

(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2010-521788

(P2010-521788A)

(43) 公表日 平成22年6月24日 (2010.6.24)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/02 E	5 H O 1 8
HO 1 M 8/10 (2006.01)	HO 1 M 8/10	5 H O 2 6
HO 1 M 4/90 (2006.01)	HO 1 M 8/02 P	
HO 1 M 4/86 (2006.01)	HO 1 M 4/90 M	
HO 1 M 4/92 (2006.01)	HO 1 M 4/86 M	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 19 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2009-553975 (P2009-553975)
 (86) (22) 出願日 平成20年3月20日 (2008.3.20)
 (85) 翻訳文提出日 平成21年9月11日 (2009.9.11)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2008/002269
 (87) 国際公開番号 W02008/116604
 (87) 国際公開日 平成20年10月2日 (2008.10.2)
 (31) 優先権主張番号 102007014046.2
 (32) 優先日 平成19年3月23日 (2007.3.23)
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

(71) 出願人 503306168
 フラウンホーファー・ゲゼルシャフト・ツ
 ール・フェルデルング・デア・アンゲヴァ
 ンテン・フォルシュング・エー・ファウ
 ドイツ連邦共和国、80686 ミュンヘ
 ン、ハンザストラーセ、27ツェー
 (74) 代理人 110000475
 特許業務法人みのり特許事務所
 (72) 発明者 オスツイボク、ミヒャエル-カルステン
 ドイツ連邦共和国、79102 フライブ
 ルク、ヒンデンブルクシュトラッセ 6
 (72) 発明者 エッカリウス、シュテフェン
 ドイツ連邦共和国、79106 フライブ
 ルク、レーエレル シュトラッセ 156

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池およびその製造方法

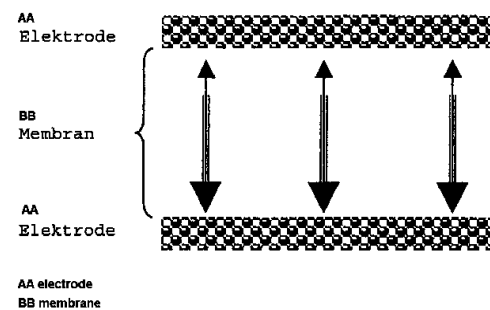
(57) 【要約】

【課題】本発明は、膜の対向側に配置され、カソード及びアノードとして機能する触媒層を有し、任意に、アノード側及び／又はカソード側のガス拡散層を有するイオン導電性膜から成る膜／電極ユニットを含む燃料電池に関する。

【解決手段】この燃料電池では、前記の膜／電極ユニットが、原料及び／又は生成物についての拡散輸送が異なる隣接領域を有している。同様に、本発明は、このような燃料電池の製造方法に関するものである。

【選択図】なし

Fig. 1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

イオン導電性膜から成る膜／電極ユニットを含む燃料電池であって、前記イオン導電性膜が、当該膜の対向面に配置された、アノード及びカソードとして機能する触媒層、並びに、任意に、アノード側及び／又はカソード側のガス拡散層を有しており、この際、前記の膜／電極ユニットが、原料及び／又は生成物についての拡散輸送が異なる隣接領域を有しているものにおいて、

拡散輸送が低い領域では、前記触媒層の少なくとも一つが、拡散輸送が高い領域にある触媒層よりも高い拡散障壁を有していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】

拡散輸送が高い領域では、前記触媒層の少なくとも一つが、拡散輸送が低い領域にある触媒層の層厚みに比べて少なくとも減少した層厚みを有していることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】

拡散輸送が高い領域では、前記触媒層の少なくとも一つが、完全に取り除かれていることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 4】

拡散輸送が低い領域に比べて拡散輸送が高い領域では、ガス拡散層の少なくとも一つが高い疎水性を有していることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 5】

拡散輸送が高い領域では、前記膜を通した前記原料及び／又は生成物の輸送工程が電気浸透によってではなく、本質的に拡散輸送により決定されるようにして前記の拡散障壁が選択されることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 6】

拡散輸送が高い領域と拡散輸送が低い領域との間で、原料及び／又は生成物の輸送のためのマイクロ循環が生じるようにして前記の拡散障壁が選択されることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 7】

前記の膜／電極ユニットが、生成物としての水についての拡散輸送が異なる隣接領域を有していることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 8】

