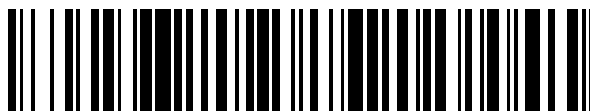


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 658 072**

51 Int. Cl.:

**H01M 2/08** (2006.01)

**H01M 8/02** (2006.01)

**H01M 8/24** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **17.01.2007 PCT/US2007/001232**

87 Fecha y número de publicación internacional: **26.07.2007 WO07084561**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **17.01.2007 E 07718267 (3)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **27.12.2017 EP 2033248**

54 Título: **Conjunto de electrodo y método para formar una pila de combustible**

30 Prioridad:

**17.01.2006 US 759380 P**

**17.01.2006 US 759452 P**

**17.01.2006 US 759456 P**

**13.10.2006 US 549331**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**08.03.2018**

73 Titular/es:

**HENKEL IP & HOLDING GMBH (100.0%)**  
**Henkelstrasse 67**  
**40589 Düsseldorf, DE**

72 Inventor/es:

**BURDZY, MATTHEW, PETER;**  
**EINSLA, BRIAN, RUSSEL;**  
**WELSH, KEVIN, JAMES;**  
**JACOBINE, ANTHONY, FRANCIS;**  
**WOODS, JOHN, G. y**  
**NAKOS, STEVEN, THOMAS**

74 Agente/Representante:

**ISERN JARA, Jorge**

ES 2 658 072 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Conjunto de electrodo y método para formar una pila de combustible

5 Referencia cruzada a las solicitudes relacionadas

La presente solicitud es una continuación en parte de la Solicitud de Patente de Estados Unidos N.º 11/549.331, presentada el 13 de octubre de 2006, y reivindica el beneficio de las Solicitudes Provisionales de Estados Unidos N.ºs 60/759.380, presentada el 17 de enero de 2006, 60/759.452, presentada el 17 de enero de 2006 y 60/759.456, presentada el 17 de enero de 2006, cuyos contenidos se incorporan en el presente documento por referencia.

Antecedentes de la invención

15 Campo de la invención

La presente invención se refiere a métodos para formar una pila de combustible y se refiere a conjuntos de electrodo de membrana que tienen una composición de sellado curada.

20 Breve descripción de la tecnología relacionada

Aunque hay varios tipos conocidos de pilas electroquímicas, un tipo común es una pila de combustible, tal como una pila de combustible de de combustible de una membrana de intercambio de protones ("PEM"), que también se conoce como pila de combustible de membrana de electrolito de polímero. La pila de combustible PEM contiene un conjunto de electrodo de membrana ("MEA") proporcionado entre dos campos de flujo o placas bipolares. Las juntas se usarán entre las placas bipolares y el MEA para sellarlos entre sí. Además, dado que una pila de combustible PEM individual proporciona generalmente un voltaje o potencia relativamente bajos, se apilan múltiples pilas de combustible PEM para aumentar la producción eléctrica total del conjunto resultante de pila de combustible. El sello también se requiere entre las pilas de combustible PEM individuales. Además, generalmente también se proporcionan placas de refrigeración para controlar la temperatura dentro de la pila de combustible. Las placas de este tipo también se sellan para evitar fugas dentro del conjunto de pila de combustible. Después de montar la pila de combustible, el apilamiento se sujeta para asegurar el conjunto.

Como se describe en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.057.054, se han propuesto cauchos de silicona líquida para el moldeo sobre conjuntos de electrodo de membrana. Las composiciones de silicona de este tipo, sin embargo, a menudo se pueden degradar antes de conseguir la vida útil de funcionamiento deseado de la pila de combustible. Además los cauchos de silicona de este tipo liberan materiales que contaminan la pila de combustible, lo que influye de forma adversa en el rendimiento de la pila de combustible. El moldeo de caucho de silicona líquida en placas separadoras también se describe en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 5.264.299. Para aumentar la vida útil de la misma, se han propuesto elastómeros más duraderos tales como fluoroelastómeros, como se describe en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.165.634, e hidrocarburos de poliolefina, como se describe en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.159.628, para unir la superficie de los componentes de la pila de combustible. Sin embargo, estas composiciones no impregnan Las estructuras bien porosas tales como la capa de difusión de gas. Las viscosidades de estas composiciones de termoplásticos y fluoroelastómeros también son demasiado elevadas para el moldeo por inyección sin dañar el sustrato o impregnar la estructura porosa.

La Publicación de Solicitud de Patente de Estados Unidos N.º US 2005/0263246 A1 describe un método para fabricar un sello de borde en un conjunto de electrodo de membrana que impregna la capa de difusión de gas que usa una película termoplástica que tiene un punto de fusión o una temperatura de transición vítrea de aproximadamente 100 °C. Un método de este tipo es problemático porque la temperatura máxima a la que se puede exponer una membrana de intercambio de protones limitará la temperatura de procesamiento de la masa fundida. El sello entonces limitará la temperatura de funcionamiento superior de la pila de combustible. Por ejemplo, la membrana de intercambio de protones solo puede estar expuesta a una temperatura máxima de 130 °C, mientras que normalmente funciona a una temperatura de al menos 90 °C. Por lo tanto, las temperaturas de funcionamiento normales y máximas de las pilas de combustible estarán limitadas por los métodos de enlace de la presente divulgación.

El documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.884.537 describe el uso de juntas de caucho con perlas de sellado para sellar componentes de pila de combustible. Las juntas están aseguradas al componente de pilas de combustible a través del uso de capas de adhesivo para evitar el movimiento o deslizamiento de las juntas. De forma análoga, las Publicaciones de Patente Internacional N.ºs WO 2004/061338 A1 y WO 2004/079839 A2 describen el uso de juntas de múltiples piezas y de una sola pieza para sellar componentes de pila de combustible. Las juntas descritas de este modo se aseguran al componente de pilas de combustible a través del uso de un adhesivo. La colocación de los adhesivos y las juntas no requiere mucho tiempo, pero es problemática porque el desalineamiento puede causar fugas y pérdida de rendimiento de la pila de combustible.

- 5 El documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.875.534 describe una composición de curado en el sitio para sellar una periferia de una placa separadora de pila de combustible. La composición de curado en el sitio incluye un polímero de poliisobutileno que tiene un radical alilo terminal en cada extremo, un organopolisiloxano, un organohidrogenopolisiloxano que tiene al menos dos átomos de hidrógeno unidos cada uno a un átomo de silicio y un catalizador de platino. El documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.451.468 describe una composición formada en el sitio para sellar un separador, un electrodo o una membrana de intercambio iónico de una pila de combustible. La composición formada en el sitio incluye un perfluoropoliéter de poliisobutileno lineal que tiene un grupo alqueno terminal en cada extremo, un agente de reticulación o endurecedor que tiene al menos dos átomos de hidrógeno unidos cada uno a un átomo de silicio, y un catalizador de hidrosililación. La densidad de reticulación y las propiedades resultantes de estas composiciones están limitadas por el uso de oligómeros de poliisobutileno lineales que tienen un grupo funcional alilo o alqueno de dos. El grupo funcional en estas composiciones se modifica variando el grupo funcional hidrosililo, que limita las propiedades de las composiciones resultantes.
- 10
- 15 La publicación de Patente Internacional N.º WO 2004/047212 A2 describe el uso de una junta de gomaespuma, un agente de sellado de silicona líquida o un fluoroplástico sólido para sellar la capa de transporte de fluidos o una capa de difusión de gas de una pila de combustible. El uso de juntas sólidas, es decir, gomaespuma y/o cinta o película fluoroplástica sólida, hace que la colocación de estos materiales y el alineamiento posterior de los componentes de pila de combustible y las juntas requieran tiempo y sean problemáticas.
- 20 La Publicación de Solicitud de Patente de Estados Unidos N.º US 2003/0054225 describe el uso de un equipo giratorio, tal como tambores o rodillos, para aplicar material de electrodo a electrodos de pila de combustible. Aunque la presente publicación describe un proceso automatizado para formar electrodos de pila de combustible, la publicación no aborda las preocupaciones de sellado de las pilas de combustible formadas.
- 25 La Solicitud de Patente Europea N.º EP 159 477 A1 describe un terpolímero de isobutileno, isopreno y paratetilestireno curable con peróxido. Se indica el uso de la composición en pilas de combustible, pero no se proporciona ninguna aplicación, procesamiento o detalles del dispositivo.
- 30 El documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.942.941 describe el uso de un adhesivo conductor para unir diferentes láminas para formar una placa separadora bipolar. En primer lugar se aplica una imprimación conductora sobre dos placas y se cura parcialmente calentando aproximadamente a 100 °C. A continuación se aplica un adhesivo entre las dos placas, y después de presionar las placas juntas, el adhesivo se cura calentando aproximadamente a 260 °C.
- 35 El documento WO 2005/074060 A1 desvela una pila electroquímica que incluye una composición de sellado curada adherida adhesivamente a la superficie de contacto de los componentes en la pila. La composición de sellado curada incluye productos de reacción de un componente de (met)acrilato polimerizable y un iniciador que contiene boro.
- 40 El documento WO 02/093672 A2 desvela un proceso de sellado para formar configuraciones de sellos múltiples y complejos para pilas de combustible. Para proporcionar un sellado - para cámaras de oxidante, combustible o refrigerante - se proporciona una red de ranuras que se extiende a través de los diversos elementos del conjunto de pila de combustible. Un material de sellado - que comprende preferentemente un polímero de polisiloxano lineal con grupos orgánicos insaturados terminales o colgantes - se conecta a continuación a un puerto de llenado externo y se inyecta en la red de ranuras; el material de sellado se cura a continuación para formar el sello.
- 45
- 50 El documento WO 2004/107476 A2 describe un método para formar una pila de combustible que comprende: (a) aplicar una composición curable, con un grosor que sea compresible cuando se cura, a un primer componente de pila de combustible que comprende al menos una placa de pila de combustible; (b) acoplar el primer componente de la pila de combustible con un segundo componente de la pila de combustible que comprende al menos una placa de pila de combustible; (c) comprimir los componentes primero y segundo de la pila de combustible con una fuerza de compresión para que se unan en contacto con el segundo componente de pila de combustible y la composición curable; y, (c) curar dicha composición para formar un enlace adhesivo entre el primer y segundo componentes de la pila de combustible.
- 55
- 60 El documento de Patente de Estados Unidos N.º 6.649.097 describe una junta para pilas de combustible construidas en capas, estando la junta formada en un cuerpo al menos sobre una superficie de una lámina, estando la junta formada por un vulcanizado de una composición que comprende un caucho líquido seleccionado entre un grupo que consiste en un caucho de perfluoro líquido, caucho de silicona líquida, un caucho de nitrilo líquido, un caucho de etileno-propileno-dieno líquido y un fluorocaucho líquido.
- 65 La Publicación de Solicitud de Patente de Estados Unidos N.º US 2002/0122970 describe un método para fabricar un separado integrado con sellado para una pila de combustible, que comprende las etapas de: formar un agujero pasante en el cuerpo separado; proporcionar un primer molde que tienen ranuras colocadas respectivamente de manera correspondiente a los sellos interno y externo colocados en un lado del cuerpo separado, una cavidad de conexión para formar un puente de sellado que conecta al menos parcialmente los sellos interno y externo entre sí

en una posición que corresponde a un agujero pasante, y al menos una abertura que se comunica con cada una de las ranuras, un segundo molde que tiene ranuras colocadas respectivamente que de manera correspondiente a los sellos interno y externo en el otro lado del cuerpo separador, y una cavidad de conexión para formar un puente de sellado que conecta al menos parcialmente los sellos interno y externo entre sí en una posición que corresponde al agujero pasante; mantener el cuerpo separador entre el primer molde y el segundo molde; e inyectar material de sellado fundido para formar los sellos en cada una de las ranuras en el primer molde suministrando el material de sellado fundido en la abertura e inyectando una porción del material de sellado fundido en cada una de las ranuras del segundo molde a través del agujero pasante.

A pesar del estado de la técnica, sigue existiendo la necesidad de una composición de sellado adecuada para su uso con componentes de pila electroquímica ya sea como una composición de junta curada en el sitio o formada en el sitio, y métodos y sistemas para aplicar el agente de sellado a los componentes de la pila de combustible.

#### Sumario de la invención

En una disposición de una sola pila, se proporcionan placas de campo de flujo fluidas en cada uno de los lados del ánodo y el cátodo. Las placas actúan como colectores de corriente, proporcionan soporte para los electrodos, proporcionan canales de acceso para el combustible y oxidante a las respectivas superficies de ánodo y cátodo, y proporcionan canales en algunos diseños de pilas de combustible para la eliminación de agua formada durante el funcionamiento de la pila. En disposiciones de múltiples pilas, los componentes se apilan para proporcionar un conjunto de pila de combustible que tiene un múltiplo de pilas de combustible individuales. Dos o más pilas de combustible se pueden conectar juntas, generalmente en serie, pero a veces en paralelo, para aumentar la producción total de potencia del conjunto. En disposiciones en serie, un lado de una placa dada sirve como placa de ánodo para una pila y el otro lado de la placa puede servir como la placa de cátodo para la y la adyacente. Una disposición de múltiples pilas de combustible conectadas en serie se denomina apilamiento de pilas de combustible, y normalmente se mantiene unida en su estado montado mediante varillas tirantes y placas terminales. Por lo general el apilamiento incluye colectores y puertos de entrada para dirigir el combustible y el agente oxidante a los canales de campo de flujo del ánodo y el cátodo.

El elemento central de la pila de combustible es el MEA que incluye dos electrodos (ánodo, cátodo) colocados entre capas de difusión de gas ("las GDL") y un electrolito de polímero conductor de iones. Cada capa de electrodo incluye catalizadores electroquímicos, tales como platino, paladio, rutenio, y/o níquel. Las GDL se colocan en la parte superior de los electrodos para facilitar el transporte de gases a y desde los materiales de electrodo y conducir la corriente eléctrica. Cuando se suministran con combustible (hidrógeno) y agente oxidante (oxígeno), se producen dos reacciones de semipila electroquímicas. El hidrógeno alimentado al ánodo se oxida para producir protones y electrones en presencia de un catalizador. Los protones resultantes se transportan en un entorno acuoso a través del electrolito al cátodo. La energía eléctrica útil es aprovechada por los electrones que se mueven a través de un circuito externo antes de permitirles alcanzar el cátodo. En el cátodo, el oxígeno gaseoso del aire se reduce y se combina con los protones y electrones. La reacción total de la pila produce un mol de agua por mol de hidrógeno y medio mol de oxígeno.

Cuando la pila de combustible se monta, el conjunto de electrodo de membrana se comprime entre placas separadoras, por lo general placas bipolares o monopolares. Las placas incorporan canales de flujo para los gases reactivos y también pueden contener conductos para transferencia de calor. Por consiguiente, la presente invención proporciona un método para sellar los gases reactivos hidratados dentro de la pila. La primera etapa de este proceso incluye moldeado por compresión de un agente de sellado líquido sobre el borde del conjunto de electrodo de membrana. De forma deseable, el agente de sellado no conductor atraviesa las capas de difusión de gas para evitar el cortocircuito eléctrico dentro de la pila de combustible. El resultado del proceso de moldeado proporciona un conjunto de electrodo de membrana con un sellado del borde, que se puede manipular fácilmente. Una vez proporcionado, el conjunto de electrodo de membrana moldeado se prevé colocar en conjunto con las placas separadoras para proporcionar una pila unitaria. Por lo general un apilamiento de pila de combustible consiste en una pluralidad de pilas unitarias.

De acuerdo con un aspecto de la presente invención, un agente de sellado de hidrocarburo curable con calor, de una parte se puede usar en un proceso de moldeado de inyección de líquido. El agente de sellado tiene una viscosidad bombeable en su estado no curado para permitir que asuma la forma del molde. El agente de sellado puede incluir un hidrocarburo terminado en alilo, un diluyente reactivo, un organohidrogenopolisiloxano, un inhibidor de un catalizador. El diluyente reactivo puede ser monofuncional, bifuncional, trifuncional, o multifuncional para producir la densidad de reticulación del sello curado. La cantidad apropiada de catalizador e inhibidor se eligió para curar el agente de sellado a temperatura elevada. Las temperaturas de curado habituales están dentro del intervalo de 50 °C a 200 °C. La temperatura de curado se elige de forma deseable para curar totalmente el agente de sellado de una manera oportuna y de modo que sea compatible con la membrana. Por ejemplo, un PEM de ácido perfluorosulfónico habitual no se puede calentar por encima de 130 °C. En el proceso de moldeado de acuerdo con la presente invención, la membrana junto con los electrodos y las GDL se puso en el molde del moldeador de inyección y se cerró con sujeciones. El agente de sellado de hidrocarburos de una parte se inyectó en el molde calentado, o troquel, a la temperatura apropiada y se curó para proporcionar un sellado del borde para el MEA.

El material de sellado de hidrocarburo usado en la presente invención proporciona varias ventajas con respecto a otros materiales de sellado y de juntas habituales, tales como siliconas, cauchos de monómero de etileno propileno dieno ("EPDM") y fluoroelastómeros. Las siliconas por lo general no son estables durante largos periodos de tiempo en las condiciones ácidas y térmicas agresivas de una pila de combustible, y no proporcionan la sensibilidad necesaria a los contaminantes orgánicos. Los cauchos de EPDM no proporcionan la impregnación necesaria a las capas de difusión de gas para evitar el cortocircuito eléctrico una vez que se ha montado en la pila de combustible. Los fluoroelastómeros generalmente son caros y necesitan ser curados a temperaturas superiores a la temperatura de degradación de la membrana de intercambio de protones.

El diseño de MEA moldeado de la presente invención ofrece varias ventajas con respecto a otras configuraciones de sellado. Mediante el moldeado por inyección del sello directamente sobre el MEA de cinco capas, se proporciona un sellado del borde para evitar que los gases reactivos se escapen del MEA. El sello curado proporciona un método para mantener las partes posteriores del MEA (PEM, electrodos, GDL) juntos. El agente de sellado impregna las GDL durante el proceso de moldeo por inyección. Esto mejora la adhesión del sello al MEA, y evita que las GDL entren en contacto, lo que podría dar como resultado un cortocircuito. El proceso de sellado de una etapa reduce el tiempo de montaje y el número de sellados en el apilamiento de pilas de combustible.

En un aspecto de la presente invención, un agente de sello moldeado de inyección líquido se puede usar para impregnar una capa de difusión de gas de un conjunto de electrodo de membrana y se puede polimerizar para crear un sellado a lo largo del borde del conjunto de electrodo de membrana de modo que el conjunto de electrodo de membrana puede funcionar a temperaturas por encima de la temperatura de aplicación del agente de sellado. La temperatura de funcionamiento normal de una pila de combustible de PEM es aproximadamente 90 °C. El límite superior de la temperatura de un MEA habituales aproximadamente 130 °C. Por consiguiente, los agentes de sellado termoplásticos conocidos se procesan de forma habitual en el intervalo de temperaturas entre 90 °C y 130 °C. El agente de sellado termoplástico no se debería fundir por debajo de 90 °C porque de otro modo fluiría cuando la pila de combustible esté funcionando. Además, la temperatura de procesamiento del agente termoplástico no puede aumentar por encima de 130 °C para conseguir unos tiempos de fabricación más rápidos porque el MEA se degradará. En un aspecto de la presente invención, es ventajoso el uso de un agente de sellado termoestable. El agente de sellado termoestable puede fluir en un molde y/o partes del MEA, es decir, las GDL, a una temperatura baja y pueden curar en el intervalo de temperaturas entre 90 °C y 130 °C para proporcionar un material reticulado que es estable no solamente en la temperatura de funcionamiento de la pila de combustible, sino también estable a temperaturas muy superiores a la temperatura de funcionamiento normal. Las composiciones útiles pueden incluir polímeros de hidrocarburo funcionales y polímeros que contienen grupos fluoro funcionales.

En otro aspecto de la presente invención, un agente de sellado de hidrocarburo curable se usa en un proceso de moldeo por inyección líquido. El agente de sellado puede incluir un hidrocarburo funcional, un diluyente reactivo, un organohidrogenopolisiloxano, un inhibidor y un catalizador. La cantidad de catalizador e inhibidor se elige de forma deseable para curar el agente de sellado a aproximadamente 130 °C o inferior en un breve período de tiempo, por ejemplo aproximadamente quince minutos o menos. En el proceso de moldeo, el agente de sellado se puede inyectar directamente sobre el conjunto de electrodo de membrana a través de un molde o troquel a la temperatura apropiada y se puede curar para proporcionar un sellado del borde con respecto al conjunto de electrodo de membrana.

En otro aspecto de la presente invención, una composición de polímero se inyecta en un molde o troquel que es transparente o transmisivo con respecto a una radiación electromagnética específica, por ejemplo, luz ultravioleta. La composición se inyecta y se expone a la radiación electromagnética de una longitud de onda dada a través del troquel y se polimeriza para formar un sellado.

En otro aspecto de la presente invención, una composición de b etapas se puede impregnar en estado fundido en el conjunto de electrodo de membrana y se puede polimerizar para proporcionar un sellado funcional.

