

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 806 051**

51 Int. Cl.:

<b>H01M 8/0202</b>	(2006.01)	<b>H01M 8/1018</b>	(2006.01)	<b>C25D 3/56</b>	(2006.01)
<b>C25D 5/26</b>	(2006.01)	<b>C25D 3/12</b>	(2006.01)		
<b>C25D 5/36</b>	(2006.01)	<b>C25D 3/38</b>	(2006.01)		
<b>C25D 7/00</b>	(2006.01)	<b>C25D 5/48</b>	(2006.01)		
<b>H01M 8/10</b>	(2006.01)	<b>C23C 18/16</b>	(2006.01)		
<b>H01M 8/0208</b>	(2006.01)	<b>C23C 28/00</b>	(2006.01)		
<b>C25D 5/12</b>	(2006.01)	<b>C25D 3/46</b>	(2006.01)		
<b>C23C 28/02</b>	(2006.01)	<b>C25D 3/62</b>	(2006.01)		
<b>H01M 8/021</b>	(2006.01)	<b>C25D 5/38</b>	(2006.01)		
<b>H01M 8/0228</b>	(2006.01)	<b>C25D 15/00</b>	(2006.01)		

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **22.03.2016 E 18209766 (7)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **17.06.2020 EP 3483967**

54 Título: **Lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico**

30 Prioridad:

**14.04.2015 JP 2015082736**

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

**16.02.2021**

73 Titular/es:

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

72 Inventor/es:

**YANO, TAKAYOSHI;  
ISHIKAWA, SHIN y  
KAMI, CHIKARA**

74 Agente/Representante:

**FÚSTER OLAGUIBEL, Gustavo Nicolás**

ES 2 806 051 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 metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico

**5 Campo técnico**

La divulgación se refiere a una lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico que tienen excelente resistencia a la corrosión y propiedad de adhesión.

**10 Antecedentes**

En los últimos años, están desarrollándose pilas de combustible que tienen excelente eficiencia de generación y no emiten CO<sub>2</sub> para la protección global del medioambiente. Una pila de combustible de este tipo genera electricidad a partir de H<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> a través de una reacción electroquímica. La pila de combustible tiene una estructura básica de tipo intercalado, e incluye una membrana de electrolito (membrana de intercambio iónico), dos electrodos (electrodo de combustible y electrodo de aire), capas de difusión de gases de O<sub>2</sub> (aire) y H<sub>2</sub>, y dos separadores.

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 electrolito polimérico (PEFC: pilas de combustible con membrana de intercambio protónico o pilas de combustible de electrolito polimérico) según el tipo de membrana de electrolito usada, cada una de las cuales está desarrollándose.

De estas pilas de combustible, las pilas de combustible de electrolito polimérico tienen, por ejemplo, las siguientes ventajas sobre 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 temperatura significativamente baja.

(b) El cuerpo de la pila de combustible puede reducirse en peso y tamaño.

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

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

Una pila de combustible de electrolito polimérico extrae electricidad a partir de H<sub>2</sub> y O<sub>2</sub> mediante una membrana polimérica. Tal como se ilustra en la figura 1, un cuerpo 1 unido de membrana-electrodo se intercala entre las capas 2 y 3 de difusión gaseosa (por ejemplo, papel carbón) y los separadores 4 y 5 (placas bipolares), formando un único componente (una única pila). Entre los separadores 4 y 5 se genera una fuerza electromotriz.

El cuerpo 1 unido de membrana-electrodo se denomina conjunto de membrana-electrodo (MEA). El cuerpo 1 unido de membrana-electrodo es un conjunto 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 gaseosa a menudo están integradas con el cuerpo 1 unido de membrana-electrodo.

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

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

(a) paredes de división que separan pilas individuales,

sino también como

(b) conductores que portan los electrones generados,

(c) conductos 6 de aire a través de los que fluye O<sub>2</sub> (aire) y conductos 7 de hidrógeno a través de los que fluye H<sub>2</sub>, 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, es necesario que los separadores tengan 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 polimérico como fuente de alimentación en un vehículo eléctrico, y se esperan aproximadamente 40000 horas en el caso de usar la pila 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, es necesario que los separadores sean 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 inferior de la pila de combustible de electrolito polimérico. Una resistencia de contacto inferior entre el separador y la capa de difusión de gases contribuye a una mejor propiedad de generación de energía eléctrica.

Ya se han comercializado pilas 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 pilas de combustible de electrolito polimérico.

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 potenciar la durabilidad.

Por ejemplo, el documento JP H8-180883 A (PTL 1) divulga una técnica de uso, como separadores, de un metal tal como acero inoxidable o una aleación de titanio que forma fácilmente una película pasiva.

El documento JP H10-228914 A (PTL 2) divulga una técnica de chapar la superficie de un separador metálico tal como una lámina de acero inoxidable austenítico (SUS304) con oro para reducir la resistencia de contacto y garantizar alto rendimiento.

