

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6272318号
(P6272318)

(45) 発行日 平成30年1月31日(2018.1.31)

(24) 登録日 平成30年1月12日(2018.1.12)

(51) Int.Cl.	F 1
C 25 B 11/02	(2006.01) C 25 B 11/02
C 25 B 9/20	(2006.01) C 25 B 9/20
H 01 M 8/04	(2016.01) H 01 M 8/04 J
H 01 M 8/02	(2016.01) H 01 M 8/02
H 01 M 4/86	(2006.01) H 01 M 4/86 M

請求項の数 14 (全 16 頁)

(21) 出願番号	特願2015-517774 (P2015-517774)
(86) (22) 出願日	平成25年6月20日 (2013.6.20)
(65) 公表番号	特表2015-525301 (P2015-525301A)
(43) 公表日	平成27年9月3日 (2015.9.3)
(86) 国際出願番号	PCT/EP2013/062938
(87) 国際公開番号	W02013/190066
(87) 国際公開日	平成25年12月27日 (2013.12.27)
審査請求日	平成28年5月19日 (2016.5.19)
(31) 優先権主張番号	12172835.6
(32) 優先日	平成24年6月20日 (2012.6.20)
(33) 優先権主張国	欧洲特許庁 (EP)

(73) 特許権者	591001248 ソルヴェイ (ソシエテ アノニム) ベルギー・B-1120・ブリュッセル・ リュ・ドゥ・ランスベーク・310
(74) 代理人	100109726 弁理士 園田 吉隆
(74) 代理人	100101199 弁理士 小林 義教
(72) 発明者	ヴァンデンボーレ, ユゴ ジャン バ ティスト ベルギー王国 ベー-2460 カステル レー, デ メーレ 10
(72) 発明者	デュボワ, エリク ベルギー王国 ベー-4219 ヴァッセ ーニュ, リュ デュ ティヤール 15

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】双極電極および双極電極の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第1の側および第2の側を有する平面状本体を備える、電解装置で使用される双極電極(100)であって、前記第1の側および前記第2の側のそれぞれに、対応するパターンの突起(125)が設けられるとともに、前記突起のそれぞれが、前記平面状本体の面内にある幾何学的底面と、略平面状の上面(129)とを有し、前記本体上への前記上面の正射影が、前記幾何学的底面に包含され、

前記第1の側および前記第2の側のそれぞれの前記突起(125)の前記上面(129)が、前記平面状本体に平行な2つの面にあり、前記突起(125)の少なくとも75%の前記底面が、凸状の多角形形状を有し、かつ、対応する前記上面(129)が、前記多角形形状の相似変換の結果生じた形状を有し、かつ、前記多角形形状が、意図される流れの方向に略垂直な方向に方向付けられた少なくとも1つの側面を有し、かつ、前記少なくとも1つの側面の全長が、前記多角形形状の周囲長の35%を超過せず、かつ／または前記多角形形状が、前記多角形形状の図心を内角が最も小さい前記多角形形状の角と結ぶベクトルが、前記流れの方向に略平行である方向を有するように方向付けられ、

前記突起(125)のパターンが、2組の直線状の溝が形成されたものであり、かつ、それぞれの組ごとにある前記溝が、共通の方向に軸を有し、該共通の方向は、その主要な構成要素を、前記意図される流れの方向に有する、双極電極(100)。

【請求項 2】

前記突起の前記平面状の上面(129)の面積の、前記突起のそれぞれの幾何学的底面

10

20

の面積に対する比率が、1 / 4 を上回る、請求項 1 に記載の双極電極（100）。

【請求項 3】

前記突起（125）のそれぞれの底面が、凸状の多角形形状を有し、かつ、前記対応する上面（129）が、前記多角形形状の相似変換の結果生じた形状を有する、請求項 1 または請求項 2 に記載の双極電極（100）。

【請求項 4】

前記上面（129）が平面であり、かつ、前記多角形形状が、前記意図される流れの方向に垂直な方向に方向付けられた少なくとも 1 つの側面を有し、かつ、前記少なくとも 1 つの側面の全長が、前記多角形形状の周囲長の 35 % を超過せず、かつ / または前記多角形形状が、前記多角形形状の図心を内角が最も小さい前記多角形形状の角と結ぶベクトルが、前記流れの方向に平行な方向を有するように方向付けられた、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の双極電極（100）。 10

【請求項 5】

前記突起のパターンが、前記突起の前記上面に小さくされた構成で繰り返される、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の双極電極（100）。

【請求項 6】

前記突起（125）のパターンが、それぞれの組ごとにある前記溝の平均幅が前記共通の方向に沿って増加するものである、請求項 5 に記載の双極電極（100）。

【請求項 7】

前記突起（125）の少なくとも 75 % の底面が、ダイヤモンド形状を有し、かつ、前記対応する上面（129）が、前記ダイヤモンド形状の相似変換の結果生じた形状を有する、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の双極電極（100）。 20

【請求項 8】

前記電極 100 が、多角形の形状を実質的に有するとともに、該多角形の一側に沿って、該多角形の周縁部の一部分に位置する凹部（150）を含む、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の双極電極（100）。

【請求項 9】

請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の複数の双極電極（100）と、前記双極電極（100）間に配置される、関連するイオン交換膜（160）とを備えるとともに、前記電極（100）が直列に電気的に接続されて、積層して配置される、電解装置（510）。 30

【請求項 10】

請求項 9 に記載の電解装置（510）と、燃料電池（520）と、電流インターフェース（540a、540b）と、水素貯蔵タンク（530）とを備えるエネルギー蓄積供給装置（500）であって、前記電解装置（510）が、電流を受けとるために前記電流インターフェース（540a）に連結され、および生成された水素を貯蔵するために前記水素貯蔵タンク（530）に連結され、かつ、前記燃料電池（520）が、該燃料電池に電流を供給するために前記電流インターフェース（540b）に連結され、および貯蔵された水素を受け取るために前記水素貯蔵タンク（530）に連結される、エネルギー蓄積供給装置（500）。

【請求項 11】

水素を生成するための、請求項 9 に記載の電解装置（510）の使用。 40

【請求項 12】

請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の双極電極（100）を製造する方法であって、
 - 第 1 の金属シートおよび第 2 の金属シートに前記対応するパターンの突起（125）
 でエンボス加工を行うステップと、
 - 前記平面状本体を形成するように、前記突起（125）を外方に向けて前記第 1 の金属シートおよび前記第 2 の金属シートを接合するステップと、
 を含む方法。