En un aspecto de la presente invención, un método para formar una pila de combustible incluye proporcionar un conjunto de electrodo de membrana que incluye una capa de difusión de gas; proporcionar un molde que tiene una cavidad; colocar el molde de modo que la cavidad se encuentre en comunicación fluida con el conjunto de electrodo de membrana; aplicar una composición de sellado líquida curable en la cavidad; y curar la composición. La composición de agente de sellado usada en la presente invención comprende un oligómero de hidrocarburo terminado en alqueno; un monómero de alqueno polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos; un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio; y un catalizador de hidrosililación. La etapa de aplicar el agente de sellado puede incluir adicionalmente la etapa de aplicar presión al agente de sellado de modo que el agente de sellado penetra en la capa de difusión de gas y/o aplicar el agente de sellado de modo que el borde del conjunto de electrodo de membrana se cubre completamente con el agente de sellado. La etapa de curar la composición puede incluir adicionalmente curar térmicamente el agente de sellado a una temperatura de aproximadamente 130 °C o menos, de forma deseable a una temperatura de aproximadamente 100 °C o menos, de forma más deseable a una temperatura de aproximadamente 90 °C o menos, incluyendo a aproximadamente temperatura ambiente. La etapa depurada puede incluir la etapa de proporcionar radiación actínica para curar el agente de sellado a

aproximadamente temperatura ambiente. De forma deseable, la composición de sellado curable incluye un material curable con radiación actínica seleccionado entre (met)acrilato, uretano, poliéter, poliolefina, poliéster, copolímeros de los mismos y combinaciones de los mismos. De forma deseable, el oligómero de hidrocarburo terminado en alquenilo incluye un oligómero de poliisobutileno terminado en alquenilo.

En otro aspecto de la presente invención, se proporciona un MEA que tiene una composición de sellado curada colocado sobre porciones periféricas del conjunto, en el que la composición de sellado curada incluye un oligómero de dialil poliisobutileno terminado en alquenilo; un monómero de alquenilo polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos; un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio en el que solo aproximadamente un átomo de hidrógeno se une a un átomo de silicio; un catalizador de hidrosililación; y un agente de iniciación o de reticulación de peróxido.

En otro aspecto de la presente invención, se proporciona un MEA que tiene una composición de sellado curada colocado sobre porciones periféricas del conjunto, en el que la composición de sellado curada puede incluir un material curable con radiación actínica seleccionado entre (met)acrilato, uretano, poliéter, poliolefina, poliéster, copolímeros de los mismos y combinaciones de los mismos.

En otro aspecto de la presente invención, un método para formar una pila de combustible puede incluir proporcionar un componente de pila de combustible que incluye un sustrato; proporcionar un molde que tiene una cavidad; colocar el molde de modo que la cavidad se encuentre en comunicación fluida con el sustrato; aplicar una composición de sellado líquida curable en la cavidad, en el que la composición de sellado curable incluye un poliisobutileno con grupo funcional telequérico, un agente de reticulación de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio, un catalizador de platino y un fotoiniciador; y curar la composición con radiación actínica. El poliisobutileno con grupo funcional telequérico puede incluir un oligómero de dialil PIB terminado en alquenilo. El componente de pila de combustible puede ser una placa de campo de flujo de cátodo, una placa de campo de flujo de ánodo, un marco de resina, una capa de difusión de gas, una capa de catalizador de ánodo, una capa de catalizador de cátodo, un electrolito de membrana, un marco de conjunto de membrana-electrodo, y combinaciones de los mismos.

En otro aspecto de la presente invención, un método para formar una pila de combustible puede incluir proporcionar un componente de pila de combustible que incluye un sustrato; proporcionar un molde que tiene una cavidad; colocar el molde de modo que la cavidad se encuentre en comunicación fluida con el sustrato; aplicar una composición de sellado líquida curable en la cavidad, en el que la composición de sellado curable comprende un oligómero de hidrocarburo terminado en alquenilo; un monómero de alquenilo polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos; un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio; y un catalizador de hidrosililación e incluye un material curable con radiación actínica seleccionado entre (met)acrilato, uretano, poliéter, poliolefina, poliéster, copolímeros de los mismos y combinaciones de los mismos; y curar la composición con radiación actínica. La composición curable puede incluir un PIB con grupo funcional telequérico, tal, un oligómero de dialil PIB terminado en alquenilo. El componente de pila de combustible puede ser una placa de campo de flujo de cátodo, una placa de campo de flujo de ánodo, un marco de resina, una capa de difusión de gas, una capa de catalizador de ánodo, una capa de catalizador de cátodo, un electrolito de membrana, un marco de conjunto de membrana-electrodo, y combinaciones de los mismos.

La presente invención se refiere a un método para mejorar el tiempo de empleo útil en una composición que además contiene poliisobutileno curable. El método incluye la adición de TVCH en la composición. De forma deseable, de aproximadamente un 0,1 a aproximadamente un 40 por ciento en peso de TVCH, de forma más deseable de aproximadamente un 1 a aproximadamente un 20 por ciento en peso de TVCH, se añade en una base de composición total. De forma deseable, el método incluye adicionalmente la etapa de añadir un catalizador de hidrosililación a al menos aproximadamente 15 partes molares por millón (mppm) en una base de composición total.

La composición usada en la presente invención puede incluir un oligómero de poliisobutileno terminado en alquenilo; un monómero de alquenilo polifuncional; un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio; y un catalizador de hidrosililación. De forma deseable, el oligómero de poliisobutileno terminado en alquenilo es un oligómero de dialil poliisobutileno. De forma deseable, solo aproximadamente un átomo de hidrógeno se une a cualquier átomo de silicio en el endurecedor de sililo. De forma deseable, la composición tiene una proporción molar de hidruro de silicio con respecto a alquenilo de al menos aproximadamente 1,2:1 o superior. El monómeros de alquenilo polifuncional se selecciona entre 1,9-decadieno, TVCH y combinaciones de los mismos. De forma deseable, el endurecedor de sililo incluye un compuesto bicíclico que es un producto de reacción de 1,9-decadieno y 2,4,6,8-tetrametilciclotetrasiloxano.

Estos y otros objetivos, aspectos, características y ventajas de la presente invención llegarán a ser evidentes a partir de la siguiente descripción detallada de realizaciones ilustrativas de la misma, que se debe leer en conexión con las figuras adjuntas en las que los caracteres de referencia se refieren a las mismas partes o elementos a través de las

diferentes visualizaciones. Las figuras no están necesariamente a escala, haciéndose énfasis en su lugar en la ilustración de los principios de la invención.

#### Breve descripción de las figuras

- 5
- FIG. 1 es una vista en sección transversal de una pila de combustible que tiene una placa de campo de flujo de ánodo, una capa de difusión de gas, un catalizador de ánodo, una membrana de intercambio de protones, un catalizador de cátodo, una segunda capa de difusión de gas, y una placa de campo de flujo de cátodo.
- 10
- FIG. 2 es una sección transversal de una pila de combustible que tiene un agente de sellado colocado entre una placa de campo de flujo de cátodo y una placa de campo de flujo de ánodo, entre la placa de campo de flujo de ánodo y una capa de difusión de gas, entre una capa de difusión de gas y una segunda capa de campo de flujo de cátodo, y entre la segunda placa de campo de flujo de cátodo y una segunda capa de campo de flujo de ánodo.
- 15
- FIG. 3 es una sección transversal de una pila de combustible que tiene un agente de sellado colocado entre una placa de campo de flujo de cátodo y una placa de campo de flujo de ánodo, entre la placa de campo de flujo de ánodo y un catalizador de ánodo, entre un catalizador de cátodo y una segunda capa de campo de flujo de cátodo, y entre la segunda placa de campo de flujo de cátodo y una segunda capa de campo de flujo de ánodo.
- 20
- FIG. 4 es una sección transversal de una pila de combustible que tiene un agente de sellado colocado entre una placa de campo de flujo de cátodo y una placa de campo de flujo de ánodo, entre la placa de campo de flujo de ánodo y una membrana de intercambio de protones, entre la membrana de intercambio de protones y una segunda capa de campo de flujo de cátodo, y entre la segunda placa de campo de flujo de cátodo y una segunda capa de campo de flujo de ánodo.
- 25
- FIG. 5 es una sección transversal de una pila de combustible que tiene un agente de sellado colocado entre una placa de campo de flujo de cátodo y una placa de campo de flujo de ánodo, entre la placa de campo de flujo de ánodo y un conjunto de electrodo de membrana, entre el conjunto de electrodo de membrana y una segunda capa de campo de flujo de cátodo, y entre la segunda placa de campo de flujo de cátodo y una segunda capa de campo de flujo de ánodo.
- 30
- FIG. 6 es una vista en sección transversal parcial de componentes de pila de combustible adyacentes de la que tienen superficies de contacto opuestas con una composición de sellado curada en el sitio colocada sobre una de las superficies de contacto.
- 35
- FIG. 7 es una vista en sección transversal parcial de componentes de pila de combustible adyacentes de la FIG. 6 que tienen la composición de sellado curada en el sitio colocada sobre ambas superficies de contacto.
- FIG. 8 es una vista en sección transversal parcial de componentes de pila de combustible adyacentes que tienen superficies de contacto opuestas con una composición de sellado curada en el sitio en forma de una perla colocada sobre una de las superficies de contacto.
- 40
- FIG. 9 es una vista en sección transversal parcial de componentes de pila de combustible adyacentes que tienen superficies de contacto opuestas con una composición de sellado formada en el sitio que sella ambas superficies de contacto.
- FIG. 10 es una representación gráfica de efectos de viscosidad para cantidades variables de TVCH en una composición de poliisobutileno con grupo funcional alqueno de 10,000 Mn.
- FIG. 11 es una representación gráfica de efectos de viscosidad para cantidades variables de TVCH en una composición de poliisobutileno con grupo funcional alqueno de 20,000 Mn.
- 45
- FIG. 12 es una representación gráfica de efectos de la concentración del catalizador en temperaturas de exotermia máxima.
- FIG. 13 es una representación gráfica de conjunto de datos de compresión a diferentes proporciones de grupos Si-H con respecto a alqueno.
- FIG. 14 es una representación gráfica de datos de calor de reacción para composiciones con y sin TVCH.
- FIG. 15 es una representación gráfica de datos de calorimetría de barrido diferencial bimodal ("DSC") con una temperatura superior de 180 °C a una proporción estequiométrica de 1:1.
- 50
- FIG. 16 es una representación gráfica de datos de DSC bimodal con una curva asimétrica con un límite superior de temperatura inferior a 140 °C a una proporción estequiométrica de 1,5:1.
- FIG. 17 es una representación gráfica de datos de FTIR-ATR que confirman la presencia de Si-H en la red con exceso de Si-H.
- 55
- FIG. 18 es una vista en sección transversal de una pila de combustible que tiene una placa de campo de flujo de ánodo, una placa de resina, una capa de difusión de gas, un catalizador de ánodo, una membrana de intercambio de protones, un catalizador de cátodo, una segunda capa de difusión de gas, una segunda placa de resina y una placa de campo de flujo de cátodo.
- FIG. 19 es una vista en sección transversal de un conjunto de electrodo de membrana de la pila de combustible de la FIG. 18 que tiene un agente de sellado colocado en una porción periférica del conjunto.
- 60
- FIG. 20 es una vista en sección transversal de un conjunto de electrodo de membrana de la pila de combustible de la FIG. 18 que tiene un agente de sellado colocado en una porción periférica y sobre la porción del borde periférico del conjunto.
- FIG. 21 es una vista en sección transversal de una pila de combustible que tiene un agente de sellado colocado entre el conjunto de electrodo de membrana y las placas de campo de flujo de la pila de combustible de la FIG. 18 para formar un conjunto de pilas de combustible apiladas.
- 65

FIG. 22 es una vista en perspectiva de un molde que tiene un miembro del molde superior e inferior para formar una junta de acuerdo con la presente invención.

FIG. 23 es una vista en sección transversal del molde de la FIG. 22 tomada junto al eje 23-23.

5 FIG. 24 es una vista del despiece del molde de la FIG. 23 que representa el miembro del molde superior y el miembro del molde inferior.

FIG. 25 es una vista inferior del miembro del molde superior de la FIG. 24 tomada junto al eje 25-25.

FIG. 26 es una vista en elevación hacia la izquierda del miembro del molde superior de la FIG. 25 tomada junto al eje 26-26.

10 FIG. 27 es una vista en elevación hacia la derecha del miembro del molde superior de la FIG. 25 tomada junto al eje 27-27.

FIG. 28 una vista en sección transversal del miembro del molde superior de la FIG. 25 tomada junto al eje 28-28.

FIG. 29 es una vista en perspectiva de un molde alternativo de acuerdo con la presente invención.

15 FIGs. 30A y 30B son vistas en sección transversal del molde de la FIG. 29 tomadas junto al eje 30-30 que muestran un componente de pila de combustible colocado con el borde.

FIG. 31 es una vista en perspectiva del miembro del molde superior de las FIGS. 22 o 29 que representa el miembro del molde superior que tiene material transparente.

FIG. 32 es una vista en sección transversal del miembro del molde superior transparente de la FIG. 31 tomada junto al eje 32-32.

20 FIG. 33 es una vista en sección transversal de una placa separadora montada y conjunto de marco de resina de acuerdo con la presente invención.

FIG. 34 es una vista en sección transversal, en despiece de un conjunto de placa separadora y marco de resina de la FIG. 33.

FIG. 35 es una vista esquemática de un conjunto para formar componentes de pila de combustible unidos de la presente invención.

25 Descripción detallada de la invención

30 La presente invención se refiere a métodos para formar una pila de combustible y se refiere a conjuntos de electrodo de membrana que tienen una composición de sellado curada. Como se usa en el presente documento, una pila electroquímica es un dispositivo que produce electricidad a partir de fuentes químicas, que incluyen, pero no se limitan a, reacciones químicas y combustión química. Las pilas electroquímicas útiles incluyen pilas de combustible, pilas secas, pilas húmedas y similares. Una pila de combustible, que se describe con mayor detalle a continuación, usa combustión de reactivos químicos para producir electricidad. Una pila húmeda tiene un electrolito líquido. Una pila seca tiene un electrolito absorbido en un medio poroso o de otro modo limitado de ser fluido.

35 La FIG. 1 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos de una pila de combustible electroquímica, tal como la pila de combustible 10. Las pilas de combustible electro químicas convierten combustible y agente oxidante en electricidad y producto de reacción. La pila de combustible 10 consiste en una placa de campo de flujo de ánodo 12 con canales refrigerantes de cara abierta 14 en un lado y canales de flujo de ánodo 16 en el  
40 segundo lado, una capa de difusión de gas 18, un catalizador de ánodo 20, una membrana de intercambio de protones 22, un catalizador de cátodo 24, una segunda capa de difusión de gas 26, y una placa de campo de flujo de cátodo 28 con canales de refrigeración de cara abierta 30 en un lado y canales de flujo de cátodo 32 en el segundo lado, interrelacionados como se muestra en la FIG. 1. El catalizador de ánodo 20, la membrana de intercambio de protones 22 y las combinaciones de catalizador de cátodo 24, y opcionalmente las capas de difusión de gas 18 y 26,  
45 a menudo se denominan un conjunto de electrodo de membrana 36. Las capas de difusión de gas 18 y 26 por lo general están formadas por material de lámina eléctricamente conductora, poroso, tal como papel de fibra de carbono. Sin embargo, la presente invención no se limita al uso de papel de fibra de carbono se pueden usar otros materiales de forma adecuada. Sin embargo, las pilas de combustible no se limitan a una disposición de componentes representada de este tipo. Las capas de catalizador de ánodo y cátodo 20 y 24 por lo general se encuentran en forma de platino finamente dividido. El ánodo 34 y el cátodo 36 se acoplan eléctricamente (no se muestra) para proporcionar una vía para conducir electrones entre los electrodos a una carga externa (no se muestra). Las placas de campo de flujo 12 y 28 por lo general están formadas por plástico impregnado en grafito; grafito comprimido y expoliado; grafito poroso; acero inoxidable u otros compuestos de grafito. Las placas se pueden tratar para que tengan propiedades de superficie, tales como humectación inicial, o pueden estar sin tratar. Sin  
50 embargo, la presente invención no se limita al uso de materiales de este tipo para su uso como las placas de campo de flujo y otros materiales se pueden usar de forma adecuada. Además, la presente invención no se limita al componente de pilas de combustible y su disposición representada en la FIG. 1. Por ejemplo, en algunas pilas de combustible, las placas de campo de flujo están fabricadas a partir de un metal o material que contiene metal, por lo general, pero no limitado a, acero inoxidable. Las placas de campo de flujo pueden ser placas bipolares, es decir,  
55 una placa que tiene canales de flujo en superficies de placa opuestas, como se representa en la FIG. 1. Como alternativa, las placas bipolares se pueden preparar asegurando las placas mono-polares en conjunto.

60 Además, como se representa en la FIG. 18, algunos diseños de pila de combustible utilizan marcos de resina 115 entre el conjunto de electrodo de membrana 136 y las placas separadoras 112, 128 para mejorar la durabilidad del conjunto de electrodo de membrana 136 y proporcionar el espaciado correcto entre el conjunto de electrodo de



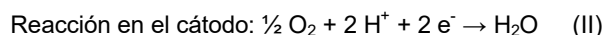
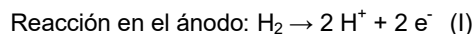
membrana 136 y las placas separadoras 112, 128 durante el montaje de la pila de combustible. En un diseño de este tipo, es necesario tener un sellado entre las placas separadoras 112, 128 y los marcos de resina 115.

5 Además, la presente invención no se limita a los componentes de pila de combustible y su disposición representada en la FIG. 1. Por ejemplo, una pila de combustible de metanol directa ("DMFC") puede consistir en los mismos componentes que se muestran en la FIG. 1 menos los canales de refrigeración. Además, la pila de combustible 10 se puede diseñar con colectores internos o externos (no se muestra).

10 Aunque la presente invención se ha descrito en términos de una pila de combustible de PEM, se debería observar que la invención se puede aplicar a cualquier tipo de pila de combustible. Los conceptos en la presente invención se pueden aplicar pilas de combustible de ácido fosfórico, pilas de combustible alcalinas, pilas de combustible de temperatura más elevada tales como pilas de combustible de óxido sólido y pilas de combustible de carbonato fundido, y otros dispositivos electroquímico.

15 En el ánodo 34, un combustible (no se muestra) que se desplaza a través de los canales de flujo de ánodo 16 penetra la capa de difusión de gas 18 y reacciona en la capa de catalizador de ánodo 20 para formar cationes de hidrógeno (protones), que migran desde la membrana de intercambio de protones 22 al cátodo 38. La membrana de intercambio de protones 22 facilita la migración de los iones de hidrógeno desde el ánodo 34 al cátodo 38. Además de conducir iones de hidrógeno, la membrana de intercambio de protones 22 aísla la corriente de combustible que  
20 contiene hidrógeno de la corriente oxidante que contiene oxígeno.

En el cátodo 38, el gas que contiene oxígeno, tal como aire u oxígeno sustancialmente puro, reacciona con los cationes o iones de hidrógeno que han cruzado la membrana de intercambio de protones 22 para formar agua líquida como el producto de reacción. Las reacciones del ánodo y el cátodo en pilas de combustible de  
25 hidrógeno/oxígeno se muestran en las siguientes ecuaciones:



30 En una disposición de una sola pila, se proporcionan placas de campo de flujo fluido en cada uno de los lados de ánodo y el cátodo. Las placas actúan como colectores de corriente, proporcionan soporte a los electrodos, proporcionan canales de acceso para el combustible y el oxidante a las respectivas superficies del ánodo y el cátodo, y proporcionan canales en algunos diseños de pila de combustible para la retirada del agua formada durante  
35 el funcionamiento de la pila. En disposiciones de múltiples pilas, los componentes se apilan para proporcionar un conjunto de pilas de combustible que tiene múltiples pilas de combustible individuales. Dos o más pilas de combustible 10 se pueden conectar en conjunto, generalmente en serie pero en ocasiones en paralelo, para aumentar la salida de potencia total del conjunto. En disposiciones en serie, un lado de una placa sirve como una placa de ánodo para una pila y el otro lado de la placa puede servir como la placa de cátodo para la pila adyacente.  
40 Una disposición de múltiples pilas de combustible conectadas en serie se denomina apilamiento de pilas de combustible (no se muestra), y normalmente se mantiene en conjunto en su estado montado mediante varillas tirantes y placas terminales. El apilamiento por lo general incluye colectores y puertos de entrada para dirigir el combustible y el agente oxidante a los canales de campo de flujo del ánodo y el cátodo.

