

## 低エネルギーレーザー溶接技術による革新的 SOFC セパレータの開発

研究代表者 新潟工科大学工学部機械制御システム工学科

教授 山崎泰広

### 1. 緒言

福島第一原子力発電所の事故により電力会社による大規模発電供給から分散型発電への転換が急務となる中、家庭用・業務用燃料電池の普及に向けて、現在、エネファームで普及中の固体高分子形燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell, PEFC) タイプの燃料電池から、次世代の燃料電池としてさらに効率の高い固体酸化物形燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell, SOFC) タイプの燃料電池の開発が 2015 年の実用化に向けて精力的に進んでいる<sup>1),2)</sup>。これは、製造各社ともに家庭用燃料電池の本体価格の目標値を 50 万円以下と設定している中で、白金触媒を使用する PEFC ではコスト削減に限界があるためであろう。

SOFC には、大別して円筒形と平板形の 2 種類が有り、Fig.1 に平板形の構成図を示す。平板形 SOFC では、固体電解質の両側に燃料極と空気極が配置されて単一のセルをなす。セルの両面にはセパレータが積層され、精密に加工された溝によりガス流路を形成するとともに電流を流す役目を果たしている。SOFC の課題の 1 つは、使用される部品が高温度において高耐久性・耐食性が求められる上に、ガス燃料を供給するために高精度な溝形状の加工が必要な点である。この問題を解決する手段としては、1) 作動温度の低温化<sup>3)</sup>や、2) 新材料・新プロセスの開発<sup>4)</sup>、などが考えられ、研究開発が盛んに行われている。材料開発・プロセス開発の立場から見ると、耐熱耐食性を満たす目的でセラミックスがインターコネクタ用セパレータに用いているため、溝形状加工にはエッチング技術が用いられている。しかし、エッチング加工では、製造コストの増加を招き、それが普及への障害となる。この問題解決のため、セパレータ材料として特殊フェライト系ステンレス鋼を用い、さらに溝加工をコストの高いエッチングからプレス加工に変換する技術開発が進んでいる。プレス加工で溝加工された薄鋼板積層部材が燃料電池スタックに適用可能となれば、現行のエッチング加工に比べて加工コストが 1/100 以下へと削減可能である。しかし、プレス加工による溝加工では溝裏面が平坦でないため、プレス加工した薄鋼板と平坦な薄鋼板との重ね合わせ溶接が必要である。さらに、セパレータに適用する際には、対象が 1mm 以下の薄板であること、溶接入熱による変形を抑制する必要があること、などの理由から、従来のレーザー溶接に比べ低エネルギーでレーザーヘッド位置や入熱量を精密に制御する必要がある。一方、燃料電池では負荷に連動して部材温度が変化するため、溶接部の熱疲労損傷による破損が懸念される。従って、溶接部材の信頼性を確保するためには、熱疲労による溶接部の劣化挙動を力学的に定量評価し、それに基づく溶接条件の最適化が必要である。

