平成２０年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「燃料電池用セパレータの長寿命化、低コスト化に向けた金型技術、金属プレス技術、めっき技術の高度化研究開発」

成果報告書

平成21年3月

委託者　関東経済産業局

委託先　財団法人長野県テクノ財団

目　　次

第１章	研究開発概要	1p
１－１	研究開発の背景・研究目的及び目標	1p
１－２	研究体制（研究組織・管理体制、研究者名簿、協力者）	1P
１－３	成果概要	3p
１－４	当該プロジェクト連絡窓口	4p
第２章	難加工材料のプレス成形技術の確立	5p
２－１	セパレータ用金属材料の候補選定	5p
２－２	セパレータ形状向き金型の検討、開発設計、評価	16p
２－３	精密プレス成形法の検討と成形トライ	17p
２－４	薄板プレス成形品精密測定技術の確立	18p
第３章	低コスト成形法	27p
３－１	低コスト成形法の検討	27p
第4章	高機能めっき技術	28p
４－１	直接めっき法の検討・実験・試作	28p
４－２	複合めっき法の研究開発	29p
４－３	部分めっき法の研究開発	30p
４－４	めっき品の耐久性評価・検討	30p
第５章	金属セパレータ評価	31p
５－１	燃料電池セパレータ設計	31p
５－２	燃料電池セパレータ性能評価	31p
５－３	燃料電池スタック性能評価	32p
５－４	燃料電池セパレータ耐久性評価	33p
第６章	全体総括	33p
６－１	成果概要	33p
６－２	今後の展望	34p

第1章　研究開発概要

１－１　研究開発の背景・研究目的及び目標:

1）　研究の必要性、社会的背景

定置型燃料電池は、耐久４万時間が必要とされる。現状の発電スタックには、切削加工による炭素系セパレータが主に利用されているが、高価で燃料電池コストの1／2を占めている。また、プレス成形・焼成による炭素系セパレータも開発されつつあるが、いずれも脆性材料であり、組み立て時の破損や運転時の熱・機械衝撃にも弱い。定置型燃料電池の普及には安価・大量生産が可能で、機械的強度及び耐久性に優れたセパレータの開発が急務であった。

2）　研究の目的:

定置型燃料電池の主要部品であるセパレータの大幅なコスト低減と寿命向上を図るため、「耐食性は良いが加工が非常に難しい金属材の精密プレス加工技術の高度化」と「電気導電特性と耐久性の更なる向上を狙いとしためっき技術の高度化」を確立し、新しいプレス・めっき複合生産システムを実現する。

3）　研究の目標

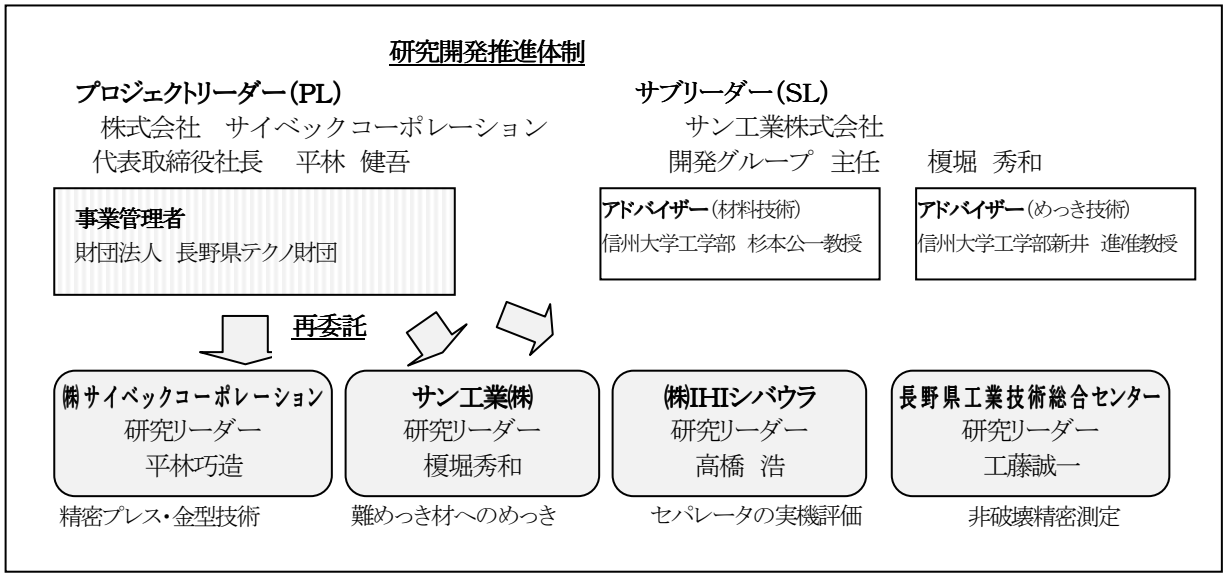
セパレータへの要求事項を解決するため、素材を難加工材のチタンのプレス成形と、電気導電性・長期耐久性を担うためのめっきを行い、大幅なコスト低減と寿命向上を図る。精密プレス加工技術、難めっき材への直接貴金属めっき技術、量産に向けた新しいプレス・めっき複合生産システムの開発により、耐久４万時間、１枚当たりのコストを数百円レベルのセパレータに目途をつける。

4）　研究の概要:

将来の新エネルギー機器として期待されている定置型燃料電池の大きな課題である長寿命化・低コスト化に向けて、コスト比重の高いセパレータを金属化し、大幅なコスト低減と寿命向上を図るため、耐食性は良いけれど「加工が非常に難しい金属材の精密プレス加工技術の高度化」と「電気導電特性と耐久性の更なる向上を狙いとしためっき技術の高度化」を確立し、新しいプレス・めっき複合生産システムを実現する。

１－２. 研究体制:（研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者）

（1）研究組織及び管理体制:



（2）管理員及び研究員:

【事業管理者】　財団法人　長野県テクノ財団　アルプスハイランド地域センター

氏名	所属・役職	管理主担当
山本　勝	事務局長	全般
山田　英行	プロジェクト担当	管理担当
須山　聰	テクノコーディネータ	技術担当

（3）研究者氏名・研究主担当

株式会社 サイベックコーポレーション

氏名	所属・役職	主研究実施項目
平林 健吾	代表取締役社長	[1] [2]
平林 巧造	専務取締役 （開発研究担当）	[1] [2]
熊崎 武	執行役員（開発研究担当）	[1] [2]
笹川 淳	バリューテクノロジー研究所 課次長	[1] [2]
大久保 匡浩	バリューテクノロジー研究所 係長	[1] [2]
藤澤 健	バリューテクノロジー研究所 主任	[1] [2]
田中 謙一	バリューテクノロジー研究所 主任	[1] [2]
小岩井 豊	バリューテクノロジー研究所 AD	[1] [2]
山根 正寛	バリューテクノロジー研究所 研究員	[1] [2]
白鳥 達也	バリューテクノロジー研究所 研究員	[1] [2]
長田 直樹	品質保証部 課長	[1]
一之瀬 勝良	技術部NC課 課次長	[1]
宮下 知郷	技術部NC課 主任	[1]
池田 祐一	技術部NC課 主任	[1]
大門 秀樹	技術部金型課 課長	[1] [2]
中村 良次	技術部金型課 主任	[1] [2]

サン工業株式会社

氏名	所属・役職	主研究実施項目
榎堀 秀和	開発課 課長	[1] [3]
河合 陽賢	開発課 研究員	[3]
足立 弘通	開発課 研究員	[3]

株式会社IHIシバウラ

氏名	所属・役職	主研究実施項目
高橋 浩	研究開発室 室長	[1] [4]
関口 重幸	研究開発室 開発G 研究員	[1] [4]
三上 貴士	研究開発室 開発G 研究員	[4]

長野県工業技術総合センター

氏名	所属・役職	主研究実施項目
工藤 誠一	材料技術部門 研究企画員	[1] [4]
風間 武	材料技術部門 設計支援部 研究員	[1]
小杉 俊	材料技術部門 設計支援部 研究員	[1]
滝沢 龍一	材料技術部門 設計支援部 研究員	[1]
宮嶋 隆司	材料技術部門 設計支援部 主任研究員	[1]
滝沢 秀一	材料技術部門 金属材料部 部長	[1]
安澤 真一	材料技術部門 金属材料部 研究員	[1]
傳田 直史	材料技術部門 金属材料部 技師	[1]
石坂 和明	材料技術部門 製品科学部 研究員	[1]
古畑 肇	材料技術部門 材料化学部 研究員	[1]
畔上 達紀	材料技術部門 材料化学部 研究員	[1]
尾坂 一	精密・電子技術部門 研究企画員	[1] [4]
北野 哲彦	精密・電子技術部門 測定部 研究員	[1]
児野 武郎	精密・電子技術部門 測定部 技師	[1]

（4）他からの指導・協力者名 及び 指導・協力事項

氏名	所属・役職	指導項目
杉本 公一	国立大学法人信州大学工学部 教授	アドバイザー[1]
新井 進	国立大学法人信州大学工学部 准教授	アドバイザー[3]

１－３　成果概要（第三年次）:

総括:

第一年次は、材料候補選定、金型開発、成形トライ、めっき実験等を実施し、燃料電池発電に成功した。

第二年次は、「耐食性の大幅向上」と「生産コストの大幅低減」を重要テーマにおき、発電性能の向上、プレス金型改造・成形実験、各種めっき実験、機能実験、測定法研究等に取り組み、耐食性の大幅な向上に対し手ごたえを得ることが出来た。

第三年次は、セパレータの低コスト化、長期耐久性、発電試験での安定性等の当初目標を達成すべく、部分めっき技術、プレス技術の高度化、各種の検討を行った結果、耐久40000時間が予測され、かつ量産時点で1枚当たり1000円以下が見積もれる等、目標達成のための明確な目途を付けることができ、ミニサイズではあるがプレス・部分めっき複合生産システムを実証するなど、燃料電池実用化へ向けて大きな成果が得られた。

【1】 難加工性材料のプレス成形技術の確立:

【1-1】セパレータ用金属材料の候補選定:　＜研究実施番号①＞

一年次:セパレータ材料にチタン、特殊ステンレス鋼DSN9、ステンレス鋼SUS304を選定し、特に金めっきチタン材を候補に各種評価試験を実施した。

二年次:詳細な材料試験、引張強度試験、エリクセン試験等によりセパレータ用金属材料を評価し、更にチタン材などの成形性について流路パターンに近い形状でシミュレーションにより成形性を検討した。燃料電池の運転特性向上に、各種検討データをフィードバックしつつ、金属材料候補の選定を終了した。

【1-2】セパレータ形状向き金型の検討、開発設計、評価:　＜研究実施番号②＞

一年次:プレス性を考慮したセパレータを設計し、金型構造や部品加工方法を検討し、金型を開発した

二年次:燃料電池の高負荷運転における発電不安定性を解決するため、ガス流路パターン形状の変更を検討し、成形困難が予測される個所の金型製作プロセスの見直しを図った。シミュレーションで成形性を確認しつつ、金型改造図面を確定した。金型の形状変更のために、マシニング加工条件、金型の表面粗度向上等様々な検討を行った。

三年次:量産性を考慮に入れた順送金型の開発、セパレータ形状に対する金型の最適化、燃料電池運転特性の向上のための課題解決を図った。

【1-3】精密プレス成形法の検討と成形トライ:　＜研究実施番号③＞

一年次:成形加工機を、剛性や精度・性能を考慮して選定すると共に、成形加工条件等を機械制御も含めて検討しつつ成形トライをし、セパレータの特性を燃料電池発電試験で実証した。

二年次:単セル燃料電池運転試験では、ほぼ十分な形状であることが実証された。更に成形精度を高めるためプレス条件を模索しつつ、測定と解析結果を参考に、成形法の高度化を図った。

三年次:スタック性向上のために、金型精度向上、機械制御も含めた検討・実験を繰り返し実施し、最良の条件・方法を導き出した。チタンは、プレス加工でクラックが発生したり、弾性変形による材料戻りで寸法が確保できなかったりと問題の多い材料であるが、金型精度の高度化と下死点精度の良い超高剛性プレス機を使用することで、セパレータ120cm2サイズに対し、平坦度0.27mm以内、流路高さ±10μm以内、プレス上がりの表面粗さRa＝0.09μm以内、減肉率20％以内で、スタック性の良好なセパレータのプレス成形を実現し、目標精度を達成した。

【1-4】薄板プレス成形品精密測定技術の確立:　＜研究実施番号④＞

一年次:セパレータの平坦性や偏肉度測定の基礎実験を行い、非接触計測が可能なことを確認した。

二年次:セパレータの平面度を非接触で測定し、材質やセパレータの流路形状、熱処理の違いによる平坦性の評価を行った。サンプル反転治具や表裏の計測データから厚さを算出するソフトを考案・作成し、板厚・偏肉の算出を可能とした。従来の方法との比較測定で有効性を確認した。

スタック時にプレートに押さえつけられたセパレータがどのような形状になるか測定する方法を検討した。セパレータにプレートに代わり被せたガラス板に力を加え、ガラス板越しにセパレータ表面を長焦点型のレンズを使用し、測定することでスタック時の形状の非接触把握が可能となった。これらにより平坦度や品質向上に有効な支援が可能となった。

三年次:プレス部品の肉厚測定を約0.01mmの分解能で迅速に計測できるよう検討した結果、薄板成形品の平坦度測定に非接触レーザー変位計と三次元測定機を組み合わせた測定法を確立できた。板厚測定に、専用治具の設計・製作、表裏データのXZ平面座標変換、板厚算出プログラムの開発を行い、特に、低反射ガラスで試料を挟むことで反転時の変形を抑えつつ、このガラスを基準面に用い、ノイズ成分をガウシアンフィルタで除去し、5μmの精度で非破壊厚み測定を可能とした。

【2】低コスト成形法　（2年度以降の研究）　＜研究実施番号⑫＞

二年次:全工程の試作トライを行いつつ、低コスト化、金型工数の削減、工程内不良の削減等の検討を行った。

三年次:低コスト化には少ない設備で高速に安定したものづくりを行える順送プレス連続運転が必要不可欠である。実際に試作用順送金型を製作し、連続運転での材料搬送技術の検証、加工中の金型部品の摩耗評価等、量産を想定した研究を行った結果、順送プレストライに成功し、金型の磨耗抑制策を見出す等、量産への目途を付け、目標はほぼ達成した。

【3】高機能化めっき技術の研究開発:

【3-1】直接めっき法の検討・実験・試作　＜研究実施番号⑤＞

一年次：難めっき材のチタン等へのダイレクト金めっきに成功し、このセパレータで発電運転に成功したが、密着性や表面状態に依存する燃料電池高負荷運転時の不安定（フラッティング）という課題が残った。

二年次：密着性の良い直接金めっき法を研究し、前処理工程等の工夫によりチタンの再酸化を押さえつつ、非常に密着性の良い金めっきを得た。得られた成果をセパレータへ適用し、燃料電池高負荷発電での不安定幅を 1／2 以下に低減できた。更に、高電圧大電流電解によるセパレータ高速劣化試験を考案実施し、短時間での長期耐久性の推定を可能とし、耐久性向上対策・効果の迅速な把握が可能となった。

三年次：燃料電池の耐久、信頼性向上、低コスト化に向け、前処理方法、めっき浴等、めっきにかかる各種課題の最適化を図った結果、ダイレクト金めっき、ダイレクトロジウムめっきを安定した密着性で処理することが可能となった。加速試験結果から、セパレータの高寿命化と低コストにはロジウムめっきが適していて、推定 40000 時間の耐久を、0.3μmのロジウムめっきで達成できる可能性を見出した。

【3-2】複合めっき法の研究開発：　＜研究実施番号⑥＞

一年次：セパレータ耐食性能等の向上のために撥水性に優れた PTFE 複合金めっきの開発を行い実現できた。

二年次：セパレータに対し新たな複合表面処理、カーボンナノチューブ（VGCF）複合電着塗装の開発を行い、導電性のある電着塗装を開発した。また、PTFE 複合金めっきの撥水性がセパレータ性能に与える影響を確認するため、チタンセパレータへの PTFE 複合めっきを実施した。

三年次：セパレータに金PTFE複合めっき 2μmを形成し発電特性を評価したが、撥水性に伴うガス流路内への粗大水滴形成と流路閉塞により発電電圧の著しい変動が起こったのでセパレータへの適用、開発は中止した。

【3-3】部分めっき法の研究開発：＜研究実施番号⑦＞

一年次：種々のマスキング材を検討し、部分金めっきに成功した。

二年次：フォトリソグラフィ技術等によりステンレス部分金めっき材のプレス成形を行い、凸部分のみ部分金めっきしたセパレータを得て、燃料電池としての電気特性の評価を行い全面金めっき品とほぼ同等なことを確認した。チタン金めっき処理に耐えられる貼り付けマスキングシート法でチタン部分金めっきに成功し、プレス成形し部分金めっきチタンセパレータを得た。これにより低コストで耐食性に優れたセパレータ開発への手がかりを得られた。

三年次：燃料電池特性に適合する部分金めっき法の完成度を高めることを検討した結果、低コスト化が可能なマスキングシート法の有効性を確認し、得られたチタン部分めっき・プレスセパレータで充分な発電性能を得た。

【4】金属セパレータとしての評価：

【4-1】燃料電池発電試験、劣化状態調査：＜研究実施番号⑧＞

一年次：金めっきチタンプレスセパレータで単セル燃料電池発電を実施し、従来の80％程度の発電に成功した。

二年次：旧セパレータにて 5 セルショートスタックを作成し、スタック成立性を確認した。単セル連続耐久性評価発電試験装置を完成し、連続運転耐久試験を 100 時間行った後、分解確認調査を行った。

　運転時の発電安定性等の性能向上を目指し、ガス流路を変更したセパレータによる単セル燃料電池発電試験で発電安定性の向上を確認した。新セパレータにて連続発電試験と 3 セルショートスタック発電試験に成功し、ガスラインにおける圧損を約半分に低減すると共に、発電の不安定性（フラッティング）を約 1/5 と大幅に向上させた。500時間耐久運転試験の範囲であるが、セパレータの耐食性を確認できた。

三年次：燃料電池用の低コスト、高信頼性、高耐久性セパレータの完成と燃料電池の長期安定運転を目指し、大幅なコスト低減の可能性があるロジウムめっき処理チタンセパレータを運転評価し安定した発電と 350 時間の発電耐久性が確認できた。

１－４　当該プロジェクト連絡窓口：

管理団体　：財団法人　長野県テクノ財団　（アルプスハイランド地域センター）
担当　　：山本勝（全般管理）、須山聰（技術担当）
住所　　：松本市島立1020　松本合同庁舎内
電話　　：0263－40－1780、ファックス：0263－47－8904

第2章　難加工性材料のプレス成形技術の確立

２－１　セパレータ形状向き金型の検討、開発設計、評価

２－１－１　セパレータ用金属材料の引張強度試験

（1）　概要

セパレータ用金属材料の機械的特性を材料強度試験機により把握し、各材料の基本的機械特性を明らかにした。

（2）　目的

金属薄板の引張強度、縦弾性係数などの機械的特性を求め、加工条件の算出やシミュレーションで使用するための基礎データ収集を図る。

（3）　方法

試験材料は、チタン材料としてチタン350（圧延ロール幅350mm、板厚0.1mm）、チタン300（圧延ロール幅300mm、板厚0.1mm）、TR270C、TR270C－H、参考材料としてSUS304、SUS316LとDSN9[(1)]　の機械的特性について試験した。

