

(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2017-526808

(P2017-526808A)

(43) 公表日 平成29年9月14日 (2017.9.14)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
C 2 5 B 9/06 (2006.01)	C 2 5 B 9/06	4 K 0 2 1
H 0 1 M 4/86 (2006.01)	H 0 1 M 4/86	5 H 0 1 8
C 2 5 B 13/02 (2006.01)	C 2 5 B 13/02	3 0 2
C 2 5 B 13/04 (2006.01)	C 2 5 B 13/04	3 0 2
H 0 1 M 8/10 (2016.01)	H 0 1 M 8/10	

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願2016-573968 (P2016-573968)
 (86) (22) 出願日 平成27年6月15日 (2015.6.15)
 (85) 翻訳文提出日 平成29年2月16日 (2017.2.16)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2015/063262
 (87) 国際公開番号 W02015/193211
 (87) 国際公開日 平成27年12月23日 (2015.12.23)
 (31) 優先権主張番号 14172465.8
 (32) 優先日 平成26年6月16日 (2014.6.16)
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 390039413
 シーメンス アクチエンゲゼルシャフト
 Siemens Aktiengesellschaft
 ドイツ連邦共和国 D-80333 ミュンヘン
 ヴィッテルスバッハープラッツ 2
 Wittelsbacherplatz 2, D-80333 Muenchen, Germany
 (74) 代理人 100114890
 弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト
 (74) 代理人 100098501
 弁理士 森田 拓

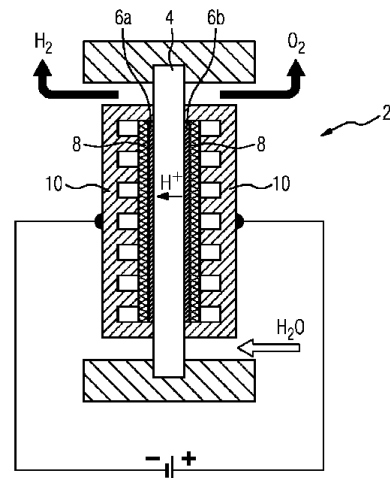
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガス拡散層、当該ガス拡散層を備えた電気化学セル、及び電気分解装置

(57) 【要約】

ここに記載されているのは、電気化学セル (2) のバイポーラ板 (10) と、電極 (6a、6b) との間に取り付けるためのガス拡散層 (8) であって、このガス拡散層 (8) には、重なり合って積層された少なくとも2つのレイヤが含まれており、これらのレイヤのうちの少なくとも1つは、累進的なばね特性曲線を備えたばね構成要素 (12a、12b、12c) として構成されている。

FIG 1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

電気化学セル(2)のバイポーラ板(10)と、電極(6a、6b)との間に取り付けるためのガス拡散層(8)であって、

重なり合って積層された少なくとも2つのレイヤを含んでおり、

前記レイヤのうちの少なくとも1つは、累進的なばね特性曲線を備えたばね構成要素(12a、12b、12c)として構成されている、

ことを特徴とするガス拡散層(8)。

【請求項 2】

少なくとも3つのレイヤが設けられており、

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、前記ガス拡散層(8)の外側のレイヤを構成している、

請求項1に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 3】

重なり合って積層された前記少なくとも2つのレイヤは、それらの構造及び/又は組成が互いに異なっている、

請求項1又は2に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 4】

接触接続構成要素(19、24、28)、拡散構成要素、前記ばね構成要素(12a、12b、12c)の3つのレイヤを含む、

請求項1から3までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 5】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、前記ばね特性曲線が、異なる経過を有する少なくとも2つの領域、特に3つの領域(I、II、III)に区分可能である、ように構成されている、

請求項1から4までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 6】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、5barまでの押圧力の際に、最大弾性変形に対して60%まで、特に80%までになる、前記ばね構成要素(12a、12b、12c)の変形が行われる、ように構成されている、

請求項1から5までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 7】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、5barと25barとの間の押圧力の際に、最大弾性変形に対して60%と90%との間にある、前記ばね構成要素(12a、12b、12c)の変形が行われる、ように構成されている、

請求項1から6までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 8】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、導電性材料から構成されており、特に貴金属、チタン、ニオブ、タンタル及び/又はニッケルから構成されている、

請求項1から7までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 9】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、外形が板(12a、12c)の形状で構成されている、

請求項1から8までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 10】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)は、網目(21b)の形状で構成されている、

請求項1から9までのいずれか1項に記載のガス拡散層(8)。

【請求項 11】

前記ばね構成要素(12a、12b、12c)には、1つ以上の螺旋体(22)が含ま

10

20

30

40

50

れている、

請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層 (8)。

【請求項 12】

請求項 1 から 11 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層 (8) を備えた電気化学セル (2)、特に PEM 電気分解セル又はガルバニ電池。

