

(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2010-510624

(P2010-510624A)

(43) 公表日 平成22年4月2日(2010.4.2)

(51) Int.Cl.

HO1M 8/02 (2006.01)  
HO1M 8/10 (2006.01)

F 1

HO1M 8/02  
HO1M 8/02  
HO1M 8/10

E

S

テーマコード(参考)

5HO26

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 25 頁)

(21) 出願番号 特願2009-537151 (P2009-537151)  
 (86) (22) 出願日 平成19年11月5日 (2007.11.5)  
 (85) 翻訳文提出日 平成21年7月7日 (2009.7.7)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2007/023326  
 (87) 国際公開番号 WO2008/063399  
 (87) 国際公開日 平成20年5月29日 (2008.5.29)  
 (31) 優先権主張番号 11/560,591  
 (32) 優先日 平成18年11月16日 (2006.11.16)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

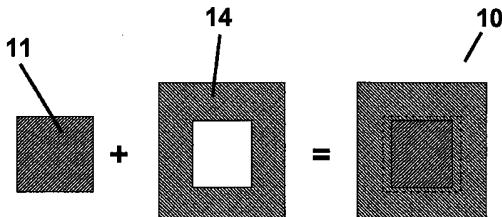
(71) 出願人 598123677  
 ゴア エンタープライズ ホールディングス、インコーポレイティド  
 アメリカ合衆国、デラウェア 19714-9206、ニューアーク、ポスト オフィス ボックス 9206、ペーパー ミル ロード 551  
 (71) 出願人 509138143  
 ダブリュ. エル. ゴア アンド アソシエーツ、ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング  
 ドイツ連邦共和国、85636 プツツブルン、ポストファッハ 1154  
 (74) 代理人 100099759  
 弁理士 青木 篤

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】縁付きの完全に触媒化された膜組立体

## (57) 【要約】

固体高分子電解質膜と、固体高分子電解質膜の1つの面全体を実質的に覆う電極と、電極の開放面と部分的に重なり合うように、電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられた構造フィルム層とを備える、触媒被覆膜組立体。構造フィルム層を使用することにより、大量に高い歩留りで組立体を製造することができ、組立体のコストを低減できる。



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

(a) 対向する面を有する固体高分子電解質膜と；  
 (b) 該固体高分子電解質膜の該面の少なくとも一方を覆う触媒を含み、かつ該高分子電解質膜と同一の広がりをもつ電極であって、複数の側を有する完全に触媒化された膜組立体を形成する、電極と；  
 (c) 該完全に触媒化された膜組立体の少なくとも2つの対向する側に結合されて、該電極と部分的に重なり合う、構造フィルム層と  
 を備える組立体。

**【請求項 2】**

前記構造フィルム層が、前記電極の全ての側に結合されている、請求項1に記載の組立体。

**【請求項 3】**

前記構造フィルムを前記完全に触媒化された膜組立体に結合するガスシール手段をさらに備える、請求項1に記載の組立体。

**【請求項 4】**

前記ガスシール手段が、前記電極の少なくとも一部に吸収された前記構造フィルム層を含む、請求項3に記載の組立体。

**【請求項 5】**

前記ガスシール手段が接着剤を含む、請求項3に記載の組立体。

**【請求項 6】**

前記接着剤が、前記電極の外側部分の少なくとも一部に吸収されている、請求項5に記載の組立体。

**【請求項 7】**

前記固体高分子電解質が、ペルフルオロスルホン酸イオノマーを含む、請求項6に記載の組立体。

**【請求項 8】**

前記固体高分子電解質が、延伸ポリテトラフルオロエチレンをさらに含む、請求項7に記載の組立体。

**【請求項 9】**

前記構造フィルム層がポリエチレンナフタレートを含む、請求項8に記載の組立体。

**【請求項 10】**

前記接着剤が、テトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂を含んでなる、請求項9に記載の組立体。

**【請求項 11】**

前記組立体が少なくとも1つのガス拡散層を含む、請求項5に記載の組立体。

**【請求項 12】**

前記組立体がシールガスケットをさらに含む、請求項11に記載の組立体。

**【請求項 13】**

前記電極がアノードであり、前記構造フィルム層が該アノードと重なり合う、請求項1に記載の組立体。

**【請求項 14】**

前記電極がアノードであり、前記構造フィルム層が該カソードと重なり合う、請求項1に記載の組立体。

**【請求項 15】**

前記構造フィルム層が、前記完全に触媒化された膜組立体の端面を越えて延在する、請求項1に記載の組立体。

**【請求項 16】**

(a) 2つの面を有する固体高分子電解質膜と；

(b) 該高分子電解質膜の第1面全体を実質的に覆う第1電極と；

10

20

30

40

50

(c) 該高分子電解質膜の第2面全体を実質的に覆う第2電極と；  
 (d) 該第1電極の開放面と部分的に重なり合うように、該第1電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられる第1構造フィルム層と；  
 (e) (i) 該第2電極の開放面と部分的に重なり合うように、該第2電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられるか、(ii) 該第1構造フィルム層に取り付けられるか、あるいは(i)と(ii)の両方に取り付けられる、第2構造フィルム層とを備える、触媒被覆膜組立体。

**【請求項17】**

前記第1構造フィルム層もしくは前記第2構造フィルム層のいずれか一方又はそれら両方が、前記電極の外部領域全てと重なり合っている、請求項16に記載の触媒被覆膜。 10

**【請求項18】**

前記第1構造フィルム層及び前記第2構造フィルム層の少なくとも一方が、接着剤で前記第1電極又は前記第2電極に取り付けられている、請求項16に記載の触媒被覆膜。

**【請求項19】**

前記第1構造フィルム層又は前記第2構造フィルム層が、取り付けられる前記第1電極又は前記第2電極の外側領域の少なくとも一部に吸収されている、請求項16に記載の触媒被覆膜。

**【請求項20】**

前記第1構造フィルム層又は前記第2構造フィルム層が、接着剤で前記第1電極又は前記第2電極に取り付けられている、請求項17に記載の触媒被覆膜。 20

**【請求項21】**

前記接着剤が、前記第1電極又は前記第2電極のいずれかの外側部分の少なくとも一部に吸収されている、請求項20に記載の触媒被覆膜。

**【請求項22】**

前記固体高分子電解質が、ペルフルオロスルホン酸イオノマーを含む、請求項21に記載の触媒被覆膜。

**【請求項23】**

前記固体高分子電解質が、延伸ポリテトラフルオロエチレンをさらに含む、請求項22に記載の触媒被覆膜。

**【請求項24】**

前記第1構造フィルム層もしくは前記第2構造フィルム層又はそれら両方が、ポリエチレンナフタレートを含む、請求項23に記載の触媒被覆膜。 30

**【請求項25】**

前記接着剤が、テトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂を含んでなる、請求項24に記載の触媒被覆膜。

**【請求項26】**

請求項20に記載の触媒被覆膜を用いた組立体であって、少なくとも1つのガス拡散層を含む、組立体。

**【請求項27】**

前記組立体がシールガスケットをさらに含む、請求項26に記載の組立体。 40

**【請求項28】**

(a) 固体高分子電解質膜と、該固体高分子電解質膜に取り付けられた、開放面と外側領域を有する少なくとも1つの電極とを備える、完全に触媒化された膜組立体を用意することと；

(b) 該電極の開放面と部分的に重なり合うように、該電極の少なくとも2つの対向する外部領域に構造フィルム層を取り付けることと

を含む、組立体の製造方法。

**【請求項29】**

工程(b)で前記構造フィルム層を取り付けることに接着剤を使用することが含まれる、請求項28に記載の、組立体の製造方法。 50

**【請求項 3 0】**

前記接着剤が熱可塑性ポリマーである、請求項29に記載の方法。

**【請求項 3 1】**

前記接着剤が、テトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂を含んでなる、請求項30に記載の方法。

**【請求項 3 2】**

(c) 前記電極の少なくとも1つにガス拡散層を適用すること、をさらに含む、請求項28に記載の、組立体の製造方法。

**【請求項 3 3】**

(c) 前記構造フィルム層にシールガスケットを適用すること、をさらに含む、請求項28に記載の、組立体の製造方法。 10

**【請求項 3 4】**

(d) 前記構造フィルム層にシールガスケットを適用すること、をさらに含む、請求項32に記載の、組立体の製造方法。

**【請求項 3 5】**

請求項1に記載の組立体を含む、燃料電池。

**【請求項 3 6】**

請求項15に記載の触媒被覆膜を含む、燃料電池。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】**

20

**【0001】**

本発明は、高分子電解質膜(PEM)燃料電池に関し、より詳細には、PEM燃料電池で使用するための、縁付きの完全に触媒化された膜組立体に関する。

**【背景技術】****【0002】**

高分子電解質膜燃料電池(PEMFC)の中心的要素はイオン交換膜である。典型的には、膜はアノードとカソードの間に配置される。電極は、燃料(水素燃料電池の場合アノード)及び酸化剤(水素燃料電池の場合酸素)の反応を促進する触媒を含有し、様々な貴金属又は他の周知の触媒を含むことができる。「触媒被覆膜」(CCM)とは、少なくとも1つの膜と、その膜に隣接する触媒を含有する少なくとも1つの電極との組み合わせを意味する。完全に触媒化された膜組立体(FCMA)は、少なくとも1つの電極が、隣接する膜の全面を実質的に覆っている(すなわち電極が膜と同一の広がりをもつ)CCMである。典型的な触媒被覆膜では、膜の一方の表面にアノードが結合され、膜の他方の表面にカソードが結合されているが、そのように結合されていることは本質ではない。 30

