連続輸送保護層の一部が、複数の空隙のうちの少なくとも一部に埋め込まれているか、多孔質電極の一部がポリマーの一部に埋め込まれているか、又はそれらの組み合わせである、界面領域を形成することと、を含み、 0.02 A e Ap 0.85 A e であり、多孔質電極及びポリマー層が一体構造を形成する、電極アセンブリの製造方法を提供する。

【0186】

第32の実施形態において、本開示は、配置するステップが、押し出し成形、印刷、及び転写積層のうちの少なくとも1つを含む、第31の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0187】

第33の実施形態において、本開示は、配置するステップが、溶融ポリマーを押し出し成形することを含む、第31の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0188】

第34の実施形態において、本開示は、形成するステップが、配置するステップに含まれる、第31～第33の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0189】

第35の実施形態において、本開示は、形成するステップが、圧力及び熱のうちの少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つに加えることを含む、第31～第34の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0190】

第36の実施形態において、本開示は、圧力及び熱のうちの少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つに加えることが、多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つを、ニップロールの少なくとも1つのセット内に付勢することによって行われ、任意でニップロールのうちの少なくとも1つは加熱される、第35の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0191】

第37の実施形態において、本開示は、形成するステップが、圧力及び熱のうちの少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層に加えることを含む、第31～第34の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0192】

第38の実施形態において、本開示は、圧力及び熱のうちの少なくとも1つを多孔質電極及び不連続輸送保護層に加えることが、多孔質電極及びポリマー層をニップロールの少なくとも1つのセット内に付勢することによって行われ、任意でニップロールの少なくとも1つは加熱される、第37の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0193】

第39の実施形態において、本開示は、

第1～第30の実施形態のいずれか1つの電極アセンブリによる、第1の電極アセンブリと、

第1の表面及び反対側を向いた第2の表面を有し、界面領域とは反対側にある不連続輸送保護層の主面に隣接して、又はその上に配置されたイオン透過膜と、

を含み、第1の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する、膜電極アセンブリを提供する。

【0194】

第40の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と、第1の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置された第1の接着層を更に含み、第1の接着層が、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、第39の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0195】

第41の実施形態において、本開示は、第1の接着層が環形状であるか、又は膜電極アセンブリの周辺部の両側にある2つの個別の接着ラインである、第40の実施形態による

10

20

30

40

50

電極アセンブリを提供する。

【0196】

第42の実施形態において、本開示は、第1の接着層が、イオン透過膜の第1の表面と、第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層とに接触している、第40又は第41の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0197】

第43の実施形態において、本開示は、第2の接着層及び第2の電極アセンブリを更に含み、第2の接着層は、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置され、第2の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成し、任意で、第2の接着層は環形状であるか、又は膜電極アセンブリの周辺部の両側にある2つの個別の接着ラインである、第40～第42の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

10

【0198】

第44の実施形態において、本開示は、第2の接着層及び第2の電極アセンブリを更に含み、第2の接着層は、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層とに接触し、第2の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成し、任意で、第2の接着層は環形状であるか、又は膜電極アセンブリの周辺部の両側にある2つの個別の接着ラインである、第40～第42の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0199】

第45の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と第1の接着層との間に配置された第1のガスケットを更に含み、第1のガスケットは、膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、第40、第41、第43、又は第44の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

20

【0200】

第46の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と第2の接着層との間に配置された第2のガスケットを更に含み、第2のガスケットは膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置され、任意で第2のガスケットは環形状である、第45の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0201】

第47の実施形態において、本開示は、第1のガスケットが環形状である、第45又は第46の実施形態による電極アセンブリを提供する。

30

【0202】

第48の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と、第1の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置された第1の接着層を更に含み、第1の接着層は、膜電極アセンブリの少なくとも内側の中に配置された複数の第1の接着領域であり、膜電極アセンブリの面における複数の第1の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である、第39の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0203】

第49の実施形態において、本開示は、第2の接着層及び第2の電極アセンブリを更に含み、第2の接着層は、イオン透過膜の第2の表面と、第2の電極アセンブリの多孔質電極及び不連続輸送保護層のうちの少なくとも1つとの間に配置され、第2の電極アセンブリ及びイオン透過膜は一体構造を形成する、第48の実施形態による電極アセンブリを提供する。

40

【0204】

第50の実施形態において、本開示は、第2の接着層が膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、第49の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0205】

第51の実施形態において、本開示は、第2の接着層が、膜電極アセンブリの少なくと

50

も内側の中に配置された複数の第1の接着領域であり、膜電極アセンブリの面における複数の第1の接着領域の面積は、膜電極アセンブリの投影面積の少なくとも50パーセント未満である、第49の実施形態による電極アセンブリを提供する。

【0206】

第52の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と、第1の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置された第1のガスケットを更に含み、第1のガスケットは膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、第48～第51の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを提供する。

【0207】

第53の実施形態において、本開示は、イオン透過膜と、第2の電極アセンブリの不連続輸送保護層との間に配置された第2のガスケットを更に含み、第2のガスケットは膜電極アセンブリの周辺部に沿って配置された、第52の実施形態による電極アセンブリを提供する。

10

【0208】

第54の実施形態において、本開示は、第1～第30の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。

【0209】

第55の実施形態において、本開示は、第39～第53の実施形態のいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、電気化学セルを提供する。

【0210】

第56の実施形態において、本開示は、第1～第30の実施形態のいずれか1つによる電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。

20

【0211】

第57の実施形態において、本開示は、第39～第53の実施形態のいずれか1つによる膜電極アセンブリを含む、液体フロー電池を提供する。

【0212】

実施例

【表1】

材料	
略称又は商品名	説明
3M 825EW unsupported PFSA membrane	米国特許第7,348,088号の実施例セクションに記載されている膜の調製手順に従って、3M825EWから調製した、パーフルオロスルホン酸膜。
3M 825EW Supported PFSA Membrane	静電紡糸支持層(基本重量4.3g/m ²)を有する825当量の3M PFSA イオノマーから調製した、パーフルオロスルホン酸(PFSA)膜。この膜は、米国特許出願公開第2014/0134518(A1)で略述された方法によってキャストされた溶液であり、最終厚さは20μmであった。このような膜は、本説明を使用して3M Company社から入手可能である。
GDL 35AA	5PSI(34.5kPa)の圧力下で280±30ミクロンの厚さを有する炭素紙であり、独国WiesbadenのSGL Group社から「SIGRACET GDL 35AA」の登録商標で入手可能である。
Infiana 100 micron HDPE	高密度ポリエチレン(HDPE)フィルム 74325。100ミクロンのシリコンを加えた1850。独国Forchheim Zweibrueckenstrasse15-25 91301の、Infiana Germany GmbH&Co. KG社から入手可能である。
Infiana 100 micron LDPE	低密度ポリエチレン(LDPE)フィルム 74000。100ミクロン。独国Forchheim Zweibrueckenstrasse15-25 91301の、Infiana Germany GmbH&Co. KG社から入手可能である。
TEONEX Q83 PEN Film	TEONEX Q83 2mil(0.051mm)ポリエチレンテレフタレートフィルム。バージニア州チェスターのDupont Teijin Films社から入手可能である。

30

40

【0213】

試験手順及び方法

電気化学セルの試験手順

使用したハードウェアは、Fuel Cell Technologies社(ニューメキシコ州Albuquerque)で作られた2つの黒鉛バイポーラ板、金メッキを施した2つの銅の集電板、及びアルミニウムのエンドプレートを使用した、改良した燃料セル試験装置であった。黒鉛バイポーラ板は、上部に入口及び下部に出口を有する、5cm

50

²の単一の蛇行チャネルを有していた。

【0214】

試験セルは次のように組み立てられた。まず、 5 cm^2 の面積を中央から取り外した、ポリテトラフルオロエチレンPTFEガラス繊維複合ガスケット材料（ミネソタ州Arden HillsのNott Company社から入手可能）の3つの 5.2 mil （ 0.13 mm ）厚の片を、1つの黒鉛板の主面の周辺部に沿って積層及び設置した。ガスケットは蛇行チャネルを有する板の側にあった。ガスケット開口部の大きさにカットしたGDL 35AAの片を、ガスケットの開口部、及び黒鉛板の蛇行チャネルに隣接して設置した。次に、電極アセンブリをガスケット空洞内に設置し、電極アセンブリの電極をGDL 35AAの隣に設置した。次に、（セル抵抗結果に明記した） $3\text{ M } 825\text{ EW}$ 膜を、電極アセンブリの不連続輸送保護層（DTPL）に隣接したガスケット/電極アセンブリの上に設置した。次に、空洞を伴うガスケット材料の3つの 5.2 mil （ 0.13 mm ）厚の別のセットを、膜の上に設置した。第2の電極アセンブリを、PFSA膜に隣接した電極の不連続輸送保護層（DTPL）と共に、この空洞内に設置した。ガスケットの空洞の大きさにカットしたGDL 35AAの第2の片を、第2の電極アセンブリの電極に隣接したガスケット空洞内に設置した。第2の黒鉛板を、GDL 35AAの第2の片に隣接した黒鉛板の蛇行チャネルと共に積層体の上に設置して、試験用セルを完成させた。次に、試験用セルを、集電体を有する2つのアルミニウム製エンドプレート間に設置し、一連の8個のボルトを $110\text{ in}\cdot\text{lbs}$ （ $12.4\text{ N}\cdot\text{m}$ ）で締めて固定した。

