

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 661 839**

51 Int. Cl.:

H01M 8/02	(2006.01)	C25D 3/30	(2006.01)
C22C 38/00	(2006.01)	C22C 19/03	(2006.01)
C22C 38/18	(2006.01)	C25D 5/36	(2006.01)
C25D 7/06	(2006.01)	H01M 8/1018	(2006.01)
C25D 11/34	(2006.01)	C25D 3/38	(2006.01)
C25D 5/10	(2006.01)	C25D 3/46	(2006.01)
C25D 5/12	(2006.01)	C25D 3/48	(2006.01)
H01M 8/021	(2006.01)	C25D 3/60	(2006.01)
H01M 8/0228	(2006.01)		
C25D 3/12	(2006.01)		

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **02.09.2014 PCT/JP2014/004509**
- 87 Fecha y número de publicación internacional: **30.04.2015 WO15059857**
- 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **02.09.2014 E 14856149 (1)**
- 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **27.12.2017 EP 3062376**

54 Título: **Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de polímero sólido**

30 Prioridad:

22.10.2013 JP 2013219381
31.10.2013 JP 2013227451
09.01.2014 JP 2014002578

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
04.04.2018

73 Titular/es:

JFE STEEL CORPORATION (100.0%)
2-3, Uchisaiwaicho 2-chome Chiyoda-ku
Tokyo 100-0011, JP

72 Inventor/es:

YANO, TAKAYOSHI y
ISHIKAWA, SHIN

74 Agente/Representante:

MILTENYI, Peter

ES 2 661 839 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de polímero sólido

Campo técnico

- 5 La divulgación se refiere a una lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero que tiene una excelente propiedad de resistencia a la corrosión y propiedad de adhesión.

Antecedentes

- 10 En los últimos años, se están desarrollando pilas de combustible que tienen una excelente eficiencia de generación y no emiten CO₂ para la protección medioambiental global. Una pila de combustible de este tipo genera electricidad a partir de H₂ y O₂ a través de una reacción electroquímica. La pila de combustible tiene una estructura básica de tipo sándwich e incluye una membrana de electrolito (membrana de intercambio iónico), dos electrodos (electrodo de combustible y electrodo de aire), capas de difusión de gas de O₂ (aire) y H₂, y dos separadores.

- 15 Las pilas de combustible se clasifican como pilas de combustible de ácido fosfórico, pilas de combustible de carbonato fundido, pilas de combustible de óxido sólido, pilas de combustible alcalinas y pilas de combustible de membrana de intercambio de protones (PEMFC) o pilas de combustible de electrolito de polímero (PEFC) según el tipo de membrana de electrolito usada, cada una de las cuales están desarrollándose.

De estas pilas de combustible, las pilas de combustible de electrolito de polímero tienen, por ejemplo, las siguientes ventajas con respecto a otras pilas de combustible.

- (a) La temperatura de funcionamiento de la pila de combustible es de aproximadamente 80°C, de modo que puede generarse electricidad a una temperatura significativamente baja.
- 20 (b) El peso y tamaño del cuerpo de la pila de combustible puede ser reducido.
- (c) La pila de combustible puede iniciarse rápidamente, y tiene una alta eficiencia de combustible y densidad de energía.

Por tanto, se espera que las pilas de combustible de electrolito de polímero se usen como fuentes de energía en vehículos eléctricos, generadores estacionarios domésticos o industriales y pequeños generadores portátiles.

- 25 Una pila de combustible de electrolito de polímero extrae electricidad a partir de H₂ y O₂ por medio de una membrana de polímero. Tal como se ilustra en la figura 1, se intercala un cuerpo unido de membrana-electrodo 1 entre capas de difusión de gas 2 y 3 (por ejemplo, papel carbón) y separadores (placas bipolares) 4 y 5, formando un único componente (una única pila). Se genera una fuerza electromotriz entre los separadores 4 y 5.

- 30 El cuerpo unido de membrana-electrodo 1 se denomina conjunto de membrana-electrodo (MEA). El cuerpo unido de membrana-electrodo 1 es un conjunto de una membrana de polímero y un material de electrodo tal como negro de carbono que porta un catalizador de platino sobre las superficies delantera y trasera de la membrana, y tiene un grosor de varios 10 μm a varios 100 μm. Las capas de difusión de gas 2 y 3 están a menudo integradas con el cuerpo unido de membrana-electrodo 1.

- 35 En el caso de usar realmente pilas de combustible de electrolito de polímero, normalmente se conectan en serie de varias decenas a cientos de pilas individuales tales como las anteriores para formar un apilamiento de pilas de combustible y se usan.

Se requiere que los separadores 4 y 5 funcionen no sólo como

- (a) paredes de división que separan pilas individuales,
- sino también como
- 40 (b) conductores que portan los electrones generados,
- (c) conductos de aire 6 a través de los cuales fluye O₂ (aire) y conductos de hidrógeno 7 a través de los cuales fluye H₂, y
- (d) conductos de escape a través de los cuales se expulsa el agua o gas generados (los conductos de aire 6 o los conductos de hidrógeno 7 también sirven como conductos de escape).

- 45 Por tanto, los separadores necesitan tener excelente durabilidad y conductividad eléctrica.

Con respecto a la durabilidad, se esperan aproximadamente 5000 horas en el caso de usar la pila de combustible de electrolito de polímero como fuente de energía en un vehículo eléctrico, y se esperan aproximadamente 40000 horas en el caso de usar la pila de combustible de electrolito de polímero como generador estacionario doméstico o similar.

Dado que la conductividad de protones de la membrana de polímero (membrana de electrolito) disminuye si se lixivian iones metálicos debido a la corrosión, los separadores necesitan ser duraderos para la generación a largo plazo.

5 Con respecto a la conductividad eléctrica, se desea que la resistencia de contacto entre el separador y la capa de difusión de gas sea lo más baja posible, porque un aumento en la resistencia de contacto entre el separador y la capa de difusión de gas provoca una menor eficiencia de generación de la pila de combustible de electrolito de polímero. Una menor resistencia de contacto entre el separador y la capa de difusión de gas contribuye a una mejor propiedad de generación de energía.

