

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2007-196689

(P2007-196689A)

(43) 公開日 平成19年8月9日(2007.8.9)

(51) Int. Cl.

F I

テーマコード (参考)

B 2 9 C 45/18 (2006.01)

B 2 9 C 45/18

4 F 2 0 6

B 2 9 K 33/00 (2006.01)

B 2 9 K 33:00

B 2 9 K 105/06 (2006.01)

B 2 9 K 105:06

審査請求 有 請求項の数 1 O L (全 45 頁)

(21) 出願番号 特願2007-75623 (P2007-75623)
 (22) 出願日 平成19年3月22日 (2007.3.22)
 (62) 分割の表示 特願2002-510249 (P2002-510249)
 の分割
 原出願日 平成13年6月14日 (2001.6.14)
 (31) 優先権主張番号 60/211,582
 (32) 優先日 平成12年6月15日 (2000.6.15)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)
 (31) 優先権主張番号 09/849,629
 (32) 優先日 平成13年5月4日 (2001.5.4)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)
 (31) 優先権主張番号 09/879,327
 (32) 優先日 平成13年6月12日 (2001.6.12)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 501369813
 クアンタム コンポサイツ, インコーポ
 レイテッド
 アメリカ合衆国 ミシガン 48706,
 ベイ シティ, サウス バリー セン
 ター ドライブ 1310
 (74) 代理人 100078282
 弁理士 山本 秀策
 (74) 代理人 100062409
 弁理士 安村 高明
 (74) 代理人 100113413
 弁理士 森下 夏樹

最終頁に続く

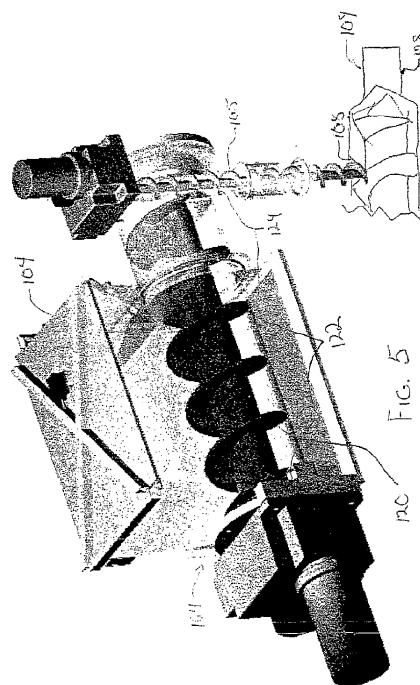
(54) 【発明の名称】 高導電性樹脂組成物を射出成形する方法およびこの方法のための装置

(57) 【要約】

【課題】 高導電性組成物およびその成形方法を提供すること。

【解決手段】 高充填導電性樹脂組成物を射出成形する技術および装置が開示されている。これらの組成物は、1種またはそれ以上の不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂；末端エチレン基を有する共重合体；および少なくとも約50重量%の無機微粒子導電性充填剤、開始剤およびレオロジー変性剤（これは、成形中の該樹脂と該導電性充填剤との相分離を防止する）を含有する。本発明の方法により、これらの組成物は、相当な成形後の機械切削なしで、非常に複雑で薄い導電性および熱伝導性試験片を成形できるようになる。この方法は、そのポジショニングで垂直部品を有するオーガーを備えたホッパーを有する射出成形装置を使用して、射出成形機（これは、フェノール製スクリューを有し、このスクリューは、一定内径および一定フライト深さを有する）の供給口に給送する工程を包含する。

【選択図】 図5



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

射出成形装置で組成物から製品を成形する方法であって、該装置は、1ショットの組成物を金型に給送する供給口を有し、該組成物は、以下：

a) 不飽和プレポリマー樹脂であって、該不飽和プレポリマー樹脂は、1種またはそれ以上の不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂を含有する、不飽和プレポリマー樹脂；

b) 該樹脂と共重合可能な不飽和物質であって、該不飽和物質は、末端エチレン基を含有する、不飽和物質；

c) 得られる生成物に少なくとも 40 S/cm のバルク導電率を与えるのに十分な量の無機微粒子導電性充填剤；および

d) 該共重合を開始するための開始剤；

を含有し、そして

ここで、該組成物は、オーガーにより、該供給口に直接ポートされ、該オーガーは、該射出成形装置の平面に対して、そのポジショニングに垂直な部品を有し、該ショットは、該供給口内のフェノール製スクリーにより、該金型に給送される、方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

(相互参照)

本願は、2001年5月4日に出願された米国特許出願第09/849,629号の部分継続出願であり、この出願は、2000年3月16日に提出された米国特許出願第09/526,641号の部分継続出願であり、この出願は、1999年3月18日に提出された米国暫定特許出願第60/125,138号に基づいており、また、2000年6月15日に提出された米国暫定特許出願第60/211,582号から優先権を主張している。

【0002】

(発明の分野)

本発明の分野は、高導電性組成物の成形方法であり、これらの組成物は、複雑に成形した導電性製品（例えば、燃料電池プレート）に特に有用である。これらの方法には、新規な射出成形方法および射出/圧縮成形方法が挙げられる。

【0003】

これらの成形組成物は、高解像度の複雑な構成（射出成形技術に特に適切な構成を含めて）に形成できる。例えば、それらは、非常に狭く比較的滑らかな流路の複雑なパターンのネットワークを有する薄板様の試験片（例えば、6~20万分の1インチ）に形成できる。さらに、本発明によれば、これらの入り組んだプレートは、実質的に成形だけで製造でき、このことは、複雑で高価な機械切削工程を行う必要性が事実上なくなることを意味する。このような試験片は、電気化学電池双極プレートとして使用される。これらのプレートは、少なくとも40、50、60、70、80、90または96 S/cm ものバルク導電率を有する。それらはまた、望ましい表面特性、熱、温度、薬品および縮みに対する耐性、強度および価格を有する。

【背景技術】

【0004】

(発明の背景)

導電性重合体は、伝統的な導電性材料の代替物を提供するのに適用され、これには、しばしば、複雑な部品に製造するために、高い人件費が関与している。特に、相当量の製品が要求されている場合、高分子を成形する費用は、他の材料についてそれに匹敵する機械切削を施す費用よりもずっと費用効率が高いことが判明している。しかしながら、従来、高レベルの導電性および望ましい成形特性の両方を達成することは、困難であることが判明している。一般に、十分なレベルの導電性を達成するには、高分子マトリックス中に

において、高レベルの重量%の適切な充填剤が必要である。しかしながら、これらの高い装填レベルにより、得られる組成物の強度、耐久性および成形性に問題が起こる。

【0005】

特に、先に述べた強度、耐久性および成形の問題を解決するのが有益な1領域には、燃料電池への応用がある。電気化学燃料電池は、汚染が少なく環境にやさしい潜在的に無限のエネルギー源として、魅力が大きい。これらの燃料電池は、それに加えて、小規模エネルギー消費（例えば、家庭用）または工業用や商業用発電にも適切な規模で作成できる。それらは、出力の小さい電気器具（例えば、コンピューターまたはキャンプ用品）、または自動車および他の輸送形態のための携帯用途がある。これらの異なる用途では、サイズが異なるものの、1キロワット未満から数千キロワットまでで変わる発電用には、基本的な構成は、同じ状態のままである。

10

【0006】

基本的には、燃料電池は、ガルバーニ電池であり、ここで、燃料の化学エネルギーは、電気化学的プロセスによって、直接的に、電気エネルギーに変換される。この燃料電池の基本的な部品は、アノードおよびカソードを有する電極、電極触媒、および電解質である。液状電解質および固形電解質の両方を完成する研究がなされているが、本発明は、両方の種類の燃料電池で用途が見出され得る。

【0007】

固形電解質には、高分子膜が挙げられ、これらは、典型的には水素が燃料の陽子交換膜として作用する。これらの膜は、通常、過フッ化スルホン酸高分子膜を含み、これは、2個の触媒作用電極間に挟まれており、これらは、電極触媒として、炭素上に支持された白金を利用し得る。水素燃料電極は、反応チャンバを形成し、これは、そのアノードにおいて、水素を消費する。そのカソードでは、酸素は、その電気触媒部位にて、陽子および電子と反応して、その反応生成物として、水を生じる。この電極の領域では、3相の界面が形成され、この電極、電解質および気相の間で、微妙な均衡が維持されなければならない。

20

【0008】

他の電解質の使用が関与したシステムもまた、研究されている。これらには、アルカリ燃料電池、リン酸燃料電池、溶融カーボネート燃料電池、および固形酸化物燃料電池が挙げられる。しかしながら、それらの原理は、これらの製品を完成する際の一部の問題と同様に、類似している。

30

【0009】

燃料電池反応器は、単一セルまたは複数セルの積み重ねを含み得る。いずれにしても、この電池は、少なくとも2つの非常に導電性のフローフィールドプレートを含み、これらは、複数の機能を果たす。これらのプレートは、この燃料電池の電圧ターミナルと電極との間で電氣的な連続性を与える集電器として、機能し得る。それらはまた、（例えば、膜／電極アセンブリに対する）機械的な支持を与える。それに加えて、これらのプレートは、これらの電極に反応物を輸送するように作用し、先に述べた微妙な相均衡を確立するのに必須である。

【0010】

典型的には、これらの燃料電池プレートは、薄く比較的平坦なプレート部材であり、これは、そのプレートのフローフィールド領域を形成する相互連絡チャンネルの非常に複雑なネットワークを含む。これらのチャンネルの構成は、反応物の正しい流れを維持するために、そしてチャネリングまたは淀んだ領域の形成（これは、乏しい燃料電池性能を生じる）を避けるために、非常によく開発されている。これらの反応物の流れを正しく管理すること、および正確に適切な残量の反応物と共に電気触媒を連続的に供給することが重要である。それゆえ、これらのプレートが、非常に精巧に工作した流れ迷路内で、見通しの利く経路を規定し維持するのが必須である。さらに、十分な寿命を保証するために、これらのプレートは、種々の条件下での表面腐食に耐えなければならない。例えば、燃料電池は、屋外に配置され得、天候の影響を受け得る。それゆえ、これらの電池は、40 ° F

40

50

～200 °Fの範囲の温度での応力亀裂および腐食に耐えなければならない。さらに、この電池内の状態が腐食性であるので、これらの電池はまた、これらの温度での種々の腐食性物質からの化学的浸食に耐性でなければならない。例えば、これらのプレートは、その燃料電池の種類に依存して、脱イオン水、メタノール、ギ酸、ホルムアルデヒド、ヘビーナフサ、フッ化水素酸、テトラフルオロエチレンおよびヘキサフルオロプロピレンの影響を受け得る。さらに、この燃料電池内の状態により、高い温度（すなわち、150～200 °F）だけでなく高い圧力（すなわち、常圧～30 p. s. i.）が生じ得る。腐食性分解は、この燃料電池内のフローパターンを変えることにより、九分九厘、システムの故障を引き起こすので、避ける必要がある。

【0011】

燃料電池プレートに対する種々の要求を解決する過去の試みには、金属プレートおよび機械切削したグラファイトプレートの使用が挙げられた。金属プレートを使用すると、電池1個あたりの重量が重くなり、機械切削の費用が高くなり、腐食の問題を起こすおそれがある。機械切削したグラファイトプレートは、この重量および腐食の問題を解決するが、特に、非常に薄いプレートを作製するとき、機械切削の費用が高くなり、脆い製品を得る。グラファイト／ポリ（フッ化ビニリデン）プレートが一部で使用されているが、これらは、高価で脆性であり、また、成形時間が長いという特徴がある。

【0012】

特許文献1の内容は、電気化学電池の加工および組成のその教示について、本明細書中で参考として援用されている。米国特許第4,301,222号の内容は、電気化学電池用のグラファイトベースの分離器に関するその教示について、本明細書中で参考として援用されている。

【特許文献1】米国特許第4,197,178号明細書

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0013】

（発明の要旨）

従来、公知の通常のバルク成形化合物は、多量の導電性充填剤（例えば、グラファイト）を添加することにより、導電性に変性されていた。成形中、この充填剤から液状樹脂相が分離し、その成形物から滲出することが認められていた。さらに、この現象は、薄い成形試験片において、割れを引き起こす傾向があることが認められていた。さらに、この試験片中の異なる位置でのバルク導電率の測定値は、一貫していない。本発明によれば、前述の問題を解決する組成物が処方できることが発見された。特に、これらの処方は、導電性充填剤を多く装填した樹脂マトリックス、種々の追加添加剤（例えば、開始剤、離型剤およびカーボンブラック）、および必要に応じて、1種またはそれ以上のレオロジー剤（これらは、第II族酸化物、アルカリ土類金属酸化物、カルボジアミド、ポリイソシアネート、ポリエチレンおよびポリテトラエチレンフルオエチレン（fluorethylene））の使用を含む。これらの成形剤が機能する機構の1つの可能な説明には、それらが、そのプレポリマー（例えば、ビニルエステル樹脂または不飽和ポリエステル樹脂）の見かけ分子量を確立するように作用することにある。あるいは、これらの試薬は、例えば、成形中の剪断を減らすことにより、流れを促進し得る。これらのレオロジー剤を使用すると、相分離がなくなるだけでなく、割れおよび一貫しない導電率の測定値がなくなる。これらの問題は、高濃度の導電性充填剤と共に成形される試験片の複雑な構造の結果であると予測されている。

