

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012年3月15日(15.03.2012)

PCT

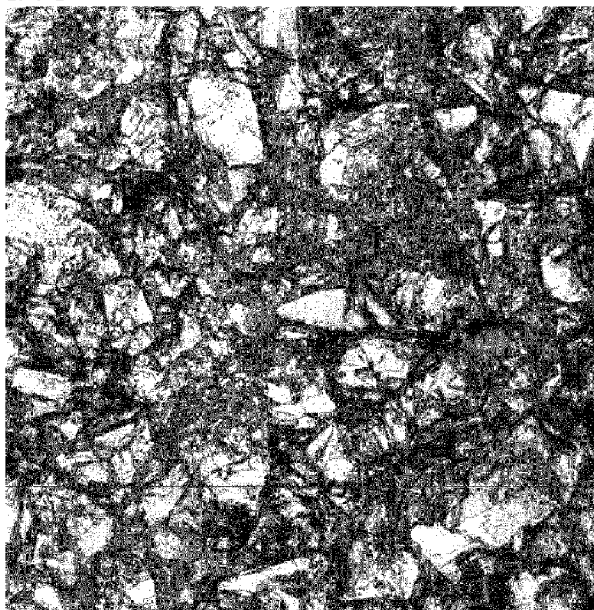
(10) 国際公開番号
WO 2012/032922 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/02 (2006.01) H01M 8/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/068822
- (22) 国際出願日: 2011年8月22日(22.08.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-202846 2010年9月10日(10.09.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日清紡ケミカル株式会社 (Nisshinbo Chemical Inc.) [JP/JP]; 〒1038650 東京都中央区日本橋人形町二丁目3番11号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 丹野 文雄 (TANNO Fumio) [JP/JP]; 〒2670056 千葉県千葉市緑区大野台1-4-1 日清紡ケミカル株式会社内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 小島 隆司 (KOJIMA Takashi); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目1番12号 銀座大塚ビル2階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: FUEL CELL SEPARATOR

(54) 発明の名称: 燃料電池セパレータ

[図4]



(57) Abstract: This fuel cell separator is obtained by irradiating the surface of a molded article formed by molding a composition containing graphite powder, an epoxy resin, a phenol resin, a curing accelerator, and an internal mold lubricant and is provided with the following characteristics (1) - (6). Accordingly, the conductivity and hydrophilicity of a fuel cell separator provided with grooves that form flow paths for gas supply and exhausting on the surface thereof can be improved, and also elutability can be reduced. (1) Residue from laser irradiation of the surface is 5% or less by area ratio (2) Arithmetic average roughness (Ra) of surface is 0.80 - 1.50 μm (3) Surface static contact angle is 15 - 60° (4) Surface contact resistance is 3 - 7 $\text{m}\Omega\text{-cm}^2$ (5) Ion exchanged water: under a condition of separator = 9:1 (mass ratio), the conductivity after the separator has been immersed in ion exchanged water at 90°C for 168 hours is 1.2 $\mu\text{S/cm}$ or less (6) The change in the surface roughness with immersion for 2000 hours each in 90°C ion exchanged water and 150°C ion exchanged water is within 0.3 μm of that prior to immersion.

(57) 要約: 黒鉛粉末、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤および内部離型剤を含む組成物を成形してなる成形体の表面をレーザーで照射して得られ、下記(1)～(6)の特性を備える燃料電池セパレータ。これによれば、ガス供給排出用流路となる溝を表面に設けてなる燃

料電池セパレータの導電性および親水性を向上できるとともに、溶出性を低減することができる。

[続葉有]

WO 2012/032922 A1



(1) 表面のレーザ照射による残渣が、面積比で5%以下 (2) 表面の算術平均粗さ R_a 0.80~1.50 μm (3) 表面の静的接触角 $15\sim 60^\circ$ (4) 表面の接触抵抗 $3\sim 7\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ (5) イオン交換水：セパレータ=9：1（質量比）の条件で、セパレータをイオン交換水に 90°C で168時間浸漬した後の導電率 $1.2\ \mu\text{S}/\text{cm}$ 以下 (6) 90°C のイオン交換水および 150°C のイオン交換水のそれぞれに2000時間浸漬したときの表面粗さの変化が、浸漬前に対して $0.3\ \mu\text{m}$ 以内

明 細 書

発明の名称：燃料電池セパレータ

技術分野

[0001] 本発明は、燃料電池セパレータに関する。

背景技術

[0002] 燃料電池セパレータは、各単位セルに導電性を持たせる役割、並びに単位セルに供給される燃料および空気（酸素）の通路を確保するとともに、それらの分離境界壁としての役割を果たすものである。

このため、セパレータには、高導電性、高ガス不浸透性、化学的安定性、耐熱性および親水性などの諸特性が要求される。

これらの諸特性のうち、導電性や親水性を高めるための手法として、特許文献1～6に開示された方法などが知られている。

[0003] 例えば、特許文献1および2には、ブラスト処理によって表面を親水化したセパレータが開示されている。

しかし、特許文献1，2では、ブラストのみによって親水化処理していることから、セパレータ表面に存在する離型剤や樹脂成分が十分に除去できない。このため、セパレータ同士を接着する際や、セパレータにフッ素樹脂系のガスケット材を成形する際の加熱処理によって離型剤や樹脂成分に含まれる揮発分等が滲み出し、セパレータ表面を汚染するという問題があった。

[0004] 特許文献3には、表面をブラスト処理した後にプラズマ処理して親水基を導入したセパレータが開示されている。

しかし、特許文献3の手法によってセパレータ表面に導入された親水基は、セパレータ同士を接着する際や、セパレータにフッ素樹脂系のガスケット材を成形する際の加熱処理によって消失してしまうという問題や、特許文献3の方法では、特許文献1，2の場合と同様に、離型剤や樹脂成分に含まれる揮発分等が滲み出し、セパレータ表面を汚染するという問題があった。

[0005] 特許文献4には、表面にYAGレーザを照射して樹脂層を炭化させた、導

電性に優れたセパレータが開示されている。

しかし、YAGレーザによる処理では、レーザスポットの中心部の樹脂は炭化されるが、スポットの周辺部には樹脂が残留する結果、接触抵抗を十分に低減し得ないという問題や、残留した樹脂成分が発電中に溶出するという問題があった。

[0006] 特許文献5には、表面に出力3～15W、パルス幅50 μ sのレーザを照射して表面に親水基を導入したセパレータが開示されている。

しかし、この処理では、用いるレーザのパルス幅が長いため、ピークパワーが低く、セパレータの表面を処理するのに時間がかかり過ぎて加工中にセパレータが加熱される結果、セパレータに反りが発生するという問題があった。

[0007] 特許文献6には、セパレータのガス流路溝の内面に赤外線レーザを照射して溝の内面に親水基を導入したセパレータが開示されている。

しかし、このセパレータでは、ガス拡散電極と接する面がレーザ処理されていないため、燃料電池発電時に空気極で生成した水が、ガス拡散電極を通過して燃料極へ拡散する際に電極とセパレータとの間で詰まりを起こすという問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特許第4257544号公報

特許文献2：特開2005-197222号公報

特許文献3：特開2006-331673号公報

特許文献4：特開2004-335121号公報

特許文献5：特許第4148984号公報

特許文献6：特開2009-152176号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、このような事情に鑑みてなされたものであり、ガス供給排出用流路となる溝を表面に設けてなる燃料電池セパレータにおいて、高い導電性および高い親水性を有するとともに、溶出性の低い燃料電池セパレータを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者は、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、所定の出力およびパルス幅の条件で表面をレーザ処理することで、高い導電性および親水性を有するとともに、溶出性の低い燃料電池セパレータが得られることを見出し、本発明を完成した。

[0011] すなわち、本発明は、

1. 黒鉛粉末、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤および内部離型剤を含む組成物を成形してなる成形体の表面をレーザで照射して得られ、下記(1)～(6)の特性を備えることを特徴とする燃料電池セパレータ、

