(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2025-512712
(P2025-512712A)
(43)公表日　令和7年4月22日(2025.4.22)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
Ｈ０１Ｍ	*8/0245(2016.01)*	Ｈ０１Ｍ	8/0245	４Ｋ０２１
Ｈ０１Ｍ	*8/0234(2016.01)*	Ｈ０１Ｍ	8/0234	５Ｈ１２６
Ｈ０１Ｍ	*8/0239(2016.01)*	Ｈ０１Ｍ	8/0239	
Ｃ２５Ｂ	*9/65 (2021.01)*	Ｃ２５Ｂ	9/65	
Ｈ０１Ｍ	*8/0228(2016.01)*	Ｈ０１Ｍ	8/0228	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全25頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-553390(P2024-553390)
(86)(22)出願日　令和5年3月30日(2023.3.30)
(85)翻訳文提出日　令和6年9月5日(2024.9.5)
(86)国際出願番号　PCT/EP2023/058382
(87)国際公開番号　WO2023/187103
(87)国際公開日　令和5年10月5日(2023.10.5)
(31)優先権主張番号　2202914
(32)優先日　令和4年3月31日(2022.3.31)
(33)優先権主張国・地域又は機関
フランス(FR)
(81)指定国・地域　AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV
最終頁に続く

(71)出願人　524332669
ヒッコ
フランス トゥールーズ ディディエ ドラアベニュー ３
(74)代理人　110001210
弁理士法人ＹＫＩ国際特許事務所
(72)発明者　ディ コスタンツォ ロマン
フランス トゥールーズ アンパッス デュフルトラ １３
(72)発明者　フォンテーヌ アラン
フランス トゥールーズ リュ デ ヌグルニー １６５
(72)発明者　ヌーリ ヴィヴィアン
フランス サン トラン ド ガムヴィル デ ラ ポステ プレース ４
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　炭素繊維製バイポーラプレートを製造する方法

(57)【要約】
バイポーラプレート製造方法であって、スタック（１）を形成すべくスタック軸線（Ａ）に沿い第１離型膜（４）、少なくとも１個の炭素補強膜（２）、少なくとも１個の熱硬化性製樹脂膜（３）及び第２離型膜（４）を重ね合わせる工程と、圧縮システム内でそのスタック（１）を加圧する工程であり第２所定時間に亘り所定の形成圧及び所定の形成温度にて実行される加圧工程とを、有する。その炭素補強膜（２）を、複数本の補強繊維（２１）を備え、各補強繊維（２１）が配向軸（Ｆ）に沿い延び、それら補強繊維（２１）のうち少なくとも１０％～６０％の配向軸（Ｆ）がスタック軸線Ｚに沿った向きをなす、不織補強膜（２）とする。

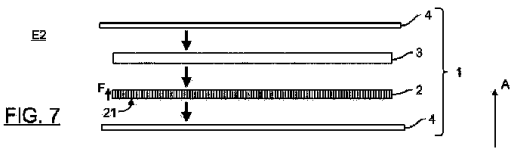


FIG. 7

【特許請求の範囲】
【請求項１】
バイポーラプレート（Ｂ）を製造する製造方法であり、そのバイポーラプレート（Ｂ）が電気化学デバイス内に実装しうるよう構成され、その電気化学デバイスが電気化学反応を実施しうるよう構成されたものであり、
前記製造方法が、
スタック（１）を形成すべくスタック軸線Ｚに沿い第１離型膜（４）、少なくとも１個の補強膜（２）、少なくとも１個の熱可塑性樹脂膜（３）及び第２離型膜（４）を重ね合わせる工程（Ｅ２）と、
圧縮システム（Ｍ）内に前記スタック（１）を配置する工程（Ｅ３）と、
前記圧縮システム（Ｍ）内で前記スタック（１）を加圧する工程（Ｅ４）であり、前記熱可塑性樹脂膜（３）を構成している熱可塑性樹脂（３１）が融けてその熱可塑性樹脂（３１）が前記補強膜（２）に浸潤しバイポーラプレート（Ｂ）が形成されるよう、第２所定時間（Δｔ２）に亘り所定の形成圧（Ｐｍ）にて且つ所定の形成温度（Ｔｍ）にて実行される加圧工程（Ｅ４）と、
を有し、
前記補強膜（２）が、複数本の補強繊維（２１）を備える不織炭素補強膜（２）であり、各補強繊維（２１）が配向軸（Ｆ）に沿い延び、前記スタック軸線Ｚに沿い配向された補強繊維（２１）の比率が１０％～６０％であることを特徴とする製造方法。
【請求項２】
請求項１に記載の製造方法であって、前記スタック軸線Ｚに沿い配向された補強繊維の比率が１５％～４５％である製造方法。
【請求項３】
請求項１及び２のいずれか一項に記載の製造方法であって、前記不織炭素補強膜（２）が炭素フェルトである製造方法。
【請求項４】
請求項１～３のいずれか一項に記載の製造方法であって、前記不織炭素補強膜（２）が開放ポロシティを備え、その不織炭素補強膜（２）が前記加圧工程（Ｅ４）前に６０％超の開放ポロシティ比率を有している製造方法。
【請求項５】
請求項４に記載の製造方法であって、前記開放ポロシティが１μｍ～３００μｍなる直径を有する製造方法。
【請求項６】
請求項１～５のいずれか一項に記載の製造方法であって、前記形成温度（Ｔｍ）が１４０～４００℃である製造方法。
【請求項７】
請求項１～６のいずれか一項に記載の製造方法であって、前記所定の形成圧（Ｐｍ）が６～１２ＭＰａである製造方法。
【請求項８】
請求項１～７のいずれか一項に記載の製造方法であって、前記加圧工程（Ｅ４）の後、第３所定時間（Δｔ３）に亘り形成済バイポーラプレート（Ｂ）を除熱する工程（Ｅ５）を、有する製造方法。
【請求項９】
請求項８に記載の製造方法であって、前記除熱の速度が４０～９０℃／分である製造方法。
【請求項１０】
電気化学デバイス内に実装しうるよう構成されたバイポーラプレート（Ｂ）であり、請求項１～９のいずれか一項に記載の製造方法により製造されたバイポーラプレート。
【請求項１１】
請求項１０に記載のバイポーラプレート（Ｂ）であって、０．５ｍｍ以下の厚み（Ｅｐ

）を有するバイポーラプレート。
【請求項１２】
請求項１０及び１１のいずれか一項に記載のバイポーラプレート（Ｂ）であって、１２ｍΩｃｍ^{2}未満の表面電気比抵抗を有するバイポーラプレート。
【請求項１３】
請求項１０～１２のいずれか一項に係るバイポーラプレート（Ｂ）であって、１％未満の多孔率を有するバイポーラプレート。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は電気化学デバイスの分野に関し、とりわけ、電気化学デバイス内に実装しうるよう構成された複合素材製バイポーラプレートを製造する方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
電気化学デバイスとは電気化学反応を実施できるあらゆるデバイス、例えば燃料電池やプロトン交換膜電解装置のことであり、それにより電気エネルギ又は水素をそれぞれレドックス反応（酸化還元反応）で発生させることができる。語「電気化学デバイス」はレドックスフロー電池のことも指しており、それを用い、その電池内に蓄えられているポテンシャルエネルギから電気エネルギを生成することができる。
【０００３】
既知手法による電気化学デバイスは、複数個のセルで構成されスタック軸線に沿い拡がるスタック（積層体）と、そのスタックの端に配置された２枚のエンドプレートとを備えている。エンドプレートが圧縮部材により連結されていて、それにより諸セルを圧縮してその電気化学デバイスの封止を確保することができる。
【０００４】
電気化学デバイス１００を表している図１によれば、各セル１１０が、既知要領に従い、膜・電極アセンブリ１２０と２枚のバイポーラプレート１３０、別称セパレータプレートとを備えていて、そのバイポーラプレートにより膜・電極アセンブリ１２０が挟み込まれセル１１０内流体散布が可能にされている。その電気化学デバイス内で電気化学反応を発生させるため、各セル１１０には酸化性流体及び還元性流体、例えば二水素及び二酸素のそれが供給され、それらが膜の各側で循環し触媒の許で反応する。各セル１１０には伝熱流体も供給され、それを用いその電気化学デバイスの温度が規制される。実際、隣り合う２個のセル１１０Ａ，１１０Ｂに備わり隣り合う２枚のバイポーラプレート１３０Ａ，１３０Ｂをしっかりと一体固定することで、数本の内部チャネル１４０を形成させることができ、それにより伝熱流体をセル１１０間で流通させることができる。
【０００５】
図２及び図３によれば、既知手法によるバイポーラプレート１３０は、酸化性流体及び還元性流体の出入りを可能にする複数個の開口１３１と、伝熱流体向けの２個のインレット及びアウトレット開口１３２とを備えている。また、各バイポーラプレート１３０が、膜・電極アセンブリと接触していてその上でレドックス反応が起こる活性中央部１３３と、２枚のバイポーラプレート１３０を一体固定可能とする周縁部１３４とを備えている。
【０００６】
活性部１３３は、凹部１３５及び凸部１３６（図２記載の平面Ａ：Ａに沿ったバイポーラプレート１３０の断面外観を提示する図３に示されているそれ）を備えていて、それにより様々なインレット／アウトレット開口１３１，１３２間での流体流通が可能にされている。２枚のバイポーラプレート１３０の凹部１３５が一体固定されていて、凸部１３６により伝熱流体循環用の内部チャネル１４０（図１に示されているそれ）が形成されている。
【０００７】
従来技術においては、黒鉛又は金属（例．ステンレス鋼、インコネル（登録商標）、ア

