

(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2004-526283
(P2004-526283A)

(43) 公表日 平成16年8月26日(2004.8.26)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02	HO 1 M 8/02	5HO26
HO 1 M 8/10	HO 1 M 8/02	
	HO 1 M 8/02	
	HO 1 M 8/10	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 30 頁)

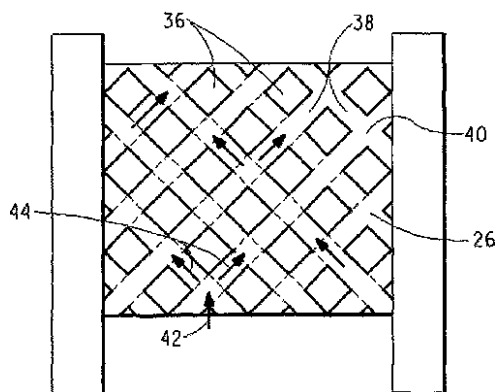
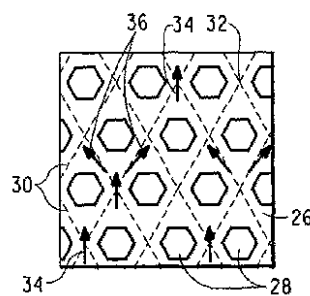
(21) 出願番号	特願2002-568445 (P2002-568445)	(71) 出願人	390023674 イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニー E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミントン、マーケット・ストリート 1007
(86) (22) 出願日	平成14年2月27日 (2002.2.27)	(74) 代理人	100060782 弁理士 小田島 平吉
(85) 翻訳文提出日	平成15年8月21日 (2003.8.21)	(72) 発明者	アブドウ, モハメド カナダ・オンタリオ ケイ7ビー2アール4・キングストン・ウツドサイドドライブ727
(86) 国際出願番号	PCT/US2002/007823		
(87) 国際公開番号	W02002/069426		
(87) 国際公開日	平成14年9月6日 (2002.9.6)		
(31) 優先権主張番号	60/271, 638		
(32) 優先日	平成13年2月27日 (2001.2.27)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気化学デバイス用流体流れ場

(57) 【要約】

固体高分子電解質型燃料電池に使用する新規な流体分流板を開示する。この分流板は適切な導電性材料で作製され、ほぼ平面である面と、前記ほぼ平面である面内に形成された流れ場であって、前記流れ場内のほぼ対称な相互接続オリフィスと斜め流路とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山を含む流れ場と、この流れ場へ燃料および酸化剤を導くのに使用する流体供給マニホールドと、前記流れ場から反応副生物と余剰燃料および酸化剤を除去するのに使用する流体排出マニホールドとを含んでなる。燃料、酸化剤、および反応副生物の流れは、連続的に分離され、別の流路に分流され、次に、分離された流れは各オリフィス内の隣接流路からの流れと混合される。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

プロトン交換膜燃料電池内で使用するための分流板であって、適切な導電性材料で作製され、

(a) ほぼ平面である面と、

(b) 前記ほぼ平面である面内に形成される流れ場であって、前記流れ場内にほぼ対称的な相互接続されたオリフィスと斜め流路とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山を含む流れ場と、

(c) 前記流れ場に燃料および酸化剤を導入するための流体供給マニホールド、ならびに、前記流れ場からの反応副生物と余剰の燃料および酸化剤を除去するための流体排出マニホールドとを含んでなり、

10

前記燃料、酸化剤、および反応副生物とが連続的に分離されて別流路に分流され、次に、前記分離された流れが前記各オリフィス内の隣接流路からの流れと混合される分流板。

【請求項 2】

前記千鳥状の山が六角形の形状である、請求項 1 に記載の分流板。

【請求項 3】

前記千鳥状の山の形状が斜めである、請求項 1 に記載の分流板。

【請求項 4】

前記各斜め流路のサイズがほぼ等しい、請求項 1 に記載の分流板。

【請求項 5】

燃料電池アセンブリであって、

20

(a) アノードと、

(b) カソードと、

(c) 前記アノードと前記カソードとの間に配置された固体高分子電解質と、

(d) 適切な導電性材料で作製され、

(i) ほぼ平面である面と、

(i i) ほぼ平面である面内に形成された流れ場であって、前記流れ場内のほぼ対称的な相互接続されたオリフィスと斜め流路とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山を含む流れ場と、

(i i i) 前記流れ場に燃料および酸化剤を導入するための流体供給マニホールド、ならびに、前記流れ場から反応副生物と余剰燃料および酸化剤を除去するための流体排出マニホールドと、

30

を含んでなる、1 対の対向分流板とを含んでなり、

前記燃料、酸化剤、および反応副生物の流れが連続的に分離され、別の流路に分流され、

前記分離された流れが前記各オリフィス内の隣接流路からの流れと混合される燃料電池アセンブリ。

【請求項 6】

前記千鳥状の山の形状が六角形である、請求項 5 に記載の燃料電池アセンブリ。

【請求項 7】

前記千鳥状の山の形状が斜めである、請求項 5 に記載の燃料電池アセンブリ。

40

【請求項 8】

前記斜め流路のサイズがほぼ等しい、請求項 5 に記載の燃料電池アセンブリ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は新しい電気化学的燃料電池に関し、特に、導電板用の流体流れ場の設計に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、燃料電池に供給される燃料から引き出された化学エネルギーを、燃料が電池

50

内で酸化される電気化学プロセスにより直接電気に変換することで電気エネルギーを生成する電池である。燃料電池は一般的に、アノードと、カソードと、電気触媒と、そしてケーシングに収められた電解質とを含む。燃料物質と酸化体はそれぞれアノードとカソードに連続的かつ独立的に供給され、そこで燃料と酸化体は化学反応を起こして利用可能な電流を発電する。電池から反応副生物が回収される。

【0003】

燃料電池の大きな利点は、化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換し、例えば、火力発電所で行われるような、炭化水素あるいは炭素質燃料の燃焼などの中間ステップを経る必要が皆無であることである。燃料電池反応器は、単セルまたは複数セルのスタックを含んでいてもよい。いずれの場合も、プロトン導電性膜（電解質）とアノードとカソードとを含む膜電極接合体（MEA）は、複数の機能を果たす2つの非常に導電性の高い分流板の間に挟まれているのが一般である。第一に、これらのプレートは集電体として機能して、燃料電池の電圧端子と電極との間の電氣的保護を提供する機能を果たしてもよい。また、分流板（flow field plates）はこのMEAに機械的支持を提供し、MEA電極の作用面積全体に反応物と水を配分する。これは、MEAの電極と直接接触する各板の側面にインプリントされた流れ場により実現される。燃料電池の性能は、電極への反応物の効率的な搬送と、MEAの均一な加湿と、燃料電池の適正な水分管理、つまり電池作動時に生成される水の供給と排出とに大きく依存することがよく知られている。流れ場設計が反応物の濃度勾配と流量と圧力降下と配水とを制御するため、この流れ場設計は燃料電池の性能に影響を及ぼす。

