

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5548680号
(P5548680)

(45) 発行日 平成26年7月16日(2014.7.16)

(24) 登録日 平成26年5月23日(2014.5.23)

(51) Int.Cl.		F I	
B 2 9 C 43/02	(2006.01)	B 2 9 C 43/02	
B 2 9 C 43/34	(2006.01)	B 2 9 C 43/34	
B 2 9 C 43/36	(2006.01)	B 2 9 C 43/36	
H O 1 M 8/02	(2006.01)	H O 1 M 8/02	B
H O 1 M 8/10	(2006.01)	H O 1 M 8/10	

請求項の数 11 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2011-508227 (P2011-508227)	(73) 特許権者	000002004
(86) (22) 出願日	平成22年3月29日 (2010.3.29)		昭和電工株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2010/002277		東京都港区芝大門1丁目13番9号
(87) 国際公開番号	W02010/116674	(74) 代理人	100064908
(87) 国際公開日	平成22年10月14日 (2010.10.14)		弁理士 志賀 正武
審査請求日	平成24年12月4日 (2012.12.4)	(74) 代理人	100108578
(31) 優先権主張番号	特願2009-82279 (P2009-82279)		弁理士 高橋 詔男
(32) 優先日	平成21年3月30日 (2009.3.30)	(74) 代理人	100089037
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		弁理士 渡邊 隆
		(74) 代理人	100094400
			弁理士 鈴木 三義
		(74) 代理人	100107836
			弁理士 西 和哉
		(74) 代理人	100108453
			弁理士 村山 靖彦

(出願人による申告) 平成19年度独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構「固体高分子形燃料電池実用化戦略的技術開発事業、実用化技術開発事業、カーボン樹脂モールドセパレータの製造技術開発」に係る委託研究、産業技術力強化法第19条の適用を受ける特許出願

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シートプレス成形方法および燃料電池用セパレータの製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、樹脂組成物と60~95体積%の充填材とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された凹凸パターン部を有する成形品を形成する工程を備え、

前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いることを特徴とするシートプレス成形方法。

【請求項2】

前記凸部の合計体積が前記凹部の合計容積よりも少なく、前記ダミーパターンがダミー凸部からなるものであることを特徴とする請求項1に記載のシートプレス成形方法。

【請求項3】

前記ダミーパターンが複数個所に設けられていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載のシートプレス成形方法。

【請求項4】

前記シート状材料が均一な厚みを有するものであることを特徴とする請求項1または請求項2に記載のシートプレス成形方法。

【請求項5】

前記充填材が炭素質材料であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載のシ

トプレス成形方法。

【請求項 6】

前記ダミー凸部の高さが、前記凹凸パターンの凸部の高さと同じであることを特徴とする請求項 2 に記載のシートプレス成形方法。

【請求項 7】

少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、樹脂組成物と 80 ~ 98 質量%の炭素質材料とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された流路用凹部を有する燃料電池用セパレータを形成する工程を備え、

前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いることを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

10

【請求項 8】

前記凸部の合計体積が前記凹部の合計容積よりも少なく、前記ダミーパターンがダミー凸部からなるものであることを特徴とする請求項 7 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 9】

前記ダミーパターンが複数の領域に設けられていることを特徴とする請求項 7 または請求項 8 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

20

【請求項 10】

前記ダミーパターンが、前記燃料電池用セパレータのガス供給穴となる領域に対応する位置に設けられていることを特徴とする請求項 7 または請求項 8 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 11】

前記ダミー凸部の高さが、前記凹凸パターンの凸部の高さと同じであることを特徴とする請求項 8 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

30

本発明は、シートプレス成形方法および燃料電池用セパレータの製造方法に関する。さらに詳しくは、充填材（フィラー）を高濃度で含有する樹脂組成物シートを用いるシートプレス成形方法および炭素質材料を高濃度で含有する樹脂組成物シートを用いる燃料電池用セパレータの製造方法に関する。

本願は、2009年3月30日に、日本に出願された特願2009-082279号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

【背景技術】

【0002】

近年、薄肉かつ大面積製品の成形加工方法として、シートプレス成形方法が注目されており、例えば燃料電池用セパレータの成形加工などに用いられている。以下、燃料電池用セパレータの製造方法を例に挙げて、シートプレス成形方法について説明する。

40

【0003】

燃料電池は、水素と酸素を利用した水の電気分解の逆反応で発電し、水以外の排出物が出ないクリーンな発電装置であるため、環境問題、エネルギー問題の観点から注目されている。燃料電池は、用いられる電解質の種類に応じて数種類に分類される。燃料電池の中でも、低温で作動する固体高分子型の燃料電池は、自動車や民生用として最も有望とされている。この燃料電池は、通常、固体高分子電解質として作用する固体高分子膜と、固体高分子膜を挟持する一对の触媒を担持させたガス拡散電極とを一体化してなる膜電極接合体（MEA：Membrane-Electrode Assembly）と、MEAの外側から挟持して燃料ガスと酸化性ガスとを分離するセパレータとを有する単セルを基本単位としている。そして、こ

50

の単セルを多数個積層することによって、燃料電池において高出力の発電が達成できる。

【0004】

このような燃料電池を構成するセパレータのMEAと接触する表面には、ガス拡散電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路（溝）が設けられている。このようなガス流路を利用して、一方のガス拡散電極側に燃料である水素を供給し、他方のガス拡散電極側に酸素や空気等の酸化剤ガスを供給し、両ガス拡散電極間に外部負荷回路を接続することにより、上記構成を有するデバイスを燃料電池として作用させる。

したがって、セパレータには、これらのガスを完全に分離できる高い気体不透過性と、内部抵抗を小さくするための高い導電性に加え、熱伝導性、強度等に優れていることが要求される。また、前述の通り燃料電池は、単セルを多数個積層することにより構成されているため、セパレータの軽量、薄型化が要求されている。

【0005】

これらの要求を達成するために、これまで、燃料電池用のセパレータの材料として、金属材料と炭素質材料とが検討されてきた。金属材料は、機械的特性に優れるため、薄いセパレータが得られることや、導電性が高いことが長所として挙げられる。しかしながら、金属材料は、比重が大きく、耐食性も不十分である。

【0006】

炭素質材料は、軽量で、高い導電性を有し、熱伝導性、強度等に優れた材料であり、その薄型成形技術や、量産化が検討されている。

例えば、特許文献1には、炭素質粉末に結合材を加えて加熱混合後CIP成形（Cold Isostatic Pressing；冷間等方圧加工法）し、次いで焼成、黒鉛化して得られた等方性黒鉛材に熱硬化性樹脂を含浸、硬化処理したのち、スライス加工して固体高分子型燃料電池用のセパレータとするという煩雑な工程が開示されている。また、特許文献2には、炭素粉末または炭素繊維を含む紙に熱硬化性樹脂を含浸し、積層圧着し、硬化・焼成する炭素薄板の製造法が開示されている。また、特許文献3には、フェノール樹脂成形材料を、金型を用いて射出成形し、得られた成形加工品を焼成する燃料電池用セパレータの製造方法が開示されている。

【0007】

しかしながら、特許文献1～3に記載の技術では、燃料電池用のセパレータに用いる材料として、焼成された材料を用いている。焼成された材料は、高い導電性および耐熱性を示すものであるが、脆性破壊しやすいという問題や、焼成に要する時間が長く生産性が乏しいという問題がある。更に、特許文献1に記載のように、セパレータを製造する工程において、スライス加工などの切削加工が必要である材料は、生産性が更に乏しく高コストとなるため、将来普及する材料としては難しい面が多い。

【0008】

この問題を解決する技術として、例えば、導電性を有する炭素質材料を含むシート状の材料をプレス成形するシートプレス成形を行うことにより、燃料電池用のセパレータを製造する方法が挙げられる。このような方法は、生産性に優れており、特に、薄型のセパレータを製造する場合に好ましく用いられる。

しかし、炭素質材料を含むシート状の材料をプレス成形して燃料電池セパレータを製造した場合、得られた燃料電池用セパレータの高密度のパラツキが大きいと、導電性、機械的強度、気密性等のパラツキが大きいという不都合があった。

【0009】

この問題を解決する技術として、例えば、特許文献4には、可撓性黒鉛シートからなる第1のシートと、流路に対応する部分が除去された可撓性黒鉛シートからなる第2のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して流路、貫通孔を形成するとともに周辺領域の高嵩密度化を図る燃料電池用セパレータの製造方法が記載されている。また、特許文献5には、膨張黒鉛の密度差が30%未満になるように、膨張黒鉛シートの表面に凹凸を形成した後、その凹凸形状部分に相当する押し型を用いて所定の凹凸形態に成形

