

【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 24 年 8 月 30 日 (2012.8.30)

【公表番号】特表 2008-505467 (P2008-505467A)

【公表日】平成 20 年 2 月 21 日 (2008.2.21)

【年通号数】公開・登録公報 2008-007

【出願番号】特願 2007-519693 (P2007-519693)

【国際特許分類】

H 0 1 M 4/86 (2006.01)

H 0 1 M 8/10 (2006.01)

H 0 1 M 8/02 (2006.01)

H 0 1 M 4/88 (2006.01)

【F I】

H 0 1 M 4/86 B

H 0 1 M 8/10

H 0 1 M 8/02 E

H 0 1 M 4/88 K

【誤訳訂正書】

【提出日】平成 24 年 7 月 3 日 (2012.7.3)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも 1 層のガス拡散層と 1 層の触媒層とからなる、ガス透過性で導電性の層を複数層有するガス拡散電極であって、前記触媒層が少なくとも導電性担体物質の粒子を含み、該粒子の少なくとも一部が電解触媒を担持し、および / または少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を少なくとも部分的に積載し、該陽子伝導性高分子は水の沸点までまたはそれ以上までの温度で使用される、前記ガス拡散電極。

【請求項 2】

触媒層が、少なくとも一つの陽子伝導性高分子の多孔質粒子を含む、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 3】

触媒層とガス拡散層との間に、導電性粒子からなる追加的なガス分配微細構造層が挿入されてなる、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 4】

導電性粒子がカーボンブラックを含む、請求項 3 に記載のガス拡散電極。

【請求項 5】

ガス拡散層が炭素を含む、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 6】

ガス拡散層が紙、不織布、格子、編み物または織物の形である、請求項 5 に記載のガス拡散電極。

【請求項 7】

触媒層の導電性担体物質が、金属、金属酸化物、金属炭化物、炭素およびそれらの混合物からなる群から選択されたものである、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 8】

炭素としてカーボンブラックが選択される、請求項 7 に記載のガス拡散電極。

【請求項 9】

電解触媒が金属および合金からなる群から選択される、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 10】

金属として周期律表の第 8 亜属のものから選択される、請求項 9 に記載のガス拡散電極。

【請求項 11】

金属が白金および / またはルテニウムである、請求項 10 に記載のガス拡散電極。

【請求項 12】

少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子が窒素原子を含有した高分子を少なくとも含み、その窒素原子は多塩基無機オキソ酸またはそれらの誘導体の中央原子と化学的に結合したものである、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 13】

少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子が、ポリベンズイミダゾル (polybenzimidazoles)、ポリピリジン (polypyrridines)、ポリピリミジン (polypyrimidines)、ポリイミダゾル (polyimidazoles)、ポリベンゾチアゾル (polybenzothiazoles)、ポリベンゾキサゾル (polybenzoxazoles)、ポリオキサジアゾル (polyoxadiazoles)、ポリクイノキサリン (polyquinoxalines)、ポリチアジアゾル (polythiadiazoles)、ポリ(テトラザフィレン) (poly(tetrazapyrenes))、アミド結合を形成可能な反応基を側鎖に有する高分子、第一級または第二級アミノ基を有する高分子、およびこれらの 2 つ以上の組み合わせ、からなる群から選択される、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 14】

オキソ酸またはその誘導体の中央原子が、リン、硫黄、モリブデン、タングステン、砒素、アンチモン、ビスマス、セレン、ゲルマニウム、錫、鉛、ホウ素、クロム、珪素、およびこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 12 に記載のガス拡散電極。

【請求項 15】

オキソ酸誘導体がアルコキシ化合物、エステル、アミドまたは酸塩化物の形の有機誘導体である、請求項 14 に記載のガス拡散電極。

【請求項 16】

オキソ酸の有機誘導体が 2 - (ジエチルヘキシル) フォスフェート (2 - (diethylhexyl) phosphate)、モリブデニルアセチルアセトネートまたはテトラエトキシレン (tetraethoxysilane) である、請求項 15 に記載のガス拡散電極。

【請求項 17】

少なくとも一つの陽子伝導性高分子とオキソ酸またはその誘導体とがネットワークを形成している、請求項 12 に記載のガス拡散電極。

【請求項 18】

少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子が無機酸によりドーピングされている、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 19】

