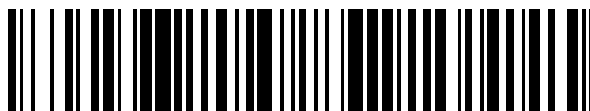


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 688 098**

51 Int. Cl.:

H01M 8/02	(2006.01) H01M 8/1018	(2006.01)
C23C 28/00	(2006.01)	
C25D 5/26	(2006.01)	
C25D 5/36	(2006.01)	
H01M 8/10	(2006.01)	
H01M 8/0208	(2006.01)	
C23C 30/00	(2006.01)	
H01M 8/021	(2006.01)	
H01M 8/0228	(2006.01)	
C23C 28/02	(2006.01)	

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **29.01.2015** **PCT/JP2015/000402**

87 Fecha y número de publicación internacional: **22.10.2015** **WO15159467**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.01.2015** **E 15779849 (7)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **11.07.2018** **EP 3133682**

54 Título: **Lámina de acero inoxidable para separador de celda de combustible de electrolito polimérico**

30 Prioridad:

15.04.2014 JP 2014083782

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

30.10.2018

73 Titular/es:

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

72 Inventor/es:

YANO, TAKAYOSHI y
ISHIKAWA, SHIN

74 Agente/Representante:

MARTÍN BADAJOZ, Irene

ES 2 688 098 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 separador de celda de combustible de electrolito polimérico

5 **Campo técnico**

La divulgación se refiere a una lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico que tiene excelente resistencia a la corrosión y propiedad de adhesión.

10 **Antecedentes**

En los últimos años se están desarrollando celdas de combustible que tienen una eficiencia de generación excelente y no emiten nada de CO₂ para una protección medioambiental global. Una celda de combustible de este tipo genera electricidad a partir de H₂ y O₂ a través de una reacción electroquímica. La celda de combustible tiene una estructura básica de tipo intercalado, e incluye una membrana electrolítica (membrana de intercambio iónico), dos electrodos (electrodo de combustible y electrodo de aire), capas de difusión de gases de O₂ (aire) y H₂, y dos separadores.

Las celdas de combustible se clasifican como celdas de combustible de ácido fosfórico, celdas de combustible de carbonato fundido, celdas de combustible de óxido sólido, celdas de combustible alcalinas y celdas de combustible de membrana de intercambio protónico (PEMFC) o celdas de combustible de electrolito polimérico (PEFC) según el tipo de membrana electrolítica usada, cada una de las cuáles está desarrollándose.

De estas celdas de combustible, las celdas de combustible de electrolito polimérico tienen, por ejemplo, las siguientes ventajas sobre otras celdas de combustible.

(a) La temperatura de funcionamiento de la celda de combustible es de aproximadamente 80 °C, de forma que puede generarse electricidad a una temperatura significativamente baja.

(b) Puede reducirse el peso y tamaño del cuerpo de celda de combustible.

(c) La celda de combustible puede ponerse en marcha rápidamente, y tiene alta eficiencia de combustible y densidad de potencia.

Por tanto, se espera que se usen celdas de combustible de electrolito polimérico como fuentes de alimentación en vehículos eléctricos, generadores estacionarios domésticos o industriales, y generadores pequeños portátiles.

Una celda de combustible de electrolito polimérico extrae electricidad a partir de H₂ y O₂ a través de una membrana polimérica. Tal como se ilustra en la figura 1, un cuerpo 1 unido de membrana-electrodo se intercala entre capas 2 y 3 de difusión de gases (por ejemplo, papel carbón) y separadores (placas bipolares) 4 y 5, que forman un componente individual (una celda individual). Se genera una fuerza electromotriz entre los separadores 4 y 5.

El cuerpo 1 unido de membrana-electrodo se denomina un ensamblaje de membrana-electrodo (MEA). El cuerpo 1 unido de membrana-electrodo es un ensamblaje de una membrana polimérica y un material de electrodo tal como negro de carbono que porta un catalizador de platino en las superficies anterior y posterior de la membrana, y tiene un grosor de varias decenas de μm a varios cientos de μm. Las capas 2 y 3 de difusión de gases se integran a menudo con el cuerpo 1 unido de membrana-electrodo.

En el caso de usar realmente celdas de combustible de electrolito polimérico, normalmente de varias decenas a varios cientos de celdas individuales tales como las anteriores se conectan en serie para formar una pila de celdas de combustible y usarse.

Los separadores 4 y 5 se requieren para funcionar no solo como

(a) paredes de división que separan celdas individuales,

sino también como

(b) conductores que transportan los electrones generados,

(c) conductos 6 de aire a través de los que fluye O₂ (aire) y conductos 7 de hidrógeno a través de los que fluye H₂, y

(d) conductos de escape a través de los que se expulsa el agua o gas generado (los conductos 6 de aire o los conductos 7 de hidrógeno también sirven como conductos de escape).

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

Con respecto a la durabilidad, se prevén aproximadamente 5000 horas en el caso de usar la celda de combustible de electrolito polimérico como fuente de alimentación en un vehículo eléctrico, y se prevén aproximadamente 40000 horas en el caso de usar la celda de combustible de electrolito polimérico como generador estacionario doméstico o similar. Dado que la conductividad protónica de la membrana polimérica (membrana electrolítica) disminuye si se lixivian iones metálicos debido a la corrosión, los separadores necesitan ser duraderos para la generación a largo plazo.

Con respecto a la conductividad eléctrica, la resistencia de contacto entre el separador y la capa de difusión de gases es de manera deseable lo más baja posible, debido a que un aumento de la resistencia de contacto entre el separador y la capa de difusión de gases provoca una eficiencia de generación más baja de la celda de combustible de electrolito polimérico. Una resistencia de contacto más baja entre el separador y la capa de difusión de gases contribuye a una mejor propiedad de generación de energía eléctrica.

Ya se han comercializado celdas de combustible de electrolito polimérico que usan grafito como separadores. Los separadores hechos de grafito son ventajosos porque la resistencia de contacto es relativamente baja y además no se produce corrosión. Sin embargo, los separadores hechos de grafito se rompen fácilmente con el impacto, y por tanto son desventajosos porque la reducción de tamaño es difícil y el coste de procesamiento para formar conductos de flujo de gases es alto. Estos inconvenientes de los separadores hechos de grafito dificultan el uso generalizado de celdas de combustible de electrolito polimérico.

