【公報種別】特許法第１７条の２の規定による補正の掲載
【部門区分】第７部門第１区分
【発行日】平成20年2月14日(2008.2.14)

【公表番号】特表2007-519213(P2007-519213A)
【公表日】平成19年7月12日(2007.7.12)
【年通号数】公開・登録公報2007-026
【出願番号】特願2006-551576(P2006-551576)
【国際特許分類】
Ｈ０１Ｍ　8/02　(2006.01)
Ｈ０１Ｍ　8/10　(2006.01)
【ＦＩ】
Ｈ０１Ｍ　8/02　Ｐ
Ｈ０１Ｍ　8/02　Ｒ
Ｈ０１Ｍ　8/10

【手続補正書】
【提出日】平成19年12月17日(2007.12.17)
【手続補正１】
【補正対象書類名】特許請求の範囲
【補正対象項目名】全文
【補正方法】変更
【補正の内容】
【特許請求の範囲】
【請求項１】
燃料電池パーフルオロスルホン酸イオン交換膜中の過酸化物遊離基抵抗性を増加させる方法であって、
ａ）触媒活性成分を内部に有し約１２７μｍ以下の厚さを有するパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を形成するステップと、
ｂ）前記膜を膜電極組立体内に組み込み、前記組立体を燃料電池内に組み込むステップと、
ｃ）少なくとも１つの過酸化水素分子を発生させながら燃料電池を動作させるステップと、
ｄ）少なくとも１つの過酸化水素分子を前記触媒活性成分と接触させるステップと、
ｅ）過酸化水素分子を分解させて水および酸素を生成させるステップとを含んでなる方法。
【請求項２】
金属がＡｇ、Ｐｄ、またはＲｕの少なくとも１種類である請求項１に記載の方法。
【請求項３】
金属塩がＡｇ、Ｒｕ、またはＰｄの少なくとも１種類の塩を含んでなる請求項１に記載の方法。
【請求項４】
触媒活性成分が少なくとも１種類の金属酸化物を含んでなる請求項１に記載の方法。
【請求項５】
金属酸化物が、酸化チタン、Ｔｉ－Ｏ含有錯体、酸化ジルコニウム、Ｚｒ－Ｏ含有錯体、酸化ニオブ、Ｎｂ－Ｏ含有錯体、酸化ルテニウム、またはＲｕ－Ｏ含有錯体の少なくとも１種類を含んでなる請求項４に記載の方法。
【請求項６】
少なくとも１種類のアルコキシドをパーフルオロスルホン酸イオン交換膜中に組み込む方法であって、

（ｉ）イオン交換膜から水を抽出することによってパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を調製するステップと、
（ｉｉ）場合によりイオン交換膜を乾燥させるステップと、
（ｉｉｉ）イオン交換膜に少なくとも１種類のアルコキシドを吸収させるステップと、
（ｉｖ）空気中で加水分解させるステップとを含んでなる方法。
【請求項７】
燃料電池パーフルオロスルホン酸イオン交換膜の過酸化物遊離基抵抗性を増加させる方法であって、
ａ）１２７μｍ以下の厚さを有するパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を形成するステップと、
ｂ）イオン交換膜の少なくとも一方の側の上にガス拡散バッキングを配置するステップであって、前記ガス拡散バッキングが、触媒活性成分が取り付けられた表面を有する、ステップと、
ｃ）前記膜およびガス拡散バッキングを膜電極組立体内に組み込むステップと、
ｄ）前記組立体を燃料電池内に組み込むステップと；
ｅ）触媒活性成分が膜内に浸出するように燃料電池を動作させるステップと、
ｆ）燃料電池内で少なくとも１つの過酸化水素分子を発生させるステップと、
ｇ）少なくとも１つの過酸化水素分子を前記触媒活性成分と接触させるステップと、
ｈ）過酸化水素分子を分解させて水および酸素を生成させるステップとを含んでなる方法。
【請求項８】
触媒活性成分が、少なくとも１種類の金属、金属塩、またはそれらの組み合わせを含んでなり、触媒活性成分が、還元剤を使用して部分的または完全に還元されている請求項７に記載の方法。
【請求項９】
触媒活性成分が少なくとも１種類の金属酸化物を含んでなる請求項７に記載の方法。
【手続補正２】
【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】００７６
【補正方法】変更
【補正の内容】
【００７６】
【表２】