ルミニウム又はチタン）製のバイポーラプレートであり、その電気化学デバイスにより引き起こされる腐食の影響が制限されるよう保護被覆で以て覆われたものが、知られている。しかしながら、そうしたバイポーラプレートには多数の短所がある。黒鉛製バイポーラプレートは重いし、一般に２ｍｍよりも厚いので長大な全体寸法を有するものとなる。金属製バイポーラプレートは大質量であり、実装先電気化学デバイスの酸性及び腐食性環境の許では、用いられている保護被覆の如何によらずサービス寿命が限られる。

【０００８】

結果として、バイポーラプレートがますます複合素材で作成されるようになっている。導電要素を備えていてそれらが樹脂内に散在しているバイポーラプレートが、この目的に相応しいことがわかっている。導電要素は、カーボンブラック、細砕炭素繊維、黒鉛、膨張黒鉛、カーボンナノチューブ又はグラフェンを含むものとする。樹脂は一般に熱可塑性又は熱硬化性のポリマとする。こうしたバイポーラプレートを形成する際には、粘性状態の樹脂に極多数の導電要素を混ぜ込む（一般にはバイポーラプレート全体に対し導電要素を８５％超とすることで高い導電率を確保する）。バイポーラプレートは、この導電要素添加済樹脂をモールド（型）内へと射出することで形成され、或いは熱圧縮プレス内で加圧することで成型される。

【０００９】

しかしながら、導電要素の大量付加によりその熱硬化性又は熱可塑性樹脂の粘度がかなり高まるので、その混合物が厚手になる。上述の製造方法では薄いバイポーラプレートを製造することが可能でなく、バイポーラプレートが往々にして極厚、一般には２ｍｍ超となって、その電気化学デバイスの全体寸法及び重量が増大する。これは、例えば航空機その他の移動体アプリケーションに組み込むべく電気化学デバイスを構成する上で、不首尾なことである。加えて、射出成形や熱圧成形にて表面樹脂層、例えば離型剤の使用を原因とするそれが残り、それにより電気接触抵抗が増大することが、そうした数値を最小化させねばならない電気化学変換デバイスアプリケーションでは有害である。その電気接触抵抗を減少させるには、バイポーラプレートを、化学的又は機械的処置、例えばアブレーションによって、後処理する必要がある。

【００１０】

熱可塑性又は熱硬化性ポリマ樹脂で以て浸潤された補強繊維（例．炭素繊維）を備える複合素材製のバイポーラプレートが、従来技術にて知られている。こうしたバイポーラプレートには、より薄く（１ｍｍ未満の厚みに）なるのでその全体寸法及び重量を抑制可能であるという長所がある。

【００１１】

しかしながら、そうしたバイポーラプレートでは、その熱可塑性樹脂により、絶縁スキンに類する残留物層が表面上に形成され、導電率に影響することがある。そのため、そのバイポーラプレートの表面上における補強繊維の露出に進む必要がある。こうした処置、例えばプラズマ照射による溶解又は研磨により実行されるそれでは、補強繊維が損傷してバイポーラプレートの機械的特性に影響することがあり、これはかなりの短所である。また、特許文献１から既知な通り、犠牲膜の使用により、バイポーラプレートの表面上にて補強繊維を損傷なしで露出させることができる。その場合、熱圧縮（熱圧着）を用いバイポーラプレートを製造することで、薄くて軽量なバイポーラプレートを製造することが可能である。しかしながら、特許文献１中の製造方法では、炭素繊維補強を用いるバイポーラプレートを、簡略且つ迅速に生産することができない。

【００１２】

加えて、補強繊維の使用に際しては、非常に高い形成圧（一般には１５ＭＰａ超）が、それらの繊維の適正浸潤を可能にし、ポロシティ（細孔）を減らし、且つ表面上に繊維を露出させて導電率を良好化するために、求められる。圧力が多大だとその補強材の初期織が変形することや孔状空洞の形成につながることがあり、それによってそのバイポーラプレートのガス不透過性が変化することがある。

【先行技術文献】

【特許文献】
【００１３】
【特許文献１】国際公開第２０１６／１８２１３１号
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【００１４】
ここに、本発明は、簡略、迅速であり、高価な産業機械の使用が必要でなく、薄くて軽量なバイポーラプレートの形成が可能な、バイポーラプレート製造方法を提案することによって、これら短所のうち少なくとも幾つかを解消することを目的とする。
【課題を解決するための手段】
【００１５】
本発明は、電気化学反応を実施しうるよう構成された電気化学デバイス内に実装しうるようバイポーラプレートが構成されるバイポーラプレート製造方法であり、
スタックを形成すべくスタック軸線Ｚに沿い第１離型膜、少なくとも１個の補強膜、少なくとも１個の熱可塑性樹脂膜及び第２離型膜を重ね合わせる工程と、
圧縮システム内にそのスタックを配置する工程と、
その圧縮システム内でそのスタックを加圧する工程であり、その熱可塑性樹脂膜を構成している熱可塑性樹脂が融けてその熱可塑性樹脂が補強膜に浸潤しバイポーラプレートが形成されるよう、第２所定時間に亘り所定の形成圧にて且つ所定の形成温度にて実行される加圧工程と、
を有するものに、関する。
【００１６】
本製造方法では、注目すべきことに、その補強膜が、複数本の補強繊維を備え、各補強繊維が配向軸に沿い延び、スタック軸線Ｚに沿い配向された補強繊維の比率が１０％～６０％である、不織炭素補強膜とされる。
【００１７】
上首尾なことに、不織炭素補強膜とすることで、織補強膜向けに用いられる圧力よりも低い形成圧の印加か可能となるので、あまり高価でない産業機械の使用が可能となって、より簡略且つ迅速な製造方法とすることが可能となる。低めな形成圧とすることで、補強材の初期織の変形や孔状空洞の形成であり、バイポーラプレートのガス不透過性に影響しかねないものを、制限することもできる。
【００１８】
それら補強繊維をスタック軸線に沿い配向させることで、その軸線沿いにおけるその素材の導電率を高めることが可能となり、それにより電気化学デバイス用バイポーラプレートの表面間での最適な電気輸送を確保することができる。
【００１９】
スタック軸線に沿い配向される補強繊維の比率を１０％～６０％とすることで、そのバイポーラプレートにて良好な導電率がもたらされる一方、確と、そのバイポーラプレートが高い機械耐性を有するものとなる。スタック軸線Ｚに沿い配向された補強繊維をこうした高比率にすることで、機械及び導電率の両機能を実現することが可能となる。
【００２０】
好ましくはそれら補強繊維をスティッチングにより配向させる。幾ばくかの補強繊維を、スティッチングによりスタック軸線Ｚに沿い機械的に配向させることができ、それによりそのバイポーラプレートの導電率が改善されるので、電気化学デバイス内にそのバイポーラプレートを実装したときに、そのバイポーラプレートに隣り合う２個のセルでのより良好な電荷交換を可能とすることができる。
【００２１】
これに代え、それら補強繊維の配向を別の方法、例えば水力交絡により実行することもできる。
【００２２】

ある好適実施形態では、スタック軸線Ｚに沿い配向される補強繊維の比率が１５％～４５％とされるので、そのバイポーラプレートにおける導電率を最適にすることが可能となる。この比率は、非配向補強繊維の比率が十分高く留まるため、そのバイポーラプレートの最適機械的強度を保証できることも意味している。

【００２３】

好ましくは、その不織炭素補強膜が開放ポロシティを有することを踏まえ、その不織炭素補強膜を、６０％超の加圧工程前開放ポロシティ比率を有するものとする。語「開放ポロシティ」については後に詳述する。

【００２４】

ある実施形態では、その不織炭素補強膜を、６０％～７０％の開放ポロシティ比率を有するものとする。研究により示されたところによれば、ある種の素材例えばカーボン紙やガス拡散層が、薄くて強く軽量なバイポーラプレートを製造する上でひときわ効果的であり、こうした開放ポロシティ比率を有することとなりうる。

