



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2016-0099598
(43) 공개일자 2016년08월22일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

H01M 8/1004 (2016.01) *H01M 4/88* (2006.01)
H01M 8/0234 (2016.01) *H01M 8/0247* (2016.01)
H01M 8/0258 (2016.01)

(52) CPC특허분류

H01M 8/1004 (2013.01)
H01M 4/881 (2013.01)

(21) 출원번호 10-2016-7018096

(22) 출원일자(국제) 2014년12월10일

심사청구일자 **없음**

(85) 번역문제출일자 2016년07월06일

(86) 국제출원번호 PCT/US2014/069475

(87) 국제공개번호 WO 2015/094845

국제공개일자 2015년06월25일

(30) 우선권주장

61/917,135 2013년12월17일 미국(US)

(71) 출원인

쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 캄파니
미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박
스 33427 쓰리엠 센터

(72) 발명자

피어폰트 다니엘 엠

미국 미네소타주 55133-3427 세인트 폴 포스트 오
피스 박스 33427 쓰리엠 센터

프리스크 조셉 더블유

미국 미네소타주 55133-3427 세인트 폴 포스트 오
피스 박스 33427 쓰리엠 센터

헨슨 에릭 제이

미국 미네소타주 55133-3427 세인트 폴 포스트 오
피스 박스 33427 쓰리엠 센터

(74) 대리인

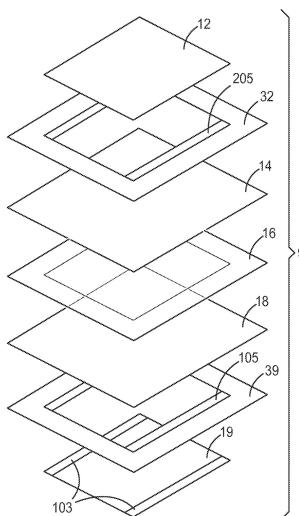
제일특허법인

전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 막 전극 접합체 및 이를 제조하는 방법

(57) 요 약

주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 포함하고, 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 제1 미세 기공 층의 주면은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 내부 접착제를 갖는, 막 전극 접합체; 및 그것을 제조하는 방법. 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체는, 예를 들어, 연료 전지에 유용하다.

대 표 도 - 도2

(52) CPC특허분류

H01M 8/0234 (2013.01)

H01M 8/0247 (2013.01)

H01M 8/0258 (2013.01)

Y02E 60/521 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 포함하는 막 전극 접합체(membrane electrode assembly)로서,

상기 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 상기 제1 미세 기공 층의 주면은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 상기 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 내부 접착제를 갖는, 막 전극 접합체.

청구항 2

제1항에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 막 전극 접합체.

청구항 3

제1항에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 막 전극 접합체.

청구항 4

제1항에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 막 전극 접합체.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 제1 불연속 영역 중 적어도 어느 것은 1mm 내지 10mm 범위의 폭을 갖는, 막 전극 접합체.

청구항 6

막 전극 접합체를 제조하는 방법으로서,

주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하는 단계로서, 상기 제1 미세 기공 층은 주면 영역을 갖는, 단계;

상기 제1 가스 확산층의 주면에 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 적어도 제1 영역을 제공하기 위해, 상기 제1 가스 확산층으로부터 상기 제1 미세 기공 층의 일부를 제거하는 단계;

일반적으로 대향하는(opposed) 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 상기 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 상기 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;

상기 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 상기 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 상기 제1 가스 확산층과 상기 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및

상기 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 상기 막 전극 접합체를 제공하는 단계를 포함하는, 방법.

청구항 7

제6항에 있어서, 상기 제1 가스 확산층이 상기 촉매 코팅된 막의 상기 애노드 촉매에 고정되기 전에, 상기 제2 가스 확산층이 상기 촉매 코팅된 막의 상기 캐쏘드 촉매에 고정되는, 방법.

청구항 8

제6항 또는 제7항에 있어서, 상기 제1 가스 확산층으로부터 상기 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계가 레이저 용삭 또는 접착제 전달 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.

청구항 9

제6항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 영역의 적어도 일부가 복수의 채널인, 방법.

청구항 10

제6항 내지 제9항 중 어느 한 항에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 가스 확산층의 주면의 제1 영역의 적어도 일부가 복수의 연결된 채널인, 방법.

청구항 11

제6항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 제2 가스 확산층은 주면에 제2 미세 기공 층을 갖고, 상기 제2 미세 기공 층은 주면 영역을 가지며,

적어도,

상기 제2 가스 확산층의 주면에 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 적어도 제1 영역을 제공하기 위해, 상기 제2 가스 확산층으로부터 상기 제2 미세 기공 층의 일부를 제거하는 단계; 및

상기 촉매 코팅된 막의 상기 캐쏘드 촉매에 상기 제2 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제2 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 상기 제2 가스 확산층과 상기 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제2 접착제가 배치되는, 단계

에 의해, 상기 제2 가스 확산층이 상기 촉매 코팅된 막의 상기 캐쏘드 촉매에 고정되는,

방법.

청구항 12

제11항에 있어서, 상기 제2 가스 확산층으로부터 제2 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계는 레이저 용삭 또는 접착제 전달 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.

청구항 13

막 전극 접합체를 제조하는 방법으로서,

주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하기 위해, 적어도 하나의 마스크를 이용하여 주면의 제1 가스 확산층에 미세 기공 층을 코팅하는 단계로서, 이때 상기 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 상기 제1 미세 기공 층의 주면은 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 적어도 하나의 불연속 영역의 적어도 일부는 상기 제1 가스 확산층의 활성 영역에 있는, 단계;

일반적으로 대향하는 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 상기 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 상기 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;

상기 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 상기 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 상기 제1 가스 확산층과 상기 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및

상기 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 상기 막 전극 접합체를 제공하는 단계
를 포함하는, 방법.

청구항 14

제13항에 있어서, 상기 제1 가스 확산층이 상기 촉매 코팅된 막에 고정되기 전에, 상기 제2 가스 확산층이 상기 촉매 코팅된 막에 고정되는, 방법.

청구항 15

제13항 또는 제14항에 있어서, 상기 제1 가스 확산층은 상기 촉매 코팅된 막의 상기 애노드 촉매에 고정되고, 상기 제2 가스 확산층은 상기 촉매 코팅된 막의 상기 캐쏘드 촉매에 고정되는, 방법.

청구항 16

제13항 또는 제14항에 있어서, 상기 제1 가스 확산층은 상기 촉매 코팅된 막의 상기 캐쏘드 촉매에 고정되고, 상기 제2 가스 확산층은 상기 촉매 코팅된 막의 상기 애노드 촉매에 고정되는, 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 관련 출원들과의 상호 참조

이 출원은 2013년 12월 17일에 출원되고, 그 개시내용이 전체적으로 이 명세서에 참고로 통합되는 미국 특허 출원 제61/917135호를 우선권으로 주장한다.