【0014】

成形および割れの問題を解決することに加えて、熱膨張率、導電率および熱伝導率、収縮耐性および機械的特性のような他の特性は、本発明を使用する結果として、さらに均一になり得るか、および／またはそうでなければ、改良され得ると予測されている。前述の改良に加えて、本発明の樹脂組成物は、高いガラス転移温度を示し、成形部分の引張り強さが改善されることが分かった。開始剤の種類および量と禁止剤の種類および量とを制御

10

20

30

40

50

することにより、このプレポリマーのゲル化時間および硬化時間の両方を最適化することによって、さらに改良することも可能である。さらに、これらの組成物は、低収縮添加剤を含有でき、それらは、本発明に従って製造した成形プレートの表面特性を完全にするように作用する組成物に添加される。これらの添加剤は、一般に、この添加剤および樹脂系（すなわち、この樹脂および任意のモノマー）の全重量を基準にして、10～50重量%の範囲で、使用されている。本発明の目的のために、「低収縮添加剤」との用語が使用されているが、これは、「低プロフィール添加剤」とも呼ばれる添加剤を包含し得、その表面の粗さを少なくするのを助ける。樹脂は、硬化中に収縮する傾向にあり、その結果、シンクマーク（sink marks）および顕微鏡的凹凸のような表面欠陥が生じる。他の問題には、内部の空孔および割れだけでなく、焼結ひずみおよび精密な公差に成形することが不可能なことが挙げられる。成形した燃料電池プレートには、これらの欠陥により、得られた製品は、その陽子交換膜と接触できなくなる。本発明の「低プロフィール添加剤」は、収縮を補償することを助け、その表面平滑性を改良する。さらに、その収縮の問題をなくすことにより、これらのプレートをうまく積み重ねることができ、良好な全体的燃料電池が得られる。

10

【0015】

これらの組成物から成形した試験片での前述の改良点により、本発明の追加実施形態として、双極プレートの低価格大量生産が可能となる。これらは、固定動力装置だけでなく、携帯用燃料電池に使用できる。

【0016】

本発明によれば、射出成形を達成するための新しい成形方法で、以下の組成物が使用できる。特に、本発明の方法は、本発明の高装填成形組成物を射出成形装置の供給口に運ぶために、二重オーガーを使用する工程を包含する。あるいは、単一オーガー（例えば、熱硬化性BMC用のAZ100スタッフィングユニットおよび60mmスクリューおよびバレルを備えたKrauss Maffei製射出成形装置で見られるもの）は、そのオーガーが供給口の水平面に約30度と60度の間の角度で配置されている場合、使用することも分かっている。さらに特定すると、この角度は、約45度±5度である。これらの方法は、共に、油圧ラムを使用して成形組成物を供給口にポートする伝統的な方法と対照的である。しかしながら、これらの伝統的な方法および装置は、この組成物が成形工程に出ていくとき、潜在的に破滅的な結果を伴って故障するおそれがある。これらの伝統的な方法と比較して、第一の大きい水平配向スクリューを備えた二重オーガーは、供給口に給送する小さい垂直型オーガーを供給するので、好ましい。さらに、この方法は、第一スクリューバレルにある第一および第二ゾーンにおいて、ある程度のゾーン温度勾配を伴い、これは、約70°F～約125°Fの温度、さらに特定すると、約70°F～約100°Fの温度を有する。第三ゾーンは、この金型に位置している。このゾーンは、約275°F～約325°F（すなわち、300°F）で維持し、これは、本発明に従って、これらの組成物の殆どが硬化を開始する温度である。その成形レベルでは、温度変化を避けるのが好ましい。通常の硬化速度では、その成形時間は、典型的には、約10～600秒間、さらに普通には、30～300秒間または約1または2分間である。この方法は、単一または二重ゲート空洞器具、またはその金型が充填中に僅かに開いておりショットを圧縮するのに閉じられる射出／圧縮方法にも実行できる。

20

30

40

【0017】

上記目的を達成するために、本発明は、例えば、さらに以下を提供する。

（項目1） 射出成形装置で組成物から製品を成形する方法であって、該装置は、1ショットの組成物を金型に給送する供給口を有し、該組成物は、以下：

a) 不飽和プレポリマー樹脂であって、該不飽和プレポリマー樹脂は、1種またはそれ以上の不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂を含有する、不飽和プレポリマー樹脂；

b) 該樹脂と共重合可能な不飽和物質であって、該不飽和物質は、末端エチレン基を含有する、不飽和物質；

50

c) 得られる生成物に少なくとも40 S/cmのバルク導電率を与えるのに十分な量の、無機微粒子導電性充填剤；および

d) 該共重合を開始するための開始剤；
を含有し、そして

ここで、該組成物は、オーガーにより、該供給口に直接ポートされ、該オーガーは、該射出成形装置の平面に対して、そのポジショニングに垂直な部品を有し、該ショットは、該供給口内のフェノール製スクリュウにより、該金型に給送される、方法。

(項目2) 前記導電性充填剤の量が、少なくとも50重量%である、項目1に記載の方法。

(項目3) 前記充填剤が、グラファイト充填剤であり、該導電性充填剤の量が、少なくとも60重量%である、項目2に記載の方法。 10

(項目4) 前記組成物が、さらに、成形中に前記樹脂と前記導電性充填剤との間の相分離を防止するために、有効量のレオロジー変性剤を含有し、該レオロジー変性剤が、第I族酸化物および水酸化物、カルボジアミド、アジリジン、ポリイソシアネート、ポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロポリエーテル、ポリエチレンおよびヒュームドシリカからなる群から選択される1種またはそれ以上の組成物である、項目1に記載の方法。

(項目5) 前記組成物が、複雑なパターンを成形した製品に成形され、該製品が、約0.050~約0.200インチの厚さおよび少なくとも約50 S/cmのバルク導電率を有する、項目4に記載の方法。

(項目6) 前記製品が、電気化学電池フローフィールドプレートである、項目5に記載の方法。 20

(項目7) 前記導電性充填剤が、結晶性グラファイト粒子であり、そして前記不飽和プレポリマー樹脂が、エポキシビニル樹脂、ビスフェノールフマレート樹脂、変性ビスフェノールフマレートポリエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ウレタン変性ビニルエステル樹脂、ビスフェノールエポキシビニルエステル樹脂、エラストマー変性ビニルエステル樹脂、エポキシノボラックビニルエステル樹脂および不飽和イソシアヌレートビニルエステル樹脂からなる群から選択される1種またはそれ以上の樹脂である、項目6に記載の方法。

(項目8) 前記オーガーが、前記射出成形装置の水平面から約30度~約60度の角度である、項目7に記載の方法。 30

(項目9) 前記オーガーが、前記射出成形装置の水平面から約40度~約50度の角度である、項目8に記載の方法。

(項目10) 前記オーガーが、実質的に垂直であり、第二オーガーにより給送され、該第二オーガーが、前記射出成形装置の前記平面に対して実質的に水平である、項目1に記載の方法。

(項目11) 前記フェノール製スクリュウが、一定内径および一定フライト深さに改良した先端部を有する、項目9に記載の方法。

(項目12) 前記オーガーが、いずれのデッドスポットも除くために、前記供給口領域に整合し融合するように改変されている、項目10に記載の方法。

(項目13) 射出成形装置で組成物から製品を成形するための方法であって、該装置は、1ショットの組成物を金型に給送する供給口を有し、該組成物は、以下： 40

a) 不飽和プレポリマー樹脂であって、該不飽和プレポリマー樹脂は、1種またはそれ以上の不飽和ポリエステルおよびビニルエステル樹脂を含有する、不飽和プレポリマー樹脂；

b) 該樹脂と共重合可能な不飽和物質であって、該不飽和物質は、末端エチレン基を含有する、不飽和物質；

c) 該組成物の重量の少なくとも約50重量%の量の、無機微粒子導電性充填剤；および

d) 該共重合を開始するための開始剤；および

e) 成形中に該樹脂と該導電性充填剤との間の層分離を防止するための有効量のレオロ 50

ジー変性剤であって、該レオロジー変性剤は、第ⅠⅠ族酸化物および水酸化物、カルボジ
アミド、アジリジン、ポリイソシアネート、ポリテトラフルオロエチレン、パーフルオロ
ポリエーテル、ポリエチレンおよびヒュームドシリカからなる群から選択される１種また
はそれ以上の組成物である、レオロジー変性剤、
を含有し、そして

ここで、該組成物は、オーガーにより、該供給口に直接ポートされ、該オーガーは、該
射出成形装置の平面に対して、そのポジショニングに垂直な部品を有し、該ショットは、
該供給口内のフェノール製スクリューにより、該金型に給送される、方法。

(項目１４) 前記充填剤が、グラファイト充填剤であり、該導電性充填剤の量が、少な
くとも６０重量％である、項目１３に記載の方法。

(項目１５) 前記組成物が、複雑なパターンを成形した製品に成形され、該製品が、約
０．０５０～約０．２００インチの厚さおよび少なくとも約５０Ｓ／ｃｍのバルク導電率
を有する、項目１４に記載の方法。

(項目１６) 前記製品が、電気化学電池フローフィールドプレートである、項目１５に
記載の方法。

(項目１７) 前記導電性充填剤が、結晶性グラファイト粒子であり、そして前記不飽和
プレポリマー樹脂が、エポキシビニル樹脂、ビスフェノールフマレート樹脂、変性ビスフ
ェノールフマレートポリエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ウレタン変性ビニルエ
ステル樹脂、ビスフェノールエポキシビニルエステル樹脂、エラストマー変性ビニルエ
ステル樹脂、エポキシノボラックビニルエステル樹脂および不飽和イソシアヌレートビニ
ルエステル樹脂からなる群から選択される１種またはそれ以上の樹脂である、項目１６に
記載の方法。

(項目１８) 前記オーガーが、前記射出成形装置の水平面から約３０度～約６０度の角
度である、項目１３に記載の方法。

(項目１９) 前記オーガーが、前記射出成形装置の水平面から約４０度～約５０度の角
度である、項目１８に記載の方法。

(項目２０) 前記オーガーが、実質的に垂直であり、第二オーガーにより給送され、該
第二オーガーが、前記射出成形装置の前記平面に対して実質的に水平である、項目１３に
記載の方法。

(項目２１) 前記フェノール製スクリューが、一定内径および一定フライト深さに改良
した先端部を有する、項目１３に記載の方法。

(項目２２) 前記オーガーが、いずれのデッドスポットも除くように、前記供給口領域
に一致し混合するように改良されている、項目２１に記載の方法。

(項目２３) 少なくとも約５０重量％の無機粒子充填剤を有する組成物から製品を成形
するための射出成形装置であって、以下：

該射出成形装置の水平面に対してそのポジショニングに対して垂直な部品を有するオー
ガーを有するホッパー；および

供給口を有する射出成形機器であって、該供給口が、該組成物をフェノール製スクリ
ュー内に給送し、該フェノール製スクリューが、該組成物を金型空洞内に運び、ここで、該
オーガーが、いずれのデッドスポットも除くように、前記供給口に一致し混合するように
改良されており、該フェノール製スクリューが、一定内径および一定フライト深さを有す
る先端部を有する、射出成形機器、
を備える、射出成形装置。

(項目２４) 項目２３に記載の射出成形装置であって、前記オーガーが、該射出成形装
置の水平面に対して約４０～約５０°の角度である、射出成形装置。

(項目２５) 項目２３に記載の方法であって、前記オーガーが実質的に垂直であり、前
記射出成形装置の平面に対して実質的に水平な第２のオーガーによって給送される、方法
。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１８】

10

20

30

40

50

(発明の詳細な説明)

本発明は、非常に導電性の成形組成物を成形する方法および装置の改良に関する。特に、これらの組成物は、射出成形方法、および射出／圧縮成形方法で使用する。これらの方法は、労働集約的な機械切削をなくすので、また、ショットごとの再現性があるので、費用効率が高い。これらの方法は、さらに、ショットごとの交差分割線厚さを制御する良好な性能を有する。さらに、これらの成形方法によれば、導電性充填剤を非常に集中した薄く複雑な試験片の生産が可能となる。