【００２５】

好ましくはその不織炭素補強膜を炭素フェルトとする。炭素フェルトは高い補強膜内開放ポロシティ比率、好ましくは７０％超のそれを有しているので、その補強膜内、より具体的には補強繊維間での熱可塑性樹脂の最適流動が可能となる。こうすると、それら補強繊維に熱可塑性樹脂が最適浸潤するので、コンソリデーション（圧密・強化）のレベルが高く及び孔が些少なバイポーラプレートがもたらされる。「開放ポロシティ」は、その補強膜の外側に向かい開口している空洞群又はポロシティチャネル群を意味している。開放ポロシティには外側からアクセス可能であり、それらをポリマ樹脂で以て満たすことで、そのバイポーラプレートの機械的強度を確保することができる。また、炭素フェルトとすることで、旧来は熱絶縁体として用いられ又はレドックスフロー電池における液体電解質拡散可能化媒体として用いられていた既知素材の使用も、可能となる。

【００２６】

好ましくは、その不織炭素補強膜が開放ポロシティを有することを踏まえ、その不織炭素補強膜を、８０％超の加圧工程前開放ポロシティ比率を有するものとする。この開放ポロシティ比率であればその補強膜の最適変形も可能であり、高圧縮性なものとすること及び複雑形態に対するその補強膜の適合が可能となる。更に好ましくは、その不織炭素補強膜を、９０％超の開放ポロシティ比率を有するものとする。以下、簡略化のため、「開放ポロシティ比率」を「開放ポロシティ」とも呼ぶ。

【００２７】

高い補強膜内開放ポロシティ比率に、最適なスタック軸線Ｚ沿い配向補強繊維比率を組み合わせることには、電気化学システムでのそのバイポーラプレートの使用に際し最適性能がもたらされるという利点がある。とりわけ、高水準な開放ポロシティ比率に、高いスタック軸線Ｚ沿い補強繊維配向比率を組み合わせることで、バイポーラプレートの高導電率化が可能となるため導電要素としてのその役割を最適要領にて遂行可能となるだけでなく、その補強材の高多孔率化が実現されて低圧での補強材の多大変形及び良好浸潤が可能となるため、そのバイポーラプレートのチャネルを正しく形成すること並びに水素を無視可能なポロシティを有する複合材を得ることができ、ひいては流体セパレータとしてのその役割を遂行することが可能となる。

【００２８】

好ましくは、前掲の開放ポロシティを、１μｍ～２５０μｍの直径を有するものとする。好ましくは、その補強膜内の開放ポロシティのうち少なくとも５０％を、１２５μｍ超の直径を有するものとする。更に好ましくは、その補強膜内の開放ポロシティのうち少なくとも５０％を、１５０μｍ超の直径を有するものとする。こうしたポロシティはポリマ樹脂により容易に満たすことができ、そのことがそのバイポーラプレートの機械的強度に影響することもない。また、ポロシティがこうしたサイズであることは、そのアセンブリが高度に可圧縮であるため薄いバイポーラプレートを製造可能なことを、意味している。表記「開放ポロシティの直径」は等価円の直径、即ちそのポロシティの表面積と等価な表

面積を有する円の直径を意味している。これと同じ要領で、より精密に記述すると、その補強膜の開放ポロシティの表面積のうち少なくとも５０％が、その等価円直径が１２５μｍ超のポロシティにより占められるのが望ましい、となる。

【００２９】

好ましくは、前掲の開放ポロシティを、１μｍ～３００μｍの等価円直径を有するものとする。ある実施形態では、その補強膜の開放ポロシティの表面積のうち少なくとも５０％を、３０μｍ超の等価円直径を有するポロシティにより占めさせる。更に好ましくは、その補強膜の開放ポロシティの表面積のうち少なくとも５０％を、その等価円直径が８０μｍ超、好ましくは９０μｍ超のポロシティにより占めさせる。

【００３０】

好適な形成温度は１４０～４００℃であり、この温度では広範な熱可塑性ポリマ族を実現可能である。

【００３１】

ある実施形態では、その形成温度を２４０～３６０℃とすることで、ポリフェニレンスルフィド（ＰＰＳ）又はポリフェニルスルホン（ＰＰＳＵ）型のポリマを形成可能でとする。

【００３２】

ある実施形態では、その形成温度を２００～２６０℃とすることで、ポリ弗化ビニリデン（ＰＶＤＦ）又はポリアミド型のポリマを形成可能とする。

【００３３】

ある実施形態では、その形成温度を１４０～２００℃とすることで、ポリオレフィン型ポリマを形成可能とする。

【００３４】

ある実施形態では、その形成温度を３５０～４００℃とすることで、ポリアリールエーテルケトン型のポリマ（ＰＥＥＫ、ＰＥＫ、ＰＥＫＫ等）を形成可能とする。

【００３５】

好ましくは、その所定の形成圧を６～１２ＭＰａとする。不織炭素であるので、こうした形成圧でも充分に、その補強膜内の補強繊維に最適浸潤させることができ、ひいてはコンソリデーションのレベルが高いため電気化学デバイス内水素にとりそのバイポーラプレートの非透過性が顕著であるという利を、バイポーラプレートから得ることができる。

【００３６】

好ましくは、その所定の形成圧を８～１０ＭＰａとする。本発明によれば、過剰な高圧まで形成圧を高める必要がない。これにより、格別に高価な産業機械の必要性が解消される。本製造方法がより速やか且つ簡略に実施される一方、製造速度の向上が可能となる。また、この形成圧により、バイポーラプレート内に孔状空洞を発生させかねない初期補強膜内補強繊維変形が制限されるので、もろもろの誤作動リスクを制限してそのバイポーラプレートの有効性を保証することができる。

【００３７】

好ましくは、その補強膜を５ｍｍ未満厚のものとする。この補強膜は、高い機械耐性を有するバイポーラプレートを生産しうる程度には厚く、それでいて複雑な幾何形状に対しその補強膜を適合させることが可能な程度には可撓である。好ましくも、その補強膜の初期厚（即ちそのスタックが圧縮されてバイポーラプレートが形成される前の厚み）を０．５～３．４ｍｍとすることで、０．５ｍｍ未満のスタック圧縮後厚みを有するバイポーラプレートの形成が可能となる。

【００３８】

好ましくは、その補強膜を、５００ｇ／ｍ^{2}以下の単位面積当たり質量を有するものとすることで、軽量なバイポーラプレートを形成可能とする。好ましくは、その単位面積当たり質量を５０～４００ｇ／ｍ^{2}とする。更に好ましくは、その単位面積当たり質量を５０～３００ｇ／ｍ^{2}とすることで、質量制約が重視される電気化学デバイス内、例えば航空機その他の移動体内のそれに、形成済バイポーラプレートを組み込むことを可能とする

。
【００３９】
ある実施形態の製造方法は、加圧工程の後、第３所定時間に亘り形成済バイポーラプレートを除熱する工程を有する。
【００４０】
第１実施形態では、この除熱工程が１０～１００℃／分なる除熱速度にて実行される。こうした高い除熱速度とすることで、半結晶性ポリマの結晶部分を発達させることが可能となるので、製造後のバイポーラプレートを、その電気化学デバイス内でエネルギ変換に用いられる流体相手の非透過性が良好なものとすることができる。この除熱速度では４３～４７％の結晶化比を達成することができ、これは、その熱可塑性樹脂を用い達成できる最大の結晶化比、一般には４０～５５％の領域内のそれに近い結晶化比に相当している。研究により示されたところによれば、他種の熱可塑性樹脂例えばポリアリールエーテルケトンで以て達成できる最大結晶化比は、２０～４０％である。同様に、別種の熱可塑性樹脂例えばポリオレフィンで以て達成できる最大結晶化比は、５５～８０％である。
【００４１】
また、「アモルファス」ポリマと呼ばれるポリマ、即ち結晶部分を有していないポリマに関しては、その除熱工程を８０℃／分超の除熱速度にて実行することで、そのバイポーラプレートを速やかに除熱できるため、より高い生産速度とすることが可能となる。
【００４２】
好ましくは、その除熱速度を４０～９０℃／分とする。こうした除熱速度とすることで、そのスタックの結晶部分の最適発達を可能としつつそのバイポーラプレートの除熱時間が短縮され、それにより製造サイクルを減縮すること及び迅速方法化が可能となるため、高い生産速度とすることが可能である。
【００４３】
本発明は、電気化学デバイス内に実装しうるよう構成されたバイポーラプレートであり、前述の製造方法により製造されたバイポーラプレートにも、関する。
【００４４】
ある態様に係るバイポーラプレートは、複数本の補強繊維を有する不織炭素補強膜を備え、各補強繊維が配向軸に沿い延び、スタック軸線Ｚに沿い配向された補強繊維の比率が１０％～６０％のものである。
【００４５】
好ましくも、本バイポーラプレートを、０．５ｍｍ以下の厚みを有するものとすることで、上首尾なことに、電気化学デバイスの質量及び全体寸法を抑制することと、その電力密度（ｋＷ／ｋｇ単位の数値）を増やすこととが、共に可能となる。ひいては、その電気化学デバイスを移動体例えば航空機内に容易に実装することができる。
【００４６】
更に好ましくは、本バイポーラプレートを０．４ｍｍ未満厚とする。
【００４７】
好ましくは、本バイポーラプレートを、１２ｍΩ．ｃｍ^{2}未満の表面電気比抵抗を有するものとする。
【００４８】
好ましくは、本バイポーラプレートの多孔率を１％未満とすることで、そのバイポーラプレート向けに最適な透過性を確保する。
【００４９】
例示により与えられる以下の記述を、非限定的な例により与えられる後掲の図面であり同一参照符号が類似物に付与されているものと併せ一読することで、本発明をより良好に理解頂けよう。
【図面の簡単な説明】
【００５０】
【図１】電気化学デバイス内にあり膜・電極アセンブリ及びバイポーラプレートが備わる