【請求項 13】

請求項 12 に記載の PEM 電気分解セル (2) を備えた電気分解装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

本発明は、電気化学セル用の、特に PEM 電気分解セル用のガス拡散層に関する。本発明はさらに、上記のようなガス拡散層を備えた電気化学セル、特に PEM 電気分解セル、又はガルバニ電池ならびに電気分解装置に関する。

【0002】

電気化学セルは広く公知であり、ガルバニ電池と電気分解セルとに区分される。電気分解セルとは、電流によって強制的に化学反応が引き起こされる装置のことであり、ここでは電気エネルギーの少なくとも一部が化学エネルギーに変換される。ガルバニ電池とは、化学エネルギーを電気エネルギーに自発的に変換する (電気分解セルとは) 相補的な装置のことであり、このようなガルバニ電池の公知の装置は、例えば燃料電池である。

【0003】

20

水素ガス及び酸素ガスを形成するために電気分解セルを用い、電流によって水を分解することは十分に公知である。ここでは主に 2 つの技術システム、すなわちアルカリ電気分解装置と、PEM (Proton-Exchange-Membrane) 電気分解装置とが区別される。

【0004】

技術的な電気分解装置の核心部分は、2 つの電極及び電解質を含む電気分解セルである。PEM 電気分解セルでは、電解質はプロトン導電性膜から構成され、この膜の両側に電極が設けられている。膜及び電極からなるユニットは、MEA (英語: Membrane-Electrode-Assembly、ドイツ語: Membran-Elektroden-Einheit) と称される。これらの電極には、複数の電気分解セルから構成される電気分解スタックの組立状態において、ガス拡散層を介して、複数のいわゆるバイポーラ板が接触接続しており、これらのバイポーラ板により、このスタックの個々の電気分解セルが互いに分離されている。ここでは電気分解セルの O_2 側は正極に、また H_2 側は負極に対応し、これらは、それらの間に設けられた膜・電極ユニットによって分離されている。

30

【0005】

PEM 電気分解セルには O_2 側に完全な脱塩水が供給され、この脱塩水は、アノードにおいて酸素ガス及びプロトン (H^+) に分解される。プロトンは、電解質膜を通して移動してカソード (H_2 側) で水素ガスに再結合される。電極に接触しているガス拡散層により、電極の接触接続に加えて、最適な水分配 (ひいては膜の濡れ性) 及び生成ガスの搬出が保証される。したがってガス拡散層として必要になるのは、電極に良好かつ持続的に接触接続する導電性の多孔性要素である。付加的な要求としては、場合によっては電気分解装置に生じる製造許容差を補償すべきであり、これにより、どのような許容差が生じた場合であっても MEA の均一な接触接続を可能になるようにする。

40

【0006】

これまで一般的に、焼成した金属板がガス拡散層として使用されていた。この金属板は確かに、導電率及び多孔性についての要求を満たしてはいたが、ガス拡散層の両面における電気分解セルの構成部分の付加的な許容差を補償することは不可能であった。さらにこのような板についての製造コストは比較的高く、またこのような板を製造する際に必要なプレス圧に起因して、サイズについての大きさの制限がある。さらに、サイズの大きな構成部分では、容易には制御できない遅延問題が発生する。

【0007】

50

アルカリ電気分解装置において電気コンタクトを作製するため、弾力性要素を備えたガス拡散電極を使用することは、例えば国際公開第2007/080193号(WO 2007/080193 A2)及び欧州特許出願公開第2436804号明細書(EP 2436804 A1)に記載されている。

【0008】

欧州特許第1378589号明細書(EP 1378589 B1)にはばね板が記載されており、ここでは個々のばね要素が交互に上及び下に向かって曲げられている。このばね板は、イオン交換電気分解装置のカソード側だけに組み込まれているため、このばね板はカソードに直接接触接続する。

【0009】

米国特許出願公開第2003/188966号明細書(US 2003/188966 A1)には、分離壁とカソードとの間に配置されている、電気分解セル用の別のばね構成要素が記載されている。このばね構成要素には、複数の板ばね要素が含まれており、これらの板ばね要素は、均一な適合化のため、カソードに接触している。

【0010】

さまざまに構成された別の複数のガス拡散電極は、国際公開第2002035620号(WO 2002035620 A2)、独国特許出願公開第10027339号明細書(DE 10027339 A1)及び独国特許出願公開第102004023161号明細書(DE 102004023161 A1)に記載されている。

【0011】

本発明の根底を成す課題は、電気化学セル、特に電気分解セル又はガルバニ電池に、特にバイポーラ板の領域において、場合によって発生する構成部材許容差を補償することである。