배경 기술

[0003] 연료 전지 막 전극 접합체(membrane electrode assembly)(MEA)들은 전형적으로 애노드 및 캐쏘드 촉매 및 막 층에 접합되거나, 코팅되거나, 또는 적층되는 카본지(carbon paper) 가스 확산층(gas diffusion layer)(GDL)들을 포함한다. 5층 구조는 몇 가지 방식으로 제조될 수 있지만, 흔히 촉매가 막에 부착되어 촉매 코팅된 막(catalyst coated membrane)(CCM)을 형성한다. 그 후, 미세 기공 층(micro porous layer)(MPL)을 갖는 가스 확산층이 촉매 코팅된 막에 부착되어 막 전극 접합체를 형성한다.

흔히, 촉매와 가스 확산층의 미세 기공 층 쪽 사이의 접합은 가스 확산층과 촉매 코팅된 막을 서로 바람직하게 고정시킨다는 관점에서 구조적으로 취약부이다. 또한, 미세 기공 층과 촉매 사이의 접합이 비교적 강할지라도, 미세 기공 층과 가스 확산층 섬유 사이의 접합이 구성 요소들을 서로 붙잡고 있기에 적합하지 않을 수도 있다. 이런 이유로, 접착제가 가스 확산층 탄소 섬유에 접촉하고 그래서 강한 접합을 생성하는 방식으로 가스 확산층을 촉매 코팅된 막에 접착제 접합하는 것이 유리할 수 있다.

발명의 내용

[0005] 한 양태에서, 이 발명은 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 포함하는 막 전극 접합체를 기술하며, 여기서, 제1 미세 기공 층은 주면을 갖고, 제1 미세 기공 층의 주면은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 가지며, 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 내부 접착제를 갖는다. 이 명세서에서 이용되는 바로서, "미세 기공 재료가 실질적으로 없는"이라고 함은 불연속 영역의 적어도 일부가 가스 확산층의 해당 주면에서 미세 기공 재료를 갖지 않는 것을 의미한다.

[0006] 다른 한 양태에서, 이 발명은 막 전극 접합체를 제조하는 제1 방법을 기술하며, 방법은:

[0007] 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하는 단계로서, 상기 제1 미세 기공 층은 주면 영역을 갖는, 단계;

[0008] 제1 가스 확산층의 주면에 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 적어도 제1 영역을 제공하기 위해, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 층의 일부를 제거하는 단계;

[0009] 일반적으로 대향하는(opposed) 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 상기 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 상기 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;

[0010] 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 상기 제1 가스 확산층과 상기 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및

[0011] 상기 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 상기 막 전극 접합체를 제공하는 단계

[0012] 를 포함한다.

[0013] 다른 한 양태에서, 이 발명은 막 전극 접합체를 제조하는 제2 방법을 기술하며, 방법은:

- [0014] 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하기 위해, 적어도 하나의 마스크를 이용하여 주면의 제1 가스 확산층에 미세 기공 층을 코팅하는 단계로서, 이때 상기 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 상기 제1 미세 기공 층의 주면은 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 적어도 하나의 불연속 영역의 적어도 일부는 상기 제1 가스 확산층의 활성 영역에 있는, 단계;
- [0015] 일반적으로 대향하는(opposed) 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 상기 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 상기 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;
- [0016] 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 상기 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 상기 제1 가스 확산층과 상기 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및
- [0017] 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 상기 막 전극 접합체를 제공하는 단계
- [0018] 를 포함한다.
- [0019] 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체는, 예를 들어, 연료 전지에서 유용하다. 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체의 실시양태의 이점은 구성 요소들이 일반적으로 서로 잘 붙잡고 있고 연료 전지 스택(fuel cell stack)에 따로 접합될 필요가 없게 하는 양호한 취급성을 포함한다. 가스 확산층을 접착으로 접합하는 것은, 활성 영역에 대한 가스 확산층의 정렬을 향상시킬 뿐만 아니라, 이러한 정렬이 스택 내에서 유지되게 하는 것에 도움이 될 수 있다. 스택 제조자가 스택 형성이 신속하도록 개별적 구성 요소가 아니라 완전하게 통합된 막 전극 접합체로 공급받는다는 것도 이점이다.

도면의 간단한 설명

- [0020] 도 1은 이 명세서에 기술된 물품을 포함하는 예시적 연료 전지의 도면이고;
 도 2는 도 1에 도시된 연료 전지를 포함하는, 이 명세서에 기술된 예시적 막 전극 접합체의 분해도이며;
 도 2a는 도 2에 도시된 가스 확산층의 횡단면도이고;
 도 3a 및 도 3b는 이 명세서에 기술된 예시적 막 전극 접합체를 제조하는 예시적 방법의 개요도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0021] 도 1을 보면, 연료 전지(10)는 이 명세서에 기술된 예시적 막 전극 접합체(9)를 포함한다. 막 전극 접합체(9)는 애노드(14)에 인접한 제1 가스 확산층(GDL)(12)을 포함한다. 애노드(14)는 인접한 전해질 막(16)을 포함한다. 캐쏘드(18)는 전해질 막(16)에 인접해 있고, 제2 가스 확산층(19)은 캐쏘드(18)에 인접해 있다. GDL들(12 및 19)은 확산 집전 장치(diffuse current collector)(DCC)들 또는 유체 전달 층(fluid transport layer)(FTL)들이라고 칭해질 수 있다. 작동시, 수소 연료는 제1 가스 확산층(12)을 통해 애노드(14)로 전달되어 연료 전지(10)의 애노드 부위로 도입된다. 애노드(14)에서, 수소 연료는 수소 이온(H⁺)과 전자(e⁻)로 분리된다.
- [0022] 전해질 막(16)은 수소 이온 또는 양성자만 전해질 막(16)을 통해 연료 전지(10)의 캐쏘드 부위로 가게 한다. 전자는 전해질 막(16)을 통과할 수 없고, 대신에, 전류의 형태로 외부 전기 회로를 통해 흐른다. 이 전류는, 예를 들어, 전동기와 같은 전기 부하(17)에 전력을 공급하거나, 또는 충전식 배터리와 같은 에너지 저장 장치로 보내질 수 있다.
- [0023] 산소는 제2 가스 확산층(19)을 통해 연료 전지(10)의 캐쏘드 쪽으로 유입한다. 산소가 캐쏘드(18)로 전달됨에 따라, 산소, 양성자, 및 전자가 화합하여 물 및 열을 생성한다.
- [0024] 도 2는 이 명세서에 기술된 예시적 막 전극 접합체(9)의 어떤 더 세부적인 사항을 제공한다. 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체(9)는 주면(99)에 제1 미세 기공 층(101)을 갖는 제1 가스 확산층(9)을 포함한다. 제1 미세 기공 층(101)은 주면(110)을 갖는다. 제1 미세 기공 층(9)의 주면(99)은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역(103)을 갖는다. 제1 불연속 영역(103)의 적어도 일부는 내부 접착제(105)를 갖는다. 어떤 실시양태에서는, 예를 들어, 여기에 예시된 바와 같이, 적어도 하나의 불연속 영역(103)의 적어도 일부는 활성 영역에 있다. 선택적으로, 제2 미세 기공 층(201)을 갖는 제2 가스 확산층(19)은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역(203)을 갖는다. 어떤 실시양태에서는, 예를 들어, 여기에 예시된 바와 같이, 제1 불연속 영역(203)의 적어도 일부는 내부 접착제(205)를 갖는다. 어떤 실시양태에서는, 예를 들어, 여기에 예시된

바와 같이, 적어도 하나의 불연속 영역(203)의 적어도 일부는 활성 영역에 있다. 이 명세서에서 이용되는 바로서, "활성 영역"이라고 함은 가스 확산층 표면의 주면이 촉매 표면에 인접해 있어서 전기화학적 연료 전지 반응이 일어날 수 있게 하는 가스 확산층의 영역을 의미한다.

