

NEDO水素・燃料電池成果報告会2024

発表No. A2-8

燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業
/共通課題解決型基盤技術開発
/固体高分子形燃料電池用接着シール技術の研究開発

佐藤千明

国立大学法人東京工業大学

国立研究開発法人産業技術総合研究所

国立研究開発法人物質・材料研究機構

兵庫県公立大学法人兵庫県立大学

国立大学法人大阪大学

国立大学法人名古屋工業大学

埼玉県産業技術総合センター

発表日 2024年7月19日

連絡先：佐藤千明
国立大学法人東京工業大学
sato.c.aa@m.titech.ac.jp

事業概要

1. 期間

開始 : 2022年8月1日
終了（予定） : 2025年3月31日

2. 最終目標

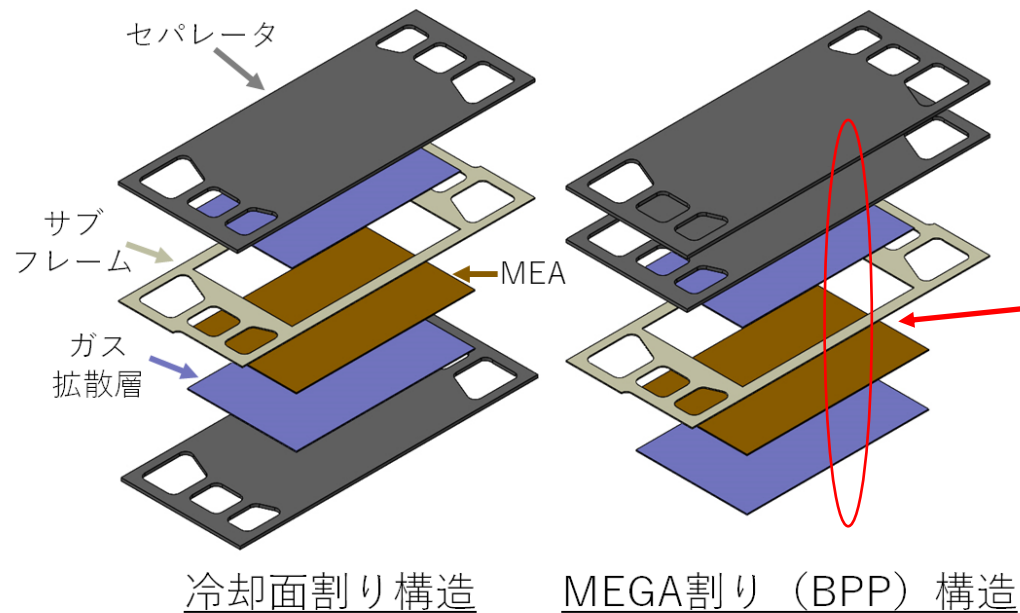
- 車載用接着剤：局所温度**120℃**、運転時間**50,000時間**に耐え得るセル内及びセル間接着剤で、セル製造タクト**3秒以内**、コスト**¥250/セル以下**。
- 定置用接着剤：局所温度**90℃**、運転時間**15年**に耐え得るセル内及びセル間接着剤で、セル製造タクト**20秒以内**、コスト**¥500/セル以下**。
- 被着材表面処理：初期接着強度**10MPa以上・1N/mm以上**、タクト**3秒以内(車載用)**、**20秒以内(定置用)**。
- ”構造を考慮したT/P”の漏洩開始圧力を**30%の精度**で予測可能。
- 湿熱曝露**10,000時間**の材料強度低下および接着強度低下を**200時間以内**の加速試験で予測。

3.成果・進捗概要

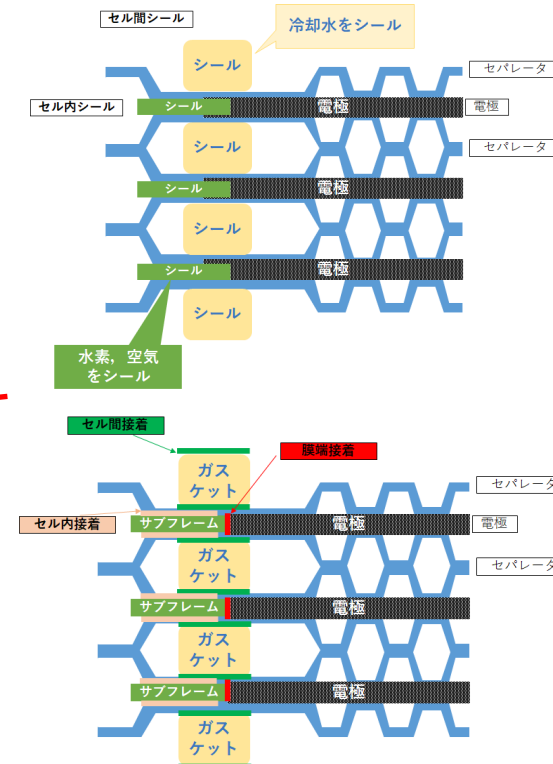
開発項目	成果
接着剤	定置用、移動体用のセル内接着剤、およびセル間粘着剤と膜端接着剤の試作を完了。
表面処理	SUSおよびカーボン被着体に対して最終目標値の強度 10MPa を達成。
強度評価	漏洩試験、バースト試験、クリープ試験などの各種試験法を確立。
耐久性	5000時間 の曝露結果を 200時間程度 の加速試験で予測（接着剤による）。

1. 事業の位置付け・必要性

- シール部の過酷な環境（高温、高湿、低pH）に耐え、しかも接合時間の短い接着剤を開発し、シール部に適用することにより、PEFCの生産性の向上、コストダウン、運転温度の向上、および長寿命化を図る。
- シール部の各種課題は、協調領域の共通課題としてオールジャパンでの取り組みが可能。プロセス合理化や信頼性向上は低コスト化に極めて重要。



PEFCの構造



現状のシール（上）と接着剤の適用箇所（下）

1. 事業の位置付け・必要性

- NEDOロードマップに生産速度等の目標が示されている。
- この他のメーカー側の要求についてはFC-cubicからの提供情報を頂き、これを勘案して開発目標を設定。