Se han realizado intentos para usar un material metálico como material separador en vez de grafito. En particular, se han realizado diversos estudios para comercializar separadores hechos de acero inoxidable, titanio, una aleación de titanio, o similares para potenciar la durabilidad.

Por ejemplo, el documento de patente (PTL) 1 divulga una técnica de usar, como separador, 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 de la resistencia de contacto, y conduce a una eficiencia de generación más baja. Por tanto, se ha destacado que estos materiales metálicos tienen problemas tales como resistencia de contacto alta y resistencia a la corrosión baja en comparación con el material de grafito.

El documento PTL 2 divulga una técnica de chapar la superficie de un separador metálico tal como una hoja de acero inoxidable austenítico (SUS304) con oro para reducir la resistencia de contacto y garantizar un rendimiento alto. Sin embargo, un chapado con oro delgado es difícil de proteger de la formación de picaduras, y un chapado con oro grueso es problemático en cuanto al coste.

Para resolver estos problemas, se ha propuesto anteriormente en el documento PTL 3 "una hoja metálica para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico en la que una capa hecha de una capa de aleación de Sn se forma sobre la superficie de un sustrato metálico y la capa contiene partículas conductoras".

El documento JP 2013-243113 A describe una placa metálica de sustrato para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico, en la que la placa metálica de sustrato se recubre con una película de aleación de Sn y opcionalmente una capa de Ni intermedia o capa de Ni-P entre la placa metálica de sustrato y la película de aleación de Sn para mejorar la adhesión.

El documento EP 2 560 225 A1 describe una hoja metálica para un separador de una celda de combustible de membrana de intercambio protónico que consiste en un sustrato metálico, en la que una película hecha de una aleación de Sn que contiene partículas conductoras se forma sobre la superficie del sustrato metálico. Una capa de tratamiento previo tal como una capa de imprimación de Ni puede formarse opcionalmente entre la película de aleación de Sn y el sustrato metálico para mejorar la adhesión.

Lista de referencias

Documentos de patente

PTL 1: documento JP H8-180883 A

PTL 2: documento JP H10-228914 A

PTL 5: documento JP 2013-243113 A

PTL 3: documento JP 2012-178324 A

PTL 6: documento EP 2 560 225 A1

PTL 4: documento JP 2013-118096 A

Sumario

(Problema técnico)

A través del desarrollo de la hoja metálica para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico descrita en el documento PTL 3, se logró mejorar la resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de celdas de combustible de electrolito polimérico.

5 Sin embargo, en aplicaciones para celdas de combustible usadas en vehículos, etc., se necesitan separadores más delgados para hacer celdas de combustible más compactas en cuanto a espacio de instalación y eficiencia energética.

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

15 Por tanto, se logró obtener un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico que tenía una resistencia a la corrosión excelente incluso en el caso en el que la película hecha de una capa de aleación de Sn tal como una capa de Ni_3Sn_2 (a continuación en el presente documento una película de este tipo también se denomina "capa de aleación de Sn") se hace más delgada.

20 En el procedimiento de fabricación de la celda de combustible, es necesaria una adhesión alta entre el sustrato y la capa de aleación de Sn de forma 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 es siempre suficiente, por ejemplo, en el proceso de formar el separador en una forma deseada, en el proceso de ensamblar la celda de combustible, o cuando la celda de combustible vibra violentamente durante su uso, y hay una posibilidad de que la capa se desprenda.

25 Por lo tanto, podría ser útil proporcionar una lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico que no solo tenga conductividad eléctrica excelente sino que también tenga tanto resistencia a la corrosión excelente en el entorno de uso de separadores de celdas de combustible de electrolito polimérico como propiedad de adhesión excelente entre el sustrato y la capa de aleación de Sn incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se haga más delgada.

(Solución al problema)

35 Se empleó lámina de acero inoxidable como material de un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico, y se estudiaron diversos procesos de formación de películas para la lámina de acero inoxidable.

Como resultado, se hicieron los siguientes descubrimientos.

40 (1) En primer lugar, para mejorar la propiedad de adhesión, se intentó formar una capa de imprimación hecha de una capa metálica de Ni, Cu o similares como capa base sobre la superficie de un sustrato hecho de lámina de acero inoxidable, antes de la formación de una capa de aleación de Sn. Después se descubrió que formar la capa de imprimación como capa 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.

45 (2) Sin embargo, también se descubrió que la formación de la capa de imprimación puede degradar significativamente la resistencia a la corrosión dependiendo del tipo de imprimación. Se considera que el mecanismo de la degradación de la resistencia a la corrosión es el siguiente. Si la capa de aleación de Sn tiene uno o más defectos desde la superficie hasta la capa de imprimación, los iones que provocan corrosión alcanzan la capa de imprimación a través de los defectos, iniciando la corrosión de la capa de imprimación. En el caso en el que la capa de imprimación tiene resistencia a la corrosión más baja que la capa de aleación de Sn por encima de la capa de imprimación, solo la capa de imprimación se corroe continuamente, como resultado de lo cual se pierde un área amplia de la capa de imprimación en un tiempo breve. Esto provoca que la capa de aleación de Sn por encima de la capa de imprimación se desprenda, exponiendo el sustrato de lámina de acero inoxidable al entorno de uso de separador. Por tanto, la resistencia a la corrosión se degrada significativamente.

55 (3) La degradación anteriormente mencionada de la resistencia a la corrosión puede evitarse haciendo la capa de aleación de Sn más gruesa para suprimir la formación de defectos pasantes. Sin embargo, esto es desventajoso en cuanto a hacer la celda de combustible más compacta.

60 (4) Se llevó a cabo investigación adicional para evitar la degradación de la resistencia a la corrosión sin hacer la capa de aleación de Sn más gruesa.

65 Como resultado, se descubrió que, limitando la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al intervalo del 2 % al 70 %, se suprime la corrosión continua de la capa de imprimación, de forma que la degradación de la 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.

Se considera que el motivo por el que limitar la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al intervalo del 2 % al 70 % suprime la corrosión continua de la capa de imprimación es el siguiente.

Limitando la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al intervalo del 2 % al 70 %, una porción discontinua tal como un área no de recubrimiento de la capa de imprimación aparece sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable. En la porción discontinua, la capa de aleación de Sn y el sustrato de lámina de acero inoxidable se adhieren entre sí, y los iones que causan la corrosión no se dispersan, de forma que se inhibe la propagación de la corrosión. Por tanto, la corrosión continua de la capa de imprimación puede suprimirse incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más delgada.

