

(19)



(11)

EP 4 112 781 A1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
04.01.2023 Patentblatt 2023/01

(21) Anmeldenummer: **21182692.0**

(22) Anmeldetag: **30.06.2021**

(51) Internationale Patentklassifikation (IPC):

C25B 3/25 ^(2021.01) **C25B 9/23** ^(2021.01)
C25B 11/052 ^(2021.01) **C25B 11/053** ^(2021.01)
C25B 11/061 ^(2021.01) **C25B 11/067** ^(2021.01)
C25B 11/075 ^(2021.01) **C25B 11/089** ^(2021.01)

(52) Gemeinsame Patentklassifikation (CPC):

C25B 3/25; C25B 1/04; C25B 9/23; C25B 11/052;
C25B 11/053; C25B 11/061; C25B 11/067;
C25B 11/075; C25B 11/089

(84) Benannte Vertragsstaaten:

AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB
GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO
PL PT RO RS SE SI SK SM TR

Benannte Erstreckungsstaaten:

BA ME

Benannte Validierungsstaaten:

KH MA MD TN

(71) Anmelder: **Siemens Energy Global GmbH & Co.**
KG
81739 München (DE)

(72) Erfinder:

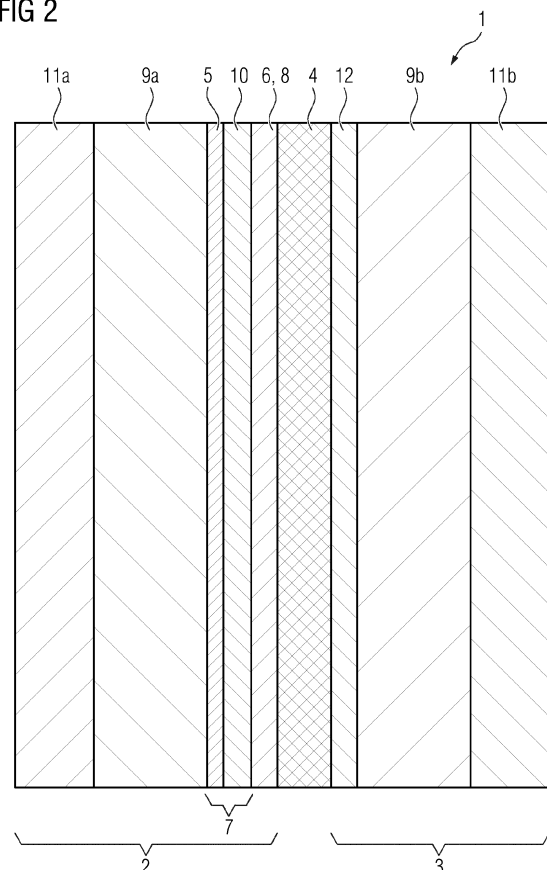
- **Neubert, Heinz**
73095 Albershausen (DE)
- **Klinger, Andre**
90429 Nürnberg (DE)
- **Musayev, Yashar**
90425 Nürnberg (DE)
- **Schmid, Günter**
91334 Hemhofen (DE)

(54) **ELEKTROLYSEZELLE ZUR POLYMERELEKTROLYTMEMBRAN-ELEKTROLYSE UND VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG**

(57) Es wird eine Elektrolysezelle (1) zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse mit einer kathodischen Halbzelle (2) und einer anodischen Halbzelle (3) angegeben, wobei die kathodische Halbzelle (2) und die anodische Halbzelle (3) mittels einer Polymerelektrolytmembran (4) voneinandergetrennt sind. Die kathodische Halbzelle (2) weist ein erstes Katalysatormaterial (5), ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff, auf.

Daneben wird ein Verfahren (100) zur Herstellung einer Elektrolysezelle (1) zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse angegeben.

FIG 2



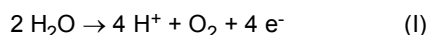
EP 4 112 781 A1

Beschreibung

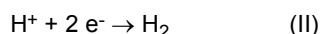
[0001] Die Erfindung betrifft eine Elektrolysezelle zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse, ein Verfahren zur Herstellung einer solchen Elektrolysezelle, die Verwendung einer solchen Elektrolysezelle sowie die Verwendung eines Katalysatormaterials.

[0002] Wasserstoff kann mittels Elektrolyse aus deionisiertem Wasser gewonnen werden. Dabei laufen die elektrochemischen Zellreaktionen der Wasserstoffbildungsreaktion (HER) und Sauerstoffbildungsreaktion (OER) ab. Im Fall der sauren Elektrolyse können die genannten Reaktionen an Anode und Kathode wie folgt definiert werden:

Anode



Kathode



[0003] Bei der sogenannten Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse (PEM-Elektrolyse) werden die zwei Teilreaktionen gemäß den Gleichungen (I) und (II) räumlich getrennt voneinander durchgeführt. Die Trennung der Reaktionsräume erfolgt mittels einer protonenleitfähigen Membran, der Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM), auch unter dem Begriff Protonenaustauschmembran bekannt. Die PEM sorgt für eine weitgehende Trennung der Produktgase Wasserstoff und Sauerstoff, die elektrische Isolierung der Elektroden sowie die Leitung der Wasserstoffionen als positiv geladene Teilchen. Eine PEM-Elektrolyseanlage ist beispielsweise aus der EP 3 489 394 A1 bekannt. Figur 1 zeigt schematisch den Aufbau einer PEM-Elektrolysezelle gemäß dem

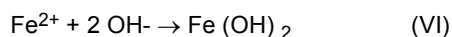
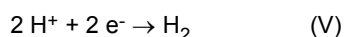
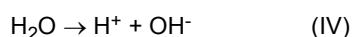
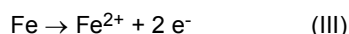
Stand der Technik.

[0004] Die genannten Zellreaktionen gemäß den Gleichungen (I) und (II) befinden sich unter Berücksichtigung des Entropiezuwachses bei Wechsel des flüssigen Wassers zum gasförmigen Wasserstoff bzw. Sauerstoff bei einer Zellspannung von 1,48 V mit ihren Rückreaktionen im Gleichgewicht. Um entsprechend hohe Produktströme in angemessener Zeit (Produktionsleistung) und damit einen Stromfluss zu erreichen, ist eine höhere Spannung, die Überspannung, notwendig. Die PEM-Elektrolyse wird deshalb bei einer Zellspannung von ca. 1,8 - 2,1 V durchgeführt.

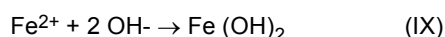
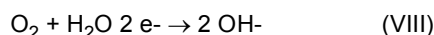
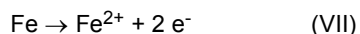
[0005] Die PEM-Elektrolysezelle gemäß dem Stand der Technik, siehe z. B. Kumar, S, et al., Hydrogen production by PEM water electrolysis - A review, Materials Science for Energy Technologies, 2 (3) 2019, 442-454. <https://doi.org/10.1016/j.mset.2019.03.002>, besteht von außen nach innen betrachtet aus zwei Bipolarplatten, Gasdiffusionsschichten, Katalysatorschichten und der PEM. An der Anode ergeben sich auf Grund der Bildungsreaktion des Sauerstoffs hohe oxidative Potentiale, weshalb Werkstoffe mit schneller Passivierungskinetik, z. B. Titan, beispielsweise für die Gasdiffusionsschicht eingesetzt werden.

[0006] Kathodisch ist das Potential weniger oxidativ, so dass Gasdiffusionsschichten aus Edelstahl gefertigt werden können. Allerdings korrodieren diese unter anderem durch das saure Milieu der PEM-Elektrolyse. Dieser Korrosionsprozess wird Säurekorrosion genannt. Hierbei ist ein Vorliegen von elementarem Sauerstoff nicht notwendig, da dieser durch die Dissoziation des umliegenden Wassers bereitgestellt wird. Die Metallionen an der Grenzfläche der Metalloberfläche werden durch das Hydroxid anion zum jeweiligen Hydroxidsalz oxidiert. Dies führt zu einer Degradation der Zelle, welche sich durch einen erhöhten Innenwiderstand und durch Fremdeintrag von Ionen in die PEM äußert.

