(19) **日本国特許庁(JP)**

(12) 特 許 公 報(B2)

(11)特許番号

特許第3971267号 (P3971267)

(45) 発行日 平成19年9月5日(2007.9.5)

(24) 登録日 平成19年6月15日 (2007.6.15)

(51) Int.C1.

 $\mathbf{F} \mathbf{I}$

HO1M 8/02 HO1M 8/10 (2006.01) (2006.01) HO1M 8/02 HO1M 8/10

請求項の数 2 (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2002-228156 (P2002-228156) (22) 出願日 平成14年8月6日 (2002.8.6) (65) 公開番号 特開2004-71319 (P2004-71319A) 平成16年3月4日 (2004.3.4) 審査請求日 平成16年11月30日 (2004.11.30) (73)特許権者 000005326

В

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

||(74)代理人 100096884

弁理士 末成 幹生

(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

(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

|(72)発明者 桑山 貴司

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

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】燃料電池用金属製セパレータ用素材板およびそれを使用した燃料電池用金属製セパレータ

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

表面に導電性介在物が露出する一対の鋼材の間に、上記鋼材よりも高い延性を有する金属材が接合されていることを特徴とする燃料電池用金属製セパレータ用素材板。

【請求項2】

請求項1に記載の燃料電池用金属製セパレータ用素材板を塑性加工し、前記鋼材の表面 を不動態化処理してなることを特徴とする燃料電池用金属製セパレータ。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子燃料電池の構成要素であって、燃料電池のガス通路を形成する金属製セパレータに使用する素材板およびこの素材板を使用した燃料電池用金属製セパレータに係り、特に、優れた機械的特性を有する素材板および優れた接触抵抗性を有する燃料電池用金属製セパレータに関する。

[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、カソードおよび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

10

20

30

40

50

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、アノード側のガス拡散電極に面するガス流路に燃料であ る水素を流し、カソード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、アノード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カソード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、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。またセパレータは、使用時に低pHの電解質膜と接触するとともに、カソード・アノード間にて相当な電池発電電位がかかるため、優れた耐食性を有することが必要とされる。そこで、金属製のセパレータは、ステンレス鋼やチタン合金等の耐食性を有する金属材料からなる薄板をプレス成形して断面を凹凸状としたものが挙げられる。

[0004]

【発明が解決しようとする課題】

このようなセパレータは、電極構造体から発電された電気を取り出すための端子として使用されるため、ガス拡散電極との接触抵抗が低いことが必要とされる。ステンレス鋼からなるセパレータを用いた場合、黒鉛系のセパレータを用いた場合に比べて電極構造体との接触抵抗が大きい。接触抵抗の増大は発電性能の低下につながるので、接触抵抗を低減させるために、例えばその表面に金めっき等を施すことが提案されている。しかしながら、金めっき等を施した場合には、コストが割高となるため、金めっき等を施さずにガス拡散電極との間における優れた接触抵抗性が得られるセパレータの開発が要請されていた。

[0005]

また、上記セパレータは素材板をプレス成形により得るものであり、このプレス成形時には、セパレータの厚さを 0 . 0 5 ~ 0 . 3 mmと非常に薄いものとしなければならない。このため、素材板のプレス成形時に曲げ変形等が生じた場合には素材板に割れが生じ易く、特に曲げに関する曲率半径を小さくした際には割れの発生率が高くなる。万一割れが発生した場合、上記厚さにより割れの確認が困難であるという問題があった。割れが一旦発生すると、セパレータ本来の機能である燃料ガスと酸化材ガスとの分離機能が十分に発揮されなくなる。そこで、プレス成形時に割れを生じない優れた機械的特性を有する素材板の開発も要請されていた。

[0006]

よって本発明は、以上のような要請に鑑みてなされたものであり、ステンレス鋼の表面に金めっき等を施さないことを前提とした上で、プレス成形時に割れを生じない優れた機械的特性を確保した燃料電池用金属製セパレータ用素材板およびそれを使用し、ガス拡散電極との間における優れた接触抵抗性を実現した燃料電池用金属製セパレータを提供することを目的としている。

[0007]