より低い拡散輸送の前記領域の大きさが、 $100\text{ nm}^2 \sim 10\text{ mm}^2$ の範囲内であることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 9】

より低い拡散輸送の前記領域が、棒状、円状、正形状の形状を有していることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 10】

前記燃料電池が、水素 - ポリマー - 電解質 - 膜 - 燃料電池 (PEMFC) であることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 11】

水の拡散的な逆戻り輸送が、水の電気浸透的な輸送より優勢であるようにして前記の拡散障壁が選択されることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 12】

前記燃料電池が、アノード側での水供給を有していないことを特徴とする前記 2 つの請求項のうちの 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 13】

前記燃料電池が、直接酸化 - 燃料電池、特に直接アルコール - 燃料電池であることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 14】

還元電極から酸化電極への水の拡散的な輸送が、酸化電極から還元電極への水の電気浸透

10

20

30

40

50

的な輸送より優勢であるようにして前記の拡散障壁が選択されることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 15】

前記膜がポリマーから成ることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 16】

前記ポリマーが、官能性スルホン基を有したパーフルオロポリマー、ポリベンズイミダゾール (PBI)、ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)、スルホン化ポリエーテルエーテルケトン (sPEEK) 及び、これらの混合物及びコポリマーからなるグループより選ばれたものであることを特徴とする前記請求項に記載の燃料電池。

10

【請求項 17】

前記膜がプロトン伝導性であることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 18】

前記膜がアニオン伝導性であることを特徴とする請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 19】

前記膜が均質に構成されていることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 20】

前記膜が不均質に構成されていることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

20

【請求項 21】

前記膜が、前記拡散的 - 及び / 又は電気浸透的な輸送を制御するための機能的にコーティングされた粒子を有していることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 22】

前記触媒層が、白金、ルテニウム、鉄、ニッケル、コバルト、錫及び / 又はこれらの合金又は混合物を含んでいることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 23】

前記燃料電池が更に、少なくとも 1 つの流体分配構造と、少なくとも 1 つの、液体燃料のガス状成分を除去するための装置を有していることを特徴とする前記請求項のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

30

【請求項 24】

前記のガス除去装置が、マイクロ構造化された形態である前記流体分配構造であり、前記流体分配構造からのガス状媒体の運搬を促進することを特徴とする前記請求項に記載の燃料電池。

【請求項 25】

前記の流体分配構造が、T 字状の横断面を有した少なくとも 1 つの流路を有することを特徴とする前記請求項に記載の燃料電池。

40

【請求項 26】

前記燃料電池が、アノード側に、ガス透過性で液体不透過性の遮断層を少なくとも 1 つ有しており、当該遮断層によって、前記流体分配構造において液体が保持され、前記流体分配構造から反応ゾーンへのガスが運搬可能であることを特徴とする請求項 1 ~ 23 のいずれか 1 項に記載の燃料電池。

【請求項 27】

前記遮断層の少なくとも 1 つが、疎油性膜、ナノ濾過膜、例えば多孔性膜、浸透気化膜、例えば PDMS - 膜、又はセラミックから成ることを特徴とする前記請求項に記載の燃料電池。

【請求項 28】

50

前記請求項のいずれか１項に記載の燃料電池を製造するための方法であって、当該方法では、前記膜の少なくとも一方の表面に、スクリーン印刷、スプレー塗装、ナイフコーティング、タンポン印刷又は転写法によって範囲限定して触媒層を設けることを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項２９】

前記請求項のいずれか１項に記載の燃料電池を製造するための方法であって、当該方法では、前記膜の少なくとも一方の表面に触媒層をコーティングし、しかも、拡散輸送が高い領域が、レーザー照射による当該領域での前記触媒層の層厚みの減少又は完全除去により製造されることを特徴とする燃料電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【０００１】

本発明は、イオン導電性膜から成る膜／電極ユニットを含む燃料電池であって、前記イオン導電性膜が、当該膜の対向面に配置された、アノード及びカソードとして機能する触媒層、並びに、任意に、アノード側及び／又はカソード側のガス拡散層を有しており、この際、前記の膜／電極ユニットが、原料及び／又は生成物についての拡散輸送が異なる隣接領域を有するものに関する。又、本発明は、このような燃料電池を製造するための方法に関するものでもある。

