

平成 22-24 年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「固体高分子形燃料電池の低コスト化・コンパクト化及び高生産性に資する金属セパレーターの成形技術の開発とそれによるセルスタックの自動組立技術の開発」

研究開発成果等報告書

平成 25 年 4 月

委託者 近畿経済産業局

委託先 株式会社. マール金属製作所

目次

| | | |
|-----|--------------------------------|----|
| 第1章 | 研究開発の概要 | |
| 1-1 | 研究開発の背景・研究目的及び目標 | 3 |
| 1-2 | 研究体制（研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者） | 5 |
| 1-3 | 成果概要 | 8 |
| 1-4 | 当該研究開発の連絡窓口 | 10 |
| 第2章 | 本論（研究開発の詳細） | |
| 2-1 | セパレーター素材に関する課題の解決 | 11 |
| (1) | セパレーターとして機能を満たす表面処理の選定 | 11 |
| (2) | 金型内移送を考慮した擦れ耐性の評価と擦れキズ等の表面品質評価 | 13 |
| 2-2 | セパレーター成形技術に関する課題の解決 | 15 |
| (1) | 基礎研究セパレーターの成形性評価 | 15 |
| (2) | 目標セパレーターの成形評価 | 17 |
| 2-3 | MEAに関する課題の解決 | 20 |
| (1) | 電解質膜の低コスト化 | 20 |
| (2) | 触媒被膜の高効率生成と品質の均一化 | 21 |
| 2-4 | セル自動組立に関する課題の解決 | 23 |
| (1) | 組立基本条件の整理とまとめ | 23 |
| (2) | 組立ラインにおいて必要な機械と装備のまとめ | 23 |
| 第3章 | 総括 | |
| 3-1 | 複数年の研究開発成果 | 24 |

第 1 章 研究開発の概要

1-1. 研究開発の背景・研究目的及び目標

燃料電池はセパレーターとMEAと呼ばれる反応基本部品の積層体で構成されている。

この構成部品はいずれもが高価な素材で構成されており、中でもセパレーターはカーボン素材に機能要素を切削加工やモールド成形などの比較的高価格・低効率の生産方法で付与されているため高価な部品となっている。

そこで、このセパレーターの低コスト・コンパクト化に着目した。

近年、低炭素社会を目指した家庭用コージェネレーションシステムとして、燃料電池を活用した製品であるエネファームが売り出された。然しながら、非常に高価格であり、設置面積が比較的大きく必要である為本格的な一般普及には低価格化とコンパクト化が要求されている。我々の顧客であるエネファームの大手製造会社では、数年後には100万円を切ることを目標に種々要求が提示されている。

セパレーターは、初期のものはカーボン素材の切削加工品、現在はカーボン樹脂のモールド成形品が主体で普及はしているが、切削加工品で数万円/枚、モールド成形品で数千円/枚と高価格な部品となっている。また、カーボン素材では特に強度面から薄型軽量コンパクト化には制約が伴い、耐衝撃性などの品質確保と生産効率的にも劣っていると言える。このことから、セパレーターのコスト低減・コンパクト化・生産性を画期的に向上できれば燃料電池普及へのマイナス要因を大きく低減できると考えられる。本研究開発では、ステンレス等の薄板を使用したプレス成形による金属セパレーター化に着目し、セパレーターに要求される性能を損なうことなくコスト低減と薄型軽量コンパクト化並びに高生産性を追求したいと考える。また、MEAに係る研究も併せて実施したいと考える。

MEAの構成要素である触媒の被膜化については、触媒をインク化することによりグラビア印刷や凸版印刷技術等を応用した印刷塗布方式により塗布効率の向上と共に膜厚管理と精度の向上による品質の均一化を目指す。更に電解質膜のコスト低減を見据えた機能研究を実施し、MEAの品質向上と低コスト化を目指す。

最終的には、金属セパレーターとMEAを組み合わせた単セルを1～数層積層したセルのカートリッジ化に取り組む。

このカートリッジを自動組立するライン構想を実施し、高効率のカートリッジ式の燃料電池生産システムの構築を目指す

“低コスト化・コンパクト化及び高生産性を目指した燃料電池セルスタックの自動組立”を目指す上で、素材から組立までの一貫生産が高生産と低コスト化への究極の選択肢だとの判断から、多くの乗り越えるべき高い壁の存在は予想されるが、表面処理済み素材を使用したセパレーター成形を選択した。

この方法が達成出来た時は、より飛躍的な効果と顧客ニーズに対するより良好な評価を得ることが出来ると期待する。

1) 研究の目的

固体高分子形燃料電池の一般普及に資する主なニーズは低コスト化とコンパクト化である。このニーズに応えるため、セパレーターの低コスト化とコンパクト化、MEAの低コスト化に着目し研究開発に取り組む。薄板金属を使用した金属セパレーターの成形開発とMEA素材とその使用量の最適化研究でニーズの実現を目指す。また、それらを使用したセルスタック自動組立の構築により、大量生産可能な高品質・低価格の製品供給を目指す。

最終目標

薄板金属のプレス成形金属セパレーターを用いたセルカートリッジの試作実現と “高生産性・低コストを目指した固体高分子形燃料電池セルスタックの自動組立ラインの構想の構築” で株式会社マール金属製作所が主体となり定置型コージェネレーションシステムメーカーに販売していく。また、自動車電源用燃料電池への展開も視野に入れて市場開拓を図り、燃料電池の普及に貢献したいと考える。さらに、本研究の金属セパレーターのプレス成形技術は電化製品用熱交換器やモバイル製品等への応用が可能であり、技術展開を図る。

2) 研究の概要

本研究の乗り越えるべき主たる課題として、セパレーターの素材に関する事項・セパレーター成形に関する事項・MEAに関する事項・セル自動組立に関する事項の四項目が考えられる。

この四項目は、各々が別ステージで個別に解決出来る課題では無く、必要なテーマ、必要な時期を適切に見極め、関連付けて解決する必要がある。

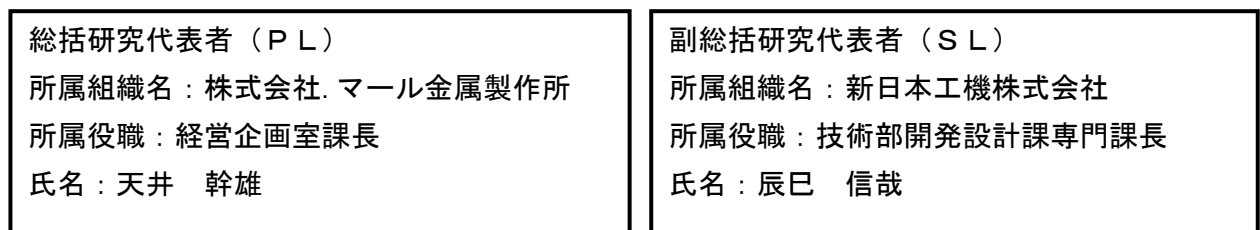
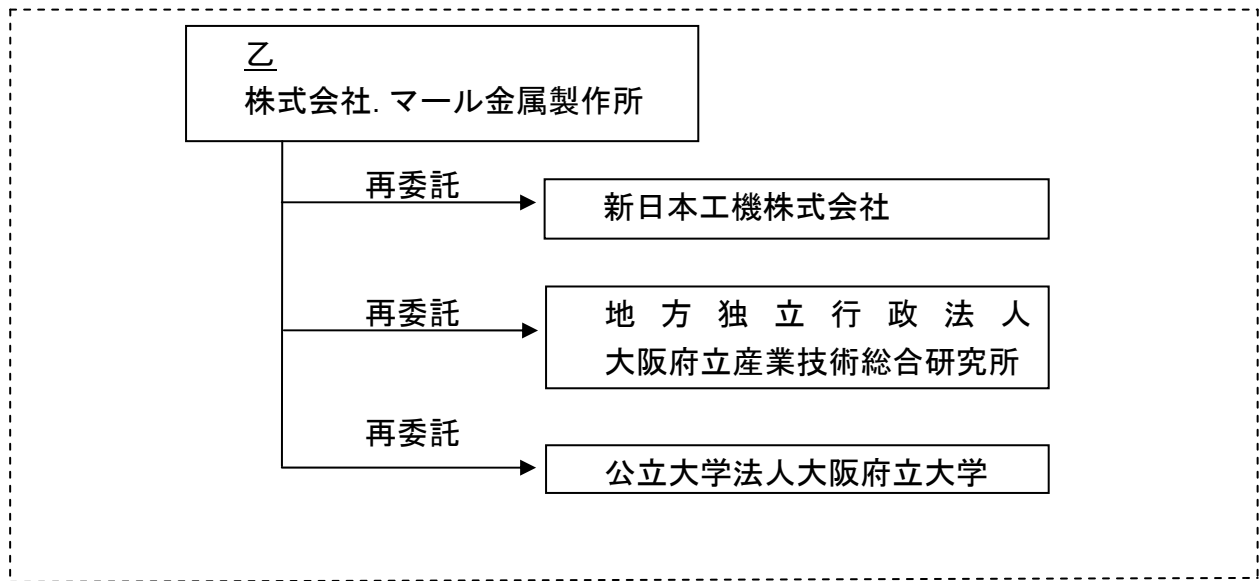
主課題研究項目

