

(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2005-527092

(P2005-527092A)

(43) 公表日 平成17年9月8日(2005.9.8)

(51) Int.Cl.⁷

F I

テーマコード (参考)

H O 1 M 4/96

H O 1 M 4/96

M

5 H O 1 8

H O 1 M 4/86

H O 1 M 4/96

B

5 H O 2 6

H O 1 M 4/88

H O 1 M 4/86

M

// H O 1 M 8/10

H O 1 M 4/88

C

H O 1 M 8/10

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2004-508435 (P2004-508435)

(86) (22) 出願日 平成15年4月25日 (2003.4.25)

(85) 翻訳文提出日 平成16年11月24日 (2004.11.24)

(86) 国際出願番号 PCT/US2003/012856

(87) 国際公開番号 W02003/100892

(87) 国際公開日 平成15年12月4日 (2003.12.4)

(31) 優先権主張番号 10/155,469

(32) 優先日 平成14年5月23日 (2002.5.23)

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 501196677

アルバニー インターナショナル テクニ

ウェイブ インコーポレイテッド

アメリカ合衆国、ニューハンプシャー州

O 3 8 6 7、ローチェスター、エアポート

ドライブ 1 1 2

(74) 代理人 100065385

弁理士 山下 穰平

(72) 発明者 レコスタオウエク・ジーン・フランコイス

アメリカ合衆国、ニューハンプシャー州

O 3 1 0 6、ホックセット、オータム ラ

ン 1 6

Fターム(参考) 5H018 AA06 BB00 BB01 BB11 BB12

DD05 EE05 EE17

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 連続した電気経路を持つ炭素繊維強化プラスチック双極板

(57) 【要約】

電気伝導性であって且つ電気伝導度を最適化する方法で配向される炭素繊維を含んでいるプラスチック母材を有している複合材料構造体の形にある燃料電池で使用される双極板。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

厚さに平行であるように機械的に配向されている繊維と共に前記厚さを有している母材に含まれている電気伝導性がある強化材繊維より成っている、燃料電池における電極として使用される電気伝導性物品。

【請求項 2】

強化材繊維が炭素繊維である、請求項 1 に記載の物品。

【請求項 3】

前記炭素繊維が本質的に前酸化された P A N 繊維、熱硬化性ピッチ繊維、黒鉛化された P A N 繊維、炭化されたピッチ繊維から成っている群から採られる、請求項 2 に記載の物品。 10

【請求項 4】

母材が重合体より成っていて且つ母材を創るために加工処理された樹脂又は粉末と繊維から形成される、請求項 3 に記載の物品。

【請求項 5】

重合体が本質的にポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、フルオロ重合体、ポリフェニレンスルフィド (P P S)、ポリエーテルイミド (P E I)、ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)、ポリエーテルケトンケトン (P E K K)、及びその他の熱可塑性重合体及びビニルエステル、エポキシとフェノール類を含んでいる熱硬化性樹脂より成っている群から採られる、請求項 4 に記載の物品。 20

【請求項 6】

母材が重合体より成っていて且つ母材を創るために加工処理された樹脂又は粉末と繊維から形成される、請求項 1 に記載の物品。

【請求項 7】

重合体が本質的にポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、フルオロ重合体、ポリフェニレンスルフィド (P P S)、ポリエーテルイミド (P E I)、ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)、P E K K、及びその他の熱可塑性重合体及びビニルエステル、エポキシとフェノール類を含んでいる熱硬化性樹脂より成っている群から採られる、請求項 6 に記載の物品。

【請求項 8】

前記強化材繊維はその繊維が厚さに平行になるように機械的に配向されたマットの形態であり、そのマットについては本質的に織られた、ステープルファイバーと共に織られた、不織、編まれた、ステッチを接着した、一方向性テープ、紙及びその他の三次元 (3 D) の構造体より成っている群から採られた繊維の構造物を有している、請求項 1 に記載の物品。 30

【請求項 9】

前記強化材繊維はその繊維が厚さに平行になるように機械的に配向されたマットの形態であり、そのマットについては本質的に織られた、ステープルファイバーと共に織られた、不織、編まれた、ステッチを接着した、一方向性テープ、紙及びその他の三次元 (3 D) の構造体より成っている群から採られた繊維の構造物を有している、請求項 5 に記載の物品。 40

【請求項 10】

強化材繊維が針孔開けによって機械的に配向される、請求項 1 に記載の物品。

【請求項 11】

強化材繊維が針孔開けによって機械的に配向される、請求項 8 に記載の物品。

【請求項 12】

母材が本質的に熱形成、薄膜形成、圧縮成型、加圧及び真空形成、樹脂転移成型、積層又は型押しより成っている群から採られた工程により形成される、請求項 1 に記載の物品。