【0012】

この課題は、本発明により、電気化学セルのバイポーラ板と電極との間に取り付けるためのガス拡散層によって解決され、このガス拡散層には、重なり合って積層された少なくとも2つのレイヤが含まれており、これらのレイヤのうちの1つは、累進性のばね特性曲線を備えたばね構成要素として構成されている。

【0013】

上記の課題はさらに本発明により、上記のようなガス拡散層を備えた電気化学セル、特にPEM電気分解セルによって解決される。

【0014】

上記の課題はさらに本発明により、上記のようなPEM電気分解セルを備えた電気分解装置によって解決される。

【0015】

ガス拡散層について以下で説明する複数の利点及び複数の有利な実施形態は、その意味に則して、電気化学セル、ガルバニ電池、特に燃料電池、PEM電気分解セル及び/又は電気分解装置に適用可能である。

【0016】

本発明は、累進的なばね特性により、接触する複数の構成部材のあらゆる製造許容差状態において、押圧力が十分になることが保証される、という知識に基づいている。ここでは累進的なばね特性のガス拡散層への具現化は、ばね構成要素の幾何学形状によって得られる。

【0017】

ばね構成要素とは、弾力的に復元する特性を有しており、すなわち負荷の下ではしなり、かつ、負荷を取り除いた後は元の形態に戻る、ガス拡散層の層又はレイヤのことである、と理解される。

【0018】

ばね特性曲線は、ばねの力・変位経過(プログレス)を示す。すなわちこのばね特性曲線は、線図の形態で、ばねの力・変位比の効率がどのくらいであるのかを示すのである。

10

20

30

40

50

累進的なばね特性曲線は、これが、均一に徐々に負荷を加え続けると、ばね変位がますます小さくなる、という特性を有する。累進的な特性曲線では、進んだ変位に比べて、使用され消費される力が増大する。これとは択一的に、線形なばね特性曲線及び累退的なばね特性曲線も存在する。

【0019】

考えられ得る実施例において、上記の電気化学セルのガス拡散層には少なくとも3つのレイヤが含まれており、したがって内側のレイヤ及び外側のレイヤが含まれている。特に有利であることが判明したのは、ばね構成要素が、ガス拡散層の外側のレイヤを構成する場合である。

【0020】

「外側のレイヤ」は、ガス拡散層に隣接する構成要素に接触するために設けられている。

【0021】

本発明において「外側のレイヤ」とは、2つ以上のレイヤがある場合に、外側の、特にバイポーラ板に直接隣接するレイヤが、累進的なばね特性曲線を有するばね構成要素として構成されている、ことであると理解される。

【0022】

累進的なばね特性曲線を有するばね構成要素をガス拡散層として使用することにより、通常の押圧力（約5～25 bar）の領域において、ばね構成要素の大きな変形が行われるため、大きな構成部材許容差が調整されるのに対し、過負荷時にはさらなるばね変位が小さくなるため、このばね構成要素が大きな圧力に持ちこたえる、という複数の重要な利点が得られる。これにより、動作押圧力をはるかに上回る負荷の場合に、ばね構成要素の過大な塑性変形が阻止される。

【0023】

この弾力性は、第1に、MEAとバイポーラ板との間の電気的な接触接続を形成するために使用され、この電気的な接触接続は、小さな押圧力の際にもすでに保証される。第2にこの押圧力により、MEAとの均一かつ平坦な接触接続が保証される。構造的な型押しに応じて、上記のばね構成要素により、流入する水が事前に分配させられる。さらにこのばね構成要素を介して電流が流れる。

【0024】

重なり合って積層された上記の少なくとも2つのレイヤは有利には、それらの構造及び/又は組成が互いに異なっている。これは特に、これらのレイヤの機能によって特定される。ガス拡散層が2つのレイヤからなる構造の場合、1つのレイヤはバイポーラ板上にあり、別の1つのレイヤは電極上にある。これに対応して、2つのレイヤの特性が異なり、ひいては構造ないしは組成が異なる。外側の2つのレイヤ間に1つ以上の中間レイヤが設けられる場合にも同じことが成り立つ。

【0025】

ガス拡散層には有利には3つのレイヤ、すなわち、接触接続構成要素と、拡散構成要素と、ばね構成要素とが含まれている。内側の接触接続構成要素は、ガス拡散層を電極に均一に接触接続するために使用される。したがって例えばフリース又は極めて細かく穿孔された板などの細かな材料を使用することが推奨される。中間の拡散構成要素は、発生したガスの搬出に使用され、ここではすべての電流もこの構成要素を通過する。外側のばね構成要素は、すでに説明したようにもっぱら、隣接する複数の部材の許容差状態に依存せずに、可能な限りに安定した押圧力を保証する。