10

20

【0215】

試験セルの入口ポート及び出口ポートへは、KNF Neuberger NFB5の膜ポンプ（ニュージャージー州トレントンのKNF Neuberger Inc, 社から入手可能）によって、電解質を流速 $23\text{ mL}/\text{min}$ でセルの蛇行チャネルに送達できる配管で接続した。電解液の送達は、流体を1つのタンクから上方の入口ポートに入れ、下方の出口ポートから出し、最後に元のタンクに戻るよう、ポンプを使うことによって実現した。ポンプシステムは、各黒鉛板に設定した。これらの実施例で使用された電解液は、 1.5 M の VO_2SO_4 、 2.6 M の H_2SO_4 であった。 $\text{VO}_2\text{SO}_4 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 粉末は、Sigma Aldrich社（ミズーリ州セントルイス）から購入し、濃縮 H_2SO_4 （ $95\sim 98\%$ ）はSigma Aldrich社から購入した。 $\text{VO}_2\text{SO}_4 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 中の水の量はロット毎に変化したが、それは諒解しており、溶液濃度はこの水の割合に相当するよう調整した。最終的な溶液は、これらの成分に 18 M のイオン交換水を規定のモル比で組み合わせ、使用前に攪拌棒で $2\sim 3$ 時間混合して作られた。 2.6 M の硫酸中で 1.5 M の VO_2SO_4 を含有し、 V^{+5} 状態に帯電させた 30 mL の陰極溶液を、ポンプを使ってセルの一方の側に通した。セルの他方の側において、 2.6 M の硫酸中で 1.5 M の VO_2SO_4 を含有し、 V^{+2} 状態に帯電させた 30 mL の陽極溶液にポンプを使った。このセットアップにおいて、セルの放電中に、陰極液は V^{+5} から V^{+4} に還元され、陽極液は V^{+2} から V^{+3} に酸化された。

30

【0216】

セルの電気化学動作：次に、Biologic MPG-205ポテンショ/ガルバノスタットにセルを接続し、一方の集電体はアノードとして機能し、他方の集電体はカソードとして機能した。試験を実施するため、次のステップに従った。

40

1. 電解質がセルに確実に流れるようにする。
2. セル電圧が 1.8 V に到達するまで、セルを $80\text{ mA}/\text{cm}^2$ で充電する。
3. 電流が $5\text{ mA}/\text{cm}^2$ に下がるまで、セル電圧を 1.8 V に保持する。
4. 開回路電圧を 120 秒間観察する。
5. セルを $160\text{ mA}/\text{cm}^2$ で 120 秒間放電し、電圧を記録する。
6. 開回路電圧を 120 秒間観察する。
7. セルを $140\text{ mA}/\text{cm}^2$ で 120 秒間放電し、電圧を記録する。
8. 開回路電圧を 120 秒間観察する。

50

9. セルを 120 mA/cm^2 で 120 秒間放電し、電圧を記録する。
10. 開回路電圧を 120 秒間観察する。
11. セルを 100 mA/cm^2 で 120 秒間放電し、電圧を記録する。
12. 開回路電圧を 120 秒間観察する。
13. セルを 80 mA/cm^2 で 120 秒間放電し、電圧を記録する。

【0217】

開回路時のセル電圧から負荷下のセル電圧を減算し、動作電流で除算してセル抵抗を計算した。

【0218】

セル短絡試験手順

燃料電池試験スタンド及びポテンシostatを用いて、電子的な短絡抵抗の判定を行った。使用した試験固定装置は、Fuel Cell Technologies社（ニューメキシコ州Albuquerque）で作られた 5 cm^2 の単一蛇行セルであった。燃料セル試験スタンドは、窒素流のための2つのマスフロー制御器（マサチューセッツ州アンドーバーのMKS Instruments社）、加湿制御のためのScientific Systems Inc.社（ペンシルベニア州ステイトカレッジ）の2つのHPLCポンプ、及びLove controls社（インディアナ州ミシガンシティ）の温度制御器から構成した。試験中のセルは、2つの黒鉛ブロックの流れ場の間で、ガスケット、炭素紙、サブガスケット、膜、サブガスケット、ガスケット、炭素紙、の順番で組み立てた。セルボルトは、まず星形パターンで締付け、その後トルクレンチで $110 \text{ lbf} \cdot \text{in}$ ($12.4 \text{ N} \cdot \text{m}$) のトルクを与えた。ガスケットは、 5 cm^2 の開口部のためにダイカットされたPTFEガラス繊維複合材であった。ガスケットの厚さは、試験厚さにある炭素紙の厚さに対して、ある割合であるように選択した。1からこの割合を減算して、100を乗算したものが、圧縮%である。使用した膜は、20ミクロンの3M 825EW unsupported PFSA membraneであった。セルは試験スタンドに接続され、次の条件、すなわち側毎に毎分1000標準立方センチメートルの N_2 、側毎に 0.4 cc/min の水、及び、セルの設定温度を 50 に設定した。Solaritron 1470 multistat（イングランドのレスター）からのリードを、電圧を印加し電流を測定するために使用した。試験に使用した試験シーケンスは、15分間のOCV、次に 5 mV/s で $0 \sim 0.25$ ボルトの動電スキャンを2ループ、その後 5 mV/s で $0.25 \sim 0.5$ ボルトの5回のサイクリックボルタモグラム、次にループバックの前に5分間のOCVステップを行った。サイクリックボルタモグラムの、電圧対電流のプロットの勾配は、電子抵抗を示し、それを次に、電子抵抗をもたらずセル面積で乗算し、 $\cdot \text{cm}^2$ で示した。高い電子抵抗を有するサンプルは、典型的にスイープ方向にヒステリシスを示した。電圧振幅が制限され、ヒステリシスが增大すると、試験精度の上限値を $50 \text{ k} \cdot \text{cm}^2$ に設定した。単一の電極、又は埋め込まれたDTPLを伴う電極を、 5 cm^2 に切断した。DTPLを伴うサンプルを、ガスケット内の 5 cm^2 の開口部に設置して、DTPLを膜に向けた。サンプルを測定して厚さを決定した。ガスケットを、測定したサンプル厚に基づいて決定し、約30%の圧縮%を実現した。

【0219】

走査電子顕微鏡（SEM）手順

不連続輸送保護層サンプルをハサミで切断した。大きいサンプルから小さいセクションを取り外し、Nisshin Em Co. LTD社のNEMカーボンテープを使用して金属突出部に接着した。金属突出部は、撮像対象断面を切断サンプルの縁部上に準備するために、突出部の基部に直交する面を有していた。金属突出部に接着したサンプルに、圧縮空気を緩やかに吹き付け、撮像対象断面から剥がれた残片を除去した。次に、このサンプルを、Denton Vacuum Desk IV（ニュージャージー州ムアズタウンのDenton Vacuum社）の中のGold-Palladium targetを用いて、3分間スパッタコーティングした。サンプルの断面を、Hitachi TM3030卓上用走査型電子顕微鏡（SEM）で撮像した。

10

20

30

40

50

【0220】

リニアストランドのAp測定手順

Leica DFC320カメラ（英国ケンブリッジのLeica Microsystems Imaging Solutions Ltd.社から入手可能）を伴う、Olympus BX60光学顕微鏡（ペンシルベニア州センターバレーのOlympus America Inc.社から入手可能）を使用して、明視野において1.25倍の対物レンズ（12.5倍拡大）を用いて、GDL 35AA上の埋め込まれたリニアポリプロピレンストランドの画像を捕捉した。Image Pro Plus Version 6.3.0.512ソフトウェア（メリーランド州ロックビルのMedia Cybernetics, Inc.社から入手可能）を使用して、リニアポリプロピレンストランドの平均線幅及び平均ピッチを測定した。長さは、1本のストランドの前縁部から第3のストランドの前縁部までを測定した。この数を3で除算して平均ピッチ0.983mmを得た。ストランド間の4つの長さ測定値を合計して4で除算し、ストランド間の平均距離0.810mmを得た。0.810mmを0.983mmで除算して、82.4%の平均開放面積がもたらされた。これによって、カバーされた面積17.6%又は0.176 AeであるApとなった。