45 La FIG. 2 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos de la pila de combustible 10 en el que algunos de los elementos adyacentes tienen una composición curada o curable 40 entre los mismos para proporcionar un conjunto de pilas 10'. Como se representa en la FIG. 2, la composición 40 sella y/o une la placa de campo del ánodo 12 a la capa de difusión de gas 18. La placa de campo del cátodo 28 también se sella y/o une a la  
50 capa de difusión de gas 26. En esta realización, el conjunto de pila de combustible 10' a menudo tiene un conjunto de electrodo de membrana 36 formado previamente anódico con el catalizador de ánodo 20 y el catalizador de cátodo 24 colocado sobre el mismo. La composición 40 colocada entre los diversos componentes del conjunto de pilas de combustible 10' puede tener la misma composición o puede tener diferentes composiciones. Además, como se representa en la FIG. 2, la composición 40 puede sellar y/o unir la placa de campo de flujo de ánodo 12 a un  
55 componente de una segunda pila de combustible, tal como una segunda placa del flujo de cátodo 28'. Además, como se representa en la FIG. 2, la composición 40 puede sellar y/o unir la placa de campo de flujo de cátodo 28 a un componente de una tercera pila de combustible, tal como una segunda placa del flujo de ánodo 12'. En una manera de este tipo, el conjunto de pila de combustible 10' está formado por múltiples pilas de combustible que tienen componentes que se unen mediante sellado y/o mediante adhesivo para proporcionar un dispositivo electroquímico de múltiples pilas.

60 La FIG. 3 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos del conjunto de pila 10" en el que algunos de los elementos adyacentes tienen una composición curada o curable 40, que pueden ser iguales o diferentes, entre los mismos. En esta realización de la presente invención, la capa de difusión de gas 18 se coloca entre las paredes terminales alargadas 13 de la placa de campo de flujo de ánodo 12, y la capa de difusión de gas  
65 26 se coloca entre las paredes terminales alargadas 27 de la placa de campo de flujo de cátodo 28. La composición

40 se usa para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de ánodo 12 al catalizador de ánodo 20 y para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de cátodo al catalizador de cátodo 24.

La FIG. 4 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos del conjunto de pila 10" en el que algunos de los elementos adyacentes tienen una composición curada o curable 40, que pueden ser iguales o diferentes, entre los mismos. En esta realización de la presente invención, la capa de difusión de gas 18 y el catalizador de ánodo 20 se colocan entre las paredes terminales alargadas 13 de la placa de campo de flujo de ánodo 12, y la capa de difusión de gas 26 y el catalizador de cátodo 24 se colocan entre las paredes terminales alargadas 27 de la placa de campo de flujo de cátodo 28. La composición 40 se usa para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de ánodo 12 a la membrana de intercambio de protones 22 y para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de cátodo a la membrana de intercambio de protones 22.

La FIG. 5 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos del conjunto de pila 10" en el que algunos de los elementos adyacentes tienen una composición curada o curable 40, que pueden ser iguales o diferentes, entre los mismos. En esta realización de la presente invención, la capa de difusión de gas 18 y el catalizador de ánodo 20 se colocan entre un marco de conjunto de electrodo de membrana 42 del conjunto de electrodo de membrana 36, y la capa de difusión de gas 26 y el catalizador de cátodo 24 se colocan entre un marco de conjunto de electrodo de membrana 42 del conjunto de electrodo de membrana 36. La composición 40 se usa para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de ánodo 12 al marco de conjunto de electrodo de membrana 42 y para sellar y/o unir la placa de campo de flujo de cátodo al marco de conjunto de electrodo de membrana 42.

La composición 40 puede ser una composición curada en el sitio o formada en el sitio actuando de ese modo como una junta curada en el sitio o formada en el sitio. Como se usa en el presente documento, la expresión "curado en el sitio" y sus variantes se refieren a una composición aplicada a la superficie de un componente y que se cura en el mismo. El sello se consigue a través de comprensión del material curado durante el montaje de un componente con otro componente. La composición por lo general se aplica en patrones precisos mediante trazado, impresión con pantalla o similares. Además, la composición se puede aplicar como una película sobre un sustrato. Las técnicas de aplicación de este tipo se pueden someter a producción a gran escala o de gran volumen. Como se usa en el presente documento, la expresión "formado en el sitio" y sus variantes se refiere a una composición que se coloca entre dos componentes montados y se cura a ambos componentes. El uso de la composición polimerizable como una junta formada en el sitio y/o curada en el sitio permite diseños de apilamiento de conjunto de pilas modulares o separados por piezas. De forma deseable, la composición es una composición compresible para facilitar el sello después del montaje de los diseños de apilamiento de conjuntos de pilas de combustible.

En las FIGs. 6-9, los componentes de pila de combustible adyacentes se muestran como la placa de campo de flujo de cátodo 28 y la placa de campo de flujo de ánodo 12', sin embargo, otros componentes de pila de combustible adyacentes se pueden usar de forma adecuada con la presente invención. Como se usa en el presente documento, la expresión "superficie de contacto" y sus variantes se refieren a una superficie de un sustrato que se puede alinear de manera proximal a otro sustrato de modo que se puede formar un sellado entre los mismos.

Como se representa en la FIG. 6, la composición 40 se puede formar como una junta de curado en el sitio. En la que la composición 40 se coloca y se cura sobre la placa de campo de flujo de ánodo 12', pero no se puede colocar de forma curable sobre la placa de campo de flujo de cátodo 28. Como se representa en la FIG. 7, cuando se monta el conjunto de pilas de combustible, la placa de campo de flujo 12' y la placa de campo de flujo de cátodo 28 se comprimen entre ellas y por lo tanto la otra composición 40 actúa como una junta curada en el sitio. La composición 40 se une de manera adhesiva y de sellado a la placa de campo de flujo 12', pero solamente el sello se une a la placa de campo de flujo de cátodo 28. Por lo tanto, el conjunto de pila de combustible se puede desmontar fácilmente en esta unión porque la composición 40 no se une de forma agresiva a la placa de campo de flujo de cátodo 28.

Como se representa en la FIG. 8, la composición 40 puede ser una composición formada en el sitio en la que la composición 40 une de manera sellada y adhesiva la placa de campo de flujo de cátodo 28 a la placa de campo de flujo 12'. Como se representa en las FIGs. 6-8, se muestra que la composición 40 presenta una tira en el plano plana. La presente invención, sin embargo, no se limita de este modo.

Como se representa en la FIG. 9, la composición 40 es una junta curada en el sitio y colocada como una perla sobre la placa de campo de flujo de ánodo 12'. La composición 40 se une de manera sellada a la placa de campo de flujo de cátodo 28 después del montaje de los componentes de pila de combustible. Sin embargo, la composición no se limita de este modo y de forma adecuada se pueden usar otras formas, tales como superficies de contacto que tienen protuberancias y/o muescas.

Además, la composición 40 se puede aplicar a la periferia o porciones de la periferia de un componente de pila de combustible. De forma deseable, la composición 40 no solamente cubre la periferia de un componente de pila de combustible, sino que también se extiende más allá del perímetro o bordes periféricos del componente de pila de combustible. Como tal, un componente de pila de combustible que tiene la composición 40 colocada y extendida sobre su periferia o una porción de su periferia se puede alinear en contacto con otro componente de la pila de

combustible para unir de forma sellada los dos componentes. En otras palabras, las superficies periféricas de los componentes de pila de combustible también pueden ser superficies de contacto a las que se pueden aplicar las composiciones de la invención para unir mediante sellado los componentes de pila de combustible.

5 La FIG. 18 representa una pila de combustible que tiene marcos de resina 115 entre el conjunto de electrodo de membrana 136 y las placas separadoras 112, 128 para mejorar la durabilidad del conjunto de electrodo de membrana 136 y proporcionar el espaciado correcto entre el conjunto de electrodo de membrana 136 y las placas separadoras 112, 128 durante el montaje de la pila de combustible. En un diseño de este tipo, es necesario tener un sellado entre las placas separadoras 112, 128 y los marcos de resina 115.

10 La FIG. 19 representa el conjunto de electrodo de membrana 136 que tiene una composición curada o curable 140 en o cerca de la porción periférica 133 del conjunto de electrodo de membrana 136. Como se describe a continuación, la composición 140 es útil para sellar y/o unir diferentes componentes de la pila de combustible entre sí.

15 Sin embargo, la presente invención no se limita a tener componentes de pila de combustible, como tal o el conjunto de electrodo de membrana 136, con la composición 140 en o cerca de la porción periférica 133 del conjunto de electrodo de membrana 136. Por ejemplo, como se representa en la FIG. 20, la composición curada o curable 140 se puede colocar en o cerca de la porción periférica 133 del conjunto de electrodo de membrana 136 y cubrir las porciones del borde periférico 135 del conjunto de electrodo de membrana 136.

20 La FIG. 21 muestra una vista en sección transversal de los elementos básicos de la fila de combustible 110 en la que algunos de los elementos adyacentes tienen una composición curada o curable 140 entre los mismos para proporcionar un conjunto de pilas 110'. Como se representa en la FIG. 21, la composición 140 sella y/o une la placa de campo de flujo de ánodo 112 a la capa de difusión de gas 118 o el conjunto de electrodo de membrana 136. La placa de campo de cátodo 128 también se sella y/o une a la capa de difusión de gas 126 o el conjunto de electrodo de membrana 136. En esta realización, el conjunto de pila de combustible 110' a menudo presenta un conjunto de electrodo de membrana formado previamente 136 anódico con el catalizador de ánodo 120 y el catalizador de cátodo 124 colocado sobre el mismo. La composición 140 colocar entre los diversos componentes del conjunto de pila de combustible 110' puede ser la misma composición o pueden ser diferentes composiciones. Además, como se representa en la FIG. 21, la composición 140 puede sellar y/o unir la placa de flujo de cátodo 128 a un componente de una segunda pila de combustible, tal como una segunda placa de campo de flujo de ánodo 112'. Además, como se representa en la FIG. 21, la composición 140 puede sellar y/o unir la segunda placa de campo de flujo de ánodo 112' a un componente de una segunda pila de combustible, tal como un segundo conjunto de electrodo de membrana 136'. En un modo de este tipo, el conjunto de pila de combustible 110' está formado por múltiples pilas de combustible que tienen componentes que se unen mediante sellado y/o mediante adhesivo para proporcionar un dispositivo electroquímico de múltiples pilas.

25 La FIG. 22 es una vista en perspectiva de un molde 48 útil para formar juntas curadas en el sitio de acuerdo con la presente invención. El molde 48 incluye un miembro del molde superior 50, un miembro del molde inferior 136', y un puerto de inyección 52, interrelacionados como se muestra. En esta realización, la composición 140 se coloca sobre el miembro del molde inferior 136' para formar una junta en el mismo o sobre el mismo. En esta realización de la presente invención, el miembro del molde inferior 136' es de forma deseable un componente de pila de combustible, por ejemplo conjunto de electrodo de membrana 136. Sin embargo, la presente invención no se limita al uso del conjunto de electrodo de membrana 36 como el componente del molde de la parte inferior, y otros componentes de pila de combustible pueden ser el componente del molde de la parte inferior. Como se representa en la FIG. 25, el puerto de inyección 52 se encuentra en comunicación fluida con la cavidad del molde 54.

30 La FIG. 23 es una vista en sección transversal del molde 48 de la FIG. 22 tomado junto al eje 23-23. Como se representa en la FIG. 23, el miembro del molde superior 50 incluye una cavidad de molde 54. Las composiciones que forman juntas líquidas se puede introducir en la cavidad del molde 54 a través del puerto de inyección 52.

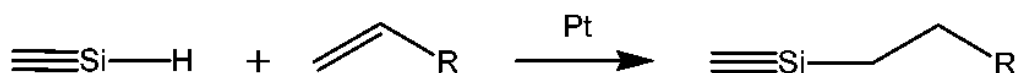
35 La FIG. 24 es una vista del despiece parcial del molde 48 de la FIG. 23. El miembro del molde 50 incluye a superficie de contacto 56, y el miembro del molde 136' incluye una superficie de contacto 58. Los miembros del molde 50 y 136' se pueden alinear entre sí, como se representa en la FIG. 23, de modo que las superficies de contacto 56 y 58 se yuxtaponen sustancialmente entre sí. Como se representa en la FIG. 24 una junta 140 se retira de la cavidad del molde 54 y se une a la superficie de contacto 58.

40 Como se representa en la FIG. 25, la cavidad del molde 54 se encuentra en forma de un diseño perimétrico cerrado. Aunque la cavidad del molde 54 se representa como un rectángulo redondeado en la FIG. 25, la presente invención no se limita de ese modo y de forma adecuada se pueden usar cavidades con otras formas. Además, aunque ser representante la forma de la sección transversal de la cavidad del molde 54 tiene una forma rectangular o cuadrada en la FIG. 24, la presente invención no está limitada de ese modo y de forma adecuada se pueden usar otras formas de sección transversal, tales como geometrías circulares, ovaladas, o geometrías de otras formas con extensiones para mejorar el sello.

- 5 Como se representa en la FIG. 25, el molde 50 puede contener un segundo puerto 60. El segundo puerto 60 se encuentra en comunicación fluida con la cavidad del molde 54. El segundo puerto 60 se puede usar para desgasificar la cavidad 54 ya que se está cargando con el material que forman juntas. A medida que el material que forma juntas se introduce en la cavidad 54 a través del puerto 52, el aire puede escapar a través del segundo puerto 60 para desgasificar la cavidad del molde 54. El tamaño del segundo puerto 60 no es limitante para la presente invención. De forma deseable, el tamaño, es decir, el alcance de la sección transversal, del segundo puerto 60 se minimiza para permitir la salida de aire, aunque lo suficientemente pequeño como para limitar el flujo de líquido del material que forman juntas a través del mismo. En otras palabras, el tamaño del segundo puerto 60 puede tener el tamaño de un agujero de alfiler en el que el aire puede fluir a través del mismo a la vez que se inhibe un flujo sustancial del material que forma juntas líquido. Además, la presente invención no se limita al uso de un solo puerto 52 o un solo puerto 60, y se pueden usar múltiples puertos para la introducción del material de junta y/o la ventilación del aire.
- 10 La FIG. 26 es una vista en sección transversal del miembro del molde 50 tomado junto al eje 26-26 de la FIG. 25. Como se representa en la FIG. 26, el puerto de inyección 52 puede ser de forma adecuada una cavidad o agujero en el miembro del molde 50. La porción del puerto de inyección 52 puede estar hilada (no se muestra) o tener una válvula (no se muestra) o un tubo o una manguera (no se muestra) a través de los que se puede suministrar el material que forma junta.
- 15 La FIG. 27 es una vista en sección transversal del miembro del molde 50 tomada en junto aleje 27-27 de la FIG. 25. Como se representa en la FIG. 27, el puerto 60 puede ser de forma adecuada una cavidad o agujero en el miembro del molde 50. La porción del puerto 60 puede tener una válvula (no se muestra) para controlar la salida de aire y/o material que forma junta.
- 20 La FIG. 28 es una vista en sección transversal del miembro del molde 50 tomado junto al eje 28-28 de la FIG. 25. Se representa que la cavidad de molde 54 se extiende en el miembro del molde 50 en su superficie de contacto 56.
- 25 La FIG. 29 es una vista en perspectiva de un molde 48" útil para formar juntas curadas en el sitio de acuerdo con la presente invención. El molde 48" incluye un miembro del molde superior 50, un miembro del molde inferior 70. Como se representa en las FIGS. 30A y 30B, los miembros del molde 50 y 70 se pueden ajustar en conjunto de una manera como se ha discutido anteriormente y se configuran de un modo tal que un componente de pila de combustible, tal como conjunto de electrodo de membrana 136 se puede colocar entre los mismos. Como se representa en la FIG. 30A, el molde 48" de la presente invención se puede usar para formar la junta 140 en las porciones periféricas de lados opuestos del componente de pila de combustible 136. Como se representa en la FIG. 30B, el molde 48" de la presente invención también se puede usar para formar la junta 140 en lados opuestos y sobre los lados periféricos del componente de pila de combustible 136
- 30 La FIG. 31 es una vista en perspectiva del miembro del molde 50, 70 que representa que el miembro del molde 50, 70 puede estar fabricado con o puede incluir un material transparente. De forma deseable, el miembro del molde 50, 70 es transparente, es decir, transmisible o sustancialmente transmisible, a la radiación actínica, por ejemplo radiación UV. Una vista en sección transversal del miembro del molde transparente 50, 70 se representa en la FIG. 32.
- 35 El método de este aspecto de la presente invención puede incluir adicionalmente la etapa de desgasificar la cavidad antes de inyectar una vez que se inyecta la composición que forma junta líquida, curable con radiación actínica. De forma deseable, la etapa de desgasificar incluye la desgasificación a través del segundo puerto 60, que se encuentra en comunicación fluida con la cavidad 54.
- 40 Con la desgasificación de la cavidad 54 y con las propiedades del fluido descritas anteriormente, la composición líquida llena completamente la cavidad 54 sin necesidad de excesivas presiones de manipulación del líquido. De forma deseable, la composición líquida llena completamente la cavidad 54 a una presión de manipulación de fluido de aproximadamente 690 kPa (100 psig) o inferior.
- 45 Después de curar o al menos curar parcialmente la composición, los miembros del molde 50, 136' o 50, 70 se pueden liberar entre sí para exponer la junta, tras lo cual la junta 140 se puede retirar de la cavidad del molde 54. De forma deseable la junta 140 se coloca y/o se fija al componente de pila de combustible, por ejemplo conjunto de electrodo de membrana 136.
- 50 Aunque se ha descrito que los miembros del molde superior 50, 70 de la presente invención tienen una cavidad de muesca o molde 54, la presente invención no se limita de este modo. Por ejemplo, el miembro del molde inferior 136', 70 y/o el componente de pila de combustible, tal como membrana de intercambio de membrana 136, puede tener una cavidad de muesca o molde para la colocación y formación del sello además o como sustitución de la cavidad del molde 54 de los miembros del molde superior.
- 55 Además, las placas de campo de flujo de la pila de combustible de la presente invención pueden ser placas bipolares, es decir, una placa que tiene canales de flujo en superficies de placa opuestas. Por ejemplo, como se
- 60
- 65

representa en las FIGs. 33-34, las placas de campo de flujo bipolares 119 se pueden reparar a partir de placas monopolares 112, 128 que tienen un canal de flujo solamente en un lado. Las placas monopolares 112 y 128 se pueden asegurar entre sí para formar placas bipolares 119. En un aspecto de la presente invención, las placas 112 y 128 también se sellan con la composición y con los métodos de la presente invención.

Debido a los requisitos exigentes de las propiedades físicas de los agentes de sellado de barrera de pila de combustible, son deseables polímeros de energía superficial baja, tales como poliisobutileno. Para realizar la reticulación, son más deseables los poliisobutilenos con grupo funcional telequérico, tal como poliisobutileno terminado en vinilo. Los poliisobutilenos con grupo funcional telequérico pueden reaccionar con un agente de reticulación de organohidrogenopolisiloxano soluble apropiado para formar un agente de sellado curado. Por lo general, antes de la presente invención, la reticulación se realizaba en presencia de un catalizador de platino, como sigue a continuación:



Aunque las formulaciones basadas en compuestos orgánicos curados por hidrosilación generalmente se curan por vía térmica usando un catalizador de platino, los jurados de este tipo normalmente requieren al menos una hora a una temperatura elevada. Las condiciones de curado de este tipo, sin embargo, limitan los procesos de fabricación continua.

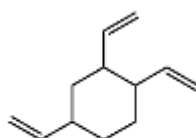
En un aspecto de la presente invención, las composiciones de sellado líquidas de la invención se pueden curar a o aproximadamente a temperatura ambiente en un breve periodo de tiempo, por ejemplo aproximadamente 5 minutos o menos. De forma más deseable, la composición líquida se cura en 1 minuto o menos, por ejemplo, se cura en 30 segundos o menos.

La composición de sellado curada usada en la presente invención comprende un oligómero de hidrocarburo terminado en alqueno; un monómero de alqueno polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos; un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio; y un catalizador de hidrosililación. El oligómero de hidrocarburo terminado en alqueno es preferentemente un oligómero de poliisobutileno terminado en alqueno, por ejemplo un oligómero de dialil poliisobutileno terminado en alqueno. De forma deseable, solo aproximadamente un átomo de hidrógeno se une a cualquier átomo de silicio en el endurecedor de sililo.

Las composiciones de la invención usadas en la presente invención tienen estructuras moleculares modificadas, dando como resultado una mejora de las propias mecánicas, densidades de reticulación y calores de reacción. Las composiciones de la presente invención se pueden representar con la expresión  $(A-A + A_f + B_f)$ , en la que "A-A" representa los grupos alqueno del oligómero de poliisobutileno terminado en alqueno, por ejemplo, un dialil poliisobutileno, "A" representa un grupo alqueno, "B" representa un grupo Si-H y "f" se refiere al número de grupos funcionales correspondientes.

Cuando tanto el alqueno como el hidruro son bifuncionales, la polimerización proporciona una estructura lineal. El número de grupos funcionales hidruro en una estructura lineal de este tipo, sin embargo, limita la funcionalidad y la densidad de reticulación totales de la red que reacciona. Al incorporar tres o más grupos alqueno sobre un monómero u oligómero individual, la densidad de reticulación aumenta y las propiedades mecánicas mejoran.

Un monómero de alqueno polifuncional que tiene tres o más grupos alqueno es TVCH, que tiene la siguiente fórmula química:



1,2,4-Trivinilciclohexano  
N.º CAS 2855-27-8

El TVCH es un monómero trifuncional de baja viscosidad (1,3 mPas). Tiene una masa molar de 162,3 gramos por mol. Sin embargo, la presente invención no se limita al uso de un monómero trifuncional, y de forma adecuada con las composiciones de la invención se pueden usar monómeros con más de tres grupos alqueno.

