



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I787491 B

(45)公告日：中華民國 111 (2022) 年 12 月 21 日

(21)申請案號：108111173

(22)申請日：中華民國 108 (2019) 年 03 月 29 日

(51)Int. Cl. : H01M8/02 (2016.01)

H01M8/0662 (2016.01)

(30)優先權：2018/03/30 日本

2018-070211

(71)申請人：日商大阪瓦斯股份有限公司(日本) OSAKA GAS CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：越後滿秋 ECHIGO, MITSUAKI (JP)；大西久男 ONISHI, HISAO (JP)；神家規壽 SHINKE, NORITOSHI (JP)；津田裕司 TSUDA, YUJI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

TW 201539853A

JP 2001-068136A

US 2005/0170234A1

US 2006/0286417A1

US 2017/0267523A1

審查人員：吳國宇

申請專利範圍項數：18 項 圖式數：22 共 93 頁

(54)名稱

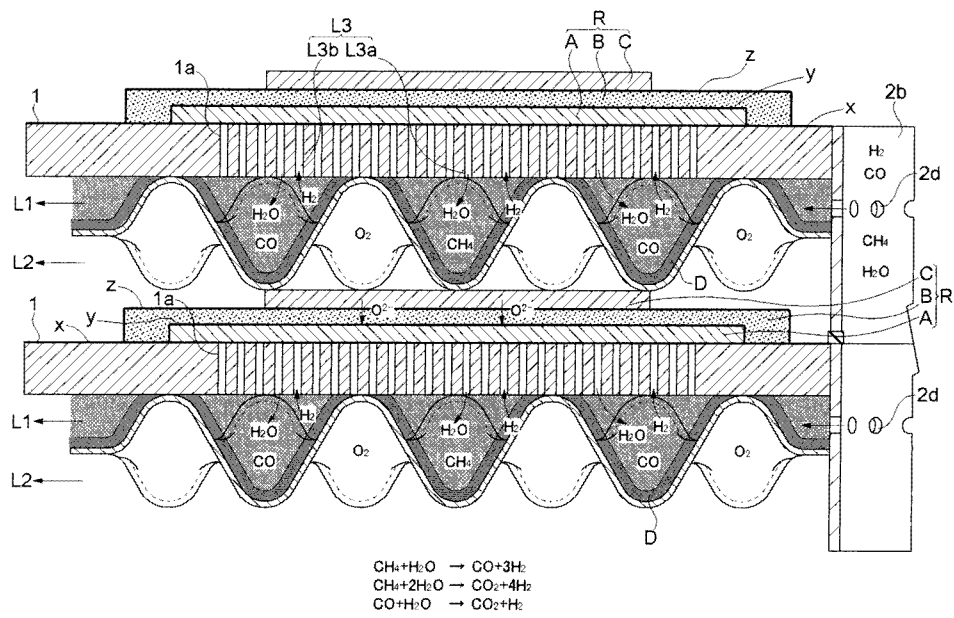
燃料電池裝置及燃料電池裝置之運作方法

(57)摘要

目的在於即使燃料電池胞具備的陽極電極層為數十微米級，也可得到合理且有效率地利用內部改質反應之高效率的燃料電池。

解決手段為被構成具備：挾著電解質層被形成陽極電極層與陰極電極層的燃料電池胞、對陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元(U)；把具備將燃料氣體進行水蒸氣改質的改質觸媒之外部改質器(34)，設於還原性氣體供給路徑之上游，藉由外部改質器(34)使一部分被改質之燃料氣體被供給至還原性氣體供給路徑。

指定代表圖：



【圖 6】

符號簡單說明：

- 1 . . . 金屬支撐體
- 1a . . . 貫通孔
- 2b . . . 第 1 流道
- 2d . . . 第 1 通流孔
- A . . . 陽極電極層
- B . . . 電解質層
- C . . . 陰極電極層
- D . . . 內部改質觸媒層
- L1 . . . 還原性氣體供給路徑
- L2 . . . 氧化性氣體供給路徑
- L3 . . . 內部改質燃料供給路徑
- L3a . . . 排出部(水蒸氣供給路徑/內部改質燃料供給路徑)
- L3b . . . 供給部(內部改質燃料供給路徑)
- R . . . 燃料電池胞
- x . . . 金屬氧化物層
- y . . . 中間層
- z . . . 反應防止層



I787491

【發明摘要】

【中文發明名稱】

燃料電池裝置及燃料電池裝置之運作方法

【中文】

目的在於即使燃料電池胞具備的陽極電極層為數十微米級，也可得到合理且有效率地利用內部改質反應之高效率的燃料電池。

解決手段為被構成具備：挾著電解質層被形成陽極電極層與陰極電極層的燃料電池胞、對陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元(U)；把具備將燃料氣體進行水蒸氣改質的改質觸媒之外部改質器(34)，設於還原性氣體供給路徑之上游，藉由外部改質器(34)使一部分被改質之燃料氣體被供給至還原性氣體供給路徑。

【指定代表圖】第(6)圖。

【代表圖之符號簡單說明】

1：金屬支撐體

1a：貫通孔

2b：第1流道

2d：第1通流孔

A：陽極電極層

B：電解質層

C：陰極電極層

D：內部改質觸媒層

L1：還原性氣體供給路徑

L2：氧化性氣體供給路徑

L3：內部改質燃料供給路徑

L3a：排出部(水蒸氣供給路徑/內部改質燃料供給路徑)

L3b：供給部(內部改質燃料供給路徑)

R：燃料電池胞

x：金屬氧化物層

y：中間層

z：反應防止層

【特徵化學式】無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

燃料電池裝置及燃料電池裝置之運作方法

【技術領域】

【0001】本發明係關於具備：挾著電解質層被形成陽極電極層與陰極電極層的燃料電池胞、對陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑之燃料電池。

【先前技術】

【0002】燃料電池胞，藉著對兩電極層供給所要的氣體(還原性氣體、氧化性氣體)，以其單體進行發電。在本說明書，把具備此燃料電池胞、還原性氣體供給路徑及氧化性氣體供給路徑而構成的單元稱為「燃料電池單胞單元(fuel cell unit-cell unit)」。接著，這些燃料電池單胞單元於特定方向被層積複數，構築相關於本發明的燃料電池模組。此燃料電池模組，構成本發明所稱燃料電池裝置的核心。

【0003】作為關於這種燃料電池之背景技術，可以舉出記載於專利文獻1、2、3之技術。

【0004】揭示於專利文獻1的技術，目的在於提供不犧牲發電性能，可以防止於發電中變得過度高溫，以及發生溫度不均的情形之中任一種之燃料電池，具備對燃料極

(相當於本發明之「陽極電極層」)112供給燃料氣體(相當於本發明之「含氫氣體」)之用的流道之燃料供給流道(相當於本發明之「還原性氣體供給路徑」)(210,125)。接著，於此燃料供給流路，把供使產生水蒸氣改質反應之用的改質觸媒部PR1，設於離開燃料極112且對向於燃料極112之面。

【0005】在揭示於此文獻1的技術，在改質觸媒部PR1被改質的改質氣體被導入燃料極。接著，改質氣體在燃料極被消費，由燃料供給流道的出口排出。在此技術，利用水蒸氣改質反應為吸熱反應(熱供給為必要)，防止燃料電池胞的高溫化。在此，改質觸媒部PR1設置的部位，為對燃料極成為燃料氣體供給的上游側的部位，結束電池反應的排氣由與被設置改質觸媒部PB1的流道不同的排氣流道排出(參照圖19(c))。

進而，由圖式等來判斷，揭示於文獻1的燃料電池，由其構造來看，為所謂陽極電極支撐型燃料電池。

【0006】另一方面，發明人等，於專利文獻2、3，提議在金屬支撐體之一方之面薄層狀地設燃料電池胞。

揭示於專利文獻2的技術係使電化學元件為平板狀，揭示於專利文獻3的技術使電化學元件為圓盤狀。

揭示於這些專利文獻的技術，係關於電化學元件、電化學模組、電化學裝置，但電化學元件接受含有氫的氣體及含有氧的氣體的供給而進行發電的場合，電化學元件成為燃料電池胞，電化學模組為燃料電池模組，電化學裝置

為燃料電池裝置。

【0007】揭示於專利文獻2、3之技術，藉由以金屬支撐體進行燃料電池胞的支撐，可以使構形成於金屬支撐體的一方之面的燃料電池胞之各層(至少，陽極電極層、電解質層及陰極電極層)為微米級到數十微米級之非常薄的薄層。當然，具備數毫米程度之厚度亦可。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0008】

[專利文獻1] 日本特開2017-208232號公報

[專利文獻2] 日本特開2016-195029號公報

[專利文獻3] 日本特開2017-183177號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0009】在揭示於專利文獻1的從前型的陽極支撐型燃料電池，陽極電極層厚(一般為數毫米級)，在燃料氣體被導入的入口部分一口氣也進行了內部改質反應。因此，燃料電池的入口溫度變低，排氣側反而被維持於燃料電池胞的原本溫度，所以設改質觸媒部之側容易變成低溫，容易出現入口側與出口側之溫度差。

進而，在燃料電池反應生成水蒸汽，但結束電池反應的排氣未通過改質觸媒部而由排氣流道排出，所以此水蒸

氣沒有被有用地利用。

【0010】於揭示於專利文獻2、3的技術，在金屬支撐型燃料電池，被形成於金屬支撐體上的陽極電極層薄至數十微米級，所以比記載於專利文獻1的陽極支撐型燃料電池更難得道內部改質反應之效果，難以實現如陽極支撐型燃料電池那樣的高發電效率。

無論如何，適宜使用燃料電池單胞單元內具備內部改質觸媒層而構成的燃料電池之技術，現在仍未確立。

【0011】有鑒於此實際情形，本發明之主要課題，在於得到可以合理且有效率地利用內部改質反應的高效率的燃料電池。

[供解決課題之手段]

【0012】本發明的第1特徵構成為被構成具備：挾著電解質層被形成陽極電極層與陰極電極層的燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游，藉由該外部改質器使至少一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑。

【0013】根據本特徵構成，於構成燃料電池胞的陽極

電極層透過還原性氣體供給路徑至少被供給氫。另一方面，於陰極電極層透過氧化性氣體供給路徑至少被供給氧。結果，藉由這些氣體供給，可以使發電反應良好地發生。

【0014】接著，於如此構成的燃料電池的運作，依照該燃料電池胞的組成，有必要維持於電池反應所必要的溫度區域(例如，如後示燃料電池為SOFC的場合，其工作溫度為700℃程度)。電池反應自身為發熱反應，所以在到達特定溫度區域的狀態，藉由適切的除熱電池可繼續運作。

【0015】接著，於相關於本發明的燃料電池單胞單元，設內部改質觸媒層。

結果，藉著對此內部改質觸媒層供給可為水蒸氣改質對象的氣體(例如，本發明之原燃料氣體)，可使發生此氣體之內部改質。接著，使如此進行而生成的氫，導引至燃料電池胞的陽極電極層，可以供發電之用。此時，可以良好地利用藉由發熱反應之電池所發生的熱。

【0016】換句話說，在此構成之燃料電池裝置，即使在外部改質器之改質率抑制於比較低的程度，也能夠以在燃料電池單胞單元內之內部改質來彌補，結果可以進行安定的發電。

【0017】如稍後亦顯示的，在此構成的燃料電池裝置，相對於不具備內部改質觸媒層，僅具備外部改質器的燃料電池裝置，可以使發電效率提高。特別是低S/C比(低水蒸氣/碳比)之區域的改善為顯著。進而，可以縮小對陽

極電極層供給含氫的氣體的還原性氣體供給路徑的入口/出口間的氫分壓差，所以也可得到可抑制在低氫分壓下容易引起的燃料電池胞劣化之效果。

此外，實行內部改質的場合，藉由使燃料電池胞(還原性氣體供給路徑)出入口的氫分壓差(濃度差)變小，發電量在胞內的偏在變小，溫度差也縮小，所以藉由燃料電池胞的熱應力被緩和而提高耐久性或可信賴性。

在此，為了容易理解以氫分壓進行說明，但在水蒸氣改質如稍後所述與氫一起也產生一氧化碳，這些一起完成發電之用。以下，把與燃料電池胞內移動來陽極電極層的氧離子進行反應之氣體(氫及一氧化碳)稱為「發電用燃料氣體」。

【0018】藉著採取本發明之構成，藉著進行外部改質與同時在燃料電池單胞單元內引起的內部改質雙方，可以實現能源效率高的燃料電池裝置。

【0019】本發明的第2特徵構成，為前述燃料電池胞之前述陽極電極層被形成為薄層狀。

【0020】藉由採用本特徵構成，僅把陽極電極層形成為薄層狀，可以發揮發電之燃料電池胞的機能，同時可使在解決課題之項所說明的把燃料電池胞形成為比較薄的場合無法提高效率的課題，藉由進行外部改質、內部改質雙方而解消。而且，減低昂貴的陽極電極層材料的使用量，可實現燃料電池裝置的成本降低。

【0021】本發明之第3特徵構成，為具有在前述燃料

電池胞發生的水蒸氣被供給至還原性氣體供給路徑的水蒸氣供給路徑。

【0022】藉由具備本特徵構成，可以把透過水蒸氣供給路徑藉由發電產生的水蒸氣供給至還原性氣體供給路徑(其至少一部分所具備的內部改質觸媒層)。接著，藉著對此部位供給成為水蒸氣改質的對象之氣體(本發明之原燃料氣體)的話，可在此部位使內部改質發生，把藉由此改質得到的至少氫及一氧化碳供給至陽極電極層，進行發電。

【0023】簡單說明內部改質觸媒層附近之反應及其效果，例如，於圖6也如內部改質反應式所示，以原燃料氣體(CH_4)與水蒸氣(H_2O)構成左邊，右邊為包含氫(H_2)與一氧化碳(CO)的反應式，但這些反應由所謂的「相平衡狀態」起，往此反應區域之水蒸氣供給越是進行，而且由此反應區域越是奪走氫或一氧化碳，而且由此反應區域越是奪走氫或一氧化碳，水蒸氣改質反應就越是進行。接著，在本發明，藉著具備水蒸氣供給路徑，促進往內部改質觸媒層之水蒸氣的供給，藉由透過還原性氣體供給路徑往陽極電極層之氫的供給，在燃料電池單胞單元內使水蒸氣改質良好地發生，可以進行效率佳的發電。

【0024】本發明之第4特徵構成，為具備被薄層狀地形成於金屬支撐體上的一個前述燃料電池胞、前述還原性氣體供給路徑、及前述氧化性氣體供給路徑而被構成前述燃料電池單胞單元；於前述燃料電池單胞單元內具備由原

燃料氣體藉由水蒸氣改質反應至少生成氫的內部改質觸媒層；設置把藉由發電反應發生的水蒸氣由前述陽極電極層排出，導引至前述內部改質觸媒層，同時把在該內部改質觸媒層生成的至少氫導引至前述陽極電極層之內部改質燃料供給路徑。

【0025】根據本特徵構成，燃料電池胞被支撐於與此胞為不同個體之強韌的金屬支撐體，所以沒有必要例如為了保持燃料電池胞的強度而使陽極電極層增厚等，例如，可以使燃料電池胞薄薄地構成至數十～數百微米的厚度。藉此，減少用於燃料電池的昂貴的陶瓷材料的使用量，可以低成本實現緊湊、高性能的燃料電池裝置。

如到目前為止所示，在原燃料氣體的水蒸氣改質反應，氫以外也生成一氧化碳，但這些氣體於陽極電極層作為發電用燃料氣體供發電之用。

【0026】本發明之第5特徵構成，為前述金屬支撐體之與被形成前述燃料電池胞的面不同之面上，被設置前述內部改質觸媒層。

【0027】根據本特徵構成，利用與設置燃料電池胞之面不同的金屬支撐體上之特定面，可以供給於內部改質之用。此外，可以於金屬支撐體上之特定面，形成內部改質觸媒層供內部改質之用，所以能夠以低成本得到緊湊、高性能的燃料電池裝置。

【0028】本發明之第6特徵構成，為設有複數貫通前述金屬支撐體的貫通孔，同時於前述金屬支撐體之一方之

面設置前述陽極電極層，沿著另一方之面設置前述還原性氣體供給路徑；於前述另一方之面之至少一部分設置前述內部改質觸媒層，關於前述還原性氣體供給路徑之流動方向，前述貫通孔發揮作用成為前述內部改質燃料供給路徑。

【0029】根據本特徵構成，藉著對內部改質觸媒層供給可為水蒸氣改質對象的氣體(例如，本發明之原燃料氣體)，可利用藉由發電反應生成的水蒸氣，使發生此氣體之內部改質。接著，使如此進行而生成的發電用燃料氣體，導引至燃料電池胞的陽極電極層，可以供發電之用。

亦即，本發明之內部改質燃料供給路徑，成為兼具作為由陽極電極層放出的水蒸氣的排出部之作用，以及使藉由水蒸氣改質而生成的發電用燃料氣體往陽極電極層再度導引的供給部雙方之構造。

又，比起金屬支撐體之被設置陽極電極層之側的面的貫通孔開口部的面積，另一方之面的貫通孔開口部的面積更大為較佳。因為藉著如此，往陽極電極層供給發電用燃料氣體變得容易的緣故。

【0030】本發明之第7特徵構成，為於前述貫通孔的內部設前述內部改質觸媒層。

【0031】根據本特徵構成，可以利用設於金屬支撐體的貫通孔，供給於內部改質之用。此外，可以於此貫通孔，形成內部改質觸媒層供內部改質之用，所以能夠以低成本得到緊湊、高性能的燃料電池裝置。

【0032】本發明之第8特徵構成，為於前述燃料電池單胞單元，具備隔開前述還原性氣體供給路徑與前述氧化性氣體供給路徑之至少一金屬隔板，於前述金屬隔板之前述還原性氣體供給路徑側之至少一部分設置前述內部改質觸媒層。

【0033】根據本特徵構成，可以利用金屬隔板之形成還原性氣體供給路徑的特定面，供內部改質之用。此外，可以於金屬隔板之還原性氣體供給路徑側之至少一部分，形成內部改質觸媒層供內部改質之用，所以能夠以低成本得到緊湊、高性能的燃料電池裝置。

【0034】本發明之第9特徵構成，為含有於前述內部改質觸媒層的改質觸媒係至少於擔體被擔持金屬之觸媒。

【0035】根據本特徵構成，藉著使用於擔體使擔持金屬之觸媒，及使減低使用於觸媒的金屬之使用量也可以作為高性能的內部改質觸媒層，所以能夠以低成本得到高性能的燃料電池裝置。

【0036】本發明之第10特徵構成，為含有於前述內部改質觸媒層的改質觸媒係含Ni的觸媒。

【0037】根據本特徵構成，使用比較容易入手且廉價的金屬之鎳(Ni)可以在內部改質觸媒層發生水蒸氣改質。

【0038】本發明之第11特徵構成，為於前述還原性氣體供給路徑，設有擾亂該還原性氣體供給路徑內的氣流之亂流促進體。

【0039】流動於還原性氣體供給路徑內的氣流，容易

因其流道構成而成為層流，但藉由於此流道插入亂流促進體，擾亂氣流，對形成於還原性氣體供給路徑內的主流，可以形成與主流方向不同的方向(例如對主流正交)之氣流。結果，可有效率地進行往陽極電極層之含氫氣體的供給。進而，促進往到目前為止說明的內部改質觸媒層之特定氣體(改質前的原燃料氣體或水蒸氣)的混合/放出，可更為促進根據內部改質觸媒層之內部改質。

【0040】本發明之第12特徵構成，為前述燃料電池胞為固體氧化物型燃料電池。

【0041】根據本特徵構成，可以不使藉由外部改質器改質的已改質氣體經過除去已改質氣體中的一氧化碳等之追加改質步驟，而直接供給至固體氧化物型燃料電池進行發電，所以可做成簡單構成的燃料電池裝置。

進而，此固體氧化物型燃料電池，可以在其發電工作溫度為650℃以上的高溫區域使用，可以有效地將此溫度區域之內利用於內部改質反應，同時實現高效率的發電。

【0042】本發明之第13特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，把前述外部改質器的入口之水蒸氣/碳比(S/C比)控制在1.5以上3.0以下的範圍。

【0043】稍後會詳述，但藉由使水蒸氣改質為進行在外部改質器之外部改質以及燃料電池單胞單元內之內部改質雙方，可以減低往外部改質器供給的水蒸氣量，能夠以比到現在為止更寬的S/C比範圍得到高的發電效率，所以前述範圍為佳。此外，把前述外部改質器的入口之S/C比

控制在1.5以上2.5以下的範圍的話，可以更為享受根據本構成之發電效率提高效果，所以為更佳。又，例如在發明人的具體的檢討例，外部改質器所必要的熱量可以減低60%，水蒸氣發生所必要的傳熱量可以減低20%，結果，可以提高直流發電效率3.6%。

【0044】換句話說，在相同電力負荷下，相對於設定在不具備前述內部改質觸媒層，以前述外部改質器單獨進行前述燃料氣體的改質的場合之水蒸氣/碳比(S/C比)，可以把前述外部改質器的入口之水蒸氣/碳比(S/C比)控制得很低，可以提高發電效率。

【0045】本發明之第14特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，把前述外部改質器之改質溫度，控制為比設在前述還原性氣體供給路徑的內部改質觸媒層之溫度更低。

【0046】本構成可進行原燃料氣體的內部改質，可把藉此生成的氫或一氧化碳(發電用燃料氣體)供發電用，所以可無障礙地實現對應於電力負荷之發電。藉由如此使外部改質器的溫度降低，可以大幅減低從前以外部改質器進行水蒸氣改質的場合所必要的熱(能)。

實行內部改質的場合，藉由外部改質器的低溫化，燃料電池胞(還原性氣體供給路徑)的入口部附近之發電用燃料氣體分壓變低，但藉由在燃料電池胞內發生的水蒸氣而迅速地進行內部改質反應，所以在燃料電池胞內，依序使發電用燃料氣體發生，抑制極端的發電用燃料氣體分壓的

降低，可以防止燃料電池胞的劣化。此外，可以抑制在出口部附近之發電用燃料氣體分壓的極端降低。燃料電池胞出口的發電用燃料氣體分壓變高，在如後述的第2實施型態那樣進行廢氣(off-gas)燃燒的場合，對其安定化有利。