**【0003】**

PEMFCにおいて、膜は、燃料電池の動作中の、一方の電極から他方へのイオン移動を促進する。理想的には、イオンが電極間をできるだけ速やかに移動できるように膜は可能な限り薄くされる。しかしながら、膜は薄くなるほど一般に弱くなる。そのため、膜の強化が必要である。これに対する方策の1つは、強化材を膜の内部に組み入れることである。そのような方策の例は、Bahrらの米国再発行特許第37307号に具現化されており、そこでは膜の支持体として延伸ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)などの多孔質材料を使用することが開示されている。 40

**【発明の概要】****【発明が解決しようとする課題】****【0004】**

しかしながら、状況によっては、膜のより一層の強化及びその膜から形成されたCCMが必要とされる。典型的には炭素繊維紙から作られるガス拡散層を含む組立体に膜を使用する場合、炭素繊維は膜を穿刺することが時々あって、そのため組立体を短絡してその性能を低下させるか損ねることが知られている。組立体の穿刺は、組立体自体の製造工程中に生じる場合があり、あるいは型締圧によりシール成形工程中に生じる場合もある。また

40

50

穿刺は使用中経時で生じる場合もあり、加工又はスタッツ組み立て中の取り扱いを通じて生じる場合もある。そのため、ガス拡散媒体の纖維による穿刺から膜を保護することが望ましい。

#### 【0005】

さらに、膜及びCCMのための追加の支持体が、全体の寸法安定性を高めるためにしばしば必要とされる。湿度などの環境条件あるいは単なる膜の取り扱いによって、膜が損傷する場合がある。この寸法安定性を高める追加の補強材及び支持体が望まれている。

#### 【0006】

そのような追加の支持体を提供する典型的な試みには、電極の面に加えて電極の端面がエラストマーでシールされるように、エラストマー材料を電極の外部領域に直接吸収させることが含まれる。本明細書で使用する膜の「面」とは、燃料電池の動作中に膜を通る主イオン流に対して垂直となる膜の表面である。電極の「面」とは、燃料電池の動作中に膜を通る主イオン流に対して垂直となる膜-電極界面と反対側の電極の表面である。電極の「端面」とは、膜を通る主イオン流に対して平行であります電極の面に垂直となる表面である。電極の「外部領域」とは、電極端面近傍の電極の体積であり、電極の面から電極/膜界面までの端面近傍の体積、又はその任意の部分を含む。エラストマー材料を電極の外部領域に直接吸収させることの欠点は、エラストマーの形成中に電極及び/又は膜が簡単に損傷するおそれがあることである。そのためこの設計に関連する材料及び加工のコストは高い。寸法安定性を高め穿刺から保護するための構造支持体を有し、また既存の設計と比べて製造がより効率的である、より優れた組立体が望まれている。

10

20

30

40

#### 【0007】

本明細書で使用する「組立体」とは、少なくとも1つの膜と構造支持体の組み合わせを意味するが、「組立体」に他の構成要素、例えば電極、ガス拡散媒体、シールガスケットなどが含まれてもよい。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0008】

本願により具現化される発明は、固体高分子電解質膜と、固体高分子電解質膜の少なくとも一方の面全体を実質的に覆う電極と、電極の開放面と部分的に重なり合うように、電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられた構造フィルム層とを含む触媒被覆膜組立体である。追加実施態様では、このCCM組立体は、接着剤で電極に取り付けられた構造フィルム層を有してもよく、あるいは電極の外部領域の少なくとも一部に吸収させた構造フィルム層を有してもよい。このような組立体を燃料電池で使用することも本発明の実施態様である。

#### 【0009】

本発明の追加実施態様には、固体高分子電解質膜と、固体高分子電解質膜の少なくとも一方の面全体を実質的に覆う電極と、電極の開放面と部分的に重なり合うように電極の外部領域の全てに取り付けられた構造フィルム層とを含む触媒被覆膜が含まれる。さらに、構造フィルム層は接着剤で電極に取り付けられていてもよい。また、接着剤を電極の外側部分の少なくとも一部に吸収させてもよい。これらのCCMは、ペルフルオロスルホン酸イオノマー、及び/又は延伸ポリテトラフルオロエチレンを含む固体高分子電解質を使用してもよい。これらの実施態様における構造フィルム層は、ポリエチレンナフタレートを含んでもよく、テトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂を含んでもよい。接着剤を使用する場合、接着剤にテトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂が含まれてもよい。

#### 【0010】

本発明の追加実施態様には、組立体がさらに少なくとも1つのガス拡散層を含む、上記2つの段落に記載した触媒被覆膜のいずれかを用いた組立体が含まれる。さらに、これらの組立体はいずれもシールガスケットを含んでもよい。

#### 【0011】

本発明のさらに追加の実施態様には、2つの面を有する固体高分子電解質膜と、高分子

50

電解質膜の第1面全体を実質的に覆う第1電極と、高分子電解質膜の第2面全体を実質的に覆う第2電極と、第1電極の開放面と部分的に重なり合うように、第1電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられる第1構造フィルム層と、(i)第2電極の開放面と部分的に重なり合うように、第2電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられるか、(ii)第1構造フィルム層に取り付けられるか、あるいは(i)と(ii)の両方に取り付けられる、第2構造フィルム層とを備える、触媒被覆膜組立体が含まれる。このような組立体を燃料電池で使用することも本発明の実施態様である。

#### 【0012】

本発明のさらなる実施態様には、第1構造フィルム層もしくは第2構造フィルム層のいずれか一方又はそれら両方が接着剤で電極に取り付けられているか、あるいは第1構造フィルム層又は第2構造フィルム層を、それらが取り付けられる第1電極又は第2電極の外側領域の少なくとも一部に吸収させた、上記段落の触媒被覆膜組立体が含まれる。

10

#### 【0013】

本発明の他の実施態様では、触媒被覆膜組立体は、2つの面を有する固体高分子電解質膜と、高分子電解質膜の第1面全体を実質的に覆う第1電極と、高分子電解質膜の第2面全体を実質的に覆う第2電極と、電極の開放面と部分的に重なり合うように、電極の外部領域全てに取り付けられる第1構造フィルム層と、(i)第2電極の開放面と部分的に重なり合うように、第2電極の少なくとも2つの対向する外部領域に取り付けられるか、(ii)第1構造フィルム層に取り付けられるか、あるいは(i)と(ii)の両方に取り付けられる、第2構造フィルム層とを備える。これらの組立体は、接着剤で第1電極又は第2電極に取り付けられた第1構造フィルム層又は第2構造フィルム層のいずれかを有してもよい。さらに、接着剤を第1電極又は第2電極のいずれかの外側部分の少なくとも一部に吸収させててもよい。これらのCCMは、ペルフルオロスルホン酸イオノマー、及び/又は延伸ポリテトラフルオロエチレンを含む固体高分子電解質を使用してもよい。これらの実施態様における構造フィルム層は、ポリエチレンナフタレートを含んでもよく、テトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂を含んでもよい。接着剤を使用する場合、接着剤にテトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂が含まれてもよい。組立体が少なくとも1つのガス拡散層を含んでもよく、シールガスケットをさらに含んでもよい。

20

#### 【0014】

本発明のさらなる実施態様には、(a)固体高分子電解質膜と、固体高分子電解質膜に取り付けられた少なくとも1つの電極とを備える、完全に触媒化された膜組立体を用意することと；(b)電極の開放面と部分的に重なり合うように、電極の少なくとも2つの対向する外部領域に構造フィルム層を取り付けることとを含む、触媒被覆膜組立体の製造方法が含まれる。そのような方法では、工程(b)で接着剤を使用して構造フィルム層を取り付けてもよく、その接着剤は、熱可塑性ポリマー、又はテトラフルオロエチレンを含むフッ素系熱可塑性樹脂であってよい。本発明のさらなる実施態様には、ガス拡散層が電極の少なくとも1つに適用される、又はシールガスケットが構造フィルム層に適用される、追加の工程(c)が含まれるか、あるいはガス拡散層及びシール層の両方が組立体に適用される2つの追加の工程(c)及び(d)が含まれる。

30

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0015】

【図1(a)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

40

【図1(b)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図1(c)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図2(a)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図2(b)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施

50

態様の側方横断面図である。

【図2(c)】単一の構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図3(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図3(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図3(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図4(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。10

【図4(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図4(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図5(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図5(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図5(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。20

【図6(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図6(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図6(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図7(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図7(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。30

【図7(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図8(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図8(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図8(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図9(a)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。40

【図9(b)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図9(c)】2つの構造フィルム層を有する組立体を示す、本発明の典型的な代替実施態様の側方横断面図である。

【図10(a)】本発明の典型的な実施態様の上面図である。

【図10(b)】本発明の典型的な実施態様の上面図である。

【図11(a)】組立体がガス拡散媒体を含む、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図11(b)】組立体がガス拡散媒体を含む、本発明の典型的な実施態様の側方横断面50

図である。

【図11(c)】組立体がガス拡散媒体を含む、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図12】組立体がシールガスケットを含む、本発明の典型的な実施態様の側方横断面図である。

【図13(a)】構造フィルム層を有する本発明物を作る製造方法の一実施態様を模式的に示す図である。

【図13(b)】構造フィルム層を有する本発明物を作る製造方法の一実施態様を模式的に示す図である。

【図14(a)】構造フィルム層を有する本発明物を作る製造方法の他の実施態様を模式的に示す図である。 10

【図14(b)】構造フィルム層を有する本発明物を作る製造方法の他の実施態様を模式的に示す図である。

#### 【発明を実施するための形態】

##### 【0016】

本発明は、膜と同じ広がりをもつすなわち膜の全面を覆う電極を、1つ又は両方の電極の面の外側領域と重なり合う構造フィルム層と組み合わせて備える組立体に具現化されている。本明細書で使用する「構造フィルム層」とは、硬い非エラストマーの固体を意味する。構造フィルム層は圧縮性をほとんど示さない。その機能はシールを行うことではない。本明細書で使用する非エラストマーポリマーは、室温で元々の長さの少なくとも2倍に繰り返し伸長させた後に、その元々の長さまで実質的に戻らないポリマーである。本明細書で使用する「重なり合う」とは、構造フィルム層が、1つ又は両方の電極の面の外側領域の一部の上にあり、そしてその部分を覆っていることを意味する。 20