【請求項 13】

母材が本質的に熱形成、薄膜形成、圧縮成型、樹脂転移成型、加圧及び真空形成、積層又は型押しより成っている群から採られた工程により形成される、請求項 10 に記載の物品。

【請求項 14】

母材がその上に一つ又はそれ以上の前記工程を用いて形成された形状を有している表面を持つ、請求項 12 に記載の物品。

【請求項 15】

更に前記強化材繊維と結合している充填材繊維を含んでいる、請求項 1 に記載の物品。

【請求項 16】

更に前記強化材繊維と結合している充填材繊維を含んでいる、請求項 14 に記載の物品 10

【請求項 17】

電気伝導性繊維を有している構造体を創ること；
好ましい電気経路に対応している第一の方向に前記繊維を機械的に配向させること；
前記厚さに平行になっている前記第一の方向を持つ厚さを有している前記母材に関して重合体から作られている母材に前記繊維を包むこと；の諸段階から成っている燃料電池における電極として使用される電気伝導性物品を製造する方法。

【請求項 18】

前記炭素繊維が本質的に前酸化された P A N 繊維、熱硬化性ピッチ繊維、黒鉛化された P A N 繊維、炭化されたピッチ繊維から成っている群から採られる、請求項 17 に記載の物品。 20

【請求項 19】

重合体が本質的にポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、フルオロ重合体、ポリフェニレンスルフィド (P P S)、ポリエーテルイミド (P E I)、ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)、ポリエーテルケトンケトン (P E K K)、及びその他の熱可塑性重合体及びビニルエステル、エポキシとフェノール類を含んでいる熱硬化性樹脂より成っている群から採られる、請求項 18 に記載の物品。

【請求項 20】

前記強化材繊維はその繊維が厚さに平行になるように機械的に配向されたマットの形態であり、そのマットについては本質的に織られた、ステープルファイバーと共に織られた 30、不織、編まれた、ステッチを接着した、一方向性テープ、紙及びその他の三次元 (3 D) の構造体より成っている群から採られた繊維の構造物を有している、請求項 17 に記載の物品。

【請求項 21】

強化材繊維が針孔開けにより機械的に配向される、請求項 17 に記載の物品。

【請求項 22】

母材が熱形成、薄膜形成、圧縮成型、樹脂転移成型、加圧及び真空形成、積層又は型押しより成っている群から採られた工程により形成される、請求項 17 に記載の物品。

【請求項 23】

母材がその上に一つ又はそれ以上の前記工程を用いて形成された形状を有している表面 40 を持つ、請求項 21 に記載の物品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池の電極用の炭素繊維強化熱可塑性双極板に向けられた。

【背景技術】

【0002】

電子捕集と関連して炭素系材料の使用はよく知られている。炭素又は黒鉛の機能は先ず集電機のそれであった。代表的には、黒鉛の塊から機械加工された板が斯かる用途に使用された。この手法は高価であり且つ寸法的な制約がある。十分な機械的強度を持つ薄い壁 50

は達成不可能である。双極板としても知られる、集電機は多くのサイズと形状を持つ多数の導電材料から形成された。双極板の第二の機能は板のどちら側に存在する気体も隔離する不透性の障壁を提供することである。代表的には細かい溝が装置に含まれる二種類の気体を供給し且つ抽出するために双極板の一方又は両方の表面に存在する。

【0003】

この点に関して、燃料電池は代表的には双極板即ち電極とガス拡散層を組立てることにより造られる。拡散層は通常弗素ベースの重合体や触媒のようなイオン交換重合体を含浸した炭素系繊維を組合わせたもの（カーボンペーパー又は布）から造られる。このタイプの装置は特許文献1で説明されたもので見ることが出来る。

【0004】

その特許では、炭素系材料は双極性材料として使用されている。多くの材料が双極板に用いられた。これらは剛性又は可撓性黒鉛（特許文献2を参照）炭素-炭素複合材料；例えばエポキシ又はフェノール樹脂中への炭素繊維強化に使用している熱硬化性炭素強化した複合材料；及び炭素繊維強化したフルオロカーボン-黒鉛（特許文献3参照）を含んでいる。

【0005】

その他（特許文献4）はビニルエステル樹脂、種々の等級の黒鉛粉末及び短い炭素繊維の混合物を用いた導電性成型用複合体の使用を提案した。

【0006】

これら種々の材料システム中の電気的経路は、最適化されているには程遠い。黒鉛-樹脂複合体のような材料は、受容出来る電気伝導度を表すには高い黒鉛粉末装填を必要とする。材料の総伝導度は明らかに黒鉛集合体の間に存在するプラスチックの豊富な帯域によって制限される。