【背景技術】

【０００２】

20

燃料電池は、化学的エネルギーを直接、電気エネルギーに変換する。そのために、反応物質は、ガス状又は液体の形態で連続的に燃料電池へ供給される。この電気化学変換は、還元性種もしくは酸化性種の物理的な分離、例えば、両面に触媒がコーティングされたイオン交換膜、いわゆる電極によって可能となる。

【０００３】

イオンの望ましい輸送の他に、実際の運転においては、上記膜を通った反応物質と水との望ましくない分散制御された輸送が生じる。これによって、多くの望ましくない付随現象、例えば、膜の乾燥や電極での望ましくない副反応が起きる。更に別の望ましくない効果は、イオンと一緒に膜を通過する水もしくは液体燃料の電気浸透輸送に基づくものである。物理法則に基づいて、このような効果は、常に互いに関連している。その際、個々の効果の割合は、動作点(Betriebspunkt)に応じて種々変化する。しばしば、燃料電池システムの動作点は、安定した長期運転ができるように、異なる連結輸送機構の間に許容可能な関係が生じるようにして選択しなければならない。しかし、この際、上記システムは効率の良い又は非常に生産性の高い動作点で運転できないことが生じ得る。

30

【０００４】

いくつかの燃料、例えばアルコール又は化学水素化物の場合には、上記の燃料を酸化させるために水が必要である。上記の輸送機構に基づいて、上記混合物は、望ましい一定の比率ではなく、それどころか変更されて、直接、触媒上に残存する。このことにより、物質輸送阻止と、それに引き続く燃料電池の効率損害が引き起こされることがある。

【０００５】

40

従来技術では、例えば、膜への粒子や中間層の導入によって、電気浸透性である反応物質とイオンの輸送に関する輸送現象を切り離すことが求められている。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００６】

それゆえ、本発明の課題は、燃料電池における輸送過程に関する上記の問題点を回避する燃料電池を提供することである。特に、容易に操作でき、容易に製造可能なシステムに関するものである。

【課題を解決するための手段】

【０００７】

50

このような課題は、請求項 1 の特徴を有した燃料電池及び、請求項 2 8 又は 2 9 の特徴を有した方法によって解決される。更に従属項には、好ましい具体例が示されている。

【発明の効果】

【0008】

本発明によれば、膜の対向面に配置された、アノード及びカソードとして機能する触媒層を有するイオン導電性膜から成る膜 - 電極 - ユニットを含む燃料電池が提供される。更に、この燃料電池は、任意にアノード側及び / 又はカソード側のガス拡散層を含む。この際、この膜 - 電極 - ユニットは、原料及び / 又は生成物についての拡散輸送が異なる隣接領域を有する。これにより、拡散輸送が低い領域では、触媒層の少なくとも一つが、拡散輸送が高い領域にある触媒層よりも高い拡散障壁を示すか、あるいは高い拡散障壁を有することが実現化される。

10

【図面の簡単な説明】

【0009】

【図 1】図 1 には、図描写によって、これまでの技術から一般的に知られている燃料電池における輸送過程が示されている。

【図 2】図 2 には、本発明の燃料電池における輸送過程が図示されている。

【発明を実施するための形態】

【0010】

そこで、本発明には、電極に階調を付けることによって輸送現象の受動的な分断を行なうことが述べられている。電極の内部には、唯一の、あるいは少なくとも高められた拡散性の物質輸送が可能である領域が形成される。このような領域が、電気浸透的な交換も起こり得る領域の非常に近くに存在することにより、燃料電池の駆動が受動的に最適化され、これは、膜の内部に生じるマイクロ循環によって、原料又は生成物の最適な加湿状態が維持されるからである。このようなマイクロ循環は、電極上での選択された位置における触媒層を完全に取り除くことで促進できる。この触媒層は、水もしくは燃料に対する拡散抵抗を示すので、触媒層を薄くするだけでも十分である。触媒層の厚みを減少させたり、完全に撤去することにより、この抵抗を小さくすることができる。

