

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2019-521483

(P2019-521483A)

(43) 公表日 令和1年7月25日(2019.7.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H O 1 M 8/0286 (2016.01)	H O 1 M 8/0286	3 J 0 4 0
H O 1 M 8/0284 (2016.01)	H O 1 M 8/0284	5 H 1 2 6
H O 1 M 8/0273 (2016.01)	H O 1 M 8/0273	
F 1 6 J 15/00 (2006.01)	F 1 6 J 15/00	Z
F 1 6 J 15/10 (2006.01)	F 1 6 J 15/10	Z
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 42 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2018-565658 (P2018-565658)
 (86) (22) 出願日 平成29年6月15日 (2017.6.15)
 (85) 翻訳文提出日 平成31年2月13日 (2019.2.13)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2017/037604
 (87) 国際公開番号 W02017/218731
 (87) 国際公開日 平成29年12月21日 (2017.12.21)
 (31) 優先権主張番号 62/350,596
 (32) 優先日 平成28年6月15日 (2016.6.15)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 505005049
 スリーエム イノベイティブ プロパティ
 ズ カンパニー
 アメリカ合衆国, ミネソタ州 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
 (74) 代理人 100110803
 弁理士 赤澤 太朗
 (74) 代理人 100135909
 弁理士 野村 和歌子
 (74) 代理人 100133042
 弁理士 佃 誠玄

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 膜電極接合体構成要素及びアセンブリ製造方法

(57) 【要約】

この方法では、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリの構成要素を準備し、内側部分を囲むように粘着テープの別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着する。第1のストリップの短い辺は、第2のストリップに隣接して配置されている。粘着テープは、バックング上に配置された接着剤を含み、接着剤は、非晶質フルオロポリマーを含む。この方法は、接着剤が第1のストリップと第2のストリップとの間の任意の間隙を流れてシールして架橋するように、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを別個のストリップに適用することを更に含む。この方法は、例えば、アセンブリが電気化学セルアセンブリであり、かつ構成要素が電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つを含む場合、有用であり得る。

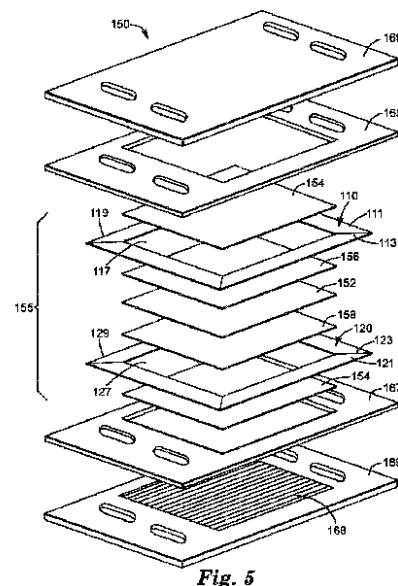


Fig. 5

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

内側部分及び周辺部分を有するアセンブリの構成要素を準備し、

前記内側部分を囲むように粘着テープの別個のストリップを前記構成要素の前記周辺部分に接着し、ここで、第 1 のストリップの短い辺は、第 2 のストリップに隣接して配置されており、前記粘着テープは、バックング上に配置された接着剤を含み、前記接着剤は、非晶質フルオロポリマーを含み、

前記接着剤が前記第 1 のストリップと前記第 2 のストリップとの間の任意の間隙をシールして架橋するように、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを、前記粘着テープの前記別個のストリップに適用すること、

を含むアセンブリの製造方法。

10

【請求項 2】

前記粘着テープは、前記バックングの一つの表面上に配置された前記接着剤を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記粘着テープは、前記バックングの対向する二つの表面上に配置された前記接着剤を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 4】

前記内側部分を囲むように前記構成要素の前記周辺部分に接着された前記粘着テープの前記別個のストリップが少なくとも三つ存在し、前記少なくとも三つの別個のストリップのそれぞれ一つは、前記少なくとも三つの別個のストリップの他の二つに隣接し、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを前記粘着テープの前記別個のストリップに適用する工程は、前記粘着テープの前記別個のストリップの間の全ての間隙をシールする、請求項 1 ～ 3 のいずれか一項に記載の方法。

20

【請求項 5】

前記非晶質フルオロポリマーは、プロモ又はヨード硬化部位を含み、前記接着剤は、ペルオキシドを更に含む、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 6】

前記アセンブリは、膜電極接合体であり、前記構成要素は、電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つを含む、請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載の方法。

30

【請求項 7】

請求項 6 に記載の方法によって製造された電気化学セル。

【請求項 8】

膜電極接合体の構成要素であって、

内側部分及び周辺部分を有する電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つと、

前記内側部分を囲むように前記構成要素の前記周辺部分に接着された第 1 の表面を有するテープバックングの別個のストリップと、

を備え、

前記テープバックングの第 1 のストリップの短い辺が、前記テープバックングの第 2 のストリップに隣接して配置されており、

40

前記テープバックングの前記別個のストリップの前記第 1 の表面上に配置された接着剤が、前記テープバックングの前記第 1 のストリップと前記第 2 のストリップとの間の間隙をシールし、前記別個のストリップを前記構成要素の前記周辺部分に接着し、前記接着剤は、架橋非晶質フルオロポリマーを含む、膜電極接合体の構成要素。

【請求項 9】

前記内側部分を囲むように前記構成要素の前記周辺部分に接着された前記テープバックングの前記別個のストリップが少なくとも三つ存在し、前記少なくとも三つの別個のストリップのそれぞれ一つは、前記少なくとも三つの別個のストリップの他の二つに隣接しており、前記テープバックングの前記別個のストリップの前記第 1 の表面上に配置された前記接着剤は、前記テープバックングの前記別個のストリップの間の全ての間隙をシールす

50

る、請求項 8 に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 10】

前記接着剤は、可塑剤を更に含む、請求項 8 又は 9 に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 11】

前記可塑剤は、イオン性液体を含む、請求項 10 に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 12】

前記構成要素は、電解質膜であり、前記テープバックキングの前記別個のストリップは、前記電解質膜の第 1 の周囲面上に第 1 のサブガセットを集合的に形成する、請求項 8 ~ 11 のいずれか一項に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 13】

前記構成要素は、触媒コーティングされた電解質膜である、請求項 8 ~ 12 のいずれか一項に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 14】

前記構成要素の前記内側部分は、少なくとも 500 cm^2 の表面積を有する、請求項 8 ~ 13 のいずれか一項に記載の膜電極接合体構成要素。

【請求項 15】

請求項 8 ~ 14 のいずれか一項に記載の膜電極接合体構成要素を備える電気化学セル。

【請求項 16】

膜電極接合体の構成要素であって、

内側部分及び周辺部分を有する電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つと、

前記内側部分を囲むように前記構成要素の前記周辺部分上に配置された別個の接着剤ストリップと、を備え、第 1 の接着剤ストリップの短い辺が、第 2 の接着剤ストリップに隣接して配置されており、

前記別個の接着剤ストリップのそれぞれは、非晶質フルオロポリマーを含む接着剤を含む、膜電極接合体の構成要素。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

(関連出願の相互参照)

本出願は、2016 年 6 月 15 日に提出された米国特許仮出願第 62 / 350,596 号に基づく優先権を主張するものであり、その開示全体が参照により本明細書に組み込まれる。

【0002】

ガスケットは、様々な物品内の異なる二つの構成要素の間のシールを提供するために有用である。例えば、従来のプロトン交換膜 (PEM) 燃料電池は、二つのフローフィールドプレート、アノードフローフィールドプレート及びカソードフローフィールドプレートを必要とする。実際のプロトン交換膜を含む膜電極接合体 (MEA) は、二つのフローフィールドプレートの間に設けられる。加えて、ガス拡散媒体又は層 (gas diffusion media/layer) (GDM/GDL) は、それぞれのフローフィールドプレートとプロトン交換膜との間に挟まれる。ガス拡散媒体は、適切な気体、燃料又は酸化剤のいずれかのプロトン交換膜の表面への拡散を可能にすると同時に、関連付けられたフローフィールドプレートと PEM との間の電気の伝導を提供する。GDL はまた、流体輸送層 (FTL) 又は拡散体/集電体 (DCC) と呼ばれることもある。このタイプの基本セル構造自体は、それぞれのシールをフローフィールドプレートのうちのひとつと PEM との間に設けた、二つのシールを必要とする。燃料電池スタックアセンブリ内のガスケットは、使用中の MEA からの加圧ガス漏れを防止するため、及び製造中の MEA の過圧縮のリスクを低減するためにも有用であり得る。

【0003】

フルオロエラストマーは、燃料電池内のフローフィールドプレートの間のガスケットとして有用であることが報告されている。例えば、米国特許第 7,569,299 号 (Th

10

20

30

40

50

omps on)、同第7,309,068号(Segawa)、同第6,720,103号(Nagai)、米国特許出願公開第2014/0077462号、及び2013年3月13日に発行された日本特許第5162990号を参照されたい。フルオロエラストマーガスケットは、典型的には、未硬化非晶質フルオロポリマーを成型(例えば、射出成型)することにより調製されている。

【発明の概要】

【0004】

アセンブリ(例えば、ハードディスクドライブアセンブリ、半導体デバイス、並びにバッテリー及び燃料電池アセンブリを含む電極アセンブリ)に使用するためのガスケットの製造は、一般的に、二つの方法のうちの一つで行なわれる。第1の技術では、個々のガスケットは、好適な金型内でそれを成型することにより形成することができる。この方法では、設計者は、好都合には、それぞれのガスケットの、均一な厚さを有する必要がある断面を選択する自由を有する。しかし、ガスケットを成型することは、比較的複雑かつ高価であることがあり、それぞれの燃料電池構成に対して、フローフィールドプレート内の関連付けられた溝の形状に正確に対応する金型の設計及び製造が必要とされることになる。

【0005】

第2の技術では、それぞれのガスケットは、材料の中実シートから切断される。これは、成型より安価かつ複雑でない技術であり、単に、平面図内でガスケットの形状を定義して、その構成の切断工具を製造する必要があるだけである。次に、ガスケットは、適切な材料及び厚さのシートから切断することができる。一般的に、均一な厚さを有するガスケットを形成するために、この方法を使用することが実用的である。不都合なことに、打抜きガスケットは、材料の多量の浪費となる。例えば、図1に示すガスケットでは、少なくともガスケットによって囲まれた材料は、無駄になる。一部の 경우에는、材料のシートの約80%~90%は、打抜き後に廃棄される。

【0006】

ここで、我々は、打抜きガスケットと同じ形状を有するガスケットを、図2及び図3に示すような材料(例えば、粘着テープ)の別個の部分を使用して製造することができ、これにより著しい無駄及びコストの低減をもたらすことになることを開示する。しかし、粘着テープの別個のストリップから形成されたガスケットに関する潜在的問題は、テープの別個のストリップの間の間隙からガス漏れが生じることがあることである。ここで我々は、粘着テープが非晶質フルオロポリマーを含む場合、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープに適用することにより、接着剤が粘着テープの別個のストリップの間の間隙に流入してシールすることを可能にすることができることを見出した。したがって、我々は、ガス漏れの問題をもたらすことなく、テープの別個のストリップから有用なガスケットを製造することができることを見出した。

【0007】

一態様では、本開示は、アセンブリの製造方法を提供する。この方法では、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリの構成要素を準備し、内側部分を囲むように粘着テープの別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着する。第1のストリップの短い辺は、第2のストリップに隣接して配置されている。粘着テープは、バックング上に配置された接着剤を含み、接着剤は、非晶質フルオロポリマーを含む。この方法は、接着剤が第1のストリップと第2のストリップとの間の全ての間隙をシールして架橋するように、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを、別個のストリップに適用することを更に含む。この方法は、例えば、アセンブリが燃料電池アセンブリであり、かつ構成要素が電解質膜又はガス拡散層のうちの少なくとも一つを含む場合、有用であり得る。この方法はまた、例えば、ハードディスクドライブアセンブリ、半導体デバイス、及び電解槽及びバッテリーアセンブリを含む他の電極アセンブリに対して有用であり得る。

【0008】

別の態様では、本開示は、テープバックングの別個のストリップの第1の表面を内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着した、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリ

10

20

30

40

50

リ（例えば、膜電極接合体）の構成要素を提供する。構成要素は、電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つを含むことができる。テープバックングの第１のストリップの短い辺は、テープバックングの第２のストリップに隣接して配置される。テープバックングの別個のストリップの第１の表面上に配置された接着剤は、テープバックングの第１のストリップと第２のストリップとの間の間隙をシールし、別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着する。接着剤は、架橋非晶質フルオロポリマーを含む。構成要素は、例えば、燃料電池アセンブリ又はサブアセンブリにおいて有用であり得る。構成要素はまた、例えば、ハードディスクドライブアセンブリ、半導体デバイス、並びに電解槽及びバッテリーアセンブリを含む他の電極アセンブリに対して有用であり得る。

【０００９】

10

別の態様では、本開示は、別個の接着剤ストリップを内側部分を囲むように構成要素の周辺部分上に配置した、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリ（例えば、膜電極接合体）の構成要素を提供する。構成要素は、電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つを含むことができる。第１の接着剤ストリップの短い辺は、第２の接着剤ストリップに隣接して配置される。別個の接着剤ストリップのそれぞれは、非晶質フルオロポリマーを含む接着剤を含む。概して、この態様では、本開示は、別個の接着剤ストリップを、接着剤が架橋される前に、その上に配置した膜電極接合体の構成要素を提供する。構成要素は、燃料電池アセンブリ又はサブアセンブリを製造するために有用であり得る。構成要素はまた、例えば、ハードディスクドライブアセンブリ、半導体デバイス、並びに電解槽及びバッテリーアセンブリを含む他の電極アセンブリに対して有用であり得る。

20

【００１０】

別の態様では、本開示は、上述した方法によって製造された、及び／又は上述した構成要素を含む電気化学セルを提供する。

【００１１】

本願において、

「a」、「an」及び「the」などの用語は、単数の実体のみを指すことを意図するものではなく、具体例を例示するために用いることができる一般的な種類を含む。用語「a」、「an」及び「the」は、用語「少なくとも一つの」と互換的に使用される。

【００１２】

リストに続く、「のうちの少なくとも一つを含む」という語句は、リスト中の項目のうちのいずれか一つ、及びリスト中の二つ以上の項目の任意の組み合わせを含むことを指す。リストに続く、「のうちの少なくとも一つ」という語句は、リスト中の項目のうちのいずれか一つ、又はリスト中の二つ以上の項目の任意の組み合わせを指す。

30

【００１３】

用語「硬化」及び「硬化性」とは、通常架橋分子又は基を介して、ポリマー鎖が共有化学結合で互いに結合して網状ポリマーを形成する。したがって、本開示では、用語「硬化」及び「架橋」は、互換的に用いることができる。硬化又は架橋ポリマーは、一般に、不溶性であることを特徴とするが、適当な溶媒の存在下では膨潤性であることもある。

【００１４】

全ての数値範囲は、別途明言されない限り、これらの範囲の端点、及び端点と端点との間の非整数値を含む（例えば、１～５は、１、１．５、２、２．７５、３、３．８０、４、５などを含む）。

40

【図面の簡単な説明】

【００１５】

【図１】例えば、膜電極接合体において有用な打抜きガasketの平面図である。

【図２】本開示によるアセンブリ及び方法において有用な接着剤ストリップの構成の一実施形態の平面図である。

【図３】本開示によるアセンブリ及び方法において有用な接着剤ストリップの構成の別の実施形態の平面図である。

【図４Ａ】接着剤が硬化される前の接着剤ストリップの一実施形態を示す、図２の線４Ａ

50

- 4 A で取られた断面である。

【図 4 B】接着剤が硬化された後の図 4 A の接着剤ストリップを示す、図 2 の線 4 A - 4 A で取られた断面である。

【図 5】本開示のいくつかの実施形態による接着剤ストリップを含む燃料電池の分解組立斜視図である。

【0016】

本発明は様々な修正及び代替形態が可能であるが、その詳細を、例として図面で示すとともに詳細に説明する。しかし、本開示を説明する特定の実施形態に限定するものではないことを理解されたい。むしろ逆に、添付の特許請求の範囲によって定義される範囲内に含まれるあらゆる変形例、均等物、及び代替例を網羅することが意図される。