##### 【0017】

本発明の典型的な実施態様の横断面を図1(a)に示す。そこでは、構造フィルム層14と合わさったCCM11を備える組立体10が示されている。この構造の2つの異なる典型的な実施態様を、構造フィルム層とCCMの重なり合う領域の一側面を拡大して、図1(b)及び1(c)に示す。図1(b)ではCCM11は膜12並びに2つの電極13及び13'を含む。構造フィルム層14は電極13と重なり合い結合している。図1(c)では構造フィルム層14は電極13の外側領域に吸収されている。吸収された領域16は、(図に示すように)外側領域の一部のみを含んでもよく、電極の面から電極-膜界面まで重なり合う構造フィルム材料の外側領域全体を含んでもよい(不図示)。図1(b)と1(c)に示す実施態様の違いの1つは、前者では電極13の端面が実質的に開放しており、一方後者ではその端面が構造フィルム材料で部分的に又は全体的に覆われていることである。 30

##### 【0018】

図2は本発明の他の典型的な実施態様を示す。組立体10は接着剤15を使用することにより構造フィルム層14と合わさっている。この構造の2つの異なる典型的な実施態様を、構造フィルム層とCCMの重なり合う領域の一側面を拡大して、図2(b)及び2(c)に示す。図2(b)ではCCM11は膜12並びに2つの電極13及び13'を含む。構造フィルム層14は電極13と重なり合い接着剤15によって結合している。図2(c)では接着剤15は電極13'の外側領域に吸収されている。吸収された領域18は、(図に示すように)外側領域の一部のみを含んでもよく、電極の面から電極-膜界面まで重なり合う構造フィルム材料の外側領域全体を含んでもよい(不図示)。これらの実施態様では、接着剤の量とタイプに加えて使用する加工条件を適宜制御して、CCM11の端面の被覆量を操作することができる。言い換えると、接着剤が電極13の端面をほとんど又は全く覆わないようにもでき、電極13の端面の全て又はその一部のみを覆うようにもできる。さらに、十分な接着剤を使用すれば、膜の端面、さらには反対側の電極13'の端面を覆うこともできる。好みしい実施態様では、組立体の1つの側から他の側へガスが内部リークすることを防ぐことから、少なくとも電極13の端面が完全に覆われている。 40 50

ガスのリークを防止することが本発明の利点である。ガスシール手段は接着剤自体であってもよく、電極に構造フィルム層を吸収させることでもよい。「ガスシール」とは、少なくとも1つの実質的に非孔質の固体によって、反応物質と酸化性ガスが分離されていることを意味する。また、MEAに接着剤をさらに機械的に固定することが望ましい場合、電極の重なり合い領域の中に穴を配置してもよく、例えば表面をローレット加工することにより電極の重なり合い領域に表面粗さを付加してもよい。

#### 【0019】

燃料電池でカソード又はアノードのどちらとして使用されるかにより、必要に応じて、図1～2に示す電極13及び13'の組成を異なるものにしてもよい。図1～2に示す構造フィルム層14を、アノードとして使用される電極の上、又はカソードとして使用される電極の上に配置することができる。接着剤が結合に使用される場合(図2)、接着剤が構造フィルム層の反対側の面に存在してもよい。構造フィルム層が両方の表面に接着剤を有する実施態様では、各表面で接着剤の組成が同じである必要はない。

10

#### 【0020】

本発明の追加実施態様を図3～9に示す。これらの実施態様では、2つの構造フィルム層を使用する。図3では2つの構造フィルム層14及び14'が、それぞれがほぼ同じ量で対応する電極に重なり合うように、CCM11の第1及び第2電極13及び13'の両方に取り付けられている。図3(b)に示す実施態様では構造フィルム層は電極に吸収されていない。一方で、図3(c)に示す実施態様ではある領域16で構造フィルム層が電極に吸収されている。これらの実施態様では、小さいすき間19が必要に応じて存在してもよい。すき間の存在及び大きさは、構造フィルム層を電極に結合する工程の性質及び構造フィルム層の組成に左右される。より低温で流動する傾向が高い、より低融点の熱可塑性ポリマーでそうであるように、熱及び圧力を高めるとすき間の体積が減少する。また、電極に吸収させるとすき間が減る傾向がある。図3(c)では、吸収された部分16は、(図に示すように)外側領域の一部のみを含んでもよく、電極の面から電極-膜界面まで重なり合う構造フィルム材料の外側領域全体を含んでもよい(不図示)。2つの電極13及び13'に吸収させる範囲は、必要であれば異なっていてもよい。

20

#### 【0021】

図4では、接着剤15が使用されて、2つの構造フィルム層がそれらの対応する電極に結合される。図4(b)では2つの構造フィルム層14及び14'が、それぞれがほぼ同じ量で対応する電極に重なり合うように、接着剤15を用いて膜12の第1及び第2電極13及び13'の両方に取り付けられている。図4(b)に示す実施態様では構造フィルム層は電極に吸収されておらず、一方で図4(c)に示す実施態様では吸収されている。図4(c)では、吸収された部分18は、(図に示すように)外側領域の一部のみを含んでもよく、電極の面から電極-膜界面まで重なり合う構造フィルム材料の外側領域全体を含んでもよい(不図示)。2つの電極13及び13'に吸収させる範囲は、必要であれば異なっていてもよい。

30

#### 【0022】

本発明のさらなる実施態様を図5に示す。この実施態様では、2つの構造フィルム層を使用したときに、重なり合いが同一である必要がないことを示す。この実施態様は、構造フィルム層14'の重なり合いが構造フィルム層14の重なり合いと比べて少ないことを除き、図3に示したものと同様である。この実施態様の他の特徴は、図3について説明したものと同様である。

40

#### 【0023】

本発明のさらなる実施態様を図6に示す。この実施態様では、結合を高めるために接着剤を存在させたときに2つの構造フィルム層を使用した場合、重なり合いが同一である必要がないことを示す。この実施態様は、構造フィルム層14'の重なり合いが構造フィルム層14の重なり合いと比べて少ないことを除き、図4に示したものと同様である。この実施態様の他の特徴は、図4について説明したものと同様である。

#### 【0024】

50

本発明のさらなる実施態様を図7に示す。ここでは、第2構造フィルム層14'が第2電極13'と全く重なり合っておらず、CCM11の端面に対して突き合わされていて、第1構造フィルム層14と結合している。第1構造フィルム層を、電極に部分的に吸収させる(図7(c)の18)、完全に吸収させる(不図示)、又は全く吸収させない(図7(b))ことが可能である。

#### 【0025】

図8及び9に示す本発明のさらなる実施態様では、第2構造フィルム層は第2電極13'の外側部分を覆っておらず、接着剤15で第1構造フィルム層14に結合されている。結合に使用する接着剤を、第1電極に部分的に吸収させる(図8(c)及び図9(c)の18)、完全に吸収させる(不図示)、又は全く吸収させない(図8(b)及び9(b))ことが可能である。必要に応じて、接着剤は第1電極の外側部分も覆わずに、第1及び第2構造フィルム層の間に存在していてもよい。さらに、第2構造フィルム層14'は、図8に示すようにCCM11の端面に対して突き合わされてもよく、図9に示すようにCCM11の端面に近接していてもよい。後者の場合、CCMと第2構造フィルム層の間のギャップ19を接着剤が満たすことが好ましいが、必須ではない。

10

#### 【0026】

2つの構造フィルム層が存在する図3~9に示された実施態様では、2つの層が同じ組成である必要はないが、同じであることが好ましい。さらに、これらの実施態様で結合に接着剤を使用する場合、接着剤は、2つの構造フィルム層のうち1つに存在していれば充分である。代わりに2つの構造フィルム層の一方又は両方の表面に接着剤が存在してもよい。構造フィルム層が両方の表面に接着剤を有する実施態様では、各表面で組成が同じである必要はない。さらに、2つの構造フィルム層に使用する組成は、必要であれば異なっていてもよい。

20

#### 【0027】

本発明により製造される組立体の好適な形状は実質的に長方形であるが、必要であれば、円形、橢円形又は他の異形の領域を含む、任意の領域を使用することもできる。4つの定義可能な辺を有する実質的に長方形の組立体については、CCM11の上面から構造フィルム層14を有する組立体10の上面を見下ろした平面図で図10(a)に図示するように、構造フィルム層は4つの全ての辺に存在することが好ましい。本発明の他の実施態様では、構造フィルム層14の2つのストリップを、図10(b)に示すようにCCM11の対向する辺のみに存在する構造フィルム層を完成した組立体が有するように使用してもよい。本明細書で使用する「対向する辺」とは、互いに実質的に反対にある辺を意味する。長方形の組立体については、対向する辺は図10(b)に示すように互いに実質的に平行であるが、非長方形の場合はそうでなくてもよい。