#### Lista de referencias

Documentos de patente

PTL 1: JP H8-180883 A

PTL 2: JP H10-228914 A

PTL 3: JP 2012-178324 A

PTL 4: JP 2013-118096 A

#### Sumario

(Problema técnico)

Sin embargo, con la técnica divulgada en el documento PTL 1, la formación de la película pasiva provoca un aumento de la resistencia de contacto, y conduce a menor eficiencia de generación. Por tanto, el material metálico divulgado en el documento PTL 1 tiene problemas tales como alta resistencia de contacto y baja resistencia a la corrosión en comparación con el material de grafito.

Con la técnica divulgada en el documento PTL 2, un enchapado con oro delgado es difícil de proteger de la formación de picaduras, y un enchapado con oro grueso es problemático en cuanto a un aumento del coste.

En vista de esto, se ha propuesto anteriormente en el documento JP 2012-178324 A (PTL 3) “una lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico en la que se forma una capa hecha de una aleación de Sn (en adelante también denominada “capa de aleación de Sn”) sobre la superficie de un sustrato hecho de metal y la capa de aleación de Sn incluye partículas conductoras”. A través del desarrollo de la lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico descrita en el documento PTL 3, se consiguió mejorar la resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico.

Sin embargo, la capa de recubrimiento superficial tal como la capa de aleación de Sn (en adelante también denominada “capa de recubrimiento superficial”) formada sobre la superficie del material metálico para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico se requiere que tenga no sólo una resistencia a la corrosión predeterminada, sino también que sea más delgada en cuanto a reducir el coste de recubrimiento superficial y mejorar

la capacidad de fabricación (reducción en el tiempo de formación de la capa de recubrimiento superficial).

Por consiguiente, en el documento JP 2013-118096 A (PTL 4) se propuso un método de recubrimiento superficial 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 electrólisis anódica 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. Por tanto, se consiguió obtener separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico que tienen excelente resistencia a la corrosión incluso en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial hecha de la capa de aleación de Sn tal como la capa de  $Ni_3Sn_2$  se hace más delgada.

En el proceso de fabricación de pilas de combustible, es necesaria una alta adhesión entre el sustrato y la capa de recubrimiento superficial de modo que la capa de recubrimiento superficial 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 proceso de formar el separador para dar una forma deseada, en el proceso de ensamblar la pila de combustible, o cuando la pila de combustible vibra violentamente durante su uso, y existe la posibilidad de que la capa de recubrimiento superficial se desprenda.

Por tanto, aunque la capa de recubrimiento superficial formada sobre la superficie del sustrato en el caso de usar un material metálico tal como acero inoxidable como material de separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico necesita tener tanto resistencia a la corrosión como propiedad de adhesión así como ser más delgada, tal necesidad no se ha satisfecho adecuadamente.

Por tanto, sería útil proporcionar una lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico que tenga tanto excelente resistencia a la corrosión en el entorno de uso de separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico como excelente propiedad de adhesión entre un sustrato y una capa de recubrimiento superficial incluso en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial se hace más delgada.

(Solución al problema)

Se usaron diversas láminas metálicas como material de separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico, y se estudiaron diversos procedimientos de formación de capa de recubrimiento superficial para estas láminas metálicas.

Como resultado, se hicieron los siguientes descubrimientos.

(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 similar como capa de tratamiento previo sobre la superficie de un sustrato hecho de metal, previo a la formación de una capa de recubrimiento superficial. Entonces se descubrió que formar la capa de imprimación como capa de tratamiento previo sobre la superficie del sustrato metálico mejora significativamente la propiedad de adhesión de la capa de recubrimiento superficial.

(2) A continuación, se intentó formar una capa de recubrimiento superficial más delgada tras formar la capa de imprimación, y se descubrió lo siguiente. Cuando la capa de recubrimiento superficial se hace más delgada, aumentan los defectos desde la capa de recubrimiento superficial hasta el sustrato metálico, y la capa de imprimación se corroe de manera continua a través de estos defectos. Esto provoca que la capa de recubrimiento superficial sobre la capa de imprimación se exfolie, exponiendo el sustrato metálico al entorno de uso del separador. Como resultado, se degrada significativamente la resistencia a la corrosión.

(3) Se llevó a cabo investigación adicional para prevenir la degradación de la resistencia a la corrosión en el caso de hacer más delgada la capa de recubrimiento superficial.

Como resultado, se descubrió que, limitando el peso del recubrimiento de la capa de imprimación hasta el intervalo de  $0,001 \text{ g/m}^2$  a  $1,0 \text{ g/m}^2$  que es menor que en técnicas convencionales, se suprime la corrosión continua de la capa de imprimación, de modo que la degradación de la resistencia a la corrosión asociada con la exfoliación de la capa de recubrimiento superficial se impide de eficazmente sin degradación en la propiedad de adhesión.

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

Al limitar el peso del recubrimiento de la capa de imprimación hasta un intervalo menor que en técnicas convencionales, aparece una porción discontinua tal como una zona sin enchapado de la capa de imprimación sobre la superficie del sustrato metálico, y esta porción discontinua de la capa de imprimación actúa como zona que 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 recubrimiento superficial se hace más delgada.

