(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年7月2日(02.07.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/137485 A1

(51) 国際特許分類:
B32B 15/08 (2006.01) *H01M 8/0221* (2016.01)
H01M 8/021 (2016.01) *H01M 8/0223* (2016.01)
H01M 8/0213 (2016.01) *H01M 8/10* (2016.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/048060

(22) 国際出願日： 2019年12月9日(09.12.2019)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

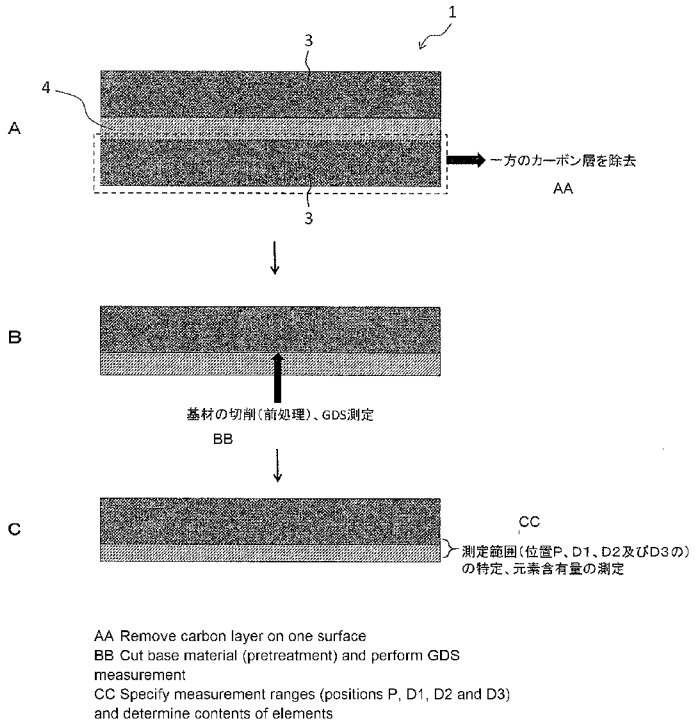
(30) 優先権データ：
特願 2018-242541 2018年12月26日(26.12.2018) JP

(71) 出願人: 日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社(**NIPPON STEEL CHEMICAL & MATERIAL CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目１３番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 佐藤 悠(**SATO Haruka**); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目６番１号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP). 能勢 幸一(**NOSE Koichi**); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目６番１号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP). 村上 信吉(**MURAKAMI Shinkichi**); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目１３番１号 日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 中塚 淳(**NAKATSUKA Jun**); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目１３番１号 日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社内 Tokyo (JP).

(54) **Title:** STAINLESS STEEL SHEET CARBON COMPOSITE MATERIAL AND USE OF SAME

(54) 発明の名称： ステンレス鋼板カーボン複合材及びその用途等



AA Remove carbon layer on one surface
BB Cut base material (pretreatment) and perform GDS measurement
CC Specify measurement ranges (positions P, D1, D2 and D3) and determine contents of elements

(57) **Abstract:** The present invention provides a stainless steel sheet carbon composite material which has excellent electrical conductivity and excellent corrosion resistance, while additionally exhibiting excellent adhesion between a base material and a carbon layer. A stainless steel sheet carbon composite material according to the present invention is obtained by superposing a carbon layer, which contains a carbonaceous material and a matrix resin that is composed of a thermoplastic resin or a thermosetting resin, on at least one surface of a sheet-like base material that is formed of a stainless steel.

WO 2020/137485 A1

[続葉有]

(74) 代理人:佐々木 一也，外(SASAKI Kazuya et al.);
〒1030001 東京都中央区日本橋小伝馬町６番１０号 丸森ビル７階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
一　国際調査報告（条約第21条(3)）

This stainless steel sheet carbon composite material is configured such that: the base material contains at least 0.001-0.2% by mass of carbon (C), 9.0% by mass or more but less than 16.0% by mass of chromium (Cr) and 0.005-1.0% by mass of copper (Cu); and in a specific measurement range of the surface layer of the base material, the Cu content is from 0.01-0.3% by mass and the C content is 2-15% by mass as determined by quantitative analysis of elements in the thickness direction of the surface layer of the base material by means of glow discharge optical emission spectrometry. The present invention also provides a stainless steel sheet which is used for this stainless steel sheet carbon composite material.

(57) 要約：導電性及び耐食性に優れ、更には基材とカーボン層との密着性にも優れたステンレス鋼板カーボン複合材を提供する。 ステンレス鋼製の板状基材の少なくとも片面に、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むカーボン層が積層されたステンレス鋼板カーボン複合材であり、基材は、少なくとも、炭素（Ｃ）を０．００１～０．２質量%、クロム（Ｃｒ）を９．０質量%以上１６．０質量%未満及び銅（Ｃｕ）を０．００５～１．０質量%含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による基材表層の厚み方向の定量元素分析から求められる基材表層の所定の測定範囲において、Ｃｕ含有量が０．０１～０．３質量%でありと共にＣ含有量が２～１５質量%である、ステンレス鋼板カーボン複合材、及びそれに用いるステンレス鋼板である。

明　細　書

発明の名称 ： ステンレス鋼板カーボン複合材及びその用途等

技術分野

[0001] 本発明は、ステンレス鋼板カーボン複合材、当該複合材を用いた燃料電池用のセパレータ、セル及びスタック、当該複合材を用いた電気化学式水素圧縮機用セパレータ及び電気化学式水素圧縮機、並びにステンレス鋼板に関する。

背景技術

[0002] 近年、環境保全の観点から燃料電池が注目されている。固体高分子形燃料電池を例として、燃料電池及び燃料電池用セパレータの一例を図５及び図６（ａ）、（ｂ）に示す。

ここで、図５は、燃料電池１７を構成する単位セルの構成を示す分解図であり、図６は、図５に示す燃料電池用セパレータ５の構成を示す図である。図６（ａ）は、平面図であり、図６（ｂ）は、図６（ａ）の線Ｘ－Ｙにとった断面図である。

[0003] 固体高分子形燃料電池１７は、単位セルである構成１０を数十個～数百個積層したスタックである。構成１０では、固体高分子電解質膜６とアノード（燃料電極）７とカソード（酸化剤電極）８とからなるＭＥＡ（ｍｅｍｂｒａｎｅ　ｅｌｅｃｔｒｏｄｅ　ａｓｓｅｍｂｌｙ：膜／電極接合体）を、２枚の燃料電池用セパレータ５によって、ガスケット９を介して挟持する。アノード７に流体である燃料ガス（水素ガス）を、カソード８に流体である酸化ガス（酸素ガス）を供給することにより、外部回路から電流を取り出す構成となっている。そして、燃料電池用セパレータ５は、図６（ａ）、（ｂ）に例示されるように、薄肉の板状体の片面又は両面に、複数のガス供給排出

用溝１１と、ガス供給排出用溝１１に燃料ガス又は酸化ガスを供給する開口部１２と、ＭＥＡを並設するための固定穴１３とを有する。燃料電池用セパレータ５は、燃料電池内を流れる燃料ガスと酸化ガスとが混合しないように分離する役割を有すると共に、ＭＥＡで発生した電気エネルギーを外部へ伝達したり、ＭＥＡで生じた熱を外部へ放熱したりするという重要な役割を担っている。

[0004] そのため、燃料電池用セパレータに求められる特性としては、燃料電池内の使用環境（高温、腐食性、低ｐＨ等）下における長期の耐久性（耐食性）があること、発電ロスを少なくするために電気抵抗が小さくて導電性に優れること（高導電性、低接触抵抗）、及び燃料ガスと酸化ガスをその両面で完全に分離するためのガス不透過性を有することなどがある。加えて、車載を想定すると、組立時におけるボルト締め付けや振動に対しても割れない強度やフレキシブル性（可撓性）があることが求められている。

[0005] 従来から、このようなセパレータの開発について種々検討がなされている。金属（ステンレス鋼）製の基材の少なくとも片面に、炭素粉末と樹脂粉末とからなるカーボン層を積層させたステンレス鋼板カーボン複合材が、耐食性、導電性及び可撓性等に優れることが確認されている（特許文献１、２を参照）。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2017-071218号公報

特許文献2：特開2017-071219号公報

特許文献3：特開2004-232074号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 特に自動車搭載用燃料電池の分野においては、セパレータの更なる薄肉化や高性能化が求められており、セパレータの各性能についても更なる改善が

求められている。前記特許文献１や２に記載されるステンレス鋼板カーボン複合材では、黒鉛粉末等の炭素質材とマトリックス樹脂からなるカーボン層が基材上に積層されている。導電性を更に向上させるためには、例えば、カーボン層中の炭素質材の配合割合を高くする等の方策が考えられる。しかしながら、炭素質材の割合は、カーボン層における基材との密着性、緻密性（密度）及び表面平坦性等に影響することが懸念される。カーボン層の改良による導電性の改善には限界がある。

[0008] 本願の発明者らは、導電性等のセパレータ性能の更なる改善のためには、基材であるステンレス鋼の改良が必要であると考えた。ステンレス鋼の組成に着目した検討により、以下の知見を得るに至った。

特許文献１及び２に記載されたステンレス鋼板カーボン複合材では、主に耐食性の確保ためにクロム（Ｃｒ）の含有率が高い（１６．００質量％以上）ステンレス鋼を採用している。Ｃｒの含有率が高いと、厚く緻密な酸化皮膜が表層に形成され易く、導電性が低下する傾向がある。しかも、そのような厚く緻密な酸化皮膜は安定性が高いため、ステンレス鋼の表面において他の材料との結合が弱くなる可能性がある。結合が弱いと、基材の加工性（すなわち、基材とカーボン層との密着性。特に断らない限り、本願においては基材とカーボン層との密着性のことを基材についての「加工性」とする。）が不十分になる虞がある。このように、特許文献１及び２に記載のステンレス鋼板カーボン複合材には、導電性及び加工性について更なる改善の余地があると考えた。

このような導電性及び加工性（カーボン層の密着性）に関する考えの下に、低クロム含有のステンレス鋼を基材とし、これに炭素質材とマトリックス樹脂とを含むカーボン層を積層させた複合材を作成し、導電性及び加工性を検討した。この複合材では、導電性及び加工性（カーボン層との密着性）が改善された。しかしながら、意外なことには、この複合材では、カーボン層におけるマトリックス樹脂が劣化してしまい耐食性が低下するといった別の問題が発生することが判明した。

[0009] そこで、低クロム含有率のステンレス鋼を基材とする前記カーボン層との複合材において、マトリックス樹脂の劣化が発生する原因について更に検討した。その結果、非常に意外なことには、ステンレス鋼基材の表層領域（ステンレス鋼表面に自然的に形成される酸化皮膜層を含む）において銅（Ｃｕ）の含有量が他の領域より非常に高くなっている（濃化）ことが分かった。そして、この表層に濃化されたＣｕが、マトリックス樹脂の劣化の原因になっていることが分かった。すなわち、マトリックス樹脂の劣化が、いわゆる銅害によるものであることが判明した（ここで、「表層に濃化」とは、鋼材の他の領域よりも、表層の含有量が高いことをいう）。このようなステンレス基材の表層においてＣｕが濃化することついては、その詳細な原理等は定かではないものの、後述する実施例・比較例において確認される限り、ステンレス鋼基材中に初めから含有させるＣｕの含有量や、その後の製造過程において実施される基材表面の酸化皮膜除去（酸による洗浄処理）に起因しているものと推測される。さらに、驚くべきことには、この基材表層に濃化されるＣｕの含有量が、セパレータ（ステンレス鋼板カーボン複合材）としての導電性にも寄与していることを知見した。さらには、Ｃｕだけでなく、炭素（Ｃ）についても基材表層に濃化されていて、この濃化されたＣの含有量が基材とカーボン層との密着性にも寄与していることが判明した。これらの知見より、基材であるステンレス鋼において特定の化学組成とすると共に、基材表層に濃化されるＣｕ及びＣの含有量を特定の範囲とすることによって、耐食性を満足しながらも、導電性及び加工性が良好なステンレス鋼板カーボン複合材が得られることを見出し、本発明を完成させた。

なお、ステンレス鋼の表層でのＣｕ濃化自体は、既に特許文献３において示されている。しかしながら、特許文献３には、マトリックス樹脂を有するカーボン層を積層させることについて開示が無く、濃化したＣｕによるマトリックス樹脂の劣化についての配慮はなされていない。すなわち、燃料電池用セパレータの分野においては、このような基材とカーボン層との併用による銅害は課題と認識されておらず、ステンレス鋼基材の表層に着目した、導

電性、加工性及び耐食性の良好なステンレス鋼板カーボン複合材の開発はこれまでなされていなかった。

[0010] 本発明の目的は、導電性、耐食性及び加工性（基材とカーボン層との密着性）に優れたステンレス鋼板カーボン複合材を提供することにある。

また、本発明の他の目的は、このようなステンレス鋼板カーボン複合材を用いた燃料電池用のセパレータ、セル及びスタックを提供することにある。

また、本発明の他の目的は、このようなステンレス鋼板カーボン複合材を用いた電気化学式水素圧縮機用セパレータ及び電気化学式水素圧縮機を提供することにある。

さらに、本発明の他の目的は、上記のようなステンレス鋼板カーボン複合材やそれを用いた燃料電池用のセパレータ、セル及びスタック等に適用可能であるステンレス鋼板を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明の要旨は、以下のとおりである。

（１）ステンレス鋼製の板状基材の少なくとも片面に、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むカーボン層が積層されたステンレス鋼板カーボン複合材であり、

前記基材は、少なくとも、炭素（Ｃ）を０．００１～０．２質量％、クロム（Ｃｒ）を９．０質量％以上１６．０質量％未満及び銅（Ｃｕ）を０．００５～１．０質量％含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による基材表層の厚み方向の定量元素分析において、以下の（ｉ）で定義される測定範囲のＣｕ含有量が０．０１０～０．３０質量％、及び以下の(ｉｉ)で定義される測定範囲のＣ含有量が２～１５質量％である、ステンレス鋼板カーボン複合材。

