

(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2017-152225

(P2017-152225A)

(43) 公開日 平成29年8月31日(2017.8.31)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>HO 1 M 8/24 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/24 Z	5 H O 2 6
HO 1 M 8/10 (2016.01)	HO 1 M 8/10	5 H 1 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2016-33888 (P2016-33888)  
 (22) 出願日 平成28年2月25日 (2016. 2. 25)

(71) 出願人 314012076  
 パナソニック I P マネジメント株式会社  
 大阪府大阪市中央区城見2丁目1番61号  
 (74) 代理人 100106116  
 弁理士 鎌田 健司  
 (74) 代理人 100170494  
 弁理士 前田 浩夫  
 (72) 発明者 金子 陽太  
 大阪府門真市大字門真1006番地 パナ  
 ソニック株式会社内  
 (72) 発明者 秋山 崇  
 大阪府門真市大字門真1006番地 パナ  
 ソニック株式会社内

最終頁に続く

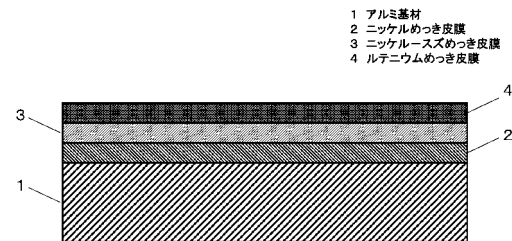
(54) 【発明の名称】 燃料電池用集電板

(57) 【要約】

【課題】低コストで下地層の剥離を抑制できる燃料電池用集電板を提供する。

【解決手段】燃料電池用集電板は、アルミ基材1の少なくとも片側表面に、ニッケルめっき皮膜2が形成され、ニッケルめっき皮膜2の上に、ニッケル-スズめっき皮膜3を介して、貴金属めっき皮膜としてルテニウムめっき皮膜4が形成されている。ニッケルめっき皮膜2とルテニウムめっき皮膜4との間にニッケル-スズめっき皮膜3が介在するので、ルテニウムめっき皮膜4を形成する際に、下地のニッケルめっき皮膜2が剥離するのを抑制できる。また、中間層にパラジウムめっき皮膜よりも安価なニッケル-スズめっき皮膜3を用いたので、低コストで燃料電池用集電板を製造できる。また、貴金属めっき皮膜としてルテニウムめっき皮膜4を使用したので、貴金属めっき皮膜として金めっき皮膜を用いた場合よりも低コストで燃料電池用集電板を製造できる。

【選択図】 図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

燃料電池セルが複数積層されたセル積層体の両端に配設されて電流を取り出すのに用いる燃料電池用集電板であって、母体金属からなる基材の少なくとも片側表面に、ニッケルめっき皮膜が形成され、前記ニッケルめっき皮膜の上に、ニッケル - スズめっき皮膜を介して、貴金属めっき皮膜が形成されている燃料電池用集電板。

## 【請求項 2】

前記貴金属めっき皮膜は、ルテニウムめっき皮膜である請求項 1 の燃料電池用集電板。

## 【請求項 3】

前記ルテニウムめっき皮膜および前記ニッケル - スズめっき皮膜が、電解めっき処理により形成されたものである請求項 2 に記載の燃料電池用集電板。

10

## 【請求項 4】

前記ニッケル - スズめっき皮膜の膜厚が  $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$  であり、前記貴金属めっき皮膜の膜厚が  $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$  である請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の燃料電池用集電板。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、燃料電池セルが複数積層されたセル積層体の両端に配設されて電流を取り出すのに用いる燃料電池用集電板に関するものである。

20

## 【背景技術】

## 【0002】

近年、クリーンで効率的なエネルギー源として、燃料電池が期待されている。固体高分子形燃料電池は、燃料極及び空気極で電解質膜を挟んだ M E A (Membrane of Electrolyte Assembly) と、M E A と当接する面に反応ガス流路が形成された一対のセパレーターと、この一対のセパレーター間に介在し反応ガスが外に漏れないように M E A の周囲を封止するシール部材としてのガスケットとを備えた燃料電池セルを有する。

