

⑤④ Procédé de fabrication d'un assemblage membrane-électrode pour pile à combustible.

②② Date de dépôt : 01.02.19.

③⑦ Priorité : 07.12.18 FR 1872533.

⑥⑦ Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

○ Demande(s) d'extension :

⑦① Demandeur(s) : *COMPAGNIE GENERALE DES
ETABLISSEMENTS MICHELIN Société en
commandite* — FR.

④③ Date de mise à la disposition du public
de la demande : 12.06.20 Bulletin 20/24.

④⑤ Date de la mise à disposition du public du
brevet d'invention : 10.09.21 Bulletin 21/36.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de
recherche :

Se reporter à la fin du présent fascicule

⑦② Inventeur(s) : GRANDJEAN Arnaud et
DECOOPMAN Benjamin.

⑦③ Titulaire(s) : *COMPAGNIE GENERALE DES
ETABLISSEMENTS MICHELIN Société en
commandite*.

⑦④ Mandataire(s) : Cabinet Lavoix.



Description

Titre de l'invention : Procédé de fabrication d'un assemblage membrane-électrode pour pile à combustible

- [0001] La présente invention se rapporte aux piles à combustible, en particulier mais non exclusivement aux piles à combustible du type à électrolyte sous la forme d'une membrane polymère (c'est-à-dire de type PEFC pour Polymer Electrolyte Fuel Cell).
- [0002] Cette invention se rapporte plus particulièrement aux procédés de fabrication d'un assemblage membrane-électrode pour une pile à combustible.
- [0003] Les piles à combustible sont utilisées comme source d'énergie dans diverses applications, notamment dans les véhicules électriques. Dans les piles à combustible du type à électrolyte à membrane polymère (PEFC), de l'hydrogène est fourni à l'anode de la pile à combustible et de l'oxygène est fourni comme oxydant à la cathode. Les piles à combustible à membrane polymère (PEFC) comprennent un assemblage membrane-électrode (MEA pour membrane electrode assembly) comprenant une membrane électrolytique en polymère solide échangeuse de protons et non conductrice de l'électricité, ayant le catalyseur anodique sur l'une de ses faces et le catalyseur cathodique sur sa face opposée. Un assemblage membrane-électrode (MEA) est pris en sandwich entre une paire d'éléments électriquement conducteurs, appelés plaques bipolaires, moyennant des couches de diffusion de gaz, réalisées par exemple en tissu de carbone. Les plaques bipolaires sont généralement rigides et thermiquement conductrices. Elles servent principalement de collecteurs de courant pour l'anode et la cathode et contiennent des canaux pourvus d'ouvertures appropriées pour répartir les réactifs gazeux de la pile à combustible sur les surfaces des catalyseurs d'anode et de cathode respectifs et pour éliminer l'eau produite à l'électrode. Une cellule de pile à combustible est ainsi formée par un MEA, incluant les couches de diffusion de gaz, et deux plaques bipolaires.
- [0004] Une pile à combustible peut comprendre une cellule unique ou une pluralité de cellules réalisées sous forme d'un empilement de plaques. Un empilement est ainsi constitué de plusieurs cellules individuelles reliées en série.
- [0005] Une pile à combustible est alimentée par un carburant qui est de l'hydrogène qui est fourni à l'anode et par un comburant qui est de l'oxygène ou de l'air qui est fourni à la cathode.
- [0006] La membrane échangeuse de protons se présente sous forme d'un film très mince et est réalisée par exemple en un matériau polymère perfluoré sulfuré. Les catalyseurs côté anode et côté cathode comprennent des particules catalytiques finement divisées, qui sont généralement supportées par des particules de carbone et mélangées à une

résine conductrice de protons, tel un ionomère ou un mélange d'ionomères et à un solvant. Les particules catalytiques sont généralement des particules de métaux précieux coûteux, tel le platine. Ainsi, une attention particulière doit être accordée à la fabrication des assemblages membrane-électrode (MEA) et ceci non pas seulement pour prendre en compte le coût assez élevé de ses composants, mais surtout parce que la qualité des MEA est en lien direct avec les performances d'une pile à combustible.