【0007】

短い炭素繊維強化材が、電気伝導度を増加させ且つ双極板の機械的性質を改善するために使用された。これらは複合材料を強化したが、一方でより高い強度を持つことはある種の短所を持っている。例えば、代表的には使用された強化材はランダムで、短い炭素繊維又は配向された平面的布地の形で導入される。これらの材料設計と製造手法は、結果として双極板の平面内の方向に平行に配列された繊維を持つ複合材料を生じる。これらの材料では、厚さを貫通する方向に配向された繊維は殆ど無くて、炭素繊維は有効な厚みを通る電気伝導度には僅かに寄与するだけである。更に、短繊維強化複合材料及び強化していない固体の黒鉛材料は貧弱な又は中位の機械的性質を表す。これらの材料の幾つかに関連する製造技術は、代表的には双極板の表面に存在する溝のような微小な詳細の形状形成には容易に御しできると言うものでもない。従って、最新の双極板は電気的又は熱的特性制限の何れかを持つ及び/又は製造が高価である。この点に関して、最終製品は通常製造工程において多数の段階を必要とする。それらの製造工程における段階の数を最少にする一つの試みは、例えば特許文献5で見出される。この手法は、双極板中の気体通路の機械加工を省くことである。その特許は双極板の気体通路をその場成型するアルミニウム板の上への低粘度重合体の射出成型法の使用を論じている。電気伝導度を必要としている表面は、続いて金属で処理される。その状況ではアルミニウム板は双極板の構造構成要素を備えている。溶融した樹脂が表面の細部を達成するのに使用される。

【0008】

これらの操作と製造を改良する意図で為された双極板を創り出すその他の手法は、前述の特許文献2で説明されたものを含んでいる。この特許は低い率（ヤング率）の炭素繊維を通して可撓性炭素系構成要素を記述しており、可撓性板の中の繊維の最終状態はその低い率の特性を保持している。連続した繊維の平面配列を持ったこの特殊な設計は、双極板の平面内では良好な電気伝導度を持つが前述の手法と同じく厚さを通しては不十分な又は低い電気伝導度で悩む。

【0009】

従って、双極板の構造と製造に関する改良がある間は、この点に関する更なる改良が望

10

20

30

40

50

まれる。

【特許文献１】米国特許第４８３０９３８号明細書

【特許文献２】米国特許第５５３２０８３号明細書

【特許文献３】米国特許第４３３９３２２号明細書

【特許文献４】米国特許第６２４８４６７号明細書

【特許文献５】米国特許第５７９８１８８号明細書

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【００１０】

それ故炭素繊維が邪魔をされない電氣的な、伝導経路を備えて且つ板の積み重ねを通る電気伝導度を最大にするため厚さ方向を通して選択的に配向される双極板を提供することは本発明の主要目的である。 10

【００１１】

優れた強度と耐久性を持ち、尚装置の中に多数の板の導入を可能にする程比較的薄く出来る双極板を提供することは本発明の更なる目的である。

【００１２】

本発明の尚更なる目的は、熱を散逸させるため熱伝導度を改良した双極板を提供することである。

【００１３】

本発明の一層の更なる目的は、設計基準が特別な要求に合わせて容易に変更出来るような双極板を提供することである。 20

【００１４】

低い製造価格に進んで適応できることも又本発明の尚もう一つの目的である。

【課題を解決するための手段】

【００１５】

これら及びその他の目的と利点は本発明により提供される。この点に関して本発明は、連続した繊維が選択的に燃料電池用に配向された炭素繊維強化熱可塑性双極板を目指している。出発する繊維強化材は種々の形をとることが出来るが本質的には織物、不織布、編み物、ステッチを接着したもの又は織物、編み物、ステッチを接着したもの及びステールファイバーの組合せである炭素繊維マットを包含している。マットは続いて厚さを通り抜ける方向に炭素繊維の大部分を配向させるために針孔が開けられ、最も重要である方向への最大電気伝導度を達成することを可能にしている。双極板について、好ましい通路は板の厚さに平行である。斯かる炭素のマットは、以前は代表的には機械加工により達成されていた溝又はその他の表面特徴を創るために望ましい形状に熱成型される熱可塑性繊維を含んでもよい。代案として、マットは熱可塑性樹脂（粉末又は溶液の形）を含浸させられそして適当な温度と圧力を使用して成型されてもよい。エポキシ、フェノールビニルエステル又はその他の本目的に適した樹脂のような熱硬化性樹脂も炭素のプレフォームに注入されて望ましい形状に硬化されてもよい。広い種類の強化材と形状は、特殊な用途に応じて容易に製造され得る。更に、板の表面を機械加工する必要性が避けられるのでそれらの生産における複雑で困難な仕事が除去される。尚更に、優れた強度を考えると、斯かる組立構造の結果として、板の厚さは与えられた高さのスタックの中に増加した数の要素を備えるように減少させられ得る。 30 40