【請求項 13】

共通のマザーシートから前記第 1 の金属シートおよび前記第 2 の金属シートをカットす 50

る前に、前記第1の金属シートおよび前記第2の金属シートが、エンボス加工される請求項12に記載の方法。

【請求項14】

前記エンボス加工が、ハイドロフォーミングによって実施される請求項12または13に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

関連出願の相互参照

本出願は、2012年6月20日に出願された欧洲特許出願第12172835.6号の優先権を主張する。この出願の内容全体があらゆる目的で参照によって本明細書に援用される。

10

【0002】

本発明は、電解セル用の膜・電極接合体(MEAs)の分野に関し、特に、そのような接合体で使用される双極電極の分野に関する。

【背景技術】

【0003】

電解セルで使用される双極電極は、当技術分野では公知である。

【0004】

電解装置で使用される双極電極の設計に際して、実際の電気分解を行うのに利用可能な有効活性面積を最大限にし、かつ、電気分解プロセスによって発生したガスがトラップされないようにするという、相反する要件のバランスをとらなければならず、後者は局所的にそれ以上の反応を抑制し、最終的に、電気分解プロセスを一次停止させたりすることもあり得る。

20

【0005】

現在に至るまで、上記のトレードオフバランスに対する満足できる解決策は具体的に示されていない。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

30

したがって、本発明は、電気分解プロセスのための十分な活性面積の提供と、発生したガスのトラップの回避とを適切なバランスで提供する双極電極、およびこの双極電極の製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

この目的は、請求項1に記載の、電解装置で使用される双極電極によって到達される。

【0008】

本発明の双極電極の使用が意図される電解装置は、使用時に、流れの方向を有する。双極電極の意図される用途を考慮して、電極は、以下に詳述されるように、特に供給開口部および流出開口部の存在によって特徴付けられる、供給側および出口側を有する。流れの方向と言う場合、この意味は、電極を電解装置で使用する際に生成されたガスが流れる全体的な方向を示す。したがって、流れの方向は、供給側から出口側に向かう方向になる。

40

【0009】

本発明による電極の意味合いにおいては、「対応するパターン」とは、1つの電極の第1の側とその上に配される同一の電極の第2の側のそれぞれの突起を当接せしめるパターン、すなわち具体的には、互いの鏡像であるパターンである。

【0010】

生成された水素ガスが強制対流を必要とせずに十分な流動性を保持しつつ、高い収量が達成できることが、本発明による双極電極の利点である。したがって、移送部品(例えば強制対流を発生させるポンプ)の必要がなくなり、効率的で、メンテナンスしやすい電解

50

装置を実現することができる。

【0011】

製造によって引き起こされた材料の応力が、均一に分散されることにより脆弱箇所の発生を回避することが、上面が相似変換された多角形形状の突起を使用する利点である。突起は、反応の際に流体の適切な流れの障害となるおそれのある如何なる「デッドコーナー」も生じさせないことが、凸状の多角形形状を使用する利点である。

【0012】

本発明によれば、多角形形状は、意図される流れの方向に略垂直な（理想的には垂直な）方向に方向付けられた少なくとも1つの側面を有し、この少なくとも1つの側面の全長が、多角形形状の周囲長の35%を超過しない。

10

【0013】

方向は、厳密に垂直な方向と、わずかな角度差の範囲内である場合には、「略垂直」であるとみなされる。わずかな角度差は、好ましくは、厳密に垂直な方向のどちらか一方の側で10°以下であり、より好ましくは、どちらか一方の側で5°以下であり、最も好ましくは、どちらか一方の側で1°以下である。

【0014】

これに加えて、またはこの代わりに、多角形形状は、多角形形状の図心を内角が最も小さい多角形形状の角と結ぶベクトルが、流れの方向に略平行な（理想的には平行な）方向を有するように方向付けられてもよい。

20

【0015】

方向は、厳密に平行な方向と、わずかな角度差の範囲内である場合には、「略平行」であるとみなされる。わずかな角度差は、好ましくは、厳密に平行な方向のどちらか一方の側で10°以下であり、より好ましくは、どちらか一方の側で5°以下であり、最も好ましくは、どちらか一方の側で1°以下である。

【0016】

これらの特定の形状および方向付けを組み合わせることにより、流れの方向を実質的に横断する突起に、リッジ部分が発生するのを最小限に抑える。このような組み合わせを行わなければ、リッジ部分が、ガス気泡を捕集して、ガス気泡の自然な流れが妨げられやすくなる。

【0017】

30

本発明による双極電極の1つの実施形態では、突起の平面状の上面の面積の、それぞれの幾何学的底面の面積に対する比率は、1/4を上回る。

【0018】

この比率は、実験で好結果をもたらした。この比率をさらに低い数にすると、電気分解に関する合計活性表面が小さくなりすぎるので、電極の効率の低下が予想される。

【0019】

本発明による双極電極の1つの実施形態では、突起のパターンは小さくされた構成で、突起の上側で繰り返される。例えば、突起がダイヤモンド形状である場合には、それらの上面に、複数の、もっと小さなダイヤモンド形状の突起のパターンをさらに設けてよい。

40

【0020】

この実施形態は、反応器の様々な電極間の水の分配を改善し、電気分解反応を継続させるのに十分な量の反応物が確実に存在するようになる。

【0021】

本発明による双極電極の1つの実施形態では、突起のパターンは、2組の直線状の溝が形成されるようになっており、それぞれの組ごとにある溝は、共通の方向に軸を有し、この共通の方向は、その主要な構成要素を、意図される流れの方向に有する。言いかえれば、溝の軸の方向を表わすベクトルが、意図される流れの方向に平行な構成要素と、意図される流れに垂直な構成要素とに分解される場合、前者の構成要素は、後者の構成要素よりも大きい。

50

【 0 0 2 2 】

発生したガスの気泡が、反応が起こり続けなければならない領域（すなわち突起の上面）に「デッドゾーン」を形成することなく、反応器からの好都合な出口を有することが、この実施形態の利点である。

【 0 0 2 3 】

特定の実施形態では、突起のパターンは、それぞれの組ごとにある溝の平均幅が共通の方向に沿って増加するようになっている。言いかえれば、突起によって画定された溝は、供給側に最も近い端部から出口側に最も近い端部にかけて幅広になっている。