(1) 表面のレーザ照射による残渣が、面積比で5%以下

(2) 表面の算術平均粗さ R_a 0.80～1.50 μm

(3) 表面の静的接触角15～60°

(4) 表面の接触抵抗3～7 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$

(5) イオン交換水：セパレータ=9：1（質量比）の条件で、セパレータをイオン交換水に90℃で168時間浸漬した後の導電率1.2 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下

(6) 90℃のイオン交換水および150℃のイオン交換水のそれぞれに2000時間浸漬したときの表面粗さの変化が、浸漬前に対して0.3 μm 以内

2. 表面局部山頂の平均間隔 S が、30～50 μm である1の燃料電池セパレータ、

3. 反りが、100 μm 以下である1または2の燃料電池セパレータ、

4. 前記レーザの照射後の表面を全反射赤外吸光法(ATR)で分析して得られた赤外吸収スペクトルに、エポキシ樹脂およびフェノール樹脂に帰属

する吸収帯が存在しない 1～3 のいずれかの燃料電池セパレータ、

5. 前記レーザの照射が、ラップ率 5～50%で行われる 1～4 のいずれかの燃料電池セパレータ、

6. 前記レーザのエネルギー分布が、フラットトップである 1～5 のいずれかの燃料電池セパレータ、

7. 前記レーザが赤外線レーザである 1～6 のいずれかの燃料電池セパレータ

を提供する。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、高い導電性および親水性を有するとともに、溶出性の低い燃料電池セパレータを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]燃料電池セパレータ表面を、全反射赤外吸光法（ATR）で分析して得られた赤外吸収スペクトル図であり、上段が実施例 1 で得られた燃料電池セパレータの測定結果を、中段が実施例 5 で得られた燃料電池セパレータの測定結果を、下段が比較例 1 で得られた燃料電池セパレータの測定結果を示している。

[図2]比較例 8 の燃料電池セパレータの表面のデジタル画像である。不定形な矩形状塊の表面で、灰色様の被覆物がレーザ照射後の残渣である。光学顕微鏡下ではこの灰色様被覆物は薄茶色～茶色を呈している。

[図3]比較例 8 の燃料電池セパレータの表面のデジタル画像を画像処理し、茶色領域を抽出、二値化したものである。

[図4]実施例 4 の燃料電池セパレータの表面のデジタル画像である。不定形な矩形状塊の表面には、灰色様の被覆物（レーザ照射後の残渣）はほとんど見られない。

[図5]実施例 4 の燃料電池セパレータの表面のデジタル画像を画像処理し、茶色領域を抽出、二値化したものである。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明についてさらに詳しく説明する。

本発明に係る燃料電池セパレータは、黒鉛粉末、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤および内部離型剤を含む組成物を成形してなる成形体の表面をレーザで照射して得られ、下記（１）～（６）の特性を備えるものである。

（１）表面のレーザ照射による残渣が、面積比で５％以下

（２）表面の算術平均粗さ $R_a 0.80 \sim 1.50 \mu m$

（３）表面の静的接触角 $15 \sim 60^\circ$

（４）表面の接触抵抗 $3 \sim 7 m\Omega \cdot cm^2$

（５）イオン交換水：セパレータ＝９：１（質量比）の条件で、セパレータをイオン交換水に $90^\circ C$ で 168 時間浸漬した後の導電率 $1.2 \mu S/cm$ 以下

（６） $90^\circ C$ のイオン交換水および $150^\circ C$ のイオン交換水のそれぞれに 2000 時間浸漬したときの表面粗さの変化が、浸漬前に対して $0.3 \mu m$ 以内

[0015] 本発明に用いるレーザの種類としては、出力 $100 \sim 200 W$ 、パルス幅 $30 \sim 200 ns$ の条件で発振できるものであれば、特に限定されるものではなく、例えば、YAGレーザ、炭酸ガスレーザ、エキシマレーザ、ファイバーレーザなどが挙げられる。これらの中でも、焦点深度、集光性、発信機の寿命の点からファイバーレーザが好ましい。

また、レーザの波長は特に限定されるものではなく、赤外線、可視光線、紫外線、X線等の各種波長のレーザを用いることができるが、本発明においては、特に赤外線レーザが好適である。この場合、赤外線レーザの波長は、 $0.810 \sim 1.095 \mu m$ 程度が好ましい。

[0016] レーザの照射条件は、上述のとおり、出力 $100 \sim 200 W$ 、パルス幅 $30 \sim 200 ns$ である。出力が $100 W$ 未満であると、セパレータ最表層の樹脂成分を除去することが困難となり、 $200 W$ を超えると加工中にセパレータが加熱されて反りが発生し、その結果、接触抵抗が高くなる虞がある。

一方、パルス幅が30 ns未満であると、パルスエネルギーが高くなりすぎて、加工中にセパレータが加熱されて反りが発生する虞があり、パルス幅が200 nsを超えるとパルスエネルギーが低く加工に時間がかかるため、加工中のセパレータの蓄熱により、この場合も反りが発生する虞がある。反りの発生をより低減することを考慮すると、パルス幅は30~150 nsが好ましく、30~120 nsがより好ましく、30~60 nsがより一層好ましい。

[0017] また、本発明に用いられるレーザは、プロファイラーで測定したときのエネルギー分布がフラットトップであることが好ましい。

エネルギー分布がガウスモードであると、レーザスポットの中心部と外周部とのエネルギー密度に差があるため、表面を均一に処理することが難しく、粗さムラが発生したり、樹脂成分が残留したりする虞があるが、フラットトップにはこれらの欠点がない。

さらに、レーザ照射のスポットのラップ率は5~50%が好ましく、30~40%がより好ましい。ラップ率が5%未満であると、セパレータの表層の樹脂の除去が不十分となって導電性や親水性が低下する場合があります、ラップ率が50%を超えると、照射部を深く削ってしまう場合がある。

[0018] 以上のような条件のレーザ照射処理によって得られる本発明の燃料電池セパレータは、レーザの照射後の表面を全反射赤外吸光法(ATR)で分析して得られた赤外吸収スペクトルに、エポキシ樹脂およびフェノール樹脂に帰属する吸収帯が存在しない(確認できない)程度まで、表層の樹脂成分が除去されているうえに、上記特許文献4で見られるような、レーザ照射後の表面の残渣(樹脂組成物が炭化・分解して表面に残った部分)が、目視にて極めて少ないか、全く見られないものであり、上述した(1)~(6)の特性を備えている。ここで、上記表面の残渣は、軽く触れた程度ではセパレータ表面から分離しないものであるが、長時間稼動する燃料電池の環境下では表面から脱落する虞がある。そして、この残渣が面積比で5%超えると、残渣が脱落することにより、セパレータの表面粗さが大きくなり、電極とセパレ

一タとの接触面積が小さくなって、接触抵抗が高くなる虞がある。加えて、残渣から樹脂成分の分解物や可溶成分が発電中に溶出する虞もある。

セパレータ表面の残渣はない（0%）方が好ましいが、レーザの過剰な照射は必要なく、より好ましくは3%以下、特に2%以下である。

[0019] また、上記表面の算術平均粗さ R_a が $0.80 \mu\text{m}$ 未満であると、最表層に残留した樹脂成分の影響で導電性や親水性が低下し、また、 R_a が $1.50 \mu\text{m}$ を超えると、親水性は向上するものの、セパレータ表面から黒鉛粉が脱落し易くなり、その結果、セパレータ表面の導電性が低下して、電極とセパレータとの接触抵抗が高くなる虞がある。

より好ましい R_a は、 $0.9 \sim 1.4 \mu\text{m}$ 、特に、 $1.0 \sim 1.3 \mu\text{m}$ である。

[0020] なお、この場合、セパレータの局部山頂の平均間隔 S は、 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ が好ましく、 $35 \sim 45 \mu\text{m}$ がより好ましい。上記の算術平均粗さ R_a を上述した範囲とし、さらに局部山頂の平均間隔 S をこの範囲とすることで、セパレータ表面の親水性をより高めることができる。

[0021] さらに、本発明の燃料電池セパレータにおいて、接触抵抗をより低減することを考慮すると、後に詳述する手法で測定した反りは、 $100 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $80 \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $70 \mu\text{m}$ 以下であることがより一層好ましい。

