

(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2015-534700  
(P2015-534700A)

(43) 公表日 平成27年12月3日(2015.12.3)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
<b>HO1M 8/24 (2006.01)</b>	HO1M 8/24	Z 4J002
<b>C08L 77/06 (2006.01)</b>	C08L 77/06	5H026
<b>C08K 7/14 (2006.01)</b>	C08K 7/14	
<b>C08L 9/06 (2006.01)</b>	C08L 9/06	
<b>C08L 53/02 (2006.01)</b>	C08L 53/02	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2015-529022 (P2015-529022)	(71) 出願人	512323929 ソルベイ スペシャルティ ポリマーズ ユースエー, エルエルシー
(86) (22) 出願日	平成25年8月29日 (2013.8.29)		アメリカ合衆国 ジョージア 30005 -3914, アルファレッタ, マクジ
(85) 翻訳文提出日	平成27年2月20日 (2015.2.20)		ニス フェリー ロード 4500
(86) 國際出願番号	PCT/EP2013/067877	(74) 代理人	110002077 園田・小林特許業務法人
(87) 國際公開番号	W02014/033203	(72) 発明者	ウォーコスキー, グレゴリー ジー. アメリカ合衆国 ジョージア 30040 , カミング, ブルック ホロー レイ ク トレイル 108
(87) 國際公開日	平成26年3月6日 (2014.3.6)		
(31) 優先権主張番号	61/694,820		
(32) 優先日	平成24年8月30日 (2012.8.30)		
(33) 優先権主張国	米国(US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】燃料電池構成部品

## (57) 【要約】

少なくとも1つのフタル酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される繰り返し単位とアジピン酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される10%モル未満の繰り返し単位とを含む少なくとも1つのポリアミドポリマー[ポリアミド(A)]と、少なくとも1つの補強充填材[充填材(F)]と少なくとも1つの衝撃改質剤[衝撃改質剤(IM)]とを含むポリマー組成物(C)を含む燃料電池構成部品、好ましくは端板。本燃料電池構成部品は、従来の成形技術によって製造されてもよい。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも 1 つのフタル酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される繰り返し単位とアジピン酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される 10 % モル未満の繰り返し単位とを含む少なくとも 1 つのポリアミドポリマー [ ポリアミド ( A ) ] と、少なくとも 1 つの補強充填材 [ 充填材 ( F ) ] と少なくとも 1 つの衝撃改質剤 [ 衝撃改質剤 ( I M ) ] とを含むポリマー組成物 ( C ) を含む燃料電池構成部品。

## 【請求項 2】

ポリアミド ( A ) が、テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマーからなる群から選択される請求項 1 に記載の燃料電池構成部品。 10

## 【請求項 3】

組成物 ( C ) 中のポリアミド ( A ) の量が、組成物 ( C ) の総重量を基準として少なくとも 40 重量 % 、最大でも 85 重量 % である請求項 1 または 2 に記載の燃料電池構成部品。

## 【請求項 4】

充填材 ( F ) が、ガラス纖維充填材の群から選択される請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。

## 【請求項 5】

組成物 ( C ) 中の充填材 ( F ) の量が、組成物 ( C ) の総重量を基準として少なくとも 10 重量 % 、最大でも 50 重量 % である請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。 20

## 【請求項 6】

衝撃改質剤 ( I M ) が、スチレン - ブタジエンゴム ( S B R ) 、スチレン - ブタジエン - スチレンゴム ( S B S ) 、スチレン - エチレン - ブタジエン - スチレンゴム ( S E B S ) 、無水マレイン酸グラフト化スチレン - ブタジエン - スチレンゴム ( S B S ) およびスチレン - エチレン - ブタジエン - スチレンゴム ( S E B S ) 、エチレン / 1 - ブテン、エチレン / 1 - ヘキセンおよびエチレン / 1 - オクテンコポリマー、エチレン / プロピレン / エチリデンノルボルネンターポリマー ( E P D M ) からなる群から選択される請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。

## 【請求項 7】

組成物 ( C ) 中の衝撃改質剤 ( I M ) の量が、組成物 ( C ) の総重量を基準として少なくとも 1 重量 % 、最大でも 20 重量 % である請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。 30

## 【請求項 8】

組成物 ( C ) からなる請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。

## 【請求項 9】

端板である請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品。

## 【請求項 10】

組成物 ( C ) を成形する工程を含む請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品の製造方法。 40

## 【請求項 11】

前記成形工程が射出成形工程である請求項 10 に記載の方法。

## 【請求項 12】

請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の燃料電池構成部品を含む燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本出願は、2012年8月30日出願の米国仮特許出願第 61 / 694820 号に対する優先権を主張するものであり、この出願の全内容は、あらゆる目的のために参照により本明細書に援用される。

