

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4585310号  
(P4585310)

(45) 発行日 平成22年11月24日 (2010.11.24)

(24) 登録日 平成22年9月10日 (2010.9.10)

(51) Int. Cl.	F I
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/02 S
HO 1 M 8/24 (2006.01)	HO 1 M 8/02 R
HO 1 M 8/10 (2006.01)	HO 1 M 8/02 E
	HO 1 M 8/24 S
	HO 1 M 8/24 E

請求項の数 39 (全 23 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2004-500351 (P2004-500351)	(73) 特許権者	503191449
(86) (22) 出願日	平成15年4月23日 (2003.4.23)		プロトネクス テクノロジー コーポレー ション
(65) 公表番号	特表2006-502530 (P2006-502530A)		アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 サ ウスボロー、ノースボロー ロード 15 3
(43) 公表日	平成18年1月19日 (2006.1.19)	(74) 代理人	100102842
(86) 国際出願番号	PCT/US2003/012684		弁理士 葛和 清司
(87) 国際公開番号	W02003/092096	(72) 発明者	オスナー, ポール
(87) 国際公開日	平成15年11月6日 (2003.11.6)		アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 O 1886、ウェストフォード、グロトン ロード 408
審査請求日	平成18年4月21日 (2006.4.21)		
(31) 優先権主張番号	60/374,631		
(32) 優先日	平成14年4月23日 (2002.4.23)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 膜式電気化学的電池スタック

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電気化学的カセットであって、少なくとも2つのプレートと接触するように適合された少なくとも1つの膜電極接合体であって、各プレートが、1つまたは2つ以上の流動場を含み、該流動場のそれぞれが、少なくとも1つの溝を含み、前記流動場が、酸化剤流動場、燃料流動場、および冷却剤流動場からなる群から選択される、前記膜電極接合体を含み、各膜電極接合体および各プレートが、少なくとも1つの酸化剤マニホールド開口と、少なくとも1つの燃料マニホールド開口とを含み、各マニホールド開口が、カセットの厚さを貫通して延びており、各プレートが、それぞれのプレートにおいて流動場に配送することを意図しない特定の材料のための反応物マニホールド開口の周囲に選択的に形成された、少なくとも10  
その厚さの一部を貫通して延びる、少なくとも1つのシール材チャンネルを有し、前記  
 1つまたは2つ以上の膜電極接合体およびプレートが組み立てられて、その周囲のまわりをシール材によってカプセル化され、前記シール材が、前記1つまたは2つ以上のプレートの、それぞれのチャンネルを同時にシールし、材料を特定の流動場に配送することを意図しない反応物マニホールド開口を選択的に阻止する、電気化学的カセット。

【請求項 2】

各膜電極接合体および各プレートが、少なくとも1つの冷却剤マニホールド開口を含み、各冷却剤マニホールド開口が、カセットの厚さを貫通して延びる、請求項 1 に記載の電気化学的カセット。

【請求項 3】

各プレートが、ゼロまたは1つの酸化剤流動場を有するとともに、ゼロまたは1つの燃料流動場を有する、請求項1に記載の電気化学的カセット。

【請求項4】

各膜電極接合体が、燃料流動場および酸化剤流動場と接触する、請求項1に記載の電気化学的カセット。

【請求項5】

電気化学的カセットが燃料電池カセットである、請求項1～4のいずれかに記載の電気化学的カセット。

【請求項6】

各マニホールド開口が、マニホールド開口とプレートの周囲とを包囲するチャンネルによって画定される領域と実質的に同じ断面積を有する、開口である、請求項5に記載の燃料電池カセット。

10

【請求項7】

冷却剤流動場を有する、少なくとも1つのプレートを含む、請求項2に記載の電気化学的カセット。

【請求項8】

第1のおよび第2の流動場が接触するように位置合わせされている、第1の冷却剤流動場を有する第1のプレートと、第2の冷却剤流動場を有する第2のプレートとを含む、請求項2に記載の電気化学的カセット。

【請求項9】

少なくとも1つの冷却剤チャンネルが、各膜電極接合体と各プレートの間、または隣接するプレート間に配置されている、請求項5に記載の燃料電池カセット。

20

【請求項10】

各流動場が、プレートの一部分を通過して延びる複数の相互接続された溝を含み、該溝を介して材料が流動可能である、請求項5に記載の燃料電池カセット。

【請求項11】

各膜電極接合体が、触媒を含む2つのガス拡散層の間に配置された、イオン伝導性層を含む、請求項5に記載の燃料電池カセット。

【請求項12】

各膜電極接合体が、燃料電池カセットと実質的に同じ断面積を有する、請求項11に記載の燃料電池カセット。

30

【請求項13】

各膜電極接合体が、ガス拡散層と積層材の周囲を包囲するガスケットとの間に配置された、イオン伝導性層を有する、複合膜電極接合体を含む、請求項11に記載の燃料電池カセット。

【請求項14】

シール材チャンネルの少なくとも一部分が、膜電極接合体のガスケットに隣接する、請求項13に記載の燃料電池カセット。

【請求項15】

シール材チャンネルが、膜電極接合体のガスケットと積層材との境界に隣接する、請求項13に記載の燃料電池カセット。

40

【請求項16】

実質的にシール材チャンネル全体が、膜電極接合体のガスケットと接触している、請求項13に記載の燃料電池カセット。

【請求項17】

実質的にシール材チャンネル全体が、膜電極接合体のガス拡散層と接触している、請求項13に記載の燃料電池カセット。

【請求項18】

樹脂が、熱硬化性または熱可塑性の材料である、請求項1～4のいずれかに記載の電気化学的カセット。

50

## 【請求項 19】

熱可塑性材料が、熱可塑性オレフィンエラストマー類、熱可塑性ポリウレタン、プラスチック、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、フッ素化ポリプロピレンおよびポリスチレンからなる群から選択される、請求項 18 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 20】

樹脂が、10,000 ~ 150,000 cP の粘度を有する、請求項 18 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 21】

樹脂が、10,000 ~ 55,000 cP の粘度を有する、請求項 18 に記載の電気化学的カセット。

10

## 【請求項 22】

熱硬化性材料が、エポキシ樹脂類、ウレタン類、シリコン類、フルオロシリコン類、およびビニルエステル類からなる群から選択される、請求項 18 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 23】

シール材チャンネルの少なくとも一部が、カセットの 1 つまたは 2 つ以上のプレートの周縁に対して開放されており、その結果、カセットをカプセル化する間に、樹脂が前記シール材チャンネルに導入される、請求項 1 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 24】

各膜電極接合体およびプレートが、その厚さを貫通して延びる少なくとも 1 つのシール材穴をさらに含み、該シール材穴が、1 つまたは 2 つ以上のシール材チャンネルの少なくとも一部分に接触する、請求項 1 に記載の電気化学的カセット。

20

## 【請求項 25】

シール材チャンネルの少なくとも一部分が、カセットの 1 つまたは 2 つ以上のプレートの周縁に対して開放されている、請求項 24 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 26】

シール材または樹脂を、シール材穴の 1 つまたは 2 つ以上を介して、またはプレートの周囲まわりのシール材チャンネル開口を介して、燃料電池カセットに導入することのできる、請求項 25 に記載の電気化学的カセット。

30

## 【請求項 27】

シール材または樹脂が、圧力式樹脂トランスファーまたは真空式樹脂トランスファーによって導入される、請求項 26 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 28】

シール材または樹脂が、約 +15 psi ~ 約 -15 psi の圧力差の下で導入される、請求項 27 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 29】

シール材または樹脂が、0 psi ~ 約 50 psi の正圧力下の圧力式樹脂トランスファーによって導入される、請求項 27 に記載の電気化学的カセット。

## 【請求項 30】

シール材または樹脂が、約 750 Torr ~ 約 1 Torr の部分圧力下で、真空式樹脂トランスファーによって導入される、請求項 27 に記載の電気化学的カセット。

40

## 【請求項 31】

(a) 請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の、少なくとも 1 つの電気化学的カセット；  
(b) 反応物マニホールド開口（単数または複数）と位置合わせされた、1 つまたは 2 つ以上の開口を有する、少なくとも 1 つのエンドプレートを含む燃料電池スタックであって、

前記エンドプレートが、1 つまたは 2 つ以上の電気化学的カセットの、スタックの上端および/または下端に組み付けられ、その結果、前記エンドプレートの開口が、燃料マニホールド開口、酸化剤開口、および任意選択で冷却剤マニホールド開口と位置合わせされてい

50

る、前記燃料電池スタック。

【請求項 3 2】

エンドプレートが、樹脂によるカプセル化以前、かつシール材の導入以前に、電気化学的カセット（単数または複数）に組み付けられて、その結果エンドプレートおよび燃料電池カセット（単数または複数）が、組合せてカプセル化されてシールされる、請求項 3 1 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 3】

圧縮手段をスタックに適用して、燃料電池スタックに追加の圧縮力を加える、請求項 3 2 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 4】

エンドプレートが、電気化学的カセット（単数または複数）のカプセル化後に、1 つまたは 2 つ以上の電気化学的カセットに取り付けられる、請求項 3 1 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 5】

エンドプレートが、圧縮シールによって取り付けられる、請求項 3 4 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 6】

圧縮手段をスタックに適用して、燃料電池スタックに圧縮力を加える、請求項 3 5 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 7】