10

【0221】

クロスストランドのApの測定手順

Leica DFC320カメラを伴う、上述したOlympus BX60光学顕微鏡を使用して、明視野において1.25倍の対物レンズ（12.5倍拡大）を用いて、GDL 35AA上の埋め込まれたクロスポリプロピレンストランドの画像を捕捉した。上述したImage Pro Plus Version 6.3.0.512ソフトウェアを使用して、クロスポリプロピレンストランドの平均線幅及び平均ピッチを測定した。長さは、1本のストランドの前縁部から第4のストランドの前縁部までを測定した。この数を4で除算して平均ピッチ0.990mmを得た。正方形面積繰り返し単位の全体 = $0.990\text{ mm} \times 0.990\text{ mm} = 0.980\text{ mm}^2$ であった。ストランド間の3つの長さ測定値を合計し、3で除算して、ストランド間の平均距離0.754mmを得た。0.754mmの平方で、平均開放サイズ 0.569 mm^2 を得た。0.569 mm^2 を0.980 mm^2 で除算すると、平均開放面積58.1%を得る。これによって、カバーされた面積41.9%又は0.419 AeであるApとなる。

20

30

【0222】

埋め込まれた有孔フィルムのApの計算手順

Infi ana 100ミクロンHDPEの有孔フィルムを埋め込むことによって、開放面は大きく変化しないので、穿孔前後の基本重量の変化を使用して開放面積を決定することができた。16 cm^2 ダイ（ミネソタ州セントポールのMathias Die Company社から入手可能）を使用して、Infi ana 100ミクロンHDPEフィルムの1片を切り出した。同様の手順を用いて、有孔の100ミクロンHDPEフィルムの16 cm^2 サンプルを個片化した。受け取ったフィルム及び有孔フィルムの質量は、それぞれ0.1530g及び0.0636gであった。無孔フィルム質量に対する有孔フィルム質量の比から、0.416 AeのAp値が得られる。

40

【0223】

埋め込まれた11gsmのポリプロピレン不織布のApの計算

不織布の断面積の平均値Apは、次式によって計算される。 $A_p = M_p / (D_p \times T_p)$ 。ここで、Mpは（所与の面積内の）不織布のポリマーの質量であり、Dpは不織布を形成するために使用したポリマーの密度であり、Tpは（所与の面積内の）不織布の厚さであった。

【0224】

5.25インチ（13.34cm）の外径の円を、面積139.66 cm^2 、厚さ13mil（0.0330cm）、及び質量0.17gを有する11gsmポリプロピレン不織布から切断した。ポリプロピレンの密度は0.91 g/cm^3 であった。上記の式を用

50

いて、 A_p が、 139.66 cm^2 のサンプルに対して 5.66 cm^2 と計算され、 $0.041 A_e$ の A_p をもたらした。

【0225】

埋め込まれた 24 gsm のポリプロピレン不織布の A_p の計算

不織布の断面積の平均値 A_p は、次式によって計算される。 $A_p = M_p / (D_p \times T_p)$ 。ここで、 M_p は(所与の面積内の)不織布のポリマーの質量であり、 D_p は不織布を形成するために使用したポリマーの密度であり、 T_p は(所与の面積内の)不織布の厚さであった。

【0226】

5.25インチ(13.34 cm)の外径の円を、面積 139.66 cm^2 、厚さ 23.5 mil (0.0597 cm)、及び質量 0.33 g を有する 24 gsm ポリプロピレン不織布から切断した。ポリプロピレンの密度は 0.91 g/cm^3 であった。上記の式を用いて、 A_p が、 139.66 cm^2 のサンプルに対して 6.07 cm^2 と計算され、 $0.043 A_e$ の A_p をもたらした。

10

【0227】

埋め込まれた 9.1 mil の線径のポリプロピレン織布の A_p の計算

9.1 mil (0.23 mm)の線径のポリプロピレン織布を埋め込むことによって、開放面積は大きく変化しないので、供給者McMaster Carr社によって提供された開放面積の仕様を用いることができた。指定された開口面積は41パーセントであり、これはカバーされた面積59%又は $0.59 A_e$ である A_p と対応した。

20

【0228】

埋め込まれた 4.3 mil (0.11 mm)の線径のポリプロピレン織布の A_p の計算

4.3 mil (0.11 mm)の線径のポリプロピレン織布を埋め込んでも開放面積は大きく変化せず、そのため供給者McMaster Carr社によって提供された開放面積の仕様を用いることができた。指定された開口面積は34パーセントであり、これはカバーされた面積66%又は $0.66 A_e$ である A_p と対応した。

【0229】

実施例1 埋め込まれたリニアポリプロピレンストランド

2つのニップを有する3つの隣接するロールである、ニップロールアセンブリを伴う押出し成形器を使用して、ストランドを、動く基材である多孔質電極の上に押出して埋め込み、ウェブ方向に沿った直線を生成した。単一スクリーンの押出し成形器を使用して、平均径 0.33 mm 及び平均間隔 1.09 mm (中心間)の円形穴から成るダイ先端を有するダイを介して、ポリプロピレン樹脂3866(テキサス州ヒューストンのTotal Petrochemical社から入手可能)を押出し成形した。基材のGDL 35AA炭素紙を、 18 gsm /平方メートル(18 gsm)のポリエチレンテレフタレート(PET)のспанボンド不織布キャリアウェブ(オハイオ州シンシナティのMidwest Filtration LLC社から入手可能)に、キャリアウェブが炭素基材の下を通過しないよう、テープで接合した。ロール1及び2を 450° F (232° C)まで加熱し、 $1/8$ インチ(3.2 mm)の固定間隙に設定し、押出し成形器からポリプロピレンストランドが堆積する直前に、炭素紙を加熱した。接合されたGDL 35AAを伴うキャリアウェブを、 30 ft/min (9.1 m/min)でラインを通して供給した。ニップロール1及び2を通過した後、ダイ先端から押出された熔融ストランドは、GDL 35AA炭素紙と接触した。次に、表面上にリニアストランドを伴うGDL 35AAを、 12 mil (0.30 mm)の固定間隙に設定されたニップロール2及び3に通した。ロール3を、 45° F (7° C)に設定して、熔融ストランドを冷却して固化し、GDL 35AAの上面に結合した固化ストランドを形成して、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例1を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡(SEM)手順によって識別した。その結果得られた実施例1の電極アセンブリの断面SEM画像が図6に示される。

30

40

【0230】

50

実施例 2 埋め込まれたクロスポリプロピレンストランド

ポリプロピレン 3866 を、実施例 1 の説明と同じ手順を用いて、GDL 35AA 上に押し出し成形した。次にサンプルを 90° 回転させ、18 グラム / 平方メートル (gsm) のポリエチレンテレフタレート (PET) のスパンボンド不織布キャリアウェブ (オハイオ州シンシナティの Midwest Filtration LLC 社から入手可能) に接合し、実施例 1 の説明と同じ条件を用いて、第 2 の経路へ向けて押し出し成形ラインに送り出し、クロスリニアストランドの方形パターンを作り出すことによって、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例 2 を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡 (SEM) 手順によって識別した。その結果得られた実施例 2 の電極アセンブリの断面 SEM 画像が図 7 に示される。

10

【0231】**実施例 3 埋め込まれた高密度ポリエチレン (HDPE) 有孔フィルム**

Infiana 100 ミクロン HDPE ポリエチレンのシートを、Infiana (独
国 Forchheim の Infiana Germany GmGH & Co. KG 社) から入手した。8 インチ (20 cm) × 11 インチ (28 cm) × 100 ミクロンの HDPE フィルムに、Clear Choice AT75 適用テープ (USCutter.com から入手可能) を、ハンドローラを用いて積層した。Summa Cutter D75 切断ユニット (ワシントン州シアトルの Summa Incorporated 社) を使用して、六角形のパッキングパターンで等間隔の 60 mil (1.5 mm) 径の穴のパターンに切り出した。Summa カッターは、6 インチ / 秒 (15 cm / 秒)、60 g
K のナイフ圧で切断し、58.5% の開放面積を有する最終的な 100 ミクロン HDPE 有孔フィルムを生成した。