（ｉ）基材表層において計測されるＣｕのピーク強度が最大となる位置Ｐを挟んで、この位置Ｐにおけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される基材中心側の位置Ｄ１と、この位置Ｄ１と同じピーク強度が基材表面側において計測される位置Ｄ２とを結ぶ範囲。

（ｉｉ）前記位置Ｐを挟んで、この位置ＰにおけるＣのピーク強度の１／５０の強度が計測される基材中心側の位置Ｄ３と、基材表面側における前記位置Ｄ２とを結ぶ範囲。

（２）前記基材は、以下の化学組成を有する（１）に記載のステンレス鋼板カーボン複合材。

Ｃ：０．００１～０．２質量％、

Ｓｉ：０．０１～２．０質量％、

Ｍｎ：０．０１～２．５質量％、

Ａｌ：０．００１～０．５質量％、

Ｃｒ：９．０質量％以上１６．０質量％未満、

Ｃｕ：０．００５～１．０質量％、

Ｐ：０．１質量％以下、

Ｓ：０．０１質量％以下、

Ｎｉ：０～０．３質量％、

Ｔｉ：０～２．０質量％、

Ｍｏ：０～３．０質量％、

Ｖ：０～１．０質量％、

Ｎｂ：０～１．０質量％、

Ｗ：０～１．０質量％、

Ｔａ：０～１．０質量％、

Ｓｂ：０～１．０質量％、

Ｐｂ：０～１．０質量％、並びに

残部：Ｆｅおよび不純物。

（３）前記（１）又は（２）に記載のステンレス鋼板カーボン複合材を用いた燃料電池用セパレータ。

（４）前記（３）に記載の燃料電池用セパレータを備えた燃料電池用セル。

（５）前記（４）に記載の燃料電池用セルを備えた燃料電池スタック。

（６）前記（１）又は（２）に記載のステンレス鋼板カーボン複合材を用い

た電気化学式水素圧縮機用セパレータ。

（７）前記（６）に記載の電気化学式水素圧縮機用セパレータを備えた電気化学式水素圧縮機。

（８）ステンレス鋼板であって、

少なくとも、炭素（Ｃ）を０．００１～０．２質量％、クロム（Ｃｒ）を９．０質量％以上１６．０質量％未満及び銅（Ｃｕ）を０．００５～１．０質量％含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による表層の厚み方向の定量元素分析において、以下の（ｉ’）で定義される測定範囲のＣｕ含有量が０．００８～０．２８質量％、及び以下の(ｉｉ’)で定義される測定範囲のＣ含有量が１．８～１３．５質量％である、ステンレス鋼板。

（ｉ’）前記鋼板の表層において計測されるＣｕのピーク強度が最大となる位置Ｐ’を挟んで、この位置Ｐ’におけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される鋼板中心側の位置Ｄ１’と、前記鋼板の表面とを結ぶ範囲。

（ｉｉ’）前記位置Ｐ’を挟んで、この位置Ｐ’におけるＣのピーク強度の１／５０の強度が計測される鋼板中心側の位置Ｄ３’と、前記鋼板の表面とを結ぶ範囲。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、導電性、耐食性及び加工性（基材とカーボン層との密着性）が共に優れたステンレス鋼板カーボン複合材を提供することができる。本発明に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、このような特性を有することにより、燃料電池用のセパレータ、セル及びスタックや、電気化学式水素圧縮機用のセパレータ及び電気化学式水素圧縮機として好適に使用され得る。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]図１は、本実施形態におけるグロー放電発光分光分析（ＧＤＳ）に際しての手順の概略を示した概略説明図である。

[図2]図２はカーボン層又はステンレス鋼板カーボン複合材を製造するための

成型方法の概略説明図である。

[図3]図３は、本発明のステンレス鋼板カーボン複合材の製造におけるカーボン層、接着剤層及びステンレス鋼製の板状基材の積層方法の概略説明図である。

[図4]図４は、接触抵抗を測定する方法の概略説明図である。

[図5]図５は、燃料電池を構成する単位セルの構成の一例を示す分解図である。

[図6]図６(a)は燃料電池用セパレータの一例を示す平面図であり、図６(b)は図６(a)の線Ｘ－Ｙ断面を示す断面図である。

[図7]図７は、接触抵抗を測定する他の方法の概略説明図である。

[図8]図８は、電気化学式水素圧縮機の構成の一例を示す分解図である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明の実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材及びその製造方法について、詳細に説明する。

本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、ステンレス鋼製の板状基材の少なくとも片面に、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むカーボン層が積層されたものである。前記板状基材は、少なくとも、炭素（Ｃ）、クロム（Ｃｒ）及び銅（Ｃｕ）を所定量含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による基材表層の厚み方向の定量元素分析において、Ｃｕ及びＣが所定の含有量となっている（濃化されている）。

[0015] ＜板状基材＞

本実施形態で使用されるステンレス鋼製の板状基材（ステンレス鋼板、以下、単に「板状基材」又は「基材」と言う場合がある。）については、少なくとも、炭素（Ｃ）、クロム（Ｃｒ）及び銅（Ｃｕ）を所定量含有するものであれば特に制限されるものではないが、好ましくは後述する化学組成を有するものを用いる。例えば、このような化学組成を有する鋼を真空炉に溶解し、インゴットに造塊し、その後、熱間鍛造・熱間圧延・焼鈍・冷間圧延に

よる工程を経て、ステンレス鋼板を得ることができる。これらの処理条件などは公知の方法を用いることができる。なお、市販品としては、例えば、フェライト系ステンレス鋼としてSUS409、SUS405、SUS410L、SUS429等や、マルテンサイト系ステンレス鋼としてSUS403、SUS410、SUS420等を例示することができる。このようなステンレス鋼製の板状基材（ステンレス鋼板）は、ステンレス鋼板カーボン複合材を製造するための中間素材として用いることができ、また、単独で使用してもよい。

[0016] 基材に必須或いは好適に含まれる各元素について以下に説明する。なお、含有量の「%」は全て「質量%」を意味する。

[0017] Ｃ：０．００１～０．２質量%

炭素（Ｃ）は、固溶強化元素であり、ステンレス鋼の強度（例えば、引張強度）向上に寄与する。また、後述するとおり、基材表層に濃化されて、カーボン層との密着性向上に寄与する元素であると考えられる。Ｃ含有量が０．００１%未満であって低すぎる場合には、上記の強度発現や基材表層への濃化の効果が得られにくい。一方で、Ｃ含有量が０．２%を超えて高すぎると、基材の製造過程で炭化物が多数生成され、これら炭化物が破壊の起点となってステンレス鋼の成形性が低下する虞がある。Ｃ含有量の好ましい下限は0.002質量%であり、さらに好ましい下限は0.004%である。また、Ｃ含有量の好ましい上限は0.15%であり、さらに好ましい上限は0.1%である。

[0018] Ｓｉ：０．０１～２．０質量%

ケイ素（Ｓｉ）は、脱酸に有効な元素である。Ｓｉ含有量が０．０１%未満であって低過ぎると、脱酸が不十分になる虞がある。一方で、Ｓｉ含有量が２．０%を超えて高すぎると、ステンレス鋼の成形性が低下する虞がある。Ｓｉ含有量の好ましい下限は0.02%であり、さらに好ましい下限は0.04%である。また、Ｓｉ含有量の好ましい上限は1.5%であり、さらに好ましい上限は1.0%である。

[0019] Ｍｎ：０．０１～２．５質量%

マンガン（Ｍｎ）は、硫黄（Ｓ）による熱間加工性の低下を抑制する効果

を有する。Ｍｎはさらに、ステンレス鋼を脱酸する効果も有する。Ｍｎ含有量が０．０１％未満であって低過ぎると、これらの効果が得られにくい。一方で、Ｍｎ含有量が２．５％を超えて高すぎると、σ相等の金属間化合物相の析出が促進されて組織安定性が低下するとともに、ステンレス鋼の靭性及び延性が低下する虞がある。Ｍｎ含有量の好ましい下限は0.02％であり、さらに好ましい下限は0.03％である。また、Ｍｎ含有量の好ましい上限は2.0％であり、さらに好ましい上限は1.5％である。

[0020] Ａｌ：０．００１～０．５質量％

アルミニウム（Ａｌ）は、脱酸に有効な元素である。Ａｌ含有量が０．００１％未満であって低過ぎると、脱酸の効果が得られにくい。一方で、Ａｌ含有量が０．５％を超えて高すぎると、鋼の清浄度が低下し、ステンレス鋼の成形性及び延性が低下する。Ａｌ含有量の好ましい下限は0.002％であり、さらに好ましい下限は0.005％である。また、Ａｌ含有量の好ましい上限は0.4％であり、さらに好ましい上限は0.3％である。

[0021] Ｃｒ：９．０質量％以上１６．０質量％未満

クロム（Ｃｒ）は、ステンレス鋼の耐食性を確保するのに有効な元素である。Ｃｒ含有量が９．０％未満であって低すぎると、不動態皮膜を形成することが困難となるため耐食性を確保できない虞がある。一方で、Ｃｒ含有量が１６．０％以上で高すぎると、形成される不動態皮膜が厚いためステンレス鋼の導電性が低下する虞がある。さらに、そのような厚い不動態皮膜は安定性が高いため、鋼材の最表面において他の材料と強固な結合を形成することが困難となり、加工性（カーボン層との密着性）が低下する虞がある。本実施形態においては、このように従来よりも低Ｃｒ含有量のステンレス鋼を基材として用いるが、耐食性については、後述するカーボン層を有することにより補うことができる。Ｃｒ含有量の好ましい下限は9.2％であり、さらに好ましい下限は9.5％である。また、Ｃｒ含有量の好ましい上限は15.5％であり、さらに好ましい上限は15.0％である。

[0022] Ｃｕ：０．００５～１．０質量％

銅（Ｃｕ）は、一般的には、強度・耐食性を改善するのに有効な元素である。本実施形態においては、基材中のＣｕ含有量が０．００５％未満であって低すぎると、上記の一般的な効果が得られにくいと共に、後述する表層に濃化されるＣｕ含有量を確保することができず、導電性を改善する効果が得られない虞がある。一方で、Ｃｕ含有量が１．０質量％を超えて高すぎると、ステンレス鋼の熱間加工性が低下する虞があると共に、後述する表層に濃化されるＣｕ含有量が過剰となって、基材に積層するカーボン層中のマトリックス樹脂を劣化させ（銅害）、それにより耐食性が低下してしまう虞がある。Ｃｕ含有量の好ましい下限は0.006％であり、さらに好ましい下限は0.008％である。また、Ｃｕ含有量の好ましい上限は0.95％である、さらに好ましい上限は0.90％である。

[0023] Ｐ：０．１質量％以下

リン（Ｐ）は不純物である。Ｐは、凝固時に粒界に偏析して粒界を脆化することから、その含有量は０．１％以下であることが好ましく、より好ましくは0.04％以下であり、さらに好ましくは0.01％以下であり、低ければ低いほど望ましい。

[0024] Ｓ：０．０１％質量以下

硫黄（Ｓ）は不純物である。Ｓについても、凝固時に粒界に偏析して粒界を脆化することから、その含有量は０．０１％以下であることが好ましく、より好ましくは0.004％以下であり、さらに好ましくは0.001％以下であり、低ければ低いほど望ましい。

[0025] Ｎｉ：０～０．３質量％

ニッケル（Ｎｉ）は、添加が必須ではないが、ステンレス鋼の耐食性・靭性を改善する効果があるため、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｎｉ含有量が０．３％を超えて高すぎると、フェライト及びオーステナイトの二相組織となりやすく、二相組織では薄板成形性に方向性があり、燃料電池セパレータ用素材としての成形性が不十分となる虞がある。Ｎｉ含有量の好ましい上限は、0.25％であり、さらに好ましい上限は0.2％である。なお、上

記耐食性・靭性の効果を得るためのＮｉ含有量の好ましい下限は０．００１％であり、さらに好ましい下限は0.01％である。

[0026] Ｔｉ：０～２．０質量％

チタン（Ｔｉ）は、添加が必須ではないが、鋼中で、ＣおよびＮと反応し炭化物および窒化物を形成することができるＣおよびＮの安定化元素であることから、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｔｉ含有量が２．０％を超えて高すぎると、成形性を劣化させる虞がある。Ｔｉ含有量の好ましい上限は、1.0％であり、さらに好ましい上限は0.5％である。なお、上記安定化の効果を得るための、Ｔｉ含有量の好ましい下限は０．００１％であり、さらに好ましい下限は0.005％である。

[0027] Ｍｏ：０～３．０質量％

モリブデン（Ｍｏ）は、添加が必須ではないが、ステンレス鋼の耐食性を高めることができる元素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｍｏ含有量が３．０％を超えて高すぎると、σ相等の金属間化合物の析出回避が困難であり、鋼の脆化の問題を引き起こし、生産が困難となる恐れがある。Ｍｏ含有量の好ましい上限は、1.5％であり、さらに好ましい上限は1.0％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｍｏ含有量の好ましい下限は０．００１％であり、さらに好ましい下限は0.005％である。

[0028] Ｖ：０～１．０質量％

バナジウム（Ｖ）は、添加が必須ではないが、ステンレス鋼の耐食性を改善するのに有効な元素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｖ含有量が１．０％を超えて高すぎると、加工性が低下する恐れがある。Ｖ含有量の好ましい上限は、0.8％であり、さらに好ましい上限は0.5％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｖ含有量の好ましい下限は０．００１％であり、さらに好ましい下限は0.002％である。