1. セパレーターの素材に関する課題は、主として成形性・導電性・酸耐食性等の確保にある。
2. セパレーター成形に関する課題は、主として表面処理材の成形・成形形状品質・成形表面品質・成形精度・工程短縮・仕上げレス等がある。
3. MEAに関する課題は、主として生産性向上・低コスト化・ハンドリングの容易性等がある。
4. セル自動組立に関する課題は、主として各要素部品の位置決め方法・位置決め精度・ハンドリング方法・積層方法・積層固定方法等がある。

1-2. 研究体制

(1) 研究組織及び管理体制

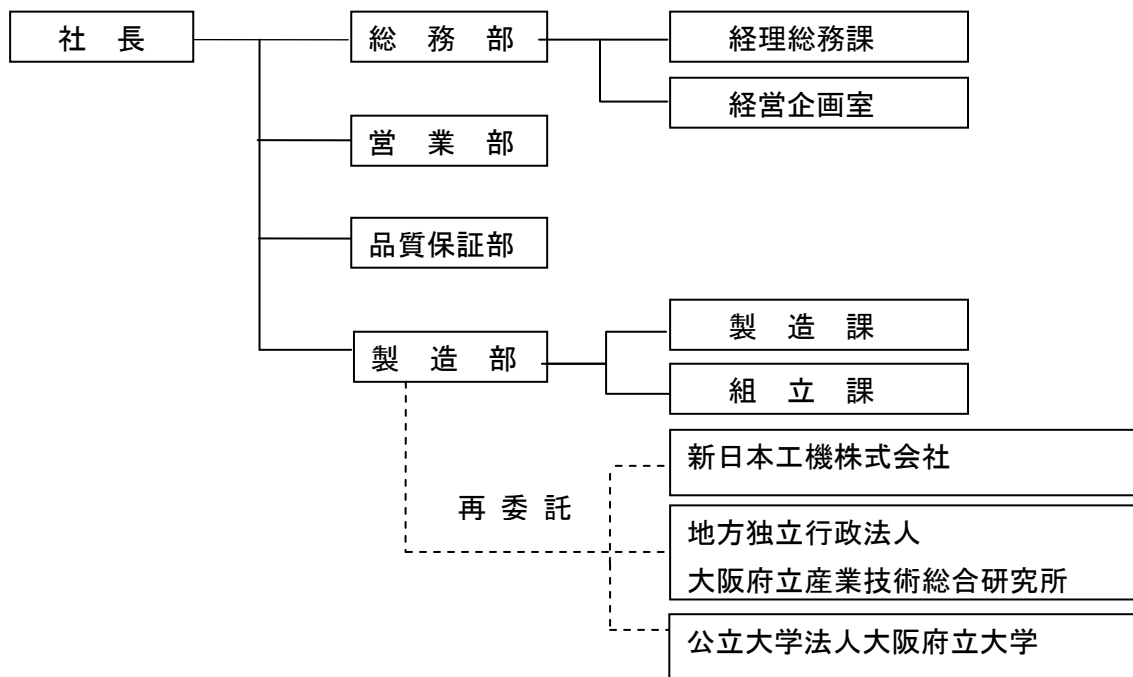
1) 研究組織（全体）



2) 管理体制

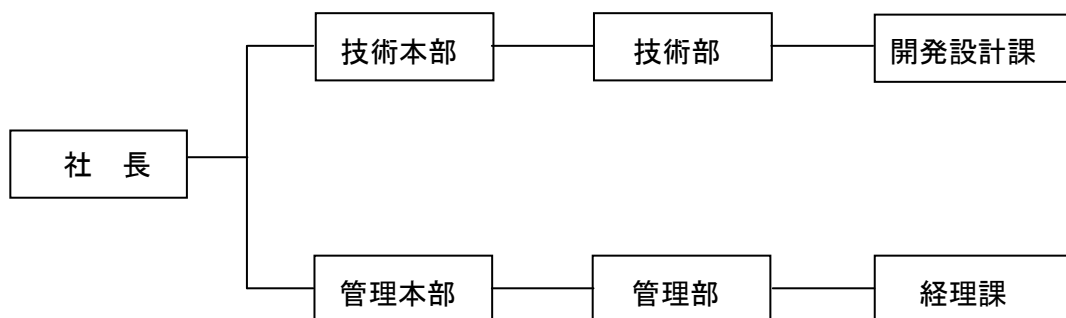
①事業管理機関

[株式会社. マール金属製作所]

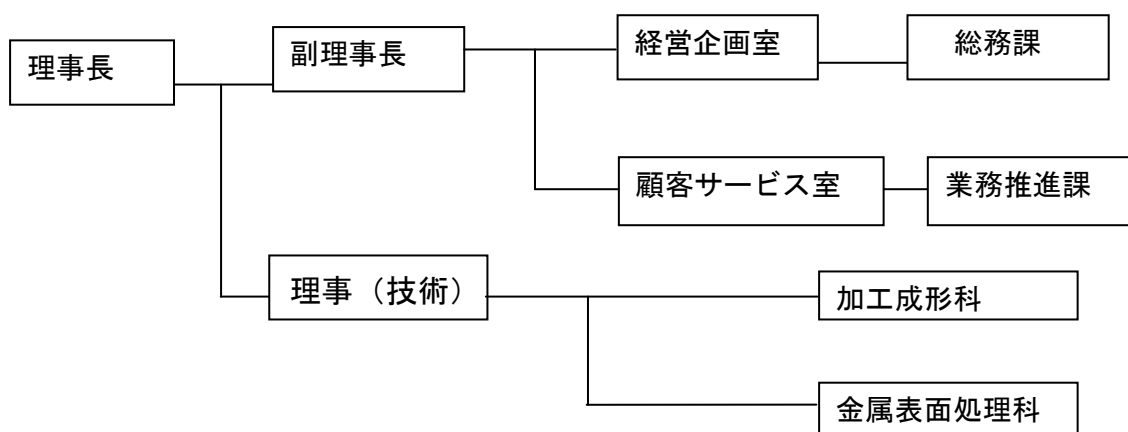


②（再委託先）

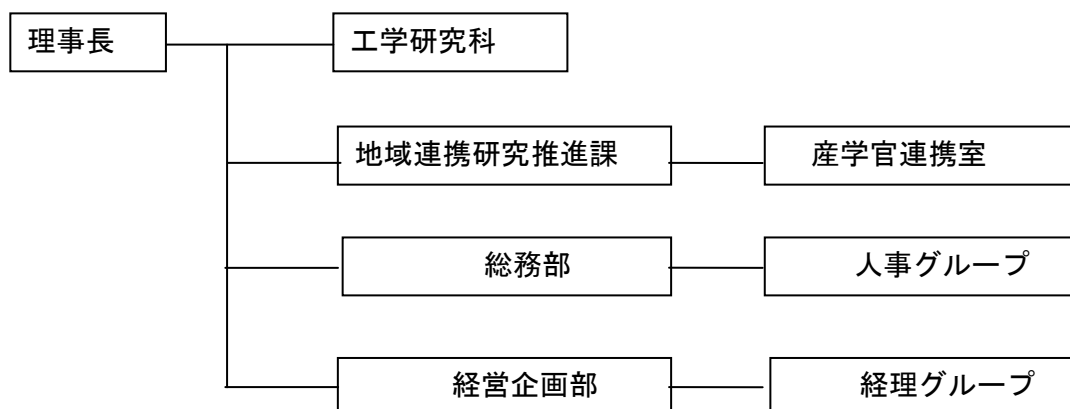
新日本工機株式会社



地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所



公立大学法人大阪府立大学



(2) 管理員及び研究員

【事業管理機関】株式会社 マール金属製作所

①管理員

| 氏名 | 所属・役職 | 実施内容(番号) |
|-------|-----------|----------|
| 天井 幹雄 | 総務部 経理総務課 | ⑤ |