【 0 0 2 4 】

特に小さな気泡が徐々に合体した結果として、サイズが大きくなった気泡が、適切な出口経路を有することが、この実施形態の利点である。

10

【 0 0 2 5 】

本発明による双極電極の1つ実施形態では、平面状本体は金属でできている。

【 0 0 2 6 】

本発明による双極電極の目的のために、金属は、成形性と形状安定性との間の良好なトレードオフバランスを提供する。好ましい金属には、鋼やチタンなどがある。

【 0 0 2 7 】

本発明の1つの態様によれば、複数の上述されたような双極電極と、双極電極間に位置する、関連するイオン交換膜とを備えるとともに、電極が直列に電気的に接続されて積層して配置された、電解装置が提供される。

20

【 0 0 2 8 】

双極電極の流れの特性が効率的であるので、強制対流手段を必要としない膜・電極接合体を組み立てることができる。したがって、非常に高密度なスタックで電極を組み合わせて、コンパクトで信頼性の高い電解装置を製造することができる。

【 0 0 2 9 】

本発明の1つの態様によれば、前述の電解装置と、燃料電池と、電流インターフェースと、水素貯蔵タンクとを備えるエネルギー蓄積供給装置であって、前記電解装置が、電流を受け取るために前記電流インターフェースに連結され、および生成された水素を貯蔵するために前記水素貯蔵タンクに連結され、かつ、前記燃料電池が、前記燃料電池に電流を供給するために前記電流インターフェースに連結され、および貯蔵された水素を受け取るために前記水素貯蔵タンクに連結される、エネルギー蓄積供給装置が提供される。

30

【 0 0 3 0 】

本発明による双極電極の利点を電解装置および／または燃料電池に適用して、効率的で、コンパクトで、信頼性の高いエネルギー蓄積供給装置を製造してもよい。この装置は、エネルギー蓄積用途において蓄電池の代わりに使用することができる。

【 0 0 3 1 】

本発明の1つの態様によれば、水素を生成するための、前述の電解装置の使用が提供される。

【 0 0 3 2 】

本発明の1つの態様によれば、上述の双極電極の製造方法が提供される。この方法は、第1の金属シートおよび第2の金属シートに、対応するパターンの突起をエンボス加工するステップと、平面状本体を形成するように、第1の金属シートおよび第2の金属シートを、突起が外側に面するように、ともに接合するステップとを含む。

40

【 0 0 3 3 】

実質的に均一な厚さの金属シートだけを使用して、両側に適切な突起パターンを備えた平面状本体を形成できることが、この方法の利点である。

【 0 0 3 4 】

本発明による方法の1つの実施形態では、共通マザーシートから第1の金属シートおよび第2の金属シートをカットする前に、第1の金属シートおよび第2の金属シートは、エンボス加工される。

50

【0035】

ただ1つのステップで、平面状本体の両側にエンボス加工できることが、この実施形態の利点である。

【0036】

1つの実施形態では、本発明による方法は、第1の金属シートおよび第2の金属シートに表面被覆を施すステップをさらに含む。

【0037】

本発明による方法の1つの実施形態では、エンボス加工が、ハイドロフォーミングによって実施される。

【0038】

突起が、それが複数の高さレベルからなる突起であっても、非常に高い精度で、材料の表面を破損せずに形成可能であることが、この実施形態の利点である。ハイドロフォーミングが一段階だけのプロセスであることが、さらなる利点である。

【0039】

Edward O. Benjaminに対する米国特許第1,328,981号明細書は、平頂の突起が形成または提供された表面を有する導電性材料のプレートを備える電解セルで使用する電極を開示しており、この平頂の突起は、上向きの溝が各突起間に形成されるように、垂直方向に位置合わせされている。この電極は、単極構成での使用を意図しており、その突起は、本発明による電極の突起のような特性を有していない。

【0040】

Heraeus Elektroden名義の国際公開第91/00379 A1号パンフレットは、ガスを発生させる電気分解プロセス用の、平行電極要素を有する少なくとも1つの電極を備える電解セルを開示している。電極要素は、放出された気泡の平均直径の3倍までの厚さを有し、電極要素間の毛細間隙は、ガス気泡が電極を通じて実質的にアノードの反応面とカソードの反応面との間に電界の方向に、または反対方向に移動するようになっている。この電極は、単極構成での使用を意図しており、その突起は、本発明による電極の突起のような特性を有していない。

【0041】

Reinz Dichtung GmbH名義の国際公開第2009/043600 A1号パンフレットは、電気化学システムとともに、電気化学システムで使用するための双極プレートを開示している。電気化学システムは、各場合において、双極プレートによって互いから分離される、数個のセルからなる積層体で構成され、双極プレートは、冷却用の開口またはセルから機能性媒質を除去するとともにセルに機能性媒質を供給する開口を備え、積層体は、機械的圧縮応力によって固定され、かつ、少なくとも1つのセルは、双極プレートの境界壁によって周囲が取り囲まれている電気化学活性領域を備え、かつ、双極プレートの溝構造は、媒質を均一に分布させるために電気化学活性領域の範囲内に設けられ、かつ、媒質を微細に分布させるために、少なくとも1つのガス拡散層が設けられている。溝構造と境界壁との間の境界領域に、溝構造と境界壁との間に流体がバイパスすることを回避するために、制限要素が設けられ、かつ、ガス拡散層は、溝構造および/または少なくとも制限要素の一部を被覆する。記載されている双極プレートは、燃料電池で使用するのに好適であるが、電解セルでは好適ではない。その突起は、本発明による電極の突起のような特性を有していない。

【0042】

本発明の実施形態による装置および/または方法のいくつかの実施形態を、例示の目的のためにのみ、添付の図面を参照して以下に説明する。

【図面の簡単な説明】**【0043】**

【図1】本発明の1つの実施形態による例示的な双極電極を概略的に示す。

【図2a】本発明の実施形態による電極で使用される突起の代替的な形状を概略的に示す。

10

20

30

40

50

【図2b】本発明の実施形態による電極で使用される突起の代替的な形状を概略的に示す。

【図3a】第2の高さレベルの溝を有する、本発明の実施形態による電極で使用される突起のさらなる代替的な形状を概略的に示す。

【図3b】第2の高さレベルの溝を有する、本発明の実施形態による電極で使用される突起のさらなる代替的な形状を概略的に示す。

【図3c】第2の高さレベルの溝を有する、本発明の実施形態による電極で使用される突起のさらなる代替的な形状を概略的に示す。

【図4】突起のフットプリントをその突起の上面に投影する幾何学変換を概略的に示す。

【図5】本発明の1つの実施形態によるエネルギー蓄積供給装置を概略的に示す。 10

【図6】本発明の1つの実施形態による双極電極を製造する方法のフローチャートを示す。

【図7】本発明の1つの実施形態による例示的な双極電極の注釈付き複製写真である。

【発明を実施するための形態】

【0044】

以下に記載する本発明の実施形態は、水の電気分解用途を対象とする。この記載は、本発明を明確にすることを意図するもので、本発明を限定することを意図するものではない。当業者は、本発明が、水以外の他の物質の電気分解、例えば塩素アルカリの電気分解にも適用されることを理解するであろう。さらに、当業者は、本発明による電極および接合体は、原則として逆のプロセスにも、すなわち燃料電池で起こるような、水素および酸素を水および電気に変換するプロセスにも使用され得ることを理解するであろう。 20

