

(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2009-505352
(P2009-505352A)

(43) 公表日 平成21年2月5日(2009.2.5)

(51) Int.Cl.	F I			テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M	8/02	B	5 H 0 2 6
HO 1 M 8/00 (2006.01)	HO 1 M	8/00	Z	
HO 1 M 8/10 (2006.01)	HO 1 M	8/10		

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 20 頁)

(21) 出願番号 特願2008-526131 (P2008-526131)
 (86) (22) 出願日 平成18年8月8日 (2006.8.8)
 (85) 翻訳文提出日 平成20年3月18日 (2008.3.18)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2006/030866
 (87) 国際公開番号 W02007/021679
 (87) 国際公開日 平成19年2月22日 (2007.2.22)
 (31) 優先権主張番号 60/707,691
 (32) 優先日 平成17年8月12日 (2005.8.12)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

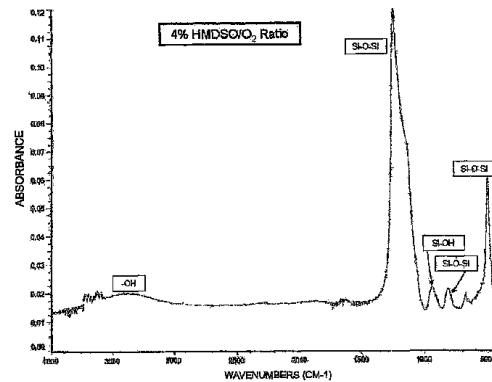
(71) 出願人 505212049
 ジーエム・グローバル・テクノロジー・オペレーションズ・インコーポレーテッド
 アメリカ合衆国ミシガン州48265-3000, デトロイト, ルネッサンス・センター 300
 (74) 代理人 100089705
 弁理士 社本 一夫
 (74) 代理人 100140109
 弁理士 小野 新次郎
 (74) 代理人 100075270
 弁理士 小林 泰
 (74) 代理人 100080137
 弁理士 千葉 昭男

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池バイポーラプレートのための親水性被覆、及びその製造方法

(57) 【要約】

開示されている一態様は、基材、及び基材上にある第1の被覆を含み、該被覆が、少なくとも一つのSi-O基、少なくとも一つの極性基、及び飽和又は不飽和の炭素鎖を有する少なくとも一つの基を含む、燃料電池部品を含む製品を含む。



FTIR Spectrum of Hydrophilic Coating with Low Precursor-to-Carrier Gas Flow Ratio

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基材、及び基材上に配置されている第 1 の被覆を含む燃料電池部品であり、該被覆が、少なくとも一つの Si - O 基、少なくとも一つの極性基、及び飽和又は不飽和の炭素鎖を有する少なくとも一つの基を含む化合物を含む燃料電池部品を含む製品。

【請求項 2】

極性基が、ヒドロキシル、ハライド、カルボキシル、ケトン、又はアルデヒド官能基を含む、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 3】

炭素鎖が 1 ~ 4 個の炭素原子を有する、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 4】

被覆が導電性材料を更に含む、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 5】

導電性材料が、Au、Ag、Ru、Rh、Pd、Re、Os、Ir、Pt、希土類金属、これらの合金、ポリマー炭素又はグラファイトの少なくとも一つを含む、請求項 4 に記載の製品。

【請求項 6】

該部品がバイポーラプレートを含む、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 7】

基材が金属を含む、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 8】

基材がポリマー複合材料を含む、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 9】

導電性材料を含む第 2 の被覆を更に含み、第 2 の被覆が基材上に配置され、第 1 の被覆が第 2 の被覆上に配置されている、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 10】

炭素鎖が、線状、分岐鎖、又は環式である、請求項 1 に記載の製品。

【請求項 11】

基材、及び基材上に配置されている第 1 の被覆を含む燃料電池部品であり、該被覆が、少なくとも一つの Si - O 基及び Si - R 基（ここで、R は飽和又は不飽和の炭素鎖を含む）を含む化合物を含み、Si - O 基に対する Si - R 基のモル比が $1/8 \sim 1/2$ の範囲である燃料電池部品を含む製品。

【請求項 12】

炭素鎖が 1 ~ 4 個の炭素原子を有する、請求項 11 に記載の製品。

【請求項 13】

第 1 の被覆が、被覆の親水性を向上させる極性基を更に含む、請求項 11 に記載の製品。

【請求項 14】

極性基が、ヒドロキシル、ハライド、カルボキシル、ケトン、又はアルデヒド官能基を含む、請求項 13 に記載の製品。

【請求項 15】

被覆が導電性材料を更に含む、請求項 11 に記載の製品。

【請求項 16】

導電性材料が、Au、Ag、Ru、Rh、Pd、Re、Os、Ir、Pt、希土類金属、これらの合金、ポリマー炭素又はグラファイトの少なくとも一つを含む、請求項 15 に記載の製品。

【請求項 17】

該部品がバイポーラプレートを含む、請求項 11 に記載の製品。

【請求項 18】

10

20

30

40

50

基材が金属を含む、請求項 1 1 に記載の製品。

【請求項 1 9】

基材がポリマー複合材料を含む、請求項 1 1 に記載の製品。

【請求項 2 0】

導電性材料を含む第 2 の被覆を更に含み、第 2 の被覆が基材上に配置されており、第 1 の被覆が第 2 の被覆上に配置されている、請求項 1 1 に記載の製品。

【請求項 2 1】

炭素鎖が、線状、分岐鎖、又は環式である、請求項 1 1 に記載の製品。

【請求項 2 2】

シロキサンを含む前駆体ガスを含み、更に第 2 のガスを含むプラズマ補助化学堆積法を用いて、燃料電池部品上に被覆を堆積させることを含む方法によって得られる製品。 10

【請求項 2 3】

シロキサンの式： R_2SiO を有する、請求項 2 2 に記載の製品。

【請求項 2 4】

R がアルキル基である、請求項 2 4 に記載の製品。

【請求項 2 5】

R が、線状、分岐鎖、又は環式の炭素鎖である、請求項 2 2 に記載の製品。

【請求項 2 6】

R が飽和又は不飽和の炭素鎖である、請求項 2 2 に記載の製品。

【請求項 2 7】

R が飽和又は不飽和の炭素鎖である、請求項 2 2 に記載の製品。 20

【請求項 2 8】

シロキサンがヘキサメチルシロキサンを含む、請求項 2 2 に記載の製品。

【請求項 2 9】

第 2 のガスが酸素を含む、請求項 2 2 に記載の製品。

【請求項 2 9】

被覆が化合物を含み、該方法が、被覆を処理して該化合物に極性基を付加することを更に含む、請求項 2 2 に記載の製品。

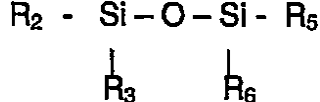
【請求項 3 0】

該処理が、該被覆を酸素を含むプラズマに曝露することを含む、請求項 2 9 に記載の製品。 30

【請求項 3 1】

式：

【化 1】



(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、それぞれ、H、O、Cl、又は飽和若しくは不飽和の炭素鎖であってよく、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、同一であっても異なってもよい) 40

を有する材料を含む前駆体ガスを含み、更に第 2 のガスを含むプラズマ補助化学堆積法を用いて、燃料電池部品上に被覆を堆積させることを含む方法によって得られる製品。

【請求項 3 2】

炭素鎖が 1 ~ 4 個の炭素原子を有する、請求項 3 1 に記載の製品。

【請求項 3 3】

該方法が、被覆を処理して極性基を付加することを更に含む、請求項 3 1 に記載の製品。

【請求項 3 4】

極性基が、ヒドロキシル、ハライド、カルボキシル、ケトン、又はアルデヒド官能基を含む、請求項 3 3 に記載の製品。

【請求項 3 5】

該方法が、酸素を含むプラズマに被覆を曝露することによって、被覆を処理してヒドロキシル基を付加することを更に含む、請求項 3 1 に記載の製品。

【請求項 3 6】

被覆を上にも有する燃料電池部品を含む製品であって、該被覆が、1 ~ 100 nm の範囲の寸法を有するナノ粒子を含み、ナノ粒子が、Si - O 基、飽和又は不飽和の炭素鎖、及び極性基を有する化合物を含む、製品。