10

【発明を実施するための形態】

【0017】

図 2 及び図 3 は、本開示による構成要素及び方法において有用な接着剤ストリップの構成の実施形態を示す。図 2 及び図 3 では、ガスケットの形状を定義するために、四つのストリップ 11、21 が使用されている。ストリップ 11、21 は、開口部 17、27 を集散的に囲む。上述したように、ガスケットが図 1 に示すように材料のシートから打抜かれる場合、開口部を形成するために切断された材料は、典型的には、廃棄物として廃棄される。

【0018】

図 2 に示す実施形態では、ストリップ 11 は、矩形の形状であり、それぞれが、同じサイズ又はおよそ同じサイズを有する。それぞれのストリップ 11 は、対向する二つの短い辺 13 及び対向する二つの長い境界を有する。ストリップが矩形であるため、長い境界は、長い辺 19 と呼ばれる。ストリップ 11 の短い辺 13 はそれぞれ、ストリップの長い辺 19 に対して 90 度の角度で切断される。また、隣接する二つのストリップ 11 の短い辺 13 は、互いに対して 90 度の角度である。

20

【0019】

図 3 に示す実施形態では、ストリップ 21 a 及び 21 b は、矩形の形状であるが、ストリップ 21 a は、ストリップ 21 b より長い。それぞれのストリップ 21 a、21 b は、対向する二つの短い辺 23 及び対向する二つの長い辺 29 を有する。ストリップ 21 a、21 b の短い辺 23 はそれぞれ、ストリップの長い辺に対して 90 度の角度で切断される。

30

【0020】

本明細書の図及び説明から、別個のストリップは、それぞれが内側部分を囲む同心の二つのガスケットではないことを理解されたい。別個のストリップ 11、21 a、21 b は、開口部 17、27 を個別に囲まないが、代わりに、開口部 17、27 を集散的に囲んで、それぞれが、形状の周囲の一部分のみを形成する、又はアセンブリの構成要素の周囲の一部分のみをカバーする。別個のストリップは、単一のガスケットを集散的に形成すると理解することができる。別個のストリップのそれぞれ自体は、開口部を有さず、アセンブリの構成要素の内側部分を囲むことができない。別個のストリップのそれぞれのストリップ 11、21 a、21 b は、典型的には、組成が同一である（例えば、以下の実施形態の一部で説明するように、同じバックング及びバックング上に配置された同じ接着剤を有することができる）。

40

【0021】

ガスケットを形成するために、ストリップ 11 及び 21 a、21 b を可能な限り互いの近くに配置することが望ましい。ガスケットの厚さの変化を引き起こすような端部の重ね合わせを行わずに、それらをガス漏れを防止するのに十分に接近して配置することが不可能なことがある。ストリップが接触している場合でも、ストリップ間の切れ目が、典型的には、ガス漏れを可能にするのに十分大きくなるであろう。したがって、典型的には、隣接する二つの接着剤ストリップの間に間隙が存在し、これら隣接する二つの接着剤ストリップは、接触している場合も又は接触していない場合もある。間隙は、隙間と呼ぶの

50

に十分に小さくすることができる。図 2 の一実施形態の線 4 A - 4 A を通って切り取られた図 4 A の断面図は、この間隙 1 6 を示す。間隙 1 6 は、それが容易に見えるように、図 4 A で縮尺から外れて示されている。

【0022】

本開示による構成要素及び方法において有用な接着剤ストリップの一実施形態を、図 4 A に示す。接着剤ストリップは、対向する第 1 及び第 2 の主面を有するテープバックング 1 2 を含む。第 1 及び第 2 の主面は、最大表面積を有するテープバックングの表面であると理解すべきである。接着剤 1 4 は、テープバックングの第 1 の主面上に配置される。再び図 2 を参照すると、間隙 1 6 は、一つの接着剤ストリップ 1 1 の短い辺 1 3 と隣接する接着剤ストリップの長い辺 1 9 との間に示されている。

10

【0023】

本開示による構成要素及び方法における別個のストリップの間の間隙のサイズは、接着剤ストリップのサイズ及びガasketを形成するための接着剤ストリップを配置するために使用される装置に依存し得る。いくつかの実施形態では、テープバックングの接着剤ストリップ（単数又は複数）の間の間隙は、最大 1 ミリメートル、最大 500 マイクロメートル、最大 250 マイクロメートル、最大 100 マイクロメートル、最大 50 マイクロメートル、最大 25 マイクロメートル、最大 10 マイクロメートル、又は最大 1 マイクロメートルとすることができる。いくつかの実施形態では、接着剤ストリップは、接触するように配置されるが、それらの間に依然として間隙又は隙間を有する。

【0024】

20

図 4 B は、接着剤 1 4 がテープバックング 1 2 の別個のストリップの間の空間 1 6 に流入してシールするように、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープに適用した後の図 4 A に示す断面を示す。以下に更に詳細に説明するように、接着剤が間隙に流入してシールし、架橋した後で、シールされた間隙 1 8 は、ガス漏れを防止することができる。

【0025】

図 2 及び図 3 に示す接着剤ストリップ 1 1、2 1 a、2 1 b は、正方形を形成するように構成されているが、接着剤ストリップは、任意の形状に配置することができる。例えば、接着剤ストリップは、図 5 に示すように矩形、若しくは三角形、五角形、六角形、八角形、又は他の多辺形状を形成するように配置することができる。これらの形状のそれぞれは、多角形（例えば、矩形、台形、及び平行四辺形などの四辺形）を有するストリップで作製することができる。ガasketの二つの辺を形成する別個のストリップもまた、有用であり得る。例えば、鋭角又は鈍角を定義する L 字形状のストリップ又は他のストリップは、有用であり得る。接着剤ストリップは、円又は楕円などの非直線境界を有する形状を形成するように配置することができる。これらの場合では、ストリップは、アーチ形（例えば、半円形アーチ形、部分アーチ形、尖頭アーチ形、楕円アーチ形、又は放物線アーチ形）などの非直線形状を有することができる。これらの実施形態では、ストリップの長い境界は、非直線（例えば、円弧）である。接着剤ストリップが半円形アーチ形の形状である実施形態に関して、短い端部に対して短い端部を配置したそのようなストリップのうちの二つのみが、本明細書で説明するアセンブリの構成要素の内側部分を囲むために必要であることが想像される。角度又は円弧を含むストリップは、材料のシートから打抜くことができるが、別個のストリップが閉じられた内側を有さないため、図 1 に示すものなどの打抜きガasketより少ない廃棄物を依然として形成し得る。

30

40

【0026】

いくつかの実施形態（例えば、アーチ形の形状の L 字形状のストリップ（単数又は複数）に関する）では、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着された粘着テープの別個の二つのストリップが存在し得る。いくつかの実施形態では、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着された粘着テープの別個のストリップの少なくとも三つが存在する。いくつかの実施形態では、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着された粘着テープの別個のストリップの少なくとも四つが存在する。これらの実施形態では、図 2 及び図 3 に示すように、少なくとも三つ又は四つの別個のストリップのうちのそれぞれ

50

一つは、少なくとも三つ又は四つの別個のストリップの他の二つに隣接する。

【0027】

本開示の方法及び構成要素は、例えば、構成要素の内側部分が相対的に大きい場合に有用であり得る。構成要素の内側部分のサイズが増大すると、ガasketを打抜くときに形成される廃棄物の量もまた、増大する。本開示の方法及びアセンブリ構成要素は、例えば、構成要素の内側部分が少なくとも 500 cm^2 、少なくとも 750 cm^2 、又は少なくとも 1000 cm^2 の表面積を有するとき、有用であり得る。構成要素の内側部分は、構成要素（例えば、電解質膜又は集電体）の有効部分と考えることができる。

【0028】

いくつかの実施形態では、本開示の、又は本開示の方法によって製造されるアセンブリは、燃料電池内の膜電極接合体である。典型的な燃料電池システムは、一つ以上の燃料電池が電力を発生させる電力区分を含む。燃料電池とは、水素又は他の燃料及び酸素を水又は水及び二酸化炭素に変換して、そのプロセス内で電気及び熱を作り出す、エネルギー変換装置である。各燃料電池ユニットは、プロトン交換部材（PEM）をガス拡散層と共に有していてもよく、ガス拡散層は拡散体及び集電体として機能し、プロトン交換部材のいずれかの側に存在する。ガス拡散層とPEMとの間には、アノード及びカソード触媒層がそれぞれ配置される。このユニットは、膜電極接合体（MEA）と呼ばれる。膜電極接合体のガス拡散層の外側には、セパレータプレート（本明細書において、フローフィールドプレート又はバイポーラプレートとも呼ばれる）が、それぞれ配置される。このタイプの燃料電池は、PEM燃料電池と呼ばれることが多い。

10

20

【0029】

単一のMEA中の反応は、典型的には1ボルト未満を発生させる。したがって、大部分の用途において有用な作動電圧を得るために、複数のMEAを積み重ねて直列に電気接続して、所望の電圧を達成してもよい。電流が、燃料電池スタックから集電されて、負荷の駆動に用いられる。燃料電池は、自動車からラップトップコンピュータまで、多種多様な用途に対して電力を供給するために使用することができる。

【0030】

燃料電池電力システムの効率は、MEAの表面での反応ガスの流れ、並びに燃料電池スタックの個々の燃料電池内の様々な接触及びシール境界面の完全性に依存する。そのような接触及びシール境界面は、スタックの燃料電池内の及び燃料電池間の燃料、冷却剤、及び廃液の輸送に関連するものを含む。燃料電池スタック内の燃料電池構成要素及びアセンブリの適切なシールは、燃料電池システムの効率的な動作を促進する。

30

【0031】

サブガasketは、例えば、燃料電池の活性領域をシールし、電解質膜に寸法安定性を提供するために、燃料電池の電解質膜の上に配置することができる。圧力下で、スタックにある燃料電池構成要素の縁部は、燃料電池の破損を引き起こし得る膜への局所応力集中の原因となり得る。サブガasketは、この破損メカニズムの発生を減少させるために、膜に支持を提供する。

【0032】

図5は、本開示の、又は本開示の方法によって製造されるアセンブリの一実施形態の分解組立図を示す。図5に示すように、燃料電池150の膜電極接合体（MEA）155は、五つの構成要素層を含む。電解質膜層152は、1対のGDL154の間に挟まれている。アノード触媒層156は、第1のGDL154と膜152との間に位置しており、カソード触媒層158は、膜152と第2のGDL154との間に位置している。別個の接着剤ストリップの第1の組から形成されたサブガasket110は、GDL154とアノード触媒層156との間に位置しており、別個の接着剤ストリップの第2の組から形成されたサブガasket120は、第2のGDL154とカソード触媒層158との間に位置している。

40

【0033】

図5に示す実施形態では、別個のストリップ111、121は、台形の形状である。そ

50

れぞれのストリップ 1 1 1、1 2 1 は、対向する二つの短い辺 1 1 3、1 2 3 及び対向する二つの長い辺 1 1 9、1 2 9 を有する。ストリップ 1 1 1、1 2 1 の短い辺 1 1 3、1 2 3 はそれぞれ、ストリップの長い辺 1 1 9、1 2 9 に対して 4 5 度の角度で切断されている。また、隣接する二つのストリップ 1 1 1、1 2 1 の短い辺 1 1 3、1 2 3 は、互いに対して 4 5 度の角度である。図示した実施形態では、ストリップは、台形の形状であるが、上述しかつ図 2 及び図 3 に示す接着剤ストリップの形状及び構成のいずれかが、有用であり得る。

【0034】

いくつかの実施形態では、膜層 1 5 2 は、一つの表面上のコーティングとしてアノード触媒層 1 5 6、及び他の表面上のコーティングとしてカソード触媒層 1 5 8 を含むように作製される。この構造は、多くの場合、触媒コーティング膜又は C C M と呼ばれる。G D L 1 5 4 は、触媒コーティングを含むように又は除外するように作製することができる。一つの構成では、アノード触媒コーティングは、第 1 の G D L 1 5 4 上に部分的に、かつ膜 1 5 2 の一つの表面上に部分的に配置することができる。及び / 又はカソード触媒コーティングは、第 2 の G D L 1 5 4 上に部分的に、かつ膜 1 5 2 の他の表面上に部分的に配置することができる。

10

【0035】

電解質膜は、M E A のより高価な構成要素のうちの一つであり、燃料電池アセンブリを形成するために使用される電解質膜の量を減少させ、それによって、燃料電池スタックのコストを減少させることがしばしば望まれる。M E A において使用される電解質膜の量を減少させるための技術は、「膜スリフティング」と称されることがある。膜スリフティングのための一つの技術は、電解質膜の x 及び / 又は y 寸法を減少させることである。図示した実施形態では、電解質膜 1 5 2 は、x 方向及び y 方向に「スリフトされ」、これは、電解質膜がサブガasket 1 1 0、1 2 0 の下に部分的にしか延びないことを意味する。

20

【0036】

図 5 では、サブガasket 1 1 0 及び 1 2 0 は、同じサイズである。他の実施形態では、サブガasket 1 1 0 は、サブガasket 1 2 0 と同じサイズとすることも、又は異なるサイズとすることもできる。図 5 に示すようにサブガasket 1 1 0 及び 1 2 0 が同じサイズである場合、別個のストリップ 1 1 1 のそれぞれの外側縁部は、別個のストリップ 1 2 1 のそれぞれの対応する外側縁部と整列する。しかし、サブガasket 1 1 0 及び 1 2 0 が同じサイズでない場合、別個のストリップ 1 1 1 の一つ以上の外側縁部は、別個のストリップ 1 2 1 の第 2 の組の対応する外側縁部と整列しない。

30

【0037】

別個のストリップ 1 1 1 によって画定された開口部 1 1 7 は、別個のストリップ 1 2 1 の第 2 の組によって画定された開口部 1 2 7 と同じサイズとすることも、又は異なるサイズとすることもできる。図 5 に示す実施形態では、開口部 1 1 7 及び 1 2 7 は、同じサイズであり、別個のストリップ 1 1 1 の内側縁部は、別個のストリップ 1 2 1 の第 2 の組の対応する内側縁部と整列する。開口部 1 1 7 及び 1 2 7 が異なるサイズである他の実施形態では、別個のストリップ 1 1 1 の一つ以上の内側縁部は、別個のストリップ 1 2 1 の第 2 の組の対応する内側縁部と整列しない。

40

【0038】

図 5 に示す実施形態では、M E A 1 5 5 は、第 1 の周囲ガasket 1 6 5 と第 2 の周囲ガasket 1 6 7 との間に挟まれているように図示されている。フローフィールドプレート 1 6 9 は、第 1 及び第 2 の周囲ガasket 1 6 5、1 6 7 に隣接している。フローフィールドプレート又はセパレータ 1 6 9 のそれぞれは、水素及び酸素の供給燃料が通過することができる流体流れチャネル 1 6 8 及びポートの領域を含む。

【0039】

図 5 に示す構成では、フローフィールドプレート 1 6 9 は、単一の M E A 1 5 5 がそれらの間に挟まれる単極フローフィールドプレートとして構成される。このフローフィールドプレートは、モノポーラフローフィールドプレートとも呼ばれる。単極フローフィールド

50

ドプレートは、フローフィールド側及び冷却側を含むセパレータを含むことができる。フローフィールド側は、水素及び酸素の供給燃料が通過することができるガス流れチャンネル 168 及びポートの領域を内蔵する。冷却側は、一体冷却チャンネルなどの冷却構成を内蔵する。あるいは、冷却側は、例えば、冷却剤が通過する冷却ブロック若しくはブラダ、又はヒートシンク要素などの別個の冷却要素に接触するように構成することができる。

【0040】

周囲ガスケット 165、167 は、燃料電池内のシールを提供し、これにより様々な流体（気体／液体）輸送を分離し、反応領域が互いに汚染すること及び燃料電池 150 を不適切に流出することから隔離し、フローフィールドプレート 169 の間の電氣的絶縁及び／又はハードストップ圧縮制御を更に提供することができる。用語「ハードストップ」は、一般的に、動作圧力及び動作温度下で厚さが著しく変化しない、ほぼ又は実質的に非圧縮性の材料を指す。より具体的には、用語「ハードストップ」は、一定の厚さ又はひずみで MEA の圧縮を保持する、膜電極接合体（MEA）内の実質的に非圧縮性の部材又は層を指す。

