

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2016-119308

(P2016-119308A)

(43) 公開日 平成28年6月30日(2016.6.30)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 4/86 (2006.01)	HO 1 M 4/86 M	5 HO 1 8
HO 1 M 8/10 (2016.01)	HO 1 M 8/10	5 HO 2 6

審査請求 有 請求項の数 2 O L 外国語出願 (全 38 頁)

(21) 出願番号	特願2016-43 (P2016-43)	(71) 出願人	505005049
(22) 出願日	平成28年1月4日 (2016.1.4)		スリーエム イノベイティブ プロパティ
(62) 分割の表示	特願2013-519696 (P2013-519696)		ズ カンパニー
	の分割		アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133
原出願日	平成23年6月27日 (2011.6.27)		-3427, セント ポール, ポスト オ
(31) 優先権主張番号	12/834, 531		フィス ボックス 33427, スリーエ
(32) 優先日	平成22年7月12日 (2010.7.12)		ム センター
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100099759
			弁理士 青木 篤
		(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	100146466
			弁理士 高橋 正俊

最終頁に続く

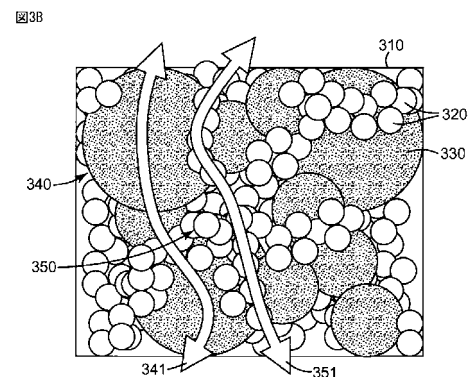
(54) 【発明の名称】 伝導ネットワークを有する燃料電池の電極

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】優れた液体及びガス移動、疎水性、親水性、並びに電子及びイオン伝導の提供。

【解決手段】燃料電池の電極層は、触媒、電子伝導体、及びイオン伝導体を含むことができる。電極層内には、複数の電子伝導体に富むネットワーク350と、電子伝導体に富むネットワーク350と共に散在する、複数のイオン伝導体に富むネットワーク340が存在し、イオン伝導体の電子伝導体との体積比は、電子伝導体に富むネットワーク350内よりも、イオン伝導体に富むネットワーク340内で、より大きい。電極層を含む燃料電池の動作中、電子の伝導は、主に電子伝導体に富むネットワーク350内で生じ、イオンの伝導は、主にイオン伝導体に富むネットワーク340内で生じる燃料電池サブアセンブリ。

【選択図】 図3B



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

燃料電池サブアセンブリであって、
電極層であって、
触媒と、
電子伝導体と、
イオン伝導体と、
前記電極層内に、複数の電子伝導体に富むネットワークと、
前記電極層内に、前記電子伝導体に富むネットワークと共に散在する複数のイオン伝導体に富むネットワークと、を備える、電極層を備え、
前記イオン伝導体の前記電子伝導体に対する体積比が、前記イオン伝導体に富むネットワーク内で、前記電子伝導体に富むネットワーク内よりも高い、燃料電池サブアセンブリ。

10

【請求項 2】

前記イオン伝導体が、噴霧乾燥されたイオン伝導性ポリマーの粒子を含む、請求項 1 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 3】

前記イオン伝導体が、粒子を含み、前記粒子の過半数が、実質的に平滑な回転楕円体であり、約 $1\ \mu\text{m}$ ～ 約 $15\ \mu\text{m}$ の範囲の径を有する、請求項 1 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

20

【請求項 4】

前記電極層が、第 2 のイオン伝導体を更に備え、前記イオン伝導体が、第 1 の当量を有し、前記第 2 のイオン伝導体が、第 2 の当量を有する、請求項 1 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 5】

燃料電池の電極層を作製する方法であって、
イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を合わせる工程であって、前記イオン伝導体が、回転楕円体粒子を含み、前記回転楕円体粒子の過半数は、実質的に平滑な外表面を有し、約 $50\ \text{nm}$ を超える径を有する、工程と、
前記イオン伝導体、前記電子伝導体、前記触媒、及び前記溶媒を、一定期間混合し、電極インクを形成する工程と、
前記電極インクを基材にコーティングして、前記燃料電池の電極層を形成する工程と、を含む、方法。

30

【請求項 6】

前記粒子の過半数が、約 $1\ \mu\text{m}$ を超える径を有する、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

前記粒子が、噴霧乾燥されたアイオノマー粒子を含む、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 8】

前記粒子の過半数が、中空である、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 9】

前記イオン伝導体が、第 1 の種類のイオン伝導性ポリマーと、第 2 の種類のイオン伝導性ポリマーとを含む、請求項 5 に記載の方法。

40

【請求項 10】

前記電極インクに、第 2 のイオン伝導体を合わせる工程を更に含む、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 11】

前記第 2 のイオン伝導体が、粒子を含み、前記第 2 のイオン伝導体の前記粒子の過半数が、約 $50\ \text{nm}$ 未満の径を有する、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

燃料電池サブアセンブリであって、

50

電極層であって、
触媒と、
電子伝導体と、

前記電子伝導体及び前記触媒とが入り混じり、粒子を含む、イオン伝導体であって、前記イオン伝導体の前記粒子の過半数は、約 50 nm を超える径を有する回転楕円体粒子である、イオン伝導体と、を備える、電極層を備える、燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 13】

前記イオン伝導体の前記粒子の過半数が、実質的に平滑な外表面を有する、請求項 12 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 14】

前記粒子の過半数が、中空である、請求項 12 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 15】

前記粒子の過半数が、約 1 μm ～ 約 15 μm の範囲の径を有する、請求項 12 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 16】

前記粒子の過半数が、噴霧乾燥された粉末のイオン伝導性ポリマー粒子である、請求項 12 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 17】

前記粒子が、前記電極層内で不均一に分布する、請求項 12 に記載の燃料電池サブアセンブリ。

【請求項 18】

燃料電池の電極層であって、
触媒と、
電子伝導体と、

第 1 のイオン伝導体と、

第 2 のイオン伝導体と、を備え、前記第 1 のイオン伝導体が、前記第 2 のイオン伝導体とは異なり、前記第 1 のイオン伝導体及び前記第 2 のイオン伝導体は、前記電極層内で、互いに、前記電子伝導体、及び前記触媒と共に散在する、燃料電池の電極層。

【請求項 19】

前記第 1 のイオン伝導体及び前記第 2 のイオン伝導体が、異なる種類のイオン伝導体である、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 20】

前記第 1 のイオン伝導体及び前記第 2 のイオン伝導体が、同一の種類のイオン伝導体の異なる形態である、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 21】

前記第 1 のイオン伝導体が、第 1 の当量を有し、前記第 2 のイオン伝導体が、第 2 の当量を有する、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 22】

前記第 1 のイオン伝導体の前記粒子の過半数が、約 1 μm を超える径を有し、前記第 2 のイオン伝導体の前記粒子の過半数が、約 50 nm 未満の径を有する、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 23】

前記第 1 のイオン伝導体が、粒子を含み、前記第 1 のイオン伝導体の前記粒子の過半数が、実質的に平滑かつ中空である、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 24】

前記第 1 のイオン伝導体の粒子の過半数が、粉末化噴霧乾燥された粒子又は粉末化冷凍粉碎された粒子である、請求項 18 に記載の電極層。

【請求項 25】

前記第 1 のイオン伝導体の粒子が、前記電極層内で、不均一に分布し、前記第 2 のイオン伝導体の粒子が、前記電子伝導体をコーティングする、請求項 18 に記載の電極層。

10

20

30

40

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

(政府の権利)

本発明は、DOE (《米》エネルギー省) に付与された Cooperative Agreement DE-FG36-07GO17006 の下、政府の支援により行われた。政府は本発明に対し特定の権利を有する。

【0002】

本開示は、概して、燃料電池及び／又は燃料電池サブアセンブリ、並びに燃料電池及び／又は燃料電池サブアセンブリの製造方法に関する。

【背景技術】

【0003】

燃料電池は、水素燃料と空気からの酸素を化合させ、電気と熱と水を生成する電気化学デバイスである。燃料電池は、燃焼を利用せず、有害な流出物をほとんど生成しない。燃料電池は、燃料ガスを直接電気に変換し、多数の他の種類の発電機より非常に高い効率で動作することができる。

【0004】

典型的な高分子電解質膜 (PEM) 燃料電池は、イオン伝導膜の一方の側面上に配置されるアノード電極と、イオン伝導膜のもう一方の側面上に配置されるカソード電極とを有する、イオン伝導膜 (PEM) を備える、膜電極アセンブリ (MEA) を含む。水素は、アノード電極で、水素イオンと電子とに分解される。電子は、外部負荷を駆動するための電流を供給し、水素イオンは、膜を通過する。カソード電極で、酸素が水素イオンと化合し、副生成物として水を形成する。燃料電池の動作は、MEA の層を形成する材料を通る、ガス、液体、電子、及びイオンの移動の度合いに、ある程度依存する。

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0005】

本開示に記載の実施形態は、触媒、電子伝導体、及びイオン伝導体を含む、燃料電池の電極層に関する。電極層内には、複数の電子伝導体に富むネットワークと、電子伝導体に富むネットワークと共に散在する、複数のイオン伝導体に富むネットワークとが存在する。イオン伝導体の電子伝導体との体積比は、イオン伝導体に富むネットワーク内で、電子伝導体に富むネットワーク内よりも大きい。電極層を含む燃料電池の動作中、電子の伝導は、主に電子伝導体に富むネットワーク内で生じ、イオンの伝導は、主にイオン伝導体に富むネットワーク内で生じる。

【0006】

幾つかの実装において、イオン伝導体は、噴霧乾燥されたイオン伝導性ポリマーの粒子を含み得る。イオン伝導性ポリマーは、例えば、パーフルオロスルホン酸 (PFSA)、及び／又はパーフルオロイミド酸 (PFIA)、及び／又は炭化水素を含んでもよい。多数の粒子、及び幾つかの実施形態においては、粒子の過半数が、実質的に平滑な外表面を有する、中空の回転楕円体であってもよい。粒子の過半数は、50 nm を超える径、又は、例えば、約 1 μm ~ 約 15 μm の範囲の径を有してもよい。

【0007】

幾つかの実装において、電子伝導体は、触媒コーティングされた電子伝導体粒子、例えば、白金がコーティングされた炭素であり得る。あるいは、触媒は、ナノ構造の支持要素等、電子伝導体以外の支持要素上に配置されてもよい。電子伝導体は、炭素、酸化スズ、及び酸化チタンのうちの 1 つ以上を含むことができる。触媒は、白金、パラジウム、バイメタル、金属合金、及びカーボンナノチューブのうちの 1 つ以上であってもよい。溶媒は、例えば、水、アルコール、及び／又は他の炭化水素を含むことができる。

【0008】

イオン伝導体は、第 1 のイオン伝導性ポリマーの粒子を含んでもよく、電極層が、第 2

10

20

30

40

50

のイオン伝導性ポリマーの粒子を更に含んでもよい。幾つかの態様によると、第1のイオン伝導性ポリマーは、第1の当量を有し、第2のイオン伝導性ポリマーは、第2の当量を有する。第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数は、約50nm未満の径を有してもよく、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数は、約50nmを超えるか若しくは約1 μ mを超える径を有するか、又は約3.5 μ mの平均径を有してもよい。幾つかの実施形態において、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子は、電子伝導体上に薄膜を形成し、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子が、イオン伝導体の体積の過半数を構成する。約1 μ mを超える径を有する第1のイオン伝導性ポリマーの粒子は、実質的に、イオン伝導ネットワークを形成することができる。

【0009】

10

電極層は、燃料電池の電解質膜上又はガス拡散層上に配置され得る。電極層は、膜電極アセンブリ(MEA)の構成要素である、燃料電池の電解質膜の第1の表面と、第1のガス拡散層との間に配置されてもよい。MEAはまた、電解質膜の第2の表面と第2のガス拡散層との間に配置される第2の電極層を含む。第2の電極層は、イオン及び電子ネットワークを含んでもよく、又は含まなくてもよい。燃料電池サブアセンブリは、それぞれが、第1及び第2のガス拡散層に近接して配置される、第1及び第2の流れ場プレートをもっと含んでもよい。複数のMEAを配設して、燃料電池スタックを形成することができる。

【0010】

燃料電池の電極層を作製する方法は、イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を合わせて、電極インクを形成する工程を含む。イオン伝導体は、平滑な、回転楕円体粒子を含み、その粒子の過半数は、例えば、約50nmを超える、1 μ mを超える、又は約50nm～約15 μ mの範囲の径を有する。電極インクのイオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒は、一定期間混合される。電極インクを、基材にコーティングし、乾燥させて、燃料電池の電極層を形成する。

20

【0011】

幾つかの電極インクにおいて、電子伝導体は、触媒でコーティングされる。幾つかの電極インクは、電子伝導体以外の支持構造体上に配置される触媒を含む。支持構造体は、例えば、ナノ構造の支持体であってもよい。

【0012】

燃料電池の触媒コーティングされた膜(CCM)は、燃料電池の電解質膜に電極インクをコーティングすることによって形成されてもよい。電極インクは、代替又は追加で、燃料電池のガス拡散層にコーティングされてもよい。

30

【0013】

幾つかの実装において、イオン伝導体の粒子は、中空で、実質的に球状(回転楕円体)であり得る、及び／又は実質的に平滑な外表面を有し得る、噴霧乾燥されたアイオノマー粒子を含む。

【0014】

本方法は、混合する工程の前に、イオン伝導体、電子伝導体、及び溶媒を、実質的に同時に合わせる工程を伴い得る。

【0015】

40

本方法は、電子伝導体及び溶媒を含む前混合物を形成する工程、並びにその前混合物を一定期間混合する工程を伴い得る。前混合物を混合した後、イオン伝導体を前混合物に添加し、イオン伝導体及び前混合物を、一定期間混合する。

【0016】

本方法は、イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を混合する前及び／又は後に、第2の種類又は第2の形態のイオン伝導体を添加する工程を伴ってもよい。