[0007] Beispielhaft sind die an der Bildung von Fe(II)-hydroxid durch Säurekorrosion beteiligten Reaktionen nachfolgend in den Gleichungen (3) bis (6) dargestellt.



[0008] Falls zusätzlich Sauerstoff im Elektrolyten vorhanden ist, kommt es zur sogenannten Sauerstoffkorrosion (Gleichungen (VII) bis (IX)). Hierbei werden Hydroxidionen direkt über den Sauerstoff zur Verfügung gestellt:



[0009] Dadurch, dass auf Grund des stark sauren Milieus nur ein geringer Anteil an dissoziiertem Wasser vorliegt, ist anzunehmen, dass der Eintrag von Sauerstoff in den Elektrolyten zu einer höheren Hydroxidionenkonzentration und damit zu einer deutlich höheren Korrosionsrate der Sauerstoffkorrosion im Vergleich zur Säurekorrosion führt. Die Problematik der Druckabhängigkeit des vorstehend beschriebenen sog. Sauerstoff-Crossover wird näher erläutert in: Schalenbach, M. et al. Pressurized PEM water electrolysis: Efficiency and gas crossover, Intern. J. Hydr. Ener., 38 (35) 2013, 14921 - 14933. <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.09.013>

[0010] Anzumerken ist zudem, dass bei hoher Hydroxidionenkonzentration, d. h. bei einem hohen pH-Wert (alkalisches Milieu), die gesamte Oberfläche von einer Oxidschicht bedeckt ist. Dieser Mechanismus ist als Passivierung bekannt und führt dazu, dass keine Metallionen an der Grenzfläche vorliegen und das Metall sich somit nicht mehr auflösen kann.

[0011] Es bleibt festzuhalten, dass Sauerstoff im Kathodenraum somit zu erhöhten Korrosionsraten und einer geringen Wasserstoffreinheit führt. Der Transport des Sauerstoffs von der Anode zur Kathode kann durch zwei Effekte erfolgen: die konzentrationsgetriebene Diffusion und den "elektroosmotischen drag". Der erste Effekt bezieht sich auf ein Lösungs-Diffusions-Modell der PEM, bei dem der Sauerstoff sich zunächst an der Grenzfläche im Polymer löst und anschließend durch den Konzentrationsgradienten getrieben auf die Kathodenseite wandert. Im Fall des "elektroosmotischen drags" werden die Sauerstoffmoleküle durch die sich durch die PEM bewegendenden Ionen mitgerissen und gelangen somit auf die Kathodenseite. Letztgenannter Effekt ist auf Grund des nicht vorhandenen Dipolmoments des Sauerstoffs meist zu vernachlässigen.

[0012] Durch die vorstehend beschriebene Korrosion erhöht sich die Impedanz des Gesamtsystems, wodurch mit geringerer Effizienz des Elektrolyseprozesses zu rechnen ist. Außerdem kann durch den Eintrag der gelösten Ionen aus dem Metall in die PEM deren Struktur nachhaltig geschädigt werden, was sich unter anderem negativ auf die mechanische Stabilität auswirken kann. Insbesondere ist die Gasdiffusionsschicht mit ihrer großen Oberfläche prädestiniert für einen korrosiven Angriff.

[0013] Durch die Verunreinigung des Wasserstoffs mit Sauerstoff ist zudem je nach angedachter Verwendung des erzeugten Wasserstoffs eine aufwändige Aufreinigung des Wasserstoffs erforderlich.

[0014] Aus dem Stand der Technik sind einige Ansätze zur Lösung vorstehend erläuterter Probleme bekannt. So kann durch die Betriebsweise des Elektrolyseurs bei kleinem Druck im Anoden- und Kathodenraum die Löslichkeit des Sauerstoffs in der PEM verringert werden, wodurch ebenfalls die Permeabilität des Sauerstoffs durch die PEM sinkt. Damit sinkt ebenfalls die Sauerstoffkonzentration im Kathodenraum. Auf Grund der energetischen Vorteile einer Elektrolyseeinheit mit elektrochemischer Verdichtung ist diese Betriebsweise in der Regel keine Lösung für das eigentliche Problem.

[0015] Durch kathodenseitige Beschichtung der Gasdiffusionsschichten kann eine gewisse Korrosionsstabilität und damit eine Stabilität gegenüber dem Angriff durch Sauerstoff erzielt werden. Die Herstellung solcher beschichteter Gasdiffusionsschichten erweist sich auf Grund der großporigen Gasdiffusionsschicht als aufwändig.

[0016] Materialeitig sind Chrom-Nickel-Basisstähle mit einem Masseanteil an Nickel von > 8 % sowie hohen Chromanteilen auf Grund deren schneller Passivierungskinetik zu bevorzugen. Chrom bildet dicke CrO₃-Passivierungsschichten aus, welche vom Sauerstoff nur schwer zu durchdringen sind.

[0017] Die vorstehend genannten Ansätze lösen jedoch das eigentliche Problem der Sauerstoffkorrosion nicht, sondern erhöhen lediglich die Widerstandsfähigkeit des Materials gegen diesen Korrosionstyp.

[0018] Die Erhöhung der Reinheit des Wasserstoffs kann gemäß dem Stand der Technik, siehe z. B. Du, Z.; Liu, C.; Zhai, J.; Guo, X.; Xiong, Y.; Su, W.; He, G. A Review of Hydrogen Purification Technologies for Fuel Cell Vehicles. Catalysts 2021, 11, 393. <https://doi.org/10.3390/catal11030393>, großtechnisch durch Ausfrieren oder mittels hochselektiver Membranverfahren erfolgen. Nachteilig an beiden Maßnahmen ist der hohe Energiebedarf.

[0019] Vor diesem Hintergrund ist es Aufgabe der Erfindung, eine Elektrolysezelle zur Verfügung zu stellen, mit der die vorstehend genannten Probleme verringert oder sogar gänzlich vermieden werden können. Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung einer solchen Elektrolysezelle anzugeben.

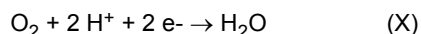
[0020] Gelöst wird diese Aufgabe durch die Gegenstände der unabhängigen Ansprüche. Die abhängigen Ansprüche betreffen bevorzugte Ausgestaltungen der erfindungsgemäßen Lösungen.

[0021] Ein erster Aspekt der Erfindung betrifft eine Elektrolysezelle zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse mit einer kathodischen Halbzelle und einer anodischen Halbzelle, wobei die kathodische Halbzelle und die anodische Halbzelle mittels einer Polymerelektrolytmembran voneinander getrennt sind. Die kathodische Halbzelle weist ein erstes Katalysatormaterial, ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff, auf.

[0022] Zu den Begriffen Elektrolyse und Polymerelektrolytmembran sowie den ablaufenden Reaktionen und (Korro-

sions)prozessen wird auf die einleitenden Erläuterungen verwiesen. Die Polymerelektrolytmembran kann beispielsweise aus einem tetrafluorethylen-basierten Polymer mit sulfonierten Seitengruppen gebildet sein. Die kathodische Halbzelle bildet den Reaktionsraum, in dem die Kathodenreaktion(en), z. B. gemäß Gleichung (II) ablaufen. Die anodische Halbzelle bildet den Reaktionsraum, in dem die Anodenreaktion(en), z. B. gemäß Gleichung (I) ablaufen.

[0023] Mittels des Katalysatormaterials kann molekularer Sauerstoff beispielsweise zu molekularem Wasser gemäß nachfolgender Gleichung (X) reduziert werden.