【請求項 3 7】

ナノ粒子が小塊状の形状を有する、請求項 3 6 に記載の製品。

【請求項 3 8】

被覆が、拡散媒体の繊維がそれを通して伸長することができるのに十分なほど多孔質である、請求項 3 7 に記載の製品。

10

【請求項 3 9】

該部品がバイポーラプレートを含み、更に被覆上に配置されている拡散媒体を含み、拡散媒体が繊維を含み、被覆が多孔質であり、複数の繊維が被覆を通して伸長している、請求項 3 6 に記載の製品。

【請求項 4 0】

燃料電池部品上に第 1 の被覆を形成させることを含む方法であって、該被覆が、少なくとも一つの Si - O 基と、飽和又は不飽和の炭素鎖を有する少なくとも一つの基を含む化合物を含む、方法。

【請求項 4 1】

該化合物がヒドロキシル基を更に含む、請求項 4 0 に記載の方法。

20

【請求項 4 2】

酸素イオンを含むプラズマに被覆を曝露することを更に含む、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 4 3】

燃料電池部品上への第 1 の被覆の形成が、該化合物を含む材料を堆積させることを含み、該堆積が、物理気相成長法、化学気相成長法、熱溶射、ゾル - ゲル形成、噴霧、浸漬、ブラシ塗布、スピン塗布、又はスクリーン印刷を含む、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 4 4】

第 1 の被覆が、ヒドロキシル基又はクロリド基を含む極性基を更に含む、請求項 4 0 に記載の方法。

30

【請求項 4 5】

炭素鎖が 1 ~ 4 個の炭素原子を有する、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 4 6】

第 1 の被覆が導電性材料を更に含む、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 4 7】

導電性材料が、Au、Ag、Ru、Rh、Pd、Re、Os、Ir、Pt、希土類金属、これらの合金、ポリマー炭素又はグラファイトの少なくとも一つを含む、請求項 4 6 に記載の方法。

【請求項 4 8】

該部品がバイポーラプレートを含む、請求項 4 0 に記載の方法。

40

【請求項 4 9】

該部品が金属を含む、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 5 0】

該部品がポリマー複合材料を含む、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 5 1】

該部品が、導電性材料を含む第 2 の被覆を更に含む基材を含み、第 2 の被覆が基材上に配置されており、第 1 の被覆が第 2 の被覆上に配置されている、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 5 2】

炭素鎖が、線状、分岐鎖、又は環式である、請求項 4 0 に記載の方法。

【請求項 5 3】

50

燃料電池部品上に第 1 の被覆を形成することを含む方法であって、該燃料電池部品は基材を含み、第 1 の被覆は基材上に配置されており、第 1 の被覆は、少なくとも一つの Si - O 基及び Si - R 基（ここで、R は飽和又は不飽和の炭素鎖を含む）を含む化合物を含み、Si - O 基に対する Si - R 基のモル比は 1 / 8 ~ 1 / 2 の範囲である、方法。

【請求項 5 4】

炭素鎖が 1 ~ 4 個の炭素原子を有する、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 5 5】

第 1 の被覆が、第 1 の被覆の親水性を向上させる極性基を更に含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 5 6】

極性基が、ヒドロキシル、ハライド、カルボキシル、ケトン、又はアルデヒド官能基を含む、請求項 5 5 に記載の方法。

【請求項 5 7】

被覆が導電性材料を更に含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 5 8】

導電性材料が、Au、Ag、Ru、Rh、Pd、Re、Os、Ir、Pt、希土類金属、これらの合金、ポリマー炭素又はグラファイトを含む、請求項 5 7 に記載の方法。

【請求項 5 9】

該部品がバイポーラプレートを含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 0】

基材が金属を含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 1】

基材がポリマー複合材料を含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 2】

導電性材料を含む第 2 の被覆を更に含む、第 2 の被覆が基材上に配置されており、第 1 の被覆が第 2 の被覆上に配置されている、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 3】

炭素鎖が、線状、分岐鎖、又は環式である、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 4】

酸素を含むプラズマに第 1 の被覆を曝露して、該化合物に極性基を付加することを更に含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 5】

燃料電池部品上への第 1 の被覆の形成が、該化合物を含む材料を堆積させることを含み、該堆積が、物理気相成長法、化学気相成長法、熱溶射、ゾル - ゲル形成、噴霧、浸漬、ブラシ塗布、スピン塗布、又はスクリーン印刷を含む、請求項 5 3 に記載の方法。

【請求項 6 6】

平坦な基材上に、少なくとも一つの Si - O 基と飽和又は不飽和の炭素鎖を含む少なくとも一つの基とを含む化合物を含む第 1 の被覆を形成し；

複数の丘部及び溝部を有する気体フローフィールドを基材中に形成する；

ことを含む方法。

【請求項 6 7】

第 1 の被覆が溝部の上のみに施されている、請求項 6 6 に記載の方法。

【請求項 6 8】

気体フローフィールドを形成する前に、被覆を後処理して極性基を付加することを更に含む、請求項 6 6 に記載の方法。

【請求項 6 9】

燃料電池部品が、アノード側及びカソード側を有するバイポーラプレートであり、被覆がアノード側及びカソード側の上に施されており、アノード側の平均厚さが、カソード側の被覆の平均厚さよりも少なくとも 15 % 大きい、請求項 1 に記載の製品。

【発明の詳細な説明】

10

20

30

40

50

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般に、親水性被覆を上にも有するバイポーラプレートのような燃料電池部品、及びその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

水素は、清浄で、燃料電池において電力を効率よく生成するのに用いることができるので、極めて魅力的な燃料である。自動車産業においては、自動車のための動力源としての水素燃料電池の開発に大きな資金が費やされている。このような自動車は、内燃機関を用いる今日の自動車よりも、より効率的で、より少ない排ガスを生成するであろう。

10

【0003】

水素燃料電池は、アノード及びカソードを含みその間に電解質を有する電気化学装置である。アノードは水素に富むガス又は純粋な水素を受容し、カソードは酸素又は空気を受容する。水素ガスは、アノードにおいて解離して、遊離プロトン及び電子を生成する。プロトンは、電解質を通過してカソードに移動する。プロトンは、カソードにおいて酸素及び電子と反応して、水を生成する。アノードからの電子は、電解質を通過することができず、したがって、カソードに送られる前に負荷へと送られて、仕事を行う。この仕事は、例えば自動車の操作に用いることができる。

【0004】

固体高分子型燃料電池 (proton exchange membrane fuel cell, PEMFC) は、自動車の用途に関して一般的である。PEMFCは、一般に、ペルフルオロスルホン酸膜のような固体ポリマー電解質プロトン伝導膜を含む。アノード及びカソードは、通常、炭素粒子上に担持されイオノマーと混合されている微粉碎触媒粒子、通常は白金 (Pt) を含む。触媒混合物は、膜の反対の側面上に堆積される。アノード触媒混合物、カソード触媒混合物、及び膜の組み合わせによって、膜電極接合体 (MEA) が画定される。MEAは、製造するのが比較的高価であり、有効な運転のためには特定の条件が必要である。これらの条件としては、適当な水管理及び加湿、並びに一酸化炭素 (CO) のような触媒被毒成分の制御が挙げられる。

20

【0005】

通常、所望の電力を生成するために、幾つかの燃料電池セルが燃料電池スタック内で組み合わされている。上記の自動車燃料電池スタックのためには、スタックは約200かそれより多いバイポーラプレート (bipolar plate) を含んでもよい。燃料電池スタックは、カソード反応ガス、通常はコンプレッサーによりスタックを通して強制流動されている空気流を受容する。酸素の全部がスタックによって消費されるのではなく、空気の一部はスタック副生成物としての液体水を含みうるカソード排ガスとして排出される。また、燃料電池スタックは、スタックのアノード側の中に流入するアノード水素反応ガスを受容する。

