

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7019817号

(P7019817)

(45)発行日 令和4年2月15日(2022.2.15)

(24)登録日 令和4年2月4日(2022.2.4)

(51)国際特許分類

F I

H 0 1 M	8/026(2016.01)	H 0 1 M	8/026
H 0 1 M	8/1213(2016.01)	H 0 1 M	8/1213
H 0 1 M	8/0258(2016.01)	H 0 1 M	8/0258
H 0 1 M	8/1226(2016.01)	H 0 1 M	8/1226
H 0 1 M	8/2428(2016.01)	H 0 1 M	8/2428

請求項の数 9 (全16頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2020-532504(P2020-532504)
(86)(22)出願日	令和1年7月26日(2019.7.26)
(86)国際出願番号	PCT/JP2019/029460
(87)国際公開番号	WO2020/022489
(87)国際公開日	令和2年1月30日(2020.1.30)
審査請求日	令和3年1月19日(2021.1.19)
(31)優先権主張番号	特願2018-141502(P2018-141502)
(32)優先日	平成30年7月27日(2018.7.27)
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)
(31)優先権主張番号	特願2018-201989(P2018-201989)
(32)優先日	平成30年10月26日(2018.10.26)
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)

(73)特許権者	000006633 京セラ株式会社 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地
(74)代理人	110002147 特許業務法人酒井国際特許事務所
(72)発明者	新地 崇大 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地 京セラ株式会社内
(72)発明者	内林 湊 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地 京セラ株式会社内
審査官	守安 太郎

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 燃料電池セル及びセルスタック装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第一主面及び該第一主面と反対側の第二主面を有し、内部にガス流路を有する支持基板と、前記第一主面上及び前記第二主面上に、互いに離れて配置された、少なくとも燃料極、固体電解質、および空気極が積層されている複数の素子部と、を備え、
前記ガス流路より前記第一主面側に位置する第一部位と、前記ガス流路より前記第二主面側に位置する第二部位とを有し、
前記支持基板の前記ガス流路に沿った断面視において、前記第二部位のガス流路壁の全長が、前記第一部位のガス流路壁の全長より小さい、セル。

【請求項 2】

前記断面視において、前記第一部位の前記ガス流路壁は波状である、請求項 1 に記載のセル。

【請求項 3】

前記支持基板の前記ガス流路に沿った断面視において、前記第二部位の各前記素子部における前記燃料極と前記固体電解質との界面の長さの和が、前記第一部位の各前記素子部における前記燃料極と前記固体電解質との界面の長さの和より小さい、請求項 1 または 2 に記載のセル。

【請求項 4】

第一主面及び該第一主面と反対側の第二主面を有し、内部にガス流路を有する支持基板と、前記第一主面上及び前記第二主面上に、互いに離れて配置された、少なくとも燃料極、固

体電解質、および空気極が積層されている複数の素子部と、を備え、
前記ガス流路より前記第一主面側に位置する第一部位と、前記ガス流路より前記第二主面側に位置する第二部位とを有し、
前記第二部位における前記支持基板の気孔率が、前記第一部位における前記支持基板の気孔率より低い、セル。

【請求項 5】

第一主面及び該第一主面と反対側の第二主面を有し、内部にガス流路を有する支持基板と、
前記第一主面上及び前記第二主面上に、互いに離れて配置された、少なくとも燃料極、固体電解質、および空気極が積層されている複数の素子部と、を備え、
前記ガス流路より前記第一主面側に位置する第一部位と、前記ガス流路より前記第二主面側に位置する第二部位とを有し、
前記支持基板の前記ガス流路から前記第二主面までの長さが、前記ガス流路から前記第一主面までの長さより大きい、セル。

10

【請求項 6】

複数の前記素子部が、前記第一主面上及び前記第二主面上に、それぞれ離間して配列され、隣り合う前記素子部の間にそれぞれ配置された、一方の前記素子部の燃料極と他方の前記素子部の空気極とを電氣的に接続する電氣的接続部を備える、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載のセル。

【請求項 7】

前記第一主面及び前記第二主面のうち少なくとも一方の主面上において、配列された前記複数の素子部のうち少なくとも 1 つの素子部が、前記主面上の前記複数の素子部が配列する方向と直交する方向において、他の素子部とは異なる位置に配置されている、請求項 6 に記載のセル。

20

【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載のセルを、複数個配列したセルスタックと、
前記セルを固定する固定部材と、を備える、セルスタック装置。

【請求項 9】

請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載のセルを、複数個配列したセルスタックと、
前記セルを固定する固定部材と、を備え、
少なくとも一つの前記セルの前記第二主面は、前記セルスタックの中心が位置する側と対面する、セルスタック装置。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池セル及びセルスタック装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、「ガス流路が内部に設けられた電子伝導性を有さない多孔質の支持基板」と、「支持基板の表面における互いに離れた複数の箇所にそれぞれ設けられ、燃料極、固体電解質、及び空気極が積層されてなる複数の発電素子部」と、「1 組又は複数組の隣り合う発電素子部の間にそれぞれ設けられ、隣り合う発電素子部の一方の燃料極と他方の空気極とを電氣的に接続する 1 つ又は複数の電氣的接続部」とを備えた燃料電池セルが知られている（例えば、特許文献 1 を参照）。以下、燃料電池セルを単にセルという場合がある。このような構成は、「横縞型」とも呼ばれる。当該セル内部のガス流路の一端より燃料ガスを導入し、当該セル外部の一端から酸素を含むガスを流すことにより発電を行うことが可能となる。