この点、上述した本発明のレーザ照射条件で処理した場合、上記範囲を満たすような反りの小さいセパレータを容易に得ることができる。

[0022] そして、本発明の燃料電池セパレータは、静的接触角 $15 \sim 60^\circ$ 、かつ、接触抵抗 $3 \sim 7 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ という高い親水性および導電性を備えているものであるが、より親水性および導電性を高めるという点から、静的接触角 $15 \sim 58^\circ$ 、特に、 $20 \sim 56^\circ$ 、かつ、接触抵抗 $4 \sim 7 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ であることが好ましいが、本発明の表面処理条件を用いることで、これらの範囲を満たす燃料電池セパレータを容易に得ることができる。

[0023] また、本発明の燃料電池セパレータは、イオン交換水：セパレータ = 9 :

1 (質量比) の条件で、セパレータをイオン交換水に90℃で168時間浸漬した後の導電率が $1.2 \mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であり、さらに、90℃のイオン交換水および150℃のイオン交換水のそれぞれに2000時間浸漬したときの表面粗さの変化が浸漬前に対して $0.3 \mu\text{m}$ 、場合によっては $0.2 \mu\text{m}$ 以内という、溶出や黒鉛微小粒子の脱落等の少ないものである。

[0024] さらに、本発明の燃料電池セパレータのガラス転移点は、140~165℃であることが好ましく、150~165℃であることがより好ましい。140℃以上であれば、セパレータの反りは、その厚みによらずスタックを組む際の許容できる範囲内に収まり、耐熱性も十分である。一方、165℃以下であれば、樹脂成分の架橋密度が適度であるため、セパレータが適度な柔軟性を有し、燃料電池スタック積層時のセパレータの破損を効果的に防止できる。

[0025] 本発明の燃料電池セパレータの製造に用いる黒鉛材料は、例えば、天然黒鉛、針状コークスを焼成した人造黒鉛、塊状コークスを焼成した人造黒鉛、電極を粉砕したもの、石炭系ピッチ、石油系ピッチ、コークス、活性炭、ガラス状カーボン、アセチレンブラック、ケッチェンブラックなどが挙げられる。これらはそれぞれ単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0026] 黒鉛材料の平均粒径 ($d = 50$) は、特に限定されるものではないが、黒鉛粒子間の空隙を適度に保ち、黒鉛粒子同士の接触面積をより大きくし、かつ、樹脂消失後の凹凸の発生を抑制して導電性を高める (接触抵抗を低下させる) ことを考慮すると、 $10 \sim 130 \mu\text{m}$ が好ましく、 $20 \sim 110 \mu\text{m}$ がより好ましく、 $20 \sim 70 \mu\text{m}$ がより一層好ましく、 $30 \sim 60 \mu\text{m}$ がさらに好ましい。

すなわち、黒鉛粒子の平均粒径が $10 \mu\text{m}$ 以上であれば、セパレータにレーザを照射した際に、セパレータ表層の樹脂を消失させてセパレータ表面の導電性を向上させることができるとともに、セパレータ内部の黒鉛粒子同士の接触面積を十分に保てるため、セパレータの厚み方向の導電性をも改善し

得る。

また、平均粒径が $130\mu\text{m}$ 以下であれば、黒鉛粒子間の空隙が適度であるため、セパレータ表面上の黒鉛粒子間の空隙に充填されていた樹脂がレーザー照射により消失しても、セパレータ表面に大きな凹凸が形成されることはなく、その結果、セパレータ表面の接触抵抗が高くなってセパレータ自体の導電性が悪化することもない。

さらに、平均粒径 ($d = 50$) が $10\sim 130\mu\text{m}$ の範囲に調整された黒鉛粉末を含む組成物を成形してなる燃料電池セパレータであれば、レーザー照射することによって、その表層の黒鉛粒子間の樹脂を消失させることにより、セパレータの表面粗さを前述した算術平均粗さ R_a 、および局部山頂の平均間隔 S に調整できるので、その結果、親水性に優れるとともに、接触抵抗の低いセパレータとすることができる。

[0027] 本発明の燃料電池セパレータの親水性向上の効果、および接触抵抗低減の効果、をより一層高めるためには、使用する黒鉛材料の平均粒径 ($d = 50$) が $10\sim 130\mu\text{m}$ の範囲であれば、粒径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粉の含有量が5%以下、かつ、粒径 $200\mu\text{m}$ 以上の粗粉の含有量が3%以下であるものがより好ましく、さらには、平均粒径 ($d = 50$) が $30\sim 60\mu\text{m}$ の範囲であれば、粒径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粉の含有量が3%以下、かつ、粒径 $200\mu\text{m}$ 以上の粗粉が1%以下であるものが一層好ましい。

[0028] また、エポキシ樹脂としては、エポキシ基を有するものであれば特に制限されず、例えばオークレゾールノボラック型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂などが挙げられる。これらの中でも、オークレゾールノボラック型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂が好ましく、オークレゾールノボラック型エポキシ樹脂がより好ましい。

[0029] 得られる燃料電池セパレータの耐熱性をより高めるためには、エポキシ樹脂のエポキシ当量は、 $180\sim 210\text{g}/\text{eq}$ が好ましく、 $185\sim 205$

g/eq がより好ましく、 $190\sim 200 g/eq$ がより一層好ましい。

さらに、得られる燃料電池セパレータの耐熱性をより高めるとともに、成形加工性を良好にするためには、エポキシ樹脂の $150^{\circ}C$ におけるICI粘度は、 $0.15\sim 0.80 Pa\cdot s$ が好ましく、 $0.17\sim 0.75 Pa\cdot s$ がより好ましく、 $0.24\sim 0.70 Pa\cdot s$ がより一層好ましい。この範囲のICI粘度のエポキシ樹脂を用いることで、樹脂の分子量が適性になるため、得られる燃料電池セパレータの耐熱性が良好になるとともに、樹脂の流動性が良好であるため成形時の圧力が低くできる等、成形加工性も良好になる。

[0030] フェノール樹脂としては、ノボラック型フェノール樹脂、クレゾール型フェノール樹脂、アルキル変性フェノール樹脂が挙げられる。これらはそれぞれ単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

本発明の燃料電池セパレータにおいて、フェノール樹脂はエポキシ樹脂の硬化剤として作用する。フェノール樹脂の水酸基当量としては、特に限定されるものではないが、得られるセパレータの耐熱性をより高めるためには、水酸基当量 $103\sim 106 g/eq$ が好ましい。

さらに、得られる燃料電池セパレータの耐熱性をより高めるとともに、成形加工性を良好にするためには、フェノール樹脂の $150^{\circ}C$ におけるICI粘度は、 $0.15\sim 0.70 Pa\cdot s$ が好ましく、 $0.20\sim 0.60 Pa\cdot s$ がより好ましく、 $0.30\sim 0.50 Pa\cdot s$ がより一層好ましい。この範囲のICI粘度のフェノール樹脂を用いることにより、樹脂の分子量が適正になり、得られる燃料電池セパレータの耐熱性が良好になるとともに、樹脂の流動性が良好であるため成形時の圧力が低くできる等、成形加工性も良好になる。

[0031] 硬化促進剤としては、エポキシ基と硬化剤との反応を促進するものであれば特に制限されず、トリフェニルホスフィン (TPP)、テトラフェニルホスフィン、ジアザビシクロウンデセン (DBU)、ジメチルベンジルアミン (BDMA)、2-メチルイミダゾール、2-メチル-4-イミダゾール、

2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾールなどが挙げられ、これらはそれぞれ単独で、または2種以上を組合せて用いることができる。

内部離型剤としても、特に限定されるものではなく、従来、セパレータの成形に用いられている各種内部離型剤が挙げられる。例えば、ステアリン酸系ワックス、アマイド系ワックス、モンタン酸系ワックス、カルナバワックス、ポリエチレンワックス等が挙げられ、これらはそれぞれ単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0032] 黒鉛粉末、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤および内部離型剤を含む組成物（以下、燃料電池セパレータ用組成物という）中における、エポキシ樹脂およびフェノール樹脂の総含有量は、特に限定されるものではないが、黒鉛粉末100質量部に対して10～30質量部、特に、15～25質量部であることが好ましい。

