

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2020年9月3日(03.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/174788 A1

(51) 国際特許分類:

H01M 8/04111 (2016.01) H01M 8/2428 (2016.01)  
H01M 8/12 (2016.01) H01M 8/2465 (2016.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/046130

(22) 国際出願日: 2019年11月26日(26.11.2019)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2019-035615 2019年2月28日(28.02.2019) JP

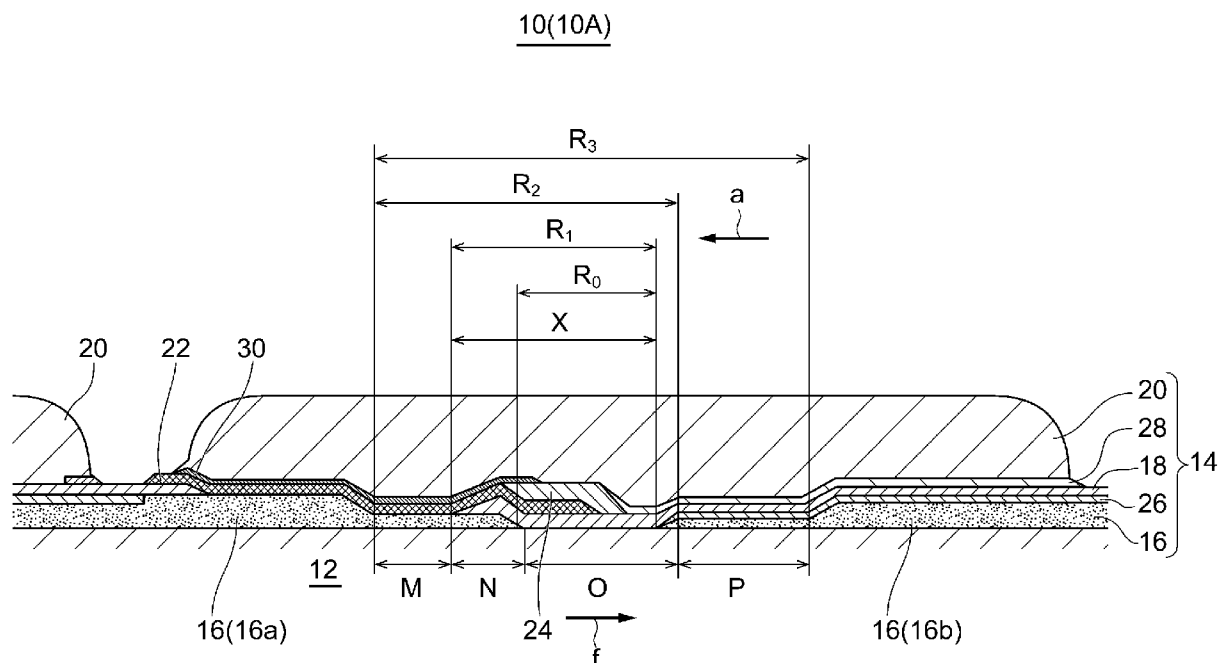
(71) 出願人: 三菱日立パワーシステムズ株式会社(MITSUBISHI HITACHI POWER SYSTEMS,

LTD.) [JP/JP]; 〒2208401 神奈川県横浜市西区  
みなとみらい三丁目3番1号 Kanagawa (JP).

(72) 発明者: 樋渡 研一 (HIWATASHI, Kenichi);  
〒2208401 神奈川県横浜市西区みなとみらい三  
丁目3番1号 三菱日立パワーシステムズ株式会  
社内 Kanagawa (JP). 吉田 慎(YOSHIDA, Shin);  
〒2208401 神奈川県横浜市西区みなとみらい三  
丁目3番1号 三菱日立パワーシステムズ株式会  
社内 Kanagawa (JP). 荒木 研太(ARAKI, Kenta);  
〒2208401 神奈川県横浜市西区みなとみらい三  
丁目3番1号 三菱日立パワーシステムズ株式会  
社内 Kanagawa (JP). 鮫島 健輔(SAMESHIMA,  
Kensuke); 〒2208401 神奈川県横浜市西区みな

(54) Title: FUEL CELL STACK, FUEL CELL MODULE, POWER GENERATION SYSTEM AND METHOD FOR PRODUCING FUEL CELL STACK

(54) 発明の名称: 燃料電池セルスタック、燃料電池モジュール、発電システム及び燃料電池セルスタックを作製する方法



(57) Abstract: A fuel cell stack according to one embodiment of the present invention is provided with: a plurality of fuel cells, each of which comprises a base material, and a fuel-side electrode, a solid electrolyte membrane and an oxygen-side electrode that are superposed on the base material; an interconnector film which electrically connects the fuel-side electrode of one fuel cell of two adjacent fuel cells among the plurality of fuel cells and the oxygen-side electrode

とみらい三丁目3番1号 三菱日立パワーシステムズ株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 誠真 I P 特許業務法人 (SEISHIN IP PATENT FIRM, P.C.); 〒1080073 東京都港区三田三丁目13番16号 三田43MTビル13階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

of the other fuel cell to each other; and a porous ceramic film which covers at least the interconnector film in the region between a first fuel-side electrode of one fuel cell of the two adjacent fuel cells and a second fuel-side electrode of the other fuel cell.

(57) 要約: 一実施形態に係る燃料電池セルスタックは、基体と、基体上に積層された燃料側電極、固体電解質膜及び酸素側電極を夫々含む複数の燃料電池セルと、複数の燃料電池セルのうち隣り合う燃料電池セルの一方の前記燃料電池セルの燃料側電極と他方の燃料電池セルの酸素側電極とを電気的に接続するインタコネクタ膜と、隣り合う燃料電池セルの一方の燃料電池セルの第1の燃料側電極と他方の燃料電池セルの第2の燃料側電極との間の領域において、少なくともインタコネクタ膜を覆う多孔質セラミック膜とを備える。

## 明 細 書

発明の名称：

燃料電池セルスタック、燃料電池モジュール、発電システム及び燃料電池セルスタックを作製する方法

### 技術分野

[0001] 本開示は、燃料電池セルスタック、該燃料電池セルスタックを備える燃料電池モジュール、該燃料電池モジュールを備える発電システム及び燃料電池セルスタックを作製する方法に関する。

### 背景技術

[0002] 次世代エネルギーとして、燃料側電極、電解質及び酸素側電極で構成される燃料電池セルを最小単位とし、燃料側電極に供給される燃料ガスと酸素側電極に供給される酸化性ガスとを化学反応させて発電する燃料電池が知られている。

このうち、固体酸化物形燃料電池（S O F C）（S o l i d O x i d e F u e l C e l l）は、電解質としてジルコニアセラミックスなどのセラミックスが用いられ、都市ガス、天然ガス、石油、メタノール、石炭ガス化ガスなどを燃料として運転される燃料電池である。このようなS O F Cは、イオン伝導率を高めるために作動温度が約700～1000℃程度と高く、用途の広い高効率な高温型燃料電池として知られている。S O F Cは、例えばガスタービンやマイクロガスタービン及びターボチャージャ等の回転機器と組み合わせ、運転圧力を高めることでより高効率の発電が可能となる。また、このような加圧発電システムにおいて、圧縮機から吐出される圧縮空気を酸化性ガスとしてS O F Cの酸素側電極に供給すると共に、S O F Cから排出される高温の排燃料ガスを、ガスタービンなどの回転機器入口の燃焼器に供給して燃焼させ、燃焼器で発生した高温の燃焼ガスで回転機器を回転させることで、動力の回収を図ることができる。

[0003] 燃料電池モジュールは、例えば、複数の燃料電池セルでセルスタックを形

成し、容器内に収納された複数のセルスタックで発電室を形成するように構成される。燃料電池セルは、内部に燃料ガス通路と酸化性ガス通路を有し、該燃料ガス通路に燃料ガス供給管から燃料ガスを供給し、該酸化性ガス通路に酸化性ガス供給管から酸化性ガス（例えば空気）を供給する。

[0004] セルスタックは、燃料電池セルが担持される基体の形状によって、例えば、円筒形や平板形に形成される。特許文献 1 には、円筒形の基体管の表面に燃料電池セルを構成する各素材を塗布し焼成する円筒形セルスタックの製造方法が開示されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0005] 特許文献1：特許第3064087号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0006] 燃料電池の実用化においては、性能向上によるコスト低減と共に、燃料電池セルの耐酸化性（ロバスト性）の向上が求められる。SOFCなど固体電解質膜を備える燃料電池セルにおいては、固体電解質膜を薄膜化することで性能向上が図れるが、薄膜化により膜強度が低下するため、温度変化によって発生する熱応力などによってクラックが発生しやすくなる。クラックが発生すると、異常や故障が発生して燃料ガスの供給が停止した緊急時に、高温環境下で酸化性ガスが燃料側電極に侵入し、短時間で燃料側電極が酸化し損傷するおそれがある。