[0025] 도 2가 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 고정된 내부 불연속 영역을 갖는 예시적 확산층, 및 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정된 내부 불연속 영역을 갖거나 또는 갖지 않을 수 있는 가스 확산층을 도시할지라도, 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체의 다른 예시적 실시양태들은 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정된 내부 불연속 영역을 갖는 확산층, 및 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 고정된 내부 불연속 영역을 갖거나 갖지 않을 수 있는 가스 확산층을 갖는다.

[0026] 어떤 실시양태에서는, 가스 확산층의 불연속 영역은 복수의 채널이다. 어떤 실시양태에서는, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널이다. 어떤 실시양태에서는, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널이다. 어떤 실시양태에서는, 불연속 영역의 적어도 일부는 일종의 패턴의 형태이다.

[0027] 어떤 실시양태에서는, 불연속 영역 중 적어도 어느 것은 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm)의 폭을 갖는다.

[0028] 어떤 실시양태에서는, 미세 기공 층에 포함된 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 불연속 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%)에 있다.

[0029] 적절한 가스 확산층 및/또는 층을 제조하는 방법이 당해 기술분야에서 알려져 있거나, 또는 이 명세서에 기술된 바와 같이 수정되어, 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체를 제조할 수 있다. 전형적으로 가스 확산층은 탄소 섬유를 포함하는 시트 재료(sheet material)를 포함한다. 전형적으로 가스 확산층은 직조 또는 부직 탄소 섬유의 형태인 탄소 섬유이다. 예시적 탄소 섬유는, 예를 들어, 일본, 추오쿠에 소재하는 토레이 인더스트리즈(Toray Industries)로부터 상품명 "Toray Carbon Paper"로; 미국, 미주리, 세인트루이스에 소재하는 콜테크 코포레이션(Zoltek Corporation)으로부터 상품명 "ZoltekCarbon Cloth Panex 30"으로; 및 독일, 바인하임에 소재하는 프루덴베르그 에프시시티 에스이 운트 코. 카게.(Freudenberg FCCT Se & Co.Kg.)로부터 상품명 "Freudenberg Gas Diffusion Layers"로 구입할 수 있다. 선택적으로 가스 확산층은, 탄소 입자 코팅, 친수화 처리, 및 소수화 처리를 포함해서, 다양한 재료로 코팅 또는 함침될 수 있다(예를 들어, 폴리테트라플루오로에틸렌(PTFE)으로 코팅).

[0030] 다공성 미세층은 전형적으로 탄소 입자 및 중합체 조성물을 포함한다. 적절한 탄소 입자들이 당해 기술분야에서 알려져 있다. 예시적 탄소 입자는 일차 입자(약 1 나노미터(nm) 내지 약 100nm 범위의 평균 크기), 일차 입자들의 일차 집합체(약 0.01 마이크로미터 내지 약 1 마이크로미터 범위의 평균 크기), 일차 집합체들의 이차 집합체(0.1 마이크로미터 내지 약 10 마이크로미터 범위의 평균 크기), 집합체들의 덩어리(약 10 마이크로미터를 초과하는 평균 크기), 및 그것의 조합을 포함한다. 어떤 실시양태에서는, 탄소 입자는 일차 입자, 일차 집합체, 및 그것의 조합을 포함한다.

[0031] 적절한 탄소 입자들이 당해 기술분야에서 알려져 있고, 카본 블랙(예를 들어, 오일로 카본 블랙(oil-furnace carbon black)(예를 들어, 미국, 매사추세츠, 빌리리카에 소재하는 카봇 코포레이션(Cabot Corporation)으로부터 상품명 "Vulcan XC-72 carbon black"으로 구입 가능한)을 포함한다. 흑연화 탄소 입자들도 바람직한데, 그것들이 일반적으로 산화에 비해 양호한 안정성을 나타내기 때문이다.

[0032] 다공성 미세층을 위한 예시적 중합체 조성물이 당해 기술분야에서 알려져 있고, 비용-용 처리 가능한 높은 불소계 중합체와 용-용 처리 가능한 높은 불소계 중합체의 조합을 포함한다. 어떤 실시양태에서는, 비용-용 처리 가능한 중합체 및 용-용 처리 가능한 중합체가 각각 퍼플루오로 중합체이다.

[0033] 예시적 비용-용 처리 가능한 중합체는 약 0.5그램/10분 미만의 용-용 유동 지수를 나타내는 높은 불소계 중합체(예를 들어, 테트라플루오로에틸렌(TFE)의 호모폴리머, TFE와 다른 단량체의 공중합체, 및 그것의 조합)를 포함한다. TFE와 퍼플루오로알킬비닐에테르의 공중합체는 전형적으로 "개질된 PTFE" 또는 "TFM"(예를 들어, 미국, 미네소타, 오크데일에 소재하는 디네온, 엘엘씨(Dyneon, LLC)로부터 상품명 "DYNEON TFM"으로 구입 가능한)이라고 칭해진다. 공중합체에서 TFE와 함께 이용하기에 적절한 단량체의 예는 퍼플루오로프로필비닐에테르를 포함한다.

[0034] 예시적 용-용 처리 가능한 중합체는 적어도 약 1그램/10분의 용-용 유동 지수를 나타내는 높은 불소계 중합체를

포함한다(예를 들어, 높은 불소계 중합체는, 퍼플루오로알콕시알칸(PFA)(예를 들어, TFE와 퍼플루오로알콕시비닐에테르의 공중합체), 불소계 에틸렌 프로필렌(FEP), 퍼플루오로알킬 아크릴레이트, 헥사플루오로프로필렌 공중합체, 테트라플루오로에틸렌/헥사플루오로프로필렌/비닐리덴 플루오라이드의 3량체(THV), TFE와 에틸렌의 공중합체(ETFE), 그것의 퍼플루오로 중합체, 및 그것의 조합을 포함한다).