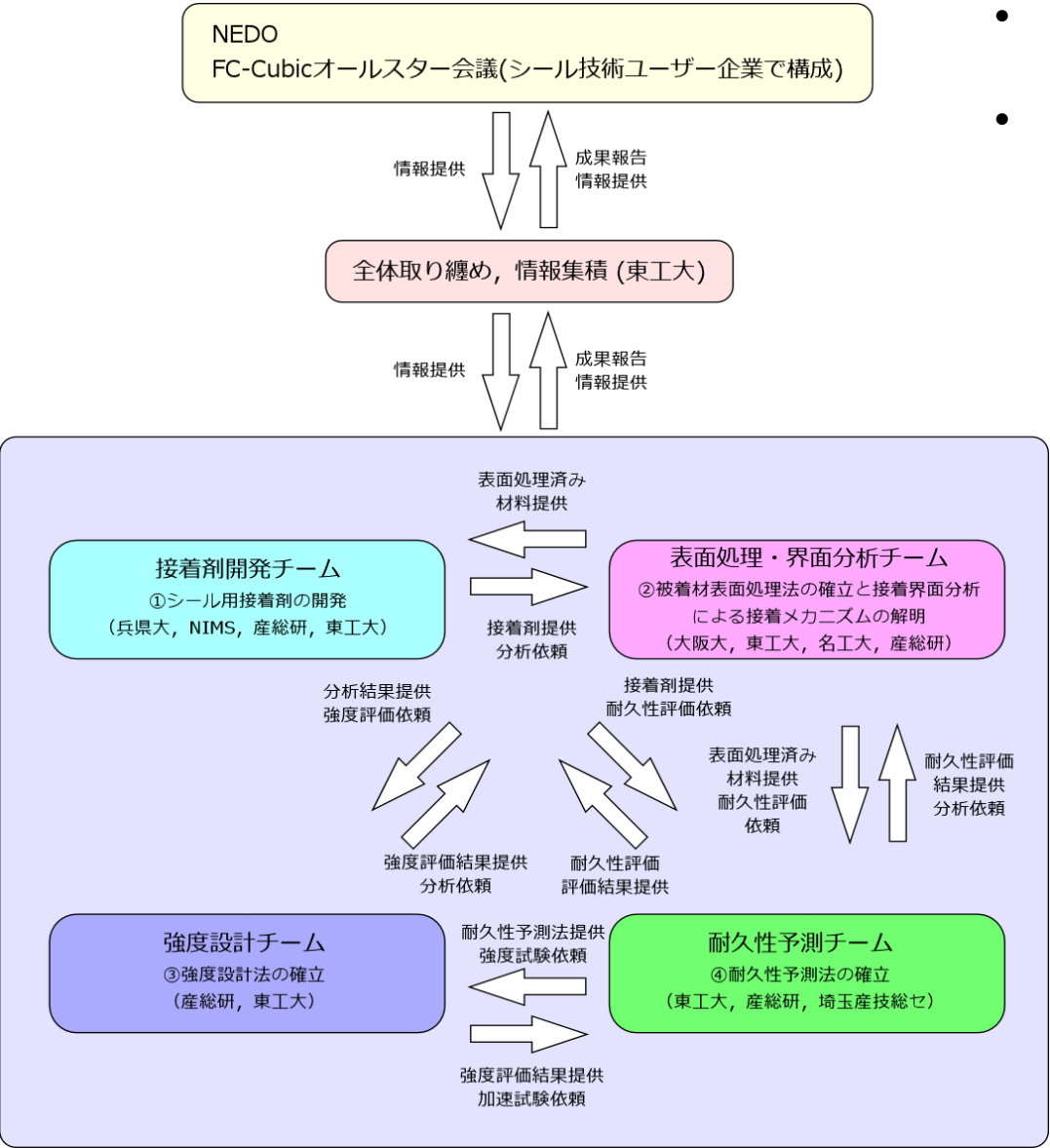
燃料電池用接着シール技術の開発目標

項目／目標時期：	事業残り3年(2024年までの技術開発)			2030年目標(2027年までの技術開発)	
	移動体用	定置用		移動体用	定置用
セル生産速度	1-3秒/セル	10－20秒/セル		0.5秒/セル	1－2秒/セル
シール材コスト (全シール部位)	¥200-250/セル	¥400－500/セル		¥100-150/セル	¥200－300/セル
温度 *1	局所温度120℃	局所温度90℃		局所温度120℃ (冷却水出口105℃)	局所温度90℃
耐久時間 *1	50,000時間	10－15年		50,000時間	15年
評価解析手法	長期間の耐久性予測手法を開発			シール構造の設計指針を確立	

その他の目標・要望（FC-cubic）

- コンタミレスな接着剤の実現（エージングの効果も含む）
- 開発した材料の国内材料サプライヤへの技術移管
- セル厚さの低減と反力の保持（公差吸収）の実現
- 加速劣化試験手法および耐久性予測手法の確立
- 実際の発電条件下におけるセル性能の評価方法の検討
- 構造に合わせた最適な生産技術の提案
- 早期の実用化と知財の確保
- 標準化やコンソーシアム化による競争力の確保
- リサイクル・環境負荷低減材の検討

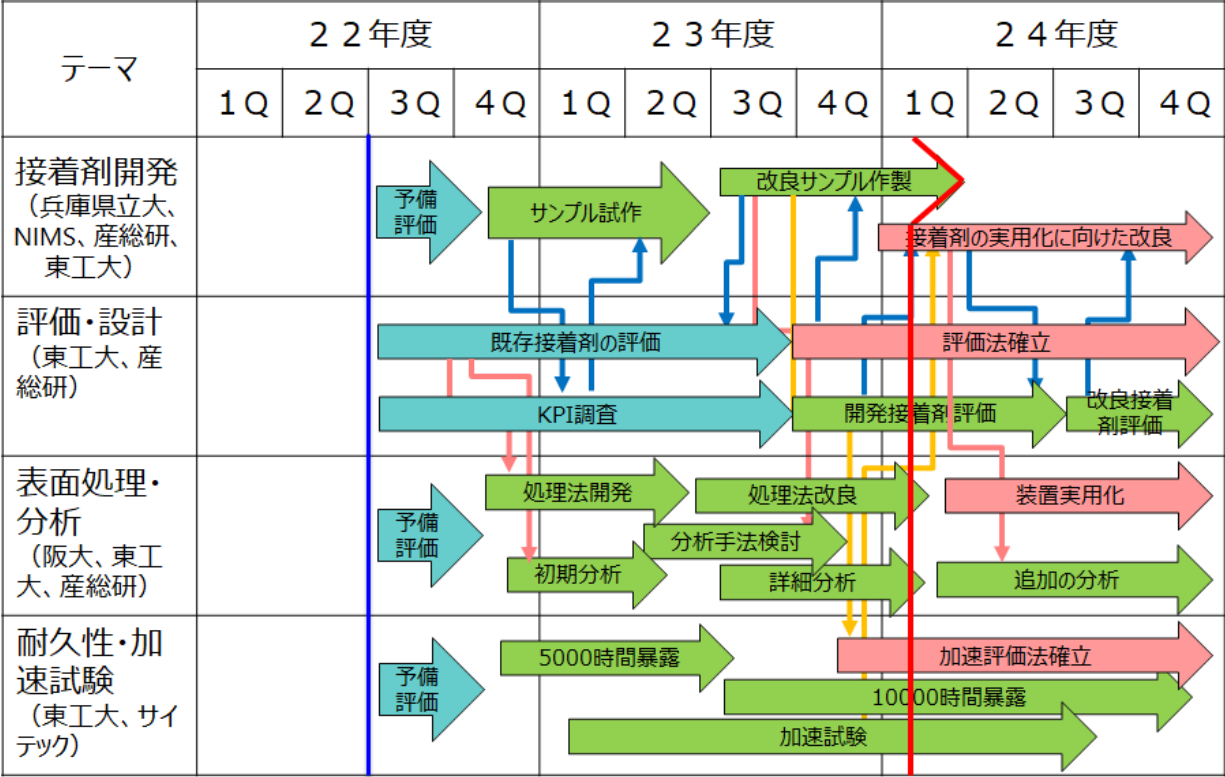
2. 研究開発マネジメントについて



本プロジェクトの実施体制

- 複数のテーマに対してそれぞれチームを設置し、その実施に当たる。
- 各チームは相互に連携しつつプロジェクトの円滑な実施を図る。また、全体の取り纏め、知財の管理、並びにユーザー企業（FC-Cubicオールスター会議）との調整は東工大が実施。