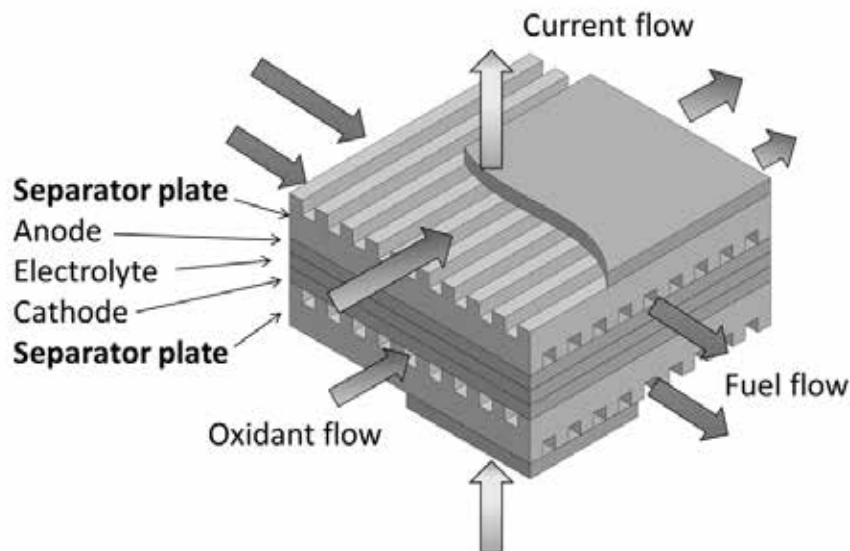


Fig.1 平板形 SOFC の構成模式図

そこで本研究では、次世代普及型 SOFC の開発に資するため、従来のレーザー溶接に比べて低エネルギーでレーザーヘッド位置や入熱量を精密に制御可能なマイクロファイバーレーザー溶接 (MFLW) に着目した。そして、SOFC セパレータ用高耐熱耐食合金薄鋼板に対する MFLW による溶接技術の開発をおこない、溶接部強度に及ぼす溶接条件の影響を明らかにするとともに、熱疲労負荷に対する薄板積層部材溶接部の強度特性変化を明らかにすることを目的とする。なお、本研究では、オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 薄板の他に、SOFC のセパレータの候補材である高耐食・高耐熱フェライト鋼 3 鋼種を主たる検討材料として研究を遂行したが、本報告では SUS304 薄板の検討結果を報告する。

## 2. 実験方法

本研究では、Fig.2 に示すように、Nd:YAG レーザを用いてオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 薄板の重ね合わせ溶接を行い、供試材とした。実験には、Fig.2(b)に示すように 0.3mm 厚 2 枚の SUS304 薄板の組み合わせ (以下、0.3mm+0.3mm と記述する) と、0.3mm と 0.5mm 厚の組み合わせ (以下、0.3mm+0.5mm と記述する) の 2 種類の重ね合わせ溶接を行った。なお、0.3mm+0.5mm の溶接においては、レーザーを 0.3mm 厚の SUS304 板側から入射させた。

本研究では、入熱量を抑制し、高い精度で溶接加工が可能なマイクロファイバー溶接装置を試作し、上記の薄板の重ね合わせ溶接に用いた。溶接パラメータとして、レーザーヘッドのトラバース速度  $v$ 、レーザーパルスの周波数  $f$ 、および、レーザー出力  $Q$  を変数とした。溶接条件を Table 1 に示す。なお、レーザーの焦点距離  $l$  およびスポットサイズ  $S_{sp}$  は  $l = 194 \text{ mm}$ 、 $S_{sp} = 640 \text{ }\mu\text{m}$  である。

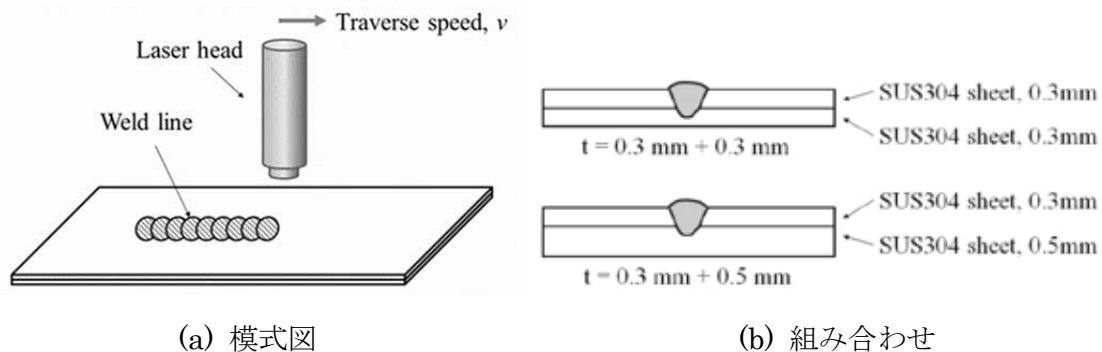


Fig.2 MFLW による重ね合わせ溶接

本研究では、溶接まま材 (As-weld 材) に加えて、実機使用環境を模擬した熱疲労負荷を与えた溶接材 (熱疲労材, Thermal fatigue loaded 材) を準備して実験に供した。熱疲労負荷条件は、Fig.3 に模式的に示すような、最高温度 800°C, 最低温度 100°C, 1 周期 8h の条件とし、電気炉大気中にて溶接後の供試材に 100cycle 付与した。

以上のように準備した重ね合わせ溶接材から、Fig.4 に示す形状の試験片をワイヤー放電加工機により切り出した。その際、レーザ照射側の上板を溶接線から 0.3mm の位置で切り落とした。そして、この切断面を固定して、下板を Fig.4 のように引っ張り、溶接部にせん断負荷を加え破断させた。その際、ジグを工夫して試験片に生じる曲げ負荷を最小になるようにした。本研究では、溶接部に負荷されるせん断負荷の最大値を溶接線長さで除した単位溶接線長さの最大せん断荷重をせん断接合強度として評価した。

Table 1 MFLW 条件

Laser power, $Q$ [W]	Traverse speed, $v$ [mm/min]	Frequency of pulse, $f$ [Hz]	Pulse length, $t_p$ [ms]	Overlap length, $\Delta l_0$ [mm]
175	300	30	10	0.523
165				
155				
145				
175		25		0.49
165				
155				
145				
175	200	25	10	0.54
165				
155				
145				