30

#### 【0028】

本発明における組立体には、公知の高分子電解質膜、例えば以下に限られないが、フェノール硫酸；ポリスチレンスルホン酸；フッ素化スチレンスルホン酸；全フッ素化スルホン酸；スルホン化ポリ(アリールエーテルケトン)；フタラジノン及びフェノール基、並びに少なくとも1種のスルホン化芳香族化合物を含むポリマー；ポリマー骨格に1又は複数のイオン性の酸性官能基が結合している、芳香族エーテル、イミド、芳香族イミド、炭化水素又は全フッ素化ポリマーを含む組成物を使用することができる。そのようなイオン性の酸性官能基として、以下に限られないが、スルホン酸基、スルホンイミド基又はホスホン酸基を挙げることができる。さらに、イオン交換材料は、複合膜を形成する補強材を必要に応じてさらに含んでもよい。補強材はポリマー材料であることが好ましい。ポリマーは、ポリマーフィブリル及び必要に応じてノードからなる多孔質微細構造を有する微多孔質膜であることが好ましい。そのようなポリマーは好ましくは延伸ポリテトラフルオロエチレンであるが、その代わりに以下に限られないがポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィンを含んでもよい。イオン交換材料は膜全体に含浸されており、ここでイオン交換材料は微多孔質膜に実質的に含浸されて、Bahaらの米国再発行特許第37307に実質的に記載されているように膜の内部体積を実質的に閉塞し、それによって複

40

50

合膜を形成する。特に好適な膜はW . L . G o r e & A s s o c i a t e s から入手可能なG O R E - S E L E C T (登録商標) イオノマー膜である。

【0029】

図1~9の電極13及び13'は公知の任意の組成であってよく、例えば以下に限られないが、酸素の還元又は燃料の酸化のための触媒として作用しうる白金又は他の貴金属を含む電極であり、さらに様々な他の構成要素例えばイオノマー、気孔又は他の種類のものを含んでもよい。特に好適な電極は、炭素に担持された白金又は白金合金とペルフルオロスルホン酸ポリマーを含有する多孔質複合電極である。

【0030】

構造フィルム層の組成には、以下に限られないが、様々な熱可塑性ポリマー又は熱硬化性ポリマー例えばP E N (ポリエチレンナフタレート)；非多孔質ポリプロピレン；ポリスチレン；硬質ポリ塩化ビニル；ポリイミド；アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン(A B S)共重合体；ポリアミド；アクリル樹脂；アセタール樹脂；硬質セルロース；ポリカーボネート；ポリエステル；フェノール樹脂；尿素-メラミン樹脂；エボキシ樹脂；ウレタン樹脂；フッ素系熱可塑性ポリマー例えばF E P (テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンのポリマー)もしくはT H V (テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン及びフッ化ビニリデンのターポリマー)及びガラス充填シリコーン熱硬化性樹脂；金属箔例えばアルミニウム箔、金箔、銀箔など；又はセラミックス例えばアルミナ、シリカなどの薄層が含まれてもよい。

【0031】

好適な構造フィルム層はポリエチレンナフタレート(P E N)材料である。周知のように、P E N材料は必要であれば結合力を高めるプライマーを表面に有してもよい。構造フィルム層の厚さは約0.075mm(0.003インチ)未満であることが好ましい。また、構造フィルム層は、電極への結合を促進する接着剤をその内部又はその表面の少なくとも1つに有してもよい。任意の適当な接着剤を使用できるが、フッ素系熱可塑性樹脂例えばテトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン及びフッ化ビニリデンのターポリマー(例えばD y n e o n (商品名)T H Vフッ素系熱可塑性樹脂)が好ましい。構造フィルム層の両側に接着剤が必要な場合、それぞれの側に使用する組成は異なっていてもよい。例えば、一方の側に他方の側より高い融点の接着剤を設けて、2つの構造フィルム層を使用する多段階の製造工程を補助することが望ましい場合がある。接着剤は、公知の標準的な工程例えば以下に限られないが積層、押出又はディップコーティングを用いて、構造フィルム層に適用することができる。

【0032】

本発明の組立体は、必要であれば追加の構成要素、例えば以下に限られないが、1つ又は両方の電極にあるガス拡散層、及び/又は、電極、1もしくは複数の構造フィルム層、もしくはガス拡散層が存在する場合はガス拡散層に適用された、シール材料を含んでもよい。例えば、図1~9に図示された実施態様のそれにおいて、1つ又は両方の電極にガス拡散層を適用することができる。これらの実施態様を説明する2つの特定実施態様が図11に示されており、そこではガス拡散層200がC C M 11の上面及び下面に適用されている。図11(a)は単一の構造フィルム層を有する一実施態様を図示し、一方図11(b)は2つの構造フィルム層を有する実施態様を図示する。両方の場合において、接着剤15が構造フィルム層の両方の表面に適用されている。接着剤は必須ではないが組立体へのガス拡散層の結合を促進するため好ましい。示されているように構造フィルム層はガス拡散層を越えて延在するが、ガス拡散層と同一の広がりであってよい。あるいは図11(b)の場合、1つの構造フィルム層がガス拡散層と同一の広がりであってよく、他方はそうでなくてもよい。また、所望であれば、接着層は必要に応じてガス拡散層の中に浸潤していてもよい(図11には不図示)。図11に示す実施態様では、C C Mとガス拡散層の間のギャップ201が示されている。所望であればこのギャップの範囲は最小にできる及び/又は制御できる。ガス拡散層はいくらか柔軟であって圧力を与えた場合配置中にギャップを満たす傾向があることがその理由である。あるいは、比較的大きい圧力が与

10

20

30

40

50

えられる燃料電池の組み立て中にギャップは一般に減少する。また、ガス拡散層がCCMのみと接触し構造フィルム層と重なり合わないように、図11(c)に示すようにガス拡散層の大きさを小さくすることによって、所望であればギャップをなくすことができる。

### 【0033】

図1~11に示す本発明の実施態様のそれぞれにおいて、追加のシールが必要であれば、ガスケットを組立体の外側に配置又は成形することができる。ガスケットは構造フィルム層と同一の広がりであってよく、又は構造フィルム層の端面を覆ってもよく、あるいは構造フィルム層がガスケットを越えて延在してもよい。本明細書に記載する本発明の実施態様は、シールガスケットを成形するために特に望ましい。構造フィルム層がCCM及び/又はガス拡散層を越えていることがその理由である。こうして成形用のしっかりした硬い表面が提供され、それによって成形工程がさらに容易になりその生産量が増大する。その上、成形面はCCMの活性領域から遠く離れており、そのため成形工程中にCCMを損傷する可能性が最小限に抑えられる。

10

### 【0034】

構造フィルム層及び/又は接着剤が少なくとも1つの電極及び/又は膜の端面をシールしない実施態様において、ガスケットが必要となる場合がある。そのような状況では、ガスケットはアノードガス室とカソードガス室の間のガス漏れを防ぐのに必要なシールを提供することができる。1つの説明例を図12に示し、そこでは本発明の実施態様について一つの端面が横断面で示されている。ガスケット20が構造フィルム層の上に成形され、CCM11の端面をシールしてガスのクロスオーバーを防いでいる。

20

### 【0035】

図13は、図1及び2に図示されたもののような本発明の典型的な実施態様による、105で端面が示され上からの平面図において105'で示される組立体の製造工程を説明するものである。膜とその膜の少なくとも1つの表面を実質的に覆う少なくとも1つの電極とを備える触媒化された膜組立体101が、第1の膜スプール100から払い出される。次に、この膜組立体が102で所望の完成組立体幅に切断されて、完全に触媒化された膜組立体(FCMA)103が製造され、それは次にロール104の上に巻き取られる。次に、FCMAは図13(b)に示すように構造フィルム層と合わせられる。図13(b)に示す製造工程は図13(a)に示すものと分けて示されているが、所望であればこれらの工程を一緒にインラインで行うこともできる。構造フィルム層110はロール109から巻き戻され所望の形状にダイカットされて、内部に窓を有する構造フィルム層112が製造される。上述したように、構造フィルム層110は所望であれば片側に接着剤を備えていてもよい。次に、構造フィルム層は、114である長さに切断することによりロール108から13(a)で用意されたようなFCMA107に積層され、その切断された小片はローラー113を通過した構造フィルム層112にローラー115で移送される。所望であればローラー113を予備加熱する(又はオープン内に置く)ことができ、構造フィルム層の粘着性を高めて移送工程中に結合を改善することができる。次に、構造フィルム層の窓の上に配置されたFCMAを有する組立体116は、必要に応じてローラー117を用いてさらに積層される。ここでも所望であれば積層工程中に熱を使用することができる。最後に、構造フィルム層118が取り付けられたFCMAがカッター119で完成長さに切断されて個別部品が製造される。

30

### 【0036】

図14は、図1及び2に図示されたもののような本発明の典型的な実施態様による、端面図において128で示され上からの平面図において128'で示される組立体を製造するための、別の工程を説明するものである。膜とその膜の少なくとも1つの表面を実質的に覆う少なくとも1つの電極とを備える触媒化された膜組立体101が、第1の膜スプール100から払い出される。次に、この膜組立体が102で所望の完成組立体幅に切断されて、完全に触媒化された膜組立体(FCMA)103が製造される。次に、FCMAはカッター120を用いて個別部品121へと切断される。カッター120は公知の任意の種類のカッター、例えば以下に限られないが、ロータリーダイカッター、鋼尺ダイカッタ