[0007] 本開示に係る一実施形態は、燃料電池セルの耐酸化性（ロバスト性）を向上させることにより、燃料ガスの供給が遮断された非常停止時などにおいても、燃料電池セルを構成する固体電解質膜などの緻密膜が短時間で損傷するのを抑制することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0008] (1) 一実施形態に係る燃料電池セルスタックは、

基体と、

該基体上に積層された燃料側電極、固体電解質膜及び酸素側電極を夫々含む複数の燃料電池セルと、

前記複数の燃料電池セルのうち隣り合う前記燃料電池セルの一方の前記燃料電池セルの前記燃料側電極と他方の前記燃料電池セルの前記酸素側電極とを電氣的に接続するインタコネクタ膜と、

隣り合う前記燃料電池セルの一方の前記燃料電池セルの第1の燃料側電極と他方の前記燃料電池セルの第2の燃料側電極との間の領域において、少なくとも前記インタコネクタ膜を覆う多孔質セラミック膜と、  
を備える。

[0009] 一般に、燃料電池セルスタックを構成する複数の燃料電池セルの各々は、酸化性ガスを透過させない緻密膜で構成される固体電解質膜及びインタコネクタ膜が複数の燃料電池セルの燃料側電極を覆うように設けられることで、酸素側電極側の酸化性ガスが燃料側電極側へ侵入するのを防止するようにしている。しかし、隣り合う燃料電池セルの燃料側電極間の領域においては、燃料側電極の温度差による熱変化量が大きいために、局所的な応力が発生しやすい。特に、インタコネクタ膜の端部は他部材との熱膨張率の違いによって応力集中が生じやすい。そこで、上記(1)の構成によれば、隣り合う燃料電池セルの燃料側電極間の領域において、少なくともインタコネクタ膜を覆うように多孔質セラミック膜を設けることで、該多孔質セラミック膜が固体電解質膜やインタコネクタ膜に発生する応力を緩和し、上記緻密膜の損傷を抑制することで、燃料電池セルの耐酸化性(ロバスト性)を向上できる。

[0010] なお、ここで、「酸化性ガス」とは、酸素を略15%~30%含むガスであり、代表的には空気が好適であるが、空気以外にも燃焼排ガスと空気の混合ガスや、酸素と空気の混合ガスなどが使用できる。

[0011] 多孔質セラミック膜はインタコネクタ膜を覆うように設けることでインタコネクタ膜の強度部材として機能し、燃料側電極の温度差により燃料側電極間領域の固体電解質膜やインタコネクタ膜に発生する応力を緩和する作用を

有する。また、多孔質セラミック膜は緻密膜に比べ局部発生応力が小さく、たとえ固体電解質膜やインタコネクタ膜で微小なクラックが発生してもクラックの伸展を抑制できる。

[0012] (2) 一実施形態では、前記(1)の構成において、

前記インタコネクタ膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極の手前まで延在する。

上記(2)の構成によれば、インタコネクタ膜が、燃料側電極間領域に延在することで、燃料側電極間領域でインタコネクタ膜と多孔質セラミック膜の二層組織を形成できる。これによって、燃料側電極間領域で耐酸化性を向上できる。

[0013] (3) 一実施形態では、前記(1)の構成において、

前記インタコネクタ膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極に達するまで延在する。

上記(3)の構成によれば、インタコネクタ膜は第1の燃料側電極から第2の燃料側電極に達するまで延在するため、燃料側電極間領域の全域を上記二層組織で覆うことができる。これによって、燃料側電極間領域で耐酸化性を向上できる。

[0014] (4) 一実施形態では、前記(3)の構成において、

前記第2の燃料側電極は、前記第1の燃料側電極に向かって厚さが漸減する傾斜部を有し、前記インタコネクタ膜は前記傾斜部の傾斜領域中間部まで延在する。

上記(4)の構成によれば、インタコネクタ膜が第2の燃料側電極の傾斜部の傾斜領域中間部まで延在することで、燃料側電極間領域で耐酸化性を向上できる。また、インタコネクタ膜は上記傾斜部の中間部を越えて延在しないので、第2の燃料側電極側で形成される発電面積を減少させない。従って、発電性能の低下をまねかない。

[0015] (5) 一実施形態では、前記(4)の構成において、

前記インタコネクタ膜は、前記傾斜部の傾斜方向30%以上70%以下の領域まで延在する。

上記(5)の構成によれば、インタコネクタ膜が第2の燃料側電極の傾斜部の傾斜方向30～70%の領域まで延在するため、燃料側電極間領域の耐酸化性を向上できると共に、発電性能の低下をまねかない。

[0016] (6) 一実施形態では、前記(1)～(5)の何れかの構成において、

前記多孔質セラミック膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極まで延在し、

前記第2の燃料側電極は、前記第1の燃料側電極に向かって厚さが漸減する傾斜部を有し、前記多孔質セラミック膜は前記傾斜部の少なくとも一部の領域まで延在する。

上記(6)の構成によれば、多孔質セラミック膜は、第1の燃料側電極から第2の燃料側電極の傾斜部の少なくとも一部の領域まで延在するので、燃料側電極間領域において発生する応力を緩和し、緻密膜の損傷を抑制することで、耐酸化性を向上できる。他方、多孔質セラミック膜は、第2の燃料側電極の傾斜部を越えて第2の燃料側電極側へ延在しないので、第2の燃料側電極側の発電性能を低下させない。

[0017] (7) 一実施形態では、前記(6)の構成において、

前記多孔質セラミック膜は前記傾斜部の傾斜方向1/2以下の領域まで延在する。

上記(7)の構成によれば、多孔質セラミック膜は、第1の燃料側電極から第2の燃料側電極の傾斜部の傾斜方向1/2以下の領域まで延在するので、燃料側電極間領域の耐酸化性を向上できると共に、上記傾斜部の傾斜方向1/2を越えて第2の燃料側電極側へ延在しないので、第2の燃料側電極の外側に設けられた酸素側電極の薄肉化をまねかず、そのため、酸素側電極の性能低下をまねかない。

[0018] (8) 一実施形態では、前記(1)～(7)の何れかの構成において、前記固体電解質膜は、前記燃料側電極間の領域において、前記インタコネクタ膜より前記基体側に設けられると共に、前記第2の燃料側電極から前記第1の燃料側電極まで延在する。

上記(8)の構成によれば、固体電解質膜が燃料側電極間領域に延在するので、燃料側電極間領域で膜厚が厚い固体電解質膜を形成できる。これによって燃料側電極間領域の固体電解質膜の強度を高めることができ、耐酸化性を向上できる。

[0019] (9) 一実施形態では、前記(1)～(8)の何れかの構成において、前記多孔質セラミック膜は気孔率が10%以上60%以下の材料で構成される。

上記(9)の構成によれば、多孔質セラミック膜は気孔率が10%以上の材料で構成されるため、燃料側電極間領域で発生する応力を緩和でき、60%以下とすることで酸素のガス拡散による透過量を低減できる。また、該多孔質セラミック膜は局所的な応力が発生しにくいので、たとえ固体電解質膜やインタコネクタ膜でクラックが発生しても、多孔質セラミック膜でクラックの伸展を食い止めることができる。

[0020] (10) 一実施形態では、前記(1)～(9)の何れかの構成において、前記インタコネクタ膜は気孔率が0.1%以上5%以下の材料で構成される。

上記(10)の構成によれば、インタコネクタ膜は0.1%以上の気孔率を有しているため微小なクラックの伸展を低減でき、かつ5%以下の気孔率であるため膜を貫通する気孔はなく、燃料側電極間領域を含め、酸化性ガスの侵入を抑制でき、燃料電池セルの耐酸化性を向上できる。

[0021] (11) 一実施形態では、前記(1)～(10)の何れかの構成において、

前記固体電解質膜は、膜厚が5  $\mu\text{m}$ 以上20  $\mu\text{m}$ 以下で構成される。

上記(11)の構成によれば、固体電解質膜は膜厚が20  $\mu\text{m}$ 以下の薄い

膜で構成されるため、従来より発電性能を向上できるとともに、5  $\mu$ m 以上なので必要な膜強度を維持できる。

[0022] (12) 一実施形態では、前記(1)～(11)の何れかの構成において、

前記多孔質セラミック膜と前記インタコネクタ膜とは同じ材質である。

上記(12)の構成によれば、多孔質セラミック膜は固体電解質膜及びインタコネクタ膜の応力を緩和でき、酸素ガス透過性を低くでき、還元ガスの影響で膨張しないようにすることができる。

