

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4133323号
(P4133323)

(45) 発行日 平成20年8月13日(2008.8.13)

(24) 登録日 平成20年6月6日(2008.6.6)

(51) Int.Cl.

F I

HO 1 M 8/02 (2006.01)
 C 2 2 C 38/00 (2006.01)
 C 2 2 C 38/58 (2006.01)
 HO 1 M 8/10 (2006.01)

HO 1 M 8/02 B
 C 2 2 C 38/00 3 O 2 Z
 C 2 2 C 38/58
 HO 1 M 8/10

請求項の数 6 (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2002-541743 (P2002-541743)
 (86) (22) 出願日 平成13年11月6日(2001.11.6)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2001/009685
 (87) 国際公開番号 W02002/039530
 (87) 国際公開日 平成14年5月16日(2002.5.16)
 審査請求日 平成16年9月7日(2004.9.7)
 (31) 優先権主張番号 特願2000-344298 (P2000-344298)
 (32) 優先日 平成12年11月10日(2000.11.10)
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(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
 (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 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

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用プレスセパレータ

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

Bを0.005～1.5重量%含有し、 $M_{23}(C,B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、 MB 型の硼化物のうち1種以上が表面に析出しているステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、

そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ。

【請求項2】

B: 0.005～1.5重量%、C: 0.15重量%以下、Si: 0.01～1.5重量%、Mn: 0.01～2.5重量%、P: 0.035重量%以下、S: 0.01重量%以下、Al: 0.001～0.2重量%、N: 0.3重量%以下、Cu: 0～3重量%、Ni: 7～50重量%、Cr: 17～30重量%、Mo: 0～7重量%を含有し、残部がFeおよび不可避免的不純物で、かつ、Cr、MoおよびBの含有量が次式を満足し、
 $Cr(\text{重量}\%) + 3 \times Mo(\text{重量}\%) - 2.5 \times B(\text{重量}\%) \geq 17$
 $M_{23}(C,B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、 MB 型の硼化物のうち1種以上が表面に析出しているオーステナイト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、

そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ

10

20

。

【請求項3】

B : 0 . 0 0 5 ~ 1 . 5 重量%、C : 0 . 1 5 重量%以下、Si : 0 . 0 1 ~ 1 . 5 重量%、Mn : 0 . 0 1 ~ 1 . 5 重量%、P : 0 . 0 3 5 重量%以下、S : 0 . 0 1 重量%以下、Al : 0 . 0 0 1 ~ 0 . 2 重量%、N : 0 . 0 3 5 重量%以下、Cu : 0 ~ 1 重量%、Ni : 0 ~ 5 重量%、Cr : 1 7 ~ 3 6 重量%、Mo : 0 ~ 7 重量%を含有し、残部がFeおよび不可避的不純物で、かつ、Cr、MoおよびBの含有量が次式を満足し、

$$Cr(重量\%) + 3 \times Mo(重量\%) - 2.5 \times B(重量\%) \geq 17$$
 $M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB型の硼化物のうち1種以上が表面に析出しているフェライト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ

10

。

【請求項4】

Bを0 . 0 0 5 ~ 1 . 5 重量%含有し、 $M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB型の硼化物のうち1種以上が表面に析出している光輝焼鈍処理仕上げしたステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ

20

。

【請求項5】

B : 0 . 0 0 5 ~ 1 . 5 重量%、C : 0 . 1 5 重量%以下、Si : 0 . 0 1 ~ 1 . 5 重量%、Mn : 0 . 0 1 ~ 2 . 5 重量%、P : 0 . 0 3 5 重量%以下、S : 0 . 0 1 重量%以下、Al : 0 . 0 0 1 ~ 0 . 2 重量%、N : 0 . 3 重量%以下、Cu : 0 ~ 3 重量%、Ni : 7 ~ 5 0 重量%、Cr : 1 7 ~ 3 0 重量%、Mo : 0 ~ 7 重量%を含有し、残部がFeおよび不可避的不純物で、かつ、Cr、MoおよびBの含有量が次式を満足し、

$$Cr(重量\%) + 3 \times Mo(重量\%) - 2.5 \times B(重量\%) \geq 17$$
 $M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB型の硼化物のうち1種以上が表面に析出している光輝焼鈍処理仕上げしたオーステナイト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ

30

。

【請求項6】

B : 0 . 0 0 5 ~ 1 . 5 重量%、C : 0 . 1 5 重量%以下、Si : 0 . 0 1 ~ 1 . 5 重量%、Mn : 0 . 0 1 ~ 1 . 5 重量%、P : 0 . 0 3 5 重量%以下、S : 0 . 0 1 重量%以下、Al : 0 . 0 0 1 ~ 0 . 2 重量%、N : 0 . 0 3 5 重量%以下、Cu : 0 ~ 1 重量%、Ni : 0 ~ 5 重量%、Cr : 1 7 ~ 3 6 重量%、Mo : 0 ~ 7 重量%を含有し、残部がFeおよび不可避的不純物で、かつ、Cr、MoおよびBの含有量が次式を満足し、

$$Cr(重量\%) + 3 \times Mo(重量\%) - 2.5 \times B(重量\%) \geq 17$$
 $M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB型の硼化物のうち1種以上が表面に析出している光輝焼鈍処理仕上げしたフェライト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする燃料電池用プレスセパレータ