[0029] Ｎｂ：０～１．０質量％

ニオブ（Ｎｂ）は、添加が必須ではないが、Ｔｉ同様に、鋼中でＣおよびＮと反応し炭化物および窒化物を形成することができるＣおよびＮの安定化

元素であることから、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｎｂ含有量が１．０％を超えて高すぎると、成形性が低下する虞がある。Ｎｂ含有量の好ましい上限は、0.8％であり、さらに好ましい上限は0.5％である。上記安定化の効果を得るための、Ｎｂ含有量の好ましい下限は０．０００１％であり、さらに好ましい下限は0.0005％である。

[0030] Ｗ：０～１．０質量％

タングステン（Ｗ）は、添加が必須ではないが、耐食性を高めることができる元素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｗ含有量が１．０％を超えて高すぎると、成形性が低下する虞がある。Ｗ含有量の好ましい上限は、0.8％であり、さらに好ましい上限は0.5％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｗ含有量の好ましい下限は０．００１％であり、さらに好ましい下限は0.002％である。

[0031] Ｔａ：０～１．０質量％

タンタル（Ｔａ）は、添加が必須ではないが、耐食性を改善することができる元素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｔａ含有量が１．０％を超えて高すぎると、成形性が低下する虞がある。Ｔａ含有量の好ましい上限は、0.8％であり、さらに好ましい上限は0.5％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｔａ含有量の好ましい下限は０．０００１％であり、さらに好ましい下限は0.0002％である。

[0032] Ｓｂ：０～１．０質量％

アンチモン（Ｓｂ）は、添加が必須ではないが、耐食性を改善することができる元素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｓｂ含有量が１．０％を超えて高すぎると、成形性が低下する恐れがある。Ｓｂ含有量の好ましい上限は、0.5％であり、さらに好ましい上限は0.2％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｓｂ含有量の好ましい下限は０．０００１％であり、さらに好ましい下限は0.0002％である。

[0033] Ｐｂ：０～１．０質量％

鉛（Ｐｂ）は、添加が必須ではないが、耐食性を改善することができる元

素であり、必要に応じて含有させてもよい。一方で、Ｐｂ含有量が１．０％を超えて高すぎると、成形性が低下する恐れがある。Ｐｂ含有量の好ましい上限は、0.5％であり、さらに好ましい上限は0.2％である。上記耐食性の効果を得るための、Ｐｂ含有量の好ましい下限は０．０００１％であり、さらに好ましい下限は0.0002％である。

本実施形態における基材の化学組成の残部は、Ｆｅ及び不純物からなる。ここで、不純物とは、基材を工業的に製造する際に、原料としての鉱石、スクラップ、又は製造環境などから不可避的に混入されるものであって、本実施形態に悪影響を与えない範囲で許容されるものを意味する。

[0034] 本実施形態において、ステンレス鋼製板状基材の表面は、不動態皮膜を除去した後に形成される酸化皮膜層（通常は６nm以上２５nm以下程度）を必然的に有する。その酸化皮膜層を含めた基材の表層の領域においては、化合物としての形態の詳細は必ずしも明らかではないものの、Ｃｕ及びＣ元素の含有量が高くなっていることが確認された。すなわち、これらの元素が濃化されていることが確認された。この基材表層のＣｕ及びＣの含有量は、〔１〕ステンレス鋼板カーボン複合材については、カーボン層のみを除去した後に露出された基材表面から分析を行う方法、〔２〕カーボン層形成前のステンレス鋼板単体については、その表面から分析を行う方法により測定することができる。

[0035] まず、〔１〕ステンレス鋼板カーボン複合材から説明する。本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材において、基材の表層におけるＣｕ含有量は、０．０１～０．３質量％とする。このようなＣｕ含有量とすることにより、導電性が向上する（接触抵抗が低減する）。当該Ｃｕ含有量が０．０１質量％未満であると、導電性の改善の効果に乏しい。一方で、当該Ｃｕ含有量が０．３質量％を超えると、特に本実施形態のように基材が低Ｃｒ含有量のステンレス鋼製の場合、この表層に濃化されたＣｕによってカーボン層中のマトリックス樹脂が劣化し、耐食性が低下する（銅害）。当該Ｃｕ含有量の好ましい下限は０．０５質量％であり、好ましい上限は０．２質量％である

。ステンレス鋼板カーボン複合材において、基材表層のＣｕ含有量を上記の範囲とするための製造方法としては、前記のＣｕ含有量を有する基材を用い、後述する酸洗浄処理を施すことによって表層におけるＣｕ以外の元素を減少させればよい。

[0036] さらに、本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材において、基材の表層におけるＣ含有量は、２質量％以上１５質量％以下とする。このようなＣ含有量とすることにより、加工性（基材とカーボン層との密着性）が向上する。当該Ｃ含有量が２質量％未満であると、加工性の改善の効果に乏しい。一方で、当該Ｃ含有量が１５質量％を超えると、加工性の改善効果が飽和する。当該Ｃ含有量の好ましい下限は３．５質量％であり、好ましい上限は１０質量％である。ステンレス鋼板カーボン複合材において、基材表層のＣ含有量を上記の範囲とするための製造方法としては、後述する酸洗浄処理において、洗浄時間を過剰に長くすることなく適宜調整すればよい。

[0037] ここで、本実施形態において、前記板状基材の表層（すなわち、酸化皮膜層を含めた大凡100ｎｍの範囲）におけるＣｕ及びＣ濃度については、グロー放電発光分光分析（ＧＤＳ）によって測定されるものである。ＧＤＳにより、試料である基材等の表面を削りながら基材厚み（深さ）方向の情報と、その過程で得られる所望の元素の発光強度（ピーク強度）とから所望の元素の定量分析を行うことができる。上記〔１〕のステンレス鋼板カーボン複合材について基材表層のＣｕ及びＣ濃度を測定する場合、カーボン層のみを除去した後に露出された基材表面から分析を行う。この場合、カーボン層を除去した後の基材表面が一様に定まり難いことや、特に測定対象とするＣ元素についてはカーボン層中のものと基材表層に濃化されるものとの判別が難しくなるなどの理由から、図１に例示したように、先ずは一方のカーボン層を除去し（図１Ａ）、カーボン層が除去された面側から基材を徐々に切削等の前処理を行い、基材がある程度の厚みになったら、その切削面側（つまり、基材の厚み方向中心側）から反対の基材表層側に向けて前記ＧＤＳ測定を行い（図１Ｂ）、それにより後述する測定範囲（位置Ｐ、Ｄ１、Ｄ２及びＤ３）

の特定や対象とする元素含有量の測定を行うことができる（図１Ｃ）。ステンレス鋼板カーボン複合材については、このように、測定対象とする基材表層面側とは反対の面側から前処理及びＧＤＳ測定を行うことにより、カーボン層の剥離に伴う測定誤差等を可及的に排除できる。

[0038] このような〔１〕のステンレス鋼板カーボン複合材について基材表層のＣｕ及びＣ含有量を測定する方法において、具体的には以下の(i)及び(ii)のように行うことが良い。(i)測定対象のＣｕ及びＣのうち、Ｃｕはカーボン層中には含有されておらず基材だけに含有されることから、このＣｕの分布をまずは把握することがよい。測定対象とする基材表層において測定されるＣｕのピーク強度が最大となる基材厚み方向の位置（Ｐ）をまずは把握し、この位置Ｐを挟んだ前後の厚さ領域において、Ｃｕの分布が殆ど計測されなくなる位置を特定し、これらの厚さ範囲（測定範囲）における積算のＣｕ含有量の全元素含有量に対する割合を求める。こうして求めた割合を、本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材における基材表層のＣｕ含有量（質量%）とすることができる。前記したＣｕの分布が殆ど計測されなくなる位置については、位置Ｐにおけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される位置として定義する。基材厚み方向の中心側においてＣｕの分布が殆ど計測されなくなる位置をＤ１とし、それとは反対の基材表層側においてＣｕの分布が殆ど計測されなくなる位置をＤ２とし、Ｄ１からＤ２の厚み範囲をＣｕ含有量についての「測定範囲」とすることができる。

（ii）Ｃ元素の含有量の測定については、前記Ｃｕのピーク強度が最大となる位置Ｐを基材由来のＣの分布が最大となる位置と仮定して、この位置Ｐを始点とし、基材の切削面側（基材中心側）においてＣ濃度が位置Ｐにおける Ｃ濃度の１／５０となる位置（これを、Ｄ３とする。）を終点とした範囲（Ａ）と、位置Ｐを始点として前記基材表層側における位置Ｄ２を終点とする範囲（Ｂ）との合計の厚さ範囲を、Ｃ含有量についての「測定範囲」とすることができる。（ｉ）のＣｕ元素の測定と同様にして、この測定範囲における積算のＣ含有量の全元素含有量に対する割合を求める。こうして求めた割

合を、本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材における基材表層のＣ含有量（質量％）とすることができる。

[0039] 上記〔２〕のカーボン層形成前のステンレス鋼板単体について基材表層のＣｕ及びＣ含有量を測定する方法についても、〔１〕の場合と同じようにグロー放電発光分光分析（ＧＤＳ）によって測定を行う。ただし、この〔２〕の場合には、カーボン層を除去する操作が不要であり、基材の表面（最表面）から直接ＧＤＳ測定を開始する。具体的には、以下の(i’)及び(ii’)のとおりに行う。

(i’)Ｃｕについては、上記〔１〕の方法と同じように、基材表層において測定されるＣｕのピーク強度が最大となる基材厚み方向の位置（Ｐ’）をまずは把握し、この位置Ｐ’よりも基材厚み方向の中心側の領域において、Ｃｕの分布が殆ど計測されなくなる位置Ｄ１’〔すなわち、位置Ｐ’におけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される位置〕を特定する。そして、基材の表面（最表面）から前記Ｄ１’までの厚さ範囲（測定範囲）における積算のＣｕ含有量の全元素含有量に対する割合を、本実施形態の〔２〕の場合における基材表層に濃化されたＣｕ含有量（質量％）とすることができる。

[0040] (ii’)Ｃ元素の含有量の測定についても、上記〔１〕の方法と同じように、まず、前記Ｃｕのピーク強度が最大となる基材厚み方向の位置Ｐ’が、基材由来のＣの分布が最大となる位置と仮定してこの位置Ｐ’を始点とし、基材厚み方向の中心側においてＣ濃度が位置Ｐ’におけるＣ濃度の１／５０となる位置（これを、Ｄ３’とする。）を終点とした範囲（Ａ’）と、基材表面（最表面）から位置Ｐ’までの厚さ範囲（Ｂ’）との合計の厚さ範囲を、Ｃ含有量についての「測定範囲」とすることができる。Ｃｕ元素の測定と同様にして、この測定範囲における積算のＣ含有量の全元素含有量に対する割合を求める。こうして求めた割合を、ステンレス鋼板製の基材単体の場合における、基材表層のＣ含有量（質量％）とすることができる。

[0041] そして、〔２〕の方法から得られた結果より、カーボン層形成前のステン

レス鋼板の表層において、Ｃｕ含有量は０．００８～０．２８質量％、Ｃ含有量は１．８～１３．５質量％とすることとした。当該Ｃｕ含有量の好ましい下限は０．０１質量％であり、好ましい上限は０．２５質量％である。当該Ｃ含有量の好ましい下限は３．０質量％であり、好ましい上限は１２質量％である。表層のＣｕ含有量を上記の範囲とするためには、前記のＣｕ含有量を有するステンレス鋼板に対し、後述する酸洗浄処理を施すことによって表層におけるＣｕ以外の元素を減少させればよい。表層のＣ含有量を上記の範囲とするためには、後述する酸洗浄処理において、洗浄時間を過剰に長くすることなく適宜調整すればよい。

このようなステンレス鋼板を基材として用い、その表面にカーボン層を形成することにより、本発明実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材を製造することができる。

[0042] なお、後述の実施例の結果からも明らかであるが、これら基材表層に濃化されたＣｕ及びＣの含有量について、〔１〕の場合の方が〔２〕の場合の方法と比べて一様に数値が高くなる理由については、〔１〕の方法においては基材の片面にカーボン層が存在している状態で測定を行うために、そのカーボン層の存在により、〔１〕の場合における位置Ｄ２と、（２）の場合における位置（基材最表）とがわずかに相違することによって、両者の「測定範囲」がわずかに相違することに因ると推測される。

[0043] 本実施形態においては、前記板状基材がこのような表層状態を有するものであることから、好ましくはその接触抵抗が１０ｍΩ・cm^2以下であることがよく、より好ましくは５ｍΩ・cm^2以下、さらに好ましくは３ｍΩ・cm^2以下であり尚且つ、その接触抵抗が３０日経過後においても実質的に変化しないことが好ましい。

[0044] そして、ステンレス鋼製の板状基材の厚さについては、特に制限されるものではないが、好ましくは１０μｍ以上１５０μｍ以下、より好ましくは２０μｍ以上７０μｍ以下である。板状基材の厚さが１０μｍ未満であると機械的強度が不十分となる虞があり、１５０μｍを超えると柔軟性や可撓性の点で問題

が生じる虞がある。

[0045] ＜カーボン層＞

上記の板状基材の表面に積層されるカーボン層は、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むものである。カーボン層中の炭素質材(CA)とマトリックス樹脂(R)との体積比(CA/R)は、好ましくは６／４～９／１であり、より好ましくは７／３～８／２である。カーボン層の厚さは、好ましくは０．０５㎜以上２．０㎜以下、より好ましくは０．１㎜以上１．０㎜以下である。この炭素質材(CA)とマトリックス樹脂(R)との体積比(CA/R)については、６／４より小さく炭素質材の比率が低過ぎると導電性が低下する虞があり、反対に、９／１より大きいとマトリックス樹脂の比率が低過ぎるために柔軟性、可撓性および耐食性に劣る虞がある。また、カーボン層の厚さについては、０．０５㎜より薄いと、カーボン層の僅かなクラックから腐食が始まる虞があり、反対に、２．０㎜より厚いと、可撓性が劣る虞がある。