② 研究員

| 氏名 | 所属・役職 | 実施内容(番号) |
|-------|----------|----------|
| 菅 啓造 | 製造部 製造部長 | ① ② ③ ④ |
| 飯沼 拓人 | 製造部 製造係長 | ① ② ③ ④ |

【再委託先】※研究員のみ

新日本工機株式会社

| 氏名 | 所属・役職 | 実施内容(番号) |
|-------|----------------|----------|
| 田中 和也 | 技術部 部長 | ③ ④ |
| 辰巳 信哉 | 技術部 開発設計課 専門課長 | ① ② ③ ④ |
| 田島 正 | 技術部 開発設計課 係長 | ③ ④ |
| 青田 英樹 | 技術部 開発設計課 | ③ ④ |

地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所

| 氏名 | 所属・役職 | 実施内容(番号) |
|-------|---------------|----------|
| 白川 信彦 | 加工成形科・主任研究員 | ① ② ③ ④ |
| 中本 貴之 | 加工成形科・主任研究員 | ③ |
| 西村 崇 | 金属表面処理科・主任研究員 | ① ③ |
| 四宮 徳章 | 加工成形科・研究員 | ① ② |

公立大学法人大阪府立大学

| 氏名 | 所属・役職 | 実施内容(番号) |
|-------|--------------------------------|----------|
| 井上 博史 | 大学院工学研究科 物質・化学系専攻 応用化学分野 教授 | ③ ④ |
| 樋口 栄次 | 大学院工学研究科 物質・化学系専攻 応用化学分野 助教 | ③ ④ |

1-3. 成果概要

①セパレーター素材に関する課題の解決

(株式会社・マール金属製作所、新日本工機株式会社、地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所) 大手鋼材メーカーが燃料電池用として開発している素材については自動車、電機等の大手メーカーとの契約材であり、殆ど入手出来ない状況であり、市中手配出来る一般的な素材を選定した。

市中手配できる一般材の中から SUS316L-BA 材(18Cr-12Ni低Cステンレス、光輝焼鈍材)と TR270 材(純チタン1種、ロール材)を選定し実験に使用した。平成 22 年度製作の成形基礎研究金型と平成 23 年度に流路等の設計変更した目標セパレーター金型を使用し、温間成形実験を行い、成形性評価を行った。

本研究では、素材からセルカートリッジまでの一貫製造の可能性を見出す事が最終目的であるため、成形前素材に表面処理を施し、表面処理済み素材にてセパレーター成形を実施出来る導電性且つ耐酸性を有し、更に成形ダメージのない表面処理が求められる。

酸耐食性の評価に関しては、pH1 で 50H の試験条件で昨年度から継続的に評価を行っている材料の内、ステンレス材は1年間にわたる試験においても、非常に優れた酸耐食性能を発揮している。

その結果、素材選定においてはステンレス系材料の選択が妥当と考え、ベース素材を SUS316L-BA 材(18Cr-12Ni 低 C ステンレス、光輝焼鈍処理材)に確定し、実験に使用した。

素材サイズは、すべて板厚 0.2 mm x 130 mm x 130 mm とし、セパレーター形状変更などに伴う基本的な成形テストはこの素材をベースに行った。さらに発電テストにおいても同材料で成形したセパレーターを用いて実施したが、実験実施範囲の期間内では問題になるような腐食、変色等は認められなかった。

さらに、成形品の形状測定の結果、温間成形による金型加熱での金型全体の剛性(弾性変形、たわみ)にも問題が懸念されたため、冷間成形向けダイセットを製作し、成形テストを実施した。

②セパレーター成形技術に関する課題の解決

(株式会社・マール金属製作所、新日本工機株式会社、地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所) セパレーター品質精度と機能を確保する上で、成形形状品質・成形精度を確保しながらも表面へのキズ・打痕、割れ・剥がれ等の表面品質を損なうことを極力避け得る成形技術の研究に使用するための成形基礎研究金型及び目標セパレーター金型を設計、製作した。

また、技術委員会で形状検討を行い、2 パターンの流路、溝深さ等の形状変更した組み換え可能なパーツ金型も設計、製作した。

平成 22 年度に製作した成形基礎研究金型は、サーボプレスに装着し、温間にてプレス成形実験を行った。

この温間成形におけるキーポイントは成形中の素材の効果的な温度分布であるが、ステンレス系材料においては、「ひねり」や「縁しわ」、TR270 材(純チタン)では「凹そり」が生じ、平坦度を確保できなかった。その理由として、パッド・ダイの効果的な温度勾配が付けられなかったと考えられる。

平成 23 年度設計・製作した目標セパレーター金型は効果的な温度勾配を実現するために、ダイの成形部にはヒーターを、フランジ部には通水出来る分割構造とした。すなわち、ダイの成形部とパンチをヒーターで加熱し、フランジを拘束するパッド部とダイの周辺部を冷却或いは、ヒーター加熱での温度制御することが可能になり、綿密な温度勾配制御が出来るようにした。

金型の精度検証では、スライド下限設定の確認、成形性チェックのために、これまでの条件に工夫を加え、実験を行い、SUS316-BA 材においては良好な成形品が得られた。

また、技術委員会で形状検討を行い、ガス流路の出入り口を各 3 箇所設けた 3 系統流路と各 1 箇所の 1 系統流路の 2 パターンのセパレーターパーツ金型を設計・製作した。

この金型はダイセットからの成形パーツのみの組み換えを可能にしたものであり、この金型を使用し、

各々発電テストも実施したが、結果として1系統タイプとする事とした。

これは、ガス漏れ等のリスク削減と気体流通効率から決定した。

金型の修正研磨、冷間成形向けダイセット等の適用により、平坦度の高いセパレーターを成形することができた。

③MEAに関する課題の解決

(株式会社・マール金属製作所、新日本工機株式会社、地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所、公立大学法人大阪府立大学)

MEAは固体高分子電解質膜・触媒被膜・気体極の積層体で構成されており、特に固体高分子電解質膜・触媒は高価な素材が使用されている。この材料の置き換え・使用量削減等により低コスト化を図ることが課題となっており、種々調査したが、電解質膜については一般に入手出来得るのは現在のところデュポン社製以外には無かった。

MEAは撥水化処理したカーボンペーパー上にバーコーターを用いて触媒インクを塗布し、室温乾燥後、ガス拡散層とし、市販の電解質膜であるナフィオン膜を挟み込みホットプレスすることにより作製した。成膜テストについては、将来的に電解質膜の成膜用原材料が入手可能になった時に対応出来る事を前提に成膜技術取得を目的とするテストを実施した。

また、装置自体には成膜巻き取り装置を新たに追加し連続成膜に対応出来るようにした。

テスト資材には、入手可能な汎用樹脂(ポリプロピレン:PP、ポリエチレン:PE、ポリカーボネート:PC、アフリクト:商品名)を使用した。

実験に於いては、目標のフィルム幅、厚さは目標値には若干至らなかったが、成膜時に塵等の不純物の付着やTダイに起因するスジ、キズ等の不具合原因が判明した。

フィルム成膜Tダイの寸法設定を変更、Tダイ内部の面粗度の更なる鏡面化の必要があることが判明した。素材入手が可能になれば、上記の内容も有用なノウハウの一部になると考えられる。

触媒インク塗布テストに関しては既存製缶印刷技術を基に印刷品位に関わる粘性・粒度・乾燥時間等を比較検討し、本研究における触媒インク創製の基準とした。

印刷状況を確認するため市販のインクを使用し、フィルムに転写テストを実施した。

インク投入後、各ロールへインクを転写して均質化を行い、最終ブランケットシリンダとフィルムが圧接することでフィルムにインクが転写され、転写されたフィルムをロール状に周回させつつ、インクの乾燥を促すことで、市販のフィルムへの転写は、想定通りの印刷が行えた。

また、インク供給ブレード部の調整容易化を実施、フィルム送り機構にはステアリング機能を付加しフィルム蛇行対策も実施した。

インク創成は引き続き模擬インクを創成することでカーボン(触媒代用品)の混合方法についての技術習得に努めた。

触媒に関しては、現在白金タイプが主流であり、白金の使用量削減等がNEDOの研究課題として研究中、また白金代替物質については九州大学などで研究中の課題であるため一般には入手困難な状況である。

本研究で得た、インク創成技術並びに印刷技術は先の課題が一般の物となったときに有用となると考えられる。

将来的に、触媒インク創成並びにインク塗布を内製化するにあたっては、本研究の装置をベースとし膜厚調整容易化、インク乾燥等を考慮した設備の必要性が判明した。

④セル自動組立に関する課題の解決

(株式会社. マール金属製作所、新日本工機株式会社、地方独立行政法人大阪府立産業技術総合研究所、公立大学法人大阪府立大学)

