

(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2008-516395

(P2008-516395A)

(43) 公表日 平成20年5月15日 (2008.5.15)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H O 1 M 8/02 (2006.01)	H O 1 M 8/02 S	5 H O 1 8
H O 1 M 4/86 (2006.01)	H O 1 M 8/02 E	5 H O 2 6
H O 1 M 8/10 (2006.01)	H O 1 M 4/86 M	
	H O 1 M 8/10	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 36 頁)

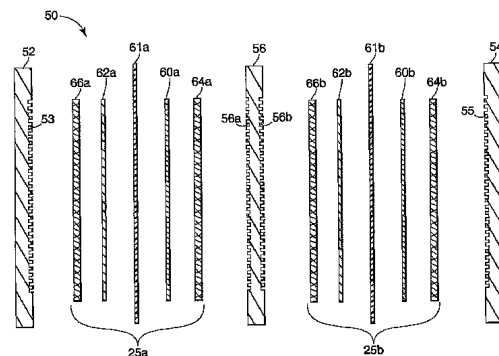
(21) 出願番号	特願2007-535708 (P2007-535708)	(71) 出願人	599056437
(86) (22) 出願日	平成17年9月27日 (2005.9.27)		スリーエム イノベイティブ プロパティ
(85) 翻訳文提出日	平成19年5月23日 (2007.5.23)		ズ カンパニー
(86) 国際出願番号	PCT/US2005/034623		アメリカ合衆国, ミネソタ 55144-
(87) 国際公開番号	W02006/041677		1000, セント ポール, スリーエム
(87) 国際公開日	平成18年4月20日 (2006.4.20)		センター
(31) 優先権主張番号	10/961,263	(74) 代理人	100099759
(32) 優先日	平成16年10月8日 (2004.10.8)		弁理士 青木 篤
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100077517
			弁理士 石田 敬
		(74) 代理人	100087413
			弁理士 古賀 哲次
		(74) 代理人	100146466
			弁理士 高橋 正俊

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 膜電極アセンブリ用の硬化可能なサブガasket

(57) 【要約】

膜電極アセンブリ用サブガasketはMEA構成部分の表面上に付着され、そしてその位置で硬化される。膜電極サブアセンブリは、ポリマー電解質膜と、ガス拡散層と、ポリマー電解質膜とガス拡散層との間の触媒層とを含む。膜電極サブアセンブリは、膜電極サブアセンブリの1つ以上の構成部分上に配置されるサブガasketを含む。サブガasketは付着可能かつその位置で硬化可能な材料の層から製造される。ガス拡散層の外周縁はサブガasketと重なり合う。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリマー電解質膜と、
前記ガス拡散層と、
前記ポリマー電解質膜と前記ガス拡散層との間の触媒層と
を含んでなる構成部分を有する膜電極サブアセンブリと、
前記膜電極サブアセンブリの 1 つ以上の構成部分上に配置され、前記ガス拡散層の外周縁と重なり合い、その場で付着可能かつ硬化可能な材料の層を含んでなるサブガasketと
を含んでなる、膜電極アセンブリ (M E A) 用構造体。

10

【請求項 2】

前記サブガasketが前記ポリマー電解質膜の外周部分上に配置される、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 3】

前記サブガasketの一部が前記触媒層と前記ポリマー電解質膜との間に配置される、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 4】

前記サブガasketの一部が前記触媒層と前記ガス拡散層との間に配置される、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 5】

前記ガス拡散層および前記触媒層が触媒コーティング電極バックングを形成し、そして前記触媒コーティング電極バックングの縁が前記サブガasketと重なり合う、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

20

【請求項 6】

前記ポリマー電解質膜および前記触媒層が触媒コーティング膜を形成し、そして前記サブガasketが前記触媒コーティング膜の外周部分上に配置される、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 7】

前記ガス拡散層の外周縁が前記サブガasketと約 0 . 0 5 m m ~ 約 1 0 m m 重なり合う、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

30

【請求項 8】

前記サブガasket材料が放射線によってその場で硬化可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 9】

前記放射線に紫外線が含まれる、請求項 8 に記載の M E A 構造体。

【請求項 10】

前記サブガasket材料が熱的にその場で硬化可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 11】

前記サブガasket材料が化学架橋によって硬化可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

40

【請求項 12】

前記サブガasket材料がスクリーン印刷によって付着可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 13】

前記サブガasket材料がコーティングによって付着可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

【請求項 14】

前記サブガasket材料がスプレーによって付着可能である、請求項 1 に記載の M E A 構造体。

50

【請求項 15】

前記サブガasket材料がインクジェット印刷によって付着可能である、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 16】

前記サブガasketが前記MEA構造体の活性領域と重なり合うように寸法設計される、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 17】

前記サブガasketが前記MEA構造体の活性領域と重なり合わないように寸法設計される、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 18】

前記サブガasketが約5 μm ~ 約100 μm の厚さを有する、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 19】

前記サブガasketが感圧接着剤組成物を含んでなる、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 20】

前記サブガasketが熱可塑性材料を含んでなる、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 21】

前記サブガasketがイオン非伝導性材料を含んでなる、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 22】

前記サブガasketが非導電性材料を含んでなる、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 23】

前記サブガasketの表面がシーリング表面を含んでなる、請求項1に記載のMEA構造体。

【請求項 24】

前記シーリング表面がマイクロ構造化表面を含んでなる、請求項23に記載のMEA構造体。

【請求項 25】

第1の膜電極構造体と、
前記第1の膜電極構造体に連結された第2の膜電極構造体と
を含んでなる膜電極アセンブリ(MEA)であって、前記第1の膜電極構造体および第2の膜電極構造体の少なくとも一方が

ポリマー電解質膜と、

ガス拡散層と、

前記ポリマー電解質膜と前記ガス拡散層との間の触媒層と
を含んでなる構成部分を有する電極サブアセンブリと、

前記電極サブアセンブリの1つ以上の構成部分上に配置され、前記ガス拡散層の外周縁と重なり合い、その場で付着可能かつ硬化可能な材料の層を含んでなるサブガasketと
を含んでなる構成部分を有していることを特徴とする、MEA。

【請求項 26】

前記サブガasketが前記ポリマー電解質膜の外周部分上に配置される、請求項25に記載のMEA。

【請求項 27】

前記サブガasketの一部が前記触媒層と前記ポリマー電解質膜との間に配置される、請求項25に記載のMEA。

【請求項 28】

前記サブガasketの一部が前記触媒層と前記ガス拡散層との間に配置される、請求項25に記載のMEA。

【請求項 29】

前記ガス拡散層および前記触媒層が触媒コーティング電極バックングを形成し、そして前記触媒コーティング電極バックングの縁が前記サブガasketと重なり合う、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 30】

前記ポリマー電解質膜および前記触媒層が触媒コーティング膜を形成し、そして前記サブガasketが前記触媒コーティング膜の外周部分上に配置される、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 31】

前記ガス拡散層の外周縁が前記サブガasketと約 0.05 mm ~ 約 1.0 mm 重なり合う、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 32】

前記第 2 の膜電極構造体および前記第 1 の膜電極構造体が融合二層ポリマー電解質膜によって連結される、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 33】

前記サブガasketが前記ポリマー電解質膜の外周部分上に配置され、そして

前記第 2 の膜電極構造体および前記第 1 の膜電極構造体が、融合内部サブガasketを有する融合二層ポリマー電解質膜によって連結される、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 34】

前記サブガasket材料が放射線によってその場で硬化可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 35】

前記サブガasket材料が化学架橋によって硬化可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 36】

前記サブガasket材料がスクリーン印刷によって付着可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 37】

前記サブガasket材料がコーティングによって付着可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 38】

前記サブガasket材料がスプレーによって付着可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 39】

前記サブガasket材料がインクジェット印刷によって付着可能である、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 40】

前記サブガasketが前記電極サブアセンブリの活性領域と重なり合うように寸法設計される、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 41】

前記サブガasketが前記電極サブアセンブリの活性領域と重なり合わないように寸法設計される、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 42】

前記サブガasketが約 5 μ m ~ 約 100 μ m の厚さを有する、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 43】

前記サブガasketがイオン非伝導性材料を含んでなる、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 44】

前記サブガasketが非導電性材料を含んでなる、請求項 25 に記載の M E A。

【請求項 45】

前記サブガasketの表面がシーリング表面を含んでなる、請求項 25 に記載の M E A

10

20

30

40

50

。

【請求項 4 6】

前記シーリング表面がマイクロ構造化表面を含んでなる、請求項 4 5 に記載の M E A。

【請求項 4 7】

ポリマー電解質膜と、

前記ポリマー電解質膜の反対面に配置された第 1 および第 2 のガス拡散層と、

第 1 および第 2 の触媒層であって、前記第 1 の触媒層が前記第 1 のガス拡散層と前記ポリマー電解質膜との間に配置され、そして前記第 2 の触媒層が前記第 2 のガス拡散層と前記ポリマー電解質膜との間に配置される、第 1 および第 2 の触媒層と

を含んでなる構成部分を有する膜電極アセンブリ (M E A) と、

その場で付着可能かつ硬化可能である材料の一層以上から形成され、前記第 1 のガス拡散層と前記第 2 のガス拡散層との間に一部が配置されるサブガセットと

【請求項 4 8】

前記サブガセット層が前記ポリマー電解質膜の外周部分上に配置される、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 4 9】

前記第 1 のガス拡散層および前記第 1 の触媒層が第 1 の触媒コーティング電極バッキングを形成し、前記第 2 のガス拡散層および前記第 2 の触媒層が第 2 の触媒コーティング電極バッキングを形成し、そして前記サブガセットの一部が前記第 1 の触媒コーティング電極バッキングと前記第 2 の触媒コーティング電極バッキングとの間に配置される、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 0】

前記ポリマー電解質膜ならびに前記第 1 および第 2 の触媒層が触媒コーティング膜を形成し、そして前記サブガセットが前記触媒コーティング膜の外周部分上に配置される、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 1】

前記サブガセット材料が放射線によってその場で硬化可能である、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 2】

前記放射線に紫外線が含まれる、請求項 5 1 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 3】

前記サブガセット材料が熱的にその場で硬化可能である、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 4】

前記サブガセット材料が化学架橋によって硬化可能である、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 5】

前記サブガセット材料がスクリーン印刷、コーティング、スプレーおよびインクジェット印刷の少なくとも 1 つによって付着可能である、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 6】

前記サブガセットが前記 M E A の活性領域と重なり合うように寸法設計される、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 7】

前記サブガセットが前記 M E A の活性領域と重なり合わないように寸法設計される、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 8】

前記サブガセットが約 5 μ m ~ 約 1 0 0 μ m の厚さを有する、請求項 4 7 に記載のアセンブリ。

【請求項 5 9】

10

20

30

40

50

前記サブガasketがイオン非伝導性材料を含んでなる、請求項 47 に記載のアセンブリ。

【請求項 60】

前記サブガasketが非導電性材料を含んでなる、請求項 47 に記載のアセンブリ。

【請求項 61】

前記サブガasketの表面がシーリング表面を含んでなる、請求項 47 に記載のアセンブリ。

【請求項 62】

前記シーリング表面がミクロ構造化表面を含んでなる、請求項 61 に記載のアセンブリ。

10

【請求項 63】

分散性サブガasket材料を 1 つ以上の M E A 構成部分の少なくとも 1 つの表面の一部に付着させる工程と、

そのサブガasket分散材料をその場で硬化して、一つ以上のサブガasket層を形成する工程と

を含んでなる、1 つ以上のサブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程と、

前記サブガasket層の部分が第 1 のガス拡散層 (G D L) 構造体と第 2 の G D L 構造体との間に配置されるように、ポリマー電解質膜 (P E M) 構造体の反対面において前記第 1 および第 2 の G D L 構造体を整列させる工程と

を含んでなり、前記第 1 の G D L 構造体、前記第 2 の G D L 構造体および前記 P E M 構造体の 1 つ以上が、前記 1 つ以上のサブガasket化 M E A 構成部分を含むことを特徴とする、膜電極アセンブリ (M E A) の製造方法。

20

【請求項 64】

前記 1 つ以上のサブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化 P E M 構造体を形成する工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 65】

前記 1 つ以上のサブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、1 つ以上のサブガasket化 G D L 構造体を形成する工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 66】

前記 P E M 構造体が触媒コーティング膜を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

30

【請求項 67】

前記第 1 および第 2 の G D L 構造体が触媒コーティング電極バックングを含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 68】

前記分散性サブガasket材料を付着させる工程が、前記分散性サブガasket材料をスクリーン印刷する工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 69】

前記分散性サブガasket材料を付着させる工程が、前記分散性サブガasket材料をコーティングする工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 70】

前記分散性サブガasket材料を付着させる工程が、前記分散性サブガasket材料をスプレーする工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

40

【請求項 71】

前記分散性サブガasket材料を付着させる工程が、前記分散性サブガasket材料をインクジェット印刷する工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 72】

前記分散性サブガasket材料をその場で硬化する工程が、水分への暴露によって前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程を含んでなる、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 73】

50

前記分散性サブガasket材料をその場で硬化する工程が、ガスへの暴露によって前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

【請求項74】

前記分散性サブガasket材料をその場で硬化する工程が、放射線への暴露によって前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

【請求項75】

前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程が、熱的に前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

10

【請求項76】

前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程が、前記分散性サブガasket材料の冷却によって前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

【請求項77】

前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程が、前記サブガasket分散材料を化学的に変性する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