本プロジェクトの実施スケジュール



備考： 助走フェーズ 開発フェーズ 実用化を目指すフェーズ

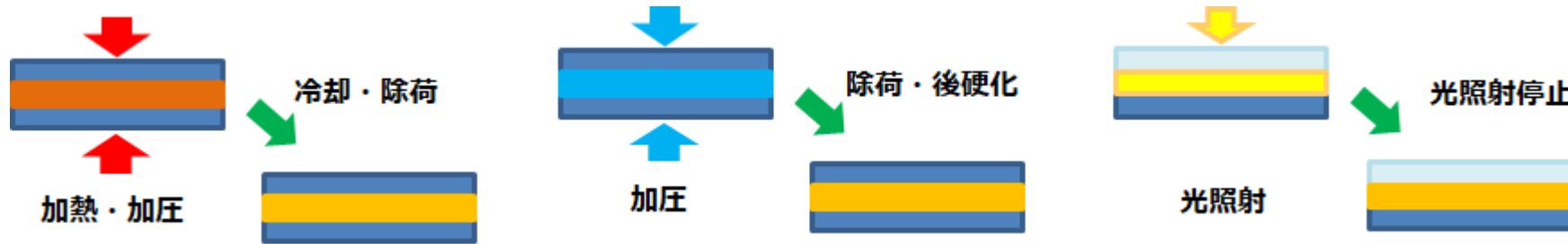
3. 研究開発成果について

・実施内容

本研究開発では、以下の4つの項目を実施する。

① シール用接着剤の開発

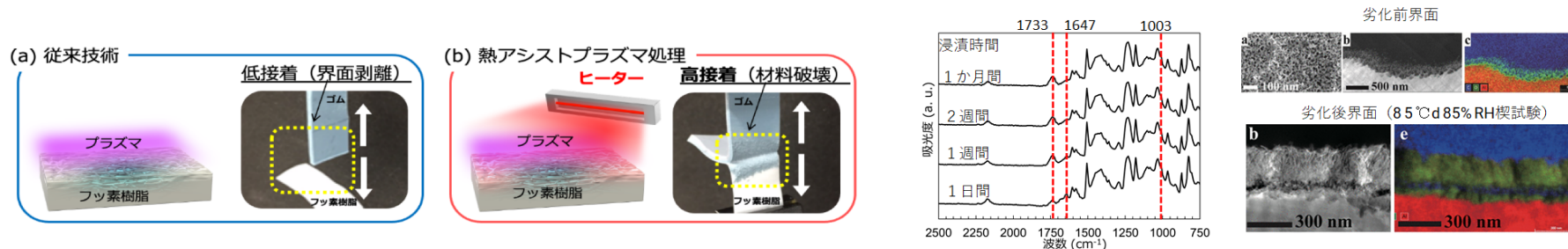
燃料電池の使用用途と箇所に対応する3種類の接着剤、具体的にはホットメルト接着剤、粘接着剤、および光硬化接着剤を開発する。



ホットメルト接着剤（左）、粘接着剤（中）、および光硬化接着剤（右）

② 被着材表面処理法の確立と 接着界面分析による接着メカニズムの解明

接着性の低いカーボンセパレーターやSUSセパレーターに対してプラズマ表面処理を実施し、接着強度を増加する。また、接着界面での接着性発現と劣化メカニズムを分析により明らかにする。



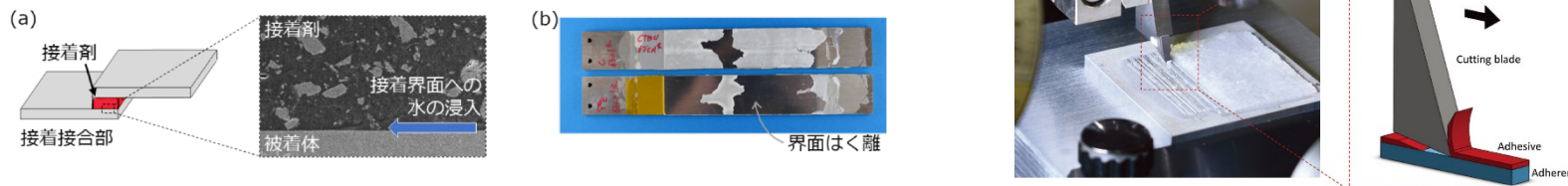
プラズマ処理（左）、および接着界面での劣化分析（右）

3. 研究開発成果について

・実施内容

③ 強度設計法の確立

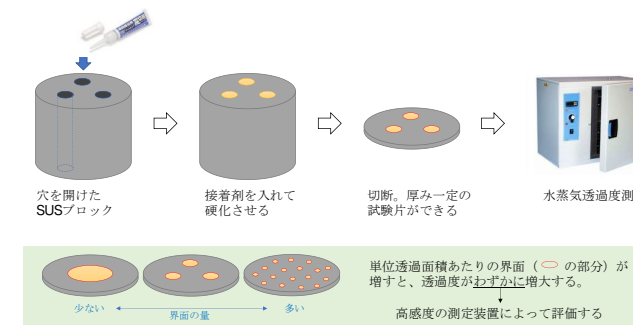
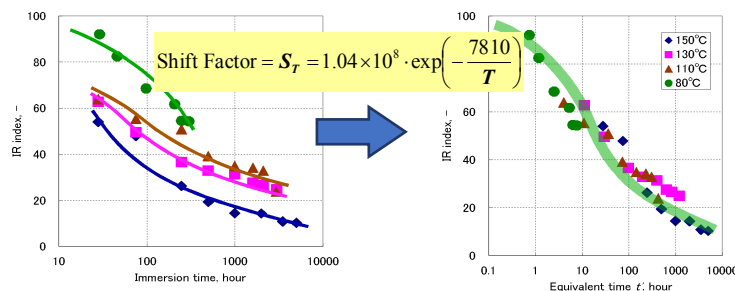
接着接合部について、接着界面の強度特性を実験的に調べ、これを基に強度予測法を確立する。さらにコンピュータシミュレーションにより接合部の強度を予測するシステムを構築する。



接着試験片の水浸漬による劣化（左）、およびSAICASを用いた界面強度評価（右）

④ 耐久性予測法の確立

接着剤や接着界面について、アレニウスプロットなどの物理化学的な手法をベースとし、劣化予測に適する加速条件を求め、加速試験法の構築を行う。さらに、接着剤の水蒸気透過性、および接着界面での水拡散に関する測定法を構築する。