40

50

一、マッチドダイ装置、レーザーカッター、又はスリット・トリムカッターを含んでもよい。次に、収集した F C M A 部品 1 2 1 (平面図において 1 2 1 ' で示す) は、図 1 4 (b) に示すように構造フィルム層と合わせられる。図 1 4 (b) に示す製造工程は図 1 4 (a) に示すものと分けて示されているが、所望であればこれらの工程と一緒にインラインで行うこともできる。構造フィルム層 1 2 3 は、ロール 1 2 2 から巻き戻され、1 2 5 として端面が示され上からの平面図において 1 2 5 ' として示される、別個の「窓枠」部品へとカッター 1 2 4 で切断される。カッター 1 2 4 は公知の任意の種類のカッター、例えば以下に限られないが、ロータリーダイカッター、鋼尺ダイカッター、マッチドダイ装置、レーザーカッター、又はスリット・トリムカッターを含んでもよい。上述したように、構造フィルム層 1 2 3 は所望であれば片側に接着剤を備えていてもよい。構造フィルム層部品 1 2 5 は、位置決め固定具 1 2 6 で F C M A 部品 1 2 1 と合わせられる。次に、個々の部品は積層工程 1 2 7 で結合されて、端面図において 1 2 8 及び平面図において 1 2 8 ' として図示される完成部品が製造される。

10

### 【0037】

本発明のさらなる実施態様は、図 3 ~ 9 に記載したような、2つの構造フィルム層を用いる組立体を製造するための工程を含む。これらの工程は図 1 3 又は図 1 4 のいずれかに概要を示した段階に従うが、第 2 の構造フィルム層が第 1 の構造フィルム層と反対側で C C M に合わせられる点で異なる。例えば、図 1 3 に概要を示した工程を用い、第 2 の構造フィルム層を、それぞれ 1 0 9 、 1 1 1 、 1 1 3 と同様の第 2 のロール、カッター及びローラーを用いて導入し、1 1 4 から出てくる切断された C C M を 2 つの構造フィルム層の間に 1 1 5 で配置することが考えられる。この工程で使用する 2 つの構造フィルム層は、窓を同じ大きさにして図 3 ~ 4 に図示したような組立体を製造するように切断してもよく、窓を異なる大きさにして図 5 ~ 9 に図示したような組立体を製造するように切断してもよい。

20

### 【0038】

代わりに、2つの構造フィルム層 1 2 3 を C C M 1 2 2 毎に製造することを除いて、図 1 4 の製造工程を直接使用してもよい。位置決め固定具は、2つの構造フィルム層 1 2 3 の間に C C M 1 2 2 を配置するように変更される。ここでも、この工程で使用する 2 つの構造フィルム層は、窓を同じ大きさにして図 3 ~ 4 に図示したような組立体を製造するように切断してもよく、窓を異なる大きさにして図 5 ~ 9 に図示したような組立体を製造するように切断してもよい。

30

### 【0039】

説明した全ての実施態様において、構造フィルムによって顕著な改善がもたらされる。それは上述したように組立体を保護し構造的な支持を提供し、そのためより耐久性が高く長持ちする燃料電池用組立体が製造される。さらに、構造フィルム層及びそれを使用して組立体を製造する対応する工程を用いることによって、高価な電極材料の材料利用度が高まり、それによって製造コストが減少する。そして、説明した実施態様に示されるように構造フィルム層を使用することにより、大量に高い歩留りで組立体を製造することができ、組立体のコストを低減できる。

40

### 【実施例】

#### 【0040】

##### 例 1

本発明による完全に触媒化された膜組立体を以下のように調製した。

1 ) P t 担持量が 0 . 4 m g / c m<sup>2</sup> のカソード及びアノードを備え膜厚が 1 8 マイクロメートルのシリーズ 5 5 1 0 膜電極組立体 (W . L . G o r e & A s s o c i a t e s 、 E l k t o n 、 M D から入手可能) を、鋼尺ダイを用いて寸法 5 1 × 5 3 m m にダイカットした。

2 ) 窓は鋼尺ダイを用いて D y n e o n (商品名) フッ素系熱可塑性樹脂から製造した T H V 2 2 0 G フィルムからなる 1 0 2 マイクロメートル (0 . 0 0 4 インチ) 厚の小片にダイカットした。窓は以下の寸法を有していた：内部窓 = 4 8 × 4 6 m m 、外縁 = 9 0

50

× 100 mm。

3) M E A を、寸法  $130 \times 150$  mm に切断されたポリイミドフィルム（カプトン（登録商標）フィルム）からなる 127 マイクロメートル（0.005 インチ）厚の小片の中央に配置した。

4) 次に、M E A が周囲全体でおよそ 2.5 mm の重なり合いを有するように、T H V の内部窓を目視で M E A に位置合せした。さらに、組立体を寸法  $130 \times 150$  mm に切断された 127 マイクロメートル（0.005 インチ）厚の別のポリイミドフィルム片で覆った。

5) 次に、M E A を上向きにして、組み立てたこれらの小片を移送プレートの上に置いた。移送プレートは、辺の寸法が  $12 \times 12$  インチで、上面に 3/16 インチ厚のシリコーンパッド（M S C Industrial Supply、製品番号 31938731）が載せられた  $1/8$  インチ厚のアルミニウムベースからなっていた。127 マイクロメートル（0.005 インチ）厚のポリイミドシートを上側のパッド面に置いて、部品をゴムから隔離した。

6) 組立体全体を、圧力およそ 100 ポンド / 平方インチ（psi）で、180 に加熱した上部定盤を用い、およそ 10 秒間、加熱した定盤プレス（P H I、製品番号 Q 230 H）の中に配置した。

7) プレスサイクルが完了したら、部品を取り出して冷却した。ポリイミドカバーシートを取り除くと、うまく調製できた完全に触媒化された膜組立体（F C M A）が現れた。

#### 【0041】

得られた製品は、構造フィルム層が M E A に結合して M E A に構造的支持を付与していることを示していた。

#### 【0042】

##### 例 2～3

これらの 2 つの例では、フッ素系熱可塑性樹脂の厚さを変化させて本発明の F C M A を調製できることを説明する。段階 2 で使用した T H V フィルムをスクリュー押出により自社で調製して、例 2 については厚さ 38 マイクロメートル（0.0015 インチ）、例 3 については厚さ 25 マイクロメートル（0.001 インチ）としたことを除き、例 1 の手順に従って製品を調製した。両方の場合において製品はうまく調製された。T H V は M E A に結合して M E A に構造的支持を付与した。

#### 【0043】

##### 例 4～8

これらの例では、様々な異なる熱可塑性材料を用いて本発明の製品を調製できることを説明する。例 4～8 において、102 マイクロメートル（0.004 インチ）厚の T H V 500 フィルム（3M、Minneapolis、MN）、76 マイクロメートル（0.003 インチ）厚の P V D F フィルム（A jedium Film Group、Newark、DE）、254 マイクロメートル（0.010 インチ）厚の変性ポリフェニレンオキシド材料（Noryl（登録商標）EN-265 フィルム、A jedium Film Group、Newark、DE）、127 マイクロメートル（0.005 インチ）厚の別の変性ポリフェニレンオキシド材料（Noryl（登録商標）N 300 X フィルム、A jedium Film Group、Newark、DE）、及び 25 マイクロメートル（0.001 インチ）厚の E F E P フィルムを例 1 の T H V 200 G とそれぞれ置き換えた以外は、例 1 に記載した手順を使用した。それぞれの場合において製品がうまく調製された。熱可塑性材料は M E A にうまく結合しており、M E A に支持を付与した。

#### 【0044】

##### 例 9

構造フィルム層を完全に触媒化した膜電極組立体に結合する接着剤を用いた本発明のさらなる実施態様を以下のように調製した。

1) Pt 担持量が  $0.4 \text{ mg/cm}^2$  のカソード及びアノードを備え膜厚が 18 マイクロメートルのシリーズ 5510 膜電極組立体（W. L. Gore & Associates

10

20

30

40

50

、 Elktion、 MD ) を、 鋼尺ダイを用いて寸法  $51 \times 53\text{ mm}$  にダイカットした。

2) 102マイクロメートル(0.004インチ)厚のDyneon(商品名)フッ素系熱可塑性樹脂THV220Gフィルム(3M Corporation、Minneapolis、MN)の小片を、25マイクロメートル(0.001インチ)厚のPEN(Teonex(登録商標)Q51DW、DuPont Teijin Films、Hopewell、VAから入手)の小片に、 $8 \times 12$ インチのTHVフィルムの小片を0.005インチ厚のポリイミドフィルム層によって囲まれた同じ大きさのPENフィルムの上に置くことにより、加熱した定盤プレスの中で積層した。この組立体を例1に記載したように移送プレートの上に置き、例1に記載したように加熱した定盤プレスの中におよそ10秒間置いた。上部定盤はおよそ140℃に加熱され、締付圧は100psiに設定された。サイクルが完了したら、材料を取り出して冷却した。冷却した後ポリイミドフィルムを剥がすと積層複合体が現れた。  
10

3) 段階2の積層複合体は鋼尺ダイを用いて次の寸法にダイカットした：内部窓 =  $48 \times 46\text{ mm}$ 、外縁 =  $90 \times 100\text{ mm}$ 。

4) MEAを、寸法  $130 \times 150\text{ mm}$  に切断されたポリイミドフィルムからなる0.005インチ厚の小片の中央に配置した。

5) 次に、MEAが周囲全体でおよそ  $2.5\text{ mm}$  の重なり合いを有するように、積層フィルムの内部窓を目視でMEAに位置合せした。さらに、組立体を寸法  $130 \times 150\text{ mm}$  に切断された0.005インチ厚の別のポリイミドフィルム片で覆った。

6) 次に、MEAを上向きにして、組み立てたこれらの小片を例1のように移送プレートの上に置いた。  
20

7) 組立体全体を、圧力100psiで、180℃に加熱した上部定盤を用い、およそ10秒間、加熱した定盤プレス(PHI、製品番号Q230H)の中に配置した。

8) プレスサイクルが完了したら、部品を取り出して冷却した。ポリイミドカバーシートを取り除くと枠付きのMEAが現れた。

#### 【0045】

得られた製品は、構造フィルム層がMEAに完全に結合してMEAに構造的支持を付与していることを示していた。

#### 【0046】

##### 例10

構造フィルム層をMEAに積層する前に、鋭い器具を用いて縁部領域内に多数の小さい穴を不規則に配置した以外は、例9のように本発明の製品を製造した。得られた製品は、構造フィルム層がMEAに完全に結合してMEAに構造的支持を付与していることを示していた。  
30