- [0007] Avant d'intégrer l'assemblage membrane-électrode, les catalyseurs se présentent généralement sous forme d'une encre catalytique liquide. Cette encre catalytique est déposée directement sur un support de l'assemblage MEA par exemple par pulvérisation, par sérigraphie ou par enduction et étalage à l'aide d'un racleur. L'encre catalytique peut aussi être déposée indirectement sur un ou des constituants d'un MEA en étant transférée à partir d'un autre support imprégné d'encre.
- [0008] En fonction de la méthode de dépôt et du support destinataire de l'encre catalytique au sein d'un assemblage MEA, on connaît principalement deux méthodes d'obtention d'un tel assemblage dans l'état de la technique.
- [0009] Une première méthode consiste à revêtir chaque couche de diffusion de gaz d'encre catalytique et est connue sous l'appellation CCB (pour catalyst coated backing) et les appliquer ensuite de part et d'autre d'une membrane polymère. La performance d'une pile à combustible dont le MEA a été obtenu par cette méthode est généralement basse. Pour l'améliorer, on réalise un pressage à chaud (à environ 130°C) de l'ensemble pendant quelques minutes. Toutefois, une telle opération de pression à chaud tend à déformer, voire à détériorer la membrane, ce qui peut provoquer une perte d'étanchéité au niveau de la pile.
- [0010] Une deuxième méthode qui donne de meilleurs résultats en termes de performance de la pile à combustible, consiste à revêtir d'encre catalytique liquide les deux faces de la membrane polymère et est connue sous l'appellation CCM (pour catalyst coated membrane). Toutefois, de par sa constitution, la membrane présente une forte réactivité aux solvants organiques ou aqueux qui composent l'encre catalytique et, de ce fait, elle a une forte tendance à se rétracter et à se froisser dès sa mise en contact avec l'encre. Ceci rend très difficile la méthode d'application de l'encre catalytique sur la membrane d'une part, et, d'autre part, elle nécessite d'appliquer l'encre sur des surfaces plus importantes que celle d'une membrane plane, ce qui la rend très coûteuse.
- [0011] Pour pallier à ce problème, une solution a été apportée par le document US 2011/0097651 qui propose d'appliquer des supports adhésifs détachables sur la membrane polymère, un support étant appliqué sur une face de la membrane avant le dépôt d'une couche d'encre catalytique sur la face opposée, et de retirer ensuite ces supports. Toutefois, mis à part le fait qu'il implique de multiples étapes intermédiaires consommatrices de temps et de main d'œuvre, ce procédé risque de fragiliser la

membrane, voire de perdre une partie du revêtement catalytique lorsqu'on enlève le support adhésif avec lequel il était en contact.

[0012] Le document EP 1 387 422 décrit un autre procédé pour appliquer un revêtement à base d'une encre catalytique sur une couche de diffusion de gaz ou sur une membrane polymère d'une pile à combustible. Ce procédé comprend plusieurs étapes successives consistant à appliquer, puis à niveler et à sécher le revêtement, chaque étape étant réalisée dans des conditions strictes de température, humidité et de temps de traitement. Ainsi, en multipliant les étapes et en leur imposant à chacune des conditions très sévères, ce procédé s'avère de réalisation complexe.

[0013] Un objectif de l'invention est de remédier aux inconvénients des documents précités et d'apporter une solution originale pour un procédé de fabrication d'un assemblage membrane-électrode (MEA) pour une pile à combustible.