20

【0011】

階調を設けた上記電極により、受動的な方法を伴った最適な運転条件が達成でき、これにより、寄生的なエネルギー投資は不必要となる。そのために、水再循環システム又は気体 / 気体 - 加湿装置を複雑化しなくてすむ。又、プロセス工学的な費用もかなり少なくなり、そして、これに関連してコストが下がり、システムの安定性が高くなる。更に本発明は、受動的な電気化学電池に特に適しており、この電池では、付随する構成部分を運転するために少しのエネルギーだけで良いか、もしくは全くエネルギーを必要としない。

30

【0012】

好ましい実施態様は、燃料電池の高い拡散輸送を有した領域では、触媒層の少なくとも一つが、燃料電池の低い拡散輸送を有した領域にある触媒層の層厚みに比べて少なくとも減少した層厚みを有することをもたらす。更に好ましい形態は、拡散輸送が高い領域において、触媒層の少なくとも一つが完全に取り除かれることで、この部分に他の領域よりも低い拡散障壁が存在することをもたらす。

40

【0013】

更に別の好ましい形態は、拡散輸送が低い領域に比べて拡散輸送が高い領域では、ガス拡散層の少なくとも一つが高い疎水性を有することをもたらす。疎水性が高い領域では、水の濃度が上昇し、これによって、膜を通しての拡散がこれらの領域で増加する。

【0014】

更に別の好ましい実施態様は、拡散輸送が高い領域では、膜を通しての原料及び / 又は生成物の輸送過程が電気浸透によってではなく、本質的に拡散輸送により決定されるようにして拡散障壁が選択されることをもたらす。この拡散障壁は好ましくは、拡散輸送が高い領域と拡散輸送が低い領域との間で、原料及び / 又は生成物の輸送のためのマイクロ循環が生じるようにして選択される。

50

【 0 0 1 5 】

拡散特性は、燃料電池、例えば D M F C における生成物としての水に合わせることが好ましい。

【 0 0 1 6 】

拡散輸送が低い領域と拡散輸送が高い領域の大きさに関してはいずれも、原則的には限定されない。拡散輸送が低い領域の大きさは、 $100\text{ nm}^2 \sim 10\text{ mm}^2$ の範囲内であることが好ましい。このことは、拡散輸送が高い領域についても言える。これらの領域の形状は限定されないが、棒状、円状又は正方形形状の形状であることが好ましい。

【 0 0 1 7 】

好ましい実施形態は、燃料電池が、水素 - ポリマー - 電解質 - 膜 - 燃料電池 (P E M F C) であるものを提供する。この際、拡散障壁は、水の拡散的な逆戻りする輸送が、燃料電池内の水の電気浸透的な輸送より優勢であるようにして選択されることが好ましい。この場合、アノード側で水の供給がされないことが好ましい。

10

【 0 0 1 8 】

第 2 の好ましい実施態様は、燃料電池が、直接酸化 - 燃料電池、特に直接アルコール - 燃料電池であるものを提供する。この際、拡散障壁は、酸化電極から還元電極への水の拡散的な輸送が、カソードからアノードへの水の電気浸透的な輸送より優勢であるようにして選択されることが好ましい。

【 0 0 1 9 】

膜 - 電極 - ユニットの膜は、ポリマーから成ることが好ましい。このようなポリマーは、スルホン基を含有するパーフルオロポリマー (S P E)、例えばナフィオン、ポリベンズイミダゾール (P B I)、ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)、スルホン化ポリエーテルエーテルケトン (s P E E K) 及び、これらの混合物及びコポリマーからなるグループより選ばれたものであることが好ましい。

20

【 0 0 2 0 】

更に、上記の膜はプロトン伝導性であることが好ましい。これは、公知の燃料電池の普及している変形例に関しても言える。

【 0 0 2 1 】

この際、膜は、均質に構成されていても、不均質に構成されていても良い。別の好ましい変形例においては、膜は更に、拡散的 - 及び / 又は電気浸透的な輸送を制御するための機能的にコーティングされた粒子を有していても良い。

30

【 0 0 2 2 】

上記の燃料電池に含まれる触媒層は、白金、ルテニウム、鉄、ニッケル、コバルト及び / 又はこれらの合金又は混合物を含むか、あるいは、これらから成ることが好ましい。

【 0 0 2 3 】

別の好ましい実施形態は、燃料電池が更に、少なくとも 1 つの流体分配構造と、少なくとも 1 つの、液体燃料のガス状成分を除去するための装置を有することをもたす。この際、ガス除去装置は、マイクロ構造化された形態の流体分配構造であって良く、流体分配構造からのガス状媒体の運搬を促進する。このために、例えば上記の流体分配構造が、T 字状の横断面を有した少なくとも 1 つの流路を有することが可能である。