[0024] Dadurch kann der Sauerstoffanteil in der kathodischen Halbzelle verringert werden, so dass die einleitend erläuterten Prozesse der Sauerstoffkorrosion in geringerem Ausmaß ablaufen oder sogar gänzlich vermieden werden können. Mit anderen Worten kann die Sauerstoffkorrosion durch Bekämpfung der Ursache, nämlich des Vorhandenseins von Sauerstoff in der kathodischen Halbzelle, aktiv verringert oder sogar vermieden werden. Im Gegensatz dazu erhöhen die eingangs erläuterten, aus dem Stand der Technik bekannten Maßnahmen lediglich die Resistenz gegen diesen Korrosionstyp, beeinflussen jedoch nicht dessen Ursache.

[0025] Durch Verringerung oder Vermeidung der Sauerstoffkorrosion können die Nutzungsdauer der Elektrolysezelle verlängert und Kosten für Wartung und Instandhaltung sowie Austauschmaterialien verringert werden.

[0026] Zudem wird das in der kathodischen Halbzelle gebildete Reaktionsprodukt der Elektrolyse, z. B. Wasserstoff, in geringerem Ausmaß mit Sauerstoff verunreinigt. Eine zeit- und energieintensive Aufreinigung des gewünschten Reaktionsprodukts der Elektrolyse kann folglich weitgehend vermieden werden.

[0027] Gemäß verschiedenen Ausführungsvarianten kann die Elektrolysezelle ein zweites Katalysatormaterial, ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen, aufweisen.

[0028] Beispielsweise kann das zweite Katalysatormaterial eine katalytische Reduktion von Wasserstoffionen zu molekularem Wasserstoff gemäß Gleichung (II) in der kathodischen Halbzelle bewirken, so dass Wasserstoff als gewünschtes Reaktionsprodukt der Elektrolyse in ausreichendem Maß gebildet wird. Mögliche Materialien für das zweite Katalysatormaterial sind beispielsweise Edelmetallverbindungen, wie z. B. Platin, Platin-Ruthenium oder Übergangsmetallverbindungen. Weitere geeignete Materialien werden beschrieben in Yu, J. et al. A mini-review of noble-metal-free electrocatalysts for overall water splitting in non-alkaline electrolytes, Mat. Rep.: Energy, 1 (2) 2021, 100024. <https://doi.org/10.1016/j.matre.2021.100024>

[0029] Das zweite Katalysatormaterial trägt zu einer Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit der Kathodenreaktion(en) bei, so dass die Wirtschaftlichkeit der Elektrolyse verbessert werden kann.

[0030] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann das erste Katalysatormaterial in eine erste Katalysatorschicht und/oder das zweite Katalysatormaterial in eine zweite Katalysatorschicht eingebracht sein.

[0031] Unter einer Schicht kann im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung ein flächiges Gebilde verstanden werden, dessen Abmessungen in der Schichtebene, Länge und Breite, deutlich größer als die Abmessung in der dritten Dimension, die Schichtdicke, sind.

[0032] Das Einbringen der Katalysatormaterialien in Schichten ermöglicht auf einfache Art und Weise die Realisierung einer vorgebbaren Verteilung der Katalysatormaterialien in der kathodischen Halbzelle. Zudem kann die Handhabung der Katalysatormaterialien erleichtert sein.

[0033] Optional können das erste Katalysatormaterial und das zweite Katalysatormaterial auch gemeinsam in einer Schicht vorliegen. Dies kann den Vorteil einer einfacheren Herstellung mit sich bringen, da anstelle von zwei Schichten nur noch eine Schicht hergestellt werden muss.

[0034] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann die erste Katalysatorschicht benachbart, bevorzugt direkt benachbart, also in direktem Kontakt, zur zweiten Katalysatorschicht angeordnet sein.

[0035] Mit anderen Worten, können die flächig ausgebildete erste und zweite Katalysatorschicht unter Ausbildung einer parallel zu den jeweiligen Schichtebenen angeordneten Grenzfläche direkt aneinandergrenzen, z. B. direkt aufeinander angeordnet sein.

[0036] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann die zweite Katalysatorschicht benachbart, bevorzugt direkt benachbart, also in direktem Kontakt, zur Polymerelektrolytmembran angeordnet sein.

[0037] Mit anderen Worten können die ebenfalls flächig ausgebildete Polymerelektrolytmembran und die zweite Katalysatorschicht unter Ausbildung einer parallel zu der Schichtebene angeordneten Grenzfläche direkt aneinandergrenzen, z. B. direkt aufeinander angeordnet sein.

[0038] Ist die erste Katalysatorschicht ebenfalls benachbart zur zweiten Katalysatorschicht angeordnet, ergibt sich eine Anordnung, bei der die zweite Katalysatorschicht auf der einen Seite an die erste Katalysatorschicht und auf der gegenüberliegenden Seite an die Polymerelektrolytmembran angrenzt.

[0039] Bei einer solchen Anordnung kann überraschenderweise auf eine ionische Kontaktierung der ersten Katalysatorschicht verzichtet werden, ohne dass die Katalysereaktion in der ersten Katalysatorschicht, z. B. gemäß Gleichung (X), in größerem Ausmaß negativ beeinflusst wird, also das erste Katalysatormaterial die vorstehend erläuterte Funktion

erfüllen kann. Ein unverbindlicher und nicht beschränkender Erklärungsversuch der Erfinder der vorliegenden Erfindung hierfür wird im Vorliegen von saurem Prozesswasser gesehen. Mit anderen Worten ist ein direkter Kontakt zwischen erster Katalysatorschicht und Polyelektrolytmembran nicht erforderlich.

[0040] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann die kathodische Halbzelle der Elektrolysezelle eine Gasdiffusionsschicht aufweisen. Die Gasdiffusionsschicht kann benachbart, bevorzugt direkt benachbart, zur ersten Katalysatorschicht angeordnet sein.

[0041] Die Gasdiffusionsschicht dient dem Abtransport der gasförmigen Reaktionsprodukte der katalytischen Reaktion(en) von dem bzw. den Katalysatormaterial(ien) sowie der elektrischen Kontaktierung. Sie kann daher auch als Stromkollektorschicht oder Gasdiffusionselektrode bezeichnet werden.

[0042] Die Gasdiffusionsschicht der kathodischen Halbzelle weist zur Gewährleistung der Gasdurchlässigkeit ein poröses Material auf. Sie kann beispielsweise aus Edelstahl gefertigt sein.

[0043] Indem mittels des ersten Katalysatormaterials die Sauerstoffkonzentration in der kathodischen Halbzelle verringert wird, kann die durch Sauerstoff beschleunigte Korrosion und die damit verbundene Degradation der Gasdiffusionsschicht verringert oder sogar vermieden werden. Die Nutzungsdauer bzw. Lebensdauer der Gasdiffusionsschicht kann erhöht werden.

[0044] Optional kann benachbart, bevorzugt direkt benachbart, zur Gasdiffusionsschicht eine Kanalstruktur angeordnet sein. Die Kanalstruktur dient dem Sammeln und Austragen des gasförmigen Reaktionsprodukts der Elektrolyse in der kathodischen Halbzelle, also z. B. Wasserstoff gemäß Gleichung (II). Die Kanalstruktur kann beispielsweise als Bipolarplatte ausgebildet sein. Bipolarplatten ermöglichen das Stapeln mehrerer Elektrolysezellen zu einem Elektrolysezellenmodul, indem sie die Anode einer Elektrolysezelle mit der Kathode einer benachbarten Elektrolysezelle elektrisch leitend verbindet. Zudem ermöglicht die Bipolarplatte eine Gastrennung zwischen aneinander angrenzenden Elektrolysezellen.