試験片の形状は掴み部を20mmとし、平行部は約60mmのダンベル型、図2-1-1-1及び図2-1-1-2に示すとおり、試験中の荷重と歪みは、それぞれ材料試験機のロードセルと試験片に取り付けた歪みゲージにより計測を行った。計測では、外部出力端子からアナログ入力ターミナルを介して、パソコンに記録した。材料の試験速度は2mm/sとした。計測された電圧を応力と歪みに変換し、機械的特性の算出を行い、縦弾性係数、0.2%耐力、引張強度及び伸びの機械的特性を得た。

今回用いた材料には、降伏点が無いことから、応力歪み曲線を元に、縦弾性係数を求め、0.2%歪みをオフセットさせた位置から縦弾性係数に平行な線を引き、歪み応力線図との交点を0.2%耐力として代用した。

図2－１－１—1　材料試験機

図2－１－１－2　試験片

（4）　結果

表2-1-1-1に機械的特性データの平均値を、図2－１－１－3に応力－歪み線図を示す。弾性率については、チタン350及びチタン300ともにほぼ同一である。引張強度と耐力については、チタン350がチタン300のそれぞれ約2.4倍と約3.1倍であった。チタン300ではネッキング（断前のくびれ）が起きており、伸びもチタン300が圧倒的に大きい。試験結果から、各企業で入手可能な材料であるTR270C及びTR270C-Hは、それぞれチタン300とチタン350に近いことが分かった。

（5）　考察

耐力が大きい方が加工力を必要とすることから、DSN9がもっとも大きな加工力が必要で、SUS、チタン合金の順に加工しやすくなる。チタン350及びチタン300は、同じ純チタン材料でも大きく性質が異なる。チタン300は、伸びと加工硬化の影響が大きい材料で、セパレータのように複雑な流路の加工では、プレス成形時の割れやしわが起きにくく、スプリングバックは小さいと言える。その反面、強度は、チタン350に較べると半分以下のため、セパレータをスタックに組み立てる際の締め付け力によって流路形状が変形するなどの問題が考えられるので、この材料の場合は、セパレータの組立時の締め付けトルクの適正化が必要であった。

参考文献

（1）　　大同特殊鋼株式会社, 超高窒素オーステナイト鋼

表 2-1-1-1　引張試験結果

		縦弾性係数[GPa]	0.2%耐力[MPa]	引張強度[MPa]	伸び[%]	備考
ﾁﾀﾝ 350	圧延	98	630	741	3	
	直角	101	660	736	3	
ﾁﾀﾝ 300	圧延	101	185	322	28	
	直角	98	231	306	29	
TR270C	圧延	91	175	265	26	直角方向サンプル採取不可。
TR270C-H	圧延	101	670	753	2.7	
SUS316L	圧延	173	1200	1221	2.2	
SUS304	圧延	185	1030	1283	–	H18 試験 伸び測定データなし。
DSN9	圧延	168	1430	1670	–	
	直角	187	1400	1770	–	

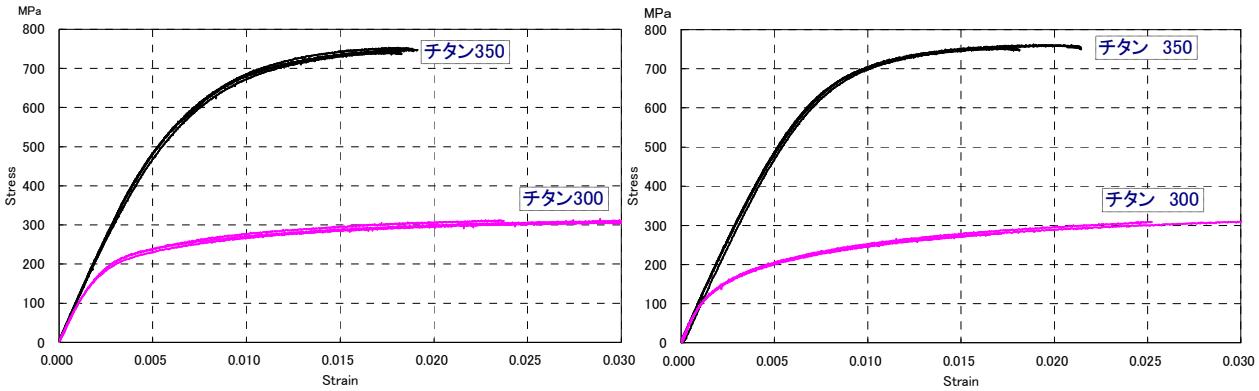


図2－1－1－3　応力－歪み線図(右:圧延方向、左:直角方向)

2－1－2　セパレータ用金属材料のエリクセン試験

(1)　概要

セパレータ用難加工性材の塑性変形特性を把握するため JIS Z 2247:2006 エリクセン試験を行った。

(2)　目的

セパレータ用難加工性材料のエリクセン値を求めることで、各材料のプレス成形性を把握することを目的とした。エリクセン試験は JIS Z2245 :2006 によった。規格は、厚さ 0.1mm～2mm、及び幅 90mm 以上の金属薄板の張出し加工時の塑性変形特性を評験する方法として規定されている。

(2)　方法

エリクセン試験には、万能塑性加工試験装置を使用した。試験では、試験片をしわ押さえとダイスとの間に締め付け、試験片に球形の端部をもったパンチを押し込み、貫通割れが発生するまでくぼみを形成することで行った。パンチの移動距離が、測定するくぼみの深さを示し、エリクセン値となる。なお、コンピュータ制御された試験装置を使用する場合は、試験の終点近くで速度を下げる必要はなく、試験結果も、荷重とパンチ変位との線図から求めてもよいことになっているため、今回は、この方法でエリクセン値の算出を行った。

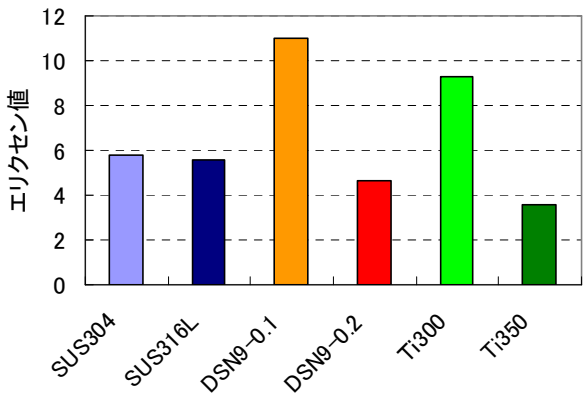


図2－1－2－1　エリクセン値

(4)　結果

今回の試験により得られた荷重－パンチ変位の線図から導出した結果を図2－1－2－1に示す。

(5)　考察

セパレータとして利用される難加工性材料について、流路成形のプレス加工指針を得るためにエリクセン試験を実施した結果を図2－1－2－1に示す。DSN9 の板厚 0.1mm は 0.2mm に比べ、エリクセン値が 2.4 倍高く、成形性が良いと言える。また、チタン 300 はチタン 350 に比べ、エリクセン値が約 2.6 倍高く、成形性の高い材料であった。

2－1－3　セパレータ金属材料の耐食性試験

(1)　概要

DSN9材、SUS304材及びTi材の金めっきの有無による耐食性を評価するため、溶出元素測定及び試験前後の重量変化測定を実施する。

(2)　目的

DSN9 材、SUS304 材及び Ti 材に金めっきしたサンプルとめっきしないサンプルについて、希硫酸に浸漬した腐食試験を実施し、金めっきの耐食性を評価した。

(3)　方法

DSN9 材、SUS304 材及び Ti 材に金めっきしたサンプル及びめっきしないサンプルを各 3 枚準備し、サンプルサイズは、50×50×t 0.1mm（DSN9 材は t0.2 mm）、腐食試験のための試験液は、試薬特級 98%硫酸を蒸留水で希釈して、pH 2.09（11.8℃）とした。

試験片を 1 枚ずつガラスビーカーに移し、純水→エタノールの順で 5 分間超音波洗浄を行い、オーブン中で 80℃，12 時間乾燥した後、放冷したものをサンプルとした。腐食試験液 150ml を入れたプラスチック製容器に、試験片を浸漬し、容器の蓋をし、全20個の容器を恒温槽に入れて、80℃，168 時間保持した。ブランクとして、サンプルを入れずに試験液と容器のみのものを 2 個用意した。恒温試験終了後、溶出元素測定を行うため、容器を室温まで放冷し、200ml メスフラスコに移して純水にて定容とし ICP 測定を行った。測定は、市販の標準液を希釈して作成した検量線法によった。サンプルの腐食量評価のため、腐食試験前・後の重量変化を測定した。

(4)　結果

図2－1－3－1に Fe の溶出結果を示す。

(5)　考察

腐食試験の結果、鉄（Fe）の溶出元素測定では DSN9 材、SUS304 材及びチタン Ti 材の各サンプルともに、金めっきしないものは、金めっきしたものに比べて Fe の溶出が著しく多かった。金（Au）めっきをしたものについては、全てのサンプルにおいて測定感度以下で、溶出は認められなかった。金めっきによって母材の鉄の溶出をある程度抑えることができた。チタンでは、全ての試料が非常に低濃度で、検出評価が困難で有効なデータが得られなかった。重量変化を測定したが、チタン材料以外は、変化が計測されなかった。

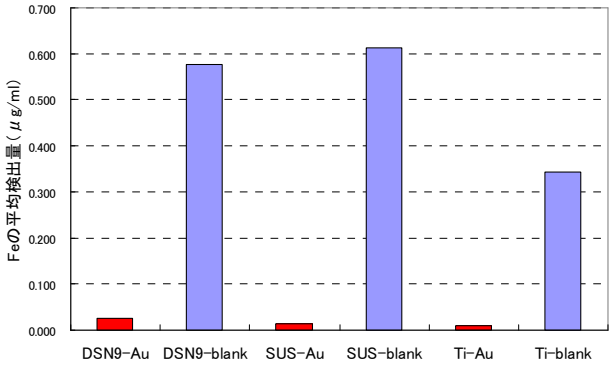


図　2－1－3－1　Fe平均溶出

金めっきをしないチタンは、わずか重量が増加したが、表面が、試験後赤く変色していたことから、重量増の原因に酸化が考えられた。

2－1－4　セパレータ金属材料への金めっき密着性：スクラッチ試験

(1)　概要

オーステナイト系ステンレス鋼SUS304、窒素鋼DSN9及び純チタンの各セパレータ材料に金めっきを施した試料について、密着性を評価するためスクラッチ試験を実施した。試験材料基板が薄いため、通常のスクラッチ試験条件より厳しい条件での試験となったが、どの金めっき膜も密着性は良好で、試験範囲内では、めっき膜の剥離は計測されなかった。

(2)　目的

本研究開発では金めっき層を形成した後にプレス加工を施すため、金めっき層と基板との密着性は十分でないと電極としての機能は果たせない。プレス加工で密着性等を確認することは当然であるが、事前に金めっきの良否を確認するため、スクラッチ試験を実施し、想定している材料と比較材料で違いがあるのか確認することとした。

(3)　方法

スクラッチ試験にCSEM自動スクラッチ試験機を使用した。試験加重を 0～100N まで連続的に負荷し、被膜の剥離、破壊等で発生するAEノイズを計測し、その時の臨界加重をLqとした。膜厚、基板硬度との関係で、スクラッチを行うためのダイヤモンドコーン半径を 200μm、400μm 及び 800μm から適切なダイヤモンド厚子を選択する。目安としてダイヤモンドコーン半径は、コーティング膜厚の 10～20 倍が適切で、コーティング膜が厚い場合、ダイヤモンドコーンの半径は、基板に充分な変形を起こすに足る大きさでなければならないとされており、それに伴い、負荷加重が理論上、半径の2乗に比例して増えていく。

今回の実験に供したプレス加工のための基板の厚さは、SUS304：0．2mm、純チタン（Ti）：0．1mm、DSN9：0．2mmで

あり、基板は塑性加工可能なため比較的柔らかく、スクラッチ試験によって板裏までスクラッチ痕による塑性変形が発生してしまう。そのため、試験前に鋼板（厚さ2．0mm）に両面テープで接合し固定して測定した。また、ダイヤモンドコーンは200μm、400μm、800μmを、それぞれを使用し、被膜の剥離が確認できる条件を探索した。

（4） 結果

図2－1－4－1スクラッチ試験チャートデータからはTi材ではAEノイズが大きかった。図2－1－4－2にTi板金めっきのスクラッチ痕の顕微鏡写真を示す。深さ、幅とも大きいが、基板が0．1mmと薄く基板の硬さが柔らかいためと思われる。

（5） 考察

スクラッチ痕の顕微鏡観察からは、めっきの剥離は観察されなかった。

また、AEチャートからはSUS304とDSN9材に大きな違いは見られなかったが、スクラッチチャートとスクラッチ痕の顕微鏡観察からは、DSN9材への金めっき品が3種類の中では、最も良好と考えられる。

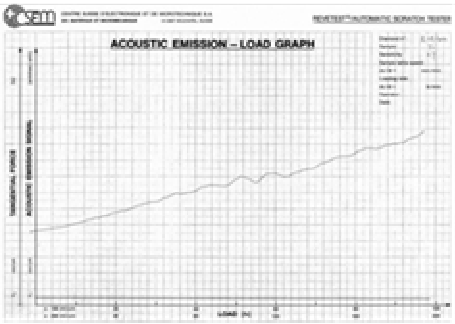


図2－1－4－1 スクラッチ試験チャート

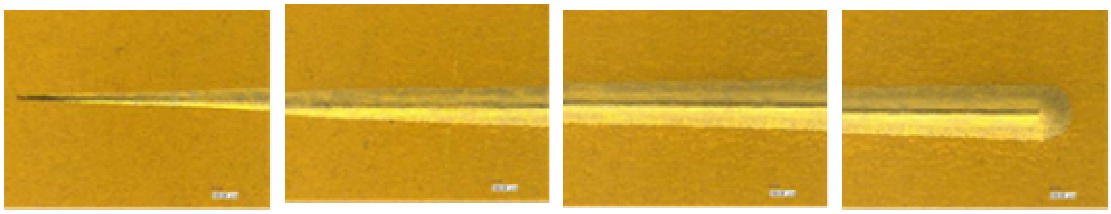


図2－1－4－2 スクラッチ痕の顕微鏡写真（Ti基板金めっき）

2－1－5 セパレータ用金属材料の金属組織・硬さ試験

（1） 概要

燃料電池用セパレータは、スタックに組み立てた時の寸法やクリアランスが重要であり、加工時に生じるセパレータの反り、歪みが製品の性能に大きく影響する。金属材料は、熱処理を行うことで組織の状態が変化し、硬さも変化することから、純チタン材の反り・歪みの状態を改善するための熱処理条件、およびチタン材の種類の違いによる影響について検討した。

（2） 目的

プレス成形されたセパレータに数通りの熱処理（焼鈍処理）を施し、それぞれの条件およびチタン材の違いにおける硬さおよび組織の状態を把握することを目的とした。

（3） 方法

試験材料は、純チタン材料としてチタン350（圧延ロール幅350mm、板厚0.1mm）とチタン300（圧延ロール幅300mm、板厚0.1mm）とTR270CそしてTR270C－Hの4種類の材料について硬さと組織試験を行った。また、プレス成形しにくく、加工精度が出しにくいチタン350材において焼鈍と硬さの影響を調べた。

（3）－1 硬さ試験

4種類のチタン材について違いを比較検討した。プレス成形後のセパレータについて加工硬化の違いを明らかにするためチタン300とチタン350で断面の硬さを測定した。測定箇所を図2－1－5－1に示す。試験片は供試品を約25mm×10mm角に切り出し、樹脂埋込んで切出し、加工硬化部分を取り除くよう研磨しバフ研磨仕上げをした。

純チタン材のTR270CとTR270C－Hについてプレス成形前の硬さも測定することとした。試験片は圧延ロールより20mm角に切り出し作製した。圧延方向の違いにより硬さが異なることが予想されたため、材料の圧延方向（RD）に対し①平行②垂直の2種類の試験片を用意した。試験にはマイクロビッカース硬さ試験機を用い、0.2452N（25g）の試験力にて試験を行った。試験力は、JIS Z 2244によった。焼鈍は、チタン350についてプレス成形されたセパレータを幅約25mmの短冊状に切断し、アルミナトレーに挟んで真空中にて3時間加熱保持後炉冷した。焼鈍条件は、熱処理なし、342℃、430℃、525℃、630℃、725℃、805℃の計7種類とした。

（3）－2 金属組織試験

硬さ試験時に作製した試料を用い、クロール液にて約10秒間腐食を行い、断面組織の観察を行った。

(4) 結果

表2－1－5－1に熱処理なし、630℃にて熱処理した試料の外観を、図2－1－5－2に熱処理温度の違いによる硬さの変化を示す。図2－1－5－3に材質の違いによる硬さ試験の結果を、表2－1－5－2、表2－1－5－3に断面組織を示す。プレス成形後の硬さはチタン350に比べ、チタン300の方が約10%高く、大きな加工を受けているR部は加工硬化の影響で、フラット部に比べ約15%高かった。

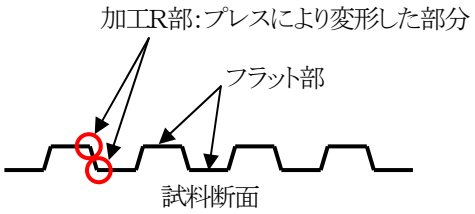
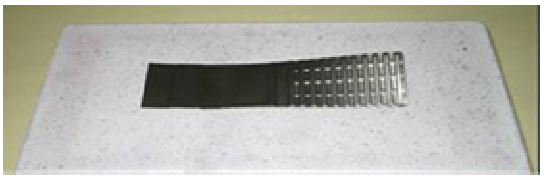
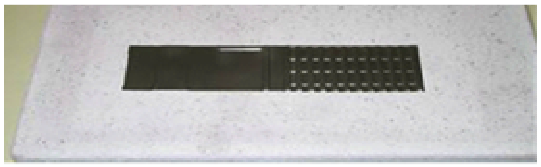