40

【 0 0 2 4 】

これとは別のガス除去の可能性は、燃料電池が、アノード側に、ガス透過性で液体不透過性の遮断層を少なくとも 1 つ有し、当該遮断層によって、流体分配構造における液体が保持され、流体分配構造から反応ゾーンへガスが運搬可能であることをもたす。

【 0 0 2 5 】

最後に述べた場合において、前記の遮断層は、疎油性膜、ナノ濾過膜、例えば多孔性膜、浸透気化膜、例えば P D M S - 膜、又はセラミックであることが好ましい。

【 0 0 2 6 】

本発明によれば、同様に、先に記載したような燃料電池を製造するための方法が提供され、この方法においては、上記の膜の少なくとも一方の表面に触媒層がコーティングされ

50

、しかも、拡散輸送が高い領域が、レーザー照射による当該領域での触媒層の層厚みの減少又は完全除去により形成される。

【 0 0 2 7 】

先に記載したような燃料電池の製造についての更に別の変形例は、燃料電池の膜の少なくとも一方の表面に、スクリーン印刷、スプレー塗装、ナイフコーティング、タンボン印刷又は転写法によって範囲限定して触媒層を設けることに基づく。

【 0 0 2 8 】

以下の実施例に基づいて、本発明の対象を更に詳細に説明するが、ここに示されている特別な実施形態に限定されるものではない。

【 0 0 2 9 】

図 1 には、図描写によって、これまでの技術から一般的に知られている燃料電池における輸送過程が示されている。この際、小さい方の矢印は、イオン輸送と電気浸透的な水輸送を示しており、一方、大きい方の矢印は、拡散駆動される水輸送を示している。

【 0 0 3 0 】

図 2 には、本発明の燃料電池における輸送過程が図示されている。この図において、拡散駆動される水輸送によって単独で決定される領域が明らかにされている一方、他の領域では、従来の輸送過程、即ち、電気浸透的な水輸送だけでなく、拡散駆動される水輸送も示されている。これらの領域の間では、水のマイクロ循環が生じ、図面においては円軌道によって示されている。

【 実施例 】

【 0 0 3 1 】

実施例 1

水素 - / 空気 - 駆動膜燃料電池

電池の内部に、異なった湿度を生じさせる。空気吸込み口の領域では、膜を例えば乾燥させ、排出領域においては湿らせる。水がプロトンと一緒に水素側から空気側へ電気浸透的に輸送され、かつ、生成水の拡散的な逆戻り輸送が支配的となるために、膜は乾燥する（図 1 参照）。

【 0 0 3 2 】

このような場所では、本発明によって水が拡散する通路が作り出され、この拡散通路は、電気浸透的な輸送に支配されず、それゆえ、それから切り離される。その結果、ミクロスケールの水循環が形成され、この水循環は、膜における水含有量の均一化をもたらす（図 2 参照）。

【 0 0 3 3 】

実施例 2

メタノール - / 空気 - 駆動膜燃料電池

直接メタノール - 燃料電池の場合、メタノールを酸化させるために、反応のための水も存在しなければならない。このような水は、典型的には、水 - メタノール混合物の入ったタンクからメタノールと一緒に供給される。これによって、燃料のエネルギー密度がかなり減少される。本発明により電極に階調を設けることによって、反応相手として利用可能となるために、生成水が、分離された様式でメタノール側に拡散可能である。直接メタノール - 燃料電池のカソードでは、アノードで消費されるより多くの水が生じる。その点では、濃度勾配は、電気浸透的な移動に対向する、アノードへの水の流れをもたらす。触媒層の部分的なもしくは完全な階調によって、水の逆戻り輸送を高めることができる。この結果、メタノール貯蔵タンクの濃度を 1 0 0 % にまで高めることができ、これによって、エネルギー密度は、典型的に使用される低いパーセントの混合物に比べて何倍にも上昇する。好ましい実施態様では、カソード側だけ階調が設けられる。水が逆戻りすることは、周囲に対して開放されたカソード構造を有する自己発散電池の場合に、カソードでの付随して生じる生成水の処理において更なる利点をもたらす。