【0041】

周囲ガスケット 165、167 は、一つ以上のガスケット、サブガスケット及び／又は Oリングを用いて、MEA 155 の縁部のシール、並びに MEA 155 とフローフィールドプレート 169 との間のシール及びその周囲のシールを行うことができる。一つの構成では、周囲ガスケット 165、167 は、燃料電池 150 内の必要なシールを提供するために、用いられる様々な選択された材料の一つ、二つ、又はより多くの層から形成されたガスケットシステムを含む。そのような材料としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリテトラフルオロエチレンで含浸したガラス繊維、様々な架橋性樹脂材料、エラストマー材料、UV 硬化性ポリマー材料、表面テクスチャ材料、多層複合材料、シーラント、及びシリコン材料が挙げられる。他の構成は、現場で形成されるシールシステムを用いる。いくつかの実施形態では、本明細書で説明するような接着剤の別個のストリップは、周囲ガスケット 165、167、並びにサブガスケット 110、120 に関して有用であり得る。

【0042】

本開示による構成要素及び方法において有用な接着剤は、非晶質フルオロポリマーを含む。非晶質フルオロポリマーは、融点を呈さない。これらは、一般的に、室温より低いガラス転移温度を有し、室温において結晶性をほとんど又は全く呈さない。ポリマー加工用添加剤として有用な非晶質フルオロポリマーには、フッ素化オレフィンのホモポリマー及び／又はコポリマーが挙げられる。いくつかの実施形態では、ホモポリマー又はコポリマーは、少なくとも 1：2 のフッ素原子対炭素原子比を有することができ、いくつかの実施形態では少なくとも 1：1、及び／又は少なくとも 1：1.5 のフッ素原子対水素原子比を有することができる。

【0043】

本開示を実施するために有用な非晶質フルオロポリマーは、式 $R^a CF = CR^a_2$ で表される、少なくとも部分的フッ素化、又は過フッ素化エチレン性不飽和モノマーに由来するインターポリマー化単位を含むことができ、式中、各 R^a は、独立して、フルオロ、クロロ、プロモ、水素、フルオロアルキル基（例えば、1～8、1～4、又は 1～3 個の炭素原子を有するペルフルオロアルキル）、フルオロアルコキシ基（例えば、1～8、1～4、又は 1～3 個の炭素原子を有するペルフルオロアルコキシであって、任意選択で一つ以上の酸素原子が介在する）、1～8 個の炭素原子のアルキル若しくはアルコキシ、1～8 個の炭素原子のアリール、又は 1～10 個の炭素原子の環状飽和アルキルである。式 $R^a CF = CR^a_2$ で表される有用なフッ素化モノマーの例としては、フッ化ビニリデン（VDF）、テトラフルオロエチレン（TFE）、ヘキサフルオロプロピレン（HFP）、クロロトリフルオロエチレン、2-クロロペンタフルオロプロペン、ジクロロジフルオロエチレン、1,1-ジクロロフルオロエチレン、1-ヒドロペンタフルオロプロピレン、2-ヒドロペンタフルオロプロピレン、ペルフルオロアルキルペルフルオロビニルエーテ

【 0 0 4 4 】

【 0 0 4 5 】

また、ペルフルオロアルキルアルケンエーテル及びペルフルオロアルコキシルアルキルアルケンエーテルも、本開示による組成物、方法及び使用のための非晶質ポリマーの製造に有用であり得る。加えて、非晶質フルオロポリマーは、米国特許第5,891,965号(Wormら)及び同第6,255,535号(Schulzら)に記載されているものを含めた、フルオロ(アルケンエーテル)モノマーのインターポリマー化単位を含んでもよい。このようなモノマーとしては、例えば、 $CF_2 = CF(CF_2)_m - O - R_f$ によって表されるものが挙げられ、式中、 m は1~4の整数であり、 R_f は、酸素原子を含むことによって更なるエーテル結合を形成することができる直鎖又は分枝鎖ペルフルオロアルキレン基であり、 R_f は1~20、いくつかの実施形態では1~10個の炭素原子を骨

ルキレン基であり、 R_f は 1 ~ 20、いくつかの実施形態では 1 ~ 10 個の炭素原子を骨

【 0 0 4 6 】

【 0 0 4 7 】

【 0 0 4 8 】

フッ素化オレフィンの有用な非晶質コポリマーの例は、例えば、フッ化ビニリデン及びフッ素化されていても、又はフッ素化されていなくてもよい（例えば、式 $R^a CF = CR^a_2$ 若しくは $R^b_2 C = CR^b_2$ で表される）一つ以上の追加のオレフィンに由来するものである。いくつかの実施形態では、有用なフルオロポリマーには、フッ化ビニリデンと、各二重結合炭素原子上に少なくとも一つのフッ素原子を含有する式 $R^a CF = CR^a_2$ で表される少なくとも一つの末端不飽和フルオロモノオレフィンとのコポリマーが挙げられる。フッ化ビニリデンと共に有用であり得るコモノマーの例としては、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン、1-ヒドロペンタフルオロプロピレン、及び

2 - ヒドロペンタフルオロプロピレンが挙げられる。本開示の実施に有用な非晶質フルオロポリマーの他の例としては、フッ化ビニリデン、テトラフルオロエチレン、及びヘキサフルオロプロピレン又は1 - 又は2 - ヒドロペンタフルオロプロピレンのコポリマー、並びにテトラフルオロエチレン、プロピレン、及び任意選択のフッ化ビニリデンのコポリマーが挙げられる。いくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、ヘキサフルオロプロピレンとフッ化ビニリデンとのコポリマーである。いくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、ペルフルオロプロピレン、フッ化ビニリデン及びテトラフルオロエチレンのコポリマーである。

【0049】

VDF及びHFPのインターポリマー化単位を含む非晶質フルオロポリマーは、典型的には、30～90重量%のVDF単位及び70～10重量%のHFP単位を有する。TFE及びプロピレンのインターポリマー化単位を含む非晶質フルオロポリマーは、典型的には、約50～80重量%のTFE単位及び50～20重量%のプロピレン単位を有する。TFE、VDF、及びプロピレンのインターポリマー化単位を含む非晶質フルオロポリマーは、典型的には、約45～80重量%のTFE単位、5～40重量%のVDF単位、及び10～25重量%のプロピレン単位を有する。当業者は、特定のインターポリマー化単位を非晶質フルオロポリマーを形成するのに適切な量で選択することができる。いくつかの実施形態では、非フッ素化オレフィンモノマーに由来する重合単位は、フルオロポリマーの最大25モル%で存在し、いくつかの実施形態では、最大10モル%、又は最大3モル%で非晶質フルオロポリマー中に存在する。いくつかの実施形態では、ペルフルオロアルキルビニルエーテル又はペルフルオロアルコキシアルキルビニルエーテルモノマーのうちの少なくとも一つに由来する重合単位は、フルオロポリマーの最大50モル%で存在し、いくつかの実施形態では、最大30モル%、又は最大10モル%で非晶質フルオロポリマー中に存在する。いくつかの実施形態では、本開示を実施するために有用な非晶質フルオロポリマーは、TFE/プロピレンコポリマー、TFE/プロピレン/VDFコポリマー、VDF/HFPコポリマー、TFE/VDF/HFPコポリマー、TFE/ペルフルオロメチルビニルエーテル(PMVE)コポリマー、TFE/CF₂=CFOCF₃F₇コポリマー、TFE/CF₂=CFOCF₃/CF₂=CFOCF₃F₇コポリマー、TFE/CF₂=C(OC₂F₅)₂コポリマー、TFE/エチルビニルエーテル(EVE)コポリマー、TFE/ブチルビニルエーテル(BVE)コポリマー、TFE/EVE/BVEコポリマー、VDF/CF₂=CFOCF₃F₇コポリマー、エチレン/HFPコポリマー、TFE/HFPコポリマー、CTFE/VDFコポリマー、TFE/VDFコポリマー、TFE/VDF/PMVE/エチレンコポリマー、又はTFE/VDF/CF₂=CFO(CF₂)₃OCF₃コポリマーである。

【0050】

本開示による構成要素及び方法に関して有用な非晶質フルオロポリマーは、架橋することができる。すなわち、非晶質フルオロポリマーは、典型的には、硬化部位を有する。非晶質フルオロポリマーは、クロロ、プロモ、若しくはヨード硬化部位、又はそれらの組み合わせを含むことができる。いくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、プロモ又はヨード硬化部位を含む。これらの実施形態の一部では、非晶質フルオロポリマーは、ヨード硬化部位を含む。硬化部位は、フルオロポリマー鎖の末端で化学的に結合したヨード、プロモ、又はクロロ基とすることができる。非晶質フルオロポリマー中のヨウ素、臭素又は塩素元素の重量パーセントは、約0.2重量%～約2重量%、及びいくつかの実施形態では約0.3重量%～約1重量%の範囲であってよい。硬化部位末端基を非晶質フルオロポリマーに組み込むために、ヨウ素連鎖移動剤、臭素連鎖移動剤、塩素連鎖移動剤、又はそれらの任意の組み合わせを、重合プロセスで使用するすることができる。例えば、好適なヨウ素連鎖移動剤としては、3～12個の炭素原子及び1個又は2個のヨード基を有するペルフルオロアルキル又はクロロペルフルオロアルキル基が挙げられる。ヨード-ペルフルオロ化合物の例としては、1,3-ジヨードペルフルオロプロパン、1,4-ジヨードペルフルオロブタン、1,6-ジヨードペルフルオロヘキサン、1,8-ジヨードフ

10

20

30

40

50

【 0 0 5 1 】

【 0 0 5 2 】

【 0 0 5 3 】

【 0 0 5 4 】

一般に、重合は過硫酸アンモニウムなどのフリーラジカル反応開始剤系の存在下で実施される。重合反応は連鎖移動剤及び錯化剤などの他の構成成分を更に含んでよい。重合は、一般に、10 ~ 100 の範囲内、又は30 ~ 80 の範囲内の温度で実行される。

。重合圧力は、通常、 $0.3 \text{ MPa} \sim 30 \text{ MPa}$ の範囲内であり、いくつかの実施形態では、 $2 \text{ MPa} \sim 20 \text{ MPa}$ の範囲内である。

【0055】

乳化重合を実施するとき、ペルフル素化又は部分フル素化乳化剤が有用であり得る。一般的に、これらのフル素化乳化剤は、ポリマーに対して約 0.02 重量%～約 3 重量%の範囲で存在する。フル素化乳化剤を用いて生成されたポリマー粒子は、典型的には、動的光散乱技法 (dynamic light scattering techniques) によって測定した場合、約 10 ナノメートル (nm) ～約 300 nm の範囲の平均直径を有し、いくつかの実施形態では約 $50 \text{ nm} \sim 200 \text{ nm}$ の範囲の平均直径を有する。

【0056】

好適な乳化剤の例としては、式 $[R_f - O - L - COO^-]_i X^{i+}$ (式中、 L は、直鎖の部分若しくは完全フル素化アルキレン基又は脂肪族炭化水素基を表し、 R_f は、直鎖の部分若しくは完全フル素化脂肪族基、又は一つ以上の酸素原子が介在している直鎖の部分若しくは完全フル素化脂肪族基を表し、 X^{i+} は、価数 i を有するカチオンを表し、 i は、 1 、 2 又は 3 である。)を有するペルフル素化及び部分フル素化乳化剤が挙げられる。(例えば、米国特許出願第 $2007/0015864$ 号 (Hintzerら)を参照されたい。)また、好適な乳化剤の更なる例としては、式 $CF_3 - (OCF_2)_m - O - C F_2 - X$ [式中、 m は $1 \sim 6$ の値を有し、 X はカルボン酸基又はその塩を表す。] 及び式 $CF_3 - O - (CF_2)_3 - (OCF(CF_3) - CF_2)_z - O - L - Y$ [式中、 z は 0 、 1 、 2 又は 3 の値を有し、 L は $-CF(CF_3)-$ 、 $-CF_2-$ 及び $-CF_2CF_2-$ から選択される二価結合基を表し、 Y はカルボン酸基又はその塩を表す。]を有する全フル素化ポリエーテル乳化剤が挙げられる。(例えば、米国特許公開第 $2007/0015865$ 号 (Hintzerら)を参照されたい。)他の好適な乳化剤としては、式 $R_f - O(CF_2CF_2O)_mCF_2COOA$ (式中、 R_f は、 $C_nF_{(2n+1)}$ であり、 n が $1 \sim 4$ であり、 A は、水素原子、アルカリ金属又は NH_4 であり、 m は $1 \sim 3$ の整数である。)を有する全フル素化ポリエーテル乳化剤が挙げられる。(例えば、米国特許出願公開第 $2006/0199898$ 号 (Funaki; Hiroshi)を参照されたい。)また、好適な乳化剤としては、式 $F(CF_2)_nO(CF_2CF_2O)_mCF_2COOA$ [式中、 A は水素原子、アルカリ金属、又は NH_4 であり、 n は $3 \sim 10$ の整数であり、 m は 0 又は $1 \sim 3$ の整数である。]を有する全フル素化乳化剤が挙げられる。(例えば米国特許出願公開第 $2007/0117915$ 号 (Funaki; Hiroshi)を参照されたい。)更なる好適な乳化剤としては、米国特許第 $6,429,258$ 号 (Morgan)に記載されているようなフル素化ポリエーテル乳化剤、及びペルフルオロアルコキシのペルフルオロアルキル構成部分が $4 \sim 12$ 個の炭素原子又は $7 \sim 12$ 個の炭素原子を有する、全フル素化又は部分フル素化アルコキシ酸及びその塩が挙げられる。(例えば、米国特許第 $4,621,116$ 号 (Morgan)を参照されたい。)また、好適な乳化剤としては、式 $[R_f - (O)_t - CHF - (CF_2)_n - COO^-]_i X^{i+}$ [式中、 R_f は 1 個以上の酸素原子が任意選択で介在する部分フル素化又は完全フル素化脂肪族基を表し、 t は 0 又は 1 であり、 n は 0 又は 1 であり、 X^{i+} は価数 i を有するカチオンを表し、 i は 1 、 2 又は 3 である。]を有する部分フル素化ポリエーテル乳化剤が挙げられる。(例えば、米国特許出願公開 $2007/0142541$ 号 (Hintzerら)を参照されたい。)更なる好適な乳化剤としては、米国特許出願公開第 $2006/0223924$ 号 (Tsuda; Nobuhiko)ら、同第 $2007/0060699$ 号 (Tsuda; Nobuhiko)ら、同第 $2007/0142513$ 号 (Tsuda; Nobuhiko)ら及び同第 $2006/0281946$ 号 (Morita; Shigeru)らに記載されているような全フル素化又は部分フル素化エーテル含有乳化剤が挙げられる。 $6 \sim 20$ 個の炭素原子を有するフルオロアルキルカルボン酸、例えばペルフルオロアルキルカルボン酸及びその塩、例えばアンモニウムペルフルオロオクタノエート (APFO) 及びアンモニウムペルフルオロノナノエートなど (例えば、米国特許第 $2,559,752$ 号 (Berry))も有用であり得る。

10

20

30

40

50

【0057】

必要に応じて、米国特許第5,442,097号(Obermeierら)、同第6,613,941号(Felixら)、同第6,794,550号(Hintzerら)、同第6,706,193号(Burkardら)及び同第7,018,541号(Hintzerら)に記載の通り、フルオロポリマーラテックスから乳化剤を除去又は再利用してもよい。

【0058】

いくつかの実施形態では、重合プロセスは乳化剤無しで(例えば、フッ素化乳化剤無しで)実施してよい。乳化剤無しで製造されたポリマー粒子は通常、動的光散乱法技術によって測定したとき、約40nm~約500nmの範囲、典型的には約100nm~約400nmの範囲の平均直径を有するが、懸濁重合では通常、数ミリメートル以下の粒径を生じる。

10

【0059】

いくつかの実施形態では、水溶性反応開始剤は、重合プロセスを開始するために有用であり得る。過硫酸アンモニウムなどのペルオキシ硫酸の塩は通常、単独で又は場合により亜硫酸水素塩若しくはスルフィン酸塩(米国特許第5,285,002号及び同第5,378,782号(Grootaert)に開示されている)又はヒドロキシメタンスルフィン酸のナトリウム塩(商品名「RONGALIT」(BASF Chemical Company, New Jersey, USA))にて販売されている)などの還元剤の存在下のいずれかで適用される。これらの反応開始剤及び乳化剤の大部分はそれらが最も効率的となる最適なpH範囲を有する。この理由から、時に緩衝剤が有用である。緩衝剤としては、ホスフェート、アセテート若しくはカーボネート緩衝剤、又は任意のその他の酸若しくは塩基、例えばアンモニア若しくはアルカリ金属水酸化物が挙げられる。開始剤及び緩衝剤の濃度範囲は、水性重合媒体を基準として、0.01重量%~5重量%で変動し得る。