[0023] (13) 一実施形態に係る燃料電池モジュールは、

前記(1)～(12)の何れかの構成を有する燃料電池セルスタックを複数集合させて構成される。

上記(13)の構成によれば、耐酸化性（ロバスト性）を向上させた燃料電池セルスタックを備えるため、耐久性を向上できる。これによって、補修頻度を低減でき、運転を長く継続できるので、発電効率を向上できる。

[0024] (14) 一実施形態に係る発電システムは、

前記(13)の構成を有する燃料電池モジュールと、

前記燃料電池モジュールから排気される排燃料ガスと排酸化性ガスとを用いて回転動力を発生させる回転機器と、  
を備え、

前記燃料電池モジュールには、前記回転動力を用いて圧縮された前記酸化性ガスが供給され、前記燃料電池モジュールは、前記燃料ガスと前記圧縮された酸化性ガスを用いて発電する。

上記(14)の構成によれば、本開示に係る上記目的を達成しつつ、燃料電池モジュールに圧縮された酸化性ガスを供給できるので、発電効率を向上できると共に、燃料電池モジュールから排気される排燃料ガスと排酸化性ガスとを用いて回転動力を発生させるため、発電効率を向上できると共に、発電システムの所要動力を低減できる。

[0025] (15) 一実施形態では、前記(14)の構成において、

前記回転機器は、ガスタービン又はターボチャージャで構成される。

上記（１５）の構成によれば、発電効率の向上及び発電システムの所要動力低減に加えて、回転機器がガスタービンである場合、燃料電池モジュールとガスタービンとで複合発電が可能になる。

[0026] （１６）一実施形態に係る燃料電池セルスタックを作製する方法は、

基板上に、燃料側電極と、燃料側電極反応層と、固体電解質膜と、インタコネクタ膜とを成膜し焼結させて焼結体を得るステップと、

前記焼結体上に、多孔質セラミック膜と、インタコネクタ中間層と、酸素側電極反応層と、酸素側電極とを成膜して焼成して焼成体を得るステップと、

前記焼成体に還元処理を施すステップとを含む。

上記（１６）の方法によれば、前記（１）～（１２）のいずれかの燃料電池セルスタックを作製することができる。

## 発明の効果

[0027] 幾つかの実施形態によれば、燃料ガスの供給が遮断された非常停止時などにおいても酸化性ガスが燃料側電極側に侵入することによる固体電解質膜及びインタコネクタ膜の損傷を抑制し、燃料電池セルの耐酸化性（ロバスト性）を向上させることができる。

## 図面の簡単な説明

[0028] [図1]一実施形態に係る燃料電池セルスタックの模式的縦断面図である。

[図2]一実施形態に係る燃料電池セルスタックの縦断面図である。

[図3]一実施形態に係る燃料電池セルスタックの縦断面図である。

[図4]一実施形態に係る発電システムの系統図である。

[図5]一実施形態に係る発電システムの系統図である。

[図6]幾つかの実施形態に係る燃料電池セルスタックの耐酸化性を計測した結果を示すグラフである。

[図7]従来の燃料電池セルスタックの縦断面図である。

## 発明を実施するための形態

[0029] 以下、添付図面を参照して、本発明の幾つかの実施形態について説明する。ただし、これらの実施形態に記載されている又は図面に示されている構成部品の寸法、材質、形状及びその相対的配置等は、本発明の範囲をこれに限定する趣旨ではなく、単なる説明例にすぎない。

例えば、「ある方向に」、「ある方向に沿って」、「平行」、「直交」、「中心」、「同心」或いは「同軸」等の相対的或いは絶対的な配置を表す表現は、厳密にそのような配置を表すのみならず、公差、若しくは、同じ機能が得られる程度の角度や距離をもって相対的に変位している状態も表すものとする。

例えば、「同一」、「等しい」及び「均質」等の物事が等しい状態であることを表す表現は、厳密に等しい状態を表すのみならず、公差、若しくは、同じ機能が得られる程度の差が存在している状態も表すものとする。

例えば、四角形状や円筒形状等の形状を表す表現は、幾何学的に厳密な意味での四角形状や円筒形状等の形状を表すのみならず、同じ効果が得られる範囲で、凹凸部や面取り部等を含む形状も表すものとする。

一方、一つの構成要素を「備える」、「具える」、「具備する」、「含む」、又は「有する」という表現は、他の構成要素の存在を除外する排他的な表現ではない。

[0030] 図1は一実施形態に係る燃料電池セルスタックの縦断面を模式的に示し、図2及び図3は、幾つかの実施形態に係る燃料電池セルスタックの縦断面図である。図7は、従来の燃料電池セルスタックの縦断面図である。

[0031] 図1～図3において、幾つかの実施形態に係る燃料電池セルスタック10(10A、10B、10C)は、基体12と、基体12上に担持された複数の燃料電池セル14とを備える。複数の燃料電池セル14の各々は、基体12側から順に積層された膜状の燃料側電極16、固体電解質膜18及び酸素側電極20を備える。隣り合う燃料電池セル14の燃料側電極16と酸素側電極20とは、導電性を有するインタコネクタ膜22によって電氣的に接続

されている。インタコネクタ膜 22 によって、基体 12 に担持される複数の燃料電池セル 14 は電氣的に直列に接続される。

[0032] 基体 12 側に燃料ガス f が流れる流路が形成され、酸素側電極 20 側に酸化性ガス a が流れる流路が形成される。酸化性ガス a として例えば空気が用いられる。燃料ガス f 及び酸化性ガス a を原料とし、燃料側電極 16 及び酸素側電極 20 で夫々起こる化学反応によって、酸素イオンが固体電解質膜 18 を透過し発電が起る。インタコネクタ膜 22 によって電氣的に直列接続された電力は、基体 12 の端部に設けられたリード膜（不図示）によって取り出される。燃料電池モジュールは、複数のセルスタック 10 で構成される発電室を備える。各燃料電池セル 14 は、隣り合う燃料電池セル 14 の燃料側電極 16 間の領域 R0（図 1 参照）において、少なくともインタコネクタ膜 22 を覆う多孔質セラミック膜 24 を備える。

[0033] 酸化性ガス a を透過させない緻密膜で構成される固体電解質膜 18 及びインタコネクタ膜 22 が複数の燃料電池セル 14 の燃料側電極を覆うように設けられるため、酸素側電極 20 側の酸化性ガス a が燃料側電極 16 側へ侵入するのを防止している。しかし、隣り合う燃料電池セル 14 の燃料側電極間領域 R0 においては、燃料側電極 16 の温度差による熱変化量が大きいために、局所的な応力が発生しやすく、特に、インタコネクタ膜 22 の端部は他部材との熱膨張率の違いや焼成時の熱膨張率の違い等によって応力集中が起りやすい。

[0034] 以下、燃料電池セルスタック 10 に異常や故障が発生して燃料ガスの供給が遮断された負荷遮断時に、燃料電池セル 14 が損傷するメカニズムを説明する。

（1）負荷が遮断されると発電に伴う発熱がなくなるため燃料電池セル 14（固体電解質膜 18 付近）の温度が急激に低下して収縮し、これによって、領域 R0 に引張り応力が発生する。固体電解質膜 18 及びインタコネクタ膜 22 の膜厚が小さいと、これらの緻密膜にクラックが発生する。なお、基体 12 は熱容量が他の構成材料にくらべ圧倒的に熱容量が大きく基本的に温度

変化しない。



(2) クラックを通して酸素側電極 20 側から酸素が燃料側電極 16 側に侵入し、燃料側電極 16 が酸化され、体積が膨張する。



(3) 燃料側電極 16 の体積膨張によって燃料側電極 16 に接する固体電解質膜 18 にクラックが発生し、燃料ガス f のリークが発生する。



(4) 燃料電池セル 14 でリークした燃料ガス f が燃焼し、燃料電池セル 14 の性能が低下し、損傷が拡大する。

[0035] 本実施形態では、領域 R0 において、多孔質セラミック膜 24 が少なくともインタコネクタ膜 22 を覆うように設けられるため、インタコネクタ膜 22 の強度部材として機能し、燃料側電極 16 の温度差により燃料側電極間領域の固体電解質膜 18 やインタコネクタ膜 22 に発生する応力を緩和する作用を有する。また、多孔質セラミック膜 24 は局所的な応力が発生しにくいので、たとえ固体電解質膜 18 又はインタコネクタ膜 22 で微細なクラックが発生しても、クラックの伸展を抑制できるため、多孔質セラミック膜 24 が酸化性ガス a の侵入を抑制できる。こうして、燃料電池セル 14 の耐酸化性（ロバスト性）を向上できる。