40

【0003】

セルスタック装置は、マニホールドと、複数のセルであるセルスタックとを備えている（例えば、特許文献 2 を参照）。各セルは、マニホールドから上方に延びるように、マニホールドに支持されている。各セルの各ガス流路に対して、マニホールドを介してガスが分

50

配される。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】特開2012-38718号公報

特開2017-201601号公報

【発明の概要】

【0005】

本開示のセルは、第一主面及び該第一主面と反対側の第二主面を有する平板状かつ長手方向を有する柱状であり、内部にガス流路を有する支持基板と、前記第一主面上及び前記第二主面上に、互いに離れて配置された、少なくとも燃料極、固体電解質、及び空気極が積層されている複数の素子部と、を備える。前記ガス流路より前記第一主面側に位置する第一部位と、前記ガス流路より前記第二主面側に位置する第二部位とを有し、前記第一部位と前記第二部位とは、構造が非対称である。

10

【図面の簡単な説明】

【0006】

【図1A】セルの例の1つを示す斜視図である。

【図1B】凹部内に燃料極、インターコネクタが埋設された状態の例の1つを示す平面図である。

【図2】図1Aに示すセルの断面図の例の1つである。

20

【図3】図1Aに示す燃料電池セルの作動状態の例の1つを説明するための図である。

【図4】図1Aに示すセルの断面図の例の1つである。

【図5】図1Aの支持基板の例の1つを示す斜視図である。

【図6A】図5の断面図である。

【図6B】図6Aの第1凹部内に各層を形成した状態の例の1つを示す断面図である。

【図7】セルの例の1つを示す斜視図である。

【図8】セルスタック装置の例の1つの概略説明図である。

【発明を実施するための形態】

【0007】

以下、本開示のセルについて燃料電池セルを例として説明する。

30

【0008】

(燃料電池セル)

図1Aは、本実施形態における燃料電池セル1を示す。セル1は、x軸方向に長手方向を有する柱状かつ平板状の支持基板10の上下面のそれぞれに、電氣的に直列に接続された複数の同形の発電素子部Aが長手方向において所定の間隔をおいて配列されている。支持基板10の上下面とは、互いに平行な両側の主面(平面)をである。図1Aにおいては、一方の主面に4つの発電素子部Aを有する例を示している。一方の主面を第一主面とし、他方の主面を第二主面とする。このセル1は、所謂「横編型」である。

【0009】

このセル1を上方からみた形状は、例えば、長手方向の辺の長さが5cm~50cmで、長手方向に直交する幅方向であるy軸方向の長さが1cm~10cmの長方形である。このセル1の厚さは、1mm~5mmである。以下、図1Aに加えて、このセル1の図1Aに示すセル1の長手方向における断面図である図2を参照しながら、このセル1の詳細について説明する。

40

【0010】

図2は、図1Aに示す燃料電池セル1の長手方向における断面図の一部である。言い換えれば、ガス流路11に沿った断面図の一部である。

【0011】

支持基板10は、電子伝導性を有さない、すなわち絶縁性の多孔質の材料からなる柱状かつ平板状の焼成体である。支持基板10の内部には、長手方向に延びる複数の貫通孔であ

50

るガス流路 11 が幅方向において所定の間隔をおいて位置している。図 1A に示す支持基板 10 は、6 つのガス流路 11 を有している。支持基板 10 の内部を流れるガスに曝される表面をガス流路壁 W とする。

【0012】

本実施形態では、支持基板 10 は主面の複数の箇所に、それぞれ第 1 凹部 12 を有している。各第 1 凹部 12 は、支持基板 10 の材料からなる底壁と、全周に亘って支持基板 10 の材料からなる周方向に閉じた側壁と、で画定された直方体状の窪みである。周方向に閉じた側壁とは、長手方向に沿う 2 つの側壁と幅方向に沿う 2 つの側壁である。図 2 における下側の主面が第一主面 101 であり、上側の主面が第二主面 102 である。

【0013】

支持基板 10 は、「遷移金属酸化物又は遷移金属」と、絶縁性セラミックスとを含む。「遷移金属酸化物又は遷移金属」としては、NiO（酸化ニッケル）又は Ni（ニッケル）であってもよい。遷移金属は、燃料ガスの改質反応を促す触媒、換言すれば炭化水素系のガスの改質触媒として機能し得る。

【0014】

絶縁性セラミックスは、MgO（酸化マグネシウム）、又は、「MgAl₂O₄（マグネシアアルミナスピネル）と MgO（酸化マグネシウム）の混合物」であってもよい。また、絶縁性セラミックスとして、CSZ（カルシア安定化ジルコニア）、YSZ（イットリア安定化ジルコニア、8YSZ という場合もある）、Y₂O₃（イットリア）が使用されてもよい。

【0015】

支持基板 10 が「遷移金属酸化物又は遷移金属」を含むことによって、改質前の残存ガス成分を含んだガスが上記触媒作用によって改質前の残存ガス成分の改質を促すことができる。加えて、支持基板 10 が絶縁性セラミックスを含むことによって、支持基板 10 の絶縁性を確保することができる。この結果、隣り合う燃料極間における絶縁性が確保され得る。

【0016】

支持基板 10 の厚さは、1mm～5mm であってもよい。以下、この構造が概ね上下対称となっているとし、説明の簡便化のため、支持基板 10 の上面側の構成についてのみ説明する。支持基板 10 の下面側も、一部形状は異なるが類似の構成を有している。