[0046] ここで、前記カーボン層を形成する炭素質材は、導電性を有するものであればよく、その性状等は限定されない。炭素質材として、例えば、天然黒鉛粉末、人造黒鉛粉末、膨張黒鉛粉末、膨張化黒鉛粉末、鱗片状黒鉛粉末、球状黒鉛粉末などの粉末等から選ばれたいずれか１種か、又は２種以上の混合物を挙げることができる。好ましくは、可撓性及び導電性の点から、少なくとも膨張黒鉛粉末及び／又は膨張化黒鉛粉末を含むのが良い。その場合、当該膨張黒鉛粉末及び／又は膨張化黒鉛粉末の含有量は、炭素質粉末と樹脂粉末との混合粉末中４体積％以上５１体積％未満が好ましく、５体積％以上２１体積％未満がより好ましい。４体積％未満の場合、可撓性が低くなる虞があり、一方、５１体積％以上の場合、本来、粒子同士、又は粒子と金属板との接着に寄与する樹脂がうまく機能することができずに、接触抵抗が大きくなる虞がある。なお、この範囲において炭素質粉末中の膨張黒鉛粉末及び／又は膨張化黒鉛粉末の質量含有量としては、膨張黒鉛粉末及び／又は膨張化黒鉛粉末の真比重を他の黒鉛粉末と同じ２．２ｇ／ｃｍ^{3}として計算すること

ができ、５質量％以上７３質量％未満が好ましく、７質量％以上３０質量％未満がより好ましい。

そして、この炭素質粉末の粒子径については、レーザー回折式粒度分布測定装置（例えば、Malvern製「Mastersizer2000」等）の粒度測定計において算出されたD_{50}（累積５０体積％径）の値で表される平均粒子径が、好ましくは４μm以上２００μm以下、より好ましくは１０μm以上３０μm以下である。平均粒子径が４μmより小さいと比表面積が大きいため樹脂が粒子同士またはSUS板との接着に使用されにくく、可撓性に劣る虞がある。平均粒子径が２００μmより大きいと、カーボン層を形成する際に平滑な面が得られにくく、不良率が大きくなる虞がある。

[0047] また、前記カーボン層を形成するマトリックス樹脂については、その性状等は限定されない。熱可塑性樹脂であっても、また、熱硬化性樹脂であってもよい。前記熱可塑性樹脂としては、用途に応じて選択できるものであって特に制限されるものではないが、好ましくはポリプロピレン樹脂(PP)、ポリエチレン樹脂(PE)、ポリアミド樹脂(PA)、ポリフェニレンスルフィド樹脂(PPS)、ポリメチルペンテン樹脂(PMP)、ポリエーテルエーテルケトン樹脂(PEEK)、ポリフェニレンエーテル樹脂(PPE)、液晶ポリマー樹脂(LCP)、ポリアミドイミド樹脂(PAI)、ポリスルホン樹脂(PSU)、ポリエチレンテレフタレート樹脂(PET)及びポリブチレンテレフタレート樹脂(PBT)からなる群から選ばれたいずれか１種か又は２種以上の混合物を挙げることができ、また、前記熱硬化性樹脂についても、用途に応じて選択できるものであって特に制限されるものではないが、好ましくはフェノール樹脂及びエポキシ樹脂からなる群から選ばれたいずれか１種か又は２種以上の混合物を挙げることができる。

[0048] ここで、前記PP、PE、PMPなどのポリオレフィン樹脂については、不飽和カルボン酸又はその誘導体の一部又は全部が当該ポリオレフィン樹脂にグラフトされて変性された変性ポリオレフィン樹脂を使用することも可能である。このような変性ポリオレフィン樹脂を使用することにより、カーボン層やそれを備えたステンレス鋼板カーボン複合材としての可撓性の向上や、ＳＵＳ

との密着性及び炭素粒子との密着性が向上することが期待され、それにより接触抵抗が低下するため好ましい。そして、変性ポリオレフィン樹脂全体に占めるグラフト量（グラフト率）としては通常、０．０５～１５質量％であることが好ましく、より好ましくは０．１～１０質量％、さらに好ましくは０．１～３質量％とされる。変性前のポリオレフィン樹脂にグラフトするために使用される前記不飽和カルボン酸又はその誘導体の具体的なものとしては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、無水マレイン酸、無水ハイミック酸、４－メチルシクロヘキセ－４－エン－１，２－ジカルボン酸無水物、α－エチルアクリル酸、フマール酸、テトラヒドロフタル酸、メチルテトラヒドロフタル酸、エンドシス－ビシクロ〔２，２，１〕ヘプト－５－エン－２，３－ジカルボン酸（ナジック酸〔商標〕）、ビシクロ［２．２．２］オクト－５－エン－２，３－ジカルボン酸無水物、１，２，３，４，５，８，９，１０－オクタヒドロナフタレン－２，３－ジカルボン酸無水物、２－オクター１，３－ジケトスピロ［４．４］ノン－７－エン、ビシクロ［２．２．１］ヘプト－５－エン－２，３－ジカルボン酸無水物、マレオピマル酸、テトラヒドロフタル酸無水物、ｘ－メチル－ビシクロ［２．２．１］ヘプト－５－エン－２，３－ジカルボン酸無水物、ｘ－メチル－ノルボルネン－５－エン－２，３－ジカルボン酸無水物（ｘはメチル基の置換位置を示す）、及びノルボルン－５－エン－２，３－ジカルボン酸無水物などを使用することができる。また、上記不飽和カルボン酸の酸ハライド、アミド、イミド、エステル等の誘導体なども使用可能である。これらの中では不飽和ジカルボン酸又はその酸無水物が好ましく、特に無水マレイン酸又は無水ハイミック酸が好ましい。このような不飽和カルボン酸又はその誘導体を１種単独で使用することもできるし、２種以上を組み合せて使用することもできる。ハロゲン基としては、塩素或いは臭素を好適に使用することができる。

[0049] ＜接着剤層＞

本実施形態においては、ステンレス鋼製の板状基材の表面とこの表面に積

層されるカーボン層との間が、通常０．１μm以上１０μm以下の接着剤層を介して接合されていてもよい。このような接着剤層を形成するための接着剤組成物については、特に制限されるものではないが、好ましくは不飽和カルボン酸若しくはその誘導体の一部又は全部がポリオレフィン樹脂にグラフトした変性ポリオレフィン樹脂を含むもの（例えば、特開2005-146178号公報参照）であるのがよく、具体的には、接着性ポリオレフィン樹脂を含む接着剤組成物（三井化学株式会社製商品名：アドマー）、不飽和カルボン酸によりグラフト変性された変性ポリオレフィン樹脂を含む接着剤組成物（三井化学株式会社製商品名：ユニストール）等が挙げられる。なお、ハロゲンによりグラフト変性された変性ポリオレフィン樹脂を含む接着剤組成物（東洋紡株式会社製商品名：トーヨータック）等も使用することができ、また、5wt%-フェノール樹脂接着剤組成物（溶媒：イソプロピルアルコール、フェノール樹脂：リグナイト株式会社製商品名：ＡＨ-１１４８）やエポキシ樹脂接着剤組成物（日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社製商品名：YSLV-80XY）等も使用することができる。この接着剤層の層厚が０．１μm未満だと接着強度が低下する虞があり、反対に、１０μmを超えると作製されたステンレス鋼板カーボン複合材の導電性が低下する虞がある。

[0050] ＜ステンレス鋼板カーボン複合材の製造＞

本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材の製造方法については、前記したような化学組成及び表層におけるＣｕ及びＣ含有量を有するステンレス鋼製の板状基材を準備し（基材準備工程）、その少なくとも片面に、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むカーボン層を形成する（カーボン層形成工程）。

[0051] 基材準備工程では、所定の化学組成を有するステンレス鋼板からなる板状素材を準備し、次いで、表面処理をおこなう。

まず、所定の化学組成を有する鋼を真空炉に溶解し、インゴットに造塊し、その後、熱間鍛造・熱間圧延・焼鈍・冷間圧延による工程を経て、板状素材を得る。各工程の処理条件などは公知の方法を用いることができる。

次いで、前記板状素材の少なくとも片面に、表面処理液により酸洗する表面処理を行う。その後、純水等で洗浄する。この表面処理により、表層に所定のＣｕ及びＣ含有量を有する板状基材を得る。表面処理液として、１～１０質量%濃度のフッ化水素酸水溶液、又は、フッ化水素酸(HF)と硝酸(HNO_3)との濃度比(HF/HNO_3)が２以上であってHF濃度が２質量%以上のフッ化水素酸・硝酸混合水溶液などを用いることができる。なお、前記表面処理工程を行なうことに先駆けて、前記板状素材の少なくとも片面に、前処理液として、酸濃度２５質量%以上及び塩化鉄濃度２０質量%以上の塩化鉄含有酸水溶液を接触させる前処理工程を行なってもよい。

[0052] 表面処理液として用いるフッ化水素酸水溶液の濃度は、好ましくは１質量%以上１０質量%以下であり、より好ましくは３質量%以上８質量%以下である。フッ化水素酸水溶液のフッ化水素酸濃度が1質量%より低いと、基材表層に濃化されるＣｕ及びＣ濃度（含有量）を前記の所定の範囲とすることができない虞がある。一方、当該濃度が１０質量%より高いと、素材のステンレスの溶出が大きく、その表面に形成される酸化皮膜の厚みが厚くなり、接触抵抗が大きくなる虞がある。また、表面処理液として、フッ化水素酸・硝酸の混合水溶液を用いる場合には、フッ化水素酸(HF)と硝酸(HNO_3)との濃度比(HF/HNO_3)が、好ましくは２以上、より好ましくは、２．５以上であり、尚且つHF濃度が好ましくは２質量%以上、より好ましくは３質量%以上である。フッ化水素酸(HF)と硝酸(HNO_3)との濃度比(HF/HNO_3)が２未満であると、接触抵抗が10mΩ・cm^2より大きくなる虞があり、また、ＨＦ濃度が２質量%未満の場合にも、接触抵抗が10mΩ・cm^2より大きくなる虞がある。混合水溶液として使用する場合においても、フッ化水素酸の濃度については、前記同様に、１０質量%以下が好ましく、より好ましくは８質量%以下である。この表面処理によって、板状素材表面の酸化皮膜を除去するのみでなく、板状素材表層部のＣｕ及びＣを所定の濃化した含有量とすることができる。そのためには、表面処理時間を適切に設定する必要がある。例えば、表面処理液として、フッ化水素酸水溶液（濃度３～８質量%）を用いる場合、処理温度４０℃以上６０℃以下で、

時間１０～１５０秒程度、板状素材を表面処理液に接触させればよい。その後に純水等で洗浄する。

[0053] 前記表面処理に先駆けて行なってもよい前処理工程では、前処理液中に板状素材を浸漬し、その後に純水等で洗浄する前処理が行われる。前処理液として、$FeCl_3$等の塩化鉄を塩酸やフッ化水素酸等の非酸化性の酸水溶液中に溶解させて得られた塩化鉄含有酸水溶液を用いる。塩化鉄含有酸水溶液については、使用する酸の種類や塩化鉄の種類によっても異なるが、酸濃度が２５質量%以上が好ましく、より好ましくは３０質量%以上４０質量%以下であり、また、塩化鉄濃度が通常２０質量%以上が好ましく、より好ましくは２０質量%以上３０質量%以下である。また、板状素材を塩化鉄含有酸水溶液中に浸漬する前処理条件については、通常温度３０℃以上６０℃以下及び時間３０秒以上３分以下の処理条件で行われる。この前処理により、焼鈍工程でステンレス表面に形成された比較的厚い酸化皮膜に対して予め孔食を形成させるか、または当該酸化皮膜を薄膜化させることができるため、その後の表面処理工程において、当該酸化皮膜の構造を制御することが容易となる。

[0054] 表面処理により得られた板状基材に、カーボン層形成工程を実施する。カーボン層形成工程では、板状基材の表面に炭素質材とマトリックス樹脂とを含むカーボン層を形成する。カーボン層の形成方法については、特に制限されるものではない。例えば、板状基材の表面に炭素質材（炭素質粉末など）とマトリックス樹脂（樹脂粉末など）とを含む混合物を充填しホットプレスする方法や、樹脂粉末と炭素質粉末とを溶剤中に分散させたスラリーを、ドクターブレード等を使いステンレス表面に塗布し、乾燥後にホットプレスする方法等が例示できる。好ましくは、炭素質粉末と樹脂粉末とを含む粉末混合物を温間圧縮成型（ホットプレス）して予めシート状のカーボン層を作成し、得られたカーボン層を板状基材の表面に再びホットプレスして積層させるホットプレス法で行うのがよい。このホットプレス法でカーボン層を形成し、また、積層することにより、連続的にカーボン層を基材の表面に形成することができるという利点がある。

[0055] また、本実施形態においては、前記カーボン層形成工程に先駆けて、板状基材の表面に前記接着剤組成物を塗布し、板状基材の表面に接着剤層を形成する接着剤層形成工程を実施してもよい。前記カーボン層形成工程では、この接着剤層を介してカーボン層が形成される。カーボン層形成工程に先駆けて接着剤層形成工程を実施することにより、板状基材とカーボン層との間の密着性が向上することや、板状基材のステンレス表面を接着層で被覆することから、例えば、固体高分子形燃料電池として使用する場合には腐食性環境に対する耐久性が向上するという利点がある。

[0056] 本実施形態の方法によって得られた本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、接触抵抗が１０ｍΩ・cm^{2}以下であることが好ましく、より好ましくは５ｍΩ・cm^{2}以下、さらに好ましくは３ｍΩ・cm^{2}以下であって、尚且つ、その接触抵抗が燃料電池の使用環境に相当する環境下においても実質的に変化しないものであることが好ましい。