【請求項78】

前記サブガasket分散材料をその場で硬化する工程が、前記サブガasket分散材料を化学的に変性することなく硬化する工程を含んでなる、請求項63に記載の方法。

20

【請求項79】

前記第1および第2のGDL構造体を前記PEM構造体に結合する工程をさらに含んでなる、請求項63に記載の方法。

【請求項80】

前記第1および第2のGDL構造体を前記PEM構造体に結合する工程が、前記第1および第2のGDL構造体ならびに前記PEM構造体に圧力および熱の一方または両方を適用する工程を含んでなる、請求項79に記載の方法。

【請求項81】

前記第1および第2のGDL構造体ならびに前記PEM構造体に圧力および熱の一方または両方を適用する工程が、 50 cm^2 あたり約0.5トン～約3.0トンの圧力を適用する工程を含んでなる、請求項80に記載の方法。

30

【請求項82】

前記第1および第2のGDL構造体ならびに前記PEM構造体に圧力および熱の一方または両方を適用する工程が、前記PEMの軟化点付近の温度で熱を適用する工程を含んでなる、請求項80に記載の方法。

【請求項83】

前記第1および第2のGDL構造体を前記サブガasket化PEMに結合する工程が、前記第1および第2のGDL構造体ならびに前記PEM構造体に予め決められた時間で圧力および熱の一方または両方を適用する工程を含んでなる、請求項80に記載の方法。

【請求項84】

40

前記予め決められた時間が約10分以下である、請求項83に記載の方法。

【請求項85】

前記1つ以上のサブガasket化MEA構成部分を形成する工程が、サブガasket化PEM構造体を形成する工程を含み、

前記サブガasket化PEM構造体の反対面において前記第1および第2のGDL構造体を配置する工程が、

より大きいシートから前記第1および第2のGDL構造体を切断する工程と、

前記サブガasket化PEM構造体の反対面に関して前記第1および第2のGDL構造体を整列させる工程と

を含む、請求項63に記載の方法。

50

【請求項 86】

前記 1 つ以上のサブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化 P E M 構造体を形成する工程を含み、

前記サブガasket化 P E M 構造体の反対面に関して前記第 1 および第 2 の G D L 構造体を整列させる工程が、前記サブガasket化 P E M 構造体のサブガasket化部分と重なり合うように前記第 1 および第 2 の G D L 構造体を整列させる工程を含む、請求項 63 に記載の方法。

【請求項 87】

ガス拡散層 (G D L) 構造体とポリマー電解質膜 (P E M) 構造体とを含む膜電極 (M E A) サブアセンブリの製造方法であって、

分散性サブガasket材料を M E A 構成部分の少なくとも 1 つの表面の一部に付着させる工程と、

そのサブガasket分散材料をその場で硬化して、一つ以上のサブガasket層を形成する工程と

を含んでなる、サブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程と、

前記 G D L 構造体の縁が前記一つ以上のサブガasket層の一部と重なり合うように、前記 P E M 構造体上に前記 G D L 構造体を配置する工程と

を含んでなり、前記 G D L および前記 P E M の少なくとも 1 つが、前記サブガasket化 M E A 構成部分を 1 つ以上含むことを特徴とする、方法。

【請求項 88】

前記サブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化 P E M を形成する工程を含んでなる、請求項 87 に記載の方法。

【請求項 89】

前記サブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化 G D L を形成する工程を含んでなる、請求項 87 に記載の方法。

【請求項 90】

前記サブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化触媒コーティング膜を形成する工程を含んでなる、請求項 87 に記載の方法。

【請求項 91】

前記サブガasket化 M E A 構成部分を形成する工程が、サブガasket化触媒コーティング電極バックングを形成する工程を含んでなる、請求項 87 に記載の方法。

【請求項 92】

前記 P E M 構造体の一表面上に前記 G D L 構造体を配置する工程と、前記 P E M 構造体の反対面上に対向する G D L 構造体を配置する工程とをさらに含んでなる、請求項 87 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は一般的に燃料電池に関し、そして特に膜電極アセンブリ用の硬化可能なサブガasketに関する。

【背景技術】

【0002】

典型的な燃料電池電力系は、燃料電池の積層体が 1 つ以上提供される電力部を含む。燃料電池電力系の効率は、個々の燃料電池内および積層体の隣接燃料電池間の境界面の様々な接触およびシーリングの統合性に主に依存する。

【0003】

現在、従来の方法を使用する燃料電池の積層体の構築方法は長く時間のかかるものであり、また大量生産に容易に適應できるものではない。例として、典型的な 5 k W の燃料電池積層体は、いくつかの 80 膜電極アセンブリ (M E A)、いくつかの 160 流れ場プレートおよびいくつかの 160 シーリングガasketを含み得る。積層体のこれらおよび他

10

20

30

40

50

の構成部分は注意深く整列および組み立てられなければならない。数個の構成部分の不整列でさえ、ガス漏出、水素クロスオーバーおよび性能/耐久性の悪化を導き得る。

【0004】

延長された運転操作間の燃料電池膜の耐久性は、しばしば、コスト効率良く燃料電池を使用できるかどうかを決定する。MEAは多くの様式で劣っているが、ガスクロスオーバーが特定の割合を超過して、MEAは典型的に操作停止される。これは、機械的に膜に穴が開いたか、または化学的風化によって膜の厚さが減少したことを示している。

【0005】

改善された耐久性および寿命を有するMEAに関する需要が存在する。本発明はこれらおよび他の需要を満たすものである。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は膜電極アセンブリ用の硬化可能なサブガasketに関する。本発明の実施形態は膜電極アセンブリ(MEA)構造体に関する。MEA構造体は、ポリマー電解質膜と、ガス拡散層と、ポリマー電解質膜とガス拡散層との間の触媒層とを含む膜電極サブアセンブリを含む。膜電極サブアセンブリは、膜電極サブアセンブリの1つ以上の構成部分上に配置されるサブガasketを含む。サブガasketはその場で付着可能かつ硬化可能な材料の層から製造される。ガス拡散層の外周縁はサブガasketと重なり合う。

【0007】

サブガasketはポリマー電解質膜の外周部分上に配置されてもよい。いくつかの立体構造において、サブガasketの一部は、触媒層とポリマー電解質膜との間または触媒層とガス拡散層との間に配置されてもよい。あるいはサブガasket層は、ガス拡散層の外周部分上に配置されてもよい。

【0008】

いくつかの実施において、ガス拡散層および触媒層は触媒コーティング電極バックングを形成する。触媒コーティング電極バックングの縁はサブガasketと重なり合う。他の実施において、ポリマー電解質膜および触媒層は触媒コーティング膜を形成する。サブガasketは触媒コーティング膜の外周部分上に配置されてもよい。

【0009】

本発明のもう1つの実施形態は、一緒に連結された第1および第2の膜電極構造体を有する膜電極アセンブリ(MEA)を含む。第1の膜電極構造体および第2の膜電極構造体の少なくとも一方は、ポリマー電解質膜と、ガス拡散層と、ポリマー電解質膜とガス拡散層との間の触媒層とを含んでなる電極サブアセンブリを含む。サブガasketは電極サブアセンブリの1つ以上の構成部分上に配置される。サブガasketはその場で付着可能かつ硬化可能な材料の層から製造される。ガス拡散層の外周縁がサブガasketと重なり合うように、サブガasketは配置される。

【0010】

本発明の一態様に従って、第1および第2の膜電極構造体は融合二層ポリマー電解質膜によって連結される。

【0011】

本発明のなもう1つの実施形態は電気化学的電池アセンブリに関する。電気化学的電池アセンブリは、サブガasket層を有する膜電極アセンブリ(MEA)を含む。MEAは、ポリマー電解質膜と、ポリマー電解質膜の反対面に配置された第1および第2のガス拡散層と、それぞれ第1および第2のガス拡散層とポリマー電解質膜との間に配置される第1および第2の触媒層とを含む。サブガasketはその場で付着可能かつ硬化可能である材料から形成される。サブガasket層の一部は、MEAの第1のガス拡散層と第2のガス拡散層との間に配置される。

【0012】

本発明のさらなる実施形態は膜電極アセンブリ(MEA)の製造法に関する。この方法

10

20

30

40

50

は、１つ以上のサブガasket化MEA構成部分を形成する工程を含む。サブガasket化MEA構成部分は、分散性サブガasket材料を１つ以上のMEA構成部分の少なくとも１つの表面の一部に付着させる工程によって形成される。サブガasket分散材料はその場で硬化されて、一つ以上のサブガasket層を形成する。サブガasket層の部分が第１のGDL構造体と第２のGDL構造体との間に配置されるように、ポリマー電解質膜（PEM）構造体の反対面において第１および第２のガス拡散層（GDL）構造体を整理させる。第１のGDL構造体、第２のGDL構造体およびPEM構造体の１つ以上が、１つ以上のサブガasket化MEA構成部分を含んでなる。

【００１３】

本発明のなもう１つの実施形態は、ガス拡散層構造とポリマー電解質膜構造とを含む膜電極サブアセンブリの製造法に関する。この方法は、サブガasket化MEA構成部分を形成する工程を含む。サブガasket化MEA構成部分は、分散性サブガasket材料をMEA構成部分の少なくとも１つの表面の一部に付着させる工程によって形成される。サブガasket分散材料はその場で硬化されて、一つ以上のサブガasket層を形成する。GDL構造体の縁が一層以上のサブガasket層の一部と重なり合うように、PEM構造体上にGDL構造体を配置する。GDLおよびPEMの少なくとも１つが、１つ以上のサブガasket化MEA構成部分を含んでなる。

【００１４】

上記の本発明の要約には、本発明の各実施形態または全実施を説明する意図はない。利点および達成は本発明のより完全な理解と一緒に明白になり、そして添付の図面と一緒に以下の詳細な記載および請求の範囲を参照することによって認識されるだろう。

【００１５】

本発明は様々な修正および別の形式が可能であるが、その詳細は図中に例として示されており、詳細に説明される。しかしながら、記載された特定の実施形態に本発明を限定する意図がないことは理解されるべきである。逆に、請求の範囲によって定義されるように本発明の範囲内に収まる全ての修正、等価物および代替を包括する意図がある。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１６】

例示された実施形態の以下の記述において、その一部を形成し、そして本発明が実施され得る様々な実施形態が例示される添付の図面に対して参照がなされる。本発明の範囲から逸脱することなく実施形態が利用されてもよく、そして構造変更がなされてもよいことは理解されるべきである。

【００１７】

本発明は膜電極アセンブリ（MEA）層の間に形成された保護サブガasketに関する。特定の実施形態は、それぞれ電解質膜と第１および第２のGDL層との間に配置されたサブガasketを有する完全MEAアセンブリに関する。他の実施において、１／２MEAアセンブリは、PEMとGDL層との間に配置されたサブガasketを備える。本発明のさらなる実施形態は、サブガasket化MEAアセンブリを使用して実施された燃料電池積層体および系に関する。

【００１８】

燃料電池は、水素燃料および空気からの酸素を組み合わせる電気、熱および水を生じる電気化学的デバイスである。燃料電池は燃焼を利用しないため、燃料電池は、あるとしても、危険な流出物がほとんどない。燃料電池は水素燃料および酸素を直接的に電気に変換し、そして例えば内燃発電機よりも高い効率で操作可能である。

【００１９】

典型的な燃料電池を図１Aに描写する。図１Aに示された燃料電池１０は、アノード１４を含んでなるガス拡散ミクロ層に隣接した第１のガス拡散層（GDL）１２を含む。電解質膜１６はアノード１４に隣接している。ガス拡散ミクロ層カソード１８は電解質膜１６に隣接して位置し、そして第２のガス拡散層１９はカソード１８に隣接して位置する。操作時に水素燃料は燃料電池１０のアノード部分に導入され、第１のガス拡散層１２中お

10

20

30

40

50

よびアノード 14 上を通過する。アノード 14 において、水素燃料は水素イオン (H^+) および電子 (e^-) に分離される。

【0020】

電解質膜 16 によって、水素イオンまたは陽子のみが電解質膜 16 中を燃料電池 10 のカソード部分まで通過可能である。電子は電解質膜 16 を通過できず、その代わり、電流の形態で外部電気回路を通過して流れることができる。この電流は電動機のように電気負荷 17 を供給するか、または再充電可能バッテリーのようなエネルギー貯蔵デバイスに向けられる。

【0021】

酸素は、第 2 のガス拡散層 19 を介して燃料電池 10 のカソード側に流動する。酸素がカソード 18 上を通過すると、酸素、陽子および電子が組み合わさって、水および熱を生じる。

【0022】

図 1 A に示されるもののような個々の燃料電池を、ユニット化された燃料電池アセンブリとしてパッケージ化することができる。ユニット化された燃料電池アセンブリは、本明細書において便宜上、ユニット化された電池アセンブリまたは UCA として記載されるが、多くの他の UCA と組み合わせて燃料電池積層体を形成することができる。積層体内の UCA の数は積層体の総電圧を決定し、そして各電池の活性表面積は総電流を決定する。所定の燃料電池積層体によって発生した総電力は、総積層体電力と総電流とを掛け算することによって決定され得る。

【0023】

本発明の原理に従って UCA を構築するために、多くの異なる燃料電池技術を利用可能である。例えば、本発明の UCA パッケージング方法論を利用して陽子交換膜 (PEM) 燃料電池アセンブリを構築することができる。PEM 燃料電池は相対的に低温 (約 $175^{\circ}F / 80^{\circ}C$) で操作され、高い電力密度を有し、電力需要の変化に迅速に適合するようにそれらの出力を変更可能であり、そして例えば自動車のような迅速な始動が要求される用途に関して非常に適切である。