10

20

30

40

50

された膨張黒鉛成形体から燃料電池用セパレータを形成する技術が記載されている。

【0010】

しかしながら、燃料電池用のセパレータに用いる材料として、特許文献4においては可撓性黒鉛シートを用い、特許文献5においては膨張黒鉛シートを用いている。可撓性黒鉛シートおよび膨張黒鉛シートは多孔質であるため、これらのシートを用いて凹凸パターンをプレス成形すると、得られた成形体の厚みの異なる部分において、嵩密度に差異が生じることが本質的に避けられない。このため、燃料電池用セパレータの嵩密度のバラツキに起因する特性のバラツキをより一層小さくすることが要求されていた。また、可撓性黒鉛シートおよび膨張黒鉛シートは、プレス成形を行うことによって、表面に割れや膨れ等の欠損が生じやすいという不都合もあった。

10

【0011】

この問題を解決する技術として、樹脂組成物と炭素質材料とを含むシート状の材料をプレス成形することにより、成形品を得る方法がある。例えば、特許文献6には、ムーニー粘度(M_{L1+4}(100))が25以上であるエラストマーを含む硬化性樹脂組成物と炭素質材料を、質量比で70~5:30~95の割合で含む導電性硬化性樹脂組成物を用いて成形した未硬化シートを、圧縮成形機で硬化して得られる硬化体からなる燃料電池用セパレータが開示されている。

このようにシート状の材料として、樹脂組成物と炭素質材料とを含むものを用いた場合、可撓性黒鉛シートおよび膨張黒鉛シートを使用した場合に比べて、プレス成形することにより得られた成形品の特性のバラツキを小さくすることができるし、プレス成形時に

20

ける欠損も生じにくい。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】特開平8-222241号公報

【特許文献2】特開昭60-161144号公報

【特許文献3】特開2001-68128号公報

【特許文献4】特開2000-21422号公報

【特許文献5】特開2000-82475号公報

【特許文献6】特開2003-176327号公報

30

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

しかしながら、従来の炭素質材料などの充填材と樹脂組成物とを含むシート状の材料は、充填材の含有量を多くすると、これをプレス成形して微細化されたパターンを有する成形品を製造した場合における成形性が非常に悪くなり、成形品の板厚偏差が大きくなるという問題があった。この問題は、充填材が炭素質材料である場合だけでなく、充填材がシリカやアルミナなど他の充填材である場合であっても、同様であった。

【0014】

ところで、近年、燃料電池用のセパレータにおいては、燃料電池の発電効率を向上させるために、ガス流路パターンが微細化される傾向にある。しかしながら、微細化されたガス流路パターンを有する燃料電池用のセパレータを、従来の樹脂組成物と炭素質材料とを含むシート状の材料をプレス成形することにより製造した場合、上述したように、シート状の材料の成形性が悪いため、セパレータの板厚偏差が大きくなるという問題が生じる。また、燃料電池用のセパレータでは、高出力の発電を達成する燃料電池とするために、セパレータを備えた単セルを多数個積層するので、個々のセパレータの板厚偏差がわずかであっても、単セルが積層された状態での厚みのばらつきが非常に大きくなる場合があり、問題となっていた。

40

【0015】

また、従来の樹脂組成物と炭素質材料とを含むシート状の材料において、高い導電性を

50

得るためには、多量の炭素質材料を含有させる必要がある。しかしながら、シート状の材料に含まれる炭素質材料の配合量を増加させると、それに伴って、シート状の材料をプレス成形した場合に得られる成形品の強度が低下する。このため、従来の樹脂組成物と炭素質材料とを含むシート状の材料を用いた場合であっても、燃料電池用のセパレータとして十分に高い強度および導電性を有する成形品が得られない場合があった。

【0016】

本発明は、上記の問題点を解決すべくなされたものであり、充填材と樹脂組成物とを含むシート状の材料が、多量の充填材を含むものであっても、これをプレス成形することによって成形品を製造した場合に、板厚偏差の小さい成形品が得られるシートプレス成形方法を提供することを課題とする。

10

【0017】

また、本発明は、炭素質材料と樹脂組成物とを含むシート状の材料が、高い導電性を得るために多量の炭素質材料を含むものである場合であっても、これをプレス成形することによって、厚みが薄く、板厚偏差が小さく、高い強度および高い導電性を有する燃料電池用セパレータを、効率よく製造できる生産性に優れた燃料電池用セパレータの製造方法を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0018】

すなわち、本発明は、例えば、以下の[1]~[10]の事項を含む。

[1] 少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、樹脂組成物と60~95体積%の充填材とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された凹凸パターン部を有する成形品を形成する工程を備え、前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いることを特徴とするシートプレス成形方法。

20

[2] 前記凸部の合計体積が前記凹部の合計容積よりも少なく、前記ダミーパターンがダミー凸部からなるものであることを特徴とする[1]に記載のシートプレス成形方法。

[3] 前記ダミーパターンが複数個所に設けられていることを特徴とする[1]または[2]に記載のシートプレス成形方法。

30

[4] 前記シート状材料が均一な厚みを有するものであることを特徴とする[1]~[3]のいずれかに記載のシートプレス成形方法。

[5] 前記充填材が炭素質材料であることを特徴とする[1]~[4]のいずれかに記載のシートプレス成形方法。

[6] 前記ダミー凸部の高さが、前記凹凸パターンの凸部の高さと同じであることを特徴とする[2]に記載のシートプレス成形方法。

【0019】

[7] 少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、樹脂組成物と80~98質量%の炭素質材料とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された流路用パターンを有する燃料電池用セパレータを形成する工程を備え、前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いることを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

40

[8] 前記凸部の合計体積が前記凹部の合計容積よりも少なく、前記ダミーパターンがダミー凸部からなるものであることを特徴とする[7]に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

[9] 前記ダミーパターンが複数の領域に設けられていることを特徴とする[7]または[8]に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

50

[1 0] 前記ダミーパターンが、前記燃料電池用セパレータのガス供給穴となる領域に対応する位置に設けられていることを特徴とする [7] ~ [9] のいずれかに記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

[1 1] 前記ダミー凸部の高さが、前記凹凸パターンの凸部の高さと同じであることを特徴とする [8] に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の効果】

【 0 0 2 0 】

本発明のシートプレス成形方法は、少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、60~95体積%の充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された凹凸パターン部を有する成形品を形成する工程を備え、前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いる方法であるので、成形体の凸部の体積が成形体の凹部の容積と同じとなり、プレス工程を行った際に、型の凸部に加圧されて押し出される軟化したシート状材料が、型の凹部と対向される部分にスムーズに埋め込まれるようになる。その結果、本発明のシートプレス成形方法によれば、充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料が多量の充填材を含むものであったり、凹凸パターンが微細化されたものであったりしても、これをプレス成形することによって成形品を製造した場合に、板厚偏差の小さい成形品が得られる。

【 0 0 2 1 】

また、本発明の燃料電池用セパレータの製造方法は、少なくとも一方に凹部と凸部とからなる所定の凹凸パターンを有する一对の型を用いて、80~98質量%の炭素質材料と樹脂組成物とを含むシート状材料を加圧することにより、前記凹凸パターンの転写された流路用パターンを有する燃料電池用セパレータを形成する工程を備え、前記一对の型として、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが、前記内部に設けられたものを用いる方法であるので、燃料電池用セパレータの凸部の体積が燃料電池用セパレータの凹部の容積と同じとなり、プレス工程を行った際に、型の凸部に加圧されて押し出される軟化したシート状材料が、型の凹部と対向される部分にスムーズに埋め込まれるようになる。その結果、本発明の燃料電池用セパレータの製造方法によれば、炭素質材料と樹脂組成物とを含むシート状材料として、多量の炭素質材料を含むものを用い、これをプレス成形することによって、板厚偏差が小さく、高い強度および高い導電性を有する燃料電池用セパレータが得られる。

また、本発明の燃料電池用セパレータの製造方法においては、シート状材料を一对の型を用いて加圧することにより、流路用パターンを有する燃料電池用セパレータを形成するので、厚みの薄い燃料電池用セパレータが得られるとともに、焼成や切削加工を行う場合と比較して効率よく製造できる。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 2 2 】

【図 1】図 1 は、従来のシート状材料を用いるシートプレス成形方法の一例を説明するための図であり、図 1 (A) は、シートプレス成形方法で用いられる金型の一例を示した断面図である。また、図 1 (B) ~ 図 1 (D) は、従来のシートプレス成形方法の一例を示した工程図である。