## 【0002】

本発明は、燃料電池の分野に、特に燃料電池構成部品、例えば、熱可塑性材料で作られている、端板に関する。

## 【背景技術】

## 【0003】

燃料電池は、燃料、例えば、水素と、酸化剤、例えば空気との反応によって電気および熱を生成する電気化学的エネルギー変換装置である。多くの変形が燃料電池システムの設計および配置構成に関して存在するが、ほとんどのシステムの不可欠な部分は燃料電池スタックである。燃料電池スタックは、二極コレクター板によって互いに分離された一連の膜電極アセンブリからなり、ここで、スタックは両端において、端板と、典型的には、圧縮板とを含む端板アセンブリで終わる。スタックはまた、燃料および酸化剤ガス供給および取り出し手段、ならびにスタックを通してクーラントを循環させる手段を備えている。連結手段、例えば、タイ・ロッドまたはバンドは、スタックを結び付けそして、端板アセンブリと連動して、圧縮力をスタックに及ぼしてスタックアセンブリ締め付ける。そのような締め付けは、膜電極アセンブリの構成部品と二極コレクター板との間の接触抵抗を低下させるために、そしてスタックのガス密封性を確保するために必要とされる。

## 【0004】

スタック破損を回避し、そして電気効率を最大限にするために、端板アセンブリは、破壊または反りなしにスタックに及ぼされる力に耐えるのに十分に強くなければならない。典型的には、端板アセンブリはまた、70までまたはそれ以上の使用温度に耐える必要がある。さらに、端板が、それを通ってクーラント、燃料、および酸化剤ガスが導入され、そしてスタックから取り出されるマニホールドとして機能する場合には、端板は、劣化または腐食することなくそのような材料との接触に耐える必要があるかもしれない。

## 【0005】

機械および熱抵抗要件を考慮して、端板アセンブリに含有される圧縮板および端板は典型的には、金属、通常はステンレス鋼から製造される。コストが比較的高く、腐食を受けやすいことに加えて、金属板は、十分な機械抵抗を提供するために必要とされる厚さを考慮して燃料電池スタックの重量を実質的に増加させ得る。自動車および他の用途において、燃料電池スタックのサイズおよび重量を最小限することが一般に望ましい。

## 【0006】

端板について記載されたものと同様な問題は一般にまた、燃料電池の他の構造構成部品、例えばポンプハウジング、加湿器ハウジング、クーラント、燃料および酸化剤入口および出口、クーラント、燃料および酸化剤マニホールド、スタック支持体などにも適用される。

## 【0007】

より軽量の端板の製造におけるプラスチック材料の使用が提案されている。米国特許出願公開第2002182470A号明細書(TICONA LLC)05.12.2002は、熱可塑性樹脂と少なくとも30重量%の少なくとも5mmの纖維長を有する長ストランドガラス纖維とを含む長纖維強化熱可塑性樹脂複合材料から作られた成形燃料電池端板を開示している。この熱可塑性樹脂は、部分芳香族ポリアミド、ポリアリールスルホン、ポリアリールエーテルケトン、ポリアリールエーテルエーテルケトン、ポリアリールエーテルイミド、ポリアリールイミド、ポリアリーレンスルフィドおよびサーモトロピック液晶からなる群から選択されてもよい。実施例は、長纖維強化ポリフェニレンスルフィド端板について提供されている。

## 【0008】

米国特許出願公開第20030152819号明細書(松下電気産業株式会社)14.08.2003は、ポリプロピレン、ナイロン樹脂、ポリアセタール、ポリカーボネート、変性ポリフェニルエーテル、ポリブチレンテレフタレート、超高分子量ポリエチレン、ポリメチルベンテンテ、ジンジオタクチックポリスチレン、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリタルアミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリシクロヘキシレンジメチ

10

20

30

40

50

レンテレフタレート、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリイミド、フルオロカーボン樹脂、シリコーン樹脂および液晶ポリマーから選択される樹脂支配的材料で作られた端板を開示している。実施例は、ガラス纖維強化ポリフェニレンスルフィド、ガラス纖維強化ポリスルホンおよびガラス纖維強化液晶ポリマーで作られた端板について提供されている。

## 【0009】

国際公開第2005/031904A号パンフレット(R.JEREZ)07.04.2005は、ポリタルアミド、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルエーテルケトンおよび液晶ポリマーの少なくとも1つから選択される高分子のまたは結晶性の熱可塑性材料を含む燃料電池用の板部材を開示している。

10

## 【発明の概要】

## 【課題を解決するための手段】

## 【0010】

厚い構造部品のために必要とされる耐久性および機械抵抗と、厳しい環境下での抽出可能な量とコストとの間の有利なバランスを備えた、燃料電池構成部品、特に端板は、少なくとも1つのフタル酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される繰り返し単位とアジピン酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される10%モル未満の繰り返し単位とを含む少なくとも1つのポリアミドポリマー[ポリアミド(A)]と、少なくとも1つの補強充填材[充填材(F)]と少なくとも1つの衝撃改質剤[衝撃改質剤(IM)]とを含むポリマー組成物(C)の使用によって得ることができることが今分かった。