【0026】

許容差補償に使用する際の複数の要求を満たす、ばね構成要素の特に高いフレキシビリティを考慮して、このばね構成要素を構成し、ばね特性曲線が、異なる経過（プログレス）を有する少なくとも2つの領域、特に3つの領域に区分可能である、ようにする。ここでこのばね構成要素は、最大の押圧力の領域において、最大の弾性変形によって特徴付けられる。ここで最大の弾性変形とは、ばね構成要素の弾性特性と、純粋な塑性特性との間

10

20

30

40

50

の境界のことである、と理解される。ここで部分的に弾性でありかつ部分的に塑性であるばね構成要素の特性は、最大の塑性変形下でも発生する。特にばね構成要素の最大の弾性変形変位は、約 50 bar の押圧力時に得られる。約 50 bar を上回るとばねは純粋に塑性的に振る舞い、すなわちこの負荷及びこれを上回る負荷の際にはこの変形は非可逆的である。

【0027】

構成部材許容差を迅速に補償することを考慮して、有利には、5 bar までの押圧力の際に、最大の弾性変形に対して 60 % まで、特に 80 % までになる、ばね構成要素の変形が行われるように、ばね構成要素を構成する。

【0028】

さらに、ばね構成要素は有利には、5 bar と 25 bar との間の押圧力の際に、最大の弾性変形に対して 60 % と 90 % との間にある、ばね構成要素 (12a、12b、12c) の変形が行われる、ように構成されている。

【0029】

ばね構成要素は有利には、導電性材料から構成されており、特に貴金属、チタン、ニオブ、タンタル及び / 又はニッケルから構成されている。ばね構成要素のこのような組成により、特にこれを電流分配器として使用することができる。

【0030】

第 1 の有利な実施形態によれば、ばね構成要素は、穿孔された板の形態で構成される。このような構成の特徴は、比較的製造が容易なことである。

【0031】

択一的に有利な実施形態によれば、ばね構成要素は、網状組織の形態で構成される。ここでは、この網状組織の種類及び密度により、ばね特性を容易に変化させることができる。

【0032】

ばね構成要素には有利には 1 つ以上の螺旋体が含まれている。ここではばね特性は、螺旋体の形状及び配置によって特定される。

【0033】

本発明の複数の実施例を図面に基づいて説明する。

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図 1】例示的に PEM 電気分解セルとして構成されている電気化学セルの基本構造を示す図である。

【図 2】累進的なばね特性曲線を示す線図である。

【図 3】ガス拡散層のばね構成要素の第 1 実施形態の側面図である。

【図 4】ガス拡散層のばね構成要素の第 1 実施形態の平面図である。

【図 5】ガス拡散層のばね構成要素の第 2 実施形態の側面図である。

【図 6】ガス拡散層のばね構成要素の第 2 実施形態の平面図である。

【図 7】図 5 及び図 6 に示した第 2 実施形態の一部である螺旋体を示す図である。

【図 8】ガス拡散層のばね構成要素の第 3 実施形態の側面図である。

【図 9】ガス拡散層のばね構成要素の第 3 実施形態の斜視図である。

【0035】

同じ参照符号は、図が変わっても意味は同じである。

【0036】

図 1 には、PEM 電気分解セルとして構成されている電気化学セル 2 の構造が略示されている。電気化学セル 2 は、電流によって水を分解して水素及び酸素を生成する、ここでは詳しく示していない電気分解装置の一部である。

【0037】

電気化学セル 2 は、プロトン導電性膜 4 (Proton-Exchange-Membrane、PEM) からなる電解質を有し、この膜 4 の両側には電極 6a、6b が設けられている。膜及び電極から

10

20

30

40

50

なるユニットは、MEA (Membrane-Electrode-Assembly) と称される。ここでは参照符号 6 a でカソードを、参照符号 6 b でアノードを示している。電極 6 a、6 b にはそれぞれガス拡散層 8 が接触している。ガス拡散層 8 には、いわゆるバイポーラ (双極) 板 10 が接触接続しており、これらのバイポーラ板は、電解質スタックの組立状態において、複数の個別の電解質セル 2 を互いに分離している。

【0038】

電気化学セル 2 には水が供給され、この水はアノード 6 b において酸素ガス O_2 及びプロトン H^+ に分解される。プロトン H^+ は、電解質膜 4 を通ってアノード 6 a の方向に移動する。カソード側においてプロトンは、水素ガス H_2 に再結合される。

【0039】

別の実施例において電気化学セル 2 は、電流を形成するためのガルバニ電池ないしは燃料電池として構成されている。本発明によれば、図 1 に示した電気分解セルに類似して、このように形成される電気化学セル 2 のガス拡散層 8 を変更することができる。したがって一般性を制限することなく以下では、例示的に、電気分解セルとして構成された電気化学セル 2 を引き合いに出すことにする。