【0045】

再生可能な、特に断続的エネルギー源からの電気の分散生成が、とりわけ各家庭に設置された太陽電池パネルの数が増加した結果、ますます普及しているが、余剰エネルギーを送電線網に返却することが常に望ましいとは限らず、そもそも常にそれが可能だとは限らないので、余剰エネルギーを効率よく貯蔵する必要性がますます差し迫ったものになっている。蓄電池はこの目的のために使用されてきたが、その効率は制限されている。電気分解装置と燃料電池装置とを組み合わせることは、有望な選択肢であり、変換効率もさらに高くなる。これらの装置の組み合わせでは、任意の利用可能な剩余電気を使用して電気分解によってガス状の水素を発生させ、需要が、再生可能エネルギー源によって即時に生産できる量を上回る場合には、貯蔵された水素を使用して、燃料電池に（貯蔵された酸素または大気中の酸素と組み合わせて）、電気を生成するための動力を供給する。 30

【0046】

電解セルおよび／または上述した装置の燃料電池は、電極が直列に電気的に接続される積層をなす膜・電極接合体（MEA）として、有利に組み立てられる。そのような積層をなす各電極は、単調に増加または減少する順序で、異なる電位に位置し、これにより各電極は、一側では電解質に対してカソードとして作用し、他側では電解質に対してアノードとして作用する。

【0047】

図1は、本発明の全般的な実施形態による第1の双極電極100および第2の双極電極100'を概略的に示す。選択されたビューでは、第1の電極100の上面および第2の電極100'の底面が見える。電極間のイオン交換膜160の位置も示されている。第1の電極100についてのみ詳細に説明するが、第2の電極も実質的に同一である。電極のいくつかの特徴は、簡略化して表わされている。 40

【0048】

電極100は、供給開口部110と、複数の突起125を備える活性ゾーン120と、流出開口部130とを有する平面状本体を備える。したがって流路は、膜160の一側に、供給開口部110から活性ゾーン120を介して流出開口部130まで設けられる。追加の供給開口部115および追加の流出開口部135が設けられ、電極100の他側の活性ゾーンを介して、イオン交換膜の他側に流路を提供する。障壁140が適切に配置され 50

ているので、第1の電極100の第1の側に関する一対の開口部110／130間の流路は、第1の電極100の第2の側に関する一対の開口部115／135間の流路または第2の電極100'の第2の側の対応する流路と流体連通しない。

【0049】

平面状本体および、特に活性ゾーン120は、好ましくは略多角形であり、より好ましくは、略長方形である。それらは完全な多角形または完全な長方形fであってもよい。使用の際に、双極電極100は通常、垂直に配置され、これにより、重力により液体中のガス気泡の上昇方向によって課された流れの方向が、長方形の長辺側の縁部と略平行になる。発生したガス気泡が確実に適切な合体を行うには、供給開口部110と流出開口部130との間の実際の流路は、可能な限り長くなければならず、したがって活性ゾーンを横切る対角線をなす経路であるのが好ましい。10

【0050】

突起125は、略平面状の（理想的には平面状の）上部、すなわち電極100の本体の面と平行な各突起の上面を有する。「略平面状の」とは一般に、その表面が、製造時のばらつきにより、または、主突起の表面上のさらなる突起の存在により、厳密に平面状の形状から外れていてもよいことを意味する。突起125は、対応するパターンで、本体の両側に存在し、これにより、1つの電極の本体の上側の突起の上面は常に、スタッツの上方の次の電極の本体の底面にある突起の上面の近傍に位置することになり、電気分解のための十分な活性ゾーンが形成される。しかしながら、平面状本体のいずれの側の突起も必ずしも同一である必要はない。具体的には、それらの高さは様々であってもよい。電気分解で使用される例示的な実施形態では、空気／酸素側（すなわちアノードとして作用する側）の溝深さ（突起高さ）は、およそ1.0mmであってもよいし、水素側（すなわちカソードとして作用する側）の溝深さ（突起高さ）は、およそ0.6mmであってもよい。20

【0051】

突起125は、好ましくは、活性ゾーン120の表面の20%から80%の範囲にわたって存在し、最も好ましくは、40%から50%の範囲にわたって存在する。

【0052】

供給開口部110から流出開口部130までの全体的な方向を「流路方向」と呼ぶことにする。図1の左右軸に対応する方向を、電極がこの方向に延在しているかどうかにかかわらず、「流れの方向」または「長さ方向」と呼ぶことにする。「流れの方向」は、電極を通常使用する位置に置いた場合の、垂直方向に相当する。「流路方向」は、長さ方向からあまり逸脱していないのが好ましい。逸脱は、5°～15°の間が好適である。9°の逸脱で好結果が得られた。30

【0053】

図1はさらに、数個の凹所150も示している。凹所150の形状は特に重要ではない。凹所150はとりわけ、正方形、長方形、円形または橢円形であってもよいが、円形の凹所150が好適である。凹所150は、有利には電極100の周縁部の一部分に位置する。電極100の平面状本体が、多角形または略多角形の形状、具体的には長方形の形状である場合には、凹所150は、好ましくは多角形の一側に沿って位置し、非常に好ましくは、多角形の一側全体に沿って位置する。さらに、凹所150の質量中心は、完全に位置合わせされない場合には、互いにほぼ位置合わせされていることが望ましい。凹所150を、隣接する電極100'の対応する凹所と協同して使用して、2つの並んでいる膜・電極接合体、例えば電解装置および燃料電池を機械的に固定してもよい。凹所150はまた、電極100の一側からその他側に熱を確実に伝達するのに役立つ場合もある。このため、好ましい実施形態では、凹所150は、略等温の拳動（理想的には、等温の拳動）を示す装置を提供することができる。隣接する電極100および100'は、それらの周縁部の一部分（その部分は凹所150を含む）で、熱伝導性ポリマー組成物で構成された層を通して互いに有利に接続され、この熱伝導性ポリマー組成物は、ポリマーおよび熱伝導性の無機粒子を含むことが望ましい。ポリマーは、ポリマー自体がポリオキシメチレンまたは芳香族重縮合体であるか、あるいはこれらを含み得る。芳香族重縮合体は、重縮合反4050