#### 【0047】

##### 例11

MEAの両側に構造フィルム層を用いた本発明の追加実施態様を以下のように製造した。  
。

1) Pt担持量が  $0.4\text{ mg/cm}^2$  のカソード及びアノードを備え膜厚が18マイクロメートルのシリーズ5510膜電極組立体(W.L.Gore & Associates、Elktion、MD)を、鋼尺ダイを用いて寸法  $51 \times 53\text{ mm}$  にダイカットした。  
40

2) 2枚の102マイクロメートル(0.004インチ)厚のフッ素系熱可塑性樹脂(Dyneon(商品名)フッ素系熱可塑性樹脂THV220G、3M Corporation、Minneapolis、MN)の小片を、鋼尺ダイを用いて次の寸法にダイカットした：内部窓 =  $48 \times 46\text{ mm}$ 、外縁 =  $90 \times 100\text{ mm}$ 。

3) THV材料の第1層を、寸法  $130 \times 150\text{ mm}$  に切断されたポリイミドフィルムからなる125マイクロメートル(0.005インチ)厚の小片の上に配置した。次に、MEAが周囲全体でおよそ  $2.5\text{ mm}$  の重なり合いを有するように、MEAをTHVフィルムの内部窓に目視で位置合せした。次に、再びMEAが周囲全体でおよそ  $2.5\text{ mm}$  の重なり合いを有するように、THVの第2層をMEAに目視で位置合せした。  
50

4) 組立体全体を寸法  $130 \times 150\text{ mm}$  に切断された 125 マイクロメートル (0.005 インチ) 厚の別のポリイミドフィルム片で覆った。

5) 組み立てたこれらの小片を移送プレートの上に置き (例 1 を参照)、圧力 100 psi で、180 ° に加熱した上部定盤を用い、およそ 10 秒間、加熱した定盤プレス (PHI、製品番号 Q 230H) の中に移動させた。

6) プレスサイクルが完了したら、部品を取り出して冷却した。ポリイミドカバーシートを取り除くと枠付きのMEA が現れ、これは構造フィルム層がMEA 及び互いに結合してMEA に支持を付与していることを示していた。

#### 【0048】

##### 例 1 2

THV フッ素系熱可塑性樹脂が上面に適用された PEN 支持層を有する以外は、例 1 1 と同様に製品を製造した。MEA を 2 つの構造フィルム層の間に配置した後、組立体を加熱したローラーの間に通すことによって積層を行った。MEA は構造フィルム層に結合され、それらの層はMEA に支持を付与した。

#### 【0049】

##### 例 1 3

接着剤を使用することによりMEA へ結合された、2 つの構造フィルム層を用いた製品を以下のように製造した。

1) Pt 担持量が  $0.4\text{ mg/cm}^2$  のカソード及びアノードを備え膜厚が 18 マイクロメートルのシリーズ 5510 膜電極組立体 (W. L. Gore & Associates, Elkhton, MD) を、鋼尺ダイを用いて寸法  $51 \times 53\text{ mm}$  にダイカットした。

2) 102 マイクロメートル (0.004 インチ) 厚の THV 220G を、例 2 で使用したのと同じ手順で PEN フィルムに積層した。この例では、2 つのほぼ同一の小片を調製した。

3) 段階 2 で調製した 2 つの小片を、両方とも次の寸法に鋼尺ダイで切断した：内部窓 =  $48 \times 46\text{ mm}$ 、外縁 =  $90 \times 100\text{ mm}$ 。

4) MEA を 125 マイクロメートル (0.005 インチ) 厚のポリイミドからなるカバーシートの上に置き、周囲全体でおよそ  $2.5\text{ mm}$  の重なり合いとなるよう、枠の 1 つをMEA に目視で位置合せした。次に、このレイアップを 125 マイクロメートル (0.005 インチ) 厚の別のポリイミドシートで覆い、MEA を上向きにして例 1 に記載したように移送プレートの上に置いた。

5) 部品を圧力 50 psi、定盤温度およそ 150 ° で、およそ 5 秒間ヒートプレスした。

6) サイクルが完了したらレイアップをプレスから取り出して冷却した。次に、部品のMEA 側にあるポリイミドシートを剥がした。

7) 段階 2 の第 2 の枠を、THV がMEA に向かうようにして、MEA に目視で位置合せした。位置合せは、周囲全体で  $2.5\text{ mm}$  の重なり合いとなるように、枠の内部窓をMEA の外縁に見当合せすることからなっていた。

8) 125 マイクロメートル (0.005 インチ) 厚の別のポリイミドシートを新たに配置した枠の上に置いた。

9) 組立体全体を例 1 に記載したように移送プレートの上に置き、加熱した定盤プレスの中に配置した。

10) 部品を圧力 100 psi、定盤温度およそ 180 ° で、およそ 10 秒間ヒートプレスした。

11) プレスサイクル後、レイアップをプレスから取り出し、空冷して、ポリイミドシートから剥がした。

#### 【0050】

得られたMEA は構造フィルム層に結合し、それらの層はMEA に支持を付与した。

#### 【0051】

##### 例 1 4

10

20

30

40

50

この例では本発明の別の実施態様を製造する。ここでは結合が接着剤による2つの構造フィルム層を用いているが、構造フィルム層は1つのみが電極と重なり合っている。手順は以下の通りであった。

1) Pt担持量が $0.4\text{ mg/cm}^2$ のカソード及びアノードを備え膜厚が18マイクロメートルのシリーズ5510膜電極組立体(W.L.Gore & Associates、Elkton、MD)を、鋼尺ダイを用いて寸法 $51 \times 53\text{ mm}$ にダイカットした。

2) 102マイクロメートル(0.004インチ)厚のTHV220Gフィルムを、例9の段階2に記載したようにPENに積層した。

3) 25マイクロメートル(0.001インチ)厚のPENフィルムを、次の寸法に鋼尺ダイで切断した：内部窓 $= 55 \times 56\text{ mm}$ 、外縁 $= 90 \times 100\text{ mm}$ 。

4) PEN単体をPEN+THV積層体のTHV側に置くことにより、段階3のPEN層を段階2の層に積層した。次に、この組立体を2片の125マイクロメートル(0.005インチ)厚のポリイミドシートの間に配置し、PEN単体を上に向けて移送プレートの上に置いた。次に、このレイアップを、圧力100psi、上部定盤温度180でおよそ5秒間、定盤プレスの中に配置した。サイクルが完了したら、部品を取り出して冷却した。ポリイミドカバー層を組立体から剥がすと積層されたレイアップが現れた。

5) 次に、段階4の組立体を、次の寸法に鋼尺ダイを用いてダイカットした：外周 $90 \times 100\text{ mm}$ 、内部窓 $46 \times 48\text{ mm}$ 。

6) MEAを125マイクロメートル(0.005インチ)厚のポリイミドカバーシートの上に置き、段階5の枠とMEAの重なり合いがおよそ $2.5\text{ mm}$ となるように、枠をMEAに位置合せした。次に、このレイアップを125マイクロメートル(0.005インチ)厚の別のポリイミドシートで覆い、MEAを上向きにして移送プレートの上に置いた。

7) 部品を圧力100psi、定盤温度およそ180で、およそ10秒間ヒートプレスした。

8) サイクルが完了したら、レイアップをプレスから取り出して空冷した。次に、ポリイミドシートを組立体から剥がした。

#### 【0052】

得られたMEAは構造フィルム層に結合し、それらの層はMEAに支持を付与した。

#### 【0053】

##### 例15

ガス拡散層が組立体に適用された本発明の別の製品を、この例で以下のように調製した。

1) Pt担持量が $0.4\text{ mg/cm}^2$ のカソード及びアノードを備え膜厚が18マイクロメートルのシリーズ5510膜電極組立体(W.L.Gore & Associates、Elkton、MD)を、鋼尺ダイを用いて寸法 $51 \times 53\text{ mm}$ にダイカットした。

2) 102マイクロメートル(0.004インチ)厚のTHV220Gフィルムの小片を、25マイクロメートル(0.001インチ)厚のPENの小片に積層した。積層は、 $8 \times 12\text{ inch}$ のTHVフィルムの小片を $0.005\text{ inch}$ 厚のポリイミドフィルム層によって囲まれた同じ大きさのPENフィルムの上に置くことにより、加熱した定盤プレスの中で行った。この組立体を移送プレートの上に置き(例1を参照)、加熱した定盤プレスの中におよそ10秒間挿入した。上部定盤はおよそ140に加熱され、締付圧は100psiに設定された。サイクルが完了したら、材料を取り出して冷却した。冷却した後ポリイミドフィルムを剥がすと、片側が積層された複合体が現れた。ここで、THVの別の中片をレイアップの反対側に置いて、THV+PEN+THV複合体を作製した。再度このレイアップを2つのポリイミドシートの間に置いて移送プレートの上に配置した。移送プレートを、圧力およそ100psiで、140に加熱した上部定盤を用い、10秒間、加熱した定盤プレスの中に挿入した。サイクル完了時に、積層体をプレスから取り出して冷却した。両方のポリイミドシートを剥がすと積層体が現れた。