[0014] Cet objectif est atteint par l'invention qui propose un procédé de fabrication d'un assemblage membrane-électrode pour pile à combustible comportant une membrane polymère échangeuse de protons, des couches catalytiques et une première et une deuxième couches de diffusion gazeuse, le procédé comportant les étapes suivantes :

- a) former un revêtement de couche catalytique sur une première face de la membrane, la face opposée étant supportée par un intercalaire ;
- b) former un revêtement de couche catalytique sur une première face de la première couche de diffusion gazeuse ;
- c) mettre en contact ladite première face de la première couche de diffusion gazeuse avec la face opposée à ladite première face de la membrane, après avoir retiré l'intercalaire, et ladite première face de la membrane avec une face de la deuxième couche de diffusion gazeuse.

[0015] Autrement dit, on obtient déjà un bon revêtement sur la membrane en appliquant l'encre catalytique sur l'une de ses faces, correspondant à l'une des électrodes, la face opposée étant supportée par un intercalaire, ce qui permet d'éviter qu'elle rétrécisse ou qu'elle se déforme lors du dépôt. On réalise un deuxième dépôt d'encre catalytique, correspondant à l'autre électrode, sur une couche de diffusion gazeuse qui est un support bien plus rigide et qui ne se déforme pas au contact de l'encre catalytique. Cette couche de diffusion gazeuse peut être supportée par un intercalaire. On met ensuite en contact la face non couverte de la membrane, libérée de son intercalaire, avec la face revêtue d'encre catalytique de la couche de diffusion gazeuse. On referme l'ensemble en apposant la deuxième couche de diffusion gazeuse sur la face revêtue de la membrane.

[0016] Ainsi, il a été constaté, lors des tests effectués en laboratoire, que la performance d'un tel assemblage (MEA) était très proche de celle d'un MEA obtenu par application du revêtement sur les deux faces de la membrane (qui est la méthode de référence du

point de vue des performances atteintes par une pile à combustible), tout en réalisant cet assemblage de manière plus aisée et avec beaucoup moins de pertes matière.

[0017] Avantageusement, le revêtement formé à l'étape a) correspond à la partie cathodique de la membrane.

[0018] Le côté cathodique du revêtement catalytique est celui qui vient au contact de l'oxygène (ou de l'air comprimé), il présente de caractéristiques en terme du dépôt qui sont en lien direct avec les performances de la pile à combustible. Ainsi, ce revêtement côté cathode une épaisseur du revêtement moindre que celui du côté anodique et il doit être bien au contact de la membrane pour garantir la tenue des performances de la pile. On choisit ainsi d'appliquer un revêtement d'encre catalytique pour réaliser la cathode du MEA directement sur l'une des faces de la membrane. Par ailleurs, le côté anodique étant moins sensible au contact avec la membrane, on peut appliquer la couche de diffusion gazeuse comprenant le revêtement d'encre catalytique par simple pression, sans chauffage, ce qui évite d'endommager la membrane. De surcroît, si par mégarde, le dépôt sur la couche de diffusion gazeuse n'était pas conforme, on pourrait le refaire sur une couche de diffusion gazeuse bien moins chère qu'une membrane échangeuse de protons.

[0019] Dans le procédé de l'invention, la membrane et les couches de diffusion gazeuses peuvent être obtenues par des étapes de découpe à des dimensions préétablies avant l'étape c).

[0020] Le revêtement de couche catalytique selon l'invention peut être obtenu par un procédé de dépôt direct d'une encre catalytique sur l'une des faces de la membrane et sur l'une des faces de la couche de diffusion gazeuse par un procédé compris dans le groupe comprenant : la sérigraphie, l'enduction, la flexographie, la pulvérisation.

[0021] L'étape de dépôt de revêtement selon l'invention peut être suivie d'une étape de séchage. Le séchage peut se faire à l'aide d'un flux d'air forcé et chauffé à une température acceptée par le matériau de la membrane, généralement inférieure ou égale à 100°C. Le procédé de l'invention peut comporter une étape supplémentaire de collage sur le rebord de chacune des faces de la membrane d'un renfort porteur d'un joint d'étanchéité.