【0019】

シート成形組成物およびバルク成形組成物は、米国特許第5,998,510号；第5,342,554号；第5,854,317号；第5,744,816号；および第5,268,400号で記述されている；これらの全ての内容は、当該技術分野で公知の成形組成物に対する種々の改良に関するこれらの教示について、本明細書中で参考として援用されている。

【0020】

成形樹脂組成物の1成分は、不飽和ポリエステル樹脂またはビニルエステル樹脂のような架橋プレポリマーである。望ましくは、このプレポリマーは、比較的到低い分子量（例えば、約200～約5000（重量平均））を有する。それらは、参考として援用された上記特許の実施例で、詳細に記述されている。これらのポリエステル樹脂は、不飽和多塩基酸および／またはその無水物とポリオール（例えば、ジヒドロキシまたはトリヒドロキシ化合物）との縮合から誘導した縮合生成物である。望ましくは、これらのポリエステル樹脂は、二酸、または二酸無水物（これらは、一般に、約3個～約12個の炭素原子、またはさらに好ましくは、約4個～約8個の炭素原子を有する）と、ポリオールまたは環状エーテル（これは、約2個～約12個の炭素原子、またはさらに好ましくは、約2個～約6個の炭素原子を有する）とのエステル化反応生成物である。

【0021】

一般に、使用できるビニルエステル樹脂は、エポキシ樹脂および一官能性エチレン性不飽和カルボン酸の反応生成物である。さらに具体的には、これらのビニルエステル樹脂は、エポキシ末端オリゴマー（例えば、エポキシ官能性ビスフェノールA）とアクリル酸またはメタクリル酸（これは、このオリゴマーでアクリル末端基を形成する）との反応生成物である。これらのビニルエステルは、主に、末端不飽和を有するのに対して、これらの不飽和ポリエステルは、主に、内部不飽和を有する。

【0022】

この成形組成物の他の成分は、この樹脂と共重合可能な1種またはそれ以上の不飽和モノマーである。望ましくは、この成分は、室温で、この樹脂成分を溶解できる。それゆえ、1実施形態では、この樹脂は、残りの成分と配合する前に、そのモノマー成分に溶解される。適切なモノマーの例には、スチレン、 α -メチルスチレン、クロロスチレン、ビニルトルエン、ジビニルベンゼン、フタル酸ジアリル、メタクリル酸メチル、およびそれらの混合物があり、好ましいモノマーは、スチレンおよびメタクリル酸メチルである。モノマーと樹脂との重量比は、望ましくは、約40：60～約75：25、好ましくは、約40：60～約65：35である。

【0023】

この成形組成物に対する他の成分は、充填剤である。本発明によれば、主な充填剤は、その最終成形製品に導電性を与えるために、導電性充填剤である。好ましい充填剤は、グラファイト粒子、特に、合成結晶性グラファイト粒子（例えば、現在、Asbury 4012の名称で、Asbury, New JerseyのAsbury Graphiteから供給されているもの）である。このグラファイトは、直径が150ミクロンより大きい粒子を10%未満で有し、また、直径が44ミクロンより小さい粒子を10%未満で有するという特徴がある。他のグラファイト充填剤には、以下が挙げられる：Ashbury A99、Ashbury 3243、Ashbury modified 4012、Ashbury 3285、Ashbury 230U；Timrex R KS 7

10

20

30

40

50

5 および 150、および Timrex R KC 44（これらは、全て、Westlake, Ohio の TIMCAL 製である）；および Calgraph（これは、Valencia, California の SGL Technic Inc. 製である）。この充填剤は、少なくとも 50 重量%の装填量で使用される。他の導電性充填剤（例えば、他の形状のグラファイト（グラファイトピッチベース繊維を含めて）、金属粒子または金属被覆粒子）は、このグラファイト充填剤と併用して、または単独でも、使用され得る。望ましくは、導電性充填剤は、この成形組成物の少なくとも約 50 重量%、約 60 重量%、または約 65 重量%である。さらに望ましくは、この充填剤は、この成形組成物の約 70 または 75 重量%より多く、約 80 重量%までである。あるいは、この量は、少なくとも約 250 p h r、さらに好ましくは、少なくとも約 275 p h r、または 300 p h r とし 10 て、表わすことができる。別の言い方をすると、これらの導電性充填剤は、約 0.060 インチ～約 0.200 インチの厚さを有する成形品のための ASTM Test Standard No. F1529-97 に従って測定したとき、少なくとも約 40 S/cm、約 50 S/cm、約 60 S/cm、約 70 S/cm、約 80 S/cm、約 85 S/cm、約 90 S/cm または約 96 S/cm のバルク導電率を生じる有効量で、存在している。燃料電池プレートの現在の技術では、少なくとも約 55 S/cm、好ましくは、少なくとも約 70 S/cm のバルク導電率が使用されている。

【0024】

開始剤は、この成形組成物の他の成分である。この開始剤は、この樹脂およびモノマーの共重合を開始する。開始剤には、これらの成形条件下にて、正しい濃度で、ラジカルを 20 形成できる遊離ラジカル開始剤が挙げられる。それらには、過酸化物、ヒドロペルオキシド、レドックス系、ジアゾ化合物、過硫酸塩、過安息香酸塩などを挙げることができる。これらの開始剤は、典型的には、約 0.05～約 5 重量%の量、さらに好ましくは、約 0.1～約 2 重量%の量で使用される。あるいは、これらの量は、樹脂 100 重量部あたりの部で表わすことができ、すなわち、約 0.5～約 4.0 p h r、好ましくは、約 0.7～約 3.0 p h r、最も好ましくは、約 0.8～約 2.25 p h r である。あるいは、高い開始剤温度が望ましい成形用途には、高温開始剤（例えば、Dicup、例えば、過酸化ジクミル）が使用できる。0.5～10 p h r、好ましくは、約 1～8 p h r の離型剤（例えば、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛など）を含有させることもまた、本発明の非常に複雑な成形部品を機械切削することなく達成するのに有利であり得る。 30

【0025】

改良した成形組成物の他の任意成分には、レオロジー変性剤があり、これは、例えば、鎖伸長によって、この樹脂プレポリマーの分子量を高めるように作用し得る。適切な変性剤には、第 II 族酸化物および水酸化物（酸化カルシウムまたは酸化マグネシウム）；カルボジアミド；アジリジン；およびポリイソシアネートが挙げられる。前述の変性剤は、カルボキシ部位またはヒドロキシ部位で、その重合体骨格に共に反応させることにより、化学的に作用する。他の適切な変性剤には、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）；パーフルオロポリエーテル（PFPE）、およびポリエチレンが挙げられる。これらの変性剤は、剪断を減らすように作用し得、それゆえ、成形中の組成物の流動を促進する。ヒュームドシリカは、物質の一例であり、これは、機械的に作用して成形粘度を高め得、従 40 って、本発明に適切なレオロジー変性剤であり得る。2 種またはそれ以上のレオロジー変性剤の組合せは、最適な特性を得るのに望まれ得る。この用途では、それらは、（この導電性充填剤の高い装填量、すなわち、50 重量%を超えるか 65 重量%またはそれ以上のグラファイトを考慮して）、この導電性充填剤からの樹脂の相分離を防止するために、その樹脂構造を変性するのに使用される。これらの変性剤は、さらに、一般に、高解像度の導電性高分子燃料電池プレートを完成できるように使用される。

【0026】

望ましくは、これらのレオロジー変性剤は、成形中の相分離を防止するのに有効な量で、使用される。この用途の目的のために、成形は、望ましくは、約 400～約 5000 p s i、好ましくは、約 2000～約 3500 p s i、最も好ましくは、約 2500～約 3 50

000psiの圧力で行われる。第II族酸化物（第II族水酸化物およびこれらの化合物の混合物を含む）の望ましい量は、約0.1重量%～約1重量%または約2重量%、さらに好ましくは、約0.2重量%または約0.3重量%～約0.7重量%または約0.8重量%である。これはまた、約0.5～約4.0phr、好ましくは、約1.0～約3.0phr、最も好ましくは、約1.5～約2.5phrで表わされ得る。特に好ましい化合物には、酸化マグネシウム、水酸化マグネシウムまたは酸化カルシウムが挙げられる。適切な酸化マグネシウム添加剤の例には、Danvers, MAのMorton

Thiokol, Inc. から「Elastomag」の商品名で販売されている99%純度酸化マグネシウムがある。他の例には、Plasticolorsから「pg-9033」の商品名で販売されている酸化マグネシウム分散体、および「pg-91146」の商品名でPlasticolorsから販売されている水酸化マグネシウム分散体が挙げられる。別の適切な水酸化マグネシウムには、Barcroftがあり、これは、粉末化した型である。アジリジン化合物の例には、XAMAの商品名称でEIT, Inc. から供給されている多官能性アジリジン（XAMA-2を含む）（これは、トリメチロールプロパントリス（ β -（N-アジリジニル）プロピオネートとして確認されている）、特に、XAMA-7（これは、ペンタエリスリトールトリス（ β -（アジリジニル）プロピオネート）として確認されている）；PFAZ-322を含むlonacの商品名称のSybron Chemicalsの製品（これは、三官能性アジリジンとして確認されている）；およびCX-100を含むZeneca Resinsの製品（これは、多官能性アジリジンとして確認されている）が挙げられる。アジリジンおよび／またはポリイソシアネート変性剤の望ましい量は、約1重量%～約10重量%または約15重量%、さらに望ましくは、約2重量%または約3重量%～約8重量%または約9重量%である。これはまた、約0.5～約20phr、好ましくは、約1～約17phr、最も好ましくは、約2～約15phrとして、表わされ得る。ポリイソシアネートは、一般に、米国特許第5,268,400号、6欄、59行～7欄、17行で、さらに詳細に記述されている。使用され得る特定のジイソシアネートには、ジフェニルメタンジイソシアネート（例えば、Rubinate R MF-1780の商品名で、West Deptford, New JerseyのICI Americasから販売されているもの）がある。さらに、適切なジイソシアネートには、Lupranate MP102があり、これは、BASF製の無溶媒ウレタン修飾ジフェニルメタンジイソシアネートである。ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）（および／またはパーフルオロポリエーテル（PFPE））の望ましい量は、約0.5重量%～約1重量%または約2重量%、さらに望ましくは、約0.6重量%または約0.7重量%～約1.8重量%または約1.3重量%である。これもまた、約0.5～約20phr、好ましくは、約3～約15phr、最も好ましくは、約5～約12phrとして表わされ得る。適切な微粒子PTFE粉末（これは、ミクロン未満のCoulter Counterによる平均粒径を有する）は、West Chester PennsylvaniaのMarshall

Products Companyから、「Marzon #5」の商品名で販売されている。直鎖状低密度ポリエチレン（例えば、FN 510の商品名で、Houston TexasのEquistarから販売されているもの）を使用することが好ましい。それは、約3～約20phr、さらに好ましくは、約4～約17phr、最も好ましくは、約5～約15phrの量で使用することが好ましい。ヒュームドシリカは、約0.5～約20phr、好ましくは、約1～10phrで、使用され得る。

【0027】

成形組成物に対する他の任意の成分には、ウレタンベースまたはウレタン含有オリゴマーまたは重合体、低収縮添加剤（ポリ酢酸ビニルまたはポリエチレンのような）；繊維強化剤（例えば、綿ガラス微小繊維またはグラファイト微小繊維）；可撓化剤；離型剤；保存中または成形の初期段階での早すぎる重合を阻止する重合禁止剤；粘度調節剤（ヒュームドシリカのような）；および金型潤滑剤（カルシウム、亜鉛またはマグネシウムのステアリン酸塩のような）が挙げられる。カーボンブラックは、成形品の表面導電率に影響を

与えその外観を変えるために、添加され得る。適切なカーボンブラックには、導電性で低残留物のカーボンブラックが挙げられ、これは、 270 の窒素表面積 m^2/g 、 145 のSTSA表面積 m^2/g 、 0 ppm の 35 メッシュ篩残留物および 20 ppm の 325 メッシュ篩残留物を有し、Jamesburg, NJのColumbia Chemicalsから、Conductex 975の商品名で販売されている。また、適切な導電性カーボンブラックは、Ketjenblack EC-300JおよびEC-600JDの商品名で、Chicago, IllinoisのAkzo Nobel Chemicalsから供給されている。Boston MAのCabot Corporationもまた、導電性カーボンブラックを供給している。可能であるなら、どんな場合でも、その商品名称から、十分な他の所定情報を引き出すことができる。ポリエチレンおよびヒュームドシリカは、前述の機能に加えて、このレオロジー変性剤として機能し得る。