図2－1－5－1 硬さ測定箇所

表2－1－5－1 熱処理による外観の様子

処理温度	試験片の外観	備考
熱処理なし		切断時の応力により大きく歪んでいる
630℃		部分的な歪みもほぼ取れている

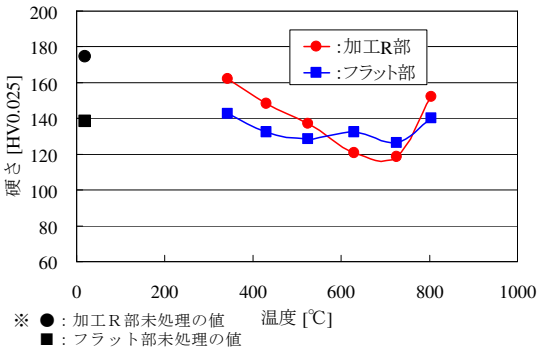
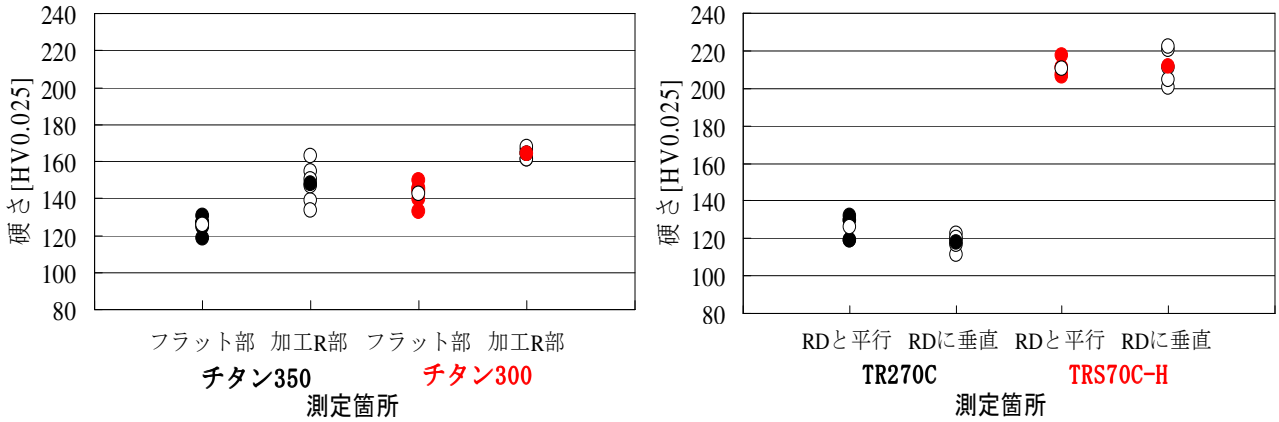


図2－1－5－2 熱処理温度の違いによる硬さの変化



(1)成形後　　(2)成形前

図2－1－5－3 材質の違いによる硬さ

金属組織は、チタン350に比べ、チタン300の方が平均結晶粒径が小さかった。純チタン材のTR270CとTR270C－Hのプレス成形前の硬さは、TR270Cに比べTR270C－Hの方が約73%高く、組織写真には圧延による方向性が見られたが、圧延方向と直角方向による硬さの違いはなかった。

(5) 考察

チタン350について、表2－1－5－1、図2－1－5－2から焼鈍処理を行うことにより、試料の反り、歪み、硬さが変化することを確認できた。この結果から、処理温度を630℃以上とすることで試料の反り、歪みを取り除けると考えられる。しかし、反り、歪みを除去することで材料が軟化してしまうことから、今後はどこまで反り、歪みを取り除く必要があるのか、必要な硬さについても検討を行う必要があると思われる。

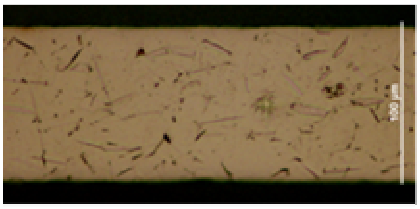
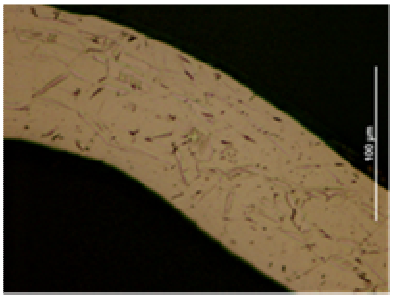
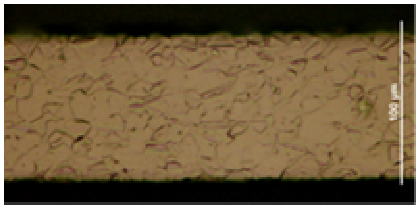
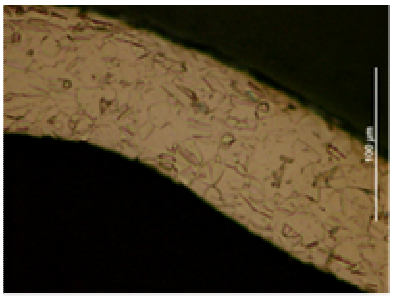
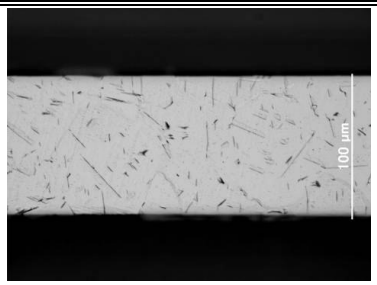
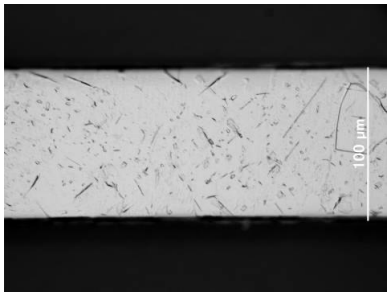
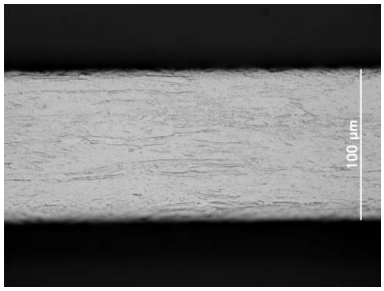
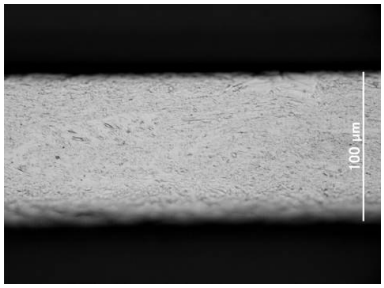
引張試験とエリクセン試験結果では、チタン350とチタン300では引張強度が約2.4倍チタン350が強く、また、エリクセン値では約 2.2 倍チタン300が大きいことから、チタン300のプレス成形はチタン350よりかなり良いことが示された。しかし、金属組織試験と硬さ試験は、この結果とは逆の値となっている。これは純チタン圧延材料が異方性材料であるためと、この2種類の

材料の結晶方位分布が異なるためと考えられる。

図2－1－5－3(2)に示すようにTR270Cより硬さが高いTR270C－Hは、圧延延伸組織が見られ、なましがされていないように、TR270Cは、圧延後のなましが行われ、方向性のない組織であるが強度は高くなかった。

セパレータ用の金属材料として、どこまで歪みを取り除く必要があるのか、また要求される硬さについて検討を行う必要があるが、TR270C－Hの圧延延伸組織が見られるような材料では、プレス成形時に大きな残留歪みが発生し、成形品の反りなどの原因となる。焼なましなどで加工ひずみを取り除き、方向性のない組織状態の材料を加工することが成形精度の向上に繋がると考えられる。

表2－1－5－2 断面組織(プレス成形後)

条件	フラット部	加工R部
チタン350		
チタン300		
条件	RDと平行	RDに垂直
TR270C		
TR270C－H		

2－1－6 セパレータ用金属材料と金型材の摩擦・摩耗特性

(1) 概要

セパレータ用金属材料の候補である純チタンと各種金型材との摩擦・摩耗特性の評価を行った。試験方法は3ピンオンディスク法を用いて摩擦係数と摩耗量の評価を行い、各種金型材料の違いと潤滑油の有無による摩擦・摩耗特性を明らかにした。

(2) 目的

純チタン材は難加工性材料であることが知られており、プレス打ち抜きでは金型の摩耗が大きいと言われている。そのため、各種金型材料と純チタン材との摩擦・摩耗特性を明らかにして、純チタン製金属セパレータのプレス成形における金型寿命向上を目的とした。純チタンと金型材との摩擦係数を明らかにすることでプレス成形シミュレーションの解析精度向上も目指した。

(3) 方法

試験方式は、3ピンオンディスク法とし、常温乾式(無潤滑)と潤滑方式、潤滑油は日本工作油(株)の打抜工作油G－6221Fを用いた。試験片は、ピン(φ5mm×長さ15mm、回転直径は32mm)を金型材料とし、ディスク(φ60mm×板厚4mm)は純チタン材を用いて試験を行った。試験材料には、金型材料4種類(超硬材3種類A, B, CとSKH40)、純チタンⅠ種材(板厚4mm)、試験条件は、加圧力:プレス打ち抜き時の側方力として5MPaに設定(加圧力約295N)、回転速度:60RPM(すべり速度は0. 1m／s)、すべり距離:100m(1mm／ストローク×10万回)、試験機には、摩擦・摩耗試験機を使用した。

図2－1－6－1に、試験機の外観および試験片のセッティングを示す。

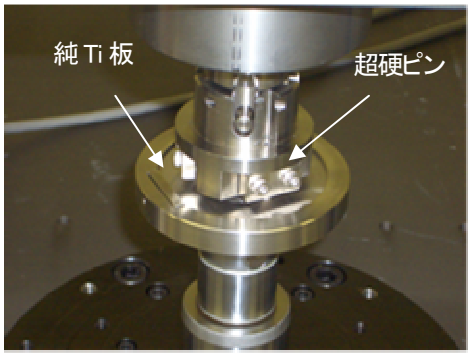
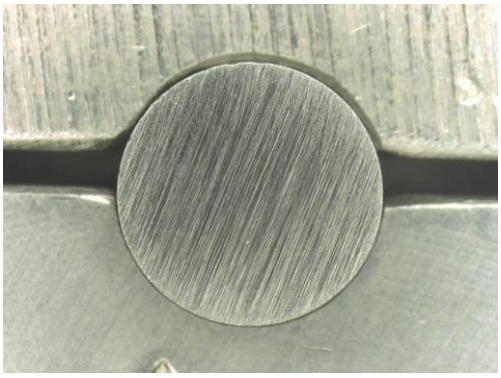


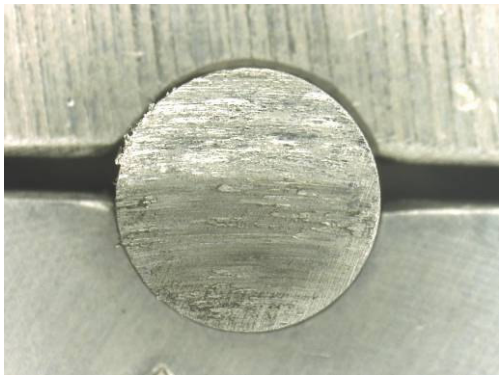
図2－1－6－1　試験機の外観と試験片のセッティング

(4)　結果

①無潤滑時のピン試験片の外観（金型材）



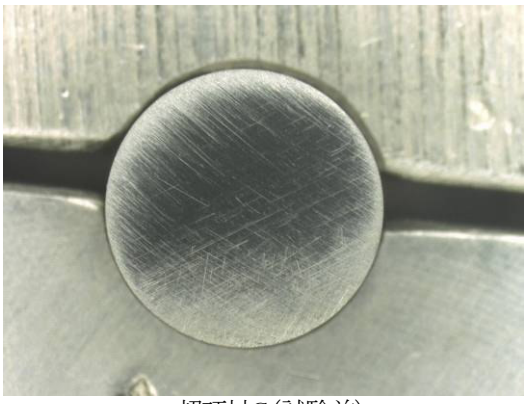
超硬材C（試験前）



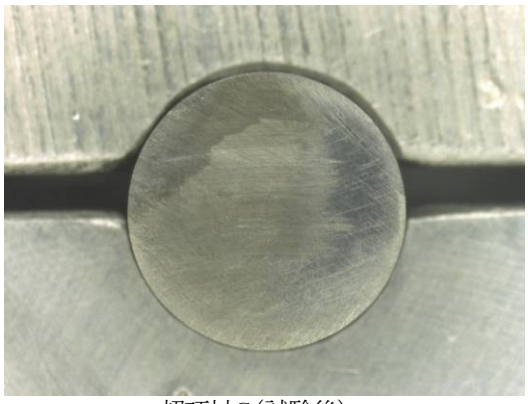
超硬材C（試験後）

図2－1－6－2　ピン試験片の外観

②潤滑油使用時のピン試験片の外観（金型材）



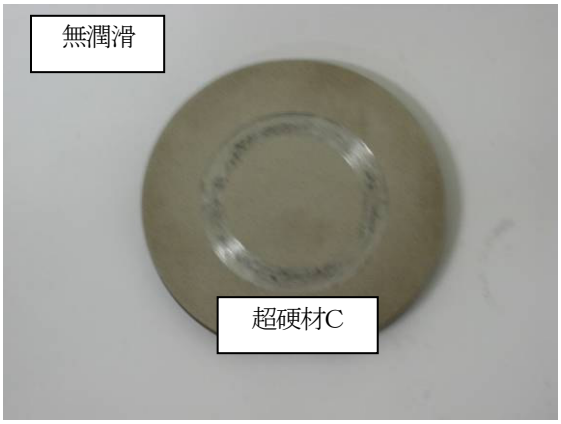
超硬材C（試験前）



超硬材C（試験後）

図2－1－6－3　ピン試験片の外観（金型材）

③ディスク試験片の外観（純チタン材）



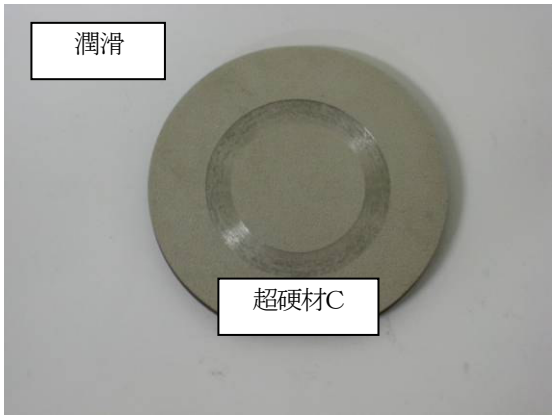


図2－1－6－4　ディスク試験片の試験後の外観（純チタン材）

④ 摩耗量

試験後のディスク(純チタン)の摩耗特性を図2－1－6－5に示す。無潤滑における4種類の金型材の中では、超硬材Ｃによるディスクの摩耗量が比較的大きかった。そのため、この超硬材Ｃを用いて無洗浄油として用いられる打抜工作油を潤滑油として摩耗試験を行って比較検討した。その結果、ディスクの摩耗量は約9割増える結果となった。

ピン(金型材料)の重量を計測したが、今回の試験条件では金型材料の違い、潤滑の有無による重量変化を計測することはできなかった。

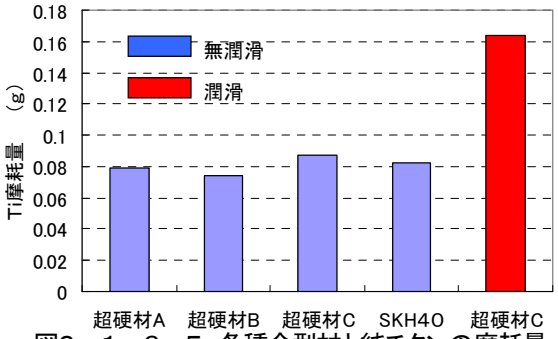


図2－1－6－5 各種金型材と純チタンの摩耗量

⑤ 摩耗試験時の摩擦係数と温度の変化

すべり距離100mまでの摩擦係数とピン温度の変化を、図2－1－6－6と2－1－6－7に示す。摩擦係数は加圧力に対する回転トルクをから、摩擦係数を算出した。また、温度計測はピンの温度上昇を熱電対で計測した。計測位置はディスクとの接触部から2mm内側の位置とした。

摩擦係数は、初期時に0．5～0．56と摩擦係数が大きいが、すべり距離が30mまでに0．4～0．5へと約0．1小さくなっている。その後の摩擦係数の変化はほとんどない。各金型材とも同様の傾向を示した。金型材料による違いはあまりないが、超硬材Aが比較的小さく、その他の材料の差はほとんどない。

ピンの温度は、室温からスタートし、すべり距離の増加と共に徐々に上昇している。すべり距離100m時の各材料のピン温度は表2－1－6－2のとおりであり、鉄系のSKH40が最も低く、それとほぼ同じく超硬材Cが低い結果となった。

また、摩耗量が比較的大きかった超硬材Cの潤滑の有無による摩擦係数とピン温度の変化を図2－1－6－8に示す。潤滑油があると摩擦係数は初期から0．5前後と一定の値を示し、ピン温度は約10℃上昇を抑制できる。

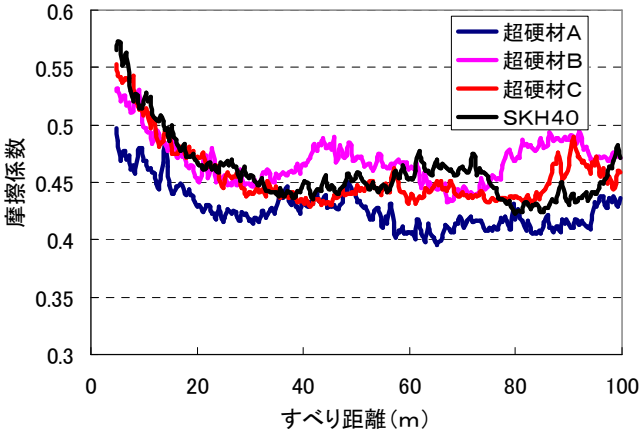


図2－1－6－6 各種金型材の摩擦係数の変化

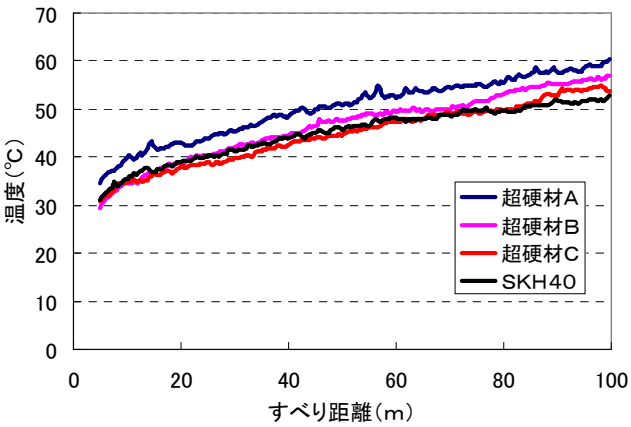


図2－1－6－7 すべり距離と各種金型材の温度変化

表2－1－6－2 各ピンの最終温度

金型材料	潤滑	温度(℃)
超硬材A	無	60．3
超硬材B	無	56．8
超硬材C	無	53．8
SHKH40	無	52．9
超硬材C	有	45．7

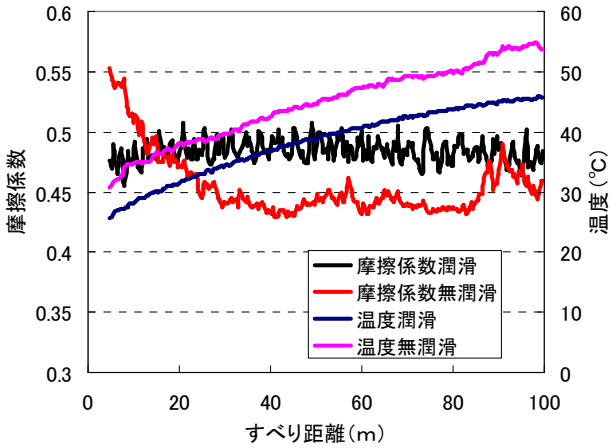


図2－1－6－8 金型材Ｃの摩擦係数･温度変化

(5) 考察

無潤滑における摩擦係数は初期時0．5～0．56と高く、すべり距離が30mを過ぎると0.4～0.5と安定する傾向であったが、他の金属材料、SUSU304に比べると高い値を示している。