[0035] 수성 혼탁액을 가스 확산층의 주면에 코팅하는 것을 포함해서, 당해 기술분야에서 알려진 기법을 이용하여, 다공성 미세층이 가스 확산층에 도포될 수 있다. 적절한 수성 혼탁액이 당해 기술분야에서 알려져 있고, 전형적으로 담체, 계면 활성제, 탄소 입자, 및 중합체 조성물을 포함한다. 예시적 담체는 물, 알코올, 및 그것의 조합을 포함한다. 예시적 계면 활성제는 탄소 입자 및 중합체 조성물을 담체 속에 실질적으로 분산시키거나 또는 혼탁시킬 수 있는 계면 활성제를 포함한다. 어떤 실시양태에서는, 수성 혼탁액이 증점제, 소포제, 유화제, 및 안정제와 같은, 기타 재료를 포함할 수도 있다.

[0036] 담체, 계면 활성제, 탄소 입자, 및 중합체 조성물의 농도는 선택된 구성 요소에 따라 다양할 수 있다. 수성 혼탁액의 적절한 조성 농도의 예는 수성 혼탁액의 총 중량에 대한 중량 기준 범위로 약 0.1% 내지 약 15% 계면 활성제, 약 1% 내지 약 50% 탄소 입자, 및 약 0.1% 내지 약 15% 중합체 조성물을 포함한다. 담체의 적절한 농도는 수성 혼탁액과 위에 열거한 구성 요소들의 총합 사이의 농도차에 대응한다.

[0037] 수동적 방법, 기계적 방법, 수동 솔질(hand brushing), 노치바 코팅(notch bar coating), 권선로드 코팅(wire-wound rod coating), 유체 베어링 코팅(fluid bearing coating), 슬롯 공급식 나이프 코팅(slot-fed knife coating), 및 3롤 코팅을 포함해서, 당해 기술분야에서 알려진 다양한 방법을 이용하여 수성 혼탁액이 코팅될 수 있다. 코팅은 단번에 또는 수회에 걸쳐 이루어질 수 있다.

[0038] 수성 혼탁액이 가스 확산층에 코팅된 후, 담체, 계면 활성제, 및 계면 활성제의 분해물을 실질적으로 제거하기에 충분한 온도 및 기간으로 초기에 가열될 수 있다. 초기 가열한 후, 미세층은 수성 혼탁액에서 제공된 바와 같은 탄소 입자와 중합체 조성물의 상대 농도를 실질적으로 유지한다. 미세층에서의 예시적 조성 농도(초기 가열 후)는 당해 미세층의 총 중량에 대한 중량 기준 범위로 약 50% 내지 약 90%(어떤 실시양태에서는, 약 75% 내지 약 85%) 탄소 입자, 및 약 10% 내지 약 50%(어떤 실시양태에서는, 약 15% 내지 약 25%) 중합체 조성물을 포함한다.

[0039] 초기 가열 후, 중합체 조성물을 소결시키기 위한 제2 가열 단계가 이용될 수 있다. 적절한 소결 온도 및 기간의 예는 비용을 처리 가능한 중합체 및 용융 처리 가능한 중합체를 소결시킬 수 있는 온도 및 기간(예를 들어, PTFE의 경우 약 330°C)을 포함한다.

[0040] 이 명세서에 기술된 제2 방법의 경우에, 가스 확산층에 불연속 영역(하나를 초과하는 불연속 영역(예를 들어, 제2 영역; 제2 영역 및 제3 영역; 제2 영역, 제3 영역, 및 제4 영역 등)을 포함)을 갖는 가스 확산층은 미세 기공 층을 코팅(주조 포함)할 때 마스크를 이용하여 제조될 수 있다. 마스크는 가스 확산층의 원하는 부분(부분들)(예를 들어, 가스 확산층의 외주 가장자리)이 미세 기공 층 재료로 코팅되는 것을 방지하기 위해 이용될 수 있다. 전형적으로 마스크는 가스 확산층의 주연부에서의 코팅되지 않은 미세 기공 층의 면적 기준 범위로 4% 내지 12%(어떤 실시양태에서는, 6% 내지 10%)를 남긴다. 더 전형적으로는, 그것은 주연부에서 코팅되지 않게 남길 것이다.

[0041] 이 명세서에 기술된 제1 방법의 경우에, 가스 확산층의 미세 기공 층의 부분(부분들)이, 예를 들어, 기계적 제거(예를 들어, 기계기공 및 접착제 제거) 또는 레이저 용삭 중 적어도 하나에 의해 제거될 수 있다. 레이저 용삭은 미세 기공 층을 가스 확산층 섬유까지 제거해 내려가기에 충분한 강도로 에너지를 접종시킴으로써 완성될 수 있다. 전형적으로 용삭은 미세 기공 층으로 덮인 영역을 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%) 만큼 저감시키면서 미세 기공 층을 주연부에서의 섬유까지 제거해 내려갈 수 있다. 접착제에 의한 미세 기공 층의 제거가 수행될 수도 있다. 이 경우에, 접착제 또는 접착제 테이프를 가스 확산층의 주연부에 부착한 후, 접착제 또는 접착제 테이프를 제거하면, 미세 기공 층으로 덮인 영역을 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%) 만큼 저감시키면서 미세 기공 층을 주연부에서의 섬유까지 제거해 내려갈 것이다. 적절한 접착제는, 예를 들어, 미국, 미네소타, 세인트폴에 소재하는 쓰리엠 컴퍼니(3M Company)로부터 상품명 "Scotch ATG Adhesive Transfer Tape #924"로 구입할 수 있는 것과 같은, 감압 접착제이다. 어떤 실시양태에서는, 미세 기공 층 재료는 가스 확산층의 주면의 적어도 하나의 추가 영역(예를 들어, 제2 영역; 제2 영역 및 제3 영역; 제2 영역, 제3 영역, 및 제4 영역 등)으로부터 제거된다.