10

20

【0004】

燃料電池アセンブリはタイロッドとエンドプレートとでまとめられる。流体分流板によって燃料（水素、改質メタノール、または天然ガスなど）をアノードに、酸化剤（空気または酸素）をカソードに供給するために、供給マニホールドがそれぞれ設けられる。余剰の燃料と気体酸化剤と水、そしてカソードで形成された他の副生物を排出するために排出マニホールドが設けられる。

【0005】

複数セル構造では、必要に応じて燃料電池の全体出力を高めるために直列または並列接続の2個以上の燃料電池を含む。このような構成では、電池は直列に接続されるのが一般である。その場合、所与のプレートの片側が1つのセルのアノード電極板となり、また当該プレートの他端が隣接セルのカソード電極板となる、というようになっている。

30

【0006】

流れ場は、MEAの電極に直接接触する各分流板の側面にインプリントされる。この流れ場は、MEA電極の作用面積全体に反応物を分配しまた副生物と水を取り除くための分配/流路を提供する。

【0007】

燃料電池の性能は、各電極への反応物の効率的輸送と、電極からの副生物と水の排出と、そしてセルの適切な流体管理とに大きく依存している。流れ場設計は、反応物の濃度勾配と配分と流量と圧力降下と水/副生物の除去とを制御することから、電気化学的燃料電池の性能に影響を及ぼす。

40

【0008】

最近になって、当業では、メタノールなどの液体燃料を反応物として使用する燃料電池において特に、流れ場設計と反応物流路形状に複数の問題があることが認識された。これらの先行技術設計の主な問題点としては、不十分な燃料流配分、MEA全体の圧力降下の高さ、そして副生物と水の除去不足などが含まれる。

【0009】

従来の流れ場設計は一般的にピン設計または蛇行設計のいずれかを含むのが一般である。ピンタイプの流れ場設計の一例が、（特許文献1）に示されている。ここでは、アノード分流板とカソード分流板がそれぞれピンと呼ばれる突起を有する。燃料はこれらの突起により形成される介在溝を通過してアノード板全体へ流れ、同様に、酸化物はカソード分流板

50

内に形成される介在溝の中を流れる。ピンタイプ設計を有する流れ場の他の例は、(特許文献2)に示されている。ピン設計の流れ場は、対応する流れ場全体に渡って反応物の圧力降下は小さくなるが、このような流れ場を流れる反応物は流れ場全体に渡って抵抗が最小の経路をたどる傾向があり、これがチャネリングと停滞領域の形成を起こす原因となる場合がある。そしてその結果、良好なセル性能が得られなくなる。

【0010】

単一蛇行設計を組み込んだ流れ場の例は(特許文献3)に記載されている。(特許文献3)の図2に示す通り、単一の連続流体流路は流れ場板の主要表面内に形成される。反応物は蛇行流路の流体入口から入り、プレートの主要部分を移動した後に流体出口から出る。このような単一の蛇行する流れ場があることで、反応物の流れは対応電極の作用面積全体を横断し、それによって停滞流の領域を排除する。しかし、作用面積全体に渡る反応物のチャネリングの結果、実質的な圧力降下と入口から出口への大きな濃度勾配を引き起こす比較的高流量の反応物の流路長が生じる。また、単一の流路で電極から水生成物をすべて集めると、電流密度が高いときには特に単一蛇行のフラッディングを助長する場合がある。

10

【0011】

(特許文献3)はまた、複数の連続した別流路を有する実施形態を提供することによってこの圧力降下への対応を試みる。複蛇行流路設計は、(特許文献4)の図4に記載されている。

【0012】

【特許文献1】

米国特許第4,769,297号明細書

【特許文献2】

米国特許第4,826,742号明細書

【特許文献3】

米国特許第4,988,583号明細書

【特許文献4】

米国特許第5,108,849号明細書

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

上記の流路設計は、特にメタノールを反応燃料として使用する燃料電池においては特に一定の欠陥を有する。かかるシステムの副生物は、大量の炭酸ガスと水である。主な欠点としては以下のようなものがある。

- 流れ場全体に及ぶ好ましくない圧力降下。蛇行設計にみるような長く狭い流路は流路内で高い圧力降下を招く。これらの場合には、反応物を加圧するため高い寄生電力が必要である。

- 流れ場内の停滞流領域。燃料電池の反応速度は、通常、停滞領域で遅くなることから、燃料電池の性能に大きく影響する。停滞領域の形成と存在は、電極の低効率利用につながる。これは、当該反応物が液体であり、副生物が動作条件下で液体反応物に限定的な溶解度を有する気体であるときに発生する。これらの副生物は電極の表面上に吸収されて、作用触媒領域を覆い、および/または流れ場内の反応物の流れを混乱/邪魔する。

40

- 電極のフラッディング。反応物が気相であり、副生物が液体である場合には、セル内の副生物の除去効率が低下して蓄積することから、フラッディングが起きやすくなる。フラッディングが発生すると、電極内の触媒に曝される反応物の量が減少するため、燃料電池の効率が低下する。

- 流れ場全体における反応物の高い濃度勾配。流路が長いことで燃料電池の入口と出口の間には大きな濃度勾配が生じ、また燃料電池全体に不均一な電流が生じる場合がある。

【0014】

これらの問題およびその他の問題は、本発明の流れ場設計により対処される。

50

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明は、斜め流路とオリフィスの組合せを含む流体流れ場を提供する。斜め流路は流れ場の全方向に反応物の燃料を配分するための経路を提供し、入口マニホールドと出口マニホールドとの間の燃料流路の圧力降下を最適化するためのオリフィスを有し、それにより流れの配分と副生物の除去を改善している。

【0016】

その結果、適切な導電性材料で作製され、

(a) ほぼ平面である面と

(b) ほぼ平面である面内に形成される流れ場であって、流れ場内にほぼ対称的な相互接続されたオリフィスと斜め流路とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山を含む流れ場と、

(c) この流れ場に燃料および酸化剤を導入するための流体供給マニホールド、ならびに、流れ場から反応副生物と余剰の燃料および酸化剤を除去するための流体排出マニホールドとを含んでなり、

燃料、酸化剤、および反応副生物が連続的に分離され、別の流路に分流され、これらの分離された流れがオリフィス内の隣接流路からの流れと混合される、プロトン交換膜燃料電池に使用する分流板が提供される。

【0017】

本発明の第二の実施形態では、

(a) アノードと

(b) カソードと、

(c) アノードとカソードの間に配置された固体高分子電解質と、

(d) 適切な導電性材料で作製され、

(i) ほぼ平面である面と、

(i i) ほぼ平面である面内に形成された流れ場であって、流れ場内のほぼ対称的な相互接続オリフィスと斜め流路とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山を含む流れ場と、

(i i i) 燃料および酸化剤を当該流れ場に導入するための流体供給マニホールド、ならびに、流れ場から反応副生物と余剰の燃料および酸化剤を除去するための流体排出マニホールドとを含んでなる、1対の対向分流板とを含んでなり、

燃料、酸化剤、および反応副生物が連続的に分離され、別の流路に分流され、これらの分離された流れが各オリフィス内の隣接流路からの流れと混合される燃料電池が提供される。