スタックの模式図である。
【図２】図１中のバイポーラプレートの模式図である。
【図３】図２中のバイポーラプレートの断面外観の模式図である。
【図４】不織炭素補強膜、熱可塑性樹脂膜及び２個の離型膜が備わるスタックであり本発明に係るバイポーラプレートの製造に供されるものの模式図である。
【図５】図４の不織繊補強膜のクローズアップ図である。
【図６】本発明の一実施形態に係る製造方法の第１工程の模式図である。
【図７】本発明の一実施形態に係る製造方法の第２工程の模式図である。
【図８】本発明の一実施形態に係る製造方法の第３工程の模式図である。
【図９】本発明の一実施形態に係る製造方法の第４工程の模式図である。
【図１０】本発明の一実施形態に係る製造方法の第５工程の模式図である。
【図１１】本発明に係る製造方法における温度及び圧力の変転を表すグラフである。
【図１２】本発明の一実施形態に係る製造方法の第６工程の模式図である。
【図１３】本発明に係る製造方法を用い製造されたバイポーラプレートの模式図である。
【図１４】補強膜の断層撮影解明によりもたらされる画像の模式図である。
【図１５】図１４に示されている補強膜の補強繊維のスケルトナイゼーションの模式図である。
【発明を実施するための形態】
【００５１】
注目すべきことに、図面は本発明を実施することを目的に本発明を詳細説明するものであり、無論、必要に応じそれら図面を用い本発明をより良好に定義することができる。
【００５２】
本発明は、電気化学デバイス向けの複合素材製バイポーラプレートを製造する方法に関する。
【００５３】
以下、上述の通り、語「電気化学デバイス」で、燃料電池、プロトン交換膜電解装置、レドックスフロー電池その他、電気化学反応を実施可能なあらゆるデバイスを等しく指すものとする。
【００５４】
前述の通り、電気化学デバイスは、複数個のセルからなるスタックを備え、各セルが膜・電極アセンブリと２枚のバイポーラプレート、別称セパレータプレートとを有していて、それらバイポーラプレートで膜・電極アセンブリが挟み込まれセル内流体散布が可能とされるものである。その電気化学デバイス内で電気化学反応を発生させるため、各セルには、酸化性流体及び還元性流体、例えば二水素及び二酸素のそれが既知要領にて供給され、それらが接触時にレドックス反応の態で反応する。各セルには伝熱流体も供給され、それを用いその電気化学デバイスの温度が規制される。流体通過を可能とすべく、そのバイポーラプレートに備わる凹部及び凸部で循環チャネルを形成させる。
【００５５】
図４によれば、本発明に係るバイポーラプレートＢ（図１３に示されているそれ）は、少なくとも１個の不織炭素補強膜２と少なくとも１個の熱可塑性樹脂膜３とで形成される。本例ではバイポーラプレートＢが不織炭素補強膜２と熱可塑性樹脂膜３とで形成されている。本明細書では、不織炭素補強膜２が１個、熱可塑性樹脂膜３が１個の例を述べているが、いうまでもなく、膜の個数を別の個数とすることもできよう。とりわけ、いうまでもなく、バイポーラプレートＢを数個の不織炭素補強膜２及び／又は数個の熱可塑性樹脂膜３で形成することができよう。以下、簡略化のため、不織炭素補強膜のことを補強膜２と呼ぶ。
【００５６】
図５によれば、補強膜２は、好ましくも平面（Ｘ，Ｙ）に沿い拡がっており、２個の実質的に平坦且つ平行な外表面２Ａ及び２Ｂ、即ち下表面２Ａ及び上表面２Ｂを有している。補強膜２は複数本の補強繊維２１も備えている。好ましくは補強繊維２１を炭素繊維で

形成する。補強膜２の厚みＥｐ２は、平面（Ｘ，Ｙ）に対し直交する垂直軸Ｚに沿い定義されている。

【００５７】

各補強繊維２１は第１端２１ａ及び第２端２１ｂを有している。補強膜２の補強繊維２１のうち少なくとも幾本かが、実質的に、配向軸Ｆに沿い第１端２１ａから第２端２１ｂへと延びている。配向軸Ｆは、本例では下表面２Ａから上表面２Ｂへと延びている。言い換えれば、補強繊維２１の第１端２１ａが実質的に下表面２Ａの表面上にあり、第２端２１ｂが実質的に上表面２Ｂの表面上にあり、各補強繊維２１がその補強膜２の厚みＥｐ２を縦貫し延びている。同じく図５によれば、配向軸Ｆは、垂直軸Ｚに対し形成される角度シータθと、投影面（Ｘ，Ｙ）内で軸Ｘに対し形成される角度ファイφとにより定義される。好ましくも、配向軸Ｆは角度シータθが４５°未満又は１３５°超となり角度ファイφが４５°～１３５°となるよう延びている。簡略化のため、補強繊維２１が上掲の条件に合致している場合に、それら補強繊維２１がスタック軸線Ｚに沿い延びていると見なす。

【００５８】

より具体的には、配向軸Ｆは、角度シータθが０°～４５°又は１３５°～１８０°となり角度ファイφが４５°～１３５°となるよう延びている。

【００５９】

好ましくも、補強膜２の補強繊維２１のうち１０％～６０％が、図５に示される通り、その補強膜２の下表面２Ａ・上表面２Ｂ間にてスタック軸線Ｚに沿い延びている。こうした配向の補強繊維２１であるので、その導電率を高めひいては製造後のバイポーラプレートＢのそれを高めることが可能であり、それでいて顕著な機械特性が維持されている。補強膜２の厚みに沿った導電率、即ちスタック軸線Ｚに沿ったそれが高いことは、後に詳述する通り、バイポーラプレートＢの厚みに沿い良好な導電率が確保されることからして、上首尾なことである。ある実施形態では、補強繊維２１が、ニードリング、スティッチング又はソーイング等の方法によりスタック軸線Ｚに沿い配向される。こうした方法は本件技術分野に習熟した者（いわゆる当業者）にとり既知であるので、本明細書では詳述しない。これに代え、補強繊維２１の配向を別の方法、例えば水力交絡により実行することもできる。

【００６０】

例えば、補強膜２における補強繊維２１の配向を、Ｘ線トモグラフィ（断層撮影）により取得された画像を分析することによって、判別することができる。こうした方法で、補強膜２の三次元的な３Ｄ画像を取得し、補強繊維２１を互いに独立に分析して、その補強膜２におけるそれらの配向を特定することが可能である。

【００６１】

より具体的には、本例にて補強繊維２１を特定する際には、グレイレベル閾値判別によりそれらをポロシティから弁別する。その一環として、補強繊維２１がハイライトされるコントラスト域にてその３Ｄ画像をフィルタリングする。「モーフォロジカル演算子」型画像処理を用いることで、その画像内の補強繊維２１の三次元構造を識別することができる。好ましくは、英語では「モーフォロジカルスケルトン」又は「スケルトナイゼーション」と称される「スケルトナイゼーション」型の画像処理を選択する。こうした方法はいわゆる当業者にとり既知であるので本明細書では詳述しない。

【００６２】

一例として、補強膜２内の補強繊維２１の配向を判別するには、その補強膜をＲＸ　Ｓｏｌｕｔｉｏｎｓ（登録商標）ブランドのマイクロ断層撮影装置、例えばＥａｓｙＴｏｍ２３０モデルにより分析する。その分析の実行時には加速電圧を６０ｋＶ、電流を８０μＡ、ターゲットをタングステンとする。露出時間を０．４ｓ、平均化時間を１０ｓとし、１１２０回のＸ線投射を行う。そのＸ線を、Ｘ－ＡｃｔソフトウェアＲＸ　Ｓｏｌｕｔｉｏｎｓ（登録商標））を用いて捕捉し、“Ａｖｉｚｏ　ｆｏｒ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉａｌ　Ｉｎｓｐｅｃｔｉｏｎ”ソフトウェア（Ｔｈｅｒｍｏ　Ｆｉｓｈｅｒ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆ

ｉｃ（登録商標））を用いて三次元的に再構成する。
【００６３】
具体的には、以下の諸ステップを実行する。
・Ｘ線断層撮影解明により得られた補強膜２の画像を、Ｔｈｅｒｍｏ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃ（登録商標）のソフトウェアたる“Ａｖｉｚｏ　Ｓｏｆｔｗａｒｅ”へとインポートするステップであり、その模式的表現が図１４に示されているもの、
・あるコントラスト域に亘り閾値判別を実行することで補強繊維２１をハイライトするステップ、
・各補強繊維２１の三次元フィラメント状構造を、そのソフトウェア内の“Ａｕｔｏ　Ｓｋｅｌｅｔｏｎ”モジュールにより識別するステップであり、その一例が図１５に示されているもの。
【００６４】
その上で、補強膜２の各補強繊維２１の特性、例えばそれらの配向を調べることができる。一例として、図１５では、類似した配向を有する補強繊維２１が同一の連続線又は破線により表現されている。
【００６５】
前述の通り、各補強繊維２１の配向軸Ｆは、その補強繊維が垂直軸Ｚに対しなす角度シータθと、その補強繊維が基準座標系（Ｘ，Ｙ，Ｚ）の軸Ｘに対しなす角度ファイφとにより定まる。この基準座標系では角度シータθ及びファイφが０°～１８０°間で変化する。より精密には、基準座標系（Ｘ，Ｙ，Ｚ）においては、その頂点がその基準座標系の原点にあり且つそれぞれ軸Ｘ，Ｙ，Ｚ上に中心がある４５°角の個別円錐３個により、空間が区切られる。それら３個の円錐は、従って、以下のシータθ・ファイφ対により定義することができる：
Ｚ上配向円錐：４５°＜φ＜１３５°と０°＜θ＜４５°又は１３５°＜θ＜１８０°
Ｙ上配向円錐：４５°＜φ＜１３５°と４５°＜θ＜１３５°
Ｘ上配向円錐：０°＜φ＜４５°又は１３５°＜φ＜１８０°と０°＜θ＜１８０°
【００６６】
補強繊維２１は、それらの配向角θ及びφに従いそれら３個の円錐間で分類され、２個の円錐に属する補強繊維２１（２個の円錐の境界にある繊維）は分類外とされる。その上で、補強膜２の各軸Ｘ，Ｙ，Ｚに沿い配向された補強繊維２１の比率を計算することができる。
【００６７】
ある好適実施形態では補強膜２が炭素フェルト、別称「炭素マット」とされる。炭素フェルトとすることで、高い開放ポロシティ比率を有する素材の使用が可能となり、ひいてはその電気化学デバイスの液体電解質・バイポーラプレート間での効率的交換が可能となる。表現「開放ポロシティ」は開放空洞、即ち炭素補強繊維２１の配置及び／又はそのサイズ設定によっては閉止されない空洞を意味している。好ましくは、補強膜２における開放ポロシティ比率を７０％超とする。更に好ましくは、その開放ポロシティ比率を８０％とすることで、補強膜２内での熱可塑性樹脂の最適流動を可能とし、それにより補強繊維２１の良好浸潤を可能とする。補強膜２の開放ポロシティ比率が高いので、本製造方法の後に、高いコンソリデーションレベルを有するバイポーラプレートＢ（残留ポロシティの百分率が概ね１％未満のもの）を得ることができる。炭素フェルトには容易に変形させうるという利点があり、その補強膜２を複雑な形態に適合させることが可能である。炭素フェルトには、織補強向けに必要とされる形成圧（通常は１５ＭＰａ超）よりも低い形成圧（一般に６～１０ＭＰａ）しか必要とされない、という利点もある。更に好ましいことに、不織炭素補強膜２を、９０％超の開放ポロシティ比率を有するものとすることで、最適な機械的特性を有するバイポーラプレートＢの製造が可能となる。
【００６８】
好ましくは、補強膜２を、６０％超の開放ポロシティ比率を有するものとする。ある実施形態では、補強膜２を、６０％～７０％の開放ポロシティ比率を有するものとする。実

際、ある種の素材、例えばカーボン紙又はガス拡散層のうちそうした開放ポロシティ比率を有するものであれば、肉薄で計量且つ高耐性なバイポーラプレートを製造することが可能である。

【００６９】

ある好適実施形態では、補強膜２を、直径が１μｍ～２５０μｍのポロシティを有するものとすることで、補強繊維２１を効果的に浸潤させること、並びに製造されるバイポーラプレートＢにおける高いコンソリデーションレベルを保証することを、可能にする。好ましくは、ポロシティのうち少なくとも５０％を１２５μｍ超、更に好ましくは１５０μｍ超の直径を有するものとする。「ポロシティの直径」とはポロシティの等価円の直径、即ちポロシティの表面積と等価な表面積を有する円の直径のことである。ある実施形態では、補強膜２を、１μｍ～３００μｍの等価円直径を有するポロシティが備わるものとする。

【００７０】

ある実施形態では、補強膜２の開放ポロシティの表面積のうち少なくとも５０％が、その等価円直径が３０μｍ超、好ましくは８０μｍ超、更に好ましくは９０μｍ超のポロシティにより占められる。

【００７１】

例えば、補強膜２内のポロシティを特性解明しうる方法の一つに、Ｘ線断層撮影により得られた画像を使用し且つ三次元又は二元的にそれらを分析するものがある。例えば、二次元カット像を所望方向に沿い作成することができる。上述の通り、補強繊維２１は、グレイレベル閾値判別によりそれらをポロシティから弁別することによって、特定される。その上で、その画像を、あるコントラスト域を用いフィルタリングすることで、補強繊維２１をハイライトすることが可能である。そして、「モーフォロジカル演算子」型画像処理（例．「モーフォロジカル勾配」）を用いることで、その画像内のポロシティの二次元構造を識別することができる。

【００７２】

実際の例では、Ｘ線断層撮影に発する三次元画像スライスを採取することで二次元画像を取得する。この例の場合、それら二次元画像をソフトウェアたるＩｍａｇｅＪ（商標）内にインポートする。その上で、（“Ｄａｒｋ　Ｂａｃｋｇｒｏｕｎｄ”モードと呼ばれるモードにて）１２０～２５５間のグレイレベル域上で、閾値判別を実行する。そして、そのソフトウェア内のモーフォロジカル勾配演算子（本例では“Ｗａｔｅｒｓｈｅｄ”）を用いることで、それらポロシティの二次元構造をハイライトすることができる。

【００７３】

ポロシティが識別されたら、各ポロシティの面積を計測し、計測された面積をもとに等価円直径を計算する。その上で、それらポロシティを、それらの等価円直径に従い特性解明及び分類する。例えば、それらの等価円直径が、全ポロシティのうち一群に係る直径閾値よりも小さいかそれとも大きいかに従い、それらポロシティを分類する。

【００７４】

好ましくは、補強膜２を高圧縮性のものとすることで、バイポーラプレートの流体循環チャネルの複雑な幾何形状に対し適合可能とする。１ｍｍ未満の厚みで以てバイポーラプレートＢを形成することもできる。好ましくは、形成されるバイポーラプレートＢを、後に詳述する通り０．５ｍｍ未満の厚みを有するものとする。

【００７５】

同じく図５によれば、補強膜２の厚みは軸Ｚに沿いＥｐ２、好ましくは５ｍｍ以下のそれである。好ましくは厚みＥｐ２を０．５～２．５ｍｍとする。こうした厚みＥｐ２であれば、上首尾なことに、その製造後におけるバイポーラプレートＢの全体寸法を抑制することができる。

【００７６】

ある好適実施形態では、補強膜２を、５００ｇ／ｍ^{2}以下の単位面積当たり質量を有するものとする。好ましくは、その単位面積当たり質量を５０～３００ｇ／ｍ^{2}とすること

で、低質量な補強膜２の使用を可能とし、ひいてはその補強膜２が用いられるバイポーラプレートＢの質量を抑制可能とする。こうするとバイポーラプレートＢが低質量となるため、例えば航空機その他の移動体に実装されるよう構成された電気化学デバイス内にそれを組み込むことが可能となる。

【００７７】

熱可塑性樹脂膜３（図４に示されているそれ）は、製造後にバイポーラプレートＢの熱可塑性マトリクスを形づくるポリマ、即ち熱可塑性樹脂３１と記されているそれを備えている。簡略化のため、以下、熱可塑性樹脂膜３のことを熱可塑性膜３と呼ぶ。

【００７８】

好ましくは、図４に示されている通り、熱可塑性膜３を、５０～６００μｍなる厚みＥｐ３を有するものとする。この厚みであれば、熱可塑性樹脂３１の量を、バイポーラプレートＢの熱可塑性マトリクスを形成するのに充分な量とすることが可能であり、それでいてそのバイポーラプレートＢの体積及び質量が抑制される。