【0040】

ガス拡散層 8 により、水の最適な分配及び生成ガスの搬出が保証される。ガルバニ電池の場合、ガス拡散層 8 は対応して、それぞれの電極への反応物質の供給に使用される。ここで重要であるのは、いずれの場合においてもガス拡散層 8 が、ガス状の生成物ないしは出発物質に対して透過性を有することである。

【0041】

ガス拡散層 8 は、特に電気分解セルの場合にさらに電流分配器として使用される。これらのような理由から、ガス拡散層 8 は、導電性かつ多孔性材料から形成される。

【0042】

図示の実施例においてガス拡散層 8 により、構成部材許容差、特に接触するバイポーラ板 10 の構成部材許容差が補償される。このためにガス拡散層 8 には、重なり合って積層された複数のレイヤが含まれており、外側のレイヤは、ばね構成要素 12 a、12 b、12 c (図 3 ~ 図 9 を参照されたい) として構成されており、これらのばね構成要素は、累進的なばね特性曲線を有する。ガス拡散層 8 には特に、図示した接触接続構成要素と、拡散構成要素と、ばね構成要素とが含まれており、これらは、構造及び / 又は組成が互いに異なっている。

【0043】

図 2 には、2 つの累進的なばね特性曲線 (プログレス曲線のばね特性) K 1 及び K 2 が例示されている。x 軸には S でばね変位が、また y 軸には F でばね力が示されている。図 2 からわかるようにこのばね特性曲線は、3 つの領域に区分されている。図示の実施例において約 50 bar にある最大の弾性変形 V_{max} は、このばね特性曲線の弾性的な経過と、塑性的な経過との間、ないしはこのばねの弾性的な特性と、塑性的な特性との間の移行点を表している。最大の弾性変形 V_{max} (= 100%) の右側では、このばねの純粋な塑性変形が行われる。

【0044】

第 1 領域 I においてばね構成要素は、5 bar までの比較的小さい押圧力において比較的大きく変形し、特にばね特性曲線 K 1 の変形は 20% と 30% との間にあり、ばね特性曲線 K 2 の変形は、60% を上回るところにも達している。

【0045】

押圧力が 5 bar と 25 bar との間にある第 2 領域 II において、ばね構成要素の変形は、最大の弾性変形 V_{max} に対して約 60% と約 90% との間にある。

【0046】

さらにばね構成要素は、25 bar を上回る押圧力の場合にわずかな変形だけしか発生しないように構成されているため、正規化したばね変位 S の部分は、K 1 に対しては 60% と 100% との間、K 2 に対しては約 85% と 100% との間でカバーされている。

10

20

30

40

50

【 0 0 4 7 】

図 3 及び図 4 には、ばね構成要素 1 2 a を備えたガス拡散層 8 の第 1 実施例が示されている。このばね構成要素には、表面においてカットされ、曲げられた複数の三角形 1 6 を備えた板 1 4 が含まれており、これらの三角形は、板 1 4 に弾性的な特性を付与している。ばね構成要素 1 2 a のこのような弾性的な特性は累進的であるが、板 1 4 の大きな塑性変形を回避するために機械的に制限しなければならない。この場合にこれは、三角形 1 6 の間に型押しされた複数のスペーサ 1 8 によって行われる。これらのスペーサ 1 8 は、上に曲げられた三角形 1 6 よりも格段に硬いため、ばね構成要素 1 2 a のばね特性曲線は、スペーサ 1 8 が、隣接しているパイポラ板 1 0 と接触するとただちに大きく上昇する。図 3 からわかるように、ガス拡散層 8 には、フリースから構成された接触接続構成要素 1 9 がさらに含まれており、これらの接触接続構成要素は、組立状態において電極 6 a、6 b に接触する。

10

【 0 0 4 8 】

図 5 及び図 6 には、別のばね構成要素 1 2 b を備えたガス拡散層 8 の第 2 実施形態が記載されている。ここでこのばね構成要素 1 2 b には螺旋網状組織が含まれている。この螺旋網状組織には、並んで配置された複数の横棒 2 0 が含まれており、この横棒の周りに複数の螺旋体 2 2 が巻回されている。図 7 にはさらに、個々の螺旋体 2 2 が示されており、これらの螺旋体は、この網状組織のばね作用に対する基礎を構成している。螺旋網状組織 1 2 b が得られるのは、同じ幾何学形状を有するが巻回方向が逆の複数の螺旋体 2 2 が交互に、互いに押し込み合い、かつ、横棒 2 0 によって接続される場合である。横棒 2 0 は、例えばプラスチックから作製される。螺旋体 2 2 は、例えば貴金属、チタン、ニオブ、タンタル又はニッケルなどの導電性材料からなる。