[0045] Gemäß verschiedenen Ausführungsvarianten kann das erste Katalysatormaterial ausgewählt sein aus einer Gruppe, die gebildet wird von Platin/Palladium, Platin/Ruthenium, Platin/Nickel, Platin/Blei/Platin, Kern-Schale-Katalysatormaterialien, Nichtedelmetallkatalysatormaterialien, Metalloxiden und deren Mischungen.

[0046] Die Schreibweise Metall A/Metall B bedeutet dabei, dass es sich um einen Mischmetallkatalysator der Metalle A und B handelt.

[0047] Mit anderen Worten kann das erste Katalysatormaterial eines oder mehrere der genannten Materialien aufweisen oder aus einem oder mehreren der genannten Materialien bestehen.

[0048] Kern-Schale-Katalysatoren (engl. core-shell catalyst) können beispielsweise als PtPb/Pt-Katalysatoren ausgebildet sein. Nichtedelmetallkatalysatoren können beispielsweise als M-N-C-Verbunde ausgebildet sein, wobei M für Übergangsmetall, N für Stickstoff und C für Kohlenstoff steht.

[0049] Durch spezifische Anpassung des ersten Katalysatormaterials an die Sauerstoffreduktion, z. B. in Hinblick auf Zusammensetzung und Morphologie der entsprechenden Katalysatorschicht, kann die benötigte Menge des ersten Katalysatormaterials verringert werden, so dass die Herstellungskosten der Elektrolysezelle ebenfalls verringert werden können.

[0050] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann die erste Katalysatorschicht zumindest ein Trägermaterial ausgewählt aus einer Gruppe, die gebildet wird von Rußpartikeln, Kohlefaservliesen, Kohlefasergeweben, Edelstahlvliesen, Edstahlgeweben und Edstahlgittern, aufweisen.

[0051] Mit anderen Worten kann die erste Katalysatorschicht eines oder mehrere der genannten Materialien aufweisen oder aus einem oder mehreren der genannten Materialien bestehen.

[0052] Der Begriff "Gitter" bezeichnet im vorliegenden Zusammenhang ein feinmaschiges Netz. Die genannten Trägermaterialien zeichnen sich durch eine hohe Korrosionsbeständigkeit aus. Die Begriffe "Gitter" und "Gewebe" beschreiben eine gerichtete Struktur, der Begriff "Vlies" eine ungerichtete Struktur.

[0053] Auf das Trägermaterial kann das erste Katalysatormaterial aufgebracht werden. Dies ermöglicht vorteilhaft eine gleichmäßige Verteilung des ersten Katalysatormaterials. Zudem kann das erste Katalysatormaterial mit möglichst großer Oberfläche bereitgestellt werden, so dass bei gleichbleibender Menge an erstem Katalysatormaterial die katalytische Wirkung verbessert werden kann bzw. für die gleiche katalytische Wirkung weniger erstes Katalysatormaterial benötigt wird.

[0054] Mit anderen Worten ist ein Vorteil eines Trägermaterials, dass eine höhere spezifische Oberfläche generiert werden kann, wodurch die Aktivität des entsprechenden Katalysatormaterials entsprechend steigt. Ein weiterer Vorteil sind die durch die höhere Oberfläche entstehenden Kontaktpunkte zur zweiten Katalysatorschicht, wodurch der Kontaktwiderstand zur zweiten Katalysatorschicht erhöht und die Querleitfähigkeit verbessert werden.

[0055] Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Elektrolysezelle zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse. Das Verfahren weist auf: Bereitstellen einer Polymerelektrolytmembran, Ausbilden einer an die Polymerelektrolytmembran angrenzenden anodischen Halbzelle und Ausbilden einer an die Polymerelektrolytmembran angrenzenden kathodischen Halbzelle, wobei die kathodische Halbzelle und die anodische Halbzelle mittels der Polymerelektrolytmembran voneinander getrennt angeordnet werden und ein erstes Katalysatormaterial ausgebildet

zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff, in der kathodischen Halbzelle angeordnet wird.

[0056] Mittels des Verfahrens kann eine der vorstehend beschriebenen Elektrolysezelle zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse hergestellt werden. Entsprechend wird auf die vorstehenden Erläuterungen und Vorteile dieser Elektrolysezellen verwiesen.

[0057] Gemäß verschiedenen Ausführungsvarianten kann das erste Katalysatormaterial in eine erste Katalysatorschicht eingebracht werden.

[0058] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann das erste Katalysatormaterial auf ein Trägermaterial aufgebracht werden.

[0059] Das Trägermaterial mit dem aufgetragenen ersten Katalysatormaterial kann die erste Katalysatorschicht bilden.

[0060] Das erste Katalysatormaterial kann beispielsweise mittels chemischer Gasphasenabscheidung (CVD) und/oder physikalischer Gasphasenabscheidung (PVD) auf das Trägermaterial aufgebracht werden.

[0061] Ein Aufbringen mittels chemischer Gasphasenabscheidung kann bei porösen Strukturen und Trägermaterialien bevorzugt sein, während ein Aufbringen mittels physikalischer Gasphasenabscheidung bei nicht-porösen Strukturen bevorzugt sein kann. Sowohl chemische Gasphasenabscheidung als auch physikalische Gasphasenabscheidung ermöglichen vorteilhaft die Herstellung dünner Schichten mit einer Schichtdicke im Bereich von einigen Nanometern bis einigen Mikrometern. Dadurch kann Katalysatormaterial eingespart werden.

[0062] Gemäß weiteren Ausführungsvarianten kann das Ausbilden der kathodischen Halbzelle folgende Schritte aufweisen: Aufbringen einer zweiten Katalysatorschicht mit einem zweiten Katalysatormaterial, ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen, auf die Polymerelektrolytmembran, Aufbringen der ersten Katalysatorschicht auf die zweite Katalysatorschicht, und Aufbringen einer Gasdiffusionsschicht auf die erste Katalysatorschicht.

[0063] Optional kann das Ausbilden der der kathodischen Halbzelle des Weiteren ein Aufbringen einer Kanalstruktur auf die Gasdiffusionsschicht aufweisen.

[0064] Der Begriff "aufbringen auf" bezeichnet im vorliegenden Zusammenhang nicht zwingend eine konkrete räumliche Anordnung im Sinne von "oberhalb". Vielmehr soll lediglich zum Ausdruck gebracht werden, dass die genannten Schichten benachbart zueinander angeordnet werden. Auch die Reihenfolge der Verfahrensschritte kann umgekehrt oder geändert werden, d. h. die Ausbildung der kathodischen Halbzelle kann alternativ ausgehend von der Gasdiffusionsschicht oder der Kanalstruktur erfolgen. Weiter alternativ kann auch eine der mittleren Schichten, z. B. die Gasdiffusionsschicht oder die erste Katalysatorschicht als Ausgangspunkt gewählt werden, auf die beidseits, die jeweils angrenzenden Schichten aufgebracht werden.

[0065] Der Aufbau der anodischen Halbzelle kann in analoger Weise erfolgen, d. h. auf die der zweiten Katalysatorschicht gegenüberliegenden Seitenfläche der Polymerelektrolytmembran kann eine katalytische Schicht zur Katalyse der Anodenreaktion, z. B. gemäß Gleichung (I), darauf eine Gasdiffusionsschicht und darauf optional eine Kanalstruktur, z. B. in Form einer Bipolarplatte, aufgebracht werden. Die dafür genutzten Materialien können bevorzugt an die in der anodischen Halbzelle vorherrschenden Bedingungen angepasst werden, z. B. in Hinblick auf ihre Korrosionsbeständigkeit.

[0066] Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft die Verwendung einer Elektrolysezelle gemäß vorstehender Beschreibung zur elektrolytischen Erzeugung von Wasserstoff.

[0067] Mit anderen Worten können in der kathodischen bzw. anodischen Halbzelle die Reaktionen gemäß den Gleichungen (I) und (II) ausgeführt werden, wenn die Elektrolysezelle von elektrischem Strom durchflossen wird.