【0017】

幾つかの変形において、電極インクは、第1の種類のイオン伝導性ポリマー及び第2の種類のイオン伝導性ポリマーを含む、複数の種類又は形態のイオン伝導体を含んでもよい。電極インクは、同一のイオン伝導体の第1の形態及び第2の形態を含んでもよい。電極

50

インクは、第1の当量を有する第1のイオン伝導体、及び第2の当量を有する第2のイオン伝導体を含んでもよい。

【0018】

イオン伝導体は、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子を含み、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数は、約1 μm を超える径を有する。第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数は、約50 nm未満の径を有する。

【0019】

幾つかの実装において、第1のイオン伝導性ポリマーの体積は、第2のイオン伝導性ポリマーの体積よりも大きい。

【0020】

電極層の形成時に、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子は、電子伝導体の粒子をコーティングすることができる。

【0021】

本方法は、イオン伝導性ポリマーを噴霧乾燥することによって、イオン伝導体を形成する工程を更に含む。セリウム及び／又はマンガン化合物等の添加物は、噴霧乾燥されたイオン伝導体の形成時、及び／又は電極インクの形成中の他の時点で、添加されてもよい。

【0022】

電極層の構成要素を合わせる工程は、ボール混合、攪拌、及び超音波処理によって達成されてもよい。

【0023】

幾つかの実施形態は、電極層を含み、触媒、電子伝導体、並びに電子伝導体及び触媒と入り混じったイオン伝導体を備える、燃料電池サブアセンブリに関する。イオン伝導体は、粒子を含み、その粒子の過半数は、約50 nmを超える径を有する回転楕円体である。

【0024】

幾つかの実装において、イオン伝導体の粒子の過半数は、実質的に平滑な外表面を有する、及び／又は中空である、及び／又は約1 μm ～約15 μm の範囲の径を有する。

【0025】

電子伝導体は、触媒コーティングされた電子伝導体であってもよく、及び／又は触媒は、電子伝導体以外の支持体にコーティングされてもよい。イオン伝導体は、パーフルオロスルホン酸及びパーフルオロイミド酸のうちの1つ以上であり得る。

【0026】

燃料電池サブアセンブリは、イオン伝導体とは異なる形態又は種類の第2のイオン伝導体を更に含んでもよい。例えば、第1のイオン伝導体は、第1の当量を有してもよく、第2のイオン伝導体は、第2の当量を有してもよい。別の例として、第2のイオン伝導体は、粒子を含むことができ、第2のイオン伝導体の粒子の過半数は、約50 nm未満の径を有してもよい。

【0027】

イオン伝導体の粒子は、電極層内で不均一に分布してもよく、第2のイオン伝導体の粒子は、電子伝導体をコーティングしてもよい。

【0028】

電極層は、燃料電池の電解質膜上及び／又は燃料電池のガス拡散層上に配置され得る。電極層は、燃料電池の膜電極アセンブリ及び／又は燃料電池スタックに組み込むことができる。

【0029】

燃料電池サブアセンブリは、触媒、電子伝導体、第1のイオン伝導体、及び第1のイオン伝導体とは異なる第2のイオン伝導体を含む、電極層を含む。第1のイオン伝導体及び第2のイオン伝導体は、電極層内で、互いに、電子伝導体、及び触媒と入り混じっている。

【0030】

第1及び第2のイオン伝導体は、異なる種類のイオン伝導体であってもよく、同一の種

10

20

30

40

50

類のアイオノマーの異なる形態であってもよい。第1のイオン伝導体の粒子は、第2のイオン伝導体の粒子よりも大きくてもよい。より小さい粒子のイオン伝導体の粒子は、電子伝導体上に薄膜を形成することができる。例えば、第2のイオン伝導体の粒子の過半数は、約50nm未満の径を有し得る。第1のイオン伝導体の粒子は、粉末化噴霧乾燥された粒子又は粉末化冷凍粉碎された粒子であり得る。少なくとも1つのイオン伝導体の粒子、例えば、第1のイオン伝導体の粒子は、電極層内で不均一に分布し得る。

【0031】

上記の発明の概要は、各実施形態又はあらゆる実装を記載するように意図されるものではない。種々の実施形態に対する一層の理解は、以下に記載の発明を実施するための形態及び特許請求の範囲を、添付図面と併せて参照することによって明らかになり、理解されるであろう。

10

【図面の簡単な説明】

【0032】

【図1】典型的な燃料電池、及び燃料電池の基本的な動作の描写。

【図2A】イオン伝導体材料及び電子伝導体材料が、中で実質的に均一に分布した、燃料電池の電極の断面図。

【図2B】図2Aの燃料電池の電極の領域の拡大表示。

【図2C】イオン伝導体の多数の小さな粒子に包囲される電子伝導体を有する、イオン／電子伝導体構造の描写。

【図2D】イオン伝導体が、触媒コーティングされた電子伝導体を包囲する薄膜を形成する、イオン／電子伝導体構造の断面図の図示。

20

【図2E】2つのイオン伝導体を備える燃料電池の電極の断面図。

【図2F】図2Eの燃料電池の電極の拡大表示。

【図2G】ミクロン寸法の粉末化イオン伝導体粒子を含む電極層の断面の図示。

【図2H】図2Gの燃料電池の電極の領域の拡大表示。

【図2I】複数の粉末化イオン伝導体を含む、電極層の断面の図示。

【図2J】図2Iの燃料電池の電極の領域の拡大表示。

【図3A】イオン及び電子伝導体に富むネットワークを含む燃料電池の電極の断面図。

【図3B】図3Aの燃料電池の電極の領域の拡大表示。

【図3C】2つのイオン伝導体を含み、そのイオン伝導体のうちの少なくとも1つが、イオン伝導体に富むネットワークを形成する、燃料電池の電極の断面図。

30

【図3D】図2Cの燃料電池の電極の領域の拡大表示。

【図4A】イオン伝導体と電子伝導体を合わせ、混合する工程を含む、燃料電池の電極の製造プロセスのフローチャート。

【図4B】前混合物をイオン伝導体と合わせる工程の前に、電子伝導体を溶媒と前混合する工程を含む、燃料電池の電極の製造プロセスのフローチャート。

【図5A】溶液系アイオノマーをイオン伝導体として使用して製造される、燃料電池の電極の光学像。

【図5B】粉末系アイオノマーをイオン伝導体として使用して製造される、燃料電池の電極の光学像。

40

【図6】噴霧乾燥によって形成されるアイオノマー粉末の走査型電子顕微鏡（SEM）画像。

【図7A】冷凍粉碎によって形成されるアイオノマー粉末の走査型電子顕微鏡（SEM）画像。

【図7B】冷凍粉碎によって形成されるアイオノマー粉末の走査型電子顕微鏡（SEM）画像。

【図8】溶液系アイオノマー電極及び粉末系アイオノマー電極を有するMEAに対する比較分極性能の結果。

【図9】 1.2 A/cm^2 及び 1.5 A/cm^2 の電流密度での溶液系アイオノマー電極及び粉末系アイオノマー電極のMEA性能の比較。

50

【図 10】溶液系アイオノマー電極と粉末系アイオノマー電極の電気化学的表面積の比較。

【図 11】溶液系アイオノマー、冷凍粉碎粉末系アイオノマー、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー、並びに電子伝導体及び溶媒の前混合物を有する噴霧乾燥された粉末化アイオノマーを使用して形成された電極の触媒活性の比較。

【図 12】溶液系アイオノマー、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー、並びに電子伝導体及び溶媒の前混合物を有する噴霧乾燥された粉末化アイオノマーを使用して形成された電極の比較分極曲線。

【図 13】溶液系アイオノマー、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー、並びに電子伝導体及び溶媒の前混合物を有する噴霧乾燥された粉末化アイオノマーを使用して形成された電極に対する、 1.2 A/cm^2 の電流密度での M E A の性能。

10

【0033】

本発明の実施形態は、種々の修正及び代替の形態を受け入れる余地があり、図面及び本明細書では例示の目的で示され、説明される。ただし、本発明は、本発明を記載される特定の実施形態に限定するものではないことは理解されるべきである。逆に、添付の請求の範囲に記載した発明の範囲を逸脱すること無く、あらゆる変更、均等物、及び代替物を含むことを意図する。

【発明を実施するための形態】

【0034】

高分子電解質膜 (PEM) 燃料電池 110 の基本的な構成要素の幾つか (サブガasket、ガasket、又はシールなし) を、図 1 に描写する。動作中、水素燃料 H_2 は、燃料電池 110 のアノード側に導入され、第 1 の流れ場プレート 112 越えて、ガス拡散層 (GDL) 114 を通過する。空気からの酸素 O_2 は、燃料電池 110 のカソード側で、第 2 の流れ場プレート 119 を通り、第 2 の GDL 118 を通って流動する。GDL 114、118 は、空気及び水素が、アノード及びカソード電極 115、113 へ拡散することを促進し、最終生成物である水蒸気及び液体を電極 115、113 から引き出すことを助ける。微多孔性の層 (示されない) が、GDL 114、118 と電極 115、113 との間に配置されてもよい。流れ場プレート 112、119 は、典型的に、燃料電池の活動領域全体に、反応ガスを分布させるように設計される、流路のパターンを含む。

20

30

【0035】

アノード電極層 115 において、水素燃料は、水素イオン (H^+) と電子 (e^-) に分割される。電解質膜 116 は、水素イオン又はプロトン、及び水を、電解質膜 116 から燃料電池 110 のカソード電極層 113 へ通過させる。電子は、電流の形態で、外部電気回路 117 を通って流動する。カソード電極層 113 において、酸素、水素イオン、及び電子が合わさり、水 (H_2O) 及び熱を生成する。燃料電池 110 によって生成された電流は、電動モータ等の電力負荷 117 に電力を供給することができ、及び／又は充電電池等のエネルギー蓄積デバイスに配向され得る。燃料電池の 5 つの層である、膜 116、電極 113、115、及び GDL 114、118 は、しばしば、膜電極アセンブリ (MEA) と称される。

40

【0036】

図 1 に示される燃料電池 110 等の個別の燃料電池は、幾つかの他の燃料電池と結合され、燃料電池スタックを形成し得る。スタック内の燃料電池の数によってスタックの総電圧が決まり、電池のそれぞれの表面積によって総電流が決まる。所定の燃料電池スタックで発生する総電力は、総スタック電圧と総電流を乗じることによって求めることができる。

【0037】

用語「電極」は、触媒を含有する燃料電池 MEA 内の層を指して本明細書に使用される。燃料電池の電極を作製する基本的な構成要素には、触媒、その触媒を支持することも可能な電子伝導体、及びイオン伝導体が挙げられる。幾つかの実施形態において、電子伝導

50

体は、白金、白金合金、又は他の材料等の触媒でコーティングされてもよく、又はされなくてもよい、炭素を含む。イオン伝導体は、イオン伝導性ポリマーを含み得る。イオン伝導体は、電極層を通じてイオンの伝導を促進する。電子伝導体は、電極層を通して電子の伝導を促進する。電極は、一般的に、電極層内へ、及び電極層外のガス及び／又は液体の拡散のための、ある量の空隙（細孔）を含む。

【0038】

本明細書に記載の幾つかの実施形態は、複数のイオン伝導体を含み、そのイオン伝導体
が異なる特性を有する、燃料電池の電極に関する。例えば、イオン伝導体のそれぞれは、
アイオノマーを含むことができ、電極層内で使用されるアイオノマーのうち少なくとも1
つは、電極層内の他のアイオノマーの特性とは異なる、1つ以上の特性を有してもよい。
更なる例として、電極層は、種類及び／又は当量（EW）及び／又は形態が異なる2つ以
上のアイオノマーを含むことができる。本明細書に使用される際、「種類」とは、化学構
造の特性を指し、「形態」とは、物理的形状及び寸法の特性、例えば、異なる粒子寸法又
は形状を指す。

10

【0039】

電極層は、2つの主要表面、幅、長さ、及び厚さを有する。幾つかの実施形態において
、電極層内の2つ以上のアイオノマーは、2つの主要表面の間で、電極層の厚さ及び／又
は長さ及び／又は幅全体に、実質的に均一に分布し得る。幾つかの実施形態において、第
1のアイオノマーは、電極層内で第1の分布を有してもよく、第2のアイオノマーは、電
極層内で第2の分布を有してもよい。例えば、アイオノマーの1つは、電極層を通じて実
質的に均一に分布してもよく、アイオノマーのもう1つは、電極層を通じて不均一に分布
してもよい。

20

【0040】

幾つかの実施形態において、たった1つ又は少なくとも1つのイオン伝導体が、電極層
内で使用され、そのイオン伝導体の分布は、電極層内で不均一である。イオン伝導体の不
均一分布は、電極層内に、イオン伝導体に富むネットワークを提供することができ、その
イオン伝導体に富むネットワークを通じてイオン伝導を強化する。比較的イオン伝導体
に乏しい相補的ネットワークもまた、電極層内に存在し、これらの相補的ネットワークは、
電極層の電子伝導体に富む可能性がある。したがって、イオンの伝導を強化するイオン伝
導体に富むネットワーク及び電子の伝導を強化する電子伝導体に富むネットワークの両方
が、少なくとも1つのイオン伝導体が、電極層内で不均一に分布される場合、同時に存在
し得る。

30

【0041】

本明細書に記載の実施形態は、電極層を通じてイオン伝導及び／又は電子伝導を強化す
るネットワークを含む、燃料電池の電極の形成のための方法に関する。イオン及び／又は
電子伝導ネットワークは、電極層の厚さを横断するか、又は部分的に横断する。イオン及
び電子伝導ネットワークを有する燃料電池の電極は、特定の形態学的特性を持つ粒子を有
するアイオノマー粉末を使用する製造プロセスで形成され得る。