本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、柔軟性や可撓性、圧縮強度、成形性、気密性等において優れているだけでなく、導電性(低接触抵抗)と耐食性とが共に優れており、更には基材加工性（基材とカーボン層との密着性）にも優れる。本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、固体高分子形燃料電池等の燃料電池用セパレータ、レドックスフロー型２次電池用の集電板、石油精製・石油化学プラント用のガスケットやパッキン等の用途において好適に用いられる。固体高分子形燃料電池用のセパレータとして用いる場合、例えば図５に示されるように、固体高分子電解質膜６とアノード（燃料電極）７とカソード（酸化剤電極）８とからなるＭＥＡを２枚の燃料電池用セパレータ５によって、ガスケット９を介して挟持した構成１０を単位セルとして、これを数十個～数百個積層してスタックとすることができる。

[0057] また、本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、電気化学式水素圧縮機のセパレータとしても用いることができる。電気化学式水素圧縮機やそのメカニズムについては、特に限定するものではないが、既知の構成や方法

、例えば、特開2018-189300号公報、特開2018-95953号公報、特開2018-165385号公報などに記載の構成や方法等を採用することができる。電気化学式水素圧縮機の構成の一例（模式図）を図８に示す。例えば、プロトン伝導性の電解質膜３１の一方の面に、触媒層を備えたアノードを設け、他の一方の面には触媒層を設けたカソードを設けて（アノードとカソードとは区別せずにともに符号３２を付した）、これらを電解質・電極接合体（ＭＥＡ）としたうえで、ＭＥＡを、ガス拡散流路を備えてもよいセパレータ３３で挟み、さらに、そのセパレータ３３にはＭＥＡとは接触していない面側に給電板３４を設けて、さらにまた給電板３４をセパレータで挟む構成を有する。このような構成において、図示外の電圧印加手段でアノードとカソードとの間に電位差を与えながらアノードに水素含有ガスを供給すると、アノードの触媒層において水素がプロトン(H^+)と電子に分離し、電子はアノードから電圧印加手段、給電板及びセパレータを介して、カソードへ移動する。プロトンは、アノードから、電解質膜を介して電位の低いカソードへ移動する。その際、カソードの触媒層において、プロトンと電子が結合し、H_2が生成される。そして、アノードへの水素含有ガスの供給、及び上記の電圧印加を続けることにより、カソードにおけるH_2の生成が続き、カソードにおいて高圧の（＝圧縮された）水素ガスが得られる。

本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、導電性(低接触抵抗)が優れることから水素発生反応の効率化等に寄与し、また、耐食性に優れることから耐腐食環境（湿潤、低ｐＨ）を有し、さらに、基材加工性（基材とカーボン層との密着性）に優れることから耐食性の劣化の虞等も少ないものであることから、電気化学式水素圧縮機のセパレータとして好適に使用できる。

実施例

[0058] 以下、実施例及び比較例に基づいて、本実施形態のステンレス鋼板（ステンレス鋼製の板状基材）及びステンレス鋼板カーボン複合材、それらの製造方法、並びに各性能評価について、具体的に説明する。

[0059] １．ステンレス鋼板（ステンレス鋼製の板状基材）の調製

〔ステンレス鋼製の板状素材の準備工程〕

まず、ステンレス鋼製の板状素材を以下のように準備した。すなわち、以下の表１に示すような化学組成（単位：質量%、残部はＦｅ及び不純物）を有するステンレス鋼150kgを高周波誘導加熱方式の真空溶解炉で溶解してインゴットに造塊した。得られた150kgの鋳塊に対して、熱間鍛造を1220℃で行い、切削した後、熱間圧延を1220℃、焼鈍を1180℃で行った後、冷間圧延を1080℃、焼鈍を1080℃で繰り返し、厚さ50μmのステンレス鋼箔を得た。これを板状素材ａ～ｎとした。

[0060] [表1]

素材記号	C	Si	Mn	Al	Cr	Cu	P	S	任意添加元素
a	0.008	0.440	0.330	0.039	10.86	0.02	0.02	0.00	V:0.01
b	0.01	0.070	0.080	0.040	12.17	0.03	0.02	0.00	Ni:0.07, Ti:0.01, Mo:0.03, V:0.07
c	0.08	0.280	0.130	0.040	14.52	0.05	0.03	0.00	Ti:0.02
d	0.01	0.160	0.640	0.060	15.23	0.03	0.026	0.00	Ni:0.10, Ti:0.13, Mo:1.00, V:0.09
e	0.02	0.080	0.55	0.008	8.21	0.03	0.03	0.00	－
f	0.01	0.480	0.83	0.001	17.43	0.22	0.02	0.00	Ni:0.12, Ti:0.09, Mo:0.06, V:0.09
g	0.01	0.230	1.21	0.009	9.68	0.08	0.02	0.00	－
h	0.01	0.150	0.22	0.012	15.56	0.06	0.01	0.00	－
i	0.02	0.320	0.12	0.011	18.24	0.06	0.02	0.00	－
j	0.01	0.210	1.08	0.210	14.98	0.79	0.02	0.00	－
k	0.08	0.090	0.56	0.062	10.59	1.54	0.03	0.00	－
l	0.01	0.450	0.090	0.180	14.67	0.001	0.023	0.00	－
m	0.01	0.180	0.85	0.085	13.85	0.35	0.02	0.00	Ni:0.10, Ti:0.13, Nb:0.08, W:0.01
n	0.01	0.090	1.15	0.160	11.26	0.41	0.02	0.00	Ni:0.12, V:0.09, Ta:0.02, Sb:0.08, Pb:0.12

[0061] 〔板状素材の表面処理工程〕

得られた板状素材ａ～ｎについて、表面処理を行い、各ステンレス鋼板（ステンレス鋼製の板状基材）を得た。表面処理では、表面処理液として４質量%のフッ化水素酸水溶液を用い、この表面処理液中に５０℃で、それぞれの板状素材を浸漬し、酸洗した。酸洗時間は表２のとおりとした。酸洗後は、超純水を用いて表面を洗浄した。得られたステンレス鋼板（ステンレス鋼製の板状基材）をそれぞれ実施例１～１４、比較例１～１０に係る板状基材と称して、後述のとおりの基材表層のＣｕ量及びＣ量の測定（試験例７）に供した。

[0062] ＜実施例１＞

２．カーボン層の積層工程

上記で得られた実施例１に係る板状基材を用いて、その表面に接着剤層を形成させた後に、さらにカーボン層を積層させた。

〔接着剤層形成工程〕

接着剤層を形成するための接着剤組成物として、変性ポリオレフィン樹脂接着剤（三井化学株式会社製、ユニストール）を用いた。そして、上記で得られた板状基材の表面に、卓上コーターを用いて塗布厚１０μmとなるようにこの変性ポリオレフィン樹脂接着剤を塗布し室温中で１０分乾燥させて接着剤層を形成し、実施例１における接着剤層付きの板状基材として得た。

[0063] 〔カーボン層の形成〕

炭素質材としては、球状黒鉛粉末（伊藤黒鉛株式会社製商品名：SG-BH、平均粒子径：20μm）及び膨張黒鉛粉末（伊藤黒鉛株式会社製商品名：EC100、平均粒子径：160μm）を使用した。マトリックス樹脂としては、ポリプロピレン樹脂(PP)粉末（住友精化株式会社製商品名：フローブレンHP-8522）を使用した。そして、球状黒鉛粉末を６０体積%、膨張黒鉛粉末を１０体積%、及びポリプロピレン樹脂粉末を３０体積%となるように混合して粉末混合物とした。この粉末混合物０．４ｇを、図２に示すように（この場合は、接着剤層付きのステンレス鋼製板状基材４は用いない。）プレス装置（東洋精機

製作所社製卓上ホットプレスMP-SCL）の50×50×20mmの容積を持つ雌型金型に均等になるように投入し、前プレスとしてのホットプレス（圧力：２ＭＰａ、温度：180℃）によりカーボン層３（厚さ：０．１ｍｍ）とした。次いで、図２及び図３のように、この得られたカーボン層３と、前記で準備した接着剤層付きのステンレス鋼製板状基材４とを重ね、加熱温度180℃（記号Ｔ）及び圧力５ＭＰａ（記号Ｐ）で押圧し（本プレス、成型時間１０分）、ステンレス鋼製板状基材４の片面にカーボン層３を形成させた。この基材片面にカーボン層が形成された複合材（「片面複合材」と称することとする。）を、後述の導電性（接触抵抗）の評価（２）（試験例６）に供した。なお、もう一方の基材面についても、同様に接着剤層及びカーボン層を形成させ、それにより、ステンレス鋼製板状基材４の両面にカーボン層３が形成された、実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材１（「両面複合材」と称することとする。）として得た。

[0064] 上で得られた実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材；試験例１～５）、片面複合材（試験例６）及び板状基材（試験例７）について、以下に記載するとおり、それぞれに対応する評価を行なった。

[0065] 〔試験例１：基材表層のＣｕ量及びＣ量の測定（両面複合材）〕

実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）から、２ｃｍ×２ｃｍの試験片を切り出した。次に、図１に示すように、試験片の一方の面のカーボン層を回転式研磨機による研磨により全て除去し、基材表面を露出させた。その後、ダイプラウィンテス社製ＳＡＩＣＡＳ(Surface And Interfacial Cutting Analysis System)を用いて、この露出された基材表面を切削し、基材の厚さが5μmになるまで切削を行った。

次いで、グロー放電発光分光分析法（ＧＤＳ）により、前記の切削面側からの厚さ方向（すなわち、切削面側から反対の基材表層側へ向けた方向）の元素分析を行った。ＧＤＳには、堀場製作所製ＧＤ－Ｐｒｏｆｉｌｅｒ（マーカス型高周波グロー放電発光分析装置）を用いた。アノード径（分析領域）は、直径４ｍｍとした。ＲＦ出力は３５Ｗ、スパッタリングガス種はＡｒ

、圧力は６００Ｐａとした。測定モードは、パルススパッタリングモードとし、スパッタリング間隔は３００ｓｅｃ、測定間隔は０．０４ｓｅｃとした。

このようにして得られた元素分析結果から、基材表層のＣｕ及びＣの含有量（質量％）を、それぞれ次の測定範囲の積分値として求めた。なお、観察範囲は十分に約200nmとしたが、Ｃｕに関する測定範囲（Ｄ１～Ｄ２）は約１０ｎｍであり、また、Ｃに関する測定範囲（Ｄ２～Ｄ３）は約５０ｎｍであった。

Ｃｕ：Ｃｕの測定ピーク強度が最大となる基材厚み方向の位置Ｐを特定し、この位置Ｐにおけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される切削面側（基材厚み方向の中心側）の位置をＤ１とし、この位置Ｄ１と同じピーク強度が基材表面側（測定対象表面側）において計測される位置をＤ２とし、これら位置Ｄ１からＤ２の厚さ範囲。

Ｃ：前記Ｃｕが最大ピーク値をとる位置Ｐを始点として、この位置Ｐよりも切削面側（基材厚み方向の中心側）においてＣのピーク強度が位置ＰにおけるＣのピーク強度の１／５０となる位置をＤ３とし、位置Ｄ３から前記Ｄ２の厚さ範囲。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0066] 〔試験例２：耐食性の評価〕

燃料電池模擬環境に試験片を浸漬し、溶液中の沈殿物の有無によって耐食性を評価した。具体的には、得られた実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）から２０ｍｍ×２０ｍｍの試験片を切り出した。この試験片を、３０ｐｐｍの塩化物イオン（Cl^-）を含んだ８０℃の硫酸溶液中（ｐＨ３）に２４０時間浸漬した後、溶液の沈殿物の有無を確認し、以下の基準で評価した。

得られた結果を下記の表２に示す。

◎：沈殿物無し

△：沈殿物は無いが溶液に変色が見られる

×：沈殿物あり

[0067]〔試験例３：導電性（接触抵抗）の評価（１）（両面複合材）〕

カーボンペーパとの接触抵抗を測定した。図４は、試験片の接触抵抗を測定する装置の構成を示す図であり、この装置を用いて接触抵抗を測定した。

まず、前記実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）から１５ｍｍ×１５ｍｍの試験片１４を切り出した。この試験片を、燃料電池用のガス拡散層として使用される１対のカーボンペーパ１５〔東レ（株）製　TGP－H－90〕で挟み込み、これを金めっきした１対の白金電極１６で挟んだ。各カーボンペーパ１５の面積は、１ｃｍ^{2}であった。次に、この１対の白金電極１６の間に、１０ｋｇｆ／ｃｍ^2（９．８１×１０^{5}Ｐａ）の荷重を加えた。図４に、荷重の方向を白抜き矢印で示す。この状態で、１対の白金電極１６間に一定の電流を流し、このとき生じるカーボンペーパ１５と試験片１４との間の電圧降下を測定した。この結果に基づいて抵抗値を求めた。得られた抵抗値は、試験片１４の両面の接触抵抗を合算した値となるため、これを２で除して、試験片１４の片面あたりの接触抵抗値とし、以下の基準で評価した。

得られた結果を下記の表２に示す。

◎：5 mΩ・cm^{2}未満

○：5 mΩ・cm^{2}以上10mΩ・cm^{2}未満

×：10 mΩ・cm^{2}以上

[0068]〔試験例４：基材とカーボン層との密着性の評価〕

前記実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）から、その製造から２４時間以内に、５０ｍｍ×５０ｍｍの試験片を切り出した。この試験片について、クロスカット法を用いて密着強度を評価した。試験片に対して、カッターナイフを用いてカーボン層の被覆面側から芯材であるステンレス鋼板に達する切れ込みを２ｍｍ間隔で平行に１１本付けた。そして、それに垂直になるように更に１１本の切れ込みを入れ、１００個の碁盤目を形成させた。この碁盤目の箇所に対して、テープ剥離試験を行った。テー