10

【0028】

本発明のさらなる実施形態として、得られる製品の表面特性および寸法安定性を改良するために、有利には、低収縮添加剤が添加され得る。先に述べた「低収縮添加剤」もまた、本発明の局面内に包含される。これらの添加剤には、一般に、熱可塑性物質またはエラストマー物質（例えば、エチレン、スチレン、ビニルトルエン、メタクリル酸アルキル、ポリエチレンエーテル、ポリフェニレンオキシドおよびアクリル酸アルキルのホモポリマー）が挙げられる。さらなる例には、前述のものを使用した共重合体、さらに、塩化ビニル、酢酸ビニル、アクリロニトリルおよびブタジエンが挙げられる。特に、これらの共重合体には、有利には、塩化ビニルおよび酢酸ビニルの共重合体；スチレンおよびアクリロニトリルの共重合体；メタクリル酸メチルおよびアクリル酸アルキルエステルの共重合体；メタクリル酸メチルおよびスチレンの共重合体；メタクリル酸メチルおよびアクリルアミドの共重合体；ならびにSBSブロック共重合体が挙げられる。これらの添加剤は、一般に、この添加剤および樹脂系（すなわち、この樹脂および任意のモノマー）の全重量を基準にして、 $10\sim50$ 重量%の範囲で使用される。さらに好ましくは、この範囲は、 $20\sim45$ 重量%であり、特に好ましい範囲は、約 $30\sim40$ 重量%である。これらの添加剤は、通常、その樹脂をブレンドしつつ、添加される。必要に応じて、その硬化系は、この添加剤の存在を補償するように、調節され得る。

20

【0029】

これらの成形組成物は、種々の混合条件（これには、連続またはバッチのいずれか、種々の公知混合装置の使用が挙げられる）を使用して、処方および混合され得る。特定の例は、実施例の節で述べる。これらの組成物は、有利には、成形前に、適切な時間にわたって保存され得る。これらの組成物は、圧縮成形および射出成形を含む種々の方法により、成形され得る。これらの組成物は、成形の種類に応じた典型的な条件（これには、約 $400\sim5000\text{ psi}$ 、好ましくは、約 $2000\sim3500\text{ psi}$ 、最も好ましくは、約 $2500\sim3000\text{ psi}$ の圧力、および約 $225\sim400^\circ\text{F}$ の温度が挙げられる）下にて、成形され得る。滞留時間は、約 50 秒間～約 4 分間である。これらの組成物は、薄いかまたは入り組んだ導電品（例えば、約 $0.020\sim0.200$ インチ、さらに好ましくは、約 $0.040\sim0.150$ インチの厚さを有するもの）を含む複雑な形状を成形するのに有用である。これらの組成物は、上記所定厚さで、少なくとも 40 、 50 、 60 、 70 、 80 、 85 、 90 または 96 S/cm のバルク導電率を有する物品に有用である。この組成物から得た物品は、望ましくは、ASTM試験No. D638に従った測定した場合の約 $2000\sim6000\text{ psi}$ の引張り強度、およびASTM試験No. D790で試験した場合の約 $3000\sim10,000\text{ psi}$ の曲げ率を有する。

30

40

【0030】

本発明の組成物から製造した成形品は、複雑な形状、導電性だけでなく強度および腐食耐性が要求される種々の用途に、有用である。1つの特に有利な製品は、圧縮成形で製造され得、燃料電池で使用する双極プレートである。このようなプレートの一例は、図1で示す。このプレートの図は、本発明の導電性化合物の成形性能を図示することが意図される。それは、必ずしも、最適または有効なフィールドフロー設計を提供する目的ではない

50

。それは、いずれの様式でも、本発明を限定しない。プレート10は、流体流れ面を含み、これは、1個またはそれ以上の略平行およびまたは蛇行流れチャンネル12を備えている。これらの流れチャンネルは、ポート14および16を通して流体を受容し伝達するが、これらのポートは、対応する入口および出口流体マニホールド18および19と流体連絡している。このプレートは、1〜20インチで長さおよび幅が変わる寸法を有しており、0.02〜0.3インチの厚さを有し、約0.005〜0.080インチの範囲の流れチャンネルの断面深さを備えている。隣接流れチャンネル部分を分離するランドの断面幅は、0.01〜0.1インチの範囲である。このプレートは、多数の周辺貫通穴を含み得、これらは、燃料輸送用のマニホールドとして作用する。本発明の組成物を使用して製造したプレートは、実質的に成形操作だけで製造され得る。その複雑なパターンは、プレート製造後の高価な機械操作（例えば、穿孔、拡孔など）を必要とすることなく、確立され得る。

10

【0031】

図2は、燃料電池の未組立部品を図示している。この燃料電池は、ベースユニット12（これは、改質装置14を収容する陰刻手段を含む）および燃料電池スタック16（これは、複数の双極プレート20から構成され、これらの双極プレートは、スタックキャップ22とスタックベース24との間に挟まれている）を有する。この燃料電池は、さらに、熱交換器26を含む。囲壁30は、このユニットのための漏れ耐性ハウジングを提供する。

20

【実施例】

【0032】

（実施例）

以下の実施例は、以下で述べる成分を使用する。

【0033】

樹脂Aは、Columbus OhioのAshland Chemical

Co. から入手可能なHetron 922である。それは、低粘度エポキシビニルエステル樹脂である。それは、約55重量%の固形分および約45重量%の反応性モノマーである。

【0034】

樹脂Bは、Research Triangle Park, NCのReichhold Chemicals, Inc. 製のAtlac 382ESである。それは、ビスフェノールフマレート樹脂として特徴付けられる。それを、スチレンで、約55重量%の固形分まで希釈した。

30

【0035】

樹脂Cは、スチレンで55重量%の固形分まで希釈したDion 6694である。それは、Reichhold Chemicals, Inc. から入手可能である。それは、修飾ビスフェノールフマレートポリエステルとして特徴付けられる。

【0036】

樹脂Dは、Kansas City, MOのCook Composites

and Polymers製の42-2641である。それを、スチレンで、55重量%の固形分まで希釈した。それは、不飽和ポリエステル樹脂として特徴付けられる。

40

【0037】

樹脂Eは、Reichhold Chemicals, Inc. 製のATLAC 3581-61である。それは、19重量%のビニルエステル樹脂、27重量%のポリエステルおよび4重量%のウレタン重合体の、50重量%のスチレンとの組み合わせとして特徴付けられる。それゆえ、それを、スチレンで、50重量%の固形分まで希釈した。

【0038】

樹脂Fは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の580-05である。それは、ウレタン修飾ビニルエステル樹脂として特徴付けられる。それを、スチレンで、54重量%の固形分まで希釈した。

50

【0039】

樹脂Gは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の9100である。それは、ビスフェノールーエポキシビニルエステルとして特徴付けられる。それを、スチレンで、54～58重量%の固形分まで希釈した。

【0040】

樹脂Hは、Dow Chemicals, Inc. 製のDow Derakane R8084である。それは、エラストマー修飾ビニルエステル樹脂として特徴付けられる。それを、スチレンで、50～60重量%の固形分まで希釈した。

【0041】

樹脂Iは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の9480-00である。それは、エポキシノボラックビニルエステルとして特徴付けられる。それを、スチレンで、53.5重量%の固形分まで希釈した。 10

【0042】

樹脂Jは、Reichhold Chemicals, Inc. 製のAtlac 31-632である。それは、不飽和イソシアヌレートビニルエステル樹脂である。

【0043】

樹脂Kは、Dow Chemicals, Inc. 製のDow Derakane 797である。それは、ワンパック樹脂(one pack resin)として特徴付けられ、これは、7～13重量%のジビニルベンゼン、5～15重量%のスチレンーブタジエンゴム共重合体、2～6重量%のスチレン単独重合体、および0.5～1.5重量%のスチレンーエチレンオキシドブロック共重合体(低プロフィール添加剤として)を含有するエポキシビニルエステル樹脂である。それを、スチレンで、60～65重量%の固形分まで希釈した。 20

【0044】

樹脂Lは、Dow Chemicals, Inc. 製のDow Derakane 790である。それは、ワンパック樹脂として特徴付けられ、これは、5～15重量%のスチレンーブタジエンゴム共重合体、2～6重量%のスチレン単独重合体、および0.5～1.5重量%のスチレンーエチレンオキシドブロック共重合体(低プロフィール添加剤として)を含有するエポキシビニルエステル樹脂である。それを、スチレンで、50～60重量%の固形分まで希釈した。 30

【0045】

樹脂Mは、Reichhold Chemicals, Inc. 製の31633-00である。それは、4重量%のポリエーテルポリオールを有するイソシアヌレートビニルエステル樹脂として特徴付けられる。それを、スチレンで、60重量%の固形分まで希釈した。

【0046】

樹脂Nは、Dow Chemicals, Inc. 製のDow Derakane 780である。それはまた、ビニルエステル樹脂として特徴付けられる。それを、スチレンで、60～70重量%の固形分まで希釈した。

【0047】

モノマーAは、スチレンである。 40

【0048】

モノマーBは、Dow Chemical Company製のDivinylbenzene HPであり、これは、80重量%のジビニルベンゼン、18重量%のエチルビニルベンゼン、0.12重量%未満のp-tertブチルカテコール、0.5重量%未満のジエチルベンゼンおよび1重量%未満のナフタレンとして特徴付けられる。

【0049】

レオロジー変性剤Aは、Danvers, MAのMorton Thiokol, Inc. 製のElastomagである。それは、99%純度の酸素マグネシウムとして特徴付けられる。 50

【0050】

レオロジー変性剤Bは、ポリイソシアネートである。これらの実験で使用した物質は、Cook Composites and Polymers製の40-7263である。それは、17.7~20.9のNCO含量、110~170の粘度、87°Fの引火点および40°Fの結晶点により、特徴付けられる。

【0051】

レオロジー変性剤Cは、Reichhold, Inc.製のRCI RD THL55（これはまた、RD-1070としても知られている）である。それは、具体的には、ポリウレタン樹脂である。

【0052】

レオロジー変性剤Dは、ICIから入手可能なRubinate 1780である。それは、重合体メチレンジフェニルジイソシアネートとして特徴付けられる。

【0053】

レオロジー変性剤Eは、West Chester, PAのMarshall Products Company製のMarzon #5である。それは、細かく分割した粉末ポリテトラフルオロエチレンとして特徴付けられる。

【0054】

レオロジー変性剤Fは、FN-510であり、これは、Houston, TexasのEquistar Chemicals, L. P.製の直鎖状低密度ポリエチレンである。

【0055】

開始剤Aは、Dupont, I & B Industrial and Biochemical Dept (Wilmington DE)から入手可能なVazo (2, 2-アゾビスイソブチロニトリル)である。

【0056】

開始剤Bは、Durr Marketing (Pittsburgh, PA)から入手可能なtert-ブチルペルオキシイソプロピルカーボネート (Triginox B PIC)である。

【0057】

開始剤Cは、Durr Marketingから入手可能な過安息香酸tert-ブチル (TBPB)である。

【0058】

開始剤Dは、Durr Marketingから入手可能な1, 3-ジ-tert-ブチルペルオキシ-3, 5, 5-トリメチルシクロヘキサン触媒 (Trig 29B75)である。

【0059】

離型剤Aは、ステアリン酸カルシウムである。

【0060】

離型剤Bは、Azusa, CaliforniaのNorac Company, IncorporatedによりCOAD 27として販売されているステアリン酸亜鉛である。

【0061】

グラファイトAは、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手可能なグラファイト4012である。それは、直径が150ミクロンより大きい粒子を10%未満有し、そして直径が44ミクロンより小さい粒子を10%未満有することにより特徴付けられる。

【0062】

グラファイトBは、SGL Ash02であり、これは、SGL Corporationから販売されている天然グラファイト箔製品として特徴付けられる。

【0063】

10

20

30

40

50

グラファイトCは、XC-72. SGLV Fineであり、これは、SGL Corporationから販売されている天然グラファイト箔製品として特徴付けられる。

【0064】

グラファイトDは、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手可能である。それは、上記4012製品の改良型である。

【0065】

グラファイトEは、導電性箔グラファイトであり、これは、3243の商品名称で、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手可能である。それは、直径が75ミクロンより大きい粒子を18%未満有し、そして直径が44ミクロンより小さい粒子を65%未満有することにより、特徴付けられる。 10