[0068] Ein weiterer Aspekt der Erfindung betrifft die Verwendung eines Katalysatormaterials zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff in einer kathodischen Halbzelle einer Elektrolysezelle.

[0069] Bei dem Katalysatormaterial kann es sich beispielsweise um das vorstehend beschriebene erste Katalysatormaterial handeln, so dass auf die diesbezüglichen Erläuterungen und Vorteile verwiesen wird.

[0070] Im Folgenden wird die Erfindung beispielhaft unter Bezugnahme auf die anliegenden Figuren anhand bevorzugter Ausführungsformen erläutert, wobei die nachfolgend dargestellten Merkmale sowohl jeweils für sich genommen als auch in verschiedenen Kombinationen miteinander einen Aspekt der Erfindung darstellen können. Es zeigen:

Fig. 1 eine schematische Darstellung einer Elektrolysezelle zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse gemäß dem Stand der Technik;

Fig. 2 eine schematische Darstellung einer beispielhaften Elektrolysezelle; und

Fig. 3 ein Ablaufschema eines beispielhaften Verfahrens.

[0071] Fig. 1 zeigt eine Elektrolysezelle 1 zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse gemäß dem Stand der Technik in einer schematischen Darstellung. Die Elektrolysezelle 1 dient der elektrolytischen Erzeugung von Wasserstoff.

[0072] Die Elektrolysezelle 1 weist eine Polymerelektrolytmembran 4 auf. Auf der einen Seite der Polymerelektrolytmembran 4, in der Darstellung gemäß Figur 1 links, ist die kathodische Halbzelle 2 der Elektrolysezelle 1 angeordnet,

auf der anderen Seite der Polymerelektrolytmembran 4, in der Darstellung gemäß Figur 1 rechts, ist die anodische Halbzelle 3 der Elektrolysezelle 1 angeordnet.

[0073] Die anodische Halbzelle 3 umfasst eine direkt benachbart zur Polymerelektrolytmembran 4 angeordnete anodische Katalysatorschicht 12, eine direkt benachbart zur anodischen Katalysatorschicht 12 angeordnete Gasdiffusionsschicht 9b und eine direkt benachbart zur Gasdiffusionsschicht 9b angeordnete Kanalstruktur 11b. Die anodische Katalysatorschicht 12 katalysiert die Anodenreaktion gemäß Gleichung (I). Zur Verringerung der Korrosion ist die Gasdiffusionsschicht 9b aus einem Material hergestellt, auf dessen Oberfläche sich schnell eine Passivierungsschicht ausbildet, z. B. aus Titan. Die Kanalstruktur 11b ist als Bipolarplatte ausgebildet, so dass eine Stapelung mehrerer Elektrolysezelle 1 ermöglicht wird.

[0074] Die kathodische Halbzelle 2 umfasst eine Katalysatorschicht 8 mit einem Katalysatormaterial 6, die direkt benachbart zur Polymerelektrolytmembran 4 angeordnet ist. Das Katalysatormaterial 6 ist zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen, insbesondere gemäß Gleichung (II) zu molekularem Wasserstoff, ausgebildet. Auf der Katalysatorschicht 8 ist ebenfalls eine Gasdiffusionsschicht 9a angeordnet. Im Unterschied zur Gasdiffusionsschicht 9b der anodischen Halbzelle 3 ist die Gasdiffusionsschicht 9a der kathodischen Halbzelle 2 aus Edelstahl gefertigt. Diese ist aufgrund des niedrigeren Oxidationspotentials in der kathodischen Halbzelle 2 im Vergleich zur anodischen Halbzelle 3 möglich und verringert die Kosten der Elektrolysezelle 2. Direkt benachbart zur Gasdiffusionsschicht 9a ist ebenfalls eine Kanalstruktur 11a angeordnet, die, analog zur anodischen Halbzelle 3, als Bipolarplatte ausgebildet ist.

[0075] Nachteilig an dieser aus dem Stand der Technik bekannten Elektrolysezelle 1 ist wie eingangs erläutert die Korrosionsanfälligkeit der Materialien in der kathodischen Halbzelle 2 im Hinblick auf die durch elementaren Sauerstoff begünstigte Säurekorrosion. Zudem wird der in der kathodischen Halbzelle 2 erzeugte Wasserstoff durch Sauerstoff verunreinigt.

[0076] Zur Behebung dieser Nachteile wird vorgeschlagen, in die kathodische Halbzelle ein erstes Katalysatormaterial 5 einzubringen, das zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff, insbesondere gemäß Gleichung (X), also unter Ausbildung von Wasser, ausgebildet ist. Eine solch modifizierte Elektrolysezelle 1 ist beispielhaft in Figur 2 schematisch dargestellt.

[0077] Die anodische Halbzelle 3 des in Figur 2 gezeigten Ausführungsbeispiels einer Elektrolysezelle 1 ist analog zur Elektrolysezelle gemäß Figur 1 aufgebaut, so dass auf die diesbezüglichen Ausführungen verwiesen werden kann.

[0078] Die kathodische Halbzelle 2 weist, ebenfalls in Analogie zur Elektrolysezelle gemäß Figur 1, eine Gasdiffusionsschicht 9a und eine Kanalstruktur 11a auf. Ebenso ist eine zweite Katalysatorschicht 8 mit einem zweiten Katalysatormaterial 6 direkt benachbart zur Polymerelektrolytmembran 4 angeordnet, wobei das zweite Katalysatormaterial 6 zur Katalyse der Reduktion von Wasserstoffionen, insbesondere gemäß Gleichung (II) zu molekularem Wasserstoff, ausgebildet ist.

[0079] Im Unterschied zur Elektrolysezelle 2 gemäß Figur 1 ist zusätzlich eine erste Katalysatorschicht 7 direkt benachbart zur ersten Katalysatorschicht 8 angeordnet. Die erste Katalysatorschicht 7 besteht aus einem feinen Netz eines hochkorrosionsstabilen Trägermaterials 10, z. B. einem Edelmetallgitter, auf das das erste Katalysatormaterial 5, z. B. Pt/Pd, aufgebracht ist.

[0080] Das erste Katalysatormaterial 5 ist zur Katalyse der Reduktion von molekularem Sauerstoff gemäß Gleichung (X) ausgebildet, d. h. aus molekularem Sauerstoff wird Wasser gebildet. Dadurch nimmt die Sauerstoffkonzentration in der kathodischen Halbzelle 2 ab und die durch Sauerstoff begünstigte Korrosion, insbesondere der Gasdiffusionsschicht 9a, kann verringert werden. Die Folge ist eine höhere Lebensdauer, insbesondere der Gasdiffusionsschicht. Zudem kann die verringerte Korrosion die Verwendung von weniger kostenintensiven Materialien in der kathodischen Halbzelle 2 ermöglichen.

[0081] Zudem wird auch der elektrolytisch erzeugte Wasserstoff weniger mit Sauerstoff verunreinigt, d. h. die Reinheit des Produktwasserstoffs wird erhöht. Durch einen geringen Anteil an Sauerstoff im produzierten Wasserstoff sinkt der für verschiedene Anwendungen notwendige Aufwand für eine nachstehende Aufreinigung. Der erzeugte Wasserstoff wird somit aufgewertet.

[0082] Der Wasserstoff gelangt also mit einem deutlich geringeren Sauerstoffanteil zur Gasdiffusionsschicht 9a, welche direkt benachbart zur ersten Katalysatorschicht 7 angeordnet ist und verlässt anschließend über die direkt benachbart zur Gasdiffusionsschicht 9a angeordnete Kanalstruktur 11a mit hoher Reinheit die Elektrolysezelle 2. Das bei der katalytischen Reaktion des ersten Katalysatormaterials 5 gemäß Gleichung (X) gebildete Wasser wird zusammen mit dem Gasstrom abgeführt.