40

。

【発明の詳細な説明】

技術分野

本発明は、固体高分子型燃料電池のガス流路を形成するセパレータに係り、特に、ステンレス鋼板をプレス成形することにより凹凸が連続する波板状に成形された燃料電池用プレ

50

セパレータに関する。

背景技術

固体高分子型燃料電池は、イオン交換樹脂膜等からなる電解膜の両面に、正負の電極触媒層（カソード電極とアノード電極）がそれぞれ積層され、さらにこれら電極触媒層にガス拡散層が積層された電極構造体を、1つの単位セルとしている。そして、複数の単位セルがセパレータを挟んで積層されることにより、実用的な燃料電池スタックが構成される。セパレータは電子伝達機能を有する材料からなるもので、燃料ガスである水素ガスと酸素や空気等の酸化剤ガスとがそれぞれ独立して流通する多数の溝状のガス流路を備え、ガス拡散層に接触する状態で単位セル間に介装される。

このような燃料電池によると、例えば、負極側のセパレータのガス流路に燃料として水素ガスを流し、正極側のセパレータの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って電気が発生する。電気発生中において、ガス拡散層は電気化学反応によって生成した電子を電極触媒層とセパレータとの間で伝達させると同時に燃料ガスおよび酸化性ガスを拡散させる。また、負極側の電極触媒層は燃料ガスに化学反応を起こさせてプロトンと電子を発生させ、正極側の電極触媒層は酸素とプロトンと電子から水を生成し、電解膜はプロトンをイオン伝導させる。そして、正負の電極触媒層を通して電力が取り出される。

ところで上記セパレータは、従来、主に黒鉛系材料が用いられ、ガス流路は溝を切削加工することで形成されていた。黒鉛系材料としては、焼成された等方性黒鉛にフェノール等の樹脂を含浸させたガス不浸透性黒鉛、フェノール等の樹脂を成形後に焼成させたアモルファスカーボン、樹脂と黒鉛からなる複合成形材料等が挙げられる。ところが、これら黒鉛系材料は、硬度が高いためガス流路を形成し難くかったり、機械的強度や耐衝撃性に劣ったりする問題点を有していた。

このような事情に鑑み、近来では、黒鉛系材料の問題点を補うことができる材料として、アルミニウム、チタン、ステンレス鋼等の金属製薄板材をプレス成形したものが用いられるようになってきている。これらの中でも、ステンレス鋼は表面に不動態被膜を有することから耐食性に優れているという長所がある。ところが、ステンレス鋼を燃料電池のセパレータに用いた場合には、溶出イオンによる触媒被毒や電解膜の導電率低下を招くおそれがある。また、不動態被膜の電気抵抗が高いため、セパレータと電極構造体との接触界面での接触抵抗が増加するという欠点もある。

そこで、これら問題点を解決する手段として、金メッキを施したステンレス鋼製のセパレータが、特開平10-228914号公報により知られている。また、ステンレス鋼中から導電性を有する硼化物あるいは硼炭化物を析出させ、この析出物を不動態被膜とともに表面に露出させて耐食性および導電性の向上を図る手段も試行されている。

上記従来の解決手段のうち、前者はコストの高騰を招くという製造上の大きな課題を有する。また、振動等による擦れを金メッキが受けると、ステンレス鋼との界面において金メッキが剥離しやすく、長期間の使用には適さない。さらに、ピンホール等の欠陥がある場合にはそこを起点として腐食が生じる。一方、後者の手段では、表面に析出させた析出物により材料が脆くなり、プレス成形で折り曲げ加工すると、その折り曲げ部から析出物が剥離・脱落して脱落痕を基点とする腐食が生じ、やはり長期間の使用には適さない。

発明の開示

本発明は、不動態被膜と硼化物あるいは硼炭化物の析出物の組み合わせにより優れた耐食性および導電性が得られ、なおかつ、プレス成形による析出物の剥離・脱落が起こらず腐食の発生が抑えられ、長期にわたる使用が可能となる燃料電池用プレスセパレータを提供することを目的としている。

本発明は、Bを0.005～1.5重量%含有し、 $M_{23}(C,B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、 MB 型の硼化物のうち1種以上が表面に析出しているステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする。

本発明のセパレータによれば、プレス成形による凹凸によって表裏面に形成される多数の溝が、燃料ガスまたは酸化性ガスのガス流路とされる。本発明のセパレータでは、ステンレス鋼の特性である表面の不動態膜による高耐食性に加え、硼炭化物または硼化物のうちの1種以上の析出物が表面に露出していることにより、耐食性が一層高まるとともに、イオン溶出量が抑えられて高い導電性を得ることができる。また、不動態膜や析出物によって有害なイオンや生成物の発生が抑えられ、それら有害物の排出により燃料電池の構成部品である電解膜や電極触媒層、あるいは配管等がダメージを受けることがない。