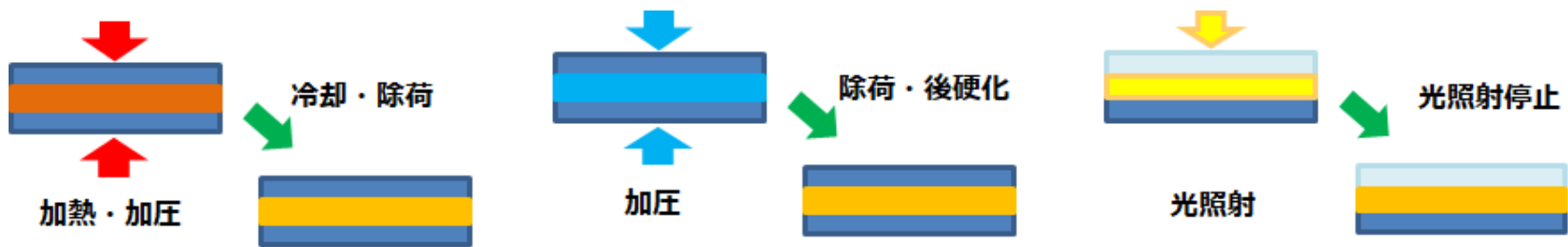


アレニウスプロットによる劣化予測（左）、および接着界面での水拡散測定（右）

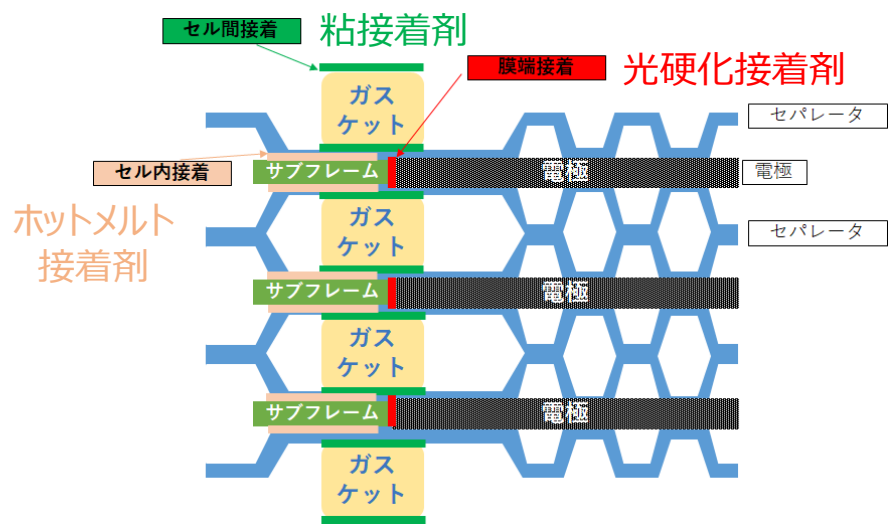
3. 研究開発成果について

①シール用接着剤の開発
(兵県大、NIMS、東工大、産総研)

- ホットメルト接着剤、粘接着剤、光硬化接着剤を開発。



ホットメルト接着剤（左）、粘接着剤（中）、および光硬化接着剤（右）



各接着剤の適用箇所

各部位に要求される強度特性（KPI）

適用箇所	要求強度特性
セル内シール	初期：0.95N/mm@95℃温水 耐久：0.45N/mm@95℃温水
セル間シール	初期：目標値無し 耐久：0.1N/mm@95℃温水 0.3MPa@95℃温水
膜端シール	0.2MPa以上

3. 研究開発成果について

(兵県大)

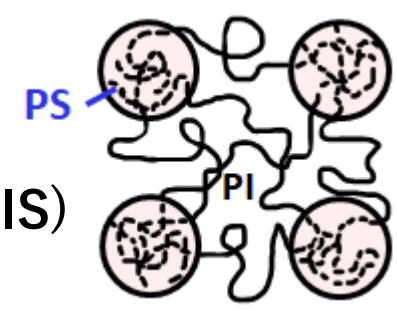
①シール用接着剤の開発

【定置用セル内接合用ホットメルト】

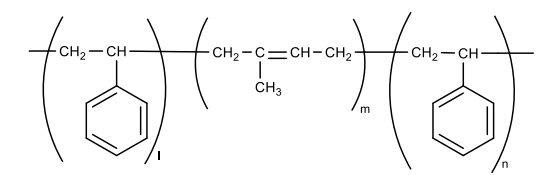
- スチレン系ブロックコポリマーに末端官能性オリゴマーを改質剤として配合した組成物。
- スチレンハードブロックに相溶した末端官能性オリゴマーがホットメルト接着プロセスの熱により架橋するため、従来のホットメルトより高耐熱・高接着強さ。

コンセプト：反応性非晶質ホットメルトブレンド、
弱架橋、冷却時急速固化

スチレン系
ブロックコポリマー
熱可塑性エラストマー(SIS)



高分子鎖が物理的に
絡み合った構造



改質剤ブレンド



ハードドメインに選択的に相溶

熱エネルギー

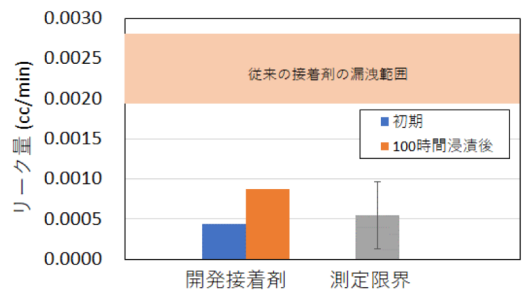
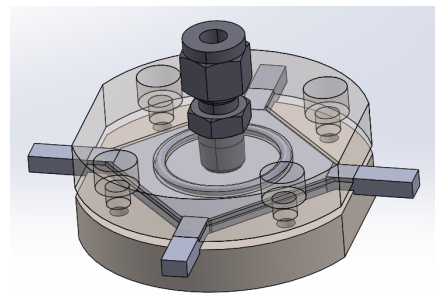
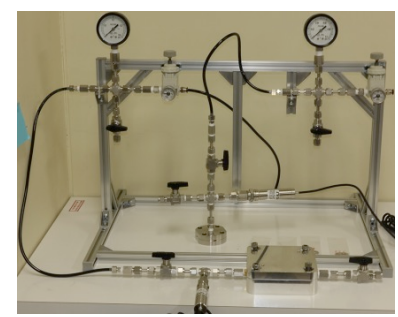