20

【0060】

硬化部位を有する連鎖移動剤及び/又は硬化部位モノマーは、バッチ充填又は連続供給によって反応容器内へ供給することができる。連鎖移動剤及び/又は硬化部位モノマーの供給量はモノマー供給量と比較して相対的に少ないため、連鎖移動剤及び/又は硬化部位モノマーの少量を反応容器内へ連続供給することは、調整するのが難しい。1種以上のモノマー中のヨウ素連鎖移動剤のブレンドによって、連続供給を得ることができる。そのようなブレンドのために有用なモノマーの例としては、ヘキサフルオロプロピレン(HFP)及びペルフルオロメチルビニルエーテル(PMVE)が挙げられる。

30

【0061】

得られた非晶質フルオロポリマーラテックスを凝固させるには、フルオロポリマーラテックスの凝固のために一般に使用される任意の凝固剤を使用することができ、例えば、水溶性塩(例えば、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化アルミニウム、若しくは硝酸アルミニウム)、酸(例えば、硝酸、塩酸、若しくは硫酸)、又は水溶性有機液体(例えば、アルコール若しくはアセトン)であってもよい。添加される凝固剤の量は、非晶質フルオロポリマーラテックス100質量部当たり0.001~20質量部の範囲、例えば0.01~10質量部の範囲であってもよい。代替的又は追加的に、非晶質フルオロポリマーラテックスは、凝固のために凍結されてもよい。

40

【0062】

凝固した非晶質フルオロポリマーは、濾過によって回収し、水で洗浄してよい。洗浄水は、例えば、イオン交換水、純水又は超純水であってもよい。洗浄水の量は、非晶質フルオロポリマーに対して1~5倍の質量であってもよく、これにより、1回の洗浄で、非晶質フルオロポリマーに結合している乳化剤の量を十分に低減することができる。

【0063】

例えば、開始剤の濃度と活性、反応性モノマーの各々の濃度、温度、連鎖移動剤の濃度、及び溶媒を、当該分野で公知の手法を用いて調整することで、非晶質フルオロポリマー

50

の分子量を制御することができる。いくつかの実施形態では、本開示の実施に有用な非晶質フルオロポリマーは、10,000グラム/モル～200,000グラム/モルの範囲内の重量平均分子量を有する。いくつかの実施形態では、重量平均分子量は、少なくとも15,000、20,000、25,000、30,000、40,000、又は50,000グラム/モルから最大100,000、150,000、160,000、170,000、180,000、又は最大190,000グラム/モルである。本明細書で開示する非晶質フルオロポリマーは、典型的には、分子量分布及び組成分布を有する。重量平均分子量は、例えば、ゲル透過クロマトグラフィー（即ち、サイズ排除クロマトグラフィー）によって、当業者に公知の技術を使用して測定できる。

【0064】

非晶質フルオロポリマーの粘度は、典型的には、分子量の減少と共に減少する。非晶質フルオロポリマーは、多くの場合、その分子量ではなくそのムーニー粘度によって記載される。本開示を実施するために有用な非晶質フルオロポリマーは、ASTM D1646-06 TYPE Aに従って100で0.1～150（ML 1+10）の範囲のムーニー粘度を有することができる。いくつかの実施形態では、本開示を実施するために有用な非晶質フルオロポリマーは、ASTM D1646-06 TYPE Aに従って100で0.1～100、0.1～50、0.1～20、0.1～10、又は0.1～5（ML 1+10）の範囲のムーニー粘度を有する。

【0065】

いくつかの実施形態では、本開示によるアセンブリ及び方法において有用な非晶質フルオロポリマーは、25かつ6.3ラジアン/秒で少なくとも300kPa、及び25かつ0.1ラジアン/秒で最大200kPaの貯蔵弾性率（ G' ）を有する。いくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、25かつ6.3ラジアン/秒で少なくとも400kPa、及び25かつ0.1ラジアン/秒で最大100kPaの貯蔵弾性率（ G' ）を有する。これらの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、それ自体が粘着性でなくてもよく、これは、非晶質フルオロポリマーを加工するために有用であり得る。ダルキスト基準によれば、6.3ラジアン/秒（1Hz）で約300kPa未満の貯蔵弾性率（ G' ）を有する材料が感圧性接着剤特性を有し、一方、この値を超える G' を有する材料が感圧性接着剤特性を有さないことを示す。そのような非晶質フルオロポリマーに関する更なる詳細は、米国特許出願公開第2010/0286329（Fukushira）において見ることができる。他の実施形態では、本開示を実施するために有用な非晶質フルオロポリマーは、6.3ラジアン/秒（1Hz）で約300kPa未満の貯蔵弾性率（ G' ）を有する。これらの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、それ自体が粘着性となることができ、これは、本明細書で開示するアセンブリ及び方法において粘着テープの接着に有益であり得る。

【0066】

フルオロエラストマーを提供するように上述した非晶質フルオロポリマーを架橋するために、いくつかの実施形態では、本開示によるアセンブリ及び方法のために有用な接着剤は、ペルオキシドを含む。本開示を実施するために有用なペルオキシドは、典型的には、アシルペルオキシドである。アシルペルオキシドは、アルキルペルオキシドより低温で分解する傾向があり、より低い温度での硬化を可能にする。これらの実施形態の一部では、ペルオキシドは、ジ（4-*t*-ブチルシクロヘキシル）ペルオキシジカーボネート、ジ（2-フェノキシエチル）ペルオキシジカーボネート、ジ（2,4-ジクロロベンゾイル）ペルオキシド、ジラウリルペルオキシド、デカノイルペルオキシド、1,1,3,3-テトラメチルエチルブチルペルオキシ-2-エチルヘキサン酸、2,5-ジメチル-2,5-ジ（2-エチルヘキサノイルペルオキシ）ヘキサン、ジコハク酸ペルオキシド、*t*-ヘキシルペルオキシ-2-エチルヘキサン酸、ジ（4-メチルベンゾイル）ペルオキシド、*t*-ブチルペルオキシ-2-エチルヘキサン酸、ベンゾイルペルオキシド、*t*-ブチルペルオキシ-2-エチルヘキシルカーボネート、又は*t*-ブチルペルオキシイソプロピルカーボネートである。いくつかの実施形態では、ペルオキシドは、ジアシルペルオキシドであ

10

20

30

40

50

る。これらの実施形態の一部では、ペルオキシドは、ベンゾイルペルオキシド又は置換ベンゾイルペルオキシド（例えば、ジ（４－メチルベンゾイル）ペルオキシド又はジ（２，４－ジクロロベンゾイル）ペルオキシド）である。ペルオキシドは、典型的には、接着剤を硬化させるために有効な量で接着剤中に存在する。いくつかの実施形態では、ペルオキシドは、接着剤の重量に対して０．５重量％～１０重量％の範囲で接着剤中に存在する。いくつかの実施形態では、ペルオキシドは、接着剤の重量に対して１重量％～５重量％の範囲で接着剤中に存在する。

【００６７】

上述したものなどの硬化性非晶質ポリマー組成物において、多くの場合、架橋剤を含むことが望ましい。架橋剤は、例えば、最終の硬化した接着剤において向上した機械的強度を提供するために有用であり得る。したがって、いくつかの実施形態では、本開示によるアセンブリ及び方法に関して有用な接着剤は、架橋剤を更に含む。当業者は、所望の物理的性質に基づいて従来の架橋剤を選択することができる。有用な架橋剤の例としては、トリ（メチル）アリルイソシアヌレート（ＴＭＡＩＣ）、トリアリルイソシアヌレート（ＴＡＩＣ）、トリ（メチル）アリルシアヌレート、ポリ－トリアリルイソシアヌレート（ポリ－ＴＡＩＣ）、キシレン－ビス（ジアリルイソシアヌレート）（ＸＢＤ）、Ｎ，Ｎ’－ｍ－フェニレンビスマレイミド、フタル酸ジアリル、トリス（ジアリルアミン）－ｓ－トリアジン、亜リン酸トリアリル、１，２－ポリブタジエン、エチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、及び、 $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{R}_{f1} - \text{CH} = \text{CH}_2$ [式中、 R_{f1} は、１～８個の炭素原子を有するペルフルオロアルキレンである]が挙げられる。架橋剤は、典型的には、硬化性組成物の重量に対して１重量％～１０重量％の量で存在する。いくつかの実施形態では、架橋剤は、硬化性組成物の重量に対して２重量％～５重量％の範囲で存在する。

【００６８】

上述したハロゲン含有硬化部位モノマーに加えて、又はその代わりに、本明細書で開示するアセンブリ及び方法において有用な非晶質フルオロポリマーは、窒素含有硬化部位を含むことができる。これらは、窒素含有モノマー及び／又は窒素含有連鎖移動剤を用いて非晶質フルオロポリマーに組み込むことができる。窒素含有硬化部位を含むフルオロポリマーを調製するのに有用な窒素含有基を含むモノマーの例としては、フリーラジカル重合可能なニトリル、イミダート、アミジン、アミド、イミド、及びアミノオキシドが挙げられる。これらの窒素含有硬化部位のいずれかの混合物は、本開示によるフルオロポリマー組成物において有用であり得る。有用な窒素含有硬化部位モノマーとしては、ニトリル含有フッ素化オレフィン及びニトリル含有フッ素化ビニルエーテル、例えば、 $\text{CF}_2 = \text{CFO}(\text{CF}_2)_L \text{CN}$ 、 $\text{CF}_2 = \text{CFO}(\text{CF}_2)_u \text{OCF}(\text{CF}_3)\text{CN}$ 、 $\text{CF}_2 = \text{CFO}[\text{CF}_2 \text{CF}(\text{CF}_3)\text{O}]_q (\text{CF}_2\text{O})_y \text{CF}(\text{CF}_3)\text{CN}$ 、又は $\text{CF}_2 = \text{CFO}[\text{OCF}_2 \text{CF}(\text{CF}_3)]_r \text{O}(\text{CF}_2)_t \text{CN}$ [式中、 L は、２～１２の範囲であり、 u は、２～６の範囲であり、 q は、０～４の範囲であり、 y は、０～６の範囲であり、 r は、１～２の範囲であり、 t は、１～４の範囲である]が挙げられる。そのようなモノマーの例としては、 $\text{CF}_2 = \text{CFO}(\text{CF}_2)_3 \text{OCF}(\text{CF}_3)\text{CN}$ 、ペルフルオロ（８－シアノ－５－メチル－３，６－ジオキサ－１－オクテン）、及び $\text{CF}_2 = \text{CFO}(\text{CF}_2)_5 \text{CN}$ が挙げられる。窒素含有硬化部位はまた、選択した連鎖移動剤（例えば、 $\text{I}(\text{CF}_2)_d \text{CN}$ 、 d は１～１０又は１～６である）を用いることにより、又は $\text{NC}(\text{CF}_2)_d \text{SO}_2 \text{G}$ [式中、 G は、１又は２の価数を有する水素原子又はカチオンを表す]などの全フッ素化スルフィナートの存在中でフリーラジカル重合を実施することにより、非晶質フルオロポリマーに組み込むことができる。例えば、ヒ素、アンチモン、及びスズの有機金属化合物、並びに／又は米国特許第７，９８９，５５２号（Groottaertら）に記載のものなどの有機オニウム化合物の存在中で加熱される場合、ニトリルは、三量体化して、トリアジン環を形成し、非晶質フルオロポリマーを架橋することができる。

【００６９】

フルオロポリマー、特にＶＤＦ含有非晶質フルオロポリマーはまた、ポリヒドロキシ硬

10

20

30

40

50

化系を使用して硬化してもよい。かかる場合、フルオロポリマーが硬化部位構成成分を含む必要はない。ポリヒドロキシ硬化系は一般に、1種以上のポリヒドロキシ化合物及び1種以上の有機オニウム促進剤を含む。有用な有機オニウム化合物は通常、有機部分又は無機部分に結合した少なくとも1個のヘテロ原子、即ち、非炭素原子、例えばN、P、S、Oを含む。四級有機オニウム化合物の一つの有用な部類は相対的に正の及び相対的に負のイオンを広く含み、ここで、リン、ヒ素、アンチモン又は窒素が一般に、正イオンの中心原子を構成する。負のイオンは、有機又は無機アニオン（例えば、ハロゲン化物、サルフェート、アセテート、ホスフェート、ホスホネート、水酸化物、アルコキシド、フェノキシド、ビスフェノキシド、など）であってよい。有用な有機オニウム促進剤の例としては、米国特許第4,233,421号(Worm)、同第4,912,171号(Groottaertら)、同第5,086,123号(Guenthnerら)、同第5,262,490号(Kolbら)、及び同第5,929,169号(Coggiora)に記載されるものが挙げられる。いくつかの実施形態では、有用な有機オニウム化合物としては、一つ以上のペンダントフッ素化アルキル基を有するものが挙げられる。ポリヒドロキシ化合物は、その遊離又は非塩形態で、又は選択した有機オニウム促進剤のアニオン部分として使用してよい。硬化フルオロエラストマーを形成するために有用なポリヒドロキシ化合物の例としては、米国特許第3,876,654号(Pattison)及び同第4,233,421号(Worm)に開示されたものが挙げられる。いくつかの実施形態では、ポリヒドロキシ化合物は、4,4'-ヘキサフルオロイソプロピルデニルビスフェノール(ビスフェノールAF)、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン(ビスフェノールS)、及び4,4'-イソプロピルデニルビスフェノール(ビスフェノールA)などの、芳香族ポリフェノールである。

【0070】

フルオロポリマー、特にVDF含有非晶質フルオロポリマーはまた、ポリアミン硬化系を使用して硬化してもよい。有用なポリアミンの例としては、N,N-ジシナミリデン-1,6-ヘキサンジアミン、トリメチレンジアミン、シナミリデントリメチレンジアミン、シナミリデンエチレンジアミン、及びシナミリデンヘキサメチレンジアミンが挙げられる。有用なポリアミンは、カルバメートとして保護することができる。有用なカルバメートの例は、ヘキサメチレンジアミンカルバメート、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタンカルバメート、1,3-ジアミノプロパンモノカルバメート、エチレンジアミンカルバメート及びトリメチレンジアミンカルバメートである。通常は、約0.1~5 phrのジアミンが使用される。

【0071】

いくつかの実施形態では、本開示によるアセンブリ及び方法に関して有用な接着剤は、可塑剤を含む。可塑剤は、例えば、接着剤の粘着性を増大するために有用であり得る。可塑剤は、例えば、架橋することができない非晶質フルオロポリマーとすることができる。上述したモノマー(硬化部位モノマー以外の)及び方法のいずれかは、そのような非晶質フルオロポリマーを製造するために有用であり得る。有用な可塑剤はまた、例えば、米国特許第5,268,405号(Ojakara)に記載されているものなどのペルフルオロポリエーテルを含むことができる。

【0072】

いくつかの実施形態では、可塑剤は、イオン性液体である。イオン性液体は、約100以下で液体状態である。イオン性液体は、典型的には、無視できる蒸気圧及び高い熱安定性を有する。イオン性液体は、カチオン及びアニオンからなり、典型的には、約100以下(すなわち、約100以下で液体である)、約95以下、又は約80以下の融点を有する。特定のイオン性液体は、周囲温度でも溶融状態とすることができる融点を有し、ゆえに、それらは、周囲温度溶融塩と呼ばれることがある。イオン性液体のカチオン及び/又はアニオンは、比較的立体的に嵩高く、典型的に、これらイオンの一方又は両方が有機イオンである。イオン性液体は、公知の方法によって、例えば、アニオン交換又はメタセシスプロセス等のプロセスによって、あるいは酸-塩基又は中和プロセスを介し