10 Ya se han comercializado pilas de combustible de electrolito de polímero que usan grafito como separadores. Los separadores hechos de grafito son ventajosos en cuanto a que la resistencia de contacto es relativamente baja y además no se produce corrosión. Sin embargo, los separadores hechos de grafito se rompen fácilmente con los impactos, y por tanto no son ventajosos en cuanto a que la reducción de tamaño es difícil y el coste de procesamiento para formar conductos de flujo de gas es alto. Estas desventajas de los separadores hechos de grafito dificultan el uso generalizado de pilas de combustible de electrolito de polímero.

15 Se han realizado intentos para usar un material metálico como material separador en lugar de grafito. En particular, se han llevado a cabo diversos estudios para comercializar separadores hechos de acero inoxidable, titanio, una aleación de titanio, o similares para obtener una durabilidad mejorada.

20 Por ejemplo, el documento de patente (PTL) 1 da a conocer una técnica de uso, como separadores, de un metal tal como acero inoxidable o una aleación de titanio que forma fácilmente una película pasiva. Sin embargo, la formación de la película pasiva provoca un aumento en la resistencia de contacto, y conduce a menor eficiencia de generación. Por tanto, se ha indicado que estos materiales metálicos tienen problemas tales como alta resistencia de contacto y baja propiedad de resistencia a la corrosión en comparación con el material de grafito.

25 El documento PTL 2 da a conocer una técnica de chapado de la superficie de un separador de metal tal como una chapa de acero inoxidable austenítico (SUS304) con oro para reducir la resistencia de contacto y garantizar un alto rendimiento. Sin embargo, es difícil evitar la formación de picaduras en un chapado de oro fino, y un chapado de oro grueso es problemático en cuanto al coste.

Para resolver estos problemas, se propuso previamente en el documento PTL 3 “una chapa de metal para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero en la que se forma una película hecha de una capa de aleación de Sn sobre la superficie de un sustrato de metal y la película incluye partículas conductoras”.

30 **Lista de referencias**

Bibliografía de patentes

PTL 1: JP H8-180883 A

PTL 2: JP H10-228914 A

PTL 3: JP 2012-178324 A

35 PTL 4: JP 2013-118096 A

Sumario

(Problema técnico)

40 Mediante el desarrollo de la chapa de metal para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero descrita en el documento PTL 3, se logró mejorar la propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero.

Sin embargo, en aplicaciones a pilas de combustible usadas en vehículos, etc., se necesitan separadores más finos para hacer que las pilas de combustible sean más compactas en cuanto al espacio de instalación y la eficiencia energética.

45 Por consiguiente, en el documento PTL 4 se propuso un método de tratamiento de superficie para separadores de pilas de combustible en el que la superficie de un sustrato hecho de acero inoxidable con alto contenido en Cr se somete a tratamiento electrolítico en el ánodo que induce una reacción de disolución transpasiva de Cr y luego se somete inmediatamente a formación de capa de Ni_3Sn_2 , sin la formación de una capa intermedia.

50 Por tanto, se logró obtener separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero que tienen una excelente propiedad de resistencia a la corrosión incluso en el caso en el que la película hecha de la capa de aleación de Sn tal como la capa de Ni_3Sn_2 (denominada a continuación “capa de aleación de Sn”) se hace más fina.

En el procedimiento de fabricación de la pila de combustible, es necesaria una alta adhesión entre el sustrato y la capa de aleación de Sn de manera que la capa de aleación de Sn no se desprenda del sustrato. Sin embargo, con la técnica descrita en el documento PTL 4, la propiedad de adhesión no siempre es suficiente, por ejemplo, en el procedimiento de formación del separador para dar una forma deseada, en el procedimiento de ensamblaje de la pila de combustible, o cuando la pila de combustible vibra de manera violenta durante su uso, y existe la posibilidad de que la película se desprenda.

Por tanto, podría ser útil proporcionar una lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero que no sólo tengan una excelente conductividad eléctrica sino que también tengan tanto una excelente propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero como una excelente propiedad de adhesión entre el sustrato y la capa de aleación de Sn incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más fina.

(Solución al problema)

Se empleó una lámina de acero inoxidable como material de separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero, y se estudiaron diversos procedimientos de formación de película para la lámina de acero inoxidable.

Como resultado, se hicieron los siguientes descubrimientos.

(1) En primer lugar, para mejorar la propiedad de adhesión, se intentó formar una capa de fijación hecha de una capa de metal puro de Ni, Cu o similares como película de base sobre la superficie de un sustrato hecho de lámina de acero inoxidable, antes de la formación de una capa de aleación de Sn. Entonces se descubrió que formar la capa de fijación como película de base sobre la superficie del sustrato hecho de lámina de acero inoxidable mejora significativamente la propiedad de adhesión de la capa de aleación de Sn. Sin embargo, la formación de la capa de fijación es desventajosa en cuanto a la compacidad.

(2) A continuación, se intentó formar una capa de aleación de Sn más fina después de formar la capa de fijación, y se descubrió lo siguiente. Cuando la capa de aleación de Sn se hace más fina, aumentan los defectos desde la capa de aleación de Sn hasta el sustrato hecho de lámina de acero inoxidable, y la capa de fijación se corroe continuamente a través de estos defectos. Esto provoca que la capa de aleación de Sn por encima la capa de fijación se desprenda, exponiendo el sustrato de lámina de acero inoxidable al entorno de uso del separador. Como resultado, la propiedad de resistencia a la corrosión se degrada significativamente.

(3) Se llevó a cabo una investigación adicional para evitar la degradación de la propiedad de resistencia a la corrosión en el caso de hacer la capa de aleación de Sn más fina.

Como resultado, se descubrió que, limitando el peso de recubrimiento de la capa de fijación al intervalo de $0,001 \text{ g/m}^2$ a 1 g/m^2 , lo cual que es menor que en técnicas convencionales, se suprime la corrosión continua de la capa de fijación, de modo que la degradación de la propiedad de resistencia a la corrosión asociada con el desprendimiento de la capa de aleación de Sn se evita eficazmente sin degradación de la propiedad de adhesión.

La razón por la que limitar el peso de recubrimiento de la capa de fijación al intervalo de $0,001 \text{ g/m}^2$ a 1 g/m^2 suprime la corrosión continua de la capa de fijación parece ser la siguiente.

Al limitar el peso de recubrimiento de la capa de fijación a un intervalo menor que en técnicas convencionales, una parte discontinua tal como un área sin chapado de la capa de fijación aparece sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable, y esta parte discontinua de la capa de fijación actúa como un área que inhibe la propagación de la corrosión. Por tanto, la corrosión continua de la capa de fijación puede suprimirse incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más fina.