【0024】

PEM 燃料電池において使用される陽子交換膜は典型的に、水素イオンが通過可能である薄プラスチックシートである。高分散金属または金属合金粒子 (例えば、白金または白金 / ルテニウム) の層のような触媒層によって膜をコーティングしてもよい。使用される電解質は典型的に、ポリ - ペルフルオロスルホン酸のような固体有機ポリマーである。固体電解質の使用は、それによって腐食および管理問題が減少するため都合がよい。いくつかの立体構造において、PEM ではなくて触媒によって GDL の電極層をコーティングしてもよく、触媒コーティング電極バックング (CCEB) と呼ばれる構造を形成する。

【0025】

水素が燃料電池のアノード側に供給されると、ここで触媒によって水素原子の電子放出が促進され、そして水素イオン (陽子) となる。電子は電流の形態で移動し、これは酸素が導入される燃料電池のカソード側に戻る前に利用可能である。同時に陽子は膜を通してカソードまで拡散し、ここで水素イオンは酸素と再結合および再反応して水を生じる。

【0026】

膜電極アセンブリ (MEA) は、水素燃料電池のような PEM 燃料電池の中心素子である。上記の通り、典型的な MEA は、固体電解質として機能するポリマー電解質膜 (PEM) (イオン伝導性膜 (ICM) としても既知) を含んでなる。

【0027】

PEM の一表面はアノード電極層と接触し、そして反対面はカソード電極層と接触する。各電極層は電気化学的触媒を含み得、典型的に白金金属が挙げられる。ガス拡散層 (GDL) はアノードおよびカソード電極材料まで、およびそれらからのガス輸送を促進し、また電流を伝導する。

【0028】

10

20

30

40

50

典型的なPEM燃料電池において、陽子はアノードにおいて水素酸化を介して形成され、そしてカソードに輸送されて酸素と反応して、電極に連結された外部回路中で電流が流れる。GDLは流体輸送層(FTL)または拡散器/集電器(DCC)と呼ばれてもよい。

【0029】

本発明の実施において、いずれの適切なPEMが使用されてもよい。PEMは典型的に50μm未満、より典型的に40μm未満、より典型的に30μm未満、そして最も典型的に約25μmの厚さを有する。PEMは典型的に、ナフィオン(Nafion)(登録商標)(デラウェア州、ウィルミントンのデュポンケミカルズ(DuPont Chemicals, Wilmington DE))およびフレミオン(Flemion)(登録商標)(日本、東京の旭硝子株式会社)のような酸官能性フルオロポリマー、または高フッ素化骨格を有し、そして次式： $\text{YOSO}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{O}-[\text{ポリマー骨格}]$ によるペンダント基を反復するポリマーであるポリマー電解質から構成される。後者は、2002年12月19日出願の自己米国特許出願第10/325,278号明細書に開示されている。本発明において有用なポリマー電解質は、好ましくはテトラフルオロエチレンと、一種以上のフッ素化酸官能性モノマーとのコポリマーである。

10

【0030】

典型的に、ポリマー電解質はスルホネート官能基を有する。最も典型的に、ポリマー電解質は、前記で組み入れられた米国特許出願第10/325,278号明細書に開示されているような高フッ素化骨格を有し、そして次式： $\text{YOSO}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{CF}_2-\text{O}-[\text{ポリマー骨格}]$ によるペンダント基を反復するポリマーである。ポリマー電解質は典型的に1200以下、より典型的に1100以下、より典型的に1050以下、そして最も典型的に約1000の酸当量を有する。

20

【0031】

本発明の実施において、いずれの適切なGDLが使用されてもよい。典型的に、GDLは炭素繊維を含んでなるシート材料から構成される。GDLは、典型的に、織物および不織物炭素繊維構造から選択される炭素繊維構造である。本発明の実施において有用な炭素繊維構造としては、東レカーボンペーパー(Toray Carbon Paper)、スペクトラカルブカーボンペーパー(SPECTRACARB Carbon Paper)、AFN不織炭素布、ゾルテックカーボンクロス(ZOLTEK Carbon Cloth)等が挙げられる。GDLは、炭素粒子コーティング、親水性処理およびポリテトラフルオロエチレン(PTFE)によるコーティングのような疎水性処理を含む様々な材料でコーティングまたは含浸されていてもよい。

30

【0032】

本発明の実施において、いずれの適切な触媒が使用されてもよい。典型的に、炭素担体触媒粒子が使用される。典型的な炭素担体触媒粒子は50~90質量%の炭素および10~50質量%の触媒金属であり、触媒金属は典型的にカソード用のPtならびにアノード用の質量比2:1のPtおよびRuを含んでなる。触媒は典型的に触媒インクの形態でPEMまたはGDLに適用される。触媒インクは典型的にポリマー電解質材料を含んでなり、これはPEMを含んでなる同一のポリマー電解質材料であっても、異なってもよい。

40

【0033】

触媒インクは典型的にポリマー電解質の分散系中の触媒粒子の分散系を含んでなる。インクは典型的に5~30%の固体(すなわち、ポリマーおよび触媒)、より典型的に10~20%の固体を含有する。電解質の分散系は典型的に水性分散系であり、これは追加的にアルコール、グリセリンおよびエチレングリコールのようなポリアルコールまたはN-メチルピリリドン(NMP)およびジメチルホルムアルデヒド(DMF)のような他の溶媒を含有し得る。インクの流動特性を変更するために、水、アルコールおよびポリアルコール含量を調節してよい。インクは典型的に0~50%のアルコールおよび0~20%のポリアルコールを含有する。加えて、インクは0~2%の適切な分散剤を含有し得る。インクは典型的に熱を加えながら攪拌し、続いてコーティング可能な濃度まで希釈すること

50

によって製造される。

【0034】

ハンドブラッシング、ノッチバーコーティング、フルイドベアリングダイコーティング、巻線ロッドコーティング、フルイドベアリングコーティング、スロット供給ナイフコーティング、3本ロールコーティングまたはデカルトランスファーを含む手による方法および機械による方法の両方を含む、いずれかの適切な手段によって触媒をPEMまたはGDLに適用することができる。1つの適用によってまたは複数の適用によってコーティングを達成することができる。

【0035】

直接メタノール燃料電池(DMFC)は、電解質として両方ともポリマー膜を使用することに関してPEM電池と同様である。しかしながら、DMFCにおいては、アノード触媒自体が液体メタノール燃料から水素を引出し、燃料改質装置の必要を排除する。DMFCは典型的に120~190°F/49~88の間の温度で操作される。直接メタノール燃料電池は、本発明の原理によるUCAパッケージ化の対象であり得る。

【0036】

ここで図1Bを参照すると、PEM燃料電池技術に従って実施されたUCAの実施形態が描写されている。図1Bに示されるように、UCA20の膜電極アセンブリ(MEA)25は5層の構成層を含む。PEM層22はガス拡散層24および26の対の間に挿入される。アノード層30は第1のGDL24および膜22の間に位置し、そしてカソード層32は膜22および第2のGDL26の間に位置する。

【0037】

1つの立体構造体において、PEM層22は、一方の表面上にアノード触媒コーティングおよび他方の表面上にカソード触媒コーティングを含むように製造される。この構造体は、しばしば触媒コーティング膜またはCCMと呼ばれる。もう1つの立体構造体に従って、ガス拡散層24および26は、アノード触媒コーティング30およびカソード触媒コーティング32を含むように製造される。この構造体は触媒コーティング電極バックイングまたはCCEBと呼ばれる。なおもう1つの立体構造体において、アノード触媒コーティング30は部分的に第1のGDL24上および部分的にPEM22の一表面上に配置され得、そしてカソード触媒コーティング32は部分的に第2のGDL26上および部分的にPEM22の多表面上に配置され得る。

【0038】

GDL24、26は典型的に、炭素繊維紙または不織材料もしくは織布から製造される。製品構造次第で、GDL24、26は片側上に炭素粒子コーティングを有し得る。上記の通り、GDL24、26は触媒コーティングを含むように、または含まないで製造可能である。

【0039】

図1Bに示される特定の実施形態において、MEA25は第1の縁シール系34および第2の縁シール系36の間に挿入されて示される。流れ場プレート40および42は、それぞれ第1シール系34および第2の縁シール系36に隣接する。各流れ場プレート40、42は気流場チャンネル43およびポートを含み、これを通して水素および酸素供給燃料が通過する。図1Bに描写された立体構造体において、流れ場プレート40、42は単極流れ場プレートとして構成されており、ここで、単一MEA25がその間に挿入されている。

【0040】

縁シール系34、36は、もう一方の汚染およびUCA20の不適切な終了から様々な流体(気体/液体)輸送および反応領域を隔離するためにUCAパッケージ内に必要なシーリンを提供し、そして流れ場プレート40、42間の電氣的絶縁および圧縮制御を更に提供し得る。

【0041】

1つの立体構造体において、縁シール系34、36は、弾性材料から形成されたガスケット

ット系を含む。様々な立体構造体において、以下に記載されるように、1層以上の様々な選択された材料は付着され、そしてその位置で硬化されるUCA20内のシーリング用サブガasketを提供することができる。

【0042】

図1Cは、1以上の双極流れ場プレート56の利用によって複数のMEA25を組み入れたUCA50を例示する。図1Cに示される立体構造体において、UCA50は2つのMEA25aおよび25bと、単一の双極流れ場プレート56とを組み入れる。MEA25aは、GDL66aおよび64aの間に挿入されたガス拡散ミクロ層カソード62a/膜61a/ガス拡散ミクロ層アノード60a層化構造を含む。GDL66aは、単極流れ場プレートとして構成される流れ場終了プレート52に隣接して位置する。GDL64aは双極流れ場プレート56の第1の流れ場表面56aに隣接して位置する。

10

【0043】

同様に、MEA25bは、GDL66bおよび64bの間に挿入されたガス拡散ミクロ層カソード62b/膜61b/ガス拡散層アノード60b層化構造体を含む。GDL64bは、単極流れ場プレートとして構成される流れ場終了プレート54に隣接して位置する。GDL66bは双極流れ場プレート56の第2の流れ場表面56bに隣接して位置する。N数のMEA25およびN-1双極流れ場プレート56を単一UCA50に組み入れることができることは認識されるであろう。しかしながら、一般的に、より効率的な熱管理のため、1つもしくは2つのMEA56を組み入れたUCA50(N=1、双極プレート=0またはN=2、単極プレート=1)が好ましいと考えられる。

20

【0044】

図1Bおよび1Cに示されるUCA立体構造体は、本発明における使用に関して実施可能な2つの特定の配置の代表である。これらの2つの配置は例示の目的のための提供され、そして本発明の範囲内の全ての可能な立体構造体を表す意図はない。むしろ、図1Bおよび1Cは、本発明の原理に従って製造されたMEAを含んでなるユニット化された燃料電池アセンブリ中に選択的に組み入れられた様々な構成部分を例示する意図がある。

【0045】

本発明の実施形態は、PEM型燃料電池膜電極アセンブリおよびサブアセンブリのための保護サブガasketに関する。サブガasketは、漏出を減少するためにMEAをシールするため、およびPEMを損傷から保護するための両方で機能する。サブガasketの表面は、MEAのシーリングを増強するためのミクロ構造化または粘性表面を含んでなる。いくつかの実施形態において、サブガasket材料は感圧接着剤組成物を含んでなる。

30

【0046】

破損したMEAの顕微鏡試験によって、MEA周辺の膜の穴または引き裂きが共通であることが明らかである。損傷はしばしば、膜とGDLとの間の周辺境界面における応力および膜のシワ形成によって引き起こされる。GDLは典型的に繊維状炭素から製造され、これは繊維が膜と接触する場所で膜を削る傾向がある。

【0047】

本発明のサブガasketを利用して、例えば活性領域の縁またはGDLの縁において燃料電池膜の機械的破損を減少することができる。本発明の実施形態に従って、保護層サブガasketは膜とGDLとの間に付着され、そしてその場で硬化され、必要とされる粗い境界面が提供され、これは周辺境界面に沿って膜損傷を減少する。サブガasketの関連特徴は、膜(吸湿性)がコーティングされ、従って水分から保護されることである。

40

【0048】

サブガasketは膜の安定性を増加し、そしてMEA周辺において膜のシワ形成を減少させる。膜のシワは、特にそれらがGDL縁において生じる場合、応力集中点を導き得、そしてMEAが圧縮されると膜に穴が開く。

【0049】

図2Aは典型的な触媒コーティング電極バックイング(CCEB)をベースとするMEA構造体を例示する。MEA構造体は、CCEB構造体210、215の間に挿入されたP

50

ＥＭ２５０を含んでなる。ＣＣＥＢ構造体は、アノードおよびカソード触媒層２４０、２４５でコーティングされたアノードおよびカソードガス拡散ミクロ層２３０、２３５を有するＧＤＬ層２２０、２２５を含んでなる。膜と触媒層との間の密接な接触が得られるように、ＣＣＥＢ２１０、２１５は高圧および高温でＰＥＭ２５０に結合される。適切な接触によってインピーダンス損失が減少し、そして触媒の利用可能性が増加する。さらに、触媒層と膜との間に生じた接着のため、ＣＣＥＢ２１０、２１５はその場に残る。連結されたＭＥＡの両側におけるＧＤＬ２２０、２２５は双極プレート間でさらに圧縮され、燃料電池操作間にこのような密接な接触が維持される。