【0042】

燃料電池の電極は、触媒、電子伝導体、及びイオン伝導体を溶媒中で混合することによ
って形成される「インク」から作製されてもよい。幾つかの実装によると、使用されるイ
オン伝導体は、溶液中に懸濁及び／又は溶解されたイオン伝導性ポリマー（アイオノマー
として示される）の小さな粒子、例えば径が約50nm未満のアイオノマー粒子を含む。
溶液中に懸濁及び／又は溶解された、約50nm未満の粒子を有するイオン伝導体は、本
明細書において、「溶液系」イオン伝導体と称される。この寸法範囲内のアイオノマー粒
子は、アイオノマー及び水の溶液（又は他の溶媒）を密封容器中で加熱し、アイオノマー
が、約50nm未満の径を有する粒子に分解される点である、高圧を達成することによっ
て形成することができる。アイオノマーのこれらの小粒子は、溶媒、触媒、及び電子伝導
体と混合されて、電極インクを形成することができる。電極インクを、基材に塗布し、乾
燥させて、図2Aに図示される電極層を形成する。

40

50

【0043】

図2Aは、前述の段落で概説されたプロセスに従って、溶液系アイオノマーを使用して形成される、典型的な電極層200の断面図である。電極層200は、薄く、電極層200の幅292と比較すると小さな厚さ291を有する。図2Bは、電極層200の領域210（例えば、おおよそ2ミクロン×2ミクロンの寸法領域）の拡大表示である。電極層の領域210の拡大表示に図示される電極構造は、触媒を有する溶媒中で、小さい（<50nm）粒子を有するイオン伝導体と電子伝導体とを混合することから得られる。電子伝導体220（又は触媒コーティングされた電子伝導体）の粒子は、例えば、約100nmの径を有し得る。触媒は、電子伝導体220上にコーティングされてもよく、あるいは、電極層内に分布し、例えば、触媒支持構造体上にコーティングされてもよい。図2Bは、イオン伝導体粒子230によって包囲され、イオン／電子伝導体構造体250を形成する、電子伝導体粒子220の断面を図示する。この実施形態において、イオン伝導体230及び電子伝導体220の粒子は、電極層200内で実質的に均一に分布する。

10

【0044】

図2B内の構造体250は、（図2Cに示されるように）電子伝導体（220）の表面に分散された小さな粒子230として、又は（図2Dに示されるように）電子伝導体220の表面上のアイオノマー230のコーティングとして存在してもよい。全ての事例において、電子伝導体220は、その表面に分散された触媒粒子を含有してもよく、又はしなくてもよい。図2B、2C、及び2Dは、溶液系アイオノマーを使用して作製され得る。

【0045】

図2Cは、イオン伝導体230の多数の小さな粒子によって実質的に包囲される、電子伝導体220を有する、イオン／電子伝導体構造体250の描写である。幾つかの実施形態において、電子伝導体220は、触媒でコーティングされ得る。

20

【0046】

図2Dは、イオン伝導体粒子230が、電子伝導体220と比較して非常に小さいため、イオン伝導体粒子が、電子伝導体220を包囲する薄膜を形成する、イオン／電子伝導体構造体250を図示する。この例において、電子伝導体220は、触媒293でコーティングされている。幾つかの実施形態において、触媒293は、電子伝導体220ではなく支持構造体上に配置されてもよく、触媒コーティングされた支持構造体は、電極層200内に分散されてもよい。

30

【0047】

電子伝導体及び溶液系イオン伝導体を含む電極インクは、図2Bに図示されるような、電極層全体で、イオン及び電子伝導体材料の実質的に均一な分布を有する電極層を形成する。イオン及び電子伝導体材料の実質的に均一な分布を呈する電極は、種々の競合する燃料電池の電極の移動及び伝導機能の不適合性のために、燃料電池の動作中に、最適に機能しない場合がある。

【0048】

幾つかの実施形態は、たった1つ若しくは少なくとも1つのイオン伝導体の不均一な分布を含む、及び／又は均一若しくは不均一に分布した複数のイオン伝導体を含む、燃料電池の電極に関する。複数のイオン伝導体を使用する実施形態において、各イオン伝導体は、幾つかの特性が、電極内の他のイオン伝導体とは異なる。これらの不均一及び／又は複数のイオン伝導体の実装は、単一の、均一に分布した溶液系イオン伝導体と比較して、強化された耐久性及び／又は性能を提供する。複数のイオン伝導体を使用する実装において、複数のイオン伝導体は、異なる種類のアイオノマーを含んでもよく、又は異なる形態を有する同一の種類のアイオノマーを含んでもよい。燃料電池の電極はまた、複数の電子伝導体及び／又は複数の触媒を含んでもよく、各電子伝導体又は触媒は、他の電子伝導体又は触媒とは幾つかの特性、例えば当量が異なる。

40

【0049】

図2E及び2Fは、イオン伝導体実施形態の例を提供する。図2Eは、第1の主要表面214及び第2の主要表面215を有する燃料電池の電極層201の断面を図示する。電

50

極層 201 は、例えば、2つのアイオノマーである、2つのイオン伝導体 231、241 を含む。この例において、第1のアイオノマー 241 の粒子の過半数は、約 $1\text{ }\mu\text{m}$ を超える径を有する。粒子を含むイオン伝導体は、その過半数が、溶液系の粒子よりも大きい径（例えば、 50 nm を超えるか、又は約 $1\text{ }\mu\text{m}$ を超える）を有し、本明細書において、粉末化イオン伝導体と称される。第2のアイオノマー 231 は、溶液系アイオノマーであり、第2のアイオノマー 231 の粒子の過半数は、約 50 nm 未満の径を有する。この実施形態において、第2のアイオノマー 231 及び第1のアイオノマー 241 の粒子は、第1の主要表面 214 と第2の主要表面 215 との間で電極層 201 全体にわたり、互いに、及び電子伝導体 221 と、入り混じっている。

【0050】

10

図 2 F は、第1及び第2のアイオノマー 241、231 のそれぞれを、電子伝導体 221 と共に描写する、電極層の領域 211（例えば、おおよそ $2\text{ }\mu\text{m} \times 2\text{ }\mu\text{m}$ の寸法領域）の拡大表示を提供する。この実装において、第2のイオン伝導体 231 の粒子は、図 2 F の断面図に示されるように、電子伝導体 221 をコーティングする。電極層 201 はまた、電子伝導体 221 上にコーティングされ得る、及び／又はそうでなければ、例えば、触媒支持構造体上で電極層 201 全体に分布され得る、触媒（示されない）を含むことに留意されたい。

【0051】

より大きな径の第1のアイオノマー 241 の粒子は、例えば、冷凍粉碎、噴霧乾燥、又は他の技術によって形成され得る。イオン及び／又は電子伝導体の粒子 221、231、241 は、平滑な外表面を有する球体として表示されるが、粒子 221、231、241 は、回転楕円体以外の形態を有してもよい。例えば、冷凍粉碎によって形成されるアイオノマー粒子は、必ずしも回転楕円体ではなく、粗い表面を有してもよい（例えば、図 7 A 及び 7 B を参照されたい）。噴霧乾燥によって形成されるアイオノマー粒子は、実質的に平滑な外表面を有する回転楕円体である（例えば、図 6 を参照されたい）。例えば、実質的に平滑な外表面を有する実質的に球状（回転楕円体）の粒子は、約 10% 未満の径の変動、及び径の約 5% 未満の表面粗さを有してもよい。

20

【0052】

2つ以上の異なるアイオノマーの使用が、燃料電池の電極の相反する要件を満たすのに有益な場合がある。例えば、第2のアイオノマーは、第1のアイオノマーと比較して、優れた触媒支持体腐食耐性及び／又は触媒溶解耐性特性を電極層に提供し得るが、第1のアイオノマーと比較して、性能の減少をもたらす。電極層内で均一又は不均一に混合されたこれらの2つの種類のアイオノマーの使用は、耐久性及び性能の両方を強化し得る。例えば、第1のアイオノマーは、第2のアイオノマーよりも低い EW を有し得る。第1のアイオノマー（低 EW アイオノマー）は、燃料電池が高温／乾燥条件下で動作する場合に、優れた性能を提供する。第2のもの（高 EW アイオノマー）は、燃料電池が低温／湿潤条件下で動作する場合に、優れた性能を提供する。第2のアイオノマーの小さな粒子は、電子伝導体をコーティングして、腐食耐性及び強化された耐久性を提供することができる。

30

【0053】

幾つかの構成において、アイオノマー粒子は、電極層全体に分布するアイオノマー粒子の凝集を形成し得る。いかなる特定の理論にも束縛されるものではないが、凝集を形成するアイオノマー粒子の親和性は、アイオノマー粒子の形態に関連する場合がある。例えば、おおよそ μm 寸法の、実質的に平滑な、中空の回転楕円体である、噴霧乾燥によって形成された粉末化アイオノマー粒子は、凝集と関係する可能性が高い。

40

【0054】

図 2 G は、 μm 寸法の粉末化アイオノマー粒子を含み、より小さな ($< 50\text{ nm}$) の溶液系アイオノマー粒子を含まない、電極層 202 の断面を図示する。図 2 H は、電極層 202 の領域 212（例えば、おおよそ $2\text{ }\mu\text{m} \times 2\text{ }\mu\text{m}$ の寸法領域）の拡大表示を提供し、 μm 寸法の粉末化アイオノマー粒子 242 を描写する。触媒は、電子伝導体粒子 222 上にコーティングされてもよく、又はそうでなければ電極層 202 内に分

50

布していてもよい。

【0055】

幾つかの実施形態において、電極層は、複数の種類又は形態の粉末化イオン伝導体粒子を含んでもよく、各種類又は形態のイオン伝導体粒子は、電極層内で均一又は不均一に分布していてもよい。図2Iは、第1の主要表面214及び第2の主要表面215を有する電極層203の断面を図示する。電極層203は、複数の粉末化イオン伝導体233、243の粒子を含む。この実施形態において、第1のイオン伝導体233の粒子及び第2のイオン伝導体243の粒子は、第1の主要表面214と第2の主要表面215との間で電極層203全体にわたり、互いに、及び電子伝導体223と、入り混じっている。電極層203は、より小さな(<約50nm)溶液系アイオノマー粒子を含んでもよく、又は含まなくてもよい。

10

【0056】

図2Jは、第1の粉末化アイオノマー粒子233及び第2の粉末化アイオノマー粒子243を含む、電極層203の領域213(例えば、おおよそ2ミクロン×2ミクロンの寸法領域)の拡大表示を提供する。例えば、複数の粉末化イオン伝導体233、243は、異なる種類の粉末化アイオノマーを含み得る。別の例として、複数の粉末化イオン伝導体は、同一の種類の粉末化アイオノマーを含んでもよいが、同一の種類の粉末化アイオノマーの異なる形態であってもよく、例えば、一方の形態は、噴霧乾燥されたアイオノマーであり、もう一方は冷凍粉碎されたアイオノマーであってもよい。触媒は、電子伝導体粒子223上にコーティングされてもよく、及び/又は、そうでなければ、電極層203内に分布していてもよい。

20

【0057】

幾つかの実施形態は、電極層の厚さを少なくとも部分的に横断する、局所的なイオン及び/又は電子伝導体に富むネットワークを含む、燃料電池の電極に関する。これらの電極内のイオン伝導体及び電子伝導体の材料は、不均一に分布し、そのため、電極層内の領域は、例えば、重量又は体積で測定すると、比較的電子伝導体材料よりもイオン伝導体材料が多く、及び/又は電極層内の領域は、例えば、重量又は体積で測定すると、比較的イオン伝導体材料よりも電子伝導体材料が多い。図3Aは、イオン伝導体に富むネットワークを形成する、粉末化イオン伝導体粒子を含む電極層300の断面図である。電極層300は、電極層の幅292と比較して小さな厚さ291を有する。図3Bは、電極層300の領域310(例えば、おおよそ2ミクロン×2ミクロンの寸法領域)の拡大表示を提供する。図3A及び3Bに図示される電極の構造は、粉末の粒子が約1μmを超える粉末化イオン伝導体、触媒、電子伝導体、及び溶媒の混合物である、電極インクから形成され得る。

30

【0058】

図3Bは、複数のイオン伝導体に富むネットワーク340及び複数の電子伝導体に富むネットワーク350に分布した、イオン伝導体材料330及び電子伝導体材料320を図示する。イオン伝導体に富むネットワーク340(本明細書において「イオン伝導体ネットワーク」とも称される)は、イオン伝導体の電子伝導体に対する体積比が、電子伝導体に富むネットワーク350(本明細書において、「電子伝導体ネットワーク」とも称される)内のイオン伝導体の電子伝導体に対する体積比よりも大きい。電子伝導体ネットワーク350は、電子伝導体のイオン伝導体に対する体積比が、イオン伝導体ネットワーク340内の電子伝導体のイオン伝導体に対する体積比よりも大きい。電子伝導体ネットワーク350は、実質的に、イオン伝導体ネットワーク340とは別々で異なるものである。粒子の凝集を形成する、幾つかの種類のアイオノマー粒子(平滑な、回転楕円体、及び/又は中空である、ミクロン寸法の粒子)に対する親和性は、イオン伝導体ネットワーク340及び/又は電子伝導体ネットワーク350の形成に貢献し得る。イオン伝導体ネットワーク340は、電子伝導体ネットワーク350と比較すると、より抵抗の低い、イオン伝導のための通路341を提供する。電子伝導体ネットワーク350は、イオン伝導体ネットワーク340と比較すると、より抵抗の低い、電子伝導のための通路351を提供す

40

50

る。イオン伝導及び電子伝導ネットワークが電極層内に存在する場合、燃料電池の動作中、電子の伝導は、主に電子伝導体に富むネットワーク内で生じ、イオンの伝導は、主にイオン伝導体に富むネットワーク内で生じ得る。

【0059】

イオン及び電子伝導体ネットワークを有する燃料電池の電極は、図3A及び3Bに示されるように、電極層全体で実質的に均一に分布したイオン及び／又は電子伝導体材料を有する電極層と比較すると、優れた性能を呈し得る。例えば、ネットワーク化された電極の優れた性能特性には、優れた材料移動及び／又は優れた電子伝導の性質が挙げられる。イオン及び／又は電子伝導体ネットワークを有する電極はまた、燃料電池の動作中に遭遇する範囲の温度、電位、及び相対湿度に晒される際、優れた耐久性を呈し得る。