また、燃料電池セパレータ用組成物中における内部離型剤の含有量としては、特に限定されるものではないが、黒鉛粉末100質量部に対して0.1～1.5質量部、特に0.3～1.0質量部であることが好ましい。内部離型剤の含有量が0.1質量部未満では離型不良を招く虞があり、1.5質量部を超えると、熱硬化性樹脂の硬化を妨げるなどの問題が生じる虞がある

[0033] 上記燃料電池セパレータ用組成物中において、エポキシ樹脂、フェノール樹脂および硬化促進剤は、バインダー成分を構成する。

この場合、エポキシ樹脂とフェノール樹脂との混合物100質量部に対して、硬化促進剤を0.98～1.02質量部配合することが好ましい。硬化促進剤の配合量が0.98質量部未満であると、バインダー成分の硬化反応が遅くなったり、硬化反応が不十分になったりする虞があり、1.02質量部を超えると、バインダー成分の硬化反応が過敏になるためポットライフが短くなる虞がある。

また、エポキシ樹脂に対してフェノール樹脂を0.98～1.02水酸基当量配合することが好ましい。フェノール樹脂が0.98水酸基当量未満に

なると、未反応のエポキシ樹脂が残存し、発電中に未反応成分が溶出する虞があり、1.02水酸基当量を超えると、未反応のフェノール樹脂が残存し、発電中に未反応成分が溶出する虞がある。

[0034] 本発明の燃料電池セパレータは、上記燃料電池セパレータ用組成物を調製し、この組成物を成形した後、その表面を上述したレーザ照射処理して得ることができる。この場合、組成物の調製方法および成形体の成形方法としては、従来公知の種々の方法を用いることができる。

組成物の調製は、例えば、上述のバインダー成分樹脂、黒鉛材料および内部離型剤のそれぞれを任意の順序で所定割合混合して調製すればよい。この際、混合機としては、例えば、プラネタリミキサ、リボンブレンダ、レディゲミキサ、ヘンシェルミキサ、ロックンミキサ、ナウターミキサ等を用いることができる。

成形体の成形方法としては、射出成形、トランスファー成形、圧縮成形、押出成形、シート成形等を採用することができる。成形時に金型を使用する際は、成形体の表面の一方の面または両面にガス供給排出用流路となる溝を形成できる、燃料電池セパレータ作製用の金型を使用するとよい。

[0035] 以上で説明した本発明の固体高分子型燃料電池セパレータは、極めて高い親水性を有するとともに、接触抵抗が低く抑えられているから、このセパレータを備えた燃料電池は、長期に亘って安定した発電効率を維持することができるものである。また、本発明のセパレータは、表面処理による残渣が極めて少ないので、溶出性が非常に低く、燃料電池の性能を低下させることがないものである。

一般的に固体高分子型燃料電池は、固体高分子膜を挟む一对の電極と、これらの電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一对のセパレータとから構成される単位セルが多数並設されてなるものであるが、これら複数個のセパレータの一部または全部として本発明の固体高分子型燃料電池セパレータを用いることができる。

実施例

[0036] 以下、実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。

以下の実施例における各物性は以下の方法によって測定した。なお、以下の説明において、

[1] 平均粒径

粒度分布測定装置（日機装（株）製）により測定した。

[2] 表面特性（ R_a 、 R_{Sm} 、 S 値）

プローブ先端径 $5\ \mu\text{m}$ の表面粗さ計（型番サーフコム 14000、（株）東京精密製）を用いて、JIS B0601 2001 に準拠した方法により測定した。

[3] 接触抵抗

(1) カーボンペーパー＋セパレータサンプル

作製した各セパレータサンプルを 2 枚重ね合わせ、その上下にカーボンペーパー（TGP-H060、東レ（株）製）を配置し、さらにその上下に銅電極を配置し、上下方向に $1\ \text{MPa}$ の面圧をかけ、4 端子法により電圧を測定した。

(2) カーボンペーパー

カーボンペーパーの上下に銅電極を配置し、上下方向に $1\ \text{MPa}$ の面圧をかけ、4 端子法により電圧を測定した。

(3) 接触抵抗算出方法

上記 (1)、(2) で求めた各電圧値よりセパレータサンプルとカーボンペーパーとの電圧降下を求め、下記式により接触抵抗を算出した。

$$\text{接触抵抗} = (\text{電圧降下} \times \text{接触面積}) / \text{電流}$$

[4] 接触角

接触角計（協和界面化学（株）製、CA-DT・A 型）により測定した。

[5] 赤外線吸光分析

作製した各セパレータのレーザ照射処理面を、フーリエ変換赤外分光装置（サーモフィッシャー製 Nicolet is10 FT-IR）にて、ス

キャン回数32回の条件で、全反射赤外吸光法により測定した。

[6] 反り

JIS B 7517に準じ、圧縮成形して得られた200mm角のセパレータを定盤上に置き、ハイトゲージを用いて最大値と最小値を測定し、これらの差を反りとした。

[7] 溶出性試験

イオン交換水：セパレータ＝9：1（質量比）の条件で、90℃、168時間、セパレータを浸漬して得られた抽出水の導電率を25～30℃で測定した。

[8] 浸漬後の粗さ測定

(1) イオン交換水：セパレータ＝9：1（質量比）の条件で、90℃、2000時間、浸漬した後のセパレータの表面粗さを測定した。

(2) イオン交換水：セパレータ＝9：1（質量比）の条件で、150℃、の2000時間、浸漬した後のセパレータの表面粗さを測定した。

[9] セパレータ表面の残渣が占める面積の確認

光学顕微鏡（型番：LEXT OLS4000、光源：落射用白色LED、オリンパス（株）製）を用いて、セパレータのレーザ照射処理面を倍率1000倍に拡大し、レーザ照射処理面の任意の5箇所からそれぞれ258μm四方のカラーデジタル画像を得た。得られたカラーデジタル画像それぞれについて、CIE1976（L*a*b*）表色系でL値が48～75、a値が8～10、b値が10～15の茶色領域（残渣部分）を色抽出、二値化変換し、その面積を計測して、画像全体に占める茶色領域の面積比を百分率で求めた。画像それぞれの面積比を平均して、セパレータ表面の残渣が占める面積とした。

[10] ガラス転移点

熱分析装置（セイコーインスツルメンツ社製、TMA6100）を使用し、昇温速度1℃/min、荷重5gの条件で測定を行い、得られた熱膨張係数の変曲点をガラス転移点とした。

[11] ICI粘度

コーン／プレートタイプのICI粘度計を用いて150℃における熔融粘度を測定した。ICI粘度計の測定コーンを試料粘度に応じて選択し、樹脂試料をセットし、90秒後にコーンを回転させ、コーン回転開始から30秒後に、粘度計の指示値を読み取った。

[0037] [実施例1～5, 比較例1～3]

針状コークスを焼成して得られた人造黒鉛粉末（平均粒径：粒度分布d50にて60 μ m）100質量部、オークレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量：210g/eq、ICI粘度：0.7Pa \cdot s）16質量部とノボラック型フェノール樹脂（水酸基当量：104g/eq、ICI粘度：0.7Pa \cdot s）8質量部と2-ヘプタデシルイミダゾール0.24質量部とからなるバインダー成分樹脂、および内部離型剤であるカルナバワックス0.5質量部をヘンシェルミキサ内に投入し、1000rpmで3分間混合して燃料電池セパレータ用組成物を調製した。

得られた燃料電池セパレータ用組成物を燃料電池セパレータ作製の金型に投入し、金型温度185℃、成形圧力20MPa、成形時間30秒の条件により圧縮成形し、200mm \times 200mm、厚さ2mmの成形体を得た。得られた成形体のガス供給排出用流路となる溝が設けられた面に、波長1.06 μ m、出力200W、パルス幅60nsの出力条件により、表1に示した各ラップ率でファイバーレーザを照射し、燃料電池セパレータを得た。