20

【 0 0 4 9 】

図 5 からさらに、カバーレイヤ 2 4 を読み取ることができ、このカバーレイヤは、ガス拡散層 8 の接触接続構成要素 1 9 として機能する。ここでカバーレイヤ 2 4 は、エキスパンドメタルからなる層、又は、別の多孔性かつ機械的に安定した材料からなる層から構成されている。例えば、ワイヤクロス、発泡金属又は焼成した金属板上のフリースも考えられる。

【 0 0 5 0 】

図 8 及び図 9 には、第 3 のばね構成要素 1 2 c を備えたガス拡散層 8 の第 3 実施形態が示されている。ばね構成要素 1 2 c はここでは、交互に逆の起伏を有する波打ち板式に型押しされている。この形状は、図示した方向 5 への流れの案内が同時に行われるという重要な利点を有する。ここでは弾力性は、極めて柔らかいばねから、衝突に近い特性まで（図 2 を参照されたい）の 3 段階に累進的に増大して発生する。図 8 及び図 9 では参照符号 2 6 により、エキスパンドメタルにおける固定点である箇所が示されている。図 9 の斜線が付けられた面 2 8 は、カバーレイヤ 2 4 ないしは接触接続構成要素 1 9 を示しており、これは、複数の電極 6 a、6 b のうちの 1 つの方を向いている。

30

【 0 0 5 1 】

図 8 及び図 9 に示した、ばね構成要素 1 2 c の実施形態は、実質的に平坦に構成されている。ばね構成要素 1 2 c の複数の弾性部分は、面の拡がり方向に対して実質的に垂直方向に延在する横方向（図 8）に関し、種々異なる複数の間隔で配置されており、これによって累進的なばね特性曲線が得られる。これによって達成されるのは、変位が小さい場合に、ばね構成要素 1 2 c のいくつかのわずかな、外側にある部分だけ変形することである。より大きな変位の場合には、ばね構成要素 1 2 c の変形も、変形される部分の個数も共に増大し、これにより、変形に必要な力が非線形に増大し、したがって累進的なばね特性曲線が結果的に得られる。

40

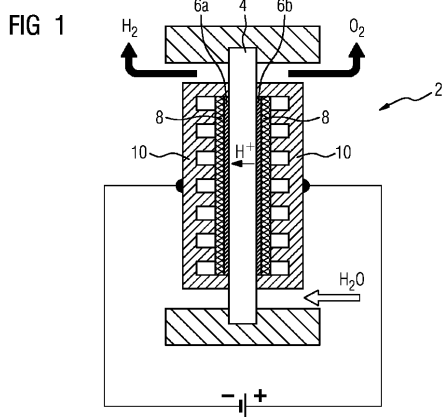
【 0 0 5 2 】

上で説明したすべてのばね構成要素 1 2 a、1 2 b、1 2 c ないしはガス拡散層 8 は、これらが、電気分解装置において発生する構成部材許容差を補償して、いかなる許容差の場合であっても膜・電極ユニットの均一な接触接続を可能にする、という特性を有する。

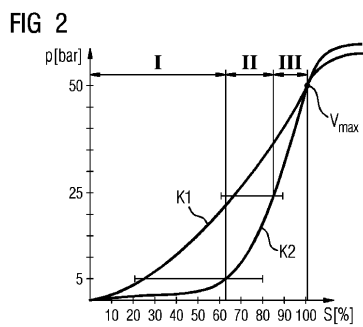
50

ばね構成要素 12 a、12 b、12 c の累進的なばね特性曲線に起因して、過負荷の場合のガス拡散層 8 の片面の過剰な変形を阻止することができる。さらにすべての実施例において、ばね構成要素 12 a、12 b、12 c と、接触接続構成要素 19、24、28 との間に、ここでは詳細に示していない多孔性の拡散構成要素を取り付けることが考えられる。