少なくとも 1 つのエンドプレートが、熱硬化性ポリマー、熱可塑性ポリマー、金属、または金属合金からなる、請求項 3 1 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 8】

エンドプレートの少なくとも 1 つが、充填材入りポリマー複合材からなる、請求項 3 1 に記載の燃料電池スタック。

【請求項 3 9】

充填材入りポリマー複合材が、ガラスファイバ強化熱可塑性材料またはグラファイト強化熱可塑性材料である、請求項 3 8 に記載の燃料電池スタック。

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は、2002年4月23日付願の米国特許仮出願第60/374,631号の権利を主張するものであり、参照によりその全文を本願に組み入れてある。

【0002】

発明の分野

本発明は、膜式電気化学的電池（Membrane based electrochemical cells）に関し、より具体的には、陽子交換膜（PEM（proton exchange membrane））燃料電池スタックに関する。本発明は、これらのPEM燃料電池スタックの新規な製造方法についても記述する。

【0003】

発明の背景

膜方式電気化学的電池、特に陽子交換膜（PEM）燃料電池は、よく知られている。PEM燃料電池は、実質的に環境排出物なしに化学エネルギーを電力に変換するとともに、エネルギーが貯蔵されるのではなく、供給燃料から抽出される点においてバッテリーとは異なる。したがって、燃料電池は、充電/放電サイクルに拘束されず、燃料が連続的に供給される限り、所定の電力出力を維持することができる。燃料電池研究と実用化への巨額の投資は、この技術が市場において相当な可能性を有することを示すものである。しかしながら、従来型発電技術と比較しての燃料電池のコストが高いことが、その普及を遅らせている。燃料電池の製造および組立のコストは、それに含まれる材料および労力のために、高くなる可能性がある。実際に、燃料電池のコストの85%までが、製造によるものと

10

20

30

40

50

なる可能性がある。

【0004】

単一セルPEM燃料電池は、薄い、イオン導電性膜によって分離されたアノードおよびカソードの区画からなる。この触媒作用を利用した膜は、ガス拡散層を備えるか、または備えないものがあり、膜電極接合体（「MEA(membrane electrode assembly)」）と呼ばれることが多い。エネルギー変換は、PEM燃料電池のアノード区画およびカソード区画に、反応物、還元剤および酸化剤がそれぞれ供給されるときに始まる。酸化剤としては、純酸素、空気などの酸素含有ガス、および塩素などのハロゲン類がある。還元剤は、本明細書では燃料とも呼ぶが、それには、水素、天然ガス、メタン、エタン、プロパン、ブタン、ホルムアルデヒド、メタノール、エタノール、アルコール混合物およびその他の水素を多く含む有機物がある。アノードにおいて、還元剤が酸化されて、陽子を生成し、この陽子が膜を横断してカソードへと移動する。カソードにおいて、これらの陽子が酸化剤と反応する。全体的な電気化学的レドックス（酸化/還元）反応は自然発生的であり、エネルギーが放出される。この反応の全体を通して、PEMは、還元剤と酸化剤とが混合するのを防止するとともに、イオン移動の発生を可能にする。

10

【0005】

現在の先端技術燃料電池設計では、単一セルよりも多くのセルを含み、実際には、通常はいくつかのMEA、流動場およびセパレータプレートを直列に組み合わせて、燃料電池「スタック」を形成し、それによってより高い電圧とほとんどの商業用途に必要なとされる大きな電力出力とを提供する。流動場は、燃料電池を通しての反応物の流通を可能として、通常は、燃料電池内部の多孔質電極層から分離されている。スタック構成に応じて、1つまたは2つ以上のセパレータプレートをスタック設計の一部として使用して、燃料電池スタック内部での、燃料、酸化剤および冷却用の投入流または排出流の混合を防止する。そのようなセパレータプレートは、スタックに対して構造的な支持ともなる。

20

【0006】

バイポーラプレートは、酸化剤流動場、燃料流動場およびセパレータプレートの組み合わせたものと同じ機能を果たし、これらは機能する燃料電池に必要な構成要素の数を低減することができるので、燃料電池の設計において頻繁に使用される。このようなバイポーラプレートは、MEAに接触するプレートの表面に形成されたチャンネルの配列を含み、これが流動場として機能する。ランドは、電極からの電流を伝え、一方で、ランド間のチャンネルが、燃料電池で使用する反応物を分配し、水などの液体反応副生成物の除去を容易にする。燃料は、チャンネルに誘導されて、バイポーラプレートの片方の面上を、燃料吸入ポートから燃料排出ポートへと配送され、一方で酸化剤が、バイポーラプレートの反対側の面上を酸化剤吸入ポートから酸化剤排出ポートへと配送されて、2つの面はプレートを貫通して連結はされていない。燃料電池スタックにおいて、各バイポーラプレートは、その燃料流動場面を介して、燃料をスタックの1つのMEAに配送する役割を果たし、同時に、その反対側の酸化剤流動場の面を介して、酸化剤を第2のMEAに配送する。バイポーラプレート流動場チャンネルの具体的な設計は、温度、電力出力、および気体吸湿などの、燃料電池スタックの動作パラメータに対して最適化することができる。燃料電池スタックに使用するための理想的なバイポーラプレートは、薄く、軽量で、耐久性があり、高い導電性があり、耐食性のある構造、例えばカーボン/ポリマー複合材、グラファイトまたはある種の金属である。

30

40

【0007】

流動場において、ランドは電極から電流を伝え、同時にランド間の溝は、燃料電池で使用する燃料、例えば水素、酸素または空気などを、電極の表面上に均一に分布させる役割を果たす。ランドと溝とによって形成されるチャンネルも、水などの液体反応副生成物の除去を容易にする。通常はグラファイトまたはカーボンでできた、多孔質紙、布またはフェルトの薄いシートを、流動場のそれぞれとMEAの触媒面(catalyzed face)との間に配置して、MEAを支持して、この場合に、そのシートは、流動場の溝に直面して、隣接するランドに電流を伝えるとともに、反応物をMEAへ配送するのを支援する。この薄いシ

50

ートは、通常は、ガス拡散層（「GDL (gas diffusion layer)」）と名づけられており、MEAの一部として組み込むことができる。

【0008】

燃料電池スタックには、1つまたは2つ以上の流動場内部に吸湿チャネルを含めることもできる。これらの吸湿チャネルは、燃料電池の動作温度にできる限り近い温度で、燃料および酸化剤に加湿する機構を提供する。これによって、燃料電池に入るガスと、PEMの温度との大きな温度差によって、水蒸気がPEMから燃料流および酸化剤流へ移送されるので、PEMの脱水を防止するのを助ける。

【0009】

あるスタック構成要素、例えばMEAのGDL部分は、反応物および副生成物を燃料電池スタックの中、その外、およびその内部に配送するために、必然的に多孔質である。スタック内部の要素が多孔性だであるせいで、スタック構成要素間（またはスタックの外側）での液体または気体の漏れを防止するとともに、環境への露出による構成要素の乾燥を防止する手段も必要である。この目的で、ガスケットまたはその他のシールが、MEAの表面とその他のスタック要素との間、およびスタック周囲の部分上に設けられる。これらのシーリング手段は、ゴム材料で構成されようとも、接着材料で構成されようとも、一般に、シールする特定の表面に、設置、装着、形成または直接的に貼付される。これらの工程は、労働集約型であり、大量生産のためにはならず、そのために燃料電池のコストをより高くする。さらに、これらの工程の変動性によって、製造歩留りが低く、また装置の信頼性が低くなる。

【0010】

燃料電池スタックは、電力出力、冷却、およびその他の技術要件に応じて、設計に広がりがあるが、複数のMEA、シール、流動場およびセパレータプレートを、複雑な組立体として使用することがあり、それは、製造が困難となるとともに燃料電池コストがさらに上昇する。これらの多数の個別構成要素は、一般に、単一の複雑なユニットに組み立てられる。燃料電池スタックは、胴締めまたはその他の方法を使用することもできるが、一般的には、エンドプレートとボルトを使用して、ガスケットシールおよびスタック構成要素が、互いに緊密に保持されて、それらの間で電氣的接触が維持されるように、ユニットを加圧することによって形成される。これらの従来式加圧手段は、スタックにさらに多くの構成要素および複雑さを加えるとともに、さらなるシーリング要件を与える。

【0011】

いくつかの従来型燃料電池スタックに関連して観察される他の欠点は、本質的に電氣的なものである。例えば、燃料電池の構成と、反応物、試薬および反応物を流動場に供給する様々なマニホールド内の廃液流へのMEAの露出の程度に応じて、セル横断電圧 (cross-cell potential) の問題が生じることがある。特に、それらの試薬へのMEAの露出が激しい場合には、MEA層の「短絡 (shorting-out)」が起こり、それによって燃料電池の性能が全体的に低くなる可能性がある。また、MEAのいくつかの可能性のある冷却流体への露出は、膜部分に対して有害である可能性がある。例えば、MEAと冷却剤とのある組合せにおいては、冷却剤は、膜の露出部分を溶媒和化 (solvating) または膨潤させる能力があり、これはMEAに損傷を与える可能性がある。

【0012】

燃料電池スタック組立体設計におけるこれらの欠陥に対処し、それによって製造コストを低減するために、様々な試みが行われてきた。しかしながら、ほとんどのものは、構成要素の手作業による位置合わせ、シーリング手段の能動配置および/または多段階工程を必要とする。