[0036] 図 1 において、隣り合う燃料側電極 16 間に形成される領域 R0 (O) は、燃料側電極 16 の温度差による熱変化量が大きいため、局所的な応力が発生しやすい領域である。領域 R1 (X) は、燃料電池セル 14 の発電性能に影響しない領域であり、この領域に多孔質セラミック膜 24 が設けられており、領域 R1 に多孔質セラミック膜 24 が設けられても、発電性能に影響しない。領域 R2 (O+M+N) は、発電性能への影響が軽微である領域であり、領域 R3 (O+M+N+P) は、発電性能への影響を少なくできる最大領域である。インタコネクタ膜 22 及び多孔質セラミック膜 24 の設置領域が領域 P を越えると、発電性能が低下する。

[0037] 燃料電池セル 14 を構成する各素子の厚さはミクロン単位で構成される。

各素子のうち酸素側電極 20 の膜厚が最大である。多孔質セラミック膜 24 は、20～100  $\mu\text{m}$  程度とするのがよい。これより薄いと応力緩和効果が低減し、逆に厚過ぎると酸素側電極 20 が薄肉化し、酸素側電極 20 の性能が低下するおそれがある。

[0038] 一実施形態では、多孔質セラミック膜 24 はインタコネクタ膜 22 と同一材料で構成される。多孔質セラミック膜 24 は、還元膨張性、熱膨張率及び耐酸化性でインタコネクタ膜 22 と同様の性質が求められるので、インタコネクタ膜 22 と同一材料とするのがよい。例えば、インタコネクタ膜 22 及び多孔質セラミック膜 24 に  $\text{SrTiO}_3$  系の材料を用いる。また、多孔質セラミック膜 24 は、還元雰囲気に晒されることを考慮した材料を用いるとよい。例えば、インタコネクタ膜 22 及び多孔質セラミック膜 24 にランタンクロマイトや  $\text{SrTiO}_3$  等を用いる。

[0039] 図 7 は、従来の燃料電池セルスタック 100 を示す。燃料電池セルスタック 100 は、基体 102 と、基体 102 上に担持された複数の燃料電池セル 104 とを備える。複数の燃料電池セル 104 は、夫々基体 102 側から順に積層された燃料側電極 106、固体電解質膜 108 及び酸素側電極 110 を備える。隣り合う燃料電池セル 104 の燃料側電極 106 と酸素側電極 110 とは、導電性を有するインタコネクタ膜 112 によって電氣的に接続されている。これによって、基体 102 に担持される複数の燃料電池セル 104 は電氣的に直列に接続される。

[0040] 基体 102 側に燃料ガス f が流れる流路が形成され、酸素側電極 110 側に酸化性ガス a が流れる流路が形成される。そして、燃料電池セルスタック 100 と同様に、燃料ガス f 及び酸化性ガス a を原料とし、燃料側電極 106 及び酸素側電極 110 で夫々起こる化学反応によって、酸素イオンが固体電解質膜 108 を透過し発電が起る。基体 102 毎にインタコネクタ膜 112 によって取り出された電力は、基体 102 の端部に設けられたリード膜（不図示）によって取り出される。燃料電池セルスタック 100 は、多孔質セラ

ミック膜 24 を備えていないため、図 1 ～図 3 に示す実施形態と比べて、耐酸化性（ロバスト性）が劣る。

[0041] 一実施形態では、図 1 に示すように、燃料側電極 16 と固体電解質膜 18 との間に燃料側電極反応層 26 を介在させる。また、固体電解質膜 18 と酸素側電極 20 との間に酸素側電極反応層 28 を介在させる。さらに、インタコネクタ膜 22 と酸素側電極 20 との間にインタコネクタ中間層 30 を介在させる。これらの反応層及び中間層は各素子間の接合面の反応抵抗を低減するために設けられる。

[0042] 一実施形態では、図 1 及び図 2 に示す燃料電池セルスタック 10（10A、10B）において、インタコネクタ膜 22 は、領域 R0 で燃料側電極 16（16a）（第 1 の燃料側電極）から燃料側電極 16（16b）（第 2 の燃料側電極）に向かい、燃料側電極 16（16b）の手前まで延在する。

この実施形態によれば、インタコネクタ膜 22 が、領域 R0 に延在することで、領域 R0 でインタコネクタ膜 22 と多孔質セラミック膜 24 の二層組織を形成できる。これによって、領域 R0 で燃料側電極側への酸化性ガス a の侵入を抑制でき、耐酸化性を向上できる。

[0043] 一実施形態では、図 3 に示す燃料電池セルスタック 10（10C）において、インタコネクタ膜 22 は、領域 R0 で燃料側電極 16（16a）から燃料側電極 16（16b）に向かい、燃料側電極 16（16b）に達するまで延在する。

この実施形態によれば、領域 R0 の全域をインタコネクタ膜 22 及び多孔質セラミック膜 24 の二層組織で覆うことができるので、領域 R0 で燃料側電極 16 側への酸化性ガス a の侵入を抑制でき、耐酸化性を向上できる。

[0044] 一実施形態では、図 3 に示すように、燃料側電極 16（16b）は、燃料側電極 16（16a）に向かって厚さが漸減する傾斜部 32 を有し、インタコネクタ膜 22 は傾斜部 32 の傾斜領域中間部まで延在する。

この実施形態によれば、インタコネクタ膜 22 が傾斜部 32 の傾斜領域中間部まで延在するため、領域 R0 における酸化性ガス a の侵入を抑制できる

と共に、傾斜部 3 2 の中間部を越えて延在しないので、燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) 側で形成される発電面積を減少させない。そのため、発電性能が低下しない。

[0045] 一実施形態では、インタコネクタ膜 2 2 は、傾斜部 3 2 の傾斜方向 3 0 % 以上 7 0 % 以下の領域まで延在する。

この実施形態によれば、インタコネクタ膜 2 2 が傾斜部 3 2 の傾斜方向 3 0 ~ 7 0 % の領域まで延在するため、領域 R 0 の耐酸化性を向上できると共に、燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) 側の発電性能が低下しない。

[0046] 一実施形態では、図 2 及び図 3 に示すように、多孔質セラミック膜 2 4 は、領域 R 0 で燃料側電極 1 6 ( 1 6 a ) から燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) に向かって燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) まで延在し、かつ燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) の傾斜部 3 2 の少なくとも一部の領域まで延在している。

この実施形態によれば、多孔質セラミック膜 2 4 は、領域 R 0 において固体電解質膜 1 8 及びインタコネクタ膜 2 2 に発生する応力を緩和し、固体電解質膜 1 8 及びインタコネクタ膜 2 2 等の緻密膜の損傷を抑制するため、燃料電池セル 1 4 の耐酸化性を向上できる。他方、多孔質セラミック膜 2 4 は、傾斜部 3 2 を越えて燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) 側へ延在しないので、燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) 側で起こる発電反応による発電性能を低下させない。

[0047] 一実施形態では、多孔質セラミック膜 2 4 は傾斜部 3 2 の傾斜方向 1 / 2 以下の領域まで延在する。この実施形態によれば、多孔質セラミック膜 2 4 によって領域 R 0 の耐酸化性を向上できると共に、傾斜部 3 2 の傾斜方向 1 / 2 を越えて燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) 側へ延在しないので、燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) の外側に設けられた酸素側電極 2 0 の薄肉化をまねかず、従って、酸素側電極 2 0 の性能低下をまねかない。

[0048] 一実施形態では、固体電解質膜 1 8 は、領域 R 0 において、インタコネクタ膜 2 2 より基体 1 2 側に設けられると共に、燃料側電極 1 6 ( 1 6 b ) から燃料側電極 1 6 ( 1 6 a ) まで延在する。

この実施形態によれば、固体電解質膜 1 8 が領域 R 0 に充填されるため、

領域 R O で膜厚が大きい固体電解質膜を形成できる。これによって、燃料側電極間領域の固体電解質膜 1 8 の強度を高めることができ、燃料電池セル 1 4 の耐酸化性を向上できる。

[0049] 一実施形態では、多孔質セラミック膜 2 4 は気孔率が 1 0 % 以上の材料で構成されるため、燃料側電極間領域で発生する応力を緩和でき、他方、6 0 % 以下とすることで酸素のガス拡散による透過量を低減できる。また、多孔質セラミック膜 2 4 は局所的な応力が発生しにくいので、たとえ固体電解質膜 1 8 やインタコネクタ膜 2 2 でクラックが発生しても、多孔質セラミック膜 2 4 でクラックの伸展を食い止めることができる。