【0047】本發明之第15特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，使前述還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓為全氣壓的50%以下而運作。

【0048】本構成可進行燃料氣體的內部改質，變成可以把藉此在燃料電池單胞單元內部生成的發電用燃料氣體供發電用，所以即使在燃料電池胞(還原性氣體供給路徑)的入口部附近之發電用燃料氣體的分壓降低，也可無障礙地實現對應於電力負荷之發電。

【0049】換句話說，在同一電力負荷下，使在外部改質器之改質率比從前更為降低，使前述還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓為50%以下，藉由在內部改質觸媒層之內部改質反應，也可以抑制在燃料電池胞內部之氫分壓的極端降低，防止燃料電池胞的劣化。又，使前述還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓為43%以下的話，除了前述效果以外，可以抑制在外部改質器之改質負荷，更為提高燃料電池裝置的發電效率的提高效果，所以更佳。

【0050】本發明之第16特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，該還原性氣體供給路徑的

入口之發電用燃料氣體分壓相對於該入口之全氣壓的比率為入口比率，還原性氣體供給路徑的出口之發電用燃料氣體分壓相對於該出口之全氣壓的比率為出口比率，使以百分比表示之前述入口比率與前述出口比率之差維持於40%以內而運作。

【0051】本構成可進行原燃料氣體的內部改質，變成可以把藉此在燃料電池單胞單元內部生成的發電用燃料氣體供發電用，所以即使在燃料電池胞(還原性氣體供給路徑)的入口部附近之發電用燃料氣體的分壓降低，也可已使在還原性氣體供給路徑的入口與出口之發電用燃料氣體分壓之差減少為比從前更小。藉此，可抑制燃料電池胞內部之氫分壓的極端降低，可抑制燃料電池胞的劣化。

【0052】本發明之第17特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，使藉由前述外部改質器改質的前述原燃料氣體的改質率為30%以上60%以下。

【0053】雖也隨設備的構成而不同，擔使藉由前述外部改質器改質的原燃料氣體的改質率為30%以上60%以下，可以使根據外部改質器之外部改質與內部改質的平衡為良好，可比從前更為提高燃料電池裝置的發電效率。又，外部改質與內部改質的平衡變得更為良好，所以35%以上的話更佳，40%以上則進而更佳。此外，變得更容易得到燃料電池裝置的發電效率的提高效果的緣故，以55%以下為更佳，50%以上進而更佳。又，比30%低的話，內部改質負荷變得太大。另一方面，比60%還高的話，難以

得到燃料電池裝置的發電效率的提高效果。

【0054】本發明之第18特徵構成，為到目前為止所說明的燃料電池裝置之運作方法，使前述原燃料氣體含有的硫黃濃度脫硫至1vol.ppb以下(進而更佳為0.1vol.ppb以下)而供給至前述外部改質器。

【0055】藉由採用本構成，可以大幅減低包含於原燃料氣體的硫黃成分導致改質觸媒等受毒害等之不良影響，可跨長期確保安定的運作。使硫黃濃度為0.1vol.ppb以下的話，可以提高燃料電池裝置的可信賴性/耐久性。

【圖式簡單說明】

【0056】

圖1係顯示第1實施型態之燃料電池裝置的概略構成。

圖2係顯示第1實施型態之燃料電池單胞單元的構造之俯視圖。

圖3係顯示第1實施型態之燃料電池單胞單元的構造之剖面圖。

圖4顯示有突起集電板的構造之立體剖面圖。

圖5係顯示第1實施型態之燃料電池模組的構造之剖面圖。

圖6係第1實施型態之電池反應與改質反應之說明圖。

圖7係顯示第2實施型態之燃料電池裝置的構成。

圖8係顯示第2實施型態之燃料電池模組的構造之正面圖及平剖面圖。

圖9係顯示第2實施型態之燃料電池單胞單元的構造之立體圖。

圖10係顯示第2實施型態之燃料電池單胞單元的形成過程之說明圖。

圖11係第2實施型態之電池反應與改質反應之說明圖。

圖12係顯示第3實施型態之燃料電池裝置的概略構成。

圖13係顯示第3實施型態之具備一對燃料電池單胞單元的燃料電池模組的重要部位剖面立體圖。

圖14係顯示第3實施型態之具備一對燃料電池單胞單元的燃料電池模組的重要部位剖面立體圖。

圖15係顯示進行在燃料電池單胞單元內的內部改質的場合與不進行的場合之燃料電池的發電效率比較圖。

圖16係顯示進行在燃料電池單胞單元內的內部改質的場合與不進行的場合之燃料電池胞入口之發電用燃料氣體分壓。

圖17係顯示進行在燃料電池單胞單元內的內部改質的場合與不進行的場合之燃料電池胞出口之發電用燃料氣體分壓。

圖18係顯示進行在燃料電池單胞單元內的內部改質的場合與不進行的場合之燃料電池胞入口/出口間之發電用燃料氣體分壓差。

圖19係顯示燃料電池單胞單元之內部改質觸媒層的配

置構成之比較說明圖。

圖20係顯示亂流促進體之其他實施型態。

圖21係顯示於亂流促進體的表面設內部改質觸媒層之其他實施型態。

圖22係具備亂流促進體的第2實施型態之燃料電池單胞單元的剖面圖。

【實施方式】

【0057】根據圖式說明本發明之實施型態。

【0058】以下，作為本發明之實施型態，介紹第1實施型態、第2實施型態及第3實施型態。說明時，針對各實施型態，在採用該實施型態的燃料電池裝置Y全體的說明之後，說明燃料電池裝置Y所具備的燃料電池模組M、將此燃料電池模組M以層積狀態構築的燃料電池單胞單元U。

【0059】第1實施型態的特徵，係燃料電池模組M為圓盤形，其自身承受還原性氣體及氧化性氣體的供給而進行電池動作，相對於此，在第2實施型態，燃料電池模組M為概略直方形，此燃料電池模組M被收納於收納外部改質器34、氣化器33的筐體10內而進行電池動作。第3實施型態，基本上因襲第1實施型態的構造，使於第1實施型態為圓盤形的燃料電池模組M為方形。第1實施型態及第3實施型態之燃料電池胞R可以製作得非常薄。另一方面，第2實施型態的燃料電池胞R可使對於第1實施型態的燃料電池

胞R具有厚度。當然，比較薄地構成亦可。

【0060】本發明的特徵之在燃料電池單胞單元U內具備內部改質觸媒層D這點以及具備外部改質器34這點，關於全部實施型態為共通的。

【0061】

<第1實施型態>

此實施型態之燃料電池裝置Y的構成顯示於圖1。

<燃料電池裝置>

燃料電池裝置Y為可產生/供給電力與熱雙方之所謂的「聯產系統(cogeneration systems)」。電力可以透過反相器38輸出，熱可以使廢氣保有的熱藉由熱交換器36作為溫水回收利用。反相器38，例如變換燃料電池模組M之直流，變換為與由商用系統(省略圖示)所接受的電力相同的電壓以及相同的頻率而輸出。控制部39，適當控制此反相器38以外，控制構成燃料電池裝置Y的各機器的工作。

【0062】於燃料電池裝置Y，對於擔負發電之用的燃料電池模組M，作為還原氣體供給用之主要機器，具備升壓泵30、脫硫器31、改質水槽32、氣化器33及外部改質器34。氧化性氣體供給用的主要機器為送風機35，藉由此送風機35吸引空氣而可供給含有氧的氧化性氣體。

【0063】關於還原性氣體的供給系統(此系統為燃料電池裝置之燃料供給部)進而說明的話，都市瓦斯(以甲烷為主成分含有乙烷或丙烷、丁烷等氣體)等碳化氫系的原

燃料氣體藉由升壓泵30吸引同時被升壓而送至燃料電池模組M。都市瓦斯含有硫黃化合物成分，所以有必要於脫硫器31除去(脫硫)此硫黃化合物成分。於脫硫器31被收納銅-鋅系脫硫劑，原燃料氣體所含的硫黃成分減低至硫黃含量1vol.ppb以下(更佳為0.1vol.ppb以下)。作為這種銅-鋅系脫硫劑，代表性的可以使用藉由使用銅化合物(例如硝酸銅、醋酸銅)及鋅化合物(例如硝酸鋅、醋酸鋅等)之共沉法調製的氧化銅-氧化鋅混合物進行氫還原而得的脫硫劑，或是藉由使用銅化合物、鋅化合物及鋁化合物(例如硝酸鋁、鋁酸鈉等)之共沉法調製之氧化銅-氧化鋅-氧化鋁混合物進行氫還原而得的脫硫劑。

脫硫後的原燃料氣體，在氣化器33的後段側與由改質水槽32供給的改質水混合，於氣化器33水氣化成水蒸氣。此原燃料氣體與水蒸氣被送至外部改質器34，原燃料氣體被水蒸氣改質。此水蒸氣改質反應，係根據被收納於改質器內的改質觸媒之反應，與後述之內部改質反應相同，碳化氫系原燃料氣體(例如甲烷)一部分被改質，生成至少含氫的氣體(已改質氣體)，供發電之用。

【0064】根據外部改質器34之改質，不是改質原燃料氣體全部，而是以適當比率進行改質。亦即，於本發明，被送至構成燃料電池模組M內具備的燃料電池胞R的陽極電極層A之氣體，為原燃料氣體(改質前氣體)與已改質氣體之混合氣體。於此已改質氣體，含有到目前為止說明的發電用燃料氣體之氫或一氧化碳。混合氣體被供給至燃料

電池單胞單元U具備的還原性氣體供給路徑L1。

【0065】進而具體進行說明的話，如圖3、圖4所示，設有對陽極電極層A供給含有發電用的氫的氣體之還原性氣體供給路徑L1，對此還原性氣體供給路徑L1供給混合氣體(包含原燃料氣體(改質前氣體)予已改質氣體)，此混合氣體所含有之至少氫在燃料電池胞R被使用於燃料電池反應。包含未用於反應的殘餘的氫之廢氣，由燃料電池單胞單元U排出。

【0066】如先前說明的，熱交換器36，使來自燃料電池模組M的廢氣，與供給的冷水進行熱交換，生成溫水。此熱交換器36成為燃料電池裝置Y的排熱利用部。替代此排熱利用型態，把由燃料電池模組M排出的廢氣利用於熱產生的型態亦可。亦即，於廢氣，含有在燃料電池單胞單元U未用於反應的殘餘的氫、一氧化碳、進而還有原燃料氣體，所以也可以利用藉由這些燃燒性氣體之燃燒所產生的熱。後述之第2實施型態，把殘餘的燃燒成分作為燃料，利用於外部改質器34、氣化器33的加熱。

【0067】

<燃料電池單胞單元>

於圖2、圖3，顯示本實施型態之燃料電池單胞單元U的俯視圖及剖面圖。

燃料電池單胞單元U，被構成具有：被形成於金屬支撐體1上的燃料電池胞R，被接合於與此燃料電池胞R為相反側的金屬隔板(有突起集電板3)。本實施型態之金屬支

撐體 1 為圓盤形狀，燃料電池胞 R，被構成為至少具備陽極電極層 A、電解質層 B、陰極電極層 C，被形成/配置於金屬支撐體 1 的表側 1e，電解質層 B，為被挾於陽極電極層 A 與陰極電極層 C 的構造。將燃料電池胞 R 形成於金屬支撐體 1 表側 1e 的場合，金屬隔板 3 位於金屬支撐體 1 的背側 1f。亦即，以夾住金屬支撐體 1 的型態，定位燃料電池胞 R 及金屬隔板 3。

【0068】如此般，燃料電池單胞單元 U，藉由具備被形成於金屬支撐體 1 上的燃料電池胞 R 及金屬隔板 3，可以透過還原性氣體供給路徑 L1 對陽極電極層供給至少含有氫的氣體，透過還原性氣體供給路徑 L2 對陰極電極層 C 供給含有氧的氣體而進行發電。此外，作為燃料電池單胞單元 U 的構造特徵，於金屬支撐體 1 的表側 1e 具備金屬氧化物層 x，於陽極電極層 A 的表面(包含陽極電極層 A 與覆蓋此的電解質層 B 之界面)具備中間層 y，於電解質層 B 的表面(包含電解質層 B 與覆蓋此的陰極電極層 C 之界面)具備反應防止層 z。這些金屬氧化物層 x、中間層 y、反應防止層 z，係為了抑制挾著這些層 x、y、z 的材料層間之構成材料的擴散等而設之層，為了容易理解，顯示於圖 6。

【0069】

<金屬支撐體>

金屬支撐體 1，為金屬製之具有圓盤形狀的平板。

如由圖 2，圖 3 可知，於金屬支撐體 1 的中央，被形成與金屬支撐體 1 同心的開口部 1b。於金屬支撐體 1，貫通表

側 1e 與背側 1f 被形成複數之貫通孔 1a。通過此貫通孔 1a 在金屬支撐體 1 的表側 1e 與背側 1f 之間氣體可以通流。流動於此貫通孔 1a 的氣體，具體而言，為先前說明的已改質氣體(含有氫 H_2)，與燃料電池胞 R 之發電反應所生成的水蒸氣 H_2O (參照圖 6)。

【0070】作為金屬支撐體 1 的材料，使用電子傳導性、耐熱性、耐氧化性及耐腐蝕性優異的材料。例如，使用肥粒鐵系不銹鋼、沃斯田鐵系不銹鋼、鎳基合金等。特別是適合使用含鉻合金。在本實施型態，金屬支撐體 1，使用含 Cr 18 質量%以上 25 質量%以下的 Fe-Cr 系合金，含 Mn 0.05 質量%以上的 Fe-Cr 系合金，含 Ti 0.15 質量%以上 1.0 質量%以下的 Fe-Cr 系合金、含 Zr 0.15 質量%以上 1.0 質量%以下的 Fe-Cr 系合金、含 Ti 及 Zr 而 Ti 與 Zr 的合計含量為 0.15 質量%以上 1.0 質量%以下之 Fe-Cr 系合金，含 Cu 0.10 質量%以上 1.0 質量%以下的 Fe-Cr 系合金為特別適宜。

【0071】金屬支撐體 1 全體為板狀。接著，金屬支撐體 1，設有陽極電極層 A 之面為表側 1e，具有由表側 1e 往背側 1f 貫通的複數貫通孔 1a。貫通孔 1a，具有使氣體由金屬支撐體 1 的背側 1f 往表側 1e 透過的機能。又，彎曲板狀的金屬支撐體 1，例如使變形為箱狀、圓筒狀等形狀而使用亦為可能。

【0072】於金屬支撐體 1 的表面，設有作為擴散抑制層的金屬氧化物層 x(參照圖 6)。亦即，在金屬支撐體 1 與後述的陽極電極層 A 之間，被形成擴散抑制層。金屬氧化

物層 x，不僅設在露出於金屬支撐體 1 的外部之面，也設在與陽極電極層 A 之接觸面(界面)。此外，也可以設在貫通孔 1a 的內側之面。藉由此金屬氧化物層 x，可以抑制金屬支撐體 1 與陽極電極層 A 之間的元素相互擴散。例如，作為金屬支撐體 1 使用含鉻的肥粒鐵系不銹鋼的場合，金屬氧化物層 x 主要為鉻氧化物。接著，以鉻氧化物為主成分的金屬氧化物層 x，抑制金屬支撐體 1 的鉻原子等往陽極電極層 A 或電解質層 B 擴散。金屬氧化物層 x 的厚度，只要是可以兼顧防擴散性能夠高與電阻夠低之厚度即可。

【0073】金屬氧化物層 x 可藉由種種手法來形成，但使金屬支撐體 1 的表面氧化成為金屬氧化物的手法適宜使用。此外，於金屬支撐體 1 的表面，藉由噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)、濺鍍法或 PLD 法等 PVD 法、CVD 法等來形成金屬氧化物層 x 亦可，藉由電鍍與氧化處理來形成亦可。進而，金屬氧化物層 x 包含導電性高的尖晶石相等亦可。

【0074】作為金屬支撐體 1 使用肥粒鐵系不銹鋼的場合，與作為陽極電極層 A 或電解質層 B 的材料使用的 YSZ (鈮安定氧化鋯)或 GDC(鈮摻雜氧化鈾，亦稱為 CGO)等熱膨脹係數相近。亦即，低溫與高溫之溫度循環反覆進行的場合，燃料電池胞 R 也不容易受到損傷。因而，可以實現長期耐久性優異的燃料電池胞 R 所以較佳。

【0075】如先前也顯示的，金屬支撐體 1，具有貫通

表側 1e 與背側 1f 而設的複數貫通孔 1a。又，例如，貫通孔 1a，可以藉由機械方式、化學方式或者光學之穿孔加工等，而設於金屬支撐體 1。此貫通孔 1a，如圖 3(b) 亦顯示的，實質上金屬支撐體 1 的表側 1e 為狹窄的錐形狀。此貫通孔 1a，具有使氣體由金屬支撐體 1 的表背兩側透過的機能。為了使金屬支撐體 1 具有氣體透過性，可以使用多孔質金屬。例如，金屬支撐體 1，也可以使用燒結金屬或發泡金屬。

【0076】

<燃料電池胞>

如先前也顯示的，燃料電池胞 R，被構成具有陽極電極層 A、電解質層 B、陰極電極層 C、以及在這些層之間有適當的擴散抑制層 y、z。此燃料電池胞 R，為固體氧化物型燃料電池 SOFC。如此，作為作為實施型態顯示的燃料電池胞 R 藉由具備擴散抑制層 y、z，電解質層 B，為間接地被挾在陽極電極層 A 與陰極電極層 C 的構造。由僅使產生電池發電的意義上，藉著於電解質層 B 的一方之面形成陽極電極層 A，在另一方之面形成陰極電極層 C，進行發電為可能。

【0077】

<陽極電極層>

陽極電極層 A，如圖 3、圖 6 等所示，能夠在金屬支撐體 1 的表側 1e 而且於比被設置貫通孔 1a 的區域更大的區域，以薄層的狀態設置。薄層の場合，可以使其厚度為例

如 $1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 程度，較佳為 $5\mu\text{m} \sim 50\mu\text{m}$ 。使成為這樣的厚度，可以減低昂貴的電極層材料的使用量而謀求降低成本，同時可以確保充分的電極性能。被設置貫通孔 1a 的區域的全體為陽極電極層 A 所覆蓋。總之，貫通孔 1a 被形成於金屬支撐體 1 之被形成陽極電極層 A 的區域之內側。換句話說，所有的貫穿孔 1a 面對陽極電極層 A 設置。

【0078】作為陽極電極層 A 的材料，例如可以使用 NiO-GDC、Ni-GDC、NiO-YSZ、Ni-YSZ、CuO-CeO₂、Cu-CeO₂ 等複合材。在這些例中，GDC、YSZ、CeO₂ 可以稱為複合材的骨材。

又，陽極電極層 A，以藉由低溫燒成法(例如不在比 1100°C 更高的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)或是噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)、PVD 法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等)，CVD 法等來形成為較佳。藉由這些可以在低溫域使用的製程，不在例如比 1100°C 更高的高溫域之燒成，可以得到良好的陽極電極層 A。因此，不會損傷金屬支撐體 1，此外，可以抑制金屬支撐體 1 與陽極電極層 A 之元素相互擴散，可實現耐久性優異的電化學元件所以較佳。進而，使用低溫燒成法的話，原料的操作變得容易所以更佳。

又，含有於此陽極電極層 A 的 Ni 的量，可以為 35 質量 % 以上 85 質量 % 以下之範圍。此外，含有於陽極電極層 A 的 Ni 的量，使發電性能更為提高，所以比 40 質量 % 更多為更

佳，比45質量%更多又更佳。另一方面，為了容易降低成本，以80質量%以下為更佳。

【0079】陽極電極層A具有氣體透過性，所以內部及表面具有複數細孔(省略圖示)。亦即，陽極電極層A，形成為多孔質之層。陽極電極層A，例如以其緻密度為30%以上而未滿80%的方式形成。細孔的尺寸，可以適當選擇在進行電化學反應時適於使反應圓滑地進行之尺寸。又，所謂緻密度，是構成層的材料的空间占比，能夠以(1-空孔率)表示，此外，與相對密度同等。

【0080】

(中間層)

中間層y，如圖6所示，能夠在覆蓋陽極電極層A的狀態下，以薄層的狀態形成於電極層A之上。薄層の場合，可以使其厚度為例如 $1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 程度，較佳為 $2\mu\text{m} \sim 50\mu\text{m}$ 程度，更佳為 $4\mu\text{m} \sim 25\mu\text{m}$ 程度。使成為這樣的厚度，可以減低昂貴的中間層材料的使用量而謀求降低成本，同時可以確保充分的性能。作為中間層y的材料，例如，可以使用YSZ(鈮安定氧化鋯)、SSZ(釷安定氧化鋯)或GDC(鈮摻雜氧化鈾)、YDC(鈮摻雜氧化鈾)、YDC(鈮摻雜氧化鈾)、SDC(鈮摻雜氧化鈾)等。特別適合使用氧化鈾系之陶瓷。

【0081】中間層y，以藉由低溫燒成法(例如不在比 1100°C 更高的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)或是噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶

膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)、PVD法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等),CVD法等來形成為較佳。藉由這些可以在低溫域使用的成膜製程,不在例如比1100℃更高的高溫域之燒成,可以得到中間層y。因此,不損傷金屬支撐體1,可以抑制金屬支撐體1與陽極電極層A之元素相互擴散,可實現耐久性優異的燃料電池胞R。此外,使用低溫燒成法的話,原料的操作變得容易所以更佳。

【0082】中間層y,具有氧離子(氧化物離子)傳導性。此外,具有氧離子(氧化物離子)與電子之混合傳導性為更佳。具有這些性質的中間層y,適於適用在燃料電池胞R。

【0083】

(電解質層)

電解質層B,是在覆蓋陽極電極層A及中間層y的狀態下,以薄層的狀態形成於中間層y之上。此外,也能夠以厚度10μm以下的薄膜狀態形成。詳言之,電解質層B,如圖3、圖6等所示,係跨設於中間層y之上與金屬支撐體1之上。如此構成,藉由把電解質層B接合於金屬支撐體1,可以作為電化學元件全體為牢固性優異者。

【0084】此外,電解質層B,設置於金屬支撐體1的表側1e且比被設置貫通孔1a的區域更大的區域。總之,貫通孔1a被形成於金屬支撐體1之被形成電解質層B的區域之內側。