(5) También se descubrió que, distribuyendo la capa de imprimación en forma de islas y limitando el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla a $1\text{ }\mu\text{m}$ o menos, se forman porciones discontinuas tales como áreas no de recubrimiento de la capa de imprimación por toda la superficie del sustrato, como resultado de lo cual la degradación de la resistencia a la corrosión puede evitarse más eficazmente.

Adicionalmente se descubrió que esto hace rugosa la superficie de contacto entera entre la lámina de acero inoxidable del sustrato y la capa de aleación de Sn, y por tanto garantiza una propiedad de adhesión alta mediante el efecto de anclaje.

(6) También se descubrió que, aunque la capa de imprimación puede ser una capa metálica de Au, Ag, Cu, Ni o similares o una capa de aleación que contiene al menos uno seleccionado de estos elementos, una capa de imprimación de Ni-P hecha de una capa de aleación de Ni y P es particularmente adecuada como capa de imprimación por su bajo coste de material. Adicionalmente se descubrió que, limitando el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P al intervalo del 5 % al 22 % en masa, la resistencia a la corrosión puede mantenerse más establemente incluso en el caso de exposición prolongada a potencial alto en el entorno de uso de separador.

Se considera que el motivo para esto es el siguiente. Limitando el contenido de P en la capa de imprimación 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 de separador, siendo posible con ello suprimir adicionalmente la corrosión de la capa de imprimación.

(7) 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 resistencia a la corrosión.

Los inventores consideran que el motivo para esto es el siguiente. Dado que la capa de óxido que contiene Sn es muy estable en el entorno de uso de 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 eficazmente. La resistencia a la corrosión puede mejorarse adicionalmente por un efecto de este tipo.

La divulgación se basa en los descubrimientos anteriormente mencionados.

Por tanto, se proporciona lo siguiente.

1. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico, que incluye: un sustrato hecho de lámina de acero inoxidable; y una capa de aleación de Sn con la que se recubre una superficie del sustrato, con una capa de imprimación en medio (es decir, entre la capa de aleación de Sn y la superficie del sustrato), en la que el grosor de la capa de aleación de Sn es de $0,1\text{ }\mu\text{m}$ o más y $5\text{ }\mu\text{m}$ o menos, la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato es del 2 % al 70 %, la capa de imprimación se distribuye en forma de islas, y el diámetro máximo cada una de las islas como porciones de recubrimiento es de $1\text{ }\mu\text{m}$ o menos.

2. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según el punto 1 anterior, en la que la capa de aleación de Sn contiene al menos uno seleccionado del grupo que consiste en Ni y Fe.

3. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según los puntos 1 o 2 anteriores, en la que la capa de aleación de Sn contiene Ni_3Sn_2 .

4. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según uno cualquiera de los puntos 1 a 3 anteriores, en la que la capa de imprimación contiene al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.

5. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según el punto 4 anterior, en la que la capa de imprimación se hace de una capa de aleación de Ni y P, y tiene un contenido de P en un intervalo del 5 % al 22 % en masa.

6. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según uno cualquiera de los puntos 1 a 5 anteriores, que incluye una capa de óxido que contiene Sn sobre una superficie de la capa de aleación de Sn.

5 (Efecto ventajoso)

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

10

Breve descripción de los dibujos

En los dibujos adjuntos:

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

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

Descripción detallada

20

A continuación se facilita una descripción detallada.

(1) Hoja metálica usada como sustrato

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

30 Por ejemplo, SUS447J1 (Cr: el 30 % en masa, Mo: el 2 % en masa), SUS445J1 (Cr: el 22 % en masa, Mo: el 1 % en masa), SUS443J1 (Cr: el 21 % en masa), SUS439 (Cr: el 18 % en masa), SUS316L (Cr: el 18 % en masa, Ni: el 12 % en masa, Mo: el 2 % en masa), o similares son adecuados.

35 En vista del espacio de instalación y peso cuando se apilan celdas de combustible, el grosor de hoja de la lámina de acero inoxidable para un separador está preferiblemente en el intervalo de 0,03 mm a 0,3 mm. Si el grosor de hoja de la lámina de acero inoxidable para un separador no es de más de 0,03 mm, la eficiencia de producción de lámina de acero inoxidable disminuye. Si el grosor de hoja de la lámina de acero inoxidable para un separador supera 0,3 mm, el espacio de instalación y peso cuando se apilan celdas de combustible aumenta. El grosor de hoja de la lámina de acero inoxidable para un separador está más preferiblemente en el intervalo de 0,03 mm a 0,1 mm.

40 (2) Capa de aleación de Sn

45 Como capa de aleación de Sn con la que se recubre la superficie del sustrato, se usa preferiblemente una aleación de Sn (por ejemplo, Ni_3Sn_2 , Ni_3Sn_4 , FeSn , FeSn_2 , etc.) que contiene al menos uno seleccionado de Ni y Fe excelente en cuanto a la resistencia a la corrosión en el entorno de uso (pH: 3 (entorno de ácido sulfúrico), temperatura de uso: 80 °C) de separadores de celdas de combustible de electrolito polimérico. Es particularmente preferible Ni_3Sn_2 que es un compuesto intermetálico.

50 El motivo por el que se considera que la aleación de Sn mencionada anteriormente es excelente en cuanto a la resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de celdas de combustible de electrolito polimérico es el siguiente.

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

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

65 Un método de galvanoplastia es adecuado para la formación de la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable. Un método de galvanoplastia convencionalmente conocido puede usarse para sumergir el sustrato en un baño de chapado ajustado a una composición predeterminada y someter a

galvanoplastia el sustrato.

(3) Imprimación

5 En la divulgación, se forma una capa de imprimación 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. Se considera que el motivo por el que formar la capa de imprimación entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn mejora la adhesión entre la película y el sustrato es el siguiente.

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

15 La lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según la divulgación tiene por tanto una adhesión excelente entre el sustrato y la capa de aleación de Sn, y por tanto es ventajosa en el proceso de formar el separador en una forma deseada o el proceso de ensamblar la celda de combustible en el que se requiere una adhesión alta, o cuando la celda de combustible vibra violentamente durante su uso.

20 En la divulgación, es muy importante limitar la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al siguiente intervalo:

25 la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato: del 2 % al 70 %.