摩耗形態は凝着摩耗が考えられ試験後のピンにはチタンが凝着しており重量測定による摩耗量評価は困難であった。

このピンに対してディスクである純チタン板の摩耗量はかなり大きかった。ディスクの摩耗量、純チタン／金型材料の摩耗特性から、今回の4種類の金型材料の中では、超硬材Cが比較的良い結果となった。打抜工作油の無洗浄潤滑油を使用すること

でピンにはほとんどチタンの凝着が現れないことから潤滑油の効果が大きいことが分かった。潤滑油の利用により摩擦係数の大きな減少が予測されたが、使用した潤滑油の粘度が低かったためか摩擦係数の大きな低減には至らなかった。これらの結果はプレス成形シミュレーション上、非常に有益なデータとなった。

2－1－7　セパレータのプレス成形シミュレーション

(1)　概要

セパレータ形状に適した金型構造の仕様を検討するにあたって、動的陽解法による有限要素法(FEM)シミュレーションの実施を試みた。まず、流路のプレス成形時における成形条件等の算出のため、2－1－2で実施したエリクセン試験のシミュレーションを行い、セパレータのプレス成形シミュレーション手法について検討を行った。実際に流路を成形するプレス工程についてプレス成形のシミュレーションを実施し、割れ等が発生しやすい箇所の推定を行った。

より詳細な挙動を検討するため、被加工材の断面方向の平面ひずみのシミュレーションを行った。これらにより摩擦係数や成形工程の違いによるプレス成形時の割れ発生の可能性について検討を行った。

(2)　目的

セパレータ流路形状に適した金型構造の仕様を検討するにあたって、物理的試作や実験回数の低減を図るとともに、金属セパレータ用難加工材料について、流路をプレス成形するための成形条件や成形金型構造に利用可能な基礎データを求め、被加工材の断面に着目したシミュレーションを行い、応力、ひずみの結果から、材料の加工限界となるひずみ量を推定し、流路部の金型寸法について知見を得ることを目的とした。

(3)　方法

①　エリクセン試験の張り出し成形シミュレーション

セパレータのプレス成形シミュレーションの前段階として、セパレータ金属材料のエリクセン試験の成形実験のシミュレーションを実施し、張り出し成形限界における限界特性を導出することとした。

図2－1－7－1にエリクセン試験のシミュレーションに使用した解析モデルを示す。成形シミュレーションでは、シェル要素と呼ばれる薄板成形時に広く使用される要素タイプを使用した。シミュレーションモデルは、エリクセン試験に用いるジグおよび成形形状の対称性を考慮し、全体の1／4で評価を行う周期対称モデルで実施した。

表2－1－7－1　に成形シミュレーションで使用した試験片金属材料の材料特性を示す。材料特性は、チタン350を想定し、セパレータ金属材料の引張強度試験での平均的な試験片から近似・導出した値を用いた。プレス成形のシミュレーションでは、弾塑性材料の応力－歪み関係を表すために、2種類の勾配(弾性と塑性)を使用する2直線近似による硬化則モデルを使用した。弾性領域の剛性にはヤング率が用いられる。また、塑性領域における剛性については接線係数で定義した値を使用し、弾性域と塑性域の境界となる降伏点を定義するために降伏応力が定義される。

エリクセン試験ジグであるパンチ、ダイス、しわ押さえのそれぞれの金型については、基本的に剛性が高いものであることとし、剛体として定義した。また、試験片材料をしわ押さえとダイスとで締め付ける締め付け荷重については、JIS Z 2247:2006 で約 10kN と規定されていることから、1／4周期対称モデルであるシミュレーションモデルでは、2.5kN に定義した。

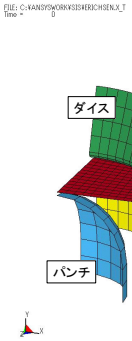


図2－1－7－1　エリクセン試験の解析モデル

表2－1－7－1　材料物性値

ヤング率	E	103[GPa]
ポアソン比	υ	0.32
降伏応力	σ_y	0.65[GPa]
接線係数	E_{Tran}	5.44[GPa]

図2－1－7－2　成形シミュレーションモデル

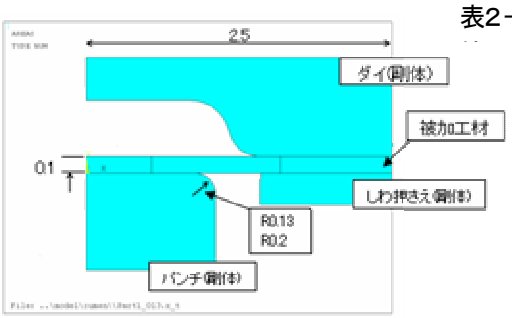


図2－1－7－3 ディンプル部加工モデルの概要

表2－1－7－2 チタン 300 の材料物性

物性値	値
ヤング率	1.0e11 Pa
ポアッソン比	0.3
耐力	1.0e8 Pa

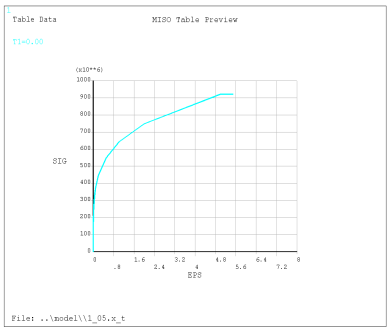


図2－1－7－4 チタン 300 応力－ひずみ曲線

② セパレータ流路部の成形シミュレーション

セパレータ流路の成形シミュレーションをセパレータ流路形状の複雑加工部について実施した。セパレータ流路形状は複数工程の金型によって成形される部分である。シミュレーションに利用した解析モデルを図2－1－7－2に示す。左図に示したのが第1工程の金型セット、右図に示したのが第2工程の金型セットのモデル図である。有限要素法によるプレス成形シミュレーションにおいては、プレス金型の変形は想定しない剛体モデルを利用することとし、被加工材にはエリクセン試験のシミュレーションと同様に薄板成形シミュレーションを実施する際に広く使用されるシェル要素と呼ばれる要素タイプを使用して成形性の評価を行った。被加工材となる金属材料の材料特性にチタン350を想定し、表2－1－7－1の値を用いた。

③ ディンプル部のプレス成形シミュレーション

実際のディンプル部のプレス加工において、ある条件下で割れが生じた。そこでこの条件下での解析を行い、この材料の加工限界となるひずみ値を推測することとした。図2－1－7－3にディンプル部の解析として使用したモデルの概要を示す。

被加工材を剛体のダイとしわ押さえではさみ、剛体としたパンチを下方から変位させ被加工材を塑性変形させるモデルとなっている。パンチの先端部のコーナー半径は、0.13 ,0.2mm の 2 種類とした。この解析モデルは 2 次元軸対称としたので、図2－1－7－3は断面図とみなすことができる。ひずみ曲線は多直線により近似した弾塑性体モデルとした。また、材料モデルのチタン 300 の物性値を表2－1－7－2に、応力－ひずみ曲線を図2－1－7－4に示す。境界条件として、パンチを上方に変位させた。これはダイとの間隔が被加工材初期の板厚と同じ 0.1mm になることを想定したものである。また被加工材とパンチ、ダイ、しわ押さえの間に摩擦係数が 0.2 となる接触を定義した。

④ 流路部のプレス成形シミュレーション

流路部については、ピッチ 2mm と 3.6mm のものについて、プレス成形シミュレーションを行った。解析モデルは上下に対称形の剛体の型を置き、上型を変位させることによってその間に配置した被加工材を塑性変形させる解析とした。モデルは左右両側の直線部分を対称拘束とした 2 次元モデルを使用した。モデルのイメージは②の成形シミュレーションの断面のみの解析となる。またディンプルモデルと同様に型と被加工材の間には摩擦係数 0.2 を定義し、材料モデルも同様にチタン 300 を使用した。

(4) 結果

① エリクセン試験の張り出し成形シミュレーション

エリクセン試験で実施した成形実験から、今回の実験に用いた純チタンのエリクセン値は、およそ 3.58mm 程度であるので、成形シミュレーションでも同程度のエリクセン値(成形高さ)だけ成形した時のシミュレーション結果について評価を行った。

図2－1－7－5は、試験片材料が 3.58mm だけ張り出したときの金型位置と試験片の変形図で出力したものである。このときの試験片の板厚情報を出力した結果が、図2－1－7－6であるが、球形パンチが押し当てられている付近の板厚が、初期板厚の 0.1mm から 0.097mm に減少していることが確認できる。この成形シミュレーションによって板厚減少や摩擦係数を考慮した解析ができることが判明し、これらの手法を流路成形シミュレーションに適用した。しかし、板厚減少については解析結果と実験値では差があり、正確な板厚減少を予測するには2次元の平面ひずみ問題として解析することが必要なことも明らかとなった。

② セパレータ流路部の成形シミュレーション

図2－1－7－7にセパレータ流路部の第1工程の成形シミュレーションにより得られた板厚分布を示す。青色部分は板厚が薄くなっている部分を示し、流路のサイド部分の肉厚減少が大きいことが分かる。図2－1－7－8には第2工程後の相当応力分布図を示す。解析結果から、第2工程で成形された流路の角部(○印部)に応力が集中する傾向が確認され、金属セパレータの流路をプレス成形するにあたって、角部が他の箇所に比べ割れなどが発生する危険性の高いことを示している。

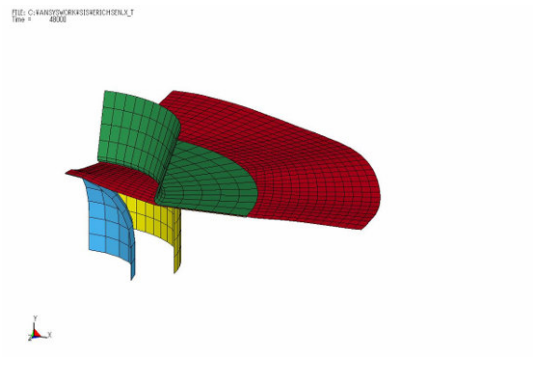


図2－1－7－5　変形図

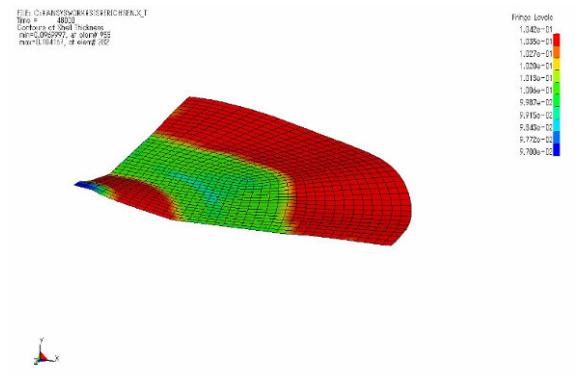


図2－1－7－6　試験片の板厚変化

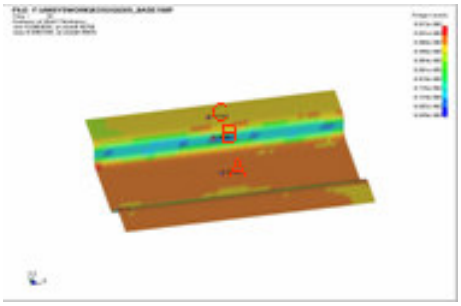


図2－1－7－7　第1工程の板厚分布

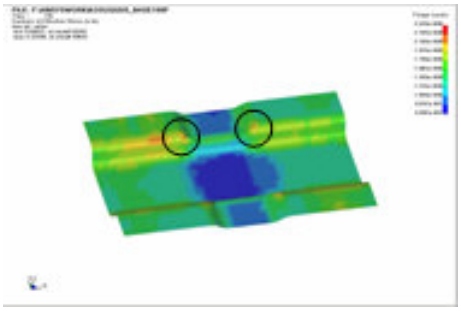


図2－1－7－8 第2工程の応力分布

③ ディンプル部のシミュレーション結果

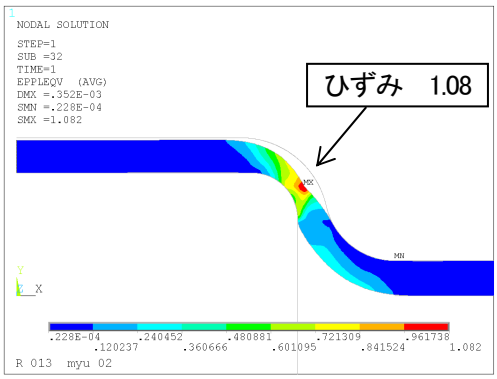
ディンプル部の成形後の解析結果を図2－1－7－9に示す。最大相当塑性ひずみは、共に上部曲線部分外側に発生している。パンチ先端のコーナー半径R0.13mmのとき、最大ひずみ値は1.08となり板厚も半分以下に減肉している。半径R0.2mmのときには。最大ひずみ値0.54であり、板厚減少はおよそ30%であった。実際の成形では、この解析で最大塑性相当ひずみが発生した部分、コーナー半径R0.13mmのとき、き裂が発生した。コーナー半径R0.2mmのときはき裂の発生が見られないことから、この材質では、相当塑性ひずみが1程度になった場合、破断が起きるおそれがあると推測できる。

④ 流路部のシミュレーション結果

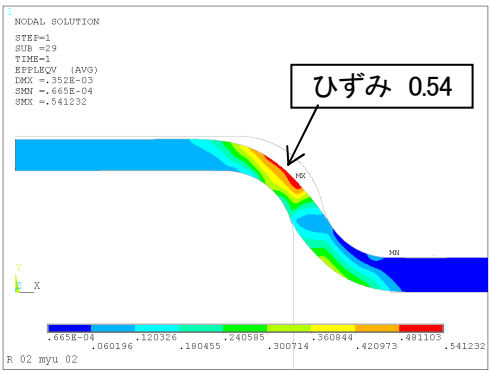
図2－1－7－10は摩擦係数0.2の各ピッチにおける流路部の解析結果である。最大相当塑性ひずみは、2.0mmピッチが0.49、3.6mmピッチが0.4であり、ピッチが狭いほど厳しい加工条件となるが、割れの発生の可能性は小さいと考えられる。

各ピッチにおいて摩擦係数を0.1から0.5まで変化させたときの最大相当塑性ひずみの値を図2－1－7－11に示す。

摩擦係数の上昇に伴うひずみの上昇が確認できた。

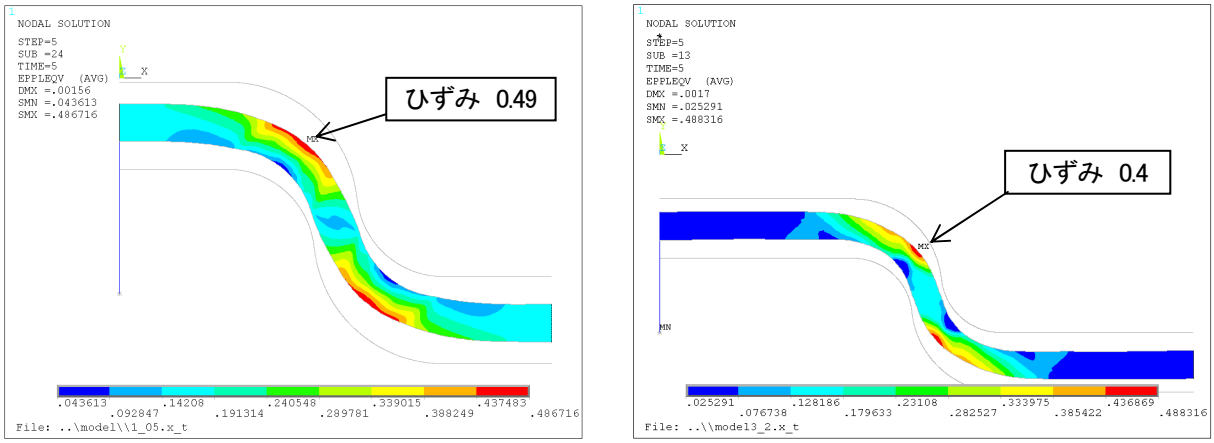


（ｉ）パンチ先端コーナー半径 R0.13mm



（ii）パンチ先端コーナー半径 R0.2mm

図2－1－7－9　ディンプル部の解析結果（相当塑性ひずみ）



(a)ピッチ 2.0mm　　(b)ピッチ 3.6mm

図2－1－7－10 流路部の解析結果(相当塑性ひずみ)

(5) 考察

セパレータ流路形状の複雑形状部の解析した結果、成形後の板厚分布、主ひずみ図、相当応力図からプレス成形時の割れ発生箇所の予測をすることができた。

実際にプレス成形時に割れが発生するかどうかは、使用する金属材料の機械的特性により、異なるが、今回の解析では最大板厚減少が約 15%であるため、プレス成形時の割れの問題はないと考えられる。

ディンプルの成形シミュレーション結果より、チタン300の破断ひずみは相当塑性ひずみで約 1 と推測することができた。

流路の成形シミュレーション結果より、ピッチ 3.6 mm のときの相当塑性ひずみは 0.5 以下であり、き裂の発生は無いと思われる。

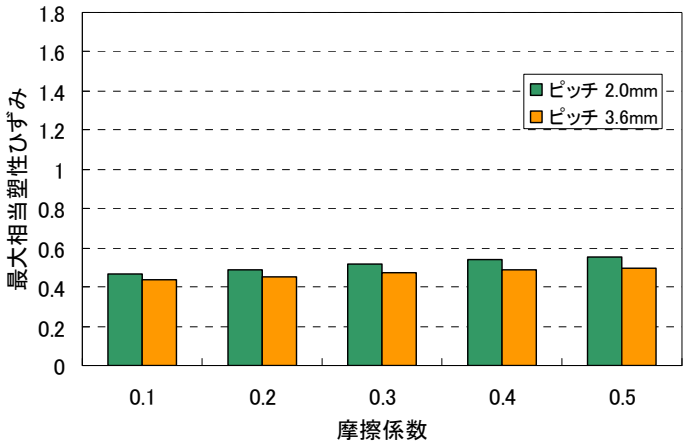


図2－1－7－11 摩擦係数の変化による最大相当塑性ひずみの値

また、摩擦係数 0.5 で、ピッチ 2.0mm でも相当塑性ひずみは 0.6 以下であるので、き裂の発生は無いと思われる。

チタン材と金型において、無潤滑時の摩擦係数は 0.4～0.5 であるが、潤滑によりその値を 0.2 以下にすることも可能であり、より複雑な形状のプレス成形加工も可能と思われる。しかし、潤滑剤等を用いてプレス成形することは潤滑剤の不均質性による成形精度への影響が考えられるため、十分に検討する必要がある。

2－2 セパレータ形状向き金型の検討、開発設計、評価

2－2－1 製品形状検討

本研究の 120cm2サイズのセパレータに要求される精度は下記の通りである。

①流路高さ精度: ±0.01mm
②平面度: 0.1mm 以下
③流路 R 部: R0.2mm 以下
④平坦部の面粗度: Ra=0.1 μm
⑤ダレ・割れ無きこと

