

【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 3 部門第 3 区分

【発行日】平成20年4月24日(2008.4.24)

【公表番号】特表2007-528930(P2007-528930A)

【公表日】平成19年10月18日(2007.10.18)

【年通号数】公開・登録公報2007-040

【出願番号】特願2007-503074(P2007-503074)

【国際特許分類】

C 0 8 G 85/00 (2006.01)

C 0 8 G 65/40 (2006.01)

C 0 8 G 75/04 (2006.01)

C 0 8 J 5/22 (2006.01)

H 0 1 M 8/02 (2006.01)

H 0 1 M 8/10 (2006.01)

H 0 1 M 4/86 (2006.01)

H 0 1 M 8/00 (2006.01)

H 0 1 B 1/06 (2006.01)

H 0 1 B 13/00 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 G 85/00

C 0 8 G 65/40

C 0 8 G 75/04

C 0 8 J 5/22 1 0 1

C 0 8 J 5/22 C E Z

H 0 1 M 8/02 P

H 0 1 M 8/10

H 0 1 M 4/86 B

H 0 1 M 8/00 Z

H 0 1 B 1/06 A

H 0 1 B 13/00 Z

【手続補正書】

【提出日】平成20年3月10日(2008.3.10)

【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】

下記の工程 i) 及び ii) を含むイオン伝導性コポリマーの製造方法：

i) イオン伝導性基を含む第 1 モノマーと第 2 モノマーであって、両者の一方が 2 個の脱離含むと共に他方が 2 個の置換基を含むこれらのモノマーを反応させることによって、各末端に脱離基若しくは置換基を有する中間のイオン伝導性オリゴマーを形成させ、

ii) 第 3 モノマーと第 4 モノマーであって、両者の一方が 2 個の脱離基を含むと共に他方が 2 個の置換基を含むこれらのモノマーを該イオン伝導性オリゴマーと重合させることによって、該イオン伝導性オリゴマーが内部に分布されたイオン伝導性コポリマーを生成させる。

【請求項 2】

第 1 モノマーと第 2 モノマーの一方が他方に比べてモル過剰量で使用される請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】

イオン伝導性基がスルホン酸若しくはその塩の残基である請求項 1 記載の方法。

【請求項 4】

イオン伝導性ポリマーが 1 種若しくは複数種のアリーレンエーテルモノマー、アリーレンスルフィドモノマー、アリーレンスルフォンモノマー及び/又はアリーレンケトンモノマーを含有する請求項 1 記載の方法。

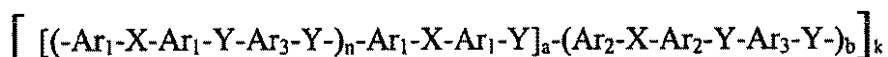
【請求項 5】

請求項 1 記載の方法によって得られるイオン伝導性コポリマー。

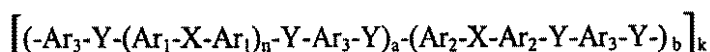
【請求項 6】

次式で表されるイオン伝導性コポリマー：

【化 1】



又は

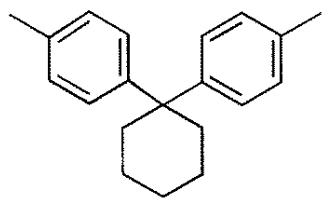


式中、 $\text{Ar}_1$  及び  $\text{Ar}_2$  は相互に独立してフェニル、置換フェニル、ナフチル、テルフェニル、アリールニトリル、置換アリールニトリルを示し、 $\text{Ar}_1$  はイオン伝導性基（ $-\text{SO}_3^-$ 、 $-\text{COO}^-$ 、 $-\text{PO}_3\text{H}^-$  若しくはスルホンイミドを含む）をさらに含み、 $\text{X}$  は独立して  $-\text{C}(\text{O})-$  若しくは  $-\text{S}(\text{O}_2)-$  を示し、 $\text{Y}$  は独立して  $-\text{O}-$  若しくは  $-\text{S}-$  を示し、 $n$  は 2 ~ 12 の数を示し、 $k$  は 1 ~ 150 の数を示し、 $\text{Ar}_3$  は相互に同一又は異なってもよく、下記の群から選択される基を示す：

