

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4234597号  
(P4234597)

(45) 発行日 平成21年3月4日(2009.3.4)

(24) 登録日 平成20年12月19日(2008.12.19)

(51) Int. Cl.		F I			
HO 1 M	8/02	(2006.01)	HO 1 M	8/02	B
HO 1 M	8/10	(2006.01)	HO 1 M	8/10	

請求項の数 2 (全 7 頁)

(21) 出願番号	特願2003-531546 (P2003-531546)	(73) 特許権者	000005326 本田技研工業株式会社 東京都港区南青山二丁目1番1号
(86) (22) 出願日	平成14年7月22日(2002.7.22)	(74) 代理人	100096884 弁理士 末成 幹生
(86) 国際出願番号	PCT/JP2002/007397	(72) 発明者	大谷 輝幸 埼玉県和光市中央一丁目4番1号 株式会 社本田技術研究所内
(87) 国際公開番号	W02003/028134	(72) 発明者	辻 誠 埼玉県和光市中央一丁目4番1号 株式会 社本田技術研究所内
(87) 国際公開日	平成15年4月3日(2003.4.3)	(72) 発明者	宇都宮 政男 埼玉県和光市中央一丁目4番1号 株式会 社本田技術研究所内
審査請求日	平成17年1月24日(2005.1.24)		
(31) 優先権主張番号	特願2001-285106 (P2001-285106)		
(32) 優先日	平成13年9月19日(2001.9.19)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		
(31) 優先権主張番号	特願2001-294572 (P2001-294572)		
(32) 優先日	平成13年9月26日(2001.9.26)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータの製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ステンレス鋼板の表面に、金と反応して金属間化合物を生成する金属間化合物生成元素からなる金属間化合物生成元素層を形成し、次いで、この金属間化合物生成元素層の表面に金を被覆し、この後、全体を加熱してステンレス鋼板と金の被覆層との界面に前記金属間化合物からなる金属間化合物層を生成させることを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 2】

前記金属間化合物生成元素が、B, Cu, Mg, Mn, Nb, Pb, Ti, Vから選ばれた1種あるいは2種以上であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子型燃料電池を構成するセパレータの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

固体高分子型燃料電池は、平板状の電極構造体(MEA: Membrane Electrode Assembly)の両側にセパレータが積層された積層体が1ユニットとされ、複数のユニットが積層されて燃料電池スタックとして構成される。電極構造体は、正極(カソード)および負極

(アノード)を構成する一対のガス拡散電極の間にイオン交換樹脂等からなる電解質膜が挟まれた三層構造である。ガス拡散電極は、電解質膜に接触する電極触媒層の外側にガス拡散層が形成されたものである。また、セパレータは、電極構造体のガス拡散電極に接触するように積層され、ガス拡散電極との間にガスを流通させるガス流路や冷媒流路が形成されている。このような燃料電池によると、例えば、負極側のガス拡散電極に面するガス流路に燃料である水素ガスを流し、正極側のガス拡散電極に面するガス流路に酸素や空気等の酸化性ガスを流すと電気化学反応が起こり、電気が発生する。

#### 【0003】

上記セパレータは、負極側の水素ガスの触媒反応により発生した電子を外部回路へ供給する一方、外部回路からの電子を正極側に送給する機能を具備する必要がある。そこで、セパレータには黒鉛系材料や金属系材料からなる導電性材料が用いられており、特に金属系材料のものは、機械的強度に優れている点や、薄板化による軽量・コンパクト化が可能である点で有利であるとされている。金属製のセパレータは、ステンレス鋼やチタン合金等の高耐食性を備えた金属材料による薄板をプレス加工して断面凹凸状に成形したものが挙げられる。

#### 【0004】

ところで、このようなセパレータが置かれる環境因子としては、以下の3つの因子が挙げられる。

(1)温度：燃料電池の可動温度は常温から180程度であるから、セパレータもこの温度域にさらされる。

(2)pH：燃料電池内では、酸素と水素が反応して水が生成される。この水是水蒸気の形で生成されるが、セパレータに形成されているガス流路上で温度が低下すると、液滴としてセパレータに付着する。また、この付着水の量が増加すると、電極構造体とセパレータとの間に水が滞留する。そして、電極構造体に付着した水は、容易に電解質膜に接触する。このため、電解質膜中の置換基の遊離等が発生し、付着水中に水素イオンが発生してその付着水のpHが低下する。燃料電池の置換基としては、スルホン基が一般的であり、上記付着水としては、例えば硫酸等の酸性を呈する。