【 0 0 3 4 】

更に別の好ましい実施態様では、直接メタノール - 燃料電池のアノードは、燃料の 1 0

10

20

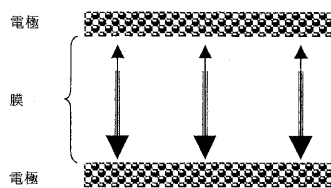
30

40

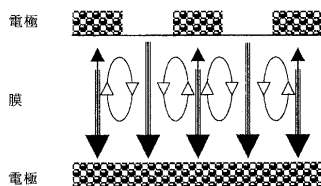
50

0 % 溶液によって駆動される。燃料を酸化させるために必要な水は、これまでの考え方とは反対に、カソード側に加えられ、階調を利用してアノード側に拡散され、遊離物として利用可能となる。親水性のガス拡散層は、電極が水で濡れるのを促進し、かつ、カソード側からアノードへの水の輸送を促進することができる。カソード生成水の更なる貯蔵の場合、例えばキャピラリー構造では、動的駆動段階の間もまた、原料濃度の受動的な調節を保證することが可能である。

【 図 1 】



【 図 2 】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2008/002269

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. H01M8/10 H01M4/86 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) H01M 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 practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 381 102 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]) 14 January 2004 (2004-01-14) paragraphs [0008], [0010], [0037], [0038], [0120]; claim 1; figures 1,3; table 2	1,2, 7-10,13, 15-20, 22,28
X	JP 08 088008 A (TOYOTA MOTOR CORP) 2 April 1996 (1996-04-02) abstract	1,8-10, 15-20, 22,28
X	WO 2006/106969 A (TOKYO SHIBAURA ELECTRIC CO [JP]; SATOH ASAKO [JP]; NEGISHI NOBUYASU [J]) 12 October 2006 (2006-10-12) claims 4,5; table 1 -/--	1,2, 7-10,13, 15-22
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "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) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "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 "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 "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 "S" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 11 Juni 2008		Date of mailing of the international search report 28/08/2008
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer: Reich, Claus

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2008/002269

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2005/227855 A1 (MANCO JUDITH [US] ET AL) 13 October 2005 (2005-10-13) paragraph [0027] -----	1,2,10
X	US 4 894 355 A (TAKEUCHI SEIJI [JP] ET AL) 16 January 1990 (1990-01-16) column 4, lines 34-52; figure 1 -----	1,10,13,23
X	EP 1 229 600 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]) 7 August 2002 (2002-08-07) claim 1; figures 6,7 -----	1,10,23
X	WO 2006/063611 A (PIRELLI & C SPA [IT]; LOPEZ CORREIA TAVARES ANA BERT [IT]; ANTONUCCI V) 22 June 2006 (2006-06-22) claim 1 -----	1,13,15-17,22
A	GB 2 422 716 A (INTELLIGENT ENERGY LTD [GB]) 2 August 2006 (2006-08-02) claim 1 -----	1-23,28,29
A	EP 0 878 860 A (MAZDA MOTOR [JP]) 18 November 1998 (1998-11-18) column 3, lines 27-58 -----	1-23,28,29

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2008/002269

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see the Supplemental Sheet

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1 (in part), 2-22, 23 (in part), 28, 29

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/EP2008/002269
--

The International Searching Authority has found that the international application contains multiple (groups of) inventions, as follows:

1. Claims 1 (in part), 2-22, 23 (in part), 28, 29

Fuel cell, comprising a membrane/electrode unit, wherein the membrane/electrode unit has adjacent regions with differing diffusion transport for feeds and/or products, characterized in that at least one of the catalyst layers has an at least reduced layer thickness in regions with higher diffusion transport compared to the layer thicknesses of the catalyst layers in regions with lower diffusion transport.

2. Claims 1 (in part), 23 (in part), 24, 25

Fuel cell according to claim 1 which additionally comprises at least one fluid distribution structure and at least one device for removing gaseous constituents from the liquid fuel, characterized in that the degassing device is provided in the form of a microstructuring of the fluid distribution structure which facilitates the evacuation of gaseous media from the fluid distribution structure, the fluid distribution structure comprising at least one channel with a T-shaped cross-section.