(4) También se descubrió que, aunque la capa de fijación puede ser una capa de metal puro de Au, Ag, Cu, Ni, o similar o una capa de aleación que incluye al menos un tipo seleccionado de estos elementos, una capa de fijación de Ni-P hecha de una capa de aleación de Ni y P es particularmente adecuada como capa de fijación por su bajo coste de material y excelente propiedad de resistencia a la corrosión. Se descubrió además que, limitando el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P al intervalo del 5% al 22% en masa, puede mantenerse una excelente propiedad de resistencia a la corrosión de manera más estable incluso en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno de uso del separador.

La razón para esto parece ser la siguiente. Al limitar el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P al intervalo del 5% al 22% en masa, se forma un compuesto de Ni-P más estable en el entorno de uso del separador, siendo posible suprimir adicionalmente la corrosión de la capa de fijación.

(5) Además, se descubrió que recubrir la superficie de la capa de aleación de Sn con una capa de óxido que contiene Sn mejora adicionalmente la propiedad de resistencia a la corrosión.

La razón para esto parece ser la siguiente. Puesto que la capa de óxido que contiene Sn es muy estable en el entorno de uso del separador, recubrir la superficie de la capa de aleación de Sn con la capa de óxido que contiene

Sn suprime la corrosión de la capa de aleación de Sn de manera eficaz. La propiedad de resistencia a la corrosión puede mejorarse adicionalmente mediante un efecto de este tipo.

La divulgación se basa en los descubrimientos anteriores.

Por tanto, se proporciona una lámina de acero inoxidable según la reivindicación 1.

- 5 2. La lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímeros según el punto anterior 1, en la que capa de aleación de Sn incluye al menos un tipo de elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni y Fe.
3. La lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según los puntos anteriores 1 ó 2, en la que la capa de aleación de Sn incluye al menos un tipo seleccionado del grupo que
- 10 consiste en Ni_3Sn_2 , Ni_3Sn_4 , SnFe y $FeSn_2$.
4. La lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según uno cualquiera de los puntos anteriores 1 a 3, en la que la capa de fijación incluye al menos un tipo de elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.
5. La lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según el punto anterior 4, en la que la capa de fijación está hecha de una capa de aleación de Ni y P, y tiene un contenido de P en el intervalo del 5% al 22% en masa.
6. La lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según uno cualquiera de los puntos anteriores 1 a 5, que incluye una capa de óxido que contiene Sn sobre una superficie de la

20 (Efecto ventajoso)

Es posible obtener un separador de una pila de combustible que tiene una excelente propiedad de resistencia a la corrosión y propiedad de adhesión sin comprometer la compacidad, y por tanto obtener una pila de combustible de electrolito de polímero que tiene una excelente durabilidad a bajo coste.

Breve descripción de los dibujos

25 En los dibujos adjuntos:

La figura 1 es un diagrama esquemático que ilustra la estructura básica de una pila de combustible; y

la figura 2 es un diagrama esquemático que ilustra una probeta para un ensayo de adhesión.

Descripción detallada

A continuación se facilita una descripción detallada.

30 (1) Chapa de metal usada como sustrato

La lámina de acero inoxidable usada como sustrato en la divulgación no está particularmente limitada, aunque una chapa de acero inoxidable excelente en cuanto a la propiedad de resistencia a la corrosión (chapa de acero inoxidable ferrítico, chapa de acero inoxidable austenítico, chapa de acero inoxidable de doble fase) es particularmente ventajosa.

35 Por ejemplo, SUS447J1 (Cr: 30% en masa), SUS445J1 (Cr: 22% en masa), SUS3 16L (Cr: 18% en masa), o similar es adecuado. SUS447J1 que incluye aproximadamente el 30% en masa de Cr tiene una alta propiedad de resistencia a la corrosión, y por tanto es particularmente ventajoso como sustrato para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero usadas en un entorno en el que se requiere una alta propiedad de resistencia a la corrosión.

40 En vista del espacio de instalación o peso cuando se apilan pilas de combustible, el grosor de chapa de la lámina de acero inoxidable para separadores está preferiblemente en el intervalo de 0,03 mm a 0,3 mm. Si el grosor de chapa de la lámina de acero inoxidable para separadores es menor de 0,03 mm, la eficiencia de producción de la lámina de acero inoxidable disminuye. Si el grosor de chapa de la lámina de acero inoxidable para separadores supera 0,3 mm, el espacio de instalación o peso cuando se apilan pilas de combustible aumenta. El grosor de chapa de la

45 lámina de acero inoxidable para separadores está más preferiblemente en el intervalo de 0,03 mm a 0,1 mm.

(2) Capa de aleación de Sn

Como capa de aleación de Sn con la que se recubre la superficie del sustrato, se usa preferiblemente una aleación de Sn que incluye Ni o Fe excelente en cuanto a la propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso (pH: 3 (entorno de ácido sulfúrico), temperatura de uso: 80°C) de separadores de pilas de combustible de electrolito de

polímero. Se prefieren más Ni_3Sn_2 , Ni_3Sn_4 , SnFe o FeSn_2 . Se prefiere particularmente Ni_3Sn_2 que es un compuesto intermetálico.

5 La razón por la que la aleación de Sn anteriormente mencionada es excelente en cuanto a la propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero parece ser la siguiente.

10 Un enlace en una aleación de Sn, tal como un enlace Sn-Ni o Sn-Fe, tiene un estado de unión más estable que un enlace Sn-Sn en Sn metálico simple, y por tanto mejora la propiedad de resistencia a la corrosión. En particular, Ni_3Sn_2 tiene una temperatura de formación en un alto intervalo de temperatura de 790°C o más según un diagrama de fases de aleación binaria de Ni-Sn y forma un enlace de Sn-Ni muy estable, lo que contribuye a una excelente propiedad de resistencia a la corrosión.

15 El grosor de película de la capa de aleación de Sn es preferiblemente de 5 μm o menos en cuanto al espacio de instalación o peso cuando se apilan pilas de combustible. Si el grosor de película de la capa de aleación de Sn es menor de 0,1 μm , aumentan los defectos de recubrimiento y la propiedad de resistencia a la corrosión tiende a degradarse. Por consiguiente, el grosor de película de la capa de aleación de Sn es preferiblemente de 0,1 μm o más. El grosor de película de la capa de aleación de Sn está más preferiblemente en el intervalo de 0,5 μm a 3 μm .