固体高分子形燃料電池の一般普及に対応する多量生産のためには自動化が最も効率が上がり、品質の均一化も図ることができる。その究極の姿は要素部品製作から組立までの一貫生産であり、その可能性は、セパレーター成形からセルカートリッジ組立までの一貫ラインにある。

この一貫生産方法を確認するために、平成 22 年度で作製した 1 次模擬カートリッジの軽量化とコンパクト化に取り組み、2 次、3 次模擬カートリッジを作製した。

模擬カートリッジ作製するにあたり、平成 23 年度に準備した外装モールド樹脂注入治具の注入シリンダー並びにサイド固定シリンダーをブーストアップ可能なように改造を実施した。

また、パワーアップに伴い支持側のブラケット部も強化した。

軽量化を図るため、カートリッジのバックアッププレートとサイドプレートをアルミに変更し、2 次カートリッジ重量 3kg に対し 3 次カートリッジは 1.95kg となり、ほぼ目標を達成した。

本開発において、組立ライン構想を具体的に明示するには至らなかったが、模擬カートリッジの製作を通じ、その組立時に於ける注意点と実際に発生した問題点を実感する事により、組立設備に装備すべき機能を机上ではなく実感として取得出来た。

また、生産ラインを設置するにあたっての環境面も認識する事が出来た。

全体として目標完結には至らなかったが、今後の取り組み継続に対し有用なデータが得られた。

1-4. 当該研究開発の連絡窓口

| | | |
|--------|--|-------|
| 所 属 | 株式会社. マール金属製作所 | 経理総務課 |
| 氏 名 | 天井 幹雄 | |
| 電 話 | 072-992-5251 | |
| F A X | 072-992-6553 | |
| E-mail | maruu@osk4.3web.ne.jp | |

第2章 本論

2-1 セパレーター素材に関する課題の解決

2-1-(1) セパレーターとしての機能を満たす表面処理の選定

強酸雰囲気さらされる金属セパレーターにおいては、成形性・導電性・酸耐食性を兼ね備えた表面処理の選択が大きな課題となる。合成樹脂・合成塗料等の延性素材もしくは汎用表面処理(DLC, メッキ等)の改良などの取り組みにより、課題解決を目指す。

セパレーター素材の選定

平成22年度は市中で容易に手配することのできる一般的な材種として以下の5種類を選定し、実験に使用した。素材サイズは、既保有の要素確認金型用および導電性・耐食性評価用として板厚0.2mm×100mm×100mm、成形基礎研究金型用として、板厚0.2mm×130mm×130mmの2種類とした。

- a) SUS304-BA材(18Cr-8Ni ステンレス, 光輝焼鈍材)
- b) SUS316L-BA材(18Cr-12Ni_低C ステンレス, 光輝焼鈍材)
- c) TR270材(純チタン1種, ロール材)
- d) A1050P材(純アルミニウム)
- e) C1100-0材(純銅)

以上の材料について、種々のプレスモーションでの冷間(常温)および温間成形実験を行い、成形性評価を行った。当初使用した金型は日本金型工業会西部支部保有のセパレーター成形金型で、本開発においては初期の要素確認用として適用したものである。この金型はヒータ等を内蔵しておらず、加熱できる構造ではないため、温間成形についてはマッフル炉にて成形素材のみを加熱(200~250℃)し、成形を行った。

金属セパレーターに対する表面処理の一般動向は、金メッキが主流であり、しかも成形後のセパレーターに対してメッキを施す手法である。

メッキは成形時の素材変形に追従しがたい性質があるため成形量・成形形状等の工夫がより厳しくなると予想される。

一般的見識によればPVD処理済・メッキ処理による表面には微細なものではあるが無数のピンホールが存在していると言われており、完全に母材を被覆することが出来ないとされているので、プレス加工の前後を問わず何らかの耐蝕試験による結果を検討する必要があると思われる。

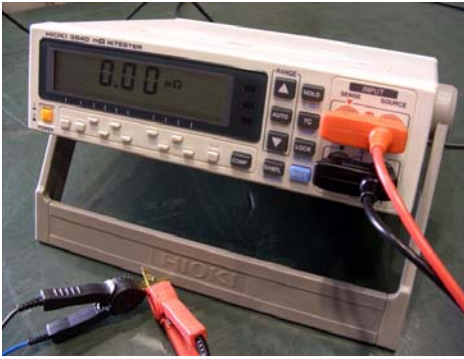
市中で一般的に手配できる表面処理として、以下の表面処理を外注依頼し、実験に供した。

- a) TiNコーティング
- b) DLCコーティング
- c) 導電性樹脂コーティング(樹脂A~Gの7種)

いずれも原板はSUS304またはSUS316材で、素板の保持等の作業上の問題もあり、一部未コーティングの箇所を有している。

タングステン系メッキ(NiWP合金メッキ・NiW合金メッキ)をPH1の酸性液(硫酸)に50時間浸した結果、タングステン系メッキと母材のSUS316材との親和性が悪く剥離してしまい被覆機能としての効果は認められなかった。

選定材の導電性、耐食性に関する性能評価は低抵抗計(日置電機(株)製ミリオームハイテスタ3540)を使用し、選定材の抵抗測定を行った。上記選定材から幅約5~10mmに測定試験片を切り出して抵抗測定を行い、平均値を求めた。



低抵抗計



電気抵抗値測定（セパレーター測定時）

導電性目標値（体積抵抗率； $10\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ 以下）に対して，選定材は $0.0017\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ （G1100-0材）～ $0.0801\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ （SUS316L-BA材）の範囲内であり，十分に満足していることがわかった．なお，コーティング材については，Niめっきステンレス鋼板で $0.0541\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ，TiNコーティングステンレスで $0.0751\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ，DLCコーティングステンレスで $0.0779\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ であった．（カーボンの体積抵抗率（参考文献値）； $3.35\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ ）

よって、セパレーター成形品質目標の導電性 $10\text{m}\Omega$ 以下は達成されたとと言える。

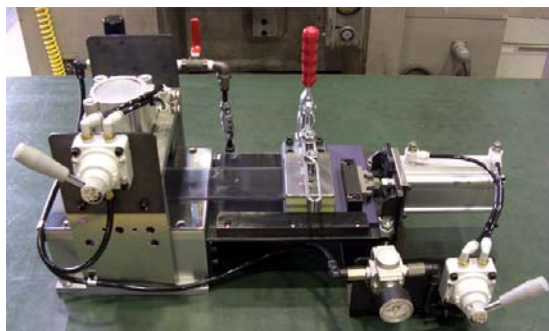
耐食性については、耐食性に優れている純チタン（TR270）材は，ステンレス系材料に比べて調達コストで2～3倍以上であったが，コーティング不要という判断になればステンレス+コーティングとのトータルコストで比較することができ，優位になる可能性がある．また本研究においては，純チタン（TR270）材はロール材での手配しかできなかったため，巻きグセを有したままの素材で成形性評価を行った．成形品の反りやひねりについては，その巻きグセの影響が出る場合があり，レベラでのひずみ取りやシート材での検討も考慮する必要がある．

耐食・導電性コーティングについては，コスト面の制約を含め，今後も検討が必要であると考えられる．

2-1-(2) 金型内移送を考慮した擦れ耐性の評価と擦れキズ等の表面品質評価

金型内移送を考慮した擦れ耐性の評価と擦れキズ等の表面品質評価を実施した。

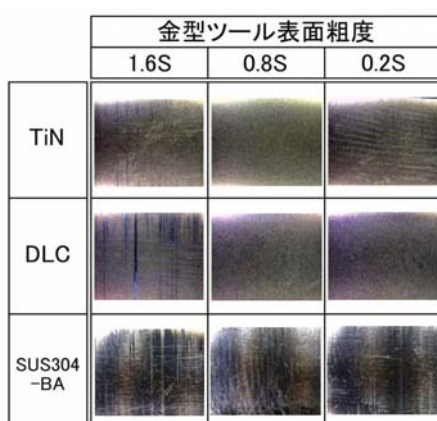
表面状態テスト治具（下図）を使用し、TiN および DLC コーティングステンレス素材表面の耐擦れ性の評価を行比較として、SUS304-BA 材についても実験を行った。



表面状態テスト治具

供試材から、25mm×10mm の短冊試験片を切り出し、表面粗度を 0.2S, 0.8S, 1.6S 相当に変化させた金型ツール(50mm 角)を約 1.25N/mm² の面圧で押し付け、約 30mm 摺動させた。