20

## 【0011】

したがって、本発明の第1目的は、少なくとも1つのフタル酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される繰り返し単位とアジピン酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される10%モル未満の繰り返し単位とを含む少なくとも1つのポリアミドポリマー[ポリアミド(A)]と、少なくとも1つの補強充填材[充填材(F)]と少なくとも1つの衝撃改質剤[衝撃改質剤(IM)]とを含むポリマー組成物(C)を含む燃料電池構成部品である。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0012】

燃料電池構成部品の非限定的な例は例えば、端板、ポンプハウジング、加湿器ハウジング、クーラント、燃料および酸化剤入口および出口、クーラント、燃料および酸化剤マニホールド、スタック支持体である。

30

## 【0013】

本発明の好ましい実施形態においては、燃料電池構成部品は、燃料電池端板である。

## 【0014】

アジピン酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合から誘導される繰り返し単位は、ポリアミド(A)中に好ましくは5%モル未満、より好ましくは3%モル未満、さらにより好ましくは0%モルである。

## 【0015】

本発明の目的のためには、用語「ポリアミドポリマー」は、少なくとも1つのジカルボン酸成分、もしくはその誘導体および、少なくとも1つのジアミン成分の重縮合から、ならびに/またはアミノカルボン酸および/もしくはラクタムの重縮合から誘導される繰り返し単位を含む任意のポリマーを意味する。表現「その誘導体」は、表現「カルボン酸」と組み合わせて用いられる場合には、重縮合条件下で反応を受けてアミド結合を生じるいずれかの誘導体を意味することを意図される。アミド形成誘導体の例には、そのようなカルボン酸の、モノ-またはジメチル、エチルまたはプロピルエステルなどの、モノ-またはジアルキルエステル；そのモノ-またはジアリールエステル；その一酸または二酸ハロゲン化物；およびその一酸または二酸アミド、モノ-またはジカルボキシレート塩が含まれる。

40

50

## 【0016】

ジカルボン酸成分およびジアミン成分は一般に、ポリアミド(A)中に実質的に等モル量で含まれ；これは、ジカルボン酸成分の-COOH基の総数とジアミン成分の-NH<sub>2</sub>基の総数との間のモル比が1.1:1~0.9:1、好ましくは1.075:1~1:0.925であることを意味する。

## 【0017】

ポリアミド(A)は、少なくとも1つのフタル酸およびヘキサメチレンジアミンの重縮合反応から誘導される繰り返し単位を含む。表現「フタル酸」は、イソフタル酸、テレフタル酸およびオルトフタル酸のいずれかを意味するために用いられる。

## 【0018】

本発明の実施形態によれば、少なくとも1つのフタル酸は、イソフタル酸、およびテレフタル酸からなる群から選択される。イソフタル酸およびテレフタル酸を単独でまたは組み合わせて使用することができる。フタル酸は好ましくは、イソフタル酸と組み合わせたテレフタル酸である。

10

## 【0019】

少なくとも1つのフタル酸に加えて、ポリアミド(A)は、アジピン酸およびヘキサメチレンジアミンに由来する繰り返し単位が10%モル未満であるという条件でポリアミド(A)のジカルボン酸成分全てを基準として40%モル以下、好ましくは30%モル以下、より好ましくは25%モル以下のフタル酸とは異なるジカルボン酸成分を含んでもよい。フタル酸とは異なる前記ジカルボン酸成分は、芳香族ジカルボン酸および非芳香族ジカルボン酸からなる群から選択されてもよい。

20

## 【0020】

本発明の目的のためには、ジカルボン酸は、それが1つもしくは2つ以上の芳香族基を含む場合には「芳香族」と考えられる。好適な芳香族ジカルボン酸の非限定的な例は、2,5-ピリジンジカルボン酸、2,4-ピリジンジカルボン酸、3,5-ピリジンジカルボン酸、2,2-ビス(4-カルボキシフェニル)プロパン、ビス(4-カルボキシフェニル)メタン、2,2-ビス(4-カルボキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン、2,2-ビス(4-カルボキシフェニル)ケトン、4,4'-ビス(4-カルボキシフェニル)スルホン、2,2-ビス(3-カルボキシフェニル)プロパン、ビス(3-カルボキシフェニル)メタン、2,2-ビス(3-カルボキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン、2,2-ビス(3-カルボキシフェニル)ケトン、ビス(3-カルボキシフェノキシ)ベンゼン、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、2,3-ナフタレンジカルボン酸、1,8-ナフタレンジカルボン酸、1,2-ナフタレンジカルボン酸である。