Un monómero de alqueno polifuncional útil que tiene dos grupos alqueno es el 1,9-decadieno (N.º CAS 1647-16-1), que tienen un peso molecular de 138,25 gramos por mol.

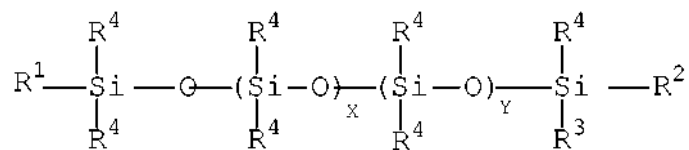
El monómero de alqueno polifuncional o una combinación de monómeros de alqueno puede estar presente en cantidades de aproximadamente un 0,01 por ciento en peso a aproximadamente un 90 por ciento en peso en una base de composición total. De forma deseable, el monómero de alqueno polifuncional o una combinación de monómeros de alqueno puede estar presente en cantidades de aproximadamente un 0,1 por ciento en peso a aproximadamente un 50 por ciento en peso en una base de composición total. De forma más deseable, el monómero de alqueno polifuncional o una combinación de monómeros de alqueno puede estar presente en cantidades de aproximadamente un 1 por ciento en peso a aproximadamente un 20 por ciento en peso en una base de composición total, incluyendo de aproximadamente un 1 por ciento en peso a aproximadamente un 10 por ciento en peso en una base de composición total.

La compatibilidad es una cuestión importante y es deseable incorporar solo los monómeros polifuncionales que son compatibles con el oligómero bifuncional de la presente invención. Los monómeros polifuncionales que se separan en dos fases no son compatibles. El TVCH fue completamente compatible con la resina de poliisobutileno de la presente invención. En porcentajes de peso de hasta aproximadamente un 20 por ciento en peso TVCH, las composiciones resultantes de la presente invención forman soluciones de una sola fase transparentes cuando se mezclan con la resina de alqueno.

Los oligómeros de poli(isobutileno) lineal terminados en dialqueno están disponibles en el mercado en Kaneka Corporation, Osaka, Japón como EP200A, EP400A y EP600A. Estos tres oligómeros tienen los mismos grupos funcionales, pero se diferencian en el peso molecular. EP200A, EP400A y EP600A tienen un peso molecular aproximado (Mn) de 5.000; 10.000 y 20.000, respectivamente. La viscosidad de los tres oligómeros también puede variar de 944,3 Pascal·s ("Pa·s"), de 1500 Pa·s a 2711 Pa·s a 25 °C, respectivamente.

Las composiciones de la presente invención también incluyen una silicona que tiene al menos dos grupos funcionales de hidruro de silicio reactivos, es decir, al menos dos grupos Si-H. Este componente funciona como un agente endurecedor o de reticulación para el oligómero de poliisobutileno terminado en alqueno. En presencia del catalizador de hidrosilación, los unidos átomos de hidrógeno con silicio en el componente de reticulación experimentan una reacción de adición, que se denomina hidrosilación, con los grupos insaturados en el oligómero reactivo. Dado que el oligómero reactivo contiene al menos dos grupos insaturados, el componente de reticulación de silicona contiene al menos dos átomos de hidrógeno unidos con silicio para conseguir la estructura reticulada final en el producto curado. Los grupos orgánicos unidos con silicio presentes en el componente de reticulación de silicona se pueden seleccionar entre el mismo grupo de radicales hidrocarburos sustituidos y no sustituidos como se ha presentado anteriormente para el componente de silicona reactivo, con la excepción de que los grupos orgánicos en el agente de reticulación de silicona podrían estar sustancialmente libres de insaturación etilénica o acetilénica. El agente de reticulación de silicona puede tener una estructura molecular que puede ser de cadena lineal, de cadena ramificada, cíclica o formando redes.

El componente de reticulación de silicona se puede seleccionar entre una gran diversidad de compuestos, que de forma deseable conforman la fórmula que sigue a continuación:

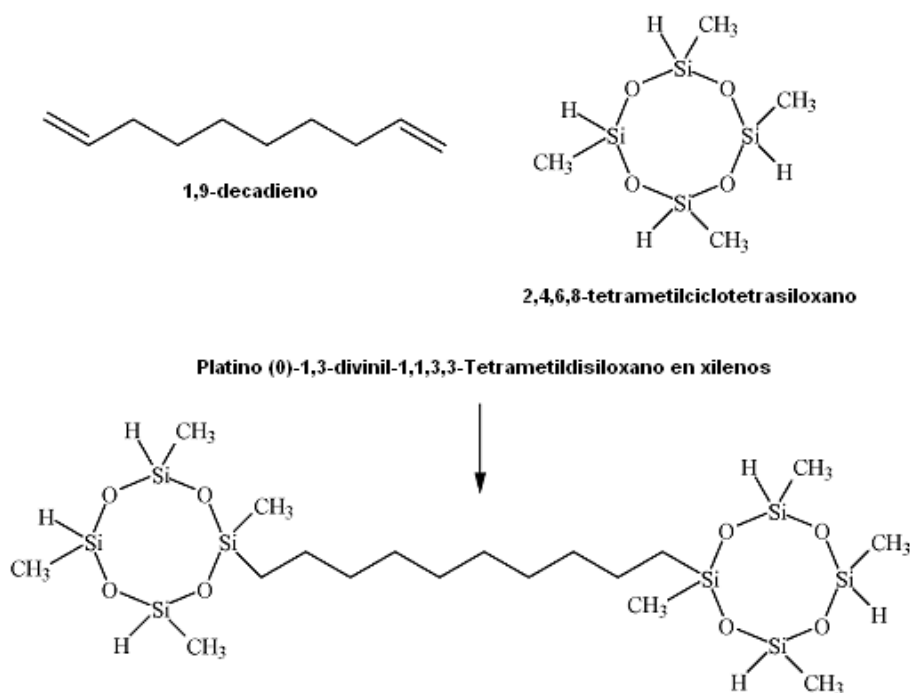


en la que al menos dos de R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> son H; de otro modo R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> pueden ser los mismos o diferentes y pueden ser un radical hidrocarburo sustituido o no sustituido de C<sub>1-20</sub>, tal como radicales hidrocarburo que incluyen alquilo, alqueno, arilo, alcoxi, alquenoiloxi, ariloxi, (met)acriloxi o (met)acriloxi; por lo tanto el grupo SiH se puede unir en los extremos terminales, se puede unir como un grupo colgante junto con la estructura principal de siloxano o ambos; R<sup>4</sup> también puede ser un radical hidrocarburo sustituido o no sustituido de C<sub>1-20</sub>, tal como radicales hidrocarburo que incluyen un alquilo C<sub>1-20</sub>, alqueno, arilo, alcoxi, alquenoiloxi, ariloxi, (met)acriloxi o (met)acriloxi, y de forma deseable es un grupo alquilo tal como metilo; x es un número entero de 10 a 1.000; e y es un número entero de 1 a 20. De forma deseable, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> no son ambos hidrógeno, por ejemplo, R<sup>1</sup> es H y cualquiera de R<sup>2</sup> o R<sup>3</sup>, pero no ambos, es H. De forma deseable, los grupos R que no son H son metilo. El agente de reticulación de hidruro de silicio debería estar presente en cantidades suficientes para conseguir la cantidad deseada de reticulación y de forma deseable en cantidades de aproximadamente un 0,5 a aproximadamente un 40 por ciento en peso de la composición, de forma más deseable de aproximadamente un 1 a aproximadamente un 20 por ciento en peso de la composición.

Un compuesto de reticulación bicíclico se preparó en una reacción de una sola etapa de reacción y era compatible con los elastómeros de hidrocarburo funcional de la presente invención. Se hicieron reaccionar dos moles de 2,4,6,8-

tetrametilciclotetrasiloxano con un molde 1,9-decadieno en presencia de un catalizador para producir un líquido que es compatible con oligómeros de hidrocarburo y reacciona con oligómeros de alqueno para formar elastómeros que son útiles para sellar pilas de combustible y similares. Los compuestos de reticulación bicíclicos útiles de este tipo son útiles en la práctica de la presente invención. Sin embargo, la composición no se limita de este modo y de forma adecuada se pueden usar otras estructuras químicas y cíclicas, tales como fluoroéteres y similares. El agente de reticulación bicíclico debería estar presente en cantidades suficientes para conseguir la cantidad de reticulación deseada de aproximadamente un 0,5 a aproximadamente un 40 por ciento en peso de la composición, de forma más deseable de aproximadamente un 1 a aproximadamente un 20 por ciento en peso de la composición.

- 5
- 10 La estructura del agente de reticulación bicíclico de la presente invención es el producto de reacción de 1,9-decadieno y 2,4,6,8-tetrametilciclotetrasiloxano, como se muestra a continuación:



- 15 Los catalizadores de platino útiles incluyen platino o complejos que contienen platino tales como los complejos de hidrocarburo de platino que se describen en los documentos de Patente de Estados Unidos N.º 3.159.601 y 3.159.662; los catalizadores de alcoholato de platino que se describen en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 3.220.972, los complejos de platino que se describen en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 3.814.730 y los complejos de cloruro de platino-olefina que se describen en el documento de Patente de Estados Unidos N.º 3.516.946. Cada uno de estos documentos de patentes que se refieren a catalizadores de platino o que contienen platino se incorporan por la presente de forma expresa en el presente documento por referencia. De forma deseable, el complejo de platino o que contiene platino es complejo de dicarbonilo platino ciclovinilo, complejo de platino ciclovinilo, complejo de platino divinilo, o combinaciones de los mismos.

- 25 Los catalizadores de platino pueden estar en una cantidad suficiente de modo la composición se cura a una temperatura de aproximadamente 130 °C o menos, de forma deseable a una temperatura de aproximadamente 100 °C o menos, de forma más deseable a una temperatura de aproximadamente 90 °C o menos. De forma más deseable, un fotoiniciador, tal como uno o más de los fotoiniciadores que se describen a continuación, de modo que las composiciones de la presente invención se pueden curar mediante radiación actínica, tal como radiación ultravioleta. De forma deseable, la composición líquida se puede curar a una temperatura ambiente en aproximadamente 5 minutos o menos. De forma más deseable, la composición líquida se cura en 1 minuto o menos, por ejemplo, se cura en 30 segundos o menos.

- 35 En un aspecto de la presente invención, el material que forma la junta líquida puede incluir (met)acrilatos, uretanos, poliéteres, poliolefinas, poliésteres, copolímeros de los mismos y combinaciones de los mismos curables con radiación actínica. De forma deseable, el material curable incluye un material terminado en (met)acrilato que tiene al menos dos grupos colgantes de (met)acrilato. De forma deseable, el grupo colgante de (met)acrilato se representa con la fórmula general:  $-OC(O)C(R^1)=CH_2$ , en la que  $R^1$  es hidrógeno o metilo. De forma más deseable, el material que forma la junta líquida es un poli(met)acrilato terminado en (met)acrilato. El terminado en poli(met)acrilato de

(met)acriloiilo puede tener de forma deseable un peso molecular de aproximadamente 3.000 a aproximadamente 40.000, de forma más deseable de aproximadamente 8.000 a aproximadamente 15.000. Además, el poli(met)acrilato terminado en (met)acriloiilo puede tener de forma deseable una viscosidad de aproximadamente 200 Pas (200.000 cPs) a aproximadamente 800 Pas (800.000 cPs) a 25 °C (77 °F), de forma más deseable de aproximadamente 450 Pas (450.000 cPs) a aproximadamente 500 Pas (500.000 cPs). Los detalles de los materiales terminados en (met)acriloiilo curables de este tipo se pueden encontrar en la Solicitud de Patente Europea N.º EP 1 059 308 A1 de Nakagawa *et al.*, y están disponibles en el mercado en Kaneka Corporation, Japón.

En otro aspecto de la presente invención, un agente de sellado curable se puede usar en un proceso de moldeo por inyección de líquido. Las placas separadoras y los marcos de resinas se pueden apilar y alinear en el molde. Los componentes se apilan de abajo hacia arriba en el orden de marco de resina de cátodo, separador de cátodo, separador de ánodo, y marco de resina de ánodo, por ejemplo. Estos componentes de la pila de combustible pueden contener una o más vías o aberturas continuas que permiten que el agente de sellado pase a través de cada componente y que una los componentes al mismo tiempo que proporciona un sello moldeado en la parte superior, inferior y/o en el borde. El agente de sellado tiene una viscosidad bombeable en su estado no curado para permitirle asumir la forma del molde. El agente de sellado curable se inyecta en el molde calentado, o troquel, una temperatura apropiada para unir y sellar los componentes de la pila de combustible.

En otro aspecto de la presente invención, un agente de sellado curable se puede usar en un proceso de moldeo por inyección de líquido. Las dos placas separadoras se apilan y se alinean en el molde de modo que el lado de las vías de refrigerante de los separadores quedan enfrentadas entre sí. Los separadores pueden contener una o más vías continuas que permiten que el agente de sellado una cada componente mientras que proporciona un sello moldeado en cada extremo y/o en el borde. El agente de sellado tiene una viscosidad bombeable en su estado no curado que le permite asumir la forma del molde. El agente de sellado curable se inyecta en el molde calentado, o troquel, a la temperatura apropiada para unir y sellar los separadores. En el caso de que no haya una vía continua, se produce una placa bipolar sellada en el borde.

En otro aspecto de la presente invención, un agente de sellado curable se usa en un proceso de moldeo por inyección de líquido. Un componente de la pila de combustible, tal como un marco de resina, que puede tener una o más aberturas o agujeros, se coloca en un molde o troquel. El agente de sellado tiene una viscosidad bombeable en su estado no curado para permitirle asumir la forma del molde. El agente de sellado se inyecta en el molde calentado, o troquel, a la temperatura apropiada para curar el agente de sellado. Se proporciona un marco de resina con sellados integrados en ambos lados, y posiblemente en el borde.

También se prevé que los componentes seleccionados se puedan unir en otro proceso, procediendo a continuación con el método que se describe en la presente invención para su unión y sellado. Como un ejemplo, un MEA y un conjunto unido se apilan y alinean en un proceso de moldeo. El conjunto unido puede estar compuesto por los marcos de resinas y separadores, como un ejemplo. El MEA y el conjunto unido pueden contener una o más vías continuas que permiten que el agente de sellado una cada componente mientras que proporciona un sello moldeado en cada extremo y/o en el borde. El agente de sellado tiene una viscosidad bombeable en su estado no curado para permitirle asumir la forma del molde. El agente de sellado curable se inyecta en el molde calentado, o troquel, a la temperatura apropiada para unir y sellar los separadores.

En un aspecto de la presente invención, la composición de sellado curada usada en la presente invención incluye un oligómero de poliisobutileno terminado en alquenilo, por ejemplo un oligómero de dialil poliisobutileno terminado en alquenilo; opcionalmente, un monómero de alquenilo polifuncional; un endurecedor o agente de reticulación de sililo que tiene al menos un átomo de hidrógeno unido a un átomo de silicio; y un catalizador de hidrosililación. De forma deseable, solo aproximadamente un átomo de hidrógeno se une a cualquier átomo de silicio en el endurecedor de sililo.

De forma deseable, la composición líquida también puede incluir un fotoiniciador. En el presente documento se puede usar un número de fotoiniciadores para proporcionar los beneficios y ventajas de la presente invención a la que se ha hecho referencia anteriormente. Los fotoiniciadores aumentan la rapidez del proceso de curado cuando las composiciones, como un conjunto, se exponen a radiación electromagnética, tal como radiación actínica. Los ejemplos de fotoiniciadores adecuados para su uso en el presente documento incluyen, pero no se limitan a, fotoiniciadores disponibles en el mercado en Ciba Specialty Chemicals, con los nombres comerciales "IRGACURE" y "DAROCUR", específicamente "IRGACURE" 184 (1-hidroxiciclohexil fenil cetona), 907 (2-metil-1-[4-(metiltio)fenil]-2-morfolino propan-1-ona), 369 (2-bencil-2-N,N-dimetilamino-1-(4-morfolinofenil)-1-butanona), 500 (la combinación de 1-hidroxi ciclohexil fenil cetona y benzofenona), 651 (2,2-dimetoxi-2-fenil acetofenona), 1700 (la combinación de óxido de bis(2,6-dimetoxibenzoil-2,4,4-trimetil pentil) fosfina y 2-hidroxi-2-metil-1-fenil-propan-1-ona), y 819 [óxido de bis(2,4,6-trimetil benzoil) fenil fosfina] y "DAROCUR" 1173 (2-hidroxi-2-metil-1-fenil-1-propan-1-ona) y 4265 (la combinación de óxido de 2,4,6-trimetilbenzoildifenilfosfina y 2-hidroxi-2-metil-1-fenil-propan-1-ona); y los foto iniciadores de luz visible [azul], dl-canforquinona e "IRGACURE" 784DC. Por supuesto, en el presente documento se también se pueden usar combinaciones de estos materiales.



Otros fotoiniciadores útiles en el presente documento incluyen piruvatos de alquilo, tales como piruvatos de metilo, etilo, propilo, y butilo, y arilo, tales como fenilo, bencilo, y derivados apropiadamente sustituidos de los mismos. Los fotoiniciadores particularmente bien adecuados para su uso en el presente documento incluyen fotoiniciadores de ultravioleta, tales como 2,2-dimetoxi-2-fenil acetofenona (por ejemplo, "IRGACURE" 651), y 2-hidroxi-2-metil-1-fenil-1-propano (por ejemplo, "DAROCUR" 1173), óxido de bis(2,4,6-trimetil benzoil) fenil fosfina (por ejemplo, "IRGACURE" 819), y la combinación de fotoiniciador de ultravioleta/visible de óxido de bis(2,6-dimetoxibenzoil-2,4,4-trimetilpentil) fosfina y 2-hidroxi-2-metil-1-fenil-propan-1-ona (por ejemplo, "IRGACURE" 1700), así como el fotoiniciador de visible, bis( $\eta^5$ -2,4-Ciclopentadien-1-il)-bis[2,6-difluoro-3-(1H-pirrol-1-il)fenil]titanio (por ejemplo, "IRGACURE" 784DC). La radiación actínica útil incluye luz ultravioleta, luz visible, y combinaciones de las mismas.

De forma deseable, la radiación actínica usada para curar el material que forma junta líquida tiene una longitud de onda de aproximadamente 200 nm a aproximadamente 1,000 nm. La luz UV útil incluye, pero no se limita a, UVA (de aproximadamente 320 nm a aproximadamente 410 nm), UVB (de aproximadamente 290 nm a aproximadamente 320 nm), UVC (de aproximadamente 220 nm a aproximadamente 290 nm) y combinaciones de las mismas. La luz visible útil incluye, pero no se limita a, luz azul, luz verde, y combinaciones de las mismas. Las luces visibles útiles de este tipo tienen una longitud de onda de aproximadamente 450 nm a aproximadamente 550 nm.

Sin embargo, la presente invención no se limita solamente al uso de radiación UV y se pueden usar otras fuentes de energía tales como calor, presión, radiación ultravioleta, microondas, ultrasonidos o electromagnética para iniciar la polimerización de una o más de las composiciones. Además, el iniciador podría ser activo sin un agente de activación. Además, el proceso de inicio se puede aplicar antes, durante y/o después del montaje.

Opcionalmente, un agente de liberación se puede aplicar a la cavidad 54 antes de la introducción de la composición líquida. El agente de liberación, si fuera necesario, ayuda a retirar fácilmente la junta curada de la cavidad del molde. Las composiciones de liberación de molde útiles incluyen, pero no se limitan a, pulverizaciones secas tales como politetrafluoroetileno, y aceites de pulverización o aceites para limpieza tales como silicona o aceites orgánicos. Las composiciones de liberación de molde útiles incluyen, pero no se limitan a, composiciones que incluyen compuestos de perfluoroalquilo de C<sub>6</sub> a C<sub>14</sub> sustituidos terminalmente en al menos un extremo con un grupo hidrófilo orgánico, tal como grupos de betaína, hidroxilo, carboxilo, sal de amonio y combinaciones de los mismos, que es químicamente y/o físicamente reactivo con una superficie de metal. Una diversidad de liberaciones de molde están disponibles, tales como las comercializadas con la marca comercial Frekote de Henkel. Además, el agente de liberación puede ser una película termoplástica, que se puede formar en la forma del molde.

Además de la composición de poli(met)acrilato terminado en (met)acrilóilo descrita anteriormente, la composición puede incluir adicionalmente un compuesto terminado en terminado en (met)acrilóilo que tiene al menos dos grupos colgantes de (met)acrilóilo seleccionados entre un poliéter terminado en (met)acrilóilo, una poliolefina terminada en (met)acrilóilo, un poliuretano terminado en (met)acrilóilo, un poliéster terminado en (met)acrilóilo, una silicona terminada en (met)acrilóilo, copolímeros de los mismos, y combinaciones de los mismos.