[0050] 一実施形態では、インタコネクタ膜 2 2 は気孔率が 0. 1 ~ 5 % の材料で構成される。この構成によれば、インタコネクタ膜 2 2 は 0. 1 % 以上の気孔率を有しているため微小なクラックの伸展を低減でき、かつ 5 % 以下の気孔率であるため膜を貫通する気孔はなく、燃料側電極間領域 R O を含め、酸化性ガス a の侵入を抑制でき、燃料電池セル 1 4 の耐酸化性を向上できる。これによって、インタコネクタ膜 2 2 は領域 R O を含め、酸化性ガス a の侵入を抑制でき、燃料電池セル 1 4 の耐酸化性を向上できる。

[0051] 一実施形態では、固体電解質膜 1 8 は、膜厚（端部ではなく基体 1 2 の表面に沿う方向における中央部の膜厚）が 5 ~ 2 0  $\mu$  m の膜状体で構成される。固体電解質膜 1 8 を 2 0  $\mu$  m 以下とすることで従来より薄肉化されるため、発電性能を向上できると共に、5  $\mu$  m 以上とすることで、必要な膜強度を確保できる。

[0052] 一実施形態では、基体 1 2 は内側流路に燃料ガス f が供給される基体管で構成される。燃料電池セルスタック 1 0 は該基体管に複数の燃料電池セル 1 4 が担持されて構成されるため、円筒形のセルスタックを形成する。

なお、別な実施形態では、燃料電池セルスタックは、平板形を有する基体に複数の燃料電池セル 1 4 を担持した平板形又は扁平円筒形のセルスタックであってもよい。

[0053] 一実施形態では、燃料電池セル 1 4 は、固体電解質膜 1 8 が固体酸化物で

構成されるS O F Cで構成される。S O F Cは、650～1000℃の高温で運転され、非常停止時に電流が遮断されると発電による発熱がなくなるため燃料電池セル14付近の温度が急激に低下する。そのため、これにより領域R0に引張り応力が発生し、領域R0の固体電解質膜18やインタコネクタ膜22にクラックが発生し耐酸化性が低下する。これに対し、上記幾つかの実施形態によれば、耐酸化性を高めることができるので、非常停止時に電流が遮断されても、酸化性ガスaが燃料側電極16側に達して固体電解質膜18やインタコネクタ膜22の損傷を抑制することができる。

[0054] 基体12は燃料電池セルの強度を保持するため、厚み1～3mm程度、燃料を通すため多孔質であること（気孔率30～50%程度）が望ましい。絶縁性を有する必要があるため、材質としては、CSZ、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、SrZrO<sub>3</sub>等が用いられる。

[0055] 燃料側電極16は電子導電性が高いこと、熱膨張係数が固体電解質膜18と同程度であること、多孔質であること、還元雰囲気で安定であることが要求される。この観点から、材質は、Niとジルコニア系酸化物のサーメット、Niとセリア系酸化物等が好ましい。また、気孔率30～50%、厚みは50～200μm程度が好ましい。

[0056] 固体電解質膜18は燃料と空気を遮断すること、酸素イオンを通すことが要求される。この観点から材質はYSZ、ScSZ、LSGM、セリア系酸化物が好ましく、気孔率は0.1～5%程度、厚みは5～50μm（高出力化のためには5～20μm程度）が好ましい。

[0057] 酸素側電極20は電子導電性が高いこと、熱膨張係数が固体電解質膜18と同程度であること、多孔質であること、酸化雰囲気で安定であることが要求される。この観点から、材質は、ランタンマンガナイト系、ランタンコバルト系、ランタン鉄系材料が好ましく、気孔率は30～50%程度、厚みは100～1000μm程度が好ましい。

[0058] インタコネクタ膜22は燃料と空気を遮断すること、電子導電性が高いこと、固体電解質膜18との熱膨張係数が近いことが要求される。この観点か

ら、 $\text{SrTiO}_3$ 系材料、ランタンクロマイト系材料が好ましく、気孔率は0.1～5%程度、厚みは10～50 $\mu\text{m}$ 程度が好ましい。

[0059] 多孔質セラミック膜24は固体電解質膜18及びインタコネクタ膜22の応力を緩和できること、材料自身では酸素ガス透過性が低いこと、還元ガスの影響で膨張しないことが要求される。この観点からインタコネクタ膜22と同じ材質が好ましく、 $\text{SrTiO}_3$ 系材料、ランタンクロマイト系材料等が用いられる。気孔率は10～60%、厚みは20～100 $\mu\text{m}$ 程度が好ましい。

[0060] 一実施形態に係る燃料電池モジュール42は、図4及び図5に示すように、上記各実施形態に係る燃料電池セルスタック10を複数集合させて構成される。この燃料電池モジュール42によれば、耐酸化性（ロバスト性）を向上させた複数の燃料電池セルスタック10を備えるため、耐久性を向上できる。これによって、補修頻度を低減でき、運転を長く継続できるので、発電効率を向上できる。

[0061] 燃料電池モジュールは、GTCC（Gas Turbine Combined Cycle：ガスタービンコンバインドサイクル発電）、MGT（Micro Gas Turbine：マイクロガスタービン）、又はターボチャージャと組み合わされて利用される複合発電システムに適用されることがある。

[0062] 図4は、一実施形態に係る発電システム40（40A）を示す系統図である。図4において、発電システム40（40A）は、上記構成の燃料電池モジュール42と、ガスタービン44（回転機器）とを備える。ガスタービン44を構成する圧縮機46に酸化性ガスaが供給され、酸化性ガスaは圧縮機46で圧縮された後、燃料電池モジュール42に供給される。燃料電池モジュール42で発電のための化学反応に用いられた後の排酸化性ガスa'及び排燃料ガスf'は、ガスタービン44を構成する燃焼器50に送られ、燃焼器50で高温の燃焼ガスを生成する。この燃焼ガスを排気タービン48で断熱膨張させることにより発生する回転動力により、発電機52で電力が生

成されると共に、この回転動力により圧縮機 46 を駆動することで、圧縮ガスが発生する。この圧縮ガスを酸化性ガス a として燃料電池モジュール 42 に供給する。燃料電池モジュール 42 は、圧縮された酸化性ガス a と燃料ガス f を用いて発電する。

[0063] 上記構成によれば、燃料電池モジュール 42 内に耐酸化性（ロバスト性）を向上させた複数の燃料電池セルスタック 10 を備えるため、耐久性を向上でき、補修頻度を低減できる。これによって、運転を長く継続でき、発電効率を向上できる。また、燃料電池モジュール 42 に圧縮された酸化性ガス a を供給できるので、さらに発電効率を向上できる。また、燃料電池モジュール 42 から排気される排酸化性ガス a' と排燃料ガス f' で燃焼器 50 を駆動させて回転動力を発生させるため、発電システム 40（40A）の所要動力を低減できる。さらに、燃料電池モジュール 42 とガスタービン 44 の両方で複合的に発電できるので、発電量を増加できる。

[0064] 図 5 は、一実施形態に係る発電システム 40（40B）を示す系統図である。発電システム 40（40B）は、回転機器としてターボチャージャ 54 が用いられる。図 5 において、ターボチャージャ 54 を構成する圧縮機 56 に酸化性ガス a を供給して圧縮し、圧縮された酸化性ガス a を燃料電池モジュール 42 に供給する。燃料電池モジュール 42 で発電のための化学反応に用いられた後の排酸化性ガス a' 及び排燃料ガス f' は、ターボチャージャ 54 を構成する排気タービン 58 に送られ、排気タービン 58 を回転させて回転動力が発生する。この回転動力で圧縮機 56 を駆動することで、圧縮ガスが発生する。

この実施形態によれば、燃料電池モジュール 42 内に耐酸化性（ロバスト性）を向上させた複数の燃料電池セルスタック 10 を備えるため、モジュール 42 の耐久性を向上でき、補修頻度を低減できる。これによって、運転を長く継続でき、発電効率を向上できる。

## 実施例

[0065] （実施例 1）

基体 1 2 は C S Z 材料が選定され、押出成形用バインダ及び水とを適量混ぜ、混練機で混練した後、押出成形し、チューブ状にした。燃料側電極 1 6 及び燃料側電極反応層 2 6 については N i O 材料と Y S Z 材料の混合材料を選定し、この混合材料に有機ビヒクルを加え、3本ロールで混練した後、スラリー状にした。燃料側電極 1 6 は前記スラリーを用いて基体 1 2 の表面にスクリーン印刷法で成膜した。固体電解質膜 1 8 については Y S Z 材料を選定し有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。固体電解質膜 1 8 の厚みは  $40\mu\text{m}$  とした。インタコネクタ膜 2 2 については S r T i O<sub>3</sub> 材料を選定し、これに有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。基体 1 2 の表面に燃料側電極 1 6 、燃料側電極反応層 2 6 、固体電解質膜 1 8 、インタコネクタ膜 2 2 の順にスクリーン印刷法で成膜し、 $1400\sim 1450^{\circ}\text{C}$  で焼結させた（焼結体）。成膜の構成は図 1 に示す通りである。