上記析出物は、上述したように材料の脆化を招き、プレス成形で折り曲げ加工した際に、屈曲部から析出物が剥離・脱落し、脱落痕を基点とする腐食が発生するおそれがある。しかしながら、本発明はBの含有量を0.005～1.5重量%と規定しており、この規定含有量によって屈曲部からの析出物の剥離・脱落が発生しないように制御される。

Bは表面に析出する導電性介在物の主要元素で、セパレータに必要な接触抵抗を満足するために必要な析出量を満足する観点から、0.005重量%以上を必要とする。ただし、1.5重量%を超えると析出量が増え過ぎ、プレス成形によって形成される屈曲部の外面に、剥離・脱落には至らないものの表面に亀裂や空隙が発生し、これを起点として腐食が発生するおそれがある。したがって、Bの含有量を0.005～1.5重量%とした。

また、本発明のセパレータのガス流路は、ステンレス鋼板を波板状にプレス成形することにより表裏面に溝状に形成されるが、ガス流路を形成する屈曲部の角度を15度以上、外曲げR値を1mm以下に規定する。第1図AおよびBは、ステンレス鋼板を波板状にプレス成形して得られたセパレータの一部断面を示している。第1図Aのセパレータ1は、屈曲部1aの角度 θ が90度でガス流路1bが二等辺三角形状に形成されている。第1図Bのセパレータ2は、屈曲部2aの角度 θ が45度でガス流路2bが台形状に形成されている。本発明では、屈曲部の外面側の湾曲半径が外曲げR値である。

セパレータのガス流路には燃料ガスまたは酸化性ガスが流されるが、これらガスは、電極構造体に接触することにより消費されていくため、流量を確保する上でガス流路は一定の深さを有していることが必要である。ガス流路断面の観点から言うと、ガス流路の幅に対してある一定以上の高さ（深さ）が必要である。断面の幅をWとすると、屈曲部の角度 θ のときに形成される最大深さは $0.5W \tan \theta$ となり、このとき断面積は最大となる。すなわち、このときの断面の幅と深さの比率 $0.5W \tan \theta / W = 0.5 \tan \theta$ をパラメータとし、このパラメータを適用することで、ガス流路の深さを決定できる。

第3図は、本発明の組成を有する0.2mm厚のステンレス鋼板を、屈曲部の外曲げR値を一定の0.5mmとし、その屈曲部の角度を変えてプレス成形した各セパレータを用いて燃料電池スタックを構成し、それら燃料電池における $0.4 \text{ A} / \text{cm}^2$ 発電時の単位セルの発電電圧を測定した結果を示している。この図で判るように、屈曲部の角度が15度以上であると、15度を下回っている場合に比べて発電効率が格段に高くなる。このことから、本発明ではガス流路を形成する屈曲部の角度を15度以上に規定した。

ガス流路は、ガス流路に面する電極構造体に燃料ガスや酸化性ガスが十分供給されて発電効率が確保されるように、それらガスがよどみなくスムーズに流れる特性が求められる。ところが、第2図に示すように、セパレータ3の屈曲部3aの外面側と電極構造体10との間には、屈曲部3aの外面がR面であることから微小な隙間（第2図の斜線部分）が形成され、この隙間においてガスがよどむ傾向にある。この隙間をなるべく小さくすれば、電極構造体へのガスの供給が十分になされる。

第4図は、本発明の組成を有する0.2mm厚のステンレス鋼板を、屈曲部の角度を一定の45度とし、その屈曲部の外曲げR値を変えてプレス成形した各セパレータを用いて燃料電池スタックを構成し、それら燃料電池における $0.4 \text{ A} / \text{cm}^2$ 発電時の単位セルの発電電圧を測定した結果を示している。この図で判るように、外曲げR値が1mm以上であると、1mmを超える場合に比べて発電効率が格段に高くなる。このことから、本発明ではガス流路を形成する屈曲部の外曲げR値を1mm以下に規定した。

また、本発明は、B：0.005～1.5重量%、C：0.15重量%以下、Si：0.01～1.5重量%、Mn：0.01～2.5重量%、P：0.035重量%以下、S：

10

20

30

40

50

0.01重量%以下、Al:0.001~0.2重量%、N:0.3重量%以下、Cu:0~3重量%、Ni:7~50重量%、Cr:17~30重量%、Mo:0~7重量%を含有し、残部がFeおよび不可避的不純物で、かつ、Cr、MoおよびBの含有量が次式を満足し、

$$Cr(\text{重量}\%) + 3 \times Mo(\text{重量}\%) - 2.5 \times B(\text{重量}\%) \geq 17$$

$M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB型の硼化物のうち1種以上が表面に析出しているオーステナイト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が15度以上、外曲げR値が1mm以下であることを特徴とする。

