

〈技術レポート〉

PEFC用射出成形カーボン／樹脂セパレータの開発

浜松研究所 研究部門 村上 淳
清水 貴良

1. はじめに

近年、燃料の有する化学エネルギーを電氣的エネルギーに直接変換する燃料電池に関する需要が高まっている。燃料電池は数種類のもが提案され実用化研究が進められているが、その中で実用化に近いレベルまで達しているものが固体高分子型燃料電池（PEFC：Polymer Electrolyte Fuel Cell）である。

一般にPEFCは、電解質を含有するマトリックスを挟んで電極板が配置され、さらにその外側にセパレータが配置された単位セルを多数積層した構成、すなわち燃料電池スタックとして使用される（図1）。1kW級PEFC家庭用コジェネレーションシステムのセパレータ枚数は100枚程度の構成が一般的であり、1台の燃料電池に対して多数のセパレータが使用される。そのため、燃料電池スタックの全コストに占めるセパレータの割合は無視することが出来ず、セパレータのコストダ

ウンが求められている。

現在、PEFC家庭用コジェネレーションシステムではカーボン／樹脂複合系の材料が主に使用されている。PEFC家庭用コジェネレーションシステムで金属セパレータが忌避される理由として、溶出金属成分のFenton反応による電解質膜劣化の懸念や、製法（プレスによる板成形）上の問題から生じる形状制約が挙げられる。一方で、カーボン／樹脂複合系の材料では、導電性を確保するために多量のカーボンと少量の樹脂といった組成となるため、成形方法は成形材料流動特性の制約の少ないプレスモールド成形が主に採用されている。しかしながら、プレスモールド成形では、成形の自動化が困難、成形サイクルが長い、工程が複雑、製品バラツキが大きいといったコスト面と品質面それぞれの観点からの問題が指摘されている。

一部で射出成形の試みも散見されるが、筆者らの判断するところ実用性能を有するものは見当たらない。

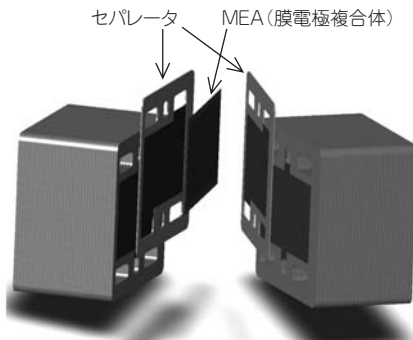


図1 燃料電池スタックの構造

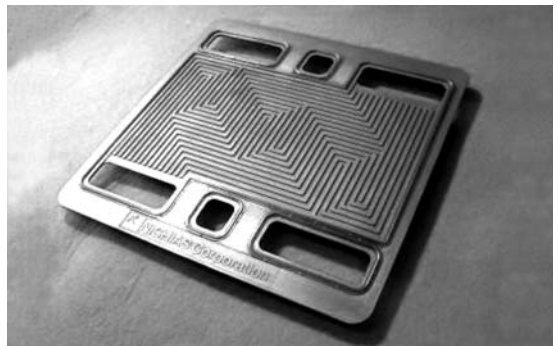


写真1 開発したセパレータ

このような背景の下、当社では黒鉛と熱硬化性樹脂を用いて流動性と導電性を両立した画期的な材料開発に成功した。さらに、従来から培ってきた独自の熱硬化性樹脂射出成形技術と併せることで写真1に示すような射出成形によるカーボン／樹脂複合系のセパレータを開発したので紹介する。

2. 当社セパレータの性能

2.1 一般特性

当社セパレータの材料特性を表1にまとめた。開発品A～Cはカーボンと樹脂の組成比を変更した材料である。いずれも射出成形で得られた成形体の測定値である。

貫通方向抵抗は厚さ2mmのセパレータ材を金メッキ電極板にカーボンペーパー製GDL (Gas Difusion Layer：ガス拡散層) を介して挟み、1MPaの荷重を印加した際のGDL間抵抗値にセパレータ材面積を掛けた値である(図2)。この測定値はセパレータ材の体積抵抗と、表裏2面分のセパレータ／GDL間接触抵抗を含んだ値となる。

当社セパレータはいずれの特性もセパレータに要求される基本性能を満たしており、低電気抵抗で高強度である。

表1 当社射出成形セパレータの特性

| | 単位 | 開発品A | 開発品B | 開発品C |
|---------|-------------------|------|------|------|
| 貫通方向抵抗 | mΩcm ² | 9.1 | 9.4 | 10.8 |
| 曲げ破壊強さ | MPa | 61.9 | 66.3 | 66.5 |
| 曲げ弾性率 | GPa | 10.5 | 9.8 | 9.3 |
| 曲げ破壊ひずみ | % | 0.7 | 0.8 | 0.8 |