ドーパントがリン酸である、請求項 18 に記載のガス拡散電極。

【請求項 20】

少なくとも一種の陽子伝導性高分子が、高分子および / またはオキソ酸誘導体中に導入しうる疎水基および親水基のタイプと数によって実現される、水に対する調節可能な親和性を有する請求項 12 に記載のガス拡散電極。

【請求項 21】

導電性担体物質の粒子が異なる多孔質で陽子伝導性高分子を積載している、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 22】

導電性担体物質の粒子の一部が電解触媒を担持し、その電解触媒を担持している粒子は、電解触媒を担持していない粒子が積載しているものとは別の多孔質陽子伝導性高分子を積載している、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 2 3】

導電性担体物質の粒子が、それ自身触媒的に活性であるかまたは電解触媒の活性を高める、少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を積載している、請求項 2 2 に記載のガス拡散電極。

【請求項 2 4】

触媒的に活性な高分子が、多塩基無機オキソ酸またはその誘導体の中心原子に化学的に結合する窒素原子を含有する高分子の群から選択される、請求項 2 2 に記載のガス拡散電極。

【請求項 2 5】

触媒層が添加物を含んでいる、請求項 1 に記載のガス拡散電極。

【請求項 2 6】

添加物がバインダーまたは炭素由来の球状粒子を含む、請求項 2 5 に記載のガス拡散電極。

【請求項 2 7】

少なくとも 1 層のガス拡散層と 1 層の触媒層とからなる、ガス透過性で導電性の層を複数層有するガス拡散電極であって、前記触媒層が少なくとも導電性担体物質の粒子を含み、該粒子の少なくとも一部が電解触媒を担持し、および / または少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を積載し、該陽子伝導性高分子は水の沸点までまたはそれ以上の温度で使用される、前記ガス拡散電極の、次のステップからなる製造方法。

A) 導電性担体物質の粒子を少なくとも一つの陽子伝導性高分子が溶解した溶液中に懸濁し、この懸濁液を転相を開始させるためにその高分子が不溶性の液を攪拌しているところに順次加えてゆくことによって、担体物質の粒子の表面に多孔質高分子構造を形成するとともにその少なくとも一つの陽子導電性高分子の多孔質粒子を形成することによって、導電性担体物質の粒子の少なくとも一部の表面の少なくとも一部に、少なくとも一つの陽子導電性高分子を積載する；

B) 少なくとも粒子の一部が電解触媒を担持し、および / または少なくとも部分的に少なくともステップ A) で得られた多孔質で、陽子伝導性の高分子を積載する、導電性の粒状担体物質を、触媒層用に用意する；

C) 触媒層を電極の形に成型する；そして

D) 成型した触媒層をガス拡散層の一つの側に接触させる。

【請求項 2 8】

ステップ C) が行われる前に、用意された担体物質に添加物を加える、請求項 2 7 に記載の方法。

【請求項 2 9】

加えられる添加物としてバインダーまたは球状カーボンベースの粒子を含む、請求項 2 8 に記載の方法。

【請求項 3 0】

ガス拡散層の触媒層と接触する側に、更に追加的な導電性粒子からなるガス分配微細構造を与える事を含む、請求項 2 7 に記載の方法。

【請求項 3 1】

触媒層をガス拡散層の一つの側に接触させる前に、形成された触媒層をまず少なくとも高分子電解質膜の一方の面に適用する、請求項 2 7 に記載の方法。

【請求項 3 2】

触媒層のための導電粒子担体物質が粉体であり、触媒層を、粉体を圧延することによって電極形状に成型する、請求項 2 7 に記載の方法。

【請求項 3 3】

触媒層のための導電粒子担体物質が、懸濁液またはペースト状であり、触媒層を、その

懸濁液またはペーストを少なくとも一つの基体に被覆し、ついで乾燥させることによって電極の形にされる、請求項 27 に記載の方法。

【請求項 34】

ガス拡散層または高分子電解膜を基体として用いる、請求項 33 に記載の方法。

【請求項 35】

陽子伝導性高分子として、窒素原子が多塩基無機オキソ酸またはその誘導体の中央原子に化学的に結合している窒素原子含有高分子からなる高分子が選択されてなる、請求項 27 に記載の方法。