【0017】

図 2 に示すように、支持基板 10 の第二主面 102 に位置する各第 1 凹部 12 内には、燃料極集電部 21 の全体が充填され埋設されている。従って、各燃料極集電部 21 は直方体状である。各燃料極集電部 21 の上面である外側面には、第 2 凹部 21a がある。各第 2 凹部 21a は、図 1B に示すように、燃料極集電部 21 の材料からなる底壁と、周方向に閉じた側壁と、で画定された直方体状の窪みである。周方向に閉じた側壁のうち、長手方向である x 軸方向に沿う 2 つの側壁は支持基板 10 の一部であり、幅方向である y 軸方向に沿う 2 つの側壁は燃料極集電部 21 の一部である。

【0018】

各第 2 凹部 21a には、燃料極活性部 22 が充填され埋設されている。各燃料極活性部 22 は直方体状である。燃料極 20 は燃料極集電部 21 と燃料極活性部 22 とを含む。燃料極 20、すなわち燃料極集電部 21 及び燃料極活性部 22 は、電子伝導性を有する多孔質の焼成体である。各燃料極活性部 22 の幅方向である y 軸方向に沿う 2 つの側面と底面とは、第 2 凹部 21a 内で燃料極集電部 21 と接触している。

【0019】

各燃料極集電部 21 の上面である外側面における第 2 凹部 21a を除いた部分には、第 3 凹部 21b がある。各第 3 凹部 21b は、燃料極集電部 21 である底壁と、周方向に閉じた側壁と、で画定された直方体状の窪みである。周方向に閉じた側壁のうち、長手方向である x 軸方向に沿う 2 つの側壁は支持基板 10 の一部であり、幅方向である y 軸方向に沿う 2 つの側壁は燃料極集電部 21 の一部である。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 0 】

各第3凹部21bには、導電性の緻密質体であるインターコネクタ30が充填され埋設されている。各インターコネクタ30は直方体状である。インターコネクタ30は、電子伝導性を有する緻密な焼成体である。各インターコネクタ30の幅方向に沿う2つの側面と底面とは、第3凹部21b内で燃料極集電部21と接触している。

【 0 0 2 1 】

燃料極20、すなわち燃料極集電部21および燃料極活性部22の上面である外側面と、インターコネクタ30の上面である外側面と、支持基板10の第二主面102と、は各表面が面一となっている。

【 0 0 2 2 】

燃料極活性部22は、例えば、NiO（酸化ニッケル）とYSZ（イットリア安定化ジルコニア）とを含んでいてもよい。または、NiO（酸化ニッケル）とGDC（ガドリニウムドープセリア）とを含んでもよい。燃料極集電部21は、例えば、NiO（酸化ニッケル）とYSZ（イットリア安定化ジルコニア）を含んでいてもよい。または、NiO（酸化ニッケル）とY₂O₃（イットリア）とを含んでいてもよいし、NiO（酸化ニッケル）とCSZ（カルシア安定化ジルコニア）とを含んでいてもよい。燃料極活性部22の厚さは、5 μm ~ 30 μmであってもよい。燃料極集電部21の厚さ、すなわち第1凹部12の深さは、50 μm ~ 500 μmであってもよい。

【 0 0 2 3 】

燃料極集電部21は、電子伝導性である。燃料極活性部22は、電子伝導性と酸化性イオン（酸素イオン）伝導性とを有する。燃料極活性部22における「気孔部分を除いた全体積に対する酸化性イオン伝導性を有する物質の体積割合」は、燃料極集電部21における「気孔部分を除いた全体積に対する酸化性イオン伝導性を有する物質の体積割合」よりも多い。

【 0 0 2 4 】

インターコネクタ30は、例えば、LaCrO₃（ランタンクロマイト）を含んでいてもよい。または、(Sr, La)TiO₃（ストロンチウムチタネート）を含んでいてもよい。インターコネクタ30の厚さは、10 μm ~ 100 μmであってもよい。気孔率は10%以下であってもよい。

【 0 0 2 5 】

支持基板10における長手方向である発電素子部Aの配列方向に延びる外周面において、複数のインターコネクタ30の中央部を除いた全面は、固体電解質膜40により覆われていてもよい。固体電解質膜40は、イオン伝導性を有し且つ電子伝導性を有さない緻密な焼成体である。固体電解質膜40は、例えば、YSZ（イットリア安定化ジルコニア）を含んでいてもよい。または、LSGM（ランタンガレート）を含んでいてもよい。固体電解質膜40の厚さは、3 μm ~ 50 μmであってもよい。

【 0 0 2 6 】

支持基板10における長手方向に延びる外周面の全面は、インターコネクタ30と固体電解質膜40とからなる緻密層により覆われていてもよい。この緻密層は、緻密層の内側の空間を流れる燃料ガスと緻密層の外側の空間を流れる空気とを混合し難くするガスシール機能を有する。

【 0 0 2 7 】

図2に示すように、本実施形態では、固体電解質膜40が、燃料極集電部21及び燃料極活性部22である燃料極20の上面、インターコネクタ30の上面における長手方向の両側端部、および支持基板10の主面を覆っている。

【 0 0 2 8 】

固体電解質膜40における各燃料極活性部22と接している箇所の上面上には、図示しない反応防止膜を介して空気極60が位置する。反応防止膜は、緻密な焼成体である。空気極60は、電子伝導性を有する多孔質の焼成体である。反応防止膜および空気極60を上からみた形状は、燃料極活性部22と略同一の長方形である。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 9 】