Un método de chapado es adecuado para la formación de la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable. En este caso, puede usarse un método de chapado conocido de manera convencional para sumergir el sustrato en un baño de chapado ajustado a una composición predeterminada y someter el sustrato a electrochapado.

20 (Capa de fijación)

En la divulgación, se forma una capa de fijación entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn para mejorar la adhesión entre la película y el sustrato. La razón por la que formar la capa de fijación entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn mejora la adhesión entre la película y el sustrato parece ser la siguiente.

25 En el caso en el que no hay capa de fijación, tiende a formarse una película pasiva inactiva o similar sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable, haciendo difícil mantener una alta adhesión. Por otro lado, en el caso en el que se proporciona la capa de fijación, se suprime la formación de la película pasiva o similar y se evita que la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable se vuelva inactiva, como resultado de lo cual, se mejora la adhesión entre el sustrato y la capa de aleación de Sn.

30 Una capa de fijación cuya superficie es irregular, por ejemplo, es más ventajosa porque la adhesión se mejora adicionalmente mediante el efecto de anclaje.

35 Por tanto, la lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero dada a conocer tiene una excelente adhesión entre el sustrato y la capa de aleación de Sn, y por tanto es ventajosa en el procedimiento de formación del separador para dar una forma deseada o el procedimiento de ensamblaje de la pila de combustible en la que se requiere una alta adhesión, o cuando la pila de combustible vibra de manera violenta durante su uso.

En la divulgación, es muy importante limitar el peso de recubrimiento de la capa de fijación al siguiente intervalo:

el peso de recubrimiento de la capa de fijación: de 0,001 g/m^2 a 1 g/m^2 .

40 Al limitar el peso de recubrimiento de la capa de fijación a este intervalo, la propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso del separador puede mantenerse incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más fina. La razón para esto parece ser la siguiente.

45 Normalmente, cuando se reduce el grosor de película de la capa de aleación de Sn, aumentan los defectos en la película desde la capa de aleación de Sn hasta el sustrato. A través de estos defectos, la capa de fijación entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn se correo ampliamente de manera continua y uniforme en la dirección de la superficie, provocando que la capa de aleación de Sn por encima de la capa de fijación se desprenda del sustrato de lámina de acero inoxidable. Cuando se desprende la capa de aleación de Sn, el sustrato de acero inoxidable se expone al entorno de uso del separador, y como resultado la propiedad de resistencia a la corrosión disminuye.

50 Sin embargo, limitar el peso de recubrimiento de la capa de fijación a un intervalo muy bajo permite que la capa de fijación se forme de manera discontinua o no uniforme sobre la superficie del sustrato. En otras palabras, una parte discontinua tal como un área sin chapado de la capa de fijación aparece en parte de la superficie del sustrato. Esta parte discontinua de la capa de fijación actúa como un área que inhibe la propagación de la corrosión. Por tanto, la corrosión continua y uniforme de la capa de fijación se suprime incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más fina. De este modo, puede evitarse la degradación de la propiedad de resistencia a la corrosión.

5 Si el peso de recubrimiento de la capa de fijación es menor de $0,001 \text{ g/m}^2$, la adhesión entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn disminuye. Si el peso de recubrimiento de la capa de fijación supera 1 g/m^2 , la propiedad de resistencia a la corrosión no puede mantenerse en el caso en el que se reduce el grosor de película de la capa de aleación de Sn. Por consiguiente, el peso de recubrimiento de la capa de fijación se limita al intervalo de $0,001 \text{ g/m}^2$ a 1 g/m^2 . El peso de recubrimiento de la capa de fijación está preferiblemente en el intervalo de $0,003 \text{ g/m}^2$ a $0,5 \text{ g/m}^2$, más preferiblemente en el intervalo de $0,003 \text{ g/m}^2$ a $0,3 \text{ g/m}^2$, y de manera adicionalmente preferible en el intervalo de $0,005 \text{ g/m}^2$ a $0,05 \text{ g/m}^2$.

10 La capa de fijación es preferiblemente una capa de metal puro de Au, Ag, Cu, Ni, o similar o una capa de aleación que incluye al menos un tipo seleccionado de estos elementos. Una capa de fijación de Ni o una capa de fijación de Ni-P hecha de una capa de aleación de Ni y P es más preferible en cuanto a coste del material.

En el caso de una capa de fijación de Ni-P, se prefiere además limitar el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P al intervalo del 5% al 22% en masa.

Contenido de P en la capa de fijación de Ni-P: del 5% al 22% en masa.

15 Al limitar el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P a este intervalo, puede mantenerse una excelente propiedad de resistencia a la corrosión de manera más estable incluso en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno del separador. La razón para esto parece ser la siguiente.

Al limitar el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P al intervalo del 5% al 22% en masa, se forma un compuesto de Ni-P más estable en el entorno de uso del separador, siendo posible suprimir la corrosión de la capa de fijación de manera eficaz durante un tiempo más prolongado.

20 Si el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P es menor del 5% en masa, el efecto de mejora de resistencia frente a ácido del compuesto de Ni-P es insuficiente. Un intervalo de este tipo no es preferible en cuanto al mantenimiento de una excelente propiedad de resistencia a la corrosión en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno del separador que es ácido. Si el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P supera el 22% en masa, la composición de la capa de fijación de Ni-P tiende a no ser uniforme. Un intervalo de este tipo tampoco es preferible en cuanto al mantenimiento de una excelente propiedad de resistencia a la corrosión en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno del separador. Por tanto, el contenido de P en la capa de fijación de Ni-P se limita preferiblemente al intervalo del 5% al 22% en masa. El contenido de P en la capa de fijación de Ni-P está más preferiblemente en el intervalo del 7% al 20% en masa, y de manera adicionalmente preferible en el intervalo del 10% al 18% en masa.

30 El método de formación de la capa de fijación puede ser un método de chapado conocido de manera convencional mediante el cual se realiza electrochapado o chapado químico en un baño de chapado ajustado a una composición adecuada. El peso de recubrimiento de la capa de fijación puede ajustarse mediante el tiempo de retención en el baño de chapado, es decir el tiempo de chapado.

35 El contenido de P en la capa de fijación de Ni-P puede ajustarse mediante la concentración de P en el baño de chapado, la densidad de corriente en electrochapado o similares.