[0083] Figur 3 zeigt ein Ablaufschema eines beispielhaften Verfahrens 100 zur Herstellung einer Elektrolysezelle 1, beispielsweise der in Figur 2 gezeigten Elektrolysezelle 1.

[0084] Nach dem Start des Verfahrens 100 wird im Schritt S1 eine Polymerelektrolytmembran 4 bereitgestellt. Anschließend wird im Schritt S2 eine an die Polymerelektrolytmembran 4 angrenzende anodische Halbzelle 3 ausgebildet. Hierfür können die anodische Katalysatorschicht 12, die Gasdiffusionsschicht 9b und die Kanalstruktur 11b entsprechend aufeinander angeordnet, z. B. aufeinander abgeschieden, werden.

[0085] Im Schritt S3 wird die kathodische Halbzelle 2, ebenfalls angrenzen an die Polymerelektrolytmembran 4, jedoch

gegenüberliegend zur anodischen Halbzelle 3, ausgebildet. Hierbei wird das erste Katalysatormaterial 5, welches zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff ausgebildet ist, in der kathodischen Halbzelle 2 angeordnet. Die Schritte S2 und S3 können auch zeitlich parallel oder in umgekehrter Reihenfolge ausgeführt werden.

[0086] Der Schritt S3 weist die Teilschritte S4 bis S7 auf, d. h. die kathodische Halbzelle 2 wird im Ausführungsbeispiel mittels der Schritte S4 bis S7 ausgebildet. Im Schritt S4 wird zunächst eine zweite Katalysatorschicht 8 mit einem zweiten Katalysatormaterial 6, welches zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen zu molekularem Wasserstoff ausgebildet ist, auf die der anodischen Halbzelle 2 gegenüberliegende Seite der Polymerelektrolytmembran 4 aufgebracht.

[0087] Im Schritt S5 wird anschließend eine erste Katalysatorschicht 7 auf die zweite Katalysatorschicht 8 aufgebracht. Die zweite Katalysatorschicht 8 enthält das erste Katalysatormaterial 5. Zur Ausbildung der zweiten Katalysatorschicht 7 wird zunächst ein Trägermaterial 10 bereitgestellt, auf dessen Oberfläche das erste Katalysatormaterial 5 mittels chemischer Gasphasenabscheidung und/oder physikalischer Gasphasenabscheidung aufgebracht wird.

[0088] Im Schritt S6 wird eine Gasdiffusionsschicht 9a auf die erste Katalysatorschicht 7 aufgebracht, bevor im Schritt S7 auf die Gasdiffusionsschicht 9a eine Kanalstruktur 11a in Form einer Bipolarplatte aufgebracht wird.

[0089] Es sei angemerkt, dass die Ausbildung der kathodischen Halbzelle 2 auch ausgehend von der Kanalstruktur 11a erfolgen kann. D. h. als Ausgangspunkt kann die Kanalstruktur 11a gewählt werden, auf die zunächst die Gasdiffusionsschicht 9a, anschließend die erste Katalysatorschicht 7, danach die zweite Katalysatorschicht 8 und schließlich die Polymerelektrolytmembran 4 aufgebracht wird. Eine entsprechende Vorgehensweise ist für die anodische Halbzelle 3 möglich. Folglich können die Schichten und Strukturen der Elektrolysezelle 1 alternativ auch ausgehend von der Kanalstruktur 11a der kathodischen Halbzelle 2 oder ausgehend von der Kanalstruktur 11b der anodischen Halbzelle 3 aufgebaut werden.

[0090] Es versteht sich, dass andere Ausführungsformen benutzt und strukturelle oder logische Änderungen vorgenommen werden können, ohne von dem Schutzzumfang der vorliegenden Erfindung abzuweichen. So können Merkmale der hierin beschriebenen Ausführungsbeispiels miteinander kombiniert werden können, sofern nicht spezifisch anders angegeben. Die Beschreibung des Ausführungsbeispiels ist deshalb nicht in einschränkendem Sinne aufzufassen, und der Schutzzumfang der vorliegenden Erfindung wird durch die angefügten Ansprüche definiert.

[0091] Der hier verwendete Ausdruck "und/oder" bedeutet bei Benutzung in einer Reihe von zwei oder mehreren Elementen, dass jedes der aufgeführten Elemente allein verwendet werden kann, oder es kann jede Kombination von zwei oder mehr der aufgeführten Elemente verwendet werden.

Patentansprüche

1. Elektrolysezelle (1) zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse mit einer kathodischen Halbzelle (2) und einer anodischen Halbzelle (3), wobei die kathodische Halbzelle (2) und die anodische Halbzelle (3) mittels einer Polymerelektrolytmembran (4) voneinander getrennt sind, die kathodische Halbzelle (2) aufweisend:

- ein erstes Katalysatormaterial (5), ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff.

2. Elektrolysezelle (1) nach Anspruch 1, die kathodische Halbzelle (2) aufweisend:

- ein zweites Katalysatormaterial (6), ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen.

3. Elektrolysezelle (1) nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das erste Katalysatormaterial (5) in eine erste Katalysatorschicht (7) und/oder das zweite Katalysatormaterial (6) in eine zweite Katalysatorschicht (8) eingebracht ist.

4. Elektrolysezelle (1) nach Anspruch 3, wobei die erste Katalysatorschicht (7) benachbart zur zweiten Katalysatorschicht (8) angeordnet ist.

5. Elektrolysezelle (1) nach Anspruch 3 oder 4, wobei die zweite Katalysatorschicht (8) benachbart zur Polymerelektrolytmembran (4) angeordnet ist.

6. Elektrolysezelle (1) nach einem der vorstehenden Ansprüche, die kathodische Halbzelle (2) aufweisend:

- eine Gasdiffusionsschicht (9a).

7. Elektrolysezelle (1) nach einem der vorstehenden Ansprüche, wobei das erste Katalysatormaterial (5) ausgewählt ist aus einer Gruppe, die gebildet wird von Platin/Palladium, Platin/Ruthenium, Platin/Nickel, Platin/Blei/Platin, Kern-

Schale-Katalysatormaterialien, Nichtelegmetallkatalysatormaterialien, Metalloxiden und deren Mischungen.

8. Elektrolysezelle (1) nach einem der Ansprüche 3 bis 7, wobei die erste Katalysatorschicht (7) zumindest ein Trägermaterial (10) ausgewählt aus einer Gruppe, die gebildet wird von Rußpartikeln, Kohlefaservliesen, Kohlefaser-

9. Verfahren (100) zur Herstellung einer Elektrolysezelle (1) zur Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse, das Verfahren (100) aufweisend:

- S1: Bereitstellen einer Polymerelektrolytmembran (4),
- S2: Ausbilden einer an die Polymerelektrolytmembran (4) angrenzenden anodischen Halbzelle (3), und
- S3: Ausbilden einer an die Polymerelektrolytmembran (4) angrenzenden kathodischen Halbzelle (2), wobei die kathodische Halbzelle (2) und die anodische Halbzelle (3) mittels der Polymerelektrolytmembran (4) voneinander getrennt angeordnet werden und ein erstes Katalysatormaterial (5), ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff, in der kathodischen Halbzelle (2) angeordnet wird.

10. Verfahren (100) zur Herstellung einer Elektrolysezelle (1) nach Anspruch 9, wobei das erste Katalysatormaterial (5) in eine erste Katalysatorschicht (7) eingebracht wird.

11. Verfahren (100) zur Herstellung einer Elektrolysezelle (1) nach Anspruch 10, wobei das erste Katalysatormaterial (5) auf ein Trägermaterial (10) aufgebracht wird.

12. Verfahren (100) nach Anspruch 11, wobei das erste Katalysatormaterial (5) mittels chemischer Gasphasenabscheidung und/oder physikalischer Gasphasenabscheidung auf das Trägermaterial (10) aufgebracht wird.