The figure displays ten chemical structures of aromatic polymers, arranged vertically. Each structure consists of repeating units connected by various linkages:

- 1. A polymer with two phenyl rings connected by a central carbon atom bonded to two methyl groups ( $\text{CH}_3$ ).
- 2. A polymer with two phenyl rings connected by a central carbon atom bonded to two trifluoromethyl groups ( $\text{CF}_3$ ).
- 3. A polymer with two phenyl rings connected by a sulfur atom ( $\text{S}$ ).
- 4. A polymer with two phenyl rings connected by a sulfonyl group ( $\text{SO}_2$ ).
- 5. A polymer with two phenyl rings connected by a methylene group ( $\text{CH}_2$ ).
- 6. A complex polycyclic aromatic hydrocarbon structure.
- 7. Another complex polycyclic aromatic hydrocarbon structure.
- 8. A polymer with two phenyl rings connected by an ether oxygen atom ( $\text{O}$ ).
- 9. A polymer consisting of three phenyl rings connected sequentially by two ether oxygen atoms ( $\text{O}$ ).
- 10. A polymer with a central benzene ring substituted with two tert-butyl groups at the para positions.

又は

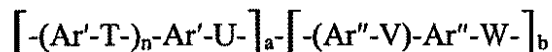


請求項 6 記載のイオン伝導性コポリマーの集団。

【請求項 8】

次式で表されるイオン伝導性コポリマー：

【化 3】



式中、 $Ar'$  はイオン伝導性基を含むアリール基を示し、 $T$  は独立して単結合、 $O$ 、 $S$ 、 $C(O)$ 、 $S(O_2)$ 、アルキル、分枝状アルキル、フルオロアルキル、分枝状フルオロアルキル、環状アルキル、アリール、置換アリール又はヘテロ環を示し、 $U$  は独立して  $O$  又は  $S$  を示し、 $n$  は  $(Ar'-T)$  ユニットの数を示し、

$Ar''$  はアリール又はスルホン酸基を有するアリールを示し、 $V$  は独立して単結合、 $O$ 、 $S$ 、 $C(O)$ 、 $S(O_2)$ 、アルキル、分枝状アルキル、フルオロアルキル、分枝状フルオロアルキル、環状アルキル、アリール、置換アリール又はヘテロ環を示し、 $W$  は独立して  $O$  又は  $S$  を示し、 $a$  と  $b$  はモル分率を示し ( $a + b = 1$ )、 $a$  は  $0.01 \sim 0.5$  であり、 $b$  は  $0.5 \sim 0.99$  である。