Limitando la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato a este intervalo, la resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separador puede mantenerse incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más delgada. Se considera que el motivo para esto es el siguiente.

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

40 Por otro lado, limitar la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al intervalo mencionado anteriormente permite a la capa de imprimación formarse de manera discontinua o no uniforme sobre la superficie del sustrato. En otras palabras, una porción discontinua tal como un área no de recubrimiento de la capa de imprimación aparece en parte de la superficie del sustrato. En la porción discontinua de la capa de imprimación, la capa de aleación de Sn y el sustrato de lámina de acero inoxidable se adhieren entre sí, y los iones que provocan corrosión no se dispersan, de forma que se inhibe la propagación de la corrosión. Así, la corrosión continua y uniforme de la capa de imprimación puede suprimirse incluso en el caso en el que la capa de aleación de Sn se hace más delgada. De este modo puede evitarse la degradación de la resistencia a la corrosión.

45 Además, la formación de una porción discontinua tal como un área no de recubrimiento de la capa de imprimación en parte de la superficie del sustrato hace rugosa la superficie de contacto entre el sustrato y la capa de aleación de Sn, y por tanto la propiedad de adhesión puede mantenerse mediante el efecto de anclaje.

50 Si la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato es de menos del 2 %, la adhesión entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn disminuye. Si la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato supera el 70 %, la resistencia a la corrosión no puede mantenerse en el caso en el que se reduce el grosor de la capa de aleación de Sn. Por consiguiente, la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato se limita al intervalo del 2 % al 70 %. La razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato está preferiblemente en el intervalo del 5 % al 60 %, más preferiblemente en el intervalo del 10 % al 50 %, y de manera adicional preferiblemente en el intervalo del 15 % al 40 %.

60 Además de la razón de recubrimiento mencionada anteriormente de la capa de imprimación sobre el sustrato, la forma de revestimiento de la capa de imprimación es la siguiente:

la capa de imprimación se distribuye en forma de islas y el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla es de 1 μm o menos.

65 La capa de imprimación se distribuye por tanto en forma de islas sobre la superficie del sustrato y el diámetro

máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla está limitado a 1 μm o menos.

Limitando de este modo la forma de recubrimiento de la imprimación, se forman porciones discontinuas tales como áreas no de recubrimiento de la capa de imprimación por toda la superficie del sustrato. Esto suprime la corrosión continua de la capa de imprimación más eficazmente, y evita la degradación de la resistencia a la corrosión más eficazmente.

Esto también hace rugosa la superficie de contacto entera entre la lámina de acero inoxidable del sustrato y la capa de aleación de Sn, y por tanto potencia la propiedad de adhesión mediante el efecto de anclaje.

Por tanto, forma parte de la invención distribuir la capa de imprimación en forma de islas sobre la superficie del sustrato y limitar el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla a 1 μm o menos.

En el caso en el que la razón de recubrimiento se limita al intervalo del 5 % al 60 %, del 10 % al 50 % o del 15 % al 40 %, el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento está preferiblemente limitado a 0,5 μm o menos, y más preferiblemente limitado a 0,1 μm o menos.

La forma específica de cada porción de recubrimiento de tipo isla no está particularmente limitada, y puede ser cualquiera de circular, elíptica, poligonal, ameboide (una forma que se extiende en una pluralidad de direcciones irregulares), etc. El diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla se define como el diámetro del círculo más pequeño que toca dos o más puntos en el perímetro de la porción de recubrimiento de tipo isla y encierra completamente la porción de recubrimiento de tipo isla.

La capa de imprimación es preferiblemente una capa metálica de Au, Ag, Cu, Ni o similares o una capa de aleación que contiene al menos uno seleccionado de estos elementos. Una imprimación de Ni o una imprimación de Ni-P hecha de una capa de aleación de Ni y P es más preferible en cuanto a coste de material.

En el caso de una imprimación de Ni-P, es adicionalmente preferible limitar el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P al intervalo del 5 % al 22 % en masa.

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

Limitando el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P a este intervalo, puede mantenerse una resistencia a la corrosión excelente más establemente incluso en el caso de exposición prolongada a un potencial alto en el entorno de uso de separador. Se considera que el motivo para esto es el siguiente.

Limitando el contenido de P en la capa de imprimación 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 de separador, siendo posible suprimir la corrosión de la capa de imprimación eficazmente durante un tiempo más prolongado.

Si el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P es de menos del 5 % en masa, el efecto de mejora de la resistencia a la corrosión es insuficiente. Si el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P supera el 22 % en masa, la composición de la imprimación de Ni-P tiende a ser no uniforme. Un intervalo de este tipo tampoco es preferible en cuanto a mantener una resistencia a la corrosión excelente en el caso de exposición prolongada a un potencial alto en el entorno de uso de separador. Por tanto, el contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P se limita preferiblemente al intervalo del 5 % al 22 % en masa. El contenido de P en la capa de imprimación 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.

El método de formar la capa de imprimación puede ser un método de galvanoplastia convencionalmente conocido por el que se lleva a cabo galvanoplastia en un baño de chapado ajustado a una composición apropiada. Aquí, para limitar la forma de recubrimiento de la capa de imprimación según se mencionó anteriormente, se necesita controlar apropiadamente el tiempo de retención en el baño de chapado, es decir el tiempo de galvanoplastia, y la densidad de corriente durante la galvanoplastia.

El tiempo de galvanoplastia y la densidad de corriente durante la galvanoplastia influyen en la razón de recubrimiento sobre el sustrato, y la densidad de corriente durante la galvanoplastia también influye en el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla. Cuando el tiempo de galvanoplastia es más prolongado y la densidad de corriente es más alta, la razón de recubrimiento sobre el sustrato es más alta. Además, una densidad de corriente más alta facilita normalmente la nucleación, lo que contribuye a un diámetro máximo más pequeño de cada porción de recubrimiento de tipo isla.

Por ejemplo, se considera el caso de formar una imprimación de Ni-P en la condición mostrada en el ejemplo 1 descrito a continuación. Aunque se necesitan ajustes finos para las diferencias dependiendo de la estructura del aparato de galvanoplastia tales como la distancia entre electrodos y el tamaño del tanque de chapado, un tiempo de galvanoplastia de 2 segundos a 60 segundos y una densidad de corriente de 3 A/dm² a 8 A/dm² permiten limitar la

razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato al intervalo predeterminado y también permiten distribuir la porción de recubrimiento que reviste la superficie del sustrato en forma de islas de tal forma que el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento es de 1 μm o menos.