13. Verfahren (100) zur Herstellung einer Elektrolysezelle (1) nach einem der Ansprüche 10 bis 12, wobei das Ausbilden der kathodischen Halbzelle (2) folgende Schritte aufweist:

- S4: Aufbringen einer zweiten Katalysatorschicht (8) mit einem zweiten Katalysatormaterial (6), ausgebildet zur Katalyse einer Reduktion von Wasserstoffionen, auf die Polymerelektrolytmembran (4),
- S5: Aufbringen der ersten Katalysatorschicht (7) auf die zweite Katalysatorschicht (8), und
- S6: Aufbringen einer Gasdiffusionsschicht (9a) auf die erste Katalysatorschicht (7).

14. Verwendung einer Elektrolysezelle (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 8 zur elektrolytischen Erzeugung von Wasserstoff.

15. Verwendung eines Katalysatormaterials zur Katalyse einer Reduktion von molekularem Sauerstoff in einer kathodischen Halbzelle (2) einer Elektrolysezelle (1).

FIG 1
(Stand der Technik)

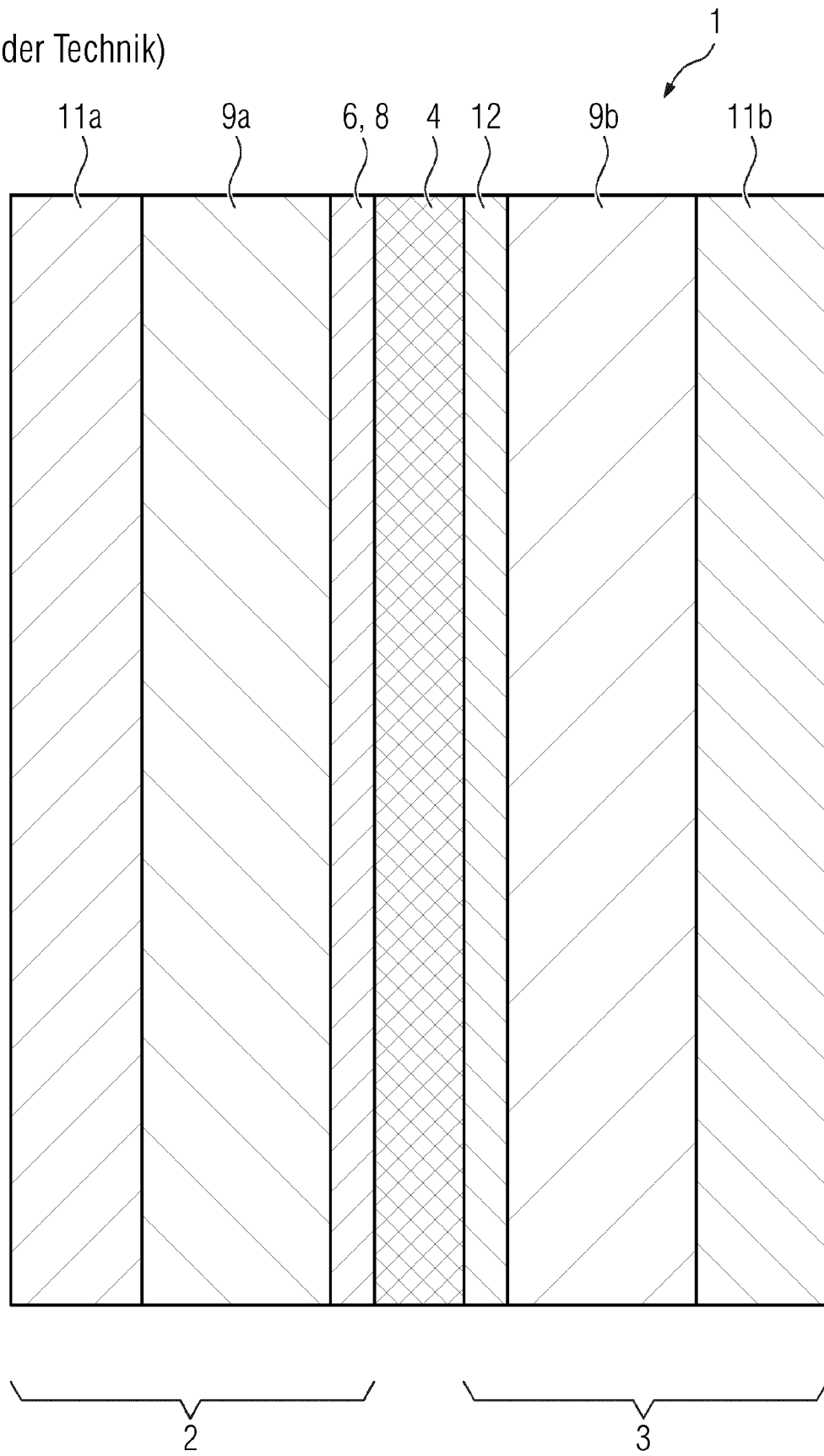


FIG 2

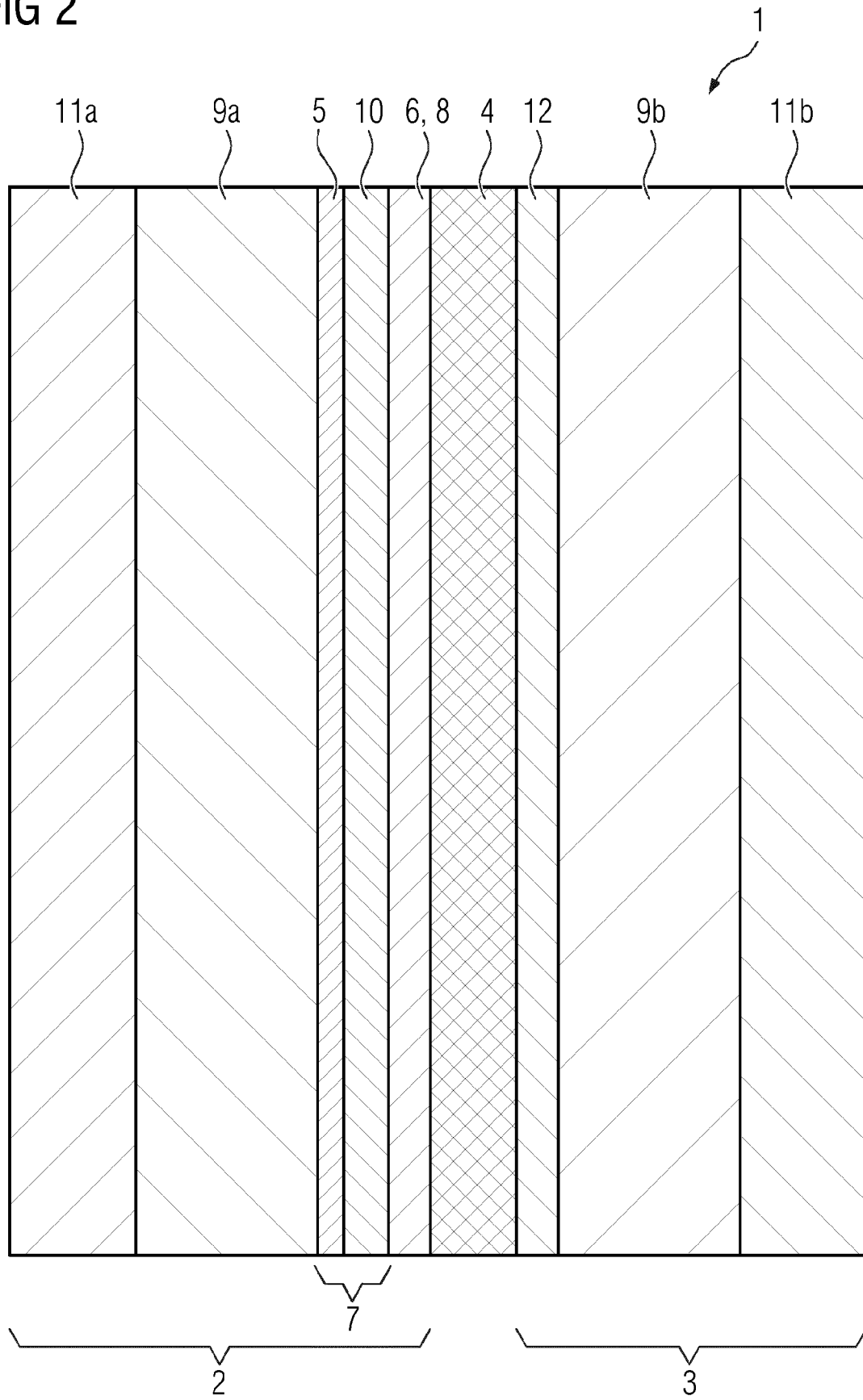
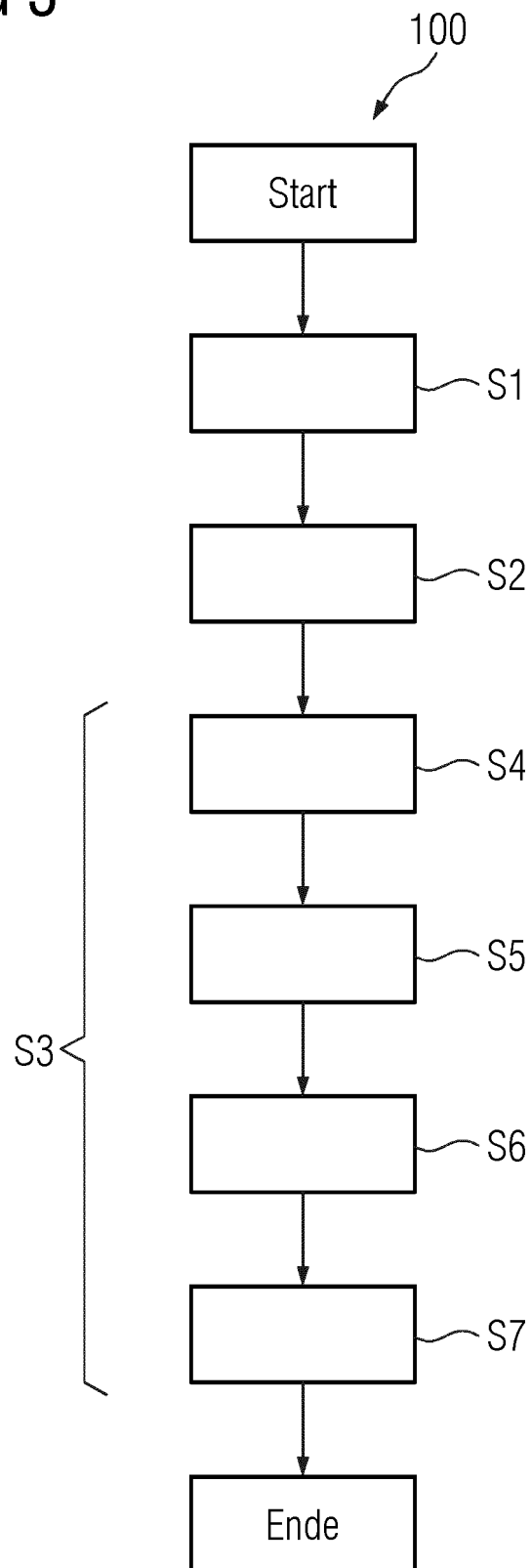


FIG 3





EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 21 18 2692

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

1

EPO FORM 1503 03.82 (P04C03)

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (IPC)
X	EP 3 453 785 A1 (TOSHIBA KK [JP]) 13. März 2019 (2019-03-13)	1-12, 14, 15	INV. C25B3/25
A	* Absatz [0027] - Absatz [0038]; Ansprüche 1-10; Abbildung 4 * * Absätze [0021] - [0025], [0075] * * Absatz [0011] - Absatz [0016] * -----	13	C25B9/23 C25B11/052 C25B11/053 C25B11/061 C25B11/067 C25B11/075 C25B11/089
X	EP 3 553 866 A1 (UNIV BERLIN TECH [DE]) 16. Oktober 2019 (2019-10-16)	1, 3-11, 15	
A	* Absatz [0032] - Absatz [0044]; Abbildung 6 * -----	12-14	
X	DE 10 2013 019341 A1 (FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH [DE]) 21. Mai 2015 (2015-05-21)	1-5, 7-11, 14, 15	
A	* Absatz [0066] - Absatz [0074]; Anspruch 5; Abbildungen 1-3 * -----	12, 13	
X	US 2021/066741 A1 (PARK HYUN SEO [KR] ET AL) 4. März 2021 (2021-03-04) * Absatz [0062] - Absatz [0068]; Ansprüche 1-11; Abbildung 2 * -----	1-11, 14, 15	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (IPC) C25B
X	US 2019/071783 A1 (VERDAGUER CASADEVALL ARNAU [DK] ET AL) 7. März 2019 (2019-03-07) * Absätze [0044] - [0047], [0027]; Ansprüche 17-27; Abbildung 1 * -----	1, 3-7, 9-11, 15	