[0022] Dans le procédé de l'invention l'assemblage de l'étape c) peut se faire par collage.

[0023] L'invention a également pour objet une ligne d'assemblage pour réaliser la mise en œuvre du procédé de fabrication d'un assemblage membrane électrode selon l'invention.

[0024] Le but de l'invention est également atteint avec une pile à combustible comportant au moins une cellule comprenant un assemblage membrane électrode de l'invention pris en sandwich entre deux plaques bipolaires.

[0025] L'invention sera mieux comprise grâce à la suite de la description, qui s'appuie sur

les figures suivantes :

la figure 1 est une vue schématique d'une ligne d'assemblage qui réalise la mise en œuvre du procédé de l'invention ;

la figure 2 est une représentation graphique de la performance d'une pile à combustible obtenue avec le procédé de l'invention comparée à celle d'une pile à combustible de l'état de la technique ;

[fig.1] la figure 3 est une vue en perspective d'une partie d'un assemblage membrane-électrode de obtenu avec le procédé de l'invention.

[0026] Sur les différentes figures, les éléments identiques ou similaires portent la même référence. Leur description n'est donc pas systématiquement reprise.

[0027] La figure 1 illustre de manière schématique une ligne d'assemblage 1 qui permet d'obtenir un assemblage membrane-électrode (MEA) 100 avec le procédé de l'invention. Un assemblage membrane-électrode 100 comprend généralement une membrane 10, deux couches catalytiques 20, 30 formant des électrodes disposés de part et d'autre de celle-ci, et une couche de diffusion gazeuse 40, 50 agencée en regard de chaque électrode.

[0028] La membrane 10 se présente sous forme d'un film très mince en un polymère conducteur de protons appelé ionomère. Un tel ionomère est par exemple le Nafion® N117 et est livré par son fabricant sous forme de rouleau de film. Le film est une bande d'une épaisseur de quelques dizaines de μm , d'une largeur de quelques dizaines de cm et d'une longueur de quelques mètres. Le film est enroulé en bobine en étant supporté sur un intercalaire (ou parfois il est disposé entre deux intercalaires) qui peut être un film polyester.

[0029] Les électrodes sont des structures poreuses obtenues par dépôt et séchage d'une encre catalytique sur un support. L'encre catalytique contient de préférence des particules d'un catalyseur de taille nanométrique (par exemple entre 1 et 10nm) supportées ou non par des particules de carbone de plus grande taille (par exemple comprise entre 10 et 100nm). Le catalyseur peut être du platine, du platine/ruthénium ou un autre élément ou groupe d'éléments choisi(s) dans le groupe du platine du tableau périodique des éléments. L'encre comprend de plus un liant, tel un ionomère (par exemple du Nafion®), un solvant (par exemple l'eau, le glycérol, etc.). Des additifs peuvent être rajoutés à la formulation, par exemple un tensioactif. L'encre généralement à l'état liquide est déposée sur le support et séchée de manière à obtenir une charge de catalyseur d'environ 0,1 à 0,2 mg/cm².

[0030] Une couche de diffusion gazeuse 40, 50 ou GDL (pour Gas Diffusion Layer) est un média poreux pour permettre le transport du réactant à partir de son entrée en direction du catalyseur. Elle doit aussi être électriquement conductrice pour conduire les charges. Une telle couche de diffusion gazeuse est ainsi avantageusement réalisée à

base de fibres de carbone qui sont tissées ou tricotées ensemble ou sont sous forme d'un textile non-tissé. On peut également traiter une telle couche de diffusion gazeuse (par exemple en lui appliquant un micro revêtement fait de PTFE et de particules de carbone) afin qu'elle soit hydrophobe afin de mieux canaliser l'eau qui résulte de la réaction au sein de la pile. Les couches de diffusion gazeuse utilisées sont du type utilisé dans la fabrication des piles à combustible. Elles sont livrées généralement sous forme de rouleau par leur fabricant.