反応防止膜は、例えば、 $(Ce, Gd)O_2$ (ガドリニウムドープセリア、GDC) を含んでいてもよい。反応防止膜の厚さは、 $3\mu m \sim 50\mu m$ であってもよい。空気極 60 は、例えば、 $(La, Sr)(Co, Fe)O_3$ (ランタンストロンチウムコバルトフェライト、LSCF) を含んでいてもよい。空気極 60 は、 $(La, Sr)FeO_3$ (ランタンストロンチウムフェライト、LSF)、 $La(Ni, Fe)O_3$ (ランタンニッケルフェライト、LNF)、 $(La, Sr)CoO_3$ (ランタンストロンチウムコバルタイト、LSC) 等を含んでいてもよい。空気極 60 は、LSCF からなる内側層である第 1 層と LSC からなる外側層である第 2 層との 2 層構造を有していてもよい。空気極 60 の厚さは、 $10\mu m \sim 100\mu m$ であってもよい。

10

【 0 0 3 0 】

反応防止膜が介装すると、セル作製時又は作動中のセル内において、固体電解質膜 40 内の YSZ と空気極 60 内の Sr とが反応し難くなり、固体電解質膜 40 と空気極 60 との界面に電気抵抗が大きい反応層が形成され難くなる。

【 0 0 3 1 】

図 2 に示すように、燃料極 20 と、固体電解質膜 40 と、空気極 60 とが積層された積層体が、「発電素子部 A」に対応する。発電素子部 A は反応防止膜を含んでもよい。支持基板 10 の第二主面には、複数 (本形態では、4 つ) の発電素子部 A が、長手方向に所定の間隔をおいて配置されている。

【 0 0 3 2 】

隣り合う発電素子部 A の間には、発電素子部 A の空気極 60 と、インターコネクタ 30 とを跨ぐように、空気極 60、固体電解質膜 40、および、インターコネクタ 30 の上面に、空気極集電部 70 が位置する。空気極集電部 70 は、電子伝導性を有する多孔質の焼成体である。空気極集電部 70 を上方からみた形状は、長方形である。

20

【 0 0 3 3 】

空気極集電部 70 は、例えば、 $(La, Sr)(Co, Fe)O_3$ (ランタンストロンチウムコバルトフェライト、LSCF) を含んでもよいし、 $(La, Sr)CoO_3$ (ランタンストロンチウムコバルタイト、LSC) を含んでもよい。また、空気極集電部 70 は、Ag (銀)、Ag-Pd (銀パラジウム合金) を含んでもよい。空気極集電部 70 の厚さは、 $50\mu m \sim 500\mu m$ であってもよい。空気極集電部 70 の気孔率は $20 \sim 60\%$ であってもよい。

30

【 0 0 3 4 】

隣り合う発電素子部 A は電子伝導性を有する「空気極集電部 70 およびインターコネクタ 30」を介して電氣的に接続される。支持基板 10 の上面に配置されている複数 (本形態では、4 つ) の発電素子部 A が電氣的に直列に接続される。電子伝導性を有する「空気極集電部 70 およびインターコネクタ 30」を含む「発電素子部 A」以外の部分を「電氣的接続部 B」とする。

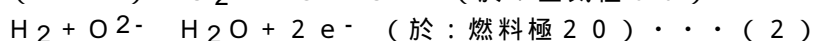
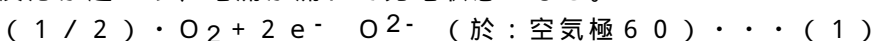
【 0 0 3 5 】

支持基板 10 のうちガス流路 11 側を「内側」とし、支持基板 10 のうちの発電素子部 A が配置されている面側を「外側」とする場合がある。

40

【 0 0 3 6 】

図 3 に示すように、支持基板 10 のガス流路 11 内を、支持基板 10 の長手方向における一端である第一端から他端である第二端へと水素ガス等の燃料ガスを流し、支持基板 10 の上下面、特に、各空気極集電部 70 上を第一端から第二端へと空気等の「酸素を含むガス」を流すことで、固体電解質膜 40 の両側面間に生じる酸素分圧の差により起電力が発生する。更に、この構造体を外部の負荷に接続すると、下記 (1)、(2) 式に示す化学反応が起こり、電流が流れて発電状態となる。



【 0 0 3 7 】

50

発電状態においては、図 2 に示すように、隣り合う発電素子部 A の間を、電流が太い矢印で示すように流れる。この結果、セル 1 全体から電力が取り出される。具体的には、図 3 において最も手前側の発電素子部 A のインターコネクタ 30 と最も奥側の発電素子部 A の空気極 60 とを介して電力が取り出される。各セル 1 は、表側と裏側とを電氣的に直列に接続するための集電部材を有していてもよい。

【0038】

ところで、セル 1 を複数個組み合わせたセルスタックを作製する場合に、セル 1 の両側において温度環境が異なる場合がある。それに伴って、一方の主面側と他方の主面側とで反応速度が異なるため局部的に劣化が進行しやすい部分が生じる。すなわち、セル 1 の耐久性が低下するおそれがあった。

【0039】

本開示のセル 1 は、ガス流路 11 より第一主面 101 側に位置する第一部位 1a と、ガス流路 11 より第二主面 102 側に位置する第二部位 1b とを有し、第一部位 1a と第二部位 1b は構造が非対称である。

【0040】

第一部位 1a と第二部位 1b の構造が非対称である例の 1 つとして、図 2 で示す実施形態のように、支持基板 10 のガス流路 11 に沿った断面視において、ガス流路壁 W の全長が、図 2 の下側に位置する第一主面 101 側の第一部位 1a と図 2 の上側に位置する第二主面 102 側の第二部位 1b とで異なってもよい。本実施形態においては、第二主面 102 側のガス流路壁 W2 の全長が第一主面 101 側のガス流路壁 W1 の全長より小さい。