プとして、ニチバン社製のセロテープ（登録商標）を用いた。評価面に貼り付けたテープを剥がしたときに、カーボン層が剥離した程度により、密着性を評価した。

得られた結果を下記の表２に示す。

◎：いずれの格子目も剥離が見られない

○：カーボン層が０以上５％未満で剥離している

×：カーボン層が５％以上剥離している

[0069]〔試験例５：カーボン層中のマトリックス樹脂の劣化評価（銅害の評価）〕

前記実施例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）を、30日間常温常圧下で保管した。その後、両面複合材から５０ｍｍ×５０ｍｍの試験片を切り出した。この試験片について、クロスカット法を用いて密着強度を評価した。試験片に対して、カッターナイフを用いてカーボン層の被覆面側から芯材であるステンレス鋼板に達する切れ込みを２ｍｍ間隔で平行に１１本付けた。それに垂直になるように更に１１本の切れ込みを入れ、１００個の碁盤目を形成させた。この碁盤目の箇所に対して、テープ剥離試験を行った。テープとして、ニチバン社製のセロテープ（登録商標）を用いた。評価面に貼り付けたテープを剥がしたときに、カーボン層が剥離した程度により、密着性を評価した。

得られた結果を下記の表２に示す。

◎：いずれの格子目も剥離が見られない

○：カーボン層が０以上５％未満で剥離している

×：カーボン層が５％以上剥離している

[0070]〔試験例６：導電性（接触抵抗）の評価（２）（片面複合材）〕

ステンレス鋼との接触抵抗を測定した。本接触抵抗の測定には、図７に示す装置を用いた。

前記実施例１に係る片面複合材から、１５ｍｍ×１５ｍｍの試験片２０を切り出した。電気化学式水素圧縮機において給電板の一つとして使用されるステンレス材（ＳＵＳ３１６Ｌ）２１を、試験片２０のカーボン層が積層さ

れていない面側に重ね、これら試験片２０とステンレス材２１との積層体を、金めっきした１対の白金電極２３で挟んだ。ステンレス材２１の面積は１ｃｍ^{2}であり、厚みは５ｍｍであった。次に、この１対の白金電極２３の間に、１０ｋｇｆ／ｃｍ^2（９．８１×１０^{5}Ｐａ）の荷重を加えた。図７に、荷重の方向を白抜き矢印で示す。この状態で、１対の白金電極２３間に一定の電流を流し、このとき生じる電気抵抗を測定した。その際に得られる電気抵抗値は、下部の白金電極２３と試験片２０との接触抵抗、試験片２０とステンレス材２１との接触抵抗、及びステンレス材２１と上部の白金電極２３との接触抵抗を全て合算した値（Ｒ１）となる。したがって、同じ装置を用いて、ステンレス材２１のみを白金電極２３で挟み込んだ場合の電気抵抗を２で除した値（Ｒ２）を求め、他方、試験片２０についても、試験片２０のみを白金電極２３で挟み込んだ場合の電気抵抗を２で除した値（Ｒ３）を求め、これらの値の和（Ｒ２＋Ｒ３）を合算の電気抵抗値（Ｒ１）から差し引いて、ステンレス材２１と試験片２０との接触抵抗とした。この接触抵抗の値を、以下の基準で評価した。

得られた結果を下記の表２に示す。

◎：10 mΩ・cm^{2}未満

○：10 mΩ・cm^{2}以上20mΩ・cm^{2}未満

×：20 mΩ・cm^{2}以上

[0071] 〔試験例７：基材表層のＣｕ量及びＣ量の測定（板状基材）〕

実施例１に係る板状基材から、２ｃｍ×２ｃｍの試験片を切り出した。

次いで、グロー放電発光分光分析法（ＧＤＳ）により、基材表面（最表面）からの厚さ方向（すなわち、基材表面から基材厚み方向の中心部に向けた方向）の元素分析を行った。ＧＤＳには、堀場製作所製ＧＤ－Ｐｒｏｆｉｌｅｒ（マーカス型高周波グロー放電発光分析装置）を用いた。アノード径（分析領域）は、直径４ｍｍとした。ＲＦ出力は３５Ｗ、スパッタリングガス種はＡｒ、圧力は６００Ｐａとした。測定モードは、パルススパッタリングモードとし、スパッタリング間隔は３００ｓｅｃ、測定間隔は０．０４ｓｅ

ｃとした。

このようにして得られた元素分析結果から、板状基材の表層のＣｕ及びＣの含有量（質量％）を、それぞれ次の測定範囲の積分値として求めた。なお、観察範囲は十分に約200nmとしたが、Ｃｕに関する測定範囲（Ｄ１’～Ｄ２’）は約１０ｎｍであり、また、Ｃに関する測定範囲（Ｄ２’～Ｄ３’）は約５０ｎｍであった。

Ｃｕ：Ｃｕの測定ピーク強度が最大となる基材厚み方向の位置Ｐ’を特定し、この位置Ｐ’におけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される基材厚み方向の中心側の位置をＤ１’とし、板状基材最表面（これを位置Ｄ２’とする）から位置Ｄ１’までの厚さ範囲。

Ｃ：前記Ｃｕが最大ピーク値をとる基材厚み方向の位置Ｐ’を始点として、この位置Ｐ’よりも基材厚み方向の中心側においてＣのピーク強度が位置Ｐ’におけるＣのピーク強度の１／５０となる位置をＤ３’とし、板状基材最表面（位置Ｄ２’）から位置Ｄ３’までの厚さ範囲。

得られた結果を下記の表２に示す。

なお、ステンレス鋼板カーボン複合材の測定における基材厚み方向の位置Ｐ、Ｄ１、Ｄ３は、それぞれ板状基材の測定における基材厚み方向の位置Ｐ’、Ｄ１’、Ｄ３’と同じであった。

[0072] ＜実施例２～３＞

前記実施例１と同じ板状素材ａを用いて、表面処理（酸洗浄）の時間を３０秒（実施例２）又は６０秒（実施例３）に変更して得た実施例２又は３に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例２又は実施例３に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0073] ＜実施例４～５＞

前記実施例１から板状素材をｂ（実施例４）又はｃ（実施例５）に変更し

、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例４又は５に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例４又は実施例５に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0074] ＜実施例６＞

前記実施例１から板状素材をｃに変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を１２０秒に変更して得た実施例６に係る板状基材を使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例６に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0075] ＜実施例７＞

前記実施例１から板状素材をｄに変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例７に係る板状基材を使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例７に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0076] ＜比較例１～２＞

前記実施例１から板状素材をｅ（比較例１）又はｆ（比較例２）に変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た比較例１又は２に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、比較例１又は比較例２に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0077] ＜比較例３～４＞

前記実施例１から表面処理（酸洗浄）の時間を３秒（比較例３）又は６０秒（比較例４）に変更して得た比較例３又は４に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、比較例３又は比較例４に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0078] ＜比較例５＞

前記実施例１から表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た比較例５に係る板状基材を使用したが、接着剤層及びカーボン層を積層させず、板状基材のみとして、接触抵抗（試験例３）と耐食性（試験例２）の評価のみを行った。基材表層のＣｕ量及びＣ量の測定は、上記試験例７による方法で実施した。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0079] ＜実施例８～９＞

前記実施例１から板状素材をｇ（実施例８）又はｈ（実施例９）に変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例８又は９に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例８又は実施例９に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0080] ＜比較例６＞

前記実施例１から板状素材をｉに変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た比較例６に係る板状基材を使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、比較例６に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0081] ＜実施例１０＞

前記実施例１から板状素材をｊに変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例１０に係る板状基材を使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例１０に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0082] ＜比較例７～８＞

前記実施例１から板状素材をｋ（比較例７）又はｌ（比較例８）に変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た比較例７又は８に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、比較例７又は比較例８に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0083] ＜実施例１１～１２＞

前記実施例１から板状素材をｍ（実施例１１）又はｎ（実施例１２）に変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例１１又は１２に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例１１又は実施例１２に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0084] ＜実施例１３＞

前記実施例１から板状素材をｃに変更し、また、表面処理（酸洗浄）の時間を２０秒に変更して得た実施例１３に係る板状基材を使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例１３に係

るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0085] ＜比較例９～１０＞

前記実施例１から表面処理（酸洗浄）の時間を１２００秒（比較例９）又は１０００秒（比較例１０）に変更して得た比較例９又は１０に係る板状基材をそれぞれ使用した以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、比較例９又は１０に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0086] ＜実施例１４＞

前記実施例１から表面処理（酸洗浄）の時間を６０秒に変更して得た実施例１４に係る板状基材を使用し、また、接着剤層としてイソプロピルアルコールに5wt%になる様にフェノール樹脂(PF)を溶解させたフェノール樹脂接着剤（リグナイト株式会社製フェノール樹脂、商品名：ＡＨ-１１４８）を使用すると共に、カーボン層を得るためのマトリックス樹脂としてフェノール樹脂（リグナイト株式会社製商品名：ＡＨ－１１４８）を使用し、さらに、カーボン層を積層させる際の前プレス温度を８０℃として本プレス温度を１５０℃とした以外は、実施例１と同じように接着剤層及びカーボン層を積層させて、実施例１４に係るステンレス鋼板カーボン複合材（片面複合材及び両面複合材）を得ると共に、同じように各種評価を行った。

得られた結果を下記の表２に示す。

[0087]

[表2]

区分	素材	酸洗(sec)	板状基材(カーボン層形成前)		ステンレス鋼板カーボン複合材							
					両面複合材							片面複合材
			基材表層Cu(質量%)	基材表層C(質量%)	基材表層Cu(質量%)	基材表層C(質量%)	カーボン層樹脂	接触抵抗(1)(mΩ・cm²)	耐食性	密着性	銅害抑制	接触抵抗(2)(mΩ・cm²)
実施例1	a	10	0.032	6.90	0.04	8.52	PP	○	◎	◎	◎	○
実施例2	a	30	0.053	6.61	0.07	7.34	PP	◎	◎	◎	◎	○
実施例3	a	60	0.11	4.90	0.12	5.57	PP	◎	◎	◎	◎	◎
実施例4	b	60	0.08	4.48	0.10	6.31	PP	◎	◎	◎	◎	◎
実施例5	c	60	0.14	6.19	0.18	7.28	PP	◎	◎	◎	◎	◎
実施例6	c	120	0.216	4.03	0.27	4.86	PP	◎	◎	◎	○	◎
実施例7	d	60	0.077	4.91	0.09	6.91	PP	◎	◎	◎	◎	◎
比較例1	e	60	0.061	4.41	0.08	5.89	PP	◎	△	-	-	○
比較例2	f	60	0.179	5.20	0.23	6.84	PP	×	-	-	-	×
比較例3	a	3	0.007	6.22	0.008	7.98	PP	×	-	-	-	×
比較例4	a	600	0.312	2.44	0.35	3.21	PP	◎	◎	○	×	◎
比較例5	a	60	0.12	5.57	—	—	無	○	×	-	-	-
実施例8	g	60	0.059	5.27	0.08	6.51	PP	◎	◎	◎	◎	○
実施例9	h	60	0.035	5.85	0.04	7.05	PP	○	◎	◎	◎	○
比較例6	i	60	0.008	6.09	0.01	7.43	PP	×	-	-	-	×
実施例10	j	60	0.122	4.98	0.15	5.72	PP	◎	◎	◎	◎	○
比較例7	k	60	1.083	4.49	1.29	5.04	PP	◎	◎	◎	×	◎
比較例8	l	60	0.007	4.71	0.008	5.48	PP	×	-	-	-	×
実施例11	m	60	0.067	5.33	0.08	6.35	PP	◎	◎	◎	◎	○
実施例12	n	60	0.073	4.96	0.09	5.98	PP	◎	◎	◎	◎	◎
実施例13	c	20	0.084	8.33	0.11	9.57	PP	○	◎	◎	◎	○
比較例9	a	1200	0.409	1.38	0.56	1.68	PP	◎	◎	×	×	◎
比較例10	a	1000	0.346	2.18	0.48	2.45	PP	◎	◎	○	×	◎
実施例14	a	60	0.084	4.73	0.12	5.57	PF	◎	◎	◎	◎	◎

[0088] 上記の表１及び表２から分かるように、所定の元素（特に、Ｃ、Ｃｒ及びＣｕ）含有量を有するステンレス鋼製の板状素材ａ～ｄ、ｇ、ｈ、ｊ、ｍ又はｎを用いると共に、表面処理（酸洗処理）の時間を調整することで基材表

層に濃化されるＣｕ及びＣ含有量が特定の範囲内である板状基材を用いた実施例１～１４に係るステンレス鋼板カーボン複合材（両面複合材）は、試験例１～５において、接触抵抗（導電性）、耐食性、基材とカーボン層との密着性及び銅害抑制のいずれも良好であった。

[0089] Ｃｒ含有量が低い板状素材ｅから得た板状基材を使用した比較例１に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、表面処理（酸洗処理）時間の調整により基材表層におけるＣｕ及びＣ含有量が特定の範囲内であるものの、耐食性が不十分であった。これは、不働態皮膜が十分に形成されていなかったためと推察される。一方、Ｃｒ含有量が高い板状素材ｆ又はｉから得た板状基材を使用した比較例２及び６に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、接触抵抗が高く導電性に劣るものであった。これは、不働態皮膜が過剰に形成されていたためと推察される。

[0090] Ｃｕ含有量が高い板状素材ｋから得た板状基材を使用した比較例７に係るステンレス鋼板カーボン複合材では、実施例と同等の表面処理（酸洗処理）であっても、基材表層のＣｕ含有量が高すぎた。また、Ｃｕ含有量が低い板状素材ｌから得た板状基材を使用した比較例８に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、実施例と同等の表面処理（酸洗処理）であっても、基材表層のＣｕ含有量が低過ぎた。比較例７では、銅害によるカーボン層の劣化がみられた。比較例８では、接触抵抗が高かった。