【００５０】

触媒層２３０、２３５および膜２５０の間の良好な接触によってオーム抵抗損失が減少されるが、圧縮の応力のため、ＧＤＬ／膜境界面の外周２５１における膜引き裂きが生じ得る。延長された期間、電池が操作される場合、ＣＣＥＢ２１０、２１５が膜２５０に対して圧縮される場合に縁引き裂きおよび膜損傷が観察され得る。この種類の膜損傷によって燃料および酸化剤ガスクロスオーバーが導かれる。

【００５１】

図２Ｂは触媒コーティング膜（ＣＣＭ）２５５構造体の断面図を例示する。ＣＣＭ構造体において、熱および圧力は典型的に、触媒層２４０、２４５を膜２５０に有効に融合して、触媒コーティング膜２５５を形成するために適用される。ＧＤＬ／ガス拡散ミクロ層構造体２１１、２１６は圧力および熱によってＣＣＭ２５５に結合される。ＧＤＬ／ガス拡散ミクロ層構造体２１１、２１６は良好に付着することもあるが、付着度が変化しやすく、取り扱いの間にＧＤＬ構造体２１１、２１６がＣＣＭ２５５から剥離することがよくある。これを防ぐために、典型的にＧＤＬ構造体２１１、２１６は膜の活性領域よりもやや大きい大きさであり、重なり合いを生じる。従って、ガス拡散ミクロ層２３０、２３５は重なり合い領域において膜２５０と直接的に接触する。これによって、ＧＤＬ構造体２１１、２１６および膜２５０の間により強固な付着が生じるが、炭素はガス拡散ミクロ層２３０、２３５中で凝集するか、またはＧＤＬ縁における暴露された炭素繊維は相当して、ＧＤＬ／膜境界面の外周２５１において膜損傷を生じ得る。

【００５２】

本発明のいくつかの実施形態は、ＭＥＡアセンブリのＰＥＭの外周部分上に形成されたサブガasketを含む。図２Ｃは、本発明の実施形態によるサブガasket層２６０、２６５を例示するＣＣＥＢをベースとするＭＥＡの断面である。この実施形態において、サブガasket層２６０、２６５は、ＰＥＭ２５０とＣＣＥＢ２１０、２１５との間のＰＥＭ２５０の外周部分上に配置される。ＣＣＥＢ２１０、２１５の外周縁はサブガasket層２６０、２６５と重なり合う。例えば、ＣＣＥＢ２１０、２１５の外周縁は、約０．０５ｍｍ～約１０ｍｍでサブガasketと重なり合う。

【００５３】

サブガasket層２６０、２６５はＰＥＭ２５０の片側または両側上に付着されてよい。サブガasket層２６０、２６５は付着後にその場で硬化される。

【００５４】

サブガasket層２６０、２６５は、材料がＰＥＭまたは他のＭＥＡ構造体上に分配可能または計量可能であるように液体または流動性の形態で付着可能な材料を含んでなる。例えば、スクリーン印刷、グラビアコーティング、パターンコーティング、インクジェット印刷または他の適切な付着技術を使用してサブガasket材料を付着させることができる。サブガasket材料は、例えば液体モノマー／オリゴマー分散混合物を含んでもよい。分散混合物は、混合物が分配可能または計量可能であるように流動性の状態に置くことが可能である。

【００５５】

サブガasket材料は、ＭＥＡ構造体上でその場で硬化可能な材料から形成される。「その場で」硬化というのは、サブガasketが適用された位置で表面に対してまたは表面上でサブガasketがその場で硬化されることを意味する。サブガasket材料は、例え

10

20

30

40

50

ば、付着されたサブガasket材料の照射、加熱および／または冷却によって硬化されよう。いくつかの実施形態において、サブガasketは、例えば熱可塑性材料から形成され得る。サブガasket材料は、付着されたサブガasket材料を水分または反応性ガスに暴露することによって、そして／または他の硬化方法を使用することによって硬化され得る。

【0056】

様々な実施形態において、サブガasket材料の硬化はサブガasket材料の化学変化を伴っても伴わなくてもよい。一例において、サブガasket材料は溶融形態で付着され得る。サブガasket材料の硬化は、例えば、室温で材料が付着された液体状態から固化されたポリマーへと冷却する時に達成され得る。もう1つの例において、サブガasket材料の硬化は、紫外線(UV)硬化プロセスによるポリマー架橋のような付着された材料の化学変化を含んでなる。

10

【0057】

図2Dは、本発明の実施形態による、GDL構造体211、216がCCM255と重なり合うCCMをベースとするMEAの断面を例示する。GDL構造体211、216の外周縁はサブガasket層260、265と重なり合う。例えば、GDL構造体211、216の外周縁は約0.05mm～約10mmでサブガasketと重なり合う。

【0058】

この例において、サブガasket層はPEM250の外周部分上に形成されるため、触媒240、245およびサブガasket260、265の間に間隔252がある。この立体構造において、触媒240、245の活性領域はサブガasketの重なり合いによって減少されない。

20

【0059】

図2Eは、本発明の実施形態による、CCMをベースとするMEA断面を例示する。この実施形態において、GDL構造体211、216がCCM255上でサブガasket260、265と重なり合うため、GDL構造体211、216の周辺212、217はCCM255または露出膜250と直接接触しない。この立体構造において、保護サブガasket260、265はCCM255の活性領域の外周部分とわずかに重なり合い、膜250における反応性ガスの直接衝突を防止する。

【0060】

図3Aは、本発明の実施形態によるCCEBをベースとするMEAサブアセンブリ(または1/2-MEA)の断面図を示す。この実施形態において、ガス拡散層320、ガス拡散ミクロ層330および触媒層340を含むCCEB310は、CCEB310が本発明の保護サブガasket360と重なり合うような様式で膜353に結合される。この立体構造体において、GDL周辺351は膜353と直接接触しない。

30

【0061】

図3Bは、図3Aと関連して記載されるように、直接対立する膜表面353、354と一緒に結合されて「融合」二層膜350を有するMEAが生じる2つの1/2-MEAサブアセンブリの断面図の詳細を例示する。注目すべきは、図3Bには破線が示され、ここでは膜層353、354が融合している。各CCEB310、315はそれぞれGDL320、325、ミクロ層330、335および触媒層340、345を含む。様々な層が薄く整合性であり、そしてCCEB310、315が本質的に圧縮性であるため、得られる層状構造は平らである。しかしながら、保護サブガasket360、365が非常に厚く適用される場合、MEAが双極プレート間で圧縮される時にCCEB310、315が保護サブガasket360、365と重なり合う場所で硬質のバンドが生じ得る。

40

【0062】

図3Cは、本発明の実施形態によるCCMをベースとするサブアセンブリ(1/2-MEA構造)の断面図を示す。GDL311は、GDL周辺351が膜と直接接触しないように本発明の適用された保護サブガasket360と重なり合う。図2Dに描写されるMEA構造体と同様に、サブガasket360が形成されて、サブガasket360と触媒

50

層 3 4 0 との間に間隔 3 5 2 がある。

【 0 0 6 3 】

図 3 D は、図 3 C と関連して記載された型の、一緒に結合して M E A 構造体を形成する 2 つの C C M サブアセンブリの断面図を描写する。この実施形態に従って、示されるように、1 / 2 - M E A 構造体の膜表面 3 5 3、3 5 4 は直接対向して「融合」二層膜 3 5 0 を有する C C M 3 5 5 が生じる。注目すべきは、図 3 D には破線が示され、そこでは膜層 3 5 3、3 5 4 が融合している。図 3 C に示される通り、融合二層 P E M 3 5 0 の領域をコーティングしている保護サブガasket 3 6 0、3 6 5 および触媒 3 4 0、3 4 5 の間の間隔 3 5 2 は触媒活性領域寸法の減少を防ぐ。G D L 3 1 1、3 1 6 は、保護された二層 C C M 3 5 5 に結合および連結される位置に示される。

10

【 0 0 6 4 】

本発明のもう 1 つの実施形態を図 3 E に示す。図 3 E は C C M をベースとする 1 / 2 - M E A サブアセンブリを描写する。保護サブガasket 層 3 6 0 は、膜 3 5 3 を被覆する触媒層 3 4 0 と重なり合う。このような重なり合いのため、G D L 3 1 1 は G D L - C C M 境界面 3 5 1 の周辺において、触媒 3 4 0 または膜 3 5 3 と直接接触しない。この立体構造体において、サブガasket 3 6 0 は P E M 3 5 0 と G D L 3 1 1 との間に配置され、サブガasket の一部は G D L 3 1 1 と触媒層 3 4 0 との間に配置される。

【 0 0 6 5 】

図 3 F は、図 3 E に例示される型の 2 つの C C M サブアセンブリの融合を例示する。1 / 2 - M E A サブアセンブリは一緒に結合され、融合二層膜 3 5 0 を有する C C M 3 5 5 を生じる。示されるように、保護サブガasket は C C M 3 5 5 の触媒層 3 4 0、3 4 5 上に配置される。図 2 E に例示される実施形態と同様に、保護サブガasket 3 6 0、3 6 5 は活性領域とわずかに重なり合い、膜における反応性ガスの直接衝突を防止する。G D L 層 3 1 1、3 1 6 は示される位置で保護サブガasket 3 6 0、3 6 5 上に配置される。

20

【 0 0 6 6 】

注目すべきは、図 3 F には破線が示され、そこでは膜層 3 5 3、3 5 4 が融合している。M E A 構造体の様々な層が薄く整合性であり、そして G D L 3 1 1、3 1 6 が本質的に圧縮性であるため、得られる層状構造体は平らである。保護サブガasket 3 6 0、3 6 5 が非常に厚く適用される場合、M E A が双極プレート間で圧縮される時に G D L 3 1 1、3 1 6 が保護サブガasket 3 6 0、3 6 5 と重なり合う場所で硬質のバンドが生じ得る。

30

【 0 0 6 7 】

図 4 A ~ 4 F に例示される様々な本発明の実施形態は、二層膜の融合層間に配置された保護サブガasket 層を含む。図 4 A は、膜 4 5 3 の裏側上に配置されたサブガasket 層 4 6 0 を有する 1 / 2 - M E A サブアセンブリを例示する。サブガasket 層 4 6 0 はそのように配置されるため、G D L 構造体 4 1 1 (G D L 4 2 0 およびマイクロ層 4 3 0) が膜 4 5 3 に結合される周辺領域 4 5 2 を補強する。

【 0 0 6 8 】

図 4 B は、融合して完全 M E A を形成する前の 2 つの 1 / 2 - M E A サブアセンブリ 4 8 0、4 8 5 を例示する。各 1 / 2 M E A 4 8 0、4 8 5 はそれぞれ、G D L 構造体 4 1 1、4 1 6、触媒層 4 4 0、4 4 5 および融合膜 4 5 3、4 5 4 を含む。1 / 2 - M E A 4 8 0、4 8 5 は、融合膜 4 5 3、4 5 4 の裏側上に配置されたサブガasket 層 4 6 0、4 6 5 を有する。融合後、サブガasket 層 4 6 0、4 6 5 は融合膜内に補強層を形成し、これは周辺領域 4 5 2 の融合膜を保護する。

40

【 0 0 6 9 】

図 4 C は、本発明の実施形態による C C E B をベースとする M E A アセンブリの断面を例示する。M E A サブアセンブリは、膜 4 5 3、4 5 4 の裏側に適用された保護サブガasket 層 4 6 0、4 6 5 を有する。膜 4 5 3、4 5 4 は融合して、融合二層膜 4 5 0 を形成する。注目すべきは、図 4 C には破線が示され、そこでは膜層 4 5 3、4 5 4 が融合し

50

ている。図 4 C は、内部サブガasket層 4 6 0、4 6 5 を含む融合膜 4 5 0 上に配置された C C E B 4 1 0、4 1 5 を例示する。二縁が保護された膜サブアセンブリ 4 5 3、4 5 4 を直接対向する膜表面と積層することによって、内部補強縁を有する二層膜 4 5 0 を有する M E A が得られる。C C E B 4 1 0、4 1 5 は、以前の工程で二層膜 4 5 0 が生じた後、融合二層膜 4 5 0 に結合される位置に示される。

【 0 0 7 0 】

内部補強層を有する融合二層膜の一般的概念は、補強縁を有する二層膜を有する C C M のような追加的順列を作成するまで拡大される。かかる構造において、保護サブガasket層は二層膜内部でシールされ、従って、燃料、酸化剤、水または触媒による攻撃に直接暴露されない。

10

【 0 0 7 1 】

図 4 D は、本発明の実施形態による C C M をベースとする M E A サブアセンブリ (1 / 2 - M E A) 4 9 0 の断面図を例示する。この例において、本発明の保護サブガasket層 4 6 0 は膜 4 5 3 の裏側に適用され、後に G D L が膜 4 5 3 と係合する周辺領域 4 5 2 を補強する。

【 0 0 7 2 】

図 4 E は、(前記の図と同様に) 直接対向する膜 4 5 3、4 5 4 表面と一緒にサブアセンブリ 4 9 0、4 9 5 を積層して補強縁を有する二層膜 4 5 0 を形成する前のこの構造体の C C M サブアセンブリ 4 9 0、4 9 5 を例示する。この位置に示される G D L 4 1 1 は、二層膜 4 5 0 が形成する前後のいずれかに C C M サブアセンブリ 4 9 0、4 9 5 に結合可能である。