- [0031] Selon l'invention, on forme une première électrode en appliquant un revêtement ou couche catalytique 20 obtenue à base d'une encre catalytique 60 sur une première face 14 de la membrane 10, la face opposée 15 étant supportée par un intercalaire 12. La première électrode ou couche catalytique 20 est celle correspondant au côté cathodique de la membrane.
- [0032] Tel que mieux visible à la figure 1, on commence par dérouler un rouleau 19 de film 11 constituant la membrane polymère échangeuse d'ions, le film et son support ou intercalaire 12 étant enroulés ensemble autour d'un moyeu 13. Pour dérouler le film, on entraîne en rotation le moyeu 13 autour de son axe, par exemple à l'aide d'un moteur (non représenté) et en mettant de préférence l'ensemble film-intercalaire en tension. On applique ensuite un dépôt d'encre catalytique 60 directement sur une première face 14 de la membrane à partir d'un réservoir d'encre 61 par un procédé de dépôt direct, par exemple par sérigraphie. La face opposée 15 de la membrane est supportée par l'intercalaire 12 ayant des dimensions comparables à celles du film constituant la membrane. D'autres procédés de dépôt direct par exemple par enduction à l'aide d'un rouleau ou d'un racleur, ou par flexographie, voire par pulvérisation peuvent être utilisés pour appliquer l'encre sur le film constituant la membrane. Un procédé de dépôt indirect, par exemple par tampographie en utilisant un tampon de transfert en PTFE peut également être utilisé.
- [0033] L'étape d'application du revêtement est suivie d'une étape de séchage. Cette étape peut se faire en exposant le film à l'air ambiant pendant une durée prédéterminée ou à l'aide d'un flux d'air soufflé, éventuellement chauffé à une température acceptée par le matériau de la membrane, généralement inférieure ou égale à 100°C. afin de réduire le temps de séchage du revêtement.
- [0034] On procède ensuite à la séparation de l'intercalaire 12 qui est entraîné à l'aide d'un rouleau motorisé 18 et enroulé autour d'une bobine 17 en vue de son recyclage.
- [0035] Le film 11 recouvert d'un revêtement formé par la première couche catalytique 20 est amené par un dispositif de transfert, qui peut être une tête mobile comprenant une barrette venant en prise avec l'extrémité de du film (non représentée), qui assure le déplacement du film jusqu'à venir se placer à proximité d'un premier dispositif de découpe 70 (qui peut être un dispositif de coupe à couteau ou à laser) qui réalise la

découpe du contour de la membrane 10.

[0036] Dans une autre variante, le film 11 revêtu d'encre catalytique est enroulé en bobine avant de procéder à la découpe de la membrane, la mise en tension du film étant faite dans ce cas à l'aide de rouleaux de mise en tension intermédiaires.

[0037] L'étape de découpe de la membrane 10 comportant sur l'une de ces faces un revêtement catalytique 20 formant la première électrode est suivie d'une étape supplémentaire de collage sur le rebord de chacune des faces de la membrane d'un renfort porteur d'un joint sérigraphié en silicone. Cette étape est mieux décrite dans le document WO 2017/103475 de la demanderesse. La figure 3 illustre de manière schématique un sous-ensemble formé par la membrane 10 recouverte de la couche catalytique 20 qui est solidaire d'un renfort 21 muni d'un joint d'étanchéité 23 en silicone. Le renfort 21 comporte des découpes 22 permettant une communication à travers les diverses assemblages et un joint d'étanchéité 23 déposé par sérigraphie et qui assure l'étanchéité sur le pourtour de la membrane et des découpes du renfort.

[0038] Selon l'invention également, on forme une deuxième électrode en appliquant un revêtement ou couche catalytique 30 à partir d'une encre catalytique 60 sur une première face de la première couche de diffusion gazeuse 50. La deuxième électrode correspond au côté anode de la pile à combustible.