【００７９】

ある実施形態では、熱可塑性膜３の熱可塑性樹脂を半結晶タイプのものとすることで、流体とりわけ水素に対する高度な非透過性を、そのバイポーラプレートＢに付与可能とする。半結晶性の熱可塑性樹脂により顕著な機械及び化学耐性、とりわけ腐食耐性ももたらされる。ある実施形態では、熱可塑性膜３の熱可塑性樹脂をアモルファスタイプのものとすることで、除熱工程中の寸法収縮率を低くし且つ延性を高めることを可能とする。

【００８０】

熱可塑性樹脂は、そのバイポーラプレートＢが実装されることとなる電気化学デバイスの化学的環境に見合うよう、適合させることができる。その関連で言えば、低温プロトン交換膜（頭文字「ＰＥＭ」で呼称）内にバイポーラプレートＢを実装するには、その熱可塑性樹脂を、ポリフェニレンスルフィド型（頭文字「ＰＰＳ」で呼称）、ポリフェニルスルホン（頭文字「ＰＰＳＵ」で呼称）、ポリ弗化ビニリデン（頭文字「ＰＶＤＦ」で呼称）、エチレンクロロトリフルオロエチレン（頭文字「ＥＣＴＦＥ」で呼称）又はポリオレフィン、ポリアリールエーテルケトン若しくはポリアミド型のものとするのが望ましい。

【００８１】

高温プロトン交換膜内にバイポーラプレートＢを実装するには、その熱可塑性樹脂を、ポリフェニレンスルフィド（ＰＰＳ）、ポリフェニルスルホン（ＰＰＳＵ）、エチレンクロロトリフルオロエチレン（ＥＣＴＦＥ）又はポリアリールエーテルケトン型のものとするのが望ましい。

【００８２】

バナジウム若しくは臭化水素電解質又は何らかの液体電解質（例えば有機電解質）を有するレドックスフロー電池内にバイポーラプレートＢを実装するには、その熱可塑性樹脂を、その電解質が塩基タイプのものであるならポリフェニレンスルフィド（ＰＰＳ）及びポリフェニルスルホン（ＰＰＳＵ）型のものとし、その電解質が酸タイプのものであるならポリ弗化ビニリデン（ＰＶＤＦ）又はエチレンクロロトリフルオロエチレン（ＥＣＴＦＥ）型のものとし、或いはポリアリールエーテルケトン型のものとするのが望ましい。

【００８３】

次に、本発明の一実施形態に従いバイポーラプレートＢを製造する方法を述べる。

【００８４】

図４によれば、本例の場合、バイポーラプレートＢが補強膜２、熱可塑性樹脂膜３及び２個の離型膜４からなるスタック１をもとに製造される。スタック１は、後に詳述される通りスタック軸線Ａに沿い延びている。離型膜４の使用により、形成されたバイポーラプレートＢの表面上に補強繊維２１を露出させそこを導電性にすることが可能となる。好ましくも、補強膜２、熱可塑性膜３及び離型膜４をロール形態のものとすることで、それらの貯蔵及び取扱が容易になる。

【００８５】

図６に示されている通り、本方法は、補強膜２、熱可塑性樹脂膜３及び２個の離型膜４

（図６には補強膜２のみを示す）を切断する第１工程Ｅ１を有している。この切断は、例えば切断テーブル上で手動的に実行されるものであり、様々な膜を必要な最終バイポーラプレートＢの寸法に切断することが可能である。補強膜２と熱可塑性膜３は、好ましくは類似寸法とする。更に好ましくは、各離型膜４を、補強膜２及び熱可塑性膜３の寸法よりも大きな寸法を有するものとし、スタック１からはみ出すようにすることで、バイポーラプレートＢが形成された後に容易に除去できるようにする。いうまでもなく、この切断を別のやり方、例えばパンチ又はロボットアームを用いるそれで実行することもできよう。

【００８６】

本方法は、その後に、図７にある通り第１離型膜４、補強膜２、熱可塑性膜３及び第２離型膜４をスタック軸線Ａに沿い重ね合わせてスタック１を形成する第２工程Ｅ２を有している。こうした配置であるので、補強膜２の補強繊維２１の配向軸Ｆをスタック軸線Ａに沿い向き決めすることが可能であり、ひいては製造されたバイポーラプレートＢの表裏二面上にそれらの端２１ａ，２１ｂが露出するよう補強繊維２１を向き決めすることが可能である。即ち、それら補強繊維２１により最適に、バイポーラプレートＢ内へと、従ってその実装先たる電気化学デバイス内へと、電気が伝えられることとなる。本例におけるスタック１は、第１離型膜４、補強膜２、熱可塑性膜３及び第２離型膜４を順次配置することでも、第１離型膜４、熱可塑性膜３、補強膜２及び第２離型膜４を順次配置することでも、形成することができる。

【００８７】

また、スタック１が２個の熱可塑性樹脂膜３を備えている場合、本工程では、オペレータが全く容易に、第１離型膜４、第１熱可塑性膜３、補強膜２、第２熱可塑性膜３及び第２離型膜４を順次重ね合わせることができよう。補強膜２の各側に位置する都合２個の熱可塑性膜３の使用により、補強膜２を通じた熱可塑性樹脂のマイグレーションを減らすことが可能であり、その浸潤が容易化される。

【００８８】

第１離型膜４、補強膜２、熱可塑性膜３及び第２離型膜４は、手動的に重ね合わせることも、例えばロボットアームによって重ね合わせることもできる。

【００８９】

ある実施形態では、スタック１が、例えばある膜が他の膜に対しシフトするリスクが制限されるよう圧密強化される。こうしたコンソリデーションは、例えば熔接点の適用（例えば超音波又は局所加熱）により、或いはソーイングで全ての膜を一体固定することにより、達成することができる。このやり方によるコンソリデーションであれば、例えば把持手段を備えるロボットアームを用い、そのスタック１をより容易に運ぶことが可能となる。

【００９０】

図８によれば、本方法は、その後に、スタック１を圧縮システム内、この例ではモールドＭ内に配置する工程Ｅ３を有している。モールドＭは、この例では下側部材及び上側部材を備えており、そのそれぞれがギザギザＧ付の内表面を有している。ギザギザＧは、バイポーラプレートＢ内に流体流チャネルを形成するのに用いられている。ある実施形態では、スタック１がモールドＭ内に配置される前に、そのモールドを離型剤、例えば下側部材及び上側部材それぞれの内表面上に噴霧可能な液体で以て被覆することで、後の離型を容易化する。好ましくはモールドＭを初期温度Ｔｉとする。好ましくはその初期温度Ｔｉを２０～２１０℃とする。

【００９１】

モールドＭを閉じることでスタック１を捉えた上で、その温度を初期温度Ｔｉから所定の形成温度Ｔｍへと徐々に高めていく。好ましくはその形成温度Ｔｍを１４０～４００℃とする。例えばＰＰＳ型の熱可塑性樹脂向けには、形成温度Ｔｍを好ましくは３０５～３４０℃とする。ＰＶＤＦ型の熱可塑性樹脂向けには、形成温度Ｔｍを２００～２６０℃、好ましくは２１０～２４０℃とする。ＰＰＳＵ型の熱可塑性樹脂向けには、形成温度Ｔｍを２４０～３６０℃、好ましくは２９０～３３０℃とする。初期温度Ｔｉから所定の形成

温度Ｔｍへの昇温は、第１所定時間Δｔ１（図１１中のグラフに示されているそれ）に亘り実行される。好ましくもその第１時間Δｔ１を１０分未満、好ましくは３分以下とすることで、モールドＭを迅速に加熱して生産時間を節約し高い操業度を達成することができる。

【００９２】

図９によれば、本方法は、その後に、圧縮モールドＭ内のスタック１を加圧する工程Ｅ４を有している。この加圧工程Ｅ４は、第２所定時間Δｔ２（図１１中に示されているそれ）に亘り所定の形成圧Ｐｍにて形成温度Ｔｍで実行される。加圧工程Ｅ４にて、熱可塑性膜３内の熱可塑性樹脂を融かしてその補強膜２に浸潤させバイポーラプレートＢを形成することが可能である。

【００９３】

好ましくは形成圧Ｐｍを６～１２ＭＰａとする。更に好ましくも、その形成圧Ｐｍを８～１０ＭＰａとすることで、初期補強膜２内補強繊維２１の変形やそれによるバイポーラプレートＢ内孔状空洞の発生を制限すること、並びにその圧力を簡単に印加することが、共に可能となる。好ましくも第２時間Δｔ２を２分未満、好ましくは１分未満とすることで、補強繊維２１を熱可塑性樹脂３１で確と浸潤させることができ、ひいてはそのバイポーラプレートＢの多孔率を制限することができる。

