

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2010-513811

(P2010-513811A)

(43) 公表日 平成22年4月30日(2010.4.30)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
F 1 6 J 15/12 (2006.01)	F 1 6 J 15/12	H 3 J 0 4 0
B 3 2 B 9/00 (2006.01)	B 3 2 B 9/00	A 4 F 1 0 0
B 3 2 B 15/04 (2006.01)	B 3 2 B 15/04	B
F 1 6 J 15/10 (2006.01)	F 1 6 J 15/10	W

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2009-541891 (P2009-541891)
 (86) (22) 出願日 平成19年12月20日 (2007.12.20)
 (85) 翻訳文提出日 平成21年6月22日 (2009.6.22)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2007/011274
 (87) 国際公開番号 W02008/077583
 (87) 国際公開日 平成20年7月3日 (2008.7.3)
 (31) 優先権主張番号 102006062330.4
 (32) 優先日 平成18年12月22日 (2006.12.22)
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

(71) 出願人 501090803
 エスゲーエル カーボン ソシエタス ヨーロピア
 SGL CARBON SE
 ドイツ連邦共和国 デー-65203 ヴ
 ィースバーデン ラインガウシュトラッセ
 182
 Rheingaustrasse 182
 , D-65203 Wiesbaden
 , Germany
 (74) 代理人 100061815
 弁理士 矢野 敏雄
 (74) 代理人 100094798
 弁理士 山崎 利臣

最終頁に続く

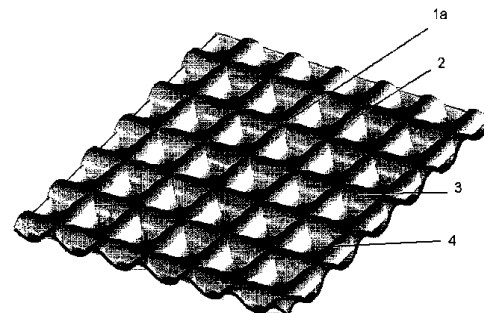
(54) 【発明の名称】 シール材料

(57) 【要約】

シール材料であって、最大 1.6 g/cm^3 の密度を有する少なくとも2層の黒鉛シートと、この黒鉛シートと交互に配置された少なくとも1つの金属挿入体とから成る平面状の層複合体を有している形式のものにおいて、

金属挿入体が3次元的に構造化されていて、それぞれ片側で開かれた凹部(4)を有しており、これらの凹部は最大5.0 mmまでの範囲の厚さを有する黒鉛載置層によって被覆されており、凹部が直線状に互いに交差する隆起部により取り囲まれていて、隆起部の格子線(2, 3)が、両主面上で、ほぼ平面a, b上に位置するか、または、

金属挿入体が孔構造体を有しており、この孔構造体は最大5.0 mmまでの範囲の厚さを有する黒鉛載置層によって被覆されており、孔がウェブによって取り囲まれていて、ウェブが両主面でほぼ平面a, b上に位置しており、孔面積は、金属挿入体の面積全体の40~90%である。



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

シール材料であって、最大 1.6 g/cm^3 の密度を有する少なくとも 2 層の黒鉛シートと、この黒鉛シートと交互に配置された少なくとも 1 つの金属挿入体とから成る平面状の層複合体を有している形式のものにおいて、

金属挿入体が 3 次元的に構造化されていて、それぞれ片側で開かれた凹部を有しており、これらの凹部は最大 5.0 mm までの範囲の厚さを有する黒鉛載置層によって被覆されており、凹部が直線状に互いに交差する隆起部により取り囲まれていて、隆起部の格子線が、両主面上で、ほぼ平面 a, b 上に位置することを特徴とするシール材料。

【請求項 2】

シール材料であって、最大 1.6 g/cm^3 の密度を有する少なくとも 2 層の黒鉛シートと、この黒鉛シートと交互に配置された少なくとも 1 つの金属挿入体とから成る平面状の層複合体を有している形式のものにおいて、

金属挿入体が孔構造体を有しており、この孔構造体は最大 5.0 mm までの範囲の厚さを有する黒鉛載置層によって被覆されており、孔がウェブによって取り囲まれていて、ウェブが両主面でほぼ平面 a, b 上に位置しており、孔面積は、金属挿入体の面積全体の $40 \sim 90 \%$ であることを特徴とする、シール材料。

【請求項 3】

前記孔面積が、金属挿入体の面積全体の $50 \sim 80 \%$ である、請求項 2 記載のシール材料。

【請求項 4】

金属挿入体が構造化された 2 つの金属薄板から成っていて、これら 2 つの金属薄板は一方の主面に向かってのみ、直線状に交差する隆起部を有しており、この隆起部の格子線がほぼ 1 つの平面上に位置していて、2 つの金属薄板は他方の主面で互いに結合されており、格子線と凹部とが背面でそれぞれ互いに向かい合って位置する、請求項 1 記載のシール材料。