【図 2 A】図 2 A は、本発明のシートプレス成形方法および本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の一例を説明するための工程図である。

【図 2 B】図 2 B は、本発明のシートプレス成形方法および本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の一例を説明するための工程図である。

【図 2 C】図 2 C は、本発明のシートプレス成形方法および本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の一例を説明するための工程図である。

【図 2 D】図 2 D は、本発明のシートプレス成形方法および本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の一の変形例を説明する模式図である。

【図 3 A】図 3 A は実施例の燃料電池用セパレータの平面図である。

【図 3 B】図 3 B は図 3 A の A - A ' 断面の断面図である。

【図 3 C】図 3 C は比較例の燃料電池用セパレータの平面図である。

【図 3 D】図 3 D は図 3 C の B - B ' 断面の断面図である。

【図 4】図 4 は、実施例の燃料電池用セパレータを示した平面図である。

【図 5 A】図 5 A は、実施例の燃料電池用セパレータの板厚偏差の評価結果を示すグラフである。

【図 5 B】図 5 B は、比較例の燃料電池用セパレータの板厚偏差の評価結果を示すグラフである。 10

【発明を実施するための形態】

【0023】

以下、本発明のシートプレス成形方法および燃料電池用セパレータの製造方法について、図面を参照して詳細に説明する。

ここで、本発明を説明しやすくするために、従来の充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料をプレス成形して成形品を形成するシートプレス成形方法について、図面を用いて説明する。図 1 は、従来のシート状材料を用いるシートプレス成形方法の一例を説明するための図であり、図 1 (A) は、シートプレス成形方法で用いられる金型の一例を示した断面図である。また、図 1 (B) ~ 図 1 (D) は、従来のシートプレス成形方法の一例を示した工程図である。 20

【0024】

図 1 (A) に示す金型 1 0 は、下金型 1 1 と上金型 1 2 とからなるものである。下金型 1 1 は、複数の凸部 1 3 a、1 3 b、1 3 c、1 3 d (図 1 (A) に示す例においては 4 つ) からなる所定の凹凸パターン 1 3 を有している。

図 1 (A) に示す金型 1 0 を用いて、成形品を形成するには、まず、図 1 (B) に示すように、下金型 1 1 と上金型 1 2 と間に、充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料 2 1 を配置させる。次いで、図 1 (C) に示すように、下金型 1 1、上金型 1 2、シート状材料 2 1 を、シート状材料 2 1 が軟化されて変形可能とされる温度とし、下金型 1 1 および上金型 1 2 を加圧してシート状材料 2 1 を圧縮して、所定の時間保持するプレス工程を行う。このことにより、図 1 (D) に示すようにシート状材料 2 1 が成形されて、凹凸パターン 1 3 の転写された成形品 2 3 が形成される。 30

【0025】

ここで、本発明者は、シート状材料 2 1 に含まれる充填材の含有量のみを種々変化させたシート状材料 2 1 を用意し、各シート状材料 2 1 を同じ金型 1 0 を用いて同じ条件で成形し、シート状材料 2 1 の充填材の含有量と成形品 2 3 の板厚偏差との関係を調べた。

その結果、充填材の含有量が少なく、相対的に樹脂組成物の含有量の多いシート状材料 2 1 をプレス成形した場合、略均一な厚みを有する成形品 2 3 が得られるが、充填材の含有量の多いシート状材料 2 1 をプレス成形した場合、得られた成形品 2 3 の板厚偏差が大きかった。 40

【0026】

本発明者は、このような結果となった原因について、以下に示すように、検討を重ねた。すなわち、相対的に樹脂組成物の含有量の多いシート状材料 2 1 は、プレス工程を行うことによって軟化したシート状材料の流動性が良好である。このため、プレス工程を行うことによって過剰となった軟化したシート状材料は、外周 (x - y (平面)) 方向にスムーズに押し出される。このことにより、略均一な厚みを有する成形品 2 1 が得られるものと推定される。

これに対して、充填材の含有量の多いシート状材料 2 1 は、プレス工程を行ってもほとんど流動しない。このため、プレス工程を行うことによって過剰となった軟化したシート状材料は、外周 (x - y (平面)) 方向に押し出されずに、その場に留まり、主に厚み (50

z) 方向に圧縮変形する。その結果、成形品 2 3 の板厚偏差が大きくなるものと推定される。

【 0 0 2 7 】

また、本発明者は、成形品 2 3 の板厚の分布について検討を重ねた。その結果、充填材の含有量の多いシート状材料 2 1 を用いた場合、成形品 2 3 の中央部において板厚が厚くなり、成形品 2 3 の外周部において板厚が薄くなることが分かった。さらに、このような成形品 2 3 の板厚の分布の傾向は、シート状材料 2 1 に含まれる充填材の含有量が多いほど、また、成形品 2 3 に転写される凹凸パターン 1 3 が微細であるほど、顕著であることが分かった。

このような成形品 2 3 の板厚の分布の傾向は、成形品 2 3 の中央部では、プレス工程を行うことによって軟化したシート状材料が流れ出にくいため板厚が厚くなり、成形品 2 3 の外周部では、軟化したシート状材料が流れ出やすいため板厚が薄くなったことによるものと、推定される。

【 0 0 2 8 】

さらに、本発明者は、上記の知見に基づいて鋭意検討を重ね、凹凸パターン部を有する成形品をプレス成形する際に、内部に形成された凸部の合計体積と、前記凸部と前記内部の側面との間および前記凸部間に配置された凹部の合計容積との差を相殺するダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンが内部に設けられた型を用い、成形体の凸部の体積が成形体の凹部の容積と同じとなるようにすることで、プレス工程を行った際に、型の凸部に加圧されて押し出される軟化したシート状材料が、型の凹部と対向される部分にスムーズに埋め込まれるようになり、シート状材料が、プレス工程を行ってもほとんど流動しない充填材の含有量が多いものである場合であっても、成形品の板厚偏差を小さくできる本発明のシートプレス成形方法およびこれを用いる本発明の燃料電池用セパレータの製造方法を想到した。

【 0 0 2 9 】

より詳細には、凹凸パターン部を有する成形品をプレス成形する際に、上述したダミーパターンを有する型を用いた場合、ダミーパターンによって、型の内部における凸部の合計体積と、凸部と内部の側面との間および凸部間に配置された凹部の合計容積との差が相殺されて、型の内部における凸部の体積合計と凹部の容積合計とが同じとなっているので、プレス工程を行うことにより、型の凸部の体積分に相当する軟化したシート状材料が、型の凸部周辺に押し出されるが、押し出された体積分と丁度同じ体積分の軟化したシート状材料が型の凹部に埋め込まれる。このことにより、軟化したシート状材料がスムーズに流動されるので、成形品の板厚偏差が小さくなる。

これに対し、凹凸パターン部を有する成形品をプレス成形する際に、例えば、型の内部における凸部の合計体積と、凸部と内部の側面との間および凸部間に配置された凹部の合計容積とが異なっていて、ダミーパターンが設けられていない型を用いた場合、プレス工程を行うことにより型の凸部周辺に押し出される軟化したシート状材料の量と、型の凹部に埋め込まれる軟化したシート状材料の量とが均一でないため、凸部周辺に押し出される軟化したシート状材料が過剰になったり、不足したりする。このため、軟化したシート状材料がスムーズに流動されず、成形品の板厚偏差が大きくなる。

【 0 0 3 0 】

ここで、本発明のシートプレス成形方法を用いる本発明の燃料電池用セパレータの製造方法について、図面を用いて説明する。図 2 A ~ 図 2 C は、本発明のシートプレス成形方法および本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の一例を説明するための工程図である。

本発明のシートプレス成形方法は、図 2 A に示すように、上金型 1 2 と、所定の凹凸パターン 3 を有する下金型 1 とからなる一对の金型 4 0 を用いて、シート状材料 2 0 を加圧することにより、図 2 C に示すように、凹凸パターン 3 の転写されてなる凹凸パターン部 3 2 を有する成形品 3 0 を形成するシートプレス成形方法である。

【 0 0 3 1 】

シート状材料 20 は、60～95 体積%の充填材と樹脂組成物とを含むものである。充填材は、成形品 30 の用途などに応じて適宜決定することができ、特に限定されないが、例えば、シリカ、アルミナ、酸化チタン等の無機微粒子や、ポリエチレン、ポリスチレン等の有機微粒子の他、繊維状のものや、炭素質材料などが挙げられる。なお、本発明のシートプレス成形方法を用いて、成形品 30 として燃料電池用セパレータを製造する場合には、充填材として炭素質材料を用いることが好ましい。