【００９４】

図１０に示されている通り、本方法は、その後に、第３所定時間Δｔ３（図１１中のグラフに示されているそれ）に亘り形成済バイポーラプレートＢを除熱しひいては圧密強化する工程Ｅ５を有している。温度を形成温度Ｔｍから離型温度Ｔｒへと低下させ、そこで加圧を停止する。好ましくはその離型温度Ｔｒを初期温度Ｔｉと等しくする。第３所定時間Δｔ３を、半結晶性ポリマの場合であれば１０～１００℃／分なる除熱速度が得られるように設定することで、充分にゆっくりな除熱とすることが可能であり、それによりその熱可塑性樹脂の結晶部分を発達させることが可能となるので、エネルギ変換システム内で用いられる水素その他の流体に対し確とその製造済バイポーラプレートが低い不浸透性を呈するようにしつつ、除熱時間を短くして製造サイクルを縮減することができる。この除熱速度では３～４７％の結晶度が得られる。更に好ましくは、その除熱速度を４０～９０℃／分とすることで、コンソリデーションフェーズ中にその熱可塑性樹脂の最適結晶化が確と行われるようにする。アモルファスポリマの場合には、除熱速度を好ましくは８０℃／分超とすることで、バイポーラプレートＢ及びモールドＭが迅速に除熱され生産速度が高まるようにする。

【００９５】

この形成サイクル（即ち昇温工程、形成工程及び除熱工程）が図１１に示されており、これには上述した形成サイクル全体に亘る温度Ｔ及び圧力Ｐの変転のグラフが時間ｔの関数として示されている。

【００９６】

離型温度Ｔｒに達したらモールドＭを開き、形成された複合材製バイポーラプレートＢを取り外す。

【００９７】

図１２に示されている通り、その後は、製造されたバイポーラプレートＢのどちら側にもある離型膜４を工程Ｅ６にて除去することで、そのバイポーラプレートＢの表面上に補強繊維２１を露出させる。離型膜４の除去は、例えば、そのモールドを残したまま離型膜４を巻き取ることで、手動又は自動的に実行することができる。

【００９８】

ある実現例では、本方法が、バイポーラプレートＢを切断する工程、例えばそのバイポーラプレートのうち製造欠陥がある周縁部を取り除くためのそれを有する。これは、例えば、ウォータジェット切断、ミリング又はパンチを用い行うことができる。好ましくは、センタリングに配慮しそのバイポーラプレートの正確な切断（切断誤差が０．１ｍｍ以下のそれ）が確と行われるようにする。

【００９９】
図１３に、上述の製造方法により形成されたバイポーラプレートＢを示す。このバイポーラプレートＢは平面（Ｘ，Ｙ）に沿い拡がっている。上首尾なことに、こうした方法では、（平面（Ｘ，Ｙ）に直交する軸Ｚに沿った）厚みＥｐが１ｍｍ未満のバイポーラプレートＢを形成することが可能である。好ましくは、形成されるバイポーラプレートＢの厚みＥｐを０．５ｍｍ未満とする。
【０１００】
好ましくは、最終的なバイポーラプレートＢにおける補強繊維２１及び熱可塑性樹脂３１の量間比率を、そのバイポーラプレートＢの電気的、熱的及び機械的特性がその電気化学デバイスの運用条件に合致することとなるそれとする。従って、最終的なバイポーラプレートＢを、好ましくは、補強繊維２１の体積比が２０～６０％で熱可塑性マトリクス３１の体積比が４０～８０％のものとする。好ましくは、補強繊維２１の体積比を３０～５０％とし、熱可塑性マトリクス３１のそれを５０～７０％とする。このやり方で生産される極薄バイポーラプレートにより、導電要素比率が８０％超である従来技術の製造方法に比した導電要素比率の低さを補いつつ、最適な導電率を確保することが可能となる。また、製造されるバイポーラプレートの質量が減るため、そのバイポーラプレートが実装される電気化学デバイスの質量を抑えることが可能となる。
【０１０１】
例えば、製造後にバイポーラプレートＢ内に存する補強繊維２１の体積比を、熱可塑性マトリクス３１の分離後に判別することができる。この分離は、例えば、その熱可塑性マトリクス３１の酸溶解により、或いはか焼により、達成することができる。その上で、導電性補強繊維２１の質量を秤量により計測し、その素材の初期質量に関連付ける。諸素材の体積比を用いて単位体積当たり質量へと変換する。
【０１０２】
本発明に係る方法では、好適なタイプの炭素補強及びそれに関連する製造サイクルを提示することで、簡略、迅速であり、高価な産業機械の使用が必要でなく、薄くて軽量なバイポーラプレートの形成が可能な、バイポーラプレート製造方法を提供している。
【０１０３】
好ましくも、そのバイポーラプレートを、０．４ｍｍ以下の厚みを有するものとすることで、その電気化学デバイスの質量及び全体寸法を抑えることと、その素材の表面を後処理することによる導電率向上なしでその電力密度（ｋＷ／ｋｇ）を増やすこととが、共に上首尾に可能となる。そのため、その電気化学デバイスを移動体例えば航空機内に容易に実装することができる。
【０１０４】
本発明のある好適製造例によれば、表面電気比抵抗（ＡＳＲ，表面比抵抗の頭文字）が１２ｍΩ．ｃｍ^{2}未満で多孔率が１％未満の可撓性バイポーラプレートＢを、製造することが可能となる。上首尾なことに、これらの特性によって、５×１０－８ｍｏｌ／ｍ／ｓ／ＭＰａ未満の不浸透性と、バイポーラプレートＢの表面の高疎水性とが、１１０°超の接触角で以て確保される。
【０１０５】
製造済バイポーラプレートＢの多孔率は、いわゆる当業者にとり既知な諸手法で計測することができる。
【０１０６】
例えば、アルキメデス又はピクノメータ分析推進法を用い、バイポーラプレートＢの実密度を計測してその実密度を理論的密度と比較することができる。これら二方法では標本の厳密な体積を正確に判別することが可能であり、その質量が既知であればその単位体積当たり質量を演繹することができる。
【０１０７】
第２の例によれば、様々な画像分析法を用いバイポーラプレートＢ内のポロシティを弁別することができる。この場合、ポロシティの体積が、補強膜２に関し上述した方法に類

似するやり方に従い、三次元画像（又は二次元画像上のそれらの表面）上で識別される。

【０１０８】

第３の例によれば、波動吸収法、例えばＸ線断層撮影や超音波を使用するそれも、最終的なバイポーラプレートＢの多孔率を判別するのに用いることができる。

【０１０９】

これらの方法には、通常、注目標本の厳密な組成の計測が後続する。これを行うため、補強繊維２１を分離させ、熱可塑性マトリクス３１とは独立に秤量する。この分離は、そのマトリクスの溶解によって、或いはその熱的劣化（か焼又は燃焼）又は化学的劣化（酸溶解）によって、達成することができる。そのバイポーラプレートＢの初期要素の質量及び単位体積当たり質量が既知であれば、それに対応する体積を演繹することができる。それら体積をその標本の厳密な体積と比較し、余った体積をポロシティの体積に対応付ける。

【０１１０】

ポロシティの体積比Ｔｖｐは次の式により計算される；式中、ｍｔは例えばその熱可塑性マトリクス３１の酸溶解を経て得られた補強繊維２１の質量に相当し、ρｆはその補強繊維２１の単位体積当たり質量に相当し、ρｒは熱可塑性マトリクス３１のそれに相当する。

$$Tvp = Vp / Vt = 1 - mf / (\rho f \times Vt) - (mt - mf) / (\rho r \times Vt)$$

【図面】

【図１】

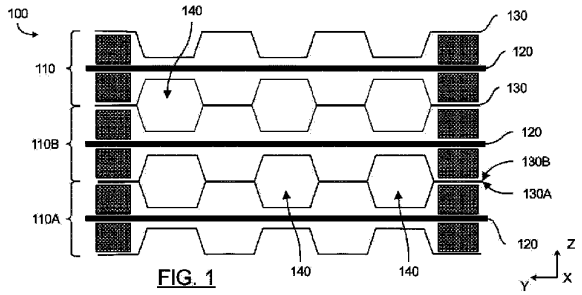


FIG. 1

【図２】

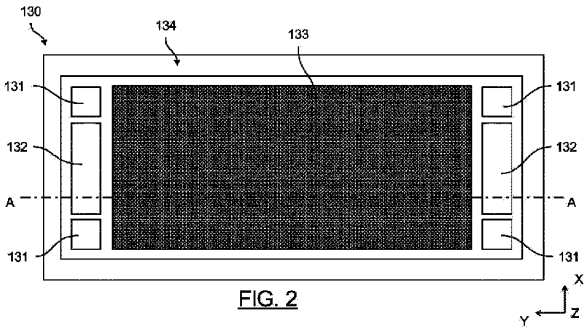


FIG. 2

【図３】

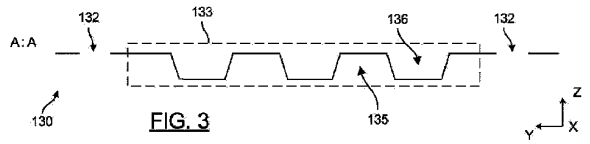


FIG. 3

【図４】

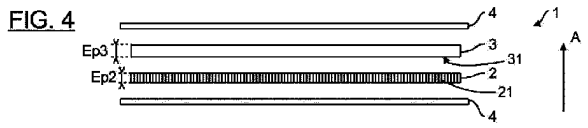
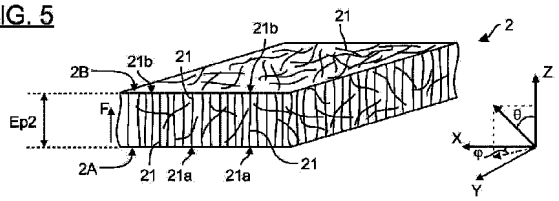