- [0042] 애노드 및 캐쓰드 촉매 층 및 중합체 전해질 막(PEM)을 포함하는 적절한 촉매 코팅된 막(CCM)들이 당해 기술분야에서 알려져 있고, 촉매를 중합체 전해질 막에 적층, 롤 접합, 스크린 인쇄, 압착하는 것을 포함해서, 당해 기술분야에서 알려진 기법을 이용하여 제조될 수 있다.
- [0043] 적절한 중합체 전해질 막이 당해 기술분야에서 알려져 있고, 전형적으로 황산기이지만 카르복실산기, 이미드기, 아미드기, 또는 다른 산성 작용기를 포함할 수도 있는, 보통의 백본(backbone)에 결합된 음이온성 작용기를 나타내는 중합체 전해질을 전형적으로 포함한다. 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질은 고도로 불화된다(예를 들어, 과불화된다). 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질은 테트라플루오로에틸렌과 적어도 하나의 불소계 산 작용성 공 단량체의 공중합체이다. 중합체 전해질은, 예를 들어, 미국, 엘라웨어, 월밍턴에 소재하는 듀퐁 케미컬스(DuPont Chemicals)로부터 상품명 "Nafion"으로 그리고 일본, 도쿄에 소재하는 아사히 글라스 컴퍼니 리미티드(Asahi Glass Co. Ltd.)로부터 상품명 "Flemion"으로 구입 가능하다. 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질은, 예를 들어, 개시내용이 이 명세서에 참고로 통합되는, 미국 특허 제6,624,328호(Guerra) 및 제7,348,088호(Hamrock 등) 및 2004년 12월 17일에 공개된 미국 특허 공보 US 2004-0116742 A1호에 기술된 바와 같이, 테트라플루오로에틸렌(TFE)과 $\text{FSO}_2\text{-CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{-O-CF=CF}_2$ 의 공중합체이다. 전형적으로, 중합체는 1200 이하(어떤 실시양태에서는, 1100 이하, 1000 이하, 900 이하, 또는 더 나아가서는 800 이하)의 당량(equivalent weight)(EW)을 갖는다.
- [0044] 중합체는, 혼탁액으로부터의 주조를 포함해서, 당해 기술분야에서 알려진 기법(예를 들어, 바 코팅, 스프레이 코팅, 슬릿 코팅, 및 브러시 코팅)에 의해, 막에 형성될 수 있다. 막에 중합체를 형성하는 다른 기법은 니트 중합체(neat polymer)의 용융 공정(예를 들어, 압출)을 포함한다. 형성 후, 막은 전형적으로 적어도 120°C(어떤 실시양태에서는, 적어도 130°C, 또는 더 나아가서는 적어도 150°C)의 온도에서 어닐링될 수 있다. 전형적으로, 중합체 전해질 막은 50 마이크로미터 이하(어떤 실시양태에서는, 40 마이크로미터 이하, 30 마이크로미터 이하, 또는 더 나아가서는 15 마이크로미터 이하)의 두께를 갖는다.
- [0045] 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질 막은 발포된 PTFE의 층과 같은 다공성 지지부를 더 포함하고, 여기서 다공성 지지부의 기공은 중합체 전해질을 함유한다. 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질 막은 다공성 지지부가 전혀 없다. 어떤 실시양태에서는, 중합체 전해질 막은 가교 결합된 중합체를 더 포함한다.
- [0046] 적절한 촉매 코팅된 막이 당해 기술분야에서 알려져 있다. 어떤 실시양태에서는, 탄소-지지된 촉매 입자가 이용된다. 전형적인 탄소-지지된 촉매 입자는 중량 기준으로 50% 내지 90% 탄소 및 10% 내지 50% 촉매 금속이며, 여기서 촉매 금속은 전형적으로 캐쓰드의 경우 Pt 및 애노드의 경우 2:1 중량비의 Pt 및 Ru를 포함한다. 전형적으로, 촉매는 중합체 전해질 막 또는 가스 확산층에 촉매 잉크의 형태로 도포된다. 대안적으로, 예를 들어, 촉매 잉크는 전사 기판에 도포되고, 건조되며, 그 후 중합체 전해질 막 또는 가스 확산층에 전사에 의해 도포될 수 있다. 촉매 잉크는 전형적으로, 중합체 전해질 막을 이루는 것과 동일한 중합체 전해질 재료이거나 또는 아닐 수 있는, 중합체 전해질 재료를 포함한다. 촉매 잉크는 전형적으로 중합체 전해질의 분산물 속의 촉매 입자의 분산물을 포함한다. 잉크는 전형적으로 5% 내지 30% 고체(즉, 중합체 및 촉매)를 함유하고, 더 전형적으로 10% 내지 20% 고체를 함유한다. 전해질 분산물은 전형적으로, 알코올 및 폴리알코올(예를 들어, 글리세린 및 에틸렌 글리콜)을 추가로 포함할 수 있는, 수성 분산물이다. 물, 알코올, 및 폴리알코올 함량은 잉크의 유동학적 성질을 변화시키기 위해 조절될 수 있다. 어떤 실시양태에서는, 잉크는 전형적으로 0 내지 50% 알코올 및 0 내지 20% 폴리알코올을 함유한다. 어떤 실시양태에서는, 잉크는 적절한 분산제 0 내지 2%를 함유할 수 있다. 잉크는, 예를 들어, 열에 의해 교반한 후 코팅 가능한 농도로 희석함으로써 제조될 수 있다. 잉크는, 예를 들어, 라이너 또는 막 자체에, 수동 솔질, 노치바 코팅, 유체 베어링 다이 코팅, 권선로드 코팅, 유체 베어링 코팅, 슬롯 공급식 나이프 코팅, 3롤 코팅, 또는 전사 전달을 포함해서, 수동적 방법 및 기계적 방법 둘다에 의해 코팅될 수 있다. 코팅은 한번 바르기 또는 여러번 바르기로 수행될 수 있다.
- [0047] 막 전극 접착제는, 접착제를 이용하여 가스 확산층을 접착함으로써 촉매 코팅된 막의 양쪽에 가스 확산층을 부착하는 것을 포함해서, 당해 기술분야에서 알려진 기법을 이용하여, 접합될 수 있다.
- [0048] 예시적 접착제는 연료 전지를 오염시키지 않을 수 있는 것(예를 들어, 아크릴레이트 또는 열 접착제(예를 들어, 에틸렌 비닐 아세테이트 또는 에틸렌 앤틸 아크릴레이트))을 포함한다.
- [0049] 가스 확산층은, 예를 들어, 롤 부착을 위한 프레스(press) 또는 닦(nip)에서 압력 또는 압력과 온도의 조합으로 부착될 수 있다. 어떤 실시양태에서는, 제1 가스 확산층이 촉매 코팅된 막에 고정되기 전에, 제2 가스 확산층이 촉매 코팅된 막에 고정된다.