また、シート状材料 20 を構成する樹脂組成物としては、熱硬化性樹脂や熱可塑性樹脂などが挙げられる。

【0032】

シート状材料 20 に含まれる充填材の含有量は、60～95 体積%とされている。充填材の種類によりその比重は異なるが、充填材として炭素質材料を用いる場合、充填材の含有量 60～95 体積%は含有量 80～98 質量%に相当する。また、成形品 30 として燃料電池用セパレータを製造する場合など充填材が炭素質材料である場合、充填材の含有量は、85～98 質量%であることがより好ましい。なお、充填材の含有量（体積%）は、樹脂組成物と充填材の比重から算出される。

充填材の含有量が、上記範囲未満であっても、本発明のシートプレス成形方法を用いることは可能であるが、充填材の含有量が少ない場合、本発明を適用する効果が小さく有効ではない。また、成形品 30 として燃料電池用セパレータを製造する場合であって充填材が炭素質材料である場合、充填材の含有量が、上記範囲未満であると、成形品 30 の導電性が不十分となる。また、充填材の含有量が、上記範囲を超えると、プレス工程を行うことにより軟化したシート状材料の流動性が低下するため、板厚偏差の十分に小さい成形品 30 が得られなくなる。

【0033】

また、成形品 30 として燃料電池用セパレータを製造する場合、成形品 30 としての厚みが 2 mm 以下の燃料電池用セパレータを製造する場合に本発明は好適である。燃料電池用セパレータの厚みが 2 mm 以下である場合、十分に厚みの薄いものとなる。

【0034】

また、シート状材料 20 は均一な厚みを有するものであることが好ましい。均一な厚みを有するシート状材料 20 は、例えば、60～95 体積%の充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料となる成分を、ロールミル、押出機、ニーダー、バンバリーミキサー等の樹脂分野で一般的に用いられている混練機を使用して均一に混合した後、圧延ロールを用いて成形する方法などによって形成することができる。なお、充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料となる成分は、混合した後に、成形機への材料供給を容易にするなどの目的で、粉碎あるいは造粒することができる。粉碎には、ホモジナイザー、ウィレー粉碎機、高速回転粉碎機（ハンマーミル、ピンミル、ケージミル、ブレンダー）等を使用でき、材料同士の凝集を防ぐため冷却しながら粉碎することが好ましい。造粒には、押出機、ルーダー、コニーダー等を用いてペレット化する方法、あるいはパン型造粒機等を使用する方法などを用いることができる。

【0035】

図 2 A に示す金型 40 は、下金型 1 と上金型 12 とからなるものである。下金型 1 の内部 14 には、凹凸パターン 3 と、ダミーパターン 24 とを有するものである。

なお、本発明において、金型 40 の内部 14 とは、下金型 1 の内部だけでなく、上金型 12 の内部も含まれ、プレス成形時にシート状材料 20 が収容される内部全体を意味している。したがって、図 2 A においては、一对の金型 40 のうちの一方の金型である下金型に凹凸パターン 3 およびダミーパターン 24 が両方とも設けられているものを例に挙げて説明したが、例えば、凹凸パターンが一对の金型のうちの一方の金型に設けられ、ダミーパターンが他方の金型に設けられていてもよい。

例えば、図 2 D に示す変形例では、ダミー凸部 224 a が上金型 212 のみに設けられている。この変形例の上金型 212 と下金型 201 とを用いてプレス成形を行うと、図 2 D に示したような断面形状の成形品 230 が得られる。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 6 】

また、図 2 A においては、凹凸パターンおよびダミーパターンは下金型にのみ設けられているが、凹凸パターンおよびダミーパターンが両方の金型に設けられていてもよい。さらに、一对の型の内部に設けられる凹凸パターンおよびダミーパターンの数については、特に限定されるものではなく、各々 1 つであってもよいし、各々複数であってもよい。また、凹凸パターンとダミーパターンとの数は、同じであってもよいし、異なってもよい。なお、一对の型の内部に複数の凹凸パターンが形成されている場合、複数の凹凸パターンは、全て同じであってもよいし、一部または全部が異なるものであってもよい。

【 0 0 3 7 】

凹凸パターン 3 は、成形品 3 0 の用途などに応じて決定することができ、特に限定されないが、本実施形態においては、図 2 A に示すように、断面視四角形で等間隔に配置された平面視ストライプ状の複数の凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d の間に配置されている凹部 3 a、3 b、3 c とからなるものとされている。本実施形態においては、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d は、断面視同形のものとされているが、凸部形状は、各々異なってもよい。なお、成形品 3 0 として燃料電池用セパレータを製造する場合、凹凸パターン 3 の形状は、燃料電池用セパレータの流路用凹部（溝）の形状に対応するものとされ、成形品 3 0 の凹凸パターン部 3 2 が流路用パターンとされる。

【 0 0 3 8 】

ダミーパターン 2 4 は、金型 4 0 の内部 1 4 に形成された凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d の合計体積と、凹部の合計容積との差を相殺するものである。本実施形態において、ダミーパターン 2 4 を含めない凸部の合計体積とは、図 2 A に示すように、下金型 1 の底部から突出している凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d の合計体積である。また、本実施形態において、ダミーパターン 2 4 を含めない凹部の合計容積とは、下金型 1 の上面に沿う仮想面と下金型 1 との間の容積であって、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d 間に配置された凹部 3 a、3 b、3 c の内側の容積と、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と内部 1 4 の側面 1 4 b との間に配置された凹部 3 d の内側の容積との合計容積である。したがって、本実施形態においては、図 2 A に示すように、ダミーパターン 2 4 を含めない場合、凸部の合計体積が凹部の合計容積よりも少なくなっている。

【 0 0 3 9 】

本実施形態においては、ダミーパターン 2 4 として、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と内部 1 4 の側面 1 4 b との間に、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と同じ高さの断面視四角形で平面視ストライプ状のダミー凸部 2 4 a、2 4 a が、凹凸パターン 3 を挟むように並行に設けられている。したがって、ダミーパターン 2 4 を含めた場合、図 2 B に示すように、凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と内部 1 4 の側面 1 4 b との間に配置された凹部 3 d の容積がダミー凸部 2 4 a、2 4 a の体積分減少し、凸部の合計体積がダミー凸部 2 4 a、2 4 a の体積分増加し、凸部の合計体積と凹部の合計容積との差が相殺され、凸部の合計体積と凹部の合計容積とが略等しくなっている。

【 0 0 4 0 】

なお、本実施形態においては、凸部の合計体積が凹部の合計容積よりも小さくなっているため、ダミーパターン 2 4 としてダミー凸部 2 4 a、2 4 a を設けたが、凸部の合計体積が凹部の合計容積よりも多くなっている場合には、ダミーパターンとしてダミー凹部が設けられる。

【 0 0 4 1 】

また、ダミーパターン 2 4 の形状は、凸部の合計体積と凹部の合計容積との差を相殺できる容積（体積）であればよく、特に限定されないが、図 2 A に示すように、ダミーパターン 2 4 がダミー凸部 2 4 a、2 4 a である場合、ダミー凸部 2 4 a、2 4 a の高さが凸パターン 3 の凸部 2 3 a、2 3 b、2 3 c、2 3 d と同じ高さであることが好ましく、ダミーパターンがダミー凹部である場合、凹凸パターンの凹部 3 a、3 b、3 c と同じ深さであることが好ましい。この場合、ダミー凸部（ダミー凹部）の高さ（深さ）が、凹凸パ

10

20

30

40

50

ターン3の凸部(凹部)の高さ(深さ)と異なっている場合と比較して、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量のばらつきが低減されるので、成形品30の板厚偏差をより一層小さくできる。

【0042】

また、ダミーパターン24の配置は、特に限定されないが、複数個所に設けられていることが好ましい。ダミーパターン24が複数個所に設けられている場合、ダミーパターンが1箇所設けられている場合と比較して、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量のばらつきが低減されるので、成形品30の板厚偏差をより一層小さくできる。なお、本実施形態においては、ダミーパターン24として、凹凸パターン3を挟むように並行に2箇所設けたが、1箇所であってもよいし、3箇所以上であってもよい。