#### 【0005】

ここで上記置換基を説明すると、燃料電池内では、水素ガス供給側(アノード側)の触媒上で水素から生成した水素イオンを酸化性ガス供給側(カソード側)に移送することにより、カソード触媒に水素イオンを供給する。そして、カソード触媒上で酸化性ガスと反応して水を生成する作用を駆動力として、連続的に発電が行われる。そのため、燃料電池の電解質膜は、アノード側からカソード側へ水素イオンを移動させることができる陽イオン導電型の電解質膜でなければならない。そのため、電解質膜分子の側鎖には、水素イオンと結合する形の結合基が存在しなければならない。燃料電池では、電解質膜の分子の一部を水素イオンと結合する酸型の置換基を配することにより、上記機能を満足している。この置換基は酸型であるため、電解質膜から遊離すると酸を生成する。一般に、電解質膜の水素イオンの移送効率を高める上で、この置換基には水素イオンとの結合力が強い強酸型が用いられ、このため、遊離して酸を生成し、生成した酸は低pHとなる。

#### 【0006】

(3)電位：セパレータは、燃料ガス側および酸化性ガス側に配置され、それぞれが電池の正極および負極となる。これら2つのセパレータ間には、反応で生じる起電力が電位差として生じる。一般的に、燃料ガスに水素を、酸化性ガスに酸素を用いる燃料電池において起電力で生じる電位差は、次の理由により最大1.2V程度発生する。すなわち、水素と酸素により水を生成する化学反応で得られる起電力は、燃料電池の稼動温度域では理論的な計算から1.2V程度とされており、実際の発電においてもこれと同様で、1~1.2V程度を発生する。高耐食性を有するオーステナイト系ステンレス板をセパレータに用いた場合では、起電力が0.9Vあたりを超えると金属イオンの溶出速度が大きくなってしまい、腐食の発生を招く。

#### 【0007】

燃料電池用のセパレータは、上記のように温度、pH、電位の各因子とも、きわめて腐食しやすい条件であるため、金属製のセパレータを用いた場合、例えばそれが高耐食性を有する材料（例えばSUS316L）であっても腐食しやすい。したがって、金属製のセパレータには、燃料電池の稼動環境にあってきわめて高い耐食性が求められる。また、金属製のセパレータには、この他に、断面凹凸状としてガス流路や冷媒流路を形成するためのプレス加工が容易であることや、発電電圧の低下を防ぐ点から他部材との接触抵抗がきわめて小さいことが求められる。さらに、1つの燃料電池スタックには、場合によっては数百枚のセパレータが用いられるので、低コストであることも必要となってくる。

#### 【0008】

そこで、プレス加工が容易なステンレス鋼板の表面に、高耐食性金属をメッキしたものが燃料電池用セパレータとして望ましいとされる。ここで、ステンレス鋼のSUS316L、Cu、Ag、Pt、Auの耐食性を、温度90℃、pH3の硫酸溶液、1.2Vの条件による腐食電流密度をそれぞれ測定することにより比較を行ったところ、SUS316L： $156\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、Cu： $98\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、Ag： $38\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、Pt： $18\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、Au： $2\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、であった。燃料電池として実用的な耐久性を確保する上では、腐食電流密度は $10\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 以下であることが望ましく、したがって、その条件を満たす元素は金であることが判る。したがって、ステンレス鋼板等の素材に金メッキを施したものが、燃料電池用セパレータとして有望である。

#### 【0009】

##### 【発明が解決しようとする課題】

ところが、ステンレス鋼に通常の方法で金メッキを施した場合にあっては、金メッキがステンレス鋼に物理的に付着しているだけの状態であるから、密着性はそれほど高くないと言える。したがって、断面凹凸状で、その屈曲部のRがきわめて小さいセパレータをプレス加工により成形した場合、密着性の不足により金メッキの剥離が発生しやすい。また、燃料電池の稼動下では、ステンレス鋼の主成分であるFe、Cr、Niに金が固溶して拡散が発生するので、長期にわたって使用されていると金が消失する現象が起きる。このため、燃料電池として必要な耐食性や低接触抵抗性を満足することができない。

#### 【0010】

よって本発明は、きわめて高い耐食性を得るためにステンレス鋼板の表面に施す金メッキ層の剥離を防止して長期にわたり強固な耐久性の保持が図られる燃料電池用セパレータの製造方法を提供することを目的としている。