3. Claims 1 (in part), 26, 27

Fuel cell according to claim 1 which additionally comprises at least one barrier layer that is permeable to gases and impermeable to liquids on the anode side, whereby the liquids are held in the fluid distribution structure and the gases can be transported away from the fluid distribution structure to the reaction zone.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2008/002269

Parent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 1381102	A	14-01-2004	CN	1471186 A	28-01-2004
			US	2004058227 A1	25-03-2004
JP 8088008	A	02-04-1996	JP	3555196 B2	18-08-2004
WO 2006106969	A	12-10-2006	CN	101151754 A	26-03-2008
			EP	1883128 A1	30-01-2008
			KR	20070107149 A	06-11-2007
			US	2008020263 A1	24-01-2008
US 2005227855	A1	13-10-2005	NONE		
US 4894355	A	16-01-1990	DE	3576248 D1	05-04-1990
			EP	0184638 A2	18-06-1986
EP 1229600	A	07-08-2002	CN	1387682 A	25-12-2002
			WO	0117047 A1	08-03-2001
			US	6818339 B1	16-11-2004
WO 2006063611	A	22-06-2006	CA	2591671 A1	22-06-2006
			EP	1833887 A1	19-09-2007
			JP	2008524781 T	10-07-2008
			US	2008145732 A1	19-06-2008
GB 2422716	A	02-08-2006	AR	052364 A1	14-03-2007
			CA	2595342 A1	03-08-2006
			CN	101107739 A	16-01-2008
			EP	1844509 A1	17-10-2007
			WO	2006079781 A1	03-08-2006
			KR	20070107054 A	06-11-2007
			US	2008145738 A1	19-06-2008
EP 0878860	A	18-11-1998	DE	69810841 D1	27-02-2003
			DE	69810841 T2	07-08-2003
			ES	2186044 T3	01-05-2003
			JP	11031520 A	02-02-1999
			US	6103412 A	15-08-2000

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/002269

A. KLASSTIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES		
INV. H01M8/10 H01M4/86		
Nach der internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE		
Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)		
H01M		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
EPO-Internal		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 381 102 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]) 14. Januar 2004 (2004-01-14) Absätze [0008], [0010], [0037], [0038], [0120]; Anspruch 1; Abbildungen 1,3; Tabelle 2	1,2, 7-10,13, 15-20, 22,28
X	JP 08 088008 A (TOYOTA MOTOR CORP) 2. April 1996 (1996-04-02) Zusammenfassung	1,8-10, 15-20, 22,28
X	WD 2006/106969 A (TOKYO SHIBAURA ELECTRIC CO [JP]; SATOH ASAKO [JP]; NEGISHI NOBUYASU [J]) 12. Oktober 2006 (2006-10-12) Ansprüche 4,5; Tabelle 1	1,2, 7-10,13, 15-22
-/-		
☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts
11. Juni 2008		28/08/2008
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter Reich, Claus

7

Formblatt PCT/ISA210 (Blatt 2) (April 2005)

Seite 1 von 2

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2008/002269

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Bez. Anspruch Nr.
X	US 2005/227855 A1 (MANCO JUDITH [US] ET AL) 13. Oktober 2005 (2005-10-13) Absatz [0027]	1,2,10
X	US 4 894 355 A (TAKEUCHI SEIJI [JP] ET AL) 16. Januar 1990 (1990-01-16) Spalte 4, Zeilen 34-52; Abbildung 1	1,10,13, 23
X	EP 1 229 600 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [JP]) 7. August 2002 (2002-08-07) Anspruch 1; Abbildungen 6,7	1,10,23
X	WO 2006/063611 A (PIRELLI & C SPA [IT]; LOPEZ CORREIA TAVARES ANA BERT [IT]; ANTONUCCI V) 22. Juni 2006 (2006-06-22) Anspruch 1	1,13, 15-17,22
A	GB 2 422 716 A (INTELLIGENT ENERGY LTD [GB]) 2. August 2006 (2006-08-02) Anspruch 1	1-23,28, 29
A	EP 0 878 860 A (MAZDA MOTOR [JP]) 18. November 1998 (1998-11-18) Spalte 3, Zeilen 27-58	1-23,28, 29

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2008/002269

Feld Nr. II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein internationaler Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr. _____
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche diese Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich _____
2. ☐ Ansprüche Nr. _____
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, dass eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich _____
3. ☐ Ansprüche Nr. _____
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefasst sind.