10

【0043】

また、ダミーパターンの配置は、図2Aに示す例に限定されるものではなく、凹凸パターンを構成する凹部および凸部の配置に応じて決定されることが好ましい。凹凸パターンを構成する凹部および凸部の配置に偏りがある場合、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量のばらつきが大きくなりやすく、成形品30の板厚偏差も大きくなりやすい。したがって、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量のばらつきを効果的に低減させるためには、凹凸パターンを構成する凹部および凸部の配置の偏りが大きい領域の近傍に、ダミーパターンを配置することが好ましい。例えば、ダミーパターンとしてダミー凸部を設ける場合、シート状材料20の圧縮変形量の小さい領域の近傍に配置されることが好ましく、ダミーパターンとしてダミー凹部を設ける場合、シート状材料20の圧縮変形量の大きい領域の近傍に配置されることが好ましい。より具体的には、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量を効果的に均一化するために、ダミーパターンを、凹凸パターン3を取り囲むように複数配置することが好ましい。ダミーパターンを凹凸パターン3の外周部に設けると、成形品30として燃料電池用セパレータを製造した場合に、燃料電池用セパレータの導電性に支障を来す恐れや、流路用パターンの流動性に支障を来す恐れがなく、好ましい。しかし、凹凸パターンを構成する凹部および凸部の幅が不均一である場合には、プレス工程を行った際におけるシート状材料20の圧縮変形量のばらつきを効果的に低減させるために、凹凸パターンの中にダミーパターンを配置することが好ましい。

20

【0044】

なお、金型設計時の制約条件等により凹凸パターン3を有する型にダミーパターンを配置することが困難な場合などには、凹凸パターン3と対向する別の型(図2Aに示す例においては上金型12)の内面にダミーパターンを配置してもよい。この場合のダミーパターンの平面配置は、凹凸パターン3を有する型にダミーパターンを設ける場合と同様に、凹凸パターン3を取り囲むように複数配置することが好ましい。また、凹凸パターン3と対向する別の型にダミーパターンを設ける場合においても、凹凸パターンを構成する凹部および凸部の幅が不均一である場合には、凹凸パターンの中にダミーパターンを配置することが好ましい。

30

【0045】

また、ダミーパターン24は、図2Aに示すように、凹凸パターン3の外側に設けられていてもよいし、成形品30に支障を来すことがなければ、凹凸パターン3の内側に設けられていてもよい。

40

また、ダミーパターン24は、成形品30として燃料電池用セパレータを製造する場合、燃料電池用セパレータのガス供給穴となる領域に対応する位置に設けられていることが好ましい。この場合、成形品30にダミーパターン24が転写されてなるパターンを、燃料電池用セパレータにガス供給穴を形成する際のガイドなどとして用いることができる。この場合、ガス供給穴を容易に形成できるため、好ましい。なお、燃料電池用セパレータのガス供給穴は、通常、燃料電池用セパレータを貫通する穴を設けることにより形成される。したがって、ガス供給穴が形成されることにより、ダミーパターンが転写されてなるパターンは消失されるが、燃料電池用セパレータの成形後であるので消失しても問題ない

50

【 0 0 4 6 】

また、成形品 3 0 として燃料電池用セパレータを製造する場合、成形品 3 0 の凹凸パターン部 3 2 である流路用パターンの外縁部や、燃料ガス等を通すためのマニホールド穴（ガス供給穴）の外縁部には、パッキンが配置される。このため、ダミーパターン 2 4 は、パッキンの配置される位置を避けて配置されることが好ましい。

なお、ダミー凹部またはダミー凸部からなるダミーパターンは、流路用パターンの外縁部や、燃料ガス等を通すためのマニホールド穴の外縁部に沿って配置した場合、流路用パターンを形成した後や、マニホールド穴を形成した後に、パッキンとして機能するものとするができる。この場合、ダミーパターンは、パッキンとしても用いられるものであるので、パッキンの配置されるべき位置に設けられる。

10

【 0 0 4 7 】

ここで、成形品 3 0 として燃料電池用セパレータを製造する場合に用いられるシート状材料 2 0 について、説明する。成形品 3 0 として燃料電池用セパレータを製造する場合に用いられるシート状材料 2 0 は、充填材である炭素質材料（A）と、樹脂組成物（B）を必須成分として含むものである。「炭素質材料（A）」

炭素質材料（A）としては、カーボンブラック、炭素繊維（ピッチ系、PAN系）、アモルファスカーボン、膨張黒鉛、キッシュ黒鉛、人造黒鉛、天然黒鉛、気相法炭素繊維、カーボンナノチューブ、フラーレンなどの炭素質材料の中から選ばれる 1 種または 2 種類以上の混合物などが挙げられる。これらの中でカーボンブラックは導電性および充填性が他の材料に比べて低いため、炭素繊維（ピッチ系、PAN系）、アモルファスカーボン、膨張黒鉛、キッシュ黒鉛、人造黒鉛、天然黒鉛、気相法炭素繊維、カーボンナノチューブ、フラーレンの中から選ばれる一種又は二種以上の混合物が好ましい。

20

また、炭素質材料（A）は、ホウ素を含有するものであることが好ましく、中でも、ホウ素を含有する人造黒鉛が特に好適に使用可能である。

【 0 0 4 8 】

（カーボンブラック）

炭素質材料（A）の一例であるカーボンブラックとしては、天然ガス等の不完全燃焼、アセチレンの熱分解により得られるケッチェンブラック、アセチレンブラック、炭化水素油や天然ガスの不完全燃焼により得られるファーネスカーボン、天然ガスの熱分解により得られるサーマルカーボン等が挙げられる。

30

【 0 0 4 9 】

（炭素繊維）

炭素質材料（A）の一例である炭素繊維（ピッチ系、PAN系）としては、重質油、副生油、コールタール等から作られるピッチ系や、ポリアクリロニトリルから作られる PAN 系などが挙げられる。

炭素繊維の平均繊維長は、SEM（日本電子社製、JSM-5510）を用いて観察した 100 本の繊維長を画像解析することによって数平均繊維長を測定して得られる。なお、ここで言う炭素繊維とは、（長軸の長さ/短軸の長さ）の比が 10 以上のものをいう。

40

【 0 0 5 0 】

（アモルファスカーボン）

炭素質材料（A）の一例であるアモルファスカーボンとしては、フェノール樹脂を硬化させて焼成処理し粉砕して粉末とする方法、または、フェノール樹脂を球状、不定形状の粉末の状態に硬化させて焼成処理する方法等によって得られたものなどが挙げられる。導電性の高いアモルファスカーボンを得るためには 2000 以上の加熱処理を行うことが好ましい。

【 0 0 5 1 】

（膨張黒鉛）

炭素質材料（A）の一例である膨張黒鉛としては、例えば、天然黒鉛、熱分解黒鉛等の高度に結晶構造が発達した黒鉛を、濃硫酸と硝酸との混液、濃硫酸と過酸化水素水との混

50

液の強酸化性の溶液に浸漬処理して黒鉛層間化合物を生成させ、水洗してから急速加熱し、黒鉛結晶のC軸方向を膨張処理することによって得られた粉末や、それを一度シート状に圧延したものを粉碎して得られた粉末などが挙げられる。

【0052】

(キッシュ黒鉛)

炭素質材料(A)の一例であるキッシュ黒鉛としては、溶けた銑鉄が、溶銑予備処理等で温度低下するのに伴い析出した、平面的に結晶化した炭素などが挙げられる。このキッシュ黒鉛は、スラグや酸化鉄に混じったものとして発生するため、選鉱によって純度の高いキッシュ黒鉛を回収して更に粉碎して用途に合うサイズに仕上げた粉末が好ましく用いられる。

10

【0053】

(人造黒鉛)

炭素質材料(A)の一例である人造黒鉛としては、例えば以下に示す方法により得られた黒鉛化粉末などが用いられる、通常、人造黒鉛を得るためには、コークスを製造する。コークスの原料としては、石油系ピッチや石炭系のピッチ等が用いられる。これらの原料を炭化してコークスとする。コークスから黒鉛化粉末を得るには、一般的に、コークスを粉碎した後に黒鉛化処理する方法、コークス自体を黒鉛化した後に粉碎する方法、あるいはコークスにバインダーを加え成形、焼成した焼成品(コークスおよびこの焼成品を合わせてコークス等という)を黒鉛化処理した後に粉碎して粉末とする方法等がある。原料のコークス等は、できるだけ結晶が発達していない方が良いので、2000以下、好ましくは1200以下で加熱処理したものが適する。また、黒鉛化処理する方法は、粉末を黒鉛ルツボに入れて直接通電するアチソン炉を用いる方法や、黒鉛発熱体により粉末を加熱する方法等を使用することができる。

20

【0054】

(気相法炭素繊維、カーボンナノチューブ)