(4) Capa de óxido que contiene Sn

En la lámina de acero inoxidable para separadores dada a conocer, la superficie de la capa de aleación de Sn se recubre con una capa de óxido que contiene Sn. Esto mejora adicionalmente la propiedad de resistencia a la corrosión después de un largo uso en el entorno de uso del separador.

40 La capa de óxido que contiene Sn con la que se recubre la superficie de la capa de aleación de Sn no es una película de óxido natural creada en el entorno atmosférico sino una película de óxido formada deliberadamente mediante un procedimiento tal como inmersión en una disolución de ácido. El grosor de película de la película de óxido natural es normalmente de aproximadamente 2 nm a 3 nm.

45 El componente principal de la capa de óxido que contiene Sn es preferiblemente SnO_2 . El grosor de película de la capa de óxido que contiene Sn está preferiblemente en el intervalo de 5 nm a 50 nm. El grosor de película de la capa de óxido que contiene Sn está más preferiblemente en el intervalo de 10 nm a 30 nm. Si la capa de óxido que contiene Sn es excesivamente gruesa, la conductividad disminuye. Si la capa de óxido que contiene Sn es excesivamente fina, no puede alcanzarse el efecto de mejora en la propiedad de resistencia a la corrosión en el entorno de uso del separador.

50 La razón por la que recubrir la superficie de la capa de aleación de Sn con la capa de óxido que contiene Sn mejora la propiedad de resistencia a la corrosión después de un largo uso en el entorno de uso del separador parece ser la siguiente. Puesto que la capa de óxido que contiene Sn es muy estable en el entorno de uso del separador, recubrir la superficie de la capa de aleación de Sn con la capa de óxido que contiene Sn suprime la corrosión de la capa de aleación de Sn de manera eficaz.

En este caso, la película de óxido se forma deliberadamente mediante un procedimiento tal como inmersión en una disolución de ácido en lugar de usar una película de óxido natural, por la siguiente razón. Mediante un procedimiento de este tipo, la película de óxido puede formarse de manera uniforme y precisa sobre la superficie de la capa de aleación de Sn, siendo posible suprimir la corrosión de la capa de aleación de Sn de manera muy eficaz.

- 5 La capa de óxido que contiene Sn puede formarse mediante un método de inmersión en una disolución acuosa de ácido que tiene oxidabilidad tal como peróxido de hidrógeno o ácido nítrico, o un método de tratamiento electrolítico en el ánodo electroquímico.

Por ejemplo, la capa de óxido que contiene Sn puede formarse energizando, en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 60°C y un pH de 1, la lámina de acero inoxidable para separadores que tiene la capa de aleación de Sn durante 5 minutos con una densidad de corriente de +1 mA/cm².

10 El método de formación de la capa de óxido que contiene Sn no está limitado a lo anterior. Otros ejemplos incluyen deposición física en fase de vapor (PVD), deposición química en fase de vapor (CVD) y recubrimiento.

(5) Otras características

15 Después de formar la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable con la capa de fijación entremedias o después de formar la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable con la capa de fijación entremedias y luego formar la capa de óxido que contiene Sn, puede formarse adicionalmente una capa conductora con baja resistencia eléctrica sobre la capa de aleación de Sn o la capa de óxido que contiene Sn, para mejorar la conductividad que es una de las propiedades requeridas de los separadores. Por ejemplo, la capa de aleación de Sn o la capa de óxido que contiene Sn puede recubrirse con una
20 capa de metal puro, una capa de polímero conductor, una capa de aleación que incluye partículas conductoras o una capa de polímero que incluye partículas conductoras, con el fin de reducir la resistencia de contacto.

Ejemplos

Se usan separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero en un entorno de corrosión intenso de aproximadamente 80°C de temperatura y 3 de pH, y por tanto, se requiere una excelente propiedad de resistencia a la corrosión. Además, se requiere una alta adhesión entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn de manera que la capa de aleación de Sn no se desprende del sustrato de lámina de acero inoxidable en el procedimiento de fabricación de pila de combustible tal como el procedimiento de formación del separador para dar una forma deseada o el procedimiento de ensamblaje de la pila de combustible. Además, se requiere una reducción en la tasa de aumento del grosor de chapa después de la formación de película sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable para hacer la pila de combustible más compacta. En vista de estas propiedades requeridas, se llevaron a cabo los siguientes tres tipos de evaluación en las muestras mencionadas a continuación.

(1) Evaluación de la propiedad de resistencia a la corrosión (estabilidad en entorno de uso del separador)

(a) Evaluación de la propiedad de resistencia a la corrosión después de 20 horas

35 Normalmente, el acero inoxidable es más susceptible a una disolución transpasiva y experimenta mayor degradación en la propiedad de resistencia a la corrosión cuando el potencial aplicado es mayor. Para evaluar la estabilidad en el caso de exposición a alto potencial en el entorno de uso del separador, se sumergió cada muestra en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 80°C y un pH de 3 y se aplicó un potencial constante de 0,9 V (frente a SHE) durante 20 horas usando Ag/AgCl (disolución acuosa de KCl saturada) como electrodo de referencia, y se midió la densidad de corriente después de 20 horas. Basándose en la densidad de corriente después de 20 horas, se evaluó la propiedad de resistencia a la corrosión después de 20 horas en el entorno de uso del separador mediante los siguientes criterios.

- Excelente: la densidad de corriente después de 20 horas es menor de 0,015 μA/cm².

- Buena: la densidad de corriente después de 20 horas es de 0,015 μA/cm² o más y menor de 0,2 μA/cm².

45 - Mala: la densidad de corriente después de 20 horas es de 0,2 μA/cm² o más.

(b) Evaluación de la propiedad de resistencia a la corrosión después de 50 horas

Además, se llevó a cabo la siguiente evaluación en cada muestra en la que se formó una capa de fijación de Ni-P como capa de fijación y que mostró una propiedad de resistencia a la corrosión favorable después de 20 horas.

50 Para evaluar la estabilidad en el caso de una exposición más larga a alto potencial en el entorno de uso del separador, se sumergió cada muestra en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 80°C y un pH de 3 y se aplicó un potencial constante de 0,9 V (frente a SHE) durante 50 horas usando Ag/AgCl (disolución acuosa de KCl saturada) como electrodo de referencia, y se midió la densidad de corriente después de 20 horas y después de 50 horas. Entonces se determinó la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto

a la densidad de corriente después de 20 horas [(densidad de corriente después de 50 horas)/(densidad de corriente después de 20 horas) x 100]. Basándose en la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas, se evaluó la propiedad de resistencia a la corrosión después de 50 horas en el entorno de uso del separador mediante los siguientes criterios.