## 【0003】

そして、この燃料電池セルは、通常、発電量増加のため複数積層させており、このセル積層体の積層方向の両端に集電板を設けて電流を取り出すようにしている。

30

## 【0004】

この集電板は、燃料電池セルで発電した電流を効率よく回収する役割を担っている。そのため、集電板には導電性が良い金属材料が使用されている。

## 【0005】

しかしながら、金属表面は腐食されやすいため、時間の経過と共に集電板が腐食して、セパレーターと集電板間の接触抵抗が増加し電流を効率的に回収できなくなる。

## 【0006】

そのために、セパレーターと接触する集電板の表面には、めっき処理が施されている。めっき処理には、品質（めっき厚、めっきの均一性、めっきの密着性）と耐食性（耐電位、耐環境）が兼ね備えたものが求められる。

40

## 【0007】

一般的に集電板の基材には銅、ステンレス鋼、アルミ板を基材に用い、めっき皮膜には貴金属を用いることが多い。貴金属は（化 1）に示す標準酸化還元電位  $E^0$  (25 ) から分かるように、燃料電池使用時のような湿潤雰囲気にも晒されても、腐食されにくい。

## 【0008】

## 【化 1】



10

なかでも、金は、各種金属の中で最も腐食されにくい金属であるため、めっき皮膜として使用されることが多い。また、金めっき皮膜を備えた集電板は、接触抵抗が低く効率的に電流を回収することができる。

## 【0009】

しかしながら、集電板の基材となる母材金属上に金めっき皮膜を形成すると、金めっき皮膜のピンホールから腐食が進行して接触抵抗が増加してしまう。そのため、金めっき皮膜の下地となるめっき皮膜が必要となる（例えば、特許文献1参照）。

20

## 【0010】

下地となるめっき皮膜は、緻密で均一、密着性に優れていることが求められる。無電解ニッケルめっき皮膜は、これらの要望を満たしているために、下地めっき皮膜として多く使用されている。

## 【0011】

燃料電池用集電板としての利用を考えた場合、コストを如何に抑えるかが大きな課題となっているため、高価な金めっき皮膜の使用量は、できるだけ少なくしたいという要望がある。

## 【0012】

しかしながら、金めっき皮膜の膜厚を薄くしてしまうと、母材金属が腐食したり、セパレーターとの接触抵抗が増加してしまう虞がある。

30

## 【0013】

そのため、燃料電池用集電板において、下地のニッケルめっき皮膜の表面に、パラジウムめっき皮膜を介して、金めっき皮膜を形成することが提案されている（例えば、特許文献2参照）。

## 【0014】

特許文献2で提案された燃料電池用集電板は、中間層のパラジウムめっき皮膜の存在により、金めっき皮膜の膜厚を薄くすることが可能となる。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

40

## 【0015】

【特許文献1】国際公開第2014/208610号

【特許文献2】特開2013-105629号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0016】

上記従来技術では、貴金属のめっき皮膜を形成する際に電解めっき液が強酸となるため、下地のニッケルめっき皮膜の剥離が懸念されている。また、上記特許文献2で提案された燃料電池用集電板は、最表面には金のめっき皮膜を使用しており、また、中間層に使用しているパラジウムも高価な金属であるため、更なるコスト低減が望まれている。

50

## 【 0 0 1 7 】

本発明は、上記従来課題に鑑み、低コストで製造でき下地層の剥離を抑制できる燃料電池用集電板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】

## 【 0 0 1 8 】

上記従来課題を解決するために、本発明の燃料電池用集電板は、下地層となるニッケルめっき皮膜の上に、ニッケル - スズめっき皮膜を介して、貴金属めっき皮膜が形成されているのである。