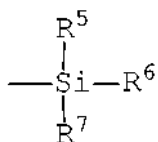
La composición e incluir adicionalmente un (met)acrilato monofuncional. Los (met)acrilatos monofuncionales útiles pueden estar incluidos en la estructura general CH<sub>2</sub>=C(R)COOR<sup>2</sup>, en la que R es H, CH<sub>3</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>5</sub> o halógeno, Tal como Cl, y R<sup>2</sup> es mono- o bicicloalquilo C<sub>1-8</sub>, un radical heterocíclico de 3 a 8 miembros con un máximo de dos átomos de oxígeno en el heterociclo, H, alquilo, hidroxialquilo o aminoalquilo en los que la porción de alquilo es una cadena de átomos de carbono lineal o ramificada C<sub>1-8</sub>. Entre los monómeros de (met)acrilato monofuncionales específicos particularmente deseables, y que corresponden a ciertas de las estructuras mencionadas anteriormente, se encuentran metacrilato de hidroxipropilo, metacrilato de 2-hidroxietilo, metacrilato de metilo, metacrilato de tetrahidrofurfurilo, metacrilato de ciclohexilo, metacrilato de 2-aminopropilo y los acrilatos correspondientes.

En otro aspecto de la presente invención, la composición de poli(met)acrilato de la presente invención puede incluir opcionalmente de aproximadamente un 0 % a un 90 % de polímero o copolímero de poli(met)acrilato, de aproximadamente un 0 % a un 90 % de polímero o copolímero de poli(met)acrilato que contiene al menos un grupo funcional 2(met)acrilato; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 90 % en peso de monómeros de (met)acrilato monofuncionales y/o multifuncionales; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso de fotoiniciador; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso de aditivos, tales como antioxidantes; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso de cargas, tales como sílice ahumada; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso De modificador de reología; de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso de promotor de adhesión; y/o de aproximadamente un 0 % en peso a aproximadamente un 20 % en peso de agentes o pigmentos fluorescentes.

En otro aspecto de la presente invención, la composición de sellado 40 puede incluir un material polimerizable no basado en un oligómero de PIB lineal que tiene grupo(s) alqueno o alilo terminales y/o un agente de reticulación que no tiene al menos dos átomos de hidrógeno cada uno unidos a un átomo de silicio. Por ejemplo, las composiciones de la presente invención pueden incluir una estructura principal de oligómero de PIB ramificado.

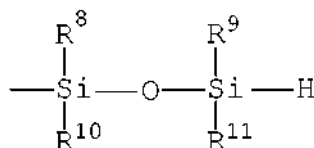
Además, la escritura principal de oligómero de PIB, ya sea lineal o ramificado, puede incluir grupos al que ni los internos o colgantes u otros grupos funcionales con los extremos estando opcionalmente libres de grupo(s) alqueno o alilo terminales. Además, la estructura principal oligomérica puede incluir un copolímero de PIB y otro monómero, por ejemplo estireno. El copolímero puede ser un copolímero aleatorio o de bloque.

Además, en el presente documento se puede usar de forma adecuada una composición de polímero o copolímero de PIB lineal o ramificado, que está libre o sustancialmente libres de grupos alqueno y/o alilo terminales. Por ejemplo, en el presente documento se puede usar una composición de polímero o copolímero de PIB lineal o ramificado de este tipo que tiene uno o más grupos terminales y/o colgantes de Si-CH<sub>3</sub> en uno o más extremos. Por ejemplo, el uno o más grupos Si-CH<sub>3</sub> terminales o colgantes se pueden representar como:



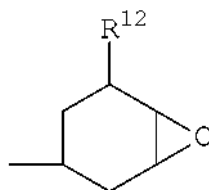
en el que R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup> y R<sup>7</sup>, que pueden ser iguales o diferentes, son alquilo que pueden ser iguales o diferentes y que pueden ser un radical hidrocarburo sustituido o no sustituido de C<sub>1-20</sub> tal como radicales hidrocarburo que incluyen alquilo, alqueno, arilo, alcoxi, alquenoilo, arilo, (met)acrilo o (met)acriloxi, y con la condición de que al menos uno de R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup> o R<sup>7</sup> es un grupo alquilo tal como metilo. El uso de un iniciador radicalario se puede usar para sintetizar el hidrógeno del alquilo, por ejemplo, grupo metilo. El radical alquilo o metilo resultante es reactivo con compuestos que tienen grupo funcional alqueno o vinilo. Los concursos adecuados que tienen grupo funcional alqueno o vinilo incluyen, pero no se limitan a, los monómeros de alqueno polifuncionales mencionados anteriormente, tales como TVCH y/o 1,9-decadieno. Antes de una polimerización iniciada por radicales de este tipo, la composición de polímero o copolímero de PIB lineal o ramificado está sustancialmente libre de cualquier grupo Si-H.

Como otro ejemplo no limitante, una composición de polímero o copolímero de PIB lineal o ramificado se puede proteger en uno o más extremos con tetraalquildisiloxano, de forma deseable tetrametildisiloxano, representado como:

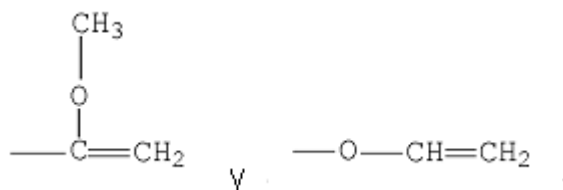


en el que R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup>, R<sup>10</sup> y R<sup>11</sup>, que pueden ser iguales o diferentes, son alquilo que pueden ser iguales o diferentes y que pueden ser un radical hidrocarburo sustituido o no sustituido de C<sub>1-20</sub>, tal como radical es hidrocarburo que incluyen alquilo, alqueno, arilo, alcoxi, alquenoilo, arilo, (met)acrilo o (met)acriloxi, de forma deseable un grupo alquilo tal como metilo. Las composiciones de este tipo se pueden curar con los catalizadores de hidrosililación descritos anteriormente y, opcionalmente, también pueden incluir los monómeros de alqueno polifuncionales descritos anteriormente, tales como TVCH o 1,9-decadieno.

Los ejemplos adicionales de composiciones útiles de la presente invención incluyen composiciones de polímero o copolímero de PIB lineal o ramificado que tienen grupos terminales epóxido y/o vinil éter. Los ejemplos no limitantes incluyen epóxido cicloalifático de PIB y vinil éter de PIB. Un grupo epóxido cicloalifático útil incluye



en el que R<sup>12</sup> es alquilo C<sub>1-20</sub> o H. Los grupos vinil éter de PIB incluyen



- Además, las composiciones de la presente invención se pueden curar o inicial para el curado con un agente peróxido. En particular, los descritos anteriormente compuestos que tienen uno o más Si-CH<sub>3</sub> colgantes o terminales se pueden iniciar con agentes peroxi. Los agentes peroxi útiles, que incluyen agentes de reticulación e iniciadores peroxi, incluyen los iniciadores de polimerización de hidroperoxi, por ejemplo, iniciadores de hidropéroxido orgánico que tienen la fórmula ROOH, en la que R es generalmente un radical hidrocarburo que contiene hasta aproximadamente 18 carbonos, de forma deseable un radical alquilo, arilo o aralquilo que contiene hasta aproximadamente 12 átomos de carbono. Los ejemplos habituales de los hidropéroxidos de este tipo incluyen hidropéroxido de cumeno, hidropéroxido de metiletilcetona así como hidropéroxidos formados por la oxigenación de otros diversos hidrocarburos tales como metilbuteno, cetano y ciclohexano. También se pueden usar otros iniciadores de peroxi tales como peróxido de hidrógeno o materiales tales como peróxidos perésteres orgánicos o que se hidrolizan o descomponen para formar hidropéroxidos.
- En un aspecto de la presente invención, se usa un agente de sellado de dos partes para unir las placas separadoras 12, 112, 28, 128 y los marcos de resina 15, 115. La Parte A del agente de sellado puede contener un iniciador activado con UV, que puede ser un iniciador ácido, básico, radicalario, aniónico, y/o catiónico. La Parte B del agente de sellado pueden incluir un monómero, oligómero, polímero telequérico, y/o polímero funcional polimerizables. El grupo funcional podría ser, como un ejemplo, un epoxi, alilo, vinilo, (met)acrilato, imida, amida o uretano. Los marcos de resina 15, 115 se usan para el espaciado dentro del conjunto de pila de combustible 10, 110. Los marcos de resina 15, 115 se colocan en los lados de la vía de gas de los separadores 12, 112, 28, 128 y se proporcionan sellos entre cada elemento. En la primera línea de fabricación, una placa separadora 12, 112, por lo general una lámina de metal, tal como acero inoxidable, se reviste de forma deseada sobre ambos lados con la parte A del agente de sellado, se corta, se estampa en relieve para producir los canales necesarios para el gas reactivo y las vías del refrigerante, y se activa con luz UV. Un marco de resina 15, 115 se reviste en al menos un lado con la parte B del agente de sellado y se monta con la placa separadora revestida 12, 112 para proporcionar un separador de ánodo con marco unido. Una segunda línea de fabricación, una segunda placa de separador 12, 112, por lo general una lámina de acero inoxidable, se reviste de forma deseable sobre ambos lados con la parte B del agente de sellado, se corta y se estampa en relieve para producir los canales necesarios para el gas reactivo y las vías del refrigerante para formar la placa separadora 28, 128. Un segundo marco de resina 15, 115 revestido en al menos un lado con la parte A del agente de sellado e irradiado con luz UV se monta con la placa separadora 28, 128 para proporcionar un separador de cátodo con un marco unido. Por último, los dos días de fabricación se encuentran de modo que el separador de ánodo unido que tiene un revestimiento expuesto de la parte A del agente de sellado sobre uno de sus lados y el separador de cátodo unido que tiene un revestimiento expuesto de la parte B del agente de sellado sobre uno de sus lados se alinean, la parte A y la parte B del agente de sellado reaccionan y sellan las superficies de contacto de la pila de combustible para formar un conjunto unido.
- En otro aspecto de la presente invención, se usa un agente de sellado de dos partes para unir las placas separadoras 12, 112, 28, 128. La Parte A del agente de sellado contiene un iniciador activado con UV, que puede ser un iniciador ácido, básico, radicalario, aniónico, y/o catiónico. La Parte B del agente de sellado está formada por un monómero, oligómero, polímero telequérico, y/o polímero funcional polimerizables. El grupo funcional podría ser, como un ejemplo, un epoxi, alilo, vinilo, (met)acrilato, imida, amida o uretano. La Parte A se aplica a la primera placa separadora, y la parte B se aplica a la segunda placa separadora. La Parte A se aplica en el lado de la vía del refrigerante del separador de ánodo 12, 112. La Parte B se aplica en el lado de la vía del refrigerante del separador de cátodo 28, 128. En el separador de ánodo 12, 112, la parte A se somete a irradiación UV para activar el iniciador, seguido de conjunto de compresión con el separador de cátodo 28, 128. Los separadores 12, 112, 28, 128 se unen de modo que la parte A y la parte B reaccionan y sellan los componentes para formar la placa bipolar 119.
- En otro aspecto de la presente invención, se usa un agente de sellado de una parte para unir las placas separadoras 12, 112, 28, 128 y los marcos de resina 15, 115. El agente de sellado, que puede estar formado por un iniciador ácido, base, radicalario, aniónico, y/o catiónico activado con UV y monómero, oligómero, polímero telequérico y/o polímero funcional polimerizables, se puede aplicar a un sustrato, radiado con luz UV, y se puede comprimir con un segundo sustrato para formar el sello.
- En otro aspecto de la presente invención, se usa una composición de dos partes para unir y sellar. La Parte A se aplica al primer sustrato. La Parte B se aplica al segundo sustrato. Los dos sustratos se combinan y se fijan. La polimerización se puede conseguir de su forma más sencilla poniendo juntos los dos sustratos, o combinando los sustratos y usando alguna forma de energía adicional, tal como presión, calor, ultrasonidos, microondas o cualquier combinación de los mismos.

La FIG. 35 representa un sistema 80 para formar conjuntos unidos, tales como pilas de combustible o componentes de pila de combustible unidos, de acuerdo con la presente invención. El sistema 80 incluye diferentes estaciones 82, 84 para procesar diferentes componentes de pila de combustible. El sistema incluye los distribuidores 86 y 88 para distribuir la primera y segunda partes, respectivamente, de una composición de sellado de dos partes para revestir diferentes componentes de pila de combustible. El sistema incluye además fuentes 90 de energía, tales como radiación actínica.

En otro aspecto de la presente invención, un apilamiento de pila de combustible se puede preparar a partir de un conjunto modular y una junta. En la primera etapa se produce un MEA con marco de resina. Los marcos de resina de ánodo y cátodo se revisten con un agente de sellado activado con UV de un solo componente en un lado del marco de resina. El agente de sellado se activa con irradiación UV y los marcos de resina se fijan en cualquier lado del MEA. En la segunda etapa, los separadores se unen a los marcos de resina usando un agente de sellado de dos partes. En un sistema de dos componentes, la parte A se podría aplicar al sustrato uno, la parte B se podría aplicar al sustrato dos. Las Partes A y B cuando se combinan se podrían polimerizar en una forma de la presente invención.

El MEA con marco de resina se reviste con la parte A sobre los marcos de resina, y a continuación se activa con irradiación UV. Al mismo tiempo, los lados del gas reactivo de los separadores se revisten con la parte B. El MEA con marco de resina se fija con los separadores de ánodo y de cátodo para producir una y la unitaria (separador de ánodo, marco de resina de ánodo, MEA, marco de resina de cátodo, y separador de cátodo). En la siguiente etapa, las pilas unitarias se unen junto con un agente de su hiato de dos partes para formar un módulo, que contiene un número seleccionado de y las unitarias, tal como diez, por ejemplo. La pila unitaria se desarrolla a través de una operación para aplicar polímero no curado a la superficie de uno, sustratos. El lado de la vía del refrigerante del separador de ánodo se puede revestir con la parte A y se puede activar con irradiación UV. El lado de la vía del refrigerante del separador de cátodo se puede revestir con la parte B. Las pilas se apilan y se fijan para que reaccione la parte A con la parte B y para sellar las vías del refrigerante del módulo. Los separadores en los extremos del módulo pueden no estar revestidos en el proceso que se ha descrito anteriormente. En una línea de fabricación separada, se produce una junta a partir de una lámina de metal y un agente de sellado activado con UV. Un rodillo de lámina de metal se corta, se reviste con un agente de sellado activado con UV de un solo componente, y se coloca bajo luz UV. El apilamiento de pila de combustible se puede montar alternando las juntas con los módulos hasta que se consigue el número deseado de pilas en el apilamiento. También se prevé que los marcos de resina y los separadores se pueden revestir en ambos lados con el agente de sellado apropiado, se pueden fijar al primer componente a continuación fijar al segundo componente.

En otro aspecto de la presente invención, un apilamiento de pilas de combustible se puede preparar a partir de un conjunto modular y una junta. Un MEA con marco de resina se producen en la primera etapa. Dos marcos de resina se revisten con un agente de sellado activado con UV de un solo componente en un lado del marco de resina. El agente de sellado se activa mediante irradiación UV y los marcos de resina se fijan en cualquier lado del MEA. En la segunda etapa, un separador unido se sella al MEA con marco de resina usando un agente de sellado de dos partes. En un sistema de dos componentes, la parte A del agente de sellado se podría aplicar a un primer sustrato y la parte B del agente de sellado se podría aplicar a un segundo sustrato. Las partes A y B del agente de sellado, cuando se combinan, se polimerizan para formar un conjunto unido de acuerdo con un aspecto de la presente invención. Por ejemplo, un marco de resina de ánodo se puede revestir con la parte A del agente de sellado, y a continuación se reactiva mediante irradiación UV. Un MEA con marco de resina se puede fijar con los separadores unidos para producir una pila unitaria (separador de cátodo, separador de ánodo, marco de resina de ánodo, MEA, y marco de resina de cátodo). Los separadores de ánodo y de cátodo se unen en otra línea de fabricación usando un agente de sellado de dos componentes. El lado de la vía del refrigerante del separador de ánodo se reviste con la parte A del agente de sellado, y a continuación se activa mediante irradiación UV. El lado de la vía del refrigerante del separador de cátodo se reviste con la parte B del agente de sellado, y se fija al separador de ánodo para que la parte A del agente de sellado reaccione con la parte B. En la siguiente etapa, las pilas unitarias se unen junto con un agente de sellado de dos partes para formar un módulo, que contiene un número seleccionado de pilas unitarias, tal como por medio del ejemplo diez. La pila unitaria se desarrolla a través de una operación de revestimiento. El lado de la vía de gas del separador de cátodo se puede revestir con la parte A del agente de sellado se puede activar con irradiación UV. El marco de resina de cátodo se puede revestir con la parte B del agente de sellado. Las pilas unitarias se apilan y se fijan para que la parte A del agente de sellado reaccione con la parte B del agente de sellado para producir un módulo de pilas unitarias unidas. El separador y el marco de resina en los extremos del módulo podrían no quedar revestidos en el proceso descrito anteriormente. En una línea de fabricación separada una junta, se produce a partir de una lámina de metal y un agente de sellado activado con UV. Un rodillo de lámina de metal se corta, se reviste con un agente de sellado activado con UV de un solo componente, y se colocaba bajo luz UV. El apilamiento de pilas de combustible se puede montar alternando las juntas con los módulos hasta que se consigue el número deseado de pilas en el apilamiento. Los marcos de resina y separadores se pueden revestir en ambos lados con el agente de sellado apropiado, se pueden fijar al primer componente y a continuación fijar al segundo componente.

Los siguientes ejemplos no limitantes pretenden ilustrar adicionalmente la presente invención.

**Ejemplos**Ejemplo 1: Datos de Viscosidad

- 5 El TVCH era muy eficaz para reducir la viscosidad de las resinas de poliisobutileno con grupo funcional alquenilo. La reducción de la viscosidad se observó en un poliisobutileno con grupo funcional alquenilo de 5.000; 10.000 y 20.000 de peso molecular promedio en número (Mn). Los detalles se muestran en las FIGs. 11 y 12, Tablas 1 y 2 para un poliisobutileno con grupo funcional alquenilo de 10.000 y 20.000 Mn para las Composiciones de la Invención N.<sup>os</sup> 2 a 4 y 6 a 8 y para las Composiciones Comparativas N.<sup>os</sup> 1 y 5.

10

Tabla 1

<u>Efecto De TVCH En la Viscosidad En Un Poliisobutileno con Grupo Funcional Alquenilo de 10,000 Mn</u>				
<u>Descripción</u>	<u>Comp. Compar. 1</u>	<u>Comp. Inv. 2</u>	<u>Comp. Inv. 3</u>	<u>Comp. Inv. 4</u>
Poliisobutileno Terminado en Alquenilo (10,000 Mn), partes en peso	50	50	50	50
TVCH, partes en peso	0	2,5	5	10
Viscosidad (Haake, 150 RheoStress), Pa·s	1500	650,5	234,0	67,5
Tasa de Cizallamiento [1/s]	12	12	12	12
Temperatura, °C	25	25	25	25

Tabla 2

<u>Efecto De TVCH En la Viscosidad En Un Poliisobutileno con Grupo Funcional Alquenilo de 20,000 Mn</u>				
	<u>Comp. Compar. 5</u>	<u>Comp. Inv. 6</u>	<u>Comp. Inv. 7</u>	<u>Comp. Inv. 8</u>
Poliisobutileno Terminado en Alquenilo (20,000 Mn), partes en peso	50	50	50	50
TVCH, partes en peso	0	5	7,5	10
Viscosidad (Haake, 150 RheoStress), Pa·s	2711	561	212,8	127,5
Tasa de Cizallamiento [1/s]	12	12	12	12
Temperatura, °C	25	25	25	25

- 15 El TVCH era eficaz para reducir la viscosidad de las resinas de poliisobutileno con grupo funcional alquenilo. Las composiciones de la invención resultantes no se separaban, y las concentraciones de TVCH de hasta aproximadamente un 20 por ciento en peso con las resinas de poliisobutileno con grupo funcional alquenilo formaban soluciones de una sola fase o composiciones transparentes.

20 Ejemplo 2: . Resultados de DSC Y Estabilidad

- Se prepararon formulaciones con y sin TVCH a la vez que la proporción molar de grupos Si-H con respecto a grupos alquenilo y de platino con respecto a grupos alquenilo se mantenía constante. La Composición Comparativa N.<sup>o</sup> 9 que se muestra a continuación en la Tabla 3 se preparó sin nada de TVCH y se curó. La composición presentaba un calor de reacción de 29 julios por gramo. Las Composiciones de la Invención N.<sup>os</sup> 10 a 14, que tienen diferentes cantidades de catalizador de platino, contenían un cinco por ciento en peso de TVCH basándose en 100 gramos de alquenil poliisobutileno. El calor de reacción aumentó a aproximadamente 83 julios por gramo para las composiciones de la invención que contenían TVCH.