20

【0232】

Carver Laboratory Press Model M、シリアルナンバ
ー 20506-106 (ウィスコンシン州 Menomonee Falls の Sterling INC 社の関連会社である Fred S. Carver Inc, 社) を使用して、有孔フィルムを GDL 35AA に熱結合した。カーブプレスの底部圧盤は 150
まで加熱したが、上部圧盤は加熱せず、結合時に 110 の温度であった。底部圧盤上に、8 インチ (20 cm) × 8 インチ (20 cm) × 0.85 mm 厚の研磨した鋼板を設置した。その上に、5 インチ (13 cm) × 5 インチ (13 cm) 片の GDL 35AA
紙を、その次に 3 インチ (7.6 cm) × 4 インチ (10 cm) 片の 100 ミクロン HDPE 有孔フィルムを設置した。有孔フィルムの頂部は、別の 8 インチ (20 cm) × 8
インチ (20 cm) × 0.85 mm 厚の研磨した鋼板であった。この積層体を 1500 ポンド (680 kg) で 1.5 分間、カーブプレスで圧縮した。炭素紙及び有孔 HDPE
フィルムを伴う研磨した鋼板を取り外し、2 分間冷却されるようにした。次いで、スチールシートを開き、GDL 35AA 紙上に、埋め込まれた 100 ミクロンの HDPE 有孔
フィルムを得て、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例 3 を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡 (SEM) 手順によって識別した。その結果
得られた実施例 3 の電極アセンブリの断面 SEM 画像が図 8 に示される。

30

【0233】**実施例 4 埋め込まれたポリプロピレン不織布 11 gsm (グラム / 平方メートル)**

ドリルドオリフィスダイを用いて不織布ウェブを形成した。メルトブローン繊維が、ダイに入る溶融ポリマー、ダイの空洞内のダイの幅にわたって配分された流れ、及びフィラメントとしての一連のオリフィスを介してダイを出るポリマーによって作り出された。加熱された気流は、エアマニホールド、及びダイ出口 (先端) を形成する一連のポリマーオリフィスと隣接しているエアナイフアセンブリを通過した。この加熱された気流を、温度と速度の両方を調節することで、ポリマーフィラメントを所望の繊維径まで細くした (引き締めた)。メルトブローン繊維を、この乱れた気流において、回転している表面に向かって運び、そこでメルトブローン繊維を集積してウェブを形成した。

40

【0234】

50

概ね10インチ(25.4cm)幅の不織布ウェブのロールを次の条件下で集積した：MF-650Xポリプロピレンポリマー(オランダ国ロッテルダムのLyondellBasell社で製造され、テキサス州ウッドランドのNexeo Solutions社を通じて入手可能)を、10lb/hr(4.5kg/hr)で、10インチ(25.4cm)幅のドリルドオリフィスダイ(DOD)を通して押出し成形した。ポリマー溶融温度は357°F(181)であった。ダイからコレクターまでの距離は14インチ(35.6cm)であった。ウェブのサンプルを、68g/m²スパンボンドスクリムであるUnipro200(オハイオ州シンシナティのMidwest Filtration LLC社から入手可能)上で、85ft/min(25.9m/min)で集積し、メルトブローンウェブをスクリムから分離して、Davies, C.N, 「The Separation of Airborne Dust and Particles」Institution of Mechanical Engineers, London Proceedings 1B, 1952に記載された方法に従って、有効繊維径(EFD)を評価した。空気の温度及び速度を調整して、有効繊維径29マイクロメートルを得た。ウェブの基本重量は、11グラム/平方メートル(gsm)であった。

10

【0235】

Carver Laboratory Press Model M、シリアルナンバー20506-106(ウィスコンシン州Menomonee FallsのSterling INC社の関連会社であるFred S. Carver Inc,社)を使用して、ポリプロピレン不織布を、SGL Sigracet GDL 35AA(独国のSGL Carbon GmbH社)に熱結合した。カーブプレスの底部圧盤は140まで加熱して、上部圧盤は加熱せず、結合時に90の温度であった。底部圧盤上に、8インチ(20cm)×8インチ(20cm)×0.85mm厚の研磨した鋼板を設置した。その上に、4インチ(10cm)×4インチ(10cm)片のGDL 35AA紙を設置し、その次に3インチ(7.6cm)×3.75インチ(9.5cm)片の11gsmのポリプロピレン不織布を設置した。有孔フィルムの頂部は、別の8インチ(20cm)×8インチ(20cm)×0.85mm厚の研磨した鋼板であった。この積層体を1500ポンド(680kg)で30秒間、カーブプレスで圧縮した。間に炭素紙及びポリプロピレン不織布を伴う研磨された鋼板を、プレスから取り外した。次いで、スチールシートを開き、GDL 35AA紙上に、埋め込まれた11gsmのポリプロピレン不織布を得て、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例4を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡(SEM)手順によって識別した。その結果得られた実施例4の電極アセンブリの断面SEM画像が図9に示される。

20

30

【0236】

実施例5 埋め込まれたポリプロピレン不織布24gsm(グラム/平方メートル)

ドリルドオリフィスダイを用いて不織布ウェブを形成した。メルトブローン繊維は、ダイに入る溶融ポリマーと、ダイの空洞内のダイの幅にわたって配分された流れ、フィラメントとしての一連のオリフィスを介してダイを出るポリマーとによって作り出された。加熱された気流は、エアマニホールド、及びダイ出口(先端)を形成する一連のポリマーオリフィスと隣接しているエアナイフアセンブリを通過した。この加熱された気流を、温度と速度の両方を調節することで、ポリマーフィラメントを所望の繊維径まで細くした(引き締めた)。メルトブローン繊維を、この乱れた気流において、回転している表面に向かって運び、そこでメルトブローン繊維を集積してウェブを形成した。

40

【0237】

概ね10インチ(25.4cm)幅の不織布ウェブのロールを次の条件下で集積した：MF-650Xポリプロピレンポリマー(LyondellBasell社で製造され、Nexeo Solutions社を通じて少量単位で入手可能)を、10lb/hr(4.5kg/hr)で、10インチ(25.4cm)幅の(上述した)ドリルドオリフィスダイ(DOD)を通して押出し成形した。ポリマー溶融温度は366°F(185)であった。ダイからコレクターまでの距離は14インチ(35.6cm)であった。ウェブ

50

ブのサンプルを、42 g/m² スパンボンドスクリムである Unipro 125 (オハイオ州シンシナティの Midwest Filtration LLC 社から入手可能) 上で、40.5 ft/min (12.3 m/min) で集積し、メルトブローンウェブをスクリムから分離して、Davies, C. N., 「The Separation of Airborne Dust and particles」 Institution of Mechanical Engineers, London Proceedings 1 B, 1952 に記載された方法に従って、有効繊維径 (EFD) を評価した。空気の温度及び速度を調整して、有効繊維直径 2.1 ミクロンを得た。ウェブの基本重量は、24 グラム/平方メートル (gsm) であった。

【0238】

この 24 gsm の不織布を、実施例 4 で説明したのと同じ手順を用いて GDL 35 A A 上に結合し、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例 5 を形成した。不織布及び GDL 35 A A 紙で一体構造を形成し、重力又はセル抵抗及びセル抵抗試験のための個片化の間に分離されなかった。

【0239】

実施例 6 埋め込まれた 9.1 mil の線径のポリプロピレン織布メッシュ

0.0091 インチ (0.23 mm) の線径、41% の開放面積、43 × 43 のメッシュサイズのポリプロピレン織布メッシュを、部品番号 9275T39 で McMaster Carr 社 (イリノイ州 Elmhurst) から入手した。このポリプロピレン織布をアルミニウムパンに設置して、第 2 のアルミニウムパンで覆い、次に Blue Electric 146 Series の Class A バッチオープン中で、100 で 15 分間アニールした。Carver Laboratory Press Model M、シリアルナンバー 20506-106 (ウィスコンシン州 Menomonee Falls の Sterling INC 社の関連会社である Fred S. Carver Inc, 社) を使用して、ポリプロピレン織布メッシュを GDL 35 A A に熱結合させた。カーブプレスの底部圧盤は 173 まで加熱して、上部圧盤は加熱せず、結合時に 35 の温度であった。底部を加熱した圧盤上に、8 インチ (20 cm) × 8 インチ (20 cm) × 0.85 mm 厚の研磨した鋼板を設置した。その上に、5 インチ (13 cm) × 5 インチ (13 cm) 片の GDL 35 A A 紙を設置して、その次に 3 インチ (7.6 cm) × 4 インチ (10 cm) 片のアニールしたポリプロピレン織布メッシュを設置した。アニールした織布メッシュの頂部は、別の 8 インチ (20 cm) × 8 インチ (20 cm) × 0.85 mm 厚の研磨した鋼板であった。この積層体を 1500 ポンド (680 kg) で 1.5 分間、カーブプレスで圧縮した。間に炭素紙及びポリプロピレン織布メッシュを伴う、研磨した鋼板を取り外し、2 分間冷却されるようにした。次いで、鋼板を開き、GDL 35 A A 紙上に、埋め込まれたポリプロピレン織布を得て、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例 6 を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡 (SEM) 手順によって識別した。その結果得られた実施例 6 の電極アセンブリの断面 SEM 画像が図 10 に示される。