5 - Excelente: la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas es menor del 80%.

- Buena: la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas es del 80% o más y menor del 100%.

10 - Mala: la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas es del 100% o más.

(2) Evaluación de la propiedad de adhesión

15 Se cortó cada muestra que tenía la película formada sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) a 25 mm W x 80 mm L. Se unieron la muestra cortada y una chapa de acero laminada en frío de 25 mm W x 80 mm L x 1 mm t para superponerse parcialmente en la superficie recubierta con la película, para producir una probeta para la evaluación de la adhesión tal como se ilustra en la figura 2. En este caso, se unieron la muestra y la chapa de acero laminada en frío usando un adhesivo (E-56 fabricado por Sunrise MSI Corporation) siendo el grosor del adhesivo de 2 mm y siendo el área de adhesión 25 mm W x 20 mm L. Debido al pequeño grosor de chapa de la muestra (sustrato), se unió otra chapa de acero laminada en frío (25 mm W x 80 mm L x 1 mm t) a la superficie opuesta a la superficie unida a la chapa de acero laminada en frío, para refuerzo.

20 En la figura 2, el signo de referencia 11 es una muestra, 12 es un sustrato de lámina de acero inoxidable, 13 es una capa de fijación, 14 es una capa de aleación de Sn, 15 es una chapa de acero laminada en frío, 16 es un adhesivo y 17 es una capa de óxido que contiene Sn.

25 Se tiró de la probeta obtenida para la evaluación de la adhesión de ambos lados mediante una máquina para ensayos de tracción para determinar la resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) en el momento de desprendimiento de la película del sustrato, y se evaluó la propiedad de adhesión de la película mediante los siguientes criterios.

- Excelente: la resistencia al desprendimiento es de 6 MPa o más.

- Buena: la resistencia al desprendimiento es de 2 MPa o más y menor de 6 MPa.

- Mala: la resistencia al desprendimiento es menor de 2 MPa.

30 (3) Evaluación de la compacidad

Se calculó la tasa de aumento del grosor de chapa usando la siguiente ecuación, y se evaluó la compacidad cuando se apilaban pilas de combustible mediante los siguientes criterios.

Tasa de aumento del grosor de chapa (%) = $\frac{[(\text{grosor de película de la película por lado}) \times 2]}{[\text{grosor de película del sustrato de lámina de acero inoxidable}]} \times 100$

35 - Buena: la tasa de aumento del grosor de chapa es del 20% o menos.

- Mala: la tasa de aumento del grosor de chapa supera el 20%.

40 El grosor de película de la película mencionado en este caso es la suma del grosor de película promedio de la capa de fijación determinado convirtiendo el peso de recubrimiento y el grosor de película de la capa de aleación de Sn, o la suma del grosor de película promedio de la capa de fijación determinado convirtiendo el peso de recubrimiento y el grosor de película de la capa de aleación de Sn y la capa de óxido que contiene Sn.

(Ejemplo 1)

45 Se sometió cada uno de SUS447J1 (Cr: 30% en masa), SUS445J1 (Cr: 22% en masa) y SUS316L (Cr: 18% en masa) de 0,05 mm de grosor de chapa como sustrato de lámina de acero inoxidable a pretratamiento adecuado tal como desengrasado, y luego se formó una capa de fijación con un peso de recubrimiento mostrado en la tabla 1 sobre el sustrato de lámina de acero inoxidable usando la siguiente composición de baño de chapado y condición de chapado. A continuación, se formó una capa de aleación de Sn con un grosor de película promedio mostrado en la tabla 1 sobre el sustrato de lámina de acero inoxidable que tenía la capa de fijación, para obtener una lámina de acero inoxidable para separadores.

50 En algunas de las muestras, se energizó la lámina de acero inoxidable para separadores obtenida en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 60°C y un pH de 1 durante 5 minutos con una densidad de corriente

de $+1 \text{ mA/cm}^2$, para formar una capa de óxido que contenía Sn sobre la superficie de la capa de aleación de Sn.

Se evaluó cada propiedad de la manera mencionada anteriormente usando la lámina de acero inoxidable para separadores obtenida.

5 Se reguló cada uno del peso de recubrimiento de la capa de fijación, el grosor de película promedio de la capa de aleación de Sn, y el grosor de película promedio de la capa de óxido que contenía Sn determinando de antemano la relación con el tiempo de chapado o el tiempo de electrolisis en el ánodo. Por motivos de comparación, también se preparó una lámina de acero inoxidable para separadores que no tenía capa de fijación, y se evaluó cada propiedad de la manera mencionada anteriormente.

10 Se midió el peso de recubrimiento de la capa de fijación mediante el siguiente método. En primer lugar, se cortó cada muestra obtenida formando la capa de fijación sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) a aproximadamente 50 mm W x 50 mm L, se midieron las longitudes de dos lados mediante un calibre cuadrado, y se calculó el área de muestra. Entonces se sumergió la muestra en una disolución en la que puede disolverse la capa de fijación (puede usarse una disolución de disociación conocida, tal como ácido nítrico al 30% para la capa de fijación de Ni, Ni-P o Cu, ácido sulfúrico al 90% + ácido nítrico al 10% para la capa de fijación de Ag, y cianuro de sodio 30 g/l + peróxido de hidrógeno 40 ml/l para la capa de fijación de Au) durante 10 minutos para disolver la capa de fijación. Se cuantificó el elemento constituyente de la capa de fijación disuelto en la disolución usando un analizador espectrométrico de emisión de plasma de acoplamiento inductivo (ICP), y se dividió el área de muestra entre el resultado de cuantificación, produciendo, por tanto, el peso de recubrimiento (g/m^2). Además, se dividió el peso de recubrimiento entre la densidad del metal de fijación, para determinar el grosor de película promedio de la capa de fijación. En cuanto a las muestra que no tenían capa de fijación, se muestra "-" en ambos campos del peso de recubrimiento y grosor de película promedio convertido de la capa de fijación en la tabla 1.