応によって得られる任意のポリマーであり、その芳香族重縮合体の繰り返し単位の 50 重量% 超が、少なくとも 1 つの芳香族部分を含む。本発明による好適な芳香族重縮合体は、[ビスフェノール A ポリスルホン (P S U) 、ポリエーテルスルホン (P E S) およびポリフェニルスルホン (P P S U) のような] 、ポリ (アリールエーテルスルホン) 、 [ポリフタルアミド、M X D 6 および M X D 10 のような] 、半芳香族ポリアミド、全芳香族ポリエステル (L C P) 、ポリフェニレンスルフィド (P P S) 、ポリアミドイミド、ポリイミド、ポリエーテルイミドおよびそれらの混合物である。特定の実施形態では、ポリマーは、芳香族重縮合体に加えて、脂肪族重縮合体を含み、望ましくは、脂肪族重縮合体 : 芳香族重縮合体の重量比は、最大でも 0.20 である (例えば、ポリマーは、M X D 6 と、ナイロン 6 またはナイロン 66 のような脂肪族ポリアミドの少なくとも 1 つとの混合物であり得る) 。ポリマー組成物の全重量に基づいたポリマーの重量は、通常 10 ~ 90 重量% 、好ましくは 30 ~ 70 重量% の範囲である。好適な熱伝導性の無機粒子は、セラミック粒子、特に、A 1 、B 、B e 、C e および Z r から選択される元素の酸化物、窒化物、炭化物およびケイ化物、およびそれらの混合物である。非常に好適な熱伝導性の無機粒子は、酸化アルミニウム粒子、酸化ホウ素粒子、窒化ホウ素粒子およびこれらの混合物である。ポリマー組成物の全重量に基づいた無機粒子の重量は、通常 10 ~ 90 重量% 、好ましくは 30 ~ 70 重量% の範囲である。無機粒子の重量は、約 50 重量% とすることができます。ポリマー組成物はさらに、熱安定剤、光安定剤および流れ調整剤のような添加物を含んでもよい。添加物が存在する場合には、それらの量は一般に 25 重量% を超過せず、最大でも 5 重量% である場合がほとんどである。ある実施形態では、ポリマー組成物は、ポリマーおよび熱伝導性の無機粒子から本質的に構成される。ポリマーは一般に、ポリマー組成物のマトリックスを形成するが、熱伝導性の無機粒子は、一般に前記マトリックス中に分散している。ポリマー組成物は、その熱伝導性によってさらに特徴付けられてもよい。この熱伝導性は、室温 (23) で測定された時に、有利には最少でも 2.0 W / (m . K) であり、好ましくは最少でも 4.0 W / (m . K) であり、より好ましくは最小でも 6.0 W / (m . K) 、そしてさらに好ましくは最小でも 7.0 W / (m . K) である。この熱伝導性は、通常最大でも 20.0 W / (m . K) であり、最大でも 10.0 W / (m . K) である場合がほとんどである。本発明の実施形態はとりわけ、突起 125 の形状を適切に選択することで、ガス気泡の形成が改善され、それらのガス気泡は次第に凝集して、液体電解質を通って流れの方向に輸送されやすくなる、という洞察に基づいている。

【 0054 】

本発明の実施形態はとりわけ、突起のパターンを慎重に設計することで、突起間に事実上の溝が形成されるようになり、この事実上の溝の主要な機能は、反応部位に水を供給することであり、またその副次的な機能は、確実にガス気泡が電極から効率的に除去されることである、という洞察に基づいている。そのような事実上の溝は、好ましくは直線に沿って配置される、多角形の突起の平行な側面によって画成されうる。これらの事実上の溝は、破線矢印として図 1 に示される。溝の幅は、好ましくは 1 mm ~ 5 mm であり、さらに好ましくは、 2 ~ 4 mm であり、最も好ましくは、 2.6 mm 、 3 mm 、またはその間の範囲である。

【 0055 】

多角形の突起、具体的には平行四辺形の形状を有する突起、および最も好ましくはダイヤモンド形状を有する突起を用いると好結果が得られた。さらに具体的には、1 つの対角線、好ましくは長い方の対角線が、図 1 に示されるように、長さ方向に方向付けられているダイヤモンド形状の突起が、好結果をもたらしたが、これはダイヤモンド形状の対称的に方向付けられた鋭角が、電極表面全体にわたって接近する流体の流れを分割するのに非常に好適であるからである。接近する流れの方に向けられた角度は、好ましくは鋭角であり、より好ましくは 40 ° ~ 80 ° の範囲であり、最も好ましくは約 60 ° であり、この角度は、接近するガス気泡が付着するリッジ部分の形成を回避する。反対に、離れていくガス気泡の方に向けられた直径方向の角度も、好ましくは鋭角であり、より好ましくは 4

10

20

30

40

50

0°～80°の範囲であり、最も好ましくは約60°であり、縁部に沿って角度の方向へ移動する気泡が、表面張力バリアを克服して、突起から離れ去ることが可能になる。突起は、好ましくは10mm台の大きさを有する。

【0056】

平行四辺形形状の突起は、2組の平行な溝からなるパターンに対応する。溝が規則的な距離間隔をあけて配置される場合には、同じ距離が各組に対しても使用され、対応する突起は、図2aに示されるように、ダイヤモンド形状になる。ダイヤモンド形状の突起は、好ましくは最も長い対角線が、流れの方向に沿って方向付けられている。ダイヤモンド形状の突起は、好ましくは10mm～20mmの長さ（長い対角線）を有し、より好ましくは14mm～17mmの長さ、例えば約15.8mmの長さを有する。

10

【0057】

より一般には、突起は、凸状の多角形形状であってもよい。多角形が、その多角形の1つまたは複数の辺が、流れの方向に垂直であるように配置される場合には、その組み合わせた長さが、多角形の全周囲長の35%を超過してはいけない。多角形は、好ましくは内角が最も小さい角が、多角形の図心に対して流れの方向に略平行な方向に方向付けられるように、方向付けられる。