## 【 0 0 1 9 】

これにより、燃料電池用集電板を低コストで製造でき、下地層となるニッケルめっき皮膜の剥離を抑制できる。

## 【発明の効果】

## 【 0 0 2 0 】

本発明によれば、下地層となるニッケルめっき皮膜の上に、ニッケル - スズめっき皮膜を介して、貴金属めっき皮膜を形成したので、貴金属めっき皮膜を形成する際に、下地のニッケルめっき皮膜が剥離するのを抑制でき、中間層にパラジウムめっき皮膜よりも安価なニッケル - スズめっき皮膜を用いたので、低コストで燃料電池用集電板を製造できる。

## 【 0 0 2 1 】

また、表皮層の貴金属にルテニウムを使用した場合は、表皮層の貴金属に金を使用した場合よりも低コストで燃料電池用集電板を製造できる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【 0 0 2 2 】

【図 1】本発明の燃料電池用集電板の一例を示す概略断面図

## 【発明を実施するための形態】

## 【 0 0 2 3 】

第 1 の発明は、燃料電池セルが複数積層されたセル積層体の両端に配設されて電流を取り出すのに用いる燃料電池用集電板であって、母体金属からなる基材の少なくとも片側表面に、ニッケルめっき皮膜が形成され、前記ニッケルめっき皮膜の上に、ニッケル - スズめっき皮膜を介して、貴金属めっき皮膜が形成されている燃料電池用集電板である。

## 【 0 0 2 4 】

上記構成により、燃料電池用集電板におけるセパレータと接触する面が腐食するのを防ぐことができる。また、中間層にニッケル - スズ皮膜を形成することで、表皮層の貴金属めっき皮膜を形成する際に懸念されていた強酸電解めっき液による下地層のニッケルめっき皮膜の剥離を防ぐことができる。そのため、低接触抵抗および高耐食性を備えた燃料電池用集電板を得ることができる。

## 【 0 0 2 5 】

また、中間層にパラジウムめっき皮膜よりも安価なニッケル - スズめっき皮膜を用いたので、低コストで燃料電池用集電板を製造できる。

## 【 0 0 2 6 】

第 2 の発明は、特に第 1 の発明における、前記貴金属めっき皮膜として、ルテニウムめっき皮膜を用いたものである。

## 【 0 0 2 7 】

ルテニウムは、金に次ぐ耐食性と低抵抗値を備えており、白金族中で最も安価である。そのため、ルテニウムを表皮層のめっき皮膜として使用することにより、金めっき皮膜を使用せずに、安価に耐食性に優れためっき皮膜を形成できる。そのため、従来性能を維持したまま、低コストで燃料電池用集電板を製造できる。

## 【 0 0 2 8 】

第 3 の発明は、特に第 2 の発明における、前記ルテニウムめっき皮膜および前記ニッケル - スズめっき皮膜が、電解めっき処理により形成されたものである。

## 【 0 0 2 9 】

10

20

30

40

50

電解めっき処理により、純度が高く、低抵抗な膜が得られるので、表皮層のルテニウムめっき皮膜および中間層の前記ニッケル - スズめっき皮膜は電解めっき処理によって形成することが望ましい。

【0030】

第4の発明は、特に第1から第3の発明における、前記ニッケル - スズめっき皮膜の膜厚が0.1~0.2 μmであり、貴金属めっき皮膜の膜厚が0.05~0.1 μmであるものである。

【0031】

上記膜厚のめっき皮膜を有する燃料電池用集電板は、接触抵抗が低く、耐食性に優れ、ピンホールが発生しにくいという特徴を有する。

10

【0032】

以下、本発明の燃料電池用集電板の一実施の形態について、図面を参照しながら説明するが、この実施の形態によって本発明が限定されるものではない。

【0033】

(実施の形態)

まず、亜鉛置換処理、無電解ニッケルめっき、ニッケル - スズ合金めっき、電解ルテニウムめっき、の各工程を順に行って、燃料電池用集電板の基材にめっき皮膜を作製する方法を説明する。

【0034】

[亜鉛置換処理]