[0039] Tel que visible à la figure 1, on déroule un rouleau 59 de média 51 formant une couche de diffusion gazeuse (GDL) enroulé autour d'un moyeu 53. Pour dérouler le média, on entraîne en rotation le moyeu 53 autour de son axe, par exemple à l'aide d'un moteur (non représenté) et en mettant de préférence le média en tension. On applique ensuite un revêtement d'encre catalytique 60 directement sur une première face 54 du média 51 de couche de diffusion gazeuse à partir d'un réservoir d'encre 61 par un procédé de dépôt direct, par exemple par sérigraphie. La face opposée 55 du média 51 est non couverte. D'autres procédés de dépôt direct par exemple par enduction à l'aide d'un rouleau ou d'un racleur, ou par flexographie, voire par pulvérisation peuvent être utilisés pour appliquer l'encre sur la couche de diffusion gazeuse (GDL). Un procédé de dépôt indirect, par exemple par tampographie en utilisant un tampon de transfert en PTFE peut également être utilisé.

[0040] L'étape d'application du revêtement est suivie d'une étape de séchage. Cette étape peut se faire en exposant le média à l'air ambiant pendant une durée prédéterminée ou à l'aide d'un flux d'air soufflé, éventuellement chauffé à environ 100°C afin de réduire le temps de séchage du revêtement.

[0041] Le média 51 formant une couche de diffusion gazeuse du rouleau 59 recouverte de la deuxième couche de revêtement 30 est amenée ensuite par un dispositif de transfert, qui peut être une tête mobile comprenant une barrette venant en prise avec l'extrémité du média (non représentée), qui assure son déplacement jusqu'à venir se placer à

proximité d'un deuxième dispositif de découpe 80 (qui peut être un dispositif de coupe à couteau ou à laser) qui réalise la découpe du contour de la couche de diffusion gazeuse 50.

- [0042] Dans une autre variante, le média 51 de couche de diffusion gazeuse revêtu d'encre catalytique est enroulé en bobine avant de procéder à la découpe aux dimensions de la couche de diffusion gazeuse 50, la mise en tension du média étant faite dans ce cas à l'aide de rouleaux de mise en tension intermédiaires.
- [0043] Un deuxième rouleau 49 de média 41 de couche de diffusion gazeuse GDL est déroulé, mis en tension et amené à proximité d'un troisième dispositif de découpe 90 qui réalise la coupe du contour de la deuxième couche de diffusion gazeuse 40.
- [0044] La dernière étape du procédé concerne l'assemblage des composants du MEA. Pour ceci, on met en contact la face non couverte de la membrane 10 avec la face couverte d'encre catalytique formant l'électrode 30 de la première couche de diffusion gazeuse 50 et la face couverte de revêtement formant l'électrode 20 de la membrane 10 avec une face de la deuxième couche de diffusion gazeuse 40. L'assemblage de toutes les couches peut se faire par collage, par exemple en collant les deux couches de diffusion gazeuse 40 et 50 de part et d'autre de sous-ensemble de la figure 3.
- [0045] Un MEA ainsi obtenu est pris en sandwich entre deux plaques bipolaires pour former une cellule élémentaire d'une pile à combustible. On peut ensuite réaliser un empilement de plusieurs cellules élémentaires en fonction de la puissance recherchée pour la pile à combustible. L'empilement ainsi obtenu est ensuite fermé par des plaques terminales et il est connecté aux différents circuits qui assurent le fonctionnement de la pile à combustible.
- [0046] Le graphique de la figure 2 montre, par des traits espacés (balise en forme de triangle), les performances d'une pile à combustible de l'état de la technique dans laquelle l'assemblage membrane-électrode (MEA) est réalisé par la méthode CCM, jugée comme celle donnant les meilleurs résultats. On a également représenté sur le même graphique, par des traits en pointillé (balise en forme de carré), les performances d'une pile à combustible de l'invention dans laquelle l'assemblage membrane-électrode a été obtenu avec le procédé de l'invention (CCMix sur la figure 2). Mise à part la méthode de fabrication, les autres composants de la pile à combustibles sont identiques (y compris leurs matériaux, l'encre catalytique, etc.), ainsi que l'assemblage de l'empilement et le vieillissement des cellules. On observe de cette représentation graphique que les performances des deux piles à combustible sont très proches. On obtient ainsi une pile à combustible ayant de bonnes performances en fonctionnement, tout en utilisant un procédé de fabrication plus aisé.
- [0047] D'autres variantes et modes de réalisation de l'invention peuvent être envisagés sans sortir du cadre de ses revendications. Ainsi, le dépôt d'encre catalytique sur la