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort München		Abschlußdatum der Recherche 9. Dezember 2021	Prüfer Teppo, Kirsi-Marja
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	

**ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT
 ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 21 18 2692

5 In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentedokumente angegeben.
 Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
 Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

09-12-2021

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 3453785 A1	13-03-2019	CN 109473705 A	15-03-2019
		EP 3453785 A1	13-03-2019
		JP 2019049043 A	28-03-2019
		US 2019071784 A1	07-03-2019

EP 3553866 A1	16-10-2019	CN 112005414 A	27-11-2020
		EP 3553866 A1	16-10-2019
		EP 3776708 A1	17-02-2021
		JP 2021520296 A	19-08-2021
		US 2021028465 A1	28-01-2021
		WO 2019197513 A1	17-10-2019

DE 102013019341 A1	21-05-2015	DE 102013019341 A1	21-05-2015
		WO 2015074637 A1	28-05-2015

US 2021066741 A1	04-03-2021	KR 20210027925 A	11-03-2021
		US 2021066741 A1	04-03-2021

US 2019071783 A1	07-03-2019	AU 2017233774 A1	13-09-2018
		CN 108779560 A	09-11-2018
		EP 3430182 A1	23-01-2019
		ES 2870615 T3	27-10-2021
		JP 6898939 B2	07-07-2021
		JP 2019512596 A	16-05-2019
		US 2019071783 A1	07-03-2019
		WO 2017157797 A1	21-09-2017

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82

IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Patentdokumente

- EP 3489394 A1 [0003]

In der Beschreibung aufgeführte Nicht-Patentliteratur

- **KUMAR, S et al.** Hydrogen production by PEM water electrolysis - A review. *Materials Science for Energy Technologies*, 2019, vol. 2 (3), 442-454, <https://doi.org/10.1016/j.mset.2019.03.002> [0005]
- **SCHALENBACH, M. et al.** Pressurized PEM water electrolysis: Efficiency and gas crossover. *Intern. J. Hydr. Ener.*, 2013, vol. 38 (35), 14921-14933, <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.09.013> [0009]
- **DU, Z. ; LIU, C. ; ZHAI, J. ; GUO, X. ; XIONG, Y. ; SU, W. ; HE, G.** A Review of Hydrogen Purification Technologies for Fuel Cell Vehicles. *Catalysts*, 2021, vol. 11, 393, <https://doi.org/10.3390/catal11030393> [0018]
- **YU, J. et al.** A mini-review of noble-metal-free electrocatalysts for overall water splitting in non-alkaline electrolytes. *Mat. Rep.: Energy*, 2021, vol. 1 (2), 100024, <https://doi.org/10.1016/j.matre.2021.100024> [0028]