【0085】此外，於電解質層B的周圍，可以抑制來自陽極電極層A及中間層y之氣體的洩漏。進一步說明，在發電時，氣體由金屬支撐體1的背側通過貫通孔1a往陽極電極層A供給。在電解質層B接於金屬支撐體1的部位，不設置密合墊等其他構件，就可以抑制氣體的洩漏。又，在本實施型態藉由電解質層B全部覆蓋陽極電極層A的周圍，但在陽極電極層A及中間層y的上部設電解質層B，在周圍設密合墊等的構成亦可。

【0086】作為電解質層B的材料，例如，可以使用YSZ(鈮安定氧化鋯)、SSZ(釩安定氧化鋯)或GDC(鈮摻雜氧化鈾)、YDC(鈮摻雜氧化鈾)、SDC(鈮摻雜氧化鈾)、LSGM(鋁鎂摻雜鎳酸鋁)等。特別適合使用氧化鋯系之陶瓷。電解質層B採用氧化鋯系陶瓷的話，能夠讓使用燃料電池胞R的SOFC的工作溫度，比氧化鈾系陶瓷更為提高。使成SOFC的場合，作為電解質層B的材料使用如YSZ那樣在650℃程度以上的高溫域也可以發揮高的電解質性能的材料，系統的原燃料使用都市瓦斯或天然氣(LPG)等碳化氫系原燃料，使原燃料藉由水蒸氣改質等作為SOFC的還原性氣體的系統構成的話，可以構築把在SOFC的電池堆生成的熱用於原燃料氣體的改質之高效率的SOFC系統。

【0087】電解質層B，以藉由低溫燒成法(例如不超越1100℃的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)或是噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法

等方法)、PVD法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等),CVD法等來形成為較佳。藉由這些可以在低溫域使用的成膜製程,不在例如超過1100℃的高溫域之燒成,可以得到緻密且氣密性及氣體障壁性高的電解質層B。因此,可以抑制金屬支撐體1的損傷,此外,可以抑制金屬支撐體1與陽極電極層A之元素相互擴散,可實現性能/耐久性優異的燃料電池R。特別是使用低溫燒成法或噴塗法等的話,可以實現低成本的元件所以較佳。進而,使用噴塗法的話,在低溫域容易得到緻密且氣密性及氣體障壁性高的電解質層所以更佳。

【0088】電解質層B遮蔽還原性氣體或氧化性氣體之氣體洩漏,且呈現高的離子傳導性,所以被構成為緻密。電解質層B的緻密度以90%以上為佳,95%以上為更佳,98%以上又更佳。電解質層B為均勻的層的場合,其緻密度以95%以上為佳,98%以上為更佳。此外,電解質層B,被構成為複數之層狀的場合,其中至少一部分含有致密度98%以上之層(緻密電解質層)為佳,包含99%以上之層(緻密電解質層)更佳。如此緻密電解質層包含於電解質層之一部分的話,即使電解質層被構成為複數層狀的場合,也容易形成緻密且氣密性及氣體障壁性高的電解質層。

【0089】

(反應防止層)

反應防止層z,可以在電解質層B之上以薄層的狀態形成。薄層的場合,可以使其厚度為例如1 μ m~100 μ m程

度，較佳為 $2\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ 程度，更佳為 $3\mu\text{m}\sim 15\mu\text{m}$ 程度。使成為這樣的厚度，可以減低昂貴的反應防止層材料的使用量而謀求降低成本，同時可以確保充分的性能。作為反應防止層z之材料，只要是防止電解質層B的成分與陰極電極層C的成分之間的反應之材料即可，例如使用氧化銻系材料等。此外，作為反應防止層z的材料，適切地使用由Sm、Gd及Y構成的群所選擇的元素之中至少含有1種的材料。又，由Sm、Gd及Y構成的群所選擇的元素之中至少含有1種，這些元素的含有率合計為1.0質量%以上10質量%以下為佳。藉由把反應防止層z導入電解質層B與陰極電極層C之間，有效果的抑制陰極電極層C的構成材料與電解質層B的構成材料之反應(擴散抑制)，可以提高燃料電池胞R的性能的長期安定性。反應防止層z的形成，適當使用可以在 1100°C 以下的處理溫度下形成的方法來進行的話，可以抑制金屬支撐體1的損傷，此外可以抑制金屬支撐體1與陽極電極層A之元素相互擴散，可實現性能/耐久性優異的燃料電池胞R，所以較佳。例如，可以適宜使用藉由低溫燒成法(例如不超越 1100°C 的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)，噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)PVD法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等)，CVD法等來進行。特別是使用低溫燒成法或噴塗法等的話，可以實現低成本的元件所以較佳。進而，使用低溫燒成法的話，原料的操作變得容易所以更

佳。

【0090】

(陰極電極層)

對陰極電極層C，能夠在電解質層B或者反應防止層z之上以薄層的狀態形成。薄層的場合，可以使其厚度為例如 $1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 程度，較佳為 $5\mu\text{m} \sim 50\mu\text{m}$ 。使成為這樣的厚度，可以減低昂貴的陰極電極層材料的使用量而謀求降低成本，同時可以確保充分的電極性能。作為陰極電極層C的材料，例如可以使用LSCF、LSM等複合氧化物，氧化鈾系氧化物及這些的混合物。特別是陰極電極層C以含有由La、Sr、Sm、Mn、Co及Fe構成的群所選擇的2種以上的元素之鈣鈦礦(perovskite)型氧化物為佳。使用以上的材料構成的陰極電極層C，作為陰極發揮機能。

【0091】又，陰極電極層C的形成，適當使用可以在 1100°C 以下的處理溫度下形成的方法來進行的話，可以抑制金屬支撐體1的損傷，此外可以抑制金屬支撐體1與陽極電極層A之元素相互擴散，可實現性能/耐久性優異的燃料電池胞R，所以較佳。例如，可以適宜使用藉由低溫燒成法(例如不超越 1100°C 的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)，噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)PVD法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等)，CVD法等來進行。特別是使用低溫燒成法或噴塗法等的話，可以實現低成本的元件所以較佳。進而，使用低

溫燒成法的話，原料的操作變得容易所以更佳。

【0092】在燃料電池單胞單元U，確保著金屬支撐體1與陽極電極層A之間的電氣傳導性。此外，因應於必要，於金屬支撐體1表面的必要部分形成絕緣覆膜亦可。

【0093】

<在燃料電池胞之發電>

燃料電池胞R，接受含氫的還原形氣體及含氧的氧化性氣體雙方之供給而發電。如此藉著兩氣體被供給至燃料電池胞R的各電極層(陽極電極層A及陰極電極層C)，如圖6所示，於陰極電極層C氧分子 O_2 與電子 e^- 反應生成氧離子。該氧離子 O^{2-} 通過電解質層B往陽極電極層A移動。於陽極電極層A，發電用燃料氣體之氫 H_2 及一氧化碳CO分別與氧離子 O^{2-} 反應，產生水蒸氣 H_2O 、二氧化碳 CO_2 與電子 e^- 。藉由以上的反應，在陽極電極層A與陰極電極層C之間產生起電力，進行發電。此發電原理，在第2實施型態也相同(參照圖11)。

【0094】以下，關於還原性氣體及氧化性氣體的供給構造進行說明，同時說明關於本發明獨特的內部改質之構成。

【0095】如圖3所示，燃料電池單胞單元U，被構成具備作為金屬隔板之有突起集電板3。此有突起集電板3，如圖4(a)所示，為金屬製的圓盤形狀之板，具有含1個以上凹部或凸部的凹凸構造部位3a，面對金屬支撐體1的背側1f配置，對金屬支撐體1透過接合部位W接合。凹凸構造部

位 3a，在複數燃料電池單胞單元 U 被層積時，被連接於其他燃料電池單胞單元 U 的陰極電極層 C。亦即，此有突起集電板 3，被電氣接續至金屬支撐板 1，進而至陽極電極層 A。於此有突起集電板 3，在其表背間氣體不流通。如後所述，有突起集電板 3 的金屬支撐體 1 側(換句話說，陽極電極層 A 側)，為到目前為止說明的還原性氣體供給路徑 L1，其背側(離開金屬支撐體 1 之側)，為到目前為止說明的氧化性氣體供給路徑 L2。

【0096】以下，說明這些氣體的供給/排出。

於燃料電池單胞單元 U，具備氣體供給管 2。

【0097】氣體供給管 2，分別將還原性氣體及氧化性氣體，供給至被形成於有突起集電板 3 的上下之空間(分別為流至徑向外側的供給路徑)。氣體供給管 2，為金屬製的圓筒形狀的構件，以其中心軸 Z 與金屬支撐體 1 的中心軸 Z 一致的狀態，被插入金屬支撐體 1 的開口部 1b，藉由熔接固定。此外，金屬支撐體 1 對氣體供給管 2 挾著密封材被彈推亦可。作為氣體供給管 2 的材料，可以使用與前述的金屬支撐體 1 同樣的材料。此外，於氣體供給管 2 的表面，形成與金屬支撐體 1 同樣的擴散防止膜的話，可抑制 Cr 飛散，為適宜的。

【0098】又，氣體供給管 2，只要具有構成燃料電池單胞單元 U 及後述的燃料電池模組 M 的充分的強度即可。此外，於氣體供給管 2，可以使用燒結金屬或發泡金屬等，但在此場合只要以氣體不透過的方式施以表面塗層等

處理即可。

【0099】氣體供給管2，於其內側與中心軸Z平行地被配置隔開壁2a，被隔為第1流道2b與第2流道2c。第1流道2b與第2流道2c，以分別可以通流不同的氣體的方式，作為相互氣體不通流的型態。

【0100】於氣體供給管2，被形成貫通內側與外側的第1通流孔2d與第2通流孔2e。第1通流孔2d，連接金屬支撐體1與有突起集電板3之間的空間(成為本發明的還原性氣體供給路徑L1)與第1流道2b，在兩者間氣體的通流為可能。第2通流孔2e，連接對有突起集電板3為與金屬支撐體1相反側的空間(成為本發明的氧化性氣體供給路徑L2)與第2流道2c，在兩者間氣體的通流為可能。第1通流孔2d與第2通流孔2e，關於沿著氣體供給管2的中心軸Z的方向，被形成於不同的位置，挾著有突起集電板3被形成於兩側。

亦即，在本實施型態，第1流道2b被連接於形成於有突起集電板3的上側之環環性氣體供給流道L1，第2流道2c被連接於形成在有突起集電板3的下側之氧化性氣體供給路徑L2。

【0101】有突起集電板3，如圖4所示那樣，複數之凹圖構造部位3a，被形成為由有突起集電板3的圓盤之面突出往上下方向。凹凸構造部位3a，頂點為平緩的圓錐形狀。

【0102】有突起集電板3，如圖3所示那樣，面對金屬

支撐體1的背側1f配置，對金屬支撐體1透過接合部位W接合。例如，可以把有突起集電板3直接彈推於金屬支撐體1而接合，但在此場合，凹凸構造部位3a的頂點與金屬支撐體1接觸的部分成為接合部位W。此外，於凹凸構造部位3a的頂點，塗布導電性優異的陶瓷糊等形成接合部位W，把有突起集電板3彈推於金屬支撐體1而接合亦可，把金屬毡等挾在有突起集電板3與金屬支撐體1之間把有突起集電板3彈推於金屬支撐體1進行接合亦可。或者，有突起集電板3與金屬支撐體1以凹凸構造部位3a的頂點的一部份或全部，進行焊接形成接合部位W同時進行接合亦可。接著，有突起集電板3以氣體供給管2通過開口部3b的型態被配置。有突起集電板3與氣體供給管2，係於開口部3b的周圍以熔接方式被接合。此外，有突起集電板3對氣體供給管2挾著密封材被彈推亦可。

【0103】作為有突起集電板3的材料，可以使用與前述的金屬支撐體1同樣的材料。此外，於有突起集電板3的表面，形成與金屬支撐體1同樣的擴散防止膜的話，可抑制Cr飛散，為適宜的。以上述方式構成的有突起集電板3，藉由壓機成形可以低成本地製造。又，有突起集電板3，以表側1e與背側1f之間氣體無法通流的方式，以不透過氣體的材料構成。

【0104】由此構造，作為金屬隔板之有突起集電板3，被電氣接續至中介著金屬支撐板1構成燃料電池胞R的陽極電極層A。如後述般，燃料電池單胞單元U被層積，

在形成燃料電池模組M的狀態，有突起集電板3也被電氣連接於陰極電極層C。

【0105】有突起集電板3，只要構築燃料電池單胞單元U及後述的燃料電池模組M時具有充分的強度即可，例如可以使用0.1mm～2mm程度，較佳為0.1mm～1mm程度，更佳為0.1mm～0.5mm程度之厚度者。此外，於有突起集電板3，金屬板以外可以使用燒結金屬或發泡金屬等，但在此場合只要以氣體不透過的方式施以表面塗層等處理即可。

【0106】

<氣體供給>

如到目前為止所說明的，有突起集電板3具有凹凸構造部位3a，凹凸構造部位3a的頂點被接合於金屬支撐體1的背側1f。於此構造，在金屬支撐體1與有突起集電板3之間，被形成對中心軸Z為軸對稱之圓盤狀(甜甜圈型)的空間(還原性氣體供給路徑L1)。於此供給路徑L1，通過氣體供給管2之第1通流孔2d由第1流道2b供給還原性氣體。結果，該還原性氣體，被供給至金屬支撐體1的貫通孔1a，被供給至陽極電極層A。

【0107】此外，同樣地，有突起集電板3的凹凸構造部位3a的頂點，藉著對位於下側的燃料電池單胞單元U的陰極電極層C被接合，形成可以通過氣體供給管2的第2通流孔2e對陰極電極層C供給氣體的空間(氧化性氣體供給路徑L2)。

【0108】以上，係關於相關本發明的燃料電池的基本構成之說明，以下，關於本發明的特徵構成，主要使用圖5、圖6進行說明。

如到目前為止所說明的，在本實施型態，有突起集電板3與金屬支撐體1之間，被形成著對陽極電極層A供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑L1。接著，如在圖5的箭頭所示，流動於此供給路徑L1的氣體，係由位於圓板中心側的氣體供給管2側往徑向外方側之一方向。接著，可以透過貫通金屬支撐體1的表背而設的貫通孔1a，對陽極電極層A供給發電反應用的氫。

【0109】在此，燃料電池胞R內之發電反應，如先前所說明的，伴隨著此反應，由陽極電極層A到貫通孔1a、還原性氣體供給路徑L1，被放出水蒸氣 H_2O 。結果，本發明之還原性氣體供給路徑L1，成為把含氫 H_2 氣體供給至陽極電極層A的供給部，同時也成為水蒸氣 H_2O 的排出目的地。

【0110】在此，在本發明，如圖5、圖6所示，於有突起集電板3的還原性氣體供給路徑L1側之面(金屬支撐體1側之面)，設有內部改質觸媒層D。

如到目前為止所說明的，於還原性氣體供給路徑L1，除了藉由外部改質而得的氫 H_2 以外，成為改質對象的原燃料氣體(改質前氣體：在圖示之例為甲烷 CH_4)流動，但藉由使於陽極電極層A生成的水蒸氣 H_2O 返回還原性氣體供給路徑L1，可以流入此供給路徑L1而改質燃料氣體 CH_4 。

當然，生成的氫 H_2 或一氧化碳 CO ，於下游側透過貫通孔 1a 供給至陽極電極層 A，可以供發電之用。

【0111】作為內部改質觸媒層 D 的材料，例如，能夠使保持了鎳、鈦、鉑等改質觸媒的陶瓷製多孔質粒狀體之多數以可通氣的狀態形成。

又，此內部改質觸媒層 D 含有 Ni 的場合，Ni 的量，可以為 0.1 質量 % 以上 50 質量 % 以下之範圍。又，內部改質觸媒層 D 含有 Ni 的場合之 Ni 含量，以 1 質量 % 以上為佳，5 質量 % 以上為更佳。因為藉著如此，可以得到更高的內部改質性能。此外，內部改質觸媒層 D 含有 Ni 的場合之 Ni 含量，以 45 質量 % 以下更佳，40 質量 % 以下進而更佳。因為藉著如此，可以更為減低燃料電池裝置的成本。此外，把 Ni 擔持於擔體為佳。

又，此內部改質觸媒層 D，以藉由低溫燒成法(例如不在比 $1100^{\circ}C$ 更高的高溫域進行燒成處理而使用在低溫域之燒成處理的濕式法)或是噴塗法(熔射法或氣溶膠沉積法、氣溶膠氣相沉積法、粉末噴射沉積法、微粒噴射沉積法、冷噴塗法等方法)、PVD 法(濺鍍法或脈衝雷射沉積法等)，CVD 法等來形成為較佳。因為藉由這些可在低溫區域使用的製程，可以抑制設置內部改質觸媒層 D 的還原性氣體供給路徑 L1(例如金屬支撐體 1、有突起集電板 3)之高溫加熱導致損傷，同時形成良好的內部改質觸媒層 D，可以實現耐久性優異的燃料電池單胞單元 U 的緣故。此外，於金屬支撐體 1 或有突起集電板 3 的表面形成擴散抑制層 x 之後，

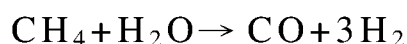
形成內部改質觸媒層D的話，可以抑制Cr由金屬支撐體1或有突起集電板3飛散，所以較佳。

【0112】這樣的內部改質觸媒層D，使其厚度為例如1 μm 以上為佳，2 μm 以上更佳，5 μm 以上進而又更佳。因為藉著使為這樣的厚度，增加與燃料氣體或水蒸氣的接觸面積，可以提高內部改質率的緣故。此外，使其厚度為，例如500 μm 以下為佳，300 μm 以下更佳，100 μm 以下進而又更佳。藉著使為這樣的厚度，可以減低昂貴的內部改質觸媒材料的使用量而可謀求降低成本的緣故。

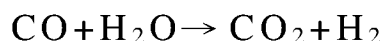
【0113】再度回到圖6，簡單說明關於在此內部改質觸媒層D之水蒸氣改質反應。如同圖所示，藉著在燃料電池單胞單元U設內部改質觸媒層D，使被供給至還原性氣體供給路徑L1的原燃料氣體CH₄如以下所述地改質，可以生成成為發電用燃料氣體的氫H₂、一氧化碳CO。於圖11所示的實施型態，此改質反應也相同。

【0114】

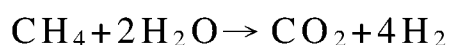
[化學式1]



[化學式2]



[化學式3]



【0115】此還原性氣體供給路徑L1(內部改質觸媒層D)的溫度，事實上為燃料電池胞R的工作溫度之600℃～

900℃。模式顯示到目前為止所說明的第1實施型態之燃料電池單胞單元U之作為燃料電池的機能構成的話，為圖19(a)所示的構造。

【0116】於以上的說明，關於第1實施型態之燃料電池模組M，顯示了其概略。具體說明此實施型態之燃料電池模組M的構造。

【0117】如圖5所示，第1實施型態之燃料電池模組M，係以燃料電池單胞單元U層積複數之狀態構成。亦即，把燃料電池單胞單元U，挾著密合墊6層積複數而構成。密合墊6，被配置於一方的燃料電池單胞單元U之氣體供給管2，與另一方的燃料電池單胞單元U的氣體供給管2之間。接著，密合墊6，使一方的燃料電池單胞單元U之金屬支撐體1、氣體供給管2及有突起集電板3，與另一方的燃料電池單胞單元U的金屬支撐體1、氣體供給管2及有突起集電板3之間電氣絕緣。密合墊6，一起以使通流於氣體供給管2的第1流道2b及第2流道2c的氣體不漏出或不混合的方式，使燃料電池單胞單元U的接續部位(氣體供給管2的接續部位)保持氣密。密合墊6，以可達成以上的電氣絕緣及氣密保持的方式，例如以蛭石或雲母、氧化鋁等為材料來形成。

【0118】接著，如前所述，有突起集電板3，電氣連接一方之燃料電池單胞單元U的金屬支撐體1，與陰極電極層C。亦即，在相關於本實施型態的燃料電池單胞單元U，各燃料電池單胞單元U的燃料電池胞R為電氣串聯連

接。

【0119】針對燃料電池模組M之氣體通流，到目前為止亦已說明。

關於還原性氣體供給路徑L1的構成型態，可為圖4(a)所示的形狀之有突起集電板3，亦可如圖4(b)、圖4(c)那樣。於這些構成，共通的技術要素為只要含有氫的還原氣體(具體為改質前氣體與已改質氣體之混合氣體)及含有氧的氣體之氧化性氣體(具體為空氣)，可以移動至外徑側而作為廢氣被排氣的構成即可。

【0120】於本發明，還原性氣體供給路徑L1，由混合氣體之供給側往排出側流通，對設於其間的複數(多數)貫通孔1a，進行含有氫 H_2 的氣體之往陽極電極層A的流通。接著，藉著使在陽極電極層A生成的水蒸氣 H_2O 回到內部改質觸媒層D進行水蒸氣改質，可以使生成發電用燃料氣體之氫及一氧化碳，由位於下游側的貫通孔1a將包含氫 H_2 的發電用燃料氣體往陽極電極層A供給而進行發電。在此，把這樣的氣體的路徑稱為內部改質燃料供給路徑L3，生成的水蒸氣 H_2O 的排出側稱為排出部L3a，被內部改質的氫 H_2 的供給側稱為供給路徑L3b。此排出部L3a，亦為本發明之水蒸氣供給路徑。又，排出部L3a可以同時擔負作為供給部L3b之機能，供給部L3b也可以同時擔負作為排出部L3a的機能。

【0121】

<第2實施型態>

以下，根據圖式說明相關於2實施型態之此燃料電池裝置Y、燃料電池模組M及燃料電池單胞單元U。

【0122】

<燃料電池裝置>

圖7顯示燃料電池裝置Y的概要。

燃料電池裝置Y，也被構成具備燃料電池模組M，藉由被供給至此燃料電池模組M的含氫的還原性氣體與含氧的氧化性氣體而進行發電動作。

如圖7、圖8所示，燃料電池模組M被構成為概略直方型，被構成為於一筐體10內具備此燃料電池模組M、外部改質器34、氣化器33等。還原性氣體的供給系統所具備的各機器(升壓泵30、脫硫器31、改質水槽32、氣化器33、外部改質器34)的功能與先前說明的第1型態之各個相同。但，外部改質器34及氣化器33位於燃料電池模組M被收納的筐體10內，所以燃料電池模組M的熱被有效利用。