炭素質材料(A)は、気相法炭素繊維および/またはカーボンナノチューブを0.1~50質量%含むことが好ましい。より好ましくは、0.1~45質量%であり、更に好ましくは、0.2~40質量%である。

【0055】

(気相法炭素繊維)

気相法炭素繊維としては、例えば、ベンゼン、トルエン、天然ガス、炭化水素系ガス等の有機化合物を原料とし、フェロセン等の遷移金属触媒の存在下で、水素ガスとともに800~1300で熱分解反応させることによって得られる、繊維長約0.5~10 μ m、繊維径200nm以下の炭素繊維などが挙げられる。繊維径のより好ましいサイズは160nm以下であり、更に好ましくは120nm以下である。繊維径が200nmよりも大きいと、高い導電性を得る効果が小さくなるので好ましくない。更に、上記の方法によって得られた炭素繊維は、約2300~3200で黒鉛化処理されることが好ましい。なお、ここでの黒鉛化処理は、ホウ素、炭化ホウ素、ベリリウム、アルミニウム、ケイ素等の黒鉛化触媒とともに、不活性ガス雰囲気中で行われることがより好ましい。

30

【0056】

(カーボンナノチューブ)

カーボンナノチューブは、近年その機械的強度のみでなく、電界放出機能や、水素吸蔵機能が産業上注目され、更に磁気機能にも目が向けられ始めている。この種のカーボンナノチューブは、グラファイトウィスカー、フィラメンタスカーボン、グラファイトファイバー、極細炭素チューブ、カーボンチューブ、カーボンフィブリル、カーボンマイクロチューブ、カーボンナノファイバー等とも呼ばれており、繊維径が約0.5~100nmのものである。カーボンナノチューブには、チューブを形成するグラファイト膜が一層である単層カーボンナノチューブと、多層である多層カーボンナノチューブがある。本発明では、単層および多層カーボンナノチューブのいずれも使用可能であるが、単層カーボンナノチューブを用いた方が、より高い導電性や機械的強度の組成物が得られる傾向があるた

40

50

め好ましい。

【0057】

カーボンナノチューブは、例えば、斉藤・板東「カーボンナノチューブの基礎」(23～57頁、コロナ社出版、1998年発行)に記載のアーケ放電法、レーザー蒸発法および熱分解法等により作製し、更に純度を高めるために水熱法、遠心分離法、限外ろ過法、および酸化法等により精製することによって得られる。より好ましくは、不純物を取り除くために約2300～3200の不活性ガス雰囲気中で高温処理する。更に好ましくは、ホウ素、炭化ホウ素、ベリリウム、アルミニウム、ケイ素等の黒鉛化触媒とともに、不活性ガス雰囲気中、約2300～3200で高温処理する。

【0058】

(ホウ素を含有する炭素質材料)

ホウ素は、炭素質材料(A)中に0.05～5質量%含まれることが好ましく、0.06～4質量%含まれることがより好ましく、0.06～3質量%含まれることが更に好ましい。ホウ素の含有量が0.05質量%未満であると、目的とする高導電性の炭素質材料が得られ難い傾向がある。また、ホウ素の含有量が5質量%を超えて含まれていても、炭素質材料の導電性の向上に寄与し難くなる傾向があるし、不純物量が多くなり、他の物性の低下をもたらす傾向が生じ易くなる。

【0059】

炭素質材料に含まれるホウ素の含有量の測定方法としては特に制限はない。例えば、誘導型プラズマ発光分光分析法(以下、「ICP」と略記する)や、誘導型プラズマ発光分光質量分析法(以下、「ICP-MS」と略記する)により測定した値を用いることができる。具体的には、例えば、試料であるホウ素を含有する炭素質材料に、硫酸および硝酸を加え、マイクロ波で230に加熱して分解(ダイジェスター法)し、更に過塩素酸(HClO_4)を加えて分解したものを水で希釈し、これをICP発光分析装置にかけて、ホウ素量を測定する方法などが挙げられる。

【0060】

炭素質材料(A)中にホウ素を含有させる方法としては、例えば、カーボンブラック、炭素繊維、アモルファスカーボン、膨張黒鉛、キッシュ黒鉛、人造黒鉛、天然黒鉛、気相法炭素繊維、カーボンナノチューブ、フラーレンなどの炭素質材料の中から選ばれる1種または2種類以上の混合物と、ホウ素源であるB単体、 B_4C 、 BN 、 B_2O_3 、 H_3BO_3 等とを混合して、約2300～3200で黒鉛化処理する方法などが挙げられる。炭素質材料とホウ素源との混合が不均一である場合には、ホウ素を含有する炭素質材料が不均一になるのみならず、黒鉛化処理時に焼結する可能性が高くなる。炭素質材料とホウ素源とを均一に混合させるためには、上記のホウ素源を50 μm 以下、好ましくは20 μm 以下程度の粒径を有する粉末にしてから、上記の炭素質材料の粉末に混合することが好ましい。

【0061】

また、ホウ素を含有する炭素質材料中に含まれるホウ素の含有の形態は、ホウ素および/またはホウ素化合物が炭素質材料中に混合されていればよく、特に制限されないが、炭素質材料が黒鉛結晶を有する場合、ホウ素および/またはホウ素化合物が黒鉛結晶の層間に存在するものや、黒鉛結晶を形成する炭素原子の一部がホウ素原子に置換されたものであることが、より好ましい。また、炭素原子の一部がホウ素原子に置換されている場合、ホウ素原子と炭素原子との結合は、共有結合、イオン結合等のような結合様式であっても構わない。

【0062】

(コークス等の粉碎)

炭素質材料の製造に用いられるコークスや、炭素質材料として用いられる人造黒鉛や天然黒鉛等の粉碎には、高速回転粉碎機(ハンマーミル、ピンミル、ケージミル)や各種ボールミル(転動ミル、振動ミル、遊星ミル)、攪拌ミル(ビーズミル、アトライター、流通管型ミル、アニューラミル)等の粉碎機が使用できる。また、微粉碎機であるスクリー

10

20

30

40

50

ンミル、ターボミル、スーパーミクロンミル、ジェットミルなども、条件を選定することによって使用可能である。コークスおよび天然黒鉛等は、これらの粉碎機を用いて粉碎し、その際の粉碎条件の選定、および必要により粉末を分級し、平均粒径や粒度分布をコントロールして用いることが好ましい。

【 0 0 6 3 】

(コークス等の分級)

コークス粉末、人造黒鉛粉末および天然黒鉛粉末等を分級する方法としては、分離が可能であれば何れでも良いが、例えば、篩分法や強制渦流型遠心分級機(ミクロンセパレーター、ターボプレックス、ターボクラシファイアー、スーパーセパレーター)、慣性分級機(改良型バーチュアルインパクト、エルボジェット)等の気流分級機が使用できる。また、湿式の沈降分離法や遠心分級法等も使用できる。

10

【 0 0 6 4 】

「樹脂組成物(B)」

樹脂組成物(B)としては、例えば、熱硬化性樹脂や熱可塑性樹脂が挙げられる。

燃料電池用セパレータの耐久性の観点から、燃料電池用セパレータの融点、またはガラス転移温度が120以上となる樹脂を用いることが好ましい。

また、燃料電池用セパレータの耐熱水性を向上させるためには、樹脂組成物(B)として、1, 2 - ポリブタジエン、3, 4 - ポリイソブレン、ノボラック型エポキシ樹脂、ノボラック型フェノール樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルペンテン、ポリスチレン、ポリフェニレンスルフィド、ポリシクロオレフィン、ポリブテン - 1、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルエーテルケトン、フッ素樹脂、または液晶ポリマーより選ばれる1成分以上をシート状材料である炭素質材料(A)および樹脂組成物(B)を含む導電性樹脂組成物中に2質量% ~ 20質量%含有するものであることが望ましく、特に1, 2 - ポリブタジエン、3, 4 - ポリイソブレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン - 1より選ばれる1成分以上が上記含有量で含まれていることが好ましい。

20

【 0 0 6 5 】

(他の添加剤)

成形品30が燃料電池用セパレータである場合に用いられるシート状材料20には、充填材である炭素質材料(A)と、樹脂組成物(B)の他に、必要に応じてモノマー、反応開始剤、エラストマー、ゴム、及び樹脂改質剤などを含有させることができる。さらに、成形品30が燃料電池用セパレータである場合に用いられるシート状材料20には、硬度、強度、導電性、成形性、耐久性、耐候性、耐水性等を改良する目的で、ガラスファイバー、ウイスキー、金属酸化物、有機繊維、紫外線安定剤、酸化防止剤、離型剤、滑剤、撥水剤、増粘剤、低収縮剤、親水性付与剤等の添加剤を、必要に応じて含有させることができる。