架橋

ホットメルト後に
改質剤末端官能基を化学架橋



架橋後は高分子鎖が解けない



漏洩試験結果

接着剤のコンセプト

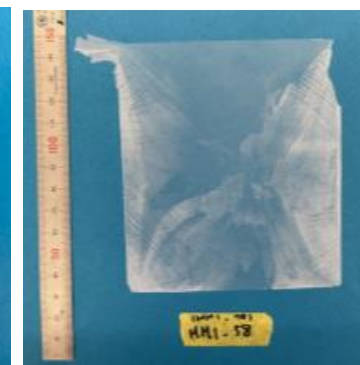
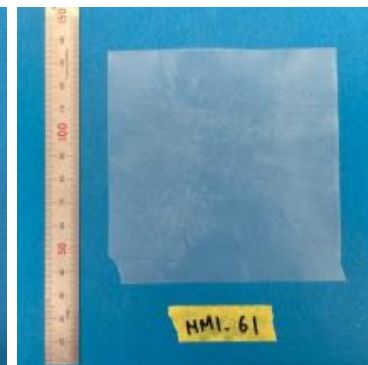
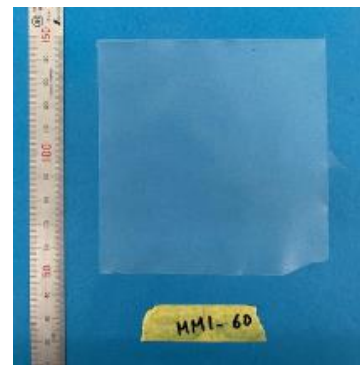
3. 研究開発成果について

(NIMS)

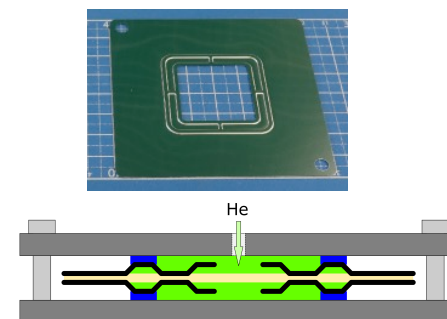
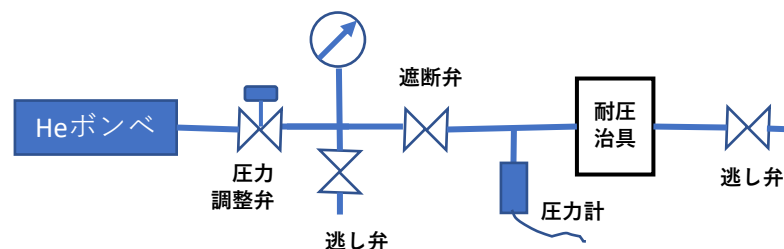
①シール用接着剤の開発

【移動体用セル内接合用ホットメルト】

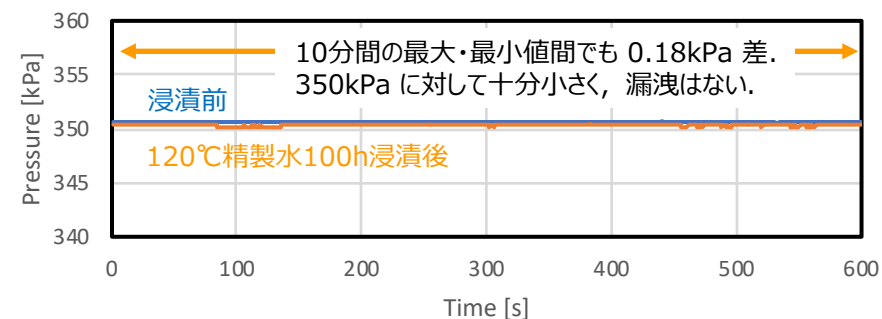
- 変性PPをベースとしたホットメルト接着剤を開発。
- 接着性と延性のバランスを重視して高ピール接着剤を実現。
- 漏洩試験もクリアしており、シール接着剤に適用可能。



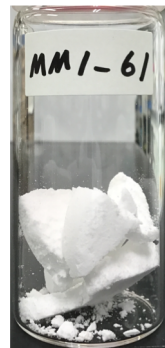
接着剤のフィルム化



漏洩試験の方法



漏洩試験結果



変性PPの合成

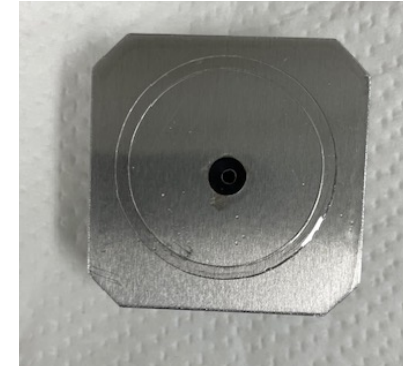
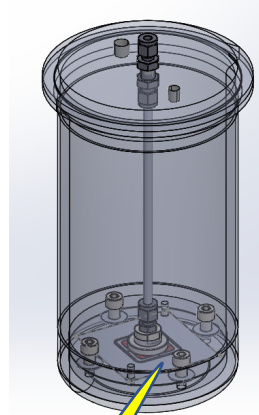
3. 研究開発成果について

(東工大)

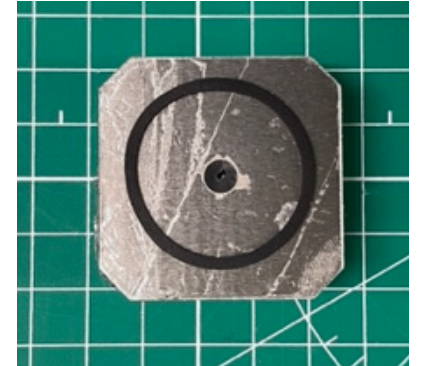
① シール用接着剤の開発

【粘接着剤】

- ・ アクリルベースの粘着剤を合成。
- ・ セル間接合への強度評価を実施。



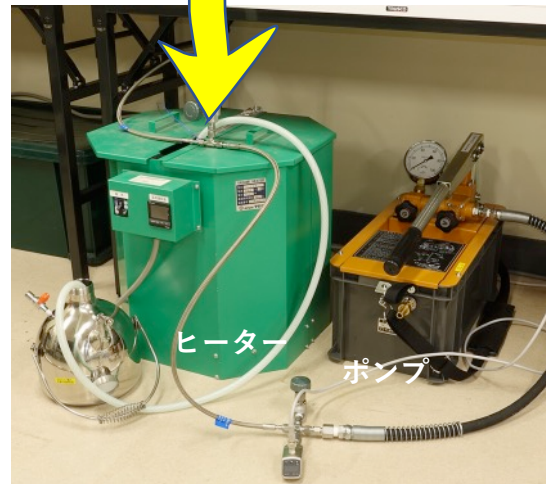
ポリカーボネートリング



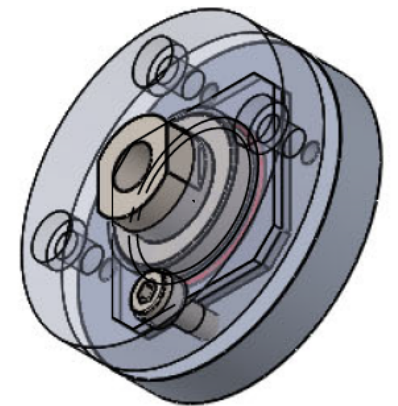
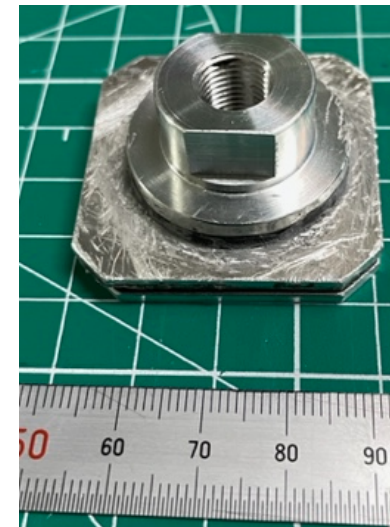
ゴムリング