10

【0060】

いかなる特定の理論にも束縛されるものではないが、実質的に別々のイオン及び／又は電子伝導体ネットワークの形成は、電極層の製造中に、イオン伝導体材料が、電子伝導体材料と混合される際の、その相に関連する可能性がある。例えば、小さな寸法の粒子（溶液に懸濁又は溶解された＜約50nmの粒子）を含むイオン伝導体を、電子伝導体と混合する工程は、図2A及び2Bに図示される電極層にあるような、イオン及び電子伝導体のより均一な分布を呈する電極層を作り出すと見られる。逆に、特定の種類又は形態のイオン伝導体を、電子伝導体材料と混合する工程は、図3A及び3Bに図示されるようなイオン及び電子伝導体ネットワークを呈する電極層を生成する。更に、いかなる特定の理論にも束縛されるものではないが、ミクロン寸法の回転楕円体で、比較的平滑、及び／又は中空のアイオノマー粒子は、強化されたイオン及び電子伝導の通路を提供するネットワークを、より容易に形成すると見られる。

20

【0061】

幾つかの実装において、少なくとも第1の種類のアイオノマーが電極層内でのイオン伝導ネットワークに貢献する、複数の種類のアイオノマーを使用して、電極層を形成することができる。第2のアイオノマーは、イオン伝導体ネットワークに貢献してもよく、又はしなくてもよい。第2のアイオノマーは、電極層内で実質的に均一又は不均一に分布していてもよい。

【0062】

図3Cは、例えば、触媒コーティングされた炭素である電子伝導体380、並びに、第1及び第2のアイオノマー375、370を含む、電極層301を図示する断面図である。電極層301は、第1の主要表面312及び第2の主要表面313を含む。図3Dは、電極層301の部分311（例えば、おおよそ2ミクロン×2ミクロンの寸法領域）の拡大表示を提供する。図3Dに図示される電極の構造は、約1μmを超える粉末化粒子を含む第1のイオン伝導体375、約50nm未満の粒子を含む第2のイオン伝導体370、触媒、電子伝導体380、及び溶媒の混合物である、電極インクから形成され得る。この実施形態において、第1のイオン伝導体375の粒子及び第2のイオン伝導体370の粒子は、電極層301全体にわたり、第1の主要表面312と第2の主要表面313との間で、互いに、電子伝導体380と、入り混じっている。幾つかの実施形態において、電極層内の第1のイオン伝導体375の量は、体積が、第2のイオン伝導体370の量よりも大きい。例えば、前述のように、第1のイオン伝導体375は、噴霧乾燥及び／又は冷凍粉碎された粉末化アイオノマーを含んでもよく、第2のイオン伝導体370は、溶液系アイオノマーを含んでもよい。

30

40

【0063】

拡大表示311は、複数のイオン伝導体に富むネットワーク340及び複数の電子伝導体に富むネットワーク350に分布する、第1のイオン伝導体材料375及び電子伝導体材料380を図示する。第2のイオン伝導体材料370は、図3Dに描写されるように、電子伝導体粒子380を包囲及び／若しくはコーティングすることができ、並びに／又は電極層全体で比較的均一に分布していてもよい。第1のイオン伝導体375は、第2のイオン伝導体よりも大きな粒子を含むことができ、電極層301全体でイオン及び水の移動

50

を促進するイオン伝導体ネットワーク340を形成することができる。粉末化アイオノマー375は、電極層が形成される際に、凝集に対して親和性を有し、これらの凝集が、イオン伝導体ネットワーク340の少なくとも部分を形成するため、イオン伝導体ネットワーク340の形成が促進される。

【0064】

イオン伝導体ネットワーク340は、イオン伝導体の電子伝導体に対する体積比が、電子伝導体に富むネットワーク350内のイオン伝導体の電子伝導体に対する体積比よりも大きい。電子伝導体ネットワーク350は、電子伝導体のイオン伝導体に対する体積比が、イオン伝導体ネットワーク340内の電子伝導体のイオン伝導体に対する体積比よりも大きい。イオン伝導体ネットワーク340は、電子伝導体ネットワーク350と比較すると、より抵抗の低い、イオン伝導のための通路341を提供する。電子伝導体ネットワーク350は、イオン伝導体ネットワーク340と比較すると、より抵抗の低い、電子伝導のための通路351を提供する。

【0065】

図3Dに図示される電極層の構造は、強化された耐久性及び／又は性能を提供し得る。例えば、第2のアイオノマー370は、第1のアイオノマー375と比較して、優れた触媒支持体腐食耐性及び／又は触媒溶解耐性特性を、電極層301に提供することができる。第1のアイオノマー375は、第2のアイオノマー370と比較して、強化された性能特性を、電極層301に提供することができる。幾つかの実施形態において、第2のアイオノマー370は、第1のアイオノマーよりも高いEWを有し得る。第2のアイオノマー（高EWアイオノマー）は、燃料電池が高温／乾燥条件下で動作する場合に、第1のアイオノマー375よりも優れた特性を提供することができる。第1のアイオノマー375（低EWアイオノマー）は、燃料電池が低温／湿潤条件下で動作する場合に、第2のアイオノマー370よりも優れた特性を提供することができる。

【0066】

電極層の形成のためのプロセスは、触媒、電子伝導体、イオン伝導体、及び溶媒を含むインクを形成することを伴う。1つ以上の種類及び／又は形態の触媒、電子伝導体、イオン伝導体、及び／又は溶媒が使用されてもよい。イオン伝導体は、例えば、パーフルオロスルホン酸（PFSA）、及び／又はパーフルオロイミド酸（PFIA）、及び／又は炭化水素を含んでもよい。PFIAは、2010年4月16日に出願された、共同所有のHamrockらの米国特許出願第61/325,062号に記載され、参照により本明細書に組み込まれる。溶媒は、例えば、水、アルコール、及び／又は炭化水素を含んでもよい。触媒は、白金、パラジウム、バイメタル、金属合金、及び／又はカーボンナノチューブを含んでもよい。触媒は、電子伝導体にコーティングされてもよく、例えば、電子伝導体及び触媒は、白金コーティングされた炭素を構成することができる。幾つかの実施形態において、触媒は、米国特許第5,879,827号に記載のナノ構造支持体等、電子伝導体以外の支持要素にコーティングされてもよい。電子伝導体は、約100nmの径の粒子を有してもよく、例えば、炭素、酸化スズ、及び／又は酸化チタン、及び／又は他の好適な材料を含んでもよい。

【0067】

電極インクの各構成要素の具体的な量は、所望の粘度、例えば、約1000センチポアズ、及び固体含量、例えば、約2重量％～約40重量％の固体を達成するように変化してもよい。電極インクは、インク構成要素を添加し、そのインク構成要素を一定期間混合することによって調製することができる。幾つかの実施形態において、混合する工程は、6mm径のセラミックビーズ等の媒体を添加し、次いで少なくとも約5分間ローリング又はボールミル粉砕することを含む。調製されたインクは、次いで、燃料電池の電解質膜の主要表面、GDL、又はライナー等の基材に塗布され、乾燥される。乾燥したインク層は、燃料電池の電極を形成する。

【0068】

図4A及び4Bは、燃料電池の電極を形成するための例示的なプロセスを図示する。図

10

20

30

40

50

4 Aのフローチャートに描写されるように、電極インクは、電子伝導体、触媒、イオン伝導体、及び溶媒を合わせ410、これらの材料を一定期間混合すること420によって、形成することができる。例えば、電子伝導体、触媒、イオン伝導体、及び溶媒を、合わせ、例えば、実質的に同時に合わせ、次に混合してもよい。混合した後、インクを、基材上にコーティングし430、乾燥させて440、燃料電池の電極層を形成する。電極インクのイオン伝導体は、たった1つの種類のイオン伝導体、例えば、その過半数が、約50nmを超えるか、又は約1μmを超える径を有する、粒子の形態のアイオノマーを含んでもよい。これらのアイオノマー粒子は、噴霧乾燥プロセスによって生成され得る実質的に平滑な、回転楕円体、及び／又は中空の形態を有してもよい。前述のように、この寸法及び形態のアイオノマー粒子は、イオン伝導体ネットワークを含む電極層の構造を、より容易に形成することができる。

10

【0069】

複数の種類のアイオノマー及び／又は同一のアイオノマーの複数の形態が、電極インクを形成するイオン伝導体に含まれてもよい。同一のアイオノマーの複数の形態が使用される場合、複数の形態は、複数の異なる粒子寸法であってもよく、及び／又は複数の種類は、同一の種類のアイオノマーの複数の異なるEWであってもよい。例えば、複数のアイオノマーのうちの第1のアイオノマーは、例えば、粒子の過半数が、約1μmを超える径を有する、粉末化であってもよい。複数のアイオノマーのうちの第2のアイオノマーは、粒子の過半数の径が、50nm未満である、溶液系であってもよい。第1及び第2のアイオノマーは、同一の種類のアイオノマーであってもよく、又は異なる種類のアイオノマーであつてもよい。

20

【0070】

図4Bは、燃料電池の電極を形成する、別の例示的プロセスを図示する。このプロセスに従って、電極インクの前混合物は、触媒、電子伝導体、及び溶媒を合わせることによって形成される450。前混合物の材料は、例えば、約24時間等の一定期間、ボールミル粉砕することによって、混合される452。前混合物の材料を混合した後、第1のイオン伝導体、例えば、実質的に平滑な表面で、中空の、球状粒子を有し、その過半数が50nmを超えるか又は約1μmを超える径を有する、粉末化アイオノマー粒子を、前混合物に添加する454。例えば、粒子の過半数が約50nm未満の径を有する第2のアイオノマーは、前混合物を形成するために使用されてもよく、及び／又は、第1のアイオノマーと共に添加されてもよく、及び／又は、プロセスの後期で添加されてもよい。第1のアイオノマーを添加した454後、インクを更なる時間、例えば、30分間、混合する456。追加の粉末化又は溶液系イオン伝導体は、前混合物に、及び／又はプロセスの後期で添加してもよい。電極インクを基材にコーティングし458、乾燥させる460。幾つかの実施形態において、インクを形成する工程は、イオン伝導体の第1の部分を、触媒、電子伝導体、及び溶媒と共に、混合し、次いで、イオン伝導体の第2の部分を添加し、混合する工程を伴う。混合する工程は、ボールミル粉砕、攪拌、剪断、超音波処理等を含む、種々のプロセスによって、達成され得る。

30

【0071】

図4A又は4Bに関連して記載されるプロセスからもたらされる電極の構造は、複数のアイオノマーを有する電極層の形成に使用されてもよく、及び／又は電子伝導体材料に富むネットワークとは実質的に異なって別々の、別個のイオン伝導体に富むネットワークを有する電極層を形成するために使用されてもよい。図5Aは、その過半数が約50nm未満の径を有する小さな粒子を含む、溶液系イオン伝導体を使用して形成された、燃料電池の電極の表面の光学像である。図5Bは、その過半数が、約1μmを超える径を有し、実質的に平滑な、回転楕円体で、中空の形態を有する、大きな粒子を含む、粉末化アイオノマーを使用して形成された燃料電池の電極層の表面の光学像である。図5Bの光学像は、アイオノマーに富む区域510を形成し得る、大きなアイオノマー粒子を示す。

40

【0072】

前述のように、複数のアイオノマーが使用される場合、幾つかの異なる種類のアイオノ

50

マー、又は幾つかの異なる形態の同一の種類のアイオノマーが、使用され得る。アイオノマーの少なくとも1つは、少なくとも1つの特性が、他のアイオノマーとは異なる。例えば、異なる種類又は形態のアイオノマーを使用することは、そうでなければ同一のアイオノマーの異なるEWを使用すること、並びに／又は異なる粒子寸法、及び／若しくは異なる寸法範囲、及び／若しくは異なる粒子形態を有する同一のアイオノマーを使用すること、を伴う場合がある。例えば、複数の異なる種類のアイオノマーを使用することは、複数の種類のアイオノマーのうちの1つとしてP F I Aを使用すること、及び複数の種類のアイオノマーのうちのもう1つとしてP F S Aを使用することを伴う場合がある。異なる種類のアイオノマーが使用される場合、アイオノマーのそれぞれは、同一の形態を有してもよく、又は各アイオノマーが異なる形態であってもよく（例えば、一方のアイオノマーが小さな粒子を有し、他方のアイオノマーが、大きな粒子を有する）、及び／又は複数のアイオノマーが異なるEWの材料を含んでもよい。例えば、体積若しくは重量によって測定される、同一量の各アイオノマー、又は異なる量の各アイオノマーが、電極インクに使用されてもよい。

【0073】

電極を形成する際、異なる種類又は形態のアイオノマーは、同時又は連続的に、混合物に添加され得る。例えば、アイオノマーを連続的に添加することは、（例えば、図4に関連して記載されるプロセスに従って）第1のアイオノマーを使用して電極インクを形成し、その電極インクを粉碎し、次に粉碎された電極インクを、溶媒及び第2のアイオノマーと混合することを伴う。

【0074】

噴霧乾燥は、例えば、図3Bに描写される、電子伝導体ネットワークとは実質的に別々で異なるイオン伝導体ネットワークを含む燃料電池の電極を作製するために使用され得る粉末化アイオノマーを形成するために有用な方法である。以下の実施例により詳細に説明されるように、噴霧乾燥によって形成される粉末化アイオノマーは、他の方法によって生成される粉末化アイオノマーと比較して、優れた燃料電池の電極をもたらすことが示されている。より具体的には、噴霧乾燥によって生成されたアイオノマー粉末を使用して製造された燃料電池の電極は、例えば、冷凍粉碎によって生成されたアイオノマー粉末を使用して製造された燃料電池の電極と比較して、優れた性能を示している。噴霧乾燥されたアイオノマー粉末を使用して形成された電極と、他の種類のアイオノマーを使用して形成された電極との間の性能の違いは、粉末の粒子の形態に関連する可能性がある。

【0075】

図6の走査型電子顕微鏡（SEM）画像に図示されるように、アイオノマーの噴霧乾燥により、実質的に平滑な外表面を有する中空の回転楕円体である、粉末粒子を生成することができる。回転楕円体という用語は、約10%を超えて変化しない径を有する粒子を示して使用される。用語「実質的に平滑」とは、粒子の径の約5%未満の表面粗さを有する粒子を示して使用される。