目視およびマイクロ스코プによる観察結果をそれぞれ下図に示す。擦れキズ等の外観品質の調査の結果、TiN および DLC コーティングについては、表面粗度 0.2S, 0.8S では良好な表面性状を維持し、十分な耐擦れ性能を有していることがわかった。SUS304-BA 材ではいずれの表面粗度の金型でもスクラッチ痕が認められたものの、0.8S 程度でキズがやや抑制される傾向を示した。



コーティング表面摺動試験結果（外観）



コーティング表面摺動試験結果（マイクロSCOPE観察）

表面粗度を変化させた金型ツールを用いた実験の結果、セパレーター成形金型のツール・移送経路等の表面仕様として、0.8s 相当以上の表面仕上げが必要であることがわかった。

平成 22 年度の検討結果より、23 年度は成形テスト用材料として以下の 2 種類を実験に使用した。素材サイズは、すべて板厚 0.2mm×130mm×130mm とした。

e) SUS316L-BA 材（18Cr-12Ni_低 C ステンレス、光輝焼鈍材）

f) TR270 材（純チタン 1 種、ロール材）

また、酸耐食性の評価に関しては、上記の材料に加え、昨年度の事業から継続的に評価を行っている SUS304, A1050P, C1100-0 と DLC コーティング材, TiN コーティング材, Au メッキ材, Ni メッキ材, Ni-P メッキ材を使用した。

耐食性に関する性能評価

酸耐食性に関しては、以下の試験条件で、pH1 で 50h の酸耐食テストを実施した。

試験溶液 : 0.5M 硫酸水溶液、常温、200ml

試験片 : 50mm×50mm、溶液中に浸漬

結果を表 1 にまとめて示す。

表より、目標値である 50 時間の耐食性確保の点では、A1050P, C1100-0, Ni メッキ材, Ni-P メッキ材の 4 種を除くステンレス系材料, 純チタン, コーティング材料で条件をクリアしていることがわかる。今回はさらに長期間に及ぶ耐食性評価を行っており、特に SUS304, SUS316 の両ステンレス材では 1 年間にわたる試験においても問題なく、非常に優れた酸耐食性能を発揮している。

今回の実験は PEFC セルの腐食環境そのものであるものの評価ではないが、金属セパレータの素材選定においてステンレス系材料の選択が妥当であり、これをベースとした導電・耐食コーティングの検討が有効であることが明らかになった。

表 1 酸耐食性試験定性評価

| | 50 時間 | 1 ヶ月 | 2 ヶ月 | 3 ヶ月 | 4 ヶ月 | 5 ヶ月 | 6 ヶ月 | 1 年 |
|--------|-------|------|------|------|------|------|------|------|
| SUS304 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| SUS316 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| Ti | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | 黒変 |
| Cu | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 |
| Al | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | なくなる | なくなる | なくなる | なくなる |
| DLC | ○ | ○ | ○ | ふくれ | ふくれ | ふくれ | ふくれ | ふくれ |
| TiN | ○ | ○ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ |
| DLC 加工 | ○ | ○ | ○ | ○ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ |
| TiN 加工 | ○ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ | はがれ |
| Au | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | |
| NiW | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 |
| NiWP | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 | 溶解 |

セパレーター素材の確定

平成 22～23 年度にかけての検討結果より、ベース素材を SUS316L-BA 材 (18Cr-12Ni_低 C ステンレス, 光輝焼鈍処理材) に確定し、実験に使用した。素材サイズは、すべて板厚 0.2mm×130mm×130mm とし、形状変更などに伴う基本的な成形実験は SUS316L-BA 材で行った。さらに、発電テストにおいても同材料で成形したセパレーターを用いて実施したが、実験実施範囲の期間内では問題になるような腐食、変色等は認められなかった。

2-2 セパレーター成形技術に関する課題の解決

2-2-(1) 基礎研究セパレーターの成形性評価

セパレーター品質精度と機能を確保する上で、成形形状品質・成形精度を確保しながらも表面処理面へのキズ・打痕、表面処理層の割れ・剥がれ等の表面処理品質を損なうことは極力避けなければならない。

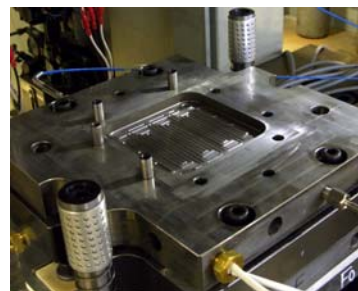
そこで、成形基礎研究用の金型を設計・製作し、①で選定したセパレーター素材を対象にした成形テスト（サーボプレス使用、冷間および温間成形）を行い、成形技術の確立を目指す。

押し込み量や成形速度、潤滑条件などを種々変化させた冷間成形トライ

本事業で手配した成形基礎研究用金型を産業技術総合研究所所有サーボプレス(コマツ産機(株), H1F200)に装着し冷間(温間)にてプレス成形実験を行った。以下は金型の外観である



成形機全体（サーボプレス取付け状態）



パンチおよびパッド部

成形基礎研究用金型

使用した材料は選定した5種類の材種全て、押し込み量は成形溝深さ 0.5mm 以上を確保するよう、材種に応じてスライド下限設定値を 349.0~349.5mm の範囲内で調整した。またスライドモーションの設定は以下の4種類に変化させ、成形品の状況（形状精度）を調べた。

- a) リンクモーション 40spm 相当（高速）
- b) リンクモーション 40spm 相当+下死点停止 1 秒
- c) リンクモーション 10spm 相当（低速）
- d) リンクモーション 10spm 相当+下死点停止 1 秒

その結果、ステンレス系材料および TR270 材においては、スライドモーションの変化に関わらず、凹反りやひねりを生じ、平坦度を確保できなかった。A1050P 材、C1100-0 材については、平坦度の良好な成形が得られる場合があり、A1050P 材に関しては低速成形（モーション c, d)）のほうが、C1100-0 材に関しては高速成形（モーション a, b)）のほうが良好であった。

いずれにしても、選定したステンレス系材料では、冷間成形において形状精度を達成することが困難であることがわかった。

押し込み量や成形速度、温度条件などを種々変化させた温間成形トライ

サーボプレスを用いて、温間（加温）にてプレス成形実験を行った。使用した材料は選定した5種類の材種全て、押し込み量は成形溝深さ 0.5mm 以上を確保するよう、材種、加温条件に応じてスライド下限設定値を 349.0~350.0mm の範囲内で調整した。またスライドモーションの設定は、冷間成形で検討した4種類に加え、下死点上 8mm の位置（ダイとパッドで素板を挟み込んだ状態）で 3~10 秒停止した後、中速で成形して下死点で 1 秒停止する変則モーション（以降、「温度勾配付与モーション」と呼ぶ）とした。

- a) リンクモーション 40spm 相当（高速）
- b) リンクモーション 40spm 相当＋下死点停止 1 秒
- c) リンクモーション 10spm 相当（低速）
- d) リンクモーション 10spm 相当＋下死点停止 1 秒
- e) 下死点上 8mm で 3～10 秒停止→リンクモーション 25spm 相当＋下死点停止 1 秒

加温条件は、金型に内蔵しているヒータを用いる場合として、i) ダイとパンチのみを 150°C に加熱、ii) ダイのみを 150°C に加熱、の 2 条件とした。

以上のスライドモーション設定、加温条件の組み合わせで各材料のプレス成形実験を行い、それぞれの成形品の状況（形状精度）を調べた。

その結果、いずれのスライドモーションにおいても、i) ダイとパンチを 150°C に加熱した場合には、ステンレス系材料や TR270 材においてはひねりや波うちなどを生じ、十分な平坦度を確保できなかった。A1050P 材、C1100-0 材においては凹反りを生じ、冷間成形より劣る結果となった。ii) ダイのみを 150°C に加熱した場合には、ステンレス系材料において凸反りの傾向を示し、平坦度を確保できなかった。

金型の加熱および冷却による温間成形トライアル

昨年度の委託事業で製作した基礎研究用金型は、パンチ、ダイ、パッド（板押さえ）それぞれを独立に温度制御することのできる棒状カートリッジヒータを内蔵しており、昨年度はこれを用いた温間成形の検討を行った。しかしながら、この温間成形におけるキーポイントは成形中の素板の温度分布であり、金型内蔵ヒータのみの温度コントロールでは、ヒータに通電していないパッドやパンチまでも熱伝導により温度が上がるなど、効果的な温度分布が実現できなかった。この基礎研究用金型は、初期設計の段階から冷却水を通すことを考慮しており、カートリッジヒータの配置穴を冷却水管として使用することができる。そこで、パッドに冷却水を通水し、ダイとパンチの温度をいくつか変更して成形試験を行った。