[0038]

[表1]

	実施例					比較例		
	1	2	3	4	5	1	2	3
ラップ率 (%)	5	15	25	37	50	-15	0	60
ビームのエネルギー分布	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ	フラット トップ
エポキシ樹脂及びフェノール樹脂の 特性吸収の有無	無	無	無	無	無	有り	有り	無
セパレータ表面の残渣 (%)	1	2	2	3	5	1	2	12
セパレータの反り (μm)	40	30	20	50	50	40	40	40
接触抵抗 ($\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$)	7	6	4	4	5	10	10	10
静的接触角 ($^\circ$)	56	48	40	36	15	75	70	15
抽出水の導電率 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	1.2	1.0	1.2	1.0	1.0	1.0	0.9	1.0
表面粗さRa (μm)	0.81	0.91	1.00	1.30	1.50	0.56	0.77	1.80
RSm (μm)	90	93	88	91	131	125	120	148
S (μm)	39	36	40	43	47	38	40	49
90℃2000時間浸漬後の Ra (μm)	0.85	0.93	1.10	1.30	1.50	0.57	0.79	2.00
150℃2000時間浸漬後の Ra (μm)	0.87	0.94	1.10	1.40	1.60	0.57	0.79	2.40
ガラス転移点 ($^\circ\text{C}$)	163	163	163	163	163	163	163	163

[0039] 表1に示されるように、ラップ率5～50%の条件でレーザを照射して得られた実施例1～5の燃料電池セパレータでは、照射表面の算術平均粗さRaが0.80～1.50 μm 、局部山頂の平均間隔Sが30～50 μm に粗面化されており、かつ、セパレータ表面の樹脂の特性吸収が確認できない程度まで樹脂が除去されているので、4～7 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ の低い接触抵抗と、15～60 $^\circ$ の低い接触角という、高い導電性と親水性を有していることがわかる。

[0040] 一方、ラップ率0%以下の条件でレーザを照射して得られた比較例1, 2の燃料電池セパレータでは、照射表面の算術平均粗さRaが0.80 μm 以下であり、セパレータ表面に樹脂成分が残存しているため、接触抵抗が10 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ と高く、また、接触角も70 $^\circ$ 以上と高い値であることがわかる。

。

また、ラップ率60%の条件でレーザを照射して得られた比較例3の燃料電池セパレータでは、実施例1～5と同程度に照射表面の樹脂成分が除去されており、接触角も15°と高い親水性を有しているが、照射表面の表面粗さRaが1.8と高い値を示している。このことは、セパレータ表面から黒鉛粉が脱落し易くなっており、その結果、電極とセパレータとの接触面積が小さくなって接触抵抗が高くなったものと考えられる。

[0041] さらに、実施例1～5および比較例1～2で得られた燃料電池セパレータでは、セパレータ表面の残渣が全て5%以下であって目視では表面に樹脂が炭化されてできたような残渣は確認できないため、溶出が少なく、熱水浸漬後の粗さの変化が小さいことがわかる。

なお、実施例4で得られた燃料電池セパレータの表面のデジタル画像を図4に、それを画像処理し、茶色領域を抽出、二値化した画像を図5に示す。

一方、比較例3で得られた燃料電池セパレータでは、セパレータ表面の残渣が12%と高いため、溶出は少ないものの、熱水浸漬によって黒鉛粉が脱落し、粗さの変化が大きいことがわかる。

[0042] [実施例6～10, 比較例4～6]

実施例1と同様の燃料電池セパレータ用組成物を調製し、これを同条件で成形して得られた成形体の表面に、波長1.06 μ mのファイバーレーザを、ラップ率35%の条件で、表2に示したレーザ出力条件にて照射して燃料電池セパレータを得た。

[0043] [比較例7, 8]

実施例1と同様の燃料電池セパレータ用組成物を調製し、これを同条件で成形して得られた成形体の表面に、波長1.06 μ mのYAGレーザを、ラップ率35%の条件で、表2に示したレーザ出力条件により照射して燃料電池セパレータを得た。

[0044]

[表2]

	実施例					比較例				
	6	7	8	9	10	4	5	6	7	8
出力 (W)	100	200	150	200	200	200	200	250	140	15
パルス幅	30ns	60ns	120ns	120ns	200ns	20ns	250ns	60ns	120ns	50 μ s
ビームのエネルギー分布	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	フラットトップ	ガウスモード	ガウスモード
エポキシ樹脂及びフェノール樹脂の特性吸収の有無	無	無	無	無	無	無	無	無	無	無
セパレータ表面の残渣(%)	2	3	3	2	2	3	3	10	9	38
セパレータの反り (μ m)	70	30	20	50	80	130	150	200	50	300
接触抵抗 ($m\Omega \cdot cm^2$)	4	3	5	7	7	14	18	20	10	25
静的接触角 ($^{\circ}$)	32	20	20	40	40	20	20	20	20	20
抽出水の導電率 (μ S/cm)	1.2	1.0	1.2	1.0	1.0	1.2	1.2	1.0	3.2	4.2
表面粗さRa (μ m)	1.00	1.20	1.30	1.00	1.00	1.30	1.30	1.60	1.00	3.50
90℃2000時間浸漬後のRa (μ m)	1.00	1.20	1.30	1.10	1.10	1.30	1.30	1.80	1.50	5.20
150℃2000時間浸漬後のRa (μ m)	1.00	1.30	1.40	1.20	1.20	1.40	1.40	2.00	2.10	8.30
ガラス転移点 ($^{\circ}$ C)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163

[0045] 表2に示されるように、実施例6～10の条件でファイバーレーザを照射して得られた燃料電池セパレータは、反りが100 μ m以下であり、かつ、セパレータ表面の樹脂の特性吸収が確認できない程度まで樹脂が除去されているので、3～7 $m\Omega \cdot cm^2$ の低い接触抵抗と、15～60 $^{\circ}$ の低い接触角という、高い導電性と親水性を有していることがわかる。また、このセパレータは、表面の残渣が3%以下であり、目視にて表面に樹脂の炭化物等の残渣が確認できない程少ないので、90 $^{\circ}$ Cのイオン交換水に168時間浸漬させたときの導電率が1.5 μ S/cm以下と、化学的安定性に優れ、90 $^{\circ}$ C

および150℃のイオン交換水に2000時間浸漬させた後であっても、表面粗さの変化が殆ど生じず、安定であることがわかる。

[0046] 一方、比較例4の条件でファイバーレーザを照射したセパレータは、パルス幅が20nsとパルスエネルギーが高いので、加工中にセパレータが加熱されて反りが生じ、その結果、接触抵抗が高くなっていることがわかる。

比較例5の条件でファイバーレーザを照射したセパレータは、パルス幅が250nsとパルスエネルギーが低いので、加工に時間がかかって加工中にセパレータが蓄熱されて反りが生じ、その結果、接触抵抗が高くなっていることがわかる。

比較例6の条件でファイバーレーザを照射したセパレータは、250Wと高出力であるため、加工中にセパレータが加熱されて反りが生じ、その結果、接触抵抗が高くなっていることがわかる。

[0047] 比較例7の条件でYAGレーザを照射したセパレータは、レーザビームのエネルギー分布がガウスモードとなるため、残渣が9%であり、目視にてセパレータ表面に樹脂の炭化物等が残留していることが確認でき、90℃のイオン交換水に168時間浸漬させたときの導電率が $3.2\mu\text{S}/\text{cm}$ と、溶出が多いことがわかる。また、このセパレータをさらに2000時間浸漬すると、セパレータ表面から、樹脂の残渣が脱落し、表面粗さRaが $1.0\mu\text{m}$ から $1.5\mu\text{m}$ に増大していることがわかる。

比較例8の条件でYAGレーザを照射したセパレータは、パルス幅が $50\mu\text{s}$ とパルスエネルギーが低いので、加工に時間がかかって加工中にセパレータが蓄熱されて反りが生じ、その結果、接触抵抗が高くなっていることがわかる。また、この場合も、図2, 3に示されるように、セパレータ表面に樹脂の炭化物等の残渣が38%と多く存在し、90℃のイオン交換水に168時間浸漬させた後の導電率が $4.2\mu\text{S}/\text{cm}$ と、溶出が多く、90℃のイオン交換水に2000時間浸漬させた後の表面粗さの変化も大きいことがわかる。