此第2實施型態之燃料電池模組M，於其上部設有含氫的廢氣之燃燒部101，可以在此部位101燃燒含有於燃料電池的廢氣的殘餘燃燒成分(具體為氫、一氧化碳及甲烷)，將該熱利用於水蒸氣改質及氣化。

【0123】關於反相器38、控制部39及熱交換器36的功能，與先前的實施型態相同。

亦即，第2實施型態也同樣，燃料電池裝置Y為可產生/供給電力與熱雙方之所謂的「聯產系統」。

【0124】接著，關於往燃料電池單胞單元U或燃料電

池胞R所具備的各電極層(陽極電極層A及陰極電極層C)之含有氫的還原性氣體的供給、含有氧的氧化性氣體的供給，為此實施型態獨特的構成。

根據圖7、圖11說明其概略，於外部改質器34的下游側設有氣體歧管102，以改質前氣體(原燃料氣體)及已改質氣體，被分配供給至燃料電池單胞單元U具備的還原性氣體供給路徑L1，由此供給路徑L1對陽極電極層A供給含有氫的還原性氣體的方式構成。

另一方面，氧之往氧化性氣體供給路徑L2之供給，係以藉由送風機35把空氣吸引至筐體10內，把包含被吸引的氧的氧化性氣體，透過分別設於燃料電池單胞單元U、集電板CP的氧化性氣體供給路徑L2供給至陰極電極層C的方式構成。此實施型態，燃料電池模組M與外部改質器34之間為燃燒部101，但藉由送風機35吸引的空氣，也被利用於燃燒部101之殘餘的燃料的燃燒。

【0125】如此進行，藉由電池反應、燃燒反應而發生的廢氣被送至熱交換器36，供特定的熱利用之用。在此，設於筐體10的排氣口103的機器103a，為廢氣處理用的機器。

【0126】

<燃料電池模組M>

其次，使用圖8說明燃料電池模組M。

圖8(a)顯示燃料電池模組M的側面圖，(b)顯示其剖面圖((a)之VIII-VIII剖面)。

在此實施型態，燃料電池模組M，係燃料電池單胞單元U複數個層積於橫方向(圖8之左右方向)而構成的。此燃料電池單胞單元U，可以為分別為把具體在先前說明的氣體歧管102立起設置的構造。亦即，藉著把支撐燃料電池胞R的金屬支撐體1立設於氣體歧管102，構築燃料電池模組M。

【0127】在此第2實施型態，金屬支撐體1，被構成具備在其立設方向延伸於上下方向的還原性氣體供給路徑L1的筒狀。另一方面，以被電氣連接於此金屬支撐體1的型態，具備凹凸形狀的集電板CP，藉著集電板CP具有通氣性，使被吸引到燃料電池模組M的周部的氧化性氣體(具體為空氣)到達至燃料電池胞R的陰極電極層C(參照圖11)。

【0128】如圖8(a)及(b)所示，燃料電池模組M，被構成為具備：複數燃料電池單胞單元U、氣體歧管102、集電板CP、終端構件104及電流導出部105。

【0129】燃料電池單胞單元U，被構成於中空之筒之金屬支撐體1的一方之面具備燃料電池胞R，全體為長尺寸的平板或平棒的形狀。接著，燃料電池單胞單元U的長邊方向之一方端部，對於氣體歧管102藉由玻璃密封材等接著構件固定。金屬支撐體1與氣體歧管102之間為電氣絕緣。

【0130】燃料電池胞R，全體被構成為薄膜狀或層狀(在本發明把包含二者的型態稱為「薄層狀」)。即使此實施型態，關於燃料電池胞R具備陽極電極層A、電解質層B

及陰極電極層C而構成這一點沒有改變。關於設先前說明的金屬氧化物層x、中間層y、反應防止層z這點也相同。關於這些擴散抑制層x、y、z顯示於圖11。

在第2實施型態，使複數燃料電池單胞單元U，在一燃料電池單胞單元的金屬支撐體1的背面與其他燃料電池單胞單元U的集電板CP接觸的狀態進行層積，可以取出特定的電氣輸出。

【0131】於集電板CP，使用具有導電性、氣體透過性、在燃料電池單胞單元U的層積並列配置的方向具有彈性的構件。例如於集電板CP，使用用了金屬箔的延展金屬或金屬網目、毡樣構件。藉此，可以使由送風機35供給的空氣透過或通流過集電板CP而供給至燃料電池胞R的陰極電極層C。在本發明，構成燃料電池單胞單元U，通過此集電板CP而含有氧的氣體流通的流道稱為氧化性氣體供給路徑L2(參照圖11)。

【0132】此外，集電板CP於燃料電池單胞單元U的並列配置方向具有彈性，所以被懸臂式地支撐於氣體歧管102的金屬支撐體1於並列配置方向也可以位移，燃料電池模組M對振動或溫度變化等外擾的之穩固性提高。

【0133】被並列配置的複數燃料電池單胞單元U，被挾持於一對終端構件104。終端構件104，為具有導電性可彈性變形的構件，其下端被固定於氣體歧管102。於終端構件104，沿著燃料電池單胞單元U的並列配置的方向朝向外側延伸的電流導出部105被連接著。電流導出部105被連

接於反相器38，把藉由燃料電池胞R的發電而生的電流往反相器38送。

【0134】

<燃料電池單胞單元U>

圖9，10顯示第2實施型態之燃料電池單胞單元U的概略構成。

圖9為此燃料電池單胞單元U的立體圖，圖10顯示單元U的形成程序。

如到目前為止所說明的，燃料電池單胞單元U，被構成具備具有導電性的金屬支撐體1，與燃料電池胞R，燃料電池胞R，在挾著電解質層B的狀態下被構成具有陽極電極層A與陰極電極層C。

【0135】

<金屬支撐體1>

金屬支撐體1，被構成具備長方形的平板構件72、正交於長邊方向的剖面為U字形的U字形構件73、與蓋部74。平板構件72的長邊與U字形構件73的長邊(對應於U字形的2個頂點之邊)被接合，一方端部(在圖示者為上端側)以蓋部74塞住。藉此，被構成於內部具有空間而全體為平板或平棒狀的金屬支撐體1。平板構件72，對金屬支撐體1的中心軸平行地配置。

【0136】金屬支撐體1的內部空間，為到目前為止所說明的還原性氣體供給路徑L1。於蓋部74，設有流通於還原性氣體供給路徑L1的氣體排出至金屬支撐體1的外部的

廢氣排出口 77。此廢氣排出口 77 的排出側(上側)，為先前說明的燃燒部 101。與被設蓋部 74 的端部為相反側(下側，且被連接於先前說明的氣體歧管 102 的部位)的端部為開口，為還原性氣體供給路徑 L1 的入口。

【0137】作為平板構件 72、U 字形構件 73 及蓋部 74 的材料，使用導電性、耐熱性、耐氧化性及耐腐蝕性優異的材料。例如，使用肥粒鐵系不銹鋼、沃斯田鐵系不銹鋼、鎳基合金等。亦即金屬支撐體 1 牢固地構成。特別是適宜使用肥粒鐵系不銹鋼。

【0138】於金屬支撐體 1 使用肥粒鐵系不銹鋼的場合，與在燃料電池胞 R 電化學反應部 43 用於材料的 YSZ(釔安定氧化鋯)或 GDC(釔摻雜氧化鈾，亦稱為 CGO)等熱膨脹係數相近。亦即，低溫與高溫之溫度循環反覆進行的場合，燃料電池單胞單元 U 也不容易受到損傷。因而，可以實現長期耐久性優異的燃料電池胞 R 所以較佳。

【0139】又，作為金屬支撐體 1 的材料，以使用熱傳導率高於 $3\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 的材料為佳，高於的材料進而又更佳。例如不銹鋼的話，熱傳導率為 $15\sim 30\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 程度，所以作為金屬支撐體 1 的材料為適宜。

【0140】此外，作為金屬支撐體 1 的材料，以不發生脆性破壞的高韌性材料為進而又更佳。與陶瓷材料等相比，金屬材料為高韌性，適宜作為金屬支撐體 1。

【0141】如由圖 10 可知，於平板構件 72，貫通平板構件 72 的表面與背面設有複數貫通孔 78。通過此貫通孔 78 在

金屬支撐體 1 的內側與外側之間氣體可以通流。另一方面，平板構件 72 或 U 字形構件 73 之未被設有貫通孔 78 的區域，在金屬支撐體 1 的內側與外側之間氣體無法通流。

【0142】以上，係關於相關本發明的燃料電池的基本構成之說明，以下，關於本發明的特徵構成，主要使用圖 10、圖 11 進行說明。

如到目前為止所說明的，在本實施型態，金屬支撐體 1 內，被形成著陽極電極層 A 之供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑 L1。接著，如在圖 9 的單點虛線箭頭所示，此供給路徑 L1 之氣體，係由位於金屬支撐體 1 的周方向開口側(下側)往周方向蓋體部側(上側)之一方向。可以透過貫通平板構件 72 的表背而設的貫通孔 78，對陽極電極層 A 供給發電反應用的氫 H_2 。在此，燃料電池胞 R 中之發電反應，如先前所說明的，伴隨著此反應，由陽極電極層 A 到貫通孔 78，被放出水蒸氣 H_2O 。結果，本實施型態之貫通孔 78 及還原性氣體供給路徑 L1 的一部份，成為供給含氫 H_2 氣體的供給部 L3b，同時也成為水蒸氣 H_2O 的排出部 L3a。

【0143】在此，如圖 10、圖 11 所示，於平板構件 72 的背面 72b、金屬支撐體 1 的內面 73b，設有內部改質觸媒層 D。

如到目前為止所說明的，於還原性氣體供給路徑 L1，除了藉由外部改質而得的氫以外，成為改質對象的改質前氣體(原燃料氣體，在圖示之例為甲烷 CH_4)流通，但藉由使在於陽極電極層 A 生成的水蒸氣 H_2O 返回內部改質觸媒

層D進行水蒸氣改質，可以由位於下游側(圖11的場合為紙面背側)的貫通孔78把氫 H_2 往陽極電極層A供給而進行發電。在此，把相關於本發明的內部改質燃料供給路徑L3，由生成的水蒸氣 H_2O 的排出部L3a，被內部改質的氫 H_2 的供給部L3b構成這點，與第1實施型態相同。又，排出部L3a可以同時擔負作為供給部L3b之機能，供給部L3b也可以同時擔負作為排出部L3a的機能。此排出部L3a為水蒸氣供給路徑。

【0144】內部改質觸媒層D的材料、其厚度等，與先前說明的相同。

藉由採用這樣的構造，在金屬支撐體1內，利用由陽極電極層A排出的水蒸氣 H_2O ，引起水蒸氣改質，可以把藉由改質得到的氫 H_2 及一氧化碳CO作為發電用燃料氣體供給/利用於陽極電極層A。

第2實施型態之燃料電池單胞單元，事實上為圖19(a)所示的構造。

【0145】

<第3實施型態>

以下，根據圖式說明相關於第3實施型態之此燃料電池裝置Y、燃料電池模組M及燃料電池單胞單元U。

【0146】

<燃料電池裝置>

圖12為顯示燃料電池裝置Y的全體構成之概略圖，分別顯示連接於燃料電池本體的燃料電池模組M之燃料氣體

供給系統FL、氧化性氣體供給系統AL及陽極排氣循環系統RL。

模式顯示於燃料電池模組M內，複數層積而構成此燃料電池模組M之一燃料電池單胞單元U。如到目前為止所說明的，於燃料電池單胞單元U，具備燃料電池胞R。關於這些燃料電池單胞單元U、燃料電池胞R等，與先前說明的第1實施型態的關係，為在第1實施型態金屬支撐體1備形成為圓盤狀，相對於此，在第3實施型態，被形成為基本方形，沿著期長邊方向被形成燃料電池胞R、還原性氣體供給路徑L1、氧化性氣體供給路徑L2。

【0147】此第3實施型態的特徵為以下2點。

1.燃料電池結束起動，因應於電力負荷進行其發電之常態運轉狀態，把透過陽極廢氣循環系統RL循環的水蒸氣使用於改質。

2.於設在燃料電池單胞單元U內的還原性氣體供給路徑L1設內部改質觸媒層D，同時設亂流促進體E。

【0148】燃料電池裝置Y，在此實施型態，也被構成為所謂的聯產系統(熱電共同供給系統)，具有熱交換器36，其係作為利用由燃料電池裝至Y排出的熱的排熱利用部，同時具備反相器38，其係作為供輸出在燃料電池裝置Y備發電的電力之用的輸出變換部。

【0149】控制部39，依照燃料電池裝置Y所要求的電力負荷控制燃料電池裝置Y全體的運作。關於成為控制對象的各機器，進行該機器之說明。往此控制部39的輸入資

訊，為燃料電池裝置Y的開始起動/停止起動資訊以及裝置Y所要求的電力負荷。

【0150】燃料電池裝置Y，被構成具備燃料電池模組M、燃料氣體供給系統FL、氧化性氣體供給系統AL及陽極排氣循環系統RL。燃料氣體供給系統FL，該當於本發明之燃料供給路徑。

【0151】於燃料氣體供給系統FL，具備：升壓泵30、具被脫硫器31之原燃料氣體供給系統FLa、改質水槽32、改質水泵32p及氣化器33、水蒸氣供給系統FLb。

【0152】這些原燃料氣體供給系統FLa及水蒸氣供給系統FLb，採用被合流於陽極廢氣循環系統RL的型態，對下游側所具備的外部改質器34，供給原燃料氣體及水蒸氣。外部改質器34，在其下游側，被連接於形成在構成燃料電池模組M的燃料電池單胞單元U之還原性氣體供給路徑L1。

【0153】升壓泵30，把原燃料氣體之一例之都市瓦斯等碳化氫系氣體升壓，供給至燃料電池裝置Y。此供給型態，配合於燃料電池裝置Y所要求的電力負荷之量的原燃料氣體，依照來自控制部39的指令而供給。

【0154】脫硫器31，除去(脫硫)天然氣等所含有的硫黃化合物成分。

【0155】改質水槽32，為了供給在外部改質器34之水蒸氣改質所必要的水蒸氣，貯留改質水(基本為純水)。供給型態，係僅供給為了得到配合於燃料電池裝置Y所要求

的電力負荷之燃料氣體之依照來自控制部39的指令之量。但，如稍後說明的，在此實施型態的燃料電池裝置Y，在通常的常態運作狀態，包含於陽極廢氣的水蒸氣，用於水蒸氣改質所必要的水蒸氣，所以來自改質水槽32之改質水的供給，及在氣化器33之氣化，於燃料電池裝置Y起動時主要發揮其作用。

【0156】氣化器33，使由改質水槽32所供給的改質水轉變為水蒸氣。外部改質器34，使用以氣化器33產生的水蒸氣，把以脫硫器31脫硫的原燃料氣體進行水蒸氣改質，成為含氫的氣體之改質氣體。但，因在本發明的燃料電池單胞單元U內具備內部改質觸媒層D，所以於此單元U內也進行原燃料氣體的改質。結果，於外部改質器34，原燃料氣體的一部分被改質，餘部直接供給至燃料電池單胞單元U的還原性氣體供給路徑L1。

【0157】於外部改質器34被收納水蒸氣改質觸媒，此種觸媒可以舉出鈳系觸媒、鎳系觸媒。進而，具體而言，可以使用使鈳成分擔持於氧化鋁擔體而得的Ru/Al₂O₃觸媒或者使鎳成分擔持於氧化鋁擔體而得的Ni/Al₂O₃觸媒等。

【0158】接著，以下說明此燃料電池裝置Y因應於電力負荷在繼續地進行發電供作的常態運作狀態之運作動作。

燃料電池為氧化物離子傳導型，所以由設在燃料電池單胞單元U的還原性氣體供給路徑L1排出的廢氣(陽極廢氣)含水蒸氣。在此，採用冷卻此氣體同時凝縮除去多餘

的水分，使調整了水蒸氣分壓的陽極廢氣返回外部改質器34，供水蒸氣改質之用的運作型態。

【0159】亦即，燃料電池裝置Y具備陽極廢氣循環系統RL，於陽極廢氣循環系統RL，具備：冷卻流通於內部的陽極廢氣的冷卻器32a，進而冷卻同時取出其凝縮水調整流通於內部的陽極廢氣的水蒸氣分壓之凝縮器32b，以及使返回外部改質器34的陽極廢氣的溫度上升之加熱器32c。

【0160】藉由採用此構造，使循環泵32d工作，使投入外部改質器34的水蒸氣量，可為根據透過陽極廢氣循環系統RL被循環之氣體者。藉著調整最終段的凝縮器32b之凝縮溫度，可以調整透過陽極廢氣循環系統RL循環的水蒸氣分壓，關於被投入外部改質器34的氣體，可以控制其水蒸氣/碳比(S/C比)。

【0161】此循環型態，係配合燃料電池裝置Y所要求的電力負荷而使原燃料氣體知至少一部分以外部改質器34改質的場合所必要的水蒸氣量，於外部改質器34成為適切的S/C比者，成為依照來自控制部39的指令之工作。

在此之控制對象，為根據循環泵32d的循環量、壓力設定及冷卻最終段的凝縮器32d之凝縮溫度(結果上，為出口水蒸氣分壓)之設定、控制。

【0162】於氧化性氣體供給系統AL設送風機35，在其下游側，被連接於形成在構成燃料電池模組M的燃料電池單胞單元U之氧化性氣體供給路徑L2。送風機35的空氣

吸引量，也配合電力負荷確保在燃料電池使發生發電反應之充分的空氣量，為依照來自控制器39的指令之工作。

【0163】以上，為此第3實施型態之主要在還原性氣體的供給側所下的功夫，但如本發明這樣，於燃料電池單胞單元U內具備內部改質觸媒層D，把藉由內部改質而得的氫或一氧化碳作為電池燃料的構成，藉由發電產生的水蒸氣在水蒸氣改質被消耗，所以包含於先前說明的陽極廢氣的水蒸氣凝縮用鎖具被的凝縮器32b的負荷被減低。結果，對相關於本發明之燃料電池裝置Y，由這點來看也是有利的。

【0164】

設置內部改質觸媒層的位置之檢討

第3實施型態之燃料電池單胞單元U，如圖13，圖14所示那樣，於俯視被形成為實質方形的箱型，還原性氣體及氧化性氣體的流動方向為特定一方向。圖13、圖14之此方向為往圖上右上方的方向。

接著，設置前述內部改質觸媒層D的位置，在此實施型態，如圖14所示那樣，為了把還原性氣體供給至陽極電極層A，以及為了把在陽極電極層A發生的水蒸氣排出至環環性氣體供給路徑L1而設的貫通孔1a，於還原性氣體的流動方向，在與最上游側的貫通孔1a相同的位置，以及比該位置更為下游側的位置，限定內部改質觸媒層D。

藉著由這樣的位置設內部改質觸媒層D，在陽極電極層A發生的水蒸氣，可以有效地依照本發明的目的而使

用。

此第3實施型態之燃料電池單胞單元U，事實上為圖19(b)所示的構造。

【0165】

設亂流促進體的考量

如圖12、13、14所示，於對陽極電極層A供給燃料氣體的還原性氣體供給路徑L1，設有擾亂此路徑內的氣流之亂流促進體E(Ea)。

進而詳言之，對貫通金屬支撐體1形成的貫通孔1a，在與成為該含氫的氣體之還原性氣體的流入側的與燃料電池胞R的形成面相反側之面上設有網狀體Ea。此網狀體Ea具體係把金屬格網或金屬金網張於金屬支撐體1上而形成。結果，流動於還原性氣體供給路徑L1的含氫氣體，藉由此網狀體Ea擾亂，誘發朝向貫通孔1a的氣流方向成分，與由貫通孔1a流出的氣流，良好地引發燃料氣體之往陽極電極層A的供給、由陽極電極層A之水蒸氣導出。

【0166】以上，說明了在相關於本發明的燃料電池單胞單元U內，利用在燃料電池胞R的陽極電極層A生成的水蒸氣H₂O進行內部改質(在燃料電池胞R內的水蒸氣改質)的燃料電池的構造。

【0167】以下，說明伴隨本發明的內部改質運作燃料電池的場合之優點。

圖15顯示實行內部改質的場合與不實行的場合之二者間的燃料電池發電效率的比較，圖16、圖17顯示二者間之

燃料電池胞 R 入口/出口 (具體為還原性氣體供給路徑 L1 的入口/出口) 之含氫及一氧化碳的發電用燃料氣體分壓。圖 18 顯示同樣的入口/出口間之發電用燃料氣體分壓之差。

發電用燃料氣體分壓的記載，以對全氣壓的比率(%) 表示。

進而，發電用燃料氣體分壓之差，如以下所示。

還原性氣體供給路徑入口之發電用燃料氣體分壓比率： R_{in}

$$R_{in} = [\text{發電用燃料氣體的分壓}] / [\text{全氣壓}] \times 100\%$$

還原性氣體供給路徑出口之發電用燃料氣體分壓比率： R_{out}

$$R_{out} = [\text{發電用燃料氣體的分壓}] / [\text{全氣壓}] \times 100\%$$

$$\text{發電用燃料氣體分壓之差} = R_{in} - R_{out} [\%]$$

於這些圖式，黑色四角印，顯示實行相關於本發明的內部改質的場合，空心菱形印對應於不實行內部改質的場合。

【0168】於所有圖式，橫軸為被導入燃料電池的水蒸氣(S)與碳(C)之莫耳比(S/C比)。此 S/C 比，於圖 1、圖 7、圖 12 所式的燃料電池裝置 Y 的構成，為被導入外部改質器 34 的氣體(原燃料氣體與水蒸氣之混合氣體)的 S/C 比，是因應於燃料電池的電力負荷等運作條件而改變的運作參數。S/C 比由 1.5 到 3.0 為止，以 0.5 的間隔改變。此範圍，於燃料電池裝置 Y 的運作，為通常有所改變的範圍。