【0058】

上述した効果の恩恵を受けるためには、平面状本体に設けられた突起のかなりの部分、例えば少なくともその半分が、凸状の多角形形状を有することが好適である。より好ましくは、突起の少なくとも60%が、凸状の多角形形状を有する。最も好ましくは、突起の少なくとも75%が、凸状の多角形形状を有する。突起の縁部にガス気泡がトラップされることを可能な限り最大限に回避するために、凸状の多角形形状を有する突起だけを使用することが推奨される。

20

【0059】

特に有利な構成では、突起の大きさおよび／または配置は、突起間に画成された溝の幅が、流れの方向に徐々に増加して、（増え続ける小さなガス気泡が凝集することによって）大きくなったガス気泡を収容するようになっている。対応する突起は、完全な平行四辺形またはダイヤモンド形というよりはむしろ、図2bに示されるような、凧のような形状を有する。これは、出口側の角（流出開口部の方に向けられた角、すなわち実質的に流れの方向に向いている角）が、流入する流れの方向に向いている角ほど鋭角ではなくなるからである。

30

【0060】

突起の略平面状の上面は実際には、さらなる高さレベルの突起および溝を支持してもよい。これにより電極の活性ゾーンは、形成されたガスピケットを、第1の高さレベルの突起間に存在する広い方の溝を通って移動する大きなガス気泡中に、さらに効率的に放出することが可能になる。したがって、どの突起も、例えば4つの第2の高さレベルの突起を有してもよい。この原理を適用したものが、ダイヤモンド形状の突起については図3aに、凧形形状の突起については図3bに概略的に示される。ダイヤモンド形状の突起の場合では、第2の高さレベルの突起もダイヤモンド形状であることが好ましい。このプロセスを繰り返して、ダイヤモンド形状の突起の場合には、図3cに示されるような第3の高さレベルの突起や、さらに高次の突起を形成してもよい。

40

【0061】

突起の上面は、必ずしも電極本体の面のフットプリントとまったく同一の形状ではないことが理解されよう。これらの形状が同一で、突起の上面の面積の、その幾何学的底面の面積に対する比率が1/1であるならば、突起は、本体の面から突出する多角柱形状を有することになるであろう。この比率を近似させて電極の合計活性面積を最適化するのが望ましいが、1/1の比率は、機械的な観点から見て最適ではない。なぜなら、材料表面の亀裂が直角または鋭角で生じる可能性があり、多角柱の直立した側面は、実質的な薄厚化をこうむることになるであろう。したがって、突起の上面の形状は、好ましくはそのフットプリントに対して縮小され、最も特に好ましくは相似変換によって縮小される。そのよ

50

うな相似変換は、ダイヤモンド形状の突起 125について図4に概略的に示され、切り取られた角錐の外套部および上面 129を有する形状となっている。電極の本体と、突起の各々の側面との間の角度は、表面で損傷(亀裂)が生じる危険を最小限に抑えるために、鈍角であるのが好ましい(そのような角度の一例が、図4に記号¹で示される)。これは、上面の、電極本体上への正射影は、突起 125のフットプリントに完全に内接して組み込まれるという制約に幾何学的に対応する。好ましくは、突起の上面の面積の、その幾何学的底面の面積に対する比率は、少なくとも 1/4 であり、より好ましくは 1/2 を超え、さらにより好ましくは 2/3 を超える。

【0062】

突起 125は、好ましくは長さ方向に平行な対称軸を有する。あるいは、突起 125は、流路方向に平行な対称軸を有してもよい。10

【0063】

本発明の双極電極は、非常にコンパクトであり得る。電極の活性面積は、100 cm²以下であり、好ましくは 50 cm²以下であってもよい。本発明の双極電極は通常、積層膜・電極接合体(MEA)として組み立てられて、電解装置または燃料電池で使用してもよい。

【0064】

図5を参照すると、本発明による双極電極 100を用いて組み立てられる電解装置および/または燃料電池を、電解装置 510と、燃料電池 520と、電流インターフェース 540a、540bと、水素貯蔵タンク 530とを備えるエネルギー蓄積供給装置 500で使用してもよい。電解装置 510は、膜・電極接合体の中で直列に接続される、前述したような1組の双極電極 100を含む。双極電極 100は、好ましくは略垂直に配置されて、ガスと周囲の水との間の密度差の結果として形成されたガス気泡が自然に移動しやすくなる。電解装置 510は、電気分解プロセスのために必要な電流を引き出し、かつ、生成された水素を貯蔵するために、電流インターフェース 540aおよび水素貯蔵タンク 530に連結される。燃料電池 520は、燃料として貯蔵された水素を引き出し、かつ、生成された電流を送電線網または電気エネルギーの消費者に供給するために、電流インターフェース 540bおよび水素貯蔵タンク 530に連結される。通常動作時、任意の所与の時間に動作状態にあるのは、多くても電解装置 510および燃料電池 520のうちのどちらか1つである。20

【0065】

明確さを期すために、電流インターフェースは、別個の入力インターフェース 540aおよび出力インターフェース 540bとして図示されている。実際には、これは共通のインターフェースであってもよい。生成された電気を任意で、その場で並行して消費するか、または、ユーザーのニーズおよび選好に従って送電線網に返却してもよいことが理解されよう。

【0066】

エネルギー蓄積供給装置 500に要する空間を縮小するために、生成された水素は、好ましくは加圧貯蔵される。ポンプ装置 535として概略的に示される1つまたは複数のポンプを使用して、好ましくは 10 MPa 超の圧力に達するまで、より好ましくは 50 MPa 超の圧力に達するまで、最も好ましくは 70 MPa の、または 70 MPa 前後の圧力に達するまで貯蔵用の水素ガスに加圧してもよい。40

【0067】

電解装置 510によって生成された酸素は、大気中に放出されるか、または適切な容器に貯蔵されてもよい。同様に、燃料電池 520に必要な酸素は、(通常体積基準で分子酸素が約 21% 含まれている) 大気中から引き出すか、または適切な容器(大気中よりも酸素含有量の高いガスが入っていることが好ましい)から引き出してもよい。

【0068】

電解装置 510に必要な水は、公共の水道供給設備または適切な容器から得てもよい。この代わりに、またはこれに加えて、例えば空調装置の排気などから利用可能である場合50