【0041】

セル 1 を複数個組み合わせたセルスタックとする場合、温度が高い側にガス流路壁 W2 の全長が小さい第二主面 102 を対面させ、温度が低い側にガス流路壁 W1 の全長が大きい第一主面 101 を対面させるようにセル 1 を配置させることが可能となる。温度が低く上記の反応が起こりにくい側に第一主面 101 を対面させることで、燃料ガスが第一主面 101 側のガス流路壁 W1 に衝突する確率を高めることができるため、燃料ガスが支持基板 10 に取り込まれやすくなり、温度が低い側においては上記の反応が起こりやすくなる。温度が高く反応が起こりやすい側に第二主面 102 を対面させることで、燃料ガスが第二主面 102 側のガス流路壁 W2 に衝突する確率を低くすることができるため、燃料ガスが支持基板に取り込まれにくくなり、温度が高い側においては上記の反応が起こりにくくなる。従って、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル全体として耐久性が低下しにくくなる。

【0042】

図 2 の実施形態においては、上述する断面視において、第一主面 101 側のガス流路壁 W は波状である。この構成により、燃料ガスが第一主面 101 側のガス流路壁 W1 に衝突する確率を高めることができるため、燃料ガスが支持基板 10 に取り込まれやすくなり、温度が低い側において上記の反応が起こりやすくなる。なお、本実施形態のように第二主面 102 側のガス流路壁 W2 も同様に波状であってもよい。波状とは、上述する断面視において、ガス流路壁 W が蛇行する形状であることを意味する。

【0043】

ガス流路壁 W の全長は、図 2 で示すようなガス流路 11 に沿った断面写真におけるガス流路壁 W の長さを測定することで算出できる。ガス流路壁 W の全長とは、ガス流路 11 が延びる方向における直線長さではなく、ガス流路壁 W に沿った長さを意味する。図 2 の実施形態においては、第一主面 101 側のガス流路壁 W1 が第二主面 102 側のガス流路壁 W2 より大きく蛇行している波状であるため、第一主面 101 側のガス流路壁 W1 の全長が第二主面 102 側のガス流路壁 W2 の全長より大きくなっている。

【0044】

なお、本実施形態において第一主面 101 側のガス流路壁 W1 は、波状であるが、例えば、弧状であってもよい。

【0045】

10

20

30

40

50

第一主面 101 側のガス流路壁 W1 の全長が、第一主面 101 と第二主面 102 との中間に位置するガス流路壁 W の全長より大きくてもよい。この構成により、第一主面 101 に近いガス流路壁 W1 から燃料ガスを多く取り込むことができ、第一主面 101 側で上記の反応が起こりやすくなる。第一主面 101 と第二主面 102 との中間に位置するガス流路壁 W の全長は、図 2 における断面と直交する方向におけるガス流路 11 に沿った断面（各主面と平行かつガス流路 11 に沿った断面）から特定できる。第二主面 102 側のガス流路壁 W2 の全長が、第一主面 101 と第二主面 102 との中間に位置するガス流路壁 W の全長より大きくてもよい。

【0046】

図 2 の実施形態においては、支持基板 10 のガス流路 11 に沿った断面視において、第一主面 101 側の各発電素子部 A における燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和と、第二主面 102 側の各発電素子部 A における燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和とが異なってもよい。本実施形態においては、第二主面 102 側の各発電素子部 A における燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和が、第一主面 101 側の各発電素子部 A における燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和より小さい。

【0047】

セル 1 を複数個組み合わせたセルスタックとする場合、温度が高い側に燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和が小さい第二主面 102 を対面させ、温度が低い側に燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和が大きい第一主面 101 を対面させるようにセル 1 を配置させることが可能となる。この構成によっても、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル 1 全体として耐久性が低下しにくくなる。

【0048】

第一主面 101 側の燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和は、図 2 で示すようなガス流路 11 に沿った断面写真を基に、第一主面 101 側の各発電素子部 A の燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さを測定し、其々の長さを足した値である。第二主面 102 側の燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和も同様である。燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さとは、ガス流路 11 が延びる方向における直線の長さではなく、当該界面に沿った長さを意味する。図 2 の実施形態においては、第一主面 101 側の界面が第二主面 102 側の界面より大きくガス流路側に突出した形状であるため、第一主面 101 側の界面の長さは第二主面 102 側の界面の長さより大きい。

【0049】

なお、図 2 では、第一部位 1a のガス流路壁 W1 の全長と第二部位 1b のガス流路壁 W2 の全長とが異なり、かつ第一主面 101 側の燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和と、第二主面 102 側の燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和とが異なる例を示したが、流路壁の全長、及び燃料極 20 と固体電解質 40 との界面の長さの和のいずれか一方のみが、第一部位 1a と第二部位 1b とで異なってもよい。

【0050】

第一部位 1a と第二部位 1b は構造が非対称である例の 1 つとして、図 4 で示す実施形態のように、第一部位 1a における支持基板 10 の気孔率と第二部位 1b における支持基板 10 の気孔率とが異なってもよい。本実施形態においては、図 4 の下側に位置する第二部位 1b における支持基板 10 の気孔率が、図 4 の上側に位置する第一部位 1a における支持基板 10 の気孔率より低い。なお、図 4 では、上側に支持基板 10 の第一主面 101 が位置し、下側に支持基板 10 の第二主面 102 が位置している。図 4 では、支持基板 10 内部の気孔 10c を示している。