以下に、前述したBを除く上記元素の数値限定の根拠を述べる。

10

C:0.15重量%以下

Cは量産に好適なプレス成形性を満足する常温靱性・延性を確保するために含有量は低ければ低いほどよく、これを鑑みて本発明では0.15重量%以下とした。

Si:0.01~1.5重量%

Siは脱酸元素として有効であるが、0.01重量%を下回ると脱酸が不十分となり、1.5重量%を超えると延性の低下を招き、プレス成形性を阻害する。したがって、Siの含有量は0.01~1.5重量%とした。

Mn:0.01~2.5重量%

Mnは脱酸元素として必要であり、Niのバランス調整元素としても添加される。また、不可避元素として混入するSをMnの硫化物として固定化するように働く。これらの機能は、Mnが0.01重量%以上の含有量において発揮されるが、2.5重量%を超えるとイオン溶出量が増大し、特に、電解膜がスルホン酸系である場合にはスルホン酸基と結合して電解膜のイオン電導性が低下する。したがって、Mnの含有量は0.01~2.5重量%とした。

20

P:0.035重量%以下

Pは不可避的に混入する元素であり、含有量は低ければ低いほどよい。Pを含む析出物(介在物)は、燃料電池環境下において腐食の起点となることを考慮して、Pは0.035重量%以下とした。

S:0.01重量%以下

SもPと同様の理由により含有量を0.01重量%以下とした。

30

Al:0.001~0.2重量%

Alは脱酸元素として溶鋼段階で添加し、0.001~0.2重量%の範囲で含有させる。鋼中のBは溶鋼中の酸素との結合力が強い元素であり、Alによる脱酸により酸素濃度を低下させておく必要がある。

N:0.3重量%以下

Nは、Cと同様の理由により含有量を0.3重量%とした。

Cu:0~3重量%

Cuは、必要により3重量%以下を含有させる。Cuを適当量含有させると不動態化が促進され、セパレータ環境で金属の溶出を防止する効果がある。含有量としては0.01重量%以上が好ましく、一方、3重量%を超えると熱間での加工性を減じることとなり、量産が難しくなる。したがって、Cuの含有量は0~3重量%とした。

40

Ni:7~50重量%

Niは、金属組織学的にオーステナイト系とするために重要な元素である。オーステナイト系とすることで、製造性、耐食性および成形性が確保される。Niの含有量が7重量%を下回るとオーステナイト組織の形成が困難であり、一方、50重量%を超えるとコストがかかり過ぎ高価になる。したがって、Niの含有量は7~50重量%とした。なお、Niは M_2B 型の硼化物中に僅かに含有される。

Cr:17~30重量%

Crは含有量が多ければ多いほど耐食性が高くなるが、反面、常温における靱性・延性の低下を招く。耐食性と靱性・延性がバランスよく確保される範囲として、本発明ではCr

50

の含有量を 17 ~ 30 重量%とした。

Mo : 0 ~ 7 重量%

Mo は含有量が多ければ多いほど耐食性が高くなるが、反面、材料の脆化を招く。本発明では、脆化を招かない Mo の含有量として 0 ~ 7 重量%とした。

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

B がステンレス鋼中の Cr および Mo を消費して硼化物または硼炭化物を生成するため、母材中に占める耐食性向上の元素である Cr および Mo の量が低下し、母材の耐食性を招くが、これを防ぐために上記式を規定した。

また、本発明は、B : 0.005 ~ 1.5 重量%、C : 0.15 重量%以下、Si : 0.01 ~ 1.5 重量%、Mn : 0.01 ~ 1.5 重量%、P : 0.035 重量%以下、S : 0.01 重量%以下、Al : 0.001 ~ 0.2 重量%、N : 0.035 重量%以下、Cu : 0 ~ 1 重量%、Ni : 0 ~ 5 重量%、Cr : 17 ~ 36 重量%、Mo : 0 ~ 7 重量%を含有し、残部が Fe および不可避免的不純物で、かつ、Cr、Mo および B の含有量が次式を満足し、

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

$M_{23}(C, B)_6$ 型硼炭化物、 M_2B 型、MB 型の硼化物のうち 1 種以上が表面に析出しているフェライト系ステンレス鋼板を、凹凸が連続する波板状にプレス成形してなり、そのプレス成形による折り曲げもしくは曲げ伸ばしによって形成される屈曲部の角度が 15 度以上、外曲げ R 値が 1 mm 以下であることを特徴とする。このセパレータが含有する Mn、N、Cu、Ni については、上記オーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータと若干含有量が異なるが、これら数値の上限、下限の限定理由は同様である。

さらに、本発明の燃料電池用プレスセパレータにおいては、オーステナイト系ステンレス鋼板、フェライト系ステンレス鋼板を含むステンレス鋼板は、光輝焼鈍処理仕上げした鋼板であることが好ましく、この光輝焼鈍処理によって、大気中酸化では防止できない表層での脱 B 層の形成を防止することができ、酸洗後に露出する導電性介在物数の減少を阻止することができる。

発明を実施するための最良の形態

以下、実施例を示して本発明の効果を実証する。

(1) B 量と外曲げ R 値の関係 (オーステナイト系ステンレス鋼板)