2－2－2 セパレータ製作工法検討

セパレータにおいては特にガスが流れる溝の精度が重要で割れ・ダレの存在は完全 NG となる。又、溝の高さにバラツキが生じると、スタック時における誤差が大きくなってしまうので、溝高さ精度を±0.01mm 以下に仕上げなければならない。複数回の絞り工程を追加することにより、このバラツキを緩和し、又、製品の面粗度は金型部品の面粗度がそのまま転写されるため、重要な箇所においては鏡面加工にて金型部品の面粗度を向上させることを検討した。

2－2－3 工程検討

実際の図面を確認しながら必要な工程を確保する。今回の素材は、チタン材料を使用するが、チタン材料は難加工材料で

あり、溝部の割れの発生が非常に懸念されたので工程も複数回に分けるよう検討をした。

２－２－４　金型設計、金型加工、組立

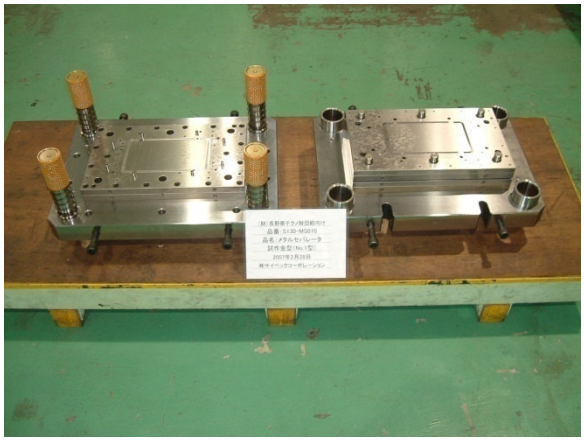


写真1　超精密試作用セパレータ金型

工程検討を行った上で金型設計を行い、実際に金型製作に入った。実際の試作用金型の写真例を、写真１に示す。

金型精度は下記のとおりである。

・ダイセット穴ピッチ精度:2.0μm 以下
・プレート穴ピッチ精度:1.2μm
・金型パーツ精度:1.0μm
・金型パーツ面粗度:Rz=0.2μm 以下

２－３　精密プレス成形法の検討と成形トライ

H18 年度～H20 年度のプレス成形においては各年度毎に問題が生じ、それに対して、成形法の見直し、或いは形状の見直しを行うことにより要求精度を達成した。各項目における経緯の詳細を下記の表1にて示す。

表1　セパレータ要求項目における年次の達成進捗表

要求項目	H18 年度	H19 年度	H20 年度
流路高さ精度　±0.01mm	○	○	○
平面度　0.1mm 以下	1.175mm	0.742mm	0.262mm
面粗度　Ra=0.1μm	Ra=0.19μm	Ra=0.11μm	Ra=0.093μm
割れ・ダレ無きこと	×	○	○
肉余り無きこと	N/A	×	○

表1に見られるように、H18 年度においては要求精度に対して１項目しかクリアできていなかった。特に今回の研究において大きな問題点となったのが、スタック性を大きく左右するセパレータ平面度 0.1mm の特性の確保であった。

絞り加工にて溝形状を成形するために、しわ押さえプレートをしっかりと固定しても、製品のソリを抑制することは困難を極めたが、材料特性を調査したり、工程検討を行ったり、形状の見直しにより、H20 年度は0．27mm以内と、ある程度目標値にまで近づけることができ、スタック性の向上を図ることができた。実際の平面度向上の様子を写真２に示す。

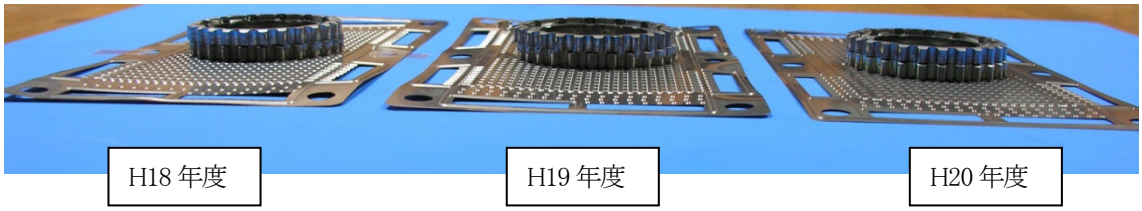


写真２　各年度における平面度向上の様子

２－４　薄板プレス成形品精密測定技術の確立

２－４－１　セパレータの平坦性評価

（1）　概要

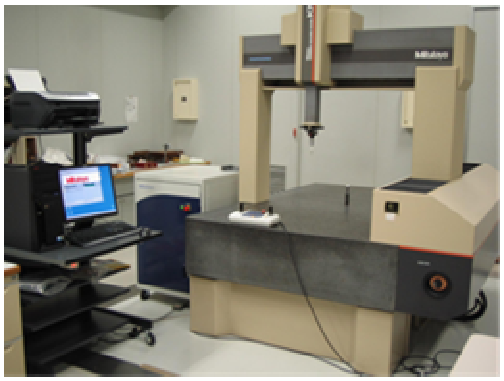
燃料電池のセパレータには、高い品質、形状精度が要求される。電解質膜等と合わせて多数のセパレータが積層される構造となるセルスタック（燃料電池本体部）においては、各セパレータの平坦性が、発電効率に大きな影響を及ぼす。そこでプレス加工により成形されたセパレータの平坦性を測定する方法を検討し、評価を行った。

（2）　目的

プレス加工における残留応力等により平坦性が悪化するセパレータについて、荷重をかけないそのままの状態と、積層され両側から荷重をかけられた実際のスタック時を模擬した状態の両状態での測定が可能な計測を目指した。測定により、流路形状やセパレータ材質、熱処理条件などの違いによる平坦性への影響を評価した。

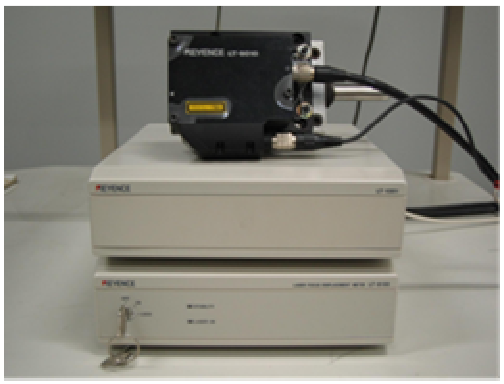
（3）　方法

プレス成形された板厚 0.1mm の金属セパレータをフリーの状態で計測する場合、接触式測定では接触圧による変形を起こしてしまう。全面に荷重をかけた状態では、接触式による測定が不可能なことから、レーザー変位計を用いた非接触方式の測定方法を用いた。セパレータ全体の広範囲の測定が必要なことから、三次元測定機とレーザー変位計を組み合わせた。測定に用いた三次元測定機及びレーザー変位計の外観及び仕様を、図２－４－１－１，２に示す。製品時を模擬して荷重をかけた状態での計測は、レーザーが透過するガラス板をセパレータに載せる方法を考えた。レーザー変位計の作動距離、及びスタック時の荷重などを考慮し、板厚 4.0mm、重量 400g でセパレータより一回り大きな合成石英ガラス板を準備した。ガラス板をセパレータに載せ、荷重を受けて押し付けられているセパレータ上面の数十ポイントの高さを、ガラス越しにレーザー変位計で測定した。フリーな状態のセパレータの測定時の様子を図２－４－１－３に、フリーの状態及びガラス板を載せた状態のセパレータの様子を図２－４－１－４，５に示す。このレーザー変位計は、三次元測定機の付属計測器ではないことと、セパレータ全体の平坦性を測定するには、レーザー変位計単体の測定範囲を超えた高さの測定が必要なことから、データの取込は、レーザー変位計の指示値が 0.0mm となる時の三次元測定機の高さ位置データを取り込む方法で行った。流路を構成するために複雑な凹凸のあるセパレータ表面の、代表的な凸部約20カ所を測定ポイントに定め、そのポイントの高さ位置を計測し、最大高さと最小高さの差を平坦度とし、平坦性を評価した。



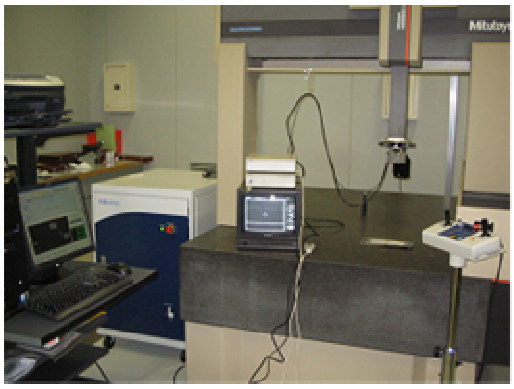
メーカ	（株）ミツトヨ
型 名	KN-810
精 度	2.5+4L/1000 μmm ＜ 6μmm （L は mm）
測定範囲	800mm×1000mm×600mm （X範囲×Y範囲×Z範囲）

図２－４－１－１　三次元測定機の外観と主な仕様



メーカ	（株）キーエンス
型 名	LT-8010
光 源	半導体レーザ （670nm）
測定範囲	±0.3mm
作動距離	5mm
スポット径	約 2μm

図２－４－１－２　レーザー変位計の外観と主な仕様



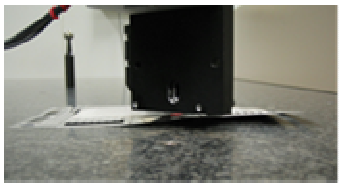


図2－4－1－3　測定時の様子

図2－4－1－4　セパレータ(フリー状態)

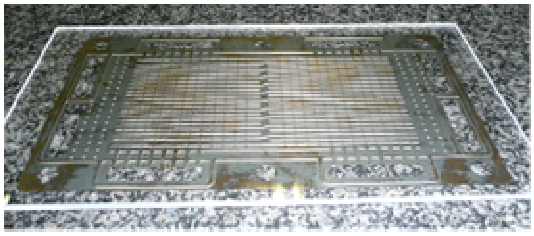


図2－4－1－5　セパレータ(ガラス下)

(4)　結果

実験条件を表2－4－1－1に、流路形状による平坦度の違い、材質による違い、熱処理温度による違いの結果を表2－4－1－2，3，4 に示す。H19流路は、H18流路のガスや水の排出性を向上させたもので、H20流路は、平坦性の改善のためにH19の形状をさらに変更したものである。熱処理は、大気炉で、耐熱ガラス(板厚5.0mm、重量410g)に挟み、上部に2枚の耐熱ガラスを載せて250℃で2時間、360℃で3時間処理した後、炉冷して得られた値である。

表2－4－1－1　各種条件の組合せ(○:平坦度評価を実施)

流路形状	材質	
	チタン350	チタン300
H18流路	○	－
H19流路	○ (熱処理の検討)	○
H20流路	－	○

表2－4－1－2　流路形状と平坦度

流路形状	平坦度(ガラス下)	
	チタン350 (熱処理無し)	チタン300 (熱処理無し)
H18流路	1.175 mm	－
H19流路	0.742 mm	0.477 mm
H20流路	－	0.262 mm

表2－4－1－3　材質と平坦度

材質	平坦度(ガラス下)	平坦度(フリー)
チタン350 (熱処理無し)	0.742 mm	8.981 mm
チタン300 (熱処理無し)	0.477 mm	6.572 mm

流路形状:H19流路

表2－4－1－3　熱処理温度と平坦度

熱処理温度	平坦度(ガラス下)	平坦度(フリー)
熱処理無し	0.742 mm	8.981 mm
250℃	0.391 mm	6.124 mm
360℃	0.175 mm	1.614 mm

材質:チタン350　流路形状:H19流路

(5)　考察

流路形状による平坦度は、チタン350ではH18流路に比べ、H19流路は1.175mmから0.742mmに、0.433mm(37%)改善された。チタン300では、H19流路をH20流路に改良することで、0.477 mmから0.262mmに、0.215mm(45%)改善することができた。また、H19流路において、チタン350とチタン300と材質を変更することで、熱処理無しで0.742mmから0.477mmに、0.265mm(36%)改善できた。また、加工精度が悪いチタン350についても熱処理による平坦度の改善効果を調べた結果、250℃では0.742mmから0.391mmに0.351mm(47%)改善され、360℃では0.567mm(76%)改善された。セパレータの平坦度としては、チタン300のH20流路を用いて、必要によっては360℃以下の低温において熱処理することで、平坦性の向上が大きく期待でき、精密プレス成形の品質向上も同時に行うことで、目標のセパレータ品質に達する目処がついた。平坦性評価方法としては、本法によりセパレータ全体の平坦性の概ねの評価が出来ることが確認できたが、測定時間の短縮化等の課題が残された。

2－4－2　セパレータの形状・板厚測定法

(1)　概要

燃料電池のセパレータには、高い形状精度が要求され、部品板厚の均一性は、燃料電池の信頼性を左右する大きな項目

である。プレス部品のような薄肉複雑形状の板厚は、切断するなど破壊して測定することが一般的であったが時間がかかり、抜き取り検査に限られる等問題があった。金属セパレータの大量生産にあたり、非破壊かつ高精度な形状・板厚測定方法を検討した。一年次、二年次は、基本となる測定技術の開発を行い、三年次は、インライン測定を想定し、測定専用の治具の設計・製作、表裏データの XZ 平面座標変換、板厚算出プログラムの開発を行った結果、数μm 程度の精度で測定が可能となった。

（2） 目的

燃料電池セパレータには冷却水及びガスが通る細かい流路が形作られているため、僅かな流路のゆがみやセパレータの平坦度の狂いが燃料電池スタック全体の性能や耐久性に影響を及ぼす。また、プレス品質向上、精度維持のためにも、この計測、セパレータ全体にわたる板厚の管理が重要である。図2－4－1に示すように、これまで薄肉部品の板厚測定は、試料を切断し、樹脂に埋め込んで断面を得て、デジタルマイクロスコープや測長走査型電子顕微鏡などで評価していた。インプロセス測定ではこのような時間はなく、切断時の変形等の影響もあり、製品歩留まりを悪化させ、精度の向上が期待できない問題があるため非破壊・非接触の測定法を考案する必要があった。一般的に非接触で部品の板厚を測定するには超音波センサなどがあるが、平板の測定には適しているが、今回対象となる細かい流路が連続する形状には、特に斜面部の厚みの測定が難しい。そこで、板厚測定法として図2－4－2、3に示すように、部品の表裏を非接触形状測定機により各々測定し、同一の座標系上で結合することで、製品全体のプロファイルを得て、板厚、形状を評価した。比較的平坦な製品の板厚測定には実用化されていたが、複雑形状の板厚測定は難しいとされてきた。しかし、この方法によれば安価、高速かつ正確に板厚を得ることができ、薄肉複雑形状部品の測定にも応用可能であり、固有技術の高度化も可能なことが見込まれた。

（3） 方法

非接触での形状測定にレーザを用いた非接触三次元測定機を用いた。この測定機はオートフォーカス機構で、Z 方向の高さを検出する装置であり、比較的ノイズに強いことが特徴である。この装置と製作した治具とを組み合わせることで、非破壊板厚測定システムを構築することとした。今回の測定に使用した非接触三次元測定機の概要を表2－4－1に、実際の測定の様子を図2－4－4～5に示す。

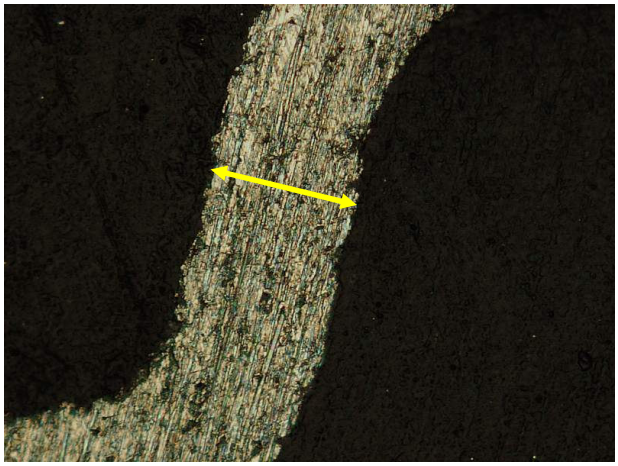


図2－4－1 埋め込み樹脂を利用した板厚測定

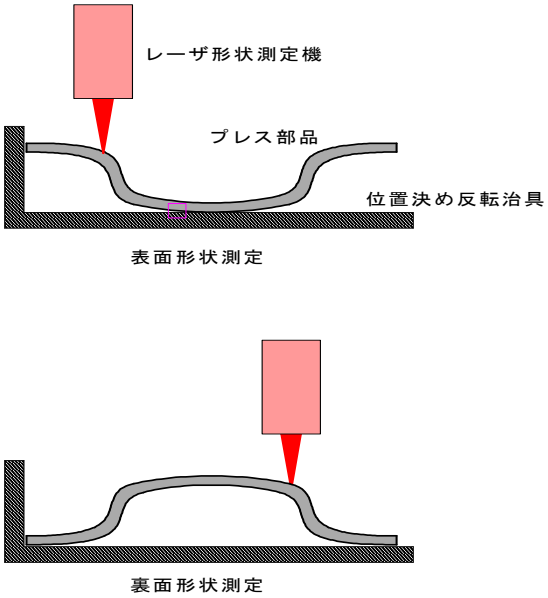


図2－4－2 表裏面の測定

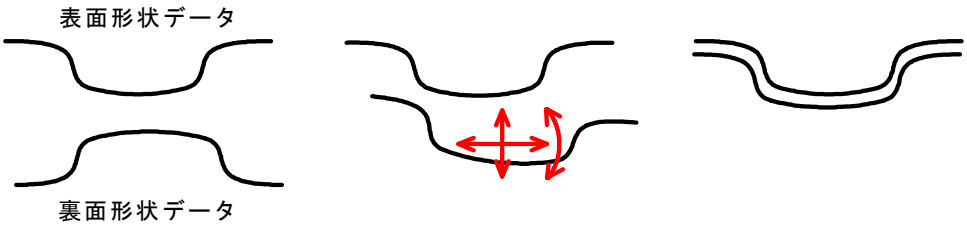


図2－4－3 表裏形状の座標変換概要

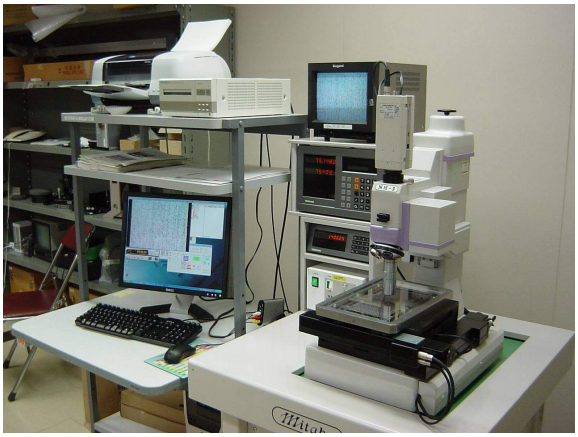


図2－4－4　測定機全景

表2－4－1　非接触三次元測定機 諸元

メーカ	三鷹光器㈱
型式	NH-3
測定方式	オートフォーカス式
Z 軸分解能	10nm
Z 軸測定範囲	8mm
Z 軸絶対精度	±1 μm ／10mm
Z 軸再現性	σ=0.03 μm 以内
X,Y 軸測定範囲	□150mm
XY 軸最小分解能	0.1μm
XY 軸絶対精度	±(1+5L/150) μm