25

Tabla 3

Adición de TVCH A Resinas Bifuncionales						
Descripción	Comp. Compar. 9	Comp. Inv. 10	Inv Comp. 11	Comp. Inv. 12	Comp. Inv. 13	Comp. Inv. 14
Poliisobutileno Terminado en Alquenilo (5.000 Mn), partes en peso	100	100	100	100	100	100
Polialquil Hidrógeno Siloxano (2.230 Mn) (1), partes en peso	10,0	33,2	33,2	33,2	33,2	33,2
TVCH, partes en peso		5	5	5	5	5
Catalizador de Platino (2), partes en peso	0,0073	0,0223	0,0334	0,0425	0,0557	0,0668
Partes por millón de Platino por Grupo Alquenilo (mppm)	20	20	30	40	50	60
Proporción Molar de Si-H con respecto a Alquenilo	1,5:1	1,5:1	1,5:1	1,5:1	1,5:1	1,5:1
Inicio de Exotermia (°C)	68	107	94	72	66	70
Máximo de Exotermia (°C)	97	1,7	125	100	95	92
Final de Exotermia (°C)	130	187	180	152	145	140
Calor de Reacción (Julios por gramo)	29,1	83,1	81,7	79,9	80,4	83,0
(1) CR-300, Disponible en Kaneka Corporation, Osaka, Japón.						
(2) Complejo de Platino (0) 0,1 M -- 1,3-Divinil-1,1,3,3-tetrametildisiloxano en xileno						

- 5 La adición de TVCH aumentaba la exotermia máxima de la reacción de 96 °C a 137 °C como se muestra en la Tabla 3. Esto era inesperado ya que los grupos vinilo por lo general son más reactivos que los grupos alilo. La adición de TVCH proporcionó algunos resultados muy deseables e inesperados, que se revisarán a continuación. Dado que es deseable mantener la temperatura de curado por debajo de 130 °C y preferentemente por debajo de 110 °C para las pilas de combustible de PEM funcionan a bajas temperaturas (inferiores a 100 °C), se realizaron una serie de experimentos para determinar si era posible disminuir la temperatura de exotermia máxima cambiando la concentración del catalizador de platino. A partir de esos experimentos, es decir, las Composiciones de la Invención
- 10 N.<sup>os</sup> 10 a 14, la temperatura de exotermia máxima se pudo reducir de 137 °C a aproximadamente 92 °C aumentando la cantidad de platino de 20 a 60 mppm basándose en la concentración de grupos alquenilo, como se muestra en la FIG. 12. Esta disminución de la temperatura de exotermia máxima indicaba que la temperatura de activación se reducía de forma significativa, mientras que la energía de activación permanecía elevada. Por lo tanto, los experimentos mostraban que el calor de reacción se puede aumentar y la temperatura de exotermia máxima se puede reducir a la vez que se mantiene una viscosidad útil para operaciones de impresión con pantalla, distribución
- 15 líquida, moldeo en estado líquido y otros tipos de métodos de aplicación. Existe un límite práctico para el beneficio que se puede obtener a partir del aumento de la concentración de catalizador, ya que la tasa de cambio en la exotermia máxima disminuyó drásticamente por encima de 60 mppm dentro de este conjunto de experimentos.
- 20 Al aumentar la concentración del catalizador a 15 mppm en las Composiciones Comparativas N.<sup>os</sup> 15 a 18 sin TVCH, se observó gelificación en minutos durante la operación de mezclado, como se muestra en la Tabla 4. Esto fue posible de realizar reduciendo la cantidad de catalizador dentro de la composición, como se muestra en la Tabla 4. Cuando se usan niveles más elevados de catalizador sin la adición de TVCH, era difícil fabricar material en forma de una composición de un solo componente y aplicar las composiciones sin observar gelificación a.
- 25

Tabla 4

<u>La Concentración Del Catalizador Influye en las Composiciones de la Invención Sin Inhibidores</u>				
<u>Descripción</u>	<u>Comp. Compar.</u> <u>15</u>	<u>Comp. Compar.</u> <u>16</u>	<u>Comp. Compar.</u> <u>17</u>	<u>Comp. Compar.</u> <u>18</u>
Poliisobutileno Terminado en Alquenilo (5.000 Mn), gramos	100	100	100	100
Polialquil Hidrógeno Siloxano (2.230 Mn) (1), gramos	6,8	6,8	6,8	6,8
TVCH, gramos	0	0	0	0
Catalizador de Platino (2), microlitros	8,0	6,0	4,0	2,0
Partes por millón de Platino por Grupo Alquenilo (mppm)	20	15	10	5
Notas:	Gelificación rápida	Gelificación rápida		
Tiempo de empleo útil (Minutos)	8	8	15	60
(1) CR-300, Disponible en Kaneka Corporation, Osaka, Japón. (2) Complejo de Platino (0) 0,1 M -- 1,3-Divinil-1,1,3,3-tetrametildisiloxano en xileno				

El uso de inhibidores puede ayudar a reducir el cambio de viscosidad como una función del tiempo. Sin embargo, los inhibidores tienen el potencial de difundirse o retirarse por extracción de la composición cuando se usan dentro de una pila de combustible causando efectos indeseables en el rendimiento de la pila. Estos cambios pueden incluir, pero no se limitan a, cambios en el equilibrio de hidrofobia/hidrofilia y catalizador de pila de combustible, que se reflejan en una disminución del rendimiento total del dispositivo.

Los efectos estabilizantes inesperados de TVCH permiten el uso de concentraciones de catalizador de platino más elevadas, la capacidad para preparar composiciones sin gelificación y la capacidad de mejorar la estabilidad usando restos que se reticulan la red de polímero reduciendo de ese modo la difusión o extracción de las especies en la aplicación final. El TVCH también se puede usar junto con inhibidores que no sea reticulan en la red final a niveles bajos.

Cuando el TVCH se añadió a las composiciones de la invención, se observaron mejoras inesperadas en el periodo de almacenamiento de las composiciones de la invención mixtas. Esto se resalta en la Tabla 5 por comparación de las Composiciones de la Invención N.<sup>os</sup> 20 a 24 con la Composición Comparativa N.<sup>o</sup> 19. Las Composiciones de la Invención N.<sup>os</sup> 20 a 24 con TVCH experimentaban un aumento de la viscosidad más bajo como una función del tiempo cuando se comparaban con la Composición Comparativa N.<sup>o</sup> 19 que no contenía TVCH. Por ejemplo, la Composición Comparativa N.<sup>o</sup> 19 que se muestra en la Tabla 5 sin TVCH se gelificó durante el proceso de mezclado a temperatura ambiente en minutos. La adición de TVCH al mismo nivel de carga de catalizador y niveles más elevados dio como resultado que las composiciones permanecieran en el estado líquido durante un periodo de tiempo más largo, proporcionando un periodo de tiempo práctico para aplicar o moldear el material sobre un sustrato.

Tabla 5

Influencia De TVCH En La Estabilidad						
Descripción	Comp. Compar. 19	Comp. Inv. 20	Comp. Inv. 21	Comp. Inv. 22	Comp. Inv. 23	Comp. Inv. 24
Poliisobutileno Terminado en Alquenilo (5.000 Mn), gramos	100	100	100	100	100	100
Polialquilo Hidrógeno Siloxano (2.230 Mn) (1), gramos	6,8	22,2	33,3	44,6	66,4	26,6
TVCH, gramos	0	5	5	5	5	5
Catalizador de Platino (2), microlitros	8,0	26,1	26,1	26,1	26,1	78,2
Partes por millón de Platino por Grupo Alquenilo (mppm)	20	20	20	20	20	60
Proporción Molar de Si-H con respecto a Alquenilo	1,2:1	1,0:1	1,5:1	2,0:1	3,0:1	1,2:1
Notas:	Gelificación rápida					
Tiempo de empleo útil (Minutos)	8	> 60	> 60	> 60	> 60	> 60
(1) CR-300, Disponible en Kaneka Corporation, Osaka, Japón. (2) Complejo de Platino (0) 0,1 M -- 1,3-Divinil-1,1,3,3-tetrametildisiloxano en xileno						

## Ejemplo 3: Datos de Propiedades Físicas Formuladas (Conjunto de Compresión, Dureza y Propiedades mecánicas)

5 Las composiciones de la invención 25 a 30 se prepararon usando una proporción constante de TVCH con respeto PIB terminado en alquenilo a la vez que se variaba la cantidad de Si-H con respecto al número total de grupos alquenilo variando el contenido de polialquilo hidrógeno siloxano para medir el cambio en las propiedades físicas, mecánicas y termodinámicas. La proporción del número de grupos funcionales "A" ( $N_A$ ) con respecto al número de grupos funcionales "B" ( $N_B$ ) se refiere al desequilibrio estequiométrico ( $r = N_A/N_B$ ). Las Tablas 6 y 7 y la FIG. 13

10 muestran que aumentaba el desequilibrio estequiométrico, aumentaba la proporción de grupos Si-H con respecto a grupos alquenilo, disminuían los valores del conjunto de compresión mientras que aumentaban las propiedades mecánicas. Las propiedades óptimas se obtuvieron a un desequilibrio estequiométrico de aproximadamente 1,4 a 1,0 (grupos Si-H con respecto a grupos alquenilo). El valor absoluto del conjunto de compresión disminuyó drásticamente en un 8 %, que es muy bajo para un elastómero e inesperado.

15 La Composición Comparativa N.º 31 se preparó con el PIB terminado en alquenilo y el de polialquilo hidrógeno siloxano a una proporción molar de 1,5:1 de Si-H con respecto al número total de grupos alquenilo. La Composición Comparativa N.º 31 no contenía ningún TVCH. Un inhibidor -- 3,5-dimetil-1-hexino-ol -- se añadió a la Composición Comparativa N.º 31 para inhibir la tasa de curado de la composición para que el ensayo de compresión se pudiera

20 realizar. Sin ningún inhibidor, la composición gelificó en un par de minutos. Se observó que la Composición Comparativa N.º 31 tenía un conjunto de compresión de un 22 %. Como se muestra en la Tabla 6, la Composición de la Invención N.º 30 presentaba propiedades de conjunto de compresión significativamente mejores en comparación con la Composición Comparativa N.º 31. La proporción molar de Si-H con respecto a alquenilo para la Composición de la Invención N.º 30 y la Composición Comparativa N.º 31 era la misma a 1,5:1.

25



Tabla 6

<u>Conjunto de Compresión Para Alquenil Poliisobutileno de 5000 Mn A un 5 % en peso de TVCH Y Con Polialquilo Hidrógeno Siloxano de 2230 Mn</u>		
<u>Descripción</u>	<u>Proporción Molar de Si-H con respecto a Alquenilo</u>	<u>Conjunto de Compresión a 75 °C durante 70 Horas</u>
Composición de la Invención 25	1,0 : 1	n/d
Composición de la Invención 26	1,1 : 1	32,6
Composición de la Invención 27	1,2 : 1	17,7
Composición de la Invención 28	1,3 : 1	14,7
Composición de la Invención 29	1,4 : 1	7,9
Composición de la Invención 30	1,5 : 1	7,8
Composición Comparativa 31	1,5 : 1	22,2

5 El aumento de la resistencia a la tracción, módulo dureza y correspondiente disminución de la elongación en la ruptura era coherente con el aumento de la densidad de reticulación a medida que aumentaba la proporción de grupos Si-H con respecto a grupos alquenilo.

Tabla 7

<u>Propiedades Mecánicas Como Una Función De Proporción de Si-H Con Respecto A Alquenilo</u>						
<u>Descripción</u>	<u>Comp. Inv. 25</u>	<u>Comp. Inv. 26</u>	<u>Comp. Inv. 27</u>	<u>Comp. Inv. 28</u>	<u>Comp. Inv. 29</u>	<u>Comp. Inv. 30</u>
Proporción Molar de Si-H con Respecto a Alquenilo	1,0:1	1,1:1	1,2:1	1,3:1	1,4:1	1,5:1
Propiedades de Reacción:						
Inicio de Exotermia (°C)	59	54	55	53	50	70
Máximo de Exotermia (°C)	88	87	87	85	96	92
Calor de Reacción (Julios por gramo)	62	72	77	78	77	83
Propiedades Físicas:						
Temp. de Curado (°C)	110	110	110	110	110	110
Tiempo de Curado (Min.)	60	60	60	60	60	60
Resistencia a la Tracción (kPa)	468,8	461,9	951,5	1103,2	1144,5	965,3
Módulo de un 50 % (kPa)	103,4	193,1	344,7	427,5	661,9	606,7
Elongación en la Ruptura (%)	108	89	101	95	83	76
Dureza Shore "A"	12	17	36	41	45	45
Conjunto de Compresión a 75 °C durante 70 Horas	n/d	33	18	15	8	8

Se observó que las propiedades mecánicas óptimas se producen cerca del valor máximo para el calor de reacción como se muestra en la Tabla 7 y en la FIG. 14. También se observó que con una proporción estequiométrica de 1:1, la entalpía del calor de reacción representada en función de la temperatura era bimodal con un límite de temperatura superior de 180 °C (véase la FIG. 15). Las composiciones de la invención basadas en un desequilibrio estequiométrico tenían una sola curva asimétrica con un límite de temperatura superior de aproximadamente 140 °C (véase la FIG. 16). Una temperatura más baja es mejor para las pilas de combustible que funcionan a menos de 100 °C. La mayoría de la reacción se completó por debajo de 120 °C, lo que es deseable para pilas de combustible de PEM a baja temperatura. El rendimiento del PEM se puede degradar severamente a temperaturas elevadas; por lo tanto, es deseable mantener las temperaturas de curado por debajo de 130 °C, tal como por debajo de 120 °C.

Los espectros de infrarrojos se compararon para las composiciones con una proporción estequiométrica de 1:1 y 1,5:1 usando un método matemático de sustracción para validar que existe una concentración excesiva de Si-H en la red curada que contiene una cantidad en exceso de Si-H en comparación con una red estequiométrica. El espectro de sustracción era coherente con los espectros para el agente de reticulación puro de 4000 a 1200  $\text{cm}^{-1}$ .

#### Ejemplo 4: Composiciones de la Invención Con 1,9-Decadieno

La Composición de la Invención N.º 32 se preparó tal como que se muestra a continuación en la Tabla 8 con 1,9-decadieno y un agente de reticulación de decadieno bicíclico. Esta composición demostró excelentes datos de reacción, por ejemplo, datos exotérmicos y calor de reacción.

Tabla 8

<u>Adición de Decadieno A Resinas Bifuncionales</u>	
<u>Descripción</u>	<u>Composición de la Invención 32</u>
Poliisobutileno Terminado en Alqueno (5.000 Mn), gramos	50
Agente de Reticulación de Decadieno Bicíclico (1), gramos	5
1,9-decadieno, gramos	9,4
Catalizador de Platino (2), microlitros	4,6
Partes por millón de Platino por Grupo Alqueno (mppm)	5
Inicio de Exotermia (°C)	59
Máximo de Exotermia (°C)	86
Calor de Reacción (Julios por gramo)	104,7
(1) Producto de reacción de 1,9-decadieno y 2,4,6,8-tetrametilciclotetrasiloxano.	
(2) Complejo de Platino (0) 0,1 M -- 1,3-Divinil-1,1,3,3-tetrametildisiloxano en xileno	

#### Ejemplo 5

Las formulaciones de base de la invención se prepararon a partir de los componentes que se muestran en la Tabla 9 y cómo sigue a continuación:

Tabla 9

<u>Formulación de Base de Agente de Sellado de Poliisobutileno (Formulación de Base de la Invención A)</u>		
<u>Proveedor</u>	<u>Descripción Química</u>	<u>% en Peso</u>
Kaneka	Epion EP200A	64,50 %
Kaneka	Epion EP400A	21,50 %
Degussa	Diluyente reactivo de TVCH	1,17 %
Kaneka	Agente de Reticulación CR300	12,83 %
	<b>Total:</b>	<b>100,00 %</b>

Formulación de Base de Agente de Sellado de Poliisobutileno (Formulación de Base de la Invención A)

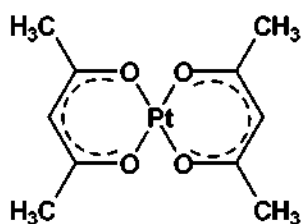
EP200A y EP400A son resinas suministradas por Kaneka.  
CR300 es un agente de reticulación de fenilsiloxano suministrado por Kaneka.

Procedimiento de Mezcla:

1. Añadir todos los ingredientes.
2. Mezclar con pala Cowles durante 15 minutos hasta homogeneidad.

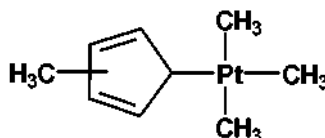
Se usó un complejo de platino activable con UV y la reacción de hidrosilación se inició después de y radiación y continúa después de la retirada de la radiación (post curado).

- 10 Los complejos de platino inestables a UV examinados incluyen:



2,4-Pentanedionato de platino (II) ("Pt(acac)<sub>2</sub>")

15



(Trimetil)metilciclopentadienilplatino (IV) ("TMMCP").

- 20 Como se muestra a continuación, se realizaron reducciones sustanciales en el tiempo de curado junto con eliminación de calor potencialmente perjudicial.

Ejemplo 6: Poliisobutileno/Silano Curado con W

- 25 En este ejemplo se usó la Formulación de Base de la Invención A usada en el Ejemplo 5, es decir, PIB insaturados con agente de reticulación de fenilsilano.

En la Formulación de Base de la Invención A se evaluaron las siguientes combinaciones de catalizador:

- 30 a. La Composición de la Invención N.º 33 (Pt(acac)<sub>2</sub>, (49,6 % de Pt) @ 100 ppm de Pt) se preparó mezclando 100 g de la Formulación de Base de la Invención A con 0,68 g de Pt(acac)<sub>2</sub> al 3 % en CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>.
- 35 b. La Composición de la Invención N.º 34 (TMMCP, (61,1 % de Pt) @ 50 ppm de Pt) se preparó mezclando 100 g de la Formulación de Base de la Invención A con 0,16 g de TMMCP al 5 % en EtOAc.
- c. La Composición de la Invención N.º 35 (TMMCP, (61,1 % de Pt) @ 100 ppm de Pt) se preparó mezclando 100 g de la Formulación de Base de la Invención A con 0,32 g de TMMCP al 5 % en EtOAc.

- 40 Se colocaron 5 gramos de muestras de las Composiciones de la Invención N.ºs 33-35 en bandejas de aluminio pequeñas y se irradiaron con la lámpara Oriol a 8 mW/cm<sup>2</sup> de UV-B o la Zeta 7216 a 100 mW/cm<sup>2</sup> de UV-B, como se indica a continuación en la Tabla 10.

Tabla 10

Intensidad de Oriol: 8 mW/cm <sup>2</sup> Intensidad de Zeta: 100 mW/cm <sup>2</sup>					
Composición de la Invención	Tiempo de Irradiación (min)	Lámpara	Propiedades de Curado	Propiedades a 30 Minutos	Propiedades a 24 Horas
33	5	Oriol	Viscosa, húmeda	Pegajosa, firme	Ligeramente pegajosa, firme
34	5	Oriol	Pegajosa, algo curada	Sin cambios	Ligeramente pegajosa, firme
35	5	Oriol	Muy ligeramente pegajosa; firme	Sin cambios	Sin cambios
35	1	Zeta	Pegajosa, firme	Sin cambios	Sin cambios

5 Los resultados mencionados anteriormente confirman la viabilidad del curado con platino activado con UV, con tiempos de curado muy reducidos del curado con calor. La Composición de la Invención N.º 35 curado con la lámpara Oriol presentaba propiedades superficiales tan buenas o mejores como las del control curado con calor.

Como muestran los datos, parece más deseable utilizar intensidades menores durante periodos de tiempo más largos que intensidades más elevadas durante periodos de tiempo de irradiación más cortos.

10 Ejemplo 7: Poliisobutileno/Silano Curado con UV, 200 ppm de Pt

En este ejemplo se usó la Formulación de Base de la Invención A del Ejemplo 5, es decir PIB insaturado con agente de reticulación de fenilsilano.

15 Se evaluaron las siguientes combinaciones de catalizador:

a. La Composición de la Invención N.º 36 (Pt(acac)<sub>2</sub>, (49,6 % de Pt) @ 200 ppm de Pt) se preparó mezclando 50 g de la Formulación de Base de la Invención A con 0,68 g de al 3 % Pt(acac)<sub>2</sub> en CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>.

20 b. La Composición de la Invención N.º 37 (TMMCP, (61,1 % de Pt) @ 200 ppm de Pt) se preparó mezclando 50 g de la Formulación de Base de la Invención A con 0,32 g de TMMCP al 5 % en EtOAc.

Se colocaron 5 gramos de las Composiciones de la Invención N.ºs 36 y 37 en bandejas de aluminio pequeñas y se irradiaron con la lámpara Oriol a 8 mW/cm<sup>2</sup> de UV-B, como se indica a continuación en la Tabla 11.