(4) También se descubrió que, aunque la capa de imprimación puede ser una capa metálica de Ni, Cu, Ag, Au, o

similar 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 y excelente resistencia a la corrosión. Se descubrió adicionalmente que, limitando el contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P hasta el intervalo del 5% en masa al 22% en masa, puede mantenerse de manera más estable una excelente resistencia a la corrosión incluso en el caso de una larga exposición a alto potencial en el entorno de uso del separador.

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

(5) Se descubrió además que, en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial es una capa de aleación de Sn, recubrir la superficie de la capa con una capa de óxido que contiene Sn mejora adicionalmente la resistencia a la corrosión.

La razón para esto parece ser la siguiente. Ya 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 resistencia a la corrosión puede mejorarse adicionalmente mediante un efecto de este tipo.

La divulgación se basa en los descubrimientos mencionados anteriormente.

Por tanto, se proporciona:

Una lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico, que comprende: un sustrato hecho de una lámina de acero inoxidable o una lámina de titanio; y una capa de recubrimiento superficial con la que se recubre una superficie del sustrato con una capa de imprimación intermedia, en la que el peso del recubrimiento de la capa de imprimación es de 0,001 g/m<sup>2</sup> a 1,0 g/m<sup>2</sup>, la capa de recubrimiento superficial está hecha de una capa de óxido metálico, una capa de carburo metálico, una capa polimérica conductora o una capa mixta de las mismas.

La lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico tal como se definió anteriormente, en la que la capa de imprimación puede contener al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.

La lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico tal como se definió anteriormente, en la que la capa de imprimación puede estar hecha de una capa de aleación de Ni y P, y tiene un contenido en P en un intervalo del 5% en masa al 22% en masa.

(Efecto ventajoso)

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

#### Breve descripción de los dibujos

En los dibujos adjuntos:

la figura 1 es un diagrama esquemático que ilustra la estructura básica de una pila de combustible.

#### Descripción detallada

A continuación se proporciona una descripción detallada.

##### (1) Lámina metálica usada como sustrato

Una lámina metálica usada como sustrato en la divulgación no está limitada particularmente, pero son particularmente ventajosas una lámina de acero inoxidable (lámina de acero inoxidable ferrítico, lámina de acero inoxidable austenítico, lámina de acero inoxidable de fase dual), una lámina de titanio, una lámina de aleación de titanio y similares, que tienen excelente resistencia a la corrosión.

Por ejemplo, como lámina de acero inoxidable, es adecuada SUS447J1 (Cr: 30% en masa, Mo: 2% en masa), SUS445J1 (Cr: 22% en masa, Mo: 1% en masa), SUS443J1 (Cr: 21% en masa), SUS439 (Cr: 18% en masa), SUS316L (Cr: 18% en masa, Ni: 12% en masa, Mo: 2% en masa), o similar. SUS447J1 que contiene aproximadamente el 30% en masa de Cr tiene alta resistencia a la corrosión, y así es particularmente ventajosa como sustrato para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico usado en un entorno en el que se requiere alta resistencia

a la corrosión. Como lámina de titanio, es adecuada una tipo JIS 1 o similar. Como la lámina de aleación de titanio, es adecuada una tipo JIS 61 o similar.

En vista del peso o espacio de instalación cuando se apilan pilas de combustible, el grosor de lámina de la lámina metálica para separadores está preferiblemente en el intervalo de 0,03 mm a 0,3 mm. Si el grosor de lámina de la lámina metálica para separadores es menor de 0,03 mm, la eficiencia de producción de la lámina metálica disminuye. Si el grosor de lámina de la lámina metálica para separadores es mayor de 0,3 mm, el peso o espacio de instalación cuando se apilan pilas de combustible aumenta. El grosor de lámina de la lámina metálica para separadores es más preferiblemente de 0,03 mm o más y 0,1 mm o menos.

(2) Capa de recubrimiento superficial

La capa de recubrimiento superficial con la que se recubre la superficie del sustrato no está limitada, pero se usa preferiblemente un material de excelente resistencia a la corrosión y conductividad en el entorno de uso (pH: 3 (entorno de ácido sulfúrico), temperatura de uso: 80°C) de separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico. Por tanto, se usa una capa de óxido metálico, una capa de carburo metálico, una capa polimérica conductora o una capa mixta de las mismas.

Los ejemplos de la capa de óxido metálico incluyen capas de óxido metálico de SnO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, WO<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, IrO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub>, PdO<sub>2</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Mo<sub>2</sub>O<sub>5</sub> y Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Es particularmente adecuada una capa de óxido metálico de TiO<sub>2</sub> o SnO<sub>2</sub>.

Los ejemplos de la capa de carburo metálico incluyen capas de carburo metálico de TiC, WC, SiC, B<sub>4</sub>C, CrC y TaC.

Los ejemplos de la capa polimérica conductora incluyen capas poliméricas conductoras de polianilina y polipirrol.

Para la formación de la capa de recubrimiento superficial sobre la superficie del sustrato metálico, puede usarse un método tal como enchapado, deposición física de vapor (PVD), deposición química de vapor (CVD), electrodeposición, pulverización térmica, tratamiento por fusión superficial o recubrimiento dependiendo del tipo de la capa de recubrimiento superficial que va a formarse.