粘接着剤の合成



バースト試験装置の概要



バースト試験片の構成

3. 研究開発成果について

② 被着材表面処理法の確立と 接着界面分析による接着メカニズムの解明

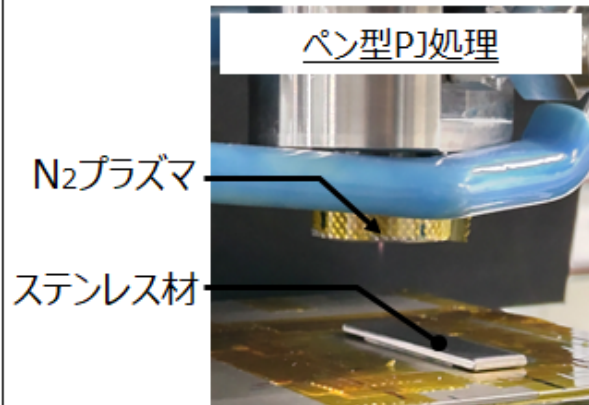
(阪大、東工大)

【表面処理】

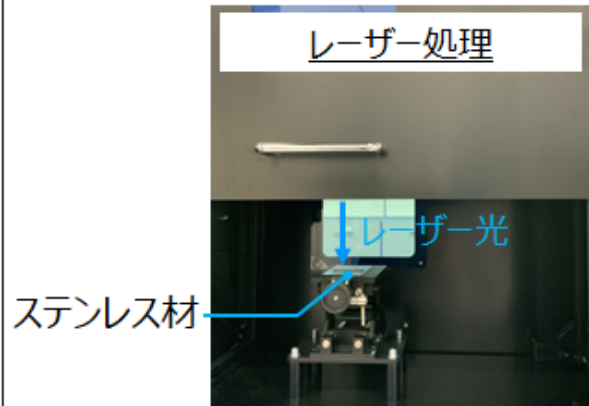
- SUS被着体（移動体用）およびカーボン被着体（定置用）の表面処理を、レーザーとプラズマにより実施。
- 最終目標の強度10MPaを達成。

表面処理

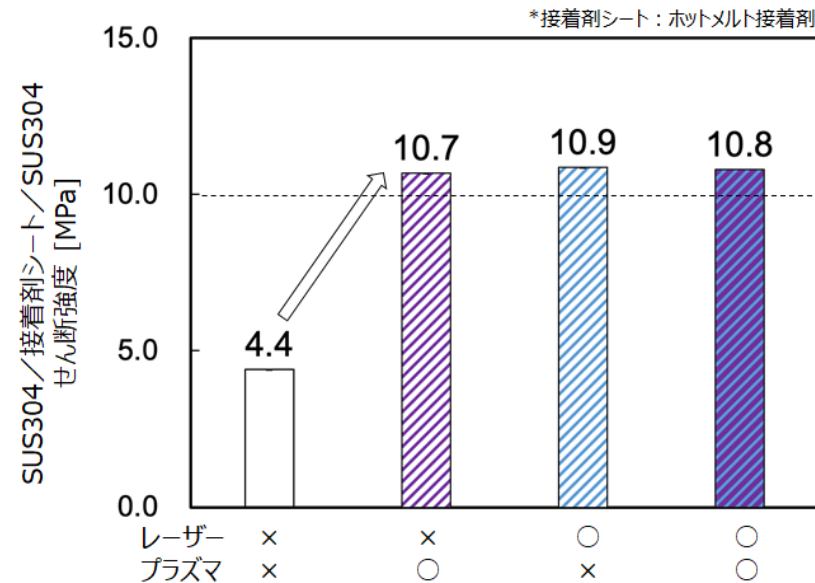
ペン型PJ処理



レーザー処理

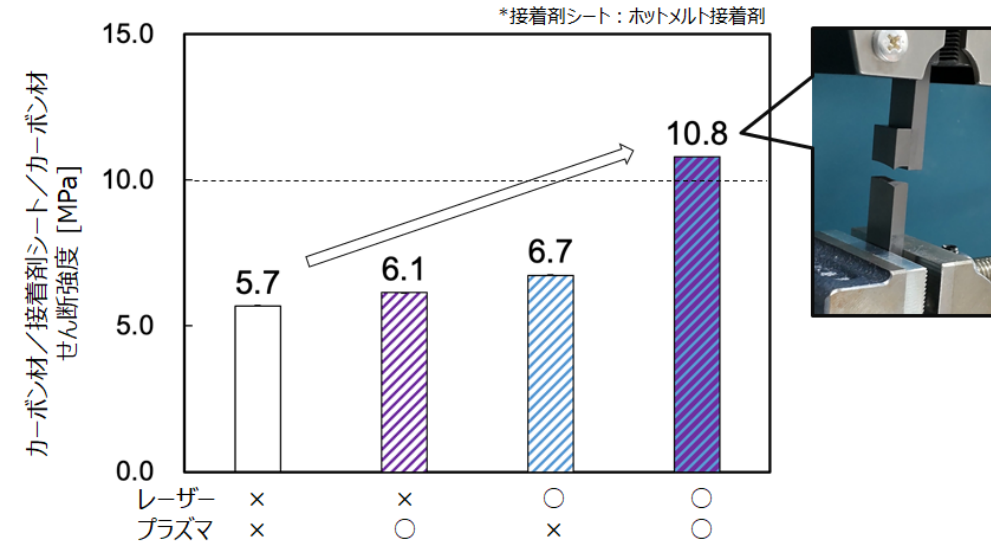


SUS被着体



「最終目標強度：初期接着強度10 MPa以上・1 N/mm以上 もしくは母材破壊」
→ プラズマ処理でもレーザー処理でも両方でも接着性向上 (全て10 MPa以上達成)