【請求項 5】

格子線の間隔が $1.0 \text{ mm} \sim 8.0 \text{ mm}$ の範囲であって、直線状の隆起部の高さが $0.2 \sim 3.0 \text{ mm}$ の範囲である、請求項 1 又は 4 記載のシール材料。

【請求項 6】

格子線の間隔が $2.0 \text{ mm} \sim 4.0 \text{ mm}$ の範囲であって、直線状の隆起部の高さが $0.5 \sim 1.5 \text{ mm}$ の範囲である、請求項 5 記載のシール材料。

【請求項 7】

黒鉛シートの密度が $0.40 \sim 1.60 \text{ g/cm}^3$ である、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【請求項 8】

黒鉛載置層の間に埋め込まれた金属挿入体が $20 \mu\text{m} \sim 2.0 \text{ mm}$ の厚さである、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【請求項 9】

黒鉛載置層の間に埋め込まれた金属挿入体が $0.1 \text{ mm} \sim 0.8 \text{ mm}$ の厚さである、請求項 8 記載のシール材料。

【請求項 10】

黒鉛載置層の間に埋め込まれた金属挿入体が、特殊鋼、鋼、鉄、アルミニウム、ニッケル、銅、チタン、亜鉛のグループから成る材料又はニッケル、銅、アルミニウム又は亜鉛の合金から成っている、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【請求項 11】

金属挿入体が、有機ケイ素化合物、金属石けん、過フッ化合物から成る界面活性付着媒介物質によって、又は接着剤によって黒鉛シートに結合されている、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【請求項 12】

10

20

30

40

50

黒鉛シートから成る載置層が、フラン樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、アクリル樹脂、又はこれらの混合物から成る含浸剤を有している、請求項 1 から 11 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【請求項 13】

シール材料のリーク率が、VDI 基準 2440 に沿って測定して、 $10^{-5} \text{ kPa} \times \text{l} / (\text{s} \times \text{m})$ よりも小さい又はこれと等しい、請求項 1 から 12 までのいずれか 1 項記載のシール材料。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

本発明は、シール材料であって、少なくとも 2 層の黒鉛シートと、この黒鉛シートと交互に配置された少なくとも 1 つの金属挿入体とから成る平面状の層複合材料を有する形式のものに関する。

【0002】

金属挿入体と、黒鉛から圧縮により製造されたプレート又はシート状の膨張黒鉛とから成るシール材料が公知である（特許文献 US 3404061；DE - OS 2518351；US 4422894；SGL Technologies GmbH 社の商標名 SIGRAFLX ジグラフレックス）。このシール材料はとりわけ、炉組み込み材、放射シールド、電子フィルタにおける分離プレートとしてのシール部材及び耐食性の被覆材として使用される。

20

【0003】

このような形式の層材料を改良する主な理由は、膨張された黒鉛の圧縮により製造された黒鉛シート又は黒鉛プレートが、引張力及び曲げ力に対して比較的耐性が低いことにある。粗野な日常的な運転における取り扱いのもとでは、このような弱い耐性によりしばしば、補強されていない黒鉛部分の損傷が生じるので、熱的、電氣的、化学的に卓越した特性を有するこのようなタイプの製品の使用可能性が制限されてしまう。

【0004】

このような形式の層材料における個々の層の配置と配列はほぼ自由に選択可能であって、所定の使用目的に合わせられる。たいいていの場合、金属層の片側又は両側に黒鉛が取り付けられる。

30

【0005】

黒鉛シートと金属挿入体との間の付着の形式に応じて、このような層材料は 2 つの形式に区別できる。第 1 の場合、機械的な形式の付着である。金属的な部分は、金属部分と共に黒鉛をプレスする際に黒鉛内に進入する表面構造を有しているか、又はこの表面構造内に黒鉛が流動プロセスにより進入する。

【0006】

例えばこのために、穿孔薄板、ばり取りされていない孔を備えた薄板、ワイヤクロス、例えばシールフランジの表面のような孔のある粗面状の損傷した表面を有した焼結金属若しくは金属表面がある。このような形式のしばしば不都合な、間にシール部材が挟み込まれている面シール材と対応面との接着は例えば特許文献 DE 3244595（2 段落 14 ~ 28 行）と特許文献 DE - A 3719484（1 段落 68 行 ~ 2 段落 1 ~ 8 行）に記載されている。再現不可能であって、接触する面にわたって不均一な分布で生じるこのような形式の接着は、シール条件下で互いに緊締される面の長期の使用後にのみ見られるので、金属と黒鉛層とから成る層材料の製造のための基本層として使用することはできない。

40

【0007】

第 2 の場合、金属面と黒鉛面は、有機的又は無機的な接着剤によって摩擦接続的に互いに結合される。このような方法は、極めて平滑な金属表面が存在する場合に有利であり、かつ / 又は表面に機械的に作用する固定エレメントを設けることができない場合に使用される。