使用した材料は SUS316L-BA 材と TR270 材で、押し込み量は成形溝深さ 0.5mm 以上を確保するよう、材種や設定温度に応じてスライド下限設定値を調整した。またスライドモーションの設定は以下の 7 種類に変化させ、成形品の状況（形状精度）を調べた。特に g) のモーションは、パッドとダイで挟み込むことで効果的に素板の温度を上昇させ、さらに挟みこみの位置や保持時間を変更することで、温度分布を変化させることを目論んだものである。

- a) リンクモーション 40spm 相当（高速）
- b) リンクモーション 40spm 相当＋下死点停止 5 秒
- c) リンクモーション 25spm 相当（中速）
- d) リンクモーション 25spm 相当＋下死点停止 5 秒
- e) リンクモーション 5spm 相当（低速）
- f) リンクモーション 5spm 相当＋下死点停止 5 秒
- g) 下死点上 0.9～8mm で 3～10 秒停止→リンクモーション 25spm 相当＋下死点停止 1 秒

その結果、いずれの条件においても、ステンレス系材料においては「ひねり」や「縁しわ」、TR270 材においては、「凹そり」を生じ、平坦度を確保できなかった。この理由としては、パッドは水冷しているもののダイは全面をヒータ加熱しており、さらに素板の厚みが小さいため、挟み込み時にダイの熱による温度上昇が顕著になっていることが考えられる。すなわち効果的な温度勾配（パッドで挟み込むフランジ拘束面の温度が低く、中央の溝成形部の温度が高くなる状況）が付与できていないものと思われる。

上記テスト条件ではセパレーターとして有用ではないので、温間冷間等の条件を工夫したハイブリッド成形をすることで良品が得られた

2-2-2) 目標セパレーターの成形評価

評価の一環としてテスト用セルに良品1次セパレーターを組み込み、発電テストを実施した。

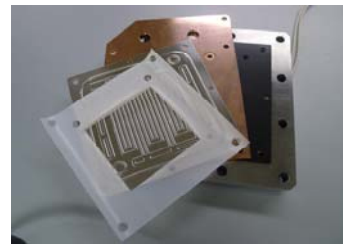
- ・必要面厚を加えるとセパレーター溝部が変形し平面部に歪みが発生した。
 - ・セル温度を80℃に加温するとガスケットの変形により気体流路に不具合が発生した。
 - ・発電結果は標準JARIセルの30%程度の能力であった。
- 発電テストの結果を下記表に示す。



発電評価装置セット状態



発電セル

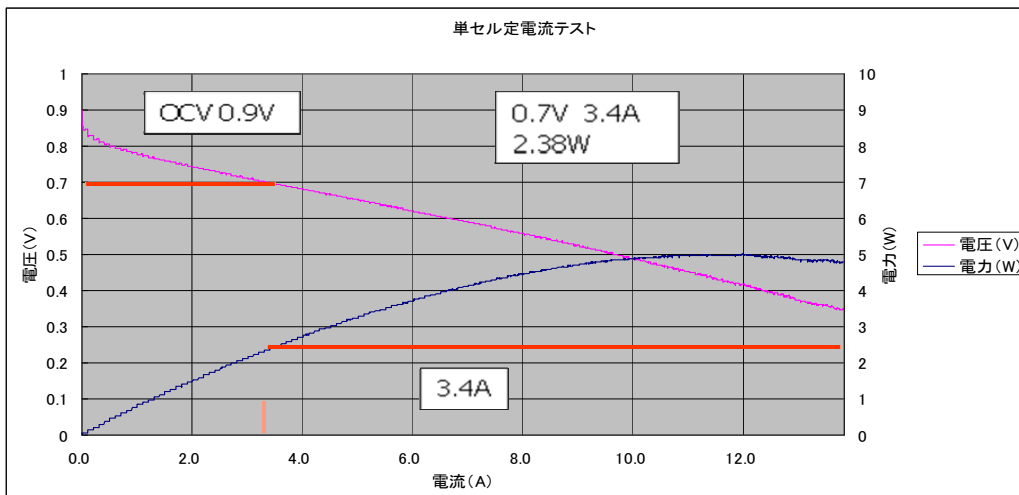


セル展開

一次セパレーター（単セル）発電テスト評価

| テスト条件 | |
|----------|----------------|
| セル温度 | 80℃ |
| 水素 | 200ml:0.15MPa |
| 空気 | 1000ml:0.15MPa |
| 水素加湿温度 | 80℃ |
| 空気加湿温度 | 60℃ |
| 電流上昇ステップ | 0.1A |
| 電流保持時間 | 10sec |

オリジナルセル仕様
MEA反応部分(面積)
70X70mm(49mm²)



発電能力2.38W

発電比 $2.38W \div [(49mm^2 \div 25mm^2) \times 3.85W] = 0.315$

24年度は第2次～第4次セパレーターまで製作し、成形良好品を用いて、それぞれの発電テストを実施した。

・第2次セパレーター

溝形状は矩形に近い形にして、プレス成形では平面部の変形を低減することはできた。しかしながら、組込み加圧時に変形が完全に無くなったわけではなく、ガスの通り道となるような隙間はできてしまった。また、セパレーターの形状として、水素入口と空気出口、水素出口と空気入口がお互いに近いために、ガスの混合が起こりやすくなり、電池性能を低下させていると思われる。

よって、上記問題が起こらぬよう、第3次セパレーターではミニビードおよびディンプルを追加することでセパレーター自体の剛性を上げ、組込み加圧した際の平面部の変形をより低減させるとともに、ガス出入り口付近で気体が混合しないようにビードを追加し、空気極、水素極の区域の完全隔離を図った。

・第3次セパレーター

ミニビード、ディンプルを追加することで、平面部の剛性が上がり、気体混合の問題は比較的解消されたが、完全な解決には至らなかった。

また、少量のガス流量にも関わらず、セル内部で異常な内圧が立っていた。

内圧の原因はセパレーターの構造上、膜やガスケットが部分的に拘束できない箇所があり、熱により膜やガスケットに変形が発生、特に気体出入り口付近で変形したそれらが溝に入り込むことで流路を狭め、水滴がそこに滞留。これが気体の流れを阻害した要因である。

上記問題に対して、MEA、ガスケットの気体出入り口の穴形状を工夫することで、溝への入り込みがなくなりガス流路遮断がなくなって、ガスの流れが改善し、その結果電池性能が向上した。

ただし、このセパレーターは気体出入り口が3箇所となる3本並列溝のため、気体混合のリスクを減らし、気体流れを単純化することを目的とした第4次セパレーターを準備した。

・第4次セパレーター

第3次セパレーターとの違いは3本並列溝から、1本の一般的なサーペンタイン構造の流路を採用したところにある。これにより流路形状が単純化され、ガスのリークする可能性の高い出入り口が各1箇所となり、漏れの軽減と気体流れの安定が図れ、電池性能がより向上した。

また、平面部の剛性を補助する目的で、セパレーターの反応面裏側に細工を施した。これにより適宜圧力が加わり、余分な歪がなくなり、ガス混合が低減し、電池性能がさらに上がった。