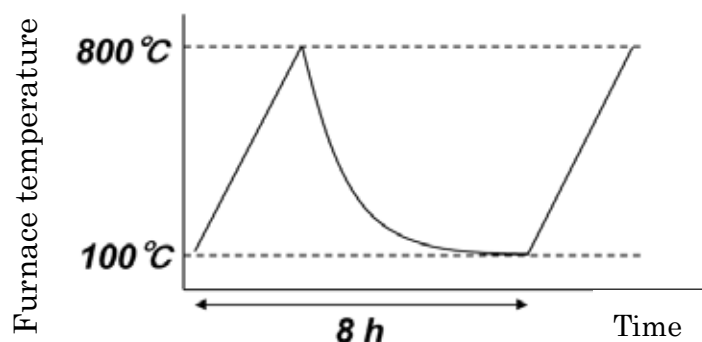


Fig.3 熱疲労負荷条件

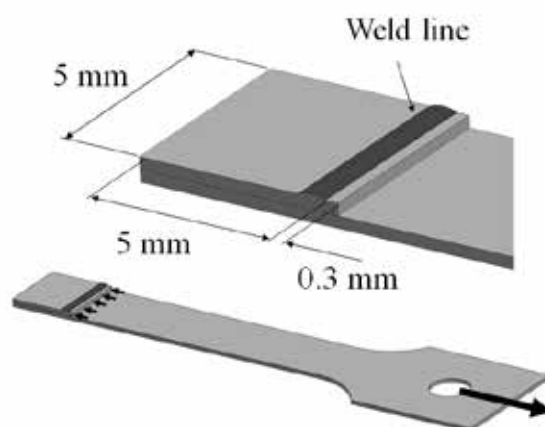


Fig.4 セン断負荷による接合強度試験の負荷方法と試験片形状

### 3. 実験結果

後述の通り、溶接条件に依存して溶接強度は変化していたものの、Table 1の全条件で溶接可能であった。しかし、Table 1に示す条件より高出力条件では被溶接材の溶け落ちや溶接による熱変形が極めて大きく良好な溶接状態は得られなかった。一方、逆に低出力条件では溶接できなかった。

Fig.5に代表的な溶接部の断面組織と、断面組織から評価した界面における溶接部の幅を示す。Fig.5(a)に示すように、レーザーによる入熱により上板を貫通し下板の一部まで溶融して接合しているが、Table 1の全ての条件で下板を貫通するまでには至っていなかった。Fig.5(b)に示すように、溶接部の幅はレーザー出力に依存して増加するが、パルス周波数やトラバース速度の影響はほとんど認められなかった。溶接部のせん断強度とレーザー出力との関係をFig.6に示す。Fig.5(b)と同様に、せん断溶接強度はレーザー出力に依存して増加し、パルス周波数とトラバース速度の影響も認められる。さらに、下板の厚さが異なっても同一の接合条件では接合強度がほぼ同等で、接合強度への下板厚さの影響は認められない。