【0008】

50

技術分野は黒鉛シートから成るシール部材、又は、黒鉛シートを含む層複合材料から成るシール部材を、例えば、化学工業における導管や装置、及び発電所における蒸気導管、及び暖房設備で使用するものである。黒鉛シートは、高温及び腐食性媒体に対する耐性、比較的僅かな液体透過性、高い圧縮率、良好な戻しばね弾性、圧力下での極めて僅かなクリープ傾向を特徴とする。このような特性により、黒鉛シートはシール材料として適している。

【0009】

黒鉛から成るシール材の機械的な安定性は、2つの黒鉛シートの間への金属（薄板又はシート）から成る補強挿入体の埋め込みにより拡大される。従って、先行技術のシール材料のためには、全体の厚さが1～4mmの場合、主として、数百μmの厚さの複数の黒鉛シートと、これらの黒鉛シートの間に埋め込まれた金属挿入体とから成る層複合材料が使用される。

10

【0010】

交互に配置される複数の金属層と黒鉛層とから成る層複合材料の製造方法は欧州特許第0616884号明細書により公知である。金属層と黒鉛層との間には、接着剤を使用しない解離不能な結合が形成される。その場合、有機ケイ素化合物、過フッ化合物、金属石けんのグループから成る界面活性物質を薄い層で、結合させたい表面の少なくとも一方に塗布し、次いで結合させたい表面を接触させ、圧力及び熱作用で互いに結合させる。

【0011】

さらに、特許文献DE102004041043B3には、ラミネート加工されたシール材料とその製造法が記載されている。このシール材料は、少なくとも2つの互いに結合される層から成っており、そのうちの少なくとも1つの第1の層は黒鉛シートであって、これは黒鉛シート、フルオロポリマ、又は紙から成る第2の層に結合されている。このようなラミネートは、第1の層と第2の層が、水性の分散液を介して取り付けられるフルオロポリマから成る層によって互いに接着されていることを特徴とする。このようなラミネートは、エキスパンドメタル、刺孔薄板、孔付き薄板またはワイヤメッシュの形の少なくとも1つの金属補強層を有して良い。

20

【0012】

装置の作業・運転安全性のために及び環境保護のために、特に、2002年に新たにまとめられたTALuft基準の導入に関して、工業界では、リーク率を低く維持できるシール材料への要求が高まっている。確かに例えば、特許文献US2006/0145428A1により、波状の金属挿入体とその両側に接着された黒鉛シートから成るシールリングも公知であり、これは上記の要求を満たすものであるが、このようなシールリングは、予め製造された金属挿入リングのサイズに縛られている。

30

【0013】

本発明の課題は、先行技術に対して改善された構造によって、TALuft基準の規定、即ち30MPaの面圧力で、ヘリウム差圧が約1barの場合に、リーク率が $10^{-5} \text{ kPa} \times \text{l} / (\text{s} \times \text{m})$ より低いという基準を満たすようなフランジ結合のためのシール材料を提供することである。

【0014】

この課題は、独立請求項に記載されたシール材料の構成により解決された。従属請求項に、本発明によるシール材料のさらに有利な特徴および構成が記載されている。本発明によるシール材料では、金属挿入体の格子線又はウェブ線上に黒鉛シートを強くプレスしており、これによりリークが減じられている。さらに本発明のシール材料では、面状の製品からの自由な裁断が可能であり、従って種々異なるシールフランジのジオメトリに直接的に適合させることができる。

40

【0015】

本発明によるシール材料のさらなる特徴、詳細、利点は、以下の明細書、図面、実施例に記載されている。

【図面の簡単な説明】

50

【 0 0 1 6 】

【図 1】本発明により挿入される第 1 の金属挿入体 1 a の斜視図（上面）である。

【図 2】本発明により挿入される図 1 の金属挿入体 1 a の斜視図（下面）である。

【図 3】本発明により挿入される図 1 の金属挿入体 1 a の横断面図である。

【図 4】本発明により挿入される第 2 の金属挿入体 1 b の斜視図（上面）である。

【図 5】本発明により挿入される第 3 の金属挿入体 1 c の斜視図（上面）である。

【 0 0 1 7 】

図 1 及び図 2 には、本発明により挿入される金属挿入体 1 a の斜視図が示されている。この金属挿入体 1 a では、直線状に互いに交差する格子線を通る隆起部 2, 3 が、両主面ではほぼ平面 a, b 上に位置している。格子線によって、片側で開かれた凹部 4 が取り囲まれている。

10

【 0 0 1 8 】

図 3 には、本発明により挿入される金属挿入体 1 a の横断面図が示されている。

【 0 0 1 9 】

図 4 には、本発明により挿入される第 2 の金属挿入体 1 b の斜視図（上面）が示されており、この金属挿入体 1 b では、ウェブ 5 が六角形状の格子構造に配置されている。ウェブ総面積は、主面総面積の約 30 % である。