25

Tabla 11

Intensidad de Oriol: 8 mW/cm <sup>2</sup>					
Composición de la Invención	Tiempo de Irradiación (min)	Lámpara	Propiedades de Curado	Propiedades a 30 Minutos	Propiedades a 24 Horas
36	1	Oriol	No curada	Muy pegajosa, blanda	Ligeramente pegajosa, firme
36	2	Oriol	No curada	Pegajosa, blanda	Ligeramente pegajosa, firme
36	3	Oriol	Pegajosa, blanda	Ligeramente pegajosa, firme	Superficie seca, firme
37	1	Oriol	Muy pegajosa, blanda	Pegajosa, blanda	Ligeramente pegajosa, firme
37	2	Oriol	Ligeramente pegajosa, blanda	Sin cambios	Superficie seca, firme
37	3	Oriol	Ligeramente pegajosa, firme	Sin cambios	Superficie seca, firme

Como se ha mostrado anteriormente, el curador que no se obtiene después de 3 minutos de irradiación, con un post curado notablemente evidente después de 24 horas y de la manera más notable en sistemas de  $\text{Pt}(\text{acac})_2$ .

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para formar una pila de combustible que comprende:

5 proporcionar un componente de pila de combustible;  
 proporcionar un molde que tiene una cavidad;  
 colocar el molde de modo que la cavidad se encuentre en comunicación fluida con el componente de pila de combustible;  
 10 aplicar una composición de sellado líquida curable en la cavidad; y  
 curar la composición, en el que la composición de sellado comprende:

un oligómero de hidrocarburo terminado en alquenilo;  
 un monómero de alquenilo polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos;  
 15 un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio; y  
 un catalizador de hidrosililación.

2. El método de la reivindicación 1, en el que el componente de pila de combustible se selecciona entre el grupo que consiste en una placa de campo de flujo de cátodo, una placa de campo de flujo de ánodo, un marco de resina, una  
 20 capa de difusión de gas, una capa de catalizador de ánodo, una capa de catalizador de cátodo, un electrolito de membrana, un marco de conjunto de membrana-electrodo, y combinaciones de los mismos.

3. El método de la reivindicación 1, en el que el componente de pila de combustible es un conjunto de electrodo de membrana que comprende una capa de difusión de gas.

25 4. El método de la reivindicación 3, en el que la etapa de aplicar el agente de sellado comprende adicionalmente:

aplicar presión al agente de sellado de modo que el agente de sellado penetra en la capa de difusión de gas.

30 5. El método de la reivindicación 3, en el que la etapa de aplicar el agente de sellado comprende adicionalmente:

aplicar el agente de sellado de modo que un borde del conjunto de electrodo de membrana se cubre completamente con el agente de sellado.

35 6. El método de la reivindicación 1, en el que, la etapa de curar la composición comprende:

curar térmicamente el agente de sellado a una temperatura de aproximadamente 130 °C o inferior.

40 7. El método de la reivindicación 1, en el que, la etapa de curar la composición comprende:

proporcionar radiación actínica para curar el agente de sellado aproximadamente a temperatura ambiente.

8. El método de la reivindicación 7, en el que el molde es transmisor a la radiación actínica.

45 9. El método de la reivindicación 7, en el que la composición de sellado curable comprende un material curable con radiación actínica seleccionado entre el grupo que consiste en (met)acrilato, uretano, poliéter, poliolefina, poliéster, copolímeros de los mismos y combinaciones de los mismos.

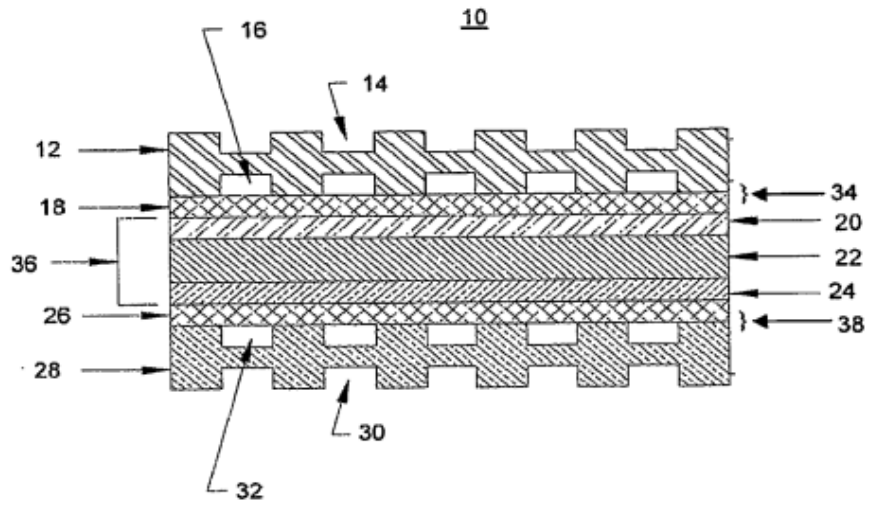
50 10. El método de la reivindicación 7, en el que la composición de sellado curable comprende un poliisobutileno con grupo funcional telequérico, un agente de reticulación de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio, un catalizador de platino y un fotoiniciador.

55 11. El método de la reivindicación 1, en el que el oligómero de hidrocarburo terminado en alquenilo comprende un oligómero de poliisobutileno terminado en alquenilo.

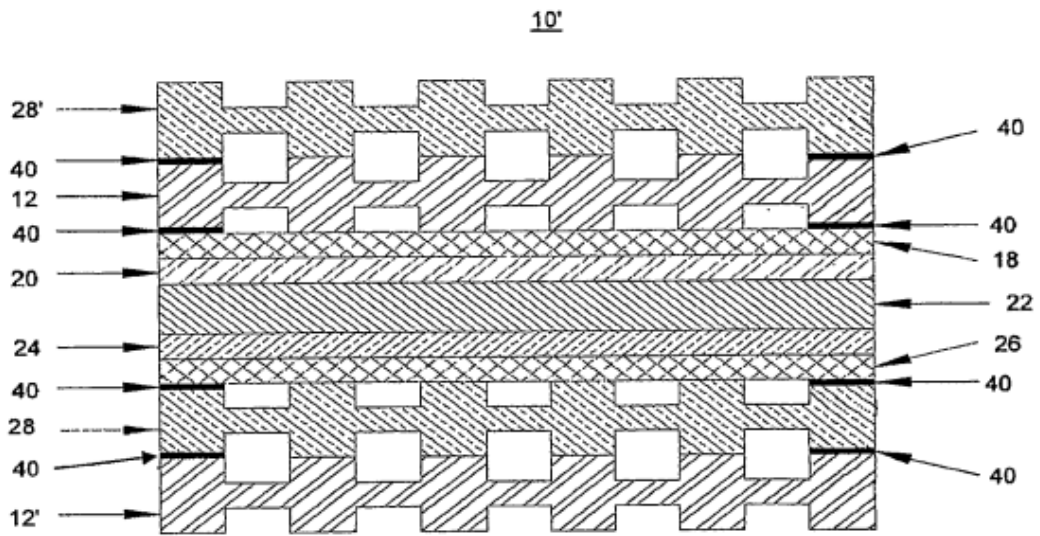
12. Un conjunto de electrodo de membrana que tiene una composición de sellado curada colocada sobre porciones periféricas del conjunto, en el que la composición de sellado curada comprende:

un oligómero de dialil poliisobutileno terminado en alquenilo,  
 60 un monómero de alquenilo polifuncional seleccionado entre 1,9-decadieno, 1,2,4-trivinilciclohexano y combinaciones de los mismos;  
 un endurecedor de sililo que tiene al menos aproximadamente dos grupos funcionales de hidruro de silicio;  
 un catalizador de hidrosililación; y  
 un agente de iniciación o de reticulación de peróxido.