3) 段階2の積層複合体は鋼尺ダイを用いて次の寸法にダイカットした：内部窓 $= 48$

10

20

30

40

50

× 46 mm、外縁 = 90 × 100 mm。

4) M E Aを、寸法 $130 \times 150$  mmに切断されたポリイミドフィルムからなる125マイクロメートル(0.005インチ)厚の小片の中央に配置した。

5) 次に、M E Aが周囲全体でおよそ $2.5$  mmの重なり合いを有するように、積層したフィルムの内部窓をM E Aに目視で位置合せした。次に、組立体を寸法 $130 \times 150$  mmに切断された125マイクロメートル(0.005インチ)厚の別のポリイミドフィルム片で覆った。

6) M E Aを上向きにして、組み立てたこれらの小片を移送プレートの上に置いた(例1を参照)。

7) 組立体全体を、圧力およそ100 psiで、180°に加熱した上部定盤を用い、およそ10秒間、加熱した定盤プレス(PHI、製品番号Q230H)の中に挿入した。 10

8) プレスサイクルが完了したら、部品を取り出して冷却した。ポリイミドカバーシートを取り除くと、枠付きのM E Aが現れた。

9) 2片のガス拡散層(SIGRACET(登録商標)ガス拡散媒体25BC、SGL Technologies GmbHから入手、GDL)を寸法 $55 \times 57$  mmにダイカットした。

10) M E Aを上向きにして、枠付きM E Aを125マイクロメートル(0.005インチ)厚のポリイミドシートの上に置いた。GDLがM E Aを完全に覆うように、GDL片の1つをM E Aの上に位置合せした。125マイクロメートル(0.005インチ)厚のポリイミドからなる第2のシートをレイアップの上に配置した。 20

11) この組立体を移送プレートの上に置き(例1を参照)、およそ5秒間加熱した定盤プレスの中に挿入した。上部定盤は180°に加熱され、締付圧は100 psiであった。サイクル完了後、組立体を取り出して冷却した。

12) 冷却したら下のカバーシートを取り除いて、M E Aの反対面を覆うようにGDLの第2片を位置合せした。この組立体を、125マイクロメートル(0.005インチ)厚のポリイミド片で覆い、加熱した定盤プレスに挿入するため移送プレートの上に置いた(例1を参照)。

13) プレスサイクルは、圧力100 psi、定盤温度およそ180°でおよそ10秒であった。

14) サイクルが完了したら、レイアップをプレスから取り出して空冷した。 30

15) 冷却したらカバーシートを取り除いて部品を露わにした。

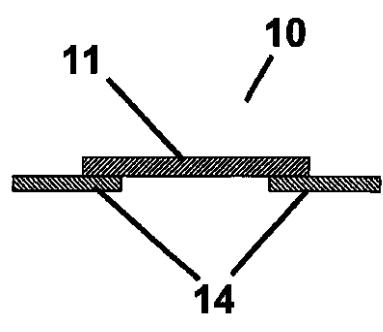
#### 【0054】

得られた膜電極組立体にはガス拡散層が結合しており、膜電極組立体は構造フィルム層によって端面で支持されていた。

#### 【0055】

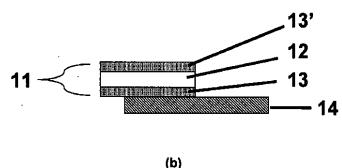
本発明をいくつかの好適実施態様と関連させて説明したが、本発明の範囲はこれらに限定されないことを企図している。むしろ、本発明は添付した特許請求の範囲に規定される範囲で付与されるべきものである。

【図 1 ( a )】



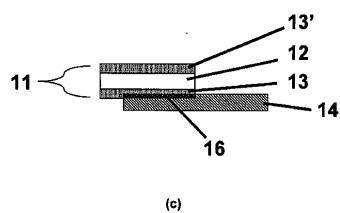
(a)

【図 1 ( b )】



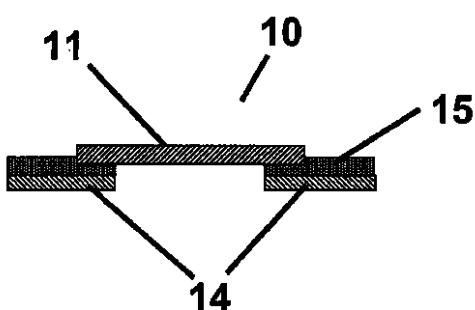
(b)

【図 1 ( c )】



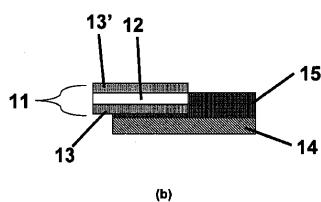
(c)

【図 2 ( a )】



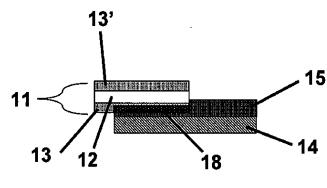
(a)

【図 2 ( b )】



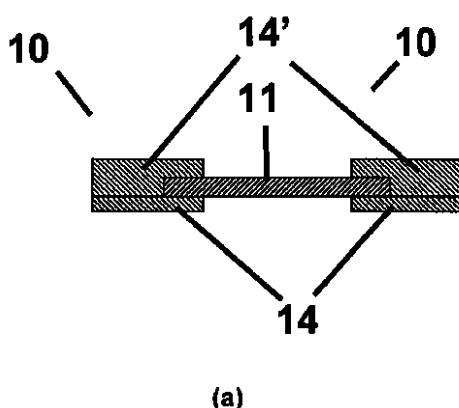
(b)

【図 2 ( c )】



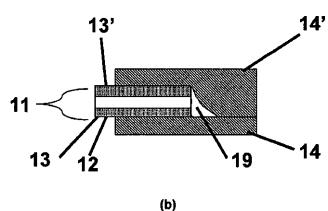
(c)

【図 3 ( a )】



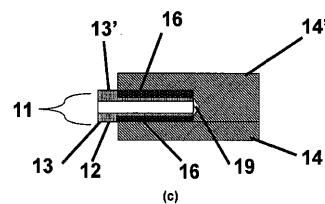
(a)

【図 3 ( b )】

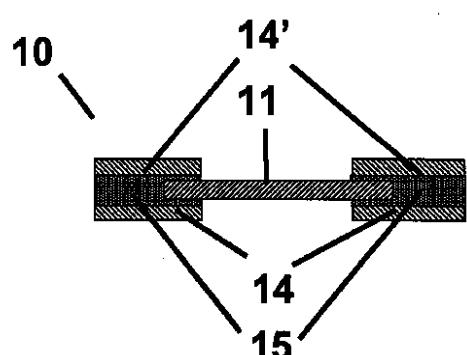


(b)

【図3(c)】

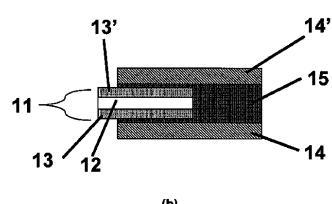


【図4(a)】



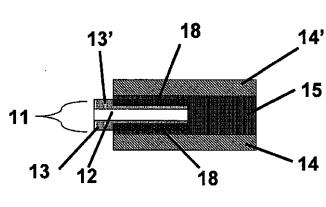
(a)

【図4(b)】



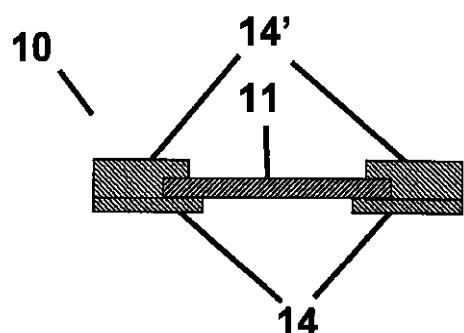
(b)

【図4(c)】



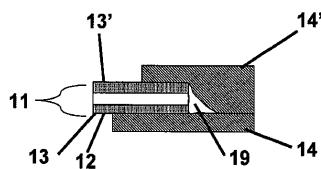
(c)

【図5(a)】



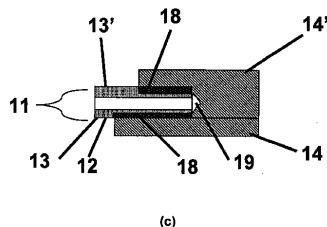
(a)

【図5(b)】



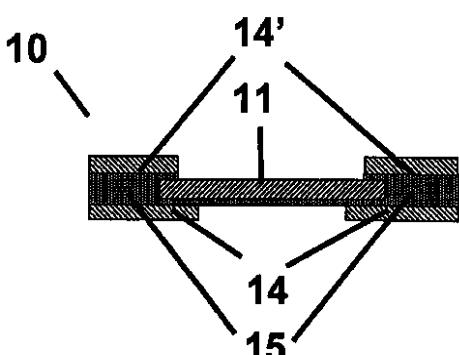
(b)

【図5(c)】



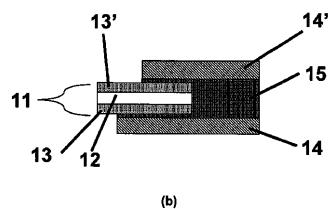
(c)

【図6(a)】

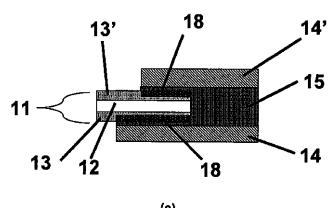


(a)