【 0 0 2 0 】

図 5 には、本発明により挿入される第 3 の金属挿入体 1 c の斜視図（上面）が示されている。ウェブ総面積は、主面総面積の約 55 % である。

20

【 0 0 2 1 】

載置層の間に埋め込まれた金属挿入体の機能は、内側の拡散バリヤとしての作用の他に、層複合体を機械的に補強することにある。典型的には、特殊鋼、鋼、鉄、アルミニウム、ニッケル、銅、チタンから成る、又はニッケル、銅、アルミニウム、亜鉛の合金から成る金属シート又は金属薄板が使用される。金属挿入体の厚さは、0.02 ~ 2 mm、有利には 0.1 ~ 0.8 mm である。孔構造を有した本発明による金属挿入体は例えば、出発材料厚上に後から転造したエキスパンディッド格子から成っていても良い。これによりエキスパンディッド格子における孔はウェブによって取り囲まれ、これらウェブは、平面 a, b にほぼ相当している。

【 0 0 2 2 】

金属と結合するために使用される黒鉛は、公知のように、黒鉛含有化合物を熱的に膨張させることによりいわゆる膨張黒鉛となり、次いで、バインダの添加なしにこの膨張黒鉛を圧縮することによりフレキシブルなシート又はプレートが製造される（特許文献 US 3 404 061、DE 2 608 866、US 4 091 083 参照）。

30

【 0 0 2 3 】

以下では、このような製品を簡単に表すために、単に「黒鉛」と記載する。

【 0 0 2 4 】

本発明によるシール材料の製造は有利には、特許文献 EP 0 616 884 B 号明細書に記載の方法により行われる。このような方法の利点は、層の間の解離不能な結合を製造するために、劣化や軟化及び / 又は化学的又は熱的分解する従来の接着剤が不要であることにある。その代わり、金属挿入体と黒鉛シートとの結合のために、例えば有機ケイ素化合物、金属石けん又は過フッ化化合物のような界面活性物質のグループから成る付着促進物質が使用される。このような物質により、互いに結合させたい金属表面及び黒鉛表面上に極めて薄く、即ち僅か数 nm の層厚さで塗布した状態で既に、被覆された面を、圧力と温度の作用下で、結合させたい面に接触させると、解離不能な結合が得られる。

40

【 0 0 2 5 】

選択的には本発明によるシール材料は、シール材料の使用条件が許すのであれば、公知の接着剤によって個々の層を互いに接着させることによって製造することもできる。液体に対する外側の載置層のシール性は、この載置層に公知のように樹脂が含浸されているならばさらに改善される。適当な含浸剤は、例えば、硬化触媒の作用下でフラン樹脂となる

50

よう凝縮されるフルフリルアルコール、フェノール樹脂、シリコン樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂等である。

【 0 0 2 6 】

本発明により使用可能な付着剤は、有機ケイ素化合物、有利にはシリコン、過フッ化合物、金属石けんのグループから成る界面活性物質であって、これは公知のものであって、疎水化剤、発泡防止剤または柔軟剤として、技術分野では、例えば繊維品の仕上げにおいて使用される (P.Hardt, Silicon-Textilhilfsmittel, Textilveredelung 19 (1984) 143 頁 ~ 146 頁 ; Ullmanns Encyklopaedie der technischen Chemie, 3 版 1966 17 巻 203 頁 ~ 206 頁)。前記シリコンの中で、特にジメチル - ポリシロキサン、メチル - ヒドロゲン - ポリシロキサン (メチル - ポリアルキレンオキシド) ジメチル - ポリシロキサン、アミノ変性されたメチルポリシロキサン、アルファ, オメガ - ジヒドロキシ - ジメチルポリシロキサン、アルファ, オメガ - ジビニル - ジメチル - ポリシロキサン、アルファ, オメガ - ジヒドロキシ (メチル - アルキルアミノ) - ジメチル - ポリシロキサンのグループからなるポリシロキサンが使用される。界面活性的な過フッ化合物のグループからは特に、過フッ化カルボン酸及び、一般式 $F_3C - (CF_2)_n - R$ (式中 $R =$ ポリウレタン、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、式中 $n = 6 \sim 12$) の過フッ化合物が有利である。上記材料のいずれも接着剤特性を有してはならない。何故ならば、さもないと本発明の作用はもはや保証されないからである。上記界面活性物質の作用は、この界面活性物質が金属の表面及び / 又は「黒鉛」の表面に塗布される前に、又はこの過程の後に、この界面活性物質に、金属、アルミニウム、ジルコン、チタン、錫、亜鉛、クロムのグループから成る少なくとも 1 つの加水分解可能な塩を分子の形で導入することにより改善される。これは塗布前に相応の成分を所望の比で互いに混合することにより行われるか、又は、シロキサン及び / 又は過フッ化合物及び / 又は金属石けんから成る第 1 の成分を、結合させたい表面の片面又は両面に塗布した後に、既に設けられた層へ塗布することにより行われる。必要な微細な分配を得るために、しばしば、エマルション、分散液又は溶液により処理される。塗布された加水分解可能な塩は、第 1 の層で分子の形で分散することにより分布する。有利には加水分解可能な塩として上記金属の脂肪酸塩が添加される。さらに、加水分解可能な塩は界面活性化合物に架橋作用を及ぼし、塗布される表面上への固定を促進させる。架橋助剤としては有利にはエポキシドアミンも使用することができる。