【0240】

実施例 7 埋め込まれた 4.3 mil の線径のポリプロピレン織布メッシュ。

4.3 mil (0.11 mm) の線径、8.0 mil (0.20 mm) の厚さ、34% の開放面積、98 × 98 のメッシュサイズのポリプロピレン織布メッシュを、部品番号 9275T27 で McMaster Carr 社 (イリノイ州 Elmhurst) から入手した。ポリプロピレン織布を、Weller WSD81 Solder Iron を使用して、750 °F に設定して、GDL 35 A A のポイントに結合した。ハンダの小手先をポリプロピレン織布に押し下げて、約 1 cm の平均離隔で間隔が開いている箇所を GDL 35 A A に結合し、不連続輸送保護層を有する電極アセンブリである実施例 7 を形成した。界面領域は、上記で列挙した走査型電子顕微鏡 (SEM) 手順によって識別した。その結果得られた実施例 7 の電極アセンブリの断面 SEM 画像が図 11 に示される。

【0241】

10

20

30

40

50

サブガasket化した膜の調製

一方のライナーを取り外した3M 8171の光学的に透明な接着剤(ミネソタ州セントポールの3M社から入手可能)を、ハンドローラを用いてTEONEX Q83 PEN Film(バージニア州チェスターのDupont Teijin Films社から入手可能)に積層した。Mathias Die Company社(ミネソタ州セントポール)のハンドダイを使用して、この積層体から2つの片をダイカットした。ダイは、3インチ(7.6cm)×3インチ(7.6cm)平方の外形寸法で切断し、2.7cm×2.7cmの内側平方を取り外した。第2のライナーを取り外した、8171接着剤/TEONEX Q83 PENフィルムの1片を、ハンドローラを用いて、20ミクロンの3M 825EW Supported PFSA Membraneに積層した。3M 825EW Supported PFSA Membrane/8171/TEONEX Q83 PENフィルム積層体を、各側3インチ(7.6cm)の外側平方寸法にトリミングした。ライナーを取り外した、第2の8171接着剤/TEONEX Q83 PENフィルム(上記で、3インチ(7.6cm)×3インチ(7.6cm)平方の外形寸法、及び2.7cm×2.7cmの内側平方の開口部にダイカットした)を、ハンドローラを用いて位置合せした3M 825EW Supported PFSA Membrane/8171/TEONEX Q83 PENフィルム積層体に積層して、TEONEX Q83 PENフィルム/8171/3M 825EW Supported PFSA Membrane/8171/TEONEX Q83 PENフィルムで構成された、サブガasket化した膜を得た。

10

20

【0242】

実施例8 周辺部の接着剤を伴う、埋め込まれたポリプロピレン不織布24gsm(グラム/平方メートル)を含有する膜電極アセンブリ

Mathias Die Company社(ミネソタ州セントポール)のハンドダイを使用して、次の材料を以下のレイアップで切断した。ダイは、位置合せピンとして2つの小さい穴を含み、それらは作用面積外で、一方は他方から反対側にあった。位置合せ穴を使用して、PTFEガラス繊維複合ガasketと、Infiana100ミクロンLDPEと、サブガasket化した膜とを位置合せした。電極及び輸送保護材料を、サブガasket化した膜及びInfiana100ミクロンLDPEの中央の切り出し窓に位置合せした。以下のレイアップを用意した。

30

- ・位置合せピンを伴う、6インチ(15.2cm)×6インチ(15.2cm)×1/8インチ(0.32cm)鋼板。

- ・位置合せピンを伴う、4インチ(10.2cm)×4インチ(10.2cm)のポリイミドシート2mil(0.051mm)であるDuPont Kapton HN(オハイオ州サークルビルのDuPont High Performance Films社で入手可能)。

- ・1片の8.2mil(0.21mm)PTFEガラス繊維複合ガasket材料(ミネソタ州アーデンヒルのNott Company社から入手可能)(外形寸法3インチ(7.6cm)平方、内側寸法2.7cm×2.7cm)。

- ・サブガasket化した膜の切り出し中央に、不織布を膜に向けて設置した、GDL 35AA内に埋め込まれた1片のポリプロピレン不織布24gsm(実施例5で説明)2.7cm×2.7cm。

40

- ・1片のInfiana100ミクロンLDPE(外形寸法3インチ(7.6cm)平方、内側開口部2.25cm×2.25cm)。

- ・1つのガasket化した膜。

- ・1片のInfiana100ミクロンLDPE(外形寸法3インチ平方、内側開口部2.25cm×2.25cm)。

- ・ガasketの切り出し中央に、不織布を膜に向けて設置した、(実施例5で説明した)GDL 35AA内に埋め込まれた1片のポリプロピレン不織布24gsmの2.7cm×2.7cm。

50

・ 1 片の 8 . 2 m i l (0 . 2 1 m m) P T F E ガラス繊維複合ガスケット材料 (ミネソタ州アーデンヒルの N o t t C o m p a n y 社から入手可能) (外形寸法 3 インチ平方 (7 . 6 c m) 、内側寸法 2 . 7 c m × 2 . 7 c m) 。

・ 位置合せ穴を伴う、4 インチ (1 0 . 2 c m) × 4 インチ (1 0 . 2 c m) × 2 . 0 m i l (0 . 0 5 1 m m) のポリイミドシート。

・ 位置合せピンを伴う、6 インチ (1 5 . 2 c m) × 6 インチ (1 5 . 2 c m) × 1 / 8 インチ (0 . 3 2 c m) 鋼板。

【 0 2 4 3 】

このレイアップを、240 ° F (1 1 6) でカーブプレス M o d e l 2 5 1 8 (インディアナ州 W a b a s h の F r e d S . C a r v e r I n c , 社から入手可能) に設置した。このレイアップを、1500 l b (6 8 0 k g) 下で設置し、5 分間の放置時間の間に 6 0 0 l b (2 7 2 k g) に減少させた。5 分後にサンプルを取り外し、2 枚の 1 2 インチ (3 0 . 5 c m) × 1 8 インチ (4 5 . 7 c m) × 1 インチ (2 . 5 c m) の金属シート間に設置して、室温で 2 分間冷却した。スチールプレートを冷却した後、ポリイミド、P T F E ガラス繊維複合ガスケット材料を、レイアップの各辺から取り外した。これにより、周辺部接着剤を伴う埋め込まれたポリプロピレン不織布 2 4 g s m (グラム / 平方メートル) を含有する、一体構造としての膜電極アセンブリが得られた。

10

【 0 2 4 4 】

サンプルをセル内に設置し、試験セルを次のように組み立てた以外は、上述した電気化学セル試験手順で説明したように試験した。周辺部接着剤を伴う埋め込まれたポリプロピレン不織布 2 4 g s m (グラム / 平方メートル) を含有する膜電極アセンブリを、黒鉛バイポーラプレート上に設置した。次に、試験用セルを、集電体を有する 2 つのアルミニウム製エンドプレート間に設置し、一連の 8 個のボルトを 1 1 0 l b f · i n (1 2 . 4 N · m) で締めて固定した。

20

【 0 2 4 5 】

実施例 9 周辺部接着剤を伴う埋め込まれたリニアポリプロピレンストランドを含有する膜電極アセンブリ

ここで、実施例 8 で説明したものと同一レイアップを、次のように変更して使用した：実施例 1 で説明した、埋め込まれたリニアポリプロピレンストランドのサンプルを、2 . 7 c m × 2 . 7 c m にダイカットして、G D L 3 5 A A に埋め込まれた 2 . 7 c m × 2 . 7 c m のポリプロピレン不織布 2 4 g s m と交換した。G D L 3 5 A A に埋め込まれたリニアポリプロピレンストランドを膜に向けて、膜の両側上のレイアップに設置した。

30

【 0 2 4 6 】

このレイアップを、240 ° F (1 1 6) でカーブプレス M o d e l 2 5 1 8 (インディアナ州 W a b a s h の F r e d S . C a r v e r I n c , 社から入手可能) に設置した。このレイアップを、1500 l b (6 8 0 N) 下で設置し、5 分間の放置時間の間に 6 0 0 l b (2 7 2 k g) に減少させた。5 分後にサンプルを取り除き、2 枚の 1 2 インチ (3 0 . 5 c m) × 1 8 インチ (4 5 . 7 c m) × 1 インチ (2 . 5 c m) の金属シート間に設置して、室温で 2 分間冷却した。スチールプレートを冷却した後、ポリイミドと、P T F E ガラス繊維複合ガスケット材料とを、レイアップの各辺から取り外した。これにより、周辺部接着剤を伴う埋め込まれたリニアポリプロピレンストランドを含有する、一体構造としての膜電極アセンブリが得られた。