【0018】

本発明の好適な実施形態は、添付の図面を参照しながら説明され、同じ部品は同じ番号で参照される。

【発明を実施するための最良の形態】

【0019】

典型的な燃料電池反応器は単セルまたは複数セルのスタックを含んでいてもよい。いずれの場合も、プロトン導電性膜(電解質)とアノードとカソードとを含む膜電極接合体(MEA)は、2枚の非常に電導性の高い分流板の間にはさまれるのが一般である。カソードとアノードは、カーボンペーパーや布やフェルトなどの導電性材料で作製された多孔性の拡散層と、その多孔性の拡散層に結合された電気触媒とを含む。各電極の電気触媒層は電気触媒粒子とプロトン導電性粒子との混合物を含む。

【0020】

この分流板は導電性材料で作製されており、できれば非多孔性の原子力用カーボンブロックで作製されるのが好ましい。但し、分流板は、導電高分子、耐食金属、およびグラファイト/高分子のコンポジットなど、他の従来型の導電性材料を使用して作製される。図2に示すように、プレート20は、中心部分24を有するほぼ平面である面22と、この面

22の中心部分24内に形成された流れ場26とを含む。図示した実施形態では、分流板20と流れ場26は両方とも、従来型の業界標準の流れ場とプレートの代表的な形状である、全体として四角い形状を有することが示されている。但し、この分流板の新しい特徴と、本発明の流れ場が特定の幾何学的形状に限定されるものでないことが理解されるべきである。また、本発明では、図2に示すように、流れ場26をプレート20の表面22の中心に配置する必要がないことが更に理解されるであろう。

【0021】

図1A、1B、および2に示すように、本発明は、斜め流路とオリフィスの組合せまたはネットワークを含む流れ場設計を伴う。図1Aと1Bでは、流れ場26の一部が示されているのに対して、図2ではプレート20全体と流れ場26を示している。

10

【0022】

図1Aでは、流れ場26は八ニカム設計を形成する複数の千鳥状の六角形の山28を含む。この八角形の山28は、流れ場26内の一連の、または1つのネットワークを形成する斜め流路30を画定している。六角形の山28はまた、斜め流路30と流体連絡した複数のオリフィス32も画定する。図1Aの矢印は、流れ場26内の燃料、酸化剤、および副生物の流れを示す。ここに示した例では、材料の流れは一般的に下から上の方向である。

【0023】

矢印34は、オリフィス32内を流れる材料の一部を示している。この材料は次に、この材料が山28のひとつに遭遇すると、矢印36に示すように、大体において2つの等しい流れに分離される。そのため、図1Aの設計では、材料の流れは、当該材料が山28に遭遇すると、2つの大体において等しい流れに連続的に分けられる。

20

【0024】

さらに、当該材料が流路30の中を流れる場合、オリフィス32に入り、そこでその材料は隣接流路30を流れる材料と混合される。つまり、図1Aの八ニカム設計では、当該材料(燃料、酸化剤、および副生物)は、山28に遭遇すると、連続的に分離され2つの流路30に分流される。次に、それらの分離された流れは、当該材料がオリフィス32に入ると、隣接流路からの流れと混合される。

【0025】

図1Bに示す実施形態では、流れ場26は相互接続された斜め流路38とオリフィス40とのネットワークを画定する複数の千鳥状の山36を含む。図1Bの例の材料の流れも、一般的には下から上への方向である。矢印42は、山に遭遇して2つのほぼ等しい流れ44に分けられた材料の流れを示す。分けられた流れは、各々の流路38の中を流れて、オリフィス40のところで出会い、そこで当該材料は隣接流路からの材料と混合される。したがって、この例では、材料の流れもまた、山36に遭遇した時点で連続的に分離され、2つの流路38に分流され、その後、分離された流れは、当該材料がオリフィス40に入る時点で隣接流路からの流れと混合される。

30

【0026】

図2では、ほぼ平面である面22を有し、その面22の中心部分24内に流れ場26が配置された、プレート20の全体が示されている。図1Aに示すものに類似した、八ニカム設計の流れ場パターンが図2に示されている。このプレートは流体入口流路52の起点となる流体供給マニホールドを更に含む。反応物(燃料と酸化剤)はマニホールド50に入り、この反応物の流れは分離され、複数の入口流路52へ振り向けられる。入口流路52から、反応物は次に、斜め流路54と、複数の八角形の山58により画定されるオリフィス56とのネットワークに入る。

40

【0027】

これらの反応物は、流れ場26に入ると、反応および副生物の生成を開始する。燃料、酸化剤、および副生物の流れは、流れ場26全体において一般的に下から上の方向へ継続する。流れ場26の出口には、余剰となった燃料、酸化剤、および副生物を除去するための流体排出マニホールド62と流体連絡した複数の出口流路60が設けられる。

【0028】

50

これらの材料は、入口（下）から出口（上）へと流れ場 26 の中を移動し、山に遭遇すると、連続的に分離されて 2 つの流路へと分流され、その後、分離された流れは、材料がオリフィス 56 に入ると隣接流路 54 からの流れと混合される。この連続的な分離と再混合は、流れ場 26 の表面全体にほぼ均等に反応物を配分し、またそこから副生物を除去する上で効果的である。

【0029】

つまり、本発明の流れ場設計においては、斜め流路は、流れ場内の全方向に燃料反応物、酸化剤、そして副生物を配分するための経路と、入口マニホールドと出口マニホールドとの間の流体流路内における圧力降下を最適化して流れ場と副生物の除去を改善するためのオリフィスとを提供する。

10

【0030】

斜め流路はまた、反応物を電極の触媒表面上に均一に配分するための経路を提供する。これらの流路の平均経路長はほぼ等しいため、流れ場の各部分は同じ流れ条件と圧力降下とに曝される。各オリフィスは、各反応物の混合と副生物の除去を改善するためのプッシュプルメカニズムをつくるベンチュリ効果により区別される。

【0031】

斜め流路とオリフィスは複数の千鳥状の山によって流れ場内に定義される。千鳥状の山は六角形の形状であるのが好ましい（図 1 A および 2 とを参照）。但し、菱形などの他の形状（図 1 B を参照）も考えられる。

【0032】

更に、流れ場設計は、燃料電池動作時の流れ場に燃料と酸化剤を供給する上で効果を発揮する複数の供給マニホールドおよび流路と、流れ場から排出される余剰の燃料、酸化剤、そして副生物を受けるのに効果的な複数の排出マニホールドと流路とを含む。

20

【0033】

図 3 および 4 は、本発明の典型的な流れ場内の理論上（経験上）の圧力降下と圧力勾配を示す。いずれの場合においても、二相流が想定されている。つまり、燃料としては液体メタノール、そして副生物としては二酸化炭素の二相流が想定された。