10

20

30

40

50

て合成することができる。

【0073】

イオン性液体のカチオンは、例えば、様々な非局在化複素環式芳香族化合物カチオンを含む、アンモニウムイオン、ホスホニウムイオン、又はスルホニウムイオンとすることができる。好適なアンモニウムイオンの例としては、アルキルアンモニウム、イミダゾリウム、ピリジニウム、ピロリジニウム、ピロリニウム、ピラジニウム、ピリミジニウム、トリアゾニウム、トリアジニウム、キノリニウム、イソキノリニウム、インドリニウム、キノキサリニウム、ペリジニウム、オキサゾリニウム、チアゾリニウム、モルホリニウム、ピペラジニウム、及びこれらの組み合わせが挙げられる。好適なホスホニウムイオンの例としては、テトラアルキルホスホニウム、アリールホスホニウム、アルキルアリールホスホニウム、及びそれらの組み合わせが挙げられる。好適なスルホニウムイオンの例としては、アルキルスルホニウム、アリールスルホニウム、チオフェニウム、テトラヒドロチオフェニウム、及びそれらの組み合わせが挙げられる。窒素原子、リン原子、又は硫黄原子に直接結合しているアルキル基は、少なくとも1、2、又は4個、かつ典型的には8、10、12、15、又は20個以下の炭素数を有する直鎖状、分枝状、又は環状のアルキル基であってよい。アルキル基は、任意で、鎖中又は鎖の末端（例えば、末端-OH基）にO及びN及びS等のヘテロ原子を含有してよい。窒素原子、リン原子、又は硫黄原子に直接結合しているアリール基は、少なくとも5、6、又は8個の炭素原子、かつ典型的には12、15、又は20個以下の炭素数を有する単環式又は縮合環式のアリール基であってよい。これらのカチオンのいずれかは、アルキル基、アリケニル基、アルキニル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、アリールアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヒドロキシル基、カルボニル基、カルボキシル基、エステル基、アシル基、アミノ基、ジアルキルアミノ基、アミド基、イミノ基、イミド基、ニトロ基、ニトリル基、スルフィド基、スルホキシド基、スルホン基、又はハロゲン原子によって更に置換してもよく、酸素原子、窒素原子、硫黄原子、及びケイ素原子等のヘテロ原子が、カチオンを構成する構造の主鎖又は環に含有されていてもよい。

10

20

【0074】

好適なカチオンの例としては、N-エチル-N'-メチルイミダゾリウム、N-メチル-N-プロピルピペリジニウム、N,N,N-トリメチル-N-プロピルアンモニウム、N-メチル-N,N,N-トリプロピルアンモニウム、N,N,N-トリメチル-N-ブチルアンモニウム、N,N,N-トリメチル-N-メトキシエチルアンモニウム、N-メチル-N,N,N-トリス(メトキシエチル)アンモニウム、N,N-ジメチル-N-ブチル-N-メトキシエチルアンモニウム、N,N-ジメチル-N,N-ジブチルアンモニウム、N-メチル-N,N-ジブチル-N-メトキシエチルアンモニウム、N-メチル-N,N,N-トリブチルアンモニウム、N,N,N-トリメチル-N-ヘキシルアンモニウム、N,N-ジエチル-N-メチル-N-(2-メトキシエチル)アンモニウム、1-プロピル-テトラヒドロチオフェニウム、1-ブチル-テトラヒドロチオフェニウム、1-ペンチル-テトラヒドロチオフェニウム、1-ヘキシル-テトラヒドロチオフェニウム、グリシジルトリメチルアンモニウム、N-エチルアクリロイル-N,N,N-トリメチルアンモニウム、N-エチル-N-メチルモルホニウム、N,N,N-トリオクチルアンモニウム、N-メチル-N,N,N-トリオクチルアンモニウム、N,N-ジメチル-N-オクチル-N-(2-ヒドロキシエチル)アンモニウム、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

30

40

【0075】

いくつかの実施形態では、カチオンは、官能基又は反応性部分（例えば、不飽和結合）を含まない。これら実施形態の一部では、イオン性液体の耐熱性は、最大化される。いくつかの実施形態では、カチオン中のアルキル及び/又はアリール基は、フッ素原子で置換され、非晶質フルオロポリマーとの有利な相溶性をもたらすことができる。

【0076】

イオン性液体のアニオンは、例えば、サルフェート($R-O-S-O_3^-$)、スルホネート

50

($R-SO_3-$)、カルボキシレート($R-CO_2-$)、ホスフェート($(RO)_2P(=O)O-$)、テトラフルオロボレート(BF_4-)及びテトラアルキルボレートなどの式 BR_4- によって表されるボレート、ヘキサフルオロボスフェート(PF_6-)及びヘキサアルキルホスフェートなどの式 PR_6- によって表されるホスフェート、イミド(R_2N-)、メチド(R_3C-)、硝酸イオン(NO_3-)、又は亜硝酸イオン(NO_2-)とすることができる。式中、各Rは、独立して、水素原子、ハロゲン原子(フッ素、塩素、臭素、ヨウ素)、又は置換若しくは非置換のアルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、アリール、アラルキル、アリールアルキル、アシル、若しくはスルホニル基であってよい。酸素原子、窒素原子、及び硫黄原子等のヘテロ原子が、基Rの主鎖又は環に含有されていてもよく、基Rの炭素原子における水素原子の一部又は全てをフッ素原子で置換してもよい。複数のR基がアニオン中に存在する場合、これらのR基は、同じ又は異なることができる。

【0077】

一般にフルオロポリマーとの相溶性が良好であるので、典型的には、アニオン中の基Rの炭素原子における水素原子の一部又は全てをフッ素原子で置換することが有利である(例えば、ペルフルオロアルキル基)。ペルフルオロアルキル基を含有するアニオンの例としては、ビス(ペルフルオロアルキルスルホニル)イミド($(RfSO_2)_2N-$)、ペルフルオロアルキルスルホネート($RfSO_3-$)、及びトリス(ペルフルオロアルキルスルホニル)メチド($(RfSO_2)_3C-$)(式中、Rfは、ペルフルオロアルキル基を表す)が挙げられる。ペルフルオロアルキル基は、少なくとも1、2、3、又は4個の炭素原子、かつ典型的には8、10、12、15、又は20個以下の炭素原子を含むことができる。好適なビス(ペルフルオロアルキルスルホニル)イミドの例としては、ビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、ビス(ペンタフルオロエタンスルホニル)イミド、ビス(ヘプタフルオロプロパンスルホニル)イミド、及びビス(ノナフルオロブタンスルホニル)イミドが挙げられる。好適なペルフルオロアルキルスルホネートの例としては、トリフルオロメタンスルホネート、ペンタフルオロエタンスルホネート、ヘプタフルオロプロパンスルホネート、及びノナフルオロブタンスルホネートが挙げられる。好適なトリス(ペルフルオロアルキルスルホニル)メチドの例としては、トリス(トリフルオロメタンスルホニル)メチド、トリス(ペンタフルオロエタンスルホニル)メチド、トリス(ヘプタフルオロプロパンスルホニル)メチド、トリス(ノナフルオロブタンスルホニル)メチド、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

【0078】

本開示によるアセンブリ及び方法において有用な接着剤中の可塑剤として好適なイオン性液体の具体例としては、N-メチル-N-プロピルピペリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、N-メチル-N-プロピルピペリジニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、N-エチル-N'-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、N,N,N-トリメチル-N-ヘキシルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、及びN-メチル-N,N,N-トリブチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミドが挙げられる。

【0079】

接着剤がイオン性液体可塑剤を含むいくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマー(δ_a)とイオン性液体(δ_b)との間の溶解度パラメータの差の絶対値は、 $8.2(MPa)^{1/2}$ [$4(cal/cc)^{1/2}$]以下であり、換言すれば、 $|\delta_a - \delta_b|$ $8.2(MPa)^{1/2}$ である。いくつかの実施形態では、フルオロポリマー(δ_a)とイオン性液体(δ_b)との間の溶解度パラメータの差の絶対値は、 $6.1(MPa)^{1/2}$ [$3(cal/cc)^{1/2}$]以下、又は $4.1(MPa)^{1/2}$ [$2(cal/cc)^{1/2}$]以下である。イオン性液体の溶解度パラメータは、コンピュータシミュレーションを用いて算出することができる。例えば、Bela Derecskei及びAgnes Derecskei-Kovacsの「Molecular modelling simulations to predict density and solu

10

20

30

40

50

bility parameters of ionic liquids」(Molecular Simulation, Vol. 34 (2008)、1167~1175ページ)を参照されたい。VDF及びHFPを78/22のモル比で含むフルオロエラストマーの溶解度パラメータ δ は、Myers及びAbu-Isaの「Journal of Applied Polymer Science」(Vol. 32、3515~3539ページ(1986))において、 $8.7(\text{cal/cc})^{1/2}$ ($17.8(\text{MPa})^{1/2}$)であることが報告されている。この用途の目的のために、非晶質フルオロポリマーの溶解度パラメータは、 $17.8(\text{MPa})^{1/2}$ であると考えられ、イオン性液体は、 $9.6(\text{MPa})^{1/2} \sim 26(\text{MPa})^{1/2}$ 、いくつかの実施形態では $11.7(\text{MPa})^{1/2} \sim 23.9(\text{MPa})^{1/2}$ 、及びいくつかの実施形態では $13.7(\text{MPa})^{1/2} \sim 21.9(\text{MPa})^{1/2}$ の範囲の溶解度パラメータを有する。

【0080】

カーボンブラック、染料、顔料、安定剤、潤滑剤、充填剤などの添加剤、及び一般にフルオロポリマーコンパウンド化にて利用される加工助剤は、本明細書で開示する構成要素及び方法において有用な接着剤中へ組み込むことができるが、意図した使用条件で適切な安定性を有することが条件である。カーボンブラック充填剤は、組成物の弾性率、引張り強度、伸長、硬度、磨耗耐性、伝導度、及び加工性を調整するための手段として、フルオロポリマー中に用いることができる。好適な例としては、MTブラック(メディアム・サーマル・ブラック)、及び大粒径ファーンズブラックが挙げられる。使用する場合、フルオロポリマー100部当たり(phr)1~100部の大粒径ブラックの充填剤で一般に十分である。

【0081】

フルオロポリマー充填剤もまた、接着剤中に存在してよい。一般に、1~100phrのフルオロポリマー充填剤が使用される。フルオロポリマー充填剤は、微粉化することができ、かつ接着剤の製造及び硬化で使用される最高高温で、固体として容易に分散させることができる。固体である場合、充填剤材料(部分的に結晶化している場合)が硬化性組成物(類)の加工温度(単一又は複数)より高い結晶融解温度を有することを意味する。フルオロポリマー充填剤を組み込むための一つの方法は、ラテックスをブレンドすることである。この手順は、様々な種類のフルオロポリマー充填剤を使用し、米国特許第6,720,360号(Grootaertら)に記載されている。

【0082】

弾性率、引張り強度、伸長、硬度、磨耗耐性、伝導度、及び加工性を調整するために有用であり得る他の充填剤の例としては、粘土、シリカ(SiO_2)、アルミナ、赤色酸化鉄、タルク、ケイソウ土、硫化バリウム、珪灰石(CaSiO_3)、炭酸カルシウム(CaCO_3)、フッ化カルシウム、酸化チタン、及び酸化鉄が挙げられる。

【0083】

あるいは、いくつかの実施形態では、本明細書で開示する構成要素及び方法において有用な接着剤は、充填剤を含まない、又は、接着剤の重量に対して5重量%、2重量%、若しくは1重量%未満の充填剤を含む。例えば、本開示による硬化性組成物は、無機充填剤を含まなくてもよい。本明細書で開示する硬化性組成物中に充填剤を回避する一つの利点は、接着剤を透過する可視光が得られることであり、これは、いくつかの用途に対して有用であり得る。

【0084】

また、従来の補助剤を本明細書で開示する接着剤中に組み込んで、接着剤の特性を向上させてもよい。例えば、接着剤の硬化及び熱安定性を促進するために酸受容体を用いてよい。好適な酸受容体としては、酸化マグネシウム、酸化鉛、酸化カルシウム、水酸化カルシウム、二塩基性亜リン酸鉛、酸化亜鉛、炭酸バリウム、水酸化ストロンチウム、炭酸カルシウム、ハイドロタルサイト、アルカリステアレート、シュウ酸マグネシウム、又はこれらの組み合わせを挙げることができる。酸受容体は、非晶質フルオロポリマー100重量部当たり約1~約20部の範囲の量で使用するすることができる。しかし、燃料電池シーラ

ント又はガスケットのようないくつかの用途では、金属イオンが燃料電池のプロトン交換膜性能を劣化させることになるため、低い金属含有量を必要とする。したがって、いくつかの実施形態では、接着剤は、そのような補助剤を含まない、又は、接着剤の重量に対してそのような補助剤の 0.5 重量%未満を含む。

【0085】

上述したように、非晶質フルオロポリマーの粘度は、一般的に、非晶質フルオロポリマーの分子量が増大するにつれて増大する。したがって、相対的に低い分子量を有する非晶質フルオロポリマーは、テープバックング上にコーティングしてテープを製造するために、より低い粘度を有する接着剤を製造するために有用であり得る。いくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマー、任意選択の可塑剤、触媒、任意選択の架橋剤、及び上述した他の構成成分を含有する溶液又は液体分散体を調製することもまた有用である。次に、溶液は、テープバックング上にコーティングして、粘着テープを製造し、これを乾燥して溶媒を除去することができる。本開示を実施するために有用な溶媒の例としては、ケトン、エステル、炭酸塩、並びに、tert-ブチルアセテート、4-メチル-2-ペンタノン、n-ブチルアセテート、酢酸エチル、2-ブタノン、ギ酸エチル、酢酸メチル、シクロヘキサン、炭酸ジメチル、アセトン、及びギ酸メチルなどのギ酸塩が挙げられる。いくつかの実施形態では、溶媒は、ペルオキシド硬化に対して特に有害なアルコールではない。

10

【0086】

コンパウンド化は、例えば、ロールミル（例えば、2ロールミル）、内部ミキサ（例えば、Banburyミキサ）、又は他のゴム混合装置上で行うことができる。典型的には、構成成分及び添加剤を接着剤組成物全体にわたって様に分布させるためには完全な混合が望ましく、それにより効果的に硬化させることができる。コンパウンド化は、一つ又はいくつかの工程において実行することができる。例えば、架橋剤などの特定の構成成分は、使用の直前に非晶質フルオロポリマー、溶媒、及び触媒の混合物に調合することができる。また、溶媒は、第2の工程において非晶質フルオロポリマー、ペルオキシド、及び任意選択的に架橋剤の混合物に調合することができる。典型的には、混合中の組成物の温度は、硬化を開始するのに十分な程高く上昇しないことが望まれる。例えば、組成物の温度は、約50℃以下に保持してもよい。

20

【0087】

紙又はポリマーフィルムなどの様々な基材が、粘着テープバックングとして有用であり得る。いくつかの実施形態では、テープバックングは、ポリアミド、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリエステル、フッ素プラスチック、ポリフェニレンサルファイド、ポリスルホン、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルケトン、又はポリスチレンのうちの少なくとも一つを含む。テープバックングとして有用なフッ素プラスチックとしては、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、フッ化ポリビニル、フッ化ポリビニリデン、テトラフルオロエチレン-フルオロアルキルビニルエーテルコポリマー、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレンコポリマー、エチレン-テトラフルオロエチレンコポリマー、エチレン-クロロトリフルオロエチレンコポリマー、テトラフルオロエチレン-ペルフルオロジオキソールコポリマー、フッ化ポリビニリデン-ヘキサフルオロプロピレンコポリマーが挙げられる。いくつかの実施形態では、テープバックングは、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）を含む。接着剤に対するバックングの結合力を増大するために、接着剤と接触するバックング表面は、表面処理にかけることができる。いくつかの実施形態では、表面処理は、バックングを少なくとも部分的にフッ素化することができる。使用することができる表面処理の例としては、フッ素含有ガスを用いたプラズマ処理、及び従来のフッ素含有プライマーのコーティングが挙げられる。フッ素含有ガスを用いたプラズマ処理は、例えば、フッ素含有ガスとしてオクタフルオロプロパン（C₃F₈）を使用することにより、必要に応じて、テトラメチルシラン（TMS）及び酸素を組み合わせ使用し、これらのガスを、10~1000ミリのチャンバ圧力、50~2000

30

40

50

Wの出力、及び0.1～10分の処理時間の条件下でPlasma-Therm製のWAF' R / BATCH 7000 Series内に50～500SCCMの流量で流して、実行することができる。