【発明を実施するための最良の形態】

【００１６】

斯くして本発明によって、その目的と利点が現実化されて、その記述は図面と連係してとられるべきである。

【００１７】

今より詳細に図面に立返ると、図１Ａ - １Ｄ及び２は従来技術で見られる燃料電池の典型的描写を示す。図１Ａ - １Ｄは膜１２、二つの触媒化された気体拡散層１４と二つの双極板１６、負極１８と正極１９、が基本電池単位を構成する代表的な燃料電池スタック１ 50

0 を記述する。水素が負極双極板の溝を通して供給されて、GDL (気体拡散層) の多孔質構造の中を拡散する時に、水素ガスは陽子 (水素イオン) と電子に分離される。中央にある電解質膜 12 は、陽子だけを膜 12 を通して燃料電池の正極 19 に通過させる。酸素が正極双極板の溝の内部を流れる時、GDL の白金コーティングは陽子、酸素と電子を助けて結合させて水と熱を生成する。負極 18 側に解放された電子は膜 12 を通って移動できず、負極双極板の壁を横切って隣の電池の中に流れる。GDL 中の気流の一様性は双極板の表面における様々な溝設計を通して達成される。

【 0 0 1 8 】

図 2 は米国特許第 4 8 3 0 9 3 8 号に記された電池を図解している。この点に関して又一般にそこに示されたものの短い記述を図解している目的については以下の通りである。

10

【 0 0 1 9 】

代表的には特に水蒸気を含んでいるそこを通る気体の通過に対して不透性であるケース又はハウジングが用意される。ケースは直列の三つの電池を規定している二つの内部電池分離器を有している。電池の内部は炭素材料から作られた数対の電極であって、今後論ぜられるタイプのものであるかも知れない。電極は隣接した電池の部分は、反対極性を有していると言う点から隣接した電池の中に導入出来るような寸法のものである。電極は隣接した電池同士の中に挿入出来るように曲げられた単体として示されている。これらは又単体と同じ方法で通電する方法で連結された二つの電極であることも出来る。一つの電池内の二つの電極を電氣的接触から分離するのは小孔の空いた部材であり、それは少なくともイオンは通過するであろう。例えば、ガラスファイバーのマット、ポリプロピレンの粗い布又はフィルム、イオン排除膜及び類似品のような様々な形の膜様材料が使用されてもよい。

20

【 0 0 2 0 】

斯かる二次電池用に好ましい電解質は、代表的には非水非伝導液体又はペーストに溶解されたイオン化できる塩の混合物である。他の方法では、電解質はイオンが充放電の影響で輸送されるであろうことによりどんな非伝導固体でも同様にある程度はイオン化できるかも知れない。

【 0 0 2 1 】

本発明は、熱可塑性重合体又は熱硬化性樹脂と結合した時に一段階の工程で低価格繊維強化プラスチック双極板を製造できる特別に設計された繊維性炭素のプレフォームの使用に関する。強化プラスチックの急速な形成を示し且つ或種の熱硬化性のように樹脂段階で毒性化合物を発散しないから、熱可塑性重合体が好まれる。これらの板は例えば図 1 A - 1 D 及び 2 に示されたような、タイプの燃料電池に使用されてよい。最適の方向に伝導性繊維を配向させるこの手法は、現在の板のそれよりも優れた電氣的性能を示している双極板を産出する。

30

【 0 0 2 2 】

板の厚さに平行な方向への伝導性炭素繊維の配向は、双極板を横切る改良された電気と熱の伝導度を促進し又精緻な表面細部に亘る“成型された時”は、形成後の機械加工段階を省いて且つ燃料電池の性能と価格を最適化する二つの重要な特徴を備えている。このことは、複合材料の中に熱可塑性構成要素を含んでいる三次元的に炭素繊維が縫込まれたマットを加熱形成することによって達成される。板の厚さの到る所に存在する炭素繊維も又その高いヤング率によって、双極板の構造に機械的強化材を提供し且つより小型の燃料電池の組立に使用できるより薄い双極板を可能にする。