Por ejemplo, en el caso de proporcionar la capa de recubrimiento superficial que es la capa metálica o la capa de aleación, es adecuado el enchapado. En este caso, mediante un método de enchapado conocido de manera convencional se sumerge el sustrato un baño de enchapado ajustado a una composición predeterminada y se somete a electroenchapado, enchapado no electrolítico o recubrimiento por inmersión en caliente. El grosor de una capa de recubrimiento superficial de este tipo es preferiblemente de 0,1 μm o más y 5 μm o menos. Si el grosor de la capa de recubrimiento superficial es menor de 0,1 μm, los defectos de recubrimiento aumentan y la resistencia a la corrosión tiende a degradarse. Si el grosor de la capa de recubrimiento superficial es de más de 5 μm, el coste de recubrimiento aumenta y disminuye la capacidad de fabricación. El grosor de la capa de recubrimiento superficial es más preferiblemente de 0,5 μm o más. El grosor de la capa de recubrimiento superficial es más preferiblemente de 3 μm o menos.

En el caso de proporcionar la capa de óxido metálico o la capa de carburo metálico, es adecuada la deposición física de vapor (PVD) o la deposición química de vapor (CVD). El grosor de una capa de recubrimiento superficial de este tipo está preferiblemente en el intervalo de 0,05 μm a 1 μm, por la misma razón que anteriormente.

En el caso de proporcionar la capa polimérica conductora, es adecuada la electropolimerización. El grosor de una capa de recubrimiento superficial de este tipo está preferiblemente en el intervalo de 0,1 μm a 5 μm, por la misma razón que anteriormente.

(Capa de imprimación)

En la divulgación, se forma una capa de imprimación entre el sustrato metálico y la capa de recubrimiento superficial para mejorar la adhesión entre la capa y el sustrato. La razón por la cual formar la capa de imprimación entre el sustrato metálico y la capa de recubrimiento superficial mejora la adhesión entre la capa de recubrimiento superficial y el sustrato parece ser la siguiente.

En el caso en el que no hay capa de imprimación, tiende a formarse una película pasiva inactiva o similar sobre la superficie del sustrato metálico, haciendo difícil lograr 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 similar y se evita que la superficie del sustrato metálico se vuelva inactiva, como resultado de lo cual se mejora la adhesión entre el sustrato y la capa de recubrimiento superficial.

Además, una capa de imprimación cuya superficie es irregular es más ventajosa porque la adhesión se mejora adicionalmente mediante el efecto de anclaje.

Por tanto, la lámina metálica divulgada para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico tiene excelente adhesión entre el sustrato y la capa de recubrimiento superficial, y por tanto es ventajosa en el proceso de conformar el separador para dar una forma deseada o el proceso de ensamblar la pila de combustible en el que se requiere alta adhesión, o cuando la pila de combustible vibra violentamente durante su uso.

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

el peso del recubrimiento de la capa de imprimación: de 0,001 g/m<sup>2</sup> a 1,0 g/m<sup>2</sup>.

Limitando el peso del recubrimiento de la capa de imprimación a este intervalo, la resistencia a la corrosión en el entorno de uso del separador puede mantenerse incluso en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial se hace más delgada. La razón para esto parece ser la siguiente.

Normalmente, cuando el grosor de la capa de recubrimiento superficial se reduce, aumentan los defectos en la capa desde la capa de recubrimiento superficial hasta el sustrato. A través de estos defectos, la capa de imprimación entre el sustrato metálico y la capa de recubrimiento superficial se corroe ampliamente de manera continua en la dirección superficial, provocando que la capa de recubrimiento superficial sobre la capa de imprimación se exfolie del sustrato metálico. Cuando la capa de recubrimiento superficial se exfolia, el sustrato se expone al entorno de uso del separador, y como resultado la resistencia a la corrosión disminuye.

Sin embargo, limitar el peso del recubrimiento de la capa de imprimación a un intervalo muy bajo, permite que la capa de imprimación se forme de manera discontinua sobre la superficie del sustrato. En otras palabras, aparece una porción discontinua tal como una zona sin enchapado de la capa de imprimación en parte de la superficie del sustrato. Esta porción discontinua de la capa de imprimación actúa como zona que inhibe la propagación de la corrosión. Por tanto, la corrosión continua de la capa de imprimación se suprime incluso en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial se hace más delgada. La degradación de la resistencia a la corrosión puede prevenirse de esta manera.

Si el peso del recubrimiento de la capa de imprimación es menor de 0,001 g/m<sup>2</sup>, la adhesión entre el sustrato metálico y la capa de recubrimiento superficial disminuye. Si el peso del recubrimiento de la capa de imprimación es mayor de 1,0 g/m<sup>2</sup>, la resistencia a la corrosión no puede mantenerse en el caso en el que el grosor de la capa de recubrimiento superficial se reduce. Por consiguiente, el peso del recubrimiento de la capa de imprimación se limita hasta el intervalo de 0,001 g/m<sup>2</sup> a 1,0 g/m<sup>2</sup>. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es preferiblemente de 0,003 g/m<sup>2</sup> o más. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es preferiblemente de 0,5 g/m<sup>2</sup> o menos. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es mayor preferiblemente de 0,003 g/m<sup>2</sup> o más. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es más preferiblemente de 0,3 g/m<sup>2</sup> o menos. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es además preferiblemente de 0,005 g/m<sup>2</sup> o más. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación es además preferiblemente de 0,05 g/m<sup>2</sup> o menos.