[0091] 所定の元素（特に、Ｃ、Ｃｒ及びＣｕ）含有量を有する板状素材ａを使用した場合であっても、表面処理（酸洗処理）時間が短い板状基材を使用した比較例３に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、基材表層のＣｕ含有量が低かった。そのため、接触抵抗が高かった。

反対に、板状素材ａを使用し、表面処理（酸洗処理）時間が長い板状基材を使用した比較例４及び比較例１０に係るステンレス鋼板カーボン複合材は、基材表層のＣｕ含有量が高かった。そのため、銅害によるカーボン層の劣化が見られた。また、板状素材ａを使用し、表面処理（酸洗処理）時間がさらに長かった板状基材を使用した比較例９に係るステンレス鋼板カーボン複合

材では、基材表層においてＣｕ含有量が高く、かつＣ含有量が低かった。そのため、銅害によるカーボン層の劣化がみられ、かつ基材とカーボン層との密着性が不十分であった。

[0092] 所定の元素含有量を有する板状素材ａを用い、実施例と同等の表面処理（酸洗処理）を行って基材表層のＣｕ及びＣ含有量が特定の範囲内である板状基材を使用した場合であっても、カーボン層を用いない比較例５においては、耐食性が十分ではなかった。

[0093] 片面複合材を用いた試験例６〔接触抵抗の評価（２）〕の結果によれば、いずれも、両面複合材を用いた試験例３〔接触抵抗の評価（１）〕の結果と同じ傾向が得られた。すなわち、本実施形態を満たす実施例では、ステンレス材（符号２１）との導電性（低接触抵抗）にも優れた結果が得られ、電気化学式水素圧縮機で使用される給電板との接触抵抗を低くできるものであることが確認された。この結果と前述の両面複合材の各結果とを鑑みれば、本実施形態のステンレス鋼板カーボン複合材は、電気化学式水素圧縮機のセパレータとしても好適であることが分かった。

[0094] なお、試験例７の結果から、カーボン層を形成する前の各板状基材については、その表面のＣｕ及びＣの含有量は、全ての例において、対応するそれぞれのステンレス鋼板カーボン複合材のＣｕ及びＣの含有量よりも少ない結果であった。これは、前述したとおりの測定方法の違い（基材表面の測定位置の相違による「測定範囲」の相違）によるものと推測される。

符号の説明

[0095] １…ステンレス鋼板カーボン複合材、２…接着剤層、３…カーボン層、４…ステンレス鋼製板状基材、５…燃料電池用セパレータ、６…固体高分子電解質膜、７…アノード（燃料電極）、８…カソード（酸化剤電極）、９…ガスケット、１０…単位セル、１１…ガス供給排出用溝、１２…開口部、１３…固定穴、１４…試験片、１５…カーボンペーパ、１６…白金電極、１７…固体高分子形燃料電池、２０…試験片、２１…ステンレス材、２３…白金電極、３１…プロトン伝導性電解質膜、３２…アノード又はカソード、３３…セ

パレータ、３４…給電板、１００…プレス装置、１０１…雄型、１０２…雌型、１０３…金型、１０４…機枠、１０５…油圧シリンダ

請求の範囲

[請求項1] ステンレス鋼製の板状基材の少なくとも片面に、炭素質材と熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂からなるマトリックス樹脂とを含むカーボン層が積層されたステンレス鋼板カーボン複合材であり、

前記基材は、少なくとも、炭素（Ｃ）を０．００１～０．２質量％、クロム（Ｃｒ）を９．０質量％以上１６．０質量％未満及び銅（Ｃｕ）を０．００５～１．０質量％含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による基材表層の厚み方向の定量元素分析において、以下の（ｉ）で定義される測定範囲のＣｕ含有量が０．０１０～０．３０質量％、及び以下の(ｉｉ)で定義される測定範囲のＣ含有量が２～１５質量％である、ステンレス鋼板カーボン複合材。

（ｉ）基材表層において計測されるＣｕのピーク強度が最大となる位置Ｐを挟んで、この位置Ｐにおけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される基材中心側の位置Ｄ１と、この位置Ｄ１と同じピーク強度が基材表面側において計測される位置Ｄ２とを結ぶ範囲。

（ｉｉ）前記位置Ｐを挟んで、この位置ＰにおけるＣのピーク強度の１／５０の強度が計測される基材中心側の位置Ｄ３と、基材表面側における前記位置Ｄ２とを結ぶ範囲。

[請求項2] 前記基材は、以下の化学組成を有する、請求項１に記載のステンレス鋼板カーボン複合材。

Ｃ：０．００１～０．２質量％、

Ｓｉ：０．０１～２．０質量％、

Ｍｎ：０．０１～２．５質量％、

Ａｌ：０．００１～０．５質量％、

Ｃｒ：９．０質量％以上１６．０質量％未満、

Ｃｕ：０．００５～１．０質量％、

Ｐ：０．１質量％以下、

Ｓ：０．０１質量％以下、

Ｎｉ：０～０．３質量％、

Ｔｉ：０～２．０質量％、

Ｍｏ：０～３．０質量％、

Ｖ：０～１．０質量％、

Ｎｂ：０～１．０質量％、

Ｗ：０～１．０質量％、

Ｔａ：０～１．０質量％、

Ｓｂ：０～１．０質量％、

Ｐｂ：０～１．０質量％、並びに

残部：Ｆｅおよび不純物。

[請求項3] 請求項１又は２に記載のステンレス鋼板カーボン複合材を用いた燃料電池用セパレータ。

[請求項4] 請求項３に記載の燃料電池用セパレータを備えた燃料電池用セル。

[請求項5] 請求項４に記載の燃料電池用セルを備えた燃料電池スタック。

[請求項6] 請求項１又は２に記載のステンレス鋼板カーボン複合材を用いた電気化学式水素圧縮機用セパレータ。

[請求項7] 請求項６に記載の電気化学式水素圧縮機用セパレータを備えた電気化学式水素圧縮機。

[請求項8] ステンレス鋼板であって、

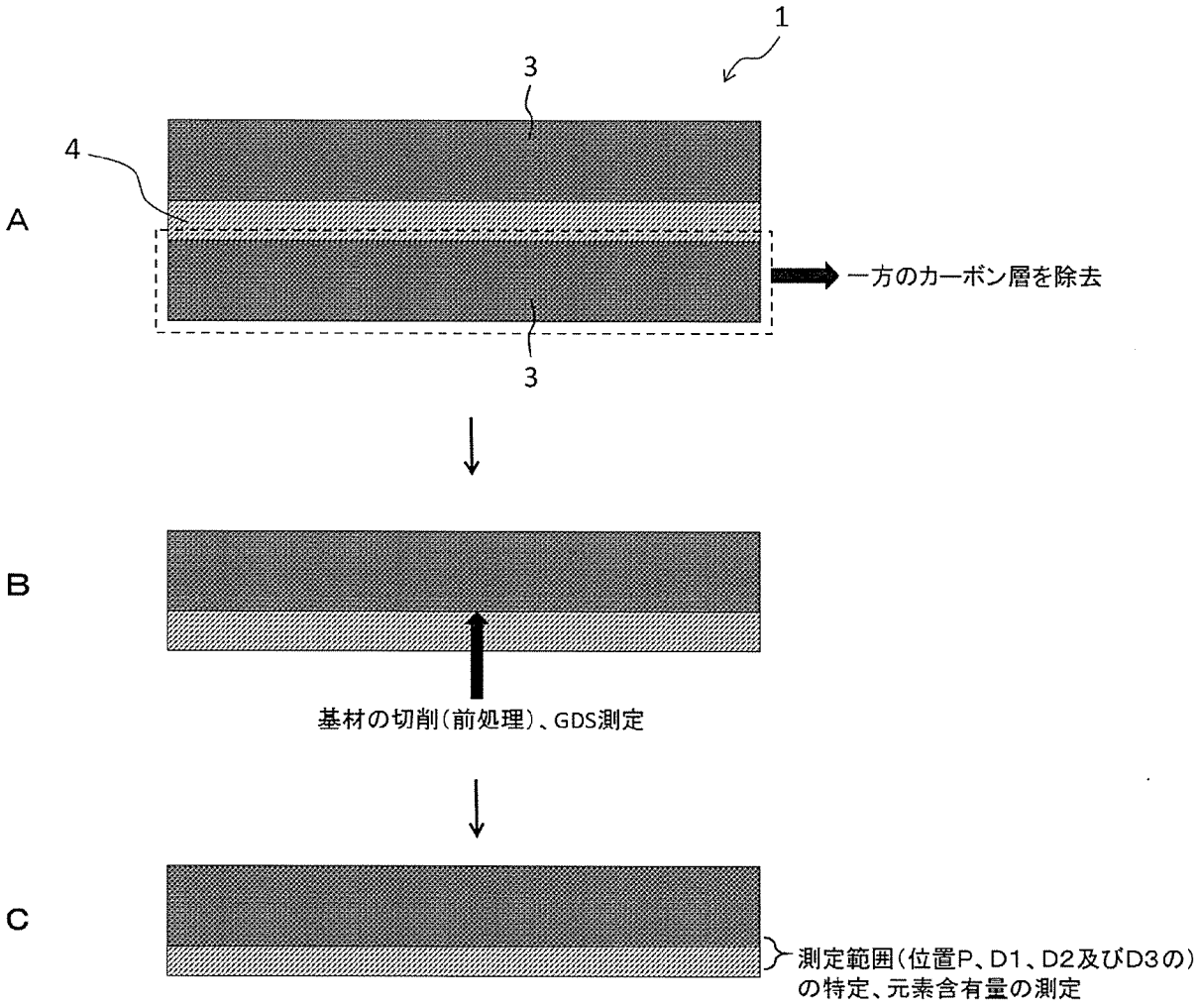
少なくとも、炭素（Ｃ）を０．００１～０．２質量％、クロム（Ｃｒ）を９．０質量％以上１６．０質量％未満及び銅（Ｃｕ）を０．００５～１．０質量％含有すると共に、グロー放電発光分光分析法による表層の厚み方向の定量元素分析において、以下の（ｉ’）で定義される測定範囲のＣｕ含有量が０．００８～０．２８質量％、及び以下の(ｉｉ’)で定義される測定範囲のＣ含有量が１．８～１３．５質量％である、ステンレス鋼板。

（ｉ’）前記鋼板の表層において計測されるＣｕのピーク強度が最

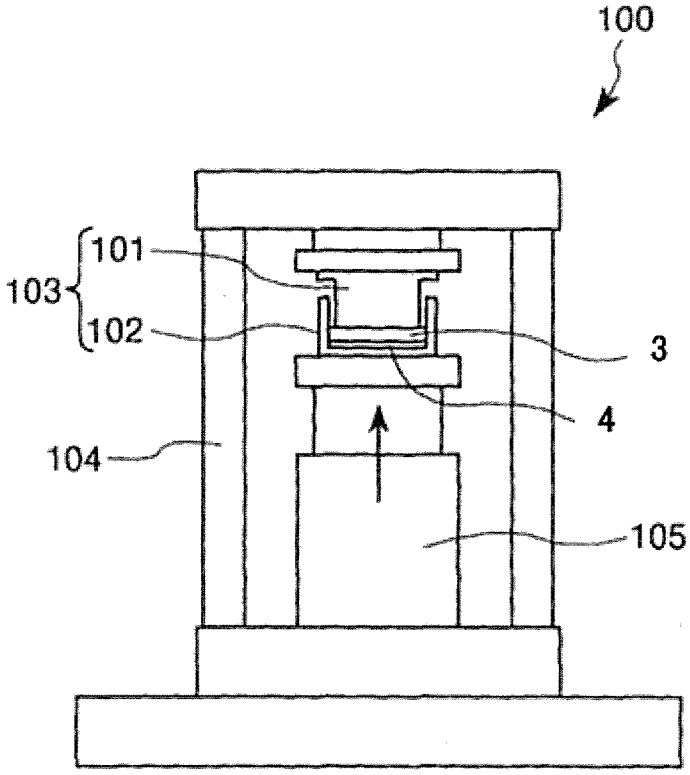
大となる位置Ｐ’を挟んで、この位置Ｐ’におけるピーク強度（最大ピーク強度）の１／５０のピーク強度が計測される鋼板中心側の位置Ｄ１’と、前記鋼板の表面とを結ぶ範囲。

（ｉｉ’）前記位置Ｐ’を挟んで、この位置Ｐ’におけるＣのピーク強度の１／５０の強度が計測される鋼板中心側の位置Ｄ３’と、前記鋼板の表面とを結ぶ範囲。

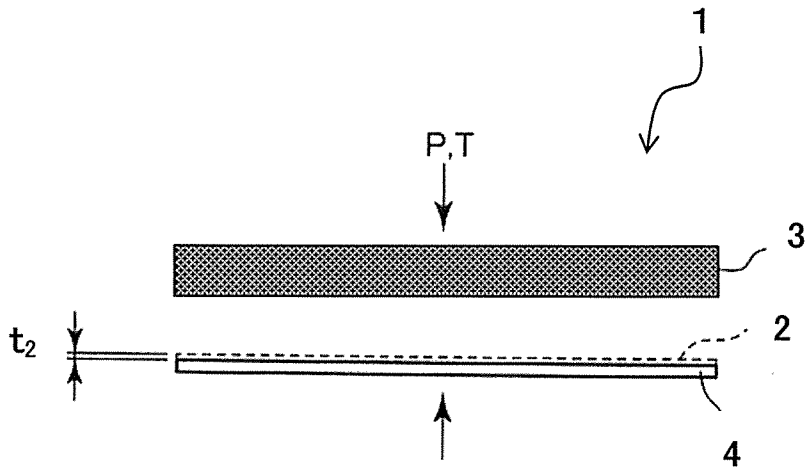
[図1]