65



**Fig. 1**



**Fig. 2**

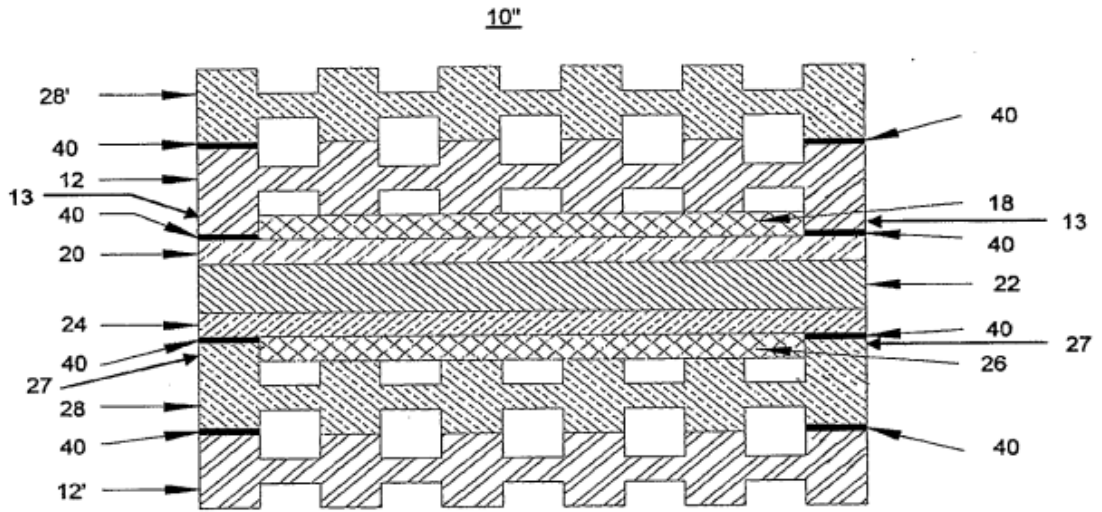


Fig. 3

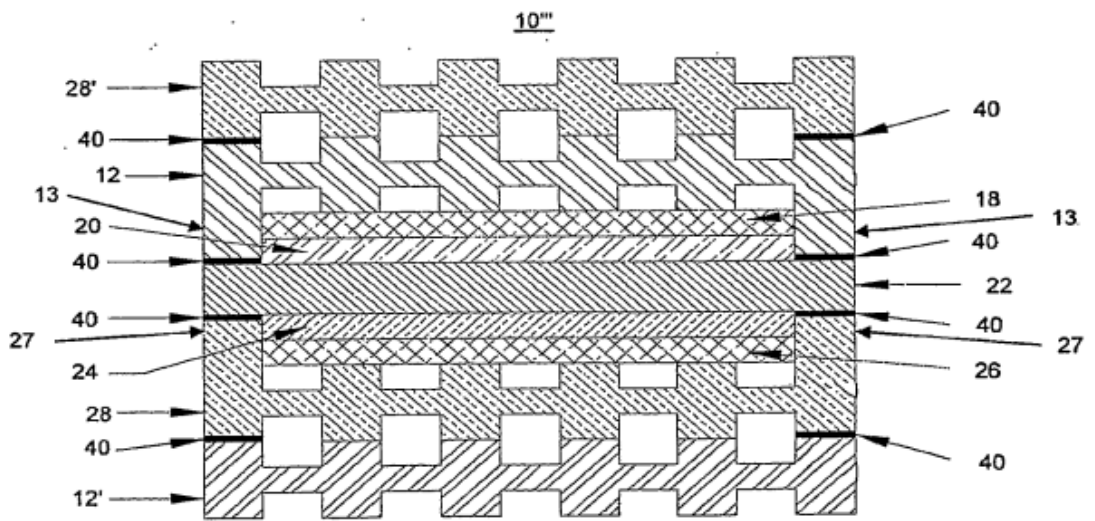


Fig. 4



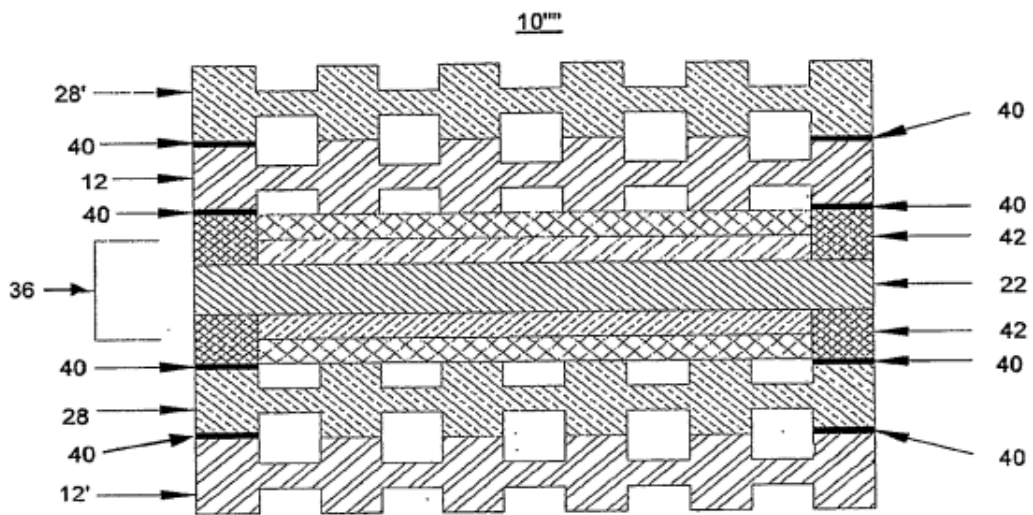


Fig. 5

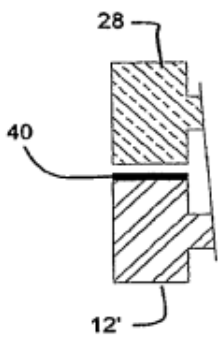


Fig. 6

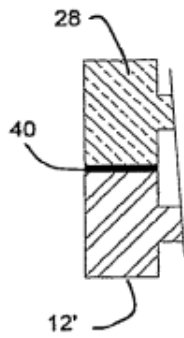


Fig. 7

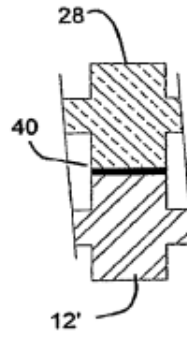


Fig. 8

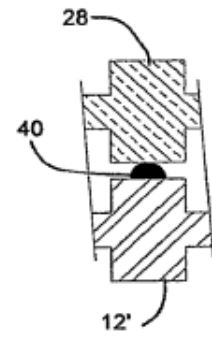


Fig. 9

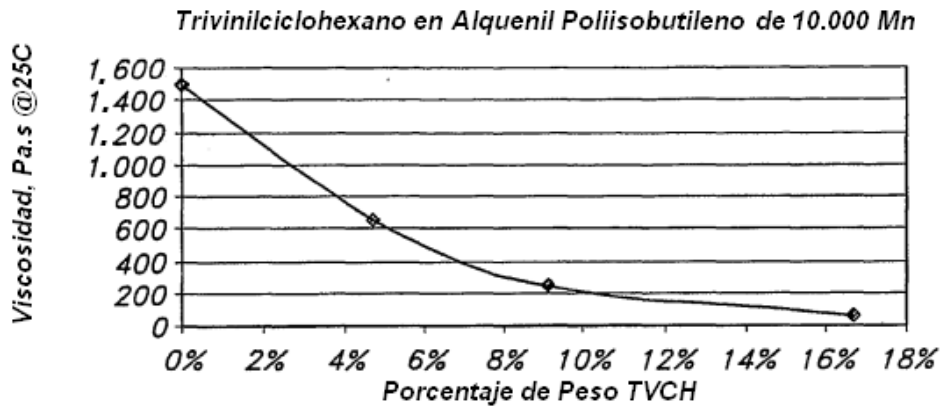


FIG. 10

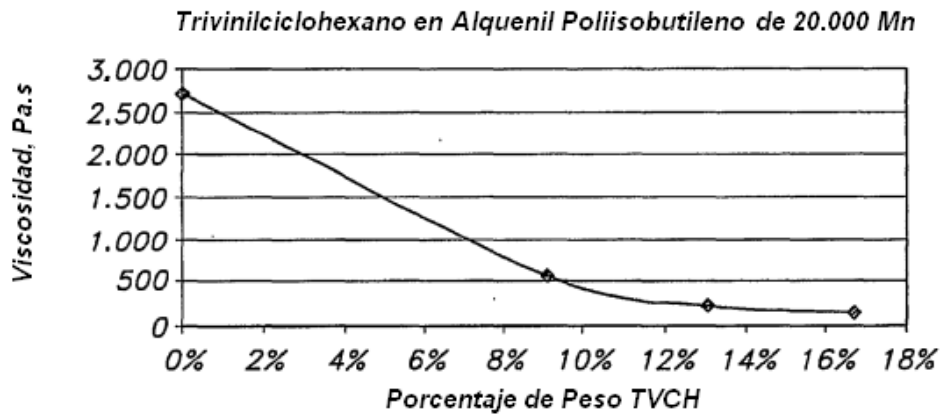


FIG. 11

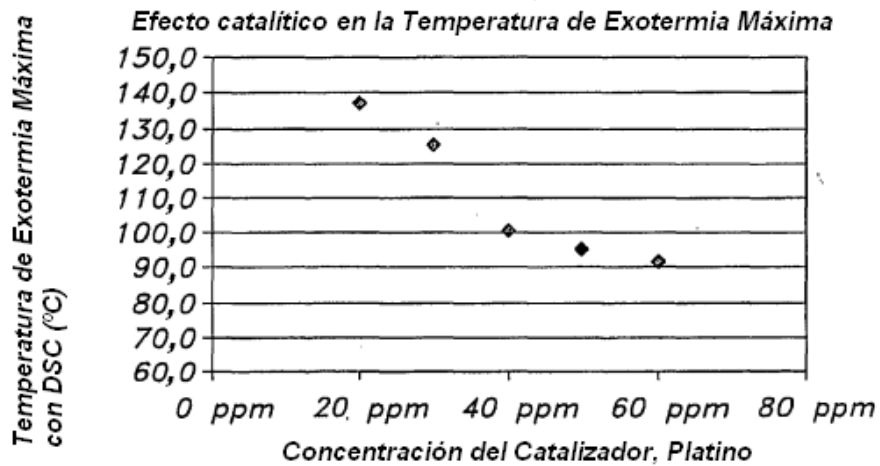


FIG. 12

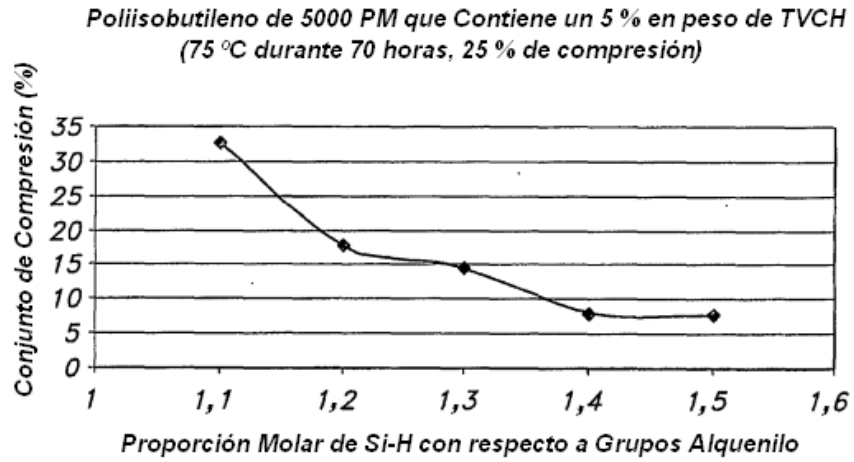


FIG. 13

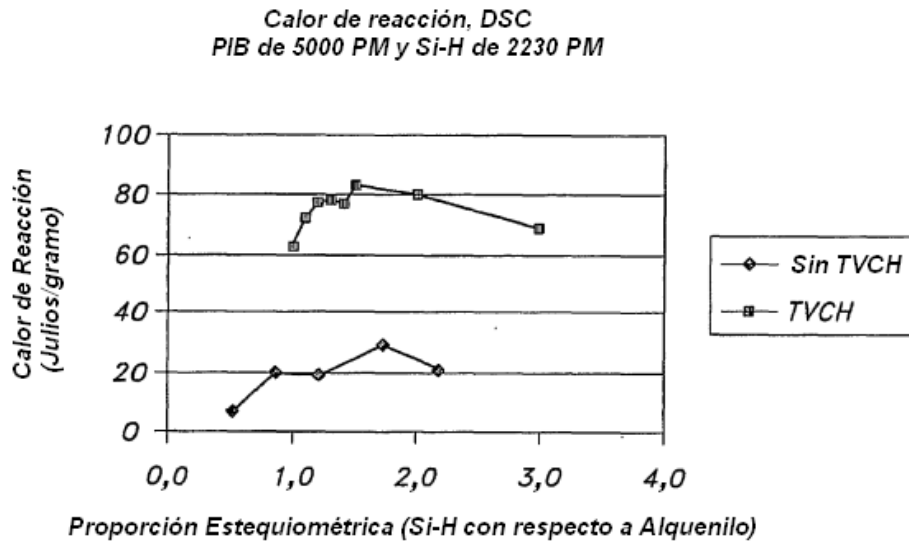


FIG. 14

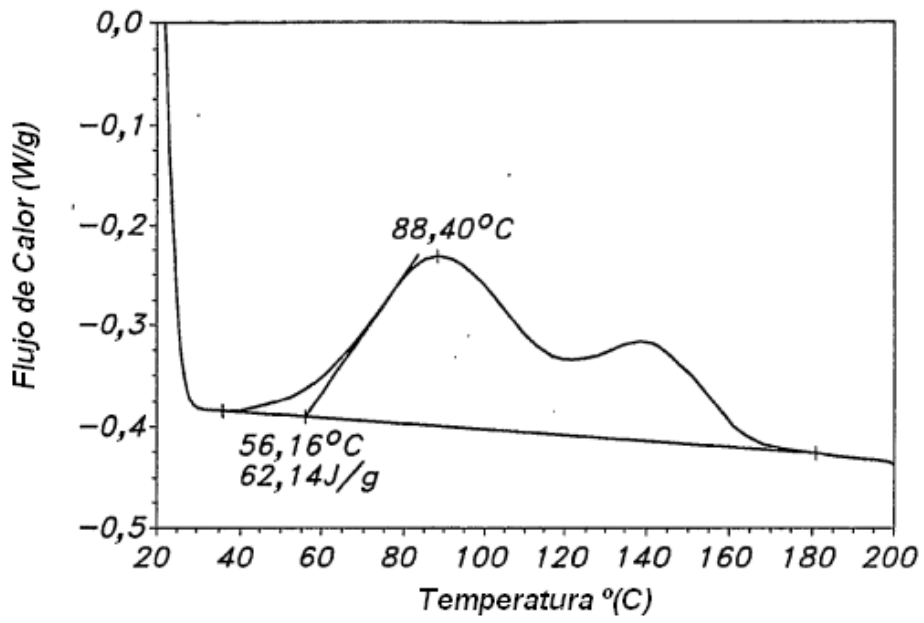


FIG. 15

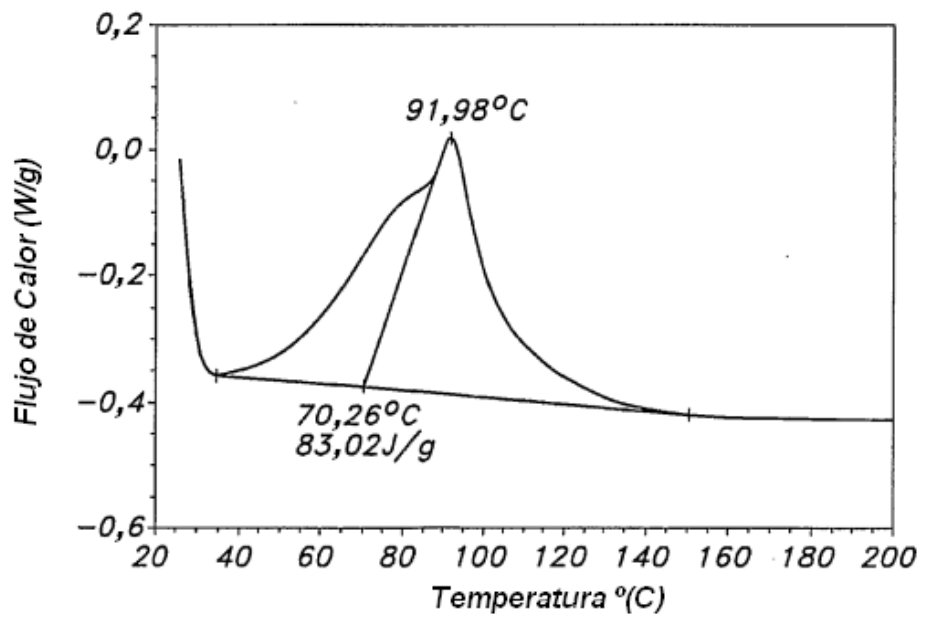


FIG. 16

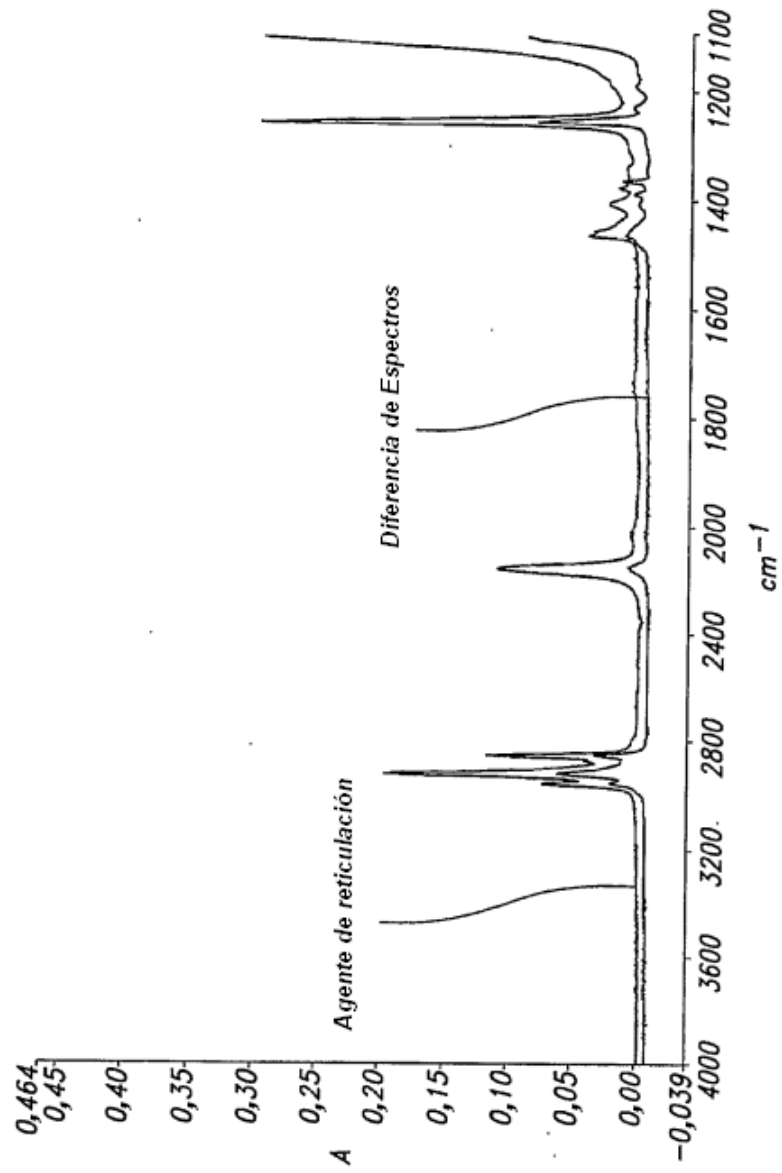
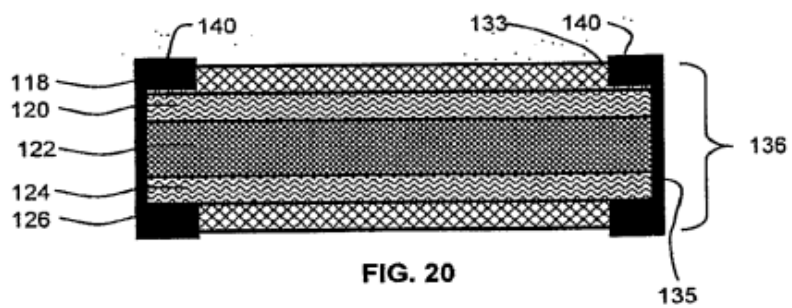
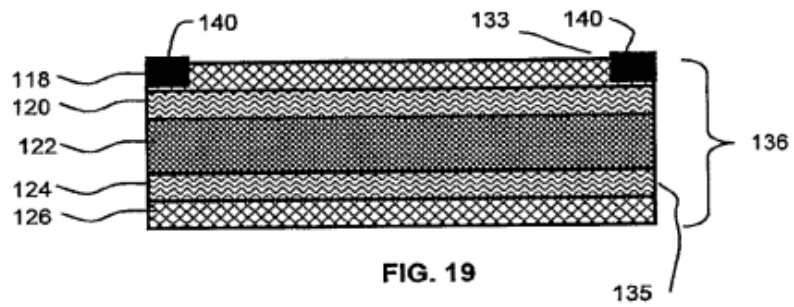
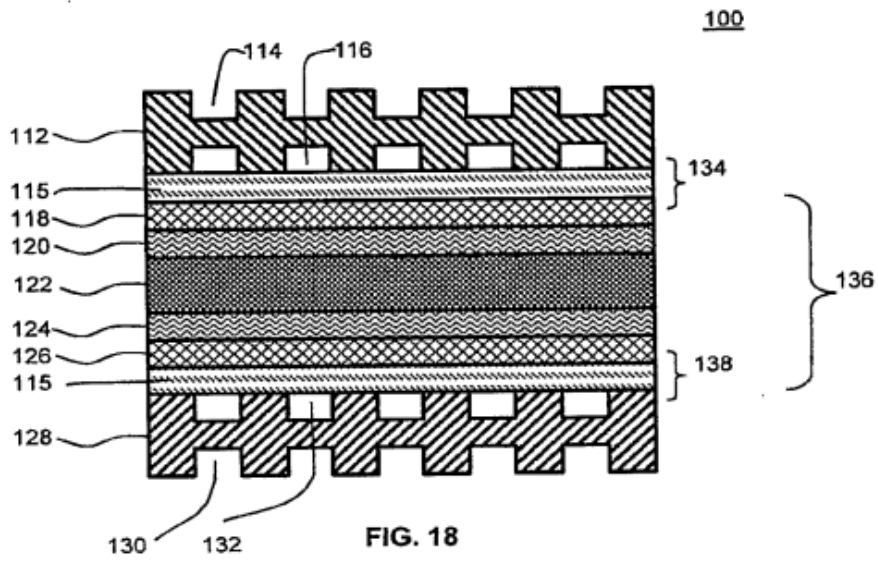


FIG. 17



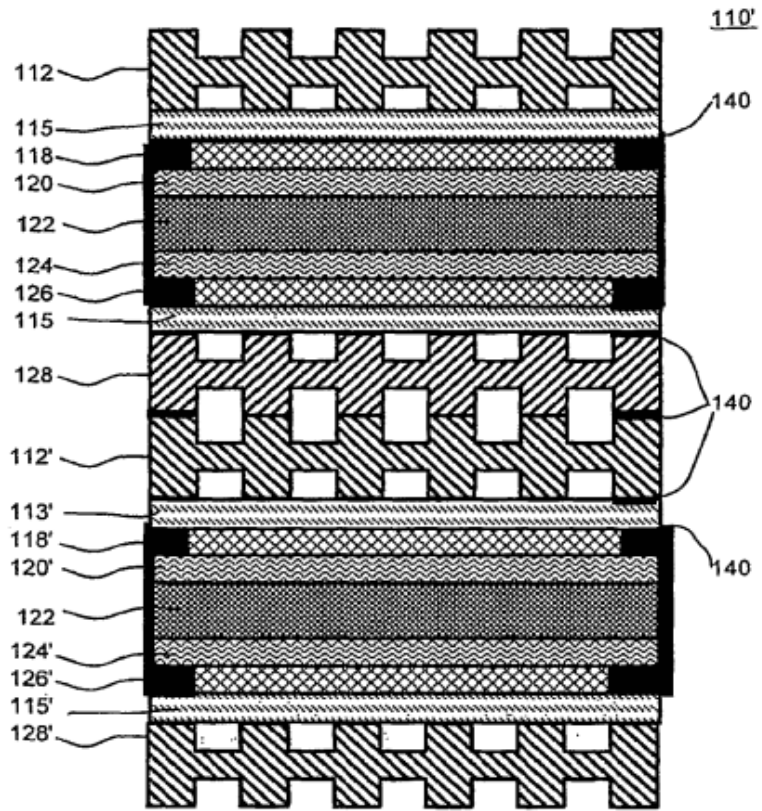


FIG. 21

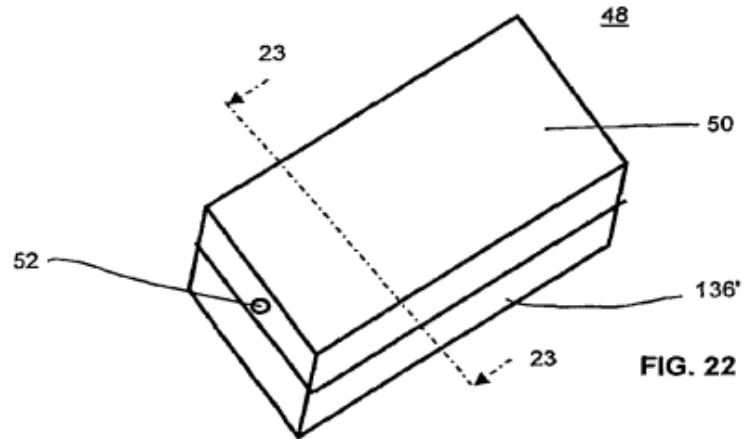


FIG. 22

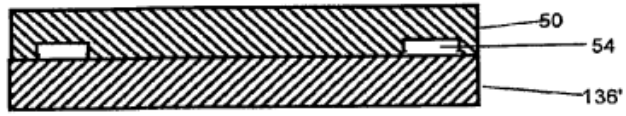


FIG. 23

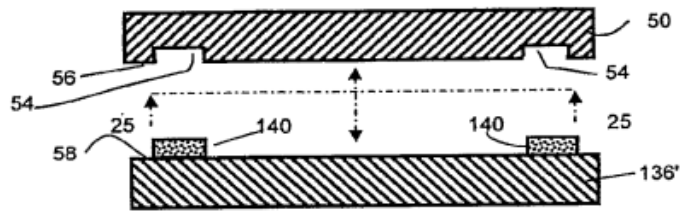


FIG. 24



FIG. 26



FIG. 27



FIG. 28

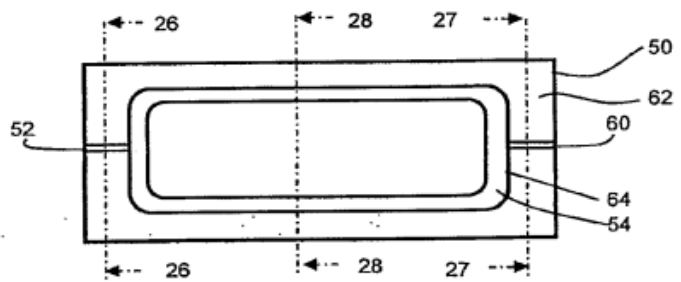
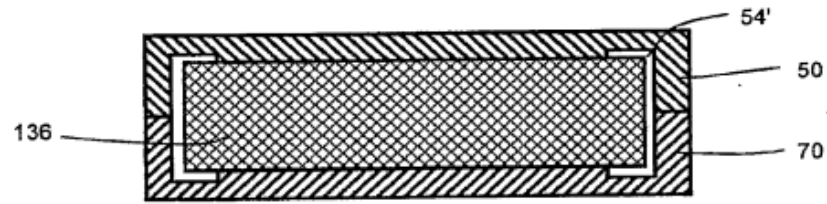
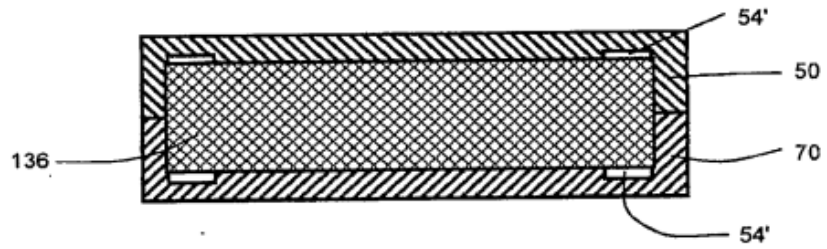
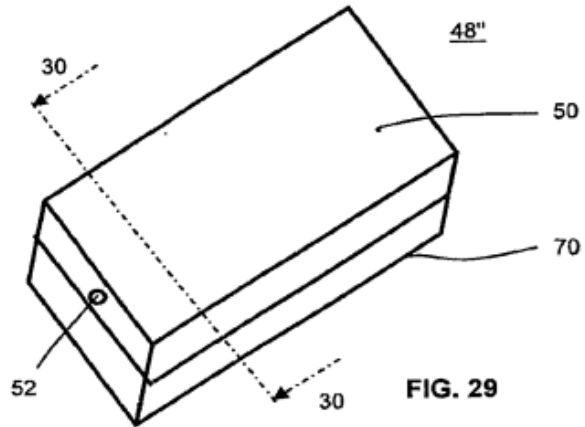


FIG. 25





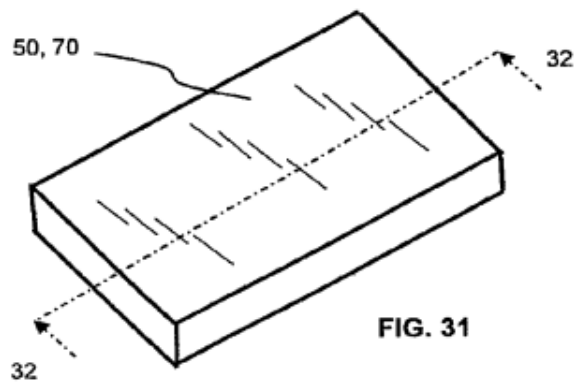


FIG. 32

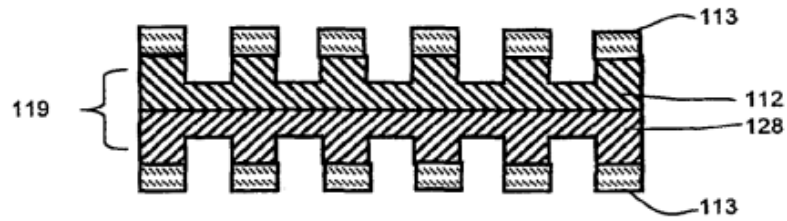


FIG. 33

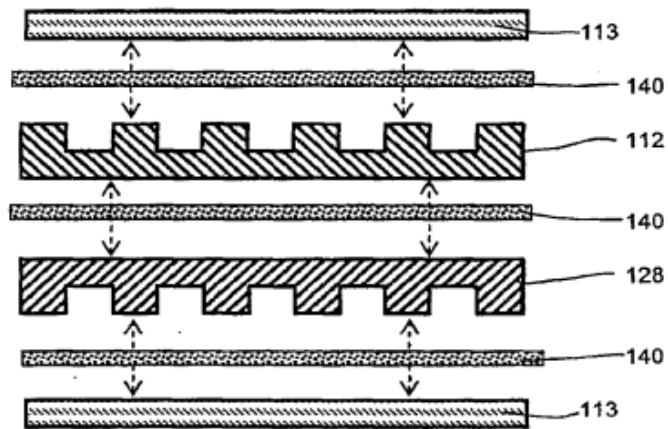


FIG. 34

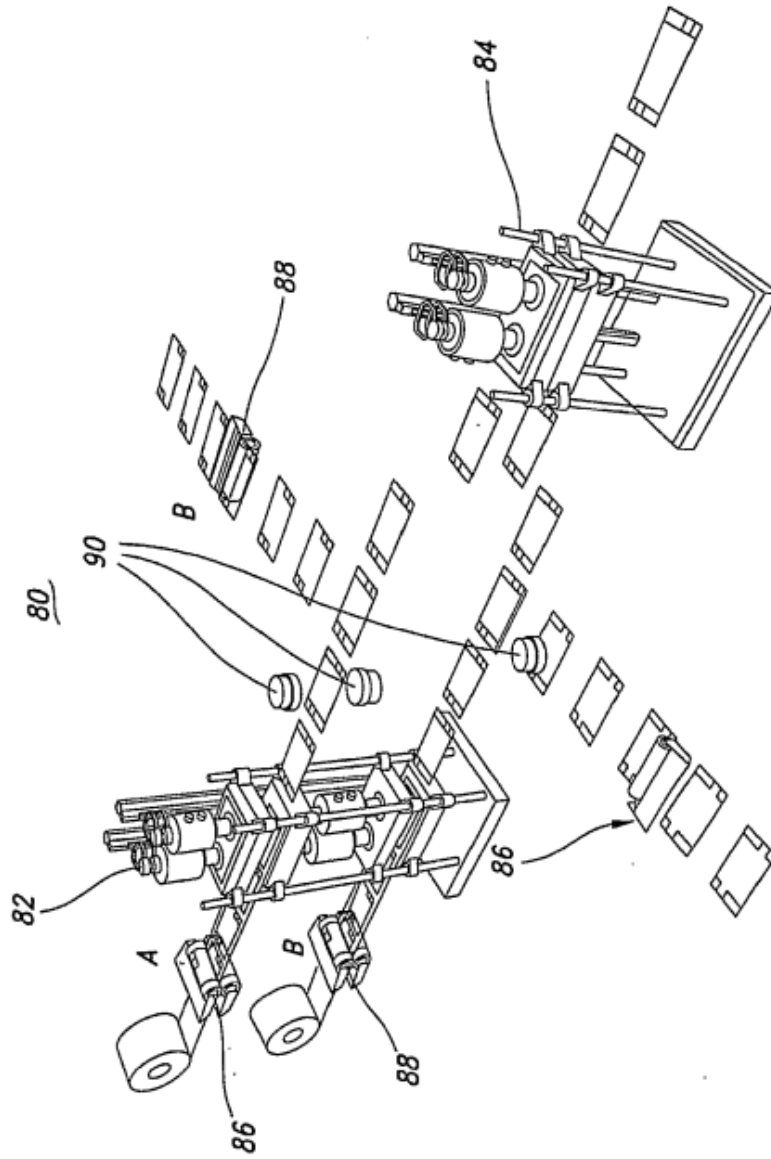


FIG. 35