【0051】

セル 1 を複数個組み合わせたセルスタックとする場合、温度が高い側に気孔率が低い側である第二主面 102 を対面させ、温度が低い側に気孔率が高い側である第一主面 101 を対面させるようにセル 1 を配置させることができる。第一主面 101 側の支持基板 10 の気孔率は第二主面 102 側の支持基板 10 の気孔率より高いため、燃料ガスが支持基板 10 を透過して第一主面 101 側の燃料極 20 まで到達しやすくなり、ひいては第一主面 1

10

20

30

40

50

0 1 側における発電素子部 A での上述した反応が起こりやすくなる。すなわち、温度が低く反応が起こりにくい側に支持基板 1 0 の第一主面 1 0 1 を対面させることで上述した反応が起こりやすくなる。温度が高く反応が起こりやすい側に第二主面 1 0 2 を対面させることで温度が高い側においては上述した反応が起こりにくくなる。従って、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル全体として耐久性が低下しにくくなる。

【 0 0 5 2 】

支持基板 1 0 の気孔率は次に記載の方法で分析できる。まず、支持基板 1 0 の幅方向の長さを四等分するように、支持基板 1 0 の長手方向すなわちガス流路 1 1 に沿った分断線を三本引く。次いで、其々の分断線に幅方向において最も近いガス流路 1 1 を其々特定する。次いで、特定された三つの其々のガス流路 1 1 を含む支持基板 1 0 の断面を三つ得る。次いで、得られた断面における画像を走査型電子顕微鏡にて取得する。次いで、取得した画像のうち気孔 1 0 c の部分と気孔 1 0 c ではない部分とを区別できるように二値化処理を行う。次いで、各断面における、第一主面 1 0 1 側の支持基板 1 0 の領域のうち気孔 1 0 c が占める割合、及び第二主面 1 0 2 側の支持基板 1 0 の領域のうち気孔 1 0 c が占める割合を算出する。次いで、各断面において算出した気孔 1 0 c が占める割合から、第一部位 1 a における支持基板 1 0 の平均気孔率及び第二部位 1 b における支持基板 1 0 の平均気孔率を算出する。

10

【 0 0 5 3 】

支持基板 1 0 の第一主面 1 0 1 側と第二主面 1 0 2 側との気孔率を調整する方法を説明する。一つの方法として、支持基板の成形体 1 0 g の第二主面 1 0 2 の表面に焼結助剤を塗布し、その後焼成することで実現できる。第二主面 1 0 2 側の支持基板 1 0 が第一主面 1 0 1 側より緻密となり、すなわち第一主面 1 0 1 側の支持基板 1 0 より第二主面 1 0 2 側の支持基板 1 0 の気孔率を低くできる。

20

【 0 0 5 4 】

図 4 の実施形態のように、支持基板 1 0 のガス流路 1 1 から第一主面 1 0 1 までの長さとしてガス流路 1 1 から第二主面 1 0 2 までの長さとして異なってもよい。本実施形態においては、支持基板 1 0 のガス流路 1 1 から第二主面 1 0 2 までの長さが、ガス流路 1 1 から第一主面 1 0 1 までの長さより大きい。

【 0 0 5 5 】

すなわち、セル 1 を複数個組み合わせたセルスタックとする場合、温度が高い側に第二主面 1 0 2 を対面させ、温度が低い側に第一主面 1 0 1 を対面させるようにセル 1 を配置させることができる。ガス流路 1 1 から第一主面 1 0 1 までの支持基板 1 0 の長さがガス流路 1 1 から第二主面 1 0 2 までの支持基板 1 0 の長さより小さいため、燃料ガスが支持基板 1 0 を透過して第一主面 1 0 1 側の燃料極 2 0 まで到達しやすくなり、ひいては第一主面 1 0 1 側における発電素子部 A で上述した反応が起こりやすくなる。すなわち、温度が低く反応が起こりにくい側に支持基板 1 0 の第一主面 1 0 1 を対面させることで上述した反応が起こりやすくなる。温度が高く反応が起こりやすい側に第二主面 1 0 2 を対面させることで温度が高い側においては上述した反応が起こりにくくなる。従って、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル全体として耐久性が低下しにくくなる。

30

【 0 0 5 6 】

ガス流路 1 1 から第一主面 1 0 1 までの長さ及びガス流路 1 1 から第二主面 1 0 2 までの長さは、次に記載の方法で分析できる。まず、支持基板 1 0 の幅方向の長さを四等分するように、支持基板 1 0 の長手方向すなわちガス流路 1 1 に沿った分断線を三本引く。次いで、其々の分断線に幅方向において最も近いガス流路 1 1 を其々特定する。次いで、特定された三つの其々のガス流路 1 1 を含む支持基板 1 0 の断面を三つ得る。次いで、得られた断面における画像を走査型電子顕微鏡にて取得する。次いで、取得した画像のうち気孔 1 0 c を含めた支持基板 1 0 の領域を特定する。次いで、各断面における、第一主面 1 0 1 側の支持基板 1 0 の領域の面積の値、及び第二主面 1 0 2 側の支持基板 1 0 の領域の面積の値を算出する。次いで、各断面において算出した値から、第一部位 1 a における支持基板 1 0 の平均面積値及び第二部位 1 b における支持基板 1 0 の平均面積値を算出する

40

50

。第一部位 1 a における支持基板 1 0 の平均面積値と第二部位 1 b における支持基板 1 0 の平均面積値との比率を、支持基板 1 0 のガス流路 1 1 から其々の主面までの長さの比率とみなす。