40

【 0 2 4 7 】

比較例 A (C E - A)

C E - A は、不連続輸送保護層を有さない G D L 3 5 A A であった。

【 0 2 4 8 】

比較例 B (C E - B)

C E - B は、不連続輸送保護層を有さない単層 G D L 3 5 A A であった。電気化学セルの試験手順を、次の変更を伴って用いた：セルアセンブリにおいて、1 . 9 m i l (0 . 0 4 8 m m) 及び 5 . 2 m i l (0 . 1 3 2 m m) (合計厚さ 7 . 1 m i l (0 . 1 8

50

0 mm)) 厚さの P T F E ガラス繊維複合ガスケット材料 (ミネソタ州アーデンヒルの N o t t C o m p a n y 社から入手可能) の 1 片を、膜の各側に使用した。G D L 3 5 A A の単層を膜の各側に使用した。手順の残りは同じままで、表 1 のセル抵抗結果を得た。

【 0 2 4 9 】

セル抵抗結果

実施例 1 ~ 5、7、及び 8 の電極アセンブリを使用して、上述した電気化学セル手順毎に液体フロー電気化学セルを作製した (実施例 8 及び比較例 B を除く)。実施例 1 ~ 5、7、及び C E - A には、50 ミクロンの 3 M 8 2 5 E W u n s u p p o r t e d P F S A m e m b r a n e を使用した。実施例 8 及び C E - B には、20 ミクロンの 3 M 8 2 5 E W S u p p o r t e d P F S A M e m b r a n e を使用した。C E - B 及び実施例 8 には膜の側毎に 1 つの G D L 3 5 A A を使用し、一方で実施例 1 ~ 5、7、及び C E - A には膜の側毎に 2 つの G D L 3 5 A A を使用した。セル抵抗を、それらの同じ手順において略述したように測定して、以下の表 1 に示す。実施例 1 について、リニアストランドを、蛇行流れ場に対して垂直に方向付け、ストランドを膜に向けた。

10

【表 2】

表 1 セル抵抗結果

サンプル	全セル抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}^2$)
CE-A	0.679
CE-B	1.695
実施例 1	1.335
実施例 2	1.212
実施例 3	2.2425
実施例 4	0.898
実施例 5	0.754
実施例 7	0.898
実施例 8	2.000

20

30

【 0 2 5 0 】

実施例及び比較例のサンプルの厚さ、ガスケット、圧縮、及び短絡抵抗を、以下の表 2 に列挙する。実施例 1 について、リニアストランドを、蛇行流れ場に対して垂直に方向付け、ストランドを膜に向けた。A p 値は、試験方法で説明したように決定し、表 2 に列挙した。

【表 3】

表 2 : 短絡抵抗結果

サンプル	A _p	測定厚さmil(mm)	ガスケット厚さmil(mm)	圧縮(%)	短絡抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}^2$)
CE-A	—	9.8(0.249)	6.3(0.160)	35	129
実施例 1	0.176Ae	11.4(0.290)	8.1(0.206)	29	>50,000
実施例 2	0.419Ae	11.4(0.290)	8.1(0.206)	29	>50,000
実施例 3	0.416Ae	12.3(0.312)	9.2(0.234)	25	>50,000
実施例 4	0.041Ae	9.8(0.249)	7.2(0.183)	27	>50,000
実施例 5	0.043Ae	10.8(0.247)	8.2(0.208)	24	>50,000
実施例 7	0.66Ae	16.9(0.429)	12.4(0.315)	27	>50,000