【0034】

結果として、本発明の流れ場設計は、燃料電池の動作中、液体燃料または気体酸化剤を搬送するのに有効であることが判明した。本発明は、

30

- ・電池内部の最適な圧力降下と（つまり、本発明は燃料電池の圧力降下と性能との最適なバランスを提供する）
 - ・燃料電池内の均一な圧力降下と、
 - ・電池内の最小停滞領域と、
 - ・圧力降下を最小化する、プレート全体における燃料配分の改善と、
 - ・副生物除去の改善と、
 - ・燃料電池性能の改善、つまり先行技術システムと比較してより良好なシステム性能と、
- を提供する。

【0035】

本発明は、複数の千鳥状の山によって画定される相互接続された流路とオリフィスとのネットワークを含む新しい流れ場設計を提供する。各流路は線形かつ互いに斜めに配置され、オリフィスは波形となるよう配置されるのが一般的である。これらの流路は、横／縦の流路による流れの連絡により互いに相互接続される。

40

【0036】

流れ場設計は、プッシュプル方式により流体の流れを常に維持し、材料の流れを混乱させる可能性のある気泡の形成を阻止するために圧力降下を低下させる複数のオリフィスと流路の形成に基礎を置いている。これらの流路は、燃料と酸化剤の均一な分配を確保し、流れ場における停滞領域の形成の可能性を低減するために斜め構成に配置される。上記要件のほとんどを満足させる好適な設計は、図 1 に示す菱形設計と八二カム設計などを含む。使用可能な他の設計としては、各オリフィスと斜め流路を組み合わせた八角形その他の多

50

角形構造を含む。

【0037】

本発明をその好適な実施形態に関して図示および説明してきたが、当業者であれば、添付の特許請求の範囲に定義される本発明の内容と範囲から逸脱することなく、他の変更、修正、追加、および省略が可能であることを理解するであろう。

【図面の簡単な説明】

【0038】

【図1】本発明の流れ場設計の2つの例を示す。

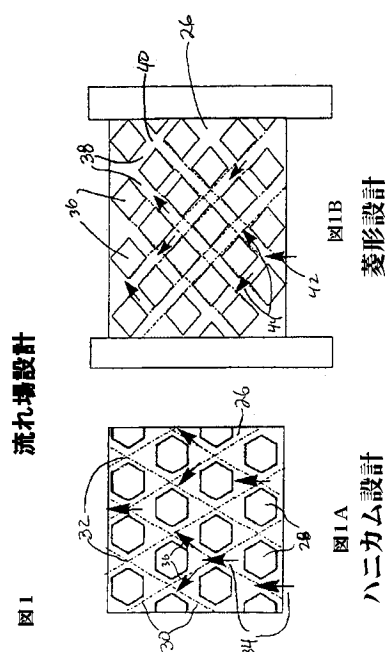
【図2】本発明の典型的な流れ場、つまりハニカム設計を示す。

【図3】図2の流れ場における反応物（液体メタノールと炭酸ガス）の圧力降下を示す。

10

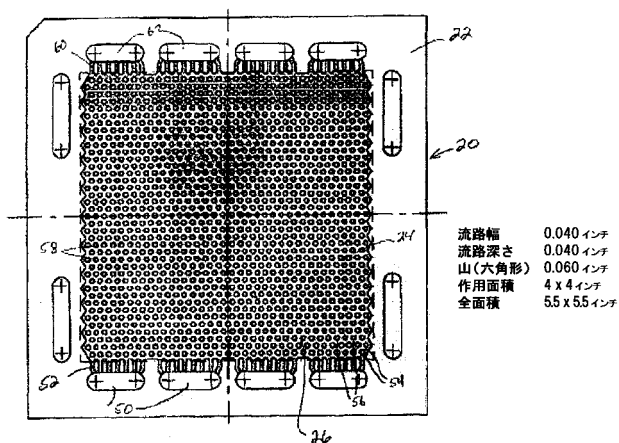
【図4】図2の流れ場の2段階圧力勾配（液体メタノールと炭酸ガス）を示す。

【図1】



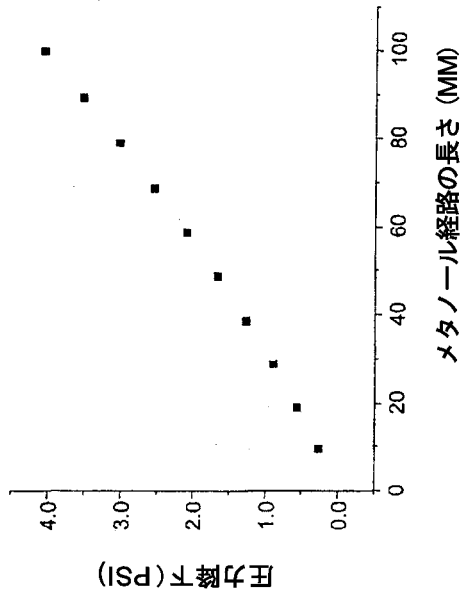
【図2】

図2 ハニカム流れ場設計



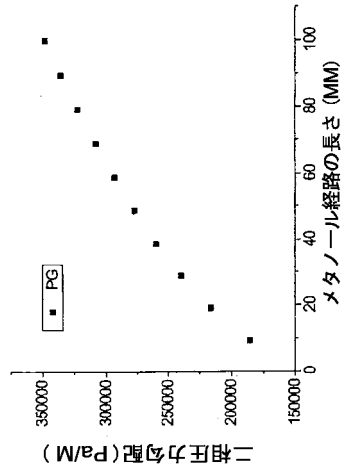
【 図 3 】

図 3 反応物(液体メタノールと炭酸ガス)の圧力降下



【 図 4 】

図 4 二相圧力勾配(液体メタノールと炭酸ガス)



【国際公開パンフレット】

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(19) World Intellectual Property Organization
International Bureau



(43) International Publication Date
6 September 2002 (06.09.2002)

PCT

(10) International Publication Number
WO 02/069426 A2

(51) International Patent Classification: H01M 8/02

(CA), CAI, Yuqi [CA/CA]: 710-84 Runnymede Road, Kingston, Ontario K7M2A2 (CA).

(21) International Application Number: PCT/US02/07823

(74) Agent: BOWEN, Alanson, G., Jr.; U.I. Dupont de Nemours and Company, Legal Patent Records Center, 4417 Lancaster Pike, Wilmington, DE 19805 (US).

(22) International Filing Date: 27 February 2002 (27.02.2002)

(25) Filing Language: English

(26) Publication Language: English

(30) Priority Data:
60/271,638 27 February 2001 (27.02.2001) US

(71) Applicant (for all designated States except US): E.I. DUPONT DE NEMOURS AND COMPANY [US/US]; 1007 Market Street, Wilmington, DE 19898 (US).