La capa de imprimación es preferiblemente una capa de metal de Ni, Cu, Ag, Au o similar o una capa de aleación que contiene al menos uno seleccionado de esos 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 lo que respecta al coste de material.

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

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

Al limitar el contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P a este intervalo, puede mantenerse una excelente 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 en P en la capa de imprimación de Ni-P al intervalo del 5% en masa al 22% en masa, se forma un compuesto de Ni-P más estable en el entorno de uso del separador, siendo posible con el mismo suprimir la corrosión de la capa de imprimación de manera eficaz durante más tiempo.

Si el contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P es menor del 5% en masa, el efecto de mejora de la resistencia al ácido del compuesto de Ni-P es insuficiente. Un intervalo de este tipo no es preferible en lo que respecta a mantener una excelente resistencia a la corrosión en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno del separador que es ácido. Si el contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P es mayor del 22% en masa, la composición de la imprimación de Ni-P tiende a no ser uniforme. Un intervalo de este tipo tampoco es preferible en lo que respecta a mantener una excelente resistencia a la corrosión en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno del separador. Por tanto, el contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P se limita preferiblemente al intervalo del 5% en masa al 22% en masa. El contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P es más preferiblemente el 7% en masa o más. El contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P es más preferiblemente el 20% en masa o menos. El contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P es además preferiblemente el 10% en masa o más. El contenido

en P en la capa de imprimación de Ni-P es además preferiblemente el 18% en masa o menos.

El método de formar la capa de imprimación puede ser un método de enchapado conocido de manera convencional por el que se realiza electroenchapado o enchapado no electrolítico en un baño de enchapado ajustado a una composición apropiada. El peso del recubrimiento de la capa de imprimación puede ajustarse mediante el tiempo de retención en el baño de enchapado, es decir el tiempo de enchapado.

El contenido en P en la capa de imprimación de Ni-P puede ajustarse mediante la concentración de P en el baño de enchapado, la densidad de corriente en electroenchapado, o similar.

#### (4) Capa de óxido que contiene Sn

En la lámina metálica divulgada para separadores, en el caso en el que la capa de recubrimiento superficial sea una capa hecha de una aleación de Sn (capa de aleación de Sn), 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 del uso prolongado en el entorno de uso del separador.

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 creada en el entorno atmosférico, sino una capa de óxido formada deliberadamente mediante un procedimiento tal como inmersión en una disolución ácida. El grosor de la capa de óxido natural normalmente es de aproximadamente 2 nm a 3 nm.

El principal componente de la capa de óxido que contiene Sn es preferiblemente  $\text{SnO}_2$ . El grosor de la capa de óxido que contiene Sn es preferiblemente de 5 nm o más. El grosor de la capa de óxido que contiene Sn es preferiblemente de 100 nm o menos. El grosor de la capa de óxido que contiene Sn es más preferiblemente de 10 nm o más. El grosor de la capa de óxido que contiene Sn es más preferiblemente de 30 nm o menos. 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 lograrse el efecto de mejora de la resistencia a la corrosión en el entorno de uso del separador.

La razón por la cual 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 del uso prolongado en el entorno de uso del separador parece ser la siguiente. Ya 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 recubrimiento superficial con la capa de óxido que contiene Sn suprime la corrosión de la capa de recubrimiento superficial de manera eficaz.

En este caso, la capa de óxido se forma deliberadamente mediante un procedimiento tal como inmersión en una disolución ácida en lugar de usar una capa de óxido natural, por la siguiente razón. A través de un procedimiento de este tipo, la capa de óxido puede formarse de manera uniforme y precisa sobre la superficie de la capa de recubrimiento superficial, con lo que es posible suprimir la corrosión de la capa de recubrimiento superficial muy eficazmente.

La capa de óxido que contiene Sn puede formarse mediante un método de inmersión en una disolución acuosa ácida que tiene capacidad de oxidación, tal como peróxido de hidrógeno o ácido nítrico, o un método de electrólisis anódica.

Por ejemplo, la capa de óxido que contiene Sn puede formarse aplicando electrólisis anódica, 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 +1mA/cm<sup>2</sup>, a la lámina metálica para separadores que tiene la capa de recubrimiento superficial.

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

#### (5) Otras características

Después de formar la capa de recubrimiento superficial sobre la superficie del sustrato metálico con la capa de imprimación intermedia o después de formar la capa de aleación de Sn sobre la superficie del sustrato metálico con la capa de imprimación intermedia y luego formar la capa de óxido que contiene Sn, puede formarse adicionalmente una capa conductora con menor resistencia eléctrica sobre la capa de recubrimiento superficial 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 recubrimiento superficial o la capa de óxido que contiene Sn puede recubrirse con una capa metálica, una capa polimérica conductora, una capa de aleación que incluye partículas conductoras o una capa polimérica que incluye partículas conductoras, con el fin de reducir la resistencia de contacto.