#### 【0011】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明の燃料電池用セパレータの製造方法は、ステンレス鋼板の表面に、金と反応して金属間化合物を生成する金属間化合物生成元素からなる金属間化合物生成元素層を形成し、次いで、この金属間化合物生成元素層の表面に金を被覆し、この後、全体を加熱してステンレス鋼板と金の被覆層との界面に前記金属間化合物からなる金属間化合物層を生成させることを特徴としている。

#### 【0012】

ステンレス鋼に施す通常の金メッキは、母材であるステンレス鋼に金が物理的に付着しており、その密着力は、母材表面の面粗度に強く依存する。これは、母材表面の起伏面に沿って金が付着することによるいわゆるアンカー効果による。このような密着力に加え、本発明では、化学的な結合力を与えるものである。すなわち母材であるステンレス鋼と金の被覆層との界面において、ステンレス鋼の含有成分である原子と金の原子との間に、化学的結合力を持たせるものであり、両者の原子の化学的結合物が金属間化合物である。この金属間化合物からなる金属間化合物層が母材と金の被覆層との界面に存在することにより、金の被覆層の剥離が防止される。また、この場合、金はステンレス鋼の主成分であるFeに固溶するが、金属間化合物層が金とステンレスとの間に存在することにより、ステンレス鋼中への金の拡散固溶の発生が防止される。

#### 【0013】

10

20

30

40

50

本発明では、母材であるステンレス鋼板に含まれる金属間化合物生成元素は、1気圧下で燃料電池の稼動温度領域（常温～180程度）において、金と安定な合金を作らない元素であり、金と化学的に反応して金属間化合物を生成する元素であることが条件となる。また、燃料電池用セパレータの機能上必要な低接触抵抗性を備えるためには、体積抵抗率が小さいことが求められる。このような元素としては、B、Cu、Mg、Mn、Nb、Pb、Ti、Vが挙げられ、これらから選ばれた1種あるいは2種以上が、ステンレス鋼板中に含まれる。その含有量は、金と反応して金属間化合物が生成され得る適宜な量とされる。

【0014】

また本発明においてステンレス鋼板の表面に金属間化合物生成元素層を形成するには、金属間化合物生成元素をメッキや蒸着、あるいはスパッタリング等の手法で形成することができる。

10

【0015】

図1は、上記方法の概念を示しており、まず、母材層のステンレス鋼板の表面に金属間化合物生成元素層を形成し、金属間化合物生成元素層の表面に金の被覆層（例えば金メッキ層）を形成する。次に、全体を加熱処理すると、金属間化合物生成元素層が金属間化合物層として生成する。

【0016】

本発明に係る金属間化合物生成元素は、上述した理由により、B、Cu、Mg、Mn、Nb、Pb、Ti、Vが挙げられ、これらから選ばれた1種あるいは2種以上が用いられる。

20

【0017】

【実施例】

以下、本発明の実施例を説明する。

【0018】

(1) セパレータの製造

表1に示す組成を有するステンレス鋼母合金（SUS316Lに相当）を連続鋳造により鋳造し、得られた鋼材を0.2mmの厚さに圧延してステンレス鋼板を製造した。次いで、このステンレス鋼板から、実施例1～8および比較例用のセパレータ素材板として、100mm×100mmの正形状の鋼板を切り出した。次に、実施例1～8として用いるセパレータ素材板の表面に、それぞれ表2に示す金属間化合物生成元素を被覆して金属間化合物生成元素層を形成した。これら金属間化合物元素層の形成方法は、表2に示すように、実施例1、実施例3～8ではスパッタリング、実施例2ではメッキ（銅メッキ）とした。

30

【0019】

【表1】

ステンレス鋼板の組成 単位（重量％）

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Fe
0.03	0.5	2	0.04	0.03	13	17	2.5	残部