40

50

【 図 1 A 】

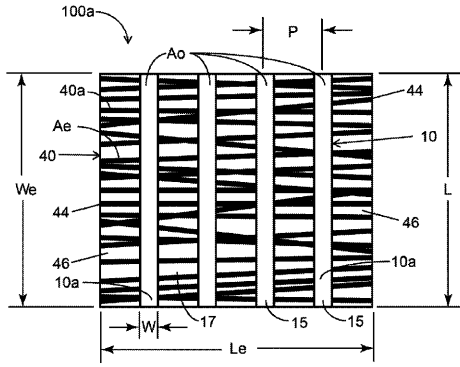


Fig. 1A

【 図 1 C 】

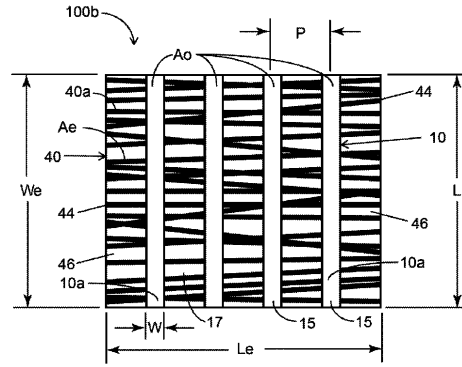


Fig. 1C

【 図 1 B 】

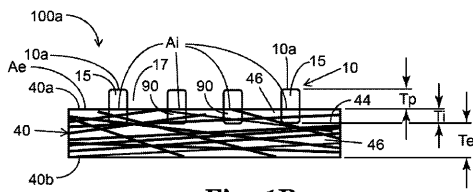


Fig. 1B

【 図 1 D 】

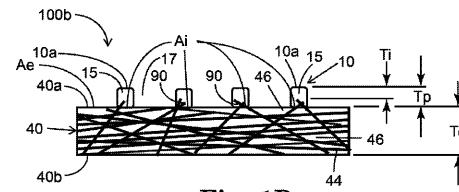


Fig. 1D

【 図 1 E 】

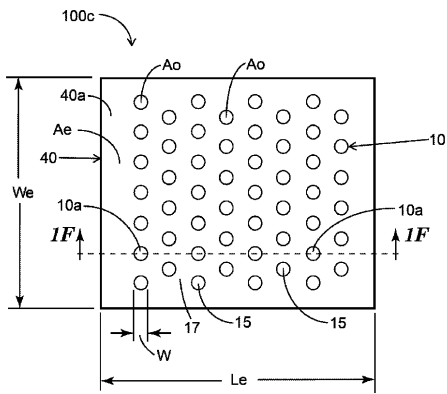


Fig. 1E

【 図 1 G 】

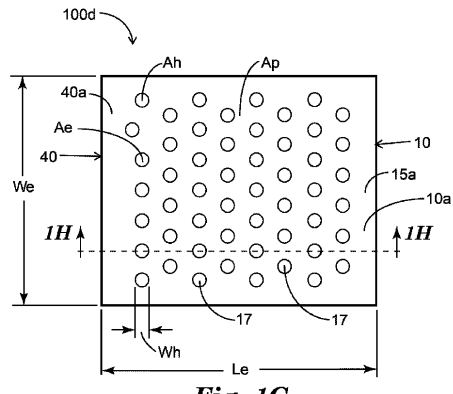


Fig. 1G

【 図 1 F 】

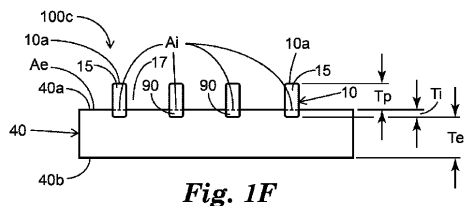


Fig. 1F

【 図 1 H 】

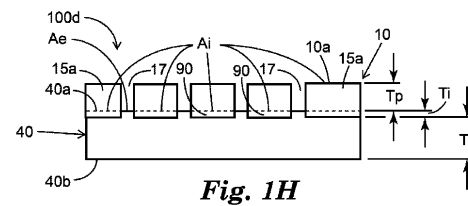


Fig. 1H

【 図 1 I 】

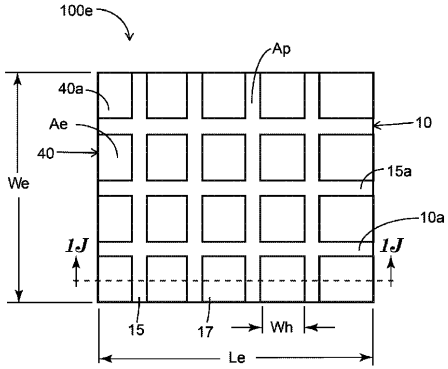


Fig. 1I

【 図 1 K 】

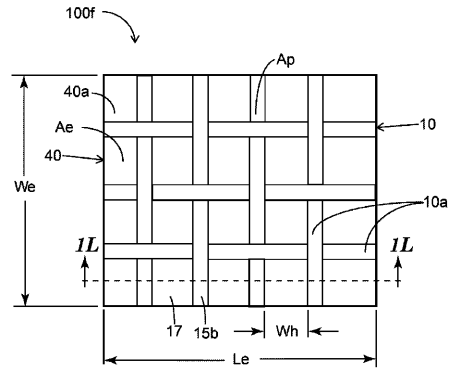


Fig. 1K

【 図 1 J 】

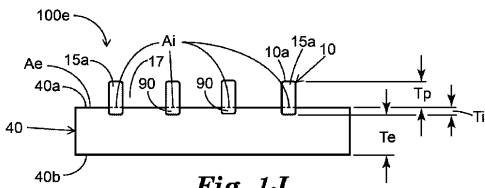


Fig. 1J

【 図 1 L 】

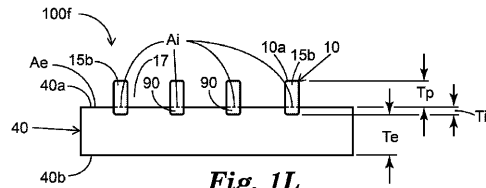


Fig. 1L

【 図 1 M 】

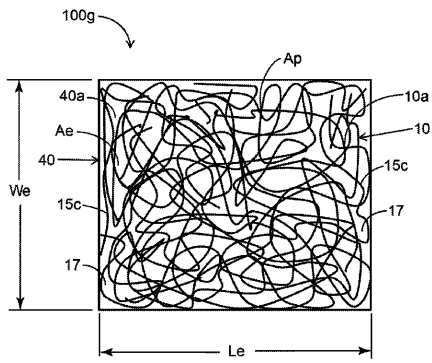


Fig. 1M

【 図 2 A 】

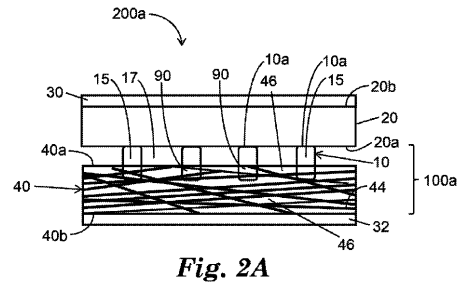


Fig. 2A

【 図 1 N 】

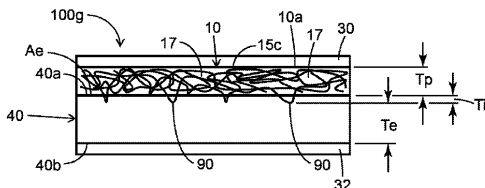


Fig. 1N

【 図 2 B 】

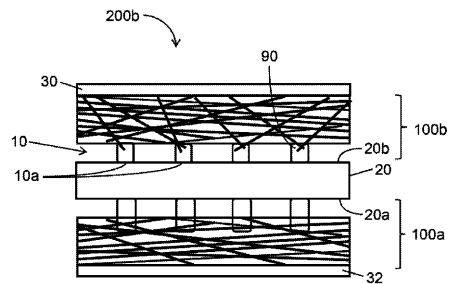


Fig. 2B

【 図 3 】

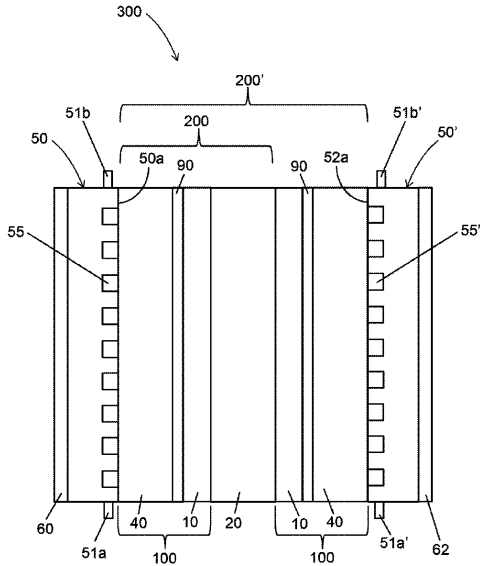


Fig. 3

【 図 4 】

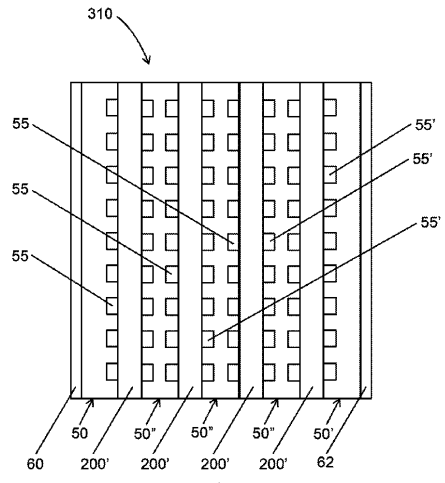


Fig. 4

【 図 5 】

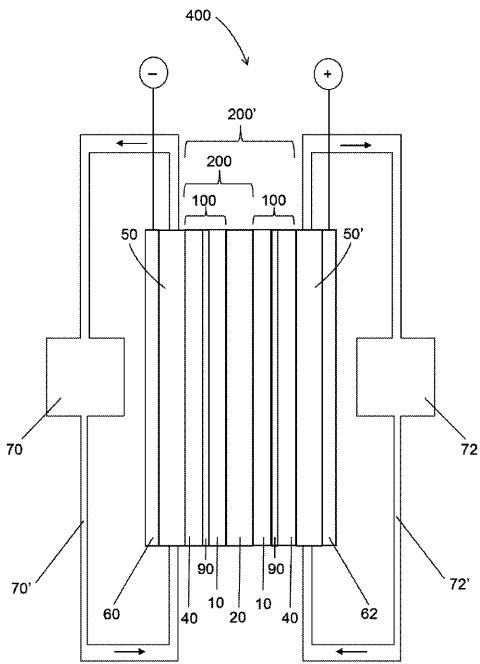


Fig. 5

【 図 6 】

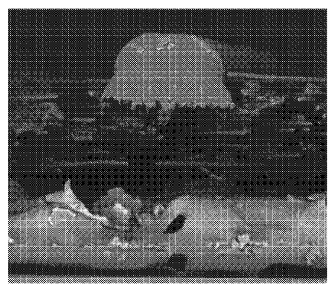


Fig. 6

【 図 7 】

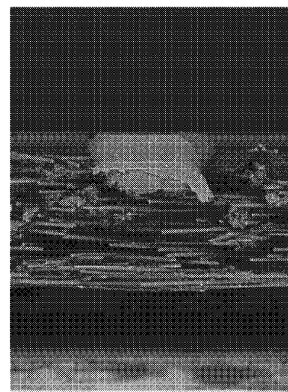


Fig. 7

【 図 8 】

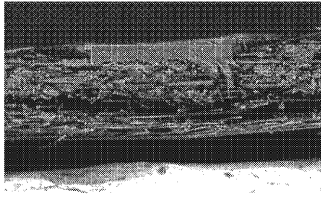


Fig. 8 1mm

【 図 9 】

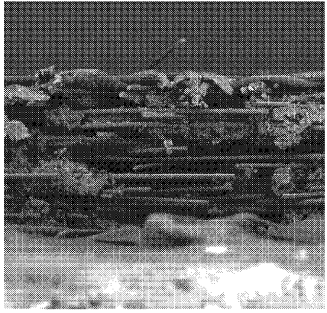


Fig. 9 300 μm

【 図 10 】

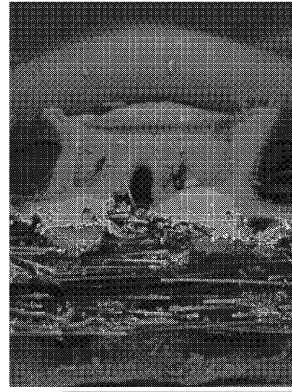


Fig. 10 500 μm

【 図 11 】

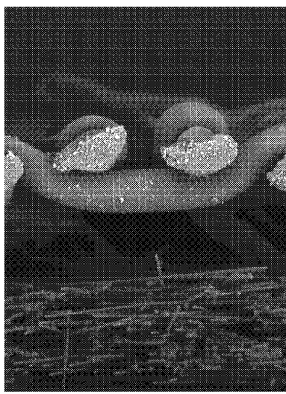


Fig. 11 500 μm

【 図 12 B 】

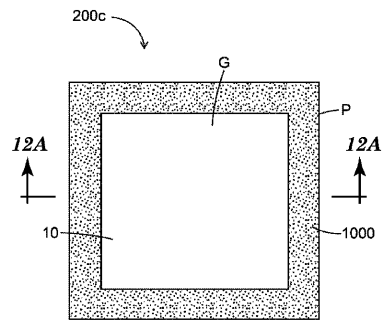


Fig. 12B

【 図 12 A 】

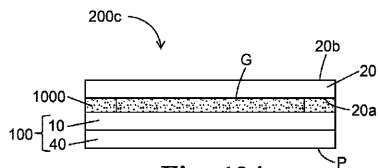


Fig. 12A

【 図 12 C 】

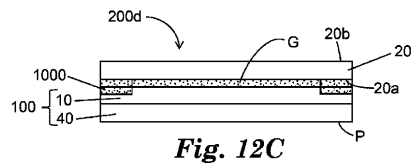


Fig. 12C

【 図 12 D 】

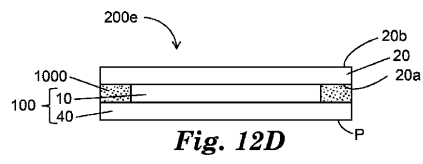


Fig. 12D

【 図 1 2 E 】

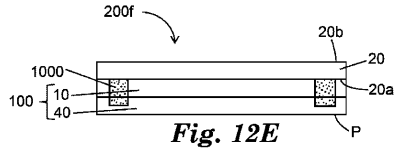


Fig. 12E

【 図 1 2 F 】

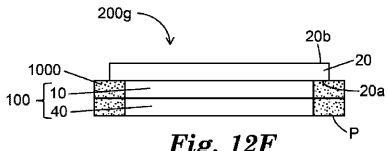


Fig. 12F

【 図 1 2 G 】

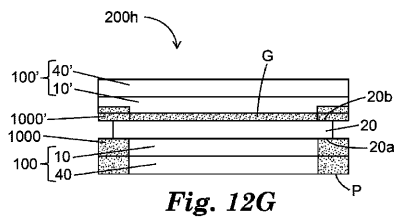


Fig. 12G

【 図 1 3 B 】

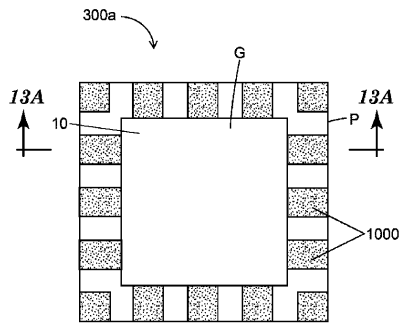


Fig. 13B

【 図 1 3 C 】

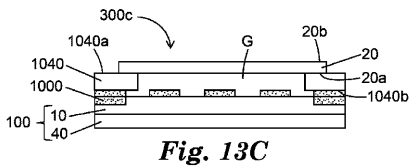


Fig. 13C

【 図 1 3 D 】

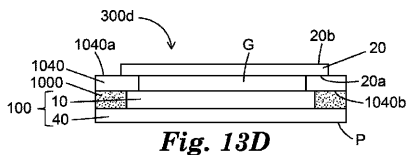


Fig. 13D

【 図 1 2 H 】

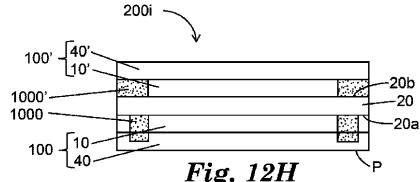


Fig. 12H

【 図 1 3 A 】

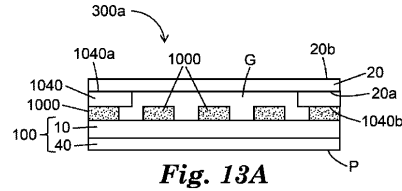


Fig. 13A

【 図 1 3 E 】

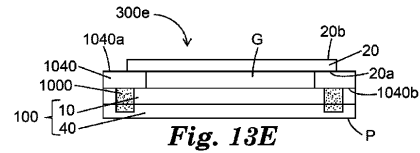


Fig. 13E

【 図 1 3 F 】

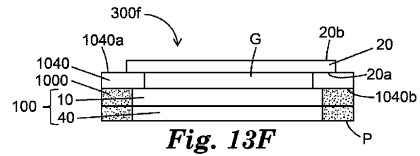


Fig. 13F

【 図 1 3 G 】

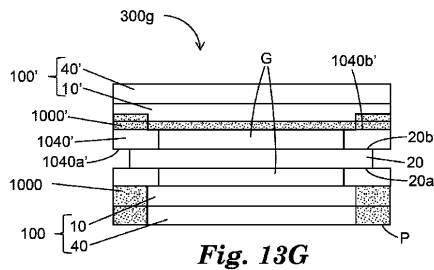
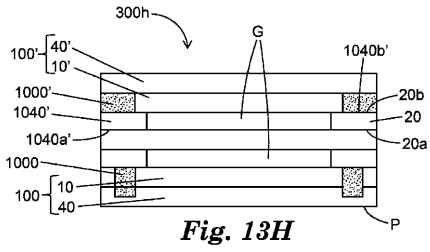
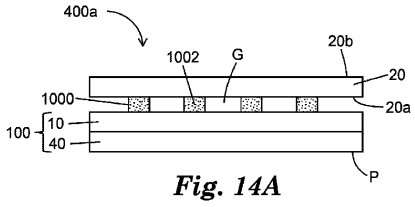


Fig. 13G

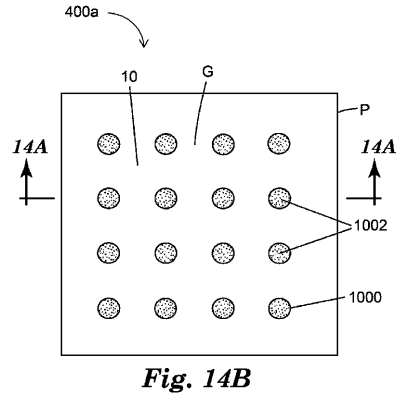
【 図 1 3 H 】



【 図 1 4 A 】



【 図 1 4 B 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/US2017/022492

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. H01M8/1004 H01M8/18 H01M4/86 H01M4/96 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2015/311541 A1 (LLOYD RALPH BIRCHARD [US] ET AL) 29 October 2015 (2015-10-29) paragraphs [0088] - [0092], [0112] -----	1-10, 16-32, 34-57