いくつかの従来式方法が、Schmidらの米国特許第6,080,503号、Chiらの米国特許第4,397,917号、およびEppらの米国特許第5,176,966号に記載されている。しかしながら、そのような従来式方法には顕著な欠点が伴っていた。

【0013】

例えば、Schmidらの米国特許第6,080,503号には、スタックの特定の部分にあ

10

20

30

40

50

るガスケット式シールを、テープ、充填剤または層の形態の接着剤を基材とする材料と置換することが記載されている。しかしながら、そのようなスタックの組立には、シールを充填するのとは異なる方法で、接着工程の間に、手作業による構成要素の位置合わせを必要とし、シーリングは、能動配置によって接着剤が塗布された界面においてのみ行われる。

同様に、Chiらの米国特許第4,397,917号は、燃料電池スタック内のサブユニットの製作について記載しており、取り扱いおよび試験が容易になると報告している。しかしながら、この設計は、構成要素間、およびサブユニット間の従来式シーリングに頼っている。さらに、サブユニットを内部的に貫通するマニホールドはない。

#### 【0014】

同様に参照すべきは、Eppらの米国特許第5,176,966号による、必要なガスケットの少なくとも一部を、燃料電池スタック複合体中に直接的に形成する方法；およびKrasijらの米国特許第5,264,299号による、反応物を触媒層に配送する2つの多孔質支持層の間に設置されたPEMを有する燃料電池モジュールであり、これにおいては、支持層の周囲部分がエラストマー材料で充填されて、その結果、PEMが支持層と接合されるとともに、支持層の開放孔(open pores)がエラストマー材料でシールされて、それが流体不透過性にされる。

#### 【0015】

さらに、国際公開WO02/093672には、液体樹脂の注入による、燃料電池スタックのシーリング方法が記載されている。この報告の方法では、すべてのスタック構成要素を最初に組み立てて、次いでシールを導入して燃料電池スタックを生成することが必要である。この方法は、先に述べた最新技術の燃料電池スタックの形成方法に対する何らかの改善を提供はしているが、いくつかの欠陥が残っている。実際には、例えば、この方法は、高い注入圧力を必要とするとともに、長い充填時間を伴う。高い注入圧力によって、スタックのより脆弱な構成要素(すなわち、MEA)を保護する構成要素設計がさらに必要となる。別の顕著な欠点は、各層におけるかなり大きな面積が、シーリング工程そのもののために必然的に犠牲になることである。

#### 【0016】

またさらに、従来の燃料電池カセットにおいては、2種類のMEAが支配的である。それは、1)膜が、ガス拡散層の境界を超えて延びている、および2)ガスケット材料が、MEA自体の縁端中に形成されているMEAである(膜およびGDLが、ほぼ同じ寸法および形状である、例えばBallardの米国特許第6,423,439号を参照)。第1のタイプでは、別個のガスケット材料を使用して、GDLを超えて延びる膜縁端と、スタックの別の部分(バイポーラプレート)との間がシールされる。第2のタイプにおいては、スタックの他の部分に直接的にシールすることができる。これらの方法のそれぞれは、シールするのに圧縮を必要とする。これらの圧縮に基づくシールでは、スタック内のすべての構成要素を高精度として、それによって均一な荷重が維持されることが要求される。MEA製造業者は、上記のMEA型式を供給するのに慣れている。

#### 【0017】

本願発明者らの以前の特許出願においては、個々のモジュールを一緒に組み立てて、各モジュールがある数のユニットセルと一緒に永久的に束ねて、必要電力出力の燃料電池スタックを形成する、革新的な燃料電池スタック設計について報告した(本明細書に参照として組み入れる、米国特許出願第09/908,359号に基づく、国際公開WO02/43173を参照のこと)。

#### 【0018】

要するに、WO02/43173は、燃料電池カセットの形成の、3段階方法を詳細に記述しており、それは以下の項目を含む。

1)特定の流動場(燃料、酸化剤、および冷却剤)のそれぞれの未使用マニホールド開口/ポートをシールすること。例えば、酸化剤流動場の場合には、燃料および冷却剤の配送に使用されるポートを、その外周まわりでシールして、これらの入力流の混合を防止しな

10

20

30

40

50

ければならない。

2) M E A 層内部の反応物の漏れを防止するために、膜電極接合体 ( M E A ) 内部のすべてのポートをシールすること。

3) 特定のスタック設計によって処方される方法において、型または治具の内部に、( 前述のように適切にシールされている ) これらの構成要素を積層すること。治具内で部品が組み立てられると、樹脂が周囲まわりに導入される。真空トランスファー成形または射出成形技法を使用して、樹脂は、カセット複合体の縁端中に送りこまれる。硬化すると、樹脂は、構造支持および組立体上の縁端シーリングをもたらす。

【 0 0 1 9 】

結果として得られる燃料電池カセットは、次いで、エンドプレートを追加して燃料電池スタックに変換される。このような構築によって、適切なマニホールドおよび圧縮手段が得られる。

本願発明者らは、また、スタックまたはモジュール内部のマニホールドポートをシーリングする革新的な方法、ならびにより労力が少なく、かつより大量生産工程に適する、スタックまたはモジュール周囲をシーリングする方法も開発した ( 参照により本明細書に組み入れてある、米国特許仮出願第 6 0 / 3 3 7 , 8 5 1 号を参照のこと ) 。

【 0 0 2 0 】

この分野における本願発明者ら自身の進歩にもかかわらず、より簡単で、より信頼性があり、かつ製造コストの低い、改良型の燃料電池スタック設計を提供することは望ましいことであろう。さらに、M E A のロールツーロール ( roll-to-roll ) 生産を使用して、特に、これによって、この構成要素のコストを大幅に低減するように、燃料電池カセットを製作する方法を提供することは非常に望ましい。また、反応物、廃液流、または様々なマニホールドのまわりの冷却液への M E A の露出を最少化または防止して、それによってセル横断電圧問題またはその露出に関連する材料不適合を避ける、改良型燃料電池カセットを開発することも非常に望ましい。さらには、低い射出圧力で形成ができて、構成要素設計を簡略化するとともに、シーリング工程に対応するために、各層において非常に大きな面積を犠牲にする必要のない、改良型燃料電池スタックを開発することも極めて望ましい。

【 0 0 2 1 】

#### 発明の概要

本発明は、上述のものを含む、従来式スタックおよび関係する方法に対する顕著な改良を提供するものである。特に、本発明は、バイポーラプレートを使用する燃料電池スタックを含む、改良型電気化学的カセットおよび燃料電池カセットを提供する。それぞれのシールされたスタックモジュールは、本明細書では「燃料電池カセット」または「電気化学的カセット」と呼ぶが、これは、接着内部マニホールディングを有して、シールされて内臓式ユニットを形成する、電気化学的構成要素の組立体である。これらの電気化学的カセットまたは燃料電池カセットは、標準化仕様を達成するように設計することができる。

【 0 0 2 2 】

本発明の好ましいカセットは、一般に、少なくとも 2 つのプレートと接触するように適合された、少なくとも 1 つの膜電極接合体を含み、各プレートは、1 つまたは 2 つ以上の流動場を含む。それぞれの流動場は、少なくとも 1 つの溝を含み、この溝が、そこを通過する流れを容易化するか、またはその他の方法で可能にする。個々の流動場は、酸化剤流動場、燃料流動場、および冷却剤流動場から選択される。本発明によれば、各膜電極接合体および各プレートは、少なくとも 1 つの酸化剤マニホールド開口および少なくとも 1 つの燃料マニホールド開口を含み、各マニホールド開口はそれぞれ、カセットの厚みを貫通して延びている。各プレートは、好ましくは、少なくとも 1 つのシール材チャネルを有し、これが、その厚みの少なくとも一部を貫通して延びている。

【 0 0 2 3 】

また、本発明によれば、1 つまたは 2 つ以上の膜電極接合体およびプレートが組み立てられて、シール材によってその周囲のまわりをカプセル化されている。このシール材は、同時に、前記 1 つまたは 2 つ以上のプレートの、それぞれのチャネルをシールして、特定

10

20

30

40

50

の流動場に材料を配送することを意図しない、反応物マニホールド開口を、選択的に阻止する。このようにして、各特定の層の内部にある、いくつかのマニホールド開口は、選択的に閉止または開放されたままとなり、望ましくない流れが、低減または排除される。

【0024】

燃料電池スタックのバイポーラプレート構成要素の内部に機械加工またはその他の方法で形成されるシール材穴（任意選択）およびチャンネルの数、形状、および配置を介して、シール樹脂が、組立体に導入されて、組立体の外周をシールするとともに、組立体内部のいくつかのマニホールドポートをシールする。本発明の改良型燃料電池スタックは、従来式燃料電池構成要素から製造可能であるとともに、射出成形法および真空方式樹脂トランスファー成形の両工法を利用することができる。

10

【0025】

本発明は、最少の労力で燃料電池スタックの製造を可能とし、それによってそのコストを劇的に低減するとともに、工程自動化を可能にする。さらに、本発明においては、マニホールド開口は、エンドプレートの圧縮またはその他の圧縮手段によるのではなく、シール材の燃料電池構成要素への接着によってシールされる。これによって、最終スタックに必要なとされる圧縮が減少し、シールの信頼性が向上し、電気的接触が改善され、より広範な樹脂の使用が可能となる。さらに、エンドプレートを、燃料電池カセット中に成型することによって、1ステップで全体スタック（例えば、燃料電池カセットおよびエンドプレート）を生成することが可能である。