[0048] [実施例11]

黒鉛粉末を、人造黒鉛粉末（平均粒径 $10\mu\text{m}$ （ d_{50} ））に変更した以外は、実施例1と同様にして燃料電池セパレータ用組成物を調製し、成形体を得た。

得られた成形体のガス供給排出用流路となる溝が設けられた面に、実施例3と同様の条件でレーザを照射し、燃料電池セパレータを得た。

[0049] [実施例12]

黒鉛粉末を、天然黒鉛粉末（平均粒径 $30\mu\text{m}$ （ d_{50} ））に変更した以外は、実施例11と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0050] [実施例13]

黒鉛粉末を、人造黒鉛粉末（平均粒径 $50\mu\text{m}$ （ d_{50} ））に変更した以外は、実施例11と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0051] [実施例14]

黒鉛粉末を、人造黒鉛粉末（平均粒径 $130\mu\text{m}$ （ d_{50} ））に変更した以外は、実施例11と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0052]

[表3]

	実施例			
	11	12	13	14
黒鉛粒子の平均粒径 (μm)	10	30	50	130
セパレータ表面の残渣 (%)	2	2	2	3
セパレータの反り (μm)	40	40	30	40
接触抵抗 ($\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$)	7	5	4	5
静的接触角 ($^\circ$)	50	26	32	17
抽出水の導電率 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	1.2	1.2	1.0	1.2
表面粗さRa (μm)	0.82	1.00	1.10	1.50
RSm (μm)	90	98	110	131
S (μm)	38	42	44	47
90°C2000時間浸漬後のRa (μm)	1.20	1.20	1.00	1.20
150°C2000時間浸漬後のRa (μm)	1.20	1.20	1.00	1.20
ガラス転移点 ($^\circ\text{C}$)	163	163	163	163

[0053] 表3に示されるように、平均粒径 (d_{50}) が $10\sim 130\ \mu\text{m}$ の黒鉛粉末を使用して得られた実施例11~14の燃料電池セパレータは、照射表面の算術平均粗さRaが $0.82\sim 1.50\ \mu\text{m}$ 、局部山頂の平均間隔Sが $38\sim 50\ \mu\text{m}$ に粗面化され、かつ、セパレータ表面の樹脂の特性吸収が確認できない程度まで樹脂が除去されているので、接触抵抗が $3\sim 7\ \text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ と低く、高い導電性を有していることがわかる。

[0054] [実施例15]

エポキシ樹脂をフェノールノボラック型エポキシ樹脂 (エポキシ当量: 1

83 g/eq、ICI粘度：0.35 Pa·s) 15質量部に、ノボラック型フェノール樹脂の配合量を9質量部にそれぞれ変更した以外は、実施例1と同様にして燃料電池セパレータ用組成物を調製し、成形体を得た。

得られた成形体のガス供給排出用流路となる溝が設けられた面に、実施例3と同様の条件でレーザを照射し、燃料電池セパレータを得た。

[0055] [実施例16]

エポキシ樹脂をフェノールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量：194 g/eq、ICI粘度：0.53 Pa·s）に変更した以外は、実施例15と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0056] [実施例17]

エポキシ樹脂をo-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量：199 g/eq、ICI粘度：0.29 Pa·s）に変更した以外は、実施例15と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0057] [実施例18]

エポキシ樹脂をo-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量：210 g/eq、ICI粘度：0.8 Pa·s）16質量部に、ノボラック型フェノール樹脂の配合量を8質量部にそれぞれ変更した以外は、実施例15と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0058]

[表4]

		実施例			
		15	16	17	18
エポキシ樹脂	タイプ	フェノール ノボラック	フェノール ノボラック	o-クレゾール ノボラック	o-クレゾール ノボラック
	エポキシ当量 (g/eq)	183	194	199	210
	ICI粘度 (Pa·s)	0.35	0.53	0.29	0.8
セパレータ表面の残渣 (%)		2	2	2	2
セパレータの反り (μm)		70	55	50	40
接触抵抗 ($\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$)		5	4	4	3
静的接触角 ($^{\circ}$)		25	30	38	40
抽出水の導電率 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)		1.3	1.2	1.2	1.1
表面粗さRa (μm)		1.20	1.10	1.00	1.00
RSm (μm)		95	92	85	88
S (μm)		52	50	38	43
90°C2000時間浸漬後のRa (μm)		1.20	1.10	1.00	1.00
150°C2000時間浸漬後のRa (μm)		1.20	1.10	1.00	1.00
ガラス転移点 ($^{\circ}\text{C}$)		150	155	160	165

[0059] 表4に示されるように、エポキシ当量180~210g/eq、ICI粘度0.15~0.80Pa·sのエポキシ樹脂を使用して得られた実施例15~18の燃料電池セパレータは、そのガラス転移点が150~165°Cであるため、レーザを照射した後の反りが40~70 μm と低い値に抑えられており、接触抵抗が3~5 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ と低く、高導電性を有していることがわかる。

[0060] [実施例19]

フェノール樹脂をノボラック型フェノール樹脂（水酸基当量：103 g/eq、ICI粘度：0.16 Pa·s）に変更した以外は、実施例1と同様にして燃料電池セパレータ用組成物を調製し、成形体を得た。

得られた成形体のガス供給排出用流路となる溝が設けられた面に、実施例3と同様の条件でレーザを照射し、燃料電池セパレータを得た。

[0061] [実施例20]

フェノール樹脂をノボラック型フェノール樹脂（水酸基当量：104 g/eq、ICI粘度：0.22 Pa·s）に変更した以外は、実施例19と同様にして、燃料電池セパレータを得た。

[0062] [実施例21]

フェノール樹脂をノボラック型フェノール樹脂（水酸基当量：105 g/eq、ICI粘度：0.55 Pa·s）に、エポキシ樹脂の配合量を16質量部にそれぞれ変更した以外は、実施例1と同様にして燃料電池セパレータ用組成物を調製し、成形体を得た。

得られた成形体のガス供給排出用流路となる溝が設けられた面に、実施例3と同様の条件でレーザを照射し、燃料電池セパレータを得た。

[0063] [実施例22]

フェノール樹脂をノボラック型フェノール樹脂（水酸基当量：106 g/eq、ICI粘度：0.67 Pa·s）に変更した以外は、実施例21と同様にして燃料電池セパレータを得た。

[0064]

[表5]

		実施例			
		19	20	21	22
フェノール樹脂	タイプ	ノボラック	ノボラック	ノボラック	ノボラック
	水酸基当量 (g/eq)	103	104	105	106
	ICI粘度 (Pa·s)	0.16	0.22	0.55	0.67
セパレータ表面の残渣 (%)		2	2	2	2
セパレータの反り (μm)		70	55	50	40
接触抵抗 ($\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$)		5	4	4	3
静的接触角 ($^\circ$)		30	28	38	40
抽出水の導電率 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)		1.2	1.0	1.0	1.0
表面粗さRa (μm)		1.10	1.10	1.00	1.00
RSm (μm)		94	91	90	86
S (μm)		46	43	42	39
90°C2000時間浸漬後のRa (μm)		1.10	1.10	1.00	1.00
150°C2000時間浸漬後のRa (μm)		1.10	1.10	1.00	1.00
ガラス転移点 ($^\circ\text{C}$)		155	160	165	165