【0066】

グラファイトFは、導電性箔グラファイトであり、これは、230Uの商品名称で、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手可能である。それは、直径が44ミクロンより小さい粒子を100%有することにより、特徴付けられる。

【0067】

グラファイトGは、合成グラファイトであり、これは、A99の商品名称で、Asbury, NJのAsbury Graphiteから入手可能である。それは、直径が44ミクロンより大きい粒子を3%未満有し、そして直径が44ミクロンより小さい粒子を99%未満有することにより、特徴付けられる。 20

【0068】

グラファイトHは、合成グラファイトであり、これは、KS75の商品名称で、Timrex America, Inc. から入手可能である。それは、直径が96ミクロンより大きい粒子を95%未満有し、そして直径が75ミクロンより小さい粒子を95%未満有することにより、特徴付けられる。

【0069】

グラファイトIは、合成グラファイトであり、これは、KS150の商品名称で、Timrex America, Inc. から入手可能である。それは、直径が180ミクロンより小さい粒子を少なくとも95%有することにより特徴付けられる。

【0070】

グラファイトJは、合成グラファイトであり、これは、KC44の商品名称で、Timrex America, Inc. から入手可能である。それは、直径が48ミクロンより小さい粒子を少なくとも90%有することにより、特徴付けられる。 30

【0071】

カーボンブラックBは、導電性で低残留物のカーボンブラックとして特徴付けられ、これは、270の窒素表面積 m^2/g 、145のSTSA表面積 m^2/g 、0ppmの35メッシュ篩残留物および20ppmの325メッシュ篩残留物を有し、Jamesburg, NJのColumbia Chemicalsから、Conductex 975の商品名で販売されている。

【0072】

カーボンブラックCは、導電性カーボンブラックであり、これは、Black Pearlsの商品面で、Boston, MAのCabot Corporationから供給されているが、一方、グラファイトDは、同社から、XC-72の名称で供給されている。 40

【0073】

カーボンブラックEは、導電性カーボンブラックであり、これは、Ketjenblack EC-300JおよびEC-600JDの商品名で、Chicago, IllinoisのAkzo Nobel Chemicalsから供給されている。EC-300Jは、740~840 mg/g のヨウ素吸収、310~345 $\text{cm}^3/100\text{g}$ の細孔容量および125~145 kg/m^3 の見かけバルク密度を有する。EC-600JDは、 50

1000～1150mg/gのヨウ素吸収、480～510cm³/100gの細孔容量および100～120kg/m³の見かけバルク密度を有する。

【0074】

これらのガラス繊維は、Owens-Corning Fiberglass製であり、強化充填媒体として使用される特定の長さハンマーミルした(hammermilled)連続ガラスフィラメントとして、特徴付けられる。

【0075】

この禁止剤は、2,6-ジ-tertブチル-p-クレゾール(ビニルトルエン中で25%)であった。

【0076】

低プロフィール添加剤Aは、FN-510であり、これは、Houston, TexasのEquistar Chemicals, L. P.製の直鎖状低密度ポリエチレンである。

【0077】

低プロフィール添加剤Bは、Sarasota, FloridaのEsprit Chemical製のSGP-70Cである。それは、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体として特徴付けられ、これは、0.4重量%のスチレンモノマーおよび0.1重量%のジビニルベンゼンを有する。

【0078】

低プロフィール添加剤Cは、North Kingsville, OhioのPremix, Inc.製のR-134である。それは、スチレンおよび熱可塑性物質の溶液として特徴付けられ、これは、70～80重量%の樹脂およびスチレンモノマーと20～30重量%のスチレン-ブタジエン-スチレンおよびスチレン-エチレン-プロピレン共重合体を有する。

【0079】

低プロフィール添加剤Dは、Owens-Corning Fiberglass製のResin RP-700である。それは、30～35重量%の樹脂を有するポリメタクリル酸メチルおよびスチレンのスチレン溶液として、特徴付けられる。

【0080】

低プロフィール添加剤Eは、Union Carbide製のNeulonポリエステル変性剤T-plusである、それは、ポリ酢酸ビニル/エステルエポキシドとして特徴付けられ、これは、4重量%未満のアセテート、5重量%より多いエステルエポキシド、20重量%より多いポリ酢酸ビニル共重合体、および60重量%未満のスチレンを有する。

【0081】

低プロフィール添加剤Fは、Houston, TexasのEquistar Chemicals, L. P.製のMicrothene Fである。それは、20ミクロンの平均粒径を有するマイクロファイン(microfine)ポリプロピレン粉末として、特徴付けられる。

【0082】

低プロフィール添加剤Gは、Bayer Corporation製のLevapren 450である。それは、スチレン中のエチレン-酢酸ビニル共重合体として特徴付けられる。

【0083】

低プロフィール添加剤Hは、Union Carbide製のXLP-1889である。それは、スチレン中の酢酸エチルエステル単独重合体として特徴付けられ、これは、0.5重量%のケトン、0.5重量%の酢酸ビニル、10重量%より多いエーテルエステル、34重量%未満のポリ酢酸ビニル、および55重量%より多いスチレンを有する。

【0084】

低プロフィール添加剤Iは、Union Carbide製のNeulon cond 50

10

20

30

40

50

u c t i v e Eである。それは、カーボンブラック／ビニル樹脂化合物として特徴付けられ、これは、70重量%より多いカルボキシル修飾ビニル樹脂、30重量%未満のカーボンブラック、2重量%未満の酢酸ビニル、および1.5重量%未満のケトンを含む。

【0085】

低プロフィール添加剤Jは、Reichhold, Inc. 製のRCI 31703 (Polylite R)である。それは、75重量%の重合体固形分および25重量%のスチレンモノマーを含むウレタンプレポリマーとして、特徴付けられる。

【0086】

低プロフィール添加剤Kは、GE Plastics Canada, Ltd. 製のPPO MX5587である。それは、キャップ化PPO樹脂として特徴付けられ、これは、修飾ポリフェニレンエーテル樹脂である。 10

【0087】

低プロフィール添加剤Lは、GE Plastics Canada, Ltd. 製のPPO SA120である。それは、PPO樹脂として特徴付けられ、これは、ポリフェニレンエーテル樹脂である。

【0088】

これらの成形組成物は、一般に、その樹脂、モノマー、開始剤、禁止剤、離型剤およびレオロジー変性剤（もし存在するなら）を高剪断コエルス (cowells) ディスペンサーに添加して2分間ブレンドすることにより、調製される。この導電性充填剤を、Baker Perkin, Littleford、またはReadco Continuousミキサー中のこの混合物に添加し、そして10～15分間混合する。混合が完了したとき、その組成物を適切なバリアバッグに入れ、そして成形前の約1日間にわたって、成熟させる。 20

【0089】

これらの成形組成物のための成形パラメータは、以下のとおりである：プラーク用の成形温度は、295°Fであり、3分間の成形時間および173gの充填重量であった。プロトタイプ双極プレート用の成形温度は、290°Fであり、3分間の成形時間および300gの充填重量であった。これらのプレートに、非常に細かい装飾を施したが、これには、約1万分の1～4の深さおよび図1で類型化した対応する幅を有する精巧なフロー迷路が含まれる。 30

【0090】

種々のレオロジー添加剤（増粘剤）と組み合わせて導電性充填剤を使って特定の熱硬化性樹脂を使用すると、電気化学（例えば、燃料）電池双極プレートの大量生産に使用され得る製品に関して、その双極プレート組成物を改良することが観察された。

【0091】

これらの処方変更の結果には、非クラッキング成形化合物、金型からの良好な引張り強さ、低い生産コスト、短いサイクル時間、良好な全体的導電性、高い機械的特性、および良好なレオロジー特性が挙げられる。

【0092】

表1Aでは、対照L-23012から、圧縮成形プレートを得たが、これは、その中に複雑なフローフィールド設計が形成され、燃料電池プレートとして有用であった。しかしながら、このプレートは、成形中に割れる欠点があり、その成形組成物がレオロジー変性剤を含む本明細書中で記述した好ましい実施形態と比較して、成形中において、その導電性充填剤と樹脂との相分離が原因で、このプレートの表面に沿って、不均一な導電率および抵抗率を有していた。試料L-23185、L-23120、L-23119およびL-23126は、望ましい特性を有していた。 40

【0093】

表1Bでは、試料L-23125、L-23186、L-23039は、望ましい特性を有していた。試料L-23184およびL-23022は、最適より低いバルク導電率および最適より高い抵抗率を有していた。 50

【0094】

表1Cでは、試料L-23023、L-23063、L-23024、L-323027およびL-23026は、最適より低いバルク導電率および最適より高い抵抗率を有していた。

【0095】

表1Dでは、試料L-23209およびL-23215は、良好な特性を有していた。試料L-23028、L-23210およびL-23211は、最適より低いバルク導電率および最適より高い抵抗率を有していた。

【0096】

【表1】

10

表1A

成分	対照 L-23012	L-23185	L-23120	L-23119	L-23126
樹脂A	30.1g				
樹脂B					
樹脂C				19.95g	
樹脂D		17.13	15.83		23.33
開始剤	0.8g (A)	0.4 (B)	0.4 (B)	0.4 (B)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
グラファイトA	68g	75	78	78	
グラファイトB					68
グラファイトC					
増粘剤A	-			0.35g	
増粘剤B	-	6.17	4.87		6.97
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	85	85	90	90	70
面積導電率 S/cm ²	300	280	280	280	220
張力 psi	3500	3700	3600	3100	3500
曲げ psi	4100	5500	4300	3500	4200
抵抗率 OHMS/M ²		70.9	87.51	71.2	37.7

20

30

【0097】

40

【表 2】

表 1B

成分	L-23125	L-23186	L-23039	L-23184	L-23022
樹脂A					
樹脂B			19.95		29.95
樹脂C		22.65		27.65	
樹脂D	23.33g				
開始剤	0.4 (B)	0.4 (C)	0.4 (B)	0.4 (C)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.3	1.2	1.3	1.2
グラファイトA	34	70	68	70	68
グラファイトB	34				
グラファイトC					
増粘剤A		0.55	0.35	0.55	0.35
増粘剤B	6.97				
ガラス繊維		5	10		
バルク導電率 S/cm	70	70	65	45	40
面積導電率 S/cm ²	210	210	200	140	140
張力 psi	3400	3000	2800	3000	4100
曲げ psi	4200	3700	3800	4000	5000
抵抗率 OHMS/M ²	58.13	123.8	117.6	155.6	222.1

【0098】

10

20

【表 3】

表1C

成分	L-23023	L-23063	L-23024	L-23027	L-23026
樹脂A					
樹脂B	29.95	29.95	29.95		
樹脂C				29.95	29.950
樹脂D					
開始剤	0.4 (C)	0.4 (B)	0.4 (D)	0.4 (C)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
グラファイトA	68	68	68	68	68
グラファイトB					
グラファイトC					
増粘剤A	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
増粘剤B					
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	40	40	35	30	30
面積導電率 S/cm ²	140	120	130	90	90
張力 psi	4200	3500	3100	4700	4300
曲げ psi	4900	4200	3400	6000	5300
抵抗率 OHMS/M ²	205.9	-	181.7	320.9	246.8

10

20

【0099】

30

【表 4】

表 1D

成分	L-23028	L-23209	L-23210	L-23211	L-23215
樹脂A					
樹脂B					
樹脂C	29.95			28.65	22.65
樹脂D		21.49	21.49		
開始剤	0.4 (D)	0.4 (B)	0.4 (B0)	0.4 (B)	0.4 (B)
禁止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
離型剤	1.2	1.2	1.2	1.3	1.3
グラファイトA	68	42	42	43	70
グラファイトB		26			
グラファイトC	0.35		26	26	
増粘剤A	0.35			0.55	0.56
増粘剤B		8.81	8.81		
ガラス繊維					
バルク導電率 S/cm	30	77	25	45	79
面積導電率 S/cm ²	100	227	74	132	233
張力 psi	3800	2700	3900	3000	2600
曲げ psi	5100	3900	5500	4500	4300
抵抗率 OHMS/M ²	220.9	62.02	377.8	186.48	102.74

【0100】

10

20

【表 5】

表2A

成分	23012	23039	23022	23023	23063
樹脂A	100				
樹脂B		100	100	100	100
開始剤A	1.99				
開始剤B		2.01	1.34		1.34
禁止剤				1.34	
離型剤	3.99	6.02	4.01	4.01	4.01
グラファイトA	225.91	340.85	227.05	227.05	227.05
変性剤A			1.17	1.17	1.17
繊維A		50.13			
バルク導電率 S/cm	85	65	40	40	40
面積導電率 S/cm ²	300	200	140	140	120
張力 psi	3500	2800	4100	4200	3500
曲げ psi	4100	3800	5000	4900	4200