【0076】

噴霧乾燥によって生成された粉末化アイオノマー粒子は、例えば、寸法が約50nm～約30μmの範囲に及んでもよく、又は50nm～約15μmの範囲に及んでもよく、又は約1μm～約15μmの範囲に及んでもよい。粒子の平均径は、約3.5μmであってもよい。噴霧乾燥された粒子の平均寸法は、例えば、噴霧粘度、溶液濃度、及びチャンバ温度を含む、噴霧乾燥プロセスの変数を変化させることによって、1ミクロン未満～1ミリメートルを超える範囲内で制御され得る。径範囲はまた、これらの処理パラメータを変化させることによって制御され得る。噴霧乾燥されたアイオノマー回転楕円体の過半数は、中空であり得る。幾つかの実施形態において、例えば、セリウム及び／又はマンガン化合物等の添加物が、噴霧乾燥プロセス中、及び／又は電極インクの形成時の他の段階で、使用されてもよい。

【0077】

例えば、噴霧乾燥によって上述の特性を有するアイオノマー粒子を得ることは、フッ素

10

20

30

40

50

化ポリマー及び水の分散液を取得し、その分散液を小さい液滴の分散液に霧化し、次に、分散液の液滴を加熱したガス（空気）中に放出して、分散液を乾燥させ、流動性を有するポリマーの粒子を生成することを伴う。これらの粒子は、乾燥した外表面を有するが、内部の残留水分レベルは、約 2 % ~ 10 % である。噴霧乾燥のプロセス変数には、1) 投入分散物の固体 %、2) 供給物の霧化圧力、3) 供給速度、4) 加熱気体（例えば、空気）の吸入温度、及び 5) 冷却気体の排出温度が挙げられる。これらの変数は、残留水分レベル及び／又はポリマー粉末の測定粒子寸法の分布に影響する。本明細書に記載のアイオノマー粒子を生成することができる噴霧乾燥プロセスの変数の例示的範囲には、1) 分散液中の固体 % が、約 9 % ~ 約 22 % の範囲、又は約 18 % ~ 約 20 % の範囲、2) 霧化圧力が、約 30 p s i (206 . 8 k P a) ~ 約 60 p s i (413 . 7 k P a) の範囲、又は約 35 p s i (241 . 3 k P a) ~ 約 40 p s i (275 . 8 k P a) の範囲、3) 供給速度（ポンプ速度により測定される）が、約 50 r p m ~ 約 140 r p m の範囲であり、% 固体及び排出温度に基づいて調整される、4) 吸入温度が、約 160 °C ~ 約 250 °C 又は約 185 °C ~ 約 200 °C の範囲、5) 排出温度が、65 °C ~ 95 °C 又は 85 °C ~ 約 90 °C の範囲、が含まれる。

10

【0078】

冷凍粉碎は、粉末化アイオノマーを生成する別の方法である。しかしながら、図 6 の S E M S 画像に示される、平滑な、中空、回転楕円体のアイオノマー粒子とは対照的に、冷凍粉碎は、図 7 A 及び 7 B の S E M S 画像に図示される、ギザギザの表面を有する不規則な粒子を生成する。冷凍粉碎された粒子の寸法は、1 ミクロン未満の非常に小さい粉塵様の粒子から、20 ミクロンを超える粒子まで、多様である。

20

【0079】

アイオノマー粒子の形態、例えば、噴霧乾燥によって形成される粒子と、冷凍粉碎によって形成される粒子との間の差異は、インクのレオロジー、及び／又は燃料電池の電極の細孔構造、及び／又は燃料電池の電極の性能に影響を与え得る。噴霧乾燥によって形成される、回転楕円体で、実質的に平滑な、中空のアイオノマー粒子は、燃料電池の電極内で、別々のイオン伝導体に富むネットワーク及び電子伝導体に富むネットワークの形成を促進すると見られる。

【0080】

燃料電池の電極は、広範な動作条件にわたって、複数の機能を実行する能力を有する必要がある。燃料電池の電極によって実行される機能には、燃料又は酸化剤のガス拡散、液体水の移動、並びに電極層を通じた電子及びイオン伝導が挙げられる。燃料電池の電極は、約 -40 °C ~ 約 100 °C を超え、反応ガスの湿度が 0 ~ 100 % に及ぶ、広範な条件にわたって、これら機能を実行する必要がある。

30

【0081】

燃料電池の電極は、燃料電池の動作中、複数の材料移動及び電気伝導機能を、効率的かつ同時に実行する必要がある。これらの材料移動及び電気伝導機能には、燃料ガス又は酸化剤ガスの拡散、液体水の移動、電極層内のプロトン及び電子の伝導が挙げられる。これらの機能の全てが、単一の種類のイオン伝導体の実質的に均一な分布を有するいくつかの燃料電池の電極では、同時かつ最適に対応されるわけではない。電極層が液体水を移動させ得る能力は、水が形成される、カソード電極に関して、特に興味深い。燃料電池の電極の多孔質層内においては、例えば、十分な細孔は、液体水が、層を過剰に満たすことを阻止するために十分に疎水性でなければならない。層又は層内の領域を、液体水で過剰に満たすことは、典型的に「フラッディング」として既知である。細孔のフラッディングは、反応ガスが電極を通過して触媒部位に達することを阻止し、性能の損失をもたらす。

40

【0082】

過度に疎水性の層もまた、燃料電池の動作に理想的ではない。低温時、水が液体として電極から流れ場に移動する必要がある。水が通って移動する層が、過度に疎水性である場合、水が容易に通って移動できる液体接続が存在しない。水は、細孔から細孔へ浸透する必要がある、液体圧の相当な蓄積を必要とするプロセスである。この高い液体圧は、細孔

50

のフラッディング、ガス移動の減少、及び燃料電池性能の損失をもたらす。親水性及び疎水性の細孔の適切な設計は、液体水及びガス移動の両方を同時に提供することができる。

【0083】

燃料電池の電極内の小さな径のイオン伝導体の実質的に均一な分布は、電極層内に小さな細孔寸法をもたらす、液体移動及び／又はガス拡散の低下をもたらす。乏しいイオン及び又は電子伝導は、よく混合された、小さい粒子寸法のアイオノマー、電子伝導体、及び触媒を通る、狭い通路のために生じる可能性がある。アイオノマーの実質的に均一な分布は、アイオノマーのわずかに親水性な性質のために、液体移動のため通路の減少をもたらす可能性がある。水の移動は、フラッディングの前に、電極内で許容されるアイオノマーの最大量に対する制限のために、乏しい場合がある。電子伝導は、乏しい炭素－炭素接触のために、減少される可能性がある。

10

【0084】

最適性能のためには、燃料電池の電極は、電極内で、ガスを反応部位へ容易に伝導し、また液体水を反応部位から排出させる、多孔質層を提供する必要がある。電極層は、容易な液体水の移動を可能にするために十分な親水性を有しながらも、液体水による細孔のフラッディングを阻止するために十分な疎水性を有する必要がある。疎水性過剰の領域は、電極に、液体水が壁を突破するために高い液体圧を要する「壁」を作り出す可能性がある。壁の背後にある液体圧の堆積は、他の領域のフラッディングをもたらす得、それは、燃料ガスが反応部位に達することを阻止する。燃料電池の電極が、十分な数及び寸法の親水性領域を含む場合、フラッディングを阻止することができる。

20

【0085】

燃料電池の電極は、反応部位（カソード電極内）への迅速なイオン伝導を可能にし、反応部位（アノード電極内）から出る迅速なイオン伝導を可能にするのに十分な量のイオン伝導体を含むことができる。しかしながら、燃料電池の電極はまた、反応部位（カソード電極内）への迅速な電子伝導、及び反応部位（アノード電極）から出る迅速な電子伝導を可能にするのに十分な量の電子伝導体も含まなければならない。

【0086】

別々のイオン及び／又は電子伝導体ネットワークを有する燃料電池の電極は、実質的に均一に分布したイオン及び電子伝導体材料を有する燃料電池の電極と比較すると、優れた液体及びガス移動、疎水性、親水性、並びに電子及びイオン伝導を提供することができる。

30

【0087】

径が、概して約 $1\ \mu\text{m}$ を超える、燃料電池インク内のアイオノマー粒子は、イオン及び電子伝導体ネットワークの形成を促進すると見られる。更に、燃料電池インクに使用される粒子の形態はまた、噴霧乾燥プロセスにより生成された実質的に平滑な中空の回転楕円体粒子が、冷凍粉碎により生成されたギザギザの不規則な粒子と比較すると、優れた特性を提供する要因である。噴霧乾燥された粉末粒子の狭い寸法範囲はまた、（冷凍粉碎された粉末粒子の広い寸法範囲とは対照的に）電極性能の強化にも貢献し得る。

【0088】

噴霧乾燥により生成される平滑な中空の回転楕円体は、アイオノマー粉末粒子の凝集、及びイオン伝導体に富むネットワーク（比較的電子伝導体に乏しい）の生成を促進すると見られる。例えば、触媒コーティングされた炭素が、触媒及び電子伝導体として使用される場合、電子伝導体に富む領域は、疎水性の非酸化炭素（天然のC）を含有する。理想的には実質的に電極層を横断する、炭素に富む領域は、電子伝導を促進する通路を提供し、更に、液体水含量が少なく、そのため高速なガス移動を可能にするネットワークを提供する。イオン伝導体に富む領域は、適度に親水性である。イオン伝導体の均一な分布は、フラッディングのポケットの形成が起こりやすい。しかしながら、実質的に電極層全体を横断するイオン伝導体に富むネットワークは、迅速なプロトン及び水の伝導のための通路を提供する。

40

【0089】

50

前述のように、イオン伝導体ネットワーク及び電子伝導体ネットワークは、燃料電池の電極に相補的な機能を提供することができる。これらの相補的ネットワークが電極層内に存在する場合、最適な電極設計（燃料及び酸化剤ガスの移動、液体水移動、並びに電子及びプロトンの伝導）の相反する性能制約は、より良好に対応され得る。電子及びイオン伝導ネットワークの存在は、反応部位へ及びそこからのガスの移動、並びに、電極層の反応部位へ及びそこからのイオン及び電子の伝導を促進することによって、燃料電池の性能を維持するように機能する。イオン伝導体及び電子伝導体ネットワークは、燃料電池に拡張した動作範囲を提供する。例えば、液体水の移動は、イオン伝導ネットワークに沿って改善されるため、低EWアイオノマーを、イオン伝導体として使用することができる。低EW材料は、より高温で乾燥した条件において、より良好な性能を達成し、一方でより低温で湿潤の条件では、フラッキングを阻止する。あるいは、高EWアイオノマーの添加が、電極層の耐久性を増加させるために使用されてもよい。

10

【0090】

本発明の目的及び利点を、以下の実施例によって更に例示するが、これらの実施例において列挙される特定の材料及びその量、並びに他の諸条件及び詳細によって、本開示を不当に制限するものではないと解釈すべきである。

【実施例】

【0091】

4つの異なる種類の燃料電池のカソード電極を有するMEAを構築し、試験した。MEAを、カソード電極を除き、同一の材料を使用して、同一のプロセスにより製造した。異なるカソード電極種を、1) 比較的小さい寸法の粒子（例えば、径が50nm未満）を有する溶液系アイオノマーを使用して形成された電極（SOLN、SOLN 2）、2) 噴霧乾燥されアイオノマー粉末（PDR、PDR 2）を使用して形成された電極（図6及び関連する説明を参照されたい）、3) 噴霧乾燥されたアイオノマー粉末を合わせる前に触媒／電子伝導体を前混合することにより形成された電極（BM後PDR）、並びに4) 冷凍粉碎された粉末を使用して形成された電極（冷凍PDR）（図7A及び7B並びに関連する説明を参照されたい）を使用して形成した。試験MEAの製造パラメータを、表1に提供する。溶液系アイオノマーを使用して形成したSOLN電極は、図4Aのフローチャートに概説されるプロセスによって製造した。噴霧乾燥されたアイオノマー粉末を使用して形成したPDR電極は、図4Aに概説されるプロセスによって製造した。BM後PDR電極は、図4Bに概説されるプロセスによって製造した。冷凍粉碎されたアイオノマー粉末を使用して形成した電極は、図4Aに概説されるプロセスによって製造した。

20

30

【0092】

【表 1】

表 1

	溶液系アイオノマー電極 (SOLN) を有するMEA	カソード設計の変数				冷凍粉砕された 粉末化アイオノマー電極 (冷凍PDR) を有する MEA	噴霧乾燥された 粉末化アイオノマー電極 (PDR) を有する MEA	ボールミル後の噴霧乾燥された 粉末化アイオノマー電極 (BM後PDR) を有する MEA
		0.8	3M800EW	0.8	0.8			
アイオノマー/触媒の重量比		0.8	3M800EW	0.8	0.8			0.8
アイオノマー			(3M Company, St. Paul, MN, USAから入手可能)					3M800EW
電極に使用したアイオノマーの形態			水溶液					
触媒			TKK 10V30E (Tanaka Kikinzoku Kogyo (TKK), Tokyo, Japanから入手可能)					噴霧乾燥された粉末 TKK 10V30E
インク混合技術			全構成要素を合わせた 後のボールミリング					2段階ボールミリングプロセス 触媒及び溶媒のボールミリング 後にアイオノマーを添加
溶媒			水性					水性
インク固体含量			20%					20%
触媒充填 (mg Pt/cm ²)			0.3					0.3
電極コーティング方法			手塗り					手塗り
焼なまし			150℃、30分					150℃、30分
アノード設計の変数								
アイオノマー/触媒比			0.8					0.8
アイオノマー			3M1000EW (3M Company, St. Paul, MN, USAから入手可能)					3M1000EW
電極に使用したアイオノマーの形態			水溶液系アイオノマー					水溶液系アイオノマー
触媒			TKK 10V30E					TKK 10V30E
インク混合技術			ボールミリング					ボールミリング
溶媒			水性					水性
インク固体含量			20%					20%
触媒充填 (mg Pt/cm ²)			0.1					0.1
電極コーティング方法			手塗り					手塗り
焼なまし			150℃、30分					150℃、30分
アノード設計の変数								
GDLの種類			微多孔性層を有する 疎水性カーボン紙					微多孔性層を有する 疎水性カーボン紙
膜材料			微多孔性層を有する 疎水性カーボン紙					微多孔性層を有する 疎水性カーボン紙
厚さ			3M800EW 0.8ミル (0.02mm)					3M800EW 0.8ミル (0.02mm)