には、周囲環境の水を使用してもよい。燃料電池 520 によって生成された水は、環境的観点から見て容認可能である場合には、蒸気として大気中に放出してもよいし、または将来使用するために貯蔵されてもよい。電解装置 510 は、大気圧の水で動作させてもよい。1つの実施形態では、電解装置 510 は、10 バールまでの圧力の水で動作する。別の実施形態では、電解装置 510 は、50 バールまでの圧力の水で動作する。

【0069】

電解装置の段階はそれぞれ、燃料電池の段階に対応してもよい。これにより、連続的な金属シートまたは接合された金属シートがそれぞれ、電解ゾーンでは電解装置の電極として、燃料電池では燃料電池の電極として使用される。その内容が本参照によって本出願に援用される、本出願人名義の欧州特許出願公開第 2424105 A 号明細書に記載されたような連続的な膜が、両方のゾーンにわたって延在してもよい。これにより、極めてコンパクトな前述のエネルギー蓄積供給装置 500 が実現可能になる。そのような接合体では、必要な手段を講じて電解ゾーンと燃料電池ゾーンとの間の流体連通を回避しなければならないことが理解されよう。

10

【0070】

ここで本発明による双極電極を製造する方法を、図 6 を参照しながら説明する。この方法の各ステップは、特定の順序で図 6 に説明されているが、この順序は、例示的であり、非限定的であるとみなさなければならぬ。

【0071】

電極の本体は、有利には 2 枚のシート状の金属から製造されてもよい。2枚のシート状の金属は、平面状本体の上面および底面に対応することになる。1対の金属シートを使用する利点は、底面および上面の突起を、ステップ 610 および 620 で個別に形成してもよいということである。この同じ段階で、適切な開口 110、115、130、135 および障壁 140 を設けてもまたよい。

20

【0072】

2枚のシートは、この段階では、1枚のマザーシートまたはマトリックスに含まれており、このマザーシートまたはマトリックスから、2枚のシートがその後の段階、すなわちステップ 650 および 660 で、カットされることに留意されたい。このような作業を行うことにより、両方のシートだけでなく、追加の電極に必要なシートを、効率的に同時にエンボス加工を行うことが可能になる。

30

【0073】

次に、2枚のシートは、突起が外方に面するように互いに重ね合わされ(670)、任意の適切な手段によって任意選択で接合される。

【0074】

シートは、好ましくは 100 μm ~ 1000 μm の厚さであり、より好ましくは 100 μm ~ 500 μm の厚さであり、最も好ましくは 100 μm ~ 200 μm の厚さである。金属は、好ましくはステンレス鋼であり、最も好ましくは 316 L グレードステンレス鋼である。ステンレス鋼は、材料強度と成形性との間で良好なトレードオフバランスを提供する。別の好ましい材料は、チタンである。チタンは 3D 印刷などの他の製造技術にも適している。意図されるプロセス、特に水の触媒による電気分解にさらに好適となるようにするために、例えば、ステップ 630 および 640 で、様々な被覆または表面処理を金属に施してもよい。被覆または表層は、多孔質構造を呈してもよい。多孔質構造はガス気泡の形成および合体のための孔核生成部位を供給する。

40

【0075】

各シートの突起は、シートの裏側から見れば凹部に相当するが、成形またはスタンピングによって形成されうる。突起を形成する特に有利な方法の1つは、ハイドロフォーミング(液圧成形)によってそれらをエンボス加工することである。これは、通常 2000 バールまでの高圧油圧油、いくつかの実施形態では 2500 バールまでにもなる高圧油圧油を使用して、加工材料を溶かさずに加工材料を金型に押し込む一種の型成形である。

【0076】

50

図7は、本発明の1つの実施形態による例示的な双極電極の注釈付き複製写真である。それは、関連する態様すべてにおいて、図1に示される実施形態と同様であり、対応する参照符号が付されている。さらなる詳細については、図1の説明を参照する。個々のダイヤモンド形状の突起125の上面に特に留意されたい。それらはこの図では、図3aに示され、上記で説明した原理に従って、4つのさらに小さなダイヤモンド形状の突起が設けられている。

【0077】

本発明の特定の特徴および利点が、電極の実施形態または電極を製造するプロセスの実施形態に関連してのみ上述の通り説明されてきたが、これは明確さを期すという理由のためだけに行われており、別途記載しない限り、これらの特徴は、実際には相互に交換可能であることが認識されなければならない。10

【0078】

本発明は、限られた数の具体的な実施形態に関して上述の通り説明されてきた。これらの実施形態は、本発明を明確にすることのみを意図し、かつ、本発明の範囲を限定しないことを意図しており、本発明の範囲は、添付の特許請求の範囲に従って決定されるものとする。

【0079】

上述された本発明は、請求項1に記載の電極に関するとともに、前記電極を備える電解装置と、対応するエネルギー蓄積供給装置と、その使用とに関するものであるが、発明者らはさらに、同様の装置を、請求項1に記載の電極以外の双極電極とともに使用してもまたよいことも発見した。20

【0080】

したがって、ここに開示される別の発明の態様は、複数の双極電極と、前記複数の双極電極間に配置された、関連するイオン交換膜とを備えるとともに、前記電極が直列に電気的に接続されて積層して配置された電解装置であって、前記電極が、第1の側および第2の側を有する平面状本体を備え、前記第1の側および前記第2の側のそれぞれに、対応するパターンの突起が設けられ、前記突起のそれぞれが、前記平面状本体の面内にある幾何学的底面および平面状の上面を有するとともに、前記上面の、前記本体上への正射影が、前記幾何学的底面に包含され、かつ、前記第1の側および前記第2の側のそれぞれの突起(129)の上面(129)が、前記平面状本体に平行な2つの面にある電解装置からなる。30

【0081】

双極電極の流れの特性が効率的であるので、強制対流手段を必要としない膜・電極接合体を組み立てることができる。したがって、電極を非常に高密度なスタックで組み合わせるので、コンパクトで信頼性の高い電解装置を製造することが可能になる。

【0082】

好ましくは、双極電極では、前記突起の平面状の上面(129)の面積の、それぞれの幾何学的底面の面積に対する比率は、1/4を上回る。好ましくは、双極電極では、前記突起のパターンは、小さくされた構成で、前記突起の前記上面で繰り返される。好ましくは、双極電極では、前記突起のパターンは、2組の直線状の溝が形成されるようになっており、それぞれの組ごとにある溝は、共通の方向に軸を有し、前記共通の方向は、その主要な構成要素を、意図される流れの方向に有する。好ましくは、双極電極では、前記突起のパターンは、それぞれの組ごとにある溝の平均幅が前記共通の方向に沿って増加するようになっている。好ましくは、双極電極では、平面状本体は金属でできている。40