【課題を解決するための手段】

本発明の燃料電池用金属製セパレータ用素材板は、表面に導電性介在物が露出する一対の鋼材の間に、上記鋼材よりも高い延性を有する金属材が接合されていることを特徴としている。本発明の素材板では、一対の鋼材の表面に露出した介在物が導電経路を形成する。このためこの素材板を使用して製造した燃料電池用金属製セパレータは、ガス拡散電極との間における優れた接触抵抗性を実現することができる。また、本発明の素材板は、上記一対の鋼材の間にこの鋼材よりも高い延性を有する金属材を接合する構造を採用している。このため、プレス成形によってこの素材板に曲げ変形が生じた場合、たとえ外側に位置する一対の鋼板の一方に割れが生じたとしても、内側に挟み込まれた金属材には割れは生じない。セパレータは、上述したとおり、燃料ガスと酸化材ガスとの分離機能を十分に

20

30

40

50

(3)

発揮するものでなければならない。本発明によれば、この機能を十分に発揮するに好適な 素材板の機械的特性を確保することができる。

[00008]

なお、上記一対の鋼材に使用する金属材料としては、導電経路を形成する導電性介在物が金属組織中に分散するステンレス鋼板を用いることができる。具体的には、例えば次の組成を有するステンレス鋼板を用いることが好適である。すなわち、C:0.15wt%以下、Si:0.01~1.5wt%、Mn:0.01~2.5wt%、P:0.035wt%以下、S:0.01wt%以下、Al:0.001~0.2wt%、N:0.3wt%以下、Cu:0~3wt%、Ni:7~50wt%、Cr:17~30wt%、Mo:0~7wt%、残部がFe,Bおよび不可避的不純物であり、かつ、<math>Cr,MoおよびBが次式を満足するものである。

 $Cr(wt\%) + 3 \times Mo(wt\%) - 2.5 \times B(wt\%)$ 17

このステンレス鋼板を使用した場合には、 B が、 M $_2$ B および M B 型の硼化物、 M $_2$ $_3$ (C , B) $_6$ 型の硼化物として表面に析出し、これら硼化物が導電性介在物となる。

また、上記鋼材よりも高い延性を有する金属材に使用する金属材料としては、導電介在物を含まないステンレス鋼板またはアルミ材等を用いることができる。また上記鋼材よりも高い延性を有する金属材にステンレス鋼板を用いる場合には、上記一対の鋼板との密着性に鑑みて、これら一対の鋼板と同種のステンレス鋼板を用いることが望ましい。

[0009]

次に、本発明の燃料電池用金属製セパレータは、上記素材板を塑性加工し、鋼材の表面 <u>を不動態化処理し</u>てなることを特徴としている。本発明のセパレータは上記素材板を使用 したものであるため、上述したとおり、ガス拡散電極との間における優れた接触抵抗性を 有し、しかも燃料ガスと酸化材ガスとの分離機能を十分に発揮することができる。

[0010]

【実施例】

次に、本発明の実施例を説明する。

A . セパレータの製造

「実施例1

表1に示す各成分と、残部であるFeおよび不可避的不純物とを含有するスラブA,Bを作成するとともに、SUS316LからなるスラブCを作成した。この際、スラブA,B, Cはすべて同じ厚さとした。このスラブA,B間にスラブCを挟み込み、スラブA,B, Cを接合して厚板を作成した。次いで、この厚板を0.18mmまで圧延して圧延鋼を得た。さらにこの圧延鋼の両面に、40 に保持したボーメ度40°Be(重液用ボーメ度)の塩化第二鉄溶液のシャワーを、吹き付け圧1kg/cm²で30秒間吹き付けて化学的エッチングを行った。上記のように圧延鋼の表面に導電介在物を露出させ、図1に示す三層構造の素材板を得た。

[0011]

【表1】

												(wt%)	
С	Si	Mn	Р	S	Cu	Ni	Cr	Мо	Nb	Ti	Al	N	В
0.073	0.28	0.13	0.015	0.001	0.11	10.1	20.9	2.03	_	_	0.08	0.03	0.6

[0012]