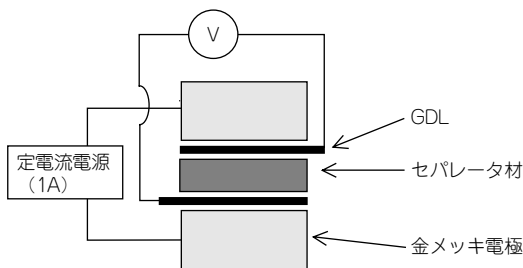


図2 貫通方向抵抗の測定方法

2.2 溶出特性

燃料電池内部での不純物溶出はMEA (Membrane Electrode Assembly：膜電極複合体)の劣化を促進することが知られており、燃料電池スタックの部材は低溶出であることが求められる。むしろ、セパレータに関しても例外ではない。

当社セパレータ材の溶出特性を紹介する。セパレータ材約10gを90℃のイオン交換水250ccに浸漬し、イオン交換水の溶出成分を分析した。サンプリングは所定時間(100, 250, 500時間)に行い、サンプリング時にイオン交換水を全量入れ替えた。成分分析にはICP-AESとイオンクロマトグラフィーを用いた。

代表して開発品Aの試験結果を表2に示す。殆どの成分が検出限界以下であり、当社セパレータ材は非常にクリーンな材料であることが確認された。当社セパレータを燃料電池に使用した際にMEA劣化に伴う発電性能低下などの不具合発生懸念は少ないといえる。

表2 セパレータ材からの溶出物 (単位：ppm)

| 総浸漬時間(h) | 100 | 250 | 500 |
|-------------------------------|-------|-----|-------|
| 浸漬時間(h) | 100 | 150 | 250 |
| Al | ND | ND | ND |
| Ba | ND | ND | ND |
| Ca | ND | ND | ND |
| Co | ND | ND | ND |
| Cr | ND | ND | ND |
| Cu | ND | ND | ND |
| Fe | ND | ND | ND |
| Mg | ND | ND | ND |
| Mn | ND | ND | ND |
| Mo | ND | ND | ND |
| Na | ND | ND | ND |
| Ni | ND | ND | ND |
| P | ND | ND | ND |
| Pb | ND | ND | ND |
| S | ND | ND | ND |
| Si | ND | ND | ND |
| Zn | 0.019 | ND | ND |
| Cl ⁻ | 0.018 | ND | ND |
| NO ₂ ⁻ | ND | ND | ND |
| Br ⁻ | ND | ND | ND |
| NO ₃ ⁻ | ND | ND | ND |
| PO ₄ ³⁻ | ND | ND | ND |
| SO ₄ ²⁻ | ND | ND | ND |
| NH ₄ ⁺ | ND | ND | 0.011 |
| K ⁺ | ND | ND | ND |

3. 射出成形について

セパレータの成形方法として現在主流のプレスモールド成形と、当社が取り組んでいる射出成形の比較を表3に示す。

射出成形は自動車部品、精密電子部品、日用品など多岐に渡って採用されている樹脂成形方法である。射出成形はプレスモールド成形と比較して成形サイクルが短く、無人化が容易であり、成形体寸法精度が高いといった大きいメリットがある。加えて、プレフォーミング工程が不要、再現性が高く製品バラツキが少ないため検査工程の簡略化可能といった前後工程を含めてのコストダウンメリットも大きい。

このように射出成形は優れた特長を有する成形方法であるが、成形材料の制約が大きくなるため、燃料電池セパレータへは容易に適用することは出来ない。成形材料の加工性と成形体特性はトレードオフの関係にあり、両特性を高い次元で達成することが燃料電池セパレータの射出成形には不可欠であるが、それは非常に困難だからである。射出成形では金型は閉じた状態であり、成形材料はゲートと呼ばれる狭い流路を通じて製品部キャビティに移送される。そのため金型の隅々まで充填させるために成形材料には高い流動性が必要となる。しかし、燃料電池セパレータとして必要な導電性確保には成形材料にカーボンを多量添加する必要があり、その結果、必然的に成形材料は流動性が低いものとなるため、常法により得られた材