25 Se midió el grosor de película promedio de la capa de aleación de Sn mediante el siguiente método. En primer lugar, se cortó cada muestra obtenida formando la capa de fijación y la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) a aproximadamente 10 mm W x 15 mm L. Entonces se incrustó la muestra en resina, se pulió en la sección transversal, y luego se observó usando un microscopio electrónico de barrido (SEM) para medir el grosor de película de la capa de aleación de Sn. Se realizó la medición del grosor de película de la capa de aleación de Sn en 10 muestras obtenidas cortando la misma muestra que tenía la capa de aleación de Sn para dar la forma mencionada anteriormente, y se estableció el grosor de película promedio de estas muestras como el grosor de película promedio de la capa de aleación de Sn.

30 En este caso, se identificó la composición de la capa de aleación de Sn mediante un espectrómetro de rayos X de dispersión de energía (EDX) y difractómetro de rayos X (XRD) usados en la observación de SEM.

35 Se midió el grosor de película promedio de la capa de óxido que contenía Sn mediante el siguiente método. En primer lugar, se procesó cada muestra obtenida formando la capa de fijación, la capa de aleación de Sn y la capa de óxido que contenía Sn sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) mediante un haz iónico focalizado para preparar un película fina para observación de la sección transversal. Entonces se observó la película fina producida para observación de la sección transversal usando un microscopio electrónico de transmisión (TEM), para medir el grosor de película promedio de la capa de óxido que contenía Sn. En la medición del grosor de película promedio de la capa de óxido que contenía Sn, se midió el grosor de película de la capa de óxido que contenía Sn en la película fina preparada para observación de la sección transversal en tres ubicaciones, y se estableció el valor promedio de las tres ubicaciones como el grosor de película promedio de la capa de óxido que contenía Sn.

40 En este caso, se identificó la composición de la capa de óxido mediante un espectrómetro de rayos X de dispersión de energía (EDX) y espectrómetro fotoelectrónico de rayos X (XPS) usados en la observación de TEM.

(Composición de baño de chapado y condición de chapado de la capa de fijación)

<Capa de fijación de Ni >

45 Cloruro de níquel: 240 g/l

Ácido clorhídrico: 125 ml/l

Temperatura: 50°C

Densidad de corriente: 5 A/dm²

<Capa de fijación de Ni-P >

50 Sulfato de níquel: 1 mol/l

Cloruro de níquel: 0,1 mol/l

Ácido bórico: 0,5 mol/l

Fosfito de sodio: de 0,05 mol/l a 5 mol/l

Temperatura: 50°C

Densidad de corriente: 5 A/dm²

<Capa de fijación de Cu >

5 Cianuro de cobre: 30 g/l

Cianuro de sodio: 40 g/l

Hidróxido de potasio: 4 g/l

Temperatura: 40°C

Densidad de corriente: 5 A/dm²

10 <Capa de fijación de Ag >

Cianuro de plata y potasio: 2 g/l

Cianuro de sodio: 120 g/l

Temperatura: 30°C

Densidad de corriente: 3 A/dm²

15 <Capa de fijación de Au >

Cianuro de oro y potasio: 8 g/l

Citrato de sodio: 80 g/l

Sulfamato de níquel: 3 g/l

Acetato de zinc: 0,3 g/l

20 Temperatura: 30°C

Densidad de corriente: 3 A/dm²

(Composición de baño de chapado y condición de chapado de la capa de aleación de Sn)

<Ni₃Sn₂>

Cloruro de níquel: 0,15 mol/l

25 Cloruro de estaño: 0,15 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Glicina: 0,15 mol/l

Temperatura: 60°C

Densidad de corriente: 1 A/dm²

30 <Ni₃Sn₄>

Cloruro de níquel: 0,15 mol/l

Cloruro de estaño: 0,30 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Temperatura: 60°C

35 Densidad de corriente: 1 A/dm²

<FeSn>

Cloruro férrico: 0,15 mol/l

ES 2 661 839 T3

Cloruro de estaño: 0,18 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Temperatura: 60°C

Densidad de corriente: 1 A/dm²

5 <FeSn₂>

Cloruro férrico: 0,15 mol/l

Cloruro de estaño: 0,36 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Temperatura: 60°C

10 Densidad de corriente: 1 A/dm²

En la divulgación, siempre que pueda formarse un chapado deseado, puede usarse una composición de baño de chapado distinta de las anteriores según un método de chapado conocido.

Las tablas 1 y 2 resumen los resultados de la evaluación de la propiedad de resistencia a la corrosión (estabilidad en el entorno de uso del separador), la propiedad de adhesión y la compacidad para cada muestra obtenida tal como se describió anteriormente.

15

[Tabla 1]

N° de muestra	Condición de preparación de la muestra					Resultado de evaluación					Observaciones							
	Sustrato	Capa de fijación		Capa de aleación de Sn		Capa de óxido que contiene Sn		Densidad de óxido después de 20 horas ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	Densidad de óxido después de 50 horas ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	Razón de densidad de óxido de contenido* (%)		Resistencia al desprendimiento (N/PA)	Tasa de aumento de grosor de óxido (%)					
		Tipo	Peso de recubr. (g/m^2)	Contenido de P (% en masa)	Grosor de película promedio convertido	Componente principal	Grosor de película promedio (μm)							Componente principal	Grosor de película promedio (μm)			
1		N/A	-	-	-	-	0,018	-	-	-	1,7	12,0	Buena	-	Mala	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo comparativo
2			0,001	-	0,1	-	0,020	-	-	-	4,7	12,0	Buena	-	Buena	Resistencia a la corrosión después de 50 horas	Buena	Ejemplo
3			0,05	-	5,6	-	0,036	-	-	-	6,7	2,0	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
4			0,05	-	5,6	-	0,027	-	-	-	6,5	4,0	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
5			0,1	-	11,2	-	0,025	-	-	-	8,7	12,0	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
6			0,1	-	11,2	-	0,014	-	-	-	8,5	12,1	Excelente	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
7		Ni	0,4	-	44,9	-	0,036	-	-	-	9,0	4,2	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
8			0,4	-	44,9	-	0,030	-	-	-	9,4	12,2	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
9			0,4	-	44,9	-	0,024	-	-	-	9,2	19,8	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
10			0,9	-	101,1	-	0,064	-	-	-	9,8	12,4	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
11			4,5	-	505,6	-	36,725	-	-	-	10,3	14,0	Mala	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo comparativo
12			4,5	-	505,6	-	0,079	-	-	-	10,6	34,0	Buena	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Mala	Ejemplo comparativo
13			0,003	15	0,4	-	0,026	0,018	69,2	-	4,2	12,0	Buena	Excelente	Buena	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
14			0,005	13	0,7	-	0,020	0,015	75,0	-	6,0	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
15			0,005	15	0,7	-	0,011	0,008	72,7	15	6,3	4,1	Excelente	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
15a	SUS4711		0,01	3	1,3	-	0,034	0,033	97,1	-	6,2	4,0	Buena	Buena	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
15b			0,01	5	1,3	-	0,028	0,022	78,6	-	6,8	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
15c			0,01	7	1,3	-	0,025	0,019	76,0	-	6,3	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
15d			0,01	10	1,3	-	0,024	0,017	70,8	-	6,5	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
16			0,01	13	1,3	-	0,023	0,018	78,3	-	6,4	2,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
17			0,01	15	1,3	-	0,021	0,015	71,4	-	6,2	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
18		Ni-P	0,01	15	1,3	-	0,012	0,009	75,0	15	6,1	4,1	Excelente	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
18a			0,01	18	1,3	-	0,023	0,017	73,9	-	6,5	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
18b			0,01	22	1,3	-	0,029	0,023	79,3	-	7,1	4,0	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
18c			0,01	30	1,3	-	0,036	0,034	94,4	-	6,8	4,0	Buena	Buena	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
19			0,15	14	19,7	-	0,029	0,022	75,9	-	7,5	4,1	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
19a			0,15	14	19,7	-	0,011	0,008	72,7	15	7,3	4,1	Excelente	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
20			0,15	15	19,7	-	0,028	0,021	75,0	-	7,3	12,1	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
21			0,15	13	19,7	-	0,024	0,017	70,8	-	7,6	19,7	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
22			0,3	14	39,5	-	0,031	0,024	77,4	-	8,2	12,2	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
23			1,0	14	131,6	-	0,055	0,043	78,2	-	8,5	12,5	Buena	Excelente	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo
24			1,5	15	197,4	-	0,348	-	-	-	9,1	12,8	Mala	-	Excelente	Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Buena	Ejemplo comparativo