[0066] 多孔質セラミック膜 2 4 については S r T i O<sub>3</sub> 材料を選定し、これに有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。インタコネクタ中間層 3 0 については L a S r M n O<sub>3</sub> 組成の材料を選定し、これに有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。酸素側電極反応層 2 8 については S D C 材料が選定され、これに有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。酸素側電極 2 0 については L a S r C a M n 系材料を選定し、これに有機ビヒクルを加え、スラリー状にした。上記焼結体の表面に多孔質セラミック膜 2 4 、インタコネクタ中間層 3 0 、酸素側電極反応層 2 8 、酸素側電極 2 0 の順にスクリーン印刷法で成膜し、 $1200\sim 1300^{\circ}\text{C}$  で焼成した（焼成体）。さらに、上記焼成体を還元処理を施し燃料電池セル 1 4 を作製した。

[0067] （実施例 2）

固体電解質膜 1 8 の厚みを  $20\mu\text{m}$  にした以外は実施例 1 と同様の工程で燃料電池セル 1 4 を作製した。

[0068] （比較例）

多孔質セラミック膜 2 4 を成膜しないこと以外は実施例 1 と同様の工程で燃料電池セル 1 0 4 を作製した。

[0069] 図6は、燃料電池セル14をSOFCで構成した円筒形セルスタックであって、実施例1、実施例2及び比較例の実験結果を示すグラフである。これらのセルスタックは、900℃で通常発電した後、電流を遮断し燃料側電極16への燃料ガスfの供給のみを停止し（封じ込め）、その後、時間経過と共にセルスタックの電圧が低下する状況を計測したものである。図6から、多孔質セラミック膜24が形成された実施例1及び2は比較例と比べ、封じ込め後の燃料電池セルの電圧の保持時間が長くなっており、固体電解質膜18を薄膜化した実施例2においても、実施例1と同程度の電圧保持時間となっていることがわかる。このことから、インタコネクタ膜22上の多孔質セラミック膜24により酸化性ガスaが燃料側電極16に侵入することによる固体電解質膜18、インタコネクタ膜22の損傷を抑制できることを確認した。

### 産業上の利用可能性

[0070] 幾つかの実施形態によれば、燃料電池セルスタックを構成する燃料電池セルの耐酸化性（ロバスト性）を向上でき、燃料ガスの供給が遮断された非常停止時などにおいても、酸化性ガスが燃料側電極側に侵入することによる固体電解質膜及びインタコネクタ膜の損傷を抑制できる。

### 符号の説明

[0071] 10（10A、10B、10C）、100 燃料電池セルスタック  
12、102 基体  
14、104 燃料電池セル  
16（16a、16b）、106 燃料側電極  
16（16a） 燃料側電極（第1の燃料側電極）  
16（16b） 燃料側電極（第2の燃料側電極）  
18、108 固体電解質膜  
20、110 酸素側電極  
22、112 インタコネクタ膜  
24 多孔質セラミック膜

- 2 6 燃料側電極反応層
- 2 8 酸素側電極反応層
- 3 0 インタコネクタ膜中間層
- 3 2 傾斜部
- 4 0 (4 0 A、4 0 B) 発電システム
- 4 4 ガスタービン
- 4 6、5 6 圧縮機
- 4 8、5 8 排気タービン
- 5 0 燃焼器
- 5 2 発電機
- 5 4 ターボチャージャ
- R 0 燃料側電極間領域
- a 酸化性ガス
- a' 排酸化性ガス
- f 燃料ガス
- f' 排燃料ガス

## 請求の範囲

- [請求項1]            基体と、
- 該基体上に積層された燃料側電極、固体電解質膜及び酸素側電極を夫々含む複数の燃料電池セルと、
- 前記複数の燃料電池セルのうち隣り合う前記燃料電池セルの一方の前記燃料電池セルの前記燃料側電極と他方の前記燃料電池セルの前記酸素側電極とを電氣的に接続するインタコネクタ膜と、
- 隣り合う前記燃料電池セルの一方の前記燃料電池セルの第1の燃料側電極と他方の前記燃料電池セルの第2の燃料側電極との間の領域において、少なくとも前記インタコネクタ膜を覆う多孔質セラミック膜と、
- を備えることを特徴とする燃料電池セルスタック。
- [請求項2]            前記インタコネクタ膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極の手前まで延在することを特徴とする請求項1に記載の燃料電池セルスタック。
- [請求項3]            前記インタコネクタ膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極に達するまで延在することを特徴とする請求項1に記載の燃料電池セルスタック。
- [請求項4]            前記第2の燃料側電極は、前記第1の燃料側電極に向かって厚さが漸減する傾斜部を有し、前記インタコネクタ膜は前記傾斜部の傾斜領域中間部まで延在することを特徴とする請求項3に記載の燃料電池セルスタック。
- [請求項5]            前記インタコネクタ膜は、前記傾斜部の傾斜方向30%以上70%以下の領域まで延在することを特徴とする請求項4に記載の燃料電池セルスタック。
- [請求項6]            前記多孔質セラミック膜は、前記燃料側電極間の領域で前記第1の

燃料側電極から前記第2の燃料側電極に向かい、前記第2の燃料側電極まで延在し、

前記第2の燃料側電極は、前記第1の燃料側電極に向かって厚さが漸減する傾斜部を有し、前記多孔質セラミック膜は前記傾斜部の少なくとも一部の領域まで延在することを特徴とする請求項1乃至5の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項7] 前記多孔質セラミック膜は前記傾斜部の傾斜方向1/2以下の領域まで延在することを特徴とする請求項6に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項8] 前記固体電解質膜は、前記燃料側電極間の領域において、前記インタコネクタ膜より前記基体側に設けられると共に、前記第2の燃料側電極から前記第1の燃料側電極まで延在することを特徴とする請求項1乃至7の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項9] 前記多孔質セラミック膜は気孔率が10%以上60%以下の材料で構成されることを特徴とする請求項1乃至8の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項10] 前記インタコネクタ膜は気孔率が0.1%以上5%以下の材料で構成されることを特徴とする請求項1乃至9の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項11] 前記固体電解質膜は、膜厚が5  $\mu$ m以上20  $\mu$ m以下の膜で構成されることを特徴とする請求項1乃至10の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項12] 前記多孔質セラミック膜と前記インタコネクタ膜とは同じ材質である、請求項1乃至11の何れか一項に記載の燃料電池セルスタック。