20

【 0 0 7 3 】

図 4 F は、補強縁を形成する内部サブガasket層 4 6 0、4 6 5 を有する二層膜 4 5 0 を有する完全 M E A の断面図を例示する。注目すべきは、図 4 F には破線が示され、そこでは膜層 4 5 3、4 5 4 が融合している。前記の通り、薄層およびそれらの整合性のため、最終的な連結された M E A は本質的に平らである。

【 0 0 7 4 】

図 5 は、本発明の実施形態による結合前の C C M をベースとする M E A 構造体の断面図を例示する。C C M をベースとする M E A は膜 5 5 0 に融合された触媒層 5 4 0、5 4 5 を含み、触媒コーティング膜 5 5 5 を形成する。G D L 構造体 5 1 1、5 1 6 は、ガス拡散層 5 2 0、5 2 5 およびガス拡散ミクロ層 5 3 0、5 3 5 を含む。G D L 構造体 5 1 1、5 1 6 は圧力および熱によって C C M 5 5 5 に結合される。図 5 に描写される M E A 構造体は、高耐久化された G D L 縁を有する M E A を生じるように G D L 5 1 1、5 1 6 の外周部分上に配置された本発明の保護サブガasket層 5 6 0、5 6 5 を含む。

30

【 0 0 7 5 】

本発明は、G D L 周辺と膜との間のサブガasket保護層の付着を含んでなる。サブガasket保護層の形成によって、M E A の周辺境界面に沿って膜の損傷が減少する。付着されたサブガasket層は膜をコーティングし、そして水分から膜を保護する。サブガasket層は膜をより安定にさせ、M E A 周辺における膜のシワ形成を減少させる。膜のシワは、特にそれらが G D L 縁において生じる場合、応力集中点を導き得、そして M E A が圧縮されると膜に穴が開く。保護サブガasket層はイオン非伝導性または非導電性材料を含んでもよい。

40

【 0 0 7 6 】

本発明の保護サブガasket層を形成するために使用される材料は、様々な方法によって膜、G D L または他の M E A 構成部分上に付着されてよい。付着方法としては、スクリーン印刷、コーティング、例えば、グラビアコーティングまたはパターンコーティング、スプレー、例えばインクジェット印刷またはまたは他の付着方法によるものが挙げられる。サブガasket材料は、例えば、適合する形状であるが、M E A の活性領域パターンよりもわずかに小さいパターンか、またはわずかに大きい領域に付着されてよい。パターンは、G D L の周辺縁が保護層と重なり合うように寸法設計される。典型的に、重なり合い

50

の量は約 0 . 0 5 m m ~ 約 1 0 m m である。

【 0 0 7 7 】

C C E B (触媒コーティング電極バックング) の方法が使用される場合、保護サブガスケット層は、C C E B 周辺が保護コーティングと重なり合うように寸法設計される。C C M (触媒コーティング膜) の方法が使用される場合、保護サブガスケット層は、活性領域より大きいかまたはより小さいように適用可能である。いずれにせよ、保護層は、G D L がそれと重なり合うように寸法設計される。

【 0 0 7 8 】

C C M が製造される前に保護サブガスケット層を適用可能である (その後、コーティングされていない窓に触媒が適用される) か、または C C M が調製された後に保護コーティングを適用可能である。C C M を製造した後に保護コーティングを適用する場合、コーティングは触媒活性領域と重なり合うことができるか、または活性領域周囲でコーティングされていない膜の狭い余白を残すように寸法設定することができる。

10

【 0 0 7 9 】

膜上に付着後、乾燥、加熱、冷却、放射線、電場、水分、ガスへの暴露または他の硬化方法によって保護サブガスケット層を硬化してよい。様々な実施において、硬化プロセスは、材料が流動状態から固体状態まで硬化されるように不可逆変化を含み得る。硬化は、材料中のポリマーの化学架橋によるようなサブガスケット材料の化学変化を伴い得る。

【 0 0 8 0 】

サブガスケット材料は、U V または可視スペクトルにおける光、電子ビーム放射線および / または他の種類の放射線を含む様々な波長の放射線への暴露によって硬化可能であり得る。

20

【 0 0 8 1 】

サブガスケット材料は、空気から、または M E A の構成部分からの水分のような水分への暴露によって硬化可能である。水分硬化のために適切な材料としては、例えば 3 M ジェットメルト (J E T M E L T) が挙げられる。ポリウレタンホットメルト接着剤のような水分硬化可能な材料は、ポリエステルおよび / またはポリエーテルポリオールを組み合せから製造されてもよい。これらの材料は、過剰量のジイソシアネートとの反応時に末端イソシアネート基を有するプレポリマーを形成する。グラビアコーティング、スクリーン印刷によって、またはスロットノズルを介して、プレポリマーはサブガスケット層として付着可能である。

30

【 0 0 8 2 】

サブガスケット材料は、プラズマのような反応性ガスを含む様々なガスへの暴露によって、または電場への暴露によって硬化可能である。

【 0 0 8 3 】

特定の種類の分配可能なサブガスケット材料は、サブガスケット材料が燃料電池操作温度において固体のままであるように相変化を誘発するために冷却することによって硬化可能である。相変化は可逆性でも不可逆性でもよいが、不可逆性の相変化が好ましい。

【 0 0 8 4 】

本発明の保護層は、G D L の粗い繊維状の縁によって生じる損傷、G D L ミクロ層コーティング中の微粒子または巨大凝集体によって生じる損傷、膜 / 触媒または膜 / G D L 境界面においてしばしば生じる縁の引き裂き、湿り空気暴露または脱水条件から生じる寸法変化、および / または燃料電池操作間に入って来るガスと膜との間で生じる化学的風化から物理的に膜を保護することがわかっている。

40

【 0 0 8 5 】

複合構造体 (膜と保護サブガスケット層) の機械特性は、露出膜の機械特性以上に向上される。膜の弾性モジュラス、穿刺耐性およびトラウザー引裂き耐性は向上する。燃料電池操作における膜の耐久性は、本発明の保護サブガスケットによって提供される改善された機械特性のため増加する。

【 0 0 8 6 】

50

さらに、本明細書に記載のサブガasketの使用によって、湿り空気中または高温における膜の寸法安定性が向上する。膜と保護層との間の接着力が増加するため、沸騰水の存在下でさえもコーティングが接着したままである。膜と保護コーティングとの間の境界面は、ガス漏出を防止するために十分である。

【0087】

本発明のサブガasketは、様々な立体構造体でのMEAの製造のために適切である。1つの立体構造体において、MEAはGDL構造体および触媒コーティングPEM膜(CCM)からなる。もう1つの立体構造体において、MEAは、触媒コーティングGDL構造体と組み合わせられた未変性のPEM膜からなる。また触媒コーティングGDL構造体は、触媒コーティング電極バックング(CCEB)とも呼ばれる。

10

【0088】

図6および7のフローチャートは、本発明の実施形態によるMEAアセンブリおよびサブアセンブリの製造に関するプロセスを例示する。図6のフローチャートによって例示されるように、MEAサブアセンブリの製造方法は、GDL構造体上で分散性サブガasket材料を付着する工程610を含む。分散性サブガasket材料は、例えば、スクリーン印刷によって、グラビアコーティングおよびパターンコーティングを含む様々なコーティング技術によって、またはインクジェット印刷のようなスプレー法によって付着されてもよい。この実施形態において、GDL構造体は触媒コーティング電極バックング(CCEB)を含んでもよい。

20

【0089】

図6はMEAアセンブリの形成方法を例示する。付着610後、サブガasket材料をその位置で硬化620し、GDL構造体上にサブガasketを形成する。サブガasket化GDLをPEM構造体の一表面上の配置630する。第2のサブガasket化GDL構造体を第1のサブガasket化GDL構造体に連結させることによって、完全MEAが形成され得る。第2のサブガasket化GDL構造体は、PEMのない表面に連結される。いくつかの実施においては、PEMは触媒コーティング膜(CCM)であってもよい。

【0090】

図7はMEAアセンブリの形成方法を例示する。分散性サブガasket材料は第1のPEM層上に付着710され、そしてその場で硬化720される。第1のGDLは第1のPEMの表面において配置730され、第1の1/2MEAサブアセンブリを形成する。サブガasket材料は第2のPEM層上に付着740され、そしてその場で硬化750される。第2のGDLは第1のPEMの表面において配置760され、第2の1/2MEAサブアセンブリを形成する。第1および第2の1/2MEAサブアセンブリを連結し、完全MEAを形成する。

30

【0091】

上記の実施形態による付着およびその位置で硬化されたサブガasket層は、従来使用されたフィルム状サブガasket以上の多くの有利な点をもたらす。サブガasket層は、損傷から膜を物理的に保護するために有用である。膜への損傷は、GDLの粗い繊維状の縁および/またはGDLミクロ層コーティング中の微粒子または巨大凝集体によって引き起こされ得る。従来、縁の保護方法は、薄剛性フィルム状基材の膜への積層を伴った。従来の縁の保護方法では、GDLが縁保護と重なり合う硬質バンドを減少するため、薄材料を使用した。シワ形成がない状態でのこれらの薄材料の取り扱いや切断は、それらの脆い性質および静電荷のため、困難である。加えて、処分される窓部分のため、著しい量の材料が廃棄される。本明細書に記載の実施形態による方法の使用によって、保護材料は、必要とされる場所に選択的に適用されるため、生じる廃棄物が少ない。

40

【0092】

さらに本明細書に記載の実施形態による方法の使用によって、従来の方法で必要とされたような複雑な薄膜切断および巻取り装置を有する必要が減少する。

【0093】

本発明の実施形態に記載されるように、サブガasketの付着およびその位置での硬化

50

は、フィルム状サブガスケットの縁によって引き起こされる膜損傷の発生を減少させる。既知の縁保護方法において使用されるフィルム状材料の切断は、一般的に、切断された縁上に縁のギザギザまたはギザギザの欠陥を残す。フィルム状サブガスケットの鋭いギザギザまたは縁は、膜に損傷を引き起こし得る。湿度または温度変化のため膜が膨張または収縮する場合、または電池圧縮が高い状況において、損傷は悪化し得る。

【0094】

本発明の実施形態によって形成されたサブガasketは、従来の方法以上に、膜に対するサブガasketの接着の向上をもたらす。従来の方法によってMEA製造において使用される典型的な剛性フィルム状サブガasketは、一般にOL-12と呼ばれている1.2ミルのマイラ(Mylar)から製造される。従来の方法の典型的な剛性フィルム状サブガasketは、典型的に膜に対して配置されるか、または膜に積層される。OL-12は付着力のみによって固着し、従って、ガス漏出経路が可能である。

10

【0095】

OL-12が使用される場合、典型的に、それは積層体または電池が組み立てられる時に膜の片側上のみに配置される。層が薄く密着性であり、また取り扱いが困難であるため、層は膜の片側上のみで頻繁に使用される。このような片側の方法によって、被覆されていない反対側における攻撃または分解が生じ得る。片側のサブガasket方法が使用される場合、MEA周辺縁では深刻な縁巻きの傾向もある。本発明の方法を使用して付着および硬化されたサブガasketによって、保護層が膜の両側に容易に適用される。

20

【0096】

本発明の実施形態によるサブガasket形成において使用されるモノマーおよびオリゴマー性分散系構成部分は、それらが硬化される前にイオノマー膜を部分的に浸透および膨潤する。イオノマー膜の浸透および膨潤によって、保護層と膜との間に非常に強固な結合が生じる。かかる結合は、液体水分、さらには沸騰水への長期暴露に耐えることが可能である。保護サブガasket層と膜との間の接着は、従来使用されたフィルム状サブガasketを使用して達成可能であるものよりも非常に強い。

【0097】

本発明の実施形態に従って付着および硬化されたサブガasketは、厚さが減少された縁保護を提供する。フィルム状サブガasketでは、1ミルより薄いフィルムを得ることは困難であり、より典型的には1.2ミルの厚さのフィルムが使用される。本発明の印刷およびゾーン-コーティング法を使用して、0.2ミル程度の薄さの均一保護層を容易に付着させることができる。

30

【0098】

本発明のサブガasketによって、吸水性の減少がもたらされる。燃料電池膜は一般的に寸法不安定であり、そして湿り空気および液体水分に対して感応性である。湿度レベルが変化すると、膜は膨張および収縮する。本発明のサブガasketを使用すると、保護膜の吸水性は、保護されていない膜のものより著しく低い。

【0099】

以下の実施例1に記載されるように、完全乾燥膜を10分間、室温にて飽和条件で水和した場合、それは初期重量の51%を得た。本明細書に記載の通り付着および硬化されたサブガasket材料によって保護された膜は、同一条件でちょうど18%を得た。寸法安定性の観点から、保護膜に関する11%増加と比較して、露出膜の部分は、同一の加湿後、長さが21%増加する。

40

【0100】

水滴を露出膜上に置いた時、液滴と接触がある膜は著しくシワを形成した。水滴を実施例1の保護膜上に置いた時、付近にシワが生じなかった。

【0101】

本発明の実施形態によるサブガasket化膜は、露出膜と比較して改善された機械特性をもたらす。本明細書に記載の実施形態に従って付着および硬化されたサブガasketによって保護された膜の弾性モジュラスは、露出膜のものよりも高い。露出膜および保護膜