【請求項 36】

陽子伝導性高分子が、ポリベンズイミダゾル (polybenzimidazoles)、ポリピリジン (polypyridines)、ポリピリミジン (polypyrimidines)、ポリイミダゾル (polyimidazoles)、ポリベンゾチアゾル (polybenzothiazoles)、ポリベンゾキサゾル (polybenzoxazoles)、ポリオキサジアゾル (polyoxadiazoles)、ポリキノキサリン (polyquinoxalines)、ポリチアジアゾル (polythiadiazoles)、ポリ(テトラザフィレン) (poly(tetrazapyrenes))、アミド結合を形成可能な反応基を側鎖に有する高分子、第一級または第二級アミノ基を有する高分子、およびこれらの 2 つ以上の組み合わせ、からなる群から選択される、請求項 27 に記載の方法。

【請求項 37】

オキソ酸またはその誘導体が、リン、硫黄、モリブデン、タングステン、砒素、アンチモン、ビスマス、セレン、ゲルマニウム、錫、鉛、ホウ素、クロムおよび珪素からなる群から選択される中央原子を含む、請求項 35 に記載の方法。

【請求項 38】

オキソ酸誘導体がアルコキシ化合物、エステル、アミドまたは酸塩化物の形の有機誘導体を含むものである、請求項 35 に記載の方法。

【請求項 39】

オキソ酸の有機誘導体が 2 - (ジエチルヘキシル) フォスフェート (2 - (diethylhexyl) phosphate)、モリブデニルアセチルアセトネートまたはテトラエトキシラン (tetraethoxysilane) である、請求項 38 に記載の方法。

【請求項 40】

少なくとも一つの陽子伝導性高分子とオキソ酸またはその誘導体を、熱の作用を通じてネットワークを形作っている、請求項 35 に記載の方法。

【請求項 41】

高分子および / またはオキソ酸誘導体中の疎水基および親水基のタイプと数の選択によって、少なくとも一つの陽子伝導性高分子の水に対する親和性を調節を行う、請求項 35 に記載の方法。

【請求項 42】

少なくとも 1 層のガス拡散層と 1 層の触媒層とからなる、ガス透過性で導電性の層を複数層有するガス拡散電極であって、前記触媒層は少なくとも導電性担体物質の粒子からなり、該粒子の少なくとも一部が電解触媒を担持し、および / または少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を少なくとも部分的に積載し、該陽子伝導性高分子は水の沸点までまたはそれ以上までの温度で使用される、前記ガス拡散電極 2 枚と、それらにサンドウィッチ状にはさまれた高分子電解質膜とからなる膜電極ユニットを少なくとも一つ有する、少なくとも摂氏 200 度までの温度において動作する、燃料電池。

【請求項 43】

ガス拡散電極と膜電極ユニットの高分子電解質膜とが、同じ少なくとも一つの陽子伝導性高分子を含む、請求項 42 に記載の燃料電池。

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0003

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0003】

米国特許第4,876,115号は、燃料電池に用いる、高分子電解質膜を有する膜電極のためのガス拡散電極およびその製造方法を開示している。このガス拡散電極は、ガス拡散層と固体高分子電解質膜(solid polymer electrolyte membrane)と接触するガス透過性の触媒層とからなる。ガス透過性触媒層は触媒物質が表面に拡散している電気伝導体である粒子により形作られている。粒子により作られる隙間が、反応ガスが電極構造を通り抜けて電気化学的反応が進行する触媒のところまで達することを許す。電極の湿り気を制御し、ガスの透過性を保ち、強度を増すために、たとえば、4フッ化エチレン(PTFE)粒などの追加的粒子も存在している。

更に加えて、高分子電解質膜と触媒粒子との間の陽子の伝導を促進するために、触媒層に陽子伝導性物質が吹き付けられるか堆積されるか塗りつけられる。ナフィオン(Nafion(登録商標))および2酸化ルテニウムが、陽子伝導物質として提案されている。

しかしながら、ナフィオン(登録商標)は空隙率(porosity)およびガス透過性が低いので、もしナフィオン(登録商標)の添加が過多であると、触媒のガス透過性はなくなるか、少なくとも大幅に低下してしまうかである。ナフィオン(登録商標)はしたがって、複数の層に吹き付けられなければならない、それは費用のかかるものである。