30

## 【0021】

ポリアミド(A)に使用するための好適な非芳香族ジカルボン酸の非限定的な例は、シュウ酸[HOOC-COOH]、マロン酸(HOOC-CH<sub>2</sub>-COOH)、アジピン酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-COOH]、コハク酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-COOH]、グルタル酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-COOH]、2,2-ジメチル-グルタル酸[HOOC-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-COOH]、2,4,4-トリメチル-アジピン酸[HOOC-CH(CH<sub>3</sub>)-CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-COOH]、ピメリン酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>5</sub>-COOH]、スペリン酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>-COOH]、アゼライン酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>7</sub>-COOH]、セバシン酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>8</sub>-COOH]、ウンデカン二酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>9</sub>-COOH]、ドデカン二酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>10</sub>-COOH]、テトラデカン二酸[HOOC-(CH<sub>2</sub>)<sub>11</sub>-COOH]、シス-および/もしくはトランス-シクロヘキサン-1,4-ジカルボン酸ならびに/またはシス-および/もしくはトランス-シクロヘキサン-1,3-ジカルボン酸である。

40

## 【0022】

フタル酸とは異なる前記ジカルボン酸成分が非芳香族ジカルボン酸からなる群から、特

50

にアジピン酸から選択される場合には、それは好ましくは、ジカルボン酸成分全てを基準として10%モル未満の量で存在し；より好ましくは前記非芳香族ジカルボン酸成分は、5%モル未満の量で、さらにより好ましくは3%モル未満の量で存在する。

【0023】

ヘキサメチレンジアミンに加えて、ポリアミド(A)は、ポリアミド(A)のジアミン成分全てを基準として40%モル以下、好ましくは30%モル以下、より好ましくは25%モル以下のヘキサメチレンジアミンとは異なるジアミン成分を含んでもよい。

【0024】

ヘキサメチレンジアミンとは異なる前記ジアミン成分は典型的には、2～18個の炭素原子を有する脂肪族アルキレンジアミンからなる群から選択される。前記アミンは有利には、1,2-ジアミノエタン、1,2-ジアミノプロパン、プロピレン-1,3-ジアミン、1,3-ジアミノブタン、1,4-ジアミノブタン、1,5-ジアミノペンタン、1,4-ジアミノ-1,1-ジメチルブタン、1,4-ジアミノ-1-エチルブタン、1,4-ジアミノ-1,2-ジメチルブタン、1,4-ジアミノ-1,3-ジメチルブタン、1,4-ジアミノ-1,4-ジメチルブタン、1,4-ジアミノ-2,3-ジメチルブタン、1,2-ジアミノ-1-ブチルエタン、1,7-ジアミノヘプタン、1,8-ジアミノ-オクタン、1,6-ジアミノ-2,5-ジメチルヘキサン、1,6-ジアミノ-2,4-ジメチルヘキサン、1,6-ジアミノ-3,3-ジメチルヘキサン、1,6-ジアミノ-2,2-ジメチルヘキサン、1,9-ジアミノノナン、1,6-ジアミノ-2,2-4-トリメチルヘキサン、1,6-ジアミノ-2,4,4-トリメチルヘキサン、1,7-ジアミノ-2,3-ジメチルヘプタン、1,7-ジアミノ-2,4-ジメチルヘプタン、1,7-ジアミノ-2,2-ジメチルヘプタン、1,10-ジアミノデカン、1,8-ジアミノ-1,3-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-1,4-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-2,4-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-3,4-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-4,5-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-2,2-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-3,3-ジメチルオクタン、1,8-ジアミノ-4,4-ジメチルオクタン、1,6-ジアミノ-2,4-ジエチルヘキサン、1,9-ジアミノ-5-メチルノナン、1,11-ジアミノウンデカンおよび1,12-ジアミノドデカンからなる群から選択される。

【0025】

好ましくは、ヘキサメチレンジアミンとは異なる前記ジアミン成分は、5～12個の炭素原子を有する脂肪族アルキレンジアミンからなる群から選択される。

【0026】

本発明によるポリアミド(A)の非限定的な例は、テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマー、テレフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよびデカメチレンジアミンとのコポリマー；テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよびデカメチレンジアミンとのコポリマー；テレフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよび11-アミノ-ウンデカン酸とのコポリマー；テレフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよびビス-1,4-アミノメチルシクロヘキサンとのコポリマー；テレフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよびビス-1,3-アミノメチルシクロヘキサンとのコポリマー；ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸および2,6-ナフタレンジカルボン酸とのコポリマー；ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸およびセバシン酸とのコポリマー；ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸および1,12-ジアミノドデカン酸とのコポリマー；ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸、イソフタル酸およびアジピン酸とのコポリマー；ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸、イソフタル酸および1,4-シクロヘキサンジカルボン酸とのコポリマー；テレフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよび2-メチルペンタメチレンジアミンとのコポリマーである。