次にこの素材板から100mm×100mmの正方形状の薄板を必要数切り出して得た。 そしてこれら薄板をプレス成形して、図2に示すセパレータの成形板を得た。この成形板 は、中央に断面凹凸状の発電部を有し、その周囲に平坦な縁部を有している。

[0013]

次いで、成形板の両面を不動態化処理して母材表面の導電介在物が露出していない領域に 強固な酸化被膜を形成した。不動態化処理は、成形板をアセトンで10分間脱脂洗浄後、 30 に保持した10wt%硝酸液浴の中に10分間浸漬することによって行った。不動 態化処理後は常温水による10分間の洗浄を2回行い、その後乾燥させた。以上のようにして実施例のセパレータを得た。

[0014]

「比較例1]

SUS316Lのみからなるスラブを圧延して一層構造の素材板を得た以外は、実施例と同様にして比較例1のセパレータを得た。なお、比較例1では素材板が導電性介在物を含有しないため、セパレータの製造時に上記化学的エッチングは施さなかった。

[0015]

「比較例21

表 1 に示す各成分と、残部である F e および不可避的不純物とからなるスラブを圧延して 一層構造の素材板を得た以外は、実施例と同様にして比較例 2 のセパレータを得た。

[0016]

[比較例3]

比較例 1 のセパレータにさらに金めっきを施した。金めっきは 3 0 に保持し、電流密度が 0 . 1 A / d m ² に設定された青化金(3 g / L)のめっき浴に 1 0 分浸漬することにより行った。以上のようにして比較例 3 のセパレータを得た。

[0017]

B. セパレータ用素材板の曲げ試験による機械的特性の判定

JIS Z 2248に規定されているVブロック法を採用して、各セパレータ用素材板 の曲げ試験による機械的特性を判定した。試験片寸法を長さ50mm、幅10mmとし、 押金具先端の曲率半径を 0 . 2 m m とし、 V ブロックの角度 (1 8 0 -) 。 を 6 0 。 と し、押金具の押し下げ速度を 0 . 0 5 m m / s とした。これの条件の下、湾曲部外側の峰 中央 5 mm部に存在する長さ 3 0 μm以上のクラックの個数をカウントした。なお、各例 についてそれぞれ5本の試験片についての結果から得られたその最大値、最小値および平 均値を図3に示す。同図によれば、実施例は、比較例1および比較例3と同程度の機械的 特性を有することが判る。図4は、実施例のセパレータを製造する際に、素材板に曲げが 生じた場合を示す。外側に位置する導電介在物を含む鋼板の一方(図中上側の鋼板)にた とえ割れが発生したとしても、内側に位置する金属材には外側に位置する鋼板に対するそ の優れた機械的特性(高延性)の故に割れは発生しない。このため、通常のプレス成形時 に素材板全体としては割れが貫通することはない。したがって、実施例のセパレータ用素 材板は、燃料ガスと酸化材ガスとの分離機能を十分に発揮することができる。また比較例 1および3についてはセパレータ用素材板の構成材料が硼素を多量に含有しない高延性材 料であるため、セパレータ用素材板として十分な機械的特性を有する。しかしながら、比 較例2については、セパレータ用素材板の構成材料が硼素を多量に含有するため、セパレ タ用素材板として優れた機械的特性が得られない。

[0018]

C. 初期の接触抵抗の測定

各セパレータにつき、次の方法で初期の接触抵抗を測定した。2枚のセパレータで電極構造体のガス拡散層の表面を構成するカーボンペーパーを挟み、これを2枚の電極板で挟み、さらに電極板に対するセパレータの面圧が5kg/cm²になるように荷重をかけ、試験体をセットした。そして、2枚のセパレータ間に電流を流し、セパレータ間の電圧降から接触抵抗を求めた。その結果を図5に示す。同図によれば、実施例は、比較例2および比較例3と同程度の優れた接触抵抗性を有することが判る。このため、実施例のセパレータは、ガス拡散電極との間における優れた接触抵抗性が得られる。これは外側に位置する鋼板の表面に導電介在物を露出させることで、この導電介在物に導電経路としての役割を担わせ、優れた接触抵抗性を実現するからである。また、比較例2については実施例と同様の理由で、さらに比較例3については金めっきを施したことで、優れた接触抵抗性を実現することができる。しかしながら、比較例1については、セパレータの構成材料をSUS316Lとしたのみで、その含有成分の中に導電介在物と成り得るものがないことから、セパレータとして優れた接触抵抗性を実現することができない。