#### Ejemplos

Se usan separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico en un entorno de corrosión intensa de aproximadamente 80°C de temperatura y de pH 3, y por tanto se requiere una excelente resistencia a la corrosión.



Además, se requiere alta adhesión entre el sustrato metálico y la capa de recubrimiento superficial de modo que la capa de recubrimiento superficial no se desprenda del sustrato metálico en el procedimiento de fabricación de pila de combustible tal como el procedimiento de conformar el separador para dar una forma deseada o el procedimiento de ensamblar la pila de combustible. En vista de estas propiedades requeridas, se llevaron a cabo los siguientes dos tipos de evaluación en las muestras mencionadas a continuación.

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

Se sumergió cada muestra en una disolución acuosa de ácido sulfúrico de una temperatura de 80°C y un pH de 3 y se le 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 resistencia a la corrosión después de 20 horas en el entorno de uso del separador mediante los criterios siguientes.

- Apto (excelente): la densidad de corriente después de 20 horas era menor de 0,015  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ .

- Apto: la densidad de corriente después de 20 horas era de 0,015  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$  o más y menor de 0,2  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ .

- No apto: la densidad de corriente después de 20 horas era de 0,2  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$  o más.

(2) Evaluación de la propiedad de adhesión

Se adhirió la cara adhesiva de cinta adhesiva Scotch a la superficie de cada muestra obtenida formando una capa de recubrimiento superficial sobre la superficie de un sustrato metálico, en un área de 20 mm  $\times$  20 mm. Entonces se retiró la cinta adhesiva Scotch, y se evaluó la propiedad de adhesión mediante los criterios siguientes.

- Apto: la capa de recubrimiento superficial no se desprendió después de la retirada de la cinta adhesiva Scotch.

- No apto: la capa de recubrimiento superficial se desprendió después de la retirada de la cinta adhesiva Scotch.

(Ejemplo 1)

Cada una de SUS447J1 (Cr: 30% en masa) de 0,05 mm de grosor de lámina y tipo JIS 1 de titanio de 0,05 mm de grosor de lámina como sustrato se sometió a tratamiento previo apropiado tal como desengrasado, y luego se formó una capa de imprimación con un peso del recubrimiento de la tabla 1 sobre el sustrato usando la siguiente composición de baño de enchapado y condición de enchapado. A continuación, se formó una capa de recubrimiento superficial con un grosor promedio de la tabla 1 sobre el sustrato que tenía la capa de imprimación, para obtener una lámina metálica para separadores.

Para la capa metálica y capa de aleación de Au y  $\text{Ni}_3\text{Sn}_2$  y  $\text{Ni}_3\text{Sn}_2$  dispersado en TiN, se formó la capa de recubrimiento superficial usando la siguiente composición de baño de enchapado y condición de enchapado. Para las capas de óxido metálico de  $\text{TiO}_2$  y  $\text{SnO}_2$ , se formó la capa de recubrimiento superficial mediante deposición física de vapor (PVD). Para la capa de nitruro metálico (TiN), se formó la capa de recubrimiento superficial mediante deposición física de vapor (PVD). Para la capa de material de carbono (carbono tipo diamante), se formó la capa de recubrimiento superficial mediante deposición química de vapor (CVD). Para la capa polimérica conductora (polianilina), se formó la capa de recubrimiento superficial mediante electropolimerización. Para la capa de resina orgánica que contiene una sustancia conductora (resina epoxídica dispersada en negro de carbono y resina fenólica dispersada en grafito), se formó la capa de recubrimiento superficial aplicando una disolución de recubrimiento predeterminada y luego cocción.

En la muestra n.º 29, se sometió la lámina metálica para separadores obtenida a electrólisis anódica en una disolución acuosa de ácido sulfúrico de una temperatura de 60°C y un pH de 1 durante 5 minutos con una densidad de corriente de +1  $\text{mA}/\text{cm}^2$ , para formar una capa de óxido que contenía Sn sobre la superficie de la capa de recubrimiento superficial.

Cada propiedad se evaluó de la manera mencionada anteriormente usando la lámina metálica para separadores obtenida.

Se reguló cada uno del peso del recubrimiento de la capa de imprimación, el grosor promedio de la capa de recubrimiento superficial y el grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn determinando la relación con el tiempo de enchapado, el tiempo de electrólisis anódica, el tiempo de formación de capa en deposición física de vapor (PVD) o deposición química de vapor (CVD), y la cantidad de la disolución de recubrimiento aplicada en el recubrimiento de antemano. Para su comparación, también se preparó una lámina metálica para separadores que no tenía capa de imprimación, y se evaluó cada propiedad de la manera mencionada anteriormente.