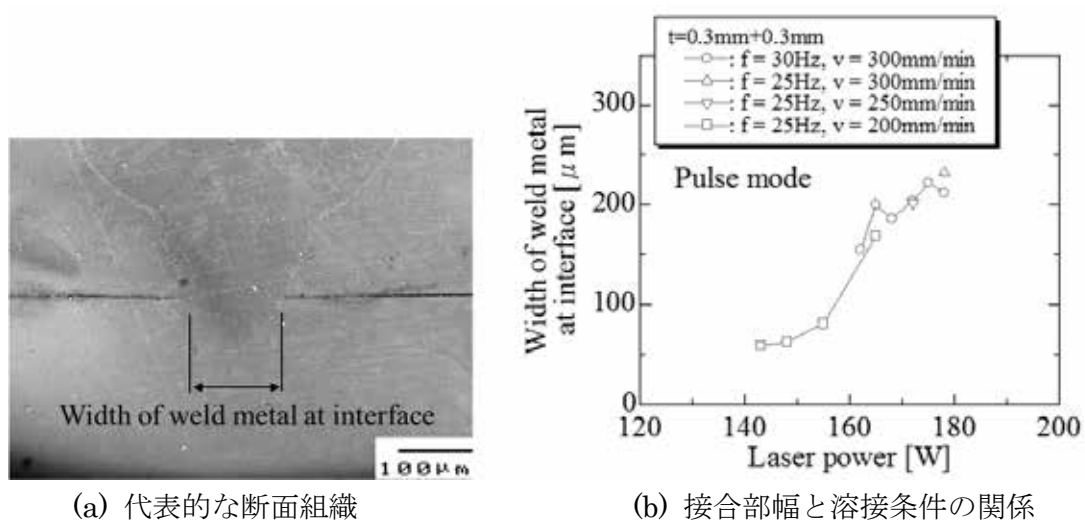


Fig.5 接合部の様相と接合部幅への溶接条件の影響

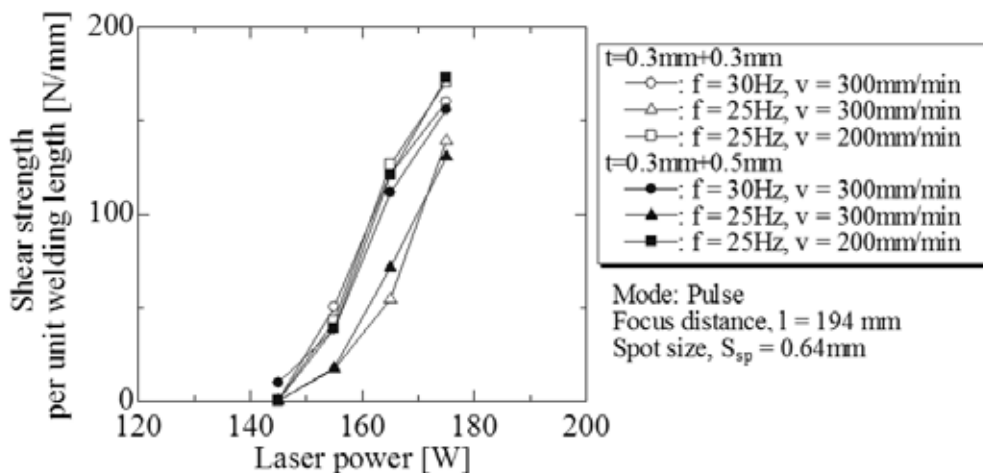


Fig.6 接合強度に及ぼす接合条件の影響

レーザ溶接部の溶接強度は被溶接材の溶融量を支配する入熱量に依存すると考えられる。パルス溶接による単位溶接線長さあたりの入熱量  $Q_{in}$  を次式で与えられるとする。

$$Q_{in} = a Q_{out} v t_p f \quad (1)$$

ここで、 $Q_{out}$  はレーザ出力、 $v$  はトラバース速度、 $t_p$  は 1 パルスの照射時間、 $f$  は周波数、 $a$  はレーザの吸収率で平滑平面の SUS304 では  $a = 0.1$  と報告されている<sup>5)</sup>。せん断接合強度と  $Q_{out}$  の関係を Fig.7 に示す。Fig.7 に示すように、せん断接合強度は  $Q_{out}$  により整理することは出来ない。これは、連続レーザ溶接と異なり間欠的にレーザが照射されるパルスレーザ溶接では、単純な単位長さあたりの入熱量が溶融状態と対応しないためと考えられる。