FIG. 4

【図５】

FIG. 5



【図６】

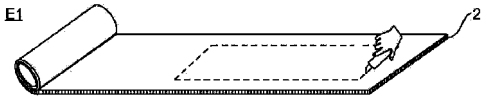


FIG. 6

【図７】

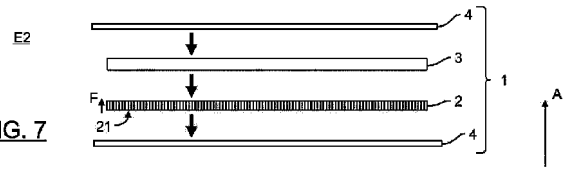


FIG. 7

【図８】

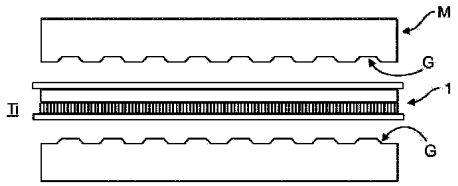


FIG. 8

【図９】

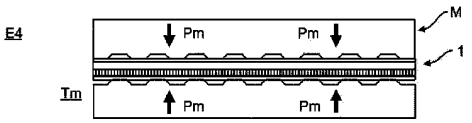


FIG. 9

【図１０】

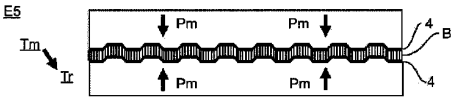


FIG. 10

【図１１】

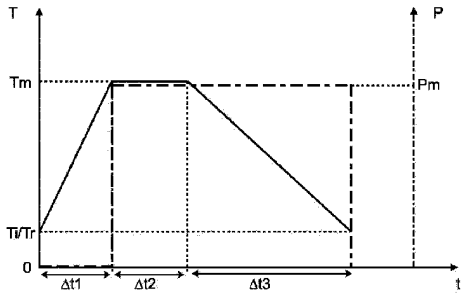


FIG. 11

【図１２】

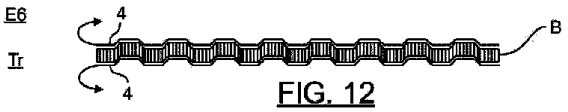


FIG. 12

【図１３】

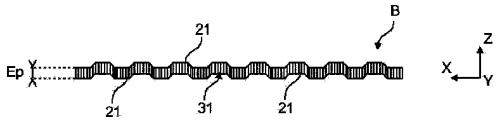


FIG. 13

【図１４】

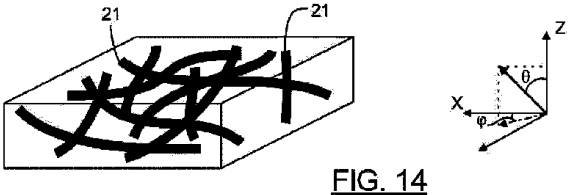


FIG. 14

【図１５】

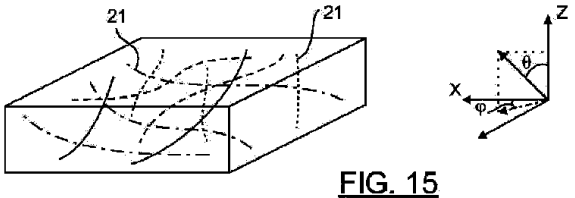


FIG. 15

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/EP2023/058382

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M 8/0234(2016.01)i; ***H01M 8/0239***(2016.01)i; ***H01M 8/0243***(2016.01)i; ***H01M 8/0254***(2016.01)i; ***H01M 8/0213***(2016.01)i

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)

H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	LEE DONGYOUNG ET AL. "Carbon composite bipolar plate for high-temperature proton exchange membrane fuel cells (HT-PEMFCs)" *JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER, AMSTERDAM, NL,* Vol. 327, 21 July 2016 (2016-07-21), pages 119-126 DOI: 10.1016/J.JPOWSOUR.2016.07.045 ISSN: 0378-7753, XP029694612	10-13
A	Title 2.1 Manufacture of the specimen; figures 1a, 4	1-9
X	US 2016240867 A1 (CHINI FABRIZIO [IT] ET AL) 18 August 2016 (2016-08-18)	10-13
A	claims 19,23	1-9
X	US 2006166075 A1 (INOUE MIKIO [JP] ET AL) 27 July 2006 (2006-07-27)	10-13
A	claims 21, 22, 24	1-9

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
19 July 2023	**28 July 2023**
Name and mailing address of the ISA/EP **European Patent Office** **p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk** **Netherlands** Telephone No. **(+31-70)340-2040** Facsimile No. **(+31-70)340-3016**	Authorized officer **Letilly, Marika** Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/EP2023/058382

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
US 2016240867 A1	18 August 2016	CN 105895928 A	24 August 2016
		DE 102015202821 A1	18 August 2016
		US 2016240867 A1	18 August 2016
US 2006166075 A1	27 July 2006	CA 2499828 A1	15 April 2004
		EP 1548164 A1	29 June 2005
		JP WO2004031465 A1	02 February 2006
		US 2006166075 A1	27 July 2006
		WO 2004031465 A1	15 April 2004

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2015)

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/EP2023/058382

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
INV. H01M8/0234 H01M8/0239 H01M8/0243 H01M8/0254 H01M8/0213
ADD.

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)
H01M

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	LEE DONGYOUNG ET AL: "Carbon composite bipolar plate for high-temperature proton exchange membrane fuel cells (HT-PEMFCs)", JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER, AMSTERDAM, NL, vol. 327, 21 juillet 2016 (2016-07-21), pages 119-126, XP029694612, ISSN: 0378-7753, DOI: 10.1016/J.JPOWSOUR.2016.07.045	10-13
A	Titre 2.1 Fabrication of the specimen; figures 1a, 4	1-9

X	US 2016/240867 A1 (CHINI FABRIZIO [IT] ET AL) 18 août 2016 (2016-08-18)	10-13
A	revendications 19,23	1-9

	-/--	

[X] Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

[X] Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

* Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée
"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
"X" document particulièrement pertinent;; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
"Y" document particulièrement pertinent;; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée	Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale
19 juillet 2023	28/07/2023

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale	Fonctionnaire autorisé
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Letilly, Marika

Formulaire PCT/ISA/210 (deuxième feuille) (avril 2005)

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/EP2023/058382

C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	US 2006/166075 A1 (INOUE MIKIO [JP] ET AL) 27 juillet 2006 (2006-07-27)	10-13
A	revendications 21,22,24	1-9

1

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°
PCT/EP2023/058382

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 2016240867 A1	18-08-2016	CN 105895928 A	24-08-2016
		DE 102015202821 A1	18-08-2016
		US 2016240867 A1	18-08-2016
US 2006166075 A1	27-07-2006	CA 2499828 A1	15-04-2004
		EP 1548164 A1	29-06-2005
		JP WO2004031465 A1	02-02-2006
		US 2006166075 A1	27-07-2006
		WO 2004031465 A1	15-04-2004

Formulaire PCT/ISA/210 (annexe familles de brevets) (avril 2005)

フロントページの続き

(51)国際特許分類			FI			テーマコード（参考）
H01M	*8/10*	*(2016.01)*	H01M	8/10	101	
C25B	*1/04*	*(2021.01)*	C25B	1/04		
C25B	*9/00*	*(2021.01)*	C25B	9/00	A	

,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MU,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

Fターム（参考） 4K021 AA01 BA02 BC01 CA07 CA08 DB04 DB43 DB53 DC01 DC03
5H126 AA12 BB06 DD04 DD13 FF03 FF07 GG05 GG18 HH01 HH02
JJ03 JJ04 JJ05 JJ06 JJ08 JJ09