よって、本開発でのセパレーターはこれまでの発電結果を踏まえ、1本溝タイプで剛性を持たせ、歪の少ない第4次セパレーター形状に決定した。

ただ、本セパレーターは気体流通が良すぎるため、燃費効率が若干悪いように思われる。

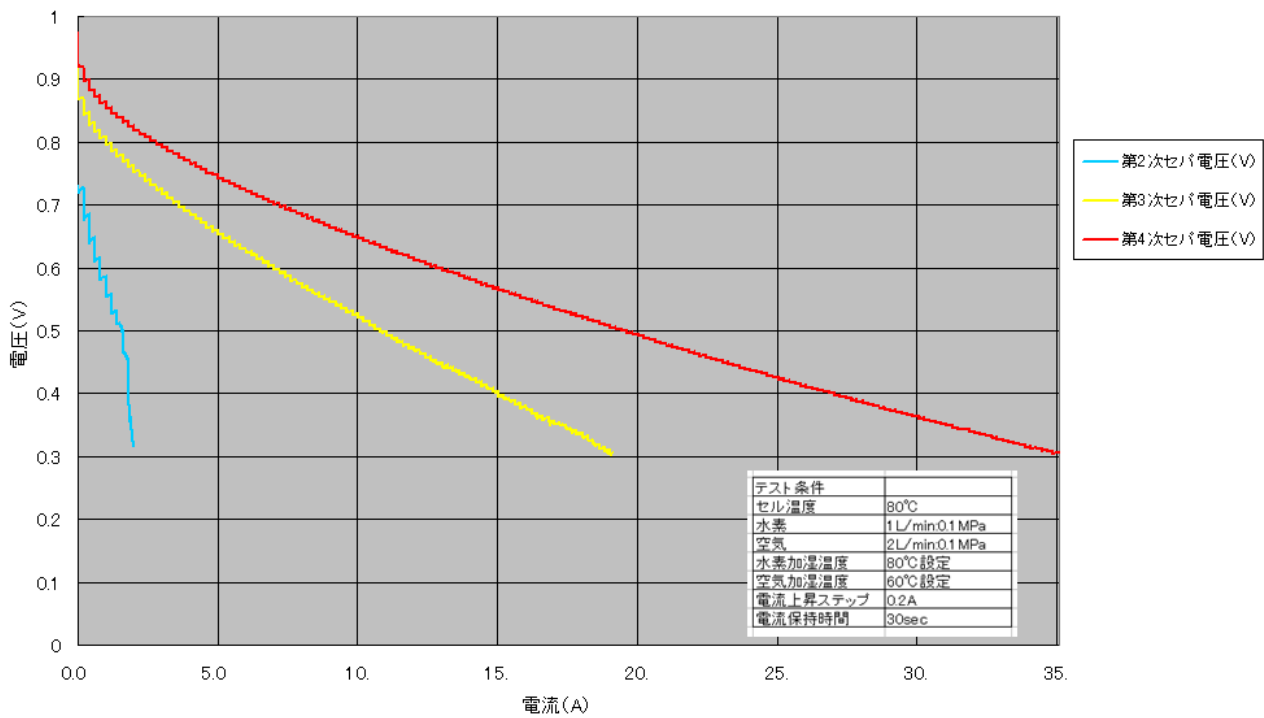
よって、気体の流れを阻害しないながらも、ある程度の滞留が必要であるという、相反する課題を解決する必要がある。



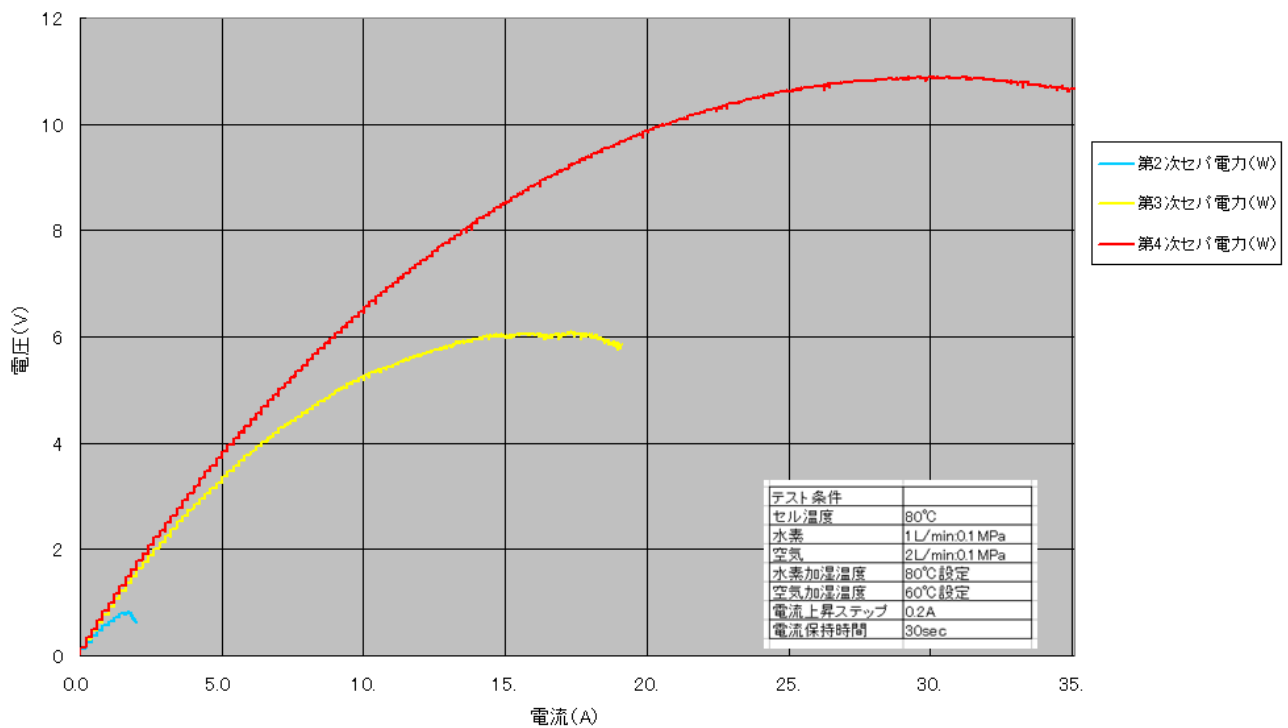
各世代セパレーター写真

各セパレーターでの発電テストの結果を以下に示す
 (添付資料 1、2、3 測定データ参照)

各セパレーター比較(電圧)



各セパレーター比較(電力)



結果は、セパレーターを変更するごとに電池性能は確実に向上している。
 また、安定性や再現性についても、第4次セパレーターに向かって著しく改善された。

2-3 MEAに関する課題の解決

MEAは固体高分子電解質膜・触媒被膜・気体極の積層体で構成されており、特に固体高分子電解質膜・触媒は高価な素材が使用されている。この材料置き換え・使用量削減等により低コスト化を図ることが課題となる。また、触媒の被膜化には高効率化と品質の均一化等が求められている。

生産性の向上・低コスト化・ハンドリングの容易性、この課題を実現すべく、MEAの作製や触媒インク創成の基礎研究に取り組む。

2-3-(1) 電解質膜の低コスト化

種々調査したが、電解質膜については我々一般に入手出来るのは現在のところデュポン社製以外には無い。

現在市販されているエネファームの製造会社、大手自動車会社などは化学系の会社とコラボし独自の膜を開発している模様である。

成膜テストについては、将来的に電解質膜の成膜用原材料が入手可能になった時に対応出来る事を前提に成膜技術取得を目的とするテストを実施した。

また、装置自体には成膜巻き取り装置を新たに追加し連続成膜に対応出来るようにした。

テスト資材には、入手可能な汎用樹脂（ポリプロピレン：PP、ポリエチレン：PE、ポリカーボネート：PC、アフリクト：商品名）を使用した。

| | 樹脂温度 (°C) | シートダイ温度 (°C) | スクリュウ 回転数 (rpm) | ギヤポンプ 回転数指令 値 (Hz) | ローラー温度 (°C) | 巻き取り速度 (m/min) | 結果 |
|-------|--------------|-----------------|-----------------------|--------------------------|----------------|-------------------|-----------------------------|
| PP | 165 | 190 | 10 | 14.5 | 30 | 0.3 | 柔軟であるが濁りあり |
| PE | 155 | 180 | 10 | 13 | 30 | 0.3 | 柔軟であるが濁りあり |
| PC | 170 | 200 | 10 | 14 | 45 | 0.3 | 硬くフィルムには不適 |
| アフリクト | 157 | 182 | 10 | 13.7 | 30 | 0.3 | 柔軟であり透明感もあるが フィルム同士の粘着あり |

成膜巻き取り装置



本試験にて目標のフィルム幅150mm、フィルム厚さ0.05mmは達成出来なかった。

また、成膜に塵等の不純物の付着とTダイに起因するスジキズが認められた。

しかしながら、フィルム成膜Tダイの寸法設定にあり、Tダイ吐出幅を20mm拡大、吐出高さを0.02縮小しTダイ内部の面粗度を極力鏡面状にする必要がある事が判明した。

また、巻きだし直後のローラー回転数を巻き取りローラーより120～150%程度高速化する必要が判明した。

また、発電テスト後セル分解時に電解質膜より刺激臭が感じられる事から成膜時に有害なガスの発生が懸念され、成膜設備を準備するには、成膜エリアを隔離出来る排気・塵対策を施した防護設備の必要性が判明した。

以上の事から、将来的に電解質膜材料が手に入り内製化する設備の仕様が判明した。

2-3-(2) 触媒被膜の高効率生成と品質の均一化

印刷装置ではインク供給ブレード部の調整容易化を実施し、フィルム送り機構にはステアリング機能を付加しフィルム蛇行対策を実施した。

両改良とも期待通りの機能を発揮した。

インク創成に関しては引き続き模擬インクを創成する事でカーボン（触媒の代用品）の混合方法についての技術習得に努めた。

具体的には、乳鉢を用いカーボン粒子の微細化と均一化を行い、その生成カーボンを乳鉢に残したまま溶剤を付加し、乳棒にて混合を行い比較的滑らかなカーボン溶融物が得られた。