- [0050] 사용시, 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체는 전형적으로 분배판이라고 알려지고, 쌍극판(BPP's) 또는 단극판이라고도 알려진, 두 개의 단단한 판 사이에 끼워진다. 가스 확산층과 마찬가지로, 분배판은 전기적 도체이어야 한다. 분배판은 전형적으로 탄소 복합물, 금속, 또는 도금된 금속 재료로 제조된다. 분배판은 반응물 또는 생성물 유체를, 막 전극 접합체 전극 표면으로 그리고 그로부터, 전형적으로 막 전극 접합체와 대면하는 표면(표면들)에 새겨지거나, 기계가공되거나, 성형되거나, 또는 암인된 적어도 하나의 유체 전달 채널을 통해 분배한다. 이들 채널은 때때로 유통장(flow field)이라 불린다. 분배판은 유체를, 스택(stack)으로 쌓여 있는 두 개의 막 전극 접합체로 그리고 그로부터, 한 면은 연료를 제1 막 전극 접합체의 애노드로 안내하면서, 다른 면은 산화제를 그 다음의 막 전극 접합체의 캐쏘드로 안내하는(그리고, 생성된 물을 제거하는) 방식으로, 분배할 수 있으며, 그러므로 "쌍극판(bipolar plate)"이라는 용어를 쓴다. 대안적으로, 예를 들어, 분배판은 한 쪽에만 채널을 가져서, 단지 한 쪽에서만 유체를 막 전극 접합체로 또는 그로부터 분배할 수 있으며, 그것은 "단극판(monopolar plate)"이라고 지칭될 수 있다. 당해 기술분야에서 사용되는 바와 같이, 쌍극판이란 용어는 전형적으로 단극판을 또한 포함한다. 전형적인 연료 전지 스택은 쌍극판과 교대로 쌓여진 다수의 막 전극 접합체를 포함한다.
- [0051] 이 명세서에 기술된 막 전극 접합체는, 예를 들어, 연료 전지에서 유용하다.
- [0052] 예시적 실시양태
- [0053] 예시적 실시양태 1A. 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 포함하는 막 전극 접합체로서, 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 제1 미세 기공 층의 주면은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 내부 접착제를 갖는, 막 전극 접합체.
- [0054] 예시적 실시양태 2A. 예시적 실시양태 1A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 막 전극 접합체.
- [0055] 예시적 실시양태 3A. 예시적 실시양태 1A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 막 전극 접합체.
- [0056] 예시적 실시양태 4A. 예시적 실시양태 1A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 막 전극 접합체.
- [0057] 예시적 실시양태 5A. 예시적 실시양태 1A 내지 4A 중 어느 하나에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역의 적어도 일부는 일종의 패턴의 형태인, 막 전극 접합체.
- [0058] 예시적 실시양태 6A. 예시적 실시양태 1A 내지 5A 중 어느 하나에 있어서, 제1 불연속 영역 중 적어도 어느 것은 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm의 범위)의 폭을 갖는, 막 전극 접합체.
- [0059] 예시적 실시양태 7A. 예시적 실시양태 1A 내지 6A 중 어느 하나에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 불연속 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%의 범위, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%의 범위)인, 막 전극 접합체.
- [0060] 예시적 실시양태 8A. 예시적 실시양태 1A 내지 7A 중 어느 하나에 있어서, 주면에 제2 미세 기공 층을 갖는 제2 가스 확산층을 더 포함하고, 제2 미세 기공 층은 주면을 가지며, 제2 미세 기공 층의 주면은 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖는, 막 전극 접합체.
- [0061] 예시적 실시양태 9A. 예시적 실시양태 8A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 막 전극 접합체.
- [0062] 예시적 실시양태 10A. 예시적 실시양태 8A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 막 전극 접합체.
- [0063] 예시적 실시양태 11A. 예시적 실시양태 8A에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 막 전극 접합체.
- [0064] 예시적 실시양태 12A. 예시적 실시양태 8A 내지 11A 중 어느 하나에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역의 적어도 일부는 일종의 패턴의 형태인, 막 전극 접합체.
- [0065] 예시적 실시양태 13A. 예시적 실시양태 7A 내지 11A 중 어느 하나에 있어서, 제2 불연속 영역 중 적어도 어느

것은 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm의 범위)의 폭을 갖는, 막 전극 접합체.

- [0066] 예시적 실시양태 14A. 예시적 실시양태 7A 내지 13A 중 어느 하나에 있어서, 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 불연속 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%의 범위, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%의 범위)인, 막 전극 접합체.
- [0067] 예시적 실시양태 1B. 막 전극 접합체를 제조하는 방법으로서,
- [0068] 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하는 단계로서, 제1 미세 기공 층은 주면 영역을 갖는, 단계;
- [0069] 제1 가스 확산층의 주면에 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 적어도 제1 영역을 제공하기 위해, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 층의 일부를 제거하는 단계;
- [0070] 일반적으로 대향하는 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;
- [0071] 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 제1 가스 확산층과 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및
- [0072] 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 막 전극 접합체를 제공하는 단계
- [0073] 를 포함하는, 방법.
- [0074] 예시적 실시양태 2B. 예시적 실시양태 1B에 있어서, 제1 가스 확산층이 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 고정되기 전에, 제2 가스 확산층이 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정되는, 방법.
- [0075] 예시적 실시양태 3B. 예시적 실시양태 1B 또는 2B에 있어서, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계는 레이저 융삭 또는 기계적 제거 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.
- [0076] 예시적 실시양태 4B. 예시적 실시양태 1B 또는 2B에 있어서, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계는 레이저 융삭 또는 접착제 전달 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.
- [0077] 예시적 실시양태 5B. 예시적 실시양태 1B 내지 4B 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 방법.
- [0078] 예시적 실시양태 6B. 예시적 실시양태 1B 내지 5B 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 제1 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 방법.
- [0079] 예시적 실시양태 7B. 예시적 실시양태 1B 내지 6B 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면에 적어도 하나의 추가 영역(예를 들어, 제2 영역; 제2 영역 및 제3 영역; 제2 영역, 제3 영역, 및 제4 영역 등)을 제공하기 위해, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계를 더 포함하는, 방법.
- [0080] 예시적 실시양태 8B. 예시적 실시양태 7B에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 방법.
- [0081] 예시적 실시양태 9B. 예시적 실시양태 1B 내지 8B 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 적어도 하나의 영역의 적어도 일부는 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm의 범위)의 폭을 갖는, 방법.
- [0082] 예시적 실시양태 10B. 예시적 실시양태 1B 내지 9B 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%의 범위, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%의 범위)인, 방법.
- [0083] 예시적 실시양태 11B. 예시적 실시양태 1B 내지 10B 중 어느 하나에 있어서, 제2 가스 확산층은 주면에 제2 미세 기공 층을 갖고, 제2 미세 기공 층은 주면 영역을 가지며,
- [0084] 적어도,