[請求項13] 請求項1乃至12の何れか一項に記載の燃料電池セルスタックを複数集合させて構成されたことを特徴とする燃料電池モジュール。

[請求項14] 請求項13に記載の燃料電池モジュールと、  
前記燃料電池モジュールから排気される排燃料ガスと排酸化性ガス

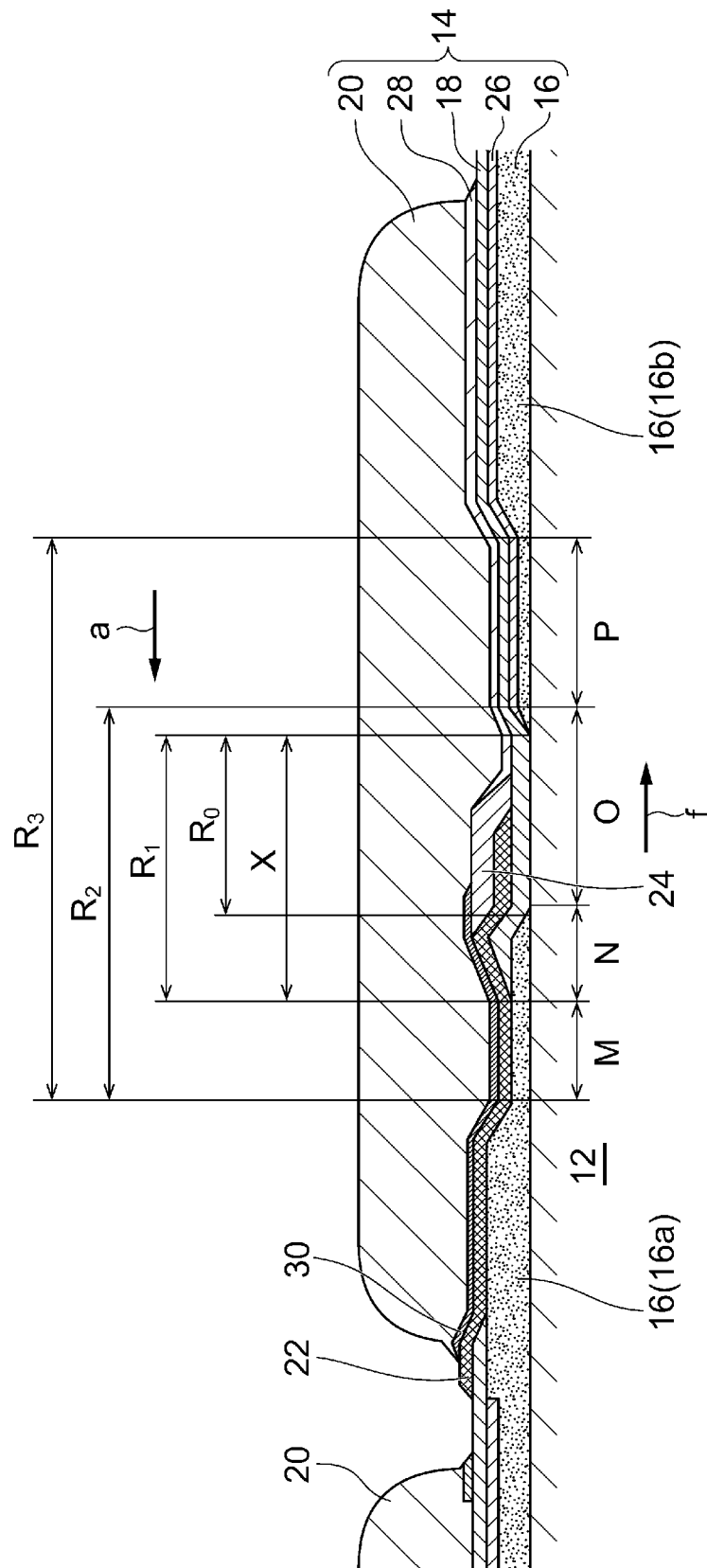
とを用いて回転動力を発生させる回転機器と、  
を備え、

前記燃料電池モジュールには、前記回転動力を用いて圧縮された前記酸化性ガスが供給され、前記燃料電池モジュールは、前記燃料ガスと前記圧縮された酸化性ガスを用いて発電することを特徴とする発電システム。

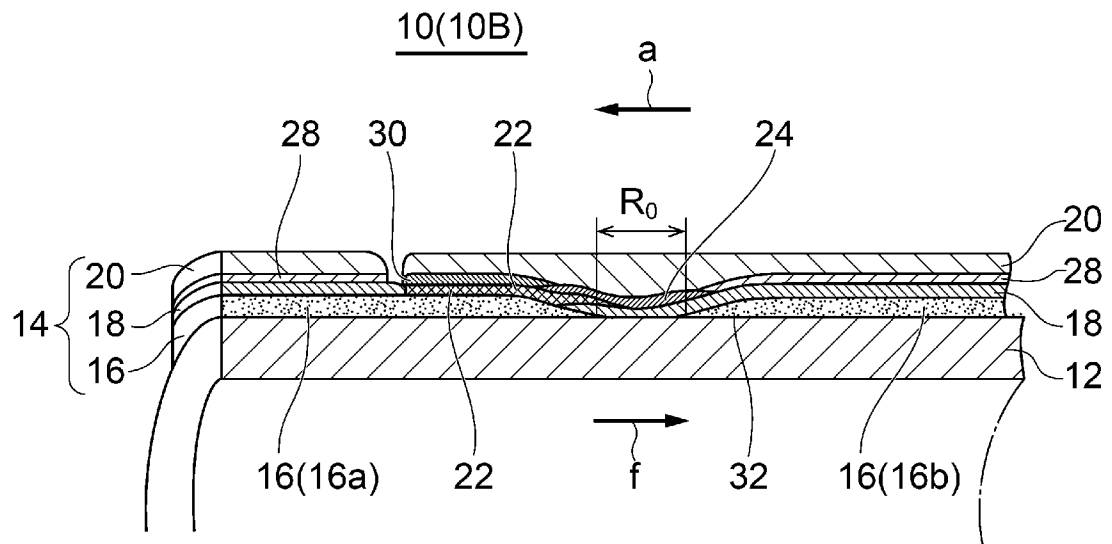
[請求項15] 前記回転機器は、ガスタービン又はターボチャージャで構成されることを特徴とする請求項14に記載の発電システム。

[請求項16] 基板上に、燃料側電極と、燃料側電極反応層と、固体電解質膜と、インタコネクタ膜とを成膜し焼結させて焼結体を得るステップと、  
前記焼結体上に、多孔質セラミック膜と、インタコネクタ中間層と、酸素側電極反応層と、酸素側電極とを成膜して焼成して焼成体を得るステップと、  
前記焼成体に還元処理を施すステップと  
を含む燃料電池セルスタックを作製する方法。

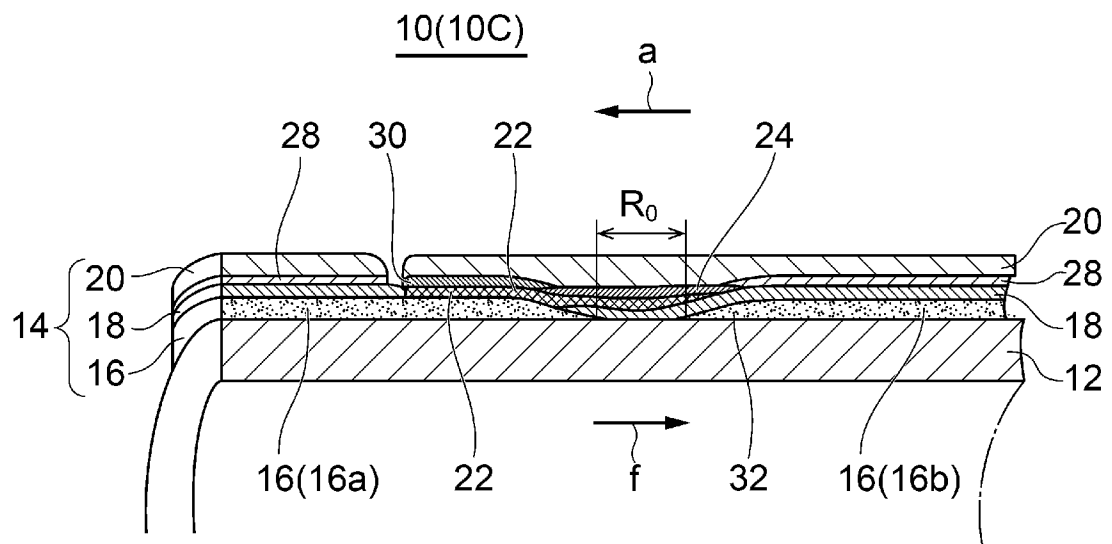
[図1]

10(10A)

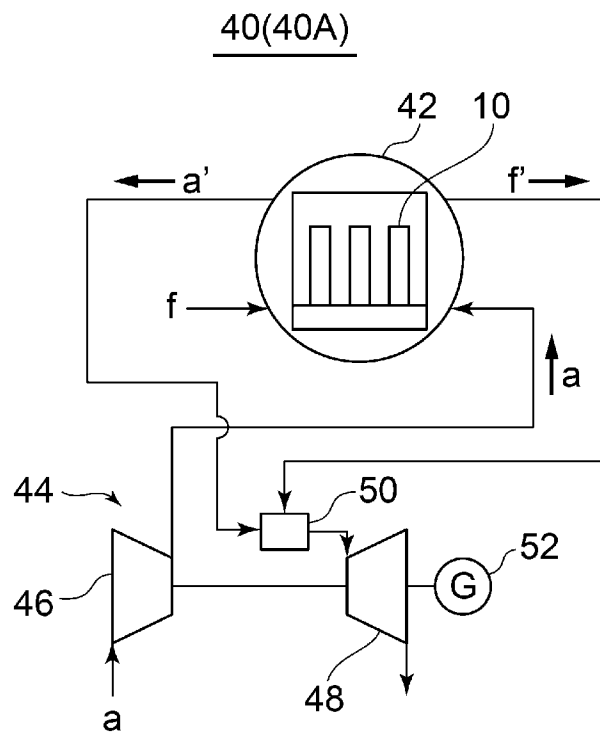
[図2]



[図3]



[図4]



[図5]