【0093】

一分析において、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極（PDRとして示す）を有するMEAを、溶液系アイオノマー電極（SOLNとして示す）を有するMEAと比較した。各試行のために、噴霧乾燥された粉末化アイオノマーを使用して3つのMEAを作製し

、溶液系アイオノマーを使用して3つのMEAを構築した。構築した3つのMEAそれぞれに、2回の試行を、各群に対して行った。噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極群の第1の試行の結果を、PDRとして示し、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極群の第2の試行の結果を、PDR 2として示し、溶液系アイオノマー電極群の第1の試行の結果を、SOLNとして示し、溶液系アイオノマー電極群の第2の試行の結果を、SOLN 2として示す。

【0094】

触媒活性：触媒活性を測定し、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極及び溶液系アイオノマー電極を有するMEAについて、表2に示す。粉末系電極の触媒活性は、溶液系電極の触媒活性と比較すると、改善を示す。これらの活性の増加は、粉末系アイオノマー電極によって作り出される、より良好な3相界面（触媒、アイオノマー、及び反応ガス）により説明することができる。

【0095】

【表2】

表2

燃料電池	タイプ	充填 mg/cm ²	SEF (cm ² /cm ²)	触媒活性 (m ² /g)
1	溶液	0.283	129	45.58
2	溶液	0.315	139	44.12
3	溶液	0.298	126	42.28
4	噴霧乾燥された粉末	0.294	156	53.06
5	噴霧乾燥された粉末	0.291	153	52.58
6	噴霧乾燥された粉末	0.295	154	52.20

【0096】

Galvanoの動的分極走査(GDS)分析：図8は、溶液系アイオノマー電極(SOLN、SOLN 2)及び粉末系アイオノマー電極(PDR、PDR 2)を有するMEAの2回の試行に対する、GDS分極性能結果を示す。試験条件は、次の通りであった：電池温度=70℃、アノード及びカソード吸気加湿=100%、周囲動作圧、燃料(H₂)理論空燃比=1.4、酸化剤(空気)理論空燃比=2.5。所定の電流密度に対して、粉末系アイオノマー電極は、溶液系アイオノマー電極よりも高い電圧を示す。この効果は、高い電流密度において、より顕著である。

【0097】

図9は、電圧1.2A/cm²及び1.5A/cm²における、SOLN及びPDR電極のMEA性能を比較する。図9に図示されるデータは、より高い電流密度では、噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極(PDR、PDR 2)により達成される電池電圧が、溶液系電極(SOLN、SOLN 2)よりも高いことを示す。1.5A/cm²でのデータは、電極の第2の試行(SOLN 2、PDR 2)に対してのみ記録されたことに留意されたい。

【0098】

フォローアップ分析を実行して、インク構成要素を共に添加して混合することにより形成される噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極(PDRとして示す)、噴霧乾燥された粉末化アイオノマーの添加前に、白金コーティングされた炭素及び溶媒(水)を前混合することにより形成した噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極(BM後PDRとして示す)、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー電極(冷凍PDRとして示す)、並びに溶液系アイオノマー電極(SOLNとして示す)の種々の性質を比較した。

【0099】

電気化学的 surface 積：触媒の電気化学的 surface 積（ECSA）を、前の段落に列挙した、電極の種類、PDR、BM後PDR、冷凍PDR、SOLNそれぞれに対して分析した。ECSA分析は、燃料電池の反応に貢献するために利用可能な触媒表面を提供する。より大きなECSAは、より良好な燃料電池性能に関連する。ECSAを、次の試験条件下において、電極に対して実行した：電池温度40℃、露点70℃（アノード及びカソード）、H₂/N₂（アノード／カソード）、流速800/500SCCMアノード／カソード。ECSAの数値は、走査速度50mV/sで、0.05～0.80Vで取得した。図10のグラフは、上に列挙した電極の種類の電気化学的 surface 積の比較を提供する。図10から理解されるように、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー（冷凍PDR）が、70m²/g Ptで、最も高いECSAを示す。PDR電極及びBM後PDRの双方もまた、溶液系（SOLN）アイオノマー電極よりもECSAの改善を示す。

10

【0100】

触媒活性：0.9Vでの触媒活性を、次の条件下で各MEAに対して測定した：温度＝80℃、相対湿度100%、H₂/O₂（アノード／カソード）、7.5/7.5psig（51.7/51.7kPa）の圧力（アノード／カソード）。MEAに対する触媒活性の測定結果を図11に提供する。この試験において、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー電極は、溶液系アイオノマー電極よりも良好に機能した。噴霧乾燥された粉末化アイオノマー電極（PDR及びBM後PDR）は、冷凍粉碎された粉末化アイオノマー電極及び溶液系アイオノマー電極よりも、単位質量当たりで、平均して、より高い触媒活性を呈した。

20

【0101】

フォローアップgalvanoの動的分極走査（GDS）：Galvano動的な分極走査を、SOLN、PDR、冷凍PDR、及びBM後PDR電極を有するMEAに対して実行した。試験条件は、次の通りであった：電池温度＝70℃、アノード及びカソード吸気加湿＝100%、周囲動作圧、燃料（H₂）理論空燃比＝1.7、酸化剤（空気）理論空燃比＝2.5。図12は、SOLN、PDR、冷凍PDR、及びBM後PDRのMEAに対する、GDS分極曲線を示す。図13は、各種の電極に対する、電流密度1.2A/cm²でのMEA性能を提供する。この分析において、粉末系電極の全てが、溶液系電極よりも性能が優れている。PDR及びBM後PDRが、溶液系電極に対して最も大きな改善を示し、冷凍PDR電極のものよりも、改善された高電流密度を呈した。

30

【0102】

本開示の目的及び利点を、以下の代表的な実施形態の列挙により、更に例示するが、これらの実施形態において列挙される特定の材料及びその量、並びに他の諸条件及び詳細により、本開示を不当に制限するものと解釈されるべきではない。

【0103】

実施形態

実施形態1は、燃料電池サブアセンブリであって、

電極層であって、

触媒と、

電子伝導体と、

イオン伝導体と、

電極層内に、複数の電子伝導体に富むネットワークと、

電極層内に、電子伝導体に富むネットワークと共に散在する複数のイオン伝導体に富むネットワークと、を備える、電極層を備え、イオン伝導体の電子伝導体に対する体積比が、イオン伝導体に富むネットワーク内で、電子伝導体に富むネットワーク内よりも高い、燃料電池サブアセンブリである。

40

【0104】

実施形態2は、燃料電池サブアセンブリを含む燃料電池の動作中、電子の伝導が、主に電子伝導体に富むネットワーク内で生じ、イオンの伝導が、主にイオン伝導体に富むネットワーク内で生じる、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

50

【0105】

実施形態3は、イオン伝導体が、噴霧乾燥されたイオン伝導性ポリマーの粒子を含む、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0106】

実施形態4は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、実質的に平滑な外表面を有する、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0107】

実施形態5は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、約10%未満の径の変動を有する回転楕円体である、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0108】

実施形態6は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が中空である、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0109】

実施形態7は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、約1 μ m～約15 μ mの範囲の径を有する、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0110】

実施形態8は、電子伝導体が、電子伝導体粒子を含み、触媒が、電子伝導体粒子上に配置される、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0111】

実施形態9は、触媒が、ナノ構造の支持体上に配置される、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0112】

実施形態10は、電子伝導体が、炭素、酸化スズ、及び酸化チタンのうちの1つ以上を含む、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0113】

実施形態11は、触媒が、白金、パラジウム、バイメタル、金属合金、及びカーボンナノチューブのうちの1つ以上を含む、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0114】

実施形態12は、イオン伝導体が、第1のイオン伝導性ポリマーを含み、電極層が、第2のイオン伝導性ポリマーを含む第2のイオン伝導体を更に備える、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0115】

実施形態13は、第1のイオン伝導性ポリマーが、第1の当量を有し、第2のイオン伝導性ポリマーが、第2の当量を有する、実施形態12に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0116】

実施形態14は、

第1のイオン伝導性ポリマーが、粒子を含み、その第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、約1 μ mを超える径を有し、

第2のイオン伝導性ポリマーが、粒子を含み、その第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、約50nm未満の径を有する、実施形態12に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0117】

実施形態15は、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子が、電子伝導体上に薄膜を形成し、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子が、イオン伝導体の体積の過半数を構成する、実施形態14に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0118】

実施形態16は、第1のイオン伝導性ポリマーが、実質的にイオン伝導ネットワークを形成する、実施形態14に記載の燃料電池サブアセンブリである。

10

20

30

40

50

【0119】

実施形態17は、電極層が、電解質膜上に配置される、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0120】

実施形態18は、電極層が、ガス拡散層上に配置される、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0121】

実施形態19は、電極層が、電解質膜の第1の表面と第1のガス拡散層との間に配置され、その燃料電池サブアセンブリは、電解質膜の第2の表面と第2のガス拡散層との間に配置される第2の電極層を含む、膜電極アセンブリ(MEA)の追加の構成要素を更に含む、実施形態1に記載の燃料電池サブアセンブリである。

10

【0122】

実施形態20は、
第1のガス拡散層の近位に配置される第1の流れ場プレートと、
第2のガス拡散層の近位に配置される第2の流れ場プレートと、を更に備える、実施形態19に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0123】

実施形態21は、燃料電池スタックを形成するために配設される、複数のMEAを更に備える、実施形態19に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0124】

実施形態22は、燃料電池の電極層を作製する方法であって、
イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を合わせる工程であって、イオン伝導体が、回転楕円体粒子を含み、その粒子の過半数が、約50nmを超える径を有する、合わせる工程と、
イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を、一定期間混合し、電極インクを形成する工程と、
電極インクを基材にコーティングして、燃料電池の電極層を形成する工程と、を含む、方法である。

20

【0125】

実施形態23は、粒子の過半数が、約1 μ mを超える径を有する、実施形態22に記載の方法である。

30

【0126】

実施形態24は、粒子が、約50nm～約15 μ mの範囲の径を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0127】

実施形態25は、電子伝導体が、触媒でコーティングされる、実施形態22に記載の方法である。

【0128】

実施形態26は、触媒が、支持構造体上に配置される、実施形態22に記載の方法である。

40

【0129】

実施形態27は、触媒が、ナノ構造の支持体上に配置される、実施形態22に記載の方法である。

【0130】

実施形態28は、基材が、電解質膜を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0131】

実施形態29は、基材が、ガス拡散層を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0132】

実施形態30は、粒子が、噴霧乾燥されたアイオノマー粒子を含む、実施形態22に記載の方法である。

50

【0133】

実施形態31は、粒子の過半数が、回転楕円体である、実施形態22に記載の方法である。

【0134】

実施形態32は、粒子の過半数が、実質的に平滑な表面を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0135】

実施形態33は、粒子の過半数が、中空である、実施形態22に記載の方法である。

【0136】

実施形態34は、イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を合わせる工程が、混合の前に、イオン伝導体、電子伝導体、及び溶媒を、実質的に同時に合わせる工程を含む、実施形態22に記載の方法。

10

【0137】

実施形態35は、イオン伝導体、電子伝導体、触媒、及び溶媒を合わせる工程が、電子伝導体及び溶媒を含む前混合物を形成する工程と、前混合物を一定期間混合する工程と、前混合物を混合した後、イオン伝導体を前混合物に添加する工程と、イオン伝導体及び前混合物を一定期間混合する工程と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

20

【0138】

実施形態36は、イオン伝導体、電子伝導体、及び溶媒を混合した後に、イオン伝導体、電子伝導体、及び溶媒の混合物を有する第2の種類のイオン伝導体を添加する工程を更に含む、実施形態22に記載の方法である。

【0139】

実施形態37は、イオン伝導体が、第1の種類のイオン伝導性ポリマー及び第2の種類のイオン伝導性ポリマーを含む、実施形態22に記載の方法である。

【0140】

実施形態38は、イオン伝導体が、第1の形態のイオン伝導性ポリマー及び第2の形態のイオン伝導性ポリマーを含む、実施形態22に記載の方法である。

【0141】

実施形態39は、第1の当量のイオン伝導体及び第2の当量のイオン伝導体を含む、実施形態22に記載の方法である。

30

【0142】

実施形態40は、イオン伝導体が、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、約1 μm を超える径を有する、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子と、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、約50 nm未満の径を有する、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0143】

実施形態41は、第1のイオン伝導性ポリマーの体積が、第2のイオン伝導性ポリマーの体積よりも大きい、実施形態40に記載の方法である。

40

【0144】

実施形態42は、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子が、電子伝導体をコーティングする、実施形態41に記載の方法である。

【0145】

実施形態43は、イオン伝導性ポリマーを噴霧乾燥することによりイオン伝導体を形成する工程を更に含む、実施形態22に記載の方法である。

【0146】

実施形態44は、イオン伝導性ポリマーを噴霧乾燥することによりイオン伝導体を形成

50

する工程が、噴霧乾燥の前又は最中に、イオン伝導性ポリマーに添加剤を添加する工程を含む、実施形態 4 3 に記載の方法である。

【0147】

実施形態 4 5 は、添加剤が、セリウム及びマンガン化合物のうちの 1 つ以上を含む、実施形態 4 4 に記載の方法である。

【0148】

実施形態 4 6 は、合わせる工程が、ボール混合、攪拌、及び超音波処理のうちの 1 つ以上を含む、実施形態 2 2 に記載の方法である。

【0149】

実施形態 4 7 は、溶媒が、炭化水素及び水のうちの 1 つ以上を含む、実施形態 2 2 に記載の方法。

10

【0150】

実施形態 4 8 は、燃料電池サブアセンブリであって、
電極層であって、
触媒と、
電子伝導体と、

電子伝導体及び触媒と入り混じり、粒子を含むイオン伝導体であって、粒子の過半数が、約 50 nm を超える径を有する回転楕円体粒子である、イオン伝導体と、を備える、電極層を備える、燃料電池サブアセンブリである。

【0151】

20

実施形態 4 9 は、イオン伝導体の粒子の過半数が、実質的に平滑で長い表面を有する、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0152】