B の含有量が 0 ~ 2 重量%の範囲で適宜に異なり、他の元素の含有量は本発明の範囲内である 0.2 mm 厚のオーステナイト系ステンレス鋼板を、屈曲部の曲げ角度を一定 (15 度) とし、外曲げ R 値を 0.2 ~ 1.6 mm に異ならせてプレス成形することにより、B の含有量と外曲げ R 値が異なる組み合わせの各種セパレータを得た。これらセパレータごとに燃料電池を構成し、ガス流路に所定のガスを流して 3000 時間連続して発電させた後、セパレータの屈曲部の剥離・脱落および腐食の状態を観察した。第 5 図はその結果を示しており、図中 ○ は表面の剥離・脱落痕を起点とした腐食が認められず健全な状態だったセパレータ、× はそのような腐食が認められたものである。

(2) B 量と屈曲部の角度の関係 (オーステナイト系ステンレス鋼板)

上記同様に、B の含有量が 0 ~ 2 重量%の範囲で適宜に異なり、他の元素の含有量は本発明の範囲内である 0.2 mm 厚のオーステナイト系ステンレス鋼板を用意し、屈曲部の外曲げ R 値を一定 (1 mm) とし、屈曲部の角度を 0 ~ 120 度に異ならせてプレス成形することにより、B の含有量と屈曲部の角度が異なる組み合わせの各種セパレータを得た。これらセパレータごとに燃料電池を構成し、ガス流路に所定のガスを流して 3000 時間連続して発電させた後、セパレータの屈曲部の剥離・脱落および腐食の状態を観察した。第 6 図はその結果を示しており、○、× で示す評価は第 5 図と同様である。

第 5 図によれば、外曲げ R 値を 1 mm 以下と規定するならば、B の含有量が 1.5 重量%以下でなければ腐食が生じる。また、第 6 図によれば、屈曲部の角度を 15 度以上と規定するならば、同じく B の含有量は 1.5 重量%以下でなければならない。したがって、本発明におけるオーステナイト系ステンレス鋼板製のセパレータにおいては、B を含有することによって析出する硼化物または硼炭化物からなる析出物が剥離・脱落し、脱落痕に起

10

20

30

40

50

因する腐食を防止するためには、Bの含有量：1.5重量%以下、外曲げR値：1mm、屈曲部の角度：15度以上が必須条件となる。ただし、Bの含有量は、セパレータに必要な接触抵抗を満足するために必要な析出量を満足する観点から0.005重量%以上を必要とする。

(3) B量と外曲げR値の関係(フェライト系ステンレス鋼板)

Bの含有量が0~2重量%の範囲で適宜に異なり、他の元素の含有量は本発明の範囲内である0.2mm厚のフェライト系ステンレス鋼板を、屈曲部の曲げ角度を一定(15度)とし、外曲げR値を0.2~1.6mmに異ならせてプレス成形することにより、Bの含有量と外曲げR値が異なる組み合わせの各種セパレータを得た。これらセパレータごとに燃料電池を構成し、ガス流路に所定のガスを流して3000時間連続して発電させた後、セパレータの屈曲部の剥離・脱落および腐食の状態を観察した。第7図はその結果を示しており、○、×で示す評価は第5図と同様である。

10

(4) B量と屈曲部の角度の関係(フェライト系ステンレス鋼板)

上記と同様に、Bの含有量が0~2重量%の範囲で適宜に異なり、他の元素の含有量は本発明の範囲内である0.2mm厚のフェライト系ステンレス鋼板を用意し、屈曲部の外曲げR値を一定(1mm)とし、屈曲部の角度を0~120度に異ならせてプレス成形することにより、Bの含有量と屈曲部の角度が異なる組み合わせの各種セパレータを得た。これらセパレータごとに燃料電池を構成し、ガス流路に所定のガスを流して3000時間連続して発電させた後、セパレータの屈曲部の剥離・脱落および腐食の状態を観察した。第8図はその結果を示しており、○、×で示す評価は第5図と同様である。

20

第7図によれば、外曲げR値を1mm以下と規定するならば、Bの含有量が1.5重量%以下でなければ腐食が生じる。また、第8図によれば、屈曲部の角度を15度以上と規定するならば、同じくBの含有量は1.5重量%以下でなければならない。したがって、本発明におけるフェライト系ステンレス鋼板製のセパレータにおいては、Bを含有することによって析出する硼化物または硼炭化物からなる析出物が剥離・脱落し、脱落痕に起因する腐食を防止するためには、Bの含有量：1.5重量%以下、外曲げR値：1mm、屈曲部の角度：15度以上が必須条件となる。ただし、Bの含有量は、セパレータに必要な接触抵抗を満足するために必要な析出量を満足する観点から、0.005重量%以上を必要とする。

(5) B量による性能の相違(オーステナイト系ステンレス鋼板)