50

の試料を 0.5 インチ × 8 インチの大きさに切断し、そして引張荷重を受けさせた。実施例 1 の保護膜を同量まで伸長するために 1665 kg f / cm²が必要とされることがと比較して、露出膜は 845 kg f / cm²の荷重で初期長さの 40 %まで伸長する。これは、保護膜が露出膜よりも約二倍強靱であったことを示す。

【0102】

0.5 インチ × 8 インチ試料における引張強度 M E A 測定において、3330 kg f / cm²で破壊した実施例 1 の保護膜と比較して、露出膜は 856 kg f / cm²の応力で破壊した。これは、引張強度が約三倍高かったことを示す。穿刺耐性は、60 p s i における露出膜と比較して、65 p s i における保護膜に関してより高かった。

【0103】

インストロン (I n s t r o n) 法によって測定されるトラウザー引裂き強度は、一旦スライスまたは点欠陥が開始してから、材料が亀裂伝播に対してどの程度の耐性があるかという基準である。この値は典型的に、同種の燃料電池膜に対しては非常に低い。本発明のサブガasketによって保護された実施例 1 の膜は、露出膜に対する 3.1 グラムと比較して、5.5 グラムのトラウザー引裂き強度を有した。これは、露出膜以上のトラウザー引裂き強度の実質的な向上である。露出膜の熱アニーリングまたは厚さ増加、例えば厚さ 25 % 増加は、典型的にトラウザー引裂き強度を改善する。しかしながら、本発明のサブガasket材料の使用は、熱アニーリングまたは厚さ増加によって得られるもの以上にトラウザー引裂き強度の改善をもたらす。例えば、3 M イオノマー膜の 160 および 200 のアニーリングの比較において、トラウザー引裂き強度は、ウェブの下方方向へ 2.4 グラムから 3.3 グラム、そしてウェブの横断方向へ 2.1 グラムから 2.8 グラム増加した。同様に、1 ミルおよび 1.5 ミルのキャストナフイオン (N a f i o n) (登録商標) の間で小さい差異が見られる。

【0104】

本発明の実施形態に従って付着およびその位置で硬化することによって形成されるサブガasketは、熱収縮に対する感応性の減少をもたらす。

【0105】

キャスト膜をライナーから取り外す時、それは張力が適用されない場合であっても、熱暴露によって生じる寸法変化に感応性である。150 ° F および 100 % R H で暴露された露出膜は、約 2 % または 20,000 p p m 収縮した。本明細書 (実施例 1) に記載されたように形成されるサブガasket材料によって保護された膜を同一条件下で暴露すると、約 1.5 % または 15,000 p p m のみ収縮した。

【0106】

本発明のサブガasketの使用によって、M E A 組み立て後、膜への G D L の付着が改善される。典型的に、かなりの熱および圧力が適用される場合でさえ、G D L は事前に形成された C C M に付着しない。いくつかの場合では、M E A が注意深く取り扱われる場合のみ、G D L は結合したままである。本発明の膜保護層は硬化後も整合性であり、柔軟である。適度な熱および圧力下で、G D L が本明細書に記載のサブガasket材料に容易に結合することは注目に値する。

【0107】

図 8 は、電力供給源としての燃料電池の操作の理解を容易にする簡略化された燃料電池系を描写する。図 8 に示される燃料電池系 800 は、燃料電池積層体の各末端に配置される第 1 および第 2 の終板アセンブリを含む。燃料電池積層体は、終板 802、804 に隣接して配置された単極流れ場プレートとして構成された流れ場プレート 832、834 を含む。多数の M E A 860 および二極式流れ場プレート 870 が、第 1 および第 2 の終板 802、804 の間にある。これらの M E A 構成部分は、好ましくは、前記のように形成されるサブガasketを利用する。

【0108】

終板 802、804 を通してのCONNECTING ロッド 880 は、CONNECTING ロッド ナット 885 が締め付けられる時、燃料電池積層体を優先的に圧縮するために使用されて

10

20

30

40

50

よい。燃料電池積層体から収集される電流は、負荷 890 に電力を供給するために使用される。

【0109】

図 8 に例示されるように、燃料電池系 800 は、例えば酸素を受容可能な第 1 の燃料インレットポート 806 を有する第 1 の終板 802 と、例えば水素を放出可能な第 2 の燃料アウトレットポート 808 とを含む。第 2 の終板 804 は、例えば酸素を放出可能な第 1 の燃料アウトレットポート 809 と、例えば水素を受容可能な第 2 の燃料インレットポート 810 とを含む。燃料は、終板 802、804 で提供される様々なポート 806、808、809、810、ならびに積層体の各 MEA 860 および流れ場プレート 870 (例えば UCA) に提供されるマニホールドポートを通して、明示された様式で積層体中を通過する。

10

【0110】

図 9 ~ 12 は、本明細書に記載の燃料電池アセンブリを組み入れてもよく、そして発電のために燃料電池積層体を使用してもよい様々な燃料電池系を例示する。図 9 に示される燃料電池系 900 は、本明細書の実施形態によって例示される燃料電池アセンブリが利用されてもよい多くの可能な系の 1 つを描写する。

【0111】

燃料電池系 900 は、燃料プロセッサ 904、電力部 906 および電力調節器 908 を含む。燃料改質装置を含む燃料プロセッサ 904 は、原料燃料、例えば天然ガスを受け、そして原料燃料を加工して水素が豊富な燃料を製造する。水素が豊富な燃料は、電力部 906 に供給される。電力部 906 内で、水素が豊富な燃料は、電力部 906 に含有される燃料電池積層体の UCA の積層体中に導入される。空気の供給も電力部 906 に提供され、これは燃料電池の積層体の酸素供給源をもたらす。

20

【0112】

電力部 906 の燃料電池積層体は、DC 電力、使用可能な熱およびクリーンな水を生じる。再生系において、副産熱のいくらかまたは全てが使用されて蒸気を生じ得、これは続いて、燃料プロセッサ 904 によって使用され、様々な処理機能を実行することができる。電力部 906 によって生じる DC 電力は電力調節器 908 に送達され、ここで、その後の使用のため、DC 電力は AC 電源に変換される。DC アウトプット電力を提供する系において、AC 電力変換が含まれる必要がないことは理解される。

30

【0113】

図 10 は、燃料供給ユニット 1005、燃料電池電力部 1006 および電力調節器 1008 を含む燃料電池電力供給 1000 を例示する。燃料供給ユニット 1005 は、燃料電池電力部 1006 に供給される水素燃料を含有する貯蔵器を含む。電力部 1006 において、水素燃料は、電力部 1006 に含有される燃料電池積層体の UCA 中に空気または酸素と一緒に導入される。

【0114】

燃料電池電力供給系 1000 の電力部 1006 は、DC 電力、使用可能な熱およびクリーンな水を製造する。所望であれば、AC 電源への変換のために、電力部 1006 によって生じる DC 電力は電力調節器 1008 へと転送されてもよい。図 10 で例示される燃料電池電力供給系 1000 は、例えば、固定または携帯型 AC もしくは DC 発電機電力として実行されてもよい。

40

【0115】

図 11 に例示される実施において、燃料電池系 1100 は燃料電池電力供給によって発生する電力を使用して、コンピュータを操作するための電力を提供する。図 10 に関して記載されるように、燃料電池電力供給系は燃料供給ユニット 1105 および燃料電池電力部 1106 を含む。燃料供給ユニット 1105 は、燃料電池電力部 1106 に水素燃料を提供する。電力部 1106 の燃料電池積層体は、デスクトップまたはラップトップコンピュータのようなコンピュータ 1110 を操作するために使用される電力を製造する。

【0116】

50

図 12 に例示されるもう 1 つの実施において、燃料電池系 1200 は燃料電池電力供給から電力を使用して、自動車进行操作する。この立体構造において、燃料供給ユニット 1205 は、燃料電池電力部 1206 に水素燃料を供給する。電力部 1206 の燃料電池積層体は、自動車 1210 の駆動機構に連結するモーター 1208 を操作するために使用される電力を生じる。

【0117】

実験

以下に提供される実施例は、本発明の実施形態による M E A 構造の製造に関する様々な方法を記載する。

【0118】

一般的な方法論

均一な液体混合物（以後、「分散体」と呼ぶ）を形成するために、保護サブガasket層を構成する分散溶液を完全に混合する。P E M または G D L 構造体への分散体の適用は、好ましくはスクリーン印刷によって実行される。

【0119】

P E M をライナーから取り外し、そしてスクリーン印刷テーブル上で平らに配置し、その場でテープによって縁に保持された。所望のパターンのスクリーンを使用して、分散体の薄層を P E M に適用した。付着されたサブガasket層の厚さをスクリーンメッシュサイズによって制御した。例えば、サブガasketは約 $5\text{ }\mu\text{m}$ ~ 約 $100\text{ }\mu\text{m}$ の厚さを有する。コーティングされてない膜領域が、使用されている G D L または C C E B の大きさよりもわずかに小さくなるように、スクリーンのパターンを設計した。270 メッシュスクリーンを使用して、厚さ 1 ミルまでの保護コーティング層を付着した。

【0120】

第 1 のサブガasket層の「湿潤」コーティングは、適切な波長および強度の U V ランプを使用して硬化された。使用される U V 装置は、マサチューセッツ州、ガイテスバルグのフュージョン システムズ インコーポレイテッド (F u s i o n S y s t e m s , I n c . , G a i t h e s b u r g , M A) のモデル # D R S - 120 であった。D 型または H 型バルブを使用して、4 フィート / 分でサブガasket層を硬化する。バルブの種類は、適用された分散体の化学に従って異なった。

【0121】

部分的にコーティングされた膜を裏返し、テープを使用してスクリーン印刷テーブル上で平らに配置して、膜の第 2 の側をコーティングした。各層に対してコーティングされていない窓が整列されるように、サブガasket化膜をテーブル上に配置した。

【0122】

G D L / 触媒結合は、適切なダイによって寸法設定されるように C C E B または G D L の断片の切断を伴った。C C E B は膜上の保護されていない窓よりもわずかに大きく寸法設定されるため、G D L の縁周辺に約 100 ミルの重複があった。C C E B 断片はコーティングされた膜の両側に配置され、P T F E シムが G D L 周辺に配置される。

【0123】

サブガasket化膜、2 つの G D L (1 つは上部、もう 1 つは底部) および G D L 周辺に配置される 2 つの P T F E ガasketを含んでなる積層された層状アセンブリを形成した。G D L およびガasketの縁が整列するように、構成部分が配置されてよい。

【0124】

予め決められた期間で、M E A 構成部分に圧力および熱の一方または両方を適用することによって層状アセンブリを結合してもよい。例えば、P E M の軟化点付近の温度の熱が適用されてもよい。層を連結し、ガasket化 M E A を製造するために、約 10 分間、約 $132\text{ }^{\circ}\text{F}$ ($270\text{ }^{\circ}\text{F}$) および約 0.89 MPa ($0.5\text{ トン} / 50\text{ cm}^2$) ~ 約 5.3 MPa ($3.0\text{ トン} / 50\text{ cm}^2$) 、好ましくは 2.7 MPa ($1.5\text{ トン} / 50\text{ cm}^2$) の熱および圧力の適用によって結合が達成されてもよい。過剰圧縮を防止するために、結合の間、膜の両側上で一対の 5 ミル P T F E シムが使用されてもよい。

10

20

30

40

50

【実施例】

【0125】

実施例 1

10部のポリブタジエンメタクリレートオリゴマー（ペンシルバニア州、エクストンのサートマー（Sartomer, Exton, PA）から商品名「CN301」で入手可能）と、3部の1,6-ヘキサンジオールジアクリレート（19341 ペンシルバニア州、エクストンのサートマー（Sartomer, Exton, PA）から商品名「SR238」で入手可能）とを含んでなるUV硬化可能な分散体混合物を調製した。約5重量%の - ヒドロキシ - アセトフェノン型光開始剤（ペンシルバニア州、エクストンのサートマー（Sartomer, Exton, PA）から商品名「SR1129」で入手可能）を使用した。この分散体は約1000cpの粘度を有した。第一段階において、厚さ1.1ミルのキャストナフィオン（Nafion）（登録商標）1100膜をキャリアライナーから剥離した。薄膜の取り扱いを容易にするため、断面をスクリーン印刷機上に装着されたポリエチレンテレフタレート（PET）キャリアウェブ上にテープで貼り付けた。パターン化ガルス（Gallus）型スクリーンを使用して、分散体を前記膜に適用した。1インチあたり240開口のスクリーン印刷メッシュを使用して、厚さ約1ミルまでの保護フィルムを膜の各側に付着させた。各コーティング層を適用した後、D型バルブを使用して分散体を硬化した。片側での印刷およびUV硬化後、膜の断面を裏返し、逆位置においてPETキャリアにテープで貼り付けた。分散体の2回目のパスを適用および硬化後、得られた膜を両側で約1ミルの粘性樹脂ポリマーによってコーティングした。

10

20

【0126】

実施例 2

膜をPETキャリアライナーに付着させたまま、上記実施例1に記載の分散体混合物を膜上に印刷した。厚さ3ミルのPETライナー上の厚さ1.1ミルのキャストナフィオン（Nafion）（登録商標）1100膜をアンワインドからワインドアップまでテルスター（TELESTAR）（ミネソタ州、バーンズビル（Burnsville, MN））スクリーン印刷機上に装着したUV硬化可能な分散体混合物を約1ミルの厚さまでPEMに付着させた。実施例1と同様に、D型バルブを使用して分散体を硬化した。次いで膜をライナーから剥離した。得られた膜は片側上に、コーティングされていない窓開口周囲に適用された保護材料のフレームを有した。