10

20

【0101】

【表 6】

表2B

成分	23024	23119	23186	23184	23027
樹脂B	100				
樹脂C		100	100	100	100
開始剤B		2.01			
開始剤C			1.77	1.45	1.34
開始剤D	1.34				
禁止剤	0.33	0.50	0.44	0.36	0.33
離型剤	4.01	6.02	5.74	4.70	4.01
グラファイトA	227.05	390.98	309.05	253.16	227.05
変性剤A	1.17	1.75	2.43	1.99	1.17
繊維A					
バルク導電率 S/cm			22.08		
面積導電率 S/cm ²	35	90	70	45	30
張力 psi	135	280	210	140	90
曲げ psi	3100	3100	3000	3000	4700

30

40

【0102】

50

【表 7】

表2C

成分	23026	23028	23211	23215	23185
樹脂C	100	100	100	100	
樹脂D					100
開始剤B	1.34		1.40	1.77	2.34
開始剤D		1.34			
禁止剤	0.33	0.33	0.35	0.44	0.58
離型剤	4.01	4.01	4.54	5.74	7.01
グラファイトA	227.05	227.05	160.09	309.05	437.83
グラファイトC			90.75		
変性剤A	1.17	1.17	1.92	2.43	
変性剤B					36.02
繊維B				22.08	
バルク導電率 S/cm	30	30	45	79	85
面積導電率 S/cm ²	90	100	132	233	260
張力 psi	4300	3800	3000	2600	3700
曲げ psi	5300	5100	4500	4300	5500

10

20

【0103】

【表 8】

表2D

成分	23120	23126	23125	23209	23210
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤A	2.58	1.71	1.71	1.86	1.86
禁止剤	0.84	0.43	0.43	0.43	0.47
離型剤	7.68	5.14	5.14	5.58	5.58
グラファイトA	489.04		145.74	195.44	195.44
グラファイトB		291.47	145.74	20.99	
グラファイトC					120.99
変性剤B	29.88	29.88	29.88	41.00	41.00
バルク導電率 S/cm	90	70	70	77	25
面積導電率 S/cm ²	260	220	210	227	74
張力 psi	3600	3500	3400	2700	3900
曲げ psi	4300	4200	4200	3900	5500

30

40

【0104】

【表 9】

表3A

成分	23227	23236	23274	23275	23293
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.56	1.44	1.51	2.34	2.34
禁止剤	0.52	0.48	0.50	0.58	0.58
離型剤	6.24	5.77	6.06	7.01	7.01
グラファイトA	390.02	350.96	68.50	420.32	420.32
カーボンA				17.51	
変性剤B	21.88	22.12	28.22	36.02	36.02
繊維C					11.68
バルク導電率 S/cm	90				
張力 psi	2672				
曲げ psi	6543				

10

【0105】

20

【表 10】

表3B

成分	23292	23293	23343	23344	23345
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.48	1.56	1.44	1.29	1.20
禁止剤	0.49	0.52	0.48	0.43	0.40
離型剤	5.93	6.24	5.75	5.14	4.80
グラファイトA	370.74	395.22	349.78	299.91	72.22
変性剤B	15.67	16.48	21.71	21.68	21.70
バルク導電率 S/cm				72.5	58
張力 psi		2170	2547	2448	2679
曲げ psi		4616	6503	5423	5897

30

【0106】

【表 1 1】

表3C.

成分	23346	23347	23348	23349	23350
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.09	1.02	0.95	0.90	0.84
禁止剤	0.36	0.34	0.32	0.30	0.28
離型剤	4.37	4.23	3.80	3.81	3.36
グラファイトA	236.79	216.57	90.11	174.70	154.19
変性剤B	21.88	21.69	21.67	21.69	21.67
張力 psi	3083	3053	2923	3107	3470
曲げ psi	5715	5766	6666	5398	5378

10

【0 1 0 7】

【表 1 2】

表3D

成分	23335	23352	23360	23361	23362
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	0.80	0.75	2.27	2.21	2.14
禁止剤	0.27	0.25	0.57	0.55	0.54
離型剤	3.22	3.02	6.81	6.62	6.43
グラファイトA	142.05	125.75	425.41	413.45	02.14
変性剤B	21.68	21.73	32.16	28.45	24.93
バルク導電率 S/cm					85.5
張力 psi	2787	2629			2155
曲げ psi	6167	5998			6017

20

30

【0 1 0 8】

【表 1 3】

表4A

成分	23364	23365	23366	23367	23368
樹脂D	100	100	100	100	100
モノマーA	9.72	8.18	7.05	6.20	5.53
開始剤B	1.46	1.23	1.06	0.93	0.83
禁止剤	0.49	0.41	0.35	0.31	0.28
離型剤	5.83	4.91	4.23	3.72	3.32
グラファイトA	340.30	265.85	211.57	170.54	138.31
変性剤B	28.43	28.34	28.35	28.37	28.35
バルク導電率 S/cm	55.99	38.57	32.86	18.37	13.59
張力 psi	2847	2697	2701	2880	2992
曲げ psi	6044	6131	6149	7002	7338
密度 g/cm ³	1.75	1.74	1.71	1.72	1.71
収縮 mils/in	-2.5	-2.83	-3.17	-3.33	-3.83

10

20

【0 1 0 9】

【表 1 4】

表4B

成分	23369	23370	23371	23372	23373
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.36	1.15	1.00	0.89	0.79
離型剤	6.42	4.61	4.01	3.55	3.18
グラファイトA	316.17	249.52	200.33	162.48	132.45
変性剤B	28.27	28.21	28.21	28.21	28.21
バルク導電率 S/cm	49.49	27.74	25.05	14.01	8.12
張力 psi	2974	3358	3014	2952	3154
曲げ psi	6394	6089	6520	6312	6071
密度 g/cm ³	1.72	1.76	1.69	1.73	1.72
収縮 mils/in	-3.5	-2.5	-2.83	-3.17	-3.53

30

40

【0 1 1 0】

【表 1 5】

表 4C

成分	23443	23444	23445	23466	23467
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.84	1.72	1.56	1.81	1.54
禁止剤	0.46	0.43	0.39	0.45	0.39
離型剤	5.52	5.15	4.69	5.44	4.62
グラファイトA	32.14	291.85	253.91	317.17	250.29
変性剤B	30.23	30.04	30.08	28.23	28.23
バルク導電率 S/cm	36	21.2	15	39	21
張力 psi				2312	2765
曲げ psi				6154	5994
密度 g/cm ³	1.76	1.76	1.75	1.75	1.73
収縮 mils/in	-2	-2	-2.33	-1.67	-1.83

10

20

【0 1 1 1】

【表 1 6】

表 4D

成分	23468	23469	23470	23471	23472
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.69	1.75	1.95	2.11	1.46
禁止剤	0.42	0.44	0.49	0.53	0.37
離型剤	5.52	5.15	4.69	5.44	4.62
グラファイトA	287.77	284.46	331.55	369.39	241.01
変性剤B	28.23	28.23	28.23	28.23	23.47
繊維D		17.51	19.50	21.11	
バルク導電率 S/cm	34		45	60	61
張力 psi	2466	2804	1797	2010	2821
曲げ psi	5272	7390	6882	4726	4898
密度 g/cm ³	1.71	1.6	1.62	1.58	1.75
収縮 mils/in	-2.33	-2	-1.42	-1.67	-2.5

30

40

【0 1 1 2】

【表 17】

表5A.

成分	23506	23507	23508	23509	23510
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.63	1.75	1.45	1.59	1.70
禁止剤	0.41	0.44	0.36	0.40	0.43
離型剤	4.89	5.24	4.34	4.77	5.11
グラファイトA	277.10	305.41	235.17	270.38	298.00
変性剤B	23.47	23.47	20.48	20.48	20.48
バルク導電率 S/cm	55	45	52	60	65
張力 psi	2680	2645			2483
曲げ psi	4556.7	5264.4			4773.67
密度 g/cm ³	1.74	1.74	1.79	1.78	1.76
収縮 mils/in	-2.5	-2.33	-2.33	-2.42	-1.75

10

20

【0113】

【表 18】

表5B

成分	23566	23567	23568	23581	23582
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.85	1.79	1.75	1.77	1.83
禁止剤	0.46	0.45	0.44	0.44	0.48
離型剤	5.54	5.38	5.26	5.30	5.50
グラファイトA	346.42	336.32	328.96	313.33	329.820
変性剤B				20.48	20.48
変性剤D	7.62	4.48	2.19		
バルク導電率 S/cm		92	94		
密度 g/cm ³	1.77	1.76	1.75	1.79	1.76
収縮 mils/in	-1.67	-1.25	-1.25	-1.67	-1.58

30

40

【0114】

【表 19】

表5C

成分	23583	23584	23585	23592	23593
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.90	1.98	2.07	1.88	1.97
禁止剤	0.48	0.50	0.52	0.47	0.49
離型剤	5.71	5.95	6.20	5.63	5.91
グラファイトA	347.62	366.88	387.80	352.11	369.46
変性剤B	20.48	20.48	20.48		
変性剤D				9.39	14.78
バルク導電率 S/cm				88	59
密度 g/cm ³	1.78	1.75	1.71	1.71	1.71
収縮 mils/in	-1.5	-1.25	-1.25	-1.67	-1.67

10

【0115】

20

【表 20】

表5D

成分	23594	23721	23722	23723	23724
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.07	2.19	2.24	1.94	2.00
禁止剤	0.52	0.55	0.56	0.48	0.50
離型剤	6.22	6.57	6.71	5.82	6.00
グラファイトA	347.62	366.88	387.80	352.11	369.46
変性剤B		27.53	30.24	22.70	26.56
変性剤D	20.73				
バルク導電率 S/cm		86	93	68	65
密度 g/cm ³	1.71	1.74	1.77	1.77	1.78
収縮 mils/in	-1.25	-1.42	-1.08	-1.5	-1.25

30

【0116】

40

【表 2 1】

表 6A

成分	23725	23726	23727	23728	23729
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.14	1.90	2.14	1.90	2.14
禁止剤	0.54	0.48	0.54	0.48	0.54
離型剤	6.43	5.71	6.43	5.71	6.43
グラファイトD	402.14	347.62			
グラファイトE			402.14	347.62	
グラファイトF					402.14
変性剤B	24.93			20.48	24.93
		20.48	24.93		
バルク導電率 S/cm	96	75	81	62	
密度 g/cm ³	1.77	1.78	1.77	1.81	1.8
収縮 mils/in	-1.67	-2.33	-0.83	-1.5	-1.

10

20

【 0 1 1 7 】

【表 2 2】

表 6B

成分	23730	23731	23732	23733	23734
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.90	2.14	1.90	2.14	2.14
禁止剤	0.48	0.54	0.48	0.54	0.54
離型剤	5.71	6.43	5.71	6.43	6.43
グラファイトA				249.33	249.33
グラファイトE				152.82	
グラファイトF	347.62				152.82
グラファイトG		402.14	347.62		
変性剤B	20.48	24.93	20.48	24.93	24.93
バルク導電率 S/cm		32	30	48	25
密度 g/cm ³				1.81	1.81
収縮 mils/in				-1.33	-1.83

30

40

【 0 1 1 8 】

【表 2 3】

表6C

成分	23735	23736	23737	23738	23739
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.14	2.14	1.90	1.90	1.90
禁止剤	0.54	0.54	0.48	0.48	0.48
離型剤	6.43	6.43	5.71	5.71	5.71
グラファイトA	249.33	249.33	215.52	215.52	215.52
グラファイトD		152.82			
グラファイトE			132.10		
グラファイトF	347.62			132.10	
グラファイトG	152.82				132.10
変性剤B	24.93	24.93	20.48	20.48	20.48
バルク導電率 S/cm	38	90	50	26	31
密度 g/cm ³	1.79	1.67	1.79	1.8	1.8
収縮 mils/in	-2.08	-1.58	-1.83	-2.33	-2.67

10

20

【 0 1 1 9 】

【表 2 4】

表6D

成分	23740	23755	23756	23757	23758
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	1.90	2.17	2.20	1.93	1.95
禁止剤	0.48	0.54	0.55	0.48	0.49
離型剤	5.71	6.52	6.61	5.78	5.85
グラファイトA	215.52	407.61	413.22	341.81	358.10
グラファイトD	132.10				
変性剤B	20.48	23.91	22.87	19.52	18.54
変性剤D		2.72	5.51	2.41	4.88
バルク導電率 S/cm	68	70	97	92	89
密度 g/cm ³	1.75	1.67	1.79	1.8	1.8
収縮 mils/in	-2.08	-1.58	-1.83	-2.33	-2.67

30

40

【 0 1 2 0 】

【表 2 5】

表 7A.