- 5 El contenido de P en la capa de imprimación de Ni-P es ajustable mediante la concentración de P en el baño de chapado y la densidad de corriente durante el chapado.

(4) Capa de óxido que contiene Sn

- 10 En la lámina de acero inoxidable para un separador según la divulgación, la superficie de la capa de aleación de Sn se recubre preferiblemente con una capa de óxido que contiene Sn. Esto mejora adicionalmente la resistencia a la corrosión después de un uso prolongado en el entorno de uso de separador.

- 15 La capa de óxido que contiene Sn con la que se recubre la superficie de la capa de aleación de Sn no es una capa de óxido natural formada en el entorno atmosférico sino una capa de óxido formada a propósito mediante un proceso tal como inmersión en una disolución de ácido. Normalmente el grosor de la capa de óxido natural es aproximadamente de 2 nm a 3 nm.

- 20 El componente principal de la capa de óxido que contiene Sn es preferiblemente SnO_2 . El grosor de la capa de óxido que contiene Sn está preferiblemente en el intervalo de 5 nm a 50 nm. El grosor 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 delgada, no puede alcanzarse el efecto de mejora de resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separador.

- 25 Se considera que el motivo por el que recubrir la superficie de la capa de aleación de Sn con la capa de óxido que contiene Sn mejora la resistencia a la corrosión después de un uso prolongado en el entorno de uso de separador es el siguiente. Dado que la capa de óxido que contiene Sn es muy estable en el entorno de uso de 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 eficazmente.

- 30 Aquí, la capa de óxido se forma a propósito mediante un proceso tal como inmersión en una disolución de ácido en vez de usar una capa de óxido natural, por el siguiente motivo. A través de un proceso de este tipo, la capa de óxido puede formarse uniformemente y con exactitud sobre la superficie de la capa de aleación de Sn, siendo posible suprimir la corrosión de la capa de aleación de Sn muy eficazmente.

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

- 40 Por ejemplo, la capa de óxido que contiene Sn puede formarse, en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 60 °C y un pH de 2, haciendo pasar corriente a través de la lámina de acero inoxidable para un separador que tiene la capa de aleación de Sn durante 5 minutos con una densidad de corriente de +1 mA/cm^2 .

- 45 El método de formar la capa de óxido que contiene Sn no se limita 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

- 50 Después de formarse la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable con la capa de imprimación en medio o después de formarse la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato de lámina de acero inoxidable con la capa de imprimación en medio y después formarse la capa de óxido que contiene Sn, puede formarse adicionalmente una capa conductora con resistencia eléctrica baja 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 de separador requeridas. Por ejemplo, la capa de aleación de Sn o la capa de óxido que contiene Sn puede recubrirse con una
- 55 capa metálica, una capa polimérica conductora, una capa de aleación que contiene partículas conductoras o una capa polimérica que contiene partículas conductoras, con el fin de reducir la resistencia de contacto.

Ejemplos

- 60 Se usan separadores de celdas de combustible de electrolito polimérico en un entorno de corrosión intenso de aproximadamente 80 °C de temperatura y 3 de pH, y por tanto se requiere una resistencia a la corrosión excelente. Además, se requiere una adhesión alta entre el sustrato de lámina de acero inoxidable y la capa de aleación de Sn de forma que la capa de aleación de Sn no se desprenda del sustrato de lámina de acero inoxidable en el procedimiento de fabricación de la celda de combustible tal como el proceso de formar el separador en una forma deseada o el proceso de ensamblar la celda de combustible. Además, se requiere una reducción de la tasa de aumento de grosor de hoja después de la formación de película sobre la superficie del sustrato de lámina de acero
- 65

inoxidable para hacer la celda de combustible más compacta. En vista de estas propiedades requeridas, se llevaron a cabo los siguientes tres tipos de evaluación con las muestras descritas más adelante.

(1) Evaluación de la resistencia a la corrosión (estabilidad a largo plazo en entorno de uso de separador)

Normalmente, el acero inoxidable es más susceptible a disolución transpasiva y experimenta mayor degradación de la resistencia a la corrosión cuando el potencial aplicado es mayor. Para evaluar la estabilidad en el caso de exposición prolongada a potencial alto en el entorno de uso de separador, se sumergió cada muestra en una disolución acuosa de ácido sulfúrico con una temperatura de 80 °C y un pH de 3 y se sometió a la aplicación de un potencial constante de 0,9 V (frente a SHE) durante 100 horas usando Ag/AgCl (disolución acuosa de KCl saturada) como electrodo de referencia y se midió la carga eléctrica total transportada durante 100 horas. Basándose en la carga eléctrica total transportada durante 100 horas, se evaluó la resistencia a la corrosión mediante los siguientes criterios.

- Excelente: la carga eléctrica total transportada durante 100 horas es de menos de 15 mC/cm².
- Buena: la carga eléctrica total transportada durante 100 horas es de 15 mC/cm² o más y menos de 50 mC/cm².
- Escasa: la carga eléctrica total transportada durante 100 horas es de 50 mC/cm² o más.

(2) Evaluación de la propiedad de adhesión

Cada muestra que tiene la capa formada sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) se cortó a 25 mm W x 80 mm L. La muestra cortada y una hoja de acero laminada en frío de 25 mm W x 80 mm L x 1 mm t se unieron para solaparse parcialmente en la superficie recubierta con la capa, para producir una probeta para la evaluación de la adhesión tal como se ilustra en la figura 2. Aquí, la muestra y la hoja de acero laminada en frío se unieron usando un adhesivo (E-56 fabricado por Sunrise MSI Corporation) siendo el grosor del adhesivo de 2 mm y siendo el área de adhesión de 25 mm W x 20 mm L. Debido al grosor de hoja pequeño de la muestra (sustrato), se unió otra hoja 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 hoja de acero laminada en frío, para refuerzo.

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 imprimación, 14 es una capa de aleación de Sn, 15 es una hoja de acero laminada en frío, 16 es un adhesivo y 17 una capa de óxido que contiene Sn.

Se tiró de la probeta obtenida para la evaluación de la adhesión desde ambos lados por una máquina de ensayo de tracción para determinar la resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) en el momento de desprendimiento de la capa a partir del sustrato, y se evaluó la propiedad de adhesión de la capa 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 menos de 6 MPa.
- Escasa: la resistencia al desprendimiento es de menos de 2 MPa.