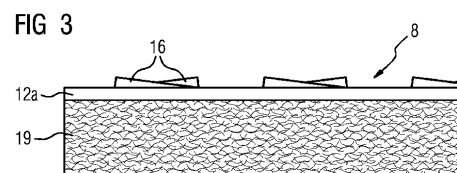
【 図 1 】



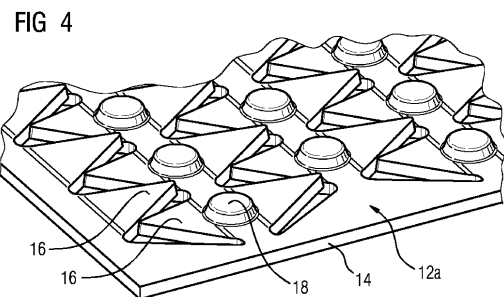
【 図 2 】



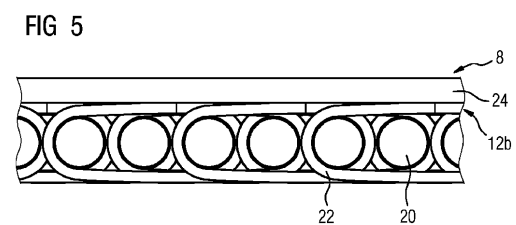
【 図 3 】



【 図 4 】

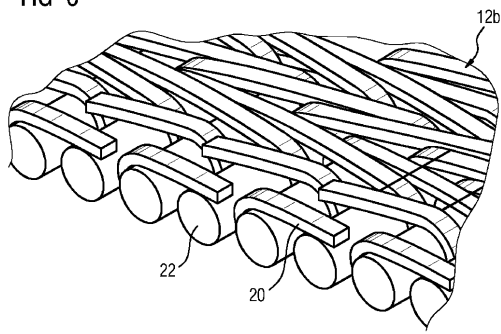


【 図 5 】



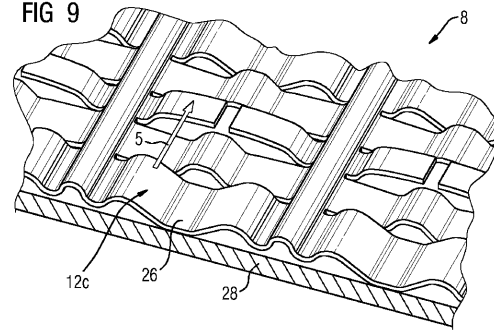
【 図 6 】

FIG 6



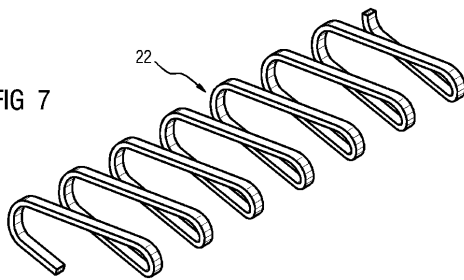
【 図 9 】

FIG 9



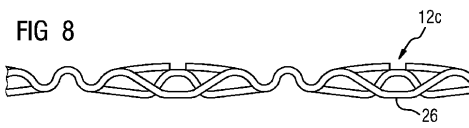
【 図 7 】

FIG 7



【 図 8 】

FIG 8



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2015/063262

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. C25B11/03 C25B9/10 C25B9/20
ADD.

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)

C25B 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 practicable, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2003/188966 A1 (KATAYAMA SHINJI [JP]) 9 October 2003 (2003-10-09)	1-5, 8-10,12, 13
A	abstract; claim 1; figures 1-9 page 2, paragraph 0035 - page 6, paragraph 0109	6,7,11
X	WO 2004/036677 A2 (REINZ DICHTUNG GMBH [DE]; GAUGLER BERND [DE]; SAILER ALBRECHT [DE]; KU) 29 April 2004 (2004-04-29)	1-5, 8-10,12, 13
A	page 11, line 25 - page 27, line 15; figures 1-7	6,7,11
A	WO 2013/137470 A1 (NISSAN MOTOR [JP]) 19 September 2013 (2013-09-19) the whole document	1-12
	----- -/-	

☒ 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 application or patent 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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

9 July 2015

Date of mailing of the international search report

24/07/2015

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Cojuhovsky, Oana

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2015/063262

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004 244676 A (MITSUI CHEMICALS INC; TOAGOSEI CO LTD; KANEGAFUCHI CHEMICAL IND; TOSOH) 2 September 2004 (2004-09-02) the whole document	1-12
A	----- US 2007/020505 A1 (GRAFL DIETER [DE] ET AL) 25 January 2007 (2007-01-25) the whole document	1-12
A	----- US 4 639 303 A (STAAB RUDOLF [DE] ET AL) 27 January 1987 (1987-01-27) the whole document	1-12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/063262

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2003188966 A1	09-10-2003	CN 1451786 A DE 60302610 T2 EP 1378589 A1 KR 20030079788 A NO 20031539 A US 2003188966 A1	29-10-2003 06-07-2006 07-01-2004 10-10-2003 06-10-2003 09-10-2003
WO 2004036677 A2	29-04-2004	AU 2003276101 A1 BR 0315273 A EP 1552573 A2 JP 4959190 B2 JP 2006504872 A US 2007231619 A1 WO 2004036677 A2	04-05-2004 23-08-2005 13-07-2005 20-06-2012 09-02-2006 04-10-2007 29-04-2004
WO 2013137470 A1	19-09-2013	CA 2867454 A1 CN 104170148 A EP 2826093 A1 JP 2013229289 A US 2015037706 A1 WO 2013137470 A1	19-09-2013 26-11-2014 21-01-2015 07-11-2013 05-02-2015 19-09-2013
JP 2004244676 A	02-09-2004	JP 4297694 B2 JP 2004244676 A	15-07-2009 02-09-2004
US 2007020505 A1	25-01-2007	DE 10328039 A1 EP 1634346 A2 JP 4856539 B2 JP 2006527903 A US 2007020505 A1 WO 2004112178 A2	20-01-2005 15-03-2006 18-01-2012 07-12-2006 25-01-2007 23-12-2004
US 4639303 A	27-01-1987	CA 1258443 A1 DE 3439265 A1 EP 0182114 A1 NO 854272 A US 4639303 A	15-08-1989 07-05-1986 28-05-1986 28-04-1986 27-01-1987