30

【0127】

実施例 3

ノーザン コーティングス（Northern Coatings）（ミシガン州、メノミー（Menominee, MI））からUV保護ワニスの試料（トリメチロールプロパントリアクリレートエステル）を入手した。実施例2の方法を使用して、膜上に2ミルの厚さまでUVワニスを適用した。実施例1と同様に、D型バルブを使用して分散体を硬化した。次いで膜をライナーから剥離した。得られた膜は、コーティングされていない窓開口周囲に適用された保護材料のフレームを有した。手で試験した時、保護膜は伸長および変形に対して著しく抵抗を示したが、膜が沸騰水に暴露された時、コーティングは離層した。

40

【0128】

実施例 4

インクジェット印刷可能なゾル - ゲルPSA分散体を以下の組成：80質量%のモノマー混合物：80部の2-エチルヘキシルアクリレート（2-EHA）、20部のイソボルニルアクリレート（IBA）、0.10部の1,6ヘキサンジオールジアクリレート（HDDA）架橋剤および光開始剤（ペンシルバニア州、エクストンのサートマー（Sartomer, Exton, PA）から入手可能な商品名「エサキュア（ESACURE）KB-1」で既知）と、20質量%の表面処理シリカとで調製した。この分散体は米国特許出願公開第2002/0128340号明細書の例えば実施例8および表4において、ならびに関連文章において記載されている。前記で組み入れられた米国特許出願第10/3

50

25, 278号明細書に記載のようにテトラフルオロエチレン(TFE)と $\text{HOSO}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2$ とのコポリマーと同様に、ナフィオン(Nafion)(登録商標)1100にこの材料を1~2ミルの厚さで適用するためにドロウダウンコーティング法を使用した。低圧T5殺菌性UV管を使用して20分UV硬化を実行し、PSA特性を達成した。この硬化段階については、米国特許出願公開第2002/0128340号明細書の例えば実施例9に記載されている。得られたフィルムは韌性で粘性であった。伸長時、未処理の膜と比較して試料は著しく強く感じられた。この材料の一部を蒸留水中で4時間沸騰させ、そしてコーティングは膜に強力に接着したままであった。硬化前にモノマーはわずかに膜中に浸透し得るため、膜への接着の増加が生じる。コーティングを硬化した後、このような事前の膨潤のため、定着は良好であった。

10

【0129】

実施例5

前記で組み入れられた米国特許出願第10/325, 278号明細書に記載のような1.2ミル厚の試料(160 アニール化)950当量膜をガラスプレート上で引っ張って伸長した。1ミルのポリエステルからステンシルカットを使用して、約1ミルのビニルプラスチックゾル樹脂(オハイオ州、エイボンレイクのポリワン コーポレーション(Poly One Corporation, Avon Lake, OH)から商標名「M3108 BLACK」で入手可能)を開口領域を有するフレームパターンに適用した。プラスチックゾルは、80 で低クリープを有するように開発された微粒子充填配合物である。硬化後、プラスチックゾルを170 まで10分間加熱し、ゲル化して、プラスチックゾルを固化した。UV硬化は実行しなかった。室温まで冷却後、コーティングされた膜とコーティングされていない膜とで手による比較を実行した。コーティングされた膜は著しく強く、そして伸長に対してより抵抗を示した。80 のDI水中で2時間後、コーティングは接着したままであった。しかしながら、DI水で4時間沸騰後、プラスチックゾル層は部分的に分離した。

20

【0130】

モノマー種による膜の膨潤がないため、プラスチックゾルは同様に付着しなかったのであろう。しかしながら、燃料電池での操作間、積層構造は圧力下にあり、そして分離する可能性は低い。長期間の水中での沸騰時、ビニルプラスチックゾル樹脂は分解せず、安定であることがわかった。一般的に、ビニルプラスチックゾルポリマーは酸抵抗を示すことが知られており、そして保護の適切な候補となり得る。

30

【0131】

実施例6

10部の「エステル骨格、脂肪族ウレタンアクリレートオリゴマー」(19341 ペンシルバニア州、エクストンのサートマー(Sartomer, Exton, PA)から商品名「CN964」で入手可能)と、6部の1, 6-ヘキサンジオールジアクリレート(ペンシルバニア州、エクストンのサートマー(Sartomer, Exton, PA)から商品名「SR238」で入手可能)とを含んでなるUV硬化可能な分散体を調製した。約5質量%の -ヒドロキシ-アセトフェノン型光開始剤(19341 ペンシルバニア州、エクストンのサートマー(Sartomer, Exton, PA)から商品名「SR1129」で入手可能)を添加した。この分散体は約2000cpの粘度を有した。第一段階において、厚さ1.1ミルのナフィオン(Nafion)(登録商標)1100膜をキャリアライナーから剥離した。薄膜の取り扱いを容易にするため、断面をガラスプレート上にテープで貼り付けた。1インチあたり340開口のスクリーン印刷メッシュを使用して、厚さ約1ミルのフィルムが膜の各側に付着されるように、分散体を1.1ミルのキャストナフィオン(Nafion)(登録商標)1100の両側に適用した。各コーティング層を適用した後、D型バルブを使用して分散体を硬化した。片側での印刷およびUV硬化後、膜を裏返し、逆位置においてテープで貼り付けた。分散体の2回目のパスを適用および硬化後、得られた膜を両側で約1ミルの粘性樹脂ポリマーによってコーティングした。

40

50

【 0 1 3 2 】

実施例 7

テキサス州、ヒューストンのレゾリューション パフォーマンス プロダクツ (Resolution Performance Products, Houston, TX) から入手可能な商品名「エボン (E P O N) 8 2 8 」で既知のビスフェノール A ・ジグリシジルエーテルエポキシ 8 0 部と、ミシガン州、ミッドランドのダウ ケミカル (Dow Chemical, Midland, MI) から入手可能な商品名「トナー (T O N E R) 0 2 0 1 ポリオール (P O L Y O L) 」で既知のポリエステルポリオール 2 0 部とを含んでなる UV 硬化可能な分散体を調製した。ミシガン州、ミッドランドのダウ ケミカル (Dow Chemical, Midland, MI) から入手可能な商品名「 C P I 6 9 7 6 」で既知の光開始剤 2 % w / w を添加した。この分散体は約 4 0 0 0 c p の粘度を有した。第一段階において、厚さ 1 . 1 ミルのナフィオン (N a f i o n) (登録商標) 1 1 0 0 膜をキャリアライナーから剥離した。薄膜の取り扱いを容易にするため、断面をガラスプレート上にテープで貼り付けた。1 インチあたり 2 7 0 開口のスクリーン印刷メッシュを使用して、厚さ約 1 ミルのフィルムが膜の各側に付着されるように、分散体を 1 . 1 ミルのキャストナフィオン (N a f i o n) (登録商標) 1 1 0 0 の両側に適用した。各コーティング層を適用した後、D 型バルブを使用して分散体を硬化した。片側での印刷および UV 硬化後、膜を裏返し、逆位置においてテープで貼り付けた。分散体の 2 回目のパスを適用および硬化後、得られた膜を両側で約 1 ミルの粘性樹脂ポリマーによってコーティングした。

10

20

【 0 1 3 3 】

本発明の様々な実施形態の前記記述は実例および説明の目的のために存在する。徹底的であるか、または本発明を開示された正確な形態に限定する意図はない。上記教示の観点から、多くの修正および変更が可能である。本発明の範囲は、この詳細な説明によってではなく、むしろ請求の範囲によって限定される。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 1 3 4 】

【 図 1 A 】 燃料電池およびその構成層の図。

【 図 1 B 】 本発明の実施形態による、単極立体構造を有するユニット化された電池アセンブリの図。

30

【 図 1 C 】 本発明の実施形態による、単極 / 双極立体構造を有するユニット化された電池アセンブリの図。

【 図 2 A 】 触媒コーティング電極バックング (C C E B) をベースとする膜電極アセンブリ (M E A) 構造体の断面図。

【 図 2 B 】 触媒コーティング膜 (C C M) をベースとする M E A 構造体の断面図。

【 図 2 C 】 本発明の実施形態による、サブガasket層を有する C C E B をベースとする M E A の断面図。

【 図 2 D 】 本発明の実施形態による、ガス拡散層 (G D L) 構造の縁がサブガasket層と重なり合う C C M をベースとする M E A の断面図。

【 図 2 E 】 本発明の実施形態による、G D L 構造体の周辺が C C M と直接接触しないようにサブガasketと重なり合う G D L 構造体を有する C C M をベースとする M E A の断面図。

40

【 図 3 A 】 本発明の実施形態による、C C E B をベースとする M E A サブアセンブリ (または 1 / 2 - M E A) の断面図。

【 図 3 B 】 本発明の実施形態による、一緒に結合された 2 個の 1 / 2 - M E A サブアセンブリの断面図。

【 図 3 C 】 本発明の実施形態による、保護サブガasketと重なり合う G D L を有する C C M をベースとするサブアセンブリ (1 / 2 - M E A 構造体) の断面図。

【 図 3 D 】 本発明の実施形態による、M E A 構造体を形成するように一緒に結合された 2 個の C C M サブアセンブリの断面図。

50

【図 3 E】本発明の実施形態による、CCMをベースとする1/2-MEAサブアセンブリの断面図。

【図 3 F】本発明の実施形態による、2個のCCMをベースとする1/2-MEAサブアセンブリの融合の図。

【図 4 A】本発明の実施形態による、PEMの周辺領域を補強するサブガasket層を有する1/2-MEAサブアセンブリの図。

【図 4 B】本発明の実施形態による、1/2-MEAが融合可能な膜の裏側に配置されたサブガasket層を有する、融合前の2個の1/2-MEAサブアセンブリの図。

【図 4 C】本発明の実施形態による、PEMの裏側に適用された保護サブガasket層を有するCCEBをベースとするMEAアセンブリの断面図。

10

【図 4 D】本発明の実施形態による、膜の裏側に適用された保護サブガasket層を有するCCMをベースとするMEAサブアセンブリ(1/2-MEA)の断面図。

【図 4 E】本発明の実施形態による、二層膜を形成するために一緒に積層可能である2個のCCMサブアセンブリの図。

【図 4 F】本発明の実施形態による、内部サブガasket層が補強された縁を形成する、二層膜450を有する完全MEAの断面図。

【図 5】本発明の実施形態による、GDLの外周部分上に配置された保護サブガasket層を有するCCMをベースとするMEAの断面図。

【図 6】本発明の実施形態による、MEAアセンブリおよびサブアセンブリの製造に関連するプロセスを説明するフローチャート。

20

【図 7】本発明の実施形態による、MEAアセンブリおよびサブアセンブリの製造に関連するプロセスを説明するフローチャート。

【図 8】本発明の実施形態による、好ましくはMEAアセンブリを利用する燃料電池の積層体中に、および積層体から燃料が通過する様式の理解を容易にするために単純化された燃料電池積層体の図。