30

表1に示す実施例1(本発明品)と比較例1(本発明逸脱品)の組成を有する0.2mm厚のオーステナイト系ステンレス鋼板を用いて、第9図AおよびBに示すセパレータ4をプレス成形により作製した。第9図Bに示すように、セパレータ4のガス流路4bは台形状であって、屈曲部4aの角度は45度、外曲げR値は0.3mmとした。これらのセパレータにつき、接触抵抗と、0.9V時の不動態保持電流密度を測定した。その測定結果を、第11図に示す。なお、接触抵抗は2枚重ねたセパレータ(アノード側とカソード側)4に面圧5kgf/cm²の荷重をかけ、抵抗計を用いて測定した貫通抵抗である。また、不動態保持電流密度とは、母材のステンレス鋼が酸化物になる酸化物生成速度と、表面酸化被膜が溶けてイオン化する速度が等しくなったとき、すなわち酸化被膜の厚さが変化しなくなったときの腐食速度に対応した電流密度を言うもので、定電位分極試験にてその電流密度を測定した。

40

表1

元素の含有量単位：重量%													
	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	N	Al	B	Cr+3Mo+2.5B
実施例1	0.018	0.65	1.02	0.028	0.0078	0.25	8.4	18.82	-	0.025	0.015	0.12	18.52
実施例2	0.018	0.65	1.02	0.028	0.0078	0.25	0.21	18.82	-	0.025	0.015	0.12	18.52
比較例1	0.019	0.12	0.08	0.013	0.0008	0.08	8.4	24.76	-	0.036	0.022	2.52*	18.46
比較例2	0.019	0.12	0.08	0.013	0.0008	0.08	0.01	24.76	-	0.036	0.022	2.52*	18.46

*：本発明から逸脱する数値

次に、第10図に示すように、電極構造体からなる単位セル20を10セル用い、単位セ

50

ル 20 間に実施例 1 のセパレータ 4 を介在させて積層した燃料電池スタックを構成した。同図で 21 はシール、22 は集電プレート、23 は燃料電池スタックの積層状態を固定するクランププレートである。一方、比較例 1 のセパレータを用い、同様に燃料電池スタックを構成した。これらの燃料電池を発電させ、発電開始から 500 時間ごとに 300 時間までの接触抵抗と、単位セルの 0.7 V 発電時の電流密度を測定した。その測定結果を、第 12 図、第 13 図にそれぞれ示す。

第 11 図によれば、接触抵抗に関しては実施例 1 と比較例 1 に大きな差異は認められないが、0.9 V 時の不動態保持電流密度は実施例 1 に比べて比較例 1 の方が大幅に高い。また、第 12 図によれば、発電開始時こそ実施例 1 と比較例 1 はともに接触抵抗が低く同等であるが、比較例 1 は発電直後から接触抵抗が上昇し、さらに時間を経るにつれ徐々に上昇している。一方、実施例 1 は長時間の発電によっても接触抵抗は低いレベルで変動しない。また、第 13 図によれば、発電開始時こそ実施例 1 と比較例 1 の電流密度は同等であるが、比較例 1 は発電直後から電流密度が低下し、さらに時間を経るにつれ徐々に低下している。一方、実施例 1 は長時間の発電によっても電流密度は低いレベルで変動しない。

(6) B 量による性能の相違 (フェライト系ステンレス鋼板)

表 1 に示す実施例 2 (本発明品) と比較例 2 (本発明逸脱品) の組成を有する 0.2 mm 厚のフェライト系ステンレス鋼板を用いて、実施例 1 と同様にセパレータを作製した。これらのセパレータにつき、上記と同様に接触抵抗と 0.9 V 時の不動態保持電流密度を測定した。その測定結果を、第 14 図に示す。

次に、実施例 1 と同様に、実施例 2 のセパレータを用いた燃料電池スタックを構成し、さらに、比較例 2 のセパレータを用いた燃料電池を同様に構成した。これらの燃料電池を発電させ、発電開始から 500 時間ごとに 300 時間までの接触抵抗と、単位セルの 0.7 V 発電時の電流密度を測定した。その測定結果を、第 15 図、第 16 図にそれぞれ示す。

第 14 図によれば、接触抵抗に関しては実施例 2 と比較例 2 に大きな差異は認められないが、0.9 V 時の不動態保持電流密度は実施例 2 と比べて比較例 2 の方が大幅に高い。また、第 15 図によれば、発電開始時こそ実施例 2 と比較例 2 はともに接触抵抗が低く同等であるが、比較例 2 は発電直後から接触抵抗が上昇し、さらに時間を経るにつれ徐々に上昇している。一方、実施例 2 は長時間の発電によっても接触抵抗は低いレベルで変動しない。また、第 16 図によれば、発電開始時こそ実施例 2 と比較例 2 の電流密度は同等であるが、比較例 2 は発電直後から電流密度が低下し、さらに時間を経るにつれ徐々に低下している。一方、実施例 1 は長時間の発電によっても電流密度は低いレベルで変動しない。