membrane ou sur la couche de diffusion gazeuse peut se faire par d'autres méthodes, telle l'extrusion, le calandrage ou un dépôt physique en phase vapeur.

- [0048] Par ailleurs, on peut utiliser le procédé de l'invention pour recouvrir de couche catalytique une membrane et une couche de diffusion gazeuse préalablement découpées (sous forme de feuilles). Dans une autre variante, on peut découper en feuille certains composants et les appliquer sur un autre sous forme de rouleau. Ainsi, on peut découper en feuille la GDL couverte et celle non couverte de couche catalytique et les appliquer ensuite chacune sur l'une des faces de la membrane préalablement recouverte d'une couche catalytique sur l'une de ces faces, la membrane étant sous forme de rouleau. Dans ce cas, la coupe d'un ensemble MEA aura lieu à la fin de l'opération d'assemblage.

Revendications

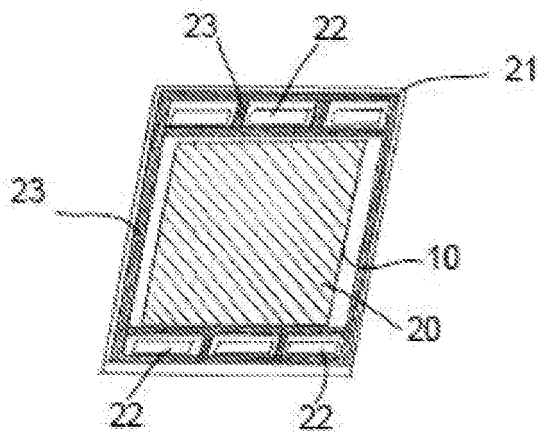
- [Revendication 1] Procédé de fabrication d'un assemblage membrane-électrode (100) pour pile à combustible comportant une membrane polymère échangeuse de protons (10), des couches catalytiques (20, 30) et une première et une deuxième couches de diffusion gazeuse (50, 40), le procédé comportant les étapes suivantes :
- a) former un revêtement de couche catalytique (20) sur une première face (14) de la membrane la face opposée (15) étant supportée par un intercalaire (12) ;
 - b) former un revêtement de couche catalytique (30) sur une première face (54) de la première couche de diffusion gazeuse (50) ;
 - c) mettre en contact ladite première face (54) de la première couche de diffusion gazeuse (50) avec la face opposée (15) à ladite première face (14) de la membrane, après avoir retiré l'intercalaire (12), et ladite première face (14) de la membrane avec une face de la deuxième couche de diffusion gazeuse (40), dans lequel la membrane (10) et les couches de diffusion gazeuses (50,40) sont obtenues par des étapes de découpe à des dimensions préétablies avant l'étape c).
- [Revendication 2] Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le revêtement de couche catalytique (20) formé à l'étape a) correspond à la partie cathodique de la membrane (10).
- [Revendication 3] Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que le revêtement de couche catalytique (20,30) est obtenu par un procédé de dépôt direct d'une encre catalytique sur l'une des faces de la membrane (10) et sur l'une des faces de la couche de diffusion gazeuse (50) par un procédé compris dans le groupe comprenant : la sérigraphie, l'enduction, la flexographie, la pulvérisation.
- [Revendication 4] Procédé selon la revendication 3, caractérisé en ce que le dépôt est suivi d'une étape de séchage.
- [Revendication 5] Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il comporte une étape supplémentaire de collage sur le rebord de chacune des faces de la membrane (10) d'un renfort (21) porteur d'un joint d'étanchéité (23).
- [Revendication 6] Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'assemblage de l'étape c) se fait par collage.
- [Revendication 7] Ligne d'assemblage pour réaliser la mise en œuvre du procédé de fabrication d'un assemblage membrane électrode (100) selon les reven-