【図 9】本明細書に記載のMEAアセンブリを組み入れ、そして電力発生のために燃料電池積層体を使用してもよい燃料電池系の図。

【図 10】本明細書に記載のMEAアセンブリを組み入れ、そして電力発生のために燃料電池積層体を使用してもよい燃料電池系の図。

【図 11】本明細書に記載のMEAアセンブリを組み入れ、そして電力発生のために燃料電池積層体を使用してもよい燃料電池系の図。

30

【図 12】本明細書に記載のMEAアセンブリを組み入れ、そして電力発生のために燃料電池積層体を使用してもよい燃料電池系の図。

【図 1 A】

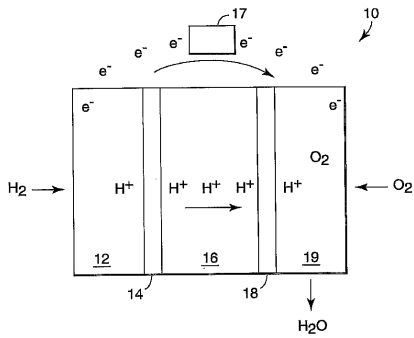


Fig. 1A

【図 1 B】

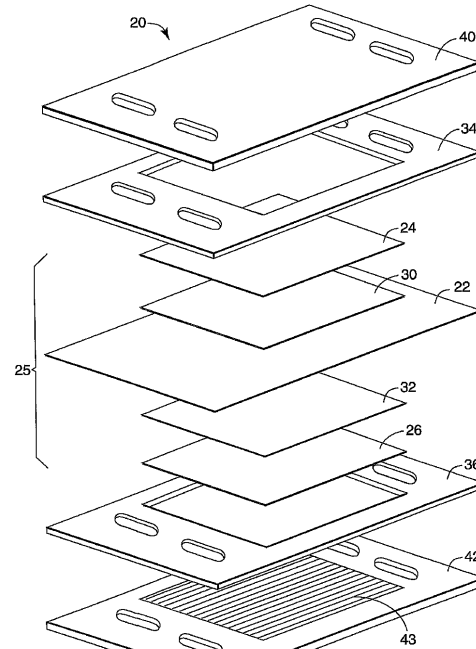


Fig. 1B

【図 1 C】

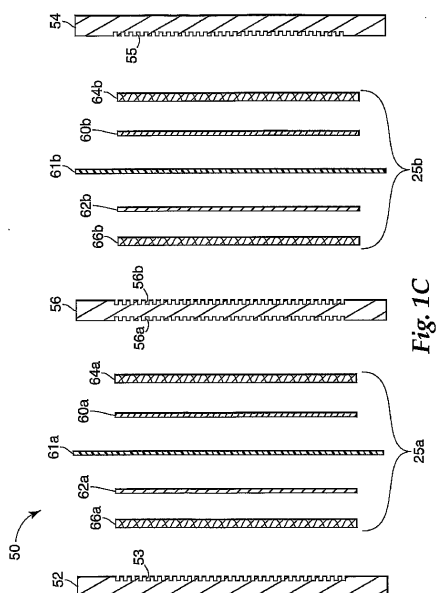


Fig. 1C

【図 2 A】

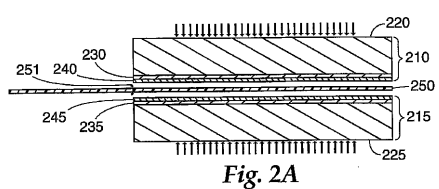


Fig. 2A

【図 2 B】

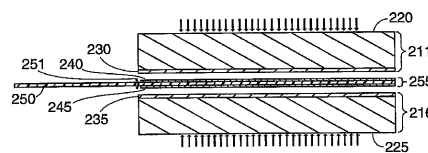


Fig. 2B

【図 2 C】

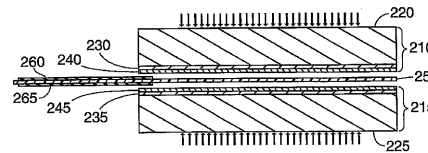


Fig. 2C

【図 2 D】

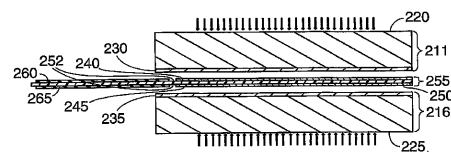


Fig. 2D

【図 2 E】

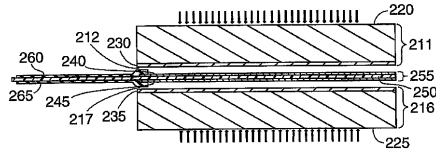


Fig. 2E

【図 3 A】

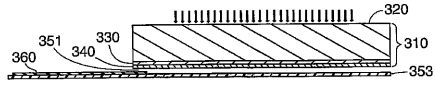


Fig. 3A

【図 3 B】

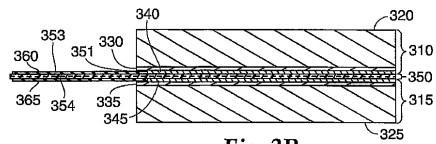


Fig. 3B

【図 3 C】

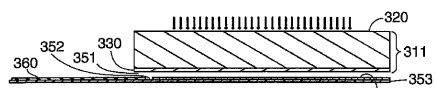


Fig. 3C

【図 4 B】

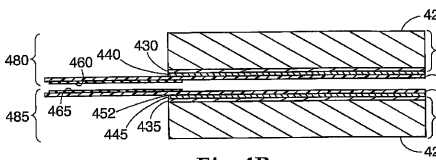


Fig. 4B

【図 4 C】

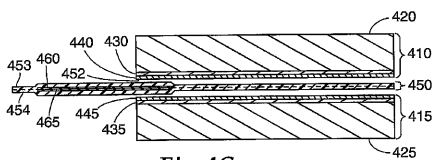


Fig. 4C

【図 4 D】

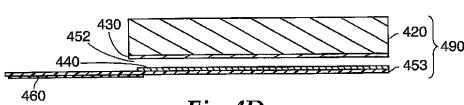


Fig. 4D

【図 3 D】

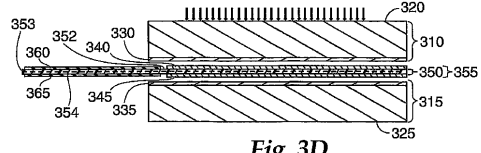


Fig. 3D

【図 3 E】

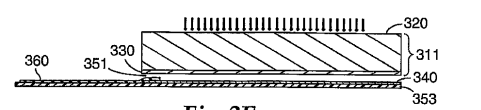


Fig. 3E

【図 3 F】

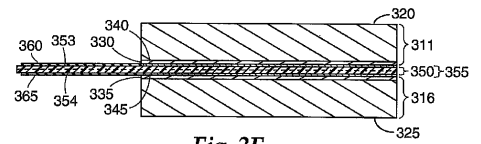


Fig. 3F

【図 4 A】

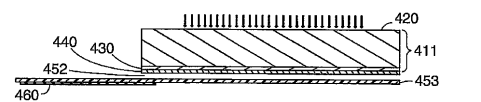


Fig. 4A

【図 4 E】

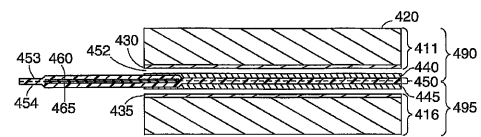


Fig. 4E

【図 4 F】

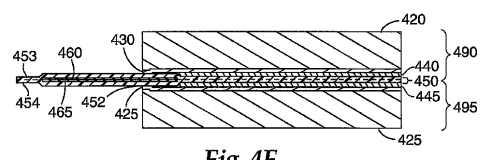


Fig. 4F

【図 5】

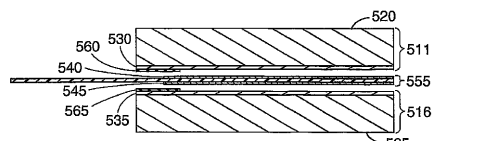


Fig. 5

【 図 6 】

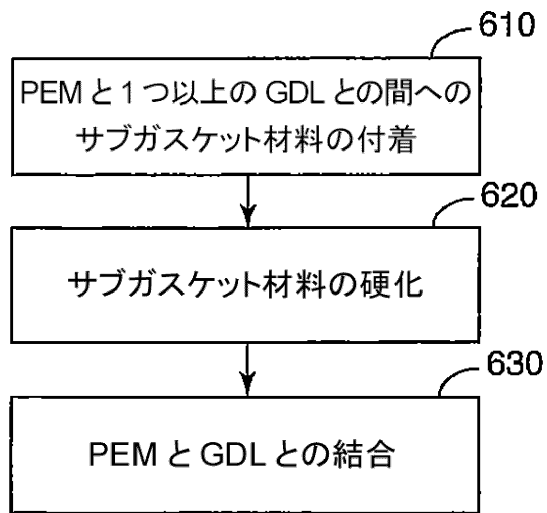


Fig. 6

【 図 7 】

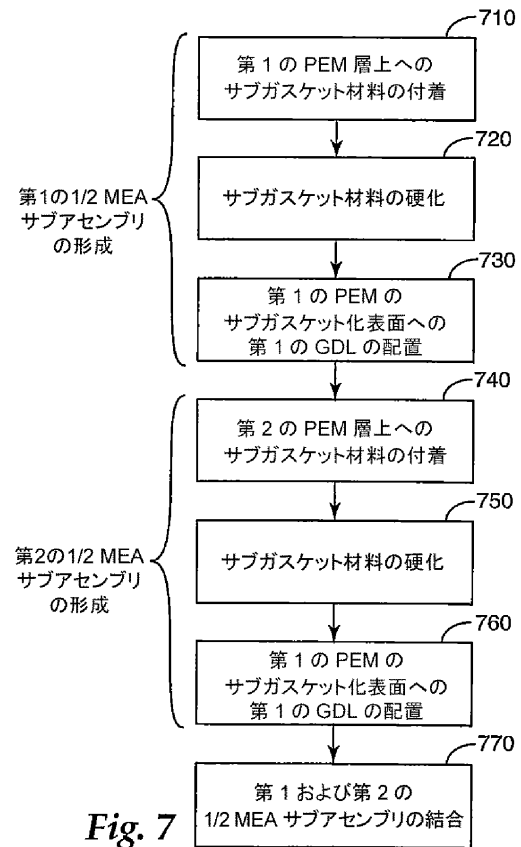


Fig. 7

【 図 8 】

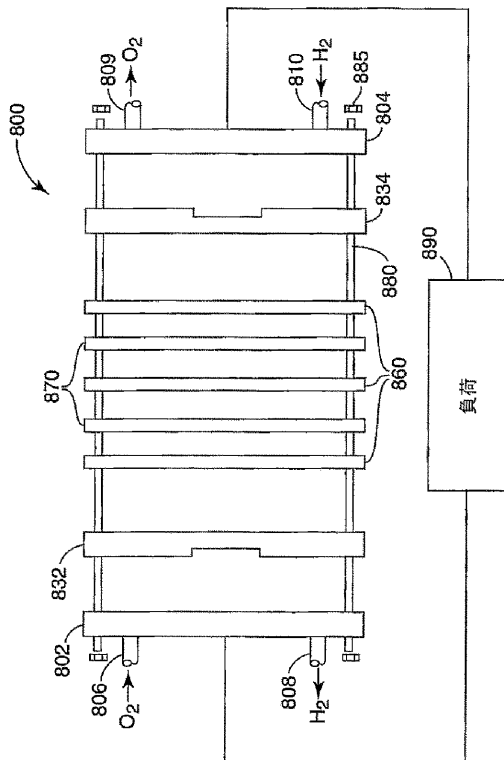
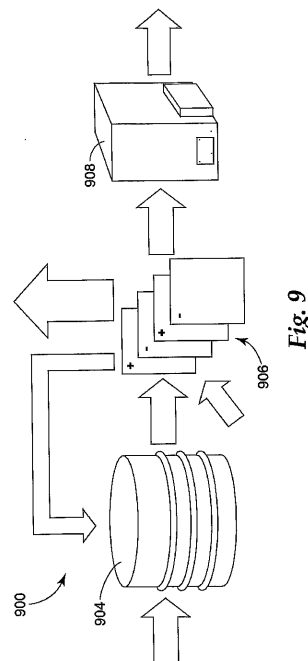


Fig. 8

【 図 9 】



【図 10】

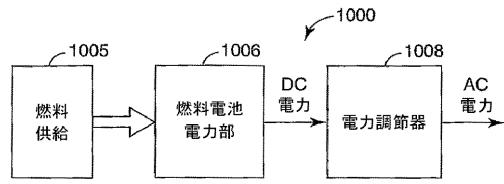


Fig. 10

【図 12】

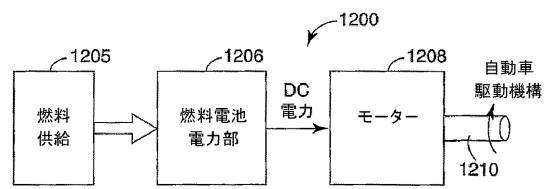


Fig. 12

【図 11】

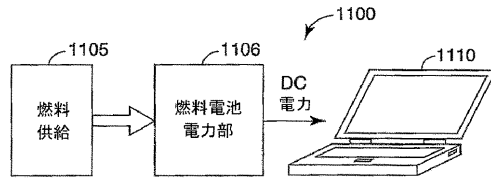


Fig. 11

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/US2005/034623

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01M8/02 H01M8/10		
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, INSPEC		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 403 949 A (UMICORE AG & CO. KG) 31 March 2004 (2004-03-31) column 8, paragraph 44 - column 9, paragraph 45	1-92
X	US 5 464 700 A (STECK ET AL) 7 November 1995 (1995-11-07) column 2, lines 41-45, 54-57 - column 3, lines 1-6 column 5, lines 1-4, 34, 35	1-92
X	US 2004/067407 A1 (SOMPALLI BHASKAR ET AL) 8 April 2004 (2004-04-08) page 2, paragraphs 20, 23	1-62
-/--		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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. *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 20 January 2006		Date of mailing of the international search report 27/01/2006
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 Boussard, N

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/US2005/034623

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2005/029620 A (UMICORE AG & CO KG; OSCHMANN, HEIKO) 31 March 2005 (2005-03-31) page 6, lines 21-31 - page 7, lines 8-16 page 9, lines 3-5	1-92
A	WO 00/10216 A (GORE ENTERPRISE HOLDINGS, INC) 24 February 2000 (2000-02-24) page 8, lines 24-33; claims 18,19	1-92

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

nation on patent family members

International Application No

PCT/US2005/034623

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1403949	A	31-03-2004	CA 2436101 A1 JP 2004134392 A US 2004091767 A1	30-03-2004 30-04-2004 13-05-2004
US 5464700	A	07-11-1995	AU 664703 B2 AU 1886692 A CA 2102695 A1 WO 9222096 A2 DE 69204834 D1 DE 69204834 T2 EP 0586461 A1 JP 7501417 T JP 3245161 B2	30-11-1995 08-01-1993 05-12-1992 10-12-1992 19-10-1995 04-04-1996 16-03-1994 09-02-1995 07-01-2002
US 2004067407	A1	08-04-2004	AU 2003279786 A1 DE 10393467 T5 WO 2004034501 A2 US 2005271929 A1 US 2005058881 A1	04-05-2004 01-12-2005 22-04-2004 08-12-2005 17-03-2005
WO 2005029620	A	31-03-2005	NONE	
WO 0010216	A	24-02-2000	AU 5345499 A	06-03-2000

フロントページの続き

(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, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72)発明者 ステギング, デイビッド ダブリュ.

アメリカ合衆国, ミネソタ 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 メカラ, デイビッド アール.

アメリカ合衆国, ミネソタ 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) 5H018 AA06 BB08 BB16 EE17 HH02 HH03 HH09

5H026 AA06 BB04 BB10 CX07 EE18 HH02 HH03 HH09