(72) Inventors and

(75) Inventors/Applicants (for US only): ABDOU, Mohamed [CA/CA]; 727 Woodside Drive, Kingston, Ontario K7P2R4 (CA). ANDRIN, Peter [CA/CA]; 34 Sarah Street, Napanee, Ontario K7R3X4 (CA). BISARIA, Mukesh, K. [CA/CA]; 558 Davis Drive, Kingston, Ontario K7M7Y4

(81) Designated States (national): AE, AG, AI, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GI, GM, GR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

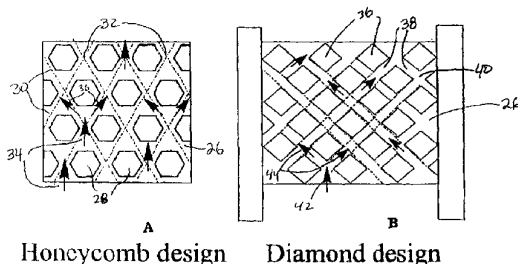
(84) Designated States (regional): ARIPO patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SI, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), Eurasian patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), European patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SI, TR), OAPI patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[Continued on next page]

WO 02/069426 A2

(54) Title: FLUID FLOW FIELDS FOR ELECTROCHEMICAL DEVICES

Flow-Field designs



(57) Abstract: Disclosed is a novel fluid flow field plate for use in a solid polymer electrolyte fuel cell. The flow field plate is made of a suitable electrically conducting material and comprises a substantially planar surface, a flow field formed in said substantially planar surface, said flow field comprising a plurality of staggered lands defining a network of substantially symmetric interconnected orifices and diagonal channels in the flow field and a fluid supply manifold through which fuel and an oxidant are introduced to the flow field and a fluid exhaust manifold through which reaction by-products and excess fuel and oxidant are removed from the flow field. Streams of the fuel, oxidant and reaction by-products are continuously separated and diverted into separate channels, and the separated streams are then mixed with streams from adjacent channels in the orifices.

WO 02/069426 A2 

Published:

— without international search report and to be republished upon receipt of that report

For two-letter codes and other abbreviations, refer to the "Guidance Notes on Codes and Abbreviations" appearing at the beginning of each regular issue of the PCT Gazette.

WO 02/069426

PCT/US02/07823

TITLE

FLUID FLOW-FIELDS FOR ELECTROCHEMICAL DEVICES

FIELD OF THE INVENTION

This invention relates to new electrochemical fuel cells, and in particular
5 to the design of fluid flow fields for the electrically conductive plates.

TECHNICAL BACKGROUND OF THE INVENTION

A fuel cell is a galvanic cell that generates electrical energy by converting
chemical energy, derived from a fuel supplied to the cell, directly into electrical
energy by an electrochemical process in which the fuel is oxidized in the cell. A
10 typical fuel cell includes an anode, a cathode, electrocatalysts and an electrolyte
housed in a casing. The fuel material and oxidant are continuously and
independently supplied to the anodes and cathodes, respectively, where the fuel
and oxidant react chemically to generate a useable electric current. The reaction
by-products are withdrawn from the cell.

15 A great advantage of a fuel cell is that it converts chemical energy directly
to electrical energy without the necessity of undergoing any intermediate steps,
for example, combustion of a hydrocarbon or carbonaceous fuel as takes place in
a thermal power station. A fuel cell reactor may comprise a single-cell, or a
multi-cell stack. In either case, the membrane/electrode assembly (MEA),
20 comprising the proton-conducting membrane (the electrolyte) and the anode and
cathode, is typically sandwiched between two highly (electrically) conductive
flow field plates that may serve multiple functions. First, these plates may
function as current collectors providing electrical continuity between the fuel cell
voltage terminals and electrodes. Additionally, the flow field plates provide
25 mechanical support for the MEA and distribute the reactants and water across the
active area of the MEA electrodes, which is accomplished by a flow field
imprinted into the side of each plate in direct contact with the electrodes of the
MEA. It is well known that the performance of a fuel cell is highly dependent on
the efficient transport of reactants to the electrodes, on the uniform humidification
30 of the MEA, and on the appropriate water management of the cell, i.e., the supply
and removal of water produced during operation of the cell. Since flow field
design controls the reactant concentration gradient, flow rate, pressure drop and
water distributions, the flow field design affects the performance of fuel cells.

Tie rods and end plates hold the fuel cell assembly together. Feed
35 manifolds are respectively provided to feed the fuel (such as hydrogen, reformed
methanol or natural gas) to the anode and the oxidant (air or oxygen) to the
cathode via the fluid flow field plates. Exhaust manifolds are provided to exhaust

WO 02/069426

PCT/US02/07823

excess fuel and oxidant gases and water and other by-products formed at the cathode.

Multi-cell structures comprise two or more such fuel cell assemblies connected together in series or in parallel to increase the overall power output of the fuel cell as required. In such arrangements, the cells are typically connected in series, wherein one side of a given plate is the anode plate for one cell, and the other side of the plate is the cathode plate for the adjacent cell and so on.

The flow field is imprinted into the side of each flow field plate in direct contact with the electrodes of the MEA. The flow field provides distribution/flow channels to distribute the reactants across the active area of the MEA electrodes and remove by-product and water.

The performance of the fuel cell is highly dependent on the efficient transport of reactants to the electrodes, on the removal of by-products and water away from the electrodes, and on the appropriate fluid management of the cell. Flow field design affects the performance of an electrochemical fuel cell because flow field design controls the reactant concentration gradient, distribution, flow rate, pressure drop and water/by-product removal.

Recently, several problems have been recognized in the art with respect to flow field design and the reactant flow channel configurations, especially in fuel cells that use liquid fuels such as methanol as reactants. Key problems with these prior art designs include inadequate fuel flow distribution, high pressure-drops across the MEA and poor removal of by-products and water.

Conventional flow field designs typically comprise either pin or serpentine designs. An example of a flow field design of the pin-type is illustrated in U.S. Patent No. 4,769,297 in which an anode flow field plate and a cathode flow field plate have each projections, which may be referred to as pins. The fuel flows across the anode plate through the intervening grooves formed by the projections, with the oxidant similarly flowing through intervening grooves formed in the cathode flow field plate. Other examples of flow fields having a pin-type design are illustrated in U.S. Patent No. 4,826,742. Pin-design flow fields result in low reactant pressure drop across the corresponding flow field, however, reactants flowing through such flow fields tend to follow the path of least resistance across the flow field that may result in channeling and the formation of stagnant areas. This in turn results in poor fuel cell performance.

An example of a flow field incorporating a single serpentine design is illustrated in U.S. Patent No. 4,988,583. As shown in Fig. 2 of U.S. Patent No. 4,988,583, a single continuous fluid flow channel is formed in a major surface

WO 02/069426

PCT/US02/07823

of the flow field plate. A reactant enters through the fluid inlet of the serpentine flow channel and exits through the fluid outlet after traveling over a major part of the plate. Such a single serpentine flow field forces the reactant flow to traverse the entire active area of the corresponding electrode, thereby eliminating areas of stagnant flow. However, this channeling of reactant across the active area results in a relatively high reactant flow path length that creates a substantial pressure drop and significant concentration gradients from inlet to outlet. Additionally, the use of a single channel to collect the entire liquid water product from the electrode may promote flooding of the single serpentine, especially at high current densities.

U.S. Patent No. 4,988,583 also tries to address this pressure drop problem by providing an embodiment in which there are several continuous separate flow channels. The multiple serpentine flow field design is illustrated in Fig. 4 of U.S. Patent No. 5,108,849.