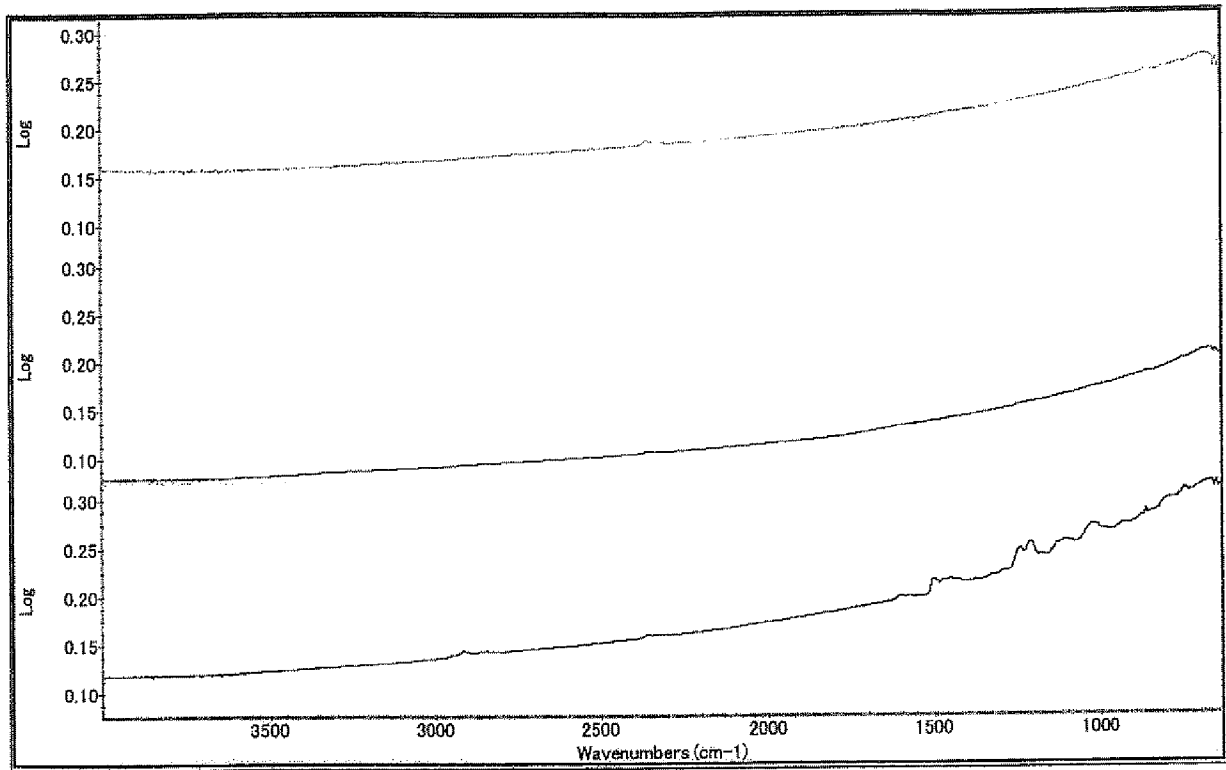
[0065] 表5に示されるように、水酸基当量103~106g/eq、ICI粘度0.15~0.70Pa·sのフェノール樹脂を使用して得られた実施例19~22の燃料電池セパレータは、そのガラス転移点が155~165°Cであるため、レーザを照射した後の反りが40~70 μm と低い値に抑えられており、接触抵抗が3~5 $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ と低く、高い導電性を有していることがわかる。

請求の範囲

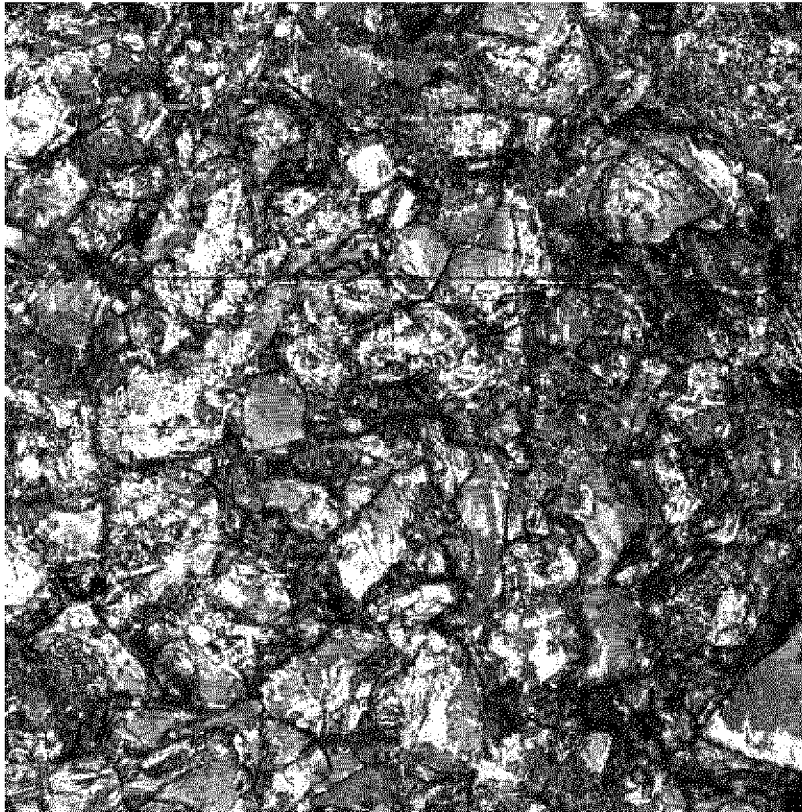
- [請求項1] 黒鉛粉末、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、硬化促進剤および内部離型剤を含む組成物を成形してなる成形体の表面をレーザーで照射して得られ、下記(1)～(6)の特性を備えることを特徴とする燃料電池セパレータ。
- (1) 表面のレーザー照射による残渣が、面積比で5%以下
 - (2) 表面の算術平均粗さ $R_a 0.80 \sim 1.50 \mu m$
 - (3) 表面の静的接触角 $15 \sim 60^\circ$
 - (4) 表面の接触抵抗 $3 \sim 7 m\Omega \cdot cm^2$
 - (5) イオン交換水：セパレータ = 9 : 1 (質量比) の条件で、セパレータをイオン交換水に $90^\circ C$ で 168 時間浸漬した後の導電率 $1.2 \mu S / cm$ 以下
 - (6) $90^\circ C$ のイオン交換水および $150^\circ C$ のイオン交換水のそれぞれに 2000 時間浸漬したときの表面粗さの変化が、浸漬前に対して $0.3 \mu m$ 以内
- [請求項2] 表面局部山頂の平均間隔 S が、 $30 \sim 50 \mu m$ である請求項1記載の燃料電池セパレータ。
- [請求項3] 反りが、 $100 \mu m$ 以下である請求項1または2記載の燃料電池セパレータ。
- [請求項4] 前記レーザーの照射後の表面を全反射赤外吸光法 (ATR) で分析して得られた赤外吸収スペクトルに、エポキシ樹脂およびフェノール樹脂に帰属する吸収帯が存在しない請求項1～3のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。
- [請求項5] 前記レーザーの照射が、ラップ率 $5 \sim 50\%$ で行われる請求項1～4のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。
- [請求項6] 前記レーザーのエネルギー分布が、フラットトップである請求項1～5のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。
- [請求項7] 前記レーザーが赤外線レーザーである請求項1～6のいずれか1項記載