表2:加速燃料電池試験の結果

実施例（金属系）	アノードのフッ化物放出速度（マイクロモルフッ化物/cm²/時）	カソードのフッ化物放出速度（マイクロモルフッ化物/cm²/時）
実施例8(Ag)	0.022	0.073
実施例9(Pd)	0.152	0.185
比較例D(対照)	0.480	0.504

本発明の好適な実施態様は次のとおりである。
１．　燃料電池パーフルオロスルホン酸イオン交換膜中の過酸化物遊離基抵抗性を増加させる方法であって、
ａ）触媒活性成分を内部に有し約１２７μｍ以下の厚さを有するパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を形成するステップと、
ｂ）前記膜を膜電極組立体内に組み込み、前記組立体を燃料電池内に組み込むステップと、
ｃ）少なくとも１つの過酸化水素分子を発生させながら燃料電池を動作させるステップ

と、
ｄ）少なくとも１つの過酸化水素分子を前記触媒活性成分と接触させるステップと、
ｅ）過酸化水素分子を分解させて水および酸素を生成させるステップとを含んでなる方法。
２．　燃料電池が、前記膜の少なくとも一方の側の上に配置されるガス拡散バッキングをさらに含んでなり、前記ガス拡散バッキングが、ガス拡散バッキングの表面上に少なくとも１種類の触媒活性成分を有する上記１に記載の方法。
３．　膜が約５１μｍ以下の厚さを有する上記１に記載の方法。
４．　少なくとも１種類の触媒活性成分が、膜および触媒活性成分の全重量の約０．０１重量％～約２５重量％を含んでなる上記１に記載の方法。
５．　少なくとも１種類の触媒活性成分が、膜および触媒活性成分の全重量の約０．０１重量％～約１０重量％を含んでなる上記４に記載の方法。
６．　少なくとも１種類の触媒活性成分が、膜および触媒活性成分の全重量の約０．０１重量％～約５重量％を含んでなる上記５に記載の方法。
７．　少なくとも１種類の触媒活性成分が、膜および触媒活性成分の全重量の約０．０１重量％～約２重量％を含んでなる上記６に記載の方法。
８．　触媒活性成分が、少なくとも１種類の金属、金属塩、またはそれらの組み合わせを含んでなり、触媒活性成分が、還元剤を使用して部分的または完全に還元されている上記１に記載の方法。
９．　金属がＡｇ、Ｐｄ、またはＲｕの少なくとも１種類である上記８に記載の方法。
１０．　金属塩がＡｇ、Ｒｕ、またはＰｄの少なくとも１種類の塩を含んでなる上記８に記載の方法。
１１．　還元剤が、ヒドラジン、ヒドロキシルアミン、ホウ水素化物、水素ガス、または次亜リン酸である上記８に記載の方法。
１２．　触媒活性成分が少なくとも１種類の金属酸化物を含んでなる上記１に記載の方法。
１３．　金属酸化物が、酸化チタン、Ｔｉ－Ｏ含有錯体、酸化ジルコニウム、Ｚｒ－Ｏ含有錯体、酸化ニオブ、Ｎｂ－Ｏ含有錯体、酸化ルテニウム、またはＲｕ－Ｏ含有錯体の少なくとも１種類を含んでなる上記１２に記載の方法。
１４．　パーフルオロスルホン酸イオン交換膜が、フルオロポリマー補強パーフルオロスルホン酸膜、または多孔質支持基材で補強されたパーフルオロスルホン酸膜である上記１に記載の方法。
１５．　多孔質支持基材が、発泡ＰＴＦＥ、超高分子量炭化水素、または多孔質セラミック構造である上記１４に記載の方法。
１６．　パーフルオロスルホン酸ポリマーの分散体と、触媒活性成分またはその前駆物質との混合物を形成し、前記混合物から膜を流延することによって、パーフルオロスルホン酸イオン交換膜が形成される上記１に記載の方法。
１７．　パーフルオロスルホン酸ポリマーと触媒活性成分またはその前駆物質との混合物を形成し、前記混合物から膜を押出成形することによって、パーフルオロスルホン酸イオン交換膜が形成される上記１に記載の方法。
１８．　パーフルオロスルホン酸ポリマーから膜を流延または押出成形し、膜に反応性アルコキシドを吸収させ、反応性アルコキシドを加水分解することによって膜内に触媒活性酸化物を形成することによって、パーフルオロスルホン酸イオン交換膜が形成される上記１に記載の方法。
１９．　少なくとも１種類のアルコキシドをパーフルオロスルホン酸イオン交換膜中に組み込む方法であって、
（ｉ）イオン交換膜から水を抽出することによってパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を調製するステップと、
（ｉｉ）場合によりイオン交換膜を乾燥させるステップと、
（ｉｉｉ）イオン交換膜に少なくとも１種類のアルコキシドを吸収させるステップと、