【0088】

いくつかの実施形態では、テープバックング上に配置された接着剤は、感圧性接着剤(PSA)であり、本開示を実施するために有用な粘着テープは、感圧性粘着テープである。PSAは、以下の(1)強力かつ恒久的な粘着性、(2)指圧以下での接着性、(3)被着体を保持する十分な能力、及び(4)被着体からきれいに除去できる十分な凝集力、を含めた特性を保有することが、当業者には公知である。PSAとして良好に機能することが分かっている材料は、必要な粘弾性特性を呈して、粘着力、剥離接着力、及びせん断保持力の望ましいバランスをもたらすように設計及び配合されたポリマーである。

10

【0089】

本開示による構成要素及び方法において使用するのに好適な市販のテープの例としては、3M Company (St. Paul, MN) から商品名「CIPG 1951」で入手可能な、PTFEバックング及びフルオロエラストマー接着剤を有する粘着テープが挙げられる。

【0090】

本開示によるアセンブリ及び方法において有用な粘着テープのいくつかの実施形態では、非晶質フルオロポリマーは、部分的に硬化することができる。すなわち、接着剤がテープバックング上にコーティングされる前又は後に、接着剤組成物を加熱して、非晶質フルオロポリマーを部分的に架橋させることができる。部分的に硬化した非晶質フルオロポリマーを製造するための温度は、例えば、ペルオキシドの分解温度に基づいて選択することができる。例えば、ペルオキシドの10時間半減期温度を上回る(いくつかの実施形態では、少なくとも10、20、又は30上回る)温度を選択することができる。硬化時間は、非晶質フルオロポリマーの完全硬化が起こらないように選択することができる。非晶質フルオロポリマーの部分硬化は、例えば、その粘弾性特性を改質して、テープの取り扱い若しくは安定性を向上するために、又は粘着性を増大するために有用であり得る。

20

【0091】

本開示による方法は、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリの構成要素を準備することと、内側部分を囲むように粘着テープの別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着することと、接着剤が粘着テープの別個のストリップの間の全ての間隙(上述した)をシールして架橋するように、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープに適用することと、を含む。粘着テープは、その実施形態のいずれかにおいて上述したようなものとすることができる。接着剤を架橋することにより、接着剤の圧縮設定抵抗及び他の物理特性を向上する。

30

【0092】

本開示による方法が接着剤の別個のストリップの間の間隙をシールすることができる証拠を以下の実施例において提供する。実施例1に示すように、試験装置内のアルミニウムプレートと図1に示すものなどのエラストマー打抜きシールと、ポリイミドフィルムの切片との間に空洞が形成された。アルミニウムプレートに設けられた孔は、空洞内に圧力を提供するために空気供給源に接続された。図2に示す構成の粘着テープの四つの別個のストリップは、本開示の方法によるポリイミドフィルムに適用された。接着剤を架橋するために、熱及び圧力が粘着テープに適用された。次に、別個のストリップを有するポリイミドフィルムが、試験装置内のエラストマーシール上に配置され、第2のアルミニウムプレートが、ポリイミドフィルムの上にクランプされた。275 kPaの空気圧が空洞に適用されたとき、500秒後に圧力の損失は観察されなかった。対照的に、粘着テープの別個のストリップがポリイミドフィルムに適用されたが、熱及び圧力により硬化されなかった場合、400秒後に、圧力は138 kPaに低下した。したがって、本開示の方法は、粘着テープの別個のストリップの間の間隙をシールして、アセンブリ内のガス漏れを防止することができる。

40

50

【0093】

接着剤が流れて架橋するように熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープに適用することは、約100 ~ 220、いくつかの実施形態では約110 ~ 180の範囲の温度で、約1分~約15時間の期間、通常約1~15分の間、加熱することを含むことができる。硬化中の温度は、場合により、この範囲の下限から所望の最高温度まで次第に上昇する。約100キロパスカル(kPa)~20000kPa、いくつかの実施形態では約150kPa~7000kPa、又は約150kPa~1000kPaの圧力が、接着剤を流動させるために有用である。

【0094】

本開示による方法において有用な粘着テープは、片面テープとすることができる。又は、実施形態のいずれかにおいて上述したような接着剤もまた、テープバックキングの両方の主面上に設けて、両面テープを形成することができる。

【0095】

両面テープ又は片面テープのいずれかは、図5に示すものなどの膜電極接合体において有用であり得る。片面テープは、テープバックキングを電解質膜又はガス拡散層のうちの一つに接着するために有用であり得る。しかし、両面テープは、電解質膜152及びガス拡散層154の両方に接着することができるサブガセット110を提供することができる。本開示による膜電極接合体の製造において、粘着テープは、電解質膜、ガス拡散層、又はその両方に適用することができる。電解質膜又はガス拡散層のいずれかは、触媒コーティングすることができる。両面粘着テープは、触媒コーティングされた電解質膜とすることができる電解質膜と、ガス拡散層との間に適用して、熱又は圧力のうちの少なくとも一つにより硬化することができる。これらの実施形態のいずれかでは、膜電極接合体内の接着剤の別個のストリップの間の全ての間隙は、架橋非晶質フルオロポリマーでシールすることができる。

【0096】

本開示による方法のいくつかの実施形態では、本方法は、粘着テープの別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着する前に、粘着テープの接着剤から剥離ライナーを除去することを更に含む。剥離ライナーは、紙ライナー又は、例えば、テープバックキングに関して上述したポリマーのいずれかから製造されたポリマーフィルムとすることができる。剥離ライナーは、紙バックキング又はポリマーフィルム上の剥離コーティング(例えば、シリコーン、フルオロケミカル、又はカルバメートコーティング)とすることができる剥離面を含む。剥離ライナーは、構成要素の表面に適用される前に接着剤表面を保護するために有用である。粘着テープが両面テープである実施形態では、粘着テープは、二つの剥離ライナーを有することができる。

【0097】

いくつかの実施形態では、接着剤ストリップは、接着剤転写テープからのストリップである。これらの実施形態では、本方法は、熱及び圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープに適用する前に、剥離ライナー又はバックキングのうちの少なくとも一つを除去する工程を含むことができる。転写テープから剥離ライナー又はバックキングのうちの少なくとも一つを除去した後で、結果として得られるアセンブリは、もはやテープバックキングを含まなくてよい。これらの実施形態では、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを別個のストリップに適用することにより、接着剤ストリップの間の間隙を有さない架橋接着剤の単一の連続層を得ることができる。

【0098】

本開示による方法及び構成要素における別個の接着剤ストリップは、例えば、図5に示すような膜電極接合体内の個別の構成要素に適用することができる。別個の接着剤ストリップはまた、複数の個別の電解質膜を有する燃料電池ロール製品のサブアセンブリに適用することができる。別個の接着剤ストリップの組は、ロール内の個別の電解質膜に取り付けることができる。別個の接着剤ストリップの組のそれぞれは、個別の電解質膜の中央領域を露出することができる配置で、個別の電解質膜の周辺部分に取り付けることができる

。別個の接着剤ストリップの第2の組は、例えば、別個の接着剤ストリップの第1の組の反対側の面上のロール内の個別の電解質膜に取り付けることができる。別個のストリップの第2の組のそれぞれは、個別の電解質膜の中央領域の第2の表面が露出されるように、反対側の個別の電解質膜の周辺部分上に配置される。次に、取り付けられた接着剤ストリップを有する個別の電解質膜は、ロールから切断することができる。

【0099】

構成要素が電解質膜である本開示による方法及び構成要素のいくつかの実施形態では、別個の接着剤ストリップは、電解質膜の第1の周囲面上の第1のサブガセットを集合的に形成する。いくつかの実施形態では、膜電極接合体は、内側部分を囲むように電解質膜の反対側の第2の周囲面に接着された第1の表面を有する、別個の接着剤ストリップの第2の組を更に含む。第5の接着剤ストリップの短い辺は、例えば、第6の接着剤ストリップに隣接して配置される。架橋される場合、テープバックングの別個のストリップの第2の組の第1の表面上に配置された架橋非晶質フルオロポリマーを含む接着剤は、別個の接着剤ストリップの第2の組の間の全ての間隙をシールし、別個の接着剤ストリップの第2の組を電解質膜の反対側の第2の周囲面に接着する。他の実施形態では、有用なアセンブリは、単一のサブガセットを集合的に形成する別個の接着剤ストリップの一つの組のみを有することができる。

【0100】

燃料電池、フロー電池、又は他の電気化学セルにおける使用に好適な任意の電解質膜を、本開示の実施に使用することができる。テトラフルオロエチレン(TFE)のコポリマー、及び式 $\text{HSO}_3 - \text{CF}_2 - \text{CF}_2 - \text{O} - \text{CF}(\text{CF}_3) - \text{CF}_2 - \text{O} - \text{CF} = \text{CF}_2$ によるコモノマーは、公知であり、DuPont Chemical Company(Wilmington, Delaware)により商品名NAFION(登録商標)で販売されている。NAFION(登録商標)コポリマーは、燃料電池での使用のためのポリマー電解質膜の作製において一般的に使用される。テトラフルオロエチレン(TFE)のコポリマー、並びに式 $\text{FSO}_2 - \text{CF}_2 - \text{CF}_2 - \text{O} - \text{CF} = \text{CF}_2$ 及び/又は $\text{FSO}_2 - \text{CF}_2 \text{CF}_2 \text{CF}_2 \text{CF}_2 - \text{O} - \text{CF} = \text{CF}_2$ によるコモノマーもまた、公知であり、スルホン酸形成、すなわち、 FSO_2 -末端基を HSO_3 -に加水分解して燃料電池で使用するためのポリマー電解質膜を製造するために使用される。

【0101】

燃料電池に関して、有用なPEMの厚さは、約200マイクロメートル~約1マイクロメートルの範囲にわたることができる。いくつかの実施形態では、本明細書で説明する膜電極接合体は、触媒層を含む。触媒層は、塩化白金酸の還元等の湿式化学法によって、より大きな炭素粒子の上にコーティングされたPt又はPt合金を含んでもよい。この形態の触媒は、アイオノマー結合剤及び/又は溶媒と共に分散されて、膜、剥離ライナー、又は集電体のいずれかに塗布されるインク、ペースト、又は分散系を形成する。

【0102】

幾つかの実施形態においては、触媒層は、粒子を担持するナノ構造化支持体要素、又は触媒材料のナノ構造化薄膜(NSTF)を含んでもよい。ナノ構造化触媒層は、一般的に担持体としての炭素粒子を含まず、したがって、触媒粒子の高密度分散を形成する、電解質膜の非常に薄い表面層に組み込まれてもよい。ナノ構造化薄膜(NSTF)触媒層を使用することで、触媒利用率を、分散法によって形成された触媒層と比べて非常に高くすることができる。典型的には、炭素担持体が存在しないことにより、高電圧及び高温での浸食に対する更なる耐性をもたらすことができる。いくつかの実施において、CCMの触媒表面積は、ミクロ構造機構を有する電解質膜を使用することによって、更に拡張されてもよい。NSTF触媒層は、触媒材料の針状ナノ構造化担持体上への真空蒸着によって形成されてもよい、細長いナノスケールの粒子を含む。好適なナノ構造化担持体は、C.I.PIGMENT RED 149(ペリレン赤)などの有機顔料のウィスカーを含んでもよい。結晶性ウィスカーは、実質的に均一であるが、同一ではない断面、及び高い長さ対幅比率を有することができる。ナノ構造化担持体ウィスカーは、触媒作用に適しており、ウィ

スカーに、複数の触媒部位として働くことができる、微細なナノスケールの表面構造を付与する、コーティング材料でコーティングされる。ある特定の実施例では、ナノ構造支持体ウィスカーは、継続的な螺旋転位の成長を介して拡張され得る。ナノ構造支持体要素の長さを拡張することにより、触媒作用のための表面積を増加させることが可能となる。

【0103】

ナノ構造支持体ウィスカーは、ナノ構造薄膜触媒層を形成するために、触媒材料でコーティングされる。一つの実施によると、触媒材料は、白金族金属等の金属を含む。一実施形態においては、触媒コーティングされたナノ構造化支持体要素は、触媒コーティングされた膜を形成するために、電解質膜の表面に転写されてもよい。別の実施形態において、触媒被覆ナノ構造支持体要素は、GDL表面上に形成されてもよい。

10

【0104】

任意の好適な集電体（様々な用途では流体輸送層、又はFTL、又はGDLとも記述される）を、本開示の実施に使用することができる。集電体は、以下の機能のうちの一つ以上を有することができる。1）電極との電氣的接触を最大化し、それによって、電極内の電流の長い横断経路に起因する抵抗率を最小化すること、2）それ自体が電極として機能すること（例えば、一部のフロー電池に対して）、3）バックングプレートとの接触により抵抗を低下させること、4）熱をMEAからバックングプレートに伝達すること、5）最小限の圧力低下での反応剤（燃料及び酸化剤、又は還元剤及び酸化剤）の流れ、及びMEAの表面上の反応剤の均一分布を可能にすること、及び6）水などの反応生成物の容易な除去を可能にすること。これらの機能を作用させるために、集電体は、典型的には、導電性かつ多孔性である。望ましくは、集電体用の材料は、電気化学セルの反応条件下で電気化学的に安定であるように選択される。

20

【0105】

いくつかの実施形態では、本開示による膜電極接合体内の構成要素及び方法として有用な集電体は、反応ガスを通過させる一方、電極から電流を回収することができる、任意の材料であってよく、典型的に、織られた、又は不織の炭素繊維紙又は布である。燃料電池では、集電体（GDL）は、ガス状反応物質及び水蒸気の触媒及び膜への多孔質アクセスを提供し、また、外部負荷に電力を供給するために、触媒層で生成される電流を回収する。

【0106】

30

本明細書で説明する構成要素及び方法における集電体は、微多孔性層（microporous layer）（MPL）及び電極バックング層（electrode backing layer）（EBL）を含んでもよく、MPLは触媒層とEBLとの間に配置される。EBLは、炭素繊維構造体（例えば、織布及び不織布炭素繊維構造体）など、任意の好適な導電性多孔性基材であってよい。市販の炭素繊維構造の実施例には、Ballard Material Products, Lowell, MAの商品名「AvCarb P50」炭素繊維紙、ElectroChem, Inc., Woburn, MAから入手され得る「Toray」炭素紙が含まれる。EBLは、疎水性を増すように又は付与するように処理されてもよい。例えば、EBLは、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）及びフッ素化エチレンプロピレン（FEP）など、高度にフッ素化されたポリマーで処理されてもよい。

40

【0107】

EBL類の炭素繊維構造体は、一般に粗く多孔質の表面を有しており、触媒層と低結合性接着を示す。接合接着力を増加させるために、微多孔性層がEBLの表面にコーティングされてもよい。これはEBLの粗くかつ多孔性の表面を滑らかにし、いくつかの種類の触媒層との接合接着力が高められる。

【0108】

本開示による方法及び本開示による構成要素は、燃料電池以外の電気化学デバイス、例えば、電気を用いて化学変化又は化学エネルギーを生成する電解セルにおいて有用であり得る。電解セルは、電解槽とも呼ばれる。電解セルの一例は、クロルアルカリ膜電池であり、ここでは、塩化ナトリウム水溶液が、アノードとカソードとの間の電流によって電解さ

50

れる。電解質は、厳しい条件にさらされる膜によって、アノード液部分とカソード液部分とに分離される。クロルアルカリ膜電池においては、腐食性の水酸化ナトリウムがカソード液部分に集まり、水素ガスがカソード部分で生じ、塩素ガスがアノードの塩化ナトリウムリッチなアノード液部分から生じる。本明細書で開示する方法及びアセンブリのいくつかの実施形態では、別個の接着剤ストリップをクロルアルカリ膜に適用することができる。

【0109】

本開示による方法はまた、フロー電池（例えば、バナジウムレドックスフロー電池又は亜鉛臭素フロー電池）に対して有用であり得る。フロー電池は、典型的には、別個のタンクから二つの電極の間の膜を通してポンプ搬送される電解質液を使用する。電解質溶液は、典型的には、酸性であり、2 M ~ 5 Mの硫酸で形成されている。