【0026】

20

好ましい一実施態様においては、本発明は、GDLおよび膜が実質的に互いに同じ全体外形であるとともに全体スタック形状である、MEAを有する燃料電池を提供する。これらの燃料電池の1つの利点は、事後処理を必要とすることなく、ロールツーロールMEAを直接的に使用する能力である。

説明の目的で、シール工程は次のように行われる。バイポーラプレートに刻み込まれたチャンネルを通過する、シール材は、隣接するMEAに接着してシールを生成しなくてはならないだけでなく、多孔質GDL部分を貫通してバイポーラプレートと非多孔質イオン伝導性膜の間に気密および/または液密シールを提供しなくてはならない。より具体的には、MEA上のGDLの表面へのシーリングのみでは、反応物がGDLを通過して、シールしようとするスタックの領域に進入する可能性がある。これは、ガス状反応物（すなわち、水素）の使用において特に重要であり、この場合にはGDLの多孔質性によって、多量の脱出が起こることがある。これは、液体反応物（すなわち、メタノール）の場合には、燃料およびGDLの特性に応じて、問題となったり、ならなかったりする。

30

【0027】

別の好ましい実施態様においては、本発明は、複合MEAを有する燃料電池を提供する。この複合MEAは、好ましくは、MEA積層構造の周囲に固定したガスケットを含む。複合MEAを含む、好ましい燃料電池においては、周囲ガスケットの外形は、スタック断面の外形とほぼ同寸法である。MEAの能動部分は、組み立てられたスタック内の上方および下方で、反応物流動場と概略位置合わせして配置されている。このような実施態様において、バイポーラプレートのシール材チャンネルは、通常、複合MEAのガスケット部分の少なくとも一部と位置合わせされている。このようにして、反応物、様々なマニホールド内の排出物流または冷却剤流への、MEAの望ましくない露出が、最少化されて、それによってセル横断電圧問題が回避される。

40

【0028】

本発明のカセットの好ましい製造方法は、一般に、意図する用途に好適な寸法および数の、カセットの様々な構成要素（例えば、さらに本明細書において記述するように、それぞれがマニホールド開口をそれぞれ有する、1つまたは2つ以上のMEAおよびプレート）を提供すること、その用途の出力要件をサポートする設計構成に構成要素を組み立てること、およびプレートに刻み込まれた特定のチャンネルにシール材を導入することを含む。これらのチャンネルをシールすることによって、特定の流動場に材料を配送することを意図し

50

ない、あるマニホールド開口が選択的に阻止され、それによって望ましくない流れを防止するか、または少なくとも実質的に低減する。さらに、シール材によって、チャンネルをシーリングすると同時に、組立体の外周をカプセル化することができる。

本発明の関連する観点を以下で考察する。

#### 【 0 0 2 9 】

##### 発明の詳細な説明

本発明は、電気化学的用途における使用に適する多様なカセットを提供する。上述のように、本発明のカセットは、特に燃料電池における使用に好適である。

図 1 は、本発明の燃料電池スタック 1 0 の一実施態様を示す。本明細書に記述する方法によって形成されて、任意の数の M E A、冷却剤流動場、およびバイポーラプレートを含む燃料電池カセット 1 が、圧縮手段 5 によって上端および下端のエンドプレート 3 a および 3 b の間に配置されている。燃料電池カセットは、カセットの上端および下端にターミナルプレートまたはエンドプレートを使用することも可能であり、このようなターミナルプレートは、バイポーラプレート構造の半分（すなわち、1 つの流動場面（flow field face）のみ）からなる。M E A は、当該技術分野で知られているか、または市販されている材料から製作することができる。この好ましい実施態様においては、M E A は、触媒効果利用カーボン紙を N A F I O N 過フッ素化スルホン酸膜（米国 E. I. DuPont de Nemours and Company が市販）の両側面にホットプレス加工することによって製造される。燃料 1 5、酸化剤 1 9、および冷却剤 1 7 の入力および出力を示してある。

#### 【 0 0 3 0 】

好ましい一実施態様においては、燃料電池構成要素のすべてが、ほぼ同一形状の外周に切断されている。2 系列のマニホールド開口またはマニホールドポート、各反応物流用の吸入開口および排出開口が、M E A およびバイポーラプレートに切り開かれており、カセットを貫通しての燃料および酸化剤の流れ用のマニホーディングを提供する。代替実施態様においては、1 つまたは 2 つ以上の冷却剤流動場も使用され、この場合には、追加の系列のポートが、各構成要素に切り開かれており、カセットを通しての冷却剤の投入流および排出流を実現する。シーリング溝は、バイポーラプレートのそれぞれと、適用可能な場合には、冷却剤流動場とに切り込まれており、これを介して、シール材を、燃料電池組立体全体のシーリングと同時に、未使用のポートを閉止するように誘導することができる。構成要素のそれぞれにおけるシーリング溝の形状および配置を使用して、構成要素中へのシール材の流れを、制御することができる。特定の層上でシールすべきでないポートを包囲するような溝を、切り込むことはない。

#### 【 0 0 3 1 】

溝の長さや形状に応じて、組立体の縁端からのシール材流は、ポートを完全にシール閉止するには適切でないことがある。そのような場合には、シール材穴を構成要素中に切り開いて、追加のシール材をシーリング溝に直接引き込むのに使用する。

M E A 内部の G D L の多孔質性の特性のせいで、バイポーラプレートのシーリング溝に導入されたシール材は、G D L に浸透して M E A のマニホールドポートをシールする。シーリング後の M E A 4 0 の燃料流動場面の写真を図 2 に示してあり、ここでは M E A 4 0 は、カセットから切り出して、酸化剤 1 9 および冷却剤 1 7 ポートがシールされて、燃料ポート 1 5 が開放されたままであることを示している。従来式方法においては、ポリマー膜は、G D L を超えて延びて、シール目的のフレームを提供することが必要であった。結果的に、これは、製造コストを増大させることになる。それとは異なり、本発明は、G D L およびポリマー膜が、実質的に同一の寸法および形状のときに、シーリングを行うことを可能にする。このことは、本発明において使用する M E A が、製造コストを相応に低減した上で、連続的に製作することができるので、有利である。

#### 【 0 0 3 2 】

図 3 は、シーリング溝が切り込まれた、バイポーラプレートの好ましい実施態様を示す。バイポーラプレート 2 0 の両側に、シーリング溝 2 3 が追加されている。そのようなシーリング溝 2 3 は、流動場チャンネルパターン 1 1 が妨害されることなく、カセットを通し

10

20

30

40

50

て適切な反応物流を提供しなくてはならないので、バイポーラプレート20面上の流動場チャンネルパターン11に接続されていない。これらのシーリング溝23の設計は、バイポーラプレート20の燃料流動場面において、燃料ポート15が開放されたままとなり燃料を配送するのに対して、残りの酸化剤ポート19および冷却剤ポート17はシールされるように、設計されている。バイポーラプレート20の反対側の酸化剤流動場面において、酸化剤ポート19は開放されたままとなり、酸化剤を分配するのに対して、その他のすべてのポートはシールされている。図4に、バイポーラプレート20の酸化剤流動場面を示してある。すなわち、シーリング溝23は、燃料吸入ポートおよび燃料排出ポート15ならびに冷却剤吸入ポートおよび冷却剤排出ポート17を包囲するが、酸化剤吸入ポートおよび酸化剤排出ポート19は包囲していない。

10

#### 【0033】

次に図4を参照すると、バイポーラプレート20用の、シーリング溝23およびシール材穴21の代替設計を示してあり、ここではシール材穴21が使用されており、シール材は、シール材穴21から引き込まれて(または押し込まれて)、燃料ポート15および冷却剤ポート17を包囲するシーリング溝23に入り、シール材は組立体の周囲から引き込まれて、構成要素の周囲だけをシールする。シール材穴は、MEAにも追加しなくてはならない。

#### 【0034】

シーリング溝およびシール材穴パターンの別の実施態様を、図5のバイポーラプレート20上に示してある。図のように、シール材は、シール材穴21から引き込まれて、燃料ポート15および冷却剤ポート17をシールする。外周9およびポートを包囲するシーリング溝23は、組立体の外周9まわりのシーリング溝と隔離されている。この実施態様においては、外周の接合には、組立体全体を外部カプセル化する必要がなく、これは熱除去に対して有利である場合がある。

20

図6は、シーリングチャンネルおよびシール材穴のパターンの、さらに別の実施態様を示し、ここではシーリング溝23には、周囲9およびシール材穴21の両方を介してシール材が供給され、燃料ポート15および冷却剤ポート17をシールする。

#### 【0035】

適当なシール材穴および/またはシーリングチャンネルが、上述のように、燃料電池構成要素のそれぞれに切り込まれるかまたはその他の方法で形成されると、望ましいカセット設計および出力要件によって、構成要素を組み立てる。バイポーラプレートを利用する燃料電池スタックの組立には、ターミナルプレートを使用してもよく、このターミナルプレートには、バイポーラプレート構造の半分だけ、すなわち1つの流動場面だけが実装される。

30

非常に基礎的な組立設計においては、図7に示すように、MEA13は、2つのターミナルプレート25aおよび25bの間に配置される。しかしながら、別の好ましい実施態様における、組立設計では、ターミナルプレート、MEA、バイポーラプレート、第2のMEA、および第2のターミナルプレートをこの順番で含む。