10

20

30

【 0 0 2 7 】

上記界面活性物質は、属する材料種類に無関係に、単独で又は互いに混合した形で使用することができる。この場合、確かに 2 種以上の界面活性物質を混合することはできるが実用的ではないので慣用ではない。例えばメチル - ヒドロゲンポリシロキサンと (メチルポリアルキレンオキシド) - ジメチル - ポリシロキサンとからなる混合物、メチル - ヒドロゲン - ポリシロキサンとアルファ, オメガ - ジヒドロキシジメチル - ポリシロキサンとからなる混合物、及びアミノ変性されたメチル - ポリシロキサンとアルファ, オメガ - ジヒドロキシジメチル - ポリシロキサンとからなる混合物が有利である。ほぼ 1 : 1 の質量比のメチル - ヒドロゲン - ポリシロキサンとジメチル - ポリシロキサンとの混合物が特に有利であり、前記混合物は有利に水性エマルションの形に加工される。

40

【 0 0 2 8 】

界面活性物質又はこのような物質の混合物を、金属又は「黒鉛」表面に均一に塗布するのが困難である場合には、塗布すべき液体への、例えばアルキルスルホン酸塩のような湿潤助剤の添加又は脂肪アルコール及びエーテルアルコールから成る調製物の添加が推奨される。

【 0 0 2 9 】

シール材料の金属構成部分は特に、鉄、鋼、特殊鋼、銅、アルミニウム、亜鉛、ニッケル、チタンから成る、又は、銅、アルミニウム、亜鉛の合金から成る。どの金属またはどの合金を使用するかは層材料の所定の使用目的に依存している。金属及び合金は、薄板、プレート、又はブロックのような薄いシートの形で存在する。層材料となるよう加工する

50

前に、「黒鉛」に接合するために規定された金属の表面をきれいにしなければならない。その他の表面処理は不要である。

【 0 0 3 0 】

界面活性物質の塗布は、結合させたい表面の片側又は両側に行うことができる。通常、対のうち金属的な表面のみ濡らせば良い。これにより使用する界面活性物質の量をさらに減じることができるからである。しかしながら同様に、「黒鉛」層の相応の表面のみを濡らすこともできる。

【 0 0 3 1 】

結合させたい表面に界面活性物質を塗布する際には常に、この界面活性物質をできるだけ僅かに、この量をできるだけ均一に塗布することが課題である。従って、通常の方法では、純粋な物質が使用されるのは極めて稀である。純粋な物質は通常、界面活性物質が低い粘性で十分である場合にだけ使用される。通常、溶液又はエマルション又は分散液が使用され、この場合、作業時には、水性エマルションが比較的有利である。場合によっては、僅かな量の湿潤助剤の添加に関連して、相応の希釈程度を選択することにより、例えば、塗布ローラによる塗布や噴霧によって、次いで行われる除去やその他の公知の方法により極めて薄い界面活性物質の被覆を設けることができる。層厚さは通常の使用では、1000nmを越えず、10nm以下ではないのが望ましい。有利には、100nm~500nmの層厚さで処理される。界面活性物質から成るつながったシートを形成する必要はない。微細な液滴の均一に分配された密な塗布は、本発明の課題も満たす。しかしながら第1の塗布過程後の余剰な液体の除去がこの場合も推奨される。

10

20

【 0 0 3 2 】

「黒鉛」層の特性は、層材料に対して規定された使用目的に合わせられる。一般的に、5mmまでの厚さ、有利には0.2~3mmの厚さを有した層が使用される。設ける「黒鉛」層の見かけ密度は通常、0.01~1.8g/cm³の範囲、有利には0.4~1.6g/cm³の範囲にある。しかしながら、金属挿入体を取り囲む適合した型内で膨張した黒鉛を、予め接着剤を設けた金属表面に付与し（見かけ密度約0.02g/cm³）、この膨張黒鉛をこの型内で所望の「黒鉛」層となるように圧縮することもできる。このようにして極めて薄い「黒鉛」層を設けることができる。場合によって、このように形成された「黒鉛」層上に、例えばシート又はプレートの形のさらに別の「黒鉛」層をプレス加工し、次いで、その下に位置する層に、この層が予め圧縮され過ぎていない場合には堅固に結合することができる。