30

【 0 0 6 6 】

本実施形態のシートプレス成形方法は、少なくとも一方に凹部3a、3b、3cと凸部23a、23b、23c、23dとからなる所定の凹凸パターン3を有する一对の金型40を用いて、60 ~ 95体積%の充填材と樹脂組成物とを含むシート状材料20を加圧することにより、凹凸パターン3の転写された凹凸パターン部32を有する成形品30を形成する工程を備え、一对の金型40として、内部14に形成された凸部23a、23b、23c、23dの合計体積と、凸部23a、23b、23c、23dと内部14の側面14bとの間および凸部23a、23b、23c、23d間に配置された凹部3a、3b、3cの合計容積との差を相殺するダミー凸部24aからなるダミーパターン24が、内部14に設けられたものを用いる方法である。このため、成形体30の凸部の体積が成形体30の凹部の容積と同じとなり、プレス工程を行った際に、金型40の凸部に加圧されて押し出される軟化したシート状材料20が、金型40の凹部と対向される部分にスムーズに埋め込まれるようになる。よって、プレス工程を行った際のシート状材料20の圧縮変形量の差を小さくすることができる。

40

その結果、本実施形態のシートプレス成形方法によれば、充填材と樹脂組成物とを含む

50

シート状材料 20 が多量の充填材を含むものであったり、凹凸パターン 3 が微細化されたものであったりしても、これをプレス成形することによって成形品 30 を製造した場合に、板厚偏差の小さい成形品 30 が得られる。

【0067】

本実施形態の燃料電池用セパレータの製造方法は、充填材が炭素質材料であるシート状材料 20 を用いる本実施形態のシートプレス成形方法を用いて、成形品 30 として燃料電池用セパレータを製造する方法であるので、炭素質材料と樹脂組成物とを含むシート状材料 20 として、多量の炭素質材料を含むものを用い、これをプレス成形することによって、板厚偏差が小さく、高い強度および高い導電性を有する燃料電池用セパレータが得られる。

10

また、本実施形態の燃料電池用セパレータの製造方法においては、凹凸パターン 3 として微細化されたものを用いることで、板厚偏差が小さく、微細な流路用パターンを有する燃料電池用セパレータが容易に得られる。

また、本実施形態の燃料電池用セパレータの製造方法においては、シート状材料を一對の型を用いて加圧することにより、流路用パターンを有する燃料電池用セパレータを形成するので、厚みの薄い燃料電池用セパレータを効率よく製造でき、量産に好適である。

【実施例】

【0068】

以下、実施例を示して本発明を具体的に説明する。

(実施例)

20

充填材が炭素質材料であるシート状材料を用い、本発明のシートプレス成形方法を用いて、成形品として実施例の燃料電池用セパレータを製造した。

すなわち、凹凸パターンを有する以下に示す一對の型を用いて、以下に示すシート状材料を加圧することにより、凹凸パターンの転写された流路用パターン 31 と、ダミーパターンの転写された複数の凹部 24b、24c、24d、24e とを片面に有する図 3 に示す燃料電池用セパレータ 35 を得た。図 3A ~ 図 3D は、実施例および比較例の燃料電池用セパレータを示した図面である。図 3A は実施例の燃料電池用セパレータの平面図であり、図 3B は図 3A の A - A' 断面の断面図である。また、図 3C は比較例の燃料電池用セパレータの平面図であり、図 3D は図 3C の B - B' 断面の断面図である。

【0069】

30

「金型」

ここで、図 3A および図 3B を用いて、実施例の燃料電池用セパレータをプレス成形する際に用いた下金型の内部形状について説明する。

実施例においては、金型として、下金型の内部に、凹部と凸部とからなる下記の凹凸パターンと、下記のダミー凸部からなるダミーパターンとが設けられた上下一對の金型を用いた。なお、実施例において用いた金型は、ダミーパターンを含めない場合、内部に形成された凸部の合計体積が凹部の合計容積よりも少なくなっているが、ダミーパターンを含めた場合には、内部に形成された凸部の合計体積と凹部の合計容積との差が相殺されて同じとなっているものである。

【0070】

40

凹凸パターン（図 3A および図 3B における流路用パターン 31 に対応する）：深さ 0.5 mm、幅下辺（底部幅）2.1 mm、幅上辺（上部幅）1.9 mm、平均幅 2 mm の断面視台形形の凸部（燃料電池用セパレータにおける溝）を、長さ 160 mm、幅 62 mm の領域に 4 mm ピッチ（幅上辺間隔 2 mm）で、長さ方向が凸部（溝）の長さ方向となるように、ストライプ状に配置した。

【0071】

ダミーパターン：高さ（深さ）0.5 mm のダミー凸部（図 3A および図 3B における凹部 24b、24c、24d、24e に対応する）を、流路用パターン 31 を 2 重に取り囲むように、流路用パターン 31 の外周部に設けた。なお、各ダミー凸部の面積は、下金型の内部に形成された凸部の合計体積と凹部の合計容積とが同じとなるように調整した。

50

内側のダミー凸部（図3Aおよび図3Bにおける凹部24bに対応する）は、燃料電池用セパレータのガス供給穴となる領域36に対応する位置に、パッキンの配置される位置を避けることのできる幅で分割して6箇所配置し、燃料電池用セパレータ35の凹部24bを、燃料電池用セパレータにガス供給穴を形成する際のガイドとして用いることができるようにした。また、外側のダミー凸部（図3Aおよび図3Bにおける凹部24cに対応する）は、パッキンの配置される位置を避けて内側のダミー凸部の外側に、4箇所配置した。また、ダミー凸部（図3Aにおける凹部24dに対応する）は、流路用パターン31の外周部であって、内側のダミー凸部の配置されていない領域である燃料電池用セパレータ35の中央部に2箇所設けた。さらに、燃料電池用セパレータ35の4つの角部に、それぞれダミー凸部（図3Aにおける凹部24eに対応する）を設けた。

10

【0072】

「シート状材料」

（炭素質材料の製造）

まず、非針状コークス（MCコークス：エム・シー・カーボン株式会社製）をパルベライザー（ホソカワミクロン株式会社製）で3mm以下の大きさに粗粉碎した。次いで、この粗粉碎品をジェットミル（IDS2UR：日本ニューマチック株式会社製）で微粉碎し、分級により粒径を調整した。この分級においては、ターボクラシファイアー（TC15N：日清エンジニアリング株式会社製）を用いる気流分級を行うことにより、5 μ m以下の粒子を除去した。次に、粒径を調整した微粉碎品14.85kgに、炭化ホウ素（B₄C）0.15kgを加えて、ヘンシェルミキサーにて回転数800rpmで5分間混合した。続いて、得られた混合物1kgを容量1.5リットルの蓋付き黒鉛ルツボに封入して黒鉛ヒータを用いた黒鉛化炉に入れ、黒鉛化炉内を一旦真空にしてからアルゴンガスに置換し、内圧1.2atm、アルゴンガス雰囲気の流れ下で2800の温度で黒鉛化し、アルゴンガス雰囲気中で放冷した。このようにして、0.49kgの人造黒鉛微粉が得られた。なお、得られた人造黒鉛微粉の平均粒径は20 μ mであった。

20

【0073】

また、平均粒径18 μ mの中国製の天然黒鉛（商品名BTRSG18：BTR Energy Materials社）を用いて、上記の粒径を調整した微粉碎品を用いた場合と同様にして炭化ホウ素と混合し、ホウ素含有天然黒鉛を得た。なお、得られたホウ素含有天然黒鉛の平均粒径は25 μ mであった。

30

このようにして得られた人造黒鉛微粉とホウ素含有天然黒鉛とを等量混合して炭素質材料とした。

【0074】

なお、人造黒鉛微粉およびホウ素含有天然黒鉛の平均粒径は、以下に示す方法により測定した。

まず、サンプル50mgを秤量して50mlの蒸留水に添加した。更に2% Triton（界面活性剤；和光純薬工業製社製）水溶液0.2mlを加えて3分間超音波分散させた後、レーザー回折散乱法（日機装（株）製のマイクロトラックHRA装置）で数平均粒子径を測定した。