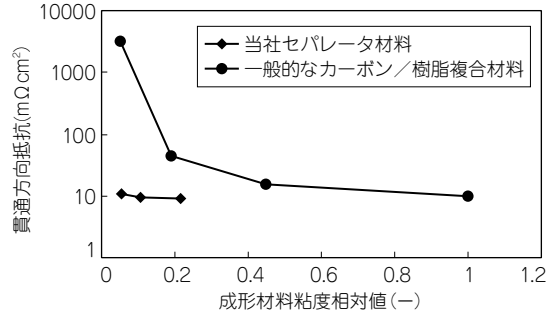


図3 成形材料粘度と成形体電気抵抗の関係

料では射出成形への適用は困難である。

当社では黒鉛と熱硬化性樹脂材料を主成分とする特殊な配合技術とコンパウンディング技術を駆使し上述したトレードオフの解決に成功した。当社のセパレータ材料の電気抵抗と成形材料粘度の関係を図3に示す。当社セパレータ材料は常法により得られた一般的なカーボン/樹脂複合材料と比較して低電気抵抗、低粘度であることがわかる。

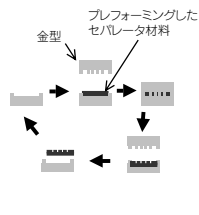
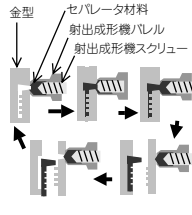
4. 厚さ精度向上への取り組み

以下、従来から培ってきた独自の熱硬化性樹脂射出成形技術による厚さ精度向上への取り組みについて述べる。

4.1 成形安定性

図4と図5にプレスモールド成形と射出成形によるセパレータ材料の厚さ分布を示す。図4、図5とも成形体形状は200×200×1t平板であり、材料はそれぞれ当社プレス成形用材料(図4)と表1

表3 プレスモールド成形と射出成形の比較

| 成形方法 | プレスモールド成形 | 射出成形 |
|--------|---|---|
| 工程 |  |  |
| 成形サイクル | 長い(×) | 短い(○) |
| 成形無人化 | 困難(×) | 容易(○) |
| 寸法精度 | 低い(×) | 高い(○) |
| 成形材料制約 | 低流動性でも成形可能(○) | 高流動性必要(×) |

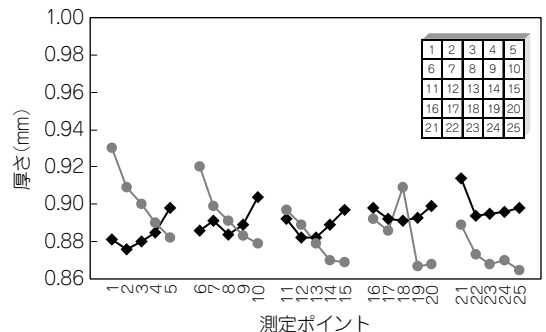


図4 プレスモールド品の厚さ

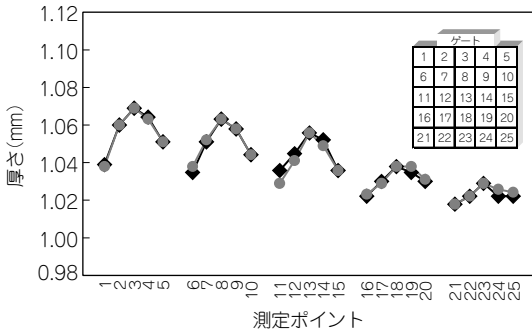


図5 射出成形品の厚さ

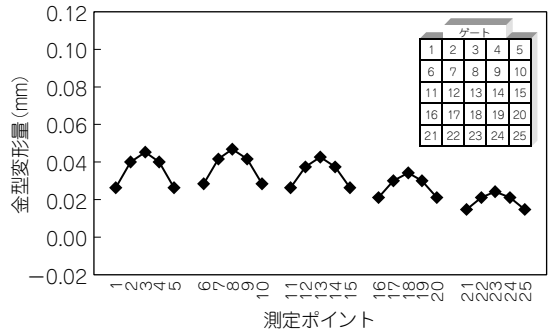


図7 構造解析FEMにより予測された金型変形量

の開発品C (図5) である。

両図とも無作為抽出した2ショットの成形体厚さを示している。プレス成形では成形の再現性が得られず成形体間の厚さバラツキが大きいことがわかる。これはプレフォーミング工程での材料チャージ量の差異等に起因する。一方で射出成形では成形体間の厚さバラツキは殆ど確認されず、一定の品質で製品が得られることを示している。これは射出成形の非常に優れた特長である。しかしながら、射出成形品にはゲート部分が厚くなる、ゲートから流動末端にかけての中央のラインが膨らむといった特定の面内厚さ傾向が確認される。この特定の厚さ傾向をキャンセルすることで、厚さ精度が高い成形体を得られることが期待される。