40

【0020】

【表2】

	金属間化合物生成 元素:形成方法	金属間化合物 生成のための 熱処理温度(°C)	生成した金属間化合物	密着性 (初期)	密着性 (発電後)
実施例 1	B:スパッタリング	900	AuB <sub>2</sub>	○	○
実施例 2	Cu:メッキ	900	Au <sub>3</sub> Cu、AuCu、AuCu <sub>3</sub>	○	○
実施例 3	Mg:スパッタリング	900	Mg <sub>3</sub> Au、MgAu、Mg <sub>2</sub> Au	○	○
実施例 4	Mn:スパッタリング	900	AuMn <sub>2</sub>	○	○
実施例 5	Nb:スパッタリング	900	Au <sub>2</sub> Nb、Au <sub>2</sub> Nb <sub>3</sub> 、AuNb <sub>3</sub>	○	○
実施例 6	Pb:スパッタリング	900	Au <sub>2</sub> Pb、AuPb <sub>2</sub> 、AuPb <sub>3</sub>	○	○
実施例 7	Ti:スパッタリング	900	Ti <sub>3</sub> Au、TiAu、TiAu <sub>2</sub> 、TiAu <sub>4</sub>	○	○
実施例 8	V:スパッタリング	900	V <sub>3</sub> Au、VAu <sub>2</sub> 、VAu <sub>4</sub>	○	○
比較例	無添加	—	生成せず	×	×

10

## 【0021】

次いで、各金属間化合物生成元素層が形成された実施例1～8のセパレータ素材板と、ステンレス鋼板を切り出したままの状態の比較例のセパレータ素材板の表面に、シアン化金K；12g/l、クエン酸K；125g/l、EDIA Co塩；3g/lの浴塩を用い、浴塩温度：35℃、電流密度1A/dm<sup>2</sup>の条件で厚さ1μmの金メッキを施した。次に、実施例1～8の金メッキを施したセパレータ素材板を900℃で10分加熱した。一方、比較例のセパレータ素材板は加熱せず、金メッキを施したままとした。次いで、これら実施例1～8および比較例のセパレータ素材板をプレス加工し、図2に示す形状の実施例1～8および比較例のセパレータをそれぞれ得た。これらセパレータにつき、金メッキ層と母材のステンレス鋼板との間に金属間化合物が生成されたか否かを調べ、生成されている場合にはその成分を調べた。その結果を表2に併記する。

20

## 【0022】

## (2) 密着性評価試験

## A. 初期密着性

実施例1～8および比較例のセパレータにつき、金メッキの剥離の有無を目視にて観察し、評価した。評価方法は、剥離していない場合を○とし、剥離して下地のセパレータ素材板(ステンレス鋼板)が露出している場合を×とした。その結果を表2に併記する。

30

## 【0023】

## B. 発電後の密着性

実施例1～8および比較例のセパレータを、それぞれ2枚用いて電極構造体を挟み、燃料電池の単セルユニットを作製した。これらユニットにつき2000時間の発電試験を行い、発電後の各セパレータの金メッキの剥離の状態を、上記と同様にして評価した。その結果を表2に併記する。

## 【0024】

表2で明らかなように、実施例1～8のセパレータでは、初期密着性はもとより発電後の密着性も良好であり、高い耐久性を示した。これにより、きわめて高い耐食性を発揮することが推察される。一方、母材の表面に金属間化合物生成元素層を形成せず、金メッキ後の加熱もしなかった比較例にあっては、プレス加工後に金メッキが剥離しており、耐久性に劣ることも確認された。

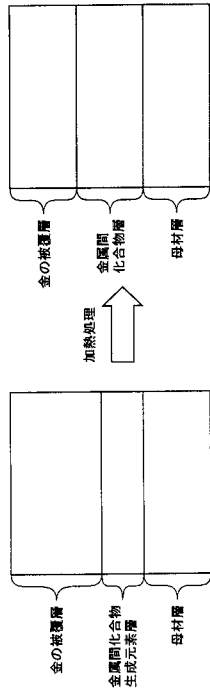
40

## 【図面の簡単な説明】

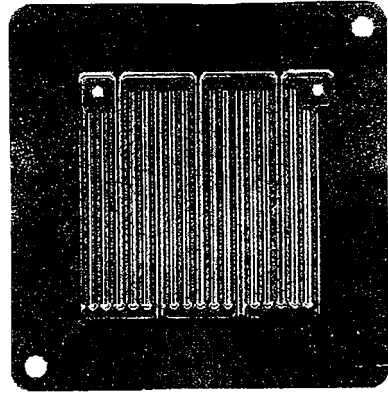
【図1】 本発明の製造方法を概念的に示すセパレータの表層部分の断面図である。

【図2】 本発明の実施例で製造したセパレータの表面を示す写真である。

【図1】



【図2】



---

フロントページの続き

審査官 原 賢一

- (56)参考文献 特開平10-228914(JP,A)  
特開平06-128751(JP,A)  
特開2001-214286(JP,A)  
特開2002-260681(JP,A)

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