40

【 0 0 2 3 】

特権を与えられた炭素繊維の配向に加えて、膜材料と同様な物理的性質を有している熱可塑性母材の選定は燃料電池の性能を高める筈である。それはより良い電気伝導度と良好な化学的 / 物理的両立性の助けとなる熱膨張同様のより良い接触表面を提供するであろう。例えば、工業的に多孔性ポリエーテルエーテルケトン (PEEK) をベースにした膜の可能な採用は、炭素 / PEEK 双極板の製造によって容易に適応できた。

【 0 0 2 4 】

50

本発明は、最大電子伝導度を生じる方向に沿って伝導性繊維の選択的配向を達成するために、例えば針孔を開けられたマットのような、三次元の炭素繊維物の形を利用する。双極板の場合には、好ましい電子経路は板の厚さを貫通する。短い長さの繊維及び／又は連続した繊維の針孔開けは、プレフォームの厚さに平行な方向への繊維の実質量の導入を可能にする。そして又、双極板の厚さを通る熱処理されて前酸化された炭素繊維、熱処理された熱硬化性ピッチ繊維、炭素PAN（ポリアクリロニトリル）繊維又はピッチ炭素繊維の使用は、電気と熱伝導度を最適化するのである。

【0025】

一段階で構造用、伝導性板を製造するための炭素繊維と熱可塑性樹脂又は繊維の組合せは、燃料電池容器のサイズを最適化する薄壁双極板の製造の可能性を許す。熱可塑性繊維又は樹脂は、供給ガスの間に不透性壁を達成する手段を与える。炭素繊維と重合体母材との組合せは、優れた強度と損傷耐性を表す複合材料を産出する。重合体は、燃料電池の動作環境に耐えるよう個別の用途について選定され又、この点に関しては熱と化学抵抗性があらねばならない。

【0026】

例えば、炭素強化材と結合される重合体は以下の重合体の何れの一つであってもよい：ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、フルオロ重合体、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、ポリエーテルイミド（PEI）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリエーテルケトンケトン（PEKK）と、どんな他の熱可塑性重合体及び、繊維の形に押出成型されるか、溶液の形で入れられる樹脂であるか又は粉末の形で利用可能であるかの目的に適したビニルエステル、エポキシ、フェノール類のような、熱硬化性樹脂。

【0027】

繊維質炭素のプレフォームは短い長さの繊維、紙、一方向性のテープ、編まれたものを含んでいる織られた又は不織布、ステッチを接着した多軸布、2及び3方向性の繊維織であり得る。ガラスファイバー又はその他の充填材（炭素系導電性及び非導電性充填材）のような低価格の繊維は、価格を下げるために縫込まれたマット中で炭素繊維と結合させられる。最終製品の加工処理は、多数の熱形成工程（温度と圧力の適用）：薄膜形成、圧縮成型、加圧／真空形成、樹脂転移成型、熱可塑性母材を固めるための積層又は型押し、によって成就される。

【実施例1】

【0028】

繊維の望ましい配向を達成するには、炭素マットは針孔開け次第である。炭素繊維の針孔開けは、現在飛行機のブレーキ円盤又は推進機械用の厚いビレットを作るのに使用されている。これらの繊維質炭素のプレフォームは、通常前酸化されたPANの予備繊維から作製され、続いて低炭素含有量の繊維を炭素繊維に変換するために高温で熱処理される。炭化又は黒鉛化の温度は、繊維炭素の含有量を決定する。縫込み工程（即ち繊維の機械的絡み合せ）の間或パーセントの繊維は、プレフォームの厚さに平行な方向に配向させられる。厚さを通る繊維の量は使用された針のタイプと縫込みの強度に関係している。炭素の縫込まれたプレフォームは、PAN繊維及び炭化したピッチ繊維から直接製造されてもよい。

【0029】

本発明は、前酸化されたPAN繊維、熱硬化性ピッチ繊維の何れかから、又は黒鉛化されたPAN繊維及び／又は炭化したピッチ繊維から直接に薄い針マットの製造を目論んでいる。出発する繊維は、二つの一般形態の何れでもあり得る。一つは前酸化された繊維又は繊維が部分的にだけ熱処理された熱硬化性繊維である。これらは屢々緑繊維として参照される。前酸化された繊維は、熱可塑性の導入に先立って全熱処理（炭化と黒鉛化）を必要とする。第二の形態の繊維は、高温で完全に熱処理されたそれらであり、初期の段階で熱可塑性の導入を可能にしている。炭素繊維の状態に依存して、双極板のプラスチック成分は特定の製造段階で導入される。