【図面の簡単な説明】

第 1 図 A は本発明に係るセパレータを概念的に示す一部断面図、第 1 図 B は本発明に係る他の形態のセパレータを概念的に示す一部断面図である。

第 2 図は、セパレータの屈曲部と電極構造体との間に形成されてガスのよどみを生じさせる隙間を示す図である。

第 3 図は、セパレータのガス流路を形成する屈曲部の角度と燃料電池の発電電圧の関係を示す線図である。

第 4 図は、セパレータのガス流路を形成する屈曲部の外曲げ R 値と燃料電池の発電電圧の関係を示す線図である。

第 5 図は、オーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータの B 量および外曲げ R 値と屈曲部の腐食状態の相関関係を示す図である。

第 6 図は、オーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータの B 量および屈曲部の角度と屈曲部の腐食状態の相関関係を示す図である。

第 7 図は、フェライト系ステンレス鋼板からなるセパレータの B 量および外曲げ R 値と屈曲部の腐食状態の相関関係を示す図である。

第 8 図は、フェライト系ステンレス鋼板からなるセパレータの B 量および屈曲部の角度と屈曲部の腐食状態の相関関係を示す図である。

第 9 図 A は実施例で作製したセパレータの平面図、第 9 図 B は断面図である。

10

20

30

40

50

第10図は、実施例で作製した燃料電池スタックの断面図である。

第11図は、実施例で行ったオーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータの接触抵抗および0.9V時の不動態保持電流密度の測定結果を示す線図である。

第12図は、実施例で行ったオーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータの接触抵抗の経時変化を示す線図である。

第13図は、実施例で行ったオーステナイト系ステンレス鋼板からなるセパレータの電流密度の経時変化を示す線図である。

第14図は、実施例で行ったフェライト系ステンレス鋼板からなるセパレータの接触抵抗および0.9V時の不動態保持電流密度の測定結果を示す線図である。

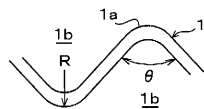
第15図は、実施例で行ったフェライト系ステンレス鋼板からなるセパレータの接触抵抗の経時変化を示す線図である。