30

【 0 0 3 3 】

プレス加工前に金属挿入体上に設けられる「黒鉛」層は既に、最終的なシール材料において規定されている見かけ密度を有していて良い。金属と「黒鉛」とから成る層を押し合わせる際に、シール材料を製造するために使用されるプレス圧は、「黒鉛」層の所定の見かけ密度を得るために必要な圧縮圧を超過してはならない。しかしながら、まず最初に黒鉛層を、最終的にプレス加工されるシール材料における最終的な見かけ密度よりも低い見かけ密度で設けることもできる。所定の最終的な見かけ密度は、シール材料の構成部分を押し合わせる際に初めて生じる。

40

【 0 0 3 4 】

シール材料を形成する構成部分の接合後に、金属層と「黒鉛」層の所望の解離不能な結合は、互いに押し合わせるにより形成される。この押し合わせは、公知の、そのために適した各種プレス装置により継続的または断続的に行われる。しかしながら有利には、加熱可能な打ち抜きプレス又は多段プレス、又はダブルベルトプレスが使用される。

【 0 0 3 5 】

解離不能な結合の形成の際に、プレス圧、温度、時間といった方法パラメータが相互作用する。所望の結合強度は、例えば、30~50の比較的低い温度で、極めて長い時間、即ち、例えば数日間の単位で、比較的高い圧力下で押し合わせた場合に得られる。プレス温度の上昇により、その間に必要なプレス時間は著しく短縮される。同様に、高いプレス圧も、プレス時間を短縮する。経済的な作業のためには、80~300の温度、有利

50

には 120 ~ 200 の温度のもとで、1 ~ 50 MPa、有利には 3 ~ 10 MPa のプレス圧が使用される。このようなパラメータ範囲内での作業の際には、相応の試行により得られたデータに基づき当業者が難なく行うことができる相応のパラメータ最適化のもとで、5 分 ~ 5 時間の、有利には 1 ~ 2 時間のプレス時間が必要である。

【0036】

圧力負荷を解放し、室温に冷却した後には得られるシール材料は、その都度見られる、金属層とこの金属層に対応配置された「黒鉛」層との間の解離不能な結合を有している。「黒鉛」層を金属挿入体から、例えば曲げにより、または剥離テスト又は裂断テストを行って、解離させようとする試行の際には常に、裂断は黒鉛層内部で生じ、金属・「黒鉛」結合区域では生じない。即ち、本発明により形成されたシール材料の層間の結合の強度は、

10

【0037】

本発明によるシール材料は、比較的軟らかい黒鉛表面の機械的損傷を例外として、取り扱い安定的である。このようなタイプの薄いシール材料においても、屈曲された際に剥離は生じない。シール材料の外側の「黒鉛」層は、例えば、特許文献 DE 3 2 4 4 5 9 5 号特許明細書に記載されているような金属の電気メッキや、フラン樹脂の熱的プロセス又は含浸により、シール材料の層の結合の強度を損なうことなく表面処理することができる。結合強度は、シール材料の金属部分を腐食させない全ての化学物質の影響下でも、維持される。フラットガスケットとして使用した場合、本発明によるシール材料はリーク率に関して、従来のシール材料よりも有利である。さらに、本発明によるシール材料は、「黒鉛」部分の薄膜剥離に対して安定的である。

20

【0038】

例 1

表 1 に記載の構成を有するシール材料のリーク率が、VDI 基準 2 4 4 0 に沿ってテストされた。

【0039】

【表 1】

層	材料	厚さ / mm	密度 / g/cm ³
載置層	黒鉛シート	0,8	1,0
金属挿入体	特殊鋼 316 (L)	0,5	

30

表 1

【0040】

測定のために、扁平なシールストリップを有する DIN 規格フランジ DN 40 PN 40 の間にシール材を挟み込んだ。シールストリップの表面粗さは Ra 6.3 μm である。ねじは 30 MPa の面圧となる力で締められた。組み付け後、緊締されたフランジパッケージは炉内に 48 時間 300 で置かれた。冷却後、絶対的なリーク率をヘリウムリーク

40

【0041】

比リーク率の算出のために、実際にプレス加工されたシール面の平均的な範囲が考慮された。

【0042】

本発明によるシール材料は、TALUFT 基準に規定された制限値 1×10^{-5} kPa × l (/ s × m) を大きく下回る。

【0043】

例 2

厚さ 1.0 mm の 2 つの黒鉛シートを、六角形の格子構造を有する 1 つの鋼製孔付き薄

50

板とともに、プレス機で 5 MPa でプレス加工した。薄板の材料厚は 1.5 mm であり、ウェブ長さは約 3.6 mm、ウェブ幅は約 0.8 mm である。シール材ジオメトリサイズに打ち抜いたものは層間の十分な付着を示している。