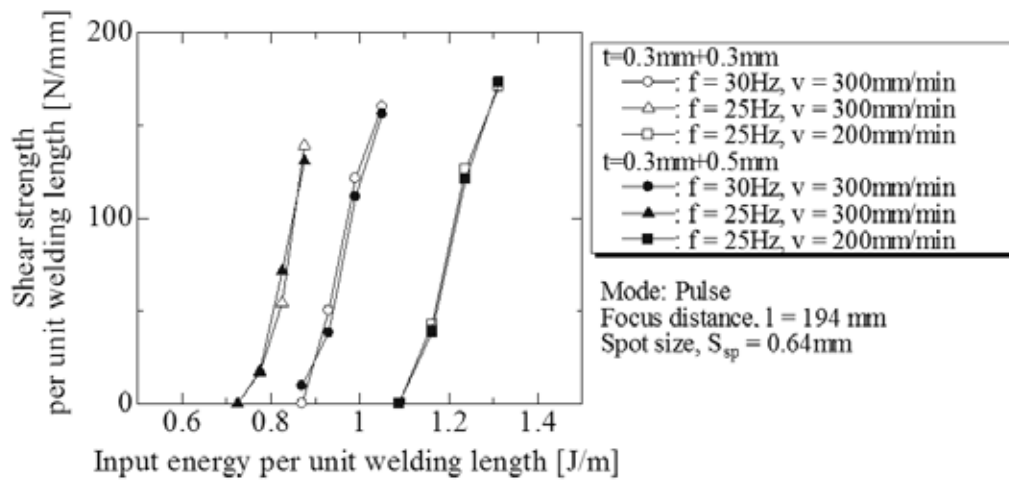


Fig.7 接合強度に及ぼす接合条件の影響

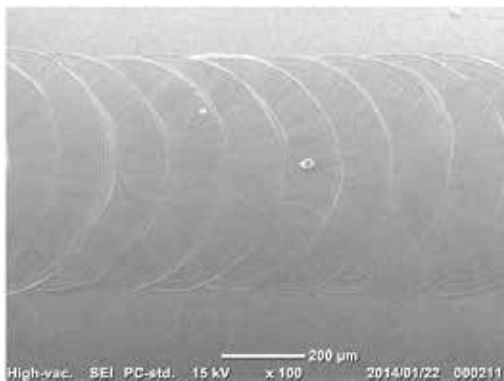


Fig.8 溶接部表面の様子

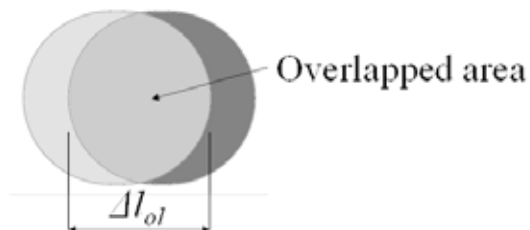


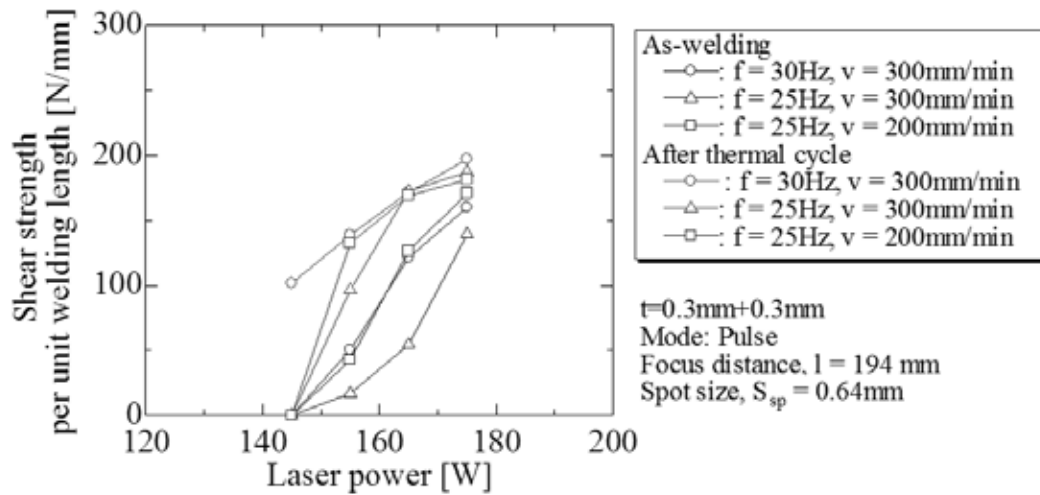
Fig.9 パルスレーザーの重なり量の定義

試験片表面の溶接ビードの状態を Fig.8 に示す。溶接部はパルスレーザーのトラバース速度とパルス周波数の関係からレーザースポットの重なりに対応した模様が認められる。そこで、溶接中のパルスレーザーの重なり量  $\Delta l_{ol}$  を Fig.9 に示すように定義すると、 $\Delta l_{ol}$  は次式で得られる。

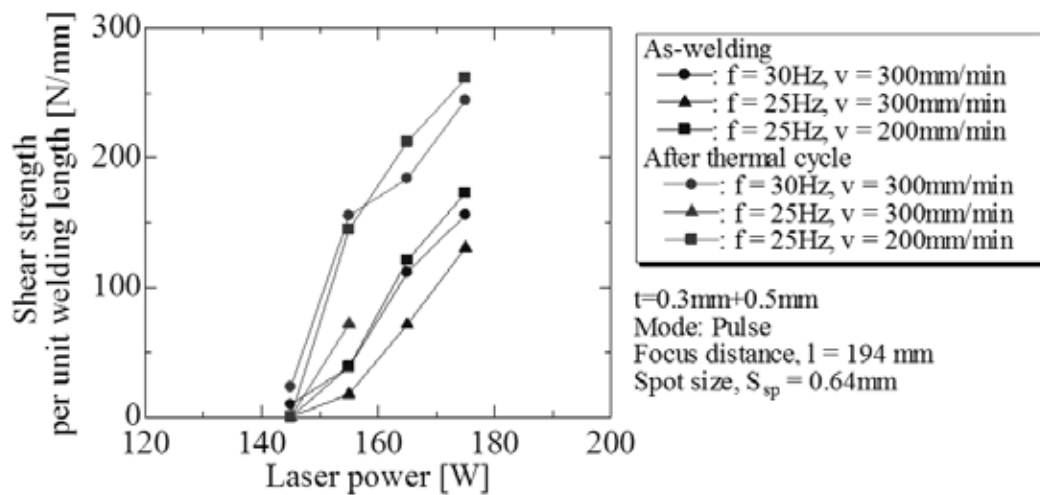
$$\Delta l_{ol} = v(t_p \cdot 1/f) + S_{sp} \quad (2)$$