【0030】

この点に関して、前酸化された又は熱硬化性繊維のタイプ、長さ及び形状、縫込みの諸元及び針のタイプは、厚さを通る繊維の量と繊維の容積との比を表している縫込まれたプレフォームを製造するために選定される。前酸化されたPAN又はピッチ予備炭素を縫込んだマットの選ばれた温度での熱処理に続いて、繊維質針マットは多数の熱可塑性重合体を含浸させることが出来る。これは溶液コーティングと粉末コーティングを用いて達成される。熱伝導度の高い無機の粉末もその段階の間に炭素プレフォームの多孔質構造の内部に導入されてもよい。プレプレグマットは、多くの熱形成工程：薄膜形成、圧縮形成、加圧／真空形成、樹脂転移成型又は本目的に適したどんな他の形成工程でも用いて双極板の最終形状に容易に熱形成される。プレプレグを縫込んだマットは、予め固められた板、所謂積層板の中にも形成され、そして続いて例えば型押しを使用して最終形状に成型される。

10

【実施例2】

【0031】

PAN繊維又は炭化したピッチ繊維が高ヤング率を示すマットに使用されるような状況では、これらは縫込むのにより困難であるが固有の技術と生の材料を使用して扱うことが出来る。二つの手法が、プレフォームに重合体成分を導入するのに使用される。繊維が高温処理を必要としない所では、炭素繊維は実際上縫込まれたプレフォームを製造する前に熱可塑性繊維と混ぜることが出来る。熱可塑性繊維は、以下の重合体の何れでも出来る：ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリエーテルケトンケトン（PEKK）、又は目的に適したどんな他の繊維組成。繊維は、炭素繊維と予め混ぜられる（共混合した系、共混合した一方向性のテープ、共混合した布、等）又は混合されるそして炭素系と共に縫合機械に供給される。溶融して圧力を受けた時に、熱可塑性繊維は炭素繊維を包込んで成型中に非常に精緻な表面の細部の形成を可能にする。熱可塑性繊維は複合材料双極板の母材になる。

20

【0032】

もう一つの手法は、炭素PAN繊維を縫込んで続いて炭素プレフォームの多孔質構造に前酸化された縫込まれたマットに関して前述したようなタイプの選ばれた熱可塑性重合体を含浸させることである。これは溶液コーティングと粉末コーティングを用いて達成される。プレプレグマットは、薄膜形成、圧縮形成、樹脂転移成型、又は加圧／真空形成のような多くの成型工程を用いて双極板の最終形状に熱形成され得る。更に、プレプレグマットは型押しによってその最終形状に形成された積層板のような、予め固められた板の中にも形成され得る。

30

【0033】

縫込まれた炭素PANマットは、プレフォームのコストを下げるためにガラス繊維のような或種の充填材を含んでもよい。

【0034】

前記のように、双極板の製造は炭素繊維プレフォームの他の形態をとってもよい。例えば熱可塑性樹脂と混合した切り刻まれた炭素繊維；一方向性のテープ、2D布、熱可塑性繊維を含んでいる又は続いて熱可塑性繊維を含浸させられて組織化された混成織物に直接仕立てられた3D織の布は、精緻な細部を持つ強化された熱可塑性双極板を製造するのに使用されてもよい。

40

【0035】

炭素繊維がその最終形態で高ヤング率（即ち、33MSIより大きい）を示している時、厚さを通る繊維の最高の可能な量を持つ縫込まれたプレフォームを達成するには低率の繊維で出発することが望ましい、何故ならば針からのさかどげは高率の繊維を切断する傾向があり伝達効率が全く貧弱であるからである。

【0036】

従って、プレフォームの中への炭素繊維の針孔開けは、低率の繊維からが有利であろう。前酸化されたPAN繊維、熱硬化性ピッチの繊維又は炭化温度の低いピッチの繊維は、

50

厚さを通る繊維伝達を最適化することを始めるには望ましい低率の繊維である。然し、或種の特定のPANの高率の繊維はより少ない効果で使用されてもよい。出発する繊維に依存して、プレフォームは繊維の炭素含有量を高めるために更なる熱処理を受けてもよい。

【0037】

炭素繊維の電気伝導度は、炭素源の性質と繊維が受けた黒鉛化の程度の両方に関係している。例えばピッチベースの繊維はPANベースの繊維よりも良好な伝導体であり、又プレフォームの熱処理は電気伝導度を増加させ、且つヤング率も高めると云う二重の利点を持つであろう。燃料電池応用において、結局の最終においてより高率の繊維は双極板の剛性を高めるために望ましい。