10

【0110】

本開示による方法はまた、他の電気化学的セル（例えば、リチウムイオンバッテリー）における電極用にも有用であり得る。電極を作製するために、粉末化した活性成分を、ポリマーバインダーと共に溶媒中に分散させ、金属箔基材又は集電体上にコーティングしてもよい。結果として得られた複合体電極は、金属基材に接着されたポリマーバインダー中に粉末化した活性成分を含有する。負極の作製にとって有用な活性材料としては、典型元素の合金及び黒鉛などの導電性粉末が挙げられる。負極の作製にとって有用な活性材料の例としては、酸化物（酸化スズ）、炭素化合物（例えば、人工黒鉛、天然黒鉛、土黒鉛（soil black lead）、膨張黒鉛、及び鱗状黒鉛）、炭化ケイ素化合物、酸化ケイ素化合物、硫化チタン、及び炭化ホウ素化合物が挙げられる。正極の作製にとって有用な活性材料としては、リチウム化合物、例えば $\text{Li}_{4/3}\text{Ti}_{5/3}\text{O}_4$ 、 LiV_3O_8 、 LiV_2O_5 、 $\text{LiCoO}_{0.2}\text{Ni}_{0.8}\text{O}_2$ 、 LiNiO_2 、 LiFePO_4 、 LiMnPO_4 、 LiCoPO_4 、 LiMn_2O_4 、及び LiCoO_2 などが挙げられる。また、電極は、導電性希釈剤及び接着促進剤を含むこともできる。

20

【0111】

本明細書で開示する別個の接着剤ストリップは、例えば、コーティング中の空隙を充填し、様々な基材に接着し、シールして、例えば、化学的浸透、腐食、及び摩耗から保護するために有用であり得る。燃料電池アセンブリ及びサブアセンブリに加えて、本開示による方法は、ハードディスクドライブアセンブリ、半導体デバイス、電解槽、バッテリー電極アセンブリ用に、及び、様々な用途でフルオロエラストマーガasketを例えば金属に結合するために有用であり得る。

30

【0112】

本開示の一部の実施形態

第1の実施形態では、本開示は、アセンブリの製造方法を提供し、この方法は、内側部分及び周辺部分を有するアセンブリの構成要素を準備することと、

内側部分を囲むように粘着テープの別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着することであって、第1のストリップの短い辺は、第2のストリップに隣接して配置され、粘着テープは、バックング上に配置された接着剤を含み、接着剤は、非晶質フルオロポリマーを含む、ことと、

40

接着剤が第1のストリップと第2のストリップとの間の全ての間隙をシールして架橋するように熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープの別個のストリップに適用することと、

を含む。別個のストリップのいずれも、内側部分を個別に囲まなくてよい。

【0113】

第2の実施形態では、本開示は、接着剤が、転写テープであり、方法が、熱及び圧力を別個のストリップに適用する前にバックングを除去することを更に含む、第1の実施形態の方法を提供する。

【0114】

第3の実施形態では、本開示は、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着され

50

た粘着テープの別個のストリップの少なくとも三つ（又は四つ）が存在し、少なくとも三つ（又は四つ）の別個のストリップのそれぞれ一つは、少なくとも三つ（又は四つ）の別個のストリップの他の二つに隣接し、熱又は圧力のうちの少なくとも一つを粘着テープの別個のストリップに適用することが、粘着テープの別個のストリップの間の全ての間隙をシールする、第1又は第2の実施形態の方法を提供する。

【0115】

第4の実施形態では、本開示は、非晶質フルオロポリマーが、プロモ又はヨード硬化部位を含む、第1～第3の実施形態のいずれか一つに記載の方法を提供する。

【0116】

第5の実施形態では、本開示は、接着剤が、架橋剤を更に含む、第1～第4の実施形態のいずれか一つに記載の方法を提供する。

10

【0117】

第6の実施形態では、本開示は、架橋剤が、トリ（メチル）アリルイソシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、トリ（メチル）アリルシアヌレート、ポリ-トリアリルイソシアヌレート、キシレン-ビス（ジアリルイソシアヌレート）、N, N'-m-フェニレンビスマレイミド、フタル酸ジアリル、トリス（ジアリルアミン）-s-トリアジン、亜リン酸トリアリル、1,2-ポリブタジエン、エチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、又は、 $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{R}_{f1} - \text{CH} = \text{CH}_2$ [式中、 R_{f1} は、1～8個の炭素原子を有するペルフルオロアルキレンである]のうちの少なくとも一つを含む、第5の実施形態の方法を提供する。

20

【0118】

第7の実施形態では、本開示は、接着剤が、ペルオキシドを更に含む、第1～第6の実施形態のいずれか一つに記載の方法を提供する。

【0119】

第8の実施形態では、本開示は、ペルオキシドが、アシルペルオキシド又はジアシルペルオキシドである、第7の実施形態の方法を提供する。

【0120】

第9の実施形態では、本開示は、アセンブリが、膜電極接合体であり、構成要素が、電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つを含む、第1～第8の実施形態のいずれか一つに記載の方法を提供する。

30

【0121】

第10の実施形態では、本開示は、膜電極接合体の構成要素を提供し、構成要素が、内側部分及び周辺部分を有する電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つと、内側部分を囲むように第1の表面が構成要素の周辺部分に接着されたテープバックングの別個のストリップと、を備え、

テープバックングの第1のストリップの短い辺が、テープバックングの第2のストリップに隣接して配置され、テープバックングの別個のストリップの第1の表面上に配置された接着剤が、テープバックングの第1のストリップと第2のストリップとの間の間隙をシールして、別個のストリップを構成要素の周辺部分に接着し、接着剤が、架橋非晶質フルオロポリマーを含む。別個のストリップのいずれも、内側部分を個別に囲まなくてよい。

40

【0122】

第11の実施形態では、本開示は、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分に接着されたテープバックングの別個のストリップの少なくとも三つ（又は四つ）が存在し、少なくとも三つ（又は四つ）の別個のストリップのそれぞれ一つは、少なくとも三つ（又は四つ）の別個のストリップの他の二つに隣接し、テープバックングの別個のストリップの第1の表面上に配置された接着剤が、テープバックングの別個のストリップの間の間隙をシールする、第10の実施形態の膜電極接合体構成要素を提供する。

【0123】

第12の実施形態では、本開示は、架橋非晶質フルオロポリマーが、ペルオキシド架橋

50

非晶質フルオロポリマーである、第 10 又は第 11 の実施形態の膜電極接合体構成要素を提供する。

【0124】

第 13 の実施形態では、本開示は、粘着テープが、片面粘着テープである、第 1 又は第 3 ~ 第 12 の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0125】

第 14 の実施形態では、本開示は、粘着テープが、バックングの対向する二つの表面上に配置された接着剤を有する、第 1 又は第 3 ~ 第 12 の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

10

【0126】

第 15 の実施形態では、本開示は、テープバックングが、ポリアミド、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリエステル、フッ素プラスチック、ポリフェニレンサルファイド、ポリスルホン、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルケトン、又はポリスチレンのうちの少なくとも一つを含む、第 1 又は第 3 ~ 第 14 の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0127】

第 16 の実施形態では、本開示は、接着剤が、可塑剤を更に含む、第 1 ~ 第 15 の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

20

【0128】

第 17 の実施形態では、本開示は、可塑剤が、アニオン及びカチオンを有するイオン性液体を含む、第 16 の実施形態の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0129】

第 18 の実施形態では、本開示は、イオン性液体のカチオンが、N - エチル - N' - メチルイミダゾリウム N - メチル - N - プロピルピペリジニウム、N, N, N - トリメチル - N - プロピルアンモニウム、N - メチル - N, N, N - トリプロピルアンモニウム、N, N, N - トリメチル - N - ブチルアンモニウム、N, N, N - トリメチル - N - メトキシエチルアンモニウム、N - メチル - N, N, N - トリス (メトキシエチル) アンモニウム、N - メチル - N, N, N - トリブチルアンモニウム、N, N, N - トリメチル - N - ヘキシルアンモニウム、N, N - ジエチル - N - メチル - N - (2 - メトキシエチル) アンモニウム、1 - プロピル - テトラヒドロチオフェニウム、1 - ブチル - テトラヒドロチオフェニウム、グリシジルトリメチルアンモニウム、N - エチル - N - メチルモルホニウム、N, N, N - トリオクチルアンモニウム、N - メチル - N, N, N - トリオクチルアンモニウム、N - メチル - N, N, N - トリブチルアンモニウム、N, N - ジメチル - N - オクチル - N - (2 - ヒドロキシエチル) アンモニウム、及びこれらの組み合わせから選択される、第 17 の実施形態の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

30

【0130】

第 19 の実施形態では、本開示は、イオン性液体のアニオンが、ビス (トリフルオロメタンスルホニル) イミド、ビス (ペンタフルオロエタンスルホニル) イミド、ビス (ヘプタフルオロプロパンスルホニル) イミド、ビス (ノナフルオロブタンスルホニル) イミド、トリフルオロメタンスルホネート、ペンタフルオロエタンスルホネート、ヘプタフルオロプロパンスルホネート、ノナフルオロブタンスルホネート、トリス (トリフルオロメタンスルホニル) メチド、トリス (ペンタフルオロエタンスルホニル) メチド、トリス (ヘプタフルオロプロパンスルホニル) メチド、トリス (ノナフルオロブタンスルホニル) メチド、及びこれらの組み合わせから選択される、第 17 又は第 18 の実施形態の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

40

【0131】

第 20 の実施形態では、本開示は、構成要素の内側部分が、少なくとも 500 cm^2 の表面積を有する、第 1 ~ 第 19 の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体

50

構成要素を提供する。

【0132】

第21の実施形態では、本開示は、構成要素が、電解質膜であり、テープバックングの別個のストリップが、電解質膜の第1の周囲面上に第1のサブガセットを集合的に形成する、第1～第20の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0133】

第22の実施形態では、本開示は、電解質膜が、内側部分を囲むように第1の表面を電解質膜の反対側の第2の周囲面に接着したテープバックングの別個のストリップの第2の組を更に含み、テープバックングの第5のストリップの短い辺が、テープバックングの第6のストリップに隣接して配置され、テープバックングの別個のストリップの第2の組の第1の表面上に配置された架橋非晶質フルオロポリマーを含む接着剤が、テープバックングの第5のストリップと第6のストリップとの間の間隙をシールして、別個のストリップの第2の組を電解質膜の反対側の第2の周囲面に接着する、第21の実施形態の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

10

【0134】

第23の実施形態では、本開示は、構成要素が、電解質膜である、第1～第20の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0135】

第24の実施形態では、本開示は、構成要素が、触媒コーティングされた膜である、第1～第23の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

20

【0136】

第25の実施形態では、本開示は、構成要素が、集電体である、第1～第20の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0137】

第26の実施形態では、本開示は、構成要素が、触媒コーティングされた集電体である、第1～第20の実施形態のいずれか一つに記載の方法又は膜電極接合体構成要素を提供する。

【0138】

第27の実施形態では、本開示は、第1～第26の実施形態のいずれか一つに記載の、又はそれに記載の方法により製造された膜電極接合体構成要素を備える、電気化学セルを提供する。

30

【0139】

第28の実施形態では、本開示は、第1～第26の実施形態のいずれか一つに記載の、又はそれに記載の方法により製造された膜電極接合体構成要素を備える、燃料電池を提供する。

【0140】

第29の実施形態では、本開示は、第1～第26の実施形態のいずれか一つに記載の、又はそれに記載の方法により製造された膜電極接合体構成要素を備える、フロー電池を提供する。

40

【0141】

第30の実施形態では、本開示は、構成要素が、
内側部分及び周辺部分を有する電解質膜又は集電体のうちの少なくとも一つと、
内側部分を囲むように構成要素の周辺部分上に配置された別個の接着剤ストリップと、
を備え、
第1の接着剤ストリップの短い辺が、第2の接着剤ストリップに隣接して配置され、
別個の接着剤ストリップのそれぞれが、非晶質フルオロポリマーを含む接着剤を含む、
膜電極接合体の構成要素を提供する。別個のストリップのいずれも、内側部分を個別に
囲まなくてよい。

50

【 0 1 4 2 】

第 3 1 の実施形態では、本開示は、内側部分を囲むように構成要素の周辺部分上に配置された別個の接着剤ストリップの少なくとも三つ又は四つが存在し、少なくとも三つ又は四つの別個の接着剤ストリップのそれぞれ一つが、少なくとも三つ又は四つの別個の接着剤ストリップの他の二つに隣接する、第 3 0 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 4 3 】

第 3 2 の実施形態では、本開示は、構成要素の内側部分が、少なくとも 500 cm^2 の表面積を有する、第 3 0 又は第 3 1 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 4 4 】

第 3 3 の実施形態では、本開示は、別個の接着剤ストリップがそれぞれ、テープバックリング上に配置された接着剤を含む、第 3 0 ~ 第 3 2 の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

10

【 0 1 4 5 】

第 3 4 の実施形態では、本開示は、別個の接着剤ストリップがそれぞれ、片面粘着テープを含む、第 3 3 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 4 6 】

第 3 5 の実施形態では、本開示は、別個の接着剤ストリップがそれぞれ、バックリングの対向する二つの表面上に配置された接着剤を含む、第 3 3 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 4 7 】

20

第 3 6 の実施形態では、本開示は、テープバックリングが、ポリアミド、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリエステル、フッ素プラスチック、ポリフェニレンサルファイド、ポリスルホン、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルケトン、又はポリスチレンのうちの少なくとも一つを含む、第 3 4 又は第 3 5 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 4 8 】

第 3 7 の実施形態では、本開示は、非晶質フルオロポリマーが、プロモ又はヨード硬化部位を含む、第 3 0 ~ 第 3 6 の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【 0 1 4 9 】

第 3 8 の実施形態では、本開示は、接着剤が、架橋剤を更に含む、第 3 0 ~ 第 3 7 の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

30

【 0 1 5 0 】

第 3 9 の実施形態では、本開示は、架橋剤が、トリ(メチル)アリルイソシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、トリ(メチル)アリルシアヌレート、ポリ-トリアリルイソシアヌレート、キシレン-ビス(ジアリルイソシアヌレート)、N, N' - m - フェニレンビスマレイミド、フタル酸ジアリル、トリス(ジアリルアミン) - s - トリアジン、亜リン酸トリアリル、1, 2 - ポリブタジエン、エチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、又は、 $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{R}_{f1} - \text{CH} = \text{CH}_2$ [式中、 R_{f1} は、1 ~ 8 個の炭素原子を有するペルフルオロアルキレンである] のうちの少なくとも一つを含む、第 3 8 の実施形態の構成要素を提供する。

40

【 0 1 5 1 】

第 4 0 の実施形態では、本開示は、接着剤が、ペルオキシドを更に含む、第 3 0 ~ 第 3 9 の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【 0 1 5 2 】

第 4 1 の実施形態では、本開示は、ペルオキシドが、アシルペルオキシド又はジアシルペルオキシドである、第 4 0 の実施形態の構成要素を提供する。

【 0 1 5 3 】

第 4 2 の実施形態では、本開示は、接着剤が、可塑剤を更に含む、第 3 0 ~ 第 4 1 の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【 0 1 5 4 】

50

第４３の実施形態では、本開示は、可塑剤が、アニオン及びカチオンを有するイオン性液体を含む、第４２の実施形態の構成要素を提供する。

【０１５５】

第４４の実施形態では、本開示は、イオン性液体のカチオンが、 N -エチル- N' -メチルイミダゾリウム N -メチル- N -プロピルピペリジニウム、 N , N , N -トリメチル- N -プロピルアンモニウム、 N -メチル- N , N , N -トリプロピルアンモニウム、 N , N , N -トリメチル- N -ブチルアンモニウム、 N , N , N -トリメチル- N -メトキシエチルアンモニウム、 N -メチル- N , N , N -トリス(メトキシエチル)アンモニウム、 N -メチル- N , N , N -トリブチルアンモニウム、 N , N , N -トリメチル- N -ヘキシルアンモニウム、 N , N -ジエチル- N -メチル- N -(2-メトキシエチル)アンモニウム、1-プロピル-テトラヒドロチオフェニウム、1-ブチル-テトラヒドロチオフェニウム、グリシジルトリメチルアンモニウム、 N -エチル- N -メチルモルホニウム、 N , N , N -トリオクチルアンモニウム、 N -メチル- N , N , N -トリオクチルアンモニウム、 N -メチル- N , N , N -トリブチルアンモニウム、 N , N -ジメチル- N -オクチル- N -(2-ヒドロキシエチル)アンモニウム、及びこれらの組み合わせから選択される、第４３の実施形態の構成要素を提供する。