ここで、 $S_{sp}$  はレーザースポットサイズである。各条件における  $\Delta l_{ol}$  を Table 1 中に示す。 $\Delta l_{ol}$  と Fig.6 の結果を合わせると、 $\Delta l_{ol}$  も接合強度に関連していることが明らかである。

溶接強度に及ぼす熱疲労負荷の影響を Fig.10 に示す。同一条件で溶接した試験片の強度は、熱疲労負荷により上昇している。この結果は、本供試材の接合強度は実機負荷環境下における熱負荷により向上する可能性を示唆している。



(a)  $t = 0.3\text{mm} + 0.3\text{mm}$  条件

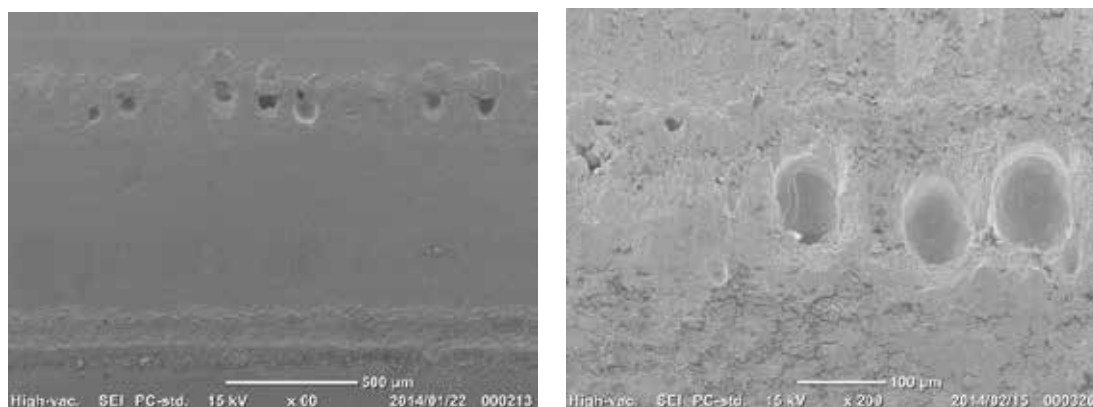


(b)  $t = 0.3\text{mm} + 0.5\text{mm}$  条件

Fig.10 接合強度に及ぼす熱疲労負荷の影響

接合強度に及ぼす溶接条件および熱疲労負荷の影響を検討するため、せん断試験後の試験片の破面および接合部断面観察を行った。代表的な観察結果を Fig.11 に示す。Fig.11 に示すように、せん断試験後の破面にはディンプルが多数認められる。これらのディンプルはパルスレーザー溶接の間欠的入熱により円錐状に形成された溶融部が溶融部/非溶融部界面で破壊して形成されたものと考えられる。しかし、全ての溶接部がこのようなディンプルを呈しているわけではなく、接合界面で溶融部が破壊している箇所も認められた。そこで、破面上でのディンプルの個数とディンプルの深さをレーザ顕微鏡で計測した。破面上で計測されたディンプルの個数を接合部長さで除したディンプル

個数密度と、溶接条件の関係を Fig.12 に、計測されたディンプルの深さの平均値と溶接条件の関係を Fig.13 に示す. Fig.12, より、ディンプル個数密度はレーザー出力、トラバース速度、パルス速度の溶接条件にはあまり影響を受けていないが、熱疲労負荷によりディンプル個数密度が若干上昇する傾向が認められる. 一方、Fig.13 に示すように、ディンプル深さはレーザー出力の上昇に伴って深くなるが、その他の溶接条件および熱疲労負荷の影響はほとんど認められない.