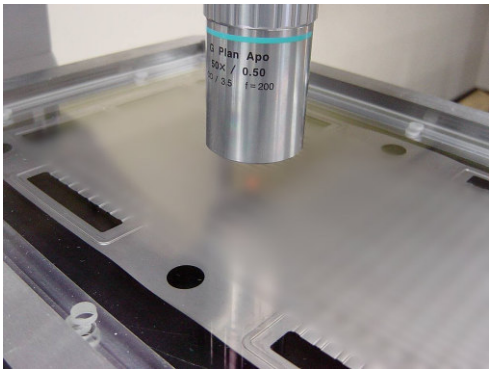


図2－4－5　測定の様子

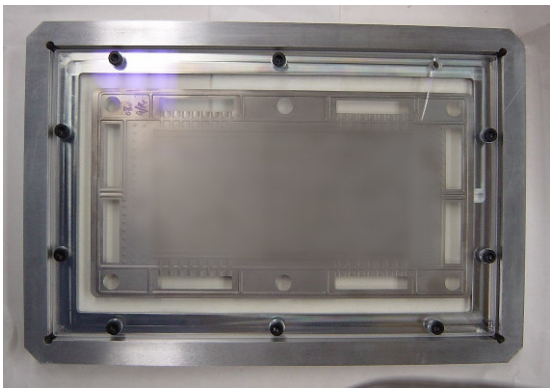


図2－4－6　板厚測定治具

(3)－1　板厚測定治具

今回の板厚測定のために、低反射ガラスと低反射ガラスを固定する枠からなる治具を製作した。今回測定に用いる非接触三次元測定機で板厚を高精度に測定するためには、セパレータを固定するとともに、裏面を測定する時に被測定物を反転させる必要がある。今回の測定対象が薄く変形しやすいため、裏面測定の反転時における変形を抑えることも、この治具に求められた。これを解決するために、測定対象を平面度の非常に良い低反射ガラスではさむことにより、反転時の変形を抑えることにした。製作した治具を図2－4－6に示す。

(3)－2　製品を利用したＸ軸位置座標変換

測定対象であるプレス成形品は複数枚を積層して製品化する。そのため積層および組立てを行う際に基準となる円形穴がある(図2－4－7)。この穴うち 2 箇所の形状を測定し、穴の中心座標位置を算出し、2つの中心座標を結んだ方向を製品のX軸とし、どちらか1方の点を製品の原点とし、裏面でも同様に基準円穴の測定を行った。表面および裏面の形状測定を、ここで求めた原点とX軸を基準に行うことにより、両面の測定結果のX軸方向および原点の位置あわせが可能になる。概念図を図2－4－8に示す。

計測対象のプレス成形品は、厚さ 0.1mm以下と非常に薄いため、X軸位置変換に用いる円穴の形状は真円度、形状および位置に表面と裏面での差がほとんど見られない。そのためＸ軸の位置合わせに利用できた。実際の真円度の差を比較したものを、図2－4－9 に示す。

求められた座標軸で計測を行うことにより、表裏の測定位置を同じにすることができ、測定での前後左右両面の高精度な位置合わせが可能になった。

(3)-3　ガラス面を利用したＺ軸座標変換

板厚測定において、最も重要なのは表面裏面の板厚方向の位置合わせと回転の位置合わせである。今までは、測定器のステージ面を基準面としたため、表裏のデータのZ軸(板厚方向)の位置合わせ精度が十分ではなかった。

冶具のガラス面を基準面にすることで、精度のよいZ軸位置合わせが可能になった。表側の測定の前に、ガラス面の高さと傾き測定し、ガラス面の高さと法線の方向を求め、高さ計測の軸と一致させる。裏面を図る時も、表面と同じガラス面を基準とし、同様の計測を行う。位置決めの概念図を図2－4－10に示す。これにより、Z軸が表面・裏面の測定において同一の軸になるように補正が可能であった。

図2－4－7　基準となる円形穴

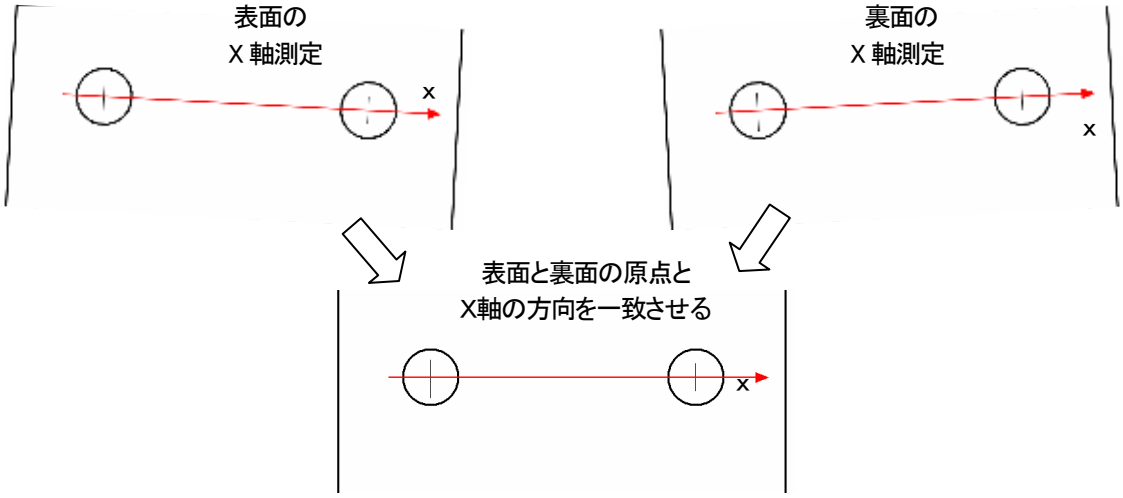


図2－4－8　製品を利用した X 軸位置座標変換

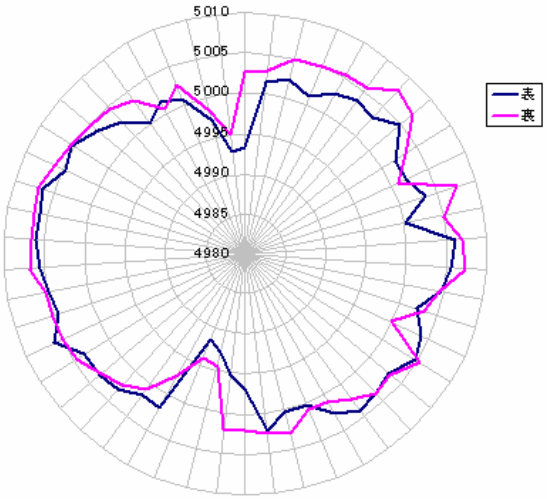


図2－4－9　基準穴の表裏での形状の差(真円度)

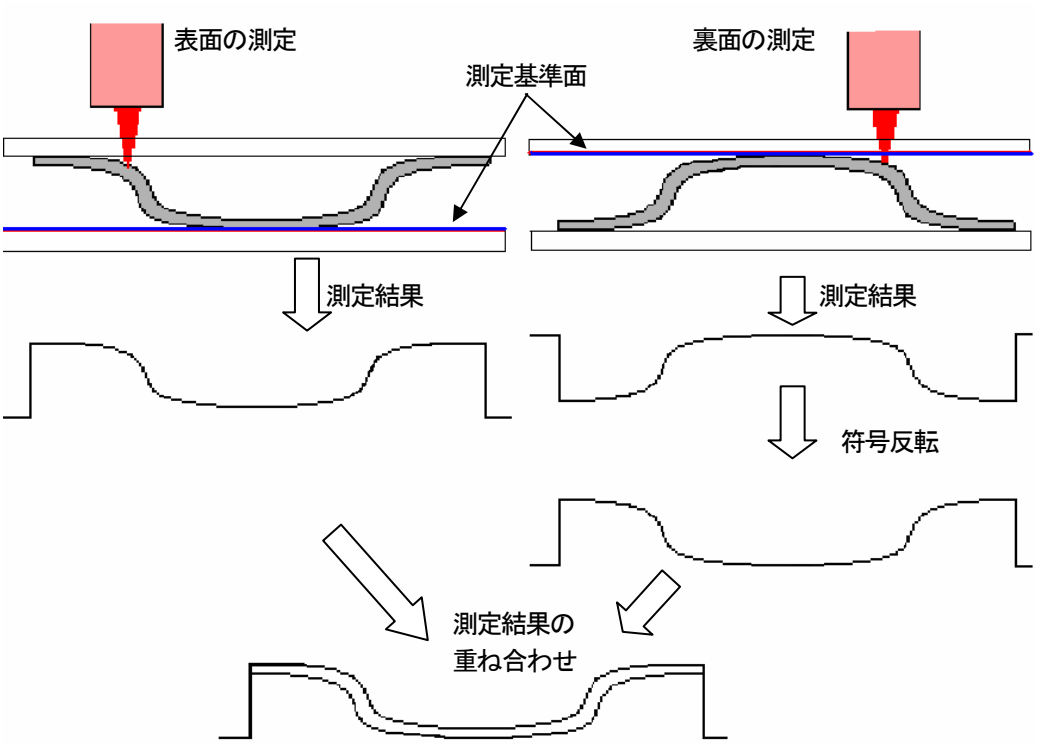


図2－4－10　ガラス面を利用したＺ軸座標変換

(3)－4　得られた曲線の処理

(a)位置決め

前述の2つの座標変換方法により、基準面が同一であること、前後左右の位置決めがプレス成形品の基準穴であることから、裏面の測定データの符号を反転するだけで、測定位置の整合性がとれ、板厚測定のデータとして利用することができた。

(b)板厚算出方法

板厚の算出は、得られた表裏面データを数値計算することで求める。概念図を図2－4－11に示す。表面データのある一点に対して最近傍にある裏面データの一点を求める。厚さは表裏面データの最短距離に存在するとの仮定に基づき、今回は以上のように計算を行った。図2－4－12に公称値 1.02μm のブロックゲージを測定し、厚みを計算した結果を示す。公称値に対して平均値は 1.0196μm であり、演算ができていることが分かった。

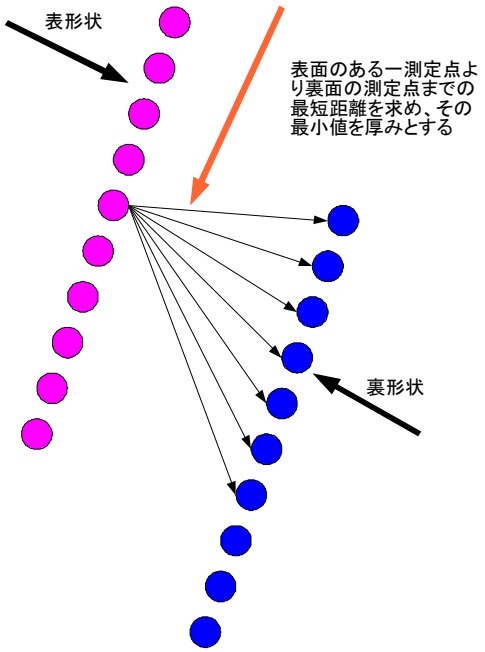


図2－4－11　板厚算出方法

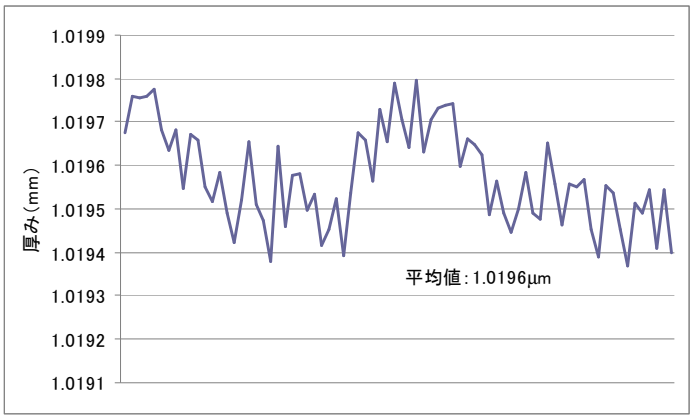


図2－4－12　ブロックゲージの板厚算出結果(公称値:1.02μm)

(c) 結果のフィルタリング処理

板厚算出結果には、表面粗さや測定時のスパイクノイズの影響による高周波成分が重畳している。この高周波成分を除去するために、板厚測定結果に対してフィルタリング処理を行い、高周波成分の除去を行った。高周波成分を除去するためのフィルタとして、重みつき移動平均法であるガウシアンフィルタを使用した。重みつき移動平均法は、ノイズに隠れたデータの抽出法として、広く利用されている。このフィルタは表面性状測定において、表面粗さと表面うねりを除去する輪郭曲線フィルタとして利用されており、JIS にも詳細な仕様が記載されている。おおよその板厚分布を一種の表面うねりと捉えることで、このフィルタを利用することとした。

ガウシアンフィルタは、畳み込む重み関数が正規分布(ガウス分布)になっており、隣り合う高周波成分に相関関係が生じていても、比較的良好なフィルタ効果がある。重み関数の形状を図2－4－13に、適用結果を図2－4－14に示す。

高周波成分が遮断され、形状成分が得られていることがわかる。曲線の遮断波長は(粗さ評価の場合にはカットオフ波長)は任意で選ぶことができる。遮断波長を変化させた場合の結果を図2－4－15～18に示す。

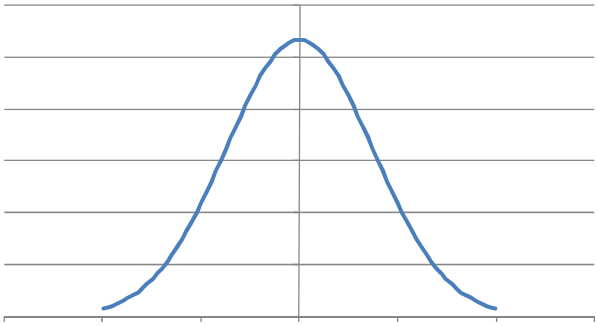


図2－4－13　重み関数の形状

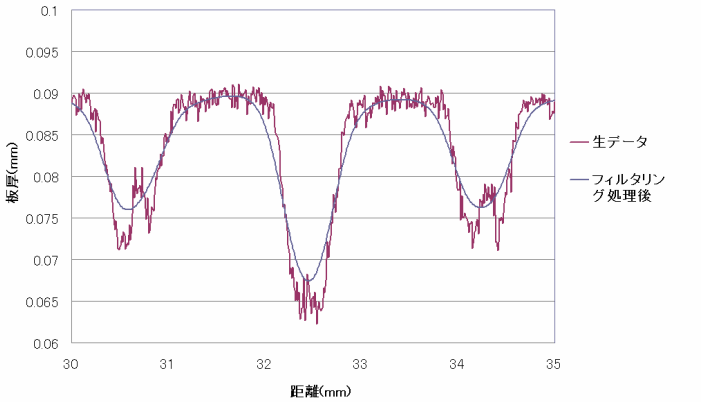


図2－4－14　フィルタの適用結果

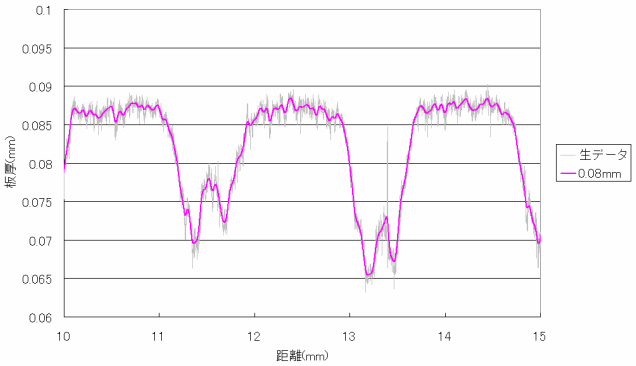


図2－4－15　遮断波長 0.08mm

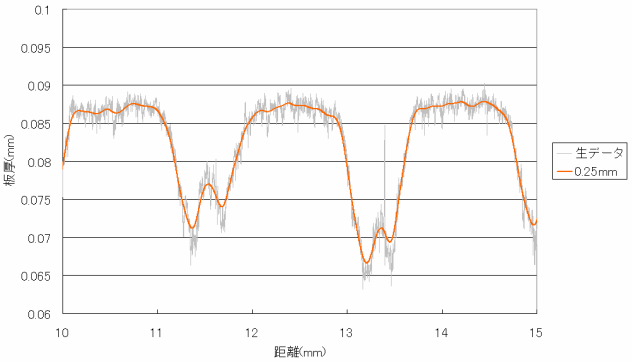


図2－4－16　遮断波長 0.25mm

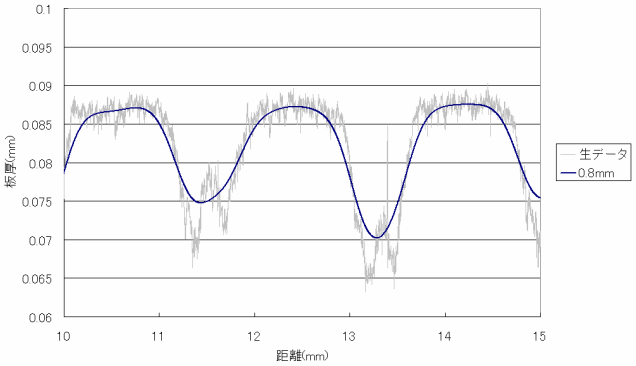


図2－4－17　遮断波長 0.8mm

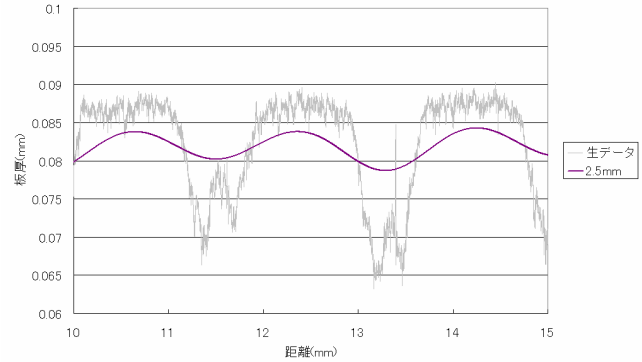


図2－4－18　遮断波長 2.5mm

遮断波長を長くするに従って高周波成分が減衰し、ゆるやかな曲線となっていることが分かる。製品表面の粗さに基づいて、JISB0633 で規定されている遮断波長が 0.8mm であるため、今回の実験では遮断波長 0.8mm のフィルタを使用することとした。