4.2 厚さ傾向のキャンセル

射出成形で特定の厚さ傾向が現れる原因について考察すると共に、その対策を実施した結果を次に述べる。

特定の厚さ傾向が現れる主原因は、成形の充填工程における金型内圧力による金型変形であると推定した。

流動解析により予測された充填直後の型内圧力を図6に示す。ゲート付近の圧力が高く、流動末端にかけて圧力が低くなることからわかる。この結果は金型内に複数設置した圧力センサーによる実測値とも傾向は一致する。さらに実測値で補正した圧力分布をFEM (Finite Element Method) による構造解析に適用したところ金型変形量は図7のように予想された。成形体厚さ実測値の図5と金型変形量予測値の図7は非常によく似た形となっている。すなわちゲート部分が厚くなる、ゲートから流動末端にかけての中央のラインが膨らむといった特定の厚さ傾向がFEM構造解析からも再現された。このことから、厚さ傾向発生の主原因は金型内圧力であることが裏付けられた。

前述したように射出成形品はショット毎の厚さバラツキが小さく、かつ、面内厚さ分布に影響を

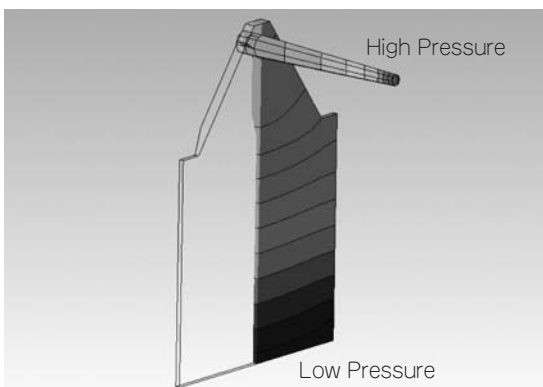


図6 流動解析により予測された充填直後の型内圧力

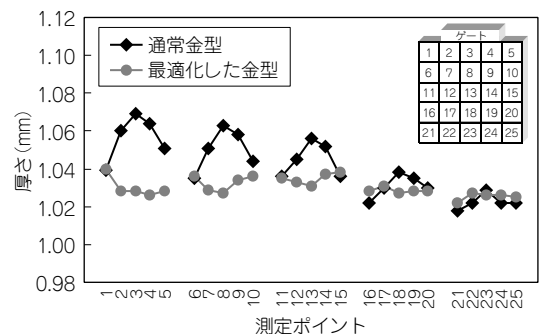


図8 金型構造を最適化した場合の厚さ精度

及ぼす原因は成形時の圧力であることから、金型構造を最適化することによって面内厚さ分布を小さくすることは容易である。

金型構造を最適化した場合の厚さ精度を図8に示す。ゲート部分が厚くなる、ゲートから流動末端にかけての中央のラインが膨らむといった射出成形品特有の特定面内厚さ傾向であるがキャンセルされ、成形体厚さの面内バラツキが小さくなっており、劇的な厚さ精度向上が確認された。

以上より、高寸法精度の燃料電池セパレータを射出成形で製造する場合は、材料技術だけでなく金型設計技術を含めた成形技術が非常に重要であることがわかる。当社はこれら技術を併せ持ち、かつ駆使することで高精度な射出成形燃料電池セパレータの開発に成功した。既に1kW級コジェネレーション用燃料電池セパレータで一般的なサイズである200×200×1t平板で厚さレンジ20μm程度の成形実績も得られている(図9)。これは成形体間の厚さバラツキが大きいプレス成形では達成困難なレベルのものである。

5. まとめ

カーボン／樹脂複合系の材料を用いて射出成形による燃料電池セパレータの開発に成功した。この燃料電池セパレータは高導電性と低溶出特性を保持しつつ、プレス成形では達成困難な生産性と寸法精度を兼備している。このことがPEFC

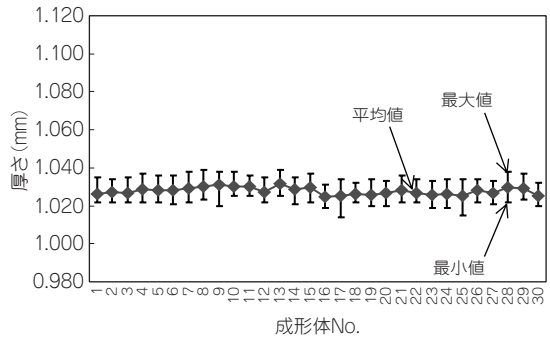
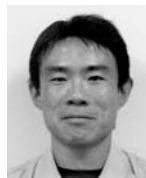


図9 成形体の寸法安定性

コジェネレーションシステム実用化の一助となり、さらにはCO₂削減による地球温暖化防止に役立てば幸甚である。

筆者紹介



村上 淳

浜松研究所 研究部門



清水貴良

浜松研究所 研究部門