実施形態 5 0 は、粒子の過半数が中空である、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0153】

実施形態 5 1 は、粒子の過半数が、約 1 μm ～ 約 15 μm の範囲の径を有する、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0154】

実施形態 5 2 は、触媒が、電子伝導体上に配置される、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

30

【0155】

実施形態 5 3 は、触媒が、ナノ構造の支持体上に配置される、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0156】

実施形態 5 5 は、イオン伝導体が、パーフルオロスルホン酸及びパーフルオロイミド酸のうちの 1 つ以上を含む、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0157】

実施形態 5 6 は、第 2 のイオン伝導体を更に備える、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

40

【0158】

実施形態 5 7 は、イオン伝導体が第 1 の当量を有し、第 2 のイオン伝導体が第 2 の当量を有する、実施形態 5 6 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0159】

実施形態 5 8 は、第 2 のイオン伝導体が、粒子を含み、第 2 のイオン伝導体の粒子の過半数が、約 50 nm 未満の径を有する、実施形態 5 6 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0160】

実施形態 5 9 は、イオン伝導体の粒子の過半数が、電極層内で不均一に分布する、実施形態 4 8 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

50

【0161】

実施形態60は、電極層が、電解質膜上に配置される、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0162】

実施形態61は、電極層が、ガス拡散層上に配置される、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0163】

実施形態62は、電極層が、電解質膜の第1の表面と第1のガス拡散層との間に配置される、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリであり、その燃料電池アセンブリは、電解質膜の第2の表面と第2のガス拡散層との間に配置される第2の電極層を含む、膜電極アセンブリ(MEA)の追加の構成要素を更に備える。

10

【0164】

実施形態63は、
第1のガス拡散層の近位に配置される第1の流れ場プレートと、
第2のガス拡散層の近位に配置される第2の流れ場プレートと、を更に備える、実施形態62に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0165】

実施形態64は、燃料電池スタックを形成するように配設される、複数のMEAを更に備える、実施形態62に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0166】

20

実施形態65は、燃料電池の電極層であって、
触媒と、
電子伝導体と、
第1のイオン伝導体と、
第2のイオン伝導体と、を備え、第1のイオン伝導体が、第2のイオン伝導体とは異なり、第1のイオン伝導体及び前記第2のイオン伝導体は、電極層内で、互いに、電子伝導体、及び触媒と共に散在する、燃料電池の電極層である。

【0167】

実施形態66は、第1のイオン伝導体及び第2のイオン伝導体が、異なる種類のイオン伝導体である、実施形態65に記載の電極層である。

30

【0168】

実施形態67は、第1のイオン伝導体及び第2のイオン伝導体が、同一の種類のイオン伝導体の異なる形態である、実施形態65に記載の電極層である。

【0169】

実施形態68は、第1のイオン伝導体が、第1の当量を有し、第2のイオン伝導体が、第2の当量を有する、実施形態65に記載の電極層である。

【0170】

実施形態69は、第2のイオン伝導体の粒子が、電子伝導体をコーティングする、実施形態65に記載の電極層である。

【0171】

40

実施形態70は、第2のイオン伝導体の粒子が、実質的に、第1のイオン伝導体の粒子よりも小さい、実施形態65に記載の電極層である。

【0172】

実施形態71は、第2のイオン伝導体の粒子の過半数が、約50nm未満の径を有し、第1のイオン伝導体の粒子が、噴霧乾燥された粒子又は粉末化冷凍粉碎された粒子である、実施形態65に記載の電極層である。

【0173】

実施形態72は、第1のイオン伝導体及び第2のイオン伝導体のうちの1つ又は両方の粒子が、電極層内で不均一に分布する、実施形態65に記載の電極層である。

【0174】

50

実施形態 73 は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、 $1\ \mu\text{m} \sim 15\ \mu\text{m}$ の範囲の径を有する、実施形態 1 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0175】

実施形態 74 は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、 $1.5\ \mu\text{m} \sim 14\ \mu\text{m}$ の範囲の径を有する、実施形態 1 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0176】

実施形態 75 は、イオン伝導体が、粒子を含み、その粒子の過半数が、 $2\ \mu\text{m} \sim 12\ \mu\text{m}$ の範囲の径を有する、実施形態 1 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0177】

実施形態 76 は、

第 1 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 1 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $1\ \mu\text{m}$ を超える径を有し、

第 2 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 2 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $50\ \text{nm}$ 未満の径を有する、実施形態 12 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0178】

実施形態 77 は、

第 1 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 1 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $1.5\ \mu\text{m}$ を超える径を有し、

第 2 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 2 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $50\ \text{nm}$ 未満の径を有する、実施形態 12 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0179】

実施形態 78 は、

第 1 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 1 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $1\ \mu\text{m}$ を超える径を有し、

第 2 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 2 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $40\ \text{nm}$ 未満の径を有する、実施形態 12 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0180】

実施形態 79 は、

第 1 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 1 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $1.5\ \mu\text{m}$ を超える径を有し、

第 2 のイオン伝導性ポリマーが粒子を含み、第 2 のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、 $40\ \text{nm}$ 未満の径を有する、実施形態 12 に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0181】

実施形態 80 は、粒子の過半数が、 $50\ \text{nm}$ を超える径を有する、実施形態 22 に記載の方法である。

【0182】

実施形態 81 は、粒子の過半数が、 $75\ \text{nm}$ を超える径を有する、実施形態 22 に記載の方法である。

【0183】

実施形態 82 は、粒子の過半数が、 $1\ \mu\text{nm}$ を超える径を有する、実施形態 22 に記載の方法である。

【0184】

実施形態 83 は、粒子の過半数が、 $1.5\ \mu\text{m}$ を超える径を有する、実施形態 22 に記載の方法である。

【0185】

実施形態 84 は、粒子が、 $50\ \text{nm} \sim 15\ \mu\text{m}$ の範囲の径を有する、実施形態 22 に記

10

20

30

40

50

載の方法である。

【0186】

実施形態85は、粒子が、50nm～12μmの範囲の径を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0187】

実施形態86は、粒子が、75nm～12μmの範囲の径を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0188】

実施形態87は、粒子が、1μm～12μmの範囲の径を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0189】

実施形態88は、粒子が、1.5μm～12μmの範囲の径を有する、実施形態22に記載の方法である。

【0190】

実施形態89は、イオン伝導体が、

第1のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、1μmを超える径を有する、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子と、

第2のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、50nm未満の径を有する、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0191】

実施形態90は、イオン伝導体が、

第1のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、1.5μmを超える径を有する、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子と、

第2のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、50nm未満の径を有する、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0192】

実施形態91は、イオン伝導体が、

第1のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、1μmを超える径を有する、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子と、

第2のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、40nm未満の径を有する、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0193】

実施形態92は、イオン伝導体が、

第1のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、1.5μmを超える径を有する、第1のイオン伝導性ポリマーの粒子と、

第2のイオン伝導性ポリマーの粒子であって、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子の過半数が、40nm未満の径を有する、第2のイオン伝導性ポリマーの粒子と、を含む、実施形態22に記載の方法である。

【0194】

実施形態93は、粒子の過半数が、1μm～15μmの範囲の径を有する、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0195】

実施形態94は、粒子の過半数が、1.5μm～15μmの範囲の径を有する、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0196】

実施形態95は、粒子の過半数が、1μm～12μmの範囲の径を有する、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

10

20

30

40

50

【0197】

実施形態96は、粒子の過半数が、 $1.5\mu\text{m}\sim 12\mu\text{m}$ の範囲の径を有する、実施形態48に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0198】

実施形態97は、第2のイオン伝導体が、粒子を含み、第2のイオン伝導体の粒子の過半数が、 50nm 未満の径を有する、実施形態56に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0199】

実施形態98は、第2のイオン伝導体が、粒子を含み、第2のイオン伝導体の粒子の過半数が、 40nm 未満の径を有する、実施形態56に記載の燃料電池サブアセンブリである。

10

【0200】

実施形態99は、粒子の過半数が、 $1\mu\text{m}\sim 15\mu\text{m}$ の範囲の径を有し、第2のイオン伝導体が粒子を含み、第2のイオン伝導体の粒子の過半数が、 50nm 未満の径を有する、実施形態56に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0201】

実施形態100は、粒子の過半数が、 $1\mu\text{m}\sim 15\mu\text{m}$ の範囲の径を有し、第2のイオン伝導体が粒子を含み、第2のイオン伝導体の粒子の過半数が、 40nm 未満の径を有する、実施形態56に記載の燃料電池サブアセンブリである。

【0202】

実施形態101は、粒子の少なくとも10%が、中空である、実施形態22に記載の方法である。

20

【0203】

実施形態102は、粒子の少なくとも20%が、中空である、実施形態22に記載の方法である。

【0204】

実施形態103は、粒子の少なくとも30%が、中空である、実施形態22に記載の方法である。

【0205】

実施形態104は、粒子の少なくとも40%が、中空である、実施形態22に記載の方法である。

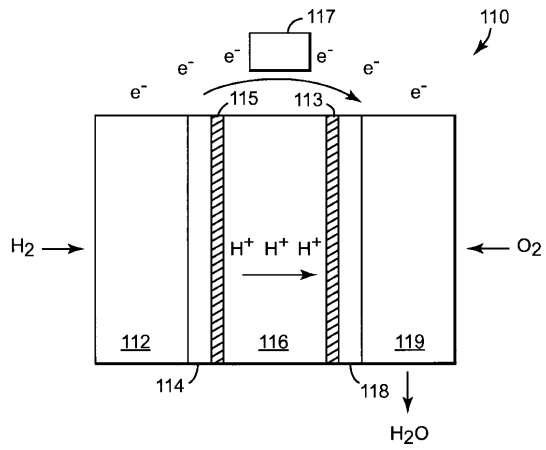
30

【0206】

様々な実施例及び実施形態の前述の説明は、例示及び説明の目的で提示されてきた。包括的であること、又は開示されたそのままの形態に本発明を限定することを意図するものではない。以上の教示を考慮すれば、多くの修正形態及び変形形態が可能である。本発明の範囲は、この詳細な説明によってではなく、むしろ添付の特許請求の範囲によって限定されるものとする。