【 0 0 5 7 】

なお、図 4 では、第一部位 1 a の支持基板 1 0 の気孔率と第二部位 1 b の支持基板 1 0 の気孔率とが異なり、かつガス流路 1 1 から第一主面 1 0 1 までの長さでガス流路 1 1 から第二主面 1 0 2 までの長さとは異なる例を示したが、支持基板 1 0 の気孔率、及びガス流路 1 1 から主面までの長さのいずれか一方のみが、第一部位 1 a と第二部位 1 b とで異なっているもよい。

【 0 0 5 8 】

セル 1 が、平板状の支持基板 1 0 の第一主面 1 0 1 上に第一発電素子部 A 1 を有し、第二主面 1 0 2 上に第二発電素子部 A 2 を有する場合、第一発電素子部 A 1 と第二発電素子部 A 2 とが非対称な位置に配置されていてもよい。すなわち、第一発電素子部 A 1 と第二発電素子部 A 2 とが対称の位置に配置されていなくてもよい。

【 0 0 5 9 】

次に、図 1 に示した「横縞型」のセル 1 の製造方法の一例について図 5、図 6 A 及び図 6 B を参照しながら簡単に説明する。図 5、図 6 A 及び図 6 B において、各部材の符号の末尾の「g」は、その部材が「焼成前」であることを表す。

【 0 0 6 0 】

まず、図 5 に示す形状を有する支持基板の成形体 1 0 g を作製する。この支持基板の成形体 1 0 g は、例えば、支持基板 1 0 の材料、例えば、NiO と MgO とを含む粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、押し出し成形、切削等の手法を利用して作製できる。

【 0 0 6 1 】

支持基板 1 0 のガス流路壁の形状を波状とする方法を以下で説明する。一つの方法として、押し出し成形により支持基板の成形体 1 0 g を作成するにあたって、所謂、プランジャー押し出し機を用いて、所望の密度差を有する支持基板の成形体 1 0 g の材料を仕込み、押し出し成形することでも実現できる。すなわち、密度が高い部分においては比較的焼結し易いため、当該部分においては内部に向けてより収縮し、ガス流路のガス流路壁面がより内側へと寄ることとなる。一方、密度が比較的低い場合には比較的焼結しにくく、ガス流路のガス流路壁面が比較的外部側へと寄ることとなる。

【 0 0 6 2 】

次に、図 6 B に示すように、支持基板の成形体 1 0 g の上下面に形成された各第 1 凹部内に、燃料極集電部の成形体 2 1 g をそれぞれ配置する。次いで、各燃料極集電部の成形体 2 1 g の外側面に形成された各第 2 凹部に、燃料極活性部の成形体 2 2 g をそれぞれ配置する。また、各燃料極集電部の成形体 2 1 g、および各燃料極活性部 2 2 g は、例えば、燃料極 2 0 の材料、例えば、Ni と YSZ とを含む粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、印刷法等を利用して配置する。

【 0 0 6 3 】

続いて、各燃料極集電部の成形体 2 1 g の外側面における「燃料極活性部の成形体 2 2 g が埋設された部分を除いた部分」に形成された各第 3 凹部に、インターコネクタの成形体 3 0 g をそれぞれ配置する。各インターコネクタの成形体 3 0 g は、例えば、インターコネクタ 3 0 の材料、例えば、LaCrO₃ の粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、印刷法等を利用して配置する。

【 0 0 6 4 】

次に、支持基板の成形体 1 0 g における長手方向に延びる外周面において複数のインターコネクタの成形体 3 0 g が配置されたそれぞれの部分の中央部を除いた全面に、固体電解質膜の成形膜を設ける。固体電解質膜の成形膜は、例えば、固体電解質膜 4 0 の材料、例えば、YSZ の粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、印刷法、ディッピング法等を利用する。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 5 】

次に、固体電解質膜の成形体における各燃料極の成形体と接している箇所の外側面に、反応防止膜の成形膜を設ける。各反応防止膜の成形膜は、例えば、反応防止膜の材料、例えば、GDCの粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、印刷法等を利用する。

【 0 0 6 6 】

そして、このように種々の成形膜が設けられた状態の支持基板の成形体10gを焼成する。この際に、第一主面101側を第二主面102側より高温にすることで、第一主面101側のうち密度が高い部分の支持基板10がより焼結しやすくなり、当該部分においては内部に向けてより収縮し、ガス流路11のガス流路壁面がより内部側へと寄ることとなる。これにより、第一主面101側のガス流路壁W1が第二主面102側のガス流路壁W2より大きく蛇行する波状とすることができる。例えば、第一主面101側を1500とし、第二主面102側を1450として3時間焼成する。また、支持基板10の焼結による形状変形に追従して燃料極20と固体電解質40との界面も一部がガス流路11側に突出することとなる。

10

【 0 0 6 7 】

なお、燃料極20と固体電解質40との界面も一部をガス流路側に突出させた形状とした場合には、当該形状を有した成形体を作製することでも実現できる。

【 0 0 6 8 】

次に、各反応防止膜の外側面に、空気極の成形膜を形成する。各空気極の成形膜は、例えば、空気極60の材料、例えば、LSCFの粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、印刷法等を利用して設ける。

20

【 0 0 6 9 】

次に、各組の隣り合う発電素子部Aについて、空気極の成形膜、固体電解質膜40、および、インターコネクタ30の外側面に、一方の発電素子部Aの空気極の成形膜と、他方の発電素子部Aのインターコネクタ30とを跨ぐように、空気極集電部の成形膜を設ける。