【 0 0 4 4 】

比較例

例 2 と同様に、市販のエキスパンディドメタルを、両側に載置された 2 つの黒鉛シートと共にプレス加工することによりラミネートが製造される。

【 0 0 4 5 】

上記例により得られたサンプルには、D I N E N 1 3 5 5 5 に基づくリーク測定を行った。

10

【 0 0 4 6 】

算出された値の比較を表 2 に記載する。

【 0 0 4 7 】

【表 2】

面圧 MPa	ヘリウムリーク率 mg/(s m)	
	例2	比較例
10	1,1 E-01	1,6
20	7,0 E-03	1,5 E-01
40	2,7 E-04	1,8 E-02
60	2,5 E-05	3,0 E-03
80	4,3 E-06	3,8 E-04
100	9,2 E-07	6,2 E-05
120	1,4 E-07	1,5 E-06

20

表 2

【 0 0 4 8 】

例 3

表 3 に記載の構造を有するシール材料のリーク率が、V D I 基準 2 4 4 0 に沿ってテストされた。

30

【 0 0 4 9 】

【表 3】

層	材料	厚さ / mm	
載置層	黒鉛シート	0,8	1,0 g/cm ³
金属挿入体	特殊鋼 1.4401	0,7	56 % の自由孔面積

40

表 3

【 0 0 5 0 】

測定のために、扁平なシールストリップを有する D I N 規格フランジ D N 4 0 P N 4 0 の間にシール材を挟み込んだ。シールストリップの表面粗さは R a 6.3 μm である。ねじは 3 0 MPa の面圧となる力で締められた。組み付け後、緊締されたフランジパッケージは炉内に 4 8 時間 3 0 0 ° で置かれた。冷却後、絶対的なリーク率をヘリウムリークテスト (マススペクトロメータ) により、1 b a r のヘリウム差圧のもと測定した。

【 0 0 5 1 】

比リーク率の算出のために、実際にプレス加工されたシール面の平均的な範囲が考慮さ

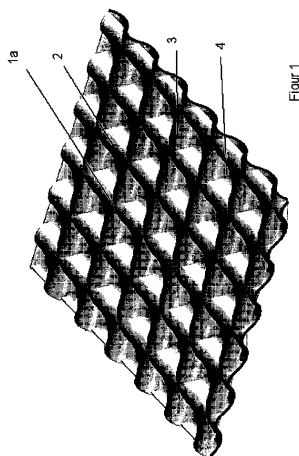
50

れた。

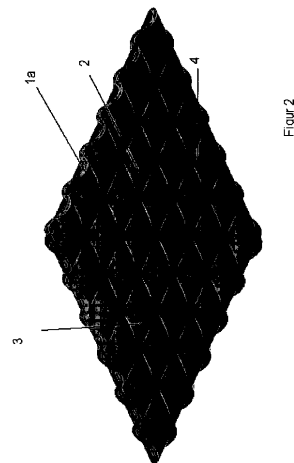
【 0 0 5 2 】

本発明によるシール材料は、T A - L u f t 基準に規定された制限値 $1 \times 10^{-5} \text{ kPa} \times \text{l} (\text{/ s} \times \text{m})$ を大きく下回る。

【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】

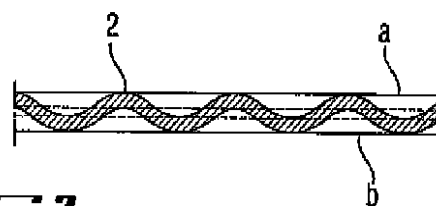
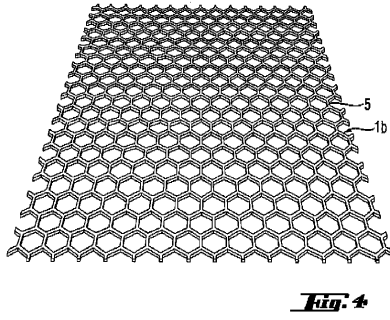
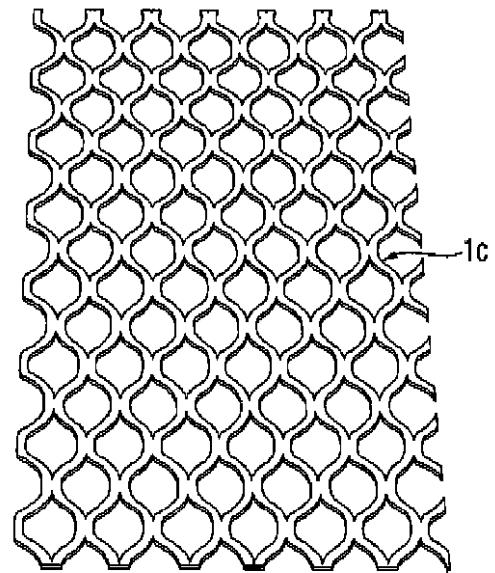