The flow field designs described have certain drawbacks, especially in fuel cells using methanol as the reactant fuel. In such systems, the by-products are large quantities of carbon dioxide gas and water. The main drawbacks include:

- Unfavorable pressure drop across the flow field. Long, narrow flow paths, as found in the serpentine designs, lead to high pressure drops inside the flow channels. In these cases, high parasitic power is required to pressurize the reactants.
- Stagnant areas within the flow field. The reaction rate of the fuel cell is normally slower in stagnant areas, hence significantly affecting the performance of the fuel cell. The formation and presence of stagnant areas leads to ineffective utilization of the electrode catalyst. This occurs when the reactants are in the liquid form and the by-products are gases with limited solubility in the liquid reactants under operating conditions. The by-products form gas bubbles that may adsorb on the electrode surface and cover the active catalyst area and/or upset/hinder the flow of reactants in the flow field.
- Flooding of the electrode. In cases where the reactants are in the gas phase while the by-products are liquid, poor removal and accumulation of the by-products inside the cell will promote flooding. Flooding reduces the efficiency of the fuel cell since less reactant is exposed to the catalyst in the electrode.
- High concentration gradients of reactants across the flow field. Long flow paths may cause significant concentration gradients from the inlet to

WO 02/069426

PCT/US02/07823

the outlet of the fuel cell, and lead to non-uniform current distribution through the fuel cell.

These problems and others are addressed by the flow field designs of the present invention.

5

SUMMARY OF THE INVENTION

The present invention provides fluid flow field designs comprising combinations of diagonal channels and orifices. The diagonal channels provide pathways to distribute the reactant fuel in all directions a flow field and has orifices to optimize the pressure drop in the fuel flow channels between the inlet and outlet manifolds, thereby improving flow distribution and by-product removal.

10

Accordingly, there is provided a flow field plate for use in a proton exchange membrane fuel cell, said flow field plate being made of a suitable electrically conducting material and comprising:

15

- (a) a substantially planar surface;
- (b) a flow field formed in the substantially planar surface, the flow field comprising a plurality of staggered lands defining a network of substantially symmetric interconnected orifices and diagonal channels in the flow field;
- (c) a fluid supply manifold through which fuel and an oxidant are introduced to the flow field and a fluid exhaust manifold through which reaction by-products and excess fuel and oxidant are removed from the flow field;

20

whereby streams of the fuel, oxidant and reaction by-products are continually separated and diverted into separate channels, and the separated streams are then mixed with streams from adjacent channels in the orifices.

25

In a second embodiment of the present invention, there is provided a fuel cell assembly comprising:

30

- (a) an anode;
- (b) a cathode;
- (c) a solid polymer electrolyte disposed between the anode and cathode; and
- (d) a pair of opposing flow field plates made of a suitable electrically conducting material and comprising:

35

- (i) a substantially planar surface;
- (ii) a flow field formed in the substantially planar surface, the flow field comprising a plurality of staggered lands defining a

WO 02/069426

PCT/US02/07823

network of substantially symmetric interconnected orifices and diagonal channels in the flow field;

5 (iii) a fluid supply manifold through which fuel and an oxidant are introduced to the flow field and a fluid exhaust manifold through which reaction by-products and excess fuel and oxidant are removed from the flow field;

whereby streams of the fuel, oxidant and reaction by-products are continually separated and diverted into separate channels, and the separated streams are then mixed with streams from adjacent channels in the orifices.

10 BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

The preferred embodiments of the present invention will be described with reference to the accompanying drawings in which like numerals refer to the same parts in the several views and in which:

15 Figure 1 illustrates two examples of the flow field designs of the present invention;

Figure 2 illustrates a typical flow field of the present invention, namely the honeycomb design;

Figure 3 shows the pressure drop of reactant (liquid methanol and CO₂ gas) for the flow field of Figure 2; and

20 Figure 4 illustrates two-phase pressure gradient (liquid methanol and CO₂ gas) for the flow field of Figure 2.

DETAILED DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENTS

A typical fuel cell reactor may comprise a single-cell, or a multi-cell stack. In either case, the membrane/electrode assembly (MEA) comprising the proton-conducting membrane (the electrolyte) and the anode and cathode, is typically sandwiched between two highly (electrically) conductive flow field plates. The cathode and the anode typically comprise a porous backing made of an electrically conductive material, such as carbon paper, cloth or felt, and an electrocatalyst layer bonded to the porous backing. The electrocatalyst layers of each electrode

30 comprise a mix of electrocatalyst particles and proton-conducting particles.

The flow field plate is made of an electrically conductive material, and is preferably made from non-porous nuclear grade carbon blocks. However, other conventional electrically conductive materials such as electrically-conductive polymers, corrosion resistant metals, and graphite/polymer composites are used to make the flow field plates. As seen in Figure 2, the plate 20 includes a

35 substantially planar surface 22, having a central portion 24, and a flow field 26 formed in the central portion 24 of the surface 22. In the illustrated embodiments,

WO 02/069426

PCT/US02/07823

both the flow field plate 20 and the flow field 26 are shown to have a generally square shape, which is typical of the shape of conventional, industry-standard flow fields and plates. However, it should be understood that the novel features of the flow field plate and included flow field of the present invention are not limited to a particular geometric shape. It should be further understood that the flow field 26 does not have to be centrally located in surface 22 of the plate 20, as shown in Figure 2, for the present invention.

As illustrated in Figures 1A, 1B and 2, the present invention involves flow field designs comprising combinations or networks of diagonal channels and orifices. In Figures 1A and 1B, a portion of a flow field 26 is illustrated, whereas Figure 2 illustrates a complete plate 20, and flow field 26.

In Figure 1A, the flow field 26 comprises a plurality of staggered octagonal shaped lands 28 forming a honeycomb design. The octagonal lands 28 define a series or network of diagonal channels 30 in the flow field 26. The octagonal lands 28 also define a plurality of orifices 32 in fluid connection with the diagonal channels 30. The arrows in Figure 1A illustrate the flow of fuel, oxidant and by-products in the flow field 26. In this illustrated example, the flow of material is generally from the bottom towards up.

Arrows 34 show a portion of the material flowing in an orifice 32. The material is then separated into approximately two equal streams, as shown by arrows 36, when the material encounters one of the lands 28. Hence, in the design of Figure 1A, the flow of material is continually divided into two approximately equal streams as the material encounters a land 28.

Moreover, it will also be noted that as the material flows through a channel 30, it enters an orifice 32, where that material is mixed with material flowing in an adjacent channel 30. In other words, with the honeycomb design of Figure 1A, the material (fuel, oxidant and by-product), is continually separated and diverted into two channels 30 when it encounters a land 28, and then the separated streams are mixed with streams from adjacent channels when the material enters an orifice 32.

In the embodiment shown in Figure 1B, the flow field 26 comprises a plurality of staggered diamond-shaped lands 36 that define a network on interconnected diagonal channels 38 and orifices 40. In the flow of material in the example of Figure 1B is also generally from the bottom towards the top. Arrow 42 shows a stream of material encountering a land and being divided into two approximately equal streams 44. The divided streams travel through their respective channels 38 and meet at an orifice 40 where the material is mixed with

WO 02/069426

PCT/US02/07823

the material from an adjacent channel. Therefore, in this example, the flow of material is also continually separated and diverted into two channels 38 when it encounters a land 36, and then the separated streams are mixed with streams from adjacent channels when the material enters an orifice 40.