40

30

20

50

[0019]

D.1000時間発電後の接触抵抗(耐食性)の測定

各セパレータを用いた燃料電池を1000時間発電させた後に、電池からセパレータを分解して取り出し、上記した初期の接触抵抗の測定と同様にして、1000時間発電後の接触抵抗を測定した。その結果を図6に示す。同図によれば、実施例は、比較例2と同程度の優れた耐食性を有することが判る。これは、素材板の表面を構成する一対のステンレス鋼材上の導電介在物が露出していない部分に酸化皮膜が形成されているからである。このため、実施例のセパレータは、使用時に低pHの電解質膜と接触するとともに、カソード・アノード間にて相当な電池発電電位がかかる環境下においても好適なセパレータであるといえる。また比較例1については、もともと初期の接触抵抗が高いため、セパレータとして優れた集電性能を実現することはできない。比較例2については、素材板であるステンレス鋼材上の導電介在物が露出していない部分に酸化皮膜が形成されているため、セパレータとして優れた耐食性を実現することができる。比較例3については、母材であるステンレス鋼板と被覆された金との間で異種金属間接触腐食が生じ易く、このために実施例に比して耐食性が不良となっている。

[0020]

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、表面に導電性介在物が露出する一対の鋼材の間に、この鋼材よりも高い延性を有する金属材を接合したことにより、燃料電池用金属製セパレータ用素材板の優れた機械的特性を実現することができ、さらに、このセパレータ用素材板を用いることにより、優れた接触抵抗性を有する好適な燃料電池用金属製セパレータを製造することができる点で有望である。

【図面の簡単な説明】

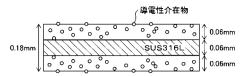
- 【図1】 本発明の素材板を示す断面図である。
- 【図2】 セパレータの成形板の一実施形態を示す図である。
- 【図3】 実施例および比較例1~3の各セパレータ<u>用素材板</u>についての機械的特性を示すグラフである。
- 【図4】 実施例のセパレータを製造する際の、素材板の曲げ態様を示す図である。
- 【図5】 実施例および比較例1~3の各セパレータについての初期の接触抵抗を示すグラフである。

【図6】 実施例および比較例1~3の各セパレータについての1000時間発電後の接触抵抗(耐食性)を示すグラフである。

20

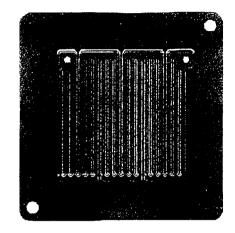
30

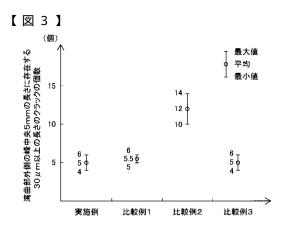
【図1】



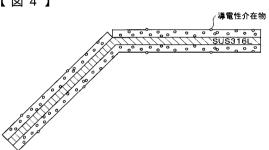
【図2】

図面代用写真

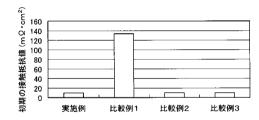




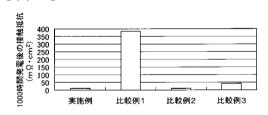




【図5】



【図6】



フロントページの続き

(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

審査官 前田 寛之

(56)参考文献 特開2001-032056(JP,A)

特開平11-354142(JP,A)

特開2001-214286(JP,A)

特開2000-328200(JP,A)

国際公開第02/039530(WO,A1)

国際公開第02/038828(WO,A1)

特開平07-050168(JP,A)

特開2000-164228(JP,A)

(58)調査した分野(Int.CI., DB名)

H01M 8/02

H01M 8/10