【0038】

前述を思い起こすと図3～7までは、本発明の炭素マット20を図解している。図3は炭素繊維22から作製された不織マットを示している。炭素繊維22はランダムに配向されている。前記のようにマットに含まれているのは熱可塑性繊維又は充填材繊維である。繊維、特に炭素繊維22を正確に配向させるように、マット20は一般的に図解されていて当業者には周知の縫込み装置24によって針孔開けされる。図4では、マット20の一部を針孔開けした後の繊維配向が一般的に示されている。この点に関して、繊維、特に炭素繊維22はマット20の厚さTに平行に配向される。そのように配向される繊維の数は、針孔開けが為された程度に依存するであろう。明らかに、そうして配向された炭素繊維の最高の数は最も望ましいものでありマット20全体が針孔開けを受けている。もしマット20が更なる炭化を必要とする繊維から成っているならば、従って同じことをもたすように処理できる。いったんこれが完成されると、マット20はもしそれが熱可塑性繊維を含んでいるならば、熱形成又は複合材料の中に目的に適したその他の手段によって形作られること次第である。

【0039】

もし熱可塑性繊維が複合材料の母材を作るのに使われていないならば、代案としてマット20は複合材料の中に前記のような方法で加工処理された、適切な熱可塑性重合体を含浸させることが出来る。複合材料は一般的に図7で図解された双極板26を形成する。この点に関して板26は、望ましい性質の表面形状28を持つ成型工程（例えば熱形成又は樹脂の硬化）の部分を提供できる。結果としての製品は望ましい表面形状を有している母材中に配向された炭素繊維を持つ双極板26である。板20は機械的に強く、不透性で、高い伝導性で且つ除去されたもの以外はすべて機械加工の必要性を持つ望ましい形状のものである。

【0040】

今、図5と6に立返ると、それらは織られた、編まれた又は適当な材料（例えば、炭素など）の糸を使用しているその他の構造の、マット30に向けられている。織のパターンは目的に適したどんなものであってもよい。マット30は、前述のような炭素32及び/又はその他の材料から作られたステープルファイバーを含んでいる。マット30は、望ましい方向（即ち、マットの厚さTに平行）に繊維を配向するのに役立つ縫込み装置24によって針孔開けさせられる。その結果のマット30は図6で示される。そこでマット30はマット20に関して前述したような方法で加工処理され得る。

【0041】

斯くして双極板は、表面を機械加工する必要性を避けると同時に優れた構造と特性を持ちながら製造できることを見ることが出来る。そして又、斯かる強化した複合構造の機械的強度によって、それは小型に積み重ねることを可能にし又さもなければ燃料電池のサイズを減少させるように比較的薄くできた。そして又、双極板は成型されるから、表面の形状を型で造るのが可能なことに加えて、板それ自身は設計の多様性に加えて異なった用途に合わせて様々な形で成型され得る。