1
3
4
A
一方のカーボン層を除去
3
B
基材の切削（前処理）、GDS測定
C
測定範囲（位置P、D1、D2及びD3の）
の特定、元素含有量の測定

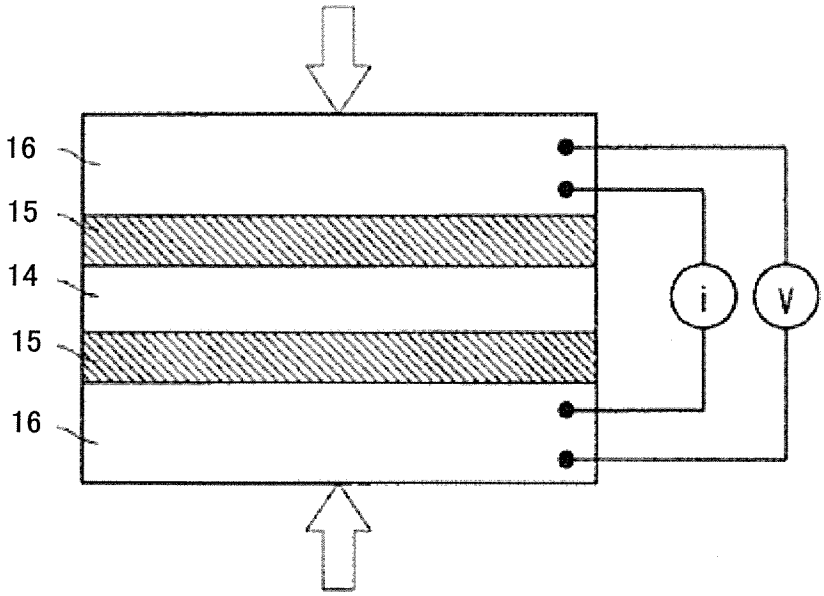
[図2]



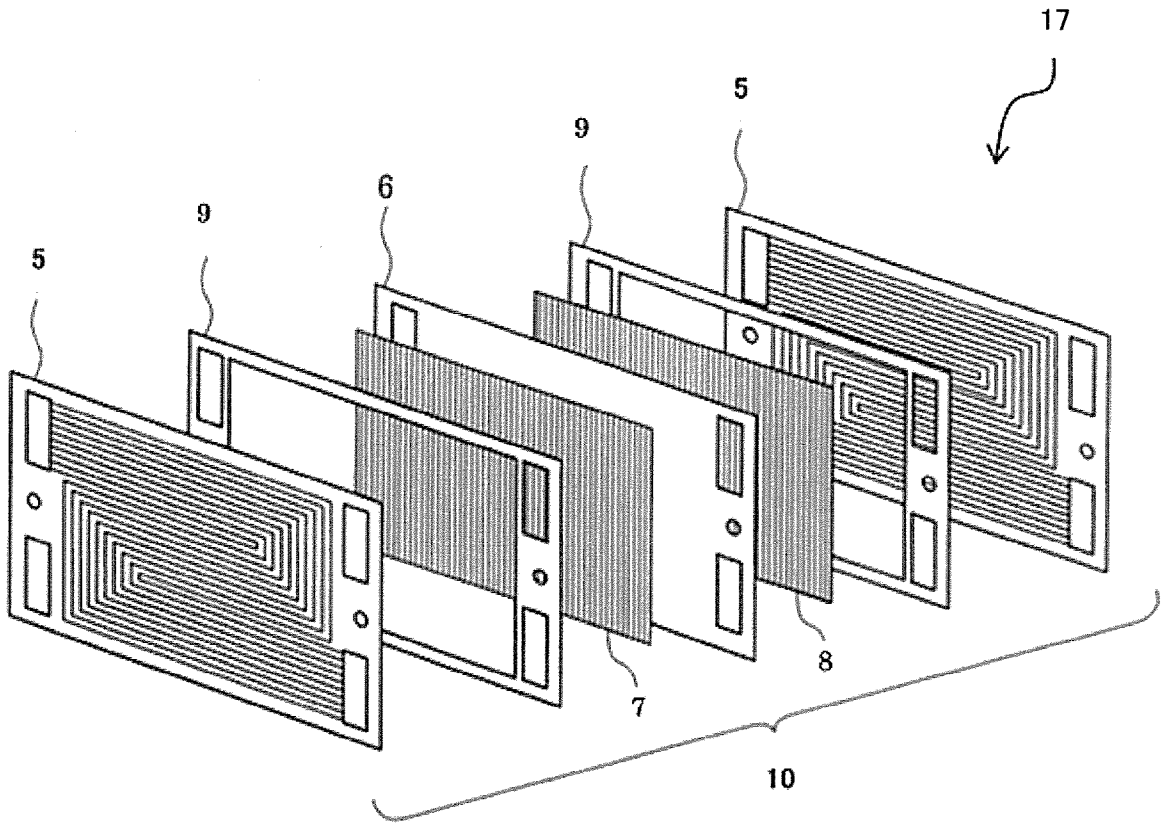
[図3]



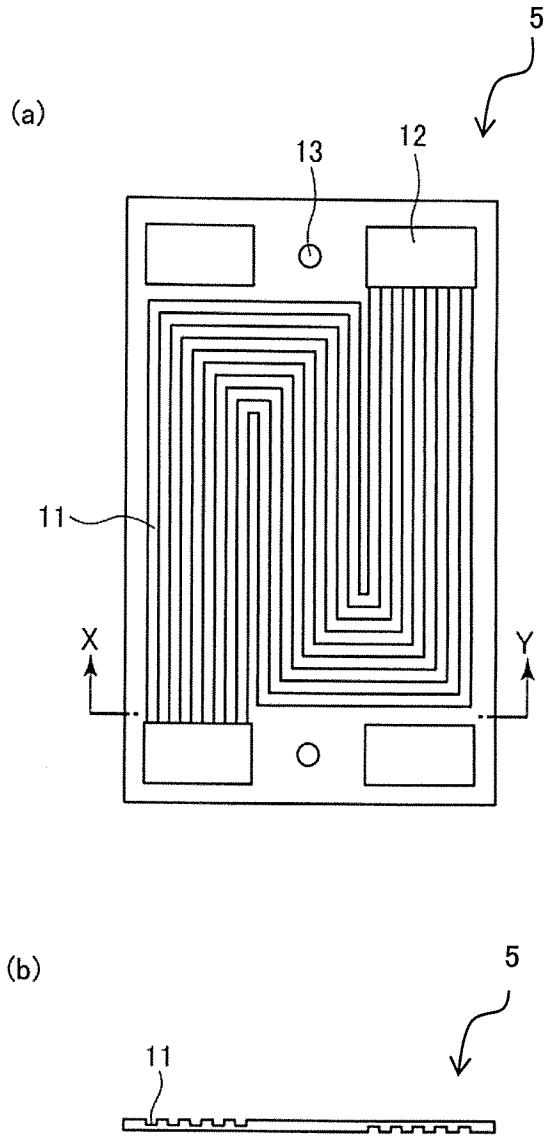
[図4]



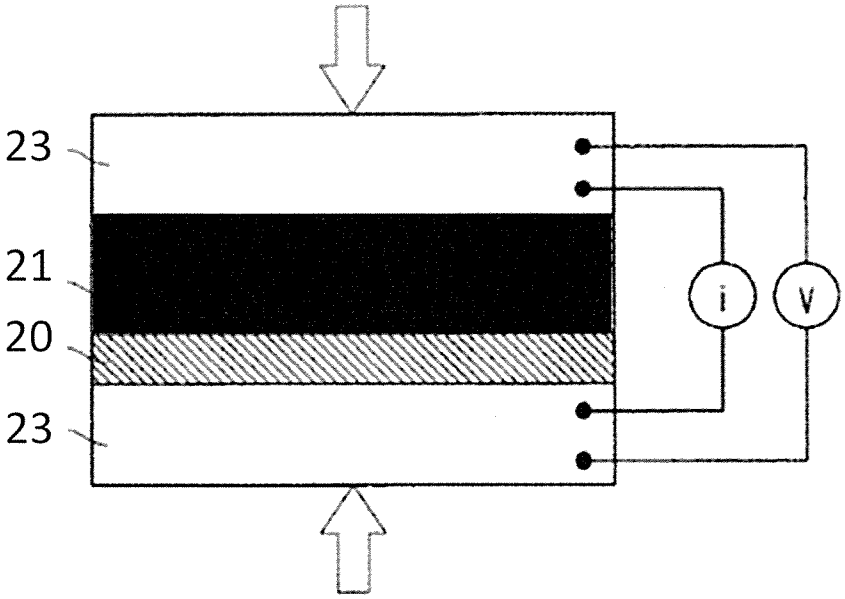
[図5]



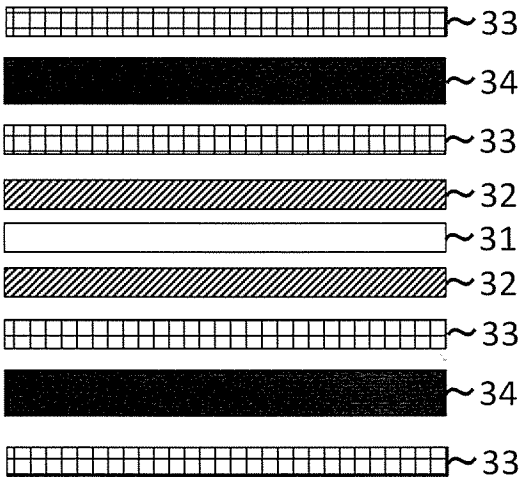
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/048060

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B32B 15/08(2006.01)i; H01M 8/021(2016.01)i; H01M 8/0213(2016.01)i; H01M 8/0221(2016. 01)i; H01M 8/0223(2016. 01)i; H01M 8/10(2016.01)n
FI: B32B15/08 Z; H01M8/021; H01M8/0213; H01M8/0221; H01M8/0223; H01M8/10 101

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)
B32B15/08; H01M8/021; H01M8/0213; H01M8/0221; H01M8/0223; H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922–1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971–2020
Registered utility model specifications of Japan	1996–2020
Published registered utility model applications of Japan	1994–2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2017/051810 A1 (NIPPON STEEL & SUMITOMO METAL CORPORATION) 30.03.2017 (2017-03-30) claims, paragraphs [0033], [0045]-[0053], examples	1-8
A	WO 2018/043285 A1 (NIPPON STEEL & SUMITOMO METAL CORPORATION) 08.03.2018 (2018-03-08) claims, paragraphs [0153]-[0193]	1-8
A	JP 2000-294256 A (SUMITOMO METAL INDUSTRIES, LTD.) 20.10.2000 (2000-10-20) claims, comparative examples	1-8
A	JP 2005-089780 A (NIPPON STEEL CORP.) 07.04.2005 (2005-04-07) claims 1, 6, 7, paragraph [0039], examples	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family 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 application or patent 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
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
12 February 2020 (12.02.2020)	25 February 2020 (25.02.2020)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/048060

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-166276 A (JFE STEEL CORPORATION) 23.06.2005 (2005-06-23) claims, examples	1-8
A	US 2017/0149036 A1 (SALZGITTER FLACHSTAHL GMBH) 25.05.2017 (2017-05-25) claims 16, 19, 21	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2019/048060

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2017/051810 A1	30 Mar. 2017	US 2018/0269496 A1 claims, paragraphs [0049], [0089], [0097], [0198]-[0229] CN 108028395 A	
WO 2018/043285 A1	08 Mar. 2018	JP 6278172 B1	
JP 2000-294256 A	20 Oct. 2000	JP 3097690 B1	
JP 2005-089780 A	07 Apr. 2005	KR 10-2005-0027161 A CN 1613986 A	
JP 2005-166276 A	23 Jun. 2005	(Family: none)	
US 2017/0149036 A1	25 May 2017	WO 2015/197412 A1 EP 3161175 A1 DE 102014009534 A KR 10-2017-0020811 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2019/048060

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B32B 15/08(2006.01)i; H01M 8/021(2016.01)i; H01M 8/0213(2016.01)i; H01M 8/0221(2016.01)i; H01M 8/0223(2016.01)i; H01M 8/10(2016.01)n
FI: B32B15/08 Z; H01M8/021; H01M8/0213; H01M8/0221; H01M8/0223; H01M8/10 101

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

B32B15/08; H01M8/021; H01M8/0213; H01M8/0221; H01M8/0223; H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2017/051810 A1 (新日鐵住金株式会社) 30.03.2017 (2017-03-30) 請求の範囲、[0033]、[0045]-[0053]、実施例	1-8
A	WO 2018/043285 A1 (新日鐵住金株式会社) 08.03.2018 (2018-03-08) 請求の範囲、[0153]-[0193]	1-8
A	JP 2000-294256 A (住友金属工業株式会社) 20.10.2000 (2000-10-20) 特許請求の範囲、比較例	1-8
A	JP 2005-089780 A (新日本製鐵株式会社) 07.04.2005 (2005-04-07) 請求項１、６及び７、[0039]、[実施例]	1-8
A	JP 2005-166276 A (ＪＦＥスチール株式会社) 23.06.2005 (2005-06-23) 特許請求の範囲、実施例	1-8
A	US 2017/0149036 A1 (SALZGITTER FLACHSTAHL GMBH) 25.05.2017 (2017-05-25) Claims 16, 19 and 21	1-8

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊ 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
12.02.2020	25.02.2020

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
鶴　剛史 4S 4670

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2019/048060

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2017/051810 A1	30.03.2017	US 2018/0269496 A1 Claims, [0049], [0089]-[0097], [0198]-[0229] CN 108028395 A	
WO 2018/043285 A1	08.03.2018	JP 6278172 B1	
JP 2000-294256 A	20.10.2000	JP 3097690 B1	
JP 2005-089780 A	07.04.2005	KR 10-2005-0027161 A CN 1613986 A	
JP 2005-166276 A	23.06.2005	（ファミリーなし）	
US 2017/0149036 A1	25.05.2017	WO 2015/197412 A1 EP 3161175 A1 DE 102014009534 A KR 10-2017-0020811 A	