【0169】以下為其他於檢討時所設定的條件。

燃料電池單胞單元發電電壓	0.8V
燃料電池胞溫度(=內部改質溫度)	700℃
燃料電池綜合燃料利用率	80%

此燃料電池綜合燃料利用效率為藉由燃料電池裝至 Y 之發電反應而消耗的發電用燃料氣體 (H₂+CO)的比率，以下列數式表示。

$$\frac{[\text{藉由發電反應消耗的發電用燃料氣體莫耳數}]}{[\text{供給至燃料電池及在內部改質所生成的發電用燃料氣體的合計}]} \times 100(\%)$$

還原性氣體	氫/一氧化碳	
電解質	氧離子傳導型電解質	
外部改質器平衡溫度	內部改質實行時	700℃
	未實行內部改質時	500℃
製程壓力	120kPa	

此製程壓力，具體為外部改質器 34 及各氣體供給路徑 L1,L2 之氣壓。

【 0170】

檢討結果

<發電效率等>

如由圖 15 亦可知，有內部改質的場合，藉由根據在燃料電池內部發生的水蒸氣之燃料改質增加發電用燃料氣體，增加在燃料利用率一定的條件下之發電量，所以成為

高效率。

有內部改質的場合之外部改質器34的平衡溫度可抑制低到500℃，所以即使S/C比低的場合，也難以發生碳化氫的熱分解(焦化)產生製程或系統的可信賴性提高的優點。

【0171】結果，燃料電池裝置Y設計上，外部改質器34的低溫化與S/C比的減低，可以達成水蒸氣改質反應熱或蒸發熱的供給，或水自主(因應於電力負荷進行發電的運作狀態下，僅使用藉由發電生成的水蒸氣(水)實行水蒸氣改質而得到燃料氣體的運作型態)之用的凝縮器(記載於第3實施型態的陽極廢氣循環路徑RL所具備的凝縮器32b)之傳熱面積的削減，於成本面變得有利。在本次檢討，不實行內部改質的場合S/C比=2.5，實行內部改質的場合S/C比=2.0的話，燃料電池裝置Y的設計上，外部改質器34所必要的熱量可減低60%，發生水蒸氣所必要的氣化器33的傳熱量減低20%，另一方面直流發電效率提高3.6%。

【0172】

<發電用燃料氣體分壓>

如由圖16亦可知，內部改質的有無導致燃料電池胞R入口的發電用燃料氣體的分壓約有1.5~2倍之差，有內部改質者為較低的值。無內部改質的場合，S/C比高的話，分壓變低。因為氫或一氧化碳的生成量增加，會更大幅受到水蒸氣增加的影響。

有內部改質的場合，即使S/C比改變發電用燃料氣體分壓幾乎不變。外部改質器34的溫度低，所以高S/C比導

致的燃料增加與水蒸氣的增加幾乎是平衡的。

【0173】接著，實行內部改質的場合，藉由外部改質器34的低溫化(500℃)燃料電池入口的發電用燃料氣體分壓可以降低，但藉在燃料電池內(700℃)由發生水蒸氣而迅速地發生水蒸氣改質反應，所以在燃料電池出口的發電用燃料氣體分壓變高。電池出口的分壓變高，對廢氣(off-gas)燃燒的安定化有利。

【0174】進而，實行內部改質的場合，藉由使燃料電池出入口的發電用燃料氣體分壓差(濃度差)變小，發電量在燃料電池胞R內的偏在變小，溫度差也縮小，所以藉由燃料電池的熱應力被緩和而提高耐久性或可信賴性。

【0175】

<燃料電池裝置Y的運作>

以上，藉由本案發明人等進行的檢討，到目前為止說明的燃料電池裝置以如下的條件進行運作為較佳。

(1)外部改質器34的入口之水蒸氣/碳比(S/C比)控制在1.5以上3.0以下的範圍。更佳為控制在1.5以上2.5以下的範圍。特別是，如此使外部改質器34以比較低的S/C比(1.5以上2.5以下)運作的場合，藉著使原燃料氣體含有的硫黃濃度為1vol.ppb以下(更佳為0.1vol.ppb以下)，可確保跨長期安定地運作。

(2)使外部改質器34之改質溫度，控制為比設在還原性氣體供給路徑L1的內部改質觸媒層D之溫度更低。

(3)使還原性氣體供給路徑L1的入口之發電用燃料氣

體分壓為全氣壓的50%以下而運作。

亦即，在相同電力負荷下，可以把還原性氣體供給路徑L1的入口之發電用燃料氣體分壓，相對於在以燃料氣體的改質主要在外部改質器34進行的場合(例如，燃料電池裝置Y的起動時)設定的還原性氣體供給路徑L1的入口之發電用燃料氣體分壓，抑制得很低。

(4)使還原性氣體供給路徑L1的入口與出口之發電用燃料氣體分壓比率(對全氣壓之發電用燃料氣體的分壓比率，以百分比表示之比率)之差維持於40%以內而運作。

(5)使藉由外部改質器34改質的燃料氣體的改質率為30%以上60%以下。

【0176】(6)在相同電力負荷下，對於燃料氣體的改質主要以外部改質器34進行的場合(例如，燃料電池裝置Y的起動時)設定的水蒸氣/碳比(S/C比)，可以把外部改質器34的入口之水蒸氣/碳比(S/C比)控制得很低。

【0177】

<其他實施型態>

(1)在前述的第1實施型態，於金屬支撐體1與電解質層B之間配置陽極電極層A，由電解質層B來看與金屬支撐體1相反側配置了陰極電極層C。使陽極電極層A與陰極電極層C相反配置的構成亦為可能。總之，於金屬支撐體1與電解質層B之間配置陰極電極層C，由電解質層B來看與金屬支撐體1相反側配置了陽極電極層A的構成亦為可能。在此場合，使還原性氣體供給路徑L1與氧化性氣體供給路徑

L2的位置關係反轉，如到目前為止所說明的，藉著於還原性氣體供給路徑L1側(在此場合為金屬隔板7的下側)設內部改質觸媒層D，可以達成本發明之目的。

【0178】(2)於前述各實施型態，於金屬支撐體1之上形成單一的燃料電池胞R，但於金屬支撐體1的表側區劃分為複數之燃料電池胞R而配置複數個亦可。

【0179】(3)於到目前為止說明的實施型態，關於內部改質觸媒層D的形成部位，說明了形成於金屬支撐體1的背側1f、及金屬隔板3,7的還原性氣體供給路徑L1側的內面的場合，但內部改質觸媒層D，只要形成於在陽極電極層A生成的水蒸氣流通的部位就可以供內部改質之用，所以設置在設於金屬支撐體1的貫通孔1a之內面亦可。

【0180】(4)關於在前述之外部改質器34的改質，此改質器34進行水蒸氣改質，但於本發明，為了可使外部改質器34的負荷降低，也可以採用水蒸氣改質以外的改質，例如，進行部分燃燒改質或自動熱改質之改質器。

(5)在本發明使用的原燃料氣體，為所謂的碳化氫系燃料，只要改質此原燃料氣體，至少可生成氫即可。

【0181】(6)在前述實施型態使亂流促進體E以網狀體Ea形成，同時張於金屬支撐體1之面的構成，但只要具有使還原性氣體供給路徑L1內的流動在貫通孔1a方向賦予方向的機能即可，配置多數個擾亂還原性氣體供給路徑L1的氣流之障礙體Eb亦可。作為此障礙體Eb，可以為球狀、三角錐狀、柱狀體等任意的形狀。圖20顯示使障礙體Eb為球

狀的場合之例。

【0182】(7)在前述實施型態，說明使內部改質觸媒層D與亂流促進體E為獨立者，例如，於先前說明的網狀體Ea的表面之至少一部分，或者障礙體Eb之至少一部分設內部改質觸媒層D亦可。圖21顯示此例。

亦即，藉著於亂流促進體E的至少一部分(在圖示之例為表面)設內部改質觸媒層D，配置此亂流促進體E，可使發揮亂流促進與內部改質雙方的機能。

【0183】(8)於前述第1實施型態，第2實施型態，顯示於還原性氣體供給路徑L1設內部改質觸媒層D之例。即使於這些實施型態，於還原性氣體供給路徑L1設亂流促進體E亦可。本發明的第2實施型態的場合之構成例顯示於圖22。在此例，形成於筒內的燃料氣體供給路徑L1的內部配置成為亂流促進體之網目Ea(E)，於其外表面也形成內部改質觸媒層D。

【0184】(9)在前述實施型態，顯示使用都市瓦斯(以甲烷為主成分，包含乙烷或丙烷、丁烷等之氣體)等碳化氫系氣體作為原燃料氣體之例，但作為原燃料氣體，也可以使用天然氣、石腦油、煤油等碳化氫類，或是甲醇或乙醇等醇類、DME等醚類等作為原燃料氣體使用。

【0185】又，在前述的實施型態所揭示的構成，在不生矛盾的前提下，可以與在其他實施型態揭示的構成組合而適用，此外，於本說明書揭示的實施型態僅為例示，本發明之實施型態並不以此為限，在不逸脫本發明的目的的

第 108111173 號

範圍內可以適當改變。

【符號說明】

【 0186 】

1：金屬支撐體

1a：貫通孔

1c：表側

1F：背側

1x：流道部位

1y：貫通孔

1z：貫通孔

3：有突起集電板(金屬隔板)

3a：凹凸構造部位

34：外部改質器

38：反相器

72：平板構件

73：U字形構件

78：貫通孔

A：陽極電極層

B：電解質層

C：陰極電極層

CP：集電板

D：內部改質觸媒層

E：亂流促進體

第 108111173 號

L1：還原性氣體供給路徑

L2：氧化性氣體供給路徑

L3：內部改質燃料供給路徑

L3a：排出部(水蒸氣供給路徑/內部改質燃料供給路徑)

L3b：供給部(內部改質燃料供給路徑)

M：燃料電池模組

R：燃料電池胞

U：燃料電池單胞單元

Y：燃料電池裝置

2：氣體供給管

2a：隔開壁

2b：第1流道

2c：第2流道

2d：第1通流孔

2e：第2通流孔

【發明申請專利範圍】

【第1項】

一種燃料電池裝置，其特徵為

被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650°C 以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

具備把外部改質器之改質溫度，控制為比設在前述還原性氣體供給路徑的內部改質觸媒層之溫度更低的控制器；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑。

【第2項】

一種燃料電池裝置，其特徵為

被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650°C 以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的

氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑；

設置控制器，將前述還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓控制成全氣壓的 50% 以下。

【第3項】

一種燃料電池裝置，其特徵為

被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650℃ 以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

具備使藉由前述外部改質器改質的前述原燃料氣體的改質率為 30% 以上 60% 以下的控制部；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑。

【第4項】

如申請專利範圍第1項至第3項中任一項之燃料電池裝置，其中

具有在前述燃料電池胞發生的水蒸氣被供給至前述還原性氣體供給路徑的水蒸氣供給路徑。

【第5項】

如申請專利範圍第1項至第3項中任一項之燃料電池裝置，其中

具備被薄層狀地形成於金屬支撐體上的一個前述燃料電池胞、前述還原性氣體供給路徑、及前述氧化性氣體供給路徑而被構成前述燃料電池單胞單元；

於前述燃料電池單胞單元內具備由原燃料氣體藉由水蒸氣改質反應至少生成氫的內部改質觸媒層；

設置把藉由發電反應發生的水蒸氣由前述陽極電極層排出，導引至前述內部改質觸媒層，同時把在該內部改質觸媒層生成的至少氫導引至前述陽極電極層之內部改質燃料供給路徑。

【第6項】

如申請專利範圍第5項之燃料電池裝置，其中

前述金屬支撐體之與被形成前述燃料電池胞的面不同之面上，被設置前述內部改質觸媒層。

【第7項】

如申請專利範圍第5項之燃料電池裝置，其中設有複數貫通前述金屬支撐體的貫通孔，同時於前述金屬支撐體之一方之面設置前述陽極電極層，沿著另一方之面設置前述還原性氣體供給路徑；

於前述還原性氣體供給路徑的內面之至少一部分設置前述內部改質觸媒層，關於前述還原性氣體供給路徑之流動方向，前述貫通孔發揮作用成為前述內部改質燃料供給路徑。

【第8項】

如申請專利範圍第7項之燃料電池裝置，其中於前述複數貫通孔的至少一個的內部設前述內部改質觸媒層。

【第9項】

如申請專利範圍第1項至第3項中任一項之燃料電池裝置，其中

於前述燃料電池單胞單元，具備隔開前述還原性氣體供給路徑與前述氧化性氣體供給路徑之至少一金屬隔板，

於前述金屬隔板之前述還原性氣體供給路徑側之至少一部分設置前述內部改質觸媒層。

【第10項】

如申請專利範圍第1項至第3項中任一項之燃料電池裝置，其中

含有於前述內部改質觸媒層的改質觸媒係於擔體被擔持金屬之觸媒。

【第 11 項】

如申請專利範圍第 1 項至第 3 項中任一項之燃料電池裝置，其中

含有於前述內部改質觸媒層的改質觸媒係含 Ni 的觸媒。

【第 12 項】

如申請專利範圍第 1 項至第 3 項中任一項之燃料電池裝置，其中

於前述還原性氣體供給路徑，設有擾亂該還原性氣體供給路徑內的氣流之亂流促進體。

【第 13 項】

一種燃料電池裝置之運作方法，

係被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650℃ 以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑之燃料電池裝置之運

作方法，其特徵為

把前述外部改質器之改質溫度，控制為比設在前述還原性氣體供給路徑的內部改質觸媒層之溫度更低。

【第14項】

一種燃料電池裝置之運作方法，

係被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650°C 以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑之燃料電池裝置之運作方法，其特徵為

使前述還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓為全氣壓的50%以下而運作。

【第15項】

一種燃料電池裝置之運作方法，

係被構成具備：挾著電解質層被形成形成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為 650°C 以上的固體

氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑之燃料電池裝置之運作方法，其特徵為

該還原性氣體供給路徑的入口之發電用燃料氣體分壓相對於該入口之全氣壓的比率為入口比率，還原性氣體供給路徑的出口之發電用燃料氣體分壓相對於該出口之全氣壓的比率為出口比率，使以百分比表示之前述入口比率與前述出口比率之差維持於40%以內而運作。

【第16項】

一種燃料電池裝置之運作方法，

係被構成具備：挾著電解質層被形成成為薄層狀的陽極電極層與陰極電極層的工作溫度為650℃以上的固體氧化物型燃料電池胞、對前述陽極電極層供給含有氫的氣體之還原性氣體供給路徑、對前述陰極電極層供給含有氧的氣體之氧化性氣體供給路徑；於前述還原性氣體供給路徑之至少一部分，設具有具備將原燃料氣體進行水蒸氣改

質之改質觸媒的內部改質觸媒層之燃料電池單胞單元；

把具備改質前述原燃料氣體的改質觸媒之外部改質器，設於前述還原性氣體供給路徑之上游且前述燃料電池單胞單元外；

藉由前述外部改質器使一部分被改質之前述原燃料氣體被供給至前述還原性氣體供給路徑之燃料電池裝置之運作方法，其特徵為

使藉由前述外部改質器改質的前述原燃料氣體的改質率為30%以上60%以下。

【第17項】

如申請專利範圍第13項至第16項中任一項之燃料電池裝置之運作方法，其中，

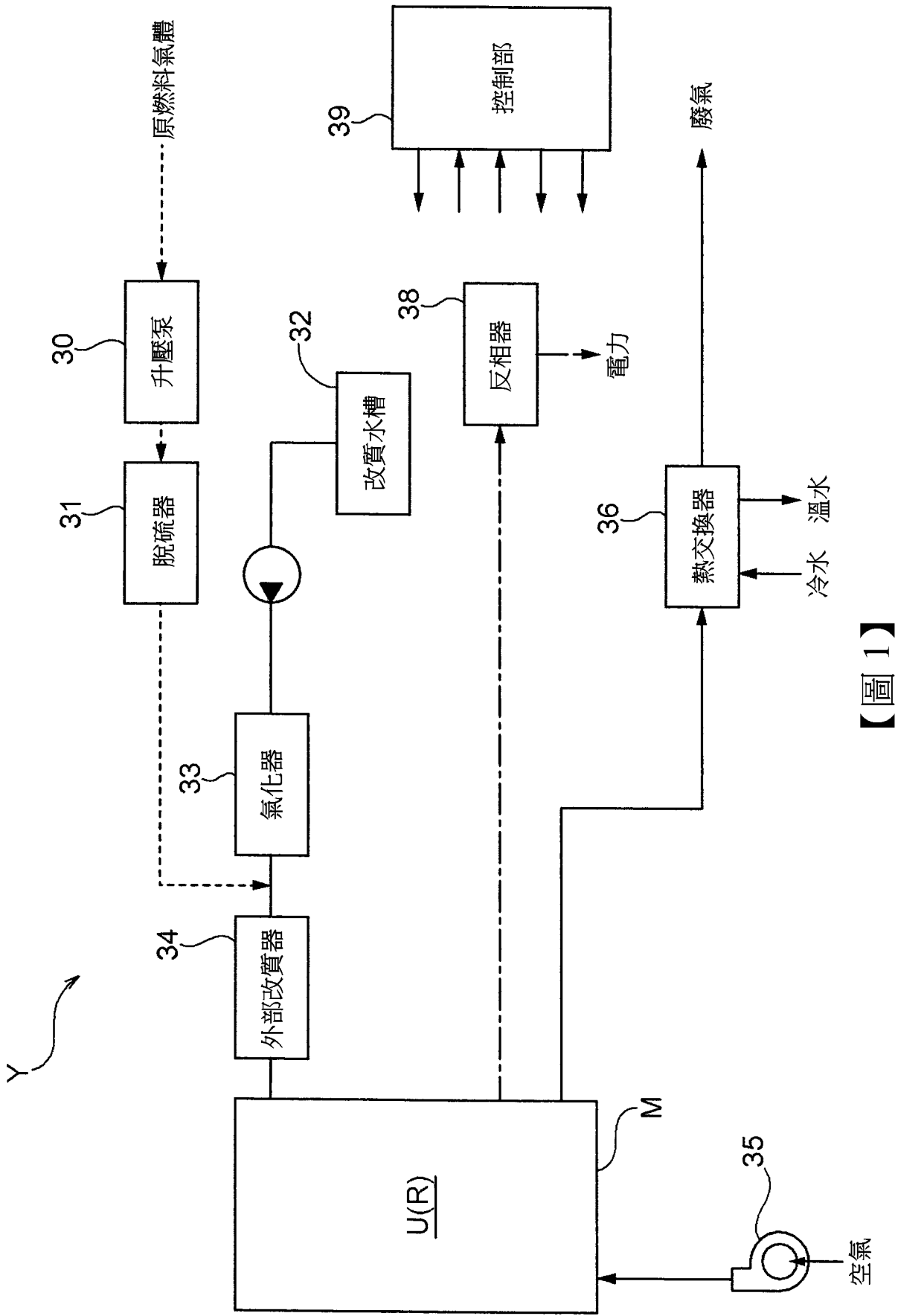
把前述外部改質器的入口之水蒸氣/碳比(S/C比)控制在1.5以上3.0以下的範圍。