30

【0006】

燃料電池スタックは、スタック内の幾つかのMEAの間に配置された一連のフローフィールド (flow field) 又はバイポーラプレートを含む。バイポーラプレートは、スタック内における隣接する燃料電池セルのためのアノード側及びカソード側を含む。バイポーラプレートのアノード側上にアノードガス流路溝が与えられ、アノードガスがMEAのアノード側に流れることを可能とする。バイポーラプレートのカソード側上にカソードガス流路溝が与えられ、カソードガスがMEAのカソード側に流れることを可能とする。バイポーラプレートは、また、冷却流体のための流路溝も含むことができる。

40

【0007】

バイポーラプレートは、通常、ステンレススチール、チタン、アルミニウム、ポリマー炭素複合体等のような導電性材料で構成され、燃料電池セルによって生成した電力を、一つのセルから次のセルへ、且つスタックの外側へ導く。金属バイポーラプレートは、通常、その外側表面上に自然酸化物を生成し、これによって腐蝕に対して抵抗性になる。しか

50

しながら、この酸化物層は導電性でなく、したがって燃料電池セルの内部抵抗を増加させ、その電気特性を低下させる。また、酸化物層は、しばしばこのプレートをより疎水性にする。

【0008】

本出願の譲受人に譲渡された米国特許出願公開2003/0228512号(その開示は参照として本明細書中に包含する)には、プレートを酸化及びオーム接触の増加から防ぐ導電性の外側層をフローフィールドプレートの上に堆積させる方法が開示されている。同様に本出願の譲受人に譲渡された米国特許6,372,376号には、導電性で、耐酸化性で、耐酸性の被覆をフローフィールドプレートの上に堆積することが開示されている。同様に本出願の譲受人に譲渡された米国特許出願公開2004/0091768号において、耐腐食性で、導電性で、熱伝導性のフローフィールドプレートを製造するために、フローフィールドプレート上にグラファイト及びカーボンブラックの被覆を堆積させることが開示されている。

10

【0009】

当該技術においてよく理解されているように、燃料電池セル内の膜は一定の相対湿度を有し、膜を横切るイオン抵抗が、プロトンを有効に伝導するのに十分なほど低いことが必要である。燃料電池の運転中においては、MEAからの湿分及び外部の湿分がアノード及びカソードの流路溝に侵入する可能性がある。通常 0.2 A/cm^2 以下の低い電池電力需要においては、反応ガスの流速が低すぎて水を流路溝の外に押し流すことができないので、水が流路溝内に蓄積する。水が蓄積すると、液滴が形成され、これはプレート材料の疎水性のために拡大し続ける。水滴の接触角は一般に約 90° であり、この場合、液滴は反応ガスの流れに対して実質的に垂直に流路溝内に形成される。液滴の寸法が増大すると、流路溝が閉塞され、溝は入口及び出口のマニホールドの間を平行に流れているので、反応ガスは他の流路溝に逸流する。反応ガスは水によって閉塞された溝を流れることができないので、反応ガスは水を溝の外に押し出すことができない。溝が閉塞される結果として反応ガスを受容しない膜のこれらの領域は、電力を生成せず、したがって不均一な電流分布、及び燃料電池の全体的効率の低下をもたらすだろう。更に多くの流路溝が水によって閉塞されると、燃料電池セルによって生成する電力が低下し、 200 mV 未満のセル電位はセルの不具合とみなされる。燃料電池セルは直列に電気接続されるので、一つの燃料電池セルが機能停止すると、燃料電池スタック全体が機能停止する可能性がある。

20

30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

通常、周期的により高い流速で流路溝を通して反応ガスを強制流動させることによって、流路溝内の蓄積水を掃去することができる。しかしながら、カソード側においては、これによって空気コンプレッサーにかかる寄生動力(parasitic power)が増大し、それにより全体的なシステム効率が低下する。更に、経済性の低下、システム効率の低下、及び排ガス流中の高い濃度の水素を処理するためのシステムの複雑さの増大をはじめとする、掃去ガスとして水素燃料を用いない多くの理由が存在する。

【0011】

40

溝内の蓄積水を減少させることは、また、導入加湿を低下させることによっても達成することができる。しかしながら、アノード及びカソード反応ガス中には多少の相対湿度を与えて、燃料電池セル内の膜が水和した状態で保持されるようにすることが望ましい。乾燥した導入ガスは膜に対する乾燥効果を有し、それによってセルのイオン抵抗性が増大し、膜の長期間耐久性が制限される可能性がある。

【0012】

本発明者らによって、燃料電池のためのバイポーラプレートを親水性にして、溝の水移送を向上させることが提案されている。親水性のプレートは、溝内の水を、自発ぬれプロセスにおいて表面に沿って展開させる。得られる薄膜は、共通の入口及び出口ヘッダーに接続された溝の列に沿って流れの分布を変化させる傾向が小さい。プレート材料が十分に

50

高い表面エネルギーを有している、拡散媒体を通して移送される水は、溝の壁に接触し、次に、毛管力によって溝の底角部中へとその長さに沿って移送される。流路溝の角部において自発ぬれを保持するための物理的要件は、コンカス・フィン (Concus-Finn) 条件

：

【 0 0 1 3 】

$$\beta + \frac{\alpha}{2} < 90^\circ$$

【 0 0 1 4 】

(式中、 α は液体表面と固体表面との間に形成される静的接触角であり、 β は溝の角部の角度である)

によって説明される。長方形の溝に関しては $\beta / 2 = 45^\circ$ であり、これは静的接触角が 45° 未満である場合に自発ぬれが起こることを示している。複合バイポーラプレートを用いる現在の燃料電池スタックデザインにおいて用いられているほぼ長方形の溝に関しては、これは溝の水移送に対する親水性プレート表面の有益な効果及び低い負荷安定性を実現するために必要な接触角に対するおおよその上限を設定する。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 1 5 】

発明の典型的な態様の概要

本発明の一態様は、基材、及び基材上に配置されている第1の被覆を含み、該被覆が、少なくとも一つの Si-O 基と、少なくとも一つの極性基と、飽和又は不飽和の炭素鎖を含む少なくとも一つの基とを含んでなる燃料電池部品を含む製品を包含する。

【 0 0 1 6 】

本発明の他の態様は、基材、及び基材上に配置されている第1の被覆を含み、該被覆が、少なくとも一つの Si-O 基、及び Si-R 基 (ここで、R は飽和又は不飽和の炭素鎖を含む) を含む化合物を含み、Si-O 基に対する Si-R 基のモル比が $1/8 \sim 1/2$ の範囲である燃料電池部品を含む製品を包含する。

【 0 0 1 7 】

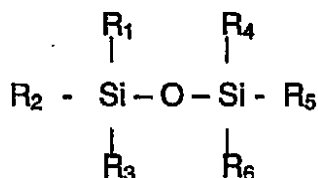
本発明の他の態様は、シロキサンを含む前駆体ガスを含み、更に第2のガスを含むプラズマ増強化学蒸着法 (plasma-enhanced chemical deposition) を用いて、燃料電池部品上に被覆を堆積させることを含む方法によって得られる製品を包含する。

【 0 0 1 8 】

本発明の他の態様は、式：

【 0 0 1 9 】

【化2】



【 0 0 2 0 】

(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、それぞれ、H、O、Cl、又は飽和若しくは不飽和の炭素鎖であってよく、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、同一であっても異なってもよい)

を有する材料を含む前駆体ガスを含み、更に第2のガスを含むプラズマ増強化学蒸着法を用いて、燃料電池部品上に被覆を堆積させることを含む方法によって得られる製品を包含する。