しかし、どの遮断波長を使うかについては、詳細を検討する余地がある。

(4)結果

実際にセパレータの測定を行った結果を、図2－4－19～20示す。測定はセパレータ流路部を 1μm ピッチで行った。

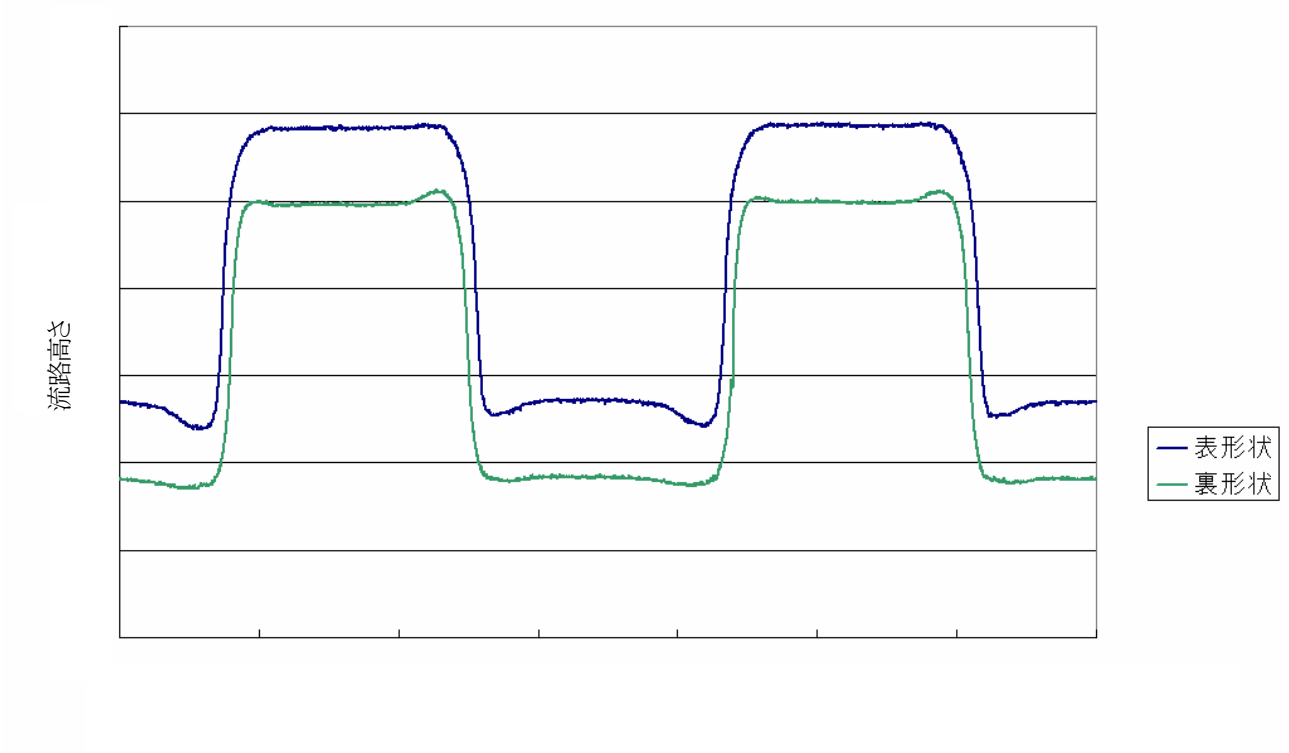


図2－4－19　流路形状(流路２つ分)

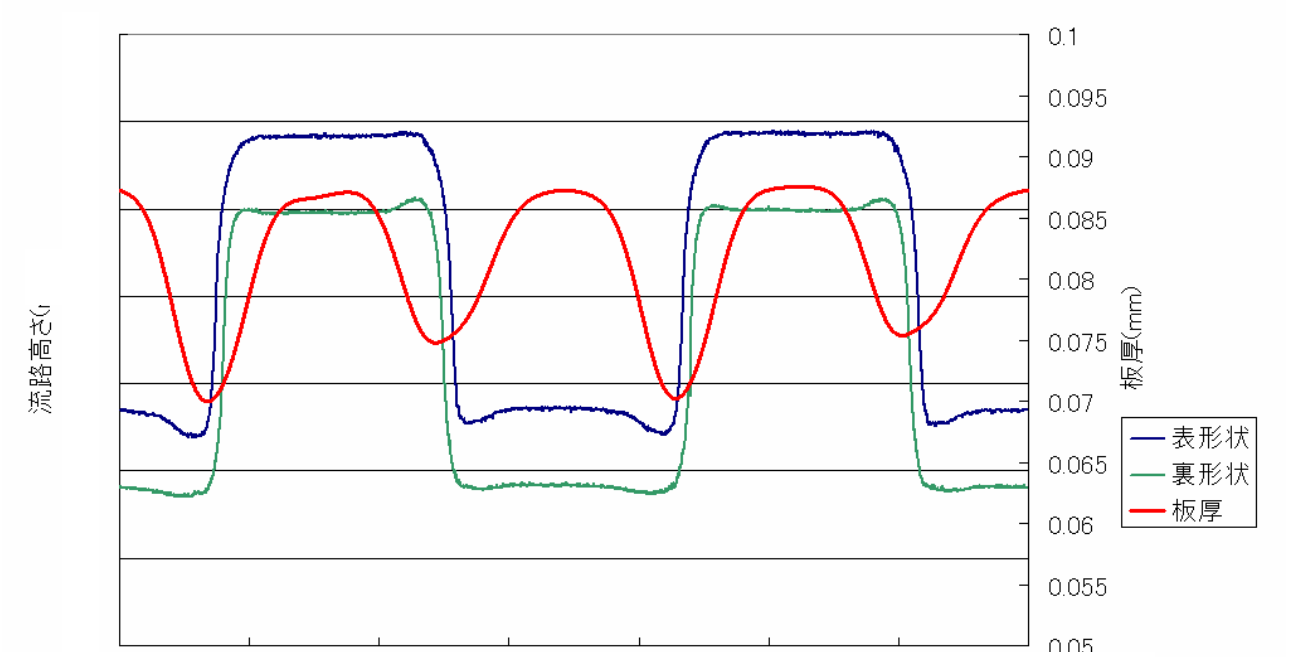


図2－4－20　板厚算出結果を重ね合わせたもの

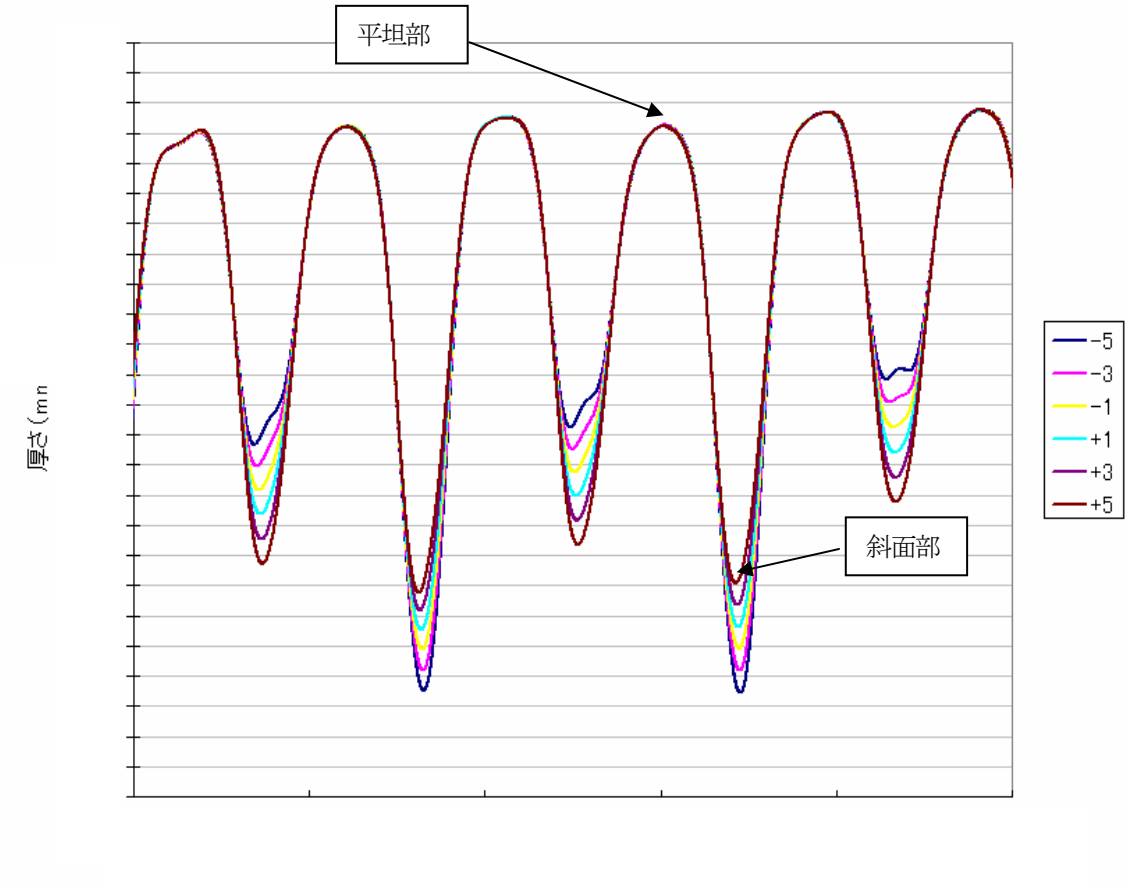


図2－4－21　裏面データをずらした際の板厚結果

以上より、平坦部の板厚が 0.087mm 程度、斜面部の板厚が 0.07～0.075mm 程度という結果が得られた。斜面部の板厚が平坦部より小さくなっていることは、加工における経験則や切断面観察の結果とも一致している。

また、今回の結果では斜面部の左右で約 5μm の厚みの差がある。これについては、X 軸の位置決め誤差にも起因しているが、実際に表裏面のデータが相対的にずれた際に、板厚算出結果にどのように影響を及ぼすか検討した。結果を、図2－4－21に示す。下側データを左右に±5μm(2μm ずつ)ずらし、傾向を確認した。

平坦部については左右の位置ずれがほとんど影響を及ぼさない。

斜面部の板厚は表裏面データのずれにほぼ線形に反応し、左右の位置あわせが 1μm ずれると、厚みが 0.3μm 変化している。X 軸の位置決め精度は大きく見積もっても 10μm 程度と考えられているため、左右の板厚のずれは 5μm 以下程度と思われる。以上より、今回開発した手法を用いることで 5μm 程度の精度で厚み測定が可能となった。

(5)　考察と課題

簡便な測定治具を製作することで、ほぼ期待したデータを得ることが可能となった。今回提案した手法が有効であり、インライン計測に用いることが可能であることが確認できた。成果と課題を以下に示す。

・非破壊非接触高精度板厚測定手法を提案し、ガラス面を利用した表裏面データ結合方法を開発した。

・製品を利用した X 軸位置合わせ法を開発した。

以上を踏まえて±5μm 程度の精度での板厚測定技術を確立した。

今回は燃料電池用金属セパレータに特化した計測を行ったが、種々の形状測定で結果の妥当性を検証する必要がある。

例えば、板厚が既知のサンプルを製作し、比較確認する等。データ処理フィルタにはガウシアンフィルタを使用したが、このフィルタは斜面から平坦面に変化するような曲線では、データにひずみが発生することが知られているため、ロバストスプラインフィルタなど、ひずみが発生しにくいフィルタを利用して精度の向上を図る必要がある。

測定は製品 Z 方向からオートフォーカス式により測定しているため、斜面部と平坦部において同一ピッチで測定していると、データ密度に差が生じる。特に斜面部の勾配がきつくなるほど、この差は顕著となる。しかし、測定ピッチを極端に小さくすると、測定のムダ時間が多くなり非効率的である。今後、斜面部のみデータピッチを小さくするなど、自律機能をもつ測定ソフトウェアの開発が必要と思われる。

第3章　低コスト化成形法

3－1　低コスト化成形法の検討

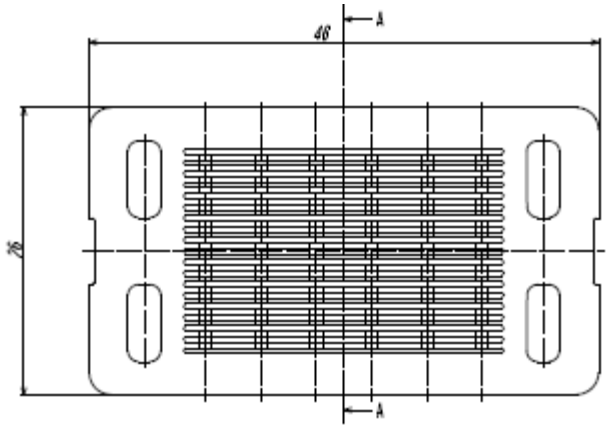
低コスト化実現にはハイスピード加工が必要であり、連続運転を可能にする順送プレス工法が絶対条件である。連続運転におけるメリットを下記に示す。

①　省人化
②　ハイスピード
③　安定生産
④　設備投資の抑制

しかし、順送プレス工法においては、下記の問題点も挙げられる。

1.　金型部品の強度
2.　搬送技術

低コスト化を実現するために実際のサイズとは異なるミニサイズのセパレータ26×46mmを設計し、ミニサイズセパレータの順送金型を製作して、連続プレス成形評価を行った。実際のサイズ及び製品を写真１に示す。



ミニサイズセパレータ

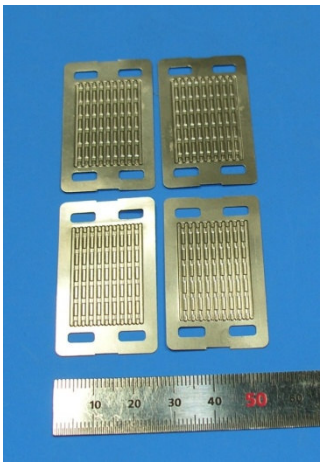


写真１　プレス加工成形品

■連続運転の評価

連続プレス加工において問題点として挙げられていた搬送においては、現段階のミニサイズセパレータにおいては問題無く搬送することができた。金型部品の強度においては、チタン材料による摩耗が大きいので、チタン材料における金型パーツの素材とコーティングの最適な組み合わせを研究し、摩耗を遅らせることに成功し、金型寿命の向上に目途が立った。ミニサイズにおいては、溝のピッチを現行試作品に対して大幅に縮めることを試み、現行のカーボンセパレータ（切削品）と同等な物をプレスにて実現可能なことを実証できた。当初プレス時点での割れが懸念されたが、このサイズにおけるセパレータにおいては割れが無くプレス加工することに成功した。

今後は正規品サイズで連続運転をすることにより量産評価を行う必要がある。

第4章　高機能化めっき技術

４－１ 直接めっき法の検討･実験･試作

４－１－１　研究開発の目的

燃料電池セパレータの低コスト化には､金属材料は耐食性が良好で､かつ一般に入手可能な材料でなければならない。

また、セパレータとして、電気伝導性が良好であることが必要である。そこで、耐食性が良好な材料として選定したチタンに対し、密着性や耐久性、電気伝導性の良好な貴金属めっき処理方法の開発を目的とした。

本目的に対し、純チタン材に対して直接金めっきを実施する方法を見出し、実際にめっきしたセパレータでの発電にも成功した。H19 年度は、量産可能な処理工程の研究と密着性の向上を主研究テーマとした。最終年度は、より耐久性の見込める直接ロジウムめっきの方法を見出し、ロジウムめっきチタンセパレータとして発電に成功した。

４－１－２研究開発内容

（1）直接金めっき方法の研究

今回の研究では、前処理方法と金めっき液の選定を行った。チタンへの金めっきについては、ニッケルめっき下地、銅めっき下地、白金めっき下地の方法が取られるが、本研究は、金めっきのダイレクト法について行った。以下に主な実験方法と結果ついて記載する。

表４－１：検討前処理方法

	項目	方法①	方法②	方法③	方法④	方法⑤
前処理	成分	熱濃塩酸系	塩酸＋フッ化水素	メーカー前処理液	硫酸＋フッ化アンモニウム	濃硫酸系
密着性	A:酸性金めっき液	×	×	×	×	×
	B:中性金めっき液	×	×	×	×	×
	C:塩酸酸性金めっき液	△	△	△	×	○
	D:硫酸酸性金めっき液	×	×	×	×	△
	C+めっき後の熱処理	○	○	○	×	○

上記の結果から、金めっき液のタイプとしては、強酸性系めっき液であれば、比較的密着性が良好であった。

また、前処理は、塩酸系及び硫酸系のエッチング処理を施したものの密着性が良好であった。更に、めっきの析出状態は、硫酸系前処理を行った方が、より緻密な析出となり、密着性も良好であった。めっき後の熱処理により、全般に密着性を向上できた。本法によって、プレス成形されたチタンセパレータへ直接金めっきを実施し、このセパレータで燃料電池運転試験を行ったが、後述するように、連続 500 時間の運転後でも、まったく腐食は見られなかった。

(2)直接ロジウムめっき方法の研究

直接金めっき手法と同様な前処理方法を用いて、チタン材への直接ロジウムめっき方法を行うことに成功した。ロジウムめっき液は、強酸性溶液であるため、金めっきのような酸性下地めっきを施こす必要はなかった。密着性については、金めっきと同等以上であった。

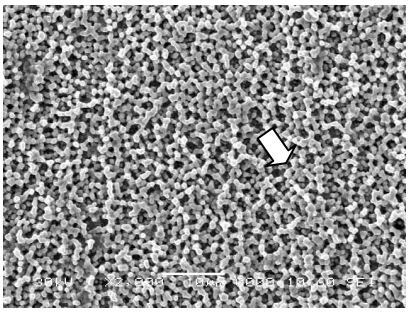
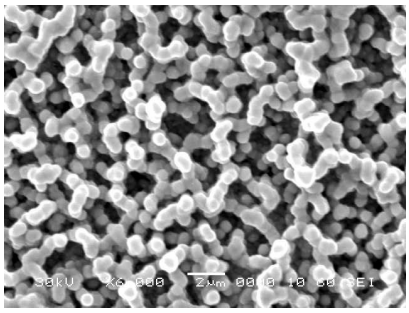
2000 倍	6000 倍
	

図４－１：ロジウムめっきの表面状態

得られたロジウムめっき皮膜は、平滑ではなく凸凹の大きなめっきで、濡れ性も良好であった。また、接触抵抗についても金めっきと同様の低い値を示した。本法でロジウムめっきを施したチタン製プレスセパレータについて、金めっき品と同様の発電運転試験行った結果、同等の発電試験性能を示し、現在も耐久試験を継続実施中である。

表４－２：ロジウムめっきの接触抵抗

サンプル名	抵抗値
チタン素材	40mΩ
金めっき	11.4mΩ
ロジウムめっき	12.3mΩ

４－2複合めっき法の研究開発

４－２－１研究開発の目的

燃料電池セパレータでは、反応で生成する水の流路からの排出特性が発電性能に大きく影響する。通常の金めっきにポリテトラフルオロエチレン（以下PTFE）のナノ粒子を複合させることで、流路の撥水特性をもった金めっき皮膜の研究を行い発電性能の向上を試みた。また、ステンレス素材に対する表面処理の可能性を探る目的で、導電性に優れたカーボンナノチューブを電着塗装に複合させる新たなセパレータ表面処理についても研究を行った。