#### 【0036】

追加のバイポーラプレートおよびMEAを、完成燃料電池に対する出力要件に応じて、冷却層を追加するか、または追加せずに、カセット組立体に追加することができる。通常、複数のMEAを有する燃料電池は、冷却剤層の間に配置された1から約10のMEAを有する、反復ユニットを含む。さらに一般的には、約2から約4のMEAが冷却剤層の間に配置されており、これが、MEA濃度の最大化と、カセットまたはスタック全体の十分な熱除去の維持との間のバランスをとる。

40

#### 【0037】

次に図17を参照すると、隣接する冷却剤流動場84の間に配置された2つのMEA13を有する、特に好ましい反復ユニットを示してある。この反復ユニットは、2つのMEA層13、1つの燃料流動場72および酸化剤流動場74を有するバイポーラプレート70、冷却剤流動場84および酸化剤流動場74(または燃料流動場72)のいずれかを有

50

する2つのバイポーラプレート80(および82)を含む。したがって、バイポーラプレート80と82とは、プレートのいずれかの端で、中央マニホールドポートを通過する鏡面によって関係づけられる。この冷却剤流動場84は実質的に対称である。バイポーラプレート80および82の反対側面上の流動場は非対称であり、冷却剤流動場が「上」面、すなわちプレート82であるか、または「下」面、すなわちプレート80であるかによって、燃料流動場または酸化剤流動場のいずれかを形成することになる。冷却剤流動場のその他の配設および構造は、容易に決定することができ、それらは本発明の範囲にあることを、当業者は認識するであろうが、図17に示す構造は、構成要素が少なく、2種類のバイポーラプレート(例えば、プレート80および70)だけであるので、低コストでのより大量の生産に適している。

10

#### 【0038】

燃料電池用途の使用に対して、本発明のカセットは、通常、次の構成要素：膜電極接合体(MEA)、流動場、およびセパレータプレートを含む、スタック式組立体の形態で使用される。

例示組立体設計について記述したが、燃料電池は、最終燃料電池カセットの出力要件に応じて、一緒に組み立てた任意所望の数の構成要素を有することができることを、当業者は認識するであろう。特定の設計とは関係なく、組立体内の各構成要素のポートが、その他の構成要素のポートと位置合わせされるように、構成要素が組み立てられる。図8に示すように、組立体30は、型またはキャビティ31内に配置されて、簡単なクランプまたはボルトパターンなどの適当な圧縮手段35を用いて、上端プレート33によって型内部の定位置に保持される。シール材穴を利用する場合には、上端プレートも、シール材をそこから組立体に導入することのできる穴を包含することになる。

20

#### 【0039】

真空式樹脂トランスファー成形技法を使用して上述の燃料電池カセット組立体をシールするために、すべての組立構成要素の、外周まわりおよびシール材穴中に、シール材を導入する。組立体内部のポートのそれぞれを介して真空に引く。圧力差によって、シール材が組立体の縁端中に引き込まれ、それによって組立体内の構成要素の周囲が互いにシールされ、組立体が最終燃料電池カセットに形成される。さらに、同じ圧力差によって、バイポーラプレートに切り込まれた溝の中に、シール材が引き込まれる。シール材穴が存在する場合には、圧力差によって、シール材を、シール材穴を介して溝の中へ吸引するか、または別の方法で引き込む。またシール材は、溝および縁端から、隣接するMEAのGDLに浸透する。外周およびポートのシーリングは、シール材が、溝を流れて、適当なポートに達して、それをシールするとともに、MEAの隣接する部分を塞ぐと完了する。

30

#### 【0040】

カセット組立体の全体にわたって、各流動場が適切にシールされて、その結果として、対象とするマニホールドポートだけが、個々の層上で開放されたままとなる。残りのポートは、すでにシールされた溝によって、選択的に阻止/包囲される。組立体の縁端は、また、シール材によってカプセル化される。シーリング工程を達成するのに必要な圧力差および時間は、構成要素およびシール材用に使用される材料の関数であり、それには、それに限定はされないが、シーリング溝の形状、シール材の粘性および流動特性、およびMEAに使用するガス拡散層の種類などがある。

40

#### 【0041】

代替手法として、圧力式樹脂トランスファーを使用して、低粘性シール材を、シール材穴の中および/または組立体の周囲まわりに押し込むことができる。粘度が150,000 cP未満、より好ましくは100,000 cP未満の二液性熱硬化性樹脂(two part thermoset resins)によって、シーリングチャンネルおよびスタック外部の充填を、最小の駆動圧力(<10 PSI)において非常に短い充填時間(<1分)で行うことが可能となる。さらに、燃料電池構成要素およびシーリングチャンネルの設計が、高圧力充填技術および通常要求されるよりも厳しい公差による派生効果によって、複雑化することがない。

#### 【0042】

50

射出成形技法を使用して燃料電池カセットをシールするためには、組立体の周囲まわり、およびすべてのシール材穴の中に、シール材を機械的に押し込む。好ましい実施態様においては、シール材として使用する熱硬化樹脂を、注入穴の中、および組立体の縁端まわりに注入して、燃料電池カセットを型から取り外す前に硬化させる。別の実施態様においては、熱可塑性樹脂をシール材として使用する。このシール材は、注入穴の中、および組立体の縁端まわりに注入して、燃料電池カセットを型から取り外す前に、冷却して硬化させる。関連する温度および圧力に対処することのできる型を使用する。

#### 【0043】

したがって、本明細書において提供する、燃料電池および関連する電気化学的カセットを製造する方法は、迅速なプロトタイプ設計および最適化を可能にする。これらの製造方法は、さらに、樹脂トランスファー成形または低圧射出成形技法のいずれかを使用する、電気化学的または燃料電池カセットの少量から中量（すなわち、< 100,000ユニット）の生産に好適である。特に、本発明のカセットは、減少/低圧力で製造することができる。さらに、本発明のカセットは、所与のカセット寸法に対して、電気化学的に活性な大きな断面積を有する。すなわち、シーリングの目的で使用しなくてはならない（犠牲にする）カセットの部分が少ない。

10

#### 【0044】

本発明の低圧シーリング技法に必要となる、小さい断面積によって、カセット内での試薬の供給および流動場からの排除においてより高い柔軟性が得られる。結果として、流動場における試薬消耗が減少するか、または解消される。すなわち、例えば、各流動場に、2つまたは3つ以上の試薬マニホールドからの試薬を供給し、廃液を2つまたは3つ以上の排出マニホールドを介して流動場から除去することもできる。

20

流動場設計の柔軟性が向上することで、カセット効率が向上し、またさらにカセット設計の拡張性がもたらされる。すなわち、本発明の意図するカセットは、同様の電力出力を有する既存の燃料電池よりも概して小さいカセットにより生成される、比較的大きなまたは比較的小さな電力出力を有するものである。

#### 【0045】

周囲およびポートをシールするのに使用するシール材の選択は、作動燃料電池システムにおいて見られる条件に対して、そのシール材が、必要な化学的および機械的な特性、例えば、それに限定はされないが、温度安定性などを有するようにする。適当なシール材としては、熱可塑性プラスチックおよび熱硬化性エラストマーの両方がある。好ましい熱可塑性プラスチックには、熱可塑性オレフィンエラストマー類、熱可塑性ポリウレタン、プラスチック、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、フッ化ポリプロピレンおよびポリスチレンがある。好ましい熱硬化性エラストマーとしては、エポキシ樹脂類、ウレタン類、シリコーン類、フルオロシリコーン類、およびビニルエステル類がある。

30

#### 【0046】

図9に示す代替実施態様においては、上述のシーリング段階の間に、エンドプレート3aおよび3bが直接、燃料電池カセット1に接着37される。この実施態様を使用することで、いくつかの便益が生じる。エンドプレート間で燃料電池カセットを圧縮する必要をなくすることによって、燃料電池スタックの信頼性が向上し、かつ実質的に重量が減少する。また、組み込まれるエンドプレートに取付部品を含めて、それによって燃料電池スタックをさらに簡略化することができる。好ましい実施態様においては、外部の燃料、酸化剤および冷却剤の流れへの接続を、スタックに使用するターミナルプレートに追加して、その結果、ターミナルプレートがスタックのエンドプレートとして機能する。

40

#### 【0047】

次に図13を参照すると、本発明の燃料電池カセットの使用に適した、ある好ましい複合膜電極接合体は、積層膜電極接合体13を含み、これは、その周囲のまわりを、熱硬化性または熱可塑性エラストマー材料からなるガスケット52で包囲されている。一般的に、好ましいのは、熱硬化性材料、特にシリコーン材料からなるガスケットを有する、膜電極

50

接合体である。複合MEAは、市販されている。例えば、3Mの3M Fuel Cell Components Programによって製造された、顧客対応MEAを参照されたい。

その他の好ましい複合膜電極接合体は、触媒層（ある場合には）の部分を含む積層膜電極接合体と、周囲から除去したガス拡散層とを含み、その結果として、イオン導電性層が、複合膜電極接合体の周囲まわりに露出される。