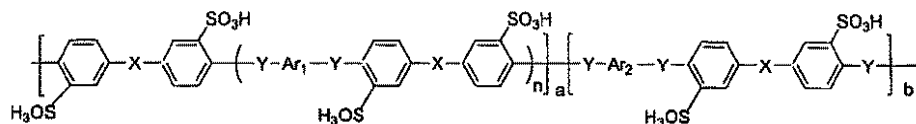
【請求項 9】

請求項 8 記載のイオン伝導性コポリマーの集団。

【請求項 10】

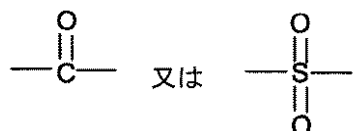
次式で表されるイオン伝導性コポリマー：

【化 4】



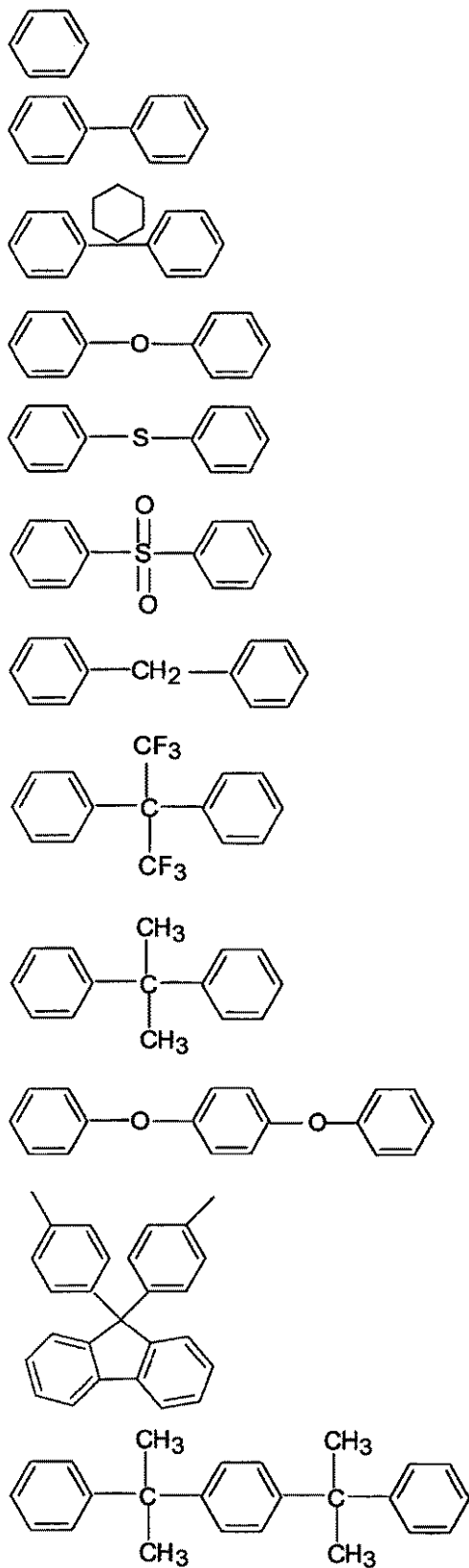
式中、 $x$  と  $y$  はモル分率を示し、 $x$  は  $0.01 \sim 0.5$  であり、 $y$  は  $0.5 \sim 0.99$  であり、 $m$  は  $2 \sim 12$  の整数を示し、 $X$  は次式：

【化 5】



で表される基を示し、 $Ar_1$  と  $Ar_2$  は同一若しくは異なってもよく、下記の群から選択される基を示す：

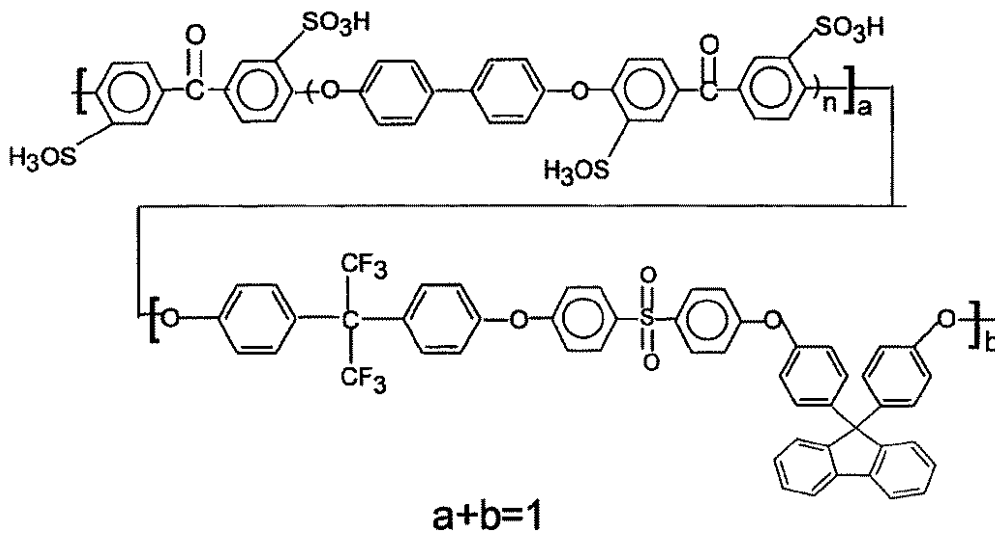
## 【化 6】



## 【請求項 11】

次式で表されるイオン伝導性コポリマー：

## 【化 7】



式中、 $x$  と  $y$  はモル分率を示し、 $x$  は  $0.01 \sim 0.5$  であり、 $y$  は  $0.5 \sim 0.99$  であり、 $m$  は  $2 \sim 12$  の整数を示す。