成分	23803	23804	23805	23806	23830
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.06	2.09	2.18	2.19	2.16
禁止剤	0.52	0.52	0.54	0.55	0.54
離型剤	6.19	6.27	6.49	6.58	6.49
グラファイトA	376.29	381.20	394.59	405.48	394.59
変性剤B	25.26	25.59	25.59	26.30	30.00
変性剤E	5.15	6.53	10.81	6.85	6.76
バルク導電率 S/cm	62	83	83	90	

10

【0 1 2 1】

【表 2 6】

表 7B

成分	23831	23832	23833	23834	23835
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.11	2.16	2.23	2.09	2.09
禁止剤	0.53	0.54	0.58	0.52	0.52
離型剤	6.33	6.54	6.69	6.27	6.27
グラファイトA	385.22	397.82	406.69		
グラファイトH				381.20	
グラファイトI					381.20
変性剤B	25.59	25.61	25.63	25.59	25.59
変性剤E		6.81	6.96	6.53	6.53

20

30

【0 1 2 2】

【表 2 7】

表7C.

成分	23836	23837	23838	23839	23840
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.09	2.24	2.24	2.24	2.24
禁止剤	0.52	0.56	0.56	0.56	0.56
離型剤	6.27	6.71	6.71	6.71	6.71
グラファイトA		408.28	408.28	408.28	408.28
グラファイトJ	381.20				
カーボンB		0.56			381.20
カーボンC			0.56		
カーボンD				0.56	
カーボンE					0.56
変性剤B	25.59	25.56	25.56	25.56	25.56
変性剤E	6.53	6.99	6.99	6.99	6.99
変性剤F		8.39	8.39	8.39	8.39

10

【 0 1 2 3 】

20

【表 2 8】

表7D.

成分	23878	23879	23880	23881	23896
樹脂D	100	100	100	100	100
開始剤B	2.26	2.37	2.28	2.39	1.48
禁止剤	0.57	0.59	0.57	0.60	0.49
離型剤	6.79	7.11	6.83	7.16	5.93
グラファイトA	418.55	444.31	421.41	447.49	370.74
変性剤B	25.57	25.59	25.57	25.60	5.68
変性剤C					9.99
変性剤E			7.12	7.46	
変性剤F	11.88	12.44	5.89	5.97	

30

【 0 1 2 4 】

【表 29】

表8A

成分	23297	23301	23302	23363	23422
樹脂E	100	100	100	100	100
開始剤B	1.56	1.38	1.33	1.06	1.75
禁止剤	0.52	0.46	0.44	0.35	0.58
難型剤	6.24	5.50	5.31	4.24	7.00
グラファイトA	395.22	343.88	331.86	240.03	466.74
変性剤B	5.98	2.66	1.28	2.65	2.68
変性剤C	10.50	4.63	2.26	4.66	4.67
バルク導電率 S/cm		72.5		35	
密度 g/cm ³		1.62		1.53	1.6
収縮 mils/in		-2.33		-1.33	-0.92

10

【0125】

20

【表 30】

表8B

成分	23423	23452	23453	23454	23455
樹脂D		50.03	60.00	70.03	80.00
樹脂E	100				
樹脂F		49.97	40.00	29.97	20.00
開始剤B	2.40	2.14	2.14	2.14	2.14
禁止剤	0.80	0.54	0.54	0.54	0.54
難型剤	9.61	6.43	6.43	6.43	6.43
グラファイトA	680.54	402.14	402.14	402.14	402.14
変性剤B	2.84	24.93	24.93	24.93	24.93
変性剤C	4.64				
バルク導電率 S/cm		63	70.5	70	83.5
張力 psi		2441	2497	2404	2561
曲げ psi		5030	6126	4284	5391
密度 g/cm ³	1.47	1.71	1.74	1.75	1.66
収縮 mils/in	-0.25	-1.17	-1.58	-1.67	-1.42

30

40

【0126】

【表 3 1】

表 8C

成分	23530	23531	23646	23647	23648
樹脂F	100	100			
樹脂G			100	100	100
開始剤B	1.85	1.79	1.81	1.91	2.02
禁止剤	0.46	0.45	0.45	0.48	0.50
離型剤	6.54	5.38	5.42	5.72	6.06
グラファイトA	346.42	336.32	338.75	357.65	378.60
変性剤B			5.24	11.11	17.62
変性剤D	7.62	4.48			
バルク導電率 S/cm			86	58	46
張力 psi	2305.56	2155.58			
曲げ psi	4548.8	4421.3			
密度 g/cm ³	1.69	1.75	1.71	1.72	1.65
収縮 mils/in	-0.42	-1.67	-1.58	-1.42	-1.33

10

20

【 0 1 2 7 】

【表 3 2】

表 8D

成分	23649	23650	23651	23658
樹脂I	100	100	100	
樹脂J				100
開始剤B	1.75	1.77	1.79	1.91
開始剤D				2.08
禁止剤	0.44	0.44	0.45	0.52
離型剤	5.26	5.31	5.38	6.25
グラファイトA	328.95	331.86	336.32	385.42
変性剤B				15.63
変性剤D	2.19	3.10	4.48	
バルク導電率 S/cm	93	79	64	
密度 g/cm ³	1.77	1.74	1.73	
収縮 mils/in	-1.5	-1.08	-1.5	

30

40

【 0 1 2 8 】

【表 3 3】

表9A.

成分	24004	24005	24006	24007	24008
樹脂D	100	85.12	80.15	50.02	50.02
樹脂K				49.98	
樹脂L					49.98
開始剤B	1.11	1	0.99	0.99	0.98
禁止剤	0.56	0.5	0.49	0.49	0.49
離型剤A	6.69	5.97	5.93	5.93	5.93
グラファイトA	412.26	368.16	365.43	365.43	365.43
変性剤B	18.38	15.67	14.81	14.81	14.81
低プロフィールA	8.98	6.21	6.17	6.17	6.17
低プロフィールB	11.14				
低プロフィールC		14.86			
低プロフィールD			19.86		
収縮 mils/in	-1	-0.65	-0.45	-1.1	-1.03

10

20

【 0 1 2 9 】

【表 3 4】

表9B

成分	24009	24010	24011	24012	24052
樹脂D			84.99	89.98	
樹脂K		100			
樹脂L	100				100
開始剤B	0.92	0.92	0.99	0.99	0.91
禁止剤	0.46	0.46	0.49	0.49	0.46
離型剤A	5.53	5.53	5.93		5.48
グラファイトA	345.62	345.62	365.43	365.43	342.47
変性剤A	2.53	2.53			1.6
変性剤B			14.81	14.81	
低プロフィールA	5.76	5.76	6.17	6.17	5.71
低プロフィールC		14.86			
低プロフィールD			15.01	10.02	
収縮 mils/in	0.34	-0.21	-1.3	-0.89	0.02

30

40

【 0 1 3 0 】

【表 3 5】

表9C

成分	24053	24054	24055	24056	
樹脂K			100	100	
樹脂L	100	100			
開始剤B	0.91	0.9	0.91	0.91	
禁止剤	0.45	0.45	0.46	0.45	
離型剤A	5.45	5.43	5.48	5.45	
グラファイトA	340.91	339.37	342.46	340.91	
変性剤B	1.14	0.88	1.6	1.14	
低プロフィールA	5.68	5.66	5.71	5.68	
収縮 mils/in	-0.02	0.21	-0.24	-0.21	

10

【0 1 3 1】

【表 3 6】

表10A

成分	24141	24142	24149	24159	24160
樹脂K	100	100	100		
樹脂Q				80	70
開始剤B	0.92		0.93	0.93	0.93
開始剤D		0.55			
禁止剤	0.46	0.46	0.47	0.47	0.47
離型剤A	2.97	2.96	3.96	3.96	3.96
離型剤B	2.97	2.96	3.96	3.96	3.96
グラファイトA	343.25	342	349.65	349.65	349.65
変性剤A	1.37	1.37	1.4	1.4	0.93
低プロフィールA	5.72	5.7	5.83	5.82	5.82
低プロフィールE				20	29.98
収縮 mils/in	-0.89	-1.58	-0.72	-0.26	0.03

20

30

【0 1 3 2】

【表 3 7】

表10B

成分	24161	24194	24195	24196	24197
樹脂D		100		100	
樹脂K					
樹脂Q	60		70		70.29
開始剤B	0.93	1.03	0.93	0.93	0.93
禁止剤	0.47	0.47	0.47	0.47	3.14
離型剤A	3.96	7.3	3.96	3.96	3.96
離型剤B	3.96		3.96	3.96	3.96
グラファイトA	349.65	450.4	349.65	349.65	350.96
変性剤A	1.4		1.4	1.4	1.78
低プロフィールA	5.83				5.85
低プロフィールE	40	30.43	29.98		29.71
低プロフィールF	3.96	7.3	5.83	5.83	
収縮 mils/in	-0.89	-1.58	0.18	-0.45	0.07

10

20

【 0 1 3 3 】

【表 3 8】

表10C

成分	24249	24250	24261	24262	24287
樹脂D			70	68.83	61.53
樹脂K	88.3				
樹脂Q		64.44			
モノマーB	11.7	11.7	12.5	12.99	12.79
開始剤B	0.93	0.94	1	1.04	1.02
禁止剤	0.47	0.47	0.5	0.52	0.51
離型剤A	3.96		6	6.23	6.3
離型剤B	3.96				
グラファイトA	350.96	350.96	370	384.42	375.52
変性剤B	1.78		16.25	20.78	
低プロフィールA	5.84	5.85	6.28	6.49	
低プロフィールE		23.86	17.5	18.18	25.68
収縮 mils/in	-0.86	-0.66	-0.93	-0.83	-0.79

30

40

【 0 1 3 4 】

【表 3 9】

表10D

成分	24288	24317	24318	24319	24320
樹脂D	53.84	60.53	52.47	59.04	100
モノマーB	12.54	14.66	14.37	17.18	32.72
開始剤B	1	1.17	1.15	1.37	2.82
禁止剤	0.5	0.59	0.57	0.69	1.31
離型剤A	8.02	7.04	6.9	8.25	15.71
グラファイトA	371.3	451.61	442.53	549.83	1047.12
変性剤B	16.66	18.77	16.38	18.56	30.76
低プロフィールA	6.27	7.33	7.18	8.59	16.36
低プロフィールE	33.82	24.81	33.16	23.78	62.3
収縮 mils/in	-0.73	-0.34	0	0.14	-0.52

10

【0 1 3 5】

【表 4 0】

表11A

成分	24364	24365	24495	24496	24497
樹脂D	60.53	52.47			
樹脂N			60.93	52.19	60.93
モノマーB	14.66	14.37	13.01	13	13
開始剤B	1.17	1.15			
開始剤D			0.57	0.57	0.57
禁止剤	0.59	0.57	0.52	0.52	0.52
離型剤A	7.04	6.9	6.24	6.24	6.24
グラファイトA	451.61	442.53	400.62	400.62	400.62
変性剤B	18.77	16.38			6.83
変性剤D			5.83	5.83	
低プロフィールA	7.33	7.18	6.5	6.5	6.5
低プロフィールE			26.06	34.81	
低プロフィールG	24.81	33.16			26.07
収縮 mils/in	-0.52	0.17	0	0.14	0.14

20

30

【0 1 3 6】

【表 4 1】

表11B

成分	24498	24499	24500	24523	24524
樹脂D			60.53	59.09	58.33
樹脂N	52.19	60.93	.		
モノマーB	13	13	14.66	15.2	15.48
開始剤B			1.17	1.22	1.24
開始剤D	0.57	0.57			
禁止剤	0.52	0.52	0.59	0.61	0.62
離型剤A	6.24	6.24	7.04	7.29	7.43
グラファイトA	400.62	400.62	451.61	468.09	476.78
変性剤B			18.77	23.1	25.39
変性剤D	5.83	5.83			
低プロフィールA	6.5	6.5	7.33	7.6	7.74
低プロフィールE				25.71	26.19
低プロフィールH	34.81				
低プロフィールI		26.07	24.81		
収縮 mils/in	0.23	-0.33	-0.29	-0.45	-0.66

10

20

【 0 1 3 7 】

【表 4 2】

表11C

成分	24498	24499	24500	24523	24524
樹脂D	60.53			79.98	69.99
樹脂N		65.64	52.19		
モノマーB	14.66	14.01	13		
開始剤B	1.17			1.02	1.02
開始剤D		0.62	0.57		
禁止剤	0.59	0.5	0.52	0.51	0.51
離型剤A	7.04	6.72	6.24	6.11	6.11
グラファイトA	451.81	431.81	400.62	376.97	376.97
変性剤B	18.77			18.44	18.44
変性剤D		6.28	5.83		
低プロフィールA	7.33	7.01	6.5	6.37	6.37
低プロフィールJ	24.81	28.08	34.81		
低プロフィールK				20.02	30.01
収縮 mils/in	-1.78	-2.65	-3.02		