【第18項】

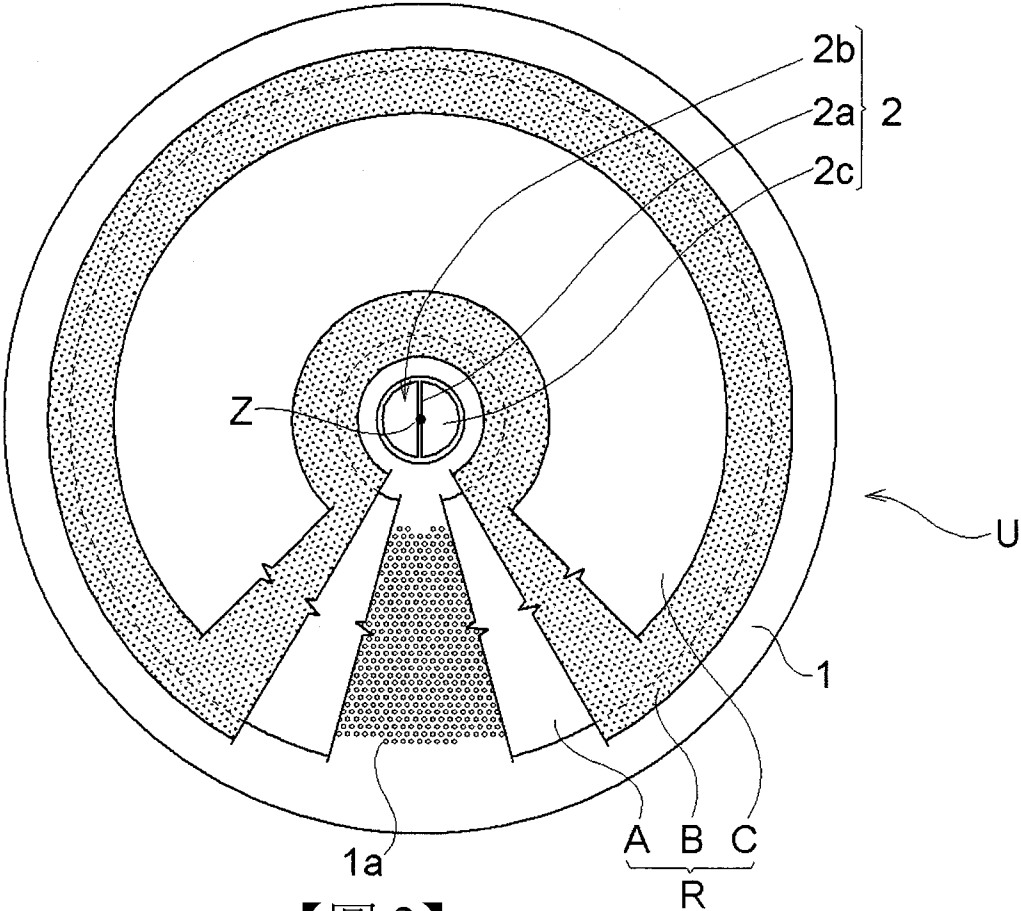
如申請專利範圍第13項至第16項中任一項之燃料電池裝置之運作方法，其中，

使前述原燃料氣體含有的硫黃濃度脫硫至1vol.ppb以下而供給至前述外部改質器。

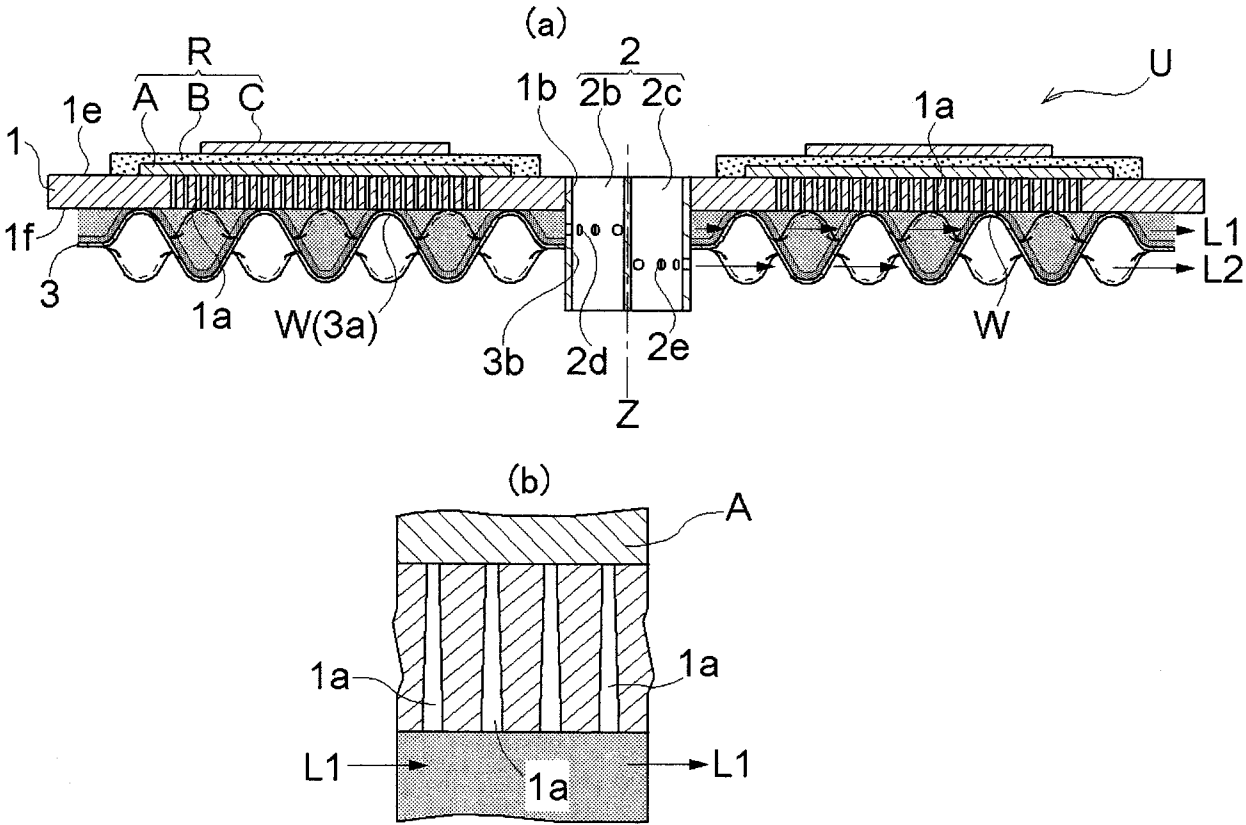
【發明圖式】



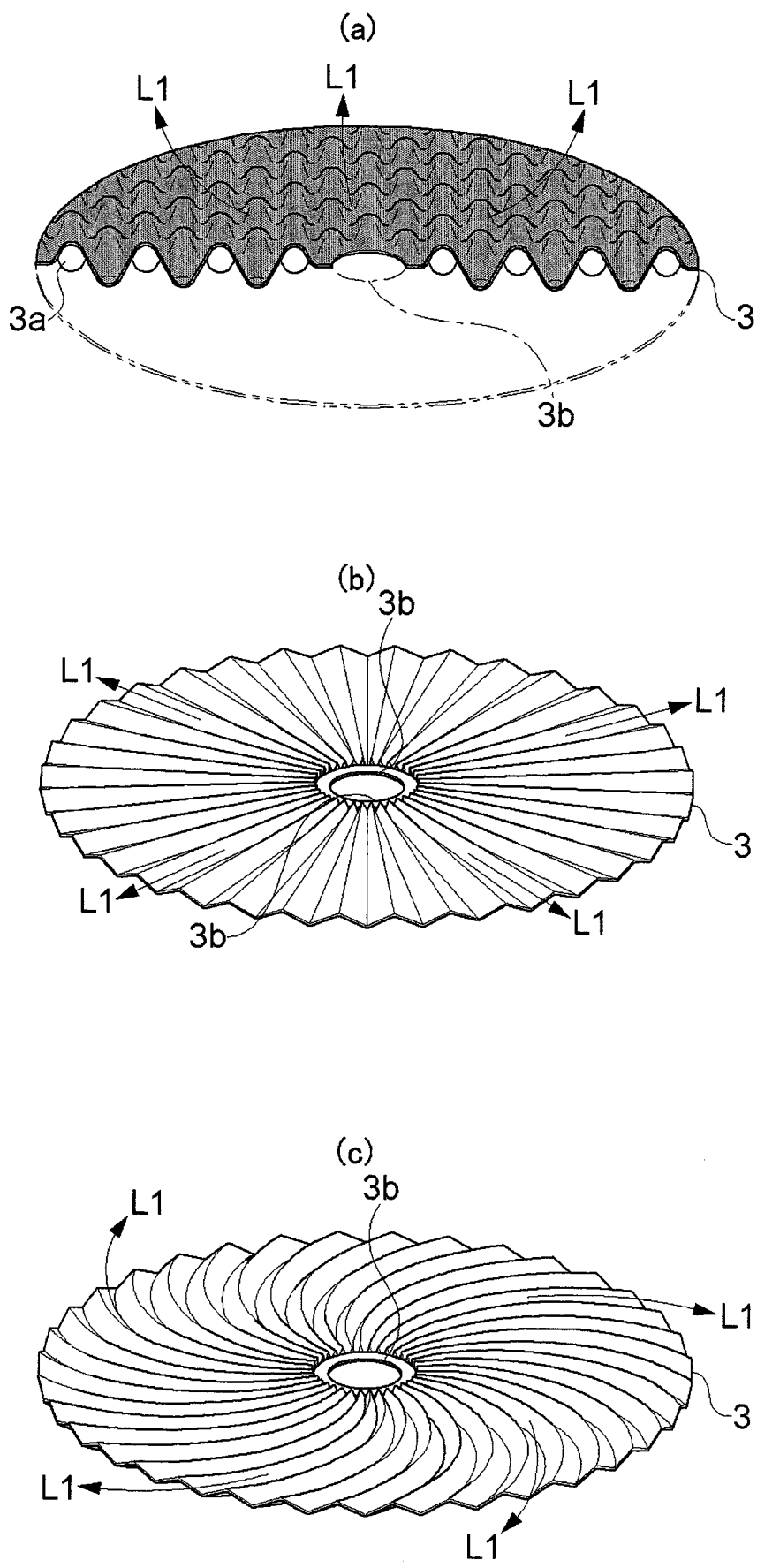
【圖 1】



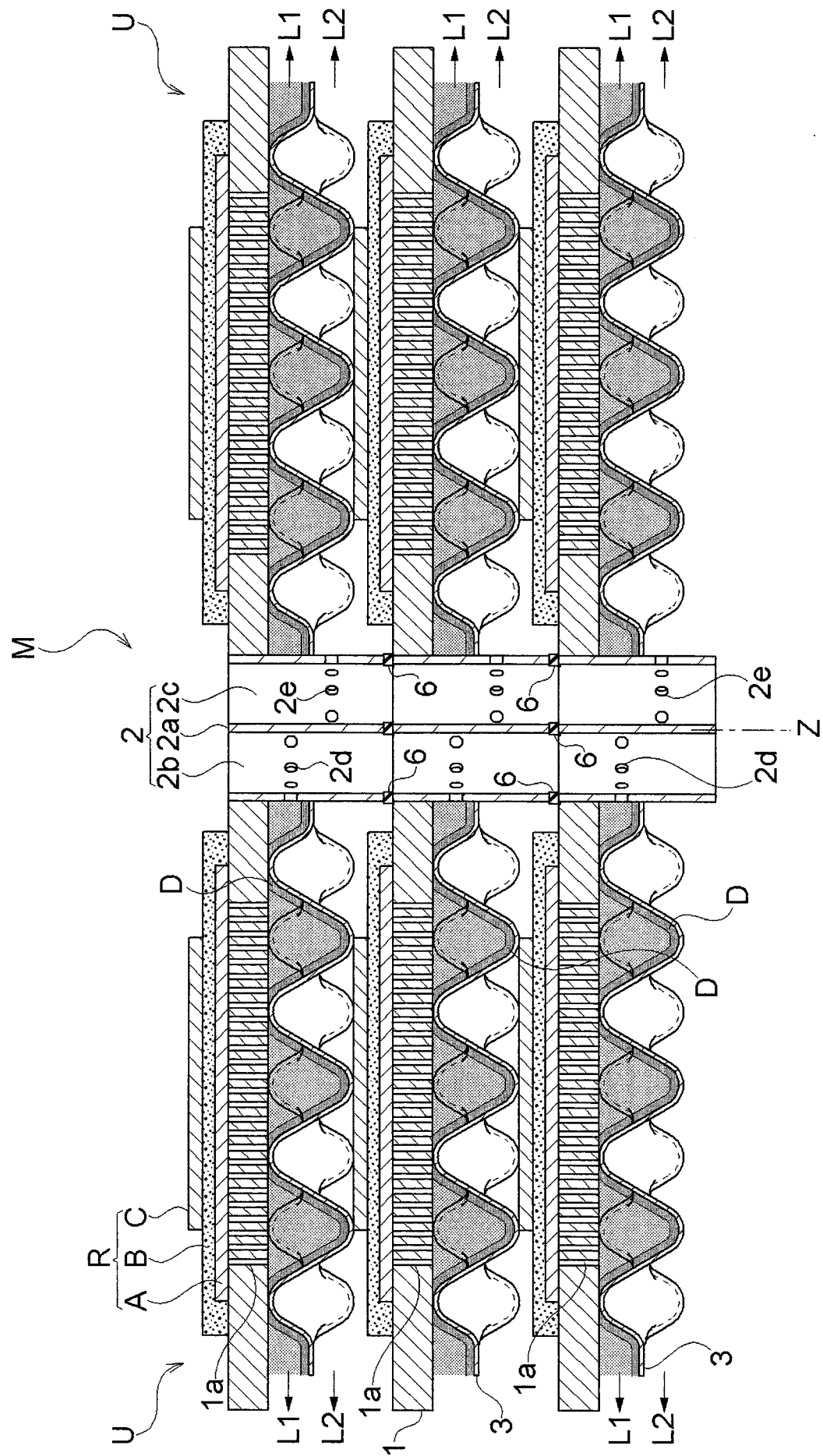
【圖 2】



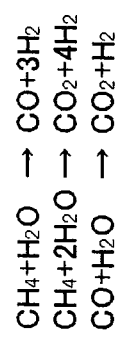
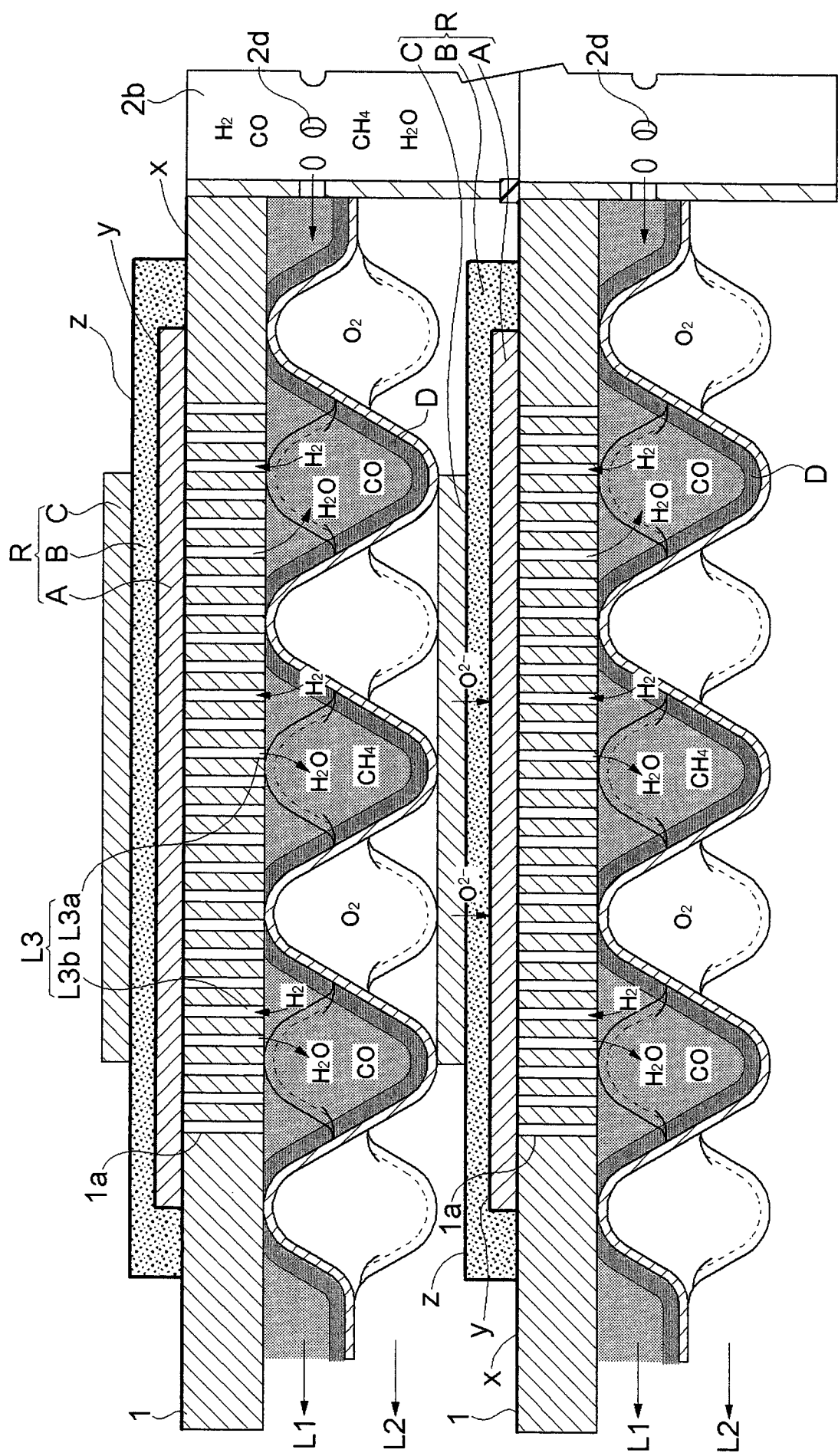
【圖 3】