【 0 0 2 1 】

本発明の他の態様は、少なくとも一つの Si-O 基と、飽和又は不飽和の炭素鎖を含む

10

20

30

40

50

少なくとも一つの基とを有する化合物を含む第 1 の被覆を燃料電池部品上に形成することを含む方法を包含する。

【0022】

本発明の他の態様は、基材を含む燃料電池部品上に第 1 の被覆を形成することを含み、ここで第 1 の被覆は基材上に配置されており、第 1 の被覆は、少なくとも一つの Si - O 基、及び Si - R 基（ここで、R は飽和又は不飽和の炭素鎖を含む）を有する化合物を含み、Si - O 基に対する Si - R 基のモル比は 1 / 8 ~ 1 / 2 の範囲である、方法を包含する。

【0023】

本発明の他の典型的な態様は、以下に与える詳細な説明から明らかとなるであろう。詳細な説明及び特定の実施例は、本発明の典型的な態様を開示するもので、例示のみの目的で与えるものであり、本発明の範囲を限定するものではないことを理解すべきである。

10

【0024】

本発明の典型的な態様は、詳細な説明及び添付の図面からより完全に理解されるようになるであろう。

【発明を実施するための最良の形態】

【0025】

典型的な態様の詳細な説明

幾つかの態様の以下の説明は、事実上例示に過ぎず、本発明、その適用、又は使用を全く限定するものではない。

20

【0026】

本発明の一態様は、被覆を上を有するバイポーラプレートのような（但しこれに限定されない）基材を有する燃料電池部品を包含する。一態様においては、被覆は、親水性であり、少なくとも一つの Si - O 基と、少なくとも一つの極性基と、飽和又は不飽和の炭素鎖を含む少なくとも一つの基とを含む。本発明の一態様においては、極性基としては、ヒドロキシル又はクロリドを挙げることができる。本発明の一態様においては、炭素鎖は、飽和であっても不飽和であってもよく、1 ~ 4 個の炭素原子を有してよい。被覆は、例えば、Au、Ag、Ru、Rh、Pd、Re、Os、Ir、Pt、希土類金属、これらの合金、ポリマー炭素又はグラファイトをはじめとする導電性を向上させる添加元素又は化合物を有していてもよい。

30

【0027】

本発明の一態様においては、被覆は、Si - O 基、及び Si - R 基（ここで、R は、飽和又は不飽和の炭素鎖を包含する）を含み、ここで Si - O 基に対する Si - R 基のモル比は 1 / 8 ~ 1 / 2、好ましくは 1 / 4 ~ 1 / 2 の範囲である。本発明の他の態様においては、被覆は、被覆の親水性を向上させるヒドロキシル基を更に含む。

【0028】

本発明の他の態様は、被覆を上を有する部品を有し、被覆がシロキサンから誘導される燃料電池部品を包含する。シロキサンは、線状、分岐鎖、又は環式であってよい。一態様においては、シロキサンは、式：R₂SiO（式中、R はアルキル基である）を有する。

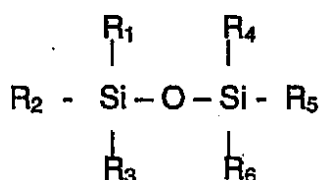
40

【0029】

本発明の他の態様は、被覆を上を有する部品を有し、被覆が、式：

【0030】

【化 3】



【0031】

（式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、及び R₆ は、それぞれ、H、O、Cl、又は、

50

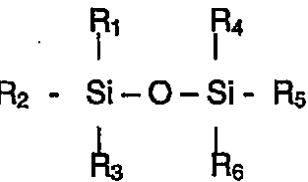
1 ~ 4 個の炭素原子を有する飽和若しくは不飽和の炭素鎖であってよく、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、同一であっても異なってもよい）を有する材料から誘導される燃料電池部品を包含する。

【0032】

本発明の他の態様は、その上に被覆が形成されている燃料電池部品を含み、被覆が、式

：

【0033】



10

【0034】

（式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、それぞれ、H、O、Cl、又は、1 ~ 4 個の炭素原子を有する飽和若しくは不飽和の炭素鎖であってよく、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 は、同一であっても異なってもよい）

を有する材料を含む前駆体ガスから被覆をプラズマ補助化学気相成長（plasma-enhanced chemical vapor deposition）させることを含み、更にプラズマ補助化学気相成長させた被覆を処理して極性基を与えることを含む方法によって形成される製品を包含する。本発明の他の態様においては、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、及び R_6 の少なくとも一つは、少なくとも一つの炭素原子を有する炭素鎖である。

20

【0035】

本発明の他の態様は、プラズマ補助CVD堆積させた被覆を、酸素を含むプラズマに曝露して、プラズマ補助CVD堆積させた被覆中にヒドロキシル基を生成させることを含み、プラズマ補助化学気相成長堆積させた被覆の後処理を包含する。

【0036】

本発明の他の態様は、被覆を上にも有する燃料電池部品であって、被覆が、1 ~ 100 nm、好ましくは1 ~ 50 nm、最も好ましくは1 ~ 10 nmの範囲の寸法を有するナノ粒子を含み、ナノ粒子が、ケイ素、飽和又は不飽和の炭素鎖、及び極性基を含んでなる化合物を含む、燃料電池部品を包含する。

30

【0037】

本発明の他の態様は、親水性の被覆を上にも有するバイポーラプレート、及びバイポーラプレートに隣接して配置された拡散媒体を有する燃料電池を包含する。親水性の被覆は、小塊形状（nodule shape）のナノ粒子を含み、被覆は、バイポーラプレート上の被覆に隣接する拡散媒体の位置から繊維が被覆を通して伸長して、バイポーラプレートから拡散媒体への被覆を通る電気通路が与えられるのに十分なほど、多孔質である。

【0038】

本発明の一態様においては、被覆は、三工程プロセスによって施されるシロキサン様（ SiO_x ）の材料であり、ヒドロキシル基の導入（即ち $Si-OH$ 結合）を通じてプレート材料への接着性及び材料の親水性が向上される。最適化された材料のフーリエ変換赤外（FTIR）スペクトルを図1に示して、鍵となる官能結合を確認する。前駆体とキャリアガスの流量の比を調節することによって、 $Si-O-Si$ 主ピークの左側上の「肩部」として図1に示される $Si-CH_3$ 含量の制御が与えられる。この化学構造の特徴によって、得られる被覆の形態が制御され、好ましい処方は、キャリアガス（酸素）流量の8 ~ 10%の前駆体ガスヘキサメチルジシロキサン（HMDSO）の流量によって達成される。走査電子顕微鏡（SEM）画像で図4に示される被覆の顕微鏡構造は、むしろ不連続であり、別々の小塊から構成されている。この多孔質構造によって、ガス拡散媒体の繊維（平均直径約7 μm の繊維）が被覆を通して貫通して、バイポーラプレート基材と密な接触を形成することが可能になる。約10 cm^2 の親水性被覆によって導入される増加抵

40

50

抗が達成された。この好ましい材料の配合物を、バイポーラプレート上で用いて、スタックを1000時間を超えて運転した。534時間の運転後に一つのプレートから得られた被覆厚さを測定することにより、生成水の殆どが存在していることが知られており低負荷におけるスタックの電圧安定性に対して最も大きな影響を有するカソード流路溝内において、材料損失が20%未満であったことが示された。被覆厚さがゼロになるまで材料を損失させるには、5000時間を超える燃料電池運転時間となることが示された。