【0027】

ポリアミド(A)は好ましくは、テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマー、テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンおよ

10

20

30

40

50

びデカメチレンジアミンとのコポリマー、ヘキサメチレンジアミンとテレフタル酸およびセバシン酸とのコポリマーからなる群から選択される。

【0028】

ポリアミド(A)はより好ましくは、テレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマーからなる群から選択される。

【0029】

さらにより好ましくは、ポリアミド(A)は、モル比テレフタル酸/イソフタル酸が60/40~75/25の範囲であるテレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマーからなる群から選択される。

【0030】

好適なポリアミド(A)はとりわけ、Solvay Specialty Polymers U.S., L.L.C.からAMODEL(登録商標)PPAとして入手可能である。

【0031】

組成物(C)中のポリアミド(A)の重量パーセントは一般に、組成物(C)の総重量を基準として、少なくとも40重量%、好ましくは少なくとも45重量%、より好ましくは少なくとも50重量%である。ポリアミド(A)の重量パーセントは一般に、組成物(C)の総重量を基準として最大でも85重量%、好ましくは最大でも75重量%、最も好ましくは最大でも70重量%である。

【0032】

組成物(C)はさらに、少なくとも1つの補強充填材[充填材(F)]を含む。本発明の組成物(C)に使用されるのに好適である補強充填材は、当業者によって周知である。

【0033】

充填材(F)は一般に、纖維充填材および粒状充填材からなる群から選択される。典型的には、充填材(F)は、無機充填材(例えばタルク、マイカ、カオリン、炭酸カルシウム、ケイ酸カルシウム、炭酸マグネシウム)、ガラス纖維、炭素纖維、合成ポリマー纖維、アラミド纖維、アルミニウム纖維、チタン纖維、マグネシウム纖維、炭化ホウ素纖維、ロックウール纖維、鋼纖維、ウォラストナイト、無機ウィスカーからなる群から選択される。さらにより好ましくは、充填材(F)は、マイカ、カオリン、ケイ酸カルシウム、炭酸マグネシウム、無機ウィスカー、ガラス纖維およびウォラストナイトからなる群から選択される。

【0034】

第1実施形態によれば、充填材(F)は、纖維充填材からなる群から選択される。纖維充填材の中で、ガラス纖維が好ましい。ガラス纖維の非限定的な例には、とりわけ刻んだストランドA-、E-、C-、D-、S-およびR-ガラス纖維が含まれる。組成物(C)において有用なガラス纖維充填材は、丸い横断面または円形でない横断面を有してもよい。

【0035】

本発明の好ましい実施形態においては、充填材(F)は、ウォラストナイト充填材およびガラス纖維充填材からなる群から選択される。優れた結果は、ガラス纖維が使用される場合に得られた。

【0036】

組成物(C)中の充填材(F)の重量パーセントは一般に、組成物(C)の総重量を基準として、少なくとも5重量%のもの、好ましくは少なくとも10重量%のもの、より好ましくは少なくとも20重量%である。充填材(F)の重量パーセントは一般に、組成物(C)の総重量を基準として、最大でも80重量%、好ましくは最大でも70重量%、最も好ましくは最大でも60重量%である。

【0037】

良好な結果は、充填材(F)が組成物(C)の総重量を基準として、10~50重量%の、好ましくは、組成物(C)の総重量を基準として、20~40重量%の量で存在する

10

20

30

40

50

場合に得られた。

【0038】

組成物(C)はさらに、少なくとも1つの衝撃改質剤[衝撃改質剤(IM)]を含む。好適な衝撃改質剤(IM)は、エチレン/1-オクテンコポリマー、プロピレン/1-オクテンコポリマー、エチレン/プロピレン/1-オクテンターポリマー、エチレン/1-ブテン/1-オクテンターポリマー、プロピレン/1-ブテン/1-オクテンターポリマー、エチレン/1-オクテン/アクリロニトリルターポリマー、エチレン/1-オクテン/メタクリレートターポリマー、エチレン/1-オクテン/酢酸ビニルターポリマー、エチレン/1-オクテン/メチルメタクリレートターポリマー、プロピレン/1-オクテン/アクリロニトリルターポリマー、プロピレン/1-オクテン/メタクリレートターポリマー、プロピレン/1-オクテン/酢酸ビニルターポリマー、プロピレン/1-オクテン/メチルメタクリレートターポリマー、エチレン/1-オクテン/1,4-ヘキサジエンターポリマー、プロピレン/1-オクテン/1,4-ヘキサジエンターポリマー、エチレン/1-オクテン/エチリデンノルボルネンターポリマー、プロピレン/1-オクテン/エチリデンノルボルネンターポリマー、エチレン-プロピレンコポリマー、エチレン/1-ブテンおよびエチレン/1-ヘキセンコポリマー、エチレン/プロピレン/1-ブテンターポリマー、エチレン/プロピレン/1-ヘキセンターポリマー、エチレン/プロピレン/1,4-ヘキサジエンターポリマー、エチレン/プロピレン/エチリデンノルボルネンターポリマー(EPM)、ブタジエンゴム(シス-1,4-ポリブタジエン)、ブチルゴム(IIR、イソブチレン-イソブレンゴム)、ニトリルブタジエンゴム(NBR、ブタジエンとアクリロニトリルとのコポリマー)、スチレン-ブタジエンゴム(SBR)、スチレン-ブタジエン-スチレンゴム(SBS)、スチレン-エチレン-ブタジエン-スチレンゴム(SEBS)、エチレン-アクリル架橋ゴム(エチレンとメチルメタクリレートとのコポリマー)、天然ゴム(シス-1,4-ポリイソブレン)からなる群から選択されてもよい。10