- [0085] 제2 가스 확산층의 주면에 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 적어도 제1 영역을 제공하기 위해, 제2 가스 확산층으로부터 제2 미세 기공 층의 일부를 제거하는 단계; 및
- [0086] 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 제2 가스 확산층과 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제2 접착제가 배치되는, 단계
- [0087] 예 의해, 제2 가스 확산층이 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정되는,
- [0088] 방법.
- [0089] 예시적 실시양태 12B. 예시적 실시양태 10B에 있어서, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계는 레이저 용삭 또는 기계적 제거 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.
- [0090] 예시적 실시양태 13B. 예시적 실시양태 11B에 있어서, 제2 가스 확산층으로부터 제2 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계는 레이저 용삭 또는 접착제 전달 중 적어도 하나에 의해 수행되는, 방법.
- [0091] 예시적 실시양태 14B. 예시적 실시양태 11B 내지 13B 중 어느 하나에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 방법.
- [0092] 예시적 실시양태 15B. 예시적 실시양태 11B 내지 13B 중 어느 하나에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 가스 확산층의 주면의 제2 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 방법.
- [0093] 예시적 실시양태 16B. 예시적 실시양태 11B 내지 15B 중 어느 하나에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 가스 확산층의 주면에 적어도 하나의 추가 영역(예를 들어, 제2 영역; 제2 영역 및 제3 영역; 제2 영역, 제3 영역, 및 제4 영역 등)을 제공하기 위해, 제2 가스 확산층으로부터 제2 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계를 더 포함하는, 방법.
- [0094] 예시적 실시양태 17B. 예시적 실시양태 16B에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 가스 확산층의 주면의 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 방법.
- [0095] 예시적 실시양태 18B. 예시적 실시양태 11B 내지 17B 중 어느 하나에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제2 가스 확산층의 주면의 적어도 하나의 영역의 적어도 일부는 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm의 범위)의 폭을 갖는, 방법.
- [0096] 예시적 실시양태 19B. 예시적 실시양태 11B 내지 18B 중 어느 하나에 있어서, 제2 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%)인, 방법.
- [0097] 예시적 실시양태 1C. 막 전극 접합체를 제조하는 방법으로서,
- [0098] 주면에 제1 미세 기공 층을 갖는 제1 가스 확산층을 제공하기 위해, 적어도 하나의 마스크를 이용하여 주면의 제1 가스 확산층에 미세 기공 층을 코팅하는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 층은 주면을 가지며, 제1 미세 기공 층의 주면은 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 내부 불연속 영역을 갖고, 적어도 하나의 불연속 영역의 적어도 일부는 제1 가스 확산층의 활성 영역에 있는, 단계;
- [0099] 일반적으로 대향하는 제1 및 제2 주면을 갖는 촉매 코팅된 막을 제공하는 단계로서, 이때 제1 주면은 애노드 촉매를 포함하고, 제2 주면은 캐쏘드 촉매를 포함하는, 단계;
- [0100] 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 제1 가스 확산층을 고정시키는 단계로서, 이때 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 제1 영역에서의 적어도 일부에, 제1 가스 확산층과 촉매 코팅된 막을 서로 접합하는 것에 적어도 부분적으로 도움이 되는 제1 접착제가 배치되는, 단계; 및
- [0101] 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 제2 가스 확산층을 고정시켜 막 전극 접합체를 제공하는 단계
- [0102] 를 포함하는, 방법.
- [0103] 예시적 실시양태 2C. 예시적 실시양태 1C에 있어서, 제1 가스 확산층이 촉매 코팅된 막에 고정되기 전에, 제2 가스 확산층이 촉매 코팅된 막에 고정되는, 방법.
- [0104] 예시적 실시양태 3C. 예시적 실시양태 1C 또는 2C에 있어서, 제1 가스 확산층은 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매

에 고정되고, 제2 가스 확산층은 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정되는, 방법.

[0105] 예시적 실시양태 4C. 예시적 실시양태 1C 또는 2C에 있어서, 제1 가스 확산층은 촉매 코팅된 막의 캐쏘드 촉매에 고정되고, 제2 가스 확산층은 촉매 코팅된 막의 애노드 촉매에 고정되는, 방법.

[0106] 예시적 실시양태 5C. 예시적 실시양태 1C 내지 4C 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 영역의 적어도 일부는 복수의 채널인, 방법.

[0107] 예시적 실시양태 6C. 예시적 실시양태 1C 내지 4C 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 제1 영역의 적어도 일부는 복수의 연결된 채널인, 방법.

[0108] 예시적 실시양태 7C. 예시적 실시양태 1C 내지 6C 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면에 적어도 하나의 추가 영역(예를 들어, 제2 영역; 제2 영역 및 제3 영역; 제2 영역, 제3 영역, 및 제4 영역 등)을 제공하기 위해, 제1 가스 확산층으로부터 제1 미세 기공 재료의 일부를 제거하는 단계를 더 포함하는, 방법.

[0109] 예시적 실시양태 8C. 예시적 실시양태 7C에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 영역의 적어도 일부는 복수의 연결되지 않은 채널인, 방법.

[0110] 예시적 실시양태 9C. 예시적 실시양태 1C 내지 8C 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 제1 가스 확산층의 주면의 적어도 하나의 영역의 적어도 일부는 1mm 내지 10mm의 범위(어떤 실시양태에서는, 2mm 내지 6mm의 범위, 또는 더 나아가서는 3mm 내지 5mm의 범위)의 폭을 갖는, 방법.

[0111] 예시적 실시양태 10C. 예시적 실시양태 1C 내지 9C 중 어느 하나에 있어서, 제1 미세 기공 재료가 실질적으로 없는 영역은 전체적으로 미세 기공 층의 주면의 2% 내지 40%의 범위(어떤 실시양태에서는, 4% 내지 20%, 또는 더 나아가서는 6% 내지 15%)인, 방법.

[0112] 이 발명의 이점 및 실시양태는 다음의 실시예에 의해 더 예시되지만, 이러한 실시예들에서 언급되는 그것의 특정한 재료 및 양 뿐만 아니라, 다른 조건 및 세부사항은 이 발명을 부당하게 제한하는 것으로 해석되어서는 안 된다. 모든 부 및 백분율은, 달리 표시되지 않는 한, 중량 기준이다.

실시예 1

[0114] 가스 확산층의 미세 기공 층을 제거하고 확산층 부착을 위한 접착제를 부가하기 위해 다음의 공정이 이용되었다. 도 3a를 보면, 미세 기공 층(399)이 가스 확산층 를 제품(399)의 가장자리 근처에서 제거된다. 기존의 테이프 디스펜서(362A, 362B)를 이용한 접착제 전달 테이프(미국, 미네소타, 세인트폴 소재의 쓰리엠 컴퍼니(3M Company)로부터 상품명 "Scotch ATG 700 Adhesive Transfer Tape"로 구입 가능한)를 이용하여, 가스 확산층(313)으로부터 미세 기공 층(399)의 일부의 제거가 용이하게 이루어져 채널(303A, 303B)을 제공하였다. 제거된 미세 기공 층 재료는 접착제 전달 테이프 내의 폐기물 라이너 컬렉션(361A, 361B) 상에 되감겨졌다.