【0039】

親水性の被覆は、また、バイポーラプレートのアノード側においても必要である可能性がある。これは、アノードの水蓄積は、幾つかの条件下での運転安定性に影響を与え、水素欠乏によって電極及び膜の耐久性に影響を与えると考えられているからである。しかしながら、アノード側における被覆の溶解速度は、より高いHF濃度の結果としてカソード側よりも速いであろうと考えられている。したがって、アノード被覆をカソード被覆よりも厚くして、燃料電池寿命の終期までの耐久性を達成することができる。本発明の一態様においては、アノード被覆の平均厚さは、カソード被覆の平均厚さよりも約15%大きい。プラズマ補助CVD条件は被覆プロセスの間中一定に保持したが、アノード被覆は、全プレート表面積を低下させる活性領域中の溝がより少ないために、必然的により厚い。親水性被覆プレートの分解視認検査によって、 SiO_x 材料の損失は、アノード側において、特にアノードの出口ヘッダーの上流の90°屈曲個所の近傍において最も大きかったことが示された。したがって、好ましいアノード被覆（即ち平均厚さ）は、カソード被覆（即ち平均厚さ）よりも15%以上大きく、これはおそらくCVD被覆パラメータの調節を必要とするであろう。

10

20

【0040】

プレート製造プロセス、又はプレート製造と被覆プロセスの間の取り扱いの結果としてプレート基材上に残留する有機コンタミナントを除去するために前処理プロセスが必要である。更に、前処理操作は、プレート基材に極性基を付加してその後の堆積プロセスの有効性を向上させるように選択しなければならない。前処理プロセスは、マイクロ波生成酸素プラズマ環境に、0~5分間、好ましくは0.5~3分間、最も好ましくは1分間曝露することを含む。

【0041】

本発明の一態様においては、前駆体ガスは、好ましくはヘキサメチルジシロキサン（HMDSO）であるが、シロキサン、シラノール、又はシランをベースとする化学物質からの無機又は有機誘導体、或いは他の炭素及び/又はケイ素含有ガス及び/又は液体の中から選択することができる。本発明の一態様においては、被覆プロセスは、ヘキサメチルジシロキサン（HMDSO）前駆体、及びキャリアガスとして純粋酸素を用いてマイクロ波プラズマ補助化学気相成長（CVD）させることを含み、これによりシロキサン様（ SiO_x ）の被覆が得られる。マイクロ波の周波数は、2.45GHzに固定することができる。プロセス温度は、雰囲気温度~45の範囲の比較的低いものであってよく、これにより、任意の実用のバイポーラプレート材料を、熱による損傷又は変形の心配なしに被覆することができる。親水性被覆材料の実際の適用、及びその得られる化学的及び物理的構造は、被覆装置に関連する六つの調整可能なプロセスパラメータによって制御し、PLASMAtech Model 110の場合、110Lの容量を有するCVD反応器に関しては、0~500Pa、好ましくは10~100Pa、最も好ましくは30Paの範囲の圧力、50W~10kW、好ましくは100W~1kW、最も好ましくは200~300Wの範囲のマイクロ波出力で運転する。前駆体ガスは、好ましくはヘキサメチルジシロキサン（HMDSO）であるが、上記の通り、シロキサン、シラノール、又はシランをベースとする化学物質からの無機又は有機誘導体、或いは他の炭素及び/又はケイ素含有ガス及び/又は液体の中から選択することができる。キャリアガスは、好ましくは酸素であるが、窒素、亜酸化窒素、アルゴン、アルゴン-酸素、又はこれらの混合物、或いは適当な比での他のガスとの混合物の少なくとも一つを含むことができる。

30

40

【0042】

50

前駆体 - キャリアガスの体積流量比は、被覆層の得られる化学構造及び形態に大きな影響を有する。一般に、特にシロキサン含有前駆体を用いると、小さな前駆体 - キャリアガス比によって、純粋な SiO_2 の化学構造に近接するより密な被覆が得られるだろう。この比を増加させると、被覆の有機含量が増大し、ほぼ確実に親水性が低下する（即ち静的接触角が増大する）ばかりでなく、被覆構造の多孔度も増大する。必要な接触角を得て、且つ増加電気抵抗を最小にするために、燃料電池において適用するのに重要な点は、これらの特性のバランスである。

【0043】

前駆体 - キャリアガス比を変動させることによる SiO_x 被覆の化学構造における変化は、図1～3において示すフーリエ変換赤外（FTIR）スペクトルにおいて観察される変化によって理解することができる。図1において、4～5%のガス比に関しては、被覆は純粋な石英の構造に近接し、明確な $\text{Si}-\text{CH}_3$ 含量はみられない。前駆体流量をキャリア流量の8～10%に増加させると、 $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 主ピークの左側上に、比較的低い $\text{Si}-\text{CH}_3$ 含量を示す小さな「肩」ピークが現れる（図2）。ガス比を更に約12～15%に上昇させると、 $\text{Si}-\text{CH}_3$ 含量は、明らかに更に増加する（図3）。これら三つのガス流の組み合わせの中で、8～10%の比が、極めて低い静的接触角（ $< 10^\circ$ ）、及び不連続な物理構造のために僅か約 $10 \text{ m}^2/\text{cm}^2$ の増加電気抵抗の両方の好ましい特性を与えたことが見出された。

10

【0044】

本発明の一態様においては、2～16%、好ましくは4～12%、最も好ましくは8～10%の前駆体 - キャリアガス流量比を用いる。

20

ガスの絶対流速は、全反応器容量の関数となるだろう。本明細書において説明するパイポラプレート被覆を製造するために用いる PLASMAtech Model 110 に関しては、ガス流量範囲（上で議論した8～10%のガス流量比を仮定する）は、以下の通りである。適用範囲：前駆体 = 2～50 mL/分；キャリア = 20～625 mL/分；好ましくは、前駆体 = 10～30 mL/分；キャリア = 100～375 mL/分；最も好ましくは、前駆体 = 15～20 mL/分；キャリア = 150～250 mL/分。

【0045】

反応器時間は、被覆層の厚さを決定するが、同様に被覆の形態にも影響を与えるだろう。この時間は、寿命末期までの燃料電池内での希釈 HF 環境における材料の溶解速度に対応するように十分に厚い被覆を製造するように選択することができる。逆に、被覆は、好ましい不連続形態で増加電気抵抗を最小にするように十分に薄くなければならない。この被覆特性の組み合わせは、パイポラプレートの側面あたり4分間の反応器時間を用いて80～100 nmの平均厚さを有する被覆を製造することによって最適化された。好ましい被覆の走査電子顕微鏡写真を図4に示す。

30

【0046】

被覆を施す被加工材料がほぼ平面である場合には、定常状態プラズマを用いることによって空間的に均一な被覆厚さを達成することができる。しかしながら、パイポラプレート溝の場合のように、被加工材料上に、プラズマ源から異なる距離である特徴物がある場合には、プラズマ密度、及びその結果得られる被覆厚さにおいて変動があると考えられる。本発明の一態様においては、定常状態マイクロ波プラズマに関して、溝の底部（深さ = $290 \mu\text{m}$ ；深さに対する幅のアスペクト比 = 1.9）における被覆厚さは、丘部の被覆厚さの約60%である。丘部と溝部との間のこの被覆厚さの変動は、プラズマ電源装置のマイクロ秒～ナノ秒のパルスを用いることによって更に改良することができる。また、（将来のスタックデザインのために現在考察されているように）溝部のアスペクト比及び/又は絶対深さが小さくなるにつれて、被覆厚さの非均一性はより一層大きくなるだろう。これらの被覆変動は、プラズマ電源装置のマイクロ秒～ナノ秒のパルスを用いることによって避けることができる。

40

【0047】

SiO_x 基材構造体上に極性官能性基（主としてヒドロキシル基）を導入して、それに

50

よって材料の親水性を更に向上させるために、後処理プロセスが必要な場合がある。本発明の一態様においては、これは、有機結合を開裂してヒドロキシル、カルボキシル、及びアルデヒド官能基を形成することにより SiO_x 被覆を活性化させる反応性酸素プラズマに SiO_x 膜を曝露することによって行われる。後処理によるこの活性化は、材料の多孔度も向上させ、電気抵抗を更に低下させることができる。他の態様においては、被覆を、化学物質と反応させて極性基を生成させる。他の態様においては、親水性被覆の薄層を施すことによって極性基を導入する。