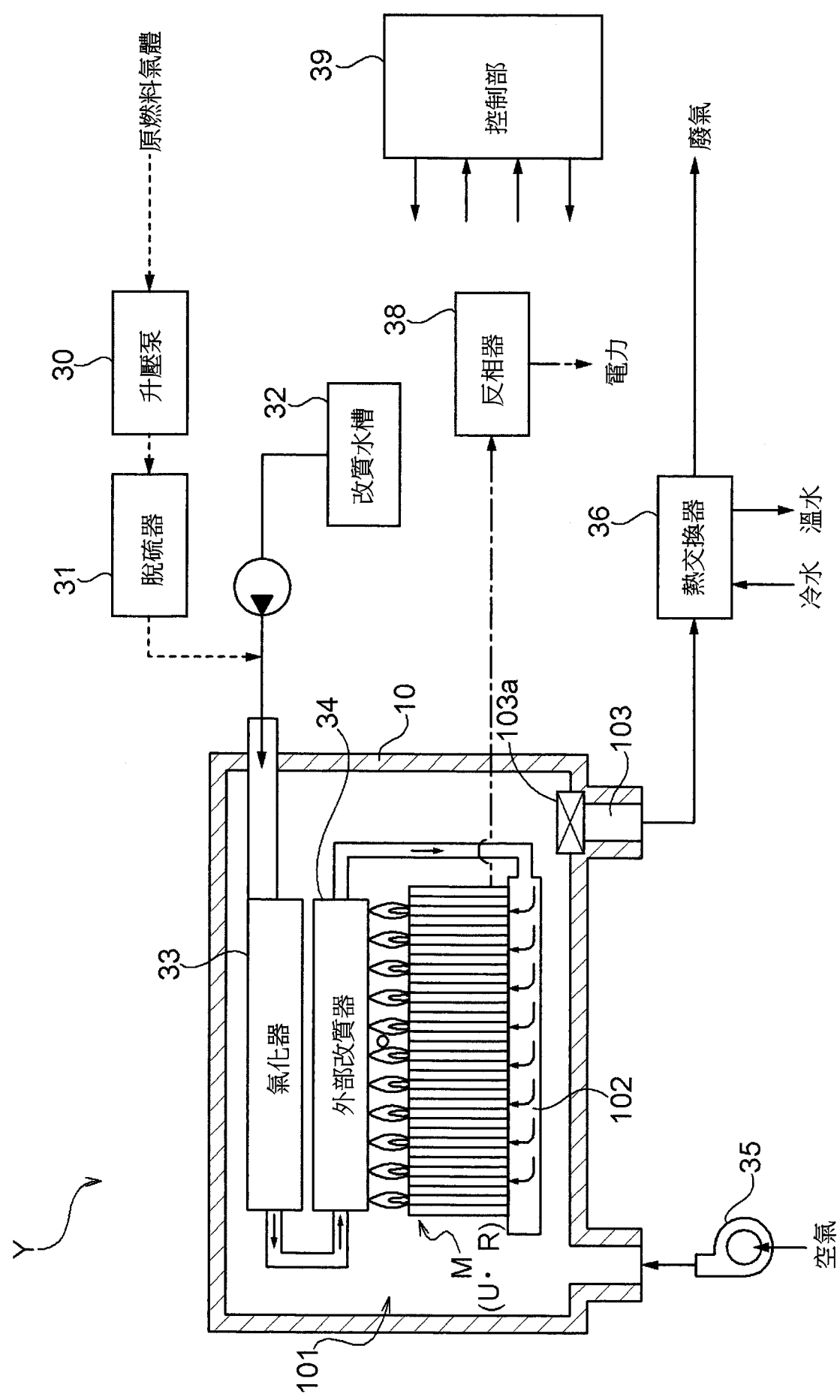
【圖 4】



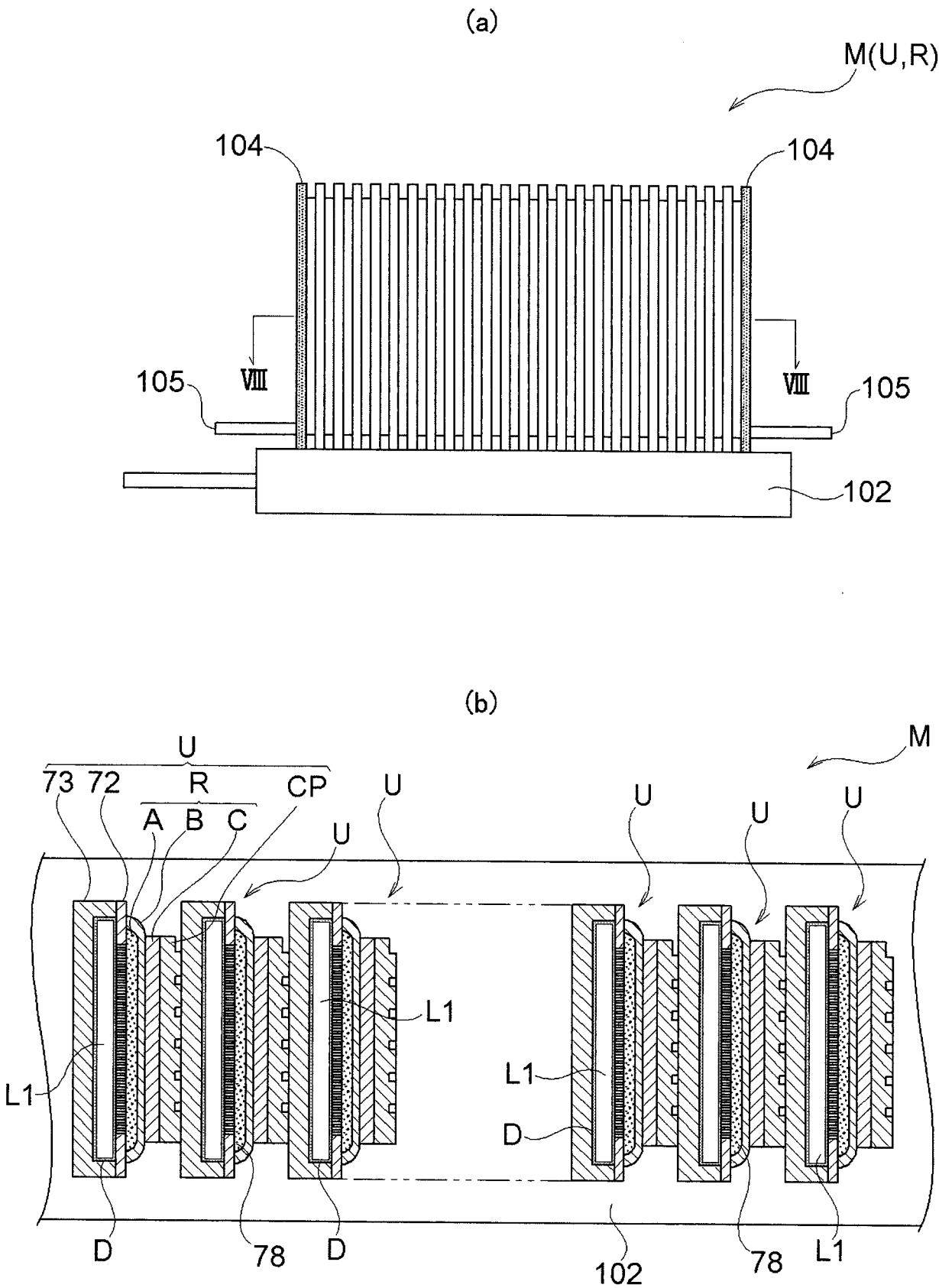
【圖 5】



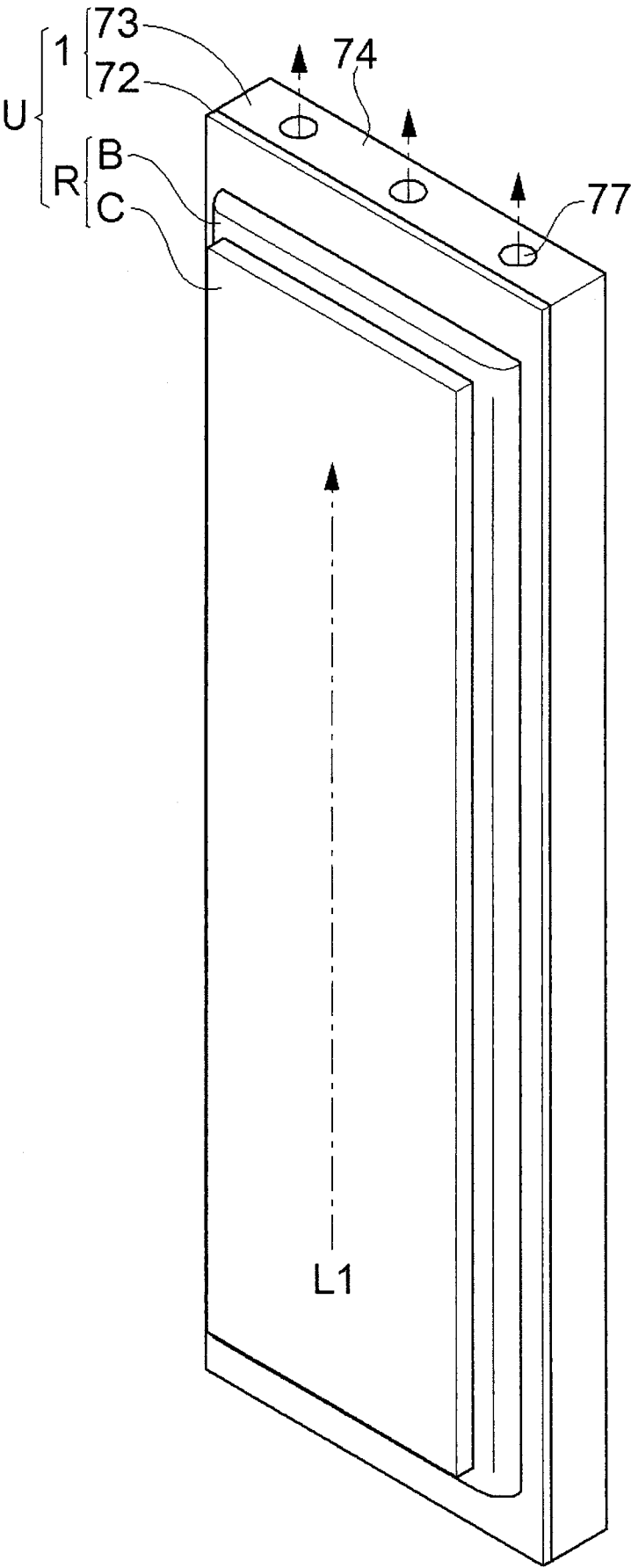
【圖 6】



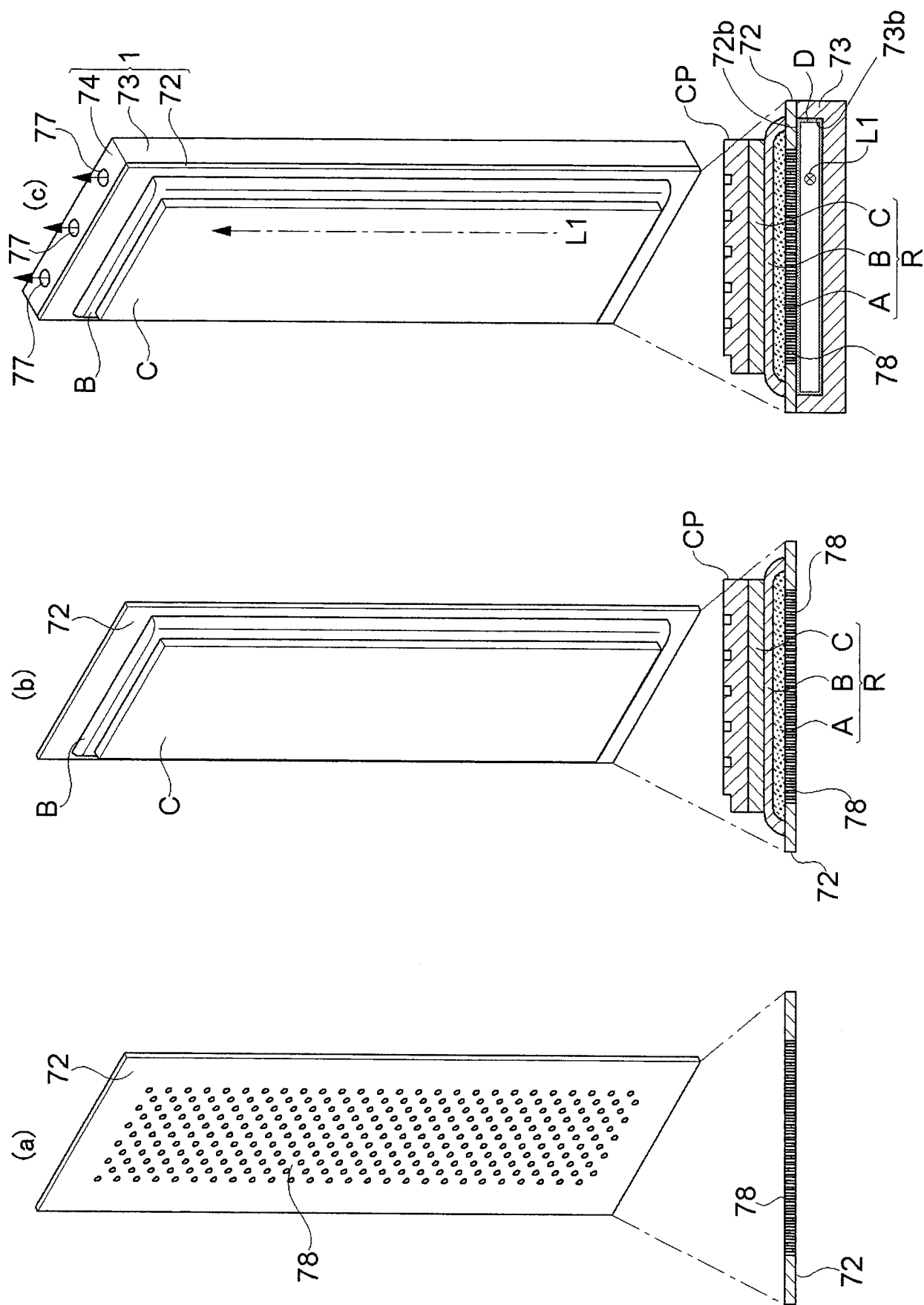
【圖 7】



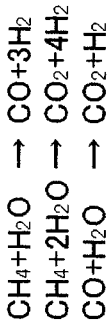
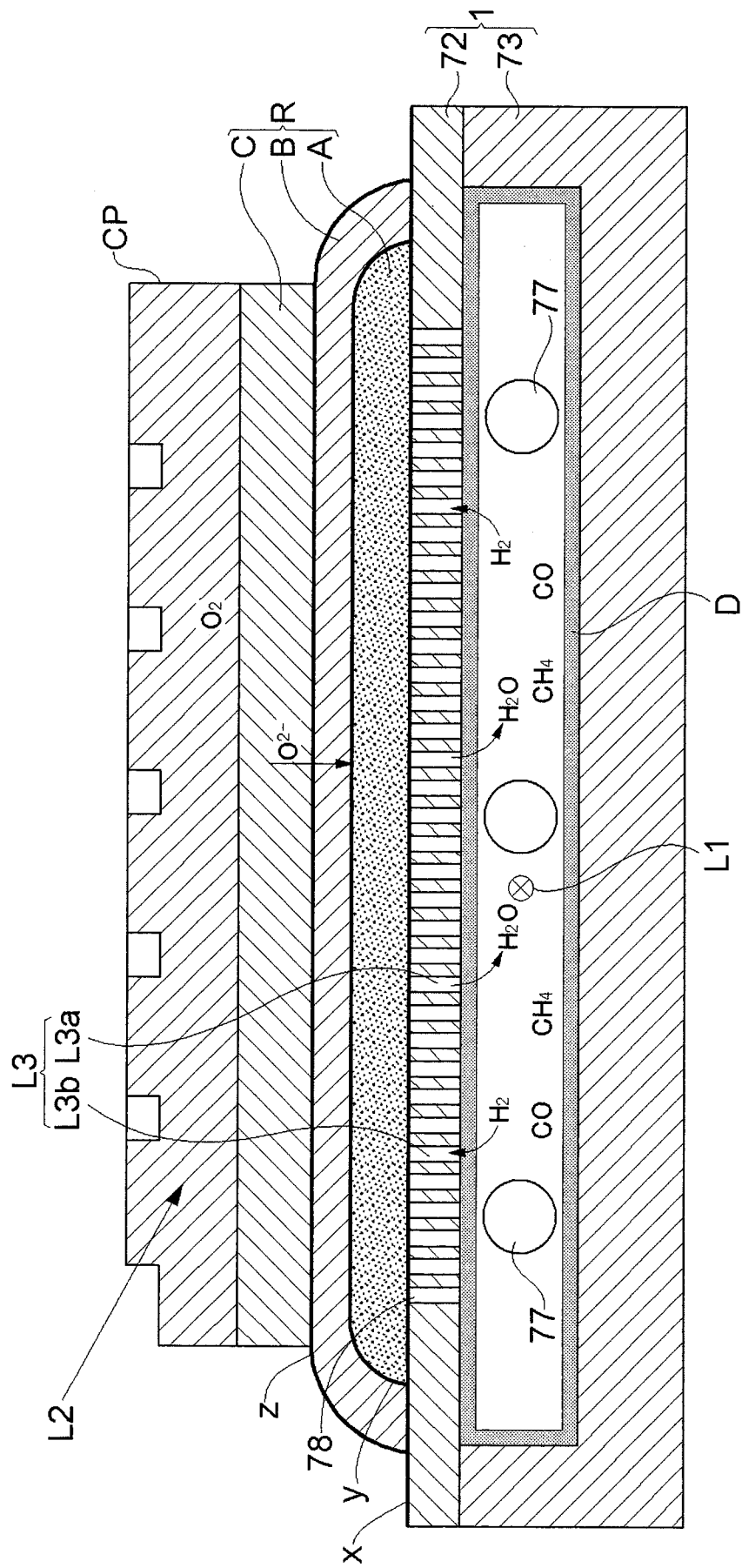
【圖 8】