カーボン被着体



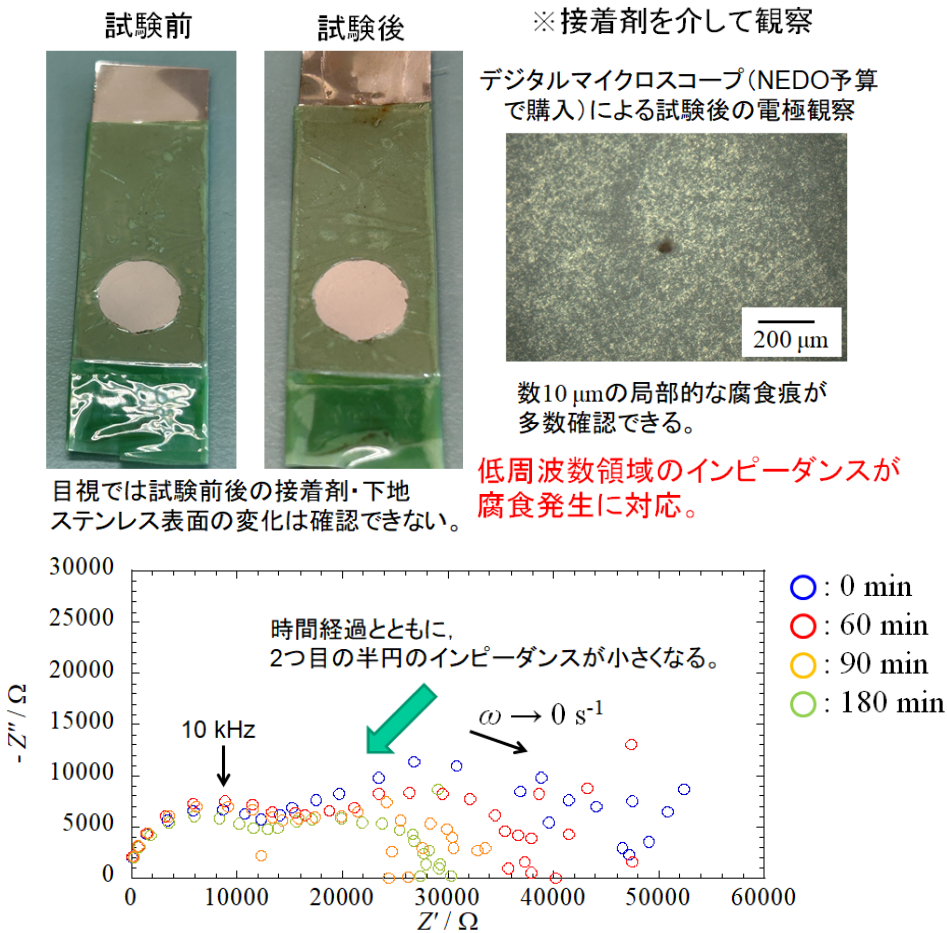
「最終目標強度：初期接着強度10 MPa以上・1 N/mm以上 もしくは母材破壊」
→ レーザー処理とプラズマ処理の併用で接着性向上 (10 MPa以上達成 + 母材破壊)

3. 研究開発成果について

② 被着材表面処理法の確立と 接着界面分析による接着メカニズムの解明 (名工大、東工大, 産総研, 埼玉産技総セ)

【接着界面腐食評価】

- SUSの腐食を電気化学的に計測。
- インピーダンスにより腐食を評価できる。



インピーダンス計測による接着界面腐食の評価

【接着剤特性評価】

- 既存接着剤のKey Performance Index を測定。
- 開発接着剤の評価に方法論を適用。

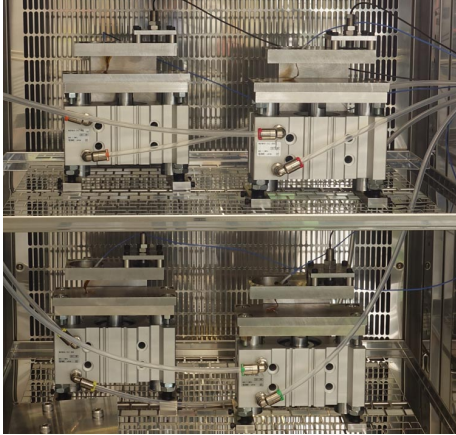
燃料電池用接着剤のKPI

項目	測定方法
初期接着力	温水中でのピール試験もしくはラップシア試験
耐久接着力	温水浸漬後のピール試験もしくはラップシア試験
ガス透過性	Heを用いた差圧法による測定
溶出性	FC環境温水に浸漬後重量測定, および漏出成分の分析
冷媒透過性	カップ法による水蒸気透過性測定
冷媒耐性	FCCへの浸漬とその後の強度測定
圧縮クリープ耐性	定応力および定変位での高温曝露と残留変形測定

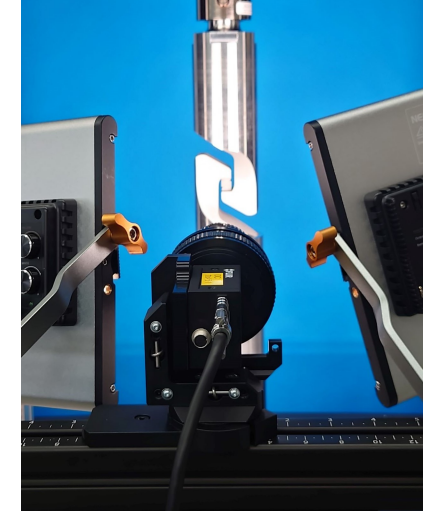
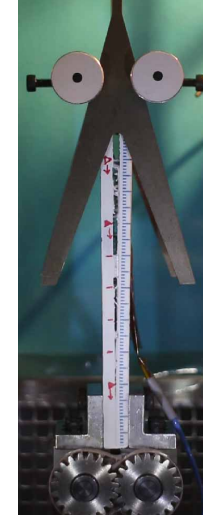
3. 研究開発成果について

(東工大、産総研)

③強度設計法の確立



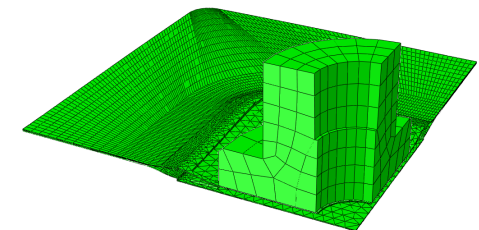
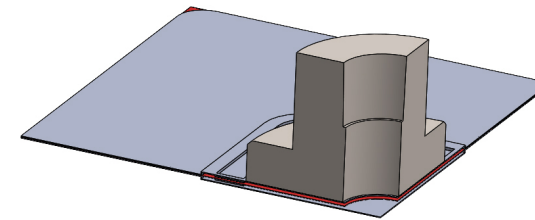
圧縮クリープ試験 リーク試験



接着剤の強度試験 (DCB 左・中、圧縮せん断 右)



バースト試験



バースト試験のFEM解析

3. 研究開発成果について

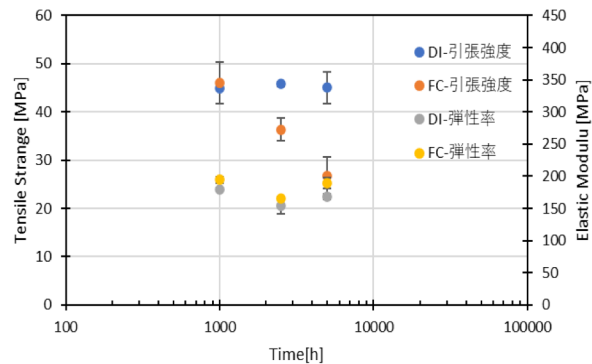
④耐久性予測法の確立

【長期曝露、加速試験】

- 既存接着剤の湿熱曝露試験を実施。接着剤の劣化を確認。
- 加速試験結果を比較し、加速係数を算定。
- 200時間以内の加速試験で5000時間の劣化を予測可能(1000時間必要なものもある)。