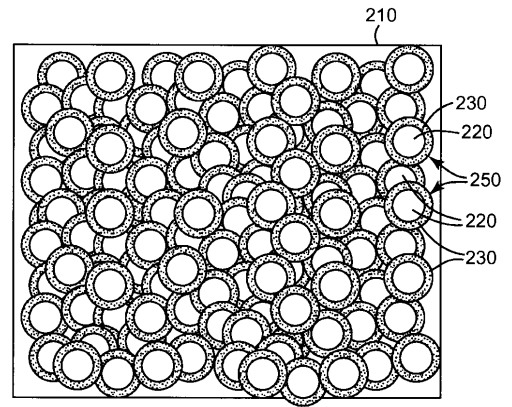
【図 1】

図1



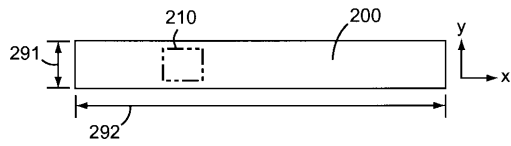
【図 2 B】

図2B



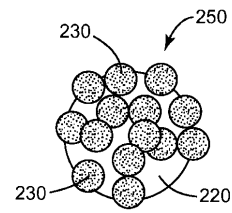
【図 2 A】

図2A



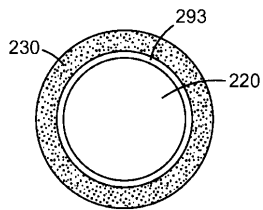
【図 2 C】

図2C



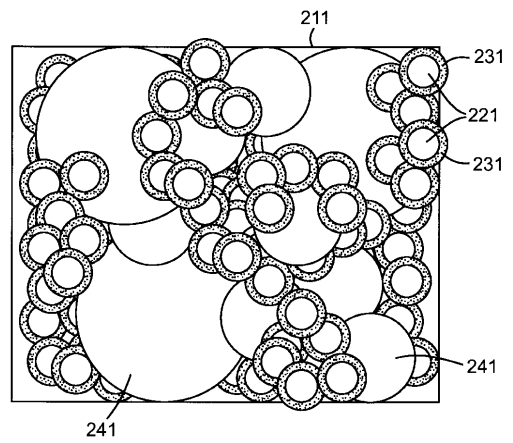
【図 2 D】

図2D



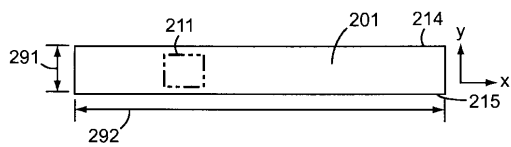
【図 2 F】

図2F



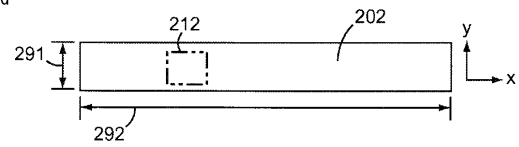
【図 2 E】

図2E



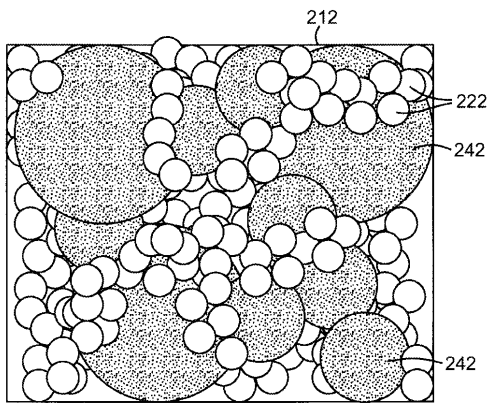
【図 2 G】

図2G



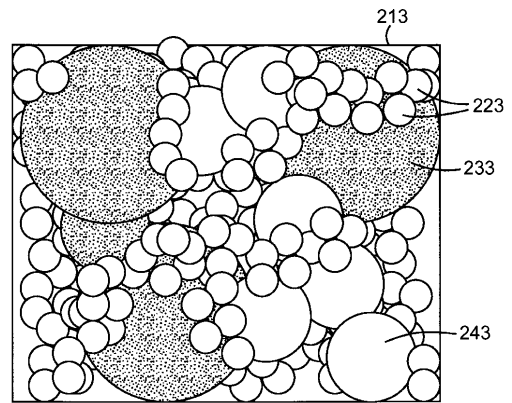
【図 2 H】

図2H



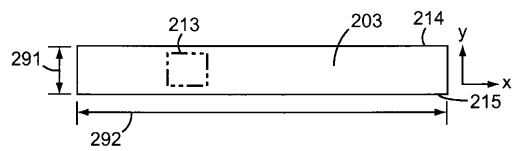
【図 2 J】

図2J



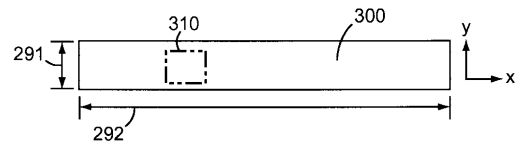
【図 2 I】

図2I



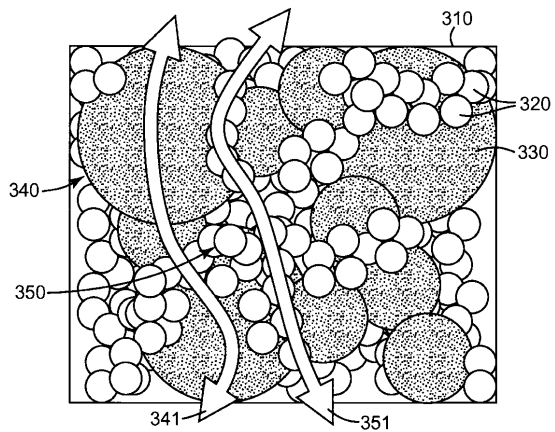
【図 3 A】

図3A



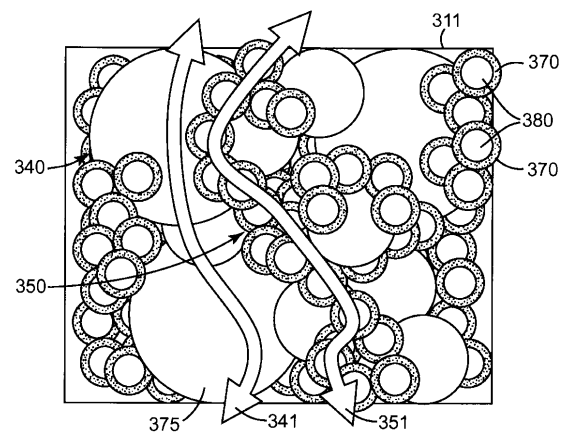
【図 3 B】

図3B



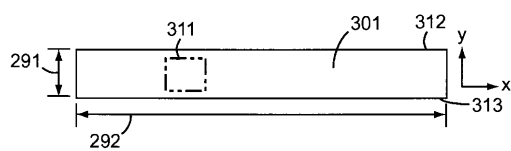
【図 3 D】

図3D



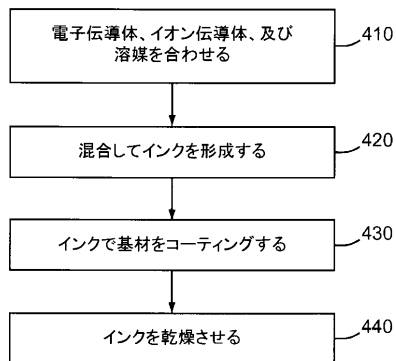
【図 3 C】

図3C



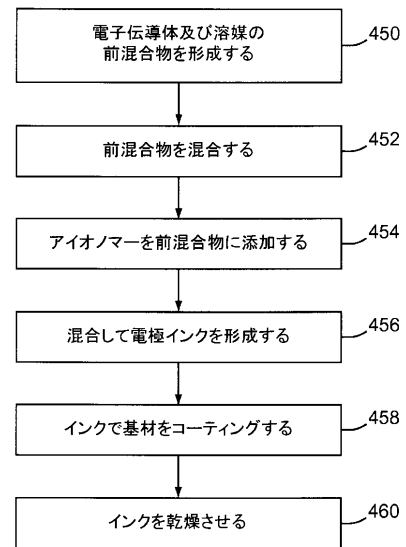
【図 4 A】

図4A



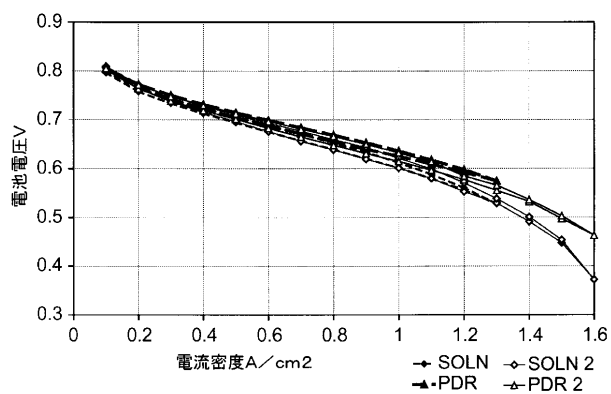
【図 4 B】

図4B



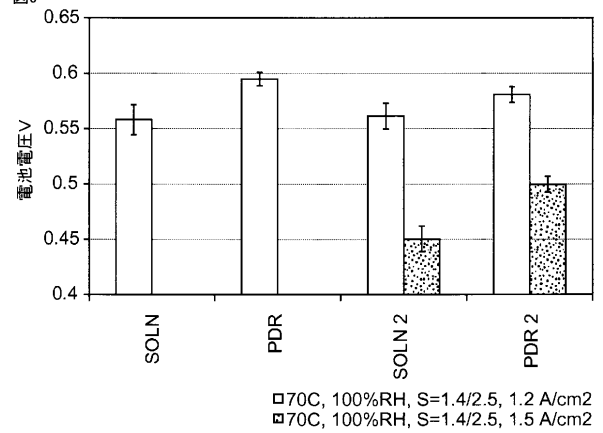
【図 8】

図8

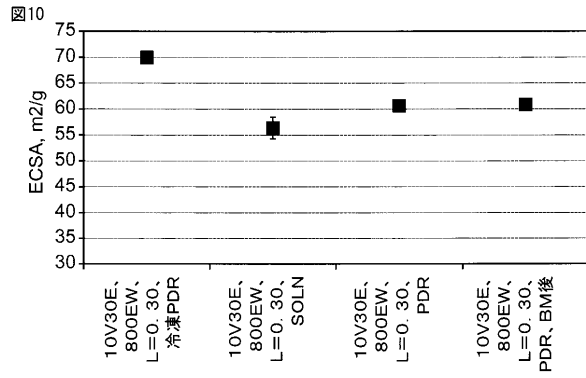


【図 9】

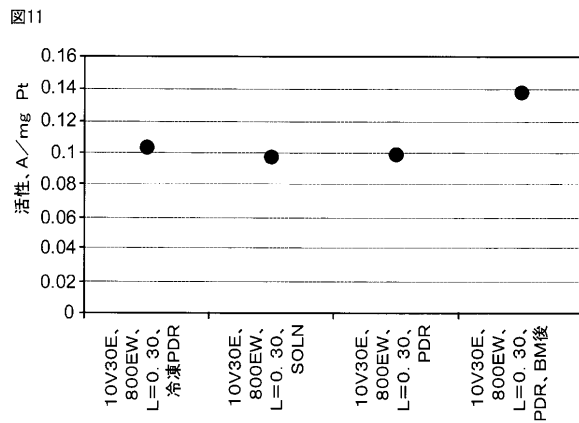
図9



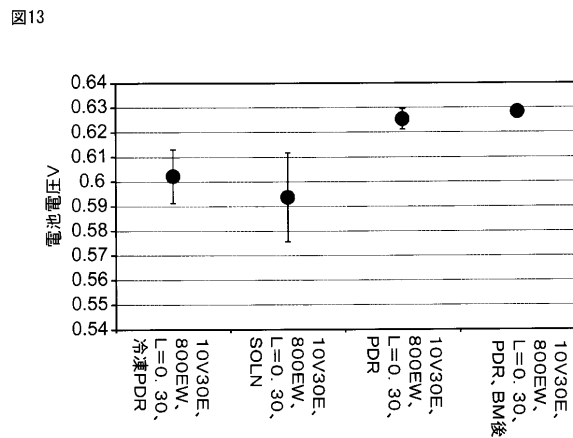
【図 10】



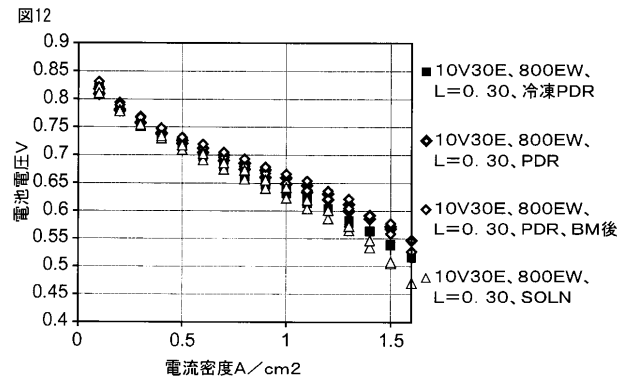
【図 11】



【図 13】



【図 12】



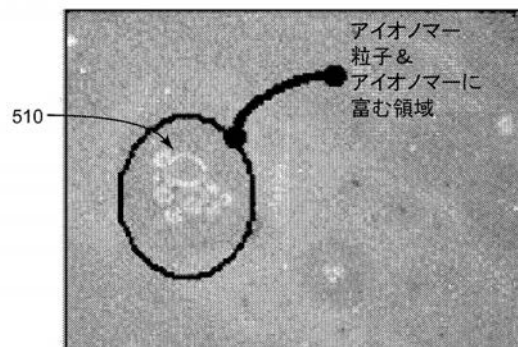
【図 5 A】

図5A



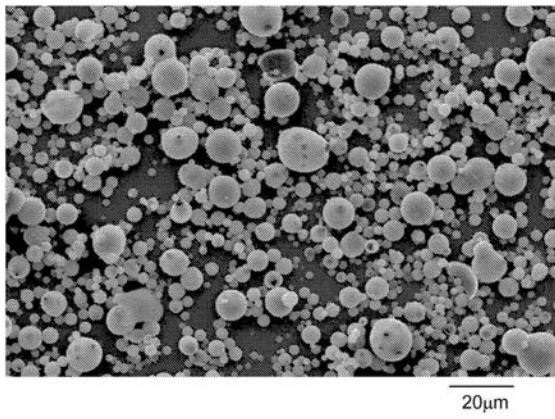
【図 5 B】

図5B



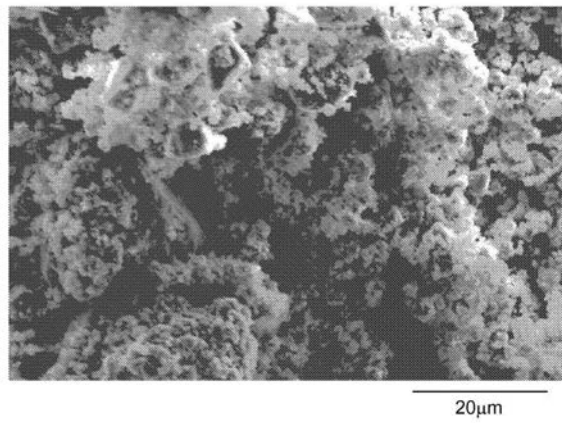
【図 6】

図6



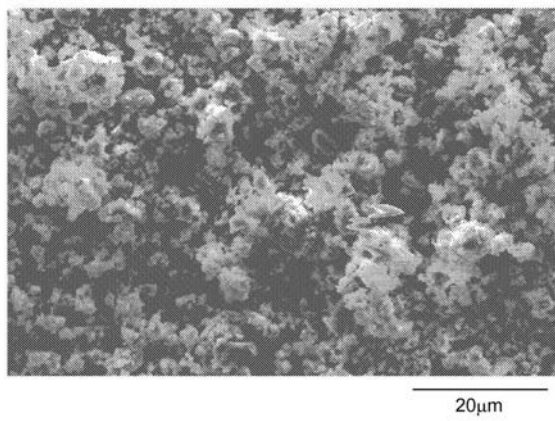
【図 7 A】

図7A



【図 7 B】

図7B



【手続補正書】

【提出日】平成28年1月15日(2016.1.15)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

燃料電池電極層であって、

触媒と、

前記電極層内に、複数の接続された第一の電子伝導体と、

第 1 のイオン伝導体と、

第 2 のイオン伝導体と

を含んでおり、

前記第 1 及び第 2 のイオン伝導体はそれぞれポリマーであり、

前記第 1 のイオン伝導体は前記第 2 のイオン伝導体とは異なり、前記第 1 のイオン伝導体及び前記第 2 のイオン伝導体は、前記電極層内で、互いに、前記電子伝導体及び前記触媒と共に散在しており、

前記第 1 のイオン伝導体は粒子を含んでおり、前記第 1 のイオン伝導体の前記粒子の過半数は実質的に平滑かつ中空である、

燃料電池電極層。

【請求項 2】

電極層を含む燃料電池サブアセンブリであって、

前記電極層が、

触媒と、

電子伝導体と、

前記電子伝導体及び前記触媒と入り混じった第 1 のイオン伝導体と、

第 2 のイオン伝導体から本質的に構成される粒子と

を含んでおり、前記第 2 のイオン伝導体から本質的に構成される前記粒子の過半数は、50 nm を超える径を有する回転楕円体粒子である、

燃料電池サブアセンブリ。

フロントページの続き

(74)代理人 100128495

弁理士 出野 知

(74)代理人 100173107

弁理士 胡田 尚則

(74)代理人 100191444

弁理士 明石 尚久

(72)発明者 アンドリュー ティー. ハウグ

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427, スリーエム センター

(72)発明者 スティーブン ジェイ. ハムロック

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427, スリーエム センター

(72)発明者 グレゴリー エム. ハウゲン

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427, スリーエム センター

(72)発明者 マーク エー. ショーンウィル

アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 33427, スリーエム センター

Fターム(参考) 5H018 AA06 EE17 HH01

5H026 AA06

【外国語明細書】
2016119308000001.pdf