dications précédentes.

[Revendication 8]

Pile à combustible comportant au moins une cellule comprenant un assemblage membrane électrode (100) obtenu avec le procédé des revendications 1 à 6, l'assemblage étant pris en sandwich entre deux plaques bipolaires.

[Fig. 3]

**Fig 3**

RAPPORT DE RECHERCHE

articles L.612-14, L.612-53 à 69 du code de la propriété intellectuelle

OBJET DU RAPPORT DE RECHERCHE

L'I.N.P.I. annexe à chaque brevet un "RAPPORT DE RECHERCHE" citant les éléments de l'état de la technique qui peuvent être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention, au sens des articles L. 611-11 (nouveau) et L. 611-14 (activité inventive) du code de la propriété intellectuelle. Ce rapport porte sur les revendications du brevet qui définissent l'objet de l'invention et délimitent l'étendue de la protection.

Après délivrance, l'I.N.P.I. peut, à la requête de toute personne intéressée, formuler un "AVIS DOCUMENTAIRE" sur la base des documents cités dans ce rapport de recherche et de tout autre document que le requérant souhaite voir prendre en considération.

CONDITIONS D'ETABLISSEMENT DU PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

☒ Le demandeur a présenté des observations en réponse au rapport de recherche préliminaire.

☐ Le demandeur a maintenu les revendications.

☒ Le demandeur a modifié les revendications.

☐ Le demandeur a modifié la description pour en éliminer les éléments qui n'étaient plus en concordance avec les nouvelles revendications.

☐ Les tiers ont présenté des observations après publication du rapport de recherche préliminaire.

☐ Un rapport de recherche préliminaire complémentaire a été établi.

DOCUMENTS CITES DANS LE PRESENT RAPPORT DE RECHERCHE

La répartition des documents entre les rubriques 1, 2 et 3 tient compte, le cas échéant, des revendications déposées en dernier lieu et/ou des observations présentées.

☒ Les documents énumérés à la rubrique 1 ci-après sont susceptibles d'être pris en considération pour apprécier la brevetabilité de l'invention.

☐ Les documents énumérés à la rubrique 2 ci-après illustrent l'arrière-plan technologique général.

☐ Les documents énumérés à la rubrique 3 ci-après ont été cités en cours de procédure, mais leur pertinence dépend de la validité des priorités revendiquées.

☐ Aucun document n'a été cité en cours de procédure.

**1. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE SUSCEPTIBLES D'ETRE PRIS EN
CONSIDERATION POUR APPRECIER LA BREVETABILITE DE L'INVENTION**

EP 2 047 553 A1 (ASAHI GLASS CO LTD [JP];
PANASONIC CORP [JP])
15 avril 2009 (2009-04-15)

US 2006/240311 A1 (DZIALLAS HOLGER [DE])
26 octobre 2006 (2006-10-26)

WO 2018/115629 A1 (MICHELIN & CIE [FR])
28 juin 2018 (2018-06-28)

**2. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE ILLUSTRANT L'ARRIERE-PLAN
TECHNOLOGIQUE GENERAL**

NEANT

**3. ELEMENTS DE L'ETAT DE LA TECHNIQUE DONT LA PERTINENCE DEPEND
DE LA VALIDITE DES PRIORITES**

NEANT