それに加えて、触媒層の表面に存在しない触媒粒は、ナフィオン(登録商標)とまったく接触しないか、不十分にしか接触しないであろう。したがって、それらの領域では陽子伝導は改善されない。

さらにひとつの短所は、ナフィオン(登録商標)が摂氏100度を超えると不安定となるため、少なくとも摂氏200度までは高温の運転温度で動作する高温高分子電解膜燃料電池の要素部品として、膜としても、また陽子伝導電極としても不安定であるということである。

一方でまた、ガス拡散電極という点でも、電極構造が互いに焼結してしまうので、このことは機能的な障害となる。他方、摂氏100度以上でのスルホン酸群の分離は、陽子伝導性を失うという結果をもたらす。

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0006

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0006】

発明の概要

本発明の目的のひとつはそれ故に、触媒層に存在する電解触媒と、水の沸点温度またはそれ以上の温度まで使用可能であって、触媒層のガス透過性をいつまでも高く保つことを確実にする、隣接した高分子電解膜との間の陽子伝導が、運転条件の如何に拘らず改善された、燃料電池用ガス拡散電極を提供することにある。

本発明の他の目的はこのタイプのガス拡散電極を効率的に生産する方法を提供すること、およびこのガス拡散電極を使用した、動作温度が水の沸点までまたはそれより高温である燃料電池を提供することである。

【誤訳訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0007

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0007】

本発明のひとつの目的は、少なくとも1層のガス拡散層と、1層の触媒層とからなるガス透過性電気伝導性層を複数有するガス拡散電極によって達成される。

触媒層は、ひとつの導電性担体物質の粒子を少なくとも有している。粒子の少なくとも一部は電解触媒を担持し、電解触媒は好ましくは粒子の表面上に存在している。粒子の少なくとも一部は、少なくとも部分的に、少なくともひとつの多孔質の陽子伝導性高分子を積載している。

この多孔質陽子伝導性高分子は、水の沸点までまたはそれ以上の温度まで使用することができ、さらに／または、少なくとも摂氏200度まで安定である。電気的導電体である担体物質の粒子の表面に多孔質構造を有する陽子伝導性高分子が積載されることは、触媒層内の電解触媒とそれに接する高分子電解膜との間の秀逸な陽子伝導性を実現するという、特筆すべき利点を有している。積載した粒子が濃縮することによって、触媒層中の粒子の陽子伝導性高分子層が、燃料電池の膜電極ユニット(MEU)における高分子電解膜または触媒層中の隣接した粒子の陽子伝導性高分子層と直接接触することが、非常に起こり易くなる。

陽子伝導性高分子層の、少なくとも摂氏200度まで安定な多孔質性が、触媒層における高いガス透過性のみならず、気体である燃料とオキシダントおよび気体の反応性生物の電解触媒への、またそこからの妨害されない移動を確実にする。陽子伝導性高分子の多孔性は、少なくとも直径0.001~0.1μmの範囲で、調節可能である。粒子の表面に積載させる積載割合および積載厚さは同様に調節可能である。粒子のコーティング厚さは、好ましくは、粒子直径の0.1~10パーセントであり、粒子表面の50~100パーセントに積載されているのが好ましい。

水の沸点までまたはそれ以上の温度まで使用することができ、さらに／または、少なくとも摂氏200度まで機械的および熱的に安定である陽子伝導性高分子を選択することによって、この発明によるガス拡散電極が、水の沸点までまたはそれ以上の温度まで、さらに／または少なくとも摂氏200度まで、連続運転においても性能低下を伴わない高温燃料電池において使用されることを可能にする。これはひとつにはこの選択された陽子伝導性高分子の多孔質構造が、これらの温度においても破壊されることがないという事実のおかげであり、かくしてガス拡散電極の構造は維持される。

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0008

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0008】

本発明のもうひとつの目的は、少なくともひとつのガス拡散層とひとつの触媒層を有するガス透過性で導電性の層を複数有するガス拡散電極を製造する方法により達成される。触媒層は少なくとも導電性の担体物質の粒子を有しており、その粒子の少なくとも一部は電解触媒を担持しており、さらに／または、少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を積載していて、この高分子は水の沸点までまたはそれ以上の温度まで、さらに／または、少なくとも摂氏200度まで安定である。