(3) Evaluación de la compacidad

La tasa de aumento de grosor de hoja se calculó usando la siguiente ecuación, y la compacidad cuando se apilan celdas de combustible se evaluó mediante los siguientes criterios.

Tasa de aumento de grosor de hoja (e) = {[grosor de capa de aleación de Sn por lado] x 2}/[grosor del sustrato de lámina de acero inoxidable]} x 100

- Buena: la tasa de aumento de grosor de hoja es del 20 % o menos.
- Escasa: la tasa de aumento de grosor de hoja supera el 20 %.

El grosor de la capa de imprimación y el grosor de la capa de óxido que contiene Sn son suficientemente pequeños en comparación con el grosor de la capa de aleación de Sn, y por tanto se excluyen en este caso.

(Ejemplo 1)

Cada uno de SUS447J1 (Cr: el 30 % en masa, Mo: el 2 % en masa), SUS445J1 (Cr: el 22 % en masa, Mo: el 1 % en masa), y SUS316L (Cr: el 18 % en masa, Ni: el 12 % en masa, Mo: el 2 % en masa) de 0,05 mm de grosor de hoja como sustrato de lámina de acero inoxidable se sometió a tratamiento previo apropiado tal como desengrasado, y

después se formó una capa de imprimación con la forma de recubrimiento mostrada 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 el grosor promedio mostrado en la tabla 1 sobre el sustrato de lámina de acero inoxidable que tenía la capa de imprimación usando la siguiente composición de baño de chapado y condición de chapado, para obtener una lámina de acero inoxidable para un separador.

En algunas de las muestras, se hizo pasar corriente a través de la lámina de acero inoxidable obtenida para un separador en una disolución acuosa de ácido sulfúrico a una temperatura de 60 °C y un pH de 2 durante 5 minutos con una densidad de corriente de +1 mA/cm², para formar una capa de óxido que contiene 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 obtenida para un separador.

La forma de recubrimiento de la capa de imprimación se controló determinando la relación con el tiempo de galvanoplastia y la densidad de corriente de antemano. El grosor promedio de la capa de aleación de Sn y el grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn se controlaron cada uno determinando la relación con el tiempo de chapado o el tiempo de electrolisis anódica de antemano. Para comparación, también se preparó una lámina de acero inoxidable para un separador que no tenía ninguna capa de imprimación, y se evaluó cada propiedad de la manera mencionada anteriormente.

La razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato y el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla se midieron mediante el siguiente método.

En primer lugar, cada muestra obtenida formando la capa de imprimación sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) se cortó a aproximadamente 10 mm W x 10 mm L, y la forma de recubrimiento de la capa de imprimación se observó usando un microscopio electrónico de barrido (SEM) y se midió el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla.

A continuación, se binarizaron la porción de recubrimiento y porción no de recubrimiento de la capa de imprimación usando software de análisis de imágenes, para calcular la razón de recubrimiento sobre el sustrato. Aunque el aumento en la observación con SEM puede cambiarse libremente según el diámetro máximo de la porción de recubrimiento, preferiblemente el aumento es aproximadamente de 10 000 a 100 000.

La medición de cada uno de la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato y el diámetro máximo de cada porción de recubrimiento de tipo isla se llevó a cabo en 10 muestras obtenidas cortando la misma muestra que tenía la capa de imprimación en la forma mencionada anteriormente, y se seleccionó el valor máximo.

Aquí, la composición de la imprimación hecha de una capa de aleación de Ni y P se midió mediante un espectrómetro de rayos X de dispersión de energía (EDX) usado en la observación por SEM.

Con respecto a las muestras que no tienen imprimación, se muestra “-” en los campos tanto de la razón de recubrimiento sobre el sustrato como del diámetro máximo de porción de recubrimiento de tipo isla de la capa de imprimación en la tabla 1.

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

Aquí, la composición de la capa de aleación de Sn se identificó mediante un espectrómetro de rayos X de dispersión de energía (EDX) y difractómetro de rayos X (XRD) usado en la observación por SEM.

El grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn se midió mediante el siguiente método. En primer lugar, cada muestra obtenida formando la capa de imprimación, la capa de aleación de Sn y la capa de óxido que contiene Sn sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) se procesó mediante un haz de iones enfocado para preparar una película delgada para observación en sección transversal. Después se observó la película delgada producida para observación en sección transversal usando un microscopio electrónico de transmisión (TEM), para medir el grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn. En la medición del grosor de la capa de óxido que contiene Sn, el grosor de la capa de óxido que contiene Sn en la película delgada preparada para observación en sección transversal se midió en tres ubicaciones, y se estableció el valor promedio de las tres ubicaciones como grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn.

Aquí, la composición de la capa de óxido se identificó mediante un espectrómetro de rayos X de dispersión de energía (EDX) y espectrómetro fotoelectrónico de rayos X (XPS) usado en la observación por TEM.

5 (Composición de baño de chapado y condición de chapado de capa de imprimación)