【0039】

衝撃改質剤(IM)は、例えば、少なくとも1つの官能基を有する1つまたは複数のエチレン系不飽和モノマーで非官能化ポリマーをグラフトすることによって官能化されてもよい。好適なグラフト化剤は例えば、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、メチルビニルケトン、不飽和ジカルボン酸、それらのエステル、およびそれらの無水物、例えば無水マレイン酸；アクリル酸および/またはメタクリル酸、ならびにそのエステル；酢酸ビニルである。30

【0040】

衝撃改質剤(IM)は好ましくは、スチレン-ブタジエンゴム(SBR)、スチレン-ブタジエン-スチレンゴム(SBS)、スチレン-エチレン-ブタジエン-スチレンゴム(SEBS)、無水マレイン酸グラフト化SBSおよびSEBS、エチレン/1-ブテン、エチレン/1-ヘキセンおよびエチレン/1-オクテンコポリマー、エチレン/プロピレン/エチリデンノルボルネンターポリマー(EPM)からなる群から選択される。

【0041】

組成物(C)は、組成物(C)の総重量を基準として典型的には少なくとも1重量%、好ましくは少なくとも1.5重量%、より好ましくは少なくとも2重量%の衝撃改質剤(IM)を含有する。衝撃改質剤(IM)の量は、組成物(C)の総重量を基準として典型的には最大でも20重量%、好ましくは最大でも15重量%、より好ましくは最大でも10重量%である。40

【0042】

良好な結果は、衝撃改質剤(IM)が、組成物(C)の総重量を基準として、1~20重量%の、好ましくは、組成物(C)の総重量を基準として、1.5~15重量%の量で存在する場合に得られた。

【0043】

組成物(C)は、当該技術分野で公知であるような顔料、安定剤および難燃剤などの他

10

20

30

30

40

50

の原料を含有してもよい。好ましくは組成物 (C) は、いかなる金属ハロゲン化物安定剤をも含有しない。

【0044】

組成物 (C) は、当該技術分野において公知のポリアミド組成物の調製のための任意の従来法によって、例えばポリアミド (A)、充填材 (F) および衝撃改質剤 (IM) を溶融配合することによって調製されてもよい。共回転および反転押出機、単軸スクリュー押出機、コニーダー、ディスク・パックプロセッサおよび様々な他の種類の押出装置などの、従来型の溶融配合デバイスを用いることができる。好ましくは、押出機、より好ましくは二軸スクリュー押出機を用いることができる。当業者に公知の、特別設計された押出機が、組成物 (C) を溶融、プレンディング、押出およびペレット化するために用いられてよい。

10

【0045】

本発明の第2目的は、組成物 (C) を成形する工程を含む燃料電池構成部品の製造方法である。

【0046】

本方法は一般に、組成物 (C) がポリアミド (A) の溶融温度を超える温度での型に注入される、射出成形法である。

【0047】

様々な射出成形技術が用いられてもよい。一般に、全てのそれらの技術において、型は、複数の射出装置を備えている。延伸温度および型温度などの決定的に重要な変数は、これらの方法のどちらかを用いる場合に考慮されなければならない。当業者は、材料の応力緩和特性および溶融粘度の温度依存性などの射出成形性に影響を与える要因を理解するであろうし、厳密な条件は、小試料の試行錯誤成形によって決定されてもよい。

20

【0048】

組成物 (C) の粉末、ペレット、ビーズ、フレーク、粉碎再生材料または他の形態が、予混合されるかまたは別々に供給される、液体または他の添加剤とともにまたはなしで、成形されてもよい。