【0048】

本発明の一態様においては、後処理プロセスは、マイクロ波生成酸素プラズマ環境に、0～5分間、好ましくは0.5～3分間、最も好ましくは1.5分間曝露することを含む。

10

【0049】

図5は、上で議論したタイプの燃料電池スタックの一部である燃料電池セル10の横断面図である。燃料電池セル10は、電解質膜16によって分離されたカソード側12及びアノード側14を含む。カソード側12にカソード側拡散媒体層20が与えられ、膜16と拡散媒体層20との間にカソード側触媒層22が与えられている。同様に、アノード側14にアノード側拡散媒体層24が与えられ、膜16と拡散媒体層24との間にアノード側触媒層26が与えられている。触媒層22及び26、並びに膜16によって、MEAが画定される。拡散媒体層20及び24は多孔質層であり、これによってMEAへの導入ガスの移送及びMEAからの水の移送が与えられる。拡散媒体層20及び24の上、或いは膜16上へ触媒層22及び26を堆積させるための種々の方法が当該技術において知られている。燃料電池セル10は、微孔質層のような（但しこれに限定されない）更なる層及び/又は被覆を含んでいてもよい。

20

【0050】

カソード側12にカソード側フローフィールドプレート又はバイポーラプレート18が与えられ、アノード側14にアノード側フローフィールドプレート又はバイポーラプレート30が与えられている。バイポーラプレート18及び30は、燃料電池スタック内の燃料電池セルの間に与えられている。バイポーラプレート30内の流路溝28からの水素反応ガス流は、触媒層26と反応して、水素イオン及び電子へと解離する。バイポーラプレート18内の流路溝32からの空気流は、触媒層22と反応する。水素イオンは膜16を通して伝搬することができ、ここで空気流中の酸素及び触媒層22中の戻り電子と電気化学的に反応して副生成物として水を生成する。

30

【0051】

この非限定的な態様においては、バイポーラプレート18は、一緒に押圧され結合された二つのシート34及び36を含む。シート36によって流路溝32が画定され、シート34によって、燃料電池セル10に隣接する燃料電池セルのアノード側のための流路溝38が画定される。示されているように、シート34と36の間に冷却流体流路溝40が与えられている。同様に、バイポーラプレート30は、流路溝28を画定するシート42、隣接する燃料電池セルのカソード側のための流路溝46及び冷却流体流路溝48を画定するシート44を含む。ここで議論している態様においては、シート34、36、42、及び44は、ステンレススチール、チタン、アルミニウム、ポリマー炭素複合体等のような導電性材料で形成される。

40

【0052】

本発明の一態様においては、バイポーラプレート18及び30は、プレート18及び30を親水性にする被覆50を含む。被覆50の親水性によって、流路溝28及び32内の水が、水滴ではなく膜を形成して、水が流路溝を有意に閉塞しないようになる。特に、被覆50の親水性によって、流路溝32、38、28、及び46内に蓄積される水の接触角が、好ましくは40°未満に低下して、反応ガスが低負荷においてもなお流路溝28及び32を通して流動できるようになる。一態様においては、被覆50は、例えば5～50nmの範囲の薄膜であって、シート34、36、42、及び44の導電性により電力が燃料

50

電池セル 10 から有効に導出される。

【0053】

本発明の他の態様によれば、被覆 50 は、酸化ルテニウム又は金のような被覆 50 の導電性を向上させる導電性材料と化合させる。バイポーラプレート 18 及び 30 をより導電性にすることによって、燃料電池セル 10 内における電気接触抵抗及びオーム損失が低下し、それによって電池セルの効率が向上する。また、スタック内における圧縮力を低下させることができ、スタック内での一部の耐久性の問題点が解決される。

【0054】

被覆 50 をバイポーラプレート 18 及び 30 の上に堆積させる前に、バイポーラプレート 18 及び 30 を、イオンビームスパッタリングのような好適な方法によって清浄化して、プレート 18 及び 30 の外側上に形成されているかもしれない抵抗性の酸化物膜を除去することができる。被覆 50 は、物理気相成長法、化学気相成長 (CVD) 法、熱溶射法、ゾル-ゲル、噴霧、浸漬、ブラシ塗布、スピン塗布、又はスクリーン印刷をはじめとする (但しこれらに限定されない) 任意の好適な方法によって、バイポーラプレート 18 及び 30 上に堆積させることができる。物理気相成長法の好適な例としては、電子ビーム蒸着、マグネトロンスパッタリング、及びパルスプラズマ法が挙げられる。好適な化学気相成長法としては、プラズマ補助 CVD 及び原子層成長法が挙げられる。CVD 堆積法は、被覆 50 の薄膜層により好適である可能性がある。

【0055】

図 6 は、本発明の他の態様による、反応ガス流路溝部 62 及び丘部 64 を間を含むバイポーラプレート 60 の切り欠き横断面図である。バイポーラプレート 60 は、燃料電池セル 10 におけるバイポーラプレート 18 又は 30 に置き換えて適用することができる。この態様においては、被覆 50 はプレート 60 上にランダムな島部 68 として堆積されて、プレート 60 の導電性材料が、島部 68 の間の領域 70 において露出している。被覆島部 68 によってプレート 60 の所望の親水性が与えられ、露出領域 70 によってプレート 60 の所望の導電性が与えられる。この態様においては、島部 68 は、最も良好には、電子ビーム蒸着、マグネトロンスパッタリング、及びパルスプラズマ法のような物理気相成長法によって堆積させることができる。一態様においては、島部 68 は、50 ~ 100 nm の厚さに堆積させる。

【0056】

図 7 は、本発明の他の態様による、反応ガス流路溝部 74 及び丘部 76 を間を含むバイポーラプレート 72 の切り欠き横断面図である。この態様においては、被覆 78 がバイポーラプレート 72 上に堆積されている。被覆 78 は、次に、研磨又は研削のような任意の好適な方法によって丘部 76 の上から除去されて、丘部 76 においてプレート 72 の導電性材料が露出される。したがって、流路溝部 74 は親水性被覆を有し、丘部 76 は導電性であって、電力が燃料電池セルから導出される。この態様においては、プレート 72 は流路溝部 74 において導電性がより低くてもよいので、被覆 78 は、100 nm ~ 1 μm のように、上記の態様よりも厚く堆積させてもよい。

【0057】

図 8 は、本発明の他の態様による、反応ガス流路溝部 74 及び丘部 76 を有するバイポーラプレート 82 の切り欠き横断面図である。この態様においては、バイポーラプレート 82 は、その上に導電性の保護層 52 を有する。本発明による被覆 78 は、バイポーラプレート 82 の流路溝部 74 の上のみ配置されている。

【0058】

図 9 は、まずバイポーラプレート 18 の丘部 76 の上にマスク 200 を選択的に形成し、その後、マスク 200 を含むバイポーラプレート 18 の上にケイ素を含んでもよい被覆 50 を堆積させることを含む、本発明方法の一態様を示す。マスク 200 は、硬質の物理的マスク、粘稠な液体又はゲル様材料、或いはフォトレジストのような除去可能な材料であってよい。図 10 に示すように、丘部 76 上のマスク 200 は除去され、バイポーラプレート 18 の流路溝 74 の上に配置されている被覆 50 のみが残留する。

【 0 0 5 9 】

図 1 1 は、まず丘部 7 6 及び溝部 7 4 を含むバイポーラプレート 1 8 の上にケイ素を含む被覆 5 0 を堆積させ、次に、バイポーラプレートの溝部 7 4 の上にフォトレジスト又は水溶性材料のようなマスク 2 0 0 を選択的に形成し、その後バイポーラプレートの丘部 7 6 の上の被覆 5 0 をエッチバックすることを含む方法を包含する本発明の一態様を示す。エッチングは、エッチングがバイポーラプレート 1 8 に損傷を与えないならば、湿潤又は乾燥エッチング法を用いて行うことができる。一態様においては、丘部の上の被覆 5 0 をアルゴンプラズマによって除去することができ、その後マスクの残留部分が除去される。