* Razón de densidad de óxido después de 50 horas con respecto a la densidad de óxido después de 20 horas

Estas tablas revelan los siguientes puntos.

- 5 (a) Todas las muestras de los ejemplos tienen baja densidad de corriente después de 20 horas en la evaluación de resistencia a la corrosión, y muestran una propiedad de resistencia a la corrosión favorable incluso en el caso de larga exposición a alto potencial como en el entorno de uso del separador. En particular, las muestras de n.º 6, n.º 15, n.º 18, n.º 19a, n.º 26, n.º 28, n.º 30, n.º 32, n.º 34 y n.º 36 que tienen la capa de óxido que contiene Sn tienen una excelente propiedad de resistencia a la corrosión.
- 10 (b) Todas las muestras de los ejemplos que tienen una capa de fijación de Ni-P como capa de fijación tienen menos del 100% en cuanto a la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas en la evaluación de resistencia a la corrosión, y mantienen una propiedad de resistencia a la corrosión favorable de manera estable incluso en el caso de larga exposición a alto potencial como en el entorno de uso del separador. En particular, las muestras de los n.ºs 13 a 23, n.º 15b, n.º 15c, n.º 15d, n.º 18a, n.º 18b y n.º 19a que tienen el contenido de P en el intervalo adecuado mantienen una propiedad de resistencia a la corrosión favorable de manera más estable, siendo la razón de la densidad de corriente después de 50 horas con respecto a la densidad de corriente después de 20 horas menor del 80%.
- 15 (c) Todas las muestras de los ejemplos tienen una resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) significativamente aumentada necesaria para el desprendimiento de la película, y tienen una propiedad de adhesión significativamente mejorada.
- (d) Todas las muestras de los ejemplos tienen una baja tasa de aumento del grosor de chapa, y tienen una excelente compacidad cuando se apilan pilas de combustible.
- 20 (e) Las muestras de los ejemplos comparativos n.º 1, n.º 37 y n.º 43 que no tienen capa de fijación, tienen una baja resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) necesaria para el desprendimiento de la película, no presentan una propiedad de adhesión deseada.
- 25 (f) Las muestras de los ejemplos comparativos n.º 11 y n.º 24, superando el peso de recubrimiento de la capa de fijación el intervalo apropiado, tienen alta densidad de corriente después de 20 horas en la evaluación de resistencia a la corrosión, y no presentan una propiedad de resistencia a la corrosión deseada.
- (g) La muestra del ejemplo comparativo n.º 12, superando el peso de recubrimiento de la capa de fijación el intervalo apropiado pero siendo la capa de aleación de Sn gruesa, garantiza la propiedad de resistencia a la corrosión, pero tiene una alta tasa de aumento del grosor de chapa y no presenta una compacidad deseada.

Lista de signos de referencia

- 30 1 cuerpo unido de membrana-electrodo
 2, 3 capa de difusión de gas
 4, 5 separador
 6 conducto de aire
 7 conducto de hidrógeno
- 35 11 muestra
 12 sustrato de lámina de acero inoxidable
 13 capa de fijación
 14 capa de aleación de Sn
 15 chapa de acero laminada en frío
- 40 16 adhesivo
 17 capa de óxido que contiene Sn

REIVINDICACIONES

1. Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero, que comprende:
un sustrato hecho de lámina de acero inoxidable;
- 5 una capa de aleación de Sn con la que se recubre una superficie del sustrato, con una capa de fijación entremedias,
una capa de óxido que contiene Sn sobre una superficie de la capa de aleación de Sn,
caracterizada porque
el peso de recubrimiento de la capa de fijación es de 0,001 g/m² a 1 g/m², y
- 10 la capa de óxido que contiene Sn tiene un grosor de película de 5 nm a 50 nm.
2. Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según la reivindicación 1,
en la que la capa de aleación de Sn incluye al menos un tipo de elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni y Fe.
- 15 3. Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según la reivindicación 1 ó 2,
en la que la capa de aleación de Sn incluye al menos un tipo seleccionado del grupo que consiste en Ni₃Sn₂, Ni₃Sn₄, SnFe y FeSn₂.
- 20 4. Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3,
en la que la capa de fijación incluye al menos un tipo de elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.
5. Lámina de acero inoxidable para separadores de pilas de combustible de electrolito de polímero según la reivindicación 4,
- 25 en la que la capa de fijación está hecha de una capa de aleación de Ni y P, y tiene un contenido de P en el intervalo del 5% al 22% en masa.