【0049】

燃料電池構成部品の設計およびサイズは、特定の用途に依存するであろう。

【0050】

燃料電池構成部品は、複数の部品もしくは要素を含んでもよい。燃料電池構成部品は、ポリマー組成物 (C) からなってもよいし、またはそれは、異なる材料で作られた部品もしくは要素を含んでもよい。異なる材料の前記部品もしくは要素は、本来は金属製か組成物 (C) とは異なるプラスチック材料製かのどちらであってもよい。燃料電池構成部品が異なる材料の1つまたは2つ以上の部品もしくは要素を備えていると考えられる場合には、本方法は、同じものが本方法の終わりに端板に安定して、しっかりと組み込まれるように、前記部品もしくは要素をホストする型中で組成物 (C) を成形する工程を含んでもよい。

30

【0051】

ポリマー組成物 (C) の使用は、構成部品のサイズが大きい場合でさえも成形時にまたは使用時に裂けない、燃料電池構成部品、特に端板の製造を可能にすることが分かった。

40

【0052】

特に、組成物 (C) の使用は、端板の機械的性能と、燃料電池環境下での端板からの汚染の量とコストとの間の有利なバランスに達することを可能にする。

【0053】

本発明はこれから、以下の実施例に関連してより詳細に説明されるが、その目的は単に例証的なものであり、本発明の範囲を限定することを意図するものではない。

【0054】

参照により本明細書に援用される特許、特許出願、および刊行物のいずれかの開示が、用語を不明瞭にする程度に本説明と矛盾する場合、本説明が優先するものとする。

50

## 【実施例】

## 【0055】

## 材料

PA-1+F-1: Solvay Specialty Polymers US, L. L. C. 製のAMODEL (登録商標) PPA HFZ A1133 L BK937 (33重量%のガラス纖維を含有するテレフタル酸およびイソフタル酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマー)

PA-1+F-1+IM-1: AMODEL (登録商標) PPA HFZ A1133 L BK937+3.2重量%のIM-1

PA-2+F-1+IM-1: Solvay Specialty Polymers US, L. L. C. 製のAMODEL (登録商標) PPA AS 1933 HS BK 324 (33重量%のガラス纖維および3.2重量%のIM-1を含有するテレフタル酸、イソフタル酸およびアジピン酸とヘキサメチレンジアミンとのコポリマー)

IM-1: Kraton Polymers US L. L. C. 製のKRATON (登録商標) FG 1091 GT (無水マレイン酸グラフト化SEBSポリマー)

PSU+F-1: Solvay Specialty Polymers US, L. L. C. 製のUDEL (登録商標) GF-120 (20重量%のガラス纖維を含有するポリスルホンポリマー)

## 【0056】

## 燃料電池膜の汚染の測定のための一般的な手順

各材料の50gのペレットをPyrexガラスビーカーに入れた。150gの脱塩水を加え、温度を磁気棒で攪拌下に沸騰温度にした。ビーカーを時計皿でカバーし、脱塩水を、初期体積を元の状態にするために必要な場合には加えた。3つの連続サイクルを次の通り実施した：沸騰水温度で8時間攪拌、引き続き夜間にゆっくりした冷却。

## 【0057】

Aquivion (登録商標) PFS膜のプロトン交換膜 (Solvay Specialty Polymers Italy SpAから入手可能)を、このようにして得られた溶液中に室温で1時間浸漬した。浸漬後に膜をオープン空气中で乾燥するに任せた。このようにして得られた膜を、25cm<sup>2</sup>の活性面積を有する単一セル (Fuel Cell Technology (登録商標))においてSolvicore (登録商標)電極H400と組み立て、Arbin (登録商標) 50W試験台で試験した。

## 【0058】

0.6Vの固定電圧における24時間の調整後に、分極曲線を測定して膜性能を検証した。電流密度を24時間の調整中に測定して膜の性能の変化を検出した。特に、セルにおける電流の流れの増加は、溶液中で膜によって吸収された可逆的に結合した汚染物質の膜からの放出に関係している。分極曲線は、次の実験条件下で得られた：反応体化学量論：2.8空気-3.4H<sub>2</sub> (純H<sub>2</sub> 5.5グレード)；反応体湿度レベル：100%；セル温度：75；作動圧力：2.5バール (絶対)。

## 【0059】

結果を表1に報告する。

## 【0060】

表1

	組成物	セル調整	分極
実施例 1	PA-1+F-1+IM-1	++	+
比較例 1	PA-1+F-1	+	--
比較例 2	PA-2+F-1+IM-1	-	-
比較例 3	PSU+F-1	++	++

## 【0061】

表1中：( - - )は、標準A quivion(登録商標)PFS A膜と比べて非常に乏しい性能を示し；( - )は乏しい性能を示し；( + )は許容できる性能を示し；( + + )は、標準と同じ性能を示す。