本発明の方法においては、次のステップが実行される。

A) 導電性の担体物質の粒子の一部の表面が、少なくとも部分的に少なくとも一つの陽子伝導性高分子を積載するようにされる。そのために、粒子は少なくとも一つの陽子伝導性高分子が溶けている液体の中に懸濁される。懸濁液は、転相を開始するために、その高分子が不溶である液を攪拌しているところに逐次的に加えられ、それによって担体物質の粒子の表面に多孔質高分子構造を形成し、また、少なくとも一つの陽子伝導性高分子の多孔質粒子を形成し；

B) その内部において粒子の少なくとも一部が電解触媒を担持し、さらに／または、粒子の少なくとも一部は部分的に少なくともステップA)において得られた多孔質陽子伝導性高分子を積載する、少なくとも導電性の粒子担持体を触媒層として用意し；

C) 触媒層を電極の形に形成し；

D) 形作られた触媒層をガス拡散層の一方の面に接触させる。

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0009

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0009】

本発明のもう一つの目的は、本発明による2枚の平面状ガス拡散電極と、それらの間にサンドウィッチ状に設けられた膜と、その膜をドープする添加物とからなる膜電極ユニット(MEU)少なくとも一つから構成される、燃料電池により達成される。本発明によるガス拡散電極は、少なくとも一つのガス拡散層と一つの触媒層とからなる、ガス透過性導電層を複数有している。触媒層は、導電性の担体物質の粒子であって、少なくともその一部は、電解触媒を担持し、さらに/または、少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子であって、水の沸点までまたはそれ以上の温度まで使用することができ、さらに/または、少なくとも摂氏200度まで安定であるものを積載しているもの、を少なくとも有している。

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0011

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0011】

好適な態様の詳細な説明

ガス拡散電極は、少なくとも一つのガス拡散層と一つの触媒層とからなるガス透過性導電層を複数有している。

触媒層は、導電性の担体物質の粒子を少なくとも有している。粒子の少なくとも一部は少なくとも部分的に少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を担持している。この多孔質陽子伝導性高分子は水の沸点までまたはそれ以上の温度まで使用することができ、さらに/または、少なくとも摂氏200度まで安定である。導電性の担体物質粒子の表面に多孔質構造の陽子伝導性高分子を積載させることは、触媒層に存在する電解触媒と隣接する高分子電解膜との間の秀逸な陽子伝導を実現するという目覚しい利点を有している。その積載された粒子が寄り集まることによって、触媒層の中の粒子の陽子伝導性高分子層が、隣接する粒子の陽子伝導性高分子層または膜電極ユニット(MEU)の高分子電解質膜と直接接触することがかなり確実となる。

少なくとも摂氏200度まで安定な陽子伝導性高分子の多孔性は、触媒層における高いガス透過性ばかりでなく、気体の燃料とオキシダントおよび気体反応性生物の電解触媒までおよびそれからの、妨げられることのない移動をも確実にする。陽子伝導性高分子層の多孔性は、孔の直径で少なくとも0.001~0.1μmの範囲において調節可能である。

粒子表面への積載の割合および積載厚みも、同様に調節可能である。粒子コーティングの厚みは好ましくは粒子直径の0.1~10パーセントであり、表面の50~100パーセントに積載されることが好ましい。

水の沸点までまたはそれ以上の温度まで使用することができ、さらに/または、少なくとも摂氏200度まで機械的および熱的に安定である陽子伝導性高分子を選択することにより、この発明によるガス拡散電極が、水の沸点までまたはそれ以上の温度まで、さらに/または少なくとも摂氏200度まで、連続運転においても性能低下を伴わない高温燃料電池において使用されることを可能にする。これは、ひとつにはこの選択された陽子伝導性高分子の多孔質構造が、これらの温度においても破壊されることがないという事実のおかげであり、かくしてガス拡散電極の構造は維持される。