Se midió el peso del recubrimiento de la capa de imprimación mediante el método siguiente. En primer lugar, se cortó cada muestra obtenida formando la capa de imprimación sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) a

aproximadamente 50 mm de A × 50 mm de L, se midieron las longitudes de dos lados mediante una escuadra calibradora, y se calculó el área de muestra. Entonces se sumergió la muestra en una disolución en la que la capa de imprimación podía disolverse (puede usarse una disolución de disociación conocida, tal como ácido nítrico al 30% para imprimación de Ni, Ni-P o Cu, el 90% de ácido sulfúrico + el 10% de ácido nítrico para imprimación de Ag, y cianuro de sodio 30 g/l + peróxido de hidrógeno 40 ml/l para imprimación de Au) durante 10 minutos para disolver la capa de imprimación. Se cuantificó el elemento constituyente de la capa de imprimación 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, obteniendo por tanto el peso del recubrimiento ( $\text{g/m}^2$ ). Con respecto a las muestras que no tienen imprimación, se establece “-” en el campo del peso del recubrimiento de la capa de imprimación de la tabla 1.

Se midió el grosor promedio de la capa de recubrimiento superficial mediante el método siguiente. En primer lugar se describe el método de medición en el caso en el que el grosor promedio es de  $1 \mu\text{m}$  o más. Se cortó cada muestra obtenida formando la capa de imprimación y la capa de recubrimiento superficial sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) a aproximadamente 10 mm de A × 15 mm de L. Entonces la muestra se embebió en resina, se pulió en la sección transversal y luego se observó usando un microscopio electrónico de barrido (SEM) para medir el grosor de la capa de recubrimiento superficial. Se realizó la medición del grosor de la capa de recubrimiento superficial en 10 muestras obtenidas cortando la misma muestra que tenía la capa de recubrimiento superficial a la forma mencionada anteriormente, y se estableció el grosor promedio de estas muestras como el grosor promedio de la capa de recubrimiento superficial.

A continuación se describe el método de medición en el caso en el que el grosor promedio de la capa de recubrimiento superficial es menor de  $1 \mu\text{m}$  y el método de medición del grosor promedio de la capa de óxido que contiene Sn. Se procesó cada muestra obtenida formando la capa de imprimación y la capa de recubrimiento superficial y, para el n.º 29, adicionalmente la capa de óxido que contiene Sn sobre la superficie del sustrato (0,05 mm de grosor) mediante un haz de iones enfocado para preparar una película delgada para la observación de la sección transversal. Después se observó la película delgada producida para la observación de la sección transversal usando un microscopio electrónico de transmisión (TEM), para medir el grosor promedio de cada una de la capa de recubrimiento superficial y la capa de óxido que contiene Sn. En la medición del grosor promedio de cada una de la capa de recubrimiento superficial y la capa de óxido que contiene Sn, el grosor de cada una de la capa de recubrimiento superficial y la capa de óxido que contiene Sn en la película delgada preparada para la observación de la sección transversal se midió en tres ubicaciones, y se estableció el valor promedio de las tres ubicaciones como el grosor promedio del correspondiente de la capa de recubrimiento superficial y de la capa de óxido que contiene Sn.

En este caso, se identificó la composición de cada una de la capa de recubrimiento superficial y la capa de óxido que contiene Sn mediante un espectrómetro de rayos X de energía dispersiva (EDX), difractómetro de rayos X (XRD), espectrómetro Raman de láser y/o analizador espectroscópico de infrarrojo por transformada de Fourier usado en la observación por SEM o la observación por TEM.

(Composición del baño de enchapado y condición de enchapado de la capa de imprimación)

<Imprimación de Ni>

Cloruro de níquel: 240 g/l

Ácido clorhídrico: 125 ml/l

Temperatura: 50°C

Densidad de corriente: 5 A/dm<sup>2</sup>

<Imprimación de Ni-P>

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/dm<sup>2</sup>

<Imprimación de Cu>

- 5 Cianuro de cobre: 30 g/l  
Cianuro de sodio: 40 g/l  
Hidróxido de potasio: 4 g/l  
Temperatura: 40°C
- 10 Densidad de corriente: 5 A/dm<sup>2</sup>  
<Imprimación de Ag>
- 15 Cianuro de potasio-plata: 2 g/l  
Cianuro de sodio: 120 g/l  
Temperatura: 30°C
- 20 Densidad de corriente: 3 A/dm<sup>2</sup>  
<Imprimación de Au>
- 25 Cianuro de potasio-oro: 8 g/l  
Citrato de sodio: 80 g/l  
Sulfamato de níquel: 3 g/l
- 30 Acetato de zinc: 0,3 g/l  
Temperatura: 30°C
- 35 Densidad de corriente: 3 A/dm<sup>2</sup>  
(Composición del baño de enchapado y condición de enchapado de la capa de recubrimiento superficial)  
<Au>, ejemplo comparativo
- 40 Cianuro de potasio-oro: 8 g/l  
Citrato de sodio: 80 g/l  
Sulfamato de níquel: 3 g/l
- 45 Acetato de zinc: 0,3 g/l  
Temperatura: 30°C
- 50 Densidad de corriente: 1 A/dm<sup>2</sup>  
<Ni<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>>, ejemplo comparativo
- 55 Cloruro de níquel: 0,15 mol/l  
Cloruro de estaño: 0,15 mol/l  
Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l
- 60 Glicina: 0,15 mol/l  
Temperatura: 60°C
- 65 Densidad de corriente: 1 A/dm<sup>2</sup>  
<Ni<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub> dispersado en TiN>, ejemplo comparativo