5000時間曝露試験結果

・イオン交換水とFC環境水の比較



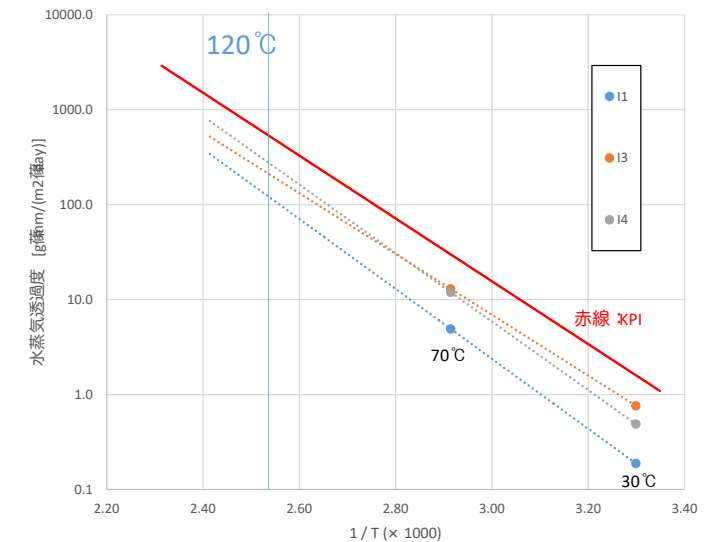
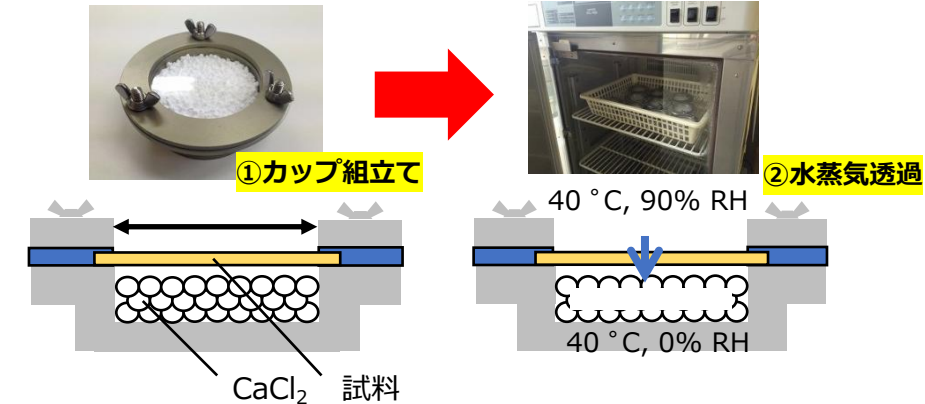
エポキシ接着剤の曝露試験結果



90℃、5000時間曝露試験方法（上） および加速試験方法（下）

（東工大、埼玉産技総セ）

【水蒸気透過性】

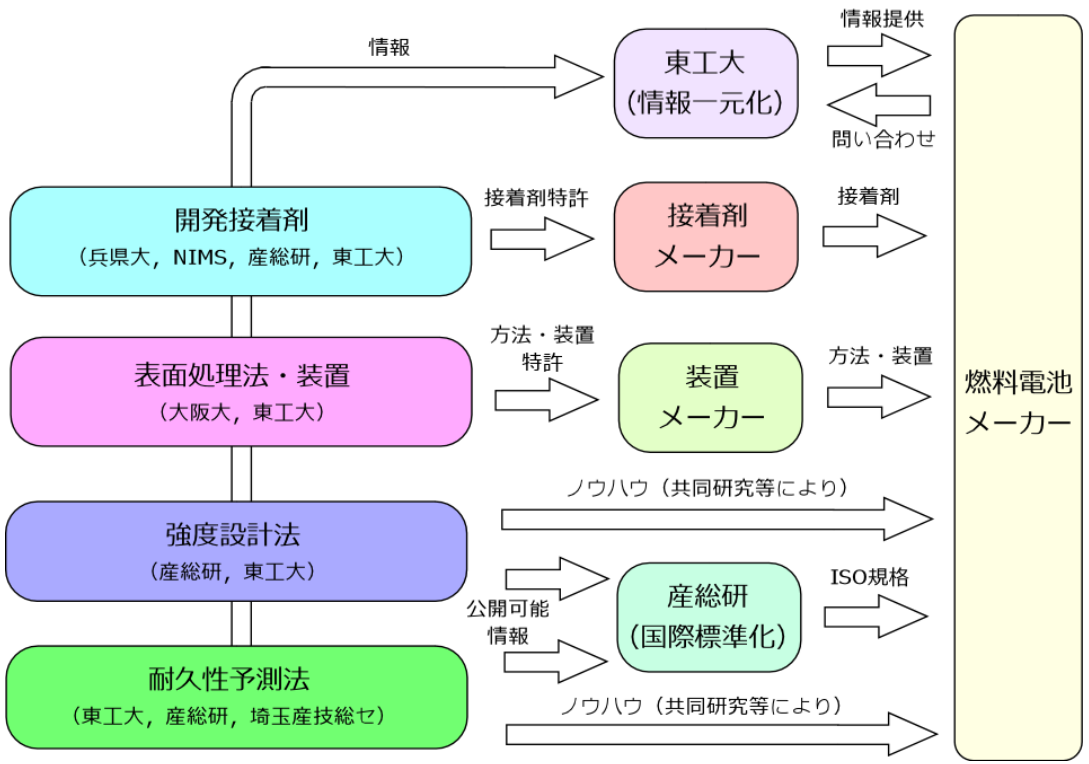


カップ法による接着剤の水蒸気透過性評価 15

4. 今後の見通しについて

- 接着剤等：特許取得（既に1件出願*）
- 装置等：特許取得
- 知財を伴わない科学的成果：論文化
- 公開可能情報：国際標準化
- ノウハウ：共同研究などを介して普及

*架橋性スチレン系エラストマー組成物、スチレン系エラストマー架橋体、及び接合部材、兵庫県立大学 岸 肇



成果の普及・社会実装に関する取り組みと、
実用化・事業化を進める上での諸機関連携に係る全体構想

実用化スケジュール（案）

テーマ	24年度	25年度	26年度	27年度
接着剤開発 (兵庫県立大、NIMS、 産総研、東工大)	最終目標 TRL5	実セル運転(TRL6)		実用化
		企業との共同開発		
評価・設計 (東工大、 産総研)		論文 化・標 準化	ノウハ ウ公開	
表面処理・ 分析 (阪大、東 工大、産総 研)		実用化		
耐久性・加 速試験 (東工大、 サイテック)		開発接着剤長期曝露		ノウハ ウ公開
		論文化・標準化		

※本課題の実施機関は大学および公的試験機関。LOI提出企業は全てFCメーカーであり、接着剤メーカーや原材料メーカーは含まれていない。接着剤については知財確定後にメーカーと調整しパートナーを決定する。装置の実用化も同様。