(a) 溶接まま材

165W, 250mm/min, 25Hz

(b) 熱疲労負荷材

175W, 200mm/min, 25Hz

Fig.11 せん断試験後の破面の代表例 ;  $t = 0.3\text{mm} + 0.5\text{mm}$

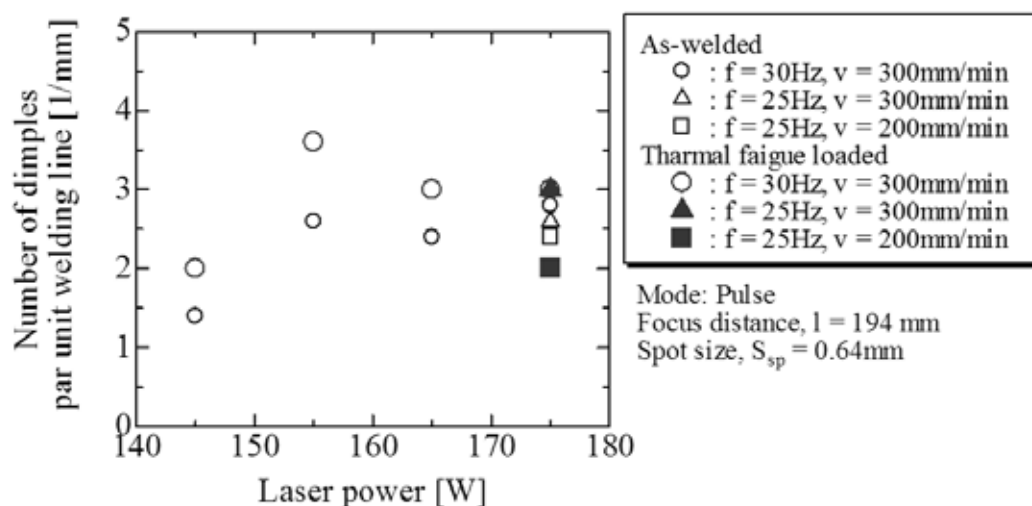


Fig.12 ディンプル個数密度に及ぼす溶射条件の影響

以上の実験結果を総合すると、接合強度に及ぼす溶接条件と熱疲労負荷の影響は以下のように考えられる. すなわち、レーザー出力の上昇に伴い入熱量が上昇し溶融部が深く



なることによりディンプル深さが上昇する。しかし、溶融部／非溶融部界面で破壊するか溶融部で破壊するかについては、溶接条件の影響はあまり大きくない。一方、熱疲労負荷により溶融部近傍の相互拡散および残留熱応力の緩和が生じ、溶融部／非溶融部界面の強度に比して溶融部の強度が向上し、ディンプル状破面の形成が促進されたものと考えられる。

Fig.14 にディンプル深さと接合強度の関係を示す。接合強度とディンプル深さの間には良い相関関係が認められる。これは、溶融部が深くなるほど溶接界面の凹凸が大きくなり、それに伴うアンカー効果の増加により接合強度が向上したものと考えられる。