【誤訳訂正 8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】 0 0 1 5

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 1 5 】

電解触媒は金属、合金またはそれらの混合物である。周期律表の第8亜属から選択された金属がとりわけ良好である。それらのなかで、白金、イリジウム、および/または、ルテニウムが好適である。白金は特に好適である。5～40重量パーセントの電解触媒が担持体の上に積載されることが好ましい。触媒の粒子寸法は約2～10nmである。

【誤訳訂正9】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 1 8

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 1 8 】

窒素原子含有高分子としては、ポリベンズイミダゾル (poly benzimidazoles)、ポリピリジン (polypyrridines)、ポリピリミジン (polypyrimidines)、ポリイミダゾル (polyimidazoles)、ポリベンゾチアゾル (polybenzothiazoles)、ポリベンゾキジアゾル (polybenzoxazoles)、ポリオキサジアゾル (polyoxadiazoles)、ポリクイノキサリン (polyquinoxalines)、ポリチアジアゾル (polythiadiazoles)、ポリ(テトラザピレン) (poly(tetrazapyrenes))、または アミド結合を形成可能な反応基を側鎖に有する高分子、または第一級または第二級アミノ基、またはそれらまたは他の高分子の組み合わせ、を有する高分子からなる群から選択される。

【誤訳訂正10】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 2 3

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 2 3 】

導電性担体物質の粒子が異なった多孔質陽子伝導性高分子を積載しているならば、より有利である。本発明の特別な態様においては、電解触媒を担持する導電性担体物質の粒子の一部は、電解触媒を担持しない粒子とは異なった多孔質陽子伝導性高分子を積載している。共有結合により結合したオキソ酸誘導体のために、触媒を含んだ担体物質のコーティングは、それ自身で触媒的に活性であるか、電解触媒の機能をサポートするからである。

【誤訳訂正11】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 2 5

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 2 5 】

少なくとも一つのガス拡散層と一つの触媒層とからなるガス透過性で導電性の層を複数有したガス拡散電極を製造する方法が、今やより詳細に記載される。触媒層は少なくとも導電性の担体物質粒子を有し、その粒子の少なくとも一部は電解触媒を担持し、さらに/または、その粒子の少なくとも一部は少なくともひとつの多孔質陽子伝導性高分子が積載されており、この高分子は水の沸点温度までまたはそれ以上まで、および/または少なくとも摂氏200度まで安定である。

本発明による方法においては、次のステップが行われる。

A) 導電性の担体物質の粒子の一部の表面に、少なくとも部分的に少なくとも一つの陽子伝導性高分子を積載する。そのために、少なくとも一つの陽子伝導性高分子が溶け込んで

いる溶液にその粒子が懸濁される。懸濁液が、転相を開始するために、その高分子が不溶である液を攪拌しているところに逐次的に加えられ、それによって担体物質の粒子の表面に多孔質高分子構造を形成し、またその少なくとも一つの陽子伝導性高分子の多孔質粒子を形成し、

B) その内部において粒子の少なくとも一部が電解触媒を担持し、さらに/または、粒子の少なくとも一部は部分的に少なくともステップA)において得られた多孔質陽子伝達性高分子を積載する、少なくとも導電性の粒子担持体を触媒層として用意し、

C) 触媒層を電極の形に形成し、

D) 形作られた触媒層をガス拡散層の一方の面に接触させる。

【誤訳訂正 1 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 3 1

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 3 1】

陽子伝導性高分子に被覆された導電性担体物質粒子および被覆されていない導電性担体物質粒子を使用することによって、電解触媒は、ガス拡散電極の触媒層の中に、高分子電解質膜と、陽子伝導性を有して結合してはいるが陽子伝導性高分子が機能に影響を及ぼすほど完全には被覆してしまっていない状態で配置される。

【誤訳訂正 1 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 3 3

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 3 3】

導電性粉体担体を触媒層として粉の形で使用する場合、粉体を圧延することによって触媒層を電極の形に形成する。被覆されていない導電性担体を使用することによって、本発明による高分子被覆の担持体を使用することは、形成された電極帯の機械的安定性を目覚しく向上させるという利点がある。

導電粒子担体を電解触媒として懸濁液またはペーストの形で使用する場合には、触媒層を、好ましくは懸濁液またはペーストを少なくとも一つの基材に塗ったのちに乾燥させることによって電極の形にする。この場合も、本発明による高分子被覆の担持体を使用することは、被覆されていない担持体に比較して目覚しく懸濁性を改善する。