（ｉｖ）空気中で加水分解させるステップとを含んでなる方法。

２０．　少なくとも１種類のアルコキシドがチタンエトキシドである場合に、エタノールを使用したソックスレーによって最初に直接水を抽出する上記１９に記載の方法。

２１．　燃料電池パーフルオロスルホン酸イオン交換膜の過酸化物遊離基抵抗性を増加させる方法であって、

ａ）１２７μｍ以下の厚さを有するパーフルオロスルホン酸イオン交換膜を形成するステップと、

ｂ）イオン交換膜の少なくとも一方の側の上にガス拡散バッキングを配置するステップであって、前記ガス拡散バッキングが、触媒活性成分が取り付けられた表面を有する、ステップと、

ｃ）前記膜およびガス拡散バッキングを膜電極組立体内に組み込むステップと、

ｄ）前記組立体を燃料電池内に組み込むステップと；

ｅ）触媒活性成分が膜内に浸出するように燃料電池を動作させるステップと、

ｆ）燃料電池内で少なくとも１つの過酸化水素分子を発生させるステップと、

ｇ）少なくとも１つの過酸化水素分子を前記触媒活性成分と接触させるステップと、

ｈ）過酸化水素分子を分解させて水および酸素を生成させるステップとを含んでなる方法。

２２．　触媒活性成分が、少なくとも１種類の金属、金属塩、またはそれらの組み合わせを含んでなり、触媒活性成分が、還元剤を使用して部分的または完全に還元されている上記２１に記載の方法。

２３．　金属がＡｇ、Ｐｄ、またはＲｕの少なくとも１種類である上記２２に記載の方法。

２４．　金属塩がＡｇ、Ｒｕ、またはＰｄの少なくとも１種類の塩を含んでなる上記２２に記載の方法。

２５．　還元剤が、ヒドラジン、ヒドロキシルアミン、ホウ水素化物、水素ガス、または次亜リン酸である上記２２に記載の方法。

２６．　触媒活性成分が少なくとも１種類の金属酸化物を含んでなる上記２１に記載の方法。

２７．　金属酸化物が、酸化チタン、Ｔｉ－Ｏ含有錯体、酸化ジルコニウム、Ｚｒ－Ｏ含有錯体、酸化ニオブ、Ｎｂ－Ｏ含有錯体、酸化ルテニウム、またはＲｕ－Ｏ含有錯体の少なくとも１種類を含んでなる上記２６に記載の方法。