#### 【0048】

次に図10を参照すると、ある好ましい実施態様においては、ある真空式樹脂トランスファー成形技法および圧力式樹脂トランスファー成形技法を使用して、（スタック外部の外部縁端から、またはシール材穴を介して導入する）シール材をシーリングチャンネル23の中に引き込むことができる。チャンネル23がシール材で満たされると、さらなる真空によって、シール材が、チャンネル23と接触する、GDL54の一部に引き込まれる。好ましくは、シール材は、チャンネル23と接触するGDL54のその部分で、シールが液密または気密になるように、非多孔質複合材58を形成する。本発明のこの実施態様は、製造を容易にすることにおいて好ましい。特に、この実施態様では、カセットの組立およびカプセル化の以前に、MEAの修正がほとんど必要ではない。すなわち、それは、燃料電池カセットの大量生産用に好ましいシーリング手段である。

#### 【0049】

この特定の実施態様では、シール材とGDLとの間に、かなり複雑な相互作用を必要とすること、またより広範な最適化を必要とする場合があることに留意されたい。理想的には、シール材は、GDLの孔隙を完全に塞ぐべきである（これは、すべての動作モードにおいては必要でない）。この相互作用は、GDL（特に何らかの表面処理）およびシール材の化学的特性が、整合性があることを必要とする（すなわち、通常、GDL内の孔隙を塞ぐには、シール材がGDLをよく濡らすことが必要である）点において、開発において面倒になることがある。したがって、以下に開示するその他のシーリング手段が、少量から中量の規模の生産、例えば約 $10^4$ ユニット程度の生産に好ましい場合がある。

#### 【0050】

次に図11および12を参照すると、上記の直接実行に対するいくつかの代替案があり、それは、電気化学的電池の製造ならびにその開発の両方において有利である場合がある。MEA製造業者は、現在、組込み縁端ガスケット52および/またはGDL層54を越えて延びる膜56縁端を備える複合MEA50を製造している。これらの複合MEA50は、チャンネルシーリング概念においても直接使用することができる。MEA13のGDL部分に隣接するシール材チャンネル23を備えるのではなく、それを複合MEA50（図11を参照）のガスケット52上に配置することができる。シール材チャンネル23に引き込まれるか、または押し込まれたシール材は、次いで、複合MEA50のガスケット52の材料と直接的にシールを形成することができる。いくつかの実施態様においては、これは、シール材とGDLとの直接相互作用の心配なしに、MEAの特性（GDLの種類、表面処理）を変更することができるので、有利なことがある。

#### 【0051】

図12に示すように、MEA13の周囲を包囲するガスケット52に対するシール材チャンネル23の別の配置は、シール材が、GDL54に対するとともに、包囲するガスケット52の一部に対して接着することを可能にする。すなわち、シーリングチャンネル23は、複合MEA50に隣接し、その結果、チャンネル23は、ガスケット52と、GDL54のいくらかの部分との両方に露出される（図12を参照）。これが有利である理由は、シール材と縁端ガスケットとの相互作用が、GDLと相互作用することなく、確実なシールを形成することができ、それでもシール材はGDL中に引き込まれ、処理中に複合材58を形成する（シーリング工程の信頼性を向上させる）からである。

#### 【0052】

さらに、複合MEAのガスケット部分をシーリングすると、MEA表面と接触する流動場に導入されていない試薬への、そのMEA表面の露出を、最少化または防止する。さらに具体的には、燃料および酸化剤を供給するマニホールド開口が、通常は電気化学的に活性

10

20

30

40

50

ではない複合MEAのガスケット部分にのみ露出される。したがって、酸化剤流動場と接触しているMEAの表面は、複合MEAの積層GDL/MEA構造が、例えば、燃料マニホルドと接触していないので、その表面の燃料への露出が防止される。

#### 【0053】

冷却剤マニホルドを含むカセットにおいては、マニホルド開口は、好ましくは、複合MEAのガスケット部分だけに露出させる。そのような配設によって、MEAおよび/またはカセットへの冷却剤誘起損傷が、低減または防止される。

本発明の新規な構成によって、MEAの同一表面の部分を酸化剤および燃料に露出させることによって、いくつかの燃料電池カセットにおいて観察されることのある「短絡」過程が回避される。この短絡過程は、大部分はMEAの同一表面の一部が酸化剤および燃料に露出されることに起因し、この結果として、MEA層からの電力出力が低下すること、例えば、MEA表面と接触していない流動場に導入されていない試薬へ露出されたMEAの部分が、MEAの有効表面積を減少させることになる。その結果として、MEAの表面積に比例する、燃料電池電気出力も減少する。

#### 【0054】

非複合MEAを含む本発明の別の燃料電池、すなわちMEAおよびGDL積層が燃料電池スタックの周囲まで延びるMEAにおいては、MEAの厚みを貫通するマニホルド開口は、バイポーラプレートのシーリングチャンネルの機能と干渉することなく、最大断面積を有するように切り開かれる。より具体的には、燃料または酸化剤マニホルドに対応する、MEAを貫通するマニホルド開口は、バイポーラプレートのシーリングチャンネル内のシール材によって塞がれているGDLの部分の内側に画定される領域とほぼ同一の形状である断面にまで拡大されている。

#### 【0055】

図14を参照すると、燃料、酸化剤および任意選択で冷却剤マニホルドと位置合わせされた、MEA内の開口15、17、および19は、最大化された断面を有する。そうすることによって、酸化剤マニホルドまたは燃料マニホルド内に存在する酸化剤または燃料に露出される、MEAの部分はわずかであるか、またはまったくない。理論に拘束されるのを望むわけではないが、異なるマニホルド内の試薬および廃液流へのMEAの露出を最小化することによって、試薬および冷却剤を燃料電池の異なる流動場に提供すると、流動場と接触するMEAの寸法を増大させることなく、高い電力生成が得られると思われる。

#### 【0056】

別の観点では、本発明は、燃料電池、電気化学的またはイオン交換用途に適するスタックを提供する。本発明のスタックは、少なくとも1つの本発明のカセット、およびカセットの試薬マニホルド開口と位置合わせされた開口を有する、少なくとも1つのエンドプレートを備える。各カセットは、試薬マニホルド開口が位置合わせされるように、互いに組み立てられる。エンドプレートは、エンドプレート内の開口が試薬マニホルド開口と位置合わせされるように、燃料電池カセットのスタックの上端および/または下端に組み付ける。

#### 【0057】

本発明が提供する燃料電池スタックを形成するために、エンドプレートおよび燃料電池カセットを組み立てる手段は、特に限定されるものではなく、圧縮ガスケットシールならびに樹脂および/またはシール材内への共同カプセル化を含めることができる。好ましい実施態様においては、エンドプレートは、樹脂によるカプセル化以前で、かつシール材の導入以前に燃料電池カセットに組み付けて、その結果、エンドプレートと燃料電池カセットとを組み合わせて、例えば同時に、カプセル化してシールする。

本発明の他の好ましい実施態様においては、1つまたは2つ以上の燃料電池カセットを製造し、次いで、1つまたは2つ以上の圧縮ガスケットおよびエンドプレートと一緒に、互いにスタックに配置する。貫通ボルト、束縛(tie down)またはその他の機械式締結具などの圧縮手段を、燃料電池スタックに取り付けて、燃料電池カセットおよびエンドプレートを機械的にシールする。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 5 8 】

本発明のカセットまたはスタックにおける層寸法および層数は、特に限定はされない。一般に、各流動場および/または膜接合体は、約  $1 \text{ cm}^2$  から約  $1 \text{ m}^2$  の間であるが、ある種の用途においては、比較的大きいおよび比較的小さい流動場層および/または膜接合体層が適当であることがある。本発明の燃料電池カセットにおける層寸法と層数は、様々な用途に対して十分な電力供給を生成するように構成することができる。しばしば、本発明の燃料電池カセットの電力出力は、約  $0.1 \text{ W}$  から約  $100 \text{ kW}$  の範囲、またはより好ましくは約  $0.5 \text{ W}$  から約  $1$  または  $10 \text{ kW}$  の範囲になる。本発明の、その他の好ましい燃料電池カセットは、約  $5 \text{ W}$  から約  $1 \text{ kW}$  までの範囲となる。

## 【 0 0 5 9 】

カプセル化に使用される樹脂またはシール材の選択は、作動燃料電池システムにおいて見られる条件に対して要求される化学的および機械的特性（例えば、酸化剤安定性）を有するように行う。適当な樹脂/シール材には、熱可塑性プラスチックおよび熱硬化性エラストマーの両方がある。好ましい熱可塑性プラスチックとしては、熱可塑性オレフィンエラストマー類、熱可塑性ポリウレタン、プラスチック、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、フッ素化ポリプロピレンおよびポリスチレンがある。好ましい熱硬化性エラストマーには、エポキシ樹脂類、ウレタン類、シリコーン類、フッ化シリコーン類、およびビニルエステル類がある。

## 【 0 0 6 0 】

シーリング工程を達成するのに必要な圧力差および時間は、燃料電池カセット構築に使用する材料の関数である。これらには、シール材チャンネル形状、樹脂の粘性および流動特性、およびMEAに使用するガス拡散層の種類がある。当業者であれば、これらのパラメータに基づいて適切な時間および圧力を判断することができるであろう。また、本発明を実施する者は、組立体の最上層に樹脂の変化をそこから見ることで透明型を使用して、シーリング工程中に目視検査することによって、最も適当な時間および圧力を確認することもできる。

本発明の好ましい燃料電池カセットを、以下の説明用の実施態様によって、さらに説明するが、この説明用の実施態様は、説明のためだけのものであり、本発明をそこに開示する特定の成分および量に限定するものではない。