Fig. 3

【 図 4 】



【 図 5 】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2007/011274

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. F16J15/12 B32B15/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B32B F16J		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	DE 20 2004 008198 U1 (FRENZELIT WERKE GMBH & CO KG [DE]) 26 August 2004 (2004-08-26) paragraphs [0019], [2024]	1-3, 5-11,13
Y	EP 1 466 722 A (SGL CARBON AG [DE]) 13 October 2004 (2004-10-13) paragraphs [0002] - [0005], [0008], [0009]	1-3,5-13
Y	US 1 068 585 A (HETTINGER J S) 29 July 1913 (1913-07-29) the whole document	1-3,5-13
Y	JP 63 145873 A (TAWARA YOSHIE) 17 June 1988 (1988-06-17) the whole document	2,3,7-13
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 24 April 2008		Date of mailing of the international search report 08/05/2008
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2260 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Sbaihi, Marc

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2007/011274

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 1 808 774 A (HETTINGER CHARLES F) 9 June 1931 (1931-06-09) the whole document	1,5-13
A	GB 2 251 274 A (SPECIALIST SEALING LTD [GB]; NICHOLSON TERENCE PETER [GB]) 1 July 1992 (1992-07-01) figures 3,5	4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.
PCT/EP2007/011274

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 202004008198 U1	26-08-2004	NONE	
EP 1466722 A	13-10-2004	AT 325709 T CN 1540195 A DE 10316262 A1 JP 2004308912 A US 2004201182 A1	15-06-2006 27-10-2004 11-11-2004 04-11-2004 14-10-2004
US 1068585 A		NONE	
JP 63145873 A	17-06-1988	NONE	
US 1808774 A	09-06-1931	NONE	
GB 2251274 A	01-07-1992	DE 69131508 D1 EP 0670018 A1 WO 9212365 A1	09-09-1999 06-09-1995 23-07-1992

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2007/011274

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. F16J15/12 B32B15/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RESEARCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
B32B F16J

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	DE 20 2004 008198 U1 (FRENZELIT WERKE GMBH & CO KG [DE]) 26. August 2004 (2004-08-26) Absätze [0019], [2024]	1-3, 5-11,13
Y	EP 1 466 722 A (SGL CARBON AG [DE]) 13. Oktober 2004 (2004-10-13) Absätze [0002] - [0005], [0008], [0009]	1-3,5-13
Y	US 1 068 585 A (HETTINGER J S) 29. Juli 1913 (1913-07-29) das ganze Dokument	1-3,5-13
Y	JP 63 145873 A (TAWARA YOSHIE) 17. Juni 1988 (1988-06-17) das ganze Dokument	2,3,7-13
	-/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

24. April 2008

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

08/05/2008

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Sbathi, Marc

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2007/011274

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 1 808 774 A (HETTINGER CHARLES F) 9. Juni 1931 (1931-06-09) das ganze Dokument	1,5-13
A	GB 2 251 274 A (SPECIALIST SEALING LTD [GB]; NICHOLSON TERENCE PETER [GB]) 1. Juli 1992 (1992-07-01) Abbildungen 3,5	4

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2007/011274

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 202004008198 U1	26-08-2004	KEINE	
EP 1466722 A	13-10-2004	AT 325709 T	15-06-2006
		CN 1540195 A	27-10-2004
		DE 10316262 A1	11-11-2004
		JP 2004308912 A	04-11-2004
		US 2004201182 A1	14-10-2004
US 1068585 A		KEINE	
JP 63145873 A	17-06-1988	KEINE	
US 1808774 A	09-06-1931	KEINE	
GB 2251274 A	01-07-1992	DE 69131508 D1	09-09-1999
		EP 0670018 A1	06-09-1995
		WO 9212365 A1	23-07-1992

フロントページの続き

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

(74)代理人 100099483

弁理士 久野 琢也

(74)代理人 100110593

弁理士 杉本 博司

(74)代理人 100112793

弁理士 高橋 佳大

(74)代理人 100128679

弁理士 星 公弘

(74)代理人 100135633

弁理士 二宮 浩康

(74)代理人 100114890

弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト

(72)発明者 ハイコ ラインフェルダー

ドイツ連邦共和国 ネルトリンゲン ブライヒグラベン 17

(72)発明者 マルティン ラインターラー

ドイツ連邦共和国 ノイゼース アルテ シュトラッセ 31

(72)発明者 ローベルト ミヒェル

ドイツ連邦共和国 ティアハウプテン ウルメンヴェーク 5

(72)発明者 ユルゲン パッハー

ドイツ連邦共和国 ヴェルティンゲン フェーゼンベルクリング 9

(72)発明者 マルティン クリスト

ドイツ連邦共和国 アウグスブルク プリンツ - カール - ヴェーク 7アー

(72)発明者 アロイス バウマン

ドイツ連邦共和国 ライン カペルシュトラッセ 4

Fターム(参考) 3J040 EA45 FA02 FA06 FA11

4F100 AB00C AB00D AB02C AB03C AB10C AB12C AB16C AB17C AB18C AB31C

AD11A AD11B AK25A AK25B AK33A AK33B AK52A AK52B AK53A AK53B

BA03 BA04 CB00C DC01C DC07 DC11C DC16C DD01C DD01D DD04C

DD04D DJ00C EC18 GB51 GB90 JA13A JA13B YY00A YY00B YY00C