【 0 0 6 0 】

図 1 2 は、上で議論したバイポーラプレート上に種々の層を堆積させるためのシステム 1 0 0 の平面図である。システム 1 0 0 は、吹き付け、物理気相成長法、化学気相成長法、熱溶射法、及びゾル-ゲル法をはじめとする（但しこれらに限定されない）上記の任意の方法を表すことが意図されている。システム 1 0 0 においては、電子銃 1 0 2 によって材料 1 0 4 を加熱し、これにより材料 1 0 4 を気化させて、バイポーラプレートに代表される基材 1 0 6 上に堆積させて、その上に被覆 1 0 8 を形成する。他の方法においては、システム 1 0 0 は、イオンビームをスパッタリング表面 1 1 2 に当てて、金属酸化物のような材料を放出させて被覆 1 0 8 を堆積させるイオン銃 1 1 0 を含む。他の態様においては、被覆 5 0 は、噴霧、浸漬、ブラシ塗布、スピン塗布、又はスクリーン印刷によって施すことができる。

【 0 0 6 1 】

図 1 3 は、本発明方法において有用なプラズマ補助化学気相成長反応器 4 0 0 の一態様を示す。反応器 4 0 0 は、複数の壁部 4 0 2 及び天井部 4 0 4 を有する。反応ガス及びキャリアガスを反応室 4 1 2 中に充填するために、壁部 4 0 2 又は天井部 4 0 4 を通して複数のガス充填口 4 0 6、4 0 8、4 1 0 を与えることができる。また、液体充填分配器 4 1 4 を与えることもできる。反応器は、反応室 4 1 2 内でプラズマを生成させるためのマイクロ波発生手段 4 1 6 及び R f 発生手段 4 1 8 を含むことができる。バイポーラプレートのような燃料電池部品を支持するためにチャック (chuck) 4 2 0 を与えることができる。

【 0 0 6 2 】

本発明の他の態様においては、S i - O 及び S i - R (式中、R は飽和又は不飽和の炭素鎖である) 基を有する被覆を、ステンレススチールの箔のような平坦な基材上に選択的に堆積させ、その後、例えば押圧によって、複数の丘部及び溝部を含む気体フローフィールドを有し溝部内に被覆が堆積されているバイポーラプレートへと成形する。

【 0 0 6 3 】

本発明の他の態様においては、S i を含む材料、及び炭素を含む材料をはじめとする種々の化学物質を用いて、S i - O 及び S i - R (式中、R は飽和又は不飽和の炭素鎖である) 基を有する被覆を基材上に形成することができる。例えば、シラン (S i H₄)、酸素、及び炭素をベースとするガス又は液体によって、プラズマ補助 C V D を用いて被覆を製造することができる。他の態様においては、テトラエチルオキシシレート又はテトラエトキシシラン (S i (C₂H₅O)₄) である T E O S、又はメチルトリエトキシシランである M T E O S、及び酸素又はオゾン、並びに場合によっては炭素をベースとするガス又は液体によって、プラズマ補助 C V D を用いて被覆を製造することができる。

【 0 0 6 4 】

「プラズマ補助化学気相成長法」という用語は、プラズマを用いる化学気相成長法を意味し、プラズマ補助 C V D、及び高密度プラズマ C V D を含む。本明細書において層の互いの相対位置に関して「上に」、「上に配置されている」、「上に配置している」という用語を用いる場合には、これは、層が互いに直接接触しているか、或いはこれらの層の間に他の一つ又は複数の層が介在していてもよいことを意味する。

【 0 0 6 5 】

本発明の説明は単に例示のものであり、したがって、その変更は本発明の精神及び範囲

10

20

30

40

50

から逸脱しないものであると考えられる。

【図面の簡単な説明】

【0066】

【図1】図1は、プラズマ補助化学気相成長法(plasma-enhanced chemical vapor deposition)において4%のキャリアガスに対する前駆体のガス比を用いて、本発明の一態様にしたがって製造した被覆のフーリエ変換赤外スペクトルの結果のグラフである。

【図2】図2は、プラズマ補助化学気相成長法において8%のキャリアガスに対する前駆体のガス比を用いて、本発明の一態様にしたがって製造した被覆のフーリエ変換赤外スペクトルの結果のグラフである。

【図3】図3は、プラズマ補助化学気相成長法において12%のキャリアガスに対する前駆体のガス比を用いて、本発明の一態様にしたがって製造した被覆のフーリエ変換赤外スペクトルの結果のグラフである。

【図4】図4は、多孔質で、小塊形状(nodule shape)を有するナノ粒子を含む、本発明の一態様による被覆の顕微鏡写真を示す。

【図5】図5は、本発明の一態様による、プレートを親水性にする被覆を有するバイポーラプレートを含む燃料電池スタック中の燃料電池セルの横断面図である。

【図6】図6は、本発明の他の態様による、空き領域によって分離された島部によって画定された被覆を含む燃料電池用のバイポーラプレートの切り欠き横断面図である。

【図7】図7は、本発明の他の態様による、プレート内の流路溝部の間の丘部において被覆が除去された、被覆を含む燃料電池用のバイポーラプレートの切り欠き横断面図である。

【図8】図8は、本発明の一態様による被覆が、バイポーラプレート上の他の被覆の上に堆積されている、燃料電池用のバイポーラプレートの切り欠き横断面図である。

【図9】図9は、まずバイポーラプレート上の丘部の上にマスクを選択的に形成し、その後、マスクを含むバイポーラプレート上に被覆を堆積させることを含む方法を包含する本発明の一態様を示す。

【図10】図10は、丘部上のマスクを除去して、バイポーラプレートの溝の上に配置されている被覆のみを残留させる方法を包含する本発明の一態様を示す。

【図11】図11は、まずバイポーラプレート上にシリコンを含む被覆を堆積させ、次にバイポーラプレートの溝の上にマスクを選択的に形成し、その後、バイポーラプレート上の丘部上の被覆をエッチバックすることを含む方法を包含する本発明の一態様を示す。

【図12】図12は、本発明のバイポーラプレート上に種々の層を堆積させるためのシステムの平面図である。

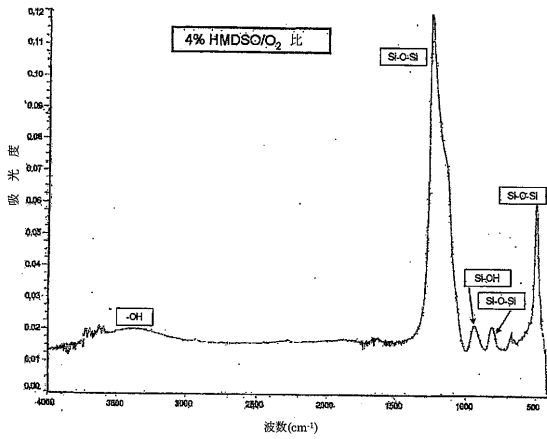
【図13】図13は、本発明の種々の態様において有用なプラズマ補助化学気相成長反応室の一態様を示す。