30

40

【 0 1 3 8 】

【表 4 3】

表12

成分	24633	24634	24635	24636
樹脂D	60.01	79.98	69.99	60.01
開始剤B	1.02	1.02	1.02	1.02
禁止剤	0.51	0.51	0.51	0.51
離型剤A	6.11	6.11	6.11	6.11
グラファイトA	376.97	376.97	376.96	376.97
変性剤B	18.44	18.44	18.44	18.44
低プロフィールA	6.37	6.37	6.37	6.37
低プロフィールK	39.99			
低プロフィールL		20.02	30.01	39.99

表 9 ～ 1 2 の例は、低プロフィール添加剤を使用すると、許容できる収縮特性が達成できることを示している。一般に、これらの試料は、A S T M D 7 9 2 で測定したとき、2 ミル／インチよりも低い絶対収縮測定値を有していた。さらに、オレンジピールおよび波紋のような粗さをなくして、滑らかな表面を含む改良された表面特性を有していた。

【0 1 3 9】

本発明のさらなる実施形態によれば、新しい成形方法において、射出成形を達成するために、以下の組成物を使用できる。特に、図 5 で図示しているように、本発明の方法は、アンガー 1 0 6 でフェノール型スクリュウ 1 0 5 を使用して本発明の高装填成形組成物を射出成形装置 1 1 0 の供給口 1 0 8 に運ぶ工程を包含する。この方法は、液圧ラムを使用して供給口に成形組成物をポートする伝統的な方法と対照的である。しかしながら、これらの伝統的な成形方法および装置は、この組成物が成形工程中に出ていくとき、潜在的に破滅的な結果を伴って故障するおそれがある。例えば、図 3 および 4 は、この供給口を出ていく写真であり、これは、先に記述した装置において、試料 2 3 8 0 8 のような高装填組成物を使用して起こった。この組成物を、伝統的な射出成形機（これは、この組成物をスクリュウバレルから供給口（すなわち、その成形ゲートにある絞りオリフィス）に供給するのに、油圧リムを使用する）に供給した。この組成物を、この成形オリフィスから出した。

【0 1 4 0】

この状況とは対照的に、垂直部品（すなわち、実質的に垂直であるか、またはこの射出成形機の水平面に対して垂直な角度であるか、いずれかである）を有するオーガーを備えたホッパーを有するスタッパーを使用して、同じ組成物を加工したとき、それ以外は通常の射出成形技術を使用した図 1 のものと比較して、複雑な形状に成形できた。以下を含むスタッパー 1 0 4 を有する二重オーガー系が、さらに好ましい。このスタッパー 1 0 4 とは、ホッパー 1 0 6 を含み、第一の大きな水平配向オーガー 1 2 0 を備えており、これは、小さい垂直オーガー 1 0 5 を給送し、これは、供給口 1 0 8 （これは、単一または二重ゲート空洞金型 1 0 9 に直接ポートする）で、変性フェノール樹脂型スクリュウに供給する。第一オーガーは、標準的な型およびサイズのオーガーである；しかしながら、この垂直オーガーは、9 0 mm の外径および約 3 5 インチの長さのオーガーである。このオーガーの先端は、この供給口領域に合致し調和させていずれのデッドスポットも除くことにより、改変した。このフェノール製スクリュウのそれ以外は標準的なスミアー先端は、一定の内径および一定のフライト深さ（これは、その末端の一定点まで調和させた）に機械切削することにより、改変される。フェノール製スクリュウは、フェノール製スクリュウがチェックリングを含まないという事実ならびにそのフライト範囲で、他の公知のスクリュウ構造とは異なる。さらに、この方法は、第一スクリュウバレル 1 2 6 にある第一および第二ゾーン 1 2 2、1 2 4 である程度のゾーン温度勾配を伴い、各々は、約 7 0 °

10

20

30

40

50

F～約140°Fの温度、さらに特定すると、約70°F～約100°F（すなわち、70°F）の温度（これは、同一または異なり得る）を有する。冷却装置を使用することにより、この温度を下げるのが可能である。第三ゾーン128は、この金型に位置している。このゾーンは、約275°F～約325°F（すなわち、300°F）に維持されるが、これは、本発明の組成物の殆どについて硬化が開始する温度である。これらの例は、括弧で囲んだ温度を使用して、行った。現在の作業は、第一および第二ゾーンの両方を70°Fで保持する工程を包含する。以前の作業は、第一ゾーンを90～95°Fにし、そして第二ゾーンを110～125°Fにした工程を包含した。この成形レベルでは、温度変化を避けるのが好ましい。通常の硬化速度では、その成形時間は、典型的には、約10～600秒間、さらに普通には、30～300秒間または約1または2分間である。この方法は、単一または二重ゲート空洞器具、またはその金型が充填中に僅かに開いておりショットを圧縮するのに閉じられる射出／圧縮方法にも実行できる。

10

【0141】

この組成物は、図6で示した射出成形装置220（これは、単一オーガーKrauss-Maffei AZ50またはAZ100スタッパー220を含む）を使用して射出成形することにより成形でき、これは、射出成形機224の供給口222に直接ポートされることも分かった。この機械は、角度を付けて回転している円錐ホッパー230を有し、これは、回転しているオーガースクリュー232を備えている。この角度は、その水平面に対して30度と60度の間であり、さらに特定すると、約45度であるという点で、垂直成分を有する。それゆえ、このオーガーは、その配向に垂直な成分を有する。このスタッパーは、この化合物が乾燥するのを回避するために、密封または半密封する必要がある。

20

【0142】

（実施例）

L-23193の処方を使って、記述した方法を使用して、変性の前後に、この二重オーガー装置に、数百個の試料を射出成形した。これらの試料は、単一空洞金型および2分の成形時間を使用して、7×10インチの平面として、長方形試験プラークに成形した。この厚さは、0.053インチ、0.100インチ、0.120インチおよび0.140インチを含んでいた。0.053インチの厚さの試料に対して、少なくとも約50 S/cmの導電率が得られた。さらに、その開発研究の過程では、その出発値からの少なくとも約100%の上昇という改良が達成され、これは、主に、加工中の剪断低下に帰因している。仕上げ試料でマット外観を達成することが好ましいと思われる。

30

【0143】

それに加えて、AZ100スタッパー系を備えたKrauss-Maffei射出成形機を使用して、L-23193処方を用いて、円形ディスク試料をうまく成形した。

【0144】

特許法に従って、最良の態様および好ましい実施形態が述べられているものの、本発明の範囲は、それに限定されず、むしろ、添付の請求の範囲により限定される。

【図面の簡単な説明】

【0145】

【図1】図1は、双極電池プレートを使用した燃料電池アセンブリの図示である。

【図2】図2は、本発明に従って製造できる双極燃料電池プレートの図示である。

【図3】図3は、従来の液圧リム射出成形方法を使用して成形した本発明の組成物の工程失敗の図示である。

【図4】図4は、図3に示される成形装置の概略図である。

【図5】図5は、本発明の成形装置の概略図である。

【図6】図6は、本発明の成形装置のさらに他の実施形態の概略図である。

40

【図 1】

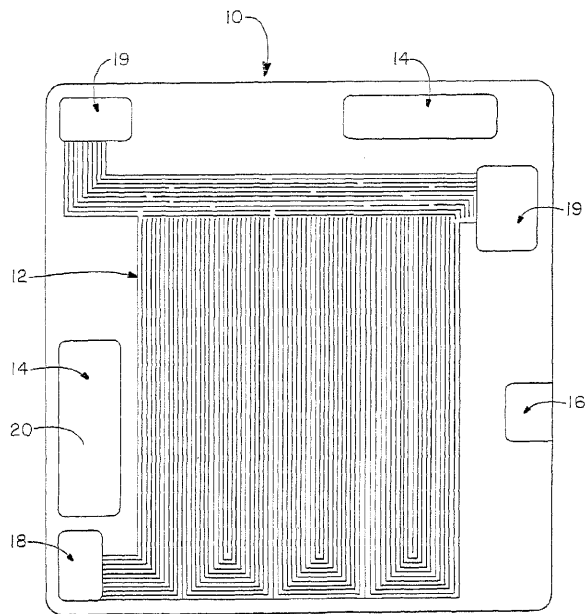


FIG. 1

【図 2】

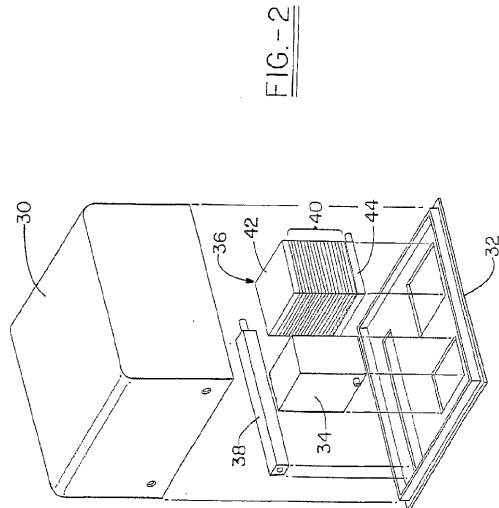


FIG. 2

【図 3】

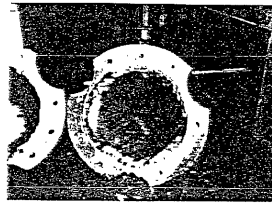


FIG 3

【図 4】

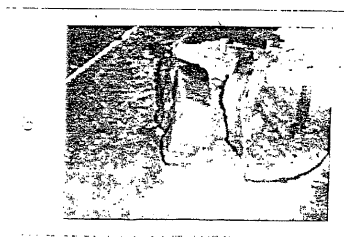


FIG. 4

【図 5】

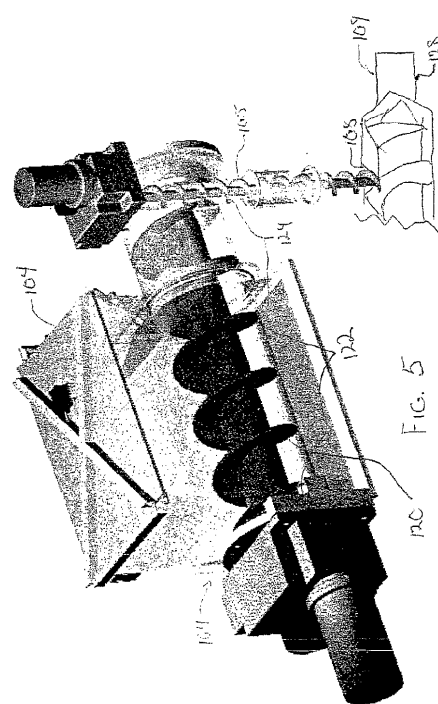
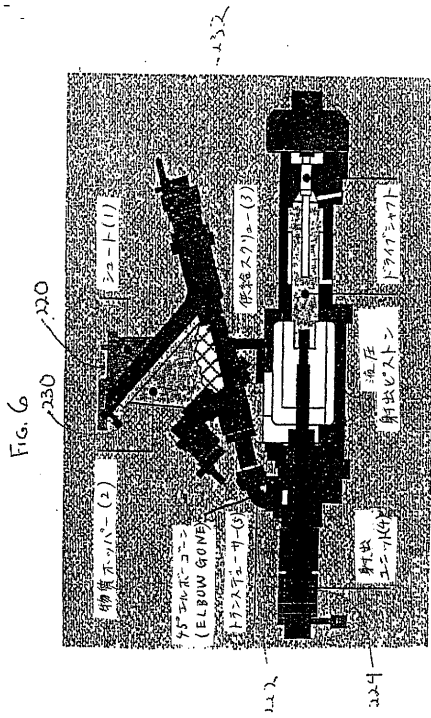


FIG. 5

【図 6】



フロントページの続き

(72)発明者 カート アイ. バトラー
アメリカ合衆国 オハイオ 44048, キングスビル, ゲイジビル モンロー ロード 4
585

(72)発明者 ダニエル ジー. トーマス,
アメリカ合衆国 オハイオ 44030, コノー, エス. アムボーイ ロード 483

Fターム(参考) 4F206 AA41 AB04 AB13 AC05 AE03 AG01 AH33 AK03 AL17 AR074
JA07 JD02 JF01 JF12 JQ11 JQ90 JW34