## 【 0 0 6 1 】

実施例 1

## 真空式樹脂トランスファー成形

図3に示す溝およびシール材穴のパターンを使用して、バイポーラプレートを、ポリマーグラファイト複合材中に（片側に酸化剤流動場、反対側に燃料流動場を備えて）機械加工した。MEAは、既知の工程を使用して製作し、図7に示すパターンに従って、例えば、マニホールド穴と同一パターンを有するバイポーラプレートと同一の外部寸法に、名目どおり切り出した。6つのMEA、5つのバイポーラプレート、および2つのターミナルプレートを、図8に示す型内で、次の順序で組み立てた。すなわち、ターミナルプレート、MEA、バイポーラプレート、MEA、バイポーラプレート、MEA、バイポーラプレート、MEA、ターミナルプレートの順である。組立体は、シリコーン樹脂Silastic M（米国、ミシガン州ミドランド、Dow Corning Corporation市販）を用いて、23インチHgの真空で約90秒間かけてカプセル化した。

## 【 0 0 6 2 】

実施例 2

## 圧力式樹脂トランスファー成形

燃料電池スタックは、エンドプレート、複合MEAおよびバイポーラプレートから、シリコーン中へのカプセル化によって製作した。エンドプレートは、水素入出力、空気入出力、および冷却剤入出力、ならびにシール材追加用穴、のためのマニホールドに対応するねじ切り穴を有するアルミニウムから機械加工した。これらのエンドプレートは、接触抵抗

10

20

30

40

50

および腐食安定性を改良するために金でコーティングし、それによって、エンドプレートと電流収集装置としての機能を果たした。MEAは、より大きな5層片（触媒およびガス拡散層を両側に有する膜）から切り出し、シリコンガスケットを、周囲に接着した（例えば、図13を参照）。MEAのガスケット部分に、マニホルドポートおよびシール材穴に対応して、穴をパンチ加工した。バイポーラプレートは、2つの変種：燃料流動場および酸化剤流動場[A-A]を備えるもの、ならびに燃料流動場および冷却剤流動場[A-B]を備えるものを、グラファイトポリマー複合材から機械加工した。スタックは、次の順番の部品で製作した。

#### 【0063】

エンドプレート、バイポーラプレート[B-A]、MEA、バイポーラプレート[A-A]、MEA、バイポーラプレート[A-B]、バイポーラプレート[B-A]、MEA、バイポーラプレート[A-A]、MEA、バイポーラプレート「A-B」、エンドプレート。

10

この組立体を、図8に示す型と同様な型に配置して、位置決めして軽く締め付けた。2液性シリコンSilastic T2（米国、ミシガン州The Dow Corning Corporation of Midlandが市販）を、静的ミキサを介して手操作で汲み上げ（ $< 5 \text{ PSI}$ ）で、4つのシール材ポートのそれぞれに入れた。未硬化のシリコンは、シール材マニホルドを通過して、シール材チャンネルを介してスタック全体に移動する。スタックの外部は、シール材マニホルドを介して樹脂を継続的に押出すことによって、未硬化の樹脂で包囲し、それによって閉じ込められた空気を放出した。スタックおよび型は、 $80^\circ\text{C}$ の炉で1時間で迅速に硬化させた、一旦、結果として得られる燃料電池スタックを型から外すと、全体の適当なシーリングを保証するために、 $10 \text{ PSI}$ までの漏れ試験を実施した。

20

#### 【0064】

ある動作モードにおいては、（特に、反応物を、数PSIよりな大きな圧力にする場合に）この燃料電池スタックにいくらかの締め付けを加えるのが好ましいことがある。これは、任意の外部機械的手段によって達成することができる。さらに、スタックの内部を貫通するねじを、シール材およびカプセル化ステップ後（しかし、シール材が硬化する前）に、シール材穴に挿入することによって追加した。その結果は、燃料電池内部にカプセル化された内部圧縮手段である。ねじおよびナットを使用するか、代わりに下部エンドプレート内のシール材穴にねじ切りして、挿入したねじが、上部エンドプレートを貫通して、下部エンドプレートにねじ込まれるようにすることができる。電氣的に絶縁された層（すなわち絶縁スリーブ）をねじに加えて、スタック構成要素内部の短絡を防止するのが有利なこともある。

30

#### 【0065】

### 実施例3

#### 標準射出成形

自動射出成形を利用する上で、上述の方式を、ほとんど変更をすることがない。2液性樹脂（例えば、実施例1で使用したシリコン）を使用することによって、真空に引くのではなく、内部ポートに圧力をかけることによって、樹脂をチャンネルに注入できることを示した。熱可塑性樹脂の従来型射出成形に対して、使用する型は、関連する温度および圧力に対処しなくてはならない。溶融樹脂を、注入穴の中および組立体の縁端まわりに注入して、冷却、硬化させる。注入速度特性、パック圧力、および冷却時間は、構成要素損傷の可能性を最小化すること、ならびに収縮/歪曲を制御して最終部分のシーリングを確保するために、最適化される。最後に、燃料電池カセットを型から取り外す。

40

本発明の以上の記述は、単に説明のためのものであり、本発明の主旨または範囲から逸脱することなく、変更および修正を行うことができると理解される。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0066】

【図1】本発明による燃料電池の一実施態様の見取り図である。

【図2】本発明による、ポートシーリング後の（カセットから分解された）燃料流動場面

50

MEAの写真である。

【図3】本発明によるバイポーラプレートの燃料流動場面の、上面見取り図である。

【図4】本発明に使用する、シーリング溝およびシール材穴設計の一実施態様の見取り図である。

【図5】本発明に使用する、シーリング溝およびシール材穴設計の別の実施態様の見取り図である。

【図6】本発明に使用する、シーリング溝およびシール材穴設計の別の実施態様の見取り図である。

【図7】本発明に使用する簡易燃料電池組立体の分解概略図である。

【図8】カプセル化前の、型内の燃料電池組立体の写真である。

10

【0067】

【図9】接着エンドプレートを有する本発明の燃料電池カセットの概略上側面図である。

【図10】MEAのGDL部分に隣接するチャンネルシールの切開図である。

【図11】MEAの縁端ガスケットに隣接するチャンネルシールの切開図である。

【図12】GDLおよびMEAの縁端ガスケットの両方に隣接するチャンネルシールの切開図である。

【図13】MEAの周囲のまわりにガスケット領域を有する複合MEAの見取り図である。

。

【図14】シーリング操作においてMEAのGDL部分を目潰しした後に、シール材によって画定されるマニホールド開口を包囲する領域と、実質的に同寸法であるマニホールド開口を有する、MEAの見取り図である。

20

【図15】例1において記載した工程によって製造される燃料電池カセットの、電流および電圧のグラフである。

【図16A】バイポーラプレートの酸化剤流動場または燃料流動場の概略図である。

【図16B】バイポーラプレートの冷却剤流動場の概略図である。

【図17】1つの冷却剤流動場および2つの燃料電池ユニットセル(MEA、酸化剤流動場および燃料流動場を含む)を有する、本発明の典型的な燃料電池カセットの反復ユニットの分解概略図である。