アルミ基材1の片側表面および外周端面をマスクし、水酸化ナトリウム20質量%、および酸化亜鉛3.6質量%を含有する亜鉛処理液を濃度500 ml/Lに希釈した亜鉛浸漬浴を用いて、アルミ基材1を22 で30秒間浸漬させる。

20

【0035】

次に、アルミ基材1を水洗した後、濃度62質量%、及び酸化亜鉛3.6質量%を含有する亜鉛処理液を濃度500 ml/Lに希釈した亜鉛浸漬浴を用いて、アルミ基材1を22 で30秒間浸漬させる。

【0036】

再び、アルミ基材1を水洗した後、濃度62質量%の硝酸水溶液を酸洗浴として、アルミ基材1を25 で30秒間浸漬して、一旦、アルミ基材1の表面に形成された置換亜鉛層を剥離させる。

30

【0037】

再び、アルミ基材1を水洗した後、再び、上記亜鉛浸漬浴を用いて、22 で30秒間アルミ基材1を浸漬させて、およそ1 μmの置換亜鉛層を形成するようにして、亜鉛置換処理を行う。

【0038】

[無電解ニッケルめっき]

亜鉛置換処理を行ったアルミ基材1を水洗した後、次亜リン酸ナトリウム19質量%および酢酸3.9質量%を含んだ薬剤と、硫酸ニッケル36質量%を含有したニッケルめっき液とを、それぞれ濃度130 ml/Lと40 ml/Lとなるように水で希釈して混合したニッケルめっき浴を用いて、90 で35分間浸漬させる無電解ニッケルめっき処理を行う。

40

【0039】

これにより、マスクした面と反対側のアルミ基材1の片側表面に膜厚4.7 μmのニッケルめっき皮膜2が形成される。

【0040】

[ニッケル - スズ合金めっき]

片側表面にニッケルめっき皮膜2が形成されたアルミ基材1を水洗した後、塩化スズ28 g/L、塩化ニッケル30 g/L、ピロリン酸カリウム200 g/L、グリシン20 g/L、アンモニア水5 ml/L、光沢剤1 ml/Lを混合したニッケルとスズのめっき浴

50

を用いて50 で電解めっき処理を行う。

【0041】

これにより、ニッケルめっき皮膜2の上にニッケル-スズめっき皮膜3が形成される。

【0042】

[電解ルテニウムめっき]

塩酸を水で希釈した液に、ニッケルめっき皮膜2の上にニッケル-スズめっき皮膜3が形成されたアルミ基材1を1分間浸漬し、アルミ基材1の表面を活性化させる。その後、アルミ基材1を水洗し、塩化ルテニウムを20g/L含む75のルテニウムめっき浴に浸漬し、1A/dm<sup>2</sup>の電流を2分間通電することにより、電解ルテニウムめっき処理を行う。

10

【0043】

これにより、ニッケルめっき皮膜2の上にニッケル-スズめっき皮膜3を介して膜厚93nmのルテニウムめっき皮膜4を備えた試験用導電部材が得られる。

【実施例】

【0044】

(実施例1)

アルミニウム合金材からアルミ基材1を切り出し、電解脱脂を行った。次にアルミ基材1を水洗した後、亜鉛置換処理を行って、アルミ基材1の表面の酸化アルミ皮膜を除去した。次に、無電解めっき処理により、アルミ基材1の表面に膜厚2.0μmのニッケルめっき皮膜2を形成させた。

20

【0045】

次に、電解めっき処理を行い、ニッケルめっき皮膜2上に中間層としてニッケル-スズめっき皮膜3を0.1μmの膜厚で形成させた。最後に、電解めっき処理を行い、最表面に(ニッケル-スズめっき皮膜3の上に)ルテニウムめっき皮膜4を形成させた。

【0046】

[集電板の性能評価]

(めっき皮膜の分析評価)

上記で得られた燃料電池用集電板のめっき皮膜の各膜厚測定は、蛍光X線膜厚計を用いて測定した。

【0047】

30

(硝酸ばっ気試験)