## 【0062】

実施例1の組成物についてのおよび比較例1～3のそれらの選択された機械的特性を表2に報告する。引張特性(破断点伸び)をASTM D638に従って測定し；曲げ弾性率をASTM D790に従って、Izodノッチ付耐衝撃性をASTM D256に従って測定した。

## 【0063】

10

表2

	組成物	伸び (%)	衝撃ノッチ付 Izod (J/m)	曲げ弾性率 (MPa)
実施例1	PA-1+F-1+IM-1	2.4	74	11300
比較例1	PA-1+F-1	1.7	50	11800
比較例2	PA-2+F-1+IM-1	2.6	-	10600
比較例3	PSU+F-1	3.0	53	5520

## 【0064】

20

このように本発明による組成物(実施例1)は、表1の結果によって強調されるように一側面で曲げ弾性率および耐衝撃性と燃料電池環境の汚染の量の減少との間のより良好なバランスを提供する。

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/EP2013/067877												
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. H01M8/02 ADD. H01M8/24 H01M8/10														
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC														
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> 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														
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category*</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center; padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">US 2002/028368 A1 (SAITO KAZUO [JP] ET AL) 7 March 2002 (2002-03-07) paragraph [0026] - paragraph [0029]; figure 2 paragraph [0047] - paragraph [0050] paragraph [0102]; table 5 -----</td> <td style="text-align: center; padding: 2px;">1,2,8-12</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; padding: 2px;">X</td> <td style="padding: 2px;">US 2008/311457 A1 (ANDREAS-SCHOTT BENNO [US] ET AL) 18 December 2008 (2008-12-18) paragraph [0032] -----</td> <td style="text-align: center; padding: 2px;">1,2, 10-12</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center; padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">GB 1 120 575 A (DYNAMIT NOBEL AG) 17 July 1968 (1968-07-17) page 2, line 64 - page 3, line 10 -----</td> <td style="text-align: center; padding: 2px;">1-12</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	US 2002/028368 A1 (SAITO KAZUO [JP] ET AL) 7 March 2002 (2002-03-07) paragraph [0026] - paragraph [0029]; figure 2 paragraph [0047] - paragraph [0050] paragraph [0102]; table 5 -----	1,2,8-12	X	US 2008/311457 A1 (ANDREAS-SCHOTT BENNO [US] ET AL) 18 December 2008 (2008-12-18) paragraph [0032] -----	1,2, 10-12	A	GB 1 120 575 A (DYNAMIT NOBEL AG) 17 July 1968 (1968-07-17) page 2, line 64 - page 3, line 10 -----	1-12
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
X	US 2002/028368 A1 (SAITO KAZUO [JP] ET AL) 7 March 2002 (2002-03-07) paragraph [0026] - paragraph [0029]; figure 2 paragraph [0047] - paragraph [0050] paragraph [0102]; table 5 -----	1,2,8-12												
X	US 2008/311457 A1 (ANDREAS-SCHOTT BENNO [US] ET AL) 18 December 2008 (2008-12-18) paragraph [0032] -----	1,2, 10-12												
A	GB 1 120 575 A (DYNAMIT NOBEL AG) 17 July 1968 (1968-07-17) page 2, line 64 - page 3, line 10 -----	1-12												
<input 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 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  6 December 2013		Date of mailing of the international search report  17/12/2013												
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Barenbrug-van Druten												

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No  
PCT/EP2013/067877

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)			Publication date
US 2002028368	A1 07-03-2002	JP 2002025340 A			25-01-2002
		US 2002028368	A1		07-03-2002
US 2008311457	A1 18-12-2008	DE 102008027751 A1			24-12-2008
		US 2008311457	A1		18-12-2008
GB 1120575	A 17-07-1968	BE 683615 A			04-01-1967
		CH 475846 A			31-07-1969
		GB 1120575 A			17-07-1968
		LU 51467 A			06-09-1966
		NL 6609324 A			06-01-1967

## フロントページの続き

(51) Int.CI.	F I	テーマコード(参考)
C 0 8 L 23/08 (2006.01)	C 0 8 L 23/08	
C 0 8 L 23/16 (2006.01)	C 0 8 L 23/16	

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, 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, MC, 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, 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, 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, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ

(特許庁注：以下のものは登録商標)

1. PYREX

(72)発明者 バレーノ, ブライアン

アメリカ合衆国 ジョージア 30009, アルファレッタ, ウッドランド トレイル 90  
55

(72)発明者 ノーフォーク, リンダ エム.

アメリカ合衆国 ジョージア 30041, カミング, ティンバーレイク トレイル 845

F ターム(参考) 4J002 AC08X BB05X BB15X BP01X CL03W CL063 DA016 DA096 DE236 DJ006

DJ046 DJ056 DK006 DL006 FA043 FA046 FD013 FD016 GQ00

5H026 AA02 CX08 EE11 EE18 HH05