X	US 2010/098991 A1 (SUZUKI TOSHIYASU [JP] ET AL) 22 April 2010 (2010-04-22) claims 1-18 -----	1-10, 16-32, 34-55
X	US 3 343 990 A (GIDDY CHARLES S) 26 September 1967 (1967-09-26) column 1, line 59 - column 2, line 65 column 4, line 38 - line 49 figures 3,4 ----- -/--	1-16, 19-25, 31-55
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 29 May 2017		Date of mailing of the international search report 06/06/2017
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Götz, Heide

2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2017/022492

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2012/077067 A1 (LI LIYU [US] ET AL) 29 March 2012 (2012-03-29) the whole document -----	1-57

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2017/022492

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2015311541 A1	29-10-2015	CN 105009341 A	28-10-2015
		EP 2932550 A1	21-10-2015
		JP 2016501438 A	18-01-2016
		US 2015311541 A1	29-10-2015
		WO 2014099874 A1	26-06-2014

US 2010098991 A1	22-04-2010	EP 2124276 A1	25-11-2009
		KR 20090091794 A	28-08-2009
		TW 200843169 A	01-11-2008
		US 2010098991 A1	22-04-2010
		WO 2008105337 A1	04-09-2008

US 3343990 A	26-09-1967	BE 642004 A	30-06-1964
		GB 1061059 A	08-03-1967
		NL 302791 A	29-05-2017
		US 3343990 A	26-09-1967

US 2012077067 A1	29-03-2012	CA 2812932 A1	12-04-2012
		CN 103140978 A	05-06-2013
		EP 2622674 A1	07-08-2013
		KR 20130122625 A	07-11-2013
		US 2012077067 A1	29-03-2012
		WO 2012047319 A1	12-04-2012

フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ

- (72) 発明者 ウェバー, ブライアン ティー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 パートリング, ブランドン エー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 ヨルデム, オヌル エス.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 ジョンストン, レイモンド ピー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 ハウグ, アンドリュー ティー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 アブル, ジョン イー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 ホーゲン, グレゴリー エム.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 野田 一樹
東京都品川区北品川6丁目7-29
- (72) 発明者 鈴木 俊介
東京都品川区北品川6丁目7-29
- (72) 発明者 リー, ジミー エム.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 グリフィス, ブレイク アール.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 ジョンソン, ダニエル イー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 アチャリヤ, パーラット アール.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72) 発明者 イートン, ブラッドリー ダブリュー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター

- (72)発明者 ロマーノ, マイケル ディー.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72)発明者 ピアポント, ダニエル エム.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72)発明者 ミラー, デイビッド ジェイ.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター
- (72)発明者 アイバーソン, エリック ジェイ.
アメリカ合衆国, ミネソタ州, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7
, スリーエム センター

F ターム(参考) 5H018 AA08 AS07 BB01 BB08 DD06 EE05 EE06 EE17 HH02 HH03
HH04 HH05 HH08
5H126 BB08