の燃料電池セパレータ。

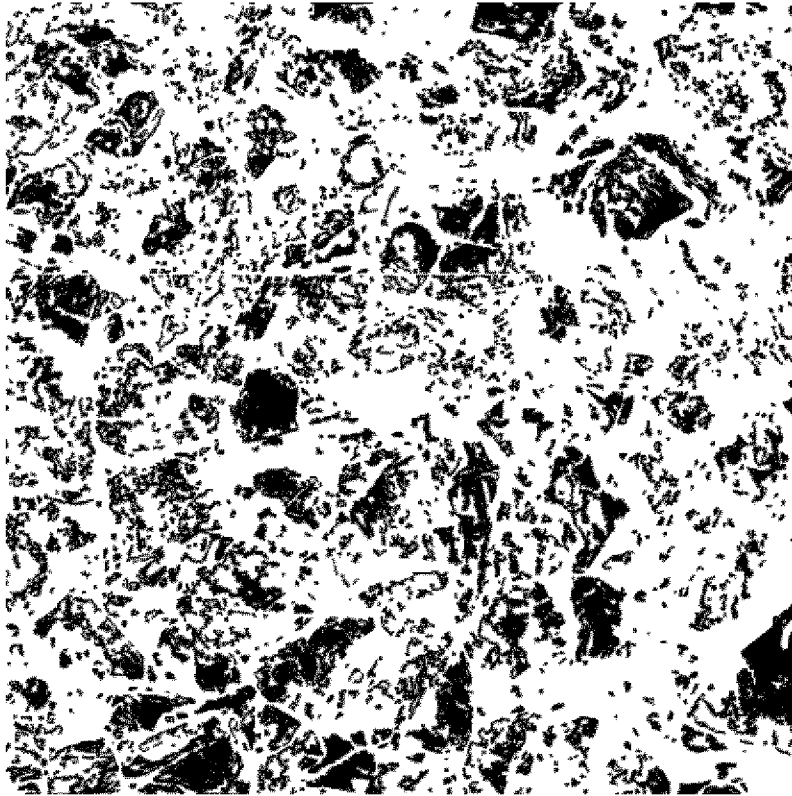
[圖1]



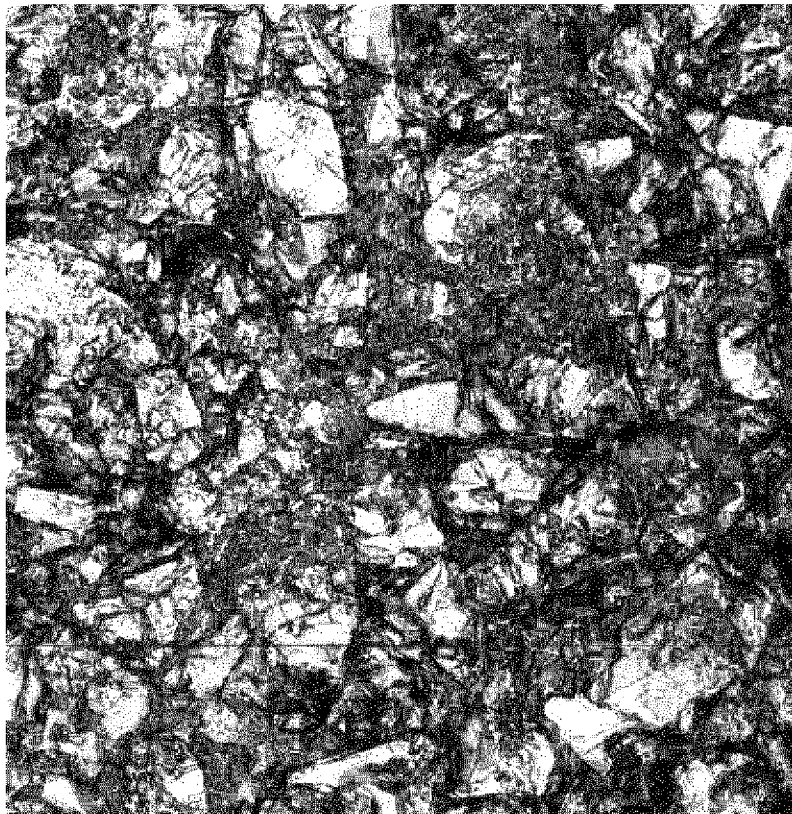
[圖2]



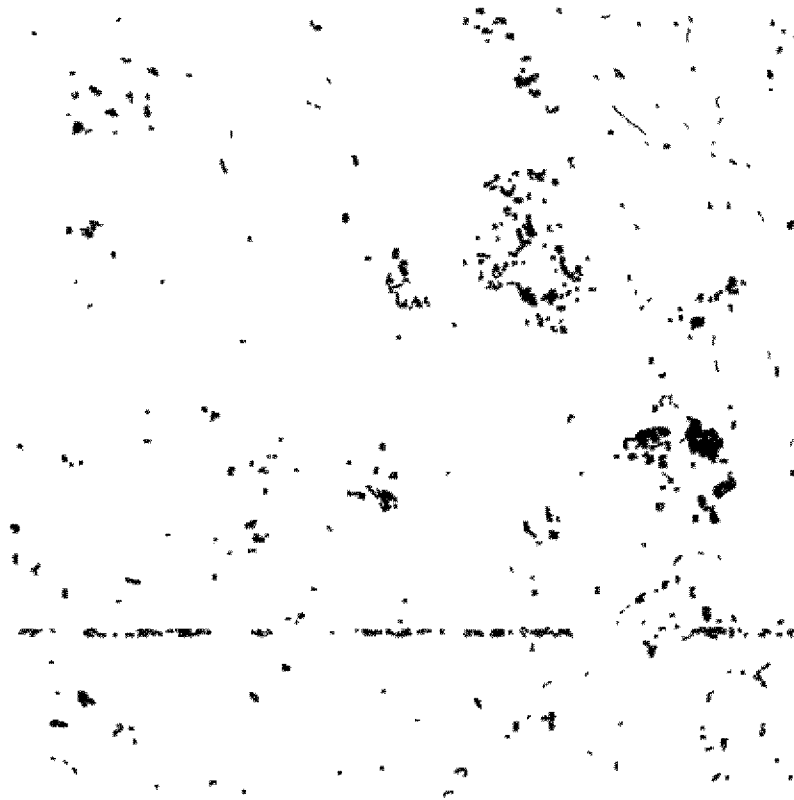
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/068822

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M8/02(2006.01) i, H01M8/10(2006.01) n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M8/00-8/24

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2007/018185 A1 (Mitsubishi Pencil Co., Ltd.), 15 February 2007 (15.02.2007), entire text & JP 4148984 B & US 2010/0099000 A1	1-7
A	JP 2009-152176 A (Seikou Giken Co., Ltd.), 09 July 2009 (09.07.2009), entire text & US 2009/0191444 A1 & EP 2065959 A1	1-7
A	JP 2004-335121 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 25 November 2004 (25.11.2004), entire text (Family: none)	1-7

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

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 September, 2011 (12.09.11)Date of mailing of the international search report
20 September, 2011 (20.09.11)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/068822

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-066138 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 09 March 2006 (09.03.2006), entire text (Family: none)	1-7
A	JP 2004-055458 A (Honda Motor Co., Ltd.), 19 February 2004 (19.02.2004), entire text (Family: none)	1-7
A	JP 2003-151574 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 23 May 2003 (23.05.2003), entire text (Family: none)	1-7
A	JP 2002-060639 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 26 February 2002 (26.02.2002), entire text & JP 2007-191718 A & US 2003/0013798 A1 & EP 1226588 A1 & WO 2001/095344 A1	1-7
A	JP 2007-149467 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 14 June 2007 (14.06.2007), entire text (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H01M8/02(2006.01)i, H01M8/10(2006.01)n

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. H01M8/00-8/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2011年
 日本国実用新案登録公報 1996-2011年
 日本国登録実用新案公報 1994-2011年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2007/018185 A1 (三菱鉛筆株式会社) 2007.02.15, 全文 & JP 4148984 B & US 2010/0099000 A1	1-7
A	JP 2009-152176 A (株式会社精工技研) 2009.07.09, 全文 & US 2009/0191444 A1 & EP 2065959 A1	1-7
A	JP 2004-335121 A (松下電器産業株式会社) 2004.11.25, 全文 (ファミリーなし)	1-7

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 12.09.2011	国際調査報告の発送日 20.09.2011
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 長谷川 真一	4X	4038
	電話番号 03-3581-1101 内線 3477		

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2006-066138 A (松下電器産業株式会社) 2006. 03. 09, 全文 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2004-055458 A (本田技研工業株式会社) 2004. 02. 19, 全文 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2003-151574 A (松下電器産業株式会社) 2003. 05. 23, 全文 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2002-060639 A (昭和電工株式会社) 2002. 02. 26, 全文 & JP 2007-191718 A & US 2003/0013798 A1 & EP 1226588 A1 & WO 2001/095344 A1	1-7
A	JP 2007-149467 A (松下電工株式会社) 2007. 06. 14, 全文 (ファミリーなし)	1-7