10

20

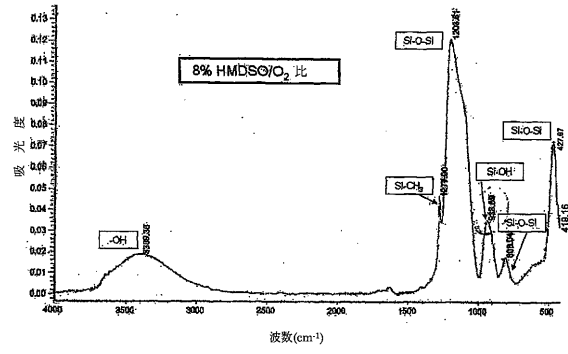
30

【 図 1 】



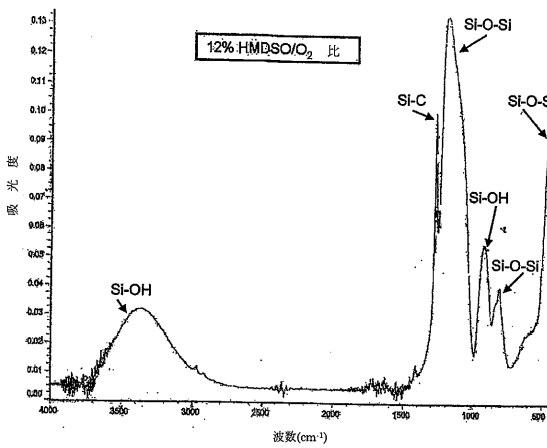
低い前駆体-キャリアガス流量比を有する親水性被覆のFTIRスペクトル

【 図 2 】



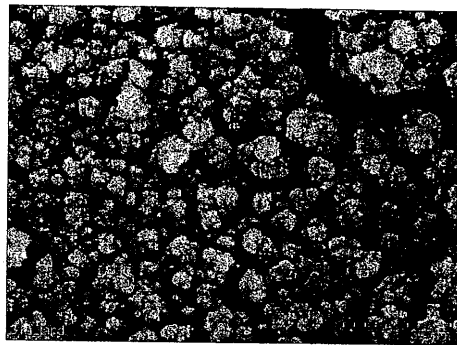
中程度の前駆体-キャリアガス流量比を有する親水性被覆のFTIRスペクトル

【 図 3 】



高い前駆体-キャリアガス流量比を有する親水性被覆のFTIRスペクトル

【 図 4 】



微細多孔質構造

【 図 5 】

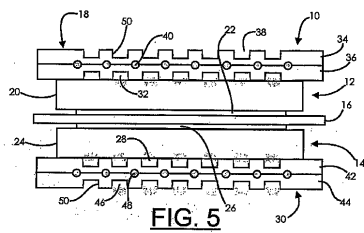


FIG. 5

【 図 6 】

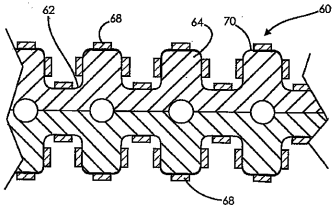


FIG. 6

【 図 7 】

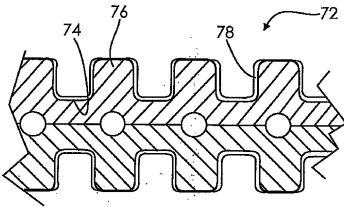


FIG. 7

【 図 8 】

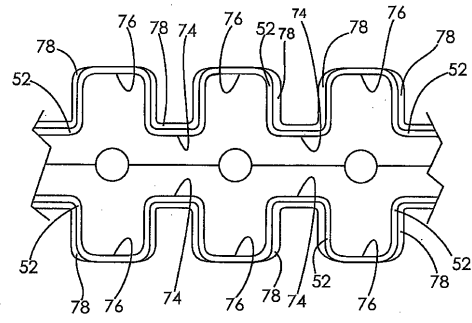


FIG. 8

【 図 9 】

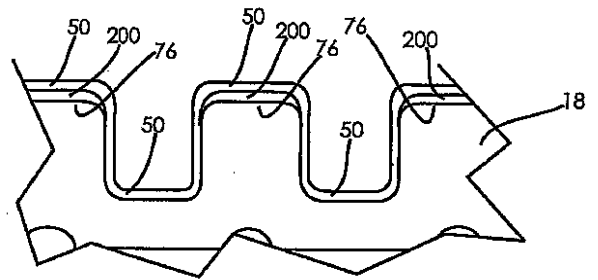


FIG. 9

【 図 10 】

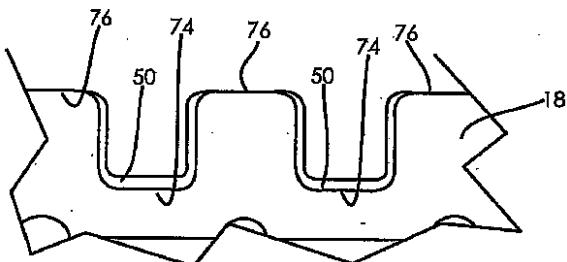


FIG. 10

【 図 12 】

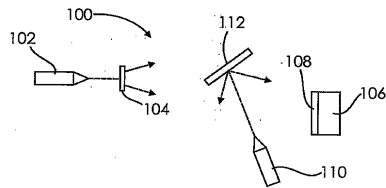


FIG. 12

【 図 11 】

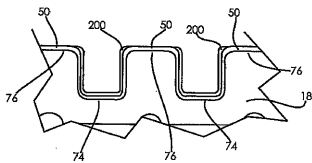


FIG. 11

【 図 13 】

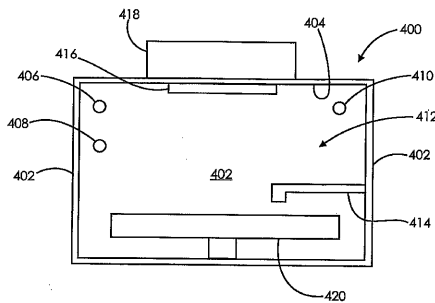


FIG. 13

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US06/30866
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC(8) - H01M 8/02 (2007.01) USPC - 429/38 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) IPC(8) - H01M 8/02 (2007.01) USPC - 429/38-39, 313, 317, 245, 252; 427/115 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) MicroPatent, IP.com, DialogPro, IEEEXplore, GoogleScholar		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2003/0003340 A1 (HONMA et al) 02 January 2003 (02.01.2003) see entire document	1-5, 7, 9-16, 18, 20-35, 40-41, 44-47, 49, 51-58, 60, 62-63
—		
Y		6, 8, 17, 19, 36, 42-43, 48, 50, 59, 61, 64-65
X	US 6,793,544 B2 (BRADY et al) 21 September 2004 (21.09.2004) see entire document	66
—		
Y		43, 65, 68
Y	US 2003/0228512 A1 (VYAS et al) 11 December 2003 (11.12.2003) see entire document	6, 8, 17, 19, 48, 50, 59, 61
Y	US 2004/0241522 A1 (ONO et al) 02 December 2004 (02.12.2004) see entire document	36
Y	US 2005/0064275 A1 (MEKALA et al) 24 March 2005 (24.03.2005) see entire document	42, 64, 68
A	US 2003/0194600 A1 (PAN) 16 October 2003 (16.10.2003) see entire document	1-69
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/>		
* 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 22 January 2007		Date of mailing of the international search report 10 APR 2007
Name and mailing address of the ISA/US Mail Stop PCT, Attn: ISA/US, Commissioner for Patents P.O. Box 1450, Alexandria, Virginia 22313-1450 Facsimile No. 571-273-3201		Authorized officer: Blaine R. Copenheaver PCT Helpdesk: 571-272-4300 PCT OBP: 571-272-7774

フロントページの続き

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

(74)代理人 100096013

弁理士 富田 博行

(74)代理人 100112634

弁理士 松山 美奈子

(74)代理人 100141265

弁理士 小笠原 有紀

(72)発明者 ウィンター, ガーハード

アメリカ合衆国ケンタッキー州41018, アーランガー, エアポート・エクスチェンジ・ブール
ヴァード 1895, スイート 190

(72)発明者 ビヤス, ガヤトリ

アメリカ合衆国ミシガン州48307, ロチェスター・ヒルズ, デイリリー・ドライブ 398

(72)発明者 トラボールド, トーマス・エイ

アメリカ合衆国ニューヨーク州14534, ピッツフォード, パークリッジ・ドライブ 36

(72)発明者 ダッタ, リーナ・エル

アメリカ合衆国ニューヨーク州14618, ロチェスター, パメラ・レイン 14, アパートメン
ト シー

Fターム(参考) 5H026 BB01 BB03 BB04 BB10 CC03 CX02 EE02 EE05 EE06 EE08
EE11 EE17 EE18 HH03 HH05