Feld Nr. III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Diese internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung solcher Gebühren aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. _____
4. ☒ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Dieser internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfasst:
1(teilweise), 2-22, 23(teilweise), 28, 29

Bemerkungen hinsichtlich
eines Widerspruchs

- ☐ Der Anmelder hat die zusätzlichen Recherchegebühren unter Widerspruch entrichtet und die gegebenenfalls erforderliche Widerspruchsgebühr gezahlt.
- ☐ Die zusätzlichen Recherchegebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt, jedoch wurde die entsprechende Widerspruchsgebühr nicht innerhalb der in der Aufforderung angegebenen Frist entrichtet.
- ☐ Die Zahlung der zusätzlichen Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2008/002269

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1(teilweise), 2-22, 23(teilweise), 28, 29

Brennstoffzelle enthaltend eine Membran-Elektroden-Einheit, wobei die Membran-Elektroden-Einheit benachbarte Bereiche mit unterschiedlichem Diffusionstransport für Edukte und/oder Produkte aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass in den Bereichen mit höherem Diffusionstransport mindestens eine der Katalysatorschichten eine gegenüber den Schichtdicken der Katalysatorschichten in Bereichen mit niedrigerem Diffusionstransport zumindest reduzierte Schichtdicke aufweist.

2. Ansprüche: 1(teilweise), 23(teilweise), 24, 25

Brennstoffzelle nach Anspruch 1, die zusätzlich mindestens eine Fluidverteilungsstruktur und mindestens eine Vorrichtung zum Entfernen von gasförmigen Bestandteilen des flüssigen Brennstoffs aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass die Entgasungsvorrichtung in Form einer Mikrostrukturierung der Fluidverteilungsstruktur vorliegt, die den Abtransport von gasförmigen Medien aus der Fluidverteilungsstruktur begünstigt, wobei die Fluidverteilungsstruktur mindestens einen Kanal mit einem T-förmigen Querschnitt aufweist.

3. Ansprüche: 1(teilweise), 26, 27

Brennstoffzelle nach Anspruch 1, die zusätzlich anodenseitig mindestens eine für Gase durchlässige und für Flüssigkeiten undurchlässige Sperrschicht aufweist, wodurch die Flüssigkeiten in der Fluidverteilungsstruktur gehalten und die Gase aus der Fluidverteilungsstruktur zur Reaktionszone abtransportiert werden können.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2008/002269

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 1381102 A	14-01-2004	CN 1471186 A US 2004058227 A1	28-01-2004 25-03-2004
JP 8088008 A	02-04-1996	JP 3555196 B2	18-08-2004
WO 2006106969 A	12-10-2006	CN 101151754 A EP 1883128 A1 KR 20070107149 A US 2008020263 A1	26-03-2008 30-01-2008 06-11-2007 24-01-2008
US 2005227855 A1	13-10-2005	KEINE	
US 4894355 A	16-01-1990	DE 3576248 D1 EP 0184638 A2	05-04-1990 18-06-1986
EP 1229600 A	07-08-2002	CN 1387682 A WO 0117047 A1 US 6818339 B1	25-12-2002 08-03-2001 16-11-2004
WO 2006063611 A	22-06-2006	CA 2591671 A1 EP 1833887 A1 JP 2008524781 T US 2008145732 A1	22-06-2006 19-09-2007 10-07-2008 19-06-2008
GB 2422716 A	02-08-2006	AR 052364 A1 CA 2595342 A1 CN 101107739 A EP 1844509 A1 WO 2006079781 A1 KR 20070107054 A US 2008145738 A1	14-03-2007 03-08-2006 16-01-2008 17-10-2007 03-08-2006 06-11-2007 19-06-2008
EP 0878860 A	18-11-1998	DE 69810841 D1 DE 69810841 T2 ES 2186044 T3 JP 11031520 A US 6103412 A	27-02-2003 07-08-2003 01-05-2003 02-02-1999 15-08-2000

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 4/92

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

F ターム (参考) 5H018 AA06 AA07 AS01 DD01 DD08 DD10 EE02 EE03 HH02
5H026 AA06 AA08 CC10 CX01 CX05 EE02 EE18 EE19 HH02