しかしながら印刷ロールにてインクを引き延ばすと極少量ではあるが粒子の微少化が不十分である事が見受けられた。

微少化にあたっては、手作業にて実施したため今後の課題として機械式ミルによる作業が望ましいと考えられる。

乳鉢による微細作業



カーボン溶融インク



* 触媒インクならびにガス拡散電極の作製条件の決定を行うとともに金属セパレーターに適したガスケットを用いた5層タイプのMEAを作製した。

得られた知見をまとめると以下ようになる。

・触媒インクは、Pt/CB、超純水、2-プロパノール、Nafion アイオノマーの質量比が1：3：7：11となるように調製した。Nafion アイオノマーとカーボンブラックの質量比は1.0になるようにした。

・触媒インクは撥水化処理したカーボンペーパー上にバーコーター（バーNo. 4（巻線0.31mm））を用いて塗布し、室温で乾燥させた。この操作を4回繰り返した後、最後に100℃で12h乾燥させることによりガス拡散電極を得た。触媒担持量は0.5～0.6 mg cm²である。

・作製した2枚のガス拡散電極の間に厚さ50 μmのNafion膜を挟み、その外側にガスケットを配置して120℃、2 MPa、5 minの条件でホットプレスすることにより5層タイプのMEAを作製できた。

触媒に関しては現在白金タイプが主流であり、白金の使用量削減等がNEDOの研究課題として研究中、また白金代替物質については九州大学などで研究中の課題であるため我々一般には入手困難な状況である。

本研究で得た、インク創成技術並びに印刷技術は先の課題が一般の物となったときに有用となると考えられる。

将来的に、触媒インク創成並びにインク塗布を内製化するにあたっては、本研究の装置をベースとし膜厚調整容易化、インク乾燥等を考慮した設備の必要性が判明した。

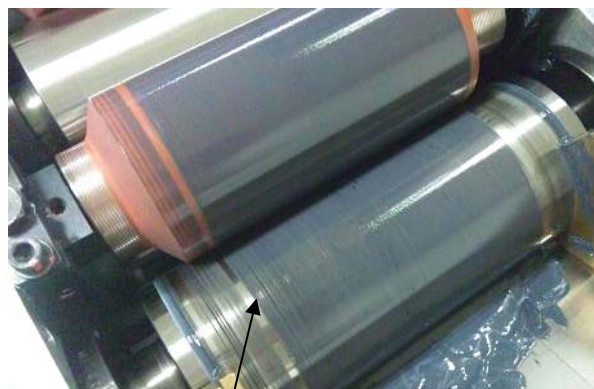
フィルム蛇行調整



インク伸ばしロール



昨年度



若干の微細化不足が見受けられる

2-4 セル自動組立に関する課題の解決

2-4-(1) 組立基本条件の整理とまとめ

目標セルカートリッジの基本構造は模擬カートリッジと同じとする。

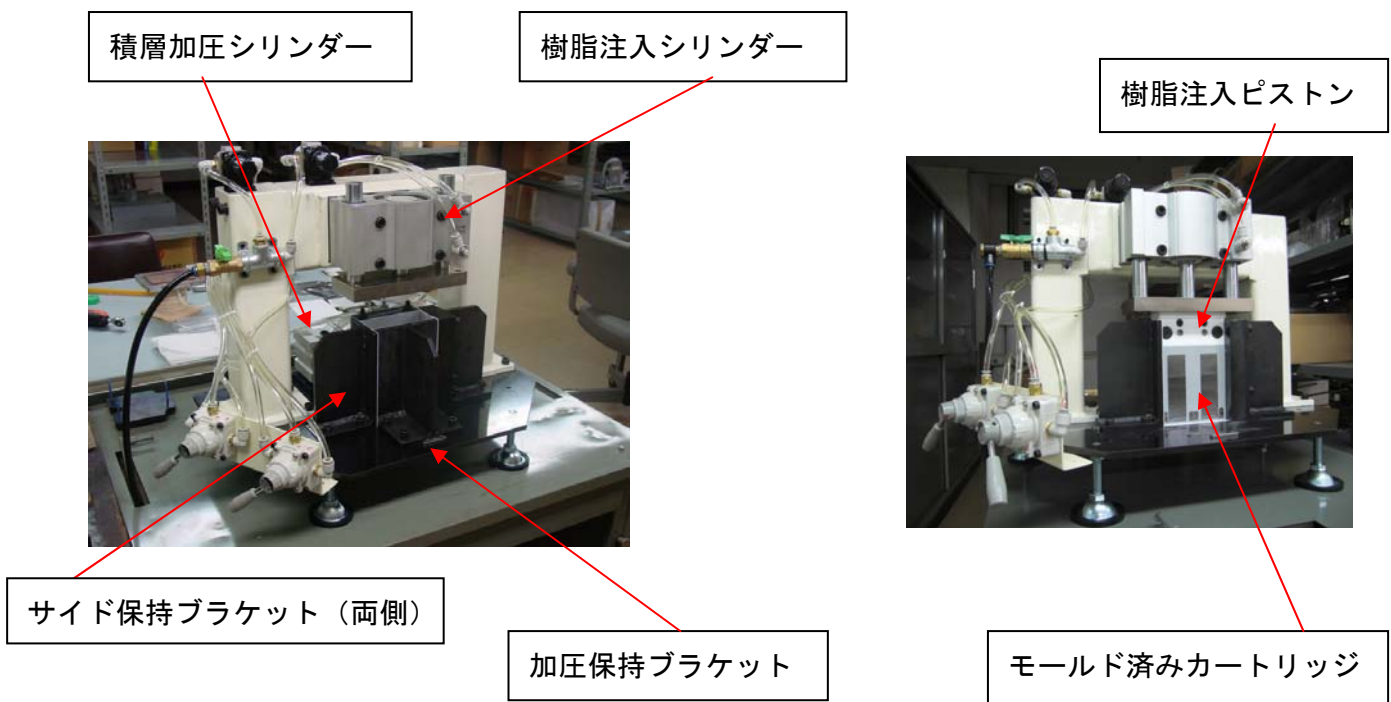
より樹脂注入を確実にするため、23年度準備した外装モールド樹脂注入治具の樹脂注入シリンダー並びにサイド固定シリンダーをブーストアップ可能なように改造を実施した。

パワーアップに伴い支持側のブラケット部も強化した。

注入シリンダーの圧力強化は樹脂注入を隅々まで行き渡らせる目的に有り、サイド固定シリンダーはセパレーターの内外分離ビードをより確実に圧接し、反応域への樹脂流入を防ぐ目的である。

本治具を使用し、3次製作模擬カートリッジの製作を行った。

2次製作カートリッジからの改良点はバックアッププレートとサイドプレートをアルミに変更し軽量化を図った。



結果、2次製作カートリッジ重量3kgに対し3次製作カートリッジは、1.95kgとなりほぼ目標を達成した。

尚、外観寸法については、141mm×130mm×33mmと、2次製作カートリッジと同じである。

外装モールドに適した樹脂の仕様が、今年度において確定する事が出来なかったため、樹脂モールド金型による模擬カートリッジ製作は見送った。(樹脂により金型仕様が異なるため)

2-4-(2) 組立ラインにおいて必要な機械と装備のまとめ

本開発において、組立ライン構想を具体的に明示するには至らなかった。

しかしながら、セパレーター成形、発電セル組立、発電テスト、成膜テスト、触媒インク塗布テスト等を通じ、今まで想像でしかなかったラインの姿、生産環境等が、ぼんやりではあるが、現実的な形で見えてきたと考える。

今後も継続した開発行為の実施により、より明確になると判断する。

特に、発電時に於けるガスの遮断に重きを置いた開発と組立を実施する必要があると思われる。

第3章 総括

3-1 複数年の研究開発成果

3年間の研究開発を通じ、金属セパレーターによる燃料電池の発電とコンパクトなカートリッジ化に取り組んできたが、発電に関しては、1セルの発電では目標値の90%程度の性能を達成出来た。カートリッジ化に関しては模擬カートリッジの製作実施を通じカートリッジの基本仕様と組立に於ける種々の課題を抽出、生産ラインに於ける課題も抽出出来た。

全体として、当初目標には届かなかったが、今後も同メンバーで開発を継続する事により、より製品化に近づける筋道が整ったと判断する。

今後は、残った課題を解決しながら実カートリッジでの発電を目標とし、2年後を目処に顧客確保用のプロトタイプを製作する予定である。