5 In Figure 2, a complete plate 20 is illustrated, having substantially planar surface 22 on which a flow field 26 is located in a central portion 24 of the surface 22. A honeycomb design flow field pattern, similar to that shown in Figure 1A, is shown in Figure 2. The plate further comprises a fluid supply manifold from which extend fluid inlet channels 52. The reactants (fuel and oxidant) enter the manifold 50 and the flow of reactants is separated and directed to the plurality of inlet channels 52. From the inlet channels 52, the reactants then enter the network of diagonal channels 54 and orifices 56 defined by the plurality of staggered octagonal lands 58.

15 As the reactants enter the flow field 26, they begin reacting and generating by-products. The flow of fuel, oxidant and by-products continues across the flow field 26 generally from the bottom towards the top. At the exit of the flow field 26, there are a plurality of outlet channels 60 in fluid connection with a fluid exhaust manifold 62 through which excess fuel, oxidant and by-products are removed.

20 The materials, as they move through the flow field 26 from inlet (bottom) to outlet (top), are continuously separated and diverted into two channels 54 when it encounters a land, and then the separated streams are mixed with streams from adjacent channels 54 when the material enters an orifice 56. This continuous separation and remixing is effective in distributing the reactants generally equally over the entire surface of the flow field 26, while also removing by-products therefrom.

30 In the flow field design of the present invention, the diagonal channels, therefore, provide pathways to distribute the fuel reactants, oxidant and by-products in all directions within the flow field and the orifices to optimize the pressure drop in the fluid flow channels between the inlet and outlet manifolds thereby improving flow distribution and by-product removal.

35 The diagonal channels also provide pathways for distributing the reactants uniformly on the catalytic surface of the electrode. The average path lengths of the channels are substantially equal, thereby exposing each portion of the flow field to the same flow conditions and pressure drop. The orifices are distinguished by the Venturi effect that creates a push-pull mechanism to improve mixing of the reactants and removal of by-products.

WO 02/069426

PCT/US02/07823

The diagonal channels and orifices are defined in the flow field by a plurality of staggered "lands". Preferably, the staggered lands are octagonal in shape (as shown in Figures 1A and 2), however other shapes such as diamond (as shown in Figure 1B) are contemplated.

5 In addition, the flow-field design includes a plurality of supply manifolds and flow passages effective in supplying the fuel and the oxidant to the flow-field during operation of the fuel cell and a plurality of exhaust manifolds and flow passages effective for receiving excess fuel and oxidant and by-products discharging from the flow-field.

10 Figures 3 and 4 illustrate the theoretical (empirical) pressure drop and pressure gradient in a typical flow field of the present invention. In both cases, two-phase flow was assumed, namely liquid methanol as fuel and carbon dioxide as by-product.

The flow field design of the present invention, therefore, has been found to be effective for transporting the liquid fuel or gaseous oxidant during operation of the fuel cell. The present invention provides:

- Optimum pressure drop inside cell, that is, it provides an optimum balance between pressure drop and performance of the fuel cell
- Uniform pressure drop within the fuel cell
- 20 • Minimal stagnant areas in the cell
- Enhanced fuel distribution across the plate with minimal pressure drop
- Enhanced by-product removal
- Improved fuel cell performance, that is, better system performance, as compared with prior art systems

25 The present invention provides new flow-field designs comprising a network of interconnected channels and orifices defined by a plurality of staggered lands. The channels are generally linear and arranged diagonal to one another while the orifices are arranged in a staggered fashion. The channels are interconnected to one another in flow communication via traverse/longitudinal channels.

30 The flow field design is based on the formation of multiple orifices and channels that reduce the pressure drop to keep the fluid constantly flowing via a push-pull mechanism and prevent the formation of gas bubbles that could upset the flow of material. The channels are arranged in a diagonal configuration to ensure homogeneous distribution of the fuel and oxidant and reduce the probability of formation of stagnant areas in the flow field. The preferable designs that satisfy most of the above requirements include, but are not limited to,

WO 02/069426

PCT/US02/07823

the diamond and honeycomb designs shown in Figure 1. Other designs that may be used include octagonal or other polygonal structures that combine orifices and diagonal channels.

5 Although the present invention has been shown and described with respect to its preferred embodiments, it will be understood by those skilled in the art that other changes, modifications, additions and omissions may be made without departing from the substance and the scope of the present invention as defined by the attached claims.

WO 02/069426

PCT/US02/07823

CLAIMS

What is claimed is:

1. A flow field plate for use in a proton exchange membrane fuel cell,
the flow field plate being made of a suitable electrically conducting material and
5 comprising:
- (a) a substantially planar surface;
 - (b) a flow field formed in the substantially planar surface, the flow
field comprising a plurality of staggered lands defining a network
of substantially symmetric interconnected orifices and diagonal
10 channels in the flow field;
 - (c) a fluid supply manifold through which fuel and an oxidant are
introduced to the flow field and a fluid exhaust manifold through
which reaction by-products and excess fuel and oxidant are
removed from the flow field;
- 15 whereby streams of the fuel, oxidant and reaction by-products are continually
separated and diverted into separate channels, and the separated streams are then
mixed with streams from adjacent channels in the orifices.
2. The flow field plate of Claim 1 in which the staggered lands are
hexagonal in shape.
- 20 3. The flow field plate of Claim 1 in which the staggered lands are
diagonal in shape.
4. The flow field plate of Claim 1 in which the diagonal channels are
substantially equal in size.
5. A fuel cell assembly comprising:
- (a) an anode;
 - (b) a cathode;
 - (c) a solid polymer electrolyte disposed between the anode and
cathode; and
 - (d) a pair of opposing flow field plates made of a suitable electrically
conducting material and comprising:
30 (i) a substantially planar surface;
(ii) a flow field formed in the substantially planar surface, the
flow field comprising a plurality of staggered lands defining a
network of substantially symmetric interconnected orifices
and diagonal channels in the flow field;
35 (iii) a fluid supply manifold through which fuel and an oxidant
are introduced to the flow field and a fluid exhaust manifold

WO 02/069426

PCT/US02/07823

- through which reaction by-products and excess fuel and oxidant are removed from the flow field;
- whereby streams of the fuel, oxidant and reaction by-products are continually separated and diverted into separate channels, and the separated streams are then
- 5 mixed with streams from adjacent channels in the orifices.
6. The fuel cell assembly of Claim 5 in which the staggered lands are hexagonal in shape.
7. The fuel cell assembly of Claim 5 in which the staggered lands are diagonal in shape.
- 10 8. The fuel cell assembly of Claim 5 in which the diagonal channels are substantially equal in size.