## ES 2 806 051 T3

- Cloruro de níquel: 0,15 mol/l
- 5 Cloruro de estaño: 0,15 mol/l
- Pirofosfato de potasio: 0,45 mol/l
- Glicina: 0,15 mol/l
- 10 Temperatura: 60°C
- Densidad de corriente: 1 A/dm<sup>2</sup>
- Tamaño de partícula promedio de TiN dispersado: 1,5 μm
- 15 En la divulgación, siempre que pueda formarse un enchapado deseado, puede usarse una composición de baño de enchapado distinta de la anterior según un método de enchapado conocido.
- 20 La tabla 1 resume los resultados de evaluar la resistencia a la corrosión (estabilidad en el entorno de uso del separador) y la propiedad de adhesión para cada muestra obtenida tal como se describió anteriormente.

Tabla 1

Muestra n.º	Condición de preparación de muestra										Densidad de corriente después de 20 horas ( $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ )	Desprendimiento de capa de recubrimiento superficial en la prueba de retirada de cinta adhesiva	Resultado de la evaluación		Observaciones
	Capa de imprimación		Capa de recubrimiento superficial		Capa de óxido que contiene Sn		Resistencia a la corrosión después de 20 horas	Adhesión							
	Tipo	Peso del recubrimiento ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Contenido en P (% en masa)	Tipo	Grosor promedio ( $\mu\text{m}$ )	Método de formación			Componente principal	Grosor promedio (nm)					
1	N/A	-	-		1,0		-	-	-	0,041	Desprendido	Apto	No apto	Ejemplo comparativo	
2		0,02	-		1,0		-	-	-	0,045	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
3		0,02	-		3,0		-	-	-	0,041	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
4		0,19	-		1,0		-	-	-	0,049	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
5		0,75	-		1,0		-	-	-	0,119	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
6		0,75	-		5,0		-	-	-	0,068	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
7		0,001	12		1,0		-	-	-	0,043	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
8		0,001	12		3,0		-	-	-	0,040	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
9	SUS447J1	0,03	15		0,5	Enchapado	-	-	-	0,063	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
10		0,03	15		1,0		-	-	-	0,047	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
11		0,42	15		1,0		-	-	-	0,095	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
12		1,4	16		1,0		-	-	-	0,295	No desprendido	No apto	Apto	Ejemplo comparativo	
13		1,5	16		3,0		-	-	-	0,273	No desprendido	No apto	Apto	Ejemplo comparativo	
14		2,0	15		5,0		-	-	-	0,330	No desprendido	No apto	Apto	Ejemplo comparativo	
15		0,2	-		1,0		-	-	-	0,045	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
16		0,5	-		1,0		-	-	-	0,086	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	
17		0,01	-		10,0	Cocción después	-	-	-	0,130	No desprendido	Apto	Apto	Ejemplo comparativo	



La tabla revela los puntos siguientes.

5 (a) Todas las muestras de los ejemplos tenían baja densidad de corriente después de 20 horas en la evaluación de resistencia a la corrosión, y tenían resistencia a la corrosión favorable incluso en el caso de larga exposición a alto potencial en el entorno de uso del separador. En particular, las n.<sup>os</sup> 29, 30 y 32 tenían excelente resistencia a la corrosión. Además, todas las muestras de los ejemplos tenían excelente propiedad de adhesión.

10 (b) Las muestras de los ejemplos comparativos n.<sup>os</sup> 1 y 20 sin capa de imprimación no tenían la propiedad de adhesión deseada.

15 (c) Las muestras de los ejemplos comparativos n.<sup>os</sup> 12 a 14, 19, 22, 24, 26, 28, 31, 34, 36 y 38 con el peso del recubrimiento de la capa de imprimación sobrepasando el intervalo apropiado tenían alta densidad de corriente después de 20 horas en la evaluación de resistencia a la corrosión, y no tenían la resistencia a la corrosión deseada.

**Lista de signos de referencia**

- |    |                                    |
|----|------------------------------------|
| 1  | cuerpo unido de membrana-electrodo |
| 20 | 2, 3 capa de difusión gaseosa      |
|    | 4, 5 separador                     |
| 25 | 6 conducto de aire                 |
|    | 7 conducto de hidrógeno            |

**REIVINDICACIONES**

1. Lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico, que comprende:
- 5 un sustrato hecho de una lámina de acero inoxidable o una lámina de titanio; y
- una capa de recubrimiento superficial con la que se recubre una superficie del sustrato con una capa de imprimación intermedia,
- 10 en la que el peso del recubrimiento de la capa de imprimación es de 0,001 g/m<sup>2</sup> a 1,0 g/m<sup>2</sup> y
- la capa de recubrimiento superficial está hecha de una capa de óxido metálico, una capa de carburo metálico, una capa polimérica conductora o una capa mixta de las mismas.
- 15 2. Lámina metálica para separadores de pilas de combustible de electrolito polimérico según la reivindicación 1,
- en la que la capa de imprimación contiene al menos un elemento seleccionado del grupo que consiste en Ni, Cu, Ag y Au.
- 20



*FIG. 1*