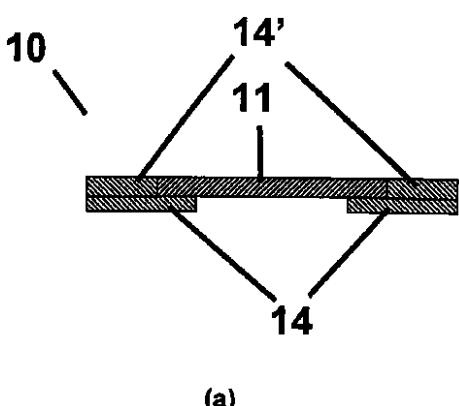
【図 6 ( b )】



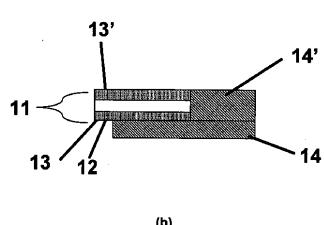
【図 6 ( c )】



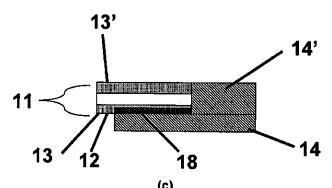
【図 7 ( a )】



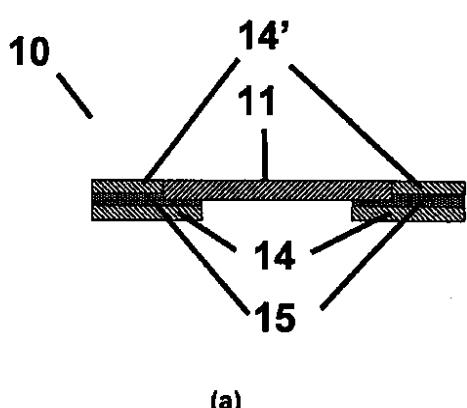
【図 7 ( b )】



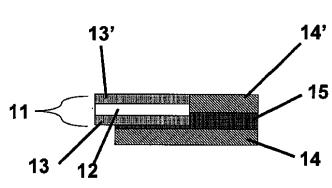
【図 7 ( c )】



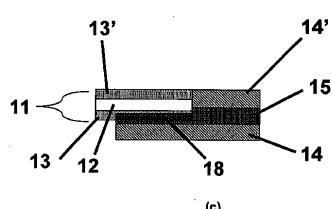
【図 8 ( a )】



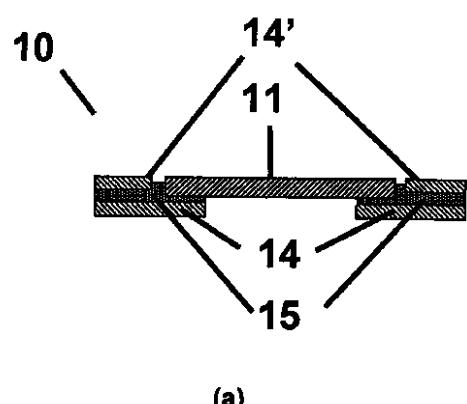
【図 8 ( b )】



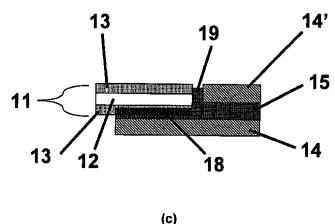
【図 8 ( c )】



【図 9 (a)】

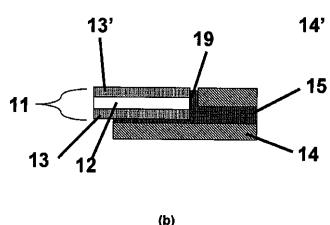


【図 9 (c)】



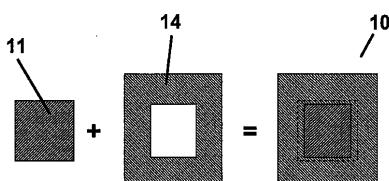
(c)

【図 9 (b)】



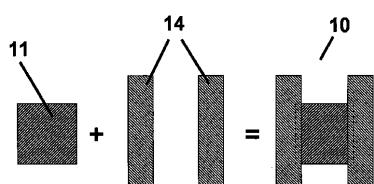
(b)

【図 10 (a)】



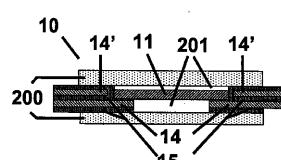
(a)

【図 10 (b)】



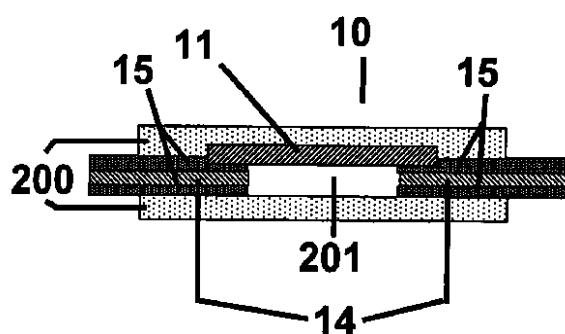
(b)

【図 11 (b)】



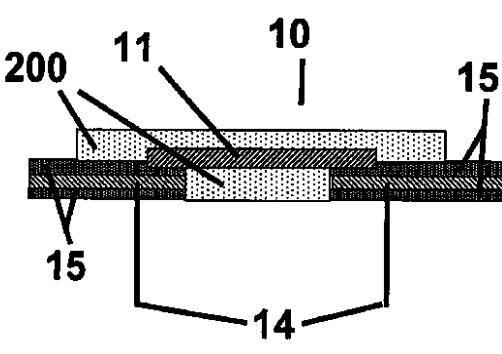
(b)

【図 11 (a)】



(a)

【図 11 (c)】



(c)

【図 1 2】

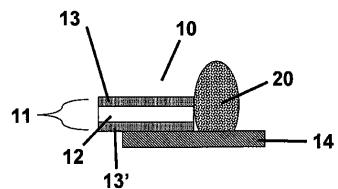
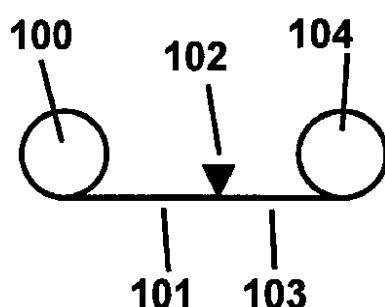


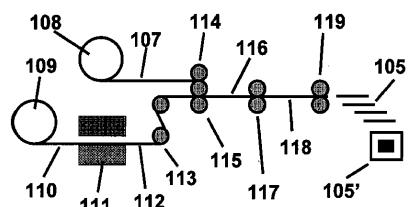
Figure 12

【図 1 3 ( a )】



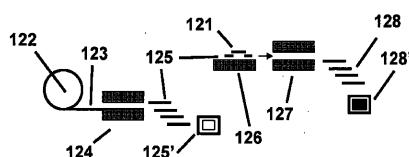
(a)

【図 1 3 ( b )】



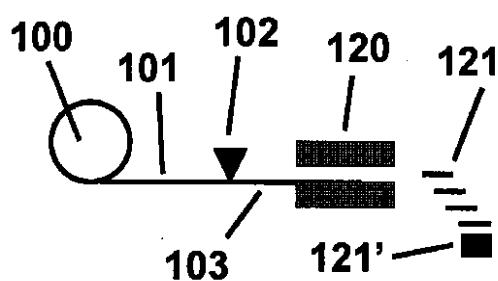
(b)

【図 1 4 ( b )】



(b)

【図 1 4 ( a )】



(a)

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US2007/023326															
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC(8) - H01M 8/10 (2008.04) USPC - 439/30 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC																	
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC(8) - H01M 8/10 (2008.04) USPC - 439/30																	
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) PatBase, Google Patents																	
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category*</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">US 2006/0029850 A1 (SZRAMA et al) 09 February 2006 (09.02.2006) entire document.</td> <td style="padding: 2px;">1-6,11-21,26-36</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">---</td> <td></td> <td style="padding: 2px;">---</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">Y</td> <td style="padding: 2px;">US 5,523,177 A (KOSEK et al) 04 June 1996 (04.06.1996) entire document</td> <td style="padding: 2px;">7-10,22-25</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;"></td> <td></td> <td style="padding: 2px;">7-10,22-25</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	US 2006/0029850 A1 (SZRAMA et al) 09 February 2006 (09.02.2006) entire document.	1-6,11-21,26-36	---		---	Y	US 5,523,177 A (KOSEK et al) 04 June 1996 (04.06.1996) entire document	7-10,22-25			7-10,22-25
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.															
X	US 2006/0029850 A1 (SZRAMA et al) 09 February 2006 (09.02.2006) entire document.	1-6,11-21,26-36															
---		---															
Y	US 5,523,177 A (KOSEK et al) 04 June 1996 (04.06.1996) entire document	7-10,22-25															
		7-10,22-25															
<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																	
Date of the actual completion of the international search  07 April 2008	Date of mailing of the international search report  <b>09 MAY 2008</b>																
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:  Blairie R. Copanheaver PCT Helpdesk: 571-272-4300 PCT OSP: 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,MT,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,BH,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100077517

弁理士 石田 敬

(74)代理人 100087413

弁理士 古賀 哲次

(74)代理人 100128495

弁理士 出野 知

(74)代理人 100093665

弁理士 蛭谷 厚志

(74)代理人 100146466

弁理士 高橋 正俊

(72)発明者 ズラマ , ピーター

アメリカ合衆国 , デラウェア 19702 , ニューアーク , ブリークネス ラン 459

(72)発明者 テラー , オリバー

ドイツ連邦共和国 , 81547 ミュンヘン , カルナイドプラッツ 9

(72)発明者 キラー , アントン

ドイツ連邦共和国 , 83623 ディートラムスツエル , シュタインスペルガー ベーク 1

F ターム(参考) 5H026 AA06 CX04 CX05 CX07 EE18 EE19 HH03