FIGURE 1
Flow-Field designs

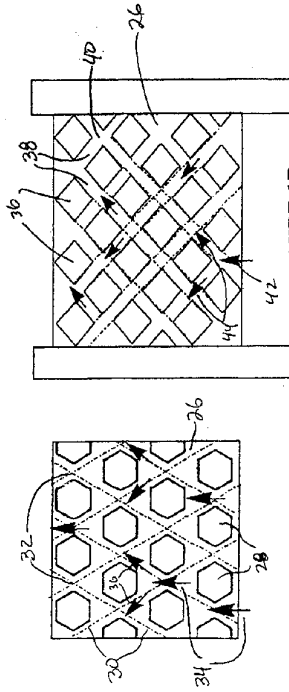


FIGURE 1A

FIGURE 1B

Honeycomb design Diamond design

FIGURE 2 Honeycomb Flow-Field design

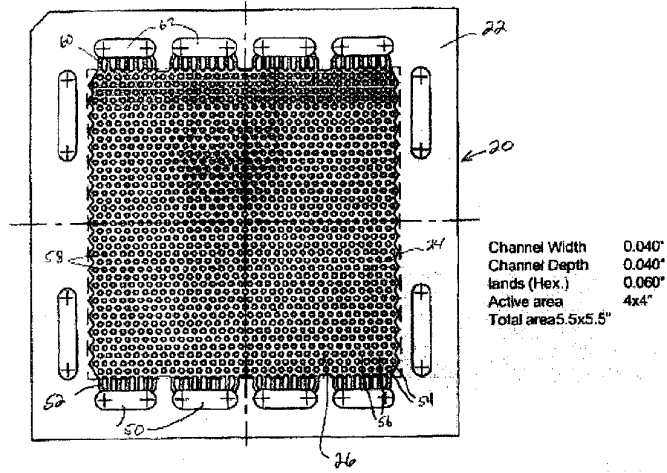


FIGURE 3 Pressure drop of reactant (liquid Methanol and CO2 gas)

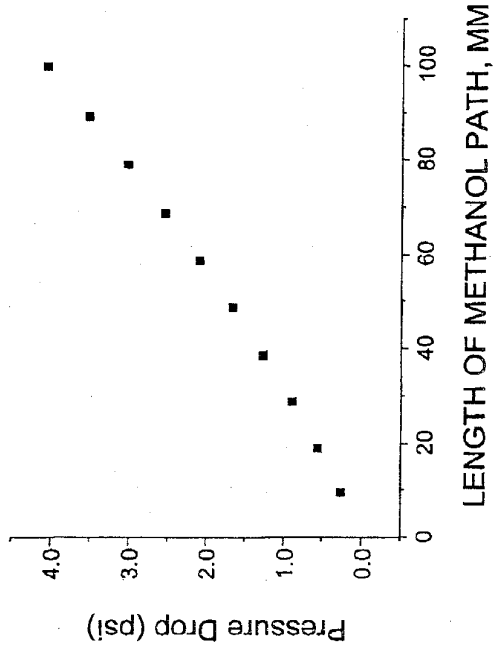
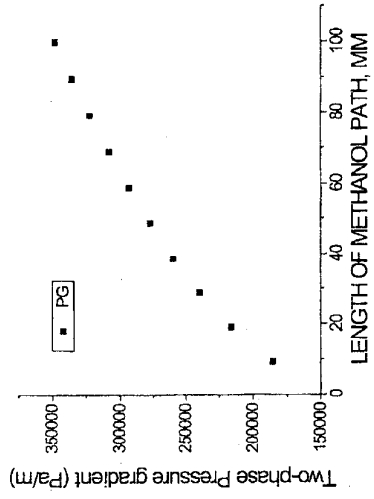


FIGURE 4 : Two-phase pressure gradient (liquid Methanol and CO₂ gas)



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No.
 PCT/US 02/07823

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 H01M/02		
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) IPC 7 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, PAJ, COMPENDEX, INSPEC, BIOSIS, EMBASE, IBM-TDB, 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	EP 0 924 785 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 23 June 1999 (1999-06-23) paragraphs '0036!', '0045!'-'0057!', '0178!'-'0191!'; figures 1-4, 33, 35, 36	1-8
X	US 5 268 241 A (MEACHAM & B KIRBY) 7 December 1993 (1993-12-07) figures 1-4, 6 column 1, line 52-54 column 4, line 46-52 column 5, line 23-36 column 6, line 31-62 column 10, line 24-45 -/-	1, 2, 4-6, 8
<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		*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
E earlier document but published on or after the international filing date		*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
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)		*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.
O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		*Z* document member of the same patent family
P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 5 November 2003		Date of mailing of the international search report 12/11/2003
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5816 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040; Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Fitzpatrick, J

Form: PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No
 PCT/US 02/07823

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 961 333 A (MITSUBISHI HEAVY IND LTD) 1 December 1999 (1999-12-01) paragraphs '0003!', '0005!', '0007!', '0009!'; figures 15,16 -----	1,4,5,8
A	US 4 808 492 A (TSUTSUMI YASUYUKI ET AL) 28 February 1989 (1989-02-28) column 7, line 37-47; figure 9 -----	
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 12, 26 December 1996 (1996-12-26) - & JP 08 222237 A (AISIN AW CO LTD; AQUEOUS RES:KK), 30 August 1996 (1996-08-30) abstract; figures 1-3 -----	1,4,5,8
E	US 2003/129475 A1 (HONDA (JP)) 10 July 2003 (2003-07-10) paragraphs '0009!', '0014!', '0063!'; figures 7,16 -----	1,4,5,8

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.
PCT/JP02/07823

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0924785	A	23-06-1999	JP 11185778 A 09-07-1999
			JP 11283639 A 15-10-1999
			JP 2000012050 A 14-01-2000
			CA 2256276 C 08-04-2003
			EP 1100140 A2 16-05-2001
			EP 0924785 A2 23-06-1999
			US 6245453 B1 12-06-2001
US 5268241	A	07-12-1993	WO 9317465 A1 02-09-1993
			US 5527634 A 18-06-1996
EP 0961333	A	01-12-1999	AU 728452 B2 11-01-2001
			AU 1052999 A 07-06-1999
			EP 0961333 A1 01-12-1999
			US 6296963 B1 02-10-2001
			WO 9926304 A1 27-05-1999
US 4808492	A	28-02-1989	JP 1923446 C 25-04-1995
			JP 6050638 B 29-06-1994
			JP 63146365 A 18-06-1988
JP 08222237	A	30-08-1996	NONE
US 2003129475	A1	10-07-2003	JP 2003203650 A 18-07-2003
			CA 2415601 A1 07-07-2003
			DE 10300068 A1 14-08-2003

フロントページの続き

(81) 指定国 AP(GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, 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, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72) 発明者 アンドリン, ピーター

カナダ・オンタリオ ケイ7アール3エツクス4・ナパニー・サラーストリート34

(72) 発明者 ビサリア, ムケシユ・ケイ

カナダ・オンタリオ ケイ7エム7ワイ4・キングストン・デイビスドライブ558

(72) 発明者 カイ, ユキ

カナダ・オンタリオ ケイ7エム2エイ2・キングストン・ラニーミードロード710-84

Fターム(参考) 5H026 AA06 CC03 CC04 CC08 CX05