【 図 1 】

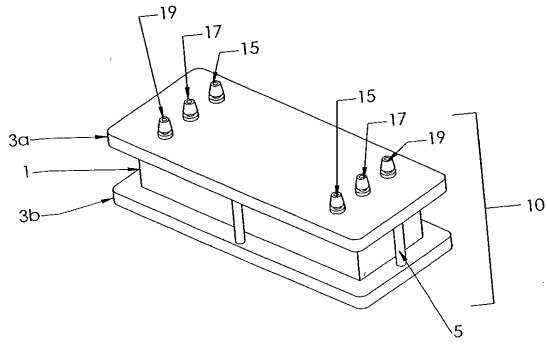


図 1

【 図 2 】

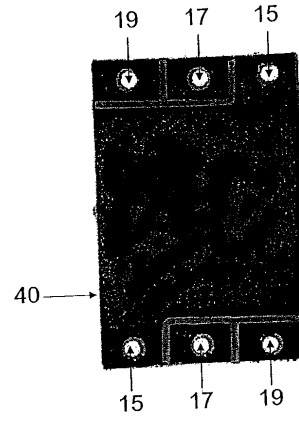


図 2

【 図 3 】

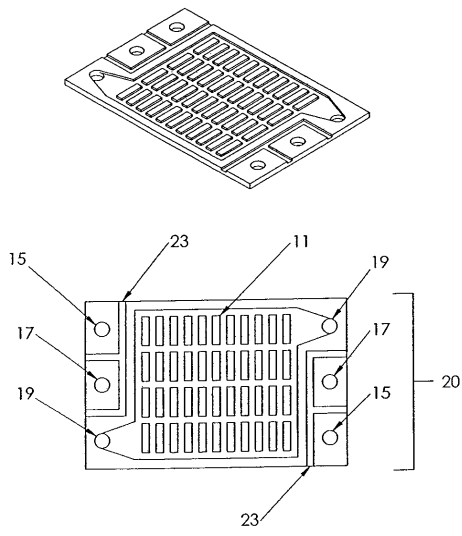


図 3

【 図 4 】

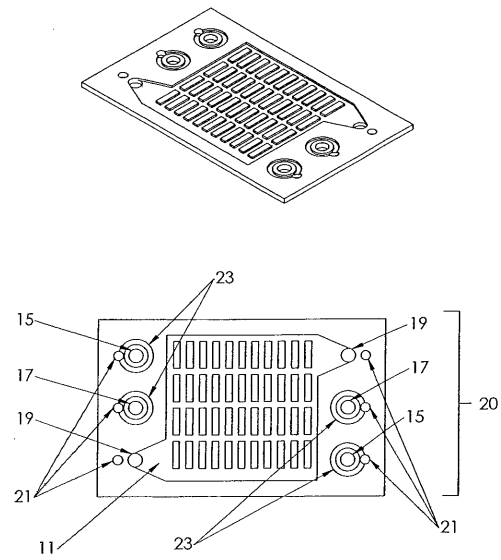
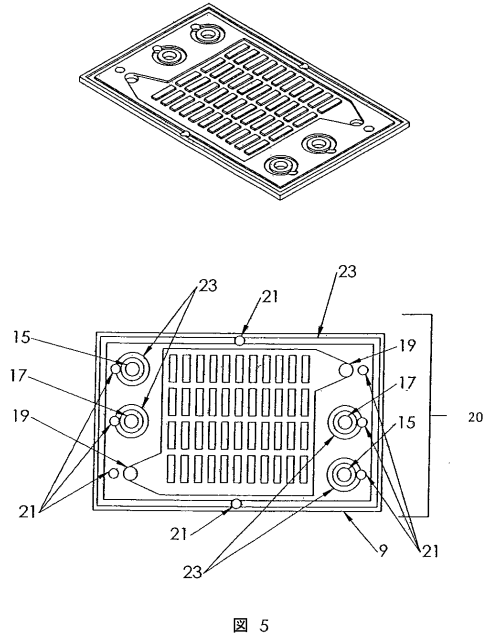
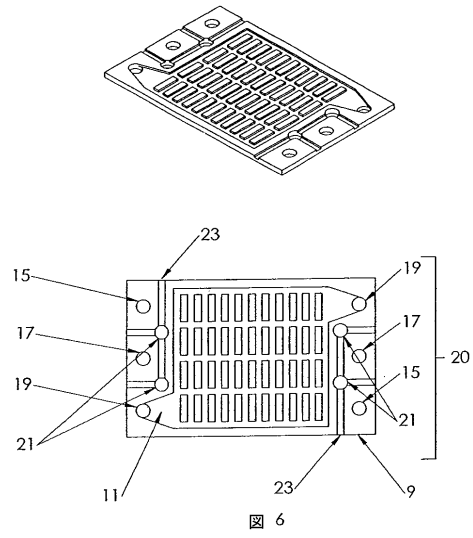


図 4

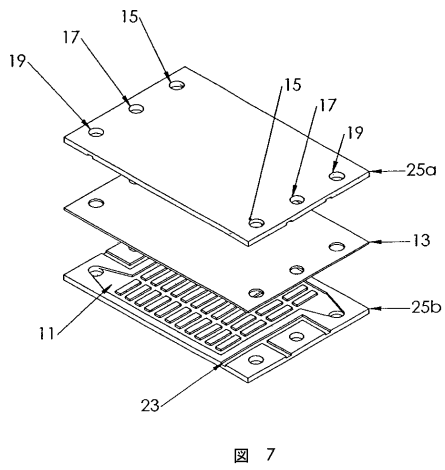
【図 5】



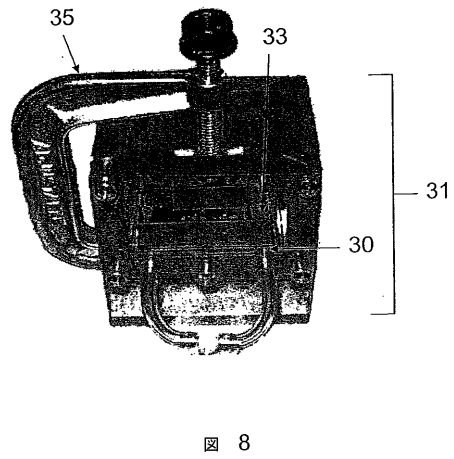
【図 6】



【図 7】



【図 8】



【図 9】

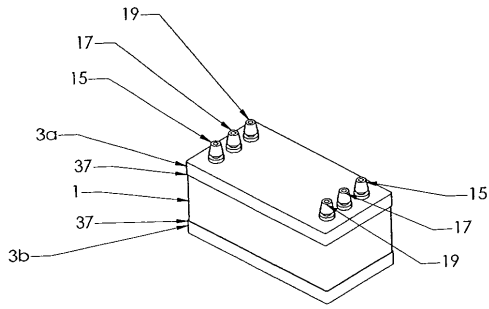


図 9

【図 10】

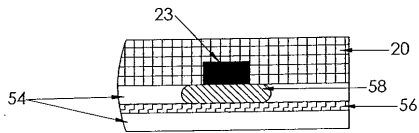


図 10

【図 14】

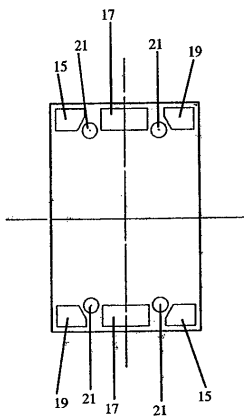


図 14

【図 15】

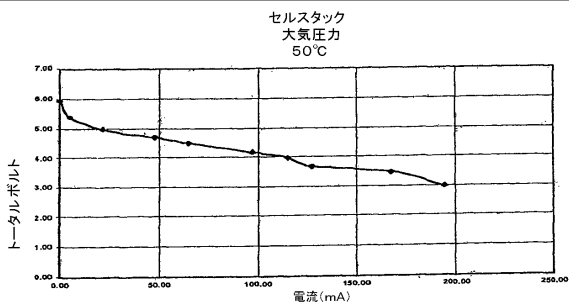


図 15

【図 11】

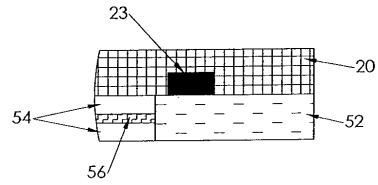


図 11

【図 12】

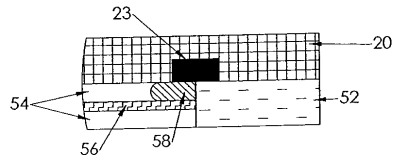


図 12

【図 13】

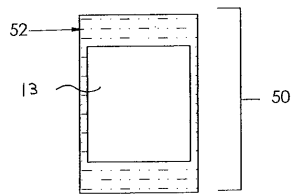


図 13

【図 16 A】

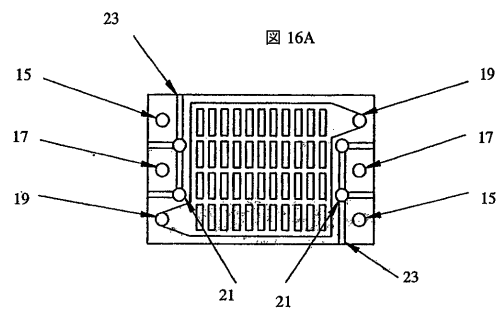


図 16A

【図 16 B】

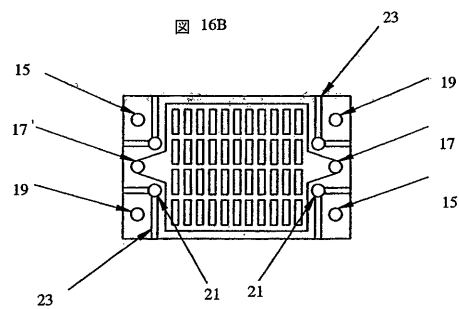


図 16B

【 図 17 】

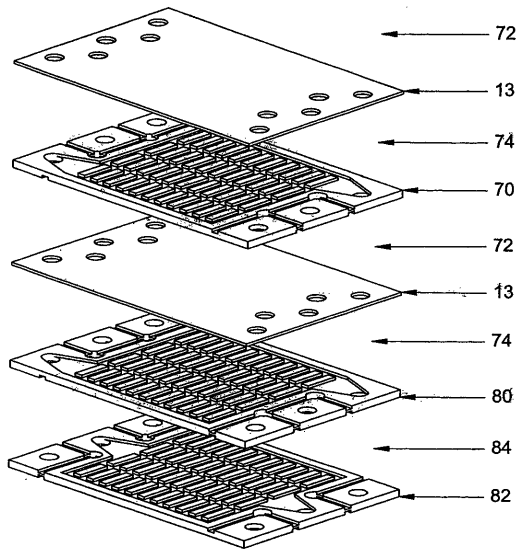


図 17

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

H 0 1 M	8/24	R
H 0 1 M	8/24	T
H 0 1 M	8/10	

(72)発明者 サビン, ポール

アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 0 2 1 9 4、ニーダム、ハンヌウェル ストリート 1 4

(72)発明者 エナイェトゥラ, モハマド

アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 0 2 0 6 7 - 3 1 2 0、シャロン、ハワード ファーム  
ロード 1 8

(72)発明者 フォーマト, リチャード, エム.

アメリカ合衆国 マサチューセッツ州 0 1 5 1 9、グラフトン、ショーン マイケル ウェー  
1 3

審査官 守安 太郎

(56)参考文献 特表2005-503643(JP,A)

特開平06-020712(JP,A)

特開2000-067886(JP,A)

特開昭62-256380(JP,A)

特開平01-283771(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/02

H01M 8/24