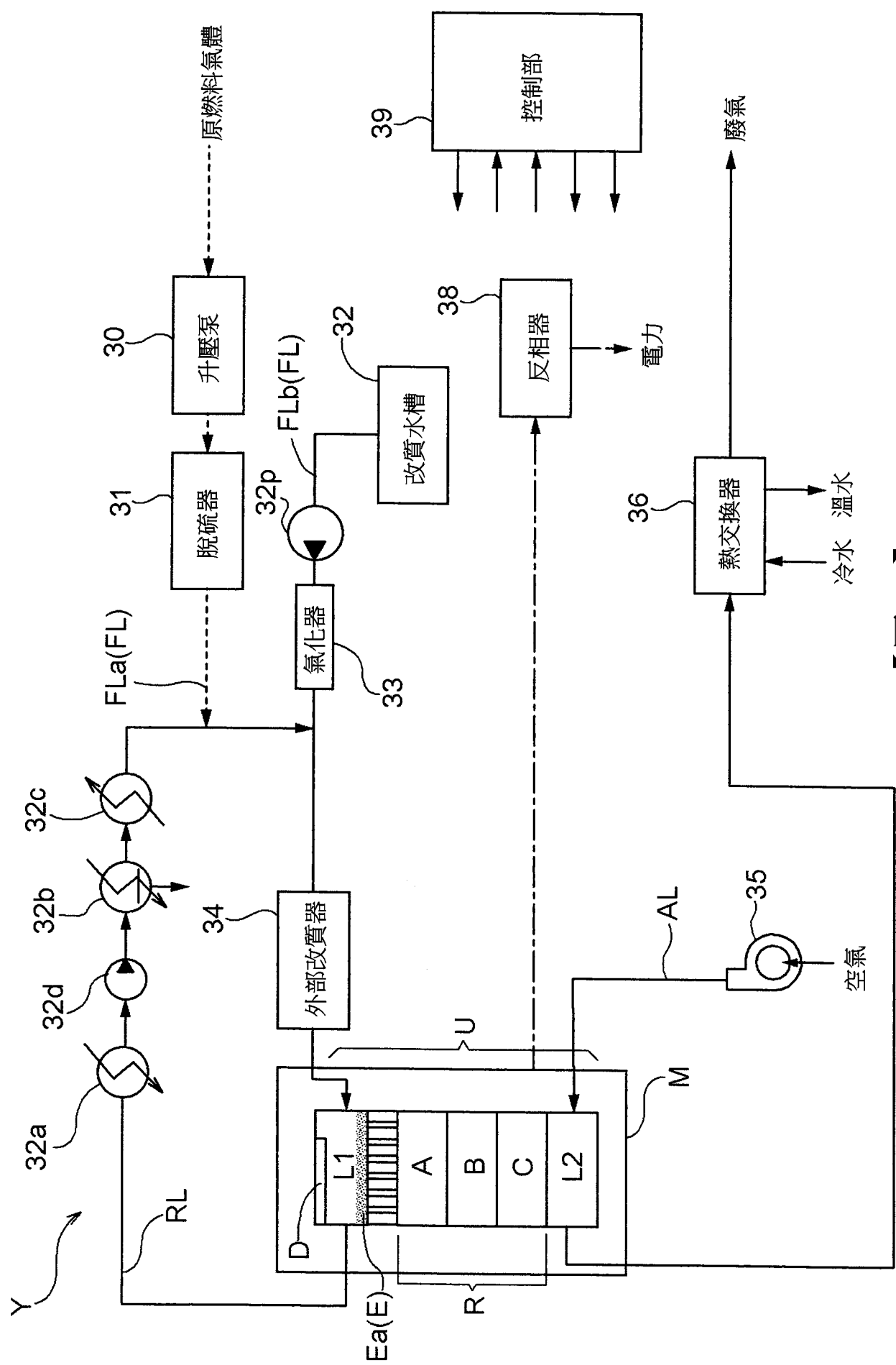
【圖 9】



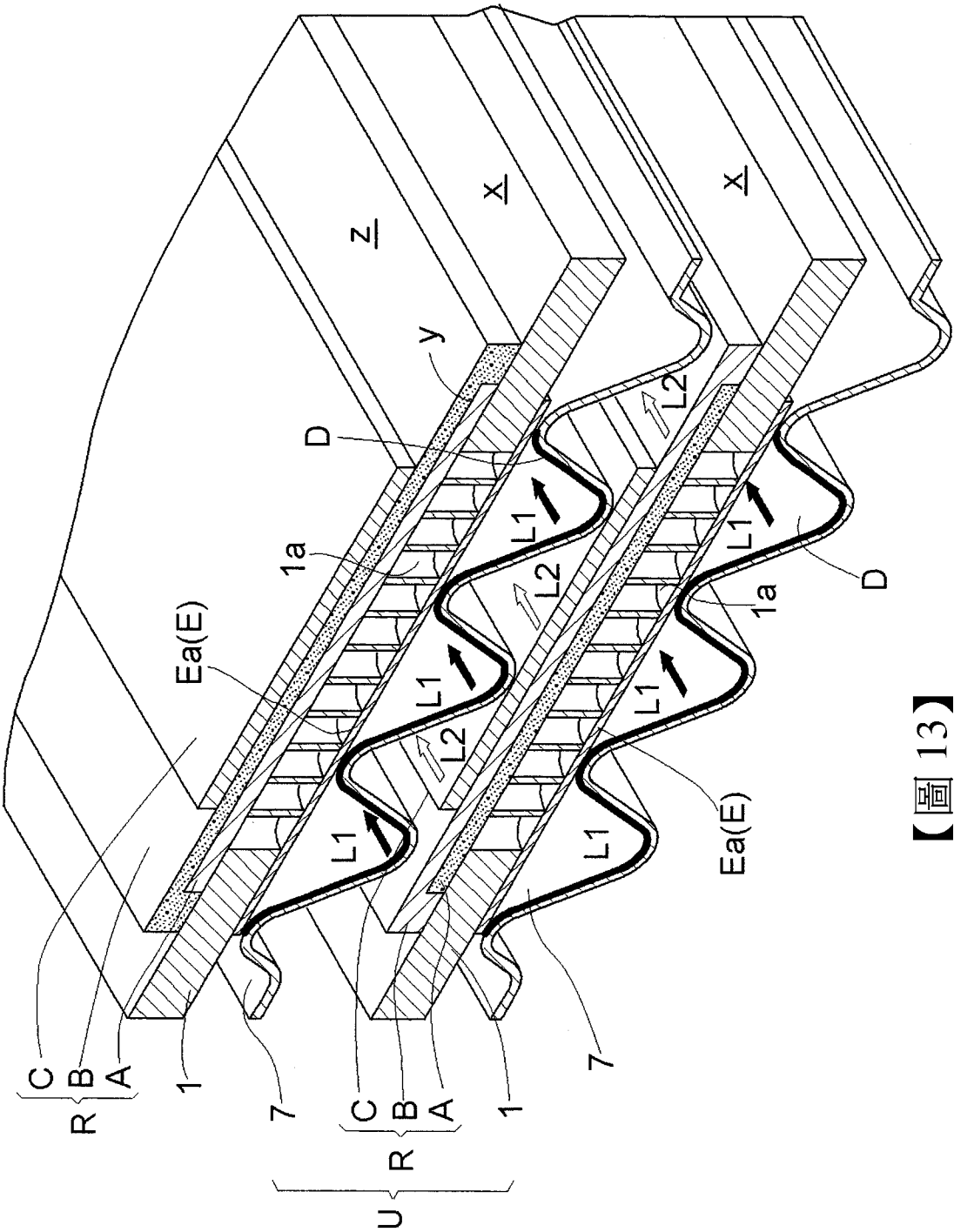
【圖 10】



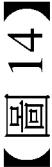
【圖 11】

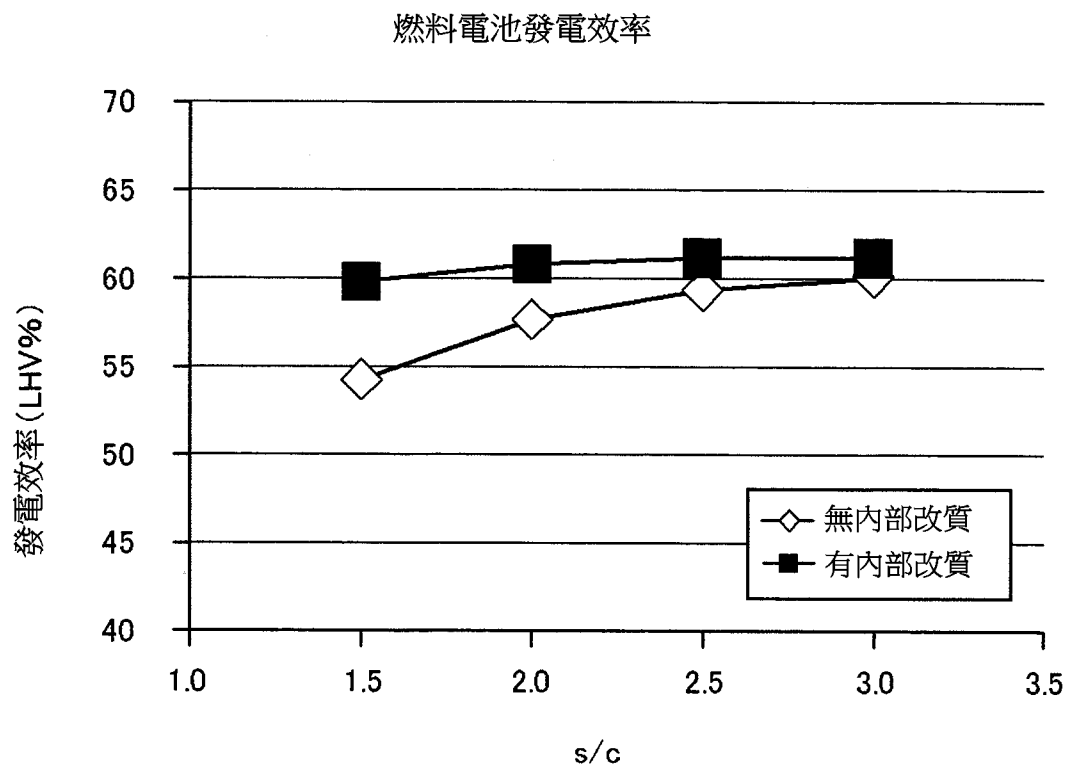


【圖 12】

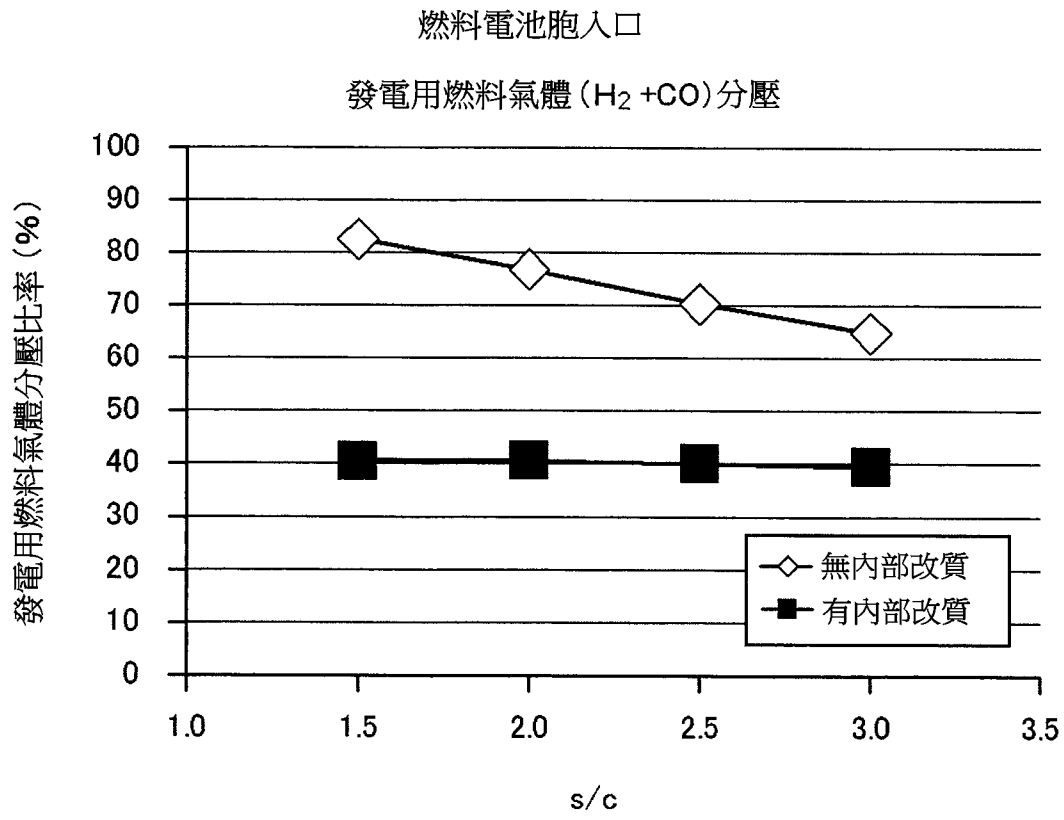


【圖 13】

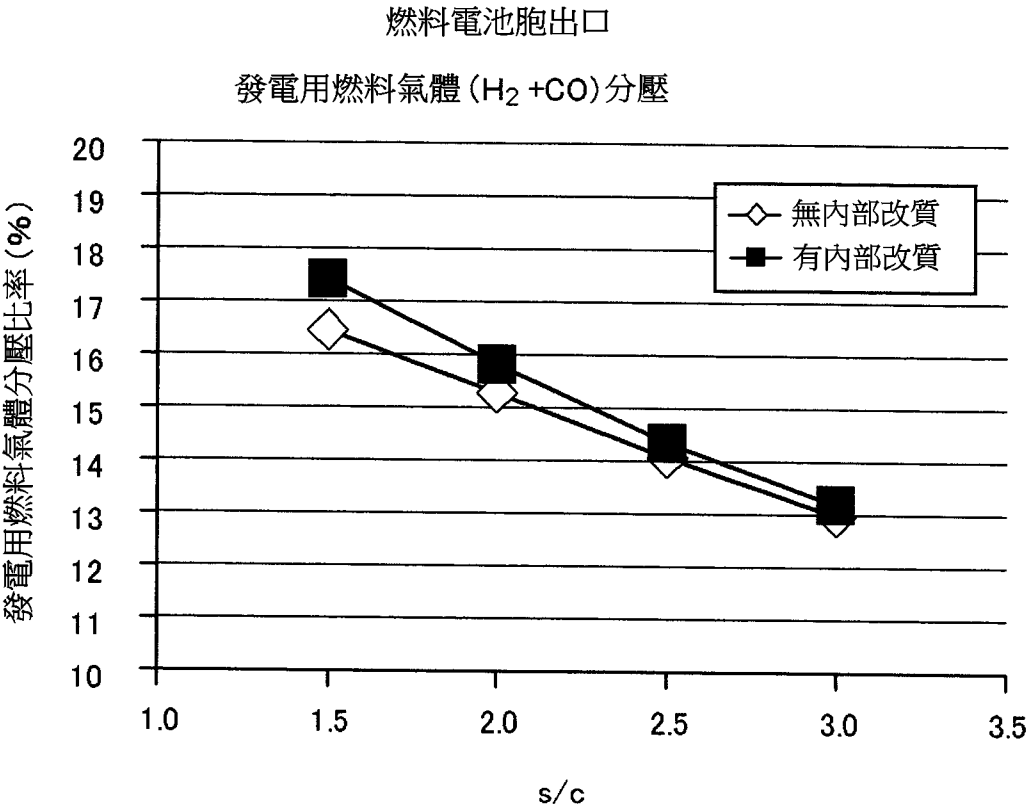




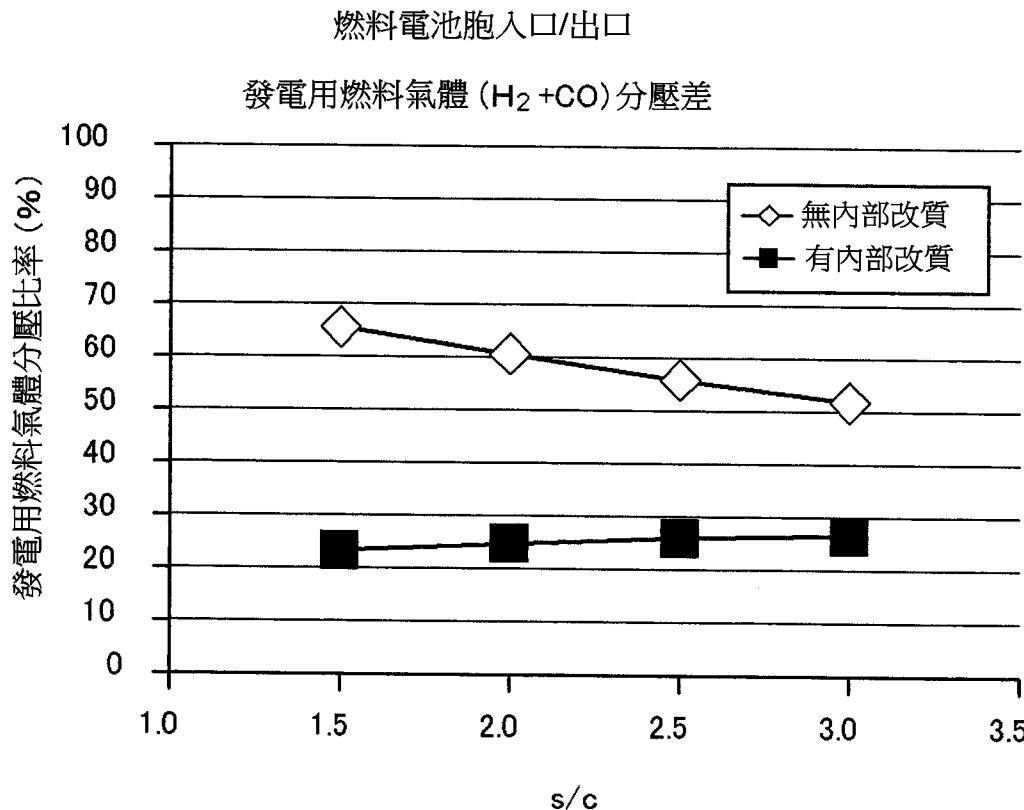
【圖 15】



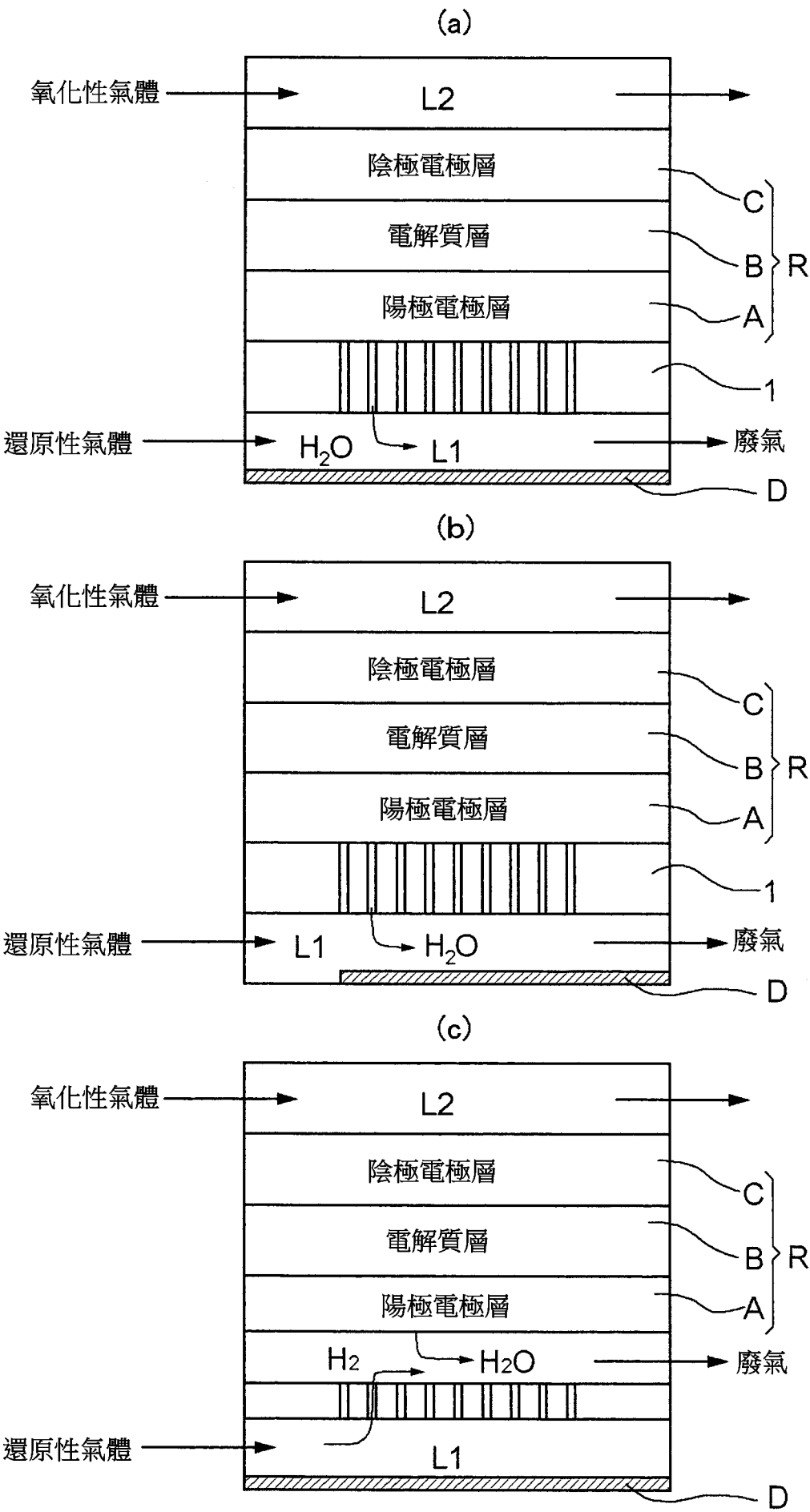
【圖 16】



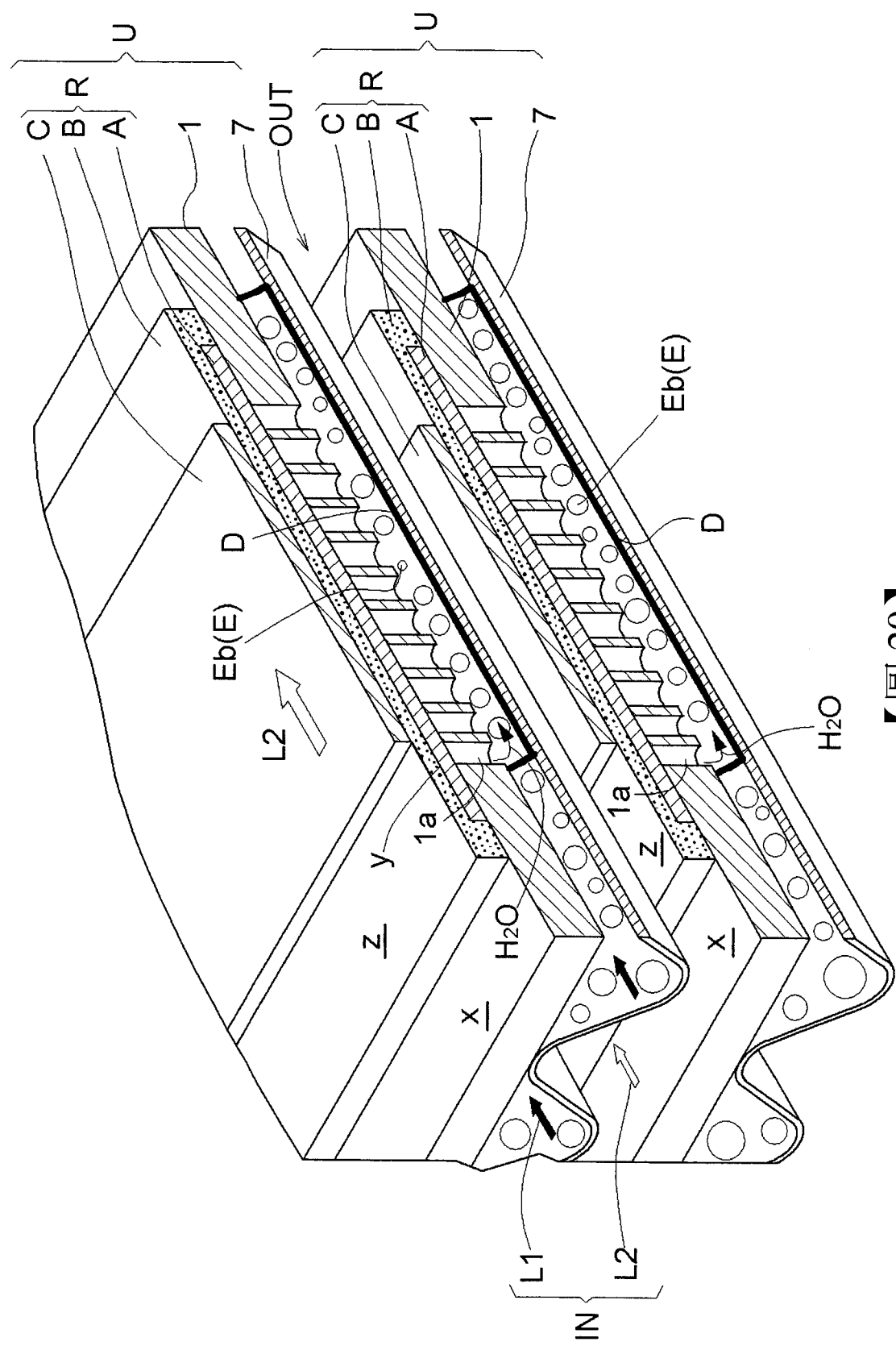
【圖 17】



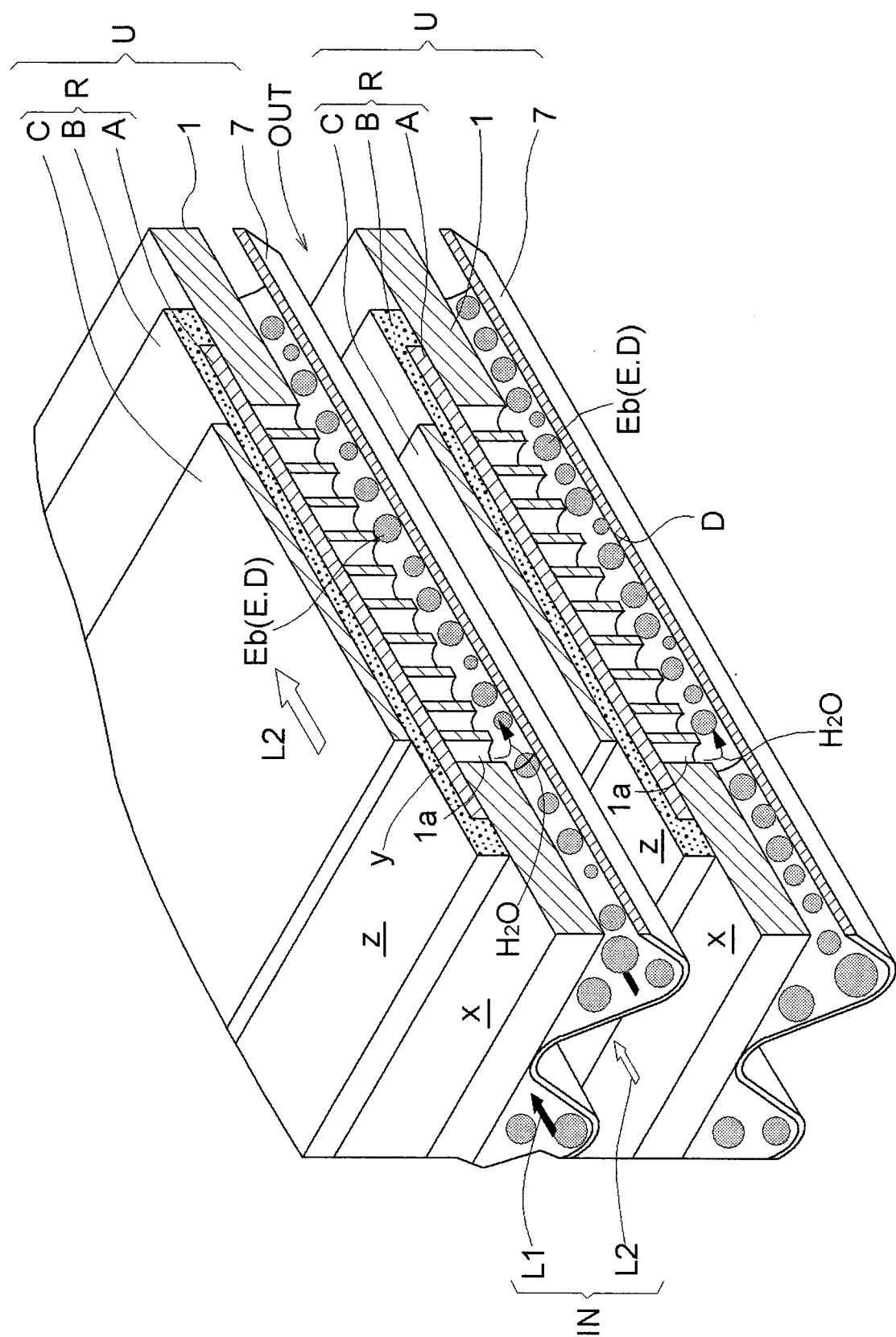
【圖 18】



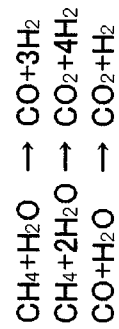
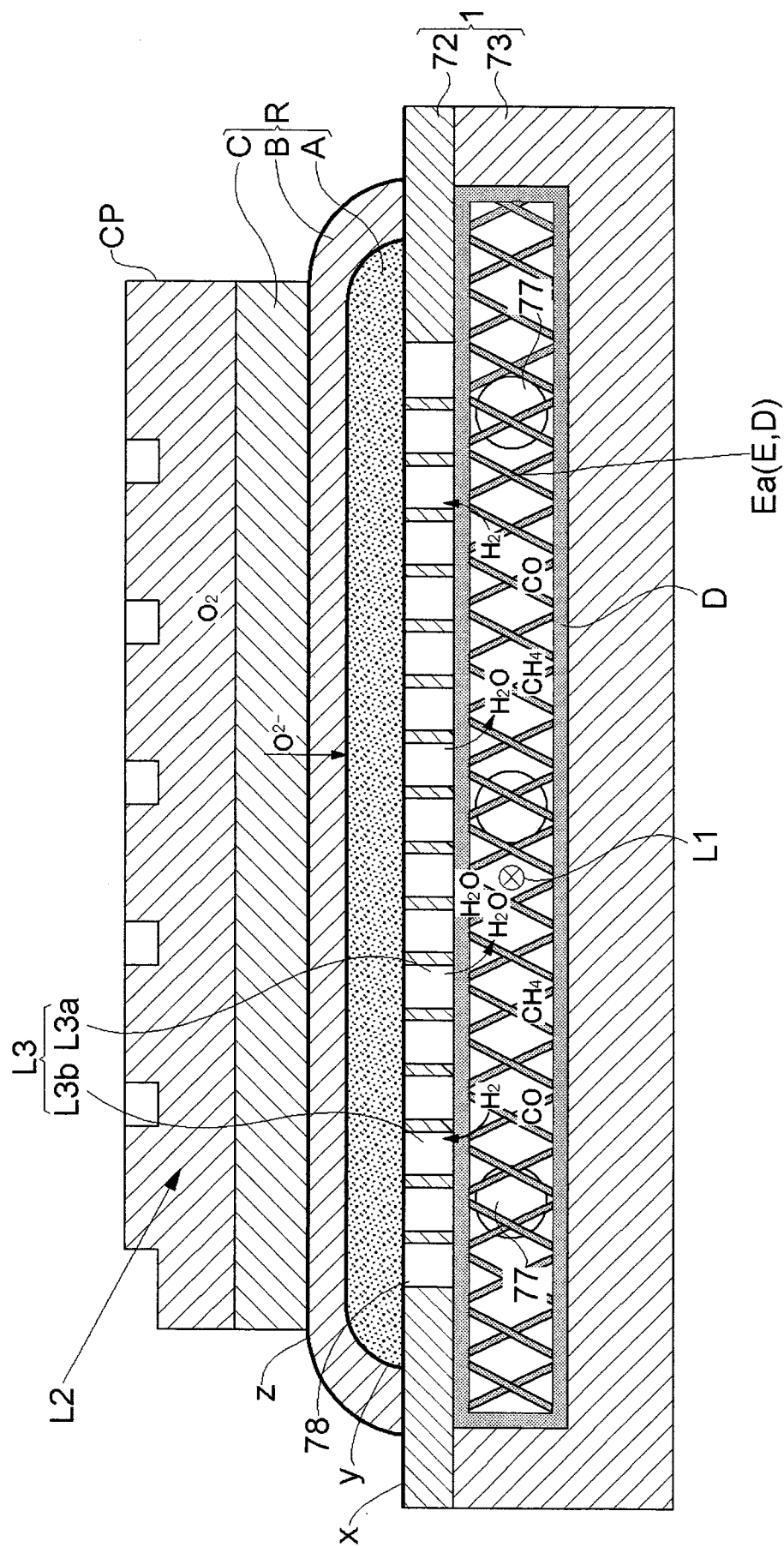
【圖 19】



【圖 20】



【圖 21】



【圖 22】