第16図は、実施例で行ったフェライト系ステンレス鋼板からなるセパレータの電流密度の経時変化を示す線図である。

10

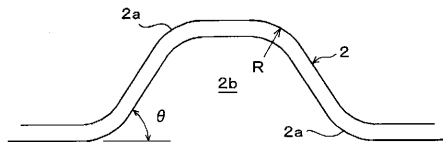
【図1A】

第1図A



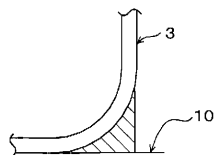
【図1B】

第1図B



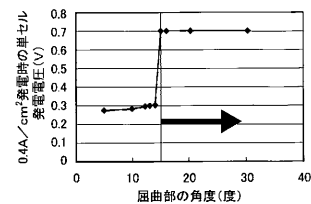
【図2】

第2図



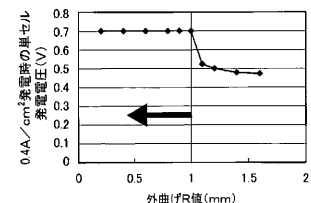
【図3】

第3図

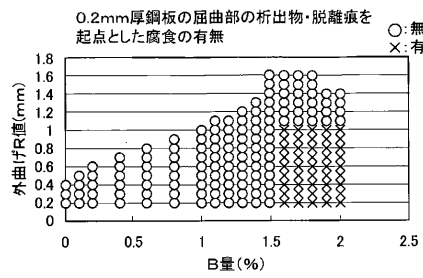


【図4】

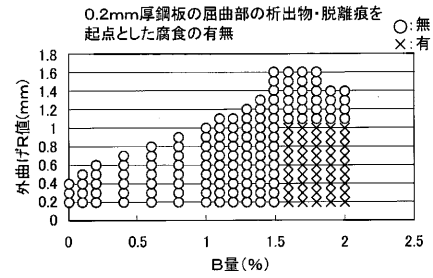
第4図



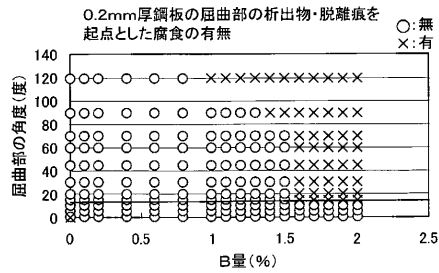
【図 5】
第 5 図



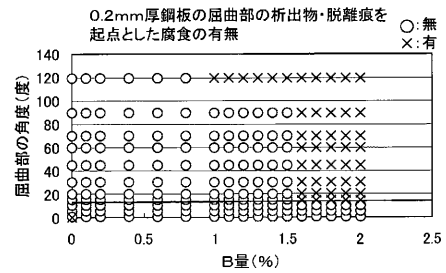
【図 7】
第 7 図



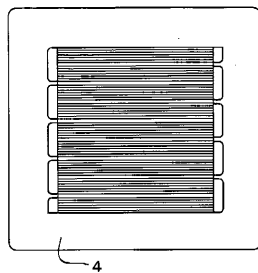
【図 6】
第 6 図



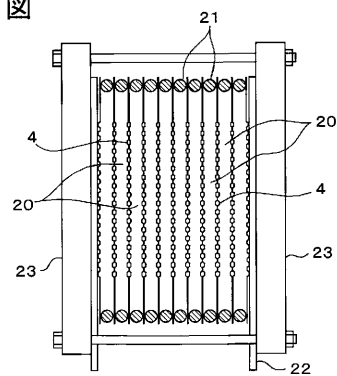
【図 8】
第 8 図



【図 9 A】
第 9 図 A

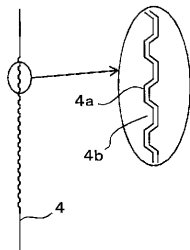


【図 10】
第 10 図

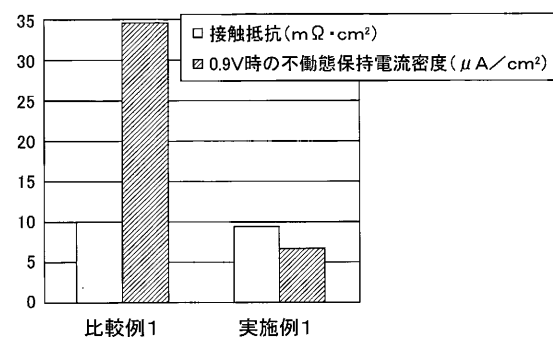


【図 9 B】

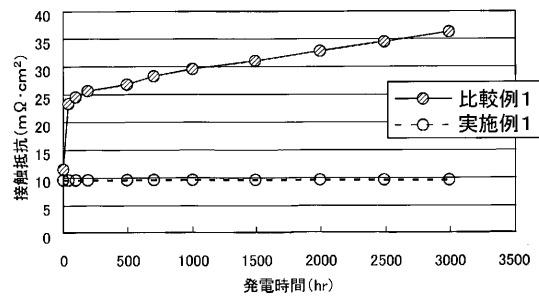
第 9 図 B



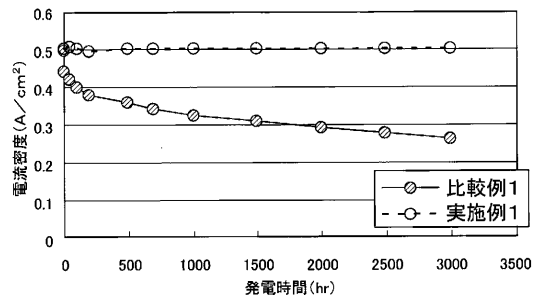
【図 11】
第 11 図



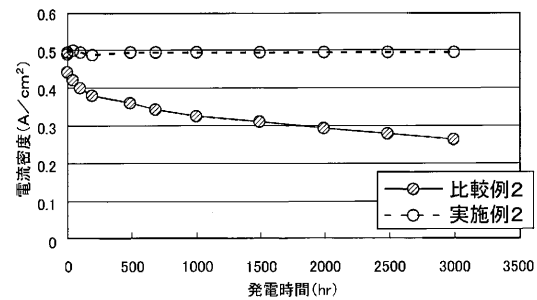
【図 1 2】
第 1 2 図



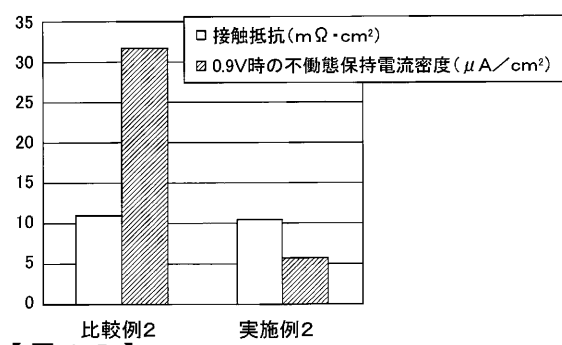
【図 1 3】
第 1 3 図



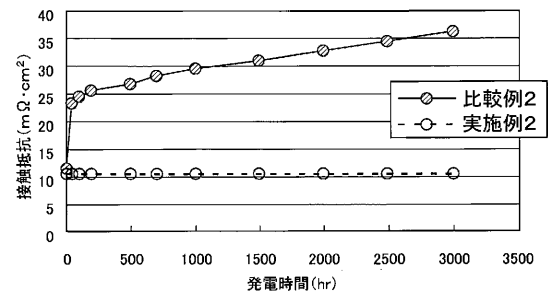
【図 1 6】
第 1 6 図



【図 1 4】
第 1 4 図



【図 1 5】
第 1 5 図



フロントページの続き

審査官 小川 進

- (56)参考文献 特開平 8 - 3 1 1 6 2 0 (J P , A)
特開平 1 0 - 3 0 2 8 1 4 (J P , A)
特開 2 0 0 0 - 3 2 8 2 0 0 (J P , A)
特開 2 0 0 0 - 3 2 8 2 0 5 (J P , A)
特開 2 0 0 1 - 3 2 0 5 6 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

H01M 8/02

C22C 38/00

C22C 38/58