<Imprimación de Ni>

Cloruro de níquel: 240 g/l

10 Ácido clorhídrico: 125 ml/l

Temperatura: 50 °C

15 Tiempo de galvanoplastia: de 2 segundos a 60 segundos

Densidad de corriente: de 3 A/dm² a 8 A/dm²

<Imprimación de Ni-P>

20 Sulfato de níquel: 1 mol/l

Cloruro de níquel: 0,1 mol/l

25 Ácido bórico: 0,5 mol/l

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

Temperatura: 50 °C

30 Tiempo de galvanoplastia: de 2 segundos a 60 segundos

Densidad de corriente: de 3 A/dm² a 8 A/dm²

35 <Imprimación de Cu>

Cianuro de cobre: 30 g/l

Cianuro de sodio: 40 g/l

40 Hidróxido de potasio: 4 g/l

Temperatura: 40 °C

45 Tiempo de galvanoplastia: de 2 segundos a 60 segundos

Densidad de corriente: de 3 A/dm² a 8 A/dm²

<Imprimación de Ag>

50 Cianuro de plata y potasio: 2 g/l

Cianuro de sodio: 120 g/l

55 Temperatura: 30 °C

Tiempo de galvanoplastia: de 2 segundos a 60 segundos

Densidad de corriente: de 3 A/dm² a 6 A/dm²

60 <Imprimación de Au>

Cianuro de potasio y oro: 8 g/l

65 Citrato de sodio: 80 g/l

Sulfamato de níquel: 3 g/l

Acetato de cinc: 0,3 g/l

5 Temperatura: 30 °C

Tiempo de galvanoplastia: de 2 segundos a 60 segundos

Densidad de corriente: de 3 A/dm² a 6 A/dm²

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

<Ni₃Sn₂>

15 Cloruro de níquel: 0,15 mol/l

Cloruro de estaño: 0,15 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

20 Glicina: 0,15 mol/l

Temperatura: 60 °C

25 Densidad de corriente: 1 A/dm²

<Ni₃Sn₄>

Cloruro de níquel: 0,15 mol/l

30 Cloruro de estaño: 0,30 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

35 Temperatura: 60 °C

Densidad de corriente: 1 A/dm²

<FeSn>

40 Cloruro férrico: 0,15 mol/l

Cloruro de estaño: 0,18 mol/l

45 Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Temperatura: 60 °C

Densidad de corriente: 1 A/dm²

50 <FeSn₂>

Cloruro férrico: 0,15 mol/l

55 Cloruro de estaño: 0,36 mol/l

Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l

Temperatura: 60 °C

60 Densidad de corriente: 1 A/dm²

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

65 La tabla 1 resume los resultados de evaluar la resistencia a la corrosión (estabilidad a largo plazo en el entorno de

uso del separador), la propiedad de adhesión y la compacidad para cada muestra obtenida según se describió anteriormente. En cada muestra que tiene la capa de imprimación, la capa de imprimación se distribuyó en forma de islas.

Tabla 1

N.º de muestras- muestra	Sustrato	Condición de preparación de muestra						Carga eléctrica total durante 100 horas (mC/cm ²)	Resistencia al desprendimiento (MPa)	Tasa de aumento de grosor de lámina (%)	Resultado de evaluación			Observaciones		
		Capa de imprimación (%)		Capa de aleación		Capa de óxido que contiene Sn					Resistencia a la corrosión	Adhesión	Compatibilidad			
		Tipo	Razón de recubrimiento de la capa imprimación (%)	Diámetro máximo de porción de recubrimiento de tipo isla (µm)	Contenido de P (% en masa)	Componente principal	Grosor promedio (µm)								Componente principal	Grosor promedio (nm)
1		N/A	-	-	-		3,0	SnO ₂	15	6,1	1,6	12,0	Excelente	Escasa	Buena	Ejemplo comparativo
2			2	0,01	-		1,0	SnO ₂	15	7,7	3,6	4,0	Excelente	Buena	Buena	Ejemplo
3			33	0,05	-		1,0	SnO ₂	15	10,5	7,6	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
4			64	0,1	-		1,0	SnO ₂	15	11,7	8,0	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
5			70	0,2	-		1,0	SnO ₂	15	12,6	10,8	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
41		Ni	100	Conectado e inmedible	-		8,0	SnO ₂	15	216	12,0	32,0	Escasa	Excelente	Escasa	Ejemplo comparativo
42			100	Conectado e inmedible	-		11,0	SnO ₂	15	14,7	11,6	44,0	Excelente	Excelente	Escasa	Ejemplo comparativo
6	SU447JII		1	0,01	14	Ni ₃ Sn ₂	1,0	SnO ₂	15	7,5	1,8	4,0	Excelente	Escasa	Buena	Ejemplo comparativo
7			5	0,02	13		1,0	SnO ₂	15	6,8	5,8	4,0	Excelente	Buena	Buena	Ejemplo
8			10	0,02	15		1,0	SnO ₂	15	6,7	6,2	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
9			25	0,03	15		1,0	-	-	39,1	6,4	4,0	Buena	Excelente	Buena	Ejemplo
10			25	0,03	15		1,0	SnO ₂	15	7,9	7,4	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
11			25	0,2	15		1,0	SnO ₂	15	10,8	7,1	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
12		Ni-P	25	0,5	15		1,0	SnO ₂	15	12,5	6,8	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
43			25	0,9	15		1,0	SnO ₂	15	13,2	6,4	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
13			25	1,5	15		1,0	SnO ₂	15	21,6	6,5	4,0	Buena	Excelente	Buena	Ejemplo
14			40	0,03	5		1,0	SnO ₂	15	9,7	7,1	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
15			52	0,08	22		1,0	SnO ₂	15	11,3	8,6	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
17			64	1,0	15		1,0	SnO ₂	15	14,8	10,3	4,0	Excelente	Excelente	Buena	Ejemplo
44			72	0,1	15	1,0	SnO ₂	15	52,3	10,9	4,0	Escasa	Excelente	Buena	Ejemplo comparativo	
19			85	1,5	13		1,0	SnO ₂	15	149	10,6	4,0	Escasa	Excelente	Buena	Ejemplo

[illegible]

La tabla revela los siguientes puntos.

- 5 (a) Todas las muestras de los ejemplos tienen una carga eléctrica total baja transportada durante 100 horas en la evaluación de la resistencia a la corrosión, y muestran resistencia a la corrosión favorable incluso en el caso de exposición prolongada a potencial alto como en el entorno de uso de separador.
- 10 (b) Todas las muestras de los ejemplos tienen una resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) necesaria para desprender la capa aumentada significativamente, y tienen una propiedad de adhesión aumentada significativamente.
- (c) Todas las muestras de los ejemplos tienen una tasa de aumento de grosor de hoja baja, y tienen una compacidad excelente cuando se apilan celdas de combustible.
- 15 (d) El ejemplo n.º 10 que tiene la capa de óxido de Sn tiene una carga eléctrica total baja transportada durante 100 horas en la evaluación de la resistencia a la corrosión y tiene una resistencia a la corrosión mejorada, en comparación con el ejemplo n.º 9 que no tiene óxido de Sn.
- 20 (e) Los ejemplos n.º 10, n.º 11, n.º 12 y n.º 43 en los que el diámetro máximo de la porción de recubrimiento de tipo isla de la capa de imprimación es de 1 µm o menos tienen una carga eléctrica total baja transportada durante 100 horas en la evaluación de la resistencia a la corrosión y tienen una resistencia a la corrosión mejorada, en comparación con el ejemplo n.º 13 en el que el diámetro máximo es de más de 1 µm.
- 25 (f) Las muestras de los ejemplos comparativos n.º 1, n.º 29 y n.º 35 que no tienen capa de imprimación tienen una resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) necesaria para desprender la capa baja, y no presentan una propiedad de adhesión deseada.
- (g) La muestra del ejemplo comparativo n.º 6 con la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato por debajo del intervalo apropiado tiene una resistencia a la tracción (resistencia al desprendimiento) necesaria para desprender la capa baja, y no presenta una propiedad de adhesión deseada.
- 30 (h) Las muestras de los ejemplos comparativos n.º 19, n.º 41, n.º 44 y n.º 45 con la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato que supera el intervalo apropiado tienen una carga eléctrica total grande alta transportada durante 100 horas, y no presentan una resistencia a la corrosión deseada.
- 35 (i) La muestra del ejemplo comparativo n.º 42 o n.º 46 que tienen una capa de aleación de Sn más gruesa que la muestra del ejemplo comparativo n.º 41 o n.º 45 tienen una resistencia a la corrosión deseada pero una compacidad escasa.