【0083】

本明細書に開示される本発明のさらなる別個の態様は、前述の電解装置と、燃料電池と、電流インターフェースと、水素貯蔵タンクとを備えるエネルギー蓄積供給装置であって、前記電解装置が、電流を受け取るために前記電流インターフェースに連結され、および生成された水素を貯蔵するために前記水素貯蔵タンクに連結され、かつ、前記燃料電池が、前記燃料電池に電流を供給するために前記電流インターフェースに連結され、および貯50

蔵された水素を受け取るために前記水素貯蔵タンクに連結される、エネルギー蓄積供給装置を含む。

【 0 0 8 4 】

本発明による双極電極の利点を電解装置および／または燃料電池に適用して、効率的で、コンパクトで、信頼性の高いエネルギー蓄積供給装置を製造してもよい。この装置は、エネルギー蓄積用途において、蓄電池の代わりに使用することができる。

【 0 0 8 5 】

本明細書に開示された本発明のさらなる別個の態様は、前述の、水素を生成するための電解装置の使用を含む。

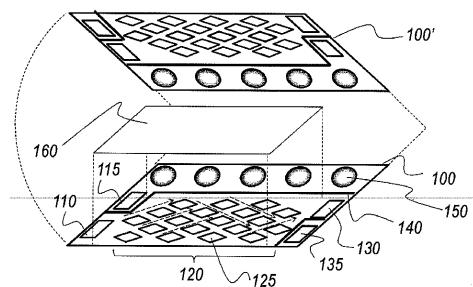
【 0 0 8 6 】

参照により本明細書中に援用される任意の特許、特許出願および刊行物の開示内容が、用語を不明瞭にするおそれがあるほどまでに本出願の記述と食い違う場合には、本明細書の記述が優先されるものとする。

10

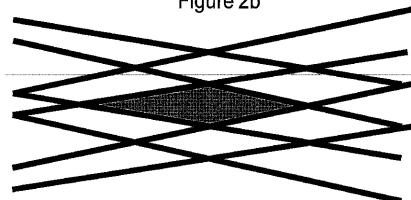
【 図 1 】

Figure 1



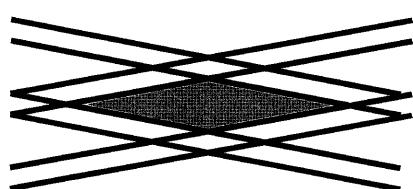
【 図 2 b 】

Figure 2b



【 図 2 a 】

Figure 2a



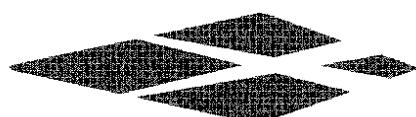
【 図 3 a 】

Figure 3a



【 図 3 b 】

Figure 3b



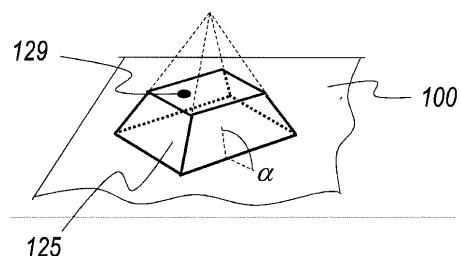
【図3c】

Figure 3c



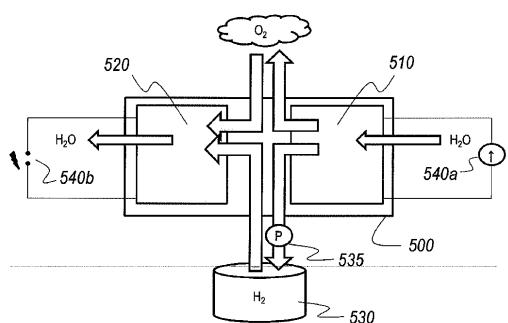
【図4】

Figure 4



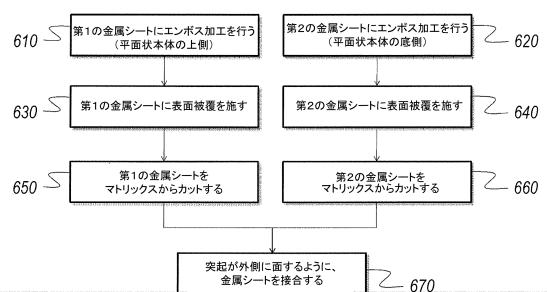
【図5】

Figure 5



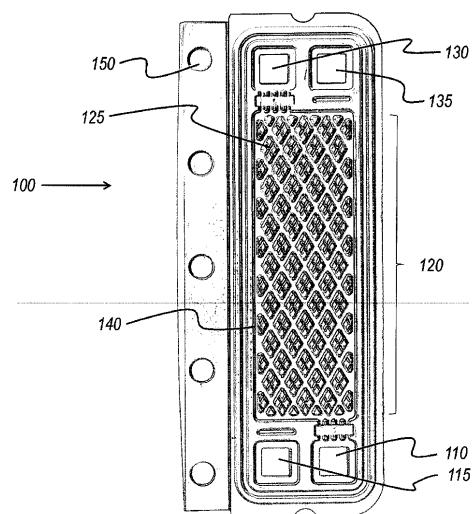
【図6】

図6



【図7】

Figure 7



フロントページの続き

(72)発明者 ザンドナ , ニコラ
ベルギー王国 ベー - 5000 ナミュール , アヴェニュー デ ヴュー ミュール 2ベー

審査官 宮本 靖史

(56)参考文献 米国特許第01328981(US, A)
特表平04-507433(JP, A)
特表2010-540776(JP, A)
特開平06-049675(JP, A)
特表2006-527906(JP, A)
特開2002-348694(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 25 B	1 / 0 0	-	9 / 2 0
C 25 B	1 3 / 0 0	-	1 5 / 0 8
C 25 B	1 1 / 0 0	-	1 1 / 1 8
H 01 M	8 / 0 0	-	8 / 0 2 9 7
H 01 M	8 / 0 8	-	8 / 2 4 9 5
H 01 M	4 / 8 6	-	4 / 9 8