10

【０１５６】

第４５の実施形態では、本開示は、イオン性液体のアニオンが、ビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、ビス(ペンタフルオロエタンスルホニル)イミド、ビス(ヘプタフルオロプロパンスルホニル)イミド、ビス(ノナフルオロブタンスルホニル)イミド、トリフルオロメタンスルホネート、ペンタフルオロエタンスルホネート、ヘプタフルオロプロパンスルホネート、ノナフルオロブタンスルホネート、トリス(トリフルオロメタンスルホニル)メチド、トリス(ペンタフルオロエタンスルホニル)メチド、トリス(ヘプタフルオロプロパンスルホニル)メチド、トリス(ノナフルオロブタンスルホニル)メチド、及びこれらの組み合わせから選択される、第４３又は第４４の実施形態の構成要素を提供する。

20

【０１５７】

第４６の実施形態では、本開示は、構成要素が、電解質膜である、第３０～第４５の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【０１５８】

第４７の実施形態では、本開示は、構成要素が、触媒コーティングされた膜である、第３０～第４５の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

30

【０１５９】

第４８の実施形態では、本開示は、構成要素が、集電体である、第３０～第４５の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【０１６０】

第４９の実施形態では、本開示は、構成要素が、触媒コーティングされた集電体である、第３０～第４５の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を提供する。

【０１６１】

第５０の実施形態では、本開示は、第３０～第４９の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を備える電気化学セルを提供する。

40

【０１６２】

第５１の実施形態では、本開示は、第３０～第４９の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を備える燃料電池を提供する。

【０１６３】

第５２の実施形態では、本開示は、第３０～第４９の実施形態のいずれか一つに記載の構成要素を備えるフロー電池を提供する。

【０１６４】

限定的なものではないが、以下の具体的な実施例は、本開示を例証するのに役立つであろう。

50

【実施例】

【0165】

この節では以下の略語が使用される：m i n = 分、m = メートル、c m = センチメートル、m m = ミリメートル、i n = インチ、k P a = キロパスカル、k g = キログラム、p s i = 1 平方インチ当たりポンド、N = ニュートン。

【0166】

材料

【0167】

【表1】

表1. 実施例で用いた材料

10

略語	説明
CIPG 1951	3M Company (St. Paul, MN) から商品名「3M (登録商標) DYNEON (登録商標) CIPG 1951」で入手可能なPTFEバックিং及びフルオロエラストマー接着剤を有する現場硬化型接着剤ストリップ
KAPTON (登録商標)	E. I. du Pont de Nemours and Company から商品名「KAPTON HN」で入手したポリイミドフィルム

【0168】

ガスケットの特性評価

圧力試験

20

ガスケットのシール性能を圧縮空気を用いて測定した。試験装置は、厚さ 1 . 2 7 c m (0 . 5 インチ) 及び 1 0 0 m m の縁部を有する正方形の二つのアルミニウムプレートを含んでいた。一つの正方形プレートの中心は、ねじ切りされた孔により貫通して、圧縮空気供給源へのプレートの接続を可能にした。打抜きエラストマーシールが穴あけされたプレートの中央に置かれ、実施例又は対照例のガスケットは、1 0 1 . 6 m m (4 インチ) の縁部を有する K A P T O N (登録商標) フィルムの正方形片及び他の正方形プレートに積層した。積層されたフィルムは、テープを K A P T O N (登録商標) フィルム及びエラストマーの両方に接触して、エラストマーとアルミニウムプレートとの間に配置した。両方のプレートの四つの角の付近の孔を貫通して締結された 4 本のボルトを使用して、トルクレンチを使用してボルトを締め、6 . 8 N ・ m (6 0 インチ ・ ポンド) のトルクを加えることにより、圧力をシール、ガスケット、及びフィルムに適用した。気体圧力レギュレータを使用して 2 8 0 k P a の空気圧を適用した後で、圧縮空気供給源とレギュレータとの間の弁を閉じて、レギュレータの装置側の圧力を経時的に記録した。

30

【0169】

剥離強度

I n s t r o n C o r p . (N o r w o o d , M A) から入手可能な I N S T R O N (登録商標) M o d e l 1 1 2 5 T e s t e r を使用して、剥離強度を測定し、以下の逸脱を有して A S T M D 1 8 7 6 - 0 1 に従って、K A P T O N (登録商標) 基材上の試料を測定し、以下の逸脱を付して A S T M D 3 3 3 0 / D 3 3 3 0 M , M e t h o d A に従って、ステンレス鋼基材上の試料を測定した。

40

- ・クロスヘッド速度は、3 0 0 m m / m i n に設定した。
- ・試料は、2 5 . 4 m m の幅を有した。
- ・試料 (1 5 . 2 c m) の接着長さの中間 6 0 % の剥離強度を測定した (接着長さの最初の 2 0 % 及び最後の 2 0 % の剥離からの値は、省略した) 。
- ・試料から剥離ライナーを除去した後、試料を基材に適用し、試料を、2 k g のハンドローラを使用して 4 回手でロールがけした。
- ・ロールがけした後で、試験片は、1 3 0 及び 2 7 5 k P a (4 0 p s i) で 3 分間、熱及び圧力をかけて硬化させ、試験前に室温まで冷却させたか、又は直ちに試験したか、のいずれかであった。
- ・報告した値は、三つの試料に対する判定の平均である。

50

【0170】

実施例1 (EX - 1)

ガスケットは、25.4mm幅の接着剤ストリップから76.2mm(3インチ)の長さで切断して作製した。ストリップは、図2に示す配置にそれぞれのストリップの接着剤側をフィルムに向けて、KAPTON(登録商標)フィルムの切片上に配置した。ガスケットは、熱プレス(Wabash MPI(Wabash, IN)から入手した)を使用して130 及び275 kPa(40 psi)の熱及び圧力を3分間加えて硬化させた。室温に冷却した後で、ガスケットは、圧力試験をした。圧力試験の結果を、以下の表2にまとめる。

【0171】

10

例示的实施例1 (IE - 1)

ガスケットは、ガスケットがCIPG 1951と同じ方法で作製された接着剤ストリップから打抜かれたが25.4mm幅のストリップに切断された以外は、EX - 1におけるように作製して試験した。打抜きガスケットは、101.6mm(4インチ)の辺を有する正方形の周囲を有し、その周囲内に中心がおかれた50.8mm(2インチ)の辺を有する正方形の材料を中心から除去した。圧力試験の結果を、表2にまとめる。

【0172】

例示的实施例2 (IE - 2)

ガスケットは、ガスケットが熱及び圧力で硬化されなかった以外は、EX - 1について説明したように作製した。圧力試験の結果を、表2にまとめる。

20

【0173】

例示的实施例3 (IE - 3)

ガスケットは、ガスケットが熱及び圧力で硬化されなかった以外は、IE - 1について説明したように作製した。圧力試験の結果を、表2にまとめる。

【0174】

【表 2】

表2. 圧力低下

NM＝測定しなかった

時間(秒)	圧力(kPa)			
	EX-1 ストリップ、 硬化	IE-1 打抜き、 硬化	IE-2 ストリップ、 未硬化	IE-3 打抜き、 未硬化
0	276	276	276	276
8	NM	NM	262	NM
16	NM	NM	242	NM
28	NM	NM	221	NM
40	NM	NM	207	NM
52	NM	NM	193	NM
60	276	276	NM	276
70	NM	NM	179	NM
85	NM	NM	173	NM
109	NM	NM	166	NM
120	276	276	NM	276
138	NM	NM	159	NM
179	NM	NM	152	NM
238	NM	NM	145	NM
240	276	276	NM	276
400	276	276	138	276
500	276	276	NM	276

10

20

【0175】

実施例2 (EX - 2)

KAPTON (登録商標) 基材に接着して試験前に硬化したCIPG 1951のストリップに対して、剥離強度を測定した。剥離強度を下記の表3に報告する。

30

【0176】

実施例3 (EX - 3)

ステンレス鋼基材に接着して試験前に硬化したCIPG 1951のストリップに対して、剥離強度を測定した。剥離強度を表3に報告する。

【0177】

例示的实施例4 (IE - 4)

CIPG 1951のストリップが試験前に硬化されなかった以外は、EX - 2について説明したように剥離強度を測定した。剥離強度を表3に報告する。

【0178】

例示的实施例5 (IE - 5)

CIPG 1951のストリップが試験前に硬化されなかった以外は、EX - 3について説明したように剥離強度を測定した。剥離強度を表3に報告する。

40

【0179】

【表 3】

表3. 剥離強度

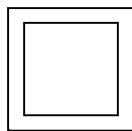
実施例又は対照例	基材	剥離強度(N/cm)
EX-2	KAPTON(登録商標)	5.8
EX-3	ステンレス鋼	5.3
IE-4	KAPTON(登録商標)	0.4
IE-5	ステンレス鋼	0.2

【 0 1 8 0 】

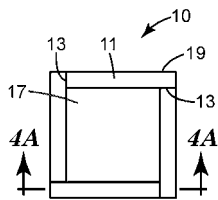
本開示の範囲及び趣旨から逸脱することなく、当業者によって、本開示の様々な修正及び変更を実施することができ、また、本発明は、本明細書に記載される例示的な実施形態に、過度に限定されるものではないことを理解されたい。

10

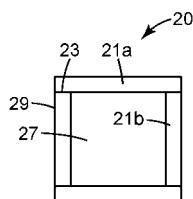
【 図 1 】

**Fig. 1**
先行技術

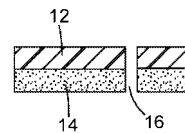
【 図 2 】

**Fig. 2**

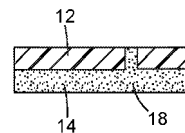
【 図 3 】

**Fig. 3**

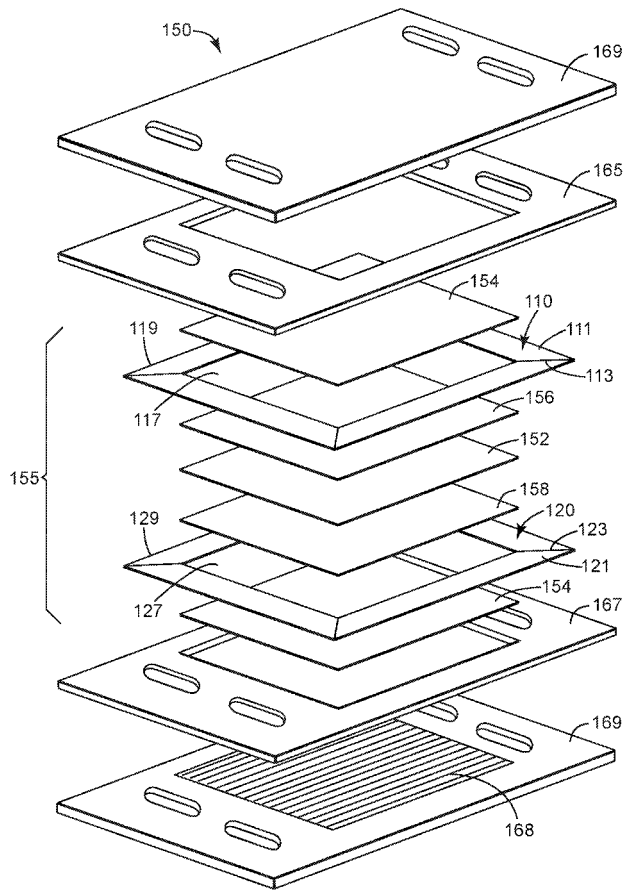
【 図 4 A 】

**Fig. 4A**

【 図 4 B 】

**Fig. 4B**

【図 5】

**Fig. 5**

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US2017/037604
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
H01M 8/0276 (2016.01) H01M 8/0284 (2016.01) H01M 8/0286 (2016.01) H01M 8/0271 (2016.01) H01M 8/242 (2016.01) C09J 127/12 (2006.01)		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
PATENW, Google Patents, Espacenet: IPC & CPC (H01M8/0271/LOW, H01M4/623, H01M8/0284/LOW, C09J2203/33, H01M8/242/LOW, H01M/LOW, C09J5/06, C09J7/0203/LOW, C09J7/0207/LOW, C09J7/0242, C09J7/0246, C09J7/043, C09J7/045, C09J127/12/LOW, H01M2/168, C09J/LOW, H01M8/LOW, C25B13/08/LOW, C25B/LOW) and Keywords (adhesive, sticky, glue, gum, stuck, tape, band, strip, ribbon, fluoropolymer, fluorine, fluoro, fluorinated, polymer, amorphous, unordered, non-crystalline, 'CIPG 1951', Dyneon, heat, thermal, treatment, press, compress, pressure, cure, crosslink, curable, bromo, iodo, site, periphery, perimeter, surrounding, boundary, fringe, border, circumference, separate, individual, discrete, membrane, electrode, electrolyte, current, collector, 'fuel cell', gasket, seal, spacer, barrier and like terms in various combinations). Google Internet: Keywords as for PATENW, Google Patents, Espacenet. Applicant and Inventor names ('3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY', 'Fukushi, Tatsuo', 'Yandrasits, Michael A', 'Haugen, Gregory M') searched in Espacenet, AusPat and internal databases provided by IP Australia.		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Documents are listed in the continuation of Box C	
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C ☒ See patent family annex		
* "A"	Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	
Date of the actual completion of the international search 28 September 2017		Date of mailing of the international search report 28 September 2017
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustalia.gov.au		Authorised officer Andrew Rapson AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. +61262832624

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		PCT/US2017/037604
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2015/0240134 A1 (TESE SE) 27 August 2015 Abstract; paragraphs 0023-0024, 0028, 0032, 0047-0052, 0085, 0097, 0104-0105, 0122-0125, 0178; claim 21; Figures 1-4	1-3, 5, 7
Y	As above, and paragraphs 0066-0067	4, 6, 8-16
Y	US 2005/0181267 A1 (MITSUTA ET AL.) 18 August 2005 Abstract; paragraphs 0013, 0015-0020, 0030-0032, 0044-0046, 0050, 0052; claims 9-12; Figures 1-4	6, 8-16
Y	US 2008/0199781 A1 (LUNT ET AL.) 21 August 2008 Abstract; paragraphs 0005, 0020-0021, 0027, 0038-0039, 0041, 0043, 0050; claims 1, 3, 13; Figures 1-4	4, 8-16
Form PCT/ISA/210 (fifth sheet) (July 2009)		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/US2017/037604	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
US 2015/0240134 A1	27 August 2015	US 2015240134 A1	27 Aug 2015
		US 9631127 B2	25 Apr 2017
		CN 104736654 A	24 Jun 2015
		DE 102012219877 A1	27 Feb 2014
		EP 2888330 A1	01 Jul 2015
		EP 2888330 B1	21 Jun 2017
		IN 1249DEN2015 A	26 Jun 2015
		JP 2015531807 A	05 Nov 2015
		KR 20150050571 A	08 May 2015
		TW 201418392 A	16 May 2014
		TW I582188 B	11 May 2017
		WO 2014029545 A1	27 Feb 2014
US 2005/0181267 A1	18 August 2005	US 2005181267 A1	18 Aug 2005
		EP 1569291 A1	31 Aug 2005
		EP 1569291 B1	21 Nov 2012
		JP 2004172095 A	17 Jun 2004
		JP 4421260 B2	24 Feb 2010
		JP 2004214172 A	29 Jul 2004
		JP 4421261 B2	24 Feb 2010
		JP 2004172096 A	17 Jun 2004
		JP 4426248 B2	03 Mar 2010
US 2008/0199781 A1	21 August 2008	WO 2004040681 A1	13 May 2004
		US 2008199781 A1	21 Aug 2008
		US 2011274980 A1	10 Nov 2011
		WO 2008103271 A1	28 Aug 2008
End of Annex			
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.			

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I		テーマコード (参考)	
H 0 1 M 8/1007 (2016.01)	H 0 1 M	8/1007		
H 0 1 M 8/18 (2006.01)	H 0 1 M	8/18		
H 0 1 M 8/10 (2016.01)	H 0 1 M	8/10	1 0 1	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT

(72)発明者 福士 達夫
アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 , セント ポール , ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7 , スリーエム センター

(72)発明者 ヤンドラシッツ , マイケル エー .
アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 , セント ポール , ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7 , スリーエム センター

(72)発明者 ハウゲン , グレゴリー エム .
アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 , セント ポール , ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7 , スリーエム センター

F ターム(参考) 3J040 BA04 FA05 FA07 FA20 HA01 HA30
5H126 AA02 AA13 BB06 BB10 FF07 GG19 HH01 HH02 JJ02