【誤訳訂正 1 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 3 7

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 3 7】

使用される窒素原子含有高分子としては、好ましくは、ポリベンズイミダゾル (poly benzimidazole (PBZ))、ポリピリジン (polypyrridine)、ポリピリミジン (polypyrimidine)、ポリイミダゾル (polyimidazoles)、ポリベンゾチアゾル (polybenzothiazoles)、ポリベンゾキサゾル (polybenzoxazoles)、ポリオキサジアゾル (polyoxadiazoles)、ポリクイノキサリン (polyquinoxalines)、ポリチアジアゾル (polythiadiazoles)、ポリ(テトラザピレン) (poly(tetrazapyrenes))、およびアミド結合を形成可能な反応基を側鎖に有する高分子、または第一級または第二級アミノ基、またはそれらまたは他の高分子の組み合わせ、を有する高分子からなる群から選択されるものである。

本発明のさらに好適な態様においては、オキソ酸またはその誘導体の中心原子が、リン

、硫黄、モリブデン、タングステン、砒素、アンチモン、ビスマス、セレン、ゲルマニウム、錫、鉛、ホウ素、クロムおよび／または珪素であるものが使用される。オキシ酸の誘導体は好ましくは、アルコキシル化合物、エステル、アミドおよび酸塩化物の形の有機誘導体である。とりわけ好ましいのは2 - (ジエチルヘキシル)リン酸エステル(2 - (diethylhexyl)phosphoric acid ester)、モリブデニルアセチルアセトネートおよびテトラエトキシレン(tetraethoxysilane)である。

オキシ酸の有機誘導体の比率は窒素原子含有高分子の分量に対して10～400重量パーセント、特に好ましくは200～350重量パーセントの範囲内に調節される。

【誤訳訂正15】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0039

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0039】

もし、少なくとも一つの陽子伝導性高分子とオキシ酸誘導体とが、熱の作用によって互いに結合してネットワークとなる場合には、とりわけ安定なガス拡散電極が得られる。好適な態様においては、転相工程とそれに続く粉体乾燥の後、高分子に被覆された導電担体物質は摂氏100～300度、好ましくは150～250度の温度範囲内において、約1時間硬化が行われ、高分子とオキシ酸誘導体とのクロスリンクを完了させる。使用する高分子およびオキシ酸誘導体によっては、そしてまた焼きなまし温度によっては、焼きなまし工程を約5時間まで延長する必要があるであろう。導電性担体物質粒子を被覆する高分子の機械的安定性は使用するオキシ酸誘導体のタイプと濃度により影響を受けうるものである。

【誤訳訂正16】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0041

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0041】

本発明による2枚の平面ガス拡散電極と、サンドイッチ構造でそれらの間に位置する膜と、その膜のためのドーパントとで構成された少なくとも一つの膜電極ユニット(MEU)からなる燃料電池について、ここでより詳細に説明する。本発明によるガス拡散電極は、少なくとも一つのガス拡散層と一つの触媒層とからなるガス透過性導電層を、複数有している。触媒層は少なくとも導電性担体物質の粒子を有しており、その粒子の少なくとも一部は電解触媒を担持し、さらに／またはその粒子の少なくとも一部が少なくとも一つの多孔質陽子伝導性高分子を積載しており、この高分子は水の沸点までまたはそれ以上で使用可能であり、かつ／または摂氏200度まで安定である。

【誤訳訂正17】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0042

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0042】

ガス拡散電極には、膜に対するドーパントのリザーバーの役割を持たせるためにドーパントが積載される。膜はドーパントの吸収によって陽子伝導性となり、圧力と温度の作用の下にガス拡散電極と陽子伝導性の結合がなされる。その代わりに、MEUに組み立てる前に、膜に直接ドーパントを染み込ませてもよい。ドーパント物質としては、リン酸が好適である。燃料電池は、動作温度が室温から水の沸点温度またはそれ以上、および／または少なくとも摂氏200度までの水素／酸素運転に使用できる。

本発明の燃料電池の好適な態様においては、ガス拡散電極およびM E Uの高分子電解膜は、同一の少なくとも一つの陽子伝導性高分子を有する。