40 **Lista de signos de referencia**

- 1 cuerpo unido de membrana-electrodo
- 2, 3 capa de difusión de gases
- 45 4, 5 separador
- 6 conducto de aire
- 50 7 conducto de hidrógeno
- 11 muestra
- 12 sustrato de lámina de acero inoxidable
- 55 13 capa de imprimación
- 14 capa de aleación de Sn
- 60 15 hoja de acero laminada en frío
- 16 adhesivo
- 65 17 capa de óxido que contiene Sn.

REIVINDICACIONES

1. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico, que comprende:
5 un sustrato hecho de lámina de acero inoxidable; y
una capa de aleación de Sn con la que se recubre una superficie del sustrato, con una capa de imprimación en medio,
10 en la que el grosor de la capa de aleación de Sn es de 0,1 μm o más y 5 μm o menos, la razón de recubrimiento de la capa de imprimación sobre el sustrato es del 2 % al 70 %, la capa de imprimación se distribuye en forma de islas, y el diámetro máximo de cada una de las islas como porciones de recubrimiento es de 1 μm o menos.
15
2. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según la reivindicación 1,
20 en la que la capa de aleación de Sn contiene al menos uno seleccionado del grupo que consiste en Ni y Fe.
3. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según la reivindicación 1 o 2,
25 en la que la capa de aleación de Sn contiene Ni_3Sn_2 .
4. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3,
30 en la que la capa de imprimación contiene al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.
5. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según la reivindicación 4,
35 en la que la capa de imprimación está hecha de una capa de aleación de Ni y P, y tiene un contenido de P en un intervalo del 5 % al 22 % en masa.
6. Lámina de acero inoxidable para un separador de una celda de combustible de electrolito polimérico según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, que comprende
40 una capa de óxido que contiene Sn sobre una superficie de la capa de aleación de Sn.

FIG. 1

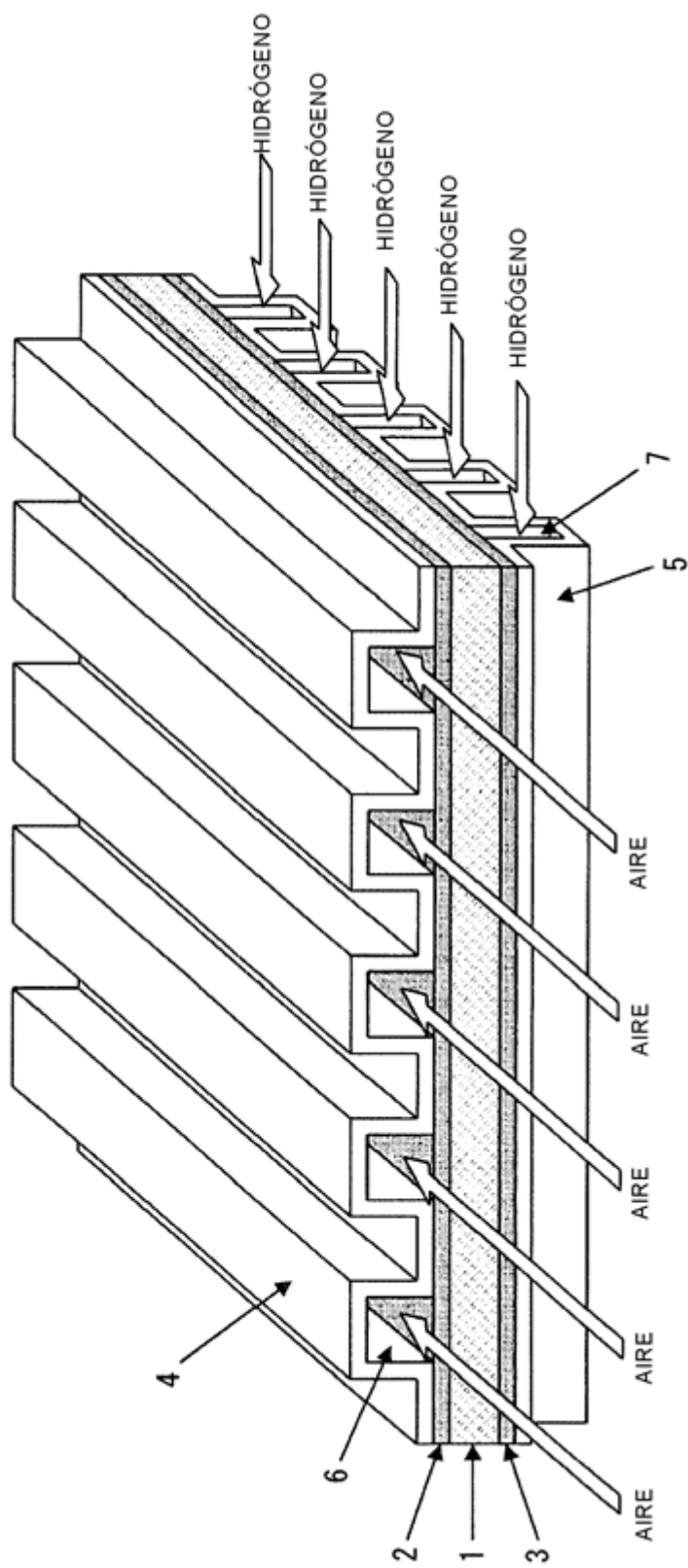


FIG. 2