上記で得られた燃料電池用集電板について、硝酸ばっ気試験を行った。まず、貴金属めっき皮膜(ルテニウムめっき皮膜4)の表面の汚れをエタノールで除去し、乾燥後、デシケーターに硝酸を入れ、磁製板の上に燃料電池用集電板を載せて蓋をした。その後、23で1時間放置した後、燃料電池用集電板を取り出して水洗して乾燥させた。

【0048】

(接触抵抗測定)

上記で得られた燃料電池用集電板について接触抵抗の測定を行った。測定の前に、荷重を負荷して温度加速にて複合加速試験を実施した。

【0049】

40

(実施例2)

膜厚が4.0μmのニッケルめっき皮膜2の表面に、ニッケル-スズめっき皮膜3を膜厚0.2μmで形成した以外は実施例1と同様にして、実施例2の燃料電池用集電板を得た。得られた燃料電池用集電板は、実施例1と同様に評価した。

【0050】

(比較例1)

アルミ基材1の片側表面にニッケルめっき皮膜2を形成した後、ニッケルめっき皮膜2の上にニッケル-スズめっき皮膜3を形成せずにパラジウムめっき皮膜を形成し、比較例1に係る集電板を得た。得られた燃料電池用集電板は実施例1、実施例2と同様に評価した。

50

## 【0051】

(評価結果)

まず、実施例1の各めっき皮膜の膜厚は、ニッケルが2.0 μm、ニッケル-スズが0.10 μm、ルテニウムが0.05 μmであった。

## 【0052】

実施例2の各めっき皮膜の膜厚は、ニッケルが4.0 μm、ニッケル-スズが0.20 μm、ルテニウムが0.05 μmであった。

## 【0053】

比較例1の各めっき皮膜の膜厚は、ニッケルが5.0 μm、パラジウムが0.04 μm、金が0.02 μmであった。

10

## 【0054】

次に硝酸ばっ気試験の結果を示す。実施例1、実施例2、比較例1の集電板の最表面(表皮層)の貴金属めっき皮膜は、硝酸ばっ気試験後であっても外観不良は観察されなかった。

## 【0055】

実施例1、実施例2、比較例1の接触抵抗値を(表1)に示す。

## 【0056】

## 【表1】

表1 燃料電池用集電板の接触抵抗値

20

	接触抵抗値 [mΩ・cm <sup>2</sup> ]
実施例1	5.83
実施例2	5.86
比較例1	10.93

(表1)に示したように、接触抵抗値は、比較例1と比べて実施例1、実施例2共に低下している。この結果から、本発明の燃料電池用集電板は、従来よりも、低コストで下地層の剥離を抑制できる燃料電池用集電板を提供できるのである。

30

## 【産業上の利用可能性】

## 【0057】

以上のように、本発明の燃料電池用集電板は、低コストで下地層の剥離を抑制できるので、実用化に向けコストダウンが要求される燃料電池に好適である。

## 【符号の説明】

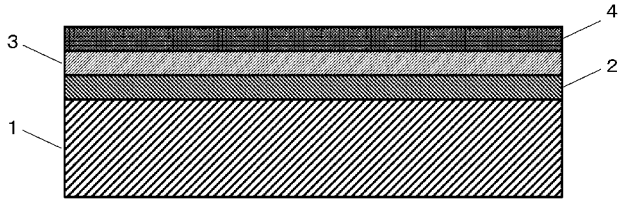
## 【0058】

- 1 アルミ基材
- 2 ニッケルめっき皮膜
- 3 ニッケル-スズめっき皮膜
- 4 ルテニウムめっき皮膜

40

【 図 1 】

- 1 アルミ基材
- 2 ニッケルめっき皮膜
- 3 ニッケル-スズめっき皮膜
- 4 ルテニウムめっき皮膜





---

フロントページの続き

(72)発明者 柴田 礎一

大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 パナソニック株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB04 EE02 HH03

5H126 AA28 BB06 GG02 HH04 JJ03