【0042】

斯くして本発明によって、その目的と利点が現実化された、そして好ましい実施例が開示されてここで述べられたけれども、その範囲はそこで限定されるべきものではなく；寧

10

20

30

40

50

るその範囲は添付の請求項のそれによって決定されるべきである。

【図面の簡単な説明】

【0043】

【図1】図1A - 1Dは燃料電池の積み重ねと双極板形状の例である。

【図2】それについての構造を一般的に図解している従来技術での電池の側断面図である。

【図3】本発明の教示を組込んだ、縫込み以前の炭素繊維を含んでいる不織強化マットの側断面一般図である。

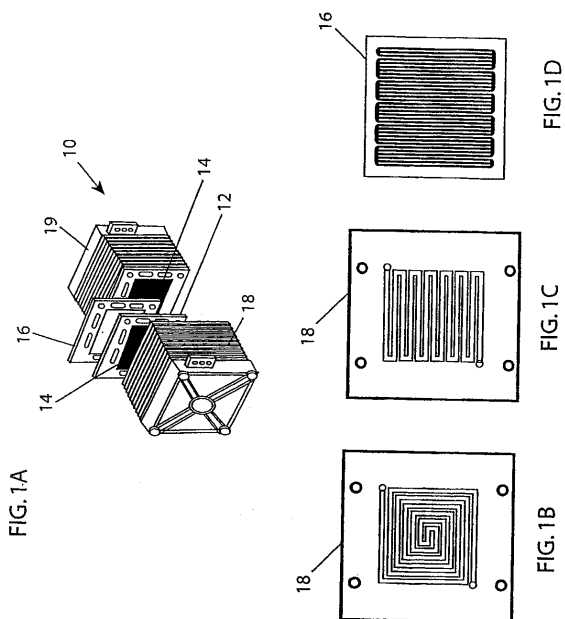
【図4】本発明の教示を組込んだ、縫込み後の図2のマットの側断面図である。

【図5】本発明の教示を組込んだ、縫込み以前の、織られた炭素繊維とステープルファイバーを組合わせた織られたマットの側断面図である。

【図6】本発明の教示を組込んだ、縫込み後の図4のマットの側断面図である。

【図7】本発明の教示を組込んだ、望ましい形状を創るために熱可塑性繊維又は樹脂を用いて複合材料の中に成型された後の炭素強化双極板の側断面図である。

【図1】



【図2】

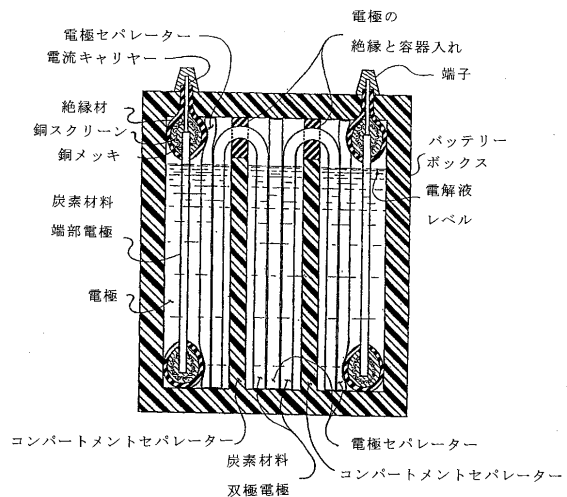


FIG. 2

【 図 3 】

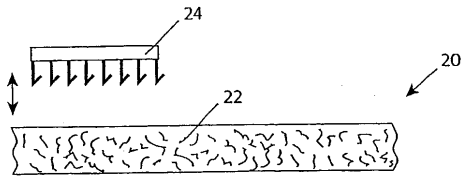


FIG. 3

【 図 4 】

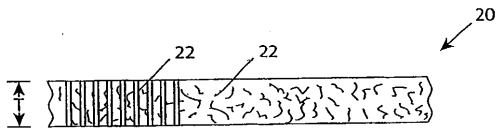


FIG. 4

【 図 5 】

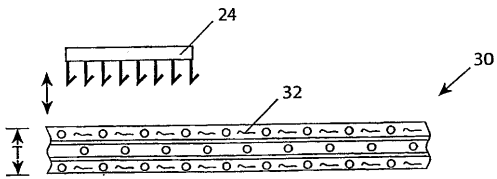


FIG. 5

【 図 6 】



FIG. 6

【 図 7 】

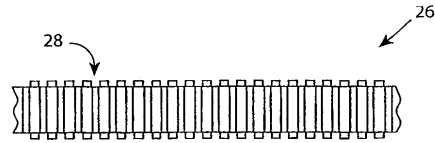


FIG. 7

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/US 03/12856

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M4/94 H01M8/02

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)

IPC 7 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 practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 334 (C-0964), 21 July 1992 (1992-07-21) & JP 04 097948 A (SHOWA DENKO KK), 30 March 1992 (1992-03-30) abstract	1-13, 17-22
X	EP 1 050 915 A (DAIKIN IND LTD) 8 November 2000 (2000-11-08) paragraph '0019! - paragraph '0020! paragraph '0033! - paragraph '0035! paragraph '0041! - paragraph '0047! --- -/--	1-13, 17-22

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in 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 document 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
- *Z* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

24 October 2003

Date of mailing of the international search report

04/11/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5518 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Götz, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/US 03/12856

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 01 04980 A (SGL CARBON AG ; WILDE PETER (DE); TRAPP VICTOR (DE); LEINFELDER HEI) 18 January 2001 (2001-01-18) page 4, line 17 - line 28 page 5, line 1 - page 6, line 1 page 6, line 34 - line 38 page 7, line 26 - page 8, line 4 page 8, line 26 - line 28 page 9, line 31 - page 10, line 6 page 9, line 23 - line 29 figure 3 -----	1-7, 12, 15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US 03/12856

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 04097948	A	30-03-1992	NONE	
EP 1050915	A	08-11-2000	JP 11204114 A DE 69903405 D1 DE 69903405 T2 EP 1050915 A1 US 6416896 B1 WO 9936980 A1	30-07-1999 14-11-2002 26-06-2003 08-11-2000 09-07-2002 22-07-1999
WO 0104980	A	18-01-2001	CA 2343246 A1 DE 20022262 U1 EP 1114479 A1 WO 0104980 A1 JP 2003504822 T US 6511768 B1	18-01-2001 09-08-2001 11-07-2001 18-01-2001 04-02-2003 28-01-2003

フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA, GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ, EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,M W,MX,MZ,NI,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB01 BB06 BB08 CC01 CC03 CC08 CX02 EE05