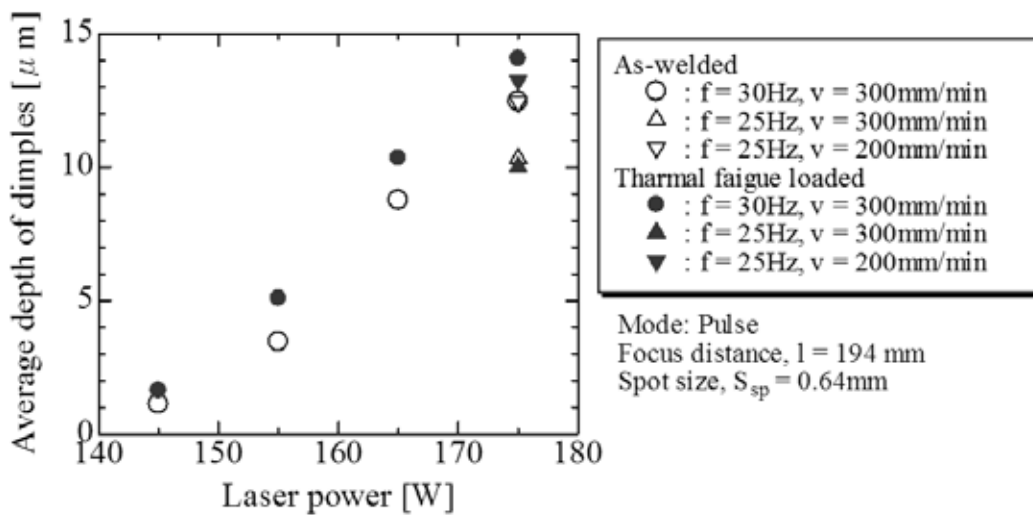


Fig.13 ディンプル个数密度に及ぼす溶射条件の影響

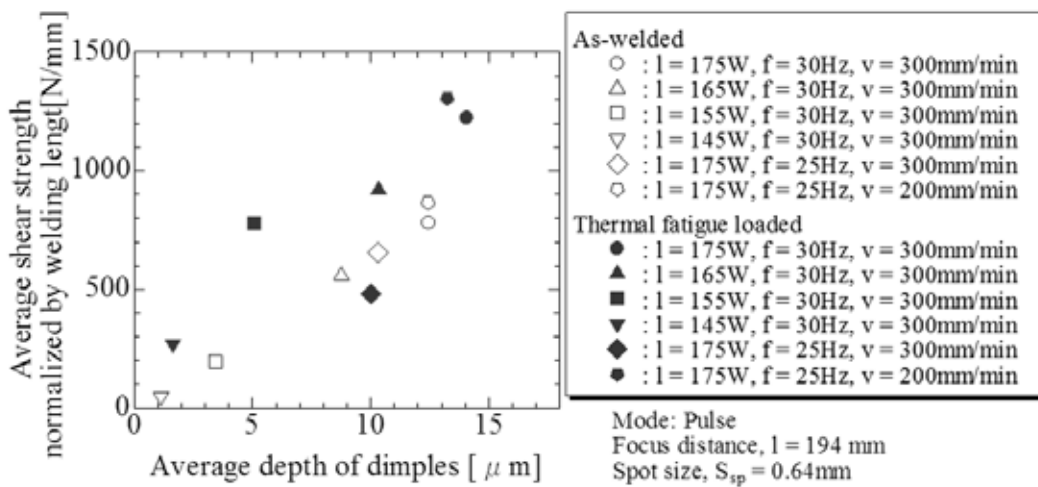


Fig.14 接合強度とディンプル深さの関係

以上のように、MFLWにより重ね合わせ溶接した SUS304 薄板溶接材のせん断接合強度は、溶接時に形成された溶融部の形状およびその強度特性に強く影響を受けると考えられる。従って、単一パルスのレーザー入力による溶融シミュレーションと溶融部の破壊シミュレーションにより接合強度の予測が可能と考えられ、シミュレーションを援用した系統的な検討により溶接条件の最適化が可能と考えられる。今後、レーザー溶接による非定常熱伝導シミュレーションと溶融部の破壊シミュレーションを実施し、溶接条件と溶接強度の関係をさらに検討する予定である。

## 5. 結言

本研究では、次世代普及型 SOFC の開発に資するため、SOFC セパレータ用高耐熱耐食合金薄鋼板に対する MFLW による溶接技術の開発をおこない、溶接部強度に及ぼす溶接条件の影響と熱疲労負荷の影響を検討した。得られた成果を以下に示す。

- 1) 溶接可能なレーザー出力の条件が存在し、高出力条件では溶け落ちや大変形、低出力条件では接合強度不足の問題が生じる。
- 2) 適切なレーザー出力条件の範囲では、出力の増加にともない接合部の幅が増加し、それに伴い接合強度が向上した。
- 3) 接合強度はレーザー発信周波数、加工速度の組み合わせによって変化し、その影響には溶融部の状態が関連していた。
- 4) 本研究の条件の範囲では熱疲労負荷により接合強度が増加した。この結果は、稼働時の熱疲労負荷により接合強度が向上可能であることを示唆している。
- 5) 単一パルスのレーザー入力による溶融シミュレーションと溶融部の破壊シミュレーションによる接合強度予測と溶接条件の最適化の可能性を示した。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたって、公益財団法人 JFE 21 世紀財団の援助を受けた。記して、関係者各位に謝意を表する。

## 参考文献

- 1) 岩井裕, 吉田英生, 「固体酸化物形燃料電池 (SOFC) が拓くこれからの高性能発電」, 日本機械学会誌, **111** (2008) 829-832.
- 2) 田中洋平, 門馬昭彦, 根岸明, 加藤健, 高野清南, 野崎健, 嘉藤徹, 「高効率 SOFC システムによる分散型発電の実現に向けて」, *Synthesiology*, **6** (2013) 12-23.
- 3) T. Suzuki, T. Yamaguchi, K. Hamamoto, Y. Fujishiro, M. Awano and N. Sammes, “A functional layer for direct use of hydrocarbon fuel in low temperature solid-oxide fuel cells”, *Energy & Environmental Science*, **4** (2011) 940-943.
- 4) 都地昭宏, 上原利弘, 大野丈博, 「固体酸化物形燃料電池 (SOFC) 用セパレータ材

- ZMG®232Lの開発」, 日立金属技報, **23** (2007) 45-50.
- 5) 千徳英介, 上田隆司, 山田啓司, 細川晃, 「レーザーフォーミング加工に関する基礎的研究 (第2報)」, 精密工学会誌, **71** (2005) 481-485.