４－２－２研究開発内容

（1）PTFE 複合金めっきの研究

PTFE 粒子と界面活性剤、酸性金めっき液を用いて、PTFE 複合金めっき皮膜の製作に成功した。PTFE 複合金めっきの断面確認結果を図４－２に示す。

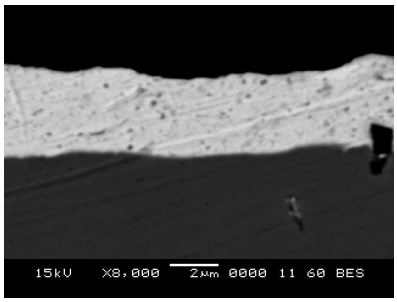


図４－２：PTFE 複合金めっきの断面 SEM 観察
（黒い点が PTFE の粒子）

しかし、本PTFE 複合金めっきを施したセパレータの発電試験を実施した結果、流路の濡れ性が良好なセパレータと比較して、著しく発電性能が低下する結果となった。

⑵ 複合電着塗装の作製方法

燃料電池セパレータへの表面処理として、導電性に優れたカーボンナノチューブ（以下VGCF）を用い導電性及び耐食性にすぐれた電着塗装膜形成を試みた。しかし、研究の結果得られたVGCF 複合電着塗装は、接触抵抗が高く、セパレータには適さなかった。

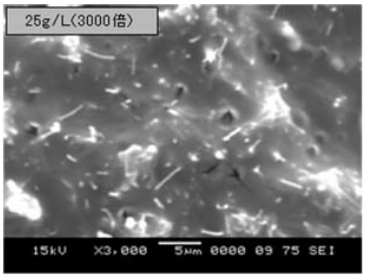


図４－３：VGCF 複合電着塗装表面の SEM 観察

４－３　部分めっき法の研究開発:

４－３－１　研究開発の目的

本研究では､コスト低減を目的とした部分金めっきの研究を実施した｡プレス前の素材の段階で部分めっきを実施し、これをプレス成形することで、セパレータの製作を行った。

４－３－２　結果

前処理に耐えうるマスク材を選定し、プレス時に凸となる部分のみにめっきされるよう、マスキングシートを加工した。部分めっき後のプレス成形セパレータは、後述する評価試験で全面めっき品と同様の発電性能を示した。

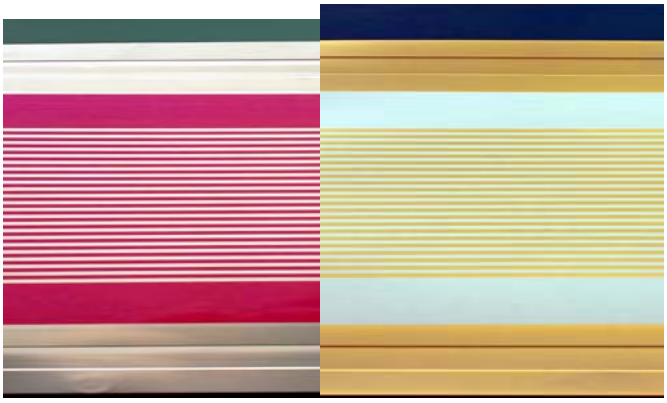


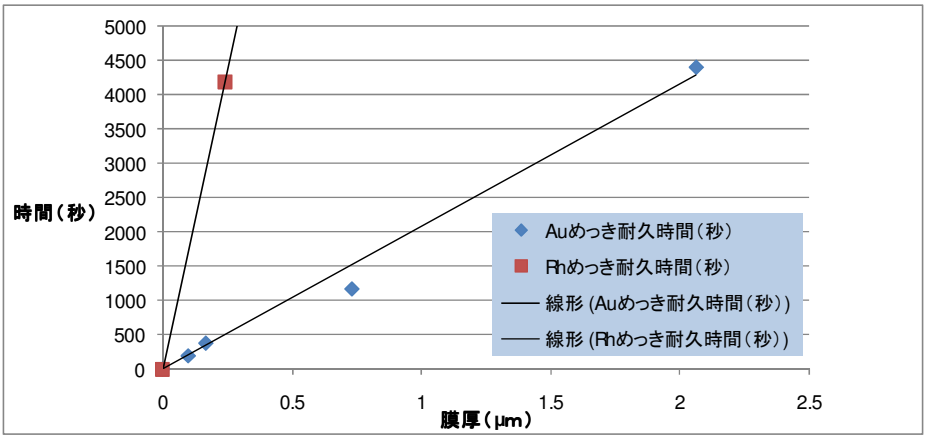
図４－４：マスクパターン貼り付け後とめっき後

４－４　めっき品の耐久性評価･検討

４－４－１　加速劣化試験

燃料電池セパレータは、高温及び酸性雰囲気での電解による腐食と表面に大電流がながれることによるマイグレーションの２種類の現象により劣化すると考えられる。

これらについての加速劣化試験方法を検討、実施した。加速劣化試験で、大電流を流した当初は、一定の電圧のままで経過するが、ある時間に達すると急激に電圧が上昇し、全く電流を流せない状態になった。この時間（寿命時間）を比較すると、寿命時間は膜厚に比例して長くなり、金めっきに比べてロジウムめっきは、約 10 倍の耐久性があること等が判明した。ロジウムは金に比較して約２倍のコストであるが、セパレータへのめっきとしてロジウムを採用することで、約 1/5 のコストで同等性能の耐久性を持つめっきができる可能性が判明した。これら劣化加速試験のデータを解析した結果、運転時間寿命４万時間を達成するには、金めっきは、厚さが約３μｍ必要であり、ロジウムめっきでは、めっき厚さ 0.3μｍで充分であることが推定された。以上より、当初目標の寿命達成の条件を推定することが出来、目標達成のための目途を付けることができたと判断された。



図：４－５：膜厚と耐久時間比較

第5章　金属セパレータ評価

5－1　セパレータ設計

家庭用燃料電池用セパレータとして使用するための最適なセパレータ設計を行う。
セパレータに要求される仕様は以下のとおりとした。

①スタック出力　　:1(kW)
②単セル出力　　:0.7(V)以上@定格発電時
③反応面積　　:120(cm^2)
④ガス利用率　　:Anode 70(%)／Cathode:45(%)
⑤耐久性　　:40,000 時間

5－2　燃料電池セパレータ評価

プレス成形後に表面処理を施したセパレータに対し、単セル燃料電池にて初期特性を評価した。この初期特性評価結果をプレス成形や表面処理にフィードバックし、安定した発電性能を持つセパレータの製作を目指した。評価したセパレータを表1に、発電試験結果を図1、2に示す。

表1. 評価セパレータ

	セパレータ形状	表面処理	変更点
H18 年度	ストレート溝形状	・全面金めっき	
H19 年度	合流溝形状	・全面金めっき	・金めっき条件変更 ・ガス拡散部改良
H20 年度	合流溝形状	・全面金めっき ・部分金めっき ・全面ロジウムめっき	・ガスマニホールド部改良 ・セパレータ外周リブ追加

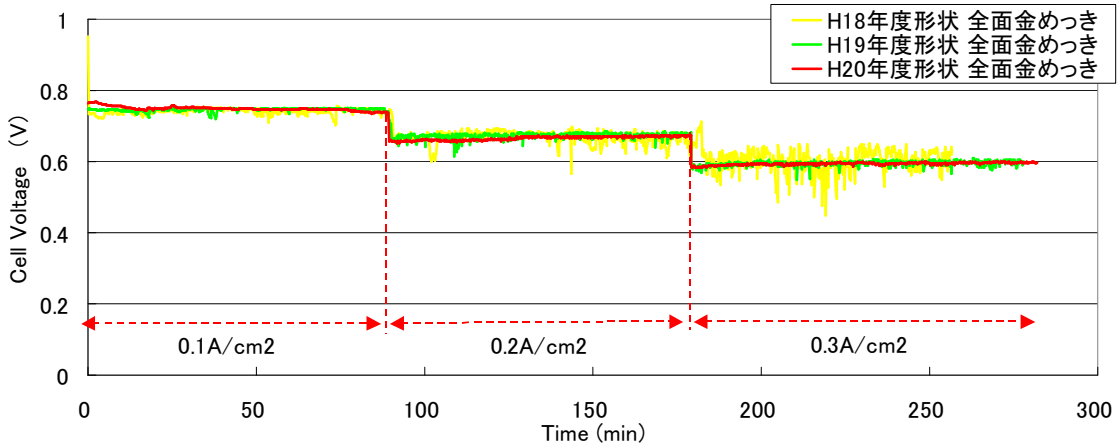


図1. 全面金めっきセパレータ発電試験結果

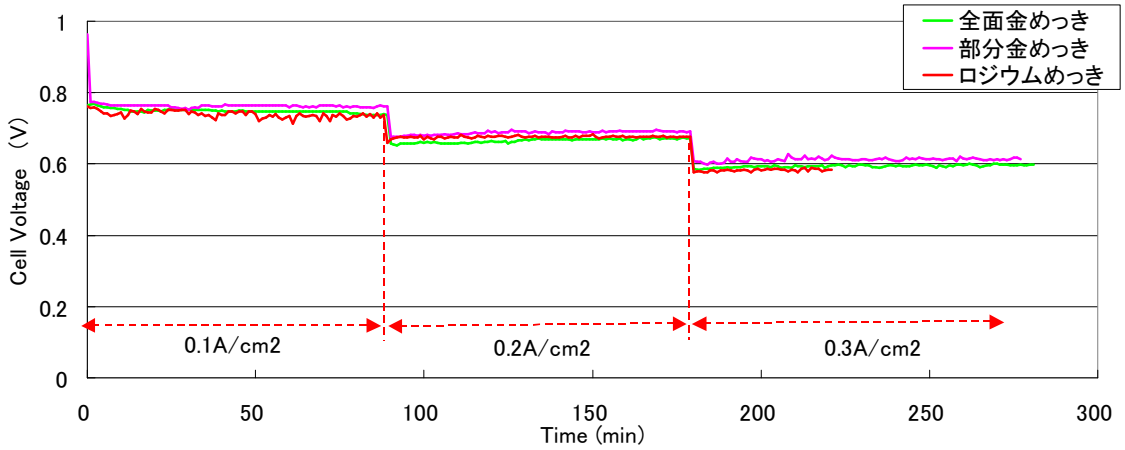


図2. めっき種変更 H20 年度形状セパレータ発電試験結果

セパレータの形状およびめっき処理条件を最適化する事で、H20 年度セパレータでは安定した発電性能を得る事が可能となった。また、低コスト化に向けて、めっき種を変更したセパレータについても、図2に示すように全面金めっきセパレータと同程度の性能が得られる事を確認した。

5－3 燃料電池スタック性能評価

家庭用燃料電池では、単セルを多積層(50～60 セル)し、スタックと呼ばれる構造において使用する。そのため、スタックとしての成立性および性能が重要であり、その評価を行った。評価したスタックは、3 セル、5 セル、20 セルスタックであり、その運転試験結果を表2, 図3に示す。

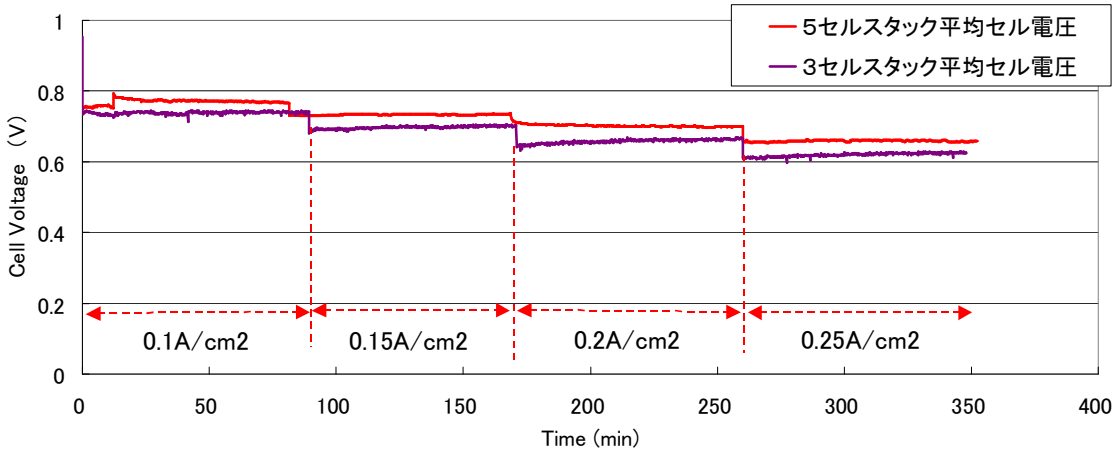


図3. スタック発電試験結果

表2. 20 セルスタック組立結果

	従来スタックとの比較
容積	－40(%)
体積	－60(%)

図4 20 セルスタック外観

H20 年度に評価した 5 セルスタックは、H19 年度に評価した 3 セルスタックの構成を変更し、簡素化している。簡素化した事により、3 セルスタック試験結果に比較し、5 セルスタックの平均セル電圧が高く、性能を向上させる事に成功した。

また、簡素化した構成にて実用化に近づけた 20 セルスタックを組立てた結果、これまで使用していたカーボンセパレータスタックに比べ、容積比で－40(%)、重量比で－60(%)とに軽量・コンパクトにする事が可能となった。

５－４　燃料電池セパレータ耐久性評価

家庭用燃料電池セパレータとして用いるには耐久性が重要である。そこで、連続発電を実施しセパレータの耐久性について評価を行った。評価したセパレータは、全面金めっきセパレータと全面ロジウムめっきセパレータである。

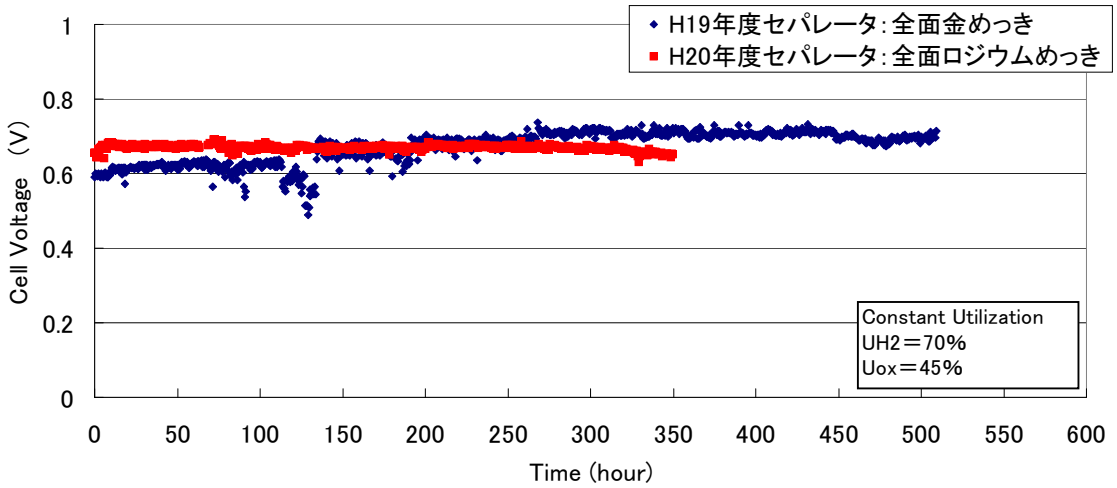


図5. 耐久試験結果

その結果を図５に示す。全面金めっきセパレータについては、500 時間の連続発電を実施し、発電後に分解して、セパレータの外観を確認、分析した結果、腐食の発生は確認されず、良好な結果を得る事が出来た。

また、全面ロジウムめっきセパレータも同様に連続発電試験による評価を実施し、これまで 350 時間の発電を行ったが、電圧低下などの問題は発生していない。現在も、継続評価中である。

第6章　全体総括

６－１　成果概要

○プレス技術の高度化。発電面積 120cm^2 サイズセパレータ全体における平坦度 0.27mm 以内、流路高さ±10μm 以内、プレス上がりでの面粗度 Ra=0.093μm とほぼ目標精度の加工を可能とし、良好なスタック性の確立を果たした。

○めっき技術の高度化により、チタン等の難めっき材に対し、高い導電性が必要な部分のみ、密着性の良いロジウム、金の直接部分めっき技術を確立し、耐久性と低コストの両立を果した。金めっきは 3μm、金よりもマイグレーションへの抵抗性が高いロジウムでは約 0.3μm の厚さで、耐久 4 万時間達成の目途を得た。耐久時間は、導電性を担うめっき厚さに比例している可能性がある。

○めっき・プレス複合システム：部分めっきしたチタンに狭溝ピッチ 2mm のミニサイズセパレータの順送プレスの実証に成功し、量産技術への目途をつけた。部分めっき・順送プレス複合生産システムの実証で、セパレータは、現時点での量産推定見積もりで 1,000 円以内の見込みが得られ、燃料電池トータルコスト低減目標を達成できる手がかりを得た。

○発電電圧は実用域にあり、スタック化した際のセル間電圧のバラツキも少なく良好な性能を示した。スタックした場合の容積は、従来の約 6 割、重量は約 1/3 と燃料電池の小型、軽量化を可能とした。

○非破壊板厚測定方法によりプレス成形品形状の迅速な把握が可能で品質向上に寄与できる。

開発技術によれば、面積 120cm^2 サイズセパレータの平坦度0. 3mm 以内、流路高さ±10μm 等の加工が可能で、良好なスタック性を確保できる。非破壊板厚測定方法はプレス形状の迅速な把握を可能とした。難めっき材のチタンセパレータへ緻密で密着性の良い貴金属直接めっき形成に成功し、スタックで安定した発電特性を得ると共に、単セルでの連続運転により耐久 500 時間以上を確認した。チタン材のプレスでの急速な金型磨耗は、金型材と処理・潤滑剤で抑制できる目途がついた。金型精度、プレス技術の高度化で、更に狭い溝ピッチ 2mm のセパレータの順送プレスにも成功した。

チタンの精密順送プレス技術及び耐久高機能めっき関連技術は、各種燃料電池用セパレータ等にも応用される可能性があり、企業の新規事業展開を可能としつつある。新しいプレス・めっき複合生産システムは、将来の本格的量産に非常に重要な鍵となる。非破壊板厚測定方法は、プレス成形品の形状の迅速・高精度な把握、品質向上に寄与できる。

６－２　今後の展望

「事業化・製品化の見通し、川下企業の動向、マーケティング活動等」

㈱IHIシバウラでは、平成 22 年度以後、家庭用定置型燃料電池の年約 1 千台程度のテスト販売を企画しているが、早速本技術の搭載検討を進める。開発したセパレータは、耐久性に優れ、振動に強いため移動系燃料電池等へも展開できる可能性がある。金属プレス成形セパレータにおいて目標の耐久性、低コスト化に目途を付け、安定な発電に成功した点で、競争力のある技術開発に成功したといえる。大量生産状態になっても廃棄で生じる廃セパレータは、回収が容易で、リサイクルループが形成されやすいと思われ、このループが完成すれば材料コストは更に下がる可能性もある。

「今後の課題」

そのために、現時点で残された主な課題は、①発電特性の更なる改善、②大量生産時点での高速自動部分めっき技術の確立、③大量生産時における順送プレス技術の更なる高速化、金型耐摩耗低減等の生産技術の確立、④高集積スタックにおける実装技術の高度化及びスタックの長期信頼性検証等の課題が残された。これらは、今後のアフターフォロー研究開発で解決することを目指している。成果の早期実用化を目指したアフターフォロー研究の円滑な遂行のための支援策等について、長野県テクノ財団、参加各機関、企業が連携しつつ、現在、具体策を模索中である。

以上