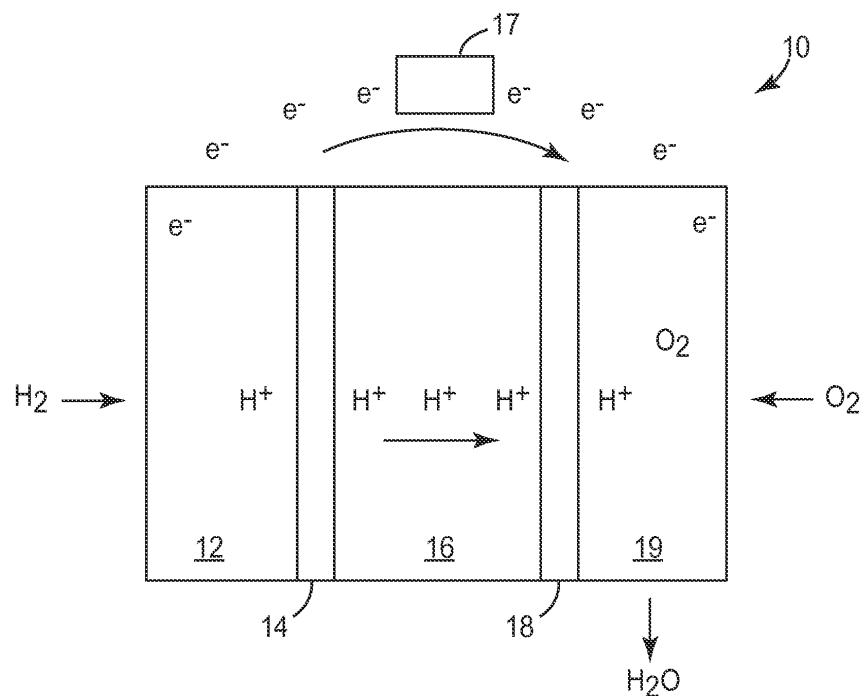
[0115] 도 3b를 보면, 릴리스 라이너(release liner) 상에 25 마이크로미터 두께로 코팅된 에틸렌 에틸 아크릴레이트 핫멜트 필름(363A, 363B)(미국, 미시건, 미드랜드 소재의 다우 케미컬 컴퍼니(Dow Chemical Co.)로부터 상품명 "DOW EA102"로 구입된 수지로 이루어진)이 채널(303A, 303B)을 채우기 위한 입력 핫멜트 접착제 테이프로서 사용되었다. 뜨거운 낍(nip)(371)을 이용하여 130°C에서 핫멜트 접착제(도시 안 됨; 롤러(370)들의 사이)가 적층되었다. 릴리스 라이너(365A, 365B)가 떼내어졌다.

[0116] 접착제(303A, 303B)의 가장자리 선이 촉매 코팅된 막(16)의 가장자리에 맞춰지도록, 수득된 가스 확산층(접착제(303A, 303B)와 함께)(314)이 다이 컷(die cut) 되었다(도 2 참조). 그 후, 가스 확산층(14 및 18)(도 2 및 도 2a 참조)(이것을 위해 이용되는 가스 확산층(314))이 CCM(16)에 정렬되고(도 2 참조) 기존의 프레스에서 촉매 코팅된 막(16)에 열간 접합되어(도 2 참조) 촉매 코팅된 막(16)을 형성하였다(도 2 참조).

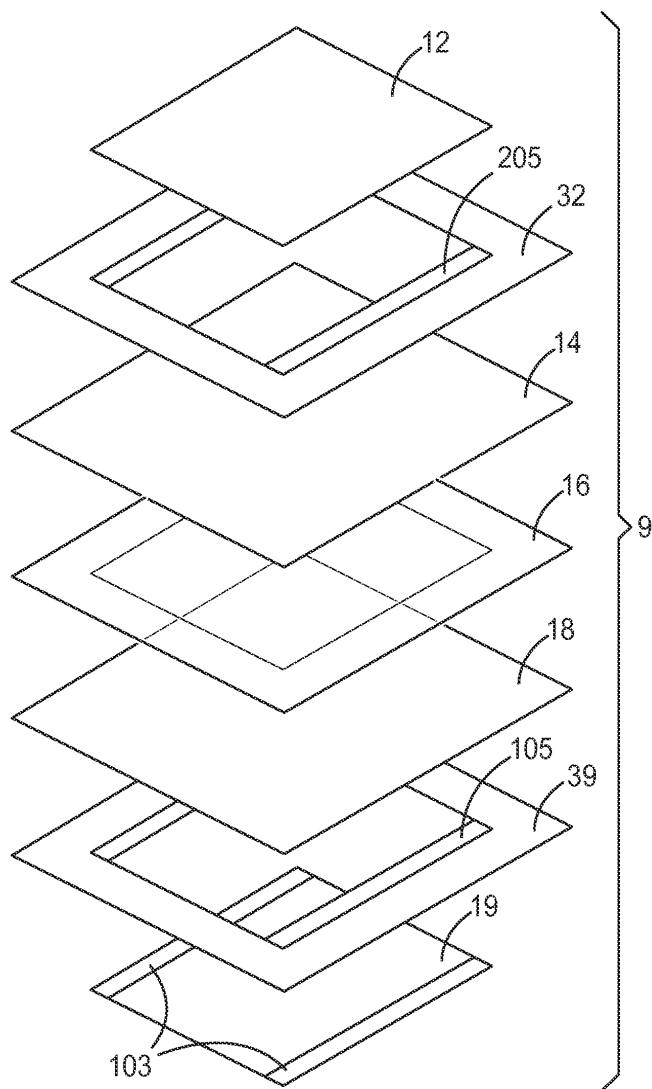
[0117] 이 발명의 범주 및 사상으로부터 벗어남이 없이, 이 개시내용의 예견 가능한 수정 및 변경이 당해 기술분야에서 숙련된 자에게 자명할 것이다. 본 발명은 예시의 목적으로 본 출원에 기재된 실시예로 제한되어서는 안된다.

도면

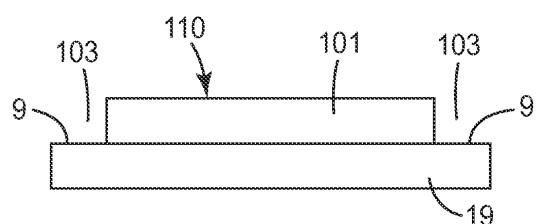
도면1



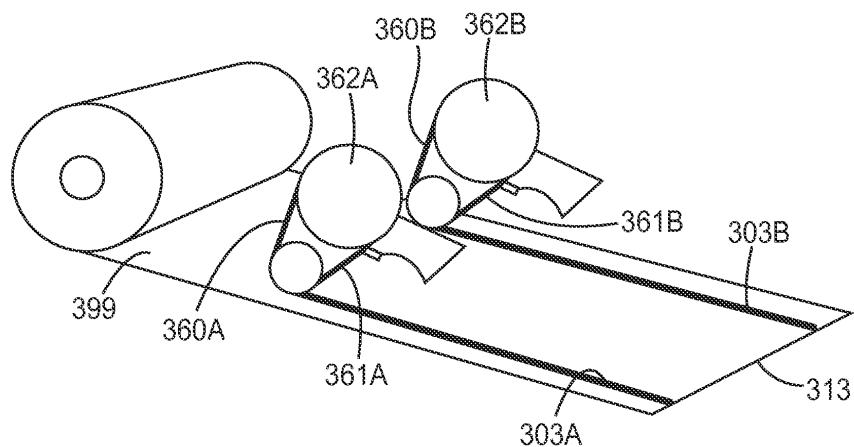
도면2



도면2a



도면3a



도면3b