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/063262

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES INV. C25B11/03 C25B9/10 C25B9/20 ADD.		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) C25B 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, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 2003/188966 A1 (KATAYAMA SHINJI [JP]) 9. Oktober 2003 (2003-10-09)	1-5, 8-10,12, 13
A	Zusammenfassung; Anspruch 1; Abbildungen 1-9 Seite 2, Absatz 0035 - Seite 6, Absatz 0109	6,7,11
X	WO 2004/036677 A2 (REINZ DICHUNG GMBH [DE]; GAUGLER BERND [DE]; SAILER ALBRECHT [DE]; KU) 29. April 2004 (2004-04-29)	1-5, 8-10,12, 13
A	Seite 11, Zeile 25 - Seite 27, Zeile 15; Abbildungen 1-7	6,7,11
A	WO 2013/137470 A1 (NISSAN MOTOR [JP]) 19. September 2013 (2013-09-19) das ganze Dokument	1-12
----- -/-		
☒ 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" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. 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 erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
9. Juli 2015		24/07/2015
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Cojuhovschi, Oana

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/063262

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	JP 2004 244676 A (MITSUI CHEMICALS INC; TOAGOSEI CO LTD; KANEGAFUCHI CHEMICAL IND; TOSOH) 2. September 2004 (2004-09-02) das ganze Dokument -----	1-12
A	US 2007/020505 A1 (GRAFL DIETER [DE] ET AL) 25. Januar 2007 (2007-01-25) das ganze Dokument -----	1-12
A	US 4 639 303 A (STAAB RUDOLF [DE] ET AL) 27. Januar 1987 (1987-01-27) das ganze Dokument -----	1-12

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/063262

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2003188966 A1	09-10-2003	CN 1451786 A DE 60302610 T2 EP 1378589 A1 KR 20030079788 A NO 20031539 A US 2003188966 A1	29-10-2003 06-07-2006 07-01-2004 10-10-2003 06-10-2003 09-10-2003
WO 2004036677 A2	29-04-2004	AU 2003276101 A1 BR 0315273 A EP 1552573 A2 JP 4959190 B2 JP 2006504872 A US 2007231619 A1 WO 2004036677 A2	04-05-2004 23-08-2005 13-07-2005 20-06-2012 09-02-2006 04-10-2007 29-04-2004
WO 2013137470 A1	19-09-2013	CA 2867454 A1 CN 104170148 A EP 2826093 A1 JP 2013229289 A US 2015037706 A1 WO 2013137470 A1	19-09-2013 26-11-2014 21-01-2015 07-11-2013 05-02-2015 19-09-2013
JP 2004244676 A	02-09-2004	JP 4297694 B2 JP 2004244676 A	15-07-2009 02-09-2004
US 2007020505 A1	25-01-2007	DE 10328039 A1 EP 1634346 A2 JP 4856539 B2 JP 2006527903 A US 2007020505 A1 WO 2004112178 A2	20-01-2005 15-03-2006 18-01-2012 07-12-2006 25-01-2007 23-12-2004
US 4639303 A	27-01-1987	CA 1258443 A1 DE 3439265 A1 EP 0182114 A1 NO 854272 A US 4639303 A	15-08-1989 07-05-1986 28-05-1986 28-04-1986 27-01-1987

フロントページの続き

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

(74)代理人 100116403

弁理士 前川 純一

(74)代理人 100135633

弁理士 二宮 浩康

(74)代理人 100162880

弁理士 上島 類

(72)発明者 アレクサンダー ハーン

ドイツ連邦共和国 レッテンバッハ ミュールベルクシュトラッセ 8

(72)発明者 アレクサンダー シュピース

ドイツ連邦共和国 エアランゲン ドラウスニッケシュトラッセ 138

(72)発明者 ヨヘン シュトラウブ

ドイツ連邦共和国 エアランゲン シュライフミュールシュトラッセ 8ベー

Fターム(参考) 4K021 AA01 BA02 DB49

5H018 AA06 CC06 EE02 EE03 HH05 HH09

5H126 BB06