【0075】

（シート状材料の製造）

このようにして得られた炭素質材料と、表1に示す樹脂組成物と、表1に示す反応開始剤とを、ラボプラストミル（東洋精機製）を用いて温度100、回転数40rpmで5分間混練し、シート状材料となる成分を含む混練物を得た。この混練物を、ウィレー粉砕機（吉田製作所）を用いて粉碎し、篩下2mm以下の微粉とした。この微粉をオーブンで90まで加熱してロール表面温度30の10インチの圧延ロール（ダイハン製）に供給してシート化することにより、長さ200mm、幅100mm、厚み0.9mmのシート状材料を得た。

40

得られたシート状材料の炭素質材料の含有量は85質量%であり、炭素質材料中におけるホウ素の含有量は2質量%であり、密度は1.5g/cm³であった。

50

なお、ホウ素の含有量については、[0058]に記載の方法で測定した。また、ホウ素の密度については、JIS K 7112のA法に規定された水中置換法（アルキメデス法）に基づいて測定された比重を密度として採用した。

【0076】

【表1】

		組成比 (質量%)
樹脂組成物	1,2-ポリブタジエン*1	7.1
	1,2-ポリブタジエン*2	3.55
	低密度ポリエチレン*3	3.55
炭素質材料	人造黒鉛/天然黒鉛=1/1	85.1
反応開始剤	2,5-ジメチル2,5-ジ(tert-ブチルパーオキシ)ヘキサン*4	0.7

10

*1NISSO-PB B3000、日本曹達製

*2JSR RB-810、JSR製

*3ノバテック®LD LJ802、日本ポリエチレン製

*4カヤヘキサAD、化薬アクゾ製

20

【0077】

「プレス条件」

荷重250t、温度180、硬化時間2.5分とした。

【0078】

このようにして得られた実施例の燃料電池用セパレータ35の複数位置の厚みをマイクロメータにて実測し、板厚偏差を評価した。なお、燃料電池用セパレータ35の厚みの測定位置は、図4に示すように、外縁に沿って5mmの幅で設けられた余白領域の内側を、図4に示す寸法（図4に示す寸法の単位は（mm））で長さ方向および幅方向に各々略4等分し、長さ方向の分割した線および余白領域の内側境界線（図4において符号1～5で示される点線）と、幅方向の分割した線および余白領域の内側境界線（図4において符号S1～S5で示される点線）との交点位置とした。また、図4においては、図面を見やすくするために、凹部24b、24c、24d、24eの記載を省略して示している。その結果を図5Aおよび表2に示す。図5Aは、実施例の燃料電池用セパレータの板厚偏差の評価結果を示すグラフである。

30

【0079】

40

【表 2】

最大値	1.012 (mm)
最小値	0.980 (mm)
平均	0.996 (mm)
最大-最小	0.032 (mm)
標準偏差	0.013 (mm)

10

【0080】

(比較例)

ダミーパターンが設けられていないこと以外は同じ金型を用いたこと以外は、実施例と同様にして、図3Cおよび図3Dに示す比較例の燃料電池用セパレータを形成した。

そして、得られた比較例の燃料電池用セパレータの板厚偏差を、実施例と同様にして評価した。その結果を図5Bおよび表3に示す。図5Bは、比較例の燃料電池用セパレータの板厚偏差の評価結果を示すグラフである。

20

【0081】

【表 3】

最大値	1.035 (mm)
最小値	0.962 (mm)
平均	1.000 (mm)
最大-最小	0.073 (mm)
標準偏差	0.019 (mm)

30

【0082】

図5A、図5B、表2および表3より、ダミーパターンが設けられていない金型を用いた比較例では、板厚の最大値と最小値との差が73 μm であった。これに対して、ダミーパターンが設けられている金型を用いた実施例では、板厚の最大値と最小値との差が32 μm と小さかった。このことより、本発明のシートプレス成形方法は、成形体の板厚偏差を低減する効果があることが確認できた。

40

【産業上の利用可能性】

【0083】

本発明は、シートプレス成形方法および燃料電池用セパレータの製造方法に適用できる。

【符号の説明】

【0084】

3a、3b、3c、24b、24c、24d、24e...凹部、

10、40...金型(型)、

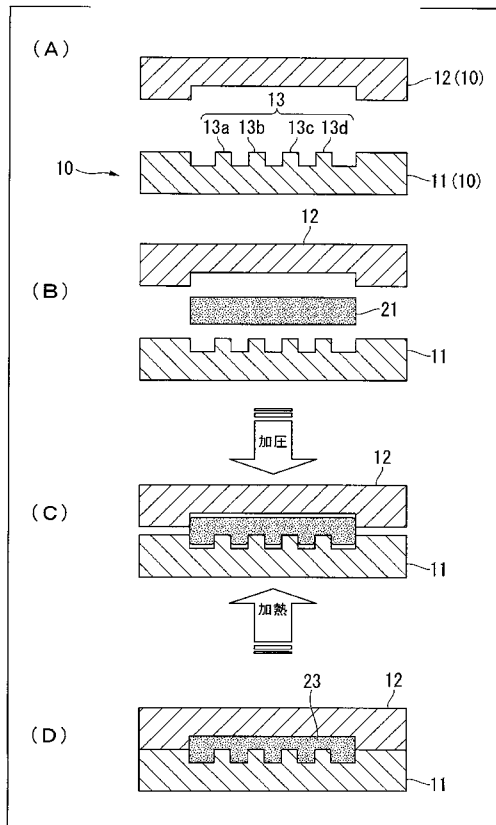
1、11、201...下金型、

12、212...上金型、

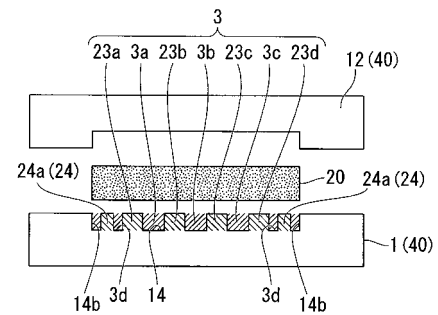
50

- 3、13...凹凸パターン、
- 13a、13b、13c、13d、23a、23b、23c、23d...凸部、
- 14...内部、
- 14b...側面、
- 20、21...シート状材料、
- 23、30、130、230...成形品、
- 24...ダミーパターン、
- 24a、224a...ダミー凸部、
- 31...流路用パターン、
- 32...凹凸パターン部、
- 35...燃料電池用セパレータ。

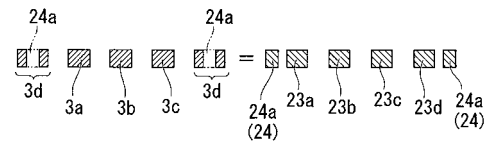
【図1】



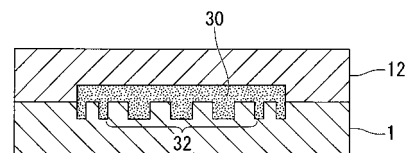
【図2A】



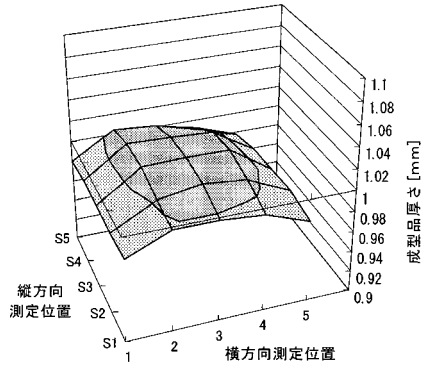
【図2B】



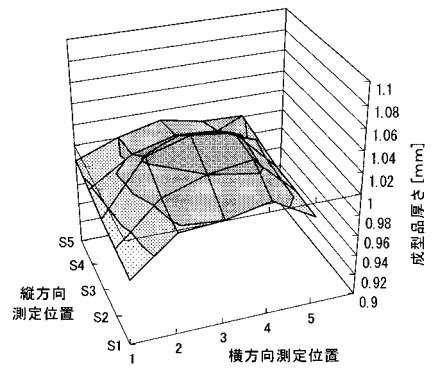
【図2C】



【図 5 A】



【図 5 B】



フロントページの続き

- (72)発明者 歌代 智也
東京都港区芝大門一丁目13番9号 昭和電工株式会社内
- (72)発明者 伊藤 芳規
東京都港区芝大門一丁目13番9号 昭和電工株式会社内
- (72)発明者 野口 雅之
東京都港区芝大門一丁目13番9号 昭和電工株式会社内

審査官 田代 吉成

- (56)参考文献 特開2003-176327(JP,A)
特開2005-339874(JP,A)
特開2006-252815(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|-------|
| B29C | 43/02 |
| B29C | 43/34 |
| B29C | 43/36 |
| H01M | 8/02 |
| H01M | 8/10 |