## 【請求項 12】

請求項 6 又は 8 記載のイオン伝導性コポリマーを含有するポリマー電解質膜 (PEM)。

## 【請求項 13】

請求項 12 記載の PEM を含有する触媒被覆膜 (CCM) であって、該 PEM の少なくとも 1 つの対置面の全部若しくは一部が触媒層を具有する CCM。

## 【請求項 14】

請求項 13 記載の PEM を含有する触媒被覆膜 (CCM) であって、該 PEM の少なくとも 1 つの対置面の全部若しくは一部が触媒層を具有する CCM。

## 【請求項 15】

請求項 14 記載の CCM を具有する膜電極アセンブリー (MEA)。

## 【請求項 16】

請求項 15 記載の MEA を具有する燃料電池。

## 【請求項 17】

水素燃料電池を具有する請求項 16 記載の燃料電池。

## 【請求項 18】

請求項 16 記載の燃料電池を具有する電子装置。

## 【請求項 19】

請求項 16 記載の燃料電池を具有する電源。

## 【請求項 20】

請求項 16 記載の燃料電池を具有する電気モーター。

## 【請求項 21】

請求項 20 記載の電気モーターを具備する車両。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0002

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0002】

燃料電池は、主としてその非汚染特性に起因して、携帯用電子装置、電気輸送機関およびその他の用途に対する前途有望な電源である。種々の燃料電池系のうちで、ポリマー電

解質膜に基づく燃料電池、例えば、直接メタノール燃料電池（DMFC）及び水素燃料電池は多大の注目を集めているが、これは該燃料電池の高い出力密度と高いエネルギー変換効率に基づくものである。ポリマー電解質膜に基づく燃料電池の核心部は、いわゆる「膜電極アセンブリー」（MEA）であり、該アセンブリーは、ポリマー電解質膜（PEM）、PEMの対置表面上に配設されて触媒被覆膜（CCM）を形成する触媒、および該触媒層と電氣的に接触するように配設される一対の電極（即ち、アノードとカソード）を具備する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0010】

本発明は、燃料電池並びにこれらの用途（電子装置、電源及び輸送機関における用途）において有用なポリマー電解質膜（PEM）、触媒被覆プロトン交換膜（CCM）及び膜電極アセンブリー（MEA）を製造するために使用することができるイオン伝導性コポリマーを提供する。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0025

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0025】

好ましい実施態様においては、 $Ar_1$  及び  $Ar_2$  は相互に独立してフェニル、置換フェニル、ナフチル、テルフェニル、アリールニトリル、置換アリールニトリルを示し、 $Ar_1$  はイオン伝導性基（ $-SO_3^-$ 、 $-COO^-$ 、 $-PO_3H^-$  若しくはスルホンイミドを含む）をさらに含み、 $X$  は独立して  $-C(O)-$  若しくは  $-S(O_2)-$  を示し、 $Y$  は独立して  $-O-$  若しくは  $-S-$  を示し、 $n$  は 2 ~ 12 の数を示し、 $k$  は 1 ~ 150 の数を示し、 $Ar_3$  は相互に同一又は異なってもよく、下記の群から選択される基を示す（好ましい実施態様においては、 $n$  は 2 ~ 8 の数を示し、 $a$  及び  $b$  はモル分率を示し（ $a + b = 1$ ）、 $a$  は 0.01 ~ 0.5 であり、 $b$  は 0.5 ~ 0.99 である）：