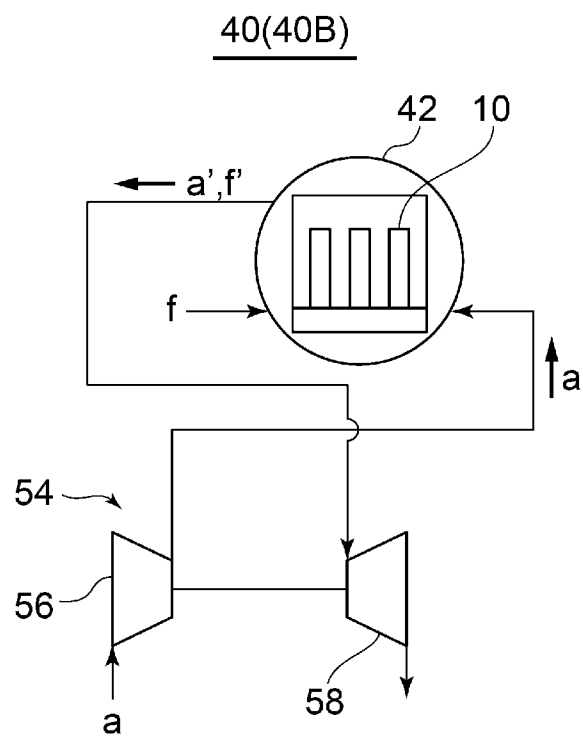


Figure 1 is a line graph showing the relationship between Average Voltage (V) on the Y-axis and Sealing Time on the X-axis. The Y-axis ranges from -0.2 to 1.4 V, and the X-axis represents time. Three curves are plotted: Example 1 (solid line), Example 2 (dash-dot line), and the Conventional Example (dotted line). All three curves show a sharp initial rise to a peak voltage of approximately 1.15 V, followed by a gradual decay. Example 1 maintains the highest voltage for the longest duration, followed by Example 2, and then the Conventional Example, which drops most rapidly.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/046130

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. H01M 8/04111 (2016.01) i, H01M 8/12 (2016.01) i, H01M 8/2428 (2016.01) i, H01M 8/2465 (2016.01) i

FI: H01M8/2465, H01M8/2428, H01M8/12 101, H01M8/04111, H01M8/12 102A

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. H01M8/04111, H01M8/12, H01M8/2428, H01M8/2465

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020

Registered utility model specifications of Japan 1996-2020

Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages            | Relevant to claim No. |
|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | JP 2017-183209 A (MITSUBISHI HITACHI POWER SYSTEMS, LTD.) 05 October 2017, paragraphs [0033], | 1-2, 6, 8-9, 12       |
| Y         | [0035], [0043], [0044], [0046], [0047], [0049],                                               | 10-11, 13-15          |
| A         | fig. 1, 3                                                                                     | 3-5, 7, 16            |
| X         | JP 2005-149995 A (NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED                                              | 1, 3                  |
| Y         | INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) 09 June 2005,                                              | 10-11, 13-15          |
| A         | paragraphs [0014], [0017], [0018], [0021], fig. 7                                             | 2, 4-9, 12, 16        |
| Y         | JP 2014-78455 A (NGK INSULATORS, LTD.) 01 May 2014, paragraph [0026]                          | 10-11, 13-15          |
| Y         | JP 2018-106887 A (MITSUBISHI HITACHI POWER SYSTEMS, LTD.) 05 July 2018, paragraph [0047]      | 11, 13-15             |



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
20.01.2020

Date of mailing of the international search report  
28.01.2020

Name and mailing address of the ISA/  
Japan Patent Office  
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,  
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2019/046130

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                 | Relevant to claim No. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y         | JP 2016-91968 A (MITSUBISHI HITACHI POWER SYSTEMS, LTD.) 23 May 2016, paragraphs [0049], [0064], [0087], fig. 2, 3 | 13-15                 |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2019/046130

| Patent Documents referred to in<br>the Report | Publication Date | Patent Family                                                                | Publication Date |
|-----------------------------------------------|------------------|------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| JP 2017-183209 A                              | 05.10.2017       | (Family: none)                                                               |                  |
| JP 2005-149995 A                              | 09.06.2005       | US 2005/0208355 A1<br>paragraphs [0083],<br>[0090]-[0096],<br>[0101], fig. 7 |                  |
| JP 2014-78455 A                               | 01.05.2014       | JP 5417516 B1                                                                |                  |
| JP 2018-106887 A                              | 05.07.2018       | (Family: none)                                                               |                  |
| JP 2016-91968 A                               | 23.05.2016       | US 2016/0133955 A1<br>paragraphs [0062],<br>[0077], [0100]                   |                  |

| A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））<br>H01M 8/04111(2016.01)i; H01M 8/12(2016.01)i; H01M 8/2428(2016.01)i; H01M 8/2465(2016.01)i<br>FI: H01M8/2465; H01M8/2428; H01M8/12 101; H01M8/04111; H01M8/12 102A                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------|-----------|------------|-------------|------------|-------------|------------|-------------|------------|
| B. 調査を行った分野                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））<br>H01M8/04111; H01M8/12; H01M8/2428; H01M8/2465                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの<br><table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table>                                                                                                                                                                               |                                                                                                                         |                                                                       | 日本国実用新案公報 | 1922-1996年 | 日本国公開実用新案公報 | 1971-2020年 | 日本国実用新案登録公報 | 1996-2020年 | 日本国登録実用新案公報 | 1994-2020年 |
| 日本国実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | 1922-1996年                                                                                                              |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国公開実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 1971-2020年                                                                                                              |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国実用新案登録公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 1996-2020年                                                                                                              |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 日本国登録実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 1994-2020年                                                                                                              |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| C. 関連すると認められる文献                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 引用文献の<br>カテゴリー*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                       | 関連する<br>請求項の番号                                                        |           |            |             |            |             |            |             |            |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | JP 2017-183209 A（三菱日立パワーシステムズ株式会社）05.10.2017（2017-10-05）<br>[0033], [0035], [0043]-[0044], [0046]-[0047], [0049], 図1, 3 | 1-2, 6, 8-9, 12                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                         | 10-11, 13-15                                                          |           |            |             |            |             |            |             |            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                         | 3-5, 7, 16                                                            |           |            |             |            |             |            |             |            |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | JP 2005-149995 A（独立行政法人産業技術総合研究所）09.06.2005（2005-06-09）<br>[0014], [0017]-[0018], [0021], 図7                            | 1, 3                                                                  |           |            |             |            |             |            |             |            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                         | 10-11, 13-15                                                          |           |            |             |            |             |            |             |            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                         | 2, 4-9, 12, 16                                                        |           |            |             |            |             |            |             |            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | JP 2014-78455 A（日本碍子株式会社）01.05.2014（2014-05-01）<br>[0026]                                                               | 10-11, 13-15                                                          |           |            |             |            |             |            |             |            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | JP 2018-106887 A（三菱日立パワーシステムズ株式会社）05.07.2018（2018-07-05）<br>[0047]                                                      | 11, 13-15                                                             |           |            |             |            |             |            |             |            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | JP 2016-91968 A（三菱日立パワーシステムズ株式会社）23.05.2016（2016-05-23）<br>[0049], [0064], [0087], 図2-3                                 | 13-15                                                                 |           |            |             |            |             |            |             |            |
| <input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| * 引用文献のカテゴリー<br>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの<br>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの<br>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）<br>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献<br>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの<br>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの<br>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの<br>“&” 同一パテントファミリー文献 |                                                                                                                         |                                                                       |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 国際調査を完了した日<br>20.01.2020                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                         | 国際調査報告の発送日<br>28.01.2020                                              |           |            |             |            |             |            |             |            |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁(ISA/JP)<br>〒100-8915<br>日本国<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                         | 権限のある職員（特許庁審査官）<br><br>小森 重樹 4X 4145<br><br>電話番号 03-3581-1101 内線 3477 |           |            |             |            |             |            |             |            |

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2019/046130

| 引用文献 |             |   | 公表日        | パテントファミリー文献            | 公表日 |
|------|-------------|---|------------|------------------------|-----|
| JP   | 2017-183209 | A | 05.10.2017 | (ファミリーなし)              |     |
| JP   | 2005-149995 | A | 09.06.2005 | US 2005/0208355 A1     |     |
|      |             |   |            | [0083], [0090]-[0096], |     |
|      |             |   |            | [0101], Fig. 7         |     |
| JP   | 2014-78455  | A | 01.05.2014 | JP 5417516 B1          |     |
| JP   | 2018-106887 | A | 05.07.2018 | (ファミリーなし)              |     |
| JP   | 2016-91968  | A | 23.05.2016 | US 2016/0133955 A1     |     |
|      |             |   |            | [0062], [0077],        |     |
|      |             |   |            | [0100], Figs. 2-3      |     |