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

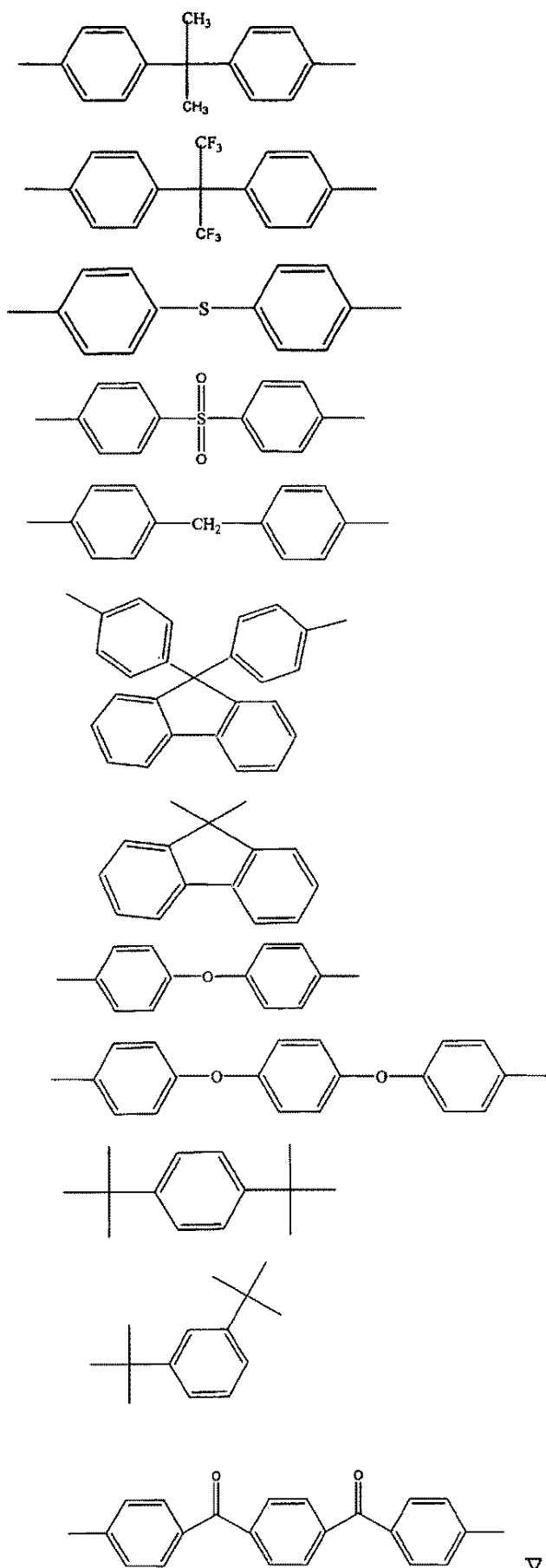
【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

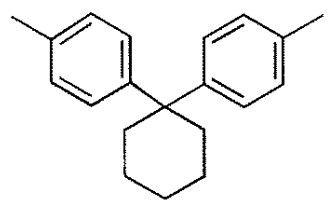
【補正の内容】

【0026】

## 【化 3】



又は



## 【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

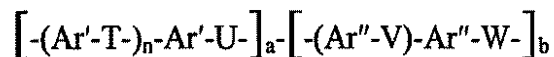
【補正の内容】

【0028】

上記の式 VI で表されるイオン伝導性オリゴマーをポリマー中へ組み込む場合には、イオン伝導性コポリマーは次式 VII で表すことができる：

【化5】

### 式 VII



式中、Ar' はアリーール又はスルホン酸基を有するアリーールを示し、V は独立して単結合、O、S、C(O)、S(O<sub>2</sub>)、アルキル、分枝状アルキル、フルオロアルキル、分枝状フルオロアルキル、環状アルキル、アリーール、置換アリーール又はヘテロ環を示し、W は独立してO又はSを示し、a と b はモル分率を示し ( a + b = 1 )、a は 0.01 ~ 0.5 であり、b は 0.5 ~ 0.99 である。上記の式 VI 及び VII において、n は好ましくは 2 ~ 12 ( より好ましくは 2 ~ 10 , 特に 2 ~ 8 、就中 3 ~ 6 ) の数を示し、特に好ましい実施態様においては、n = 4 である。