【 0 0 7 0 】

空気極集電部70の材料、例えば、LSCFの粉末にバインダー等が添加されて得られるスラリーを用いて、所望の形状（厚み）とした空気極集電部の成形膜を、印刷法等により空気極の成形膜等の外側面に設けることができる。

30

【 0 0 7 1 】

そして、このように成形膜が形成された状態の支持基板10を、例えば、空気中にて1050で3時間焼成する。これにより、図1に示したセルを得る。

【 0 0 7 2 】

なお、図7に示すように、第一主面101及び第二主面102のうち少なくとも一方の主面上において、長手方向すなわちx軸方向に配列された複数の発電素子部Aのうち少なくとも1つの発電素子部Aは、主面上の複数の発電素子部Aが配列する方向と直交する方向において、他の発電素子部Aとは異なる位置に配置されていてもよい。言い換えれば、第一主面101及び第二主面102のうち少なくとも一方の主面上において、複数の発電素子部Aのうち少なくとも1つの発電素子部Aの幅方向すなわちy軸方向の位置が、他の発電素子部Aとずれていてもよい。複数の発電素子部Aのy軸方向の位置がそれぞれ異なってもよい。

40

【 0 0 7 3 】

一般に、上述した反応が生じる発電素子部Aは比較的に温度が高い。そのため、支持基板10の幅方向における中央部に沿って発電素子部Aが配列されると、セル1の幅方向の中央部の温度が特に高くなる。少なくとも1つの発電素子部Aの幅方向の位置が他の発電素子部Aとずれていることにより、幅方向において温度分布に偏りが生じにくくなる。ひいては、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル1全体として耐久性が低下しにくくなる。

【 0 0 7 4 】

50

(セルスタック装置)

図 8 はセルスタック装置の概略説明図である。図 8 のセルスタック装置 8 0 は、セルスタック 8 1 と固定部材 8 2 とを備える。セルスタック 8 1 は、複数個のセル 1 を有しており、各セル 1 は支持基板 1 0 の主面同士が対向する方向に複数個配列されている。固定部材 8 2 はセル 1 の長手方向における一端側を固定する部材である。固定部材 8 2 はセル 1 のガス流路 1 1 に供給する燃料ガスを貯留するガス貯留空間を内部に有している。セルスタック装置 8 0 はガス貯留空間に燃料ガスを供給する燃料ガス供給管 8 3 を備えている。

【 0 0 7 5 】

各セル 1 の間には 歯状の接続部材 8 4 が配置されている。このようなセルスタック装置 8 0 は、配列されたすべてのセル 1 を接続部材 8 4 により電氣的に直列に接続でき、効率よく所望の発電量を得ることができる。セル 1 の本数は、所望の発電量に応じて適宜調整すればよい。

【 0 0 7 6 】

各セル 1 は、固定部材 8 2 に、例えば、例えばガラス等の絶縁性の接着剤などにより固定されている。固定部材 8 2 は、耐熱性を有する材質で作製すればよく、例えばケイ素、鉄、酸化チタン、酸化アルミニウムなどからなる金属や耐熱性を有するセラミックス等の材質から作製することができる。

【 0 0 7 7 】

ところで、図 8 で示すセルスタック装置 8 0 のセルスタック 8 1 のように、列状に複数のセル 1 が配置されている場合には、セル 1 の配列方向すなわち z 軸方向におけるセルスタック 8 1 の中心が比較的溫度が高くなる。ゆえに、図 2、図 4 で示す実施形態におけるセル 1 を用いて図 8 で示すセルスタック装置 8 0 を組み上げる場合には、第二主面 1 0 2 を配列方向におけるセルスタック 8 1 の中心 8 1 C が位置する側と対面するように、すなわち第一主面 1 0 1 をセルスタック 8 1 の中心が位置する側と反対の側と対面するようにセル 1 を配置させることができる。このような構成とすることで、局部的に劣化が進行しやすい部分が生じにくくなり、セル 1 全体の耐久性が低下しにくくなる。

【 0 0 7 8 】

図 8 で示すように、例えば、セルスタック 8 1 のうち最も左に位置するセル 1 の第二主面 1 0 2 はセルスタック中心 8 1 C が位置する側と対面しており、言い換えると、当該セル 1 の第一主面 1 0 1 はセルスタック中心 8 1 C が位置する側と反対側と対面している。

【 0 0 7 9 】

(燃料電池モジュール)

本発明の燃料電池モジュールは、上述したようなセルスタック装置 8 0 を収納容器内に収納することにより構成される。それにより、耐久性の高い燃料電池モジュールとすることができる。

【 0 0 8 0 】

なお、本発明は以上の実施形態に限定されるものではなく、請求の範囲に記載の範囲内において、種々の改善や変更が可能である。例えば、上記形態ではいわゆる横縞型と呼ばれるセルを用いて説明したが、一般に縦縞型と呼ばれる複数の発電素子部を支持基板上に設けてなる縦縞型のセルを用いることもできる。また、上記の説明では、「セル」、「セルスタック装置」、「モジュール」及び「モジュール収納装置」の例の 1 つとして燃料電池セル、燃料電池セルスタック装置、燃料電池モジュール及び燃料電池装置を示したが、他の例としてはそれぞれ、電解セル、電解セルスタック装置、電解モジュール及び電解装置であってもよい。

【符号の説明】

【 0 0 8 1 】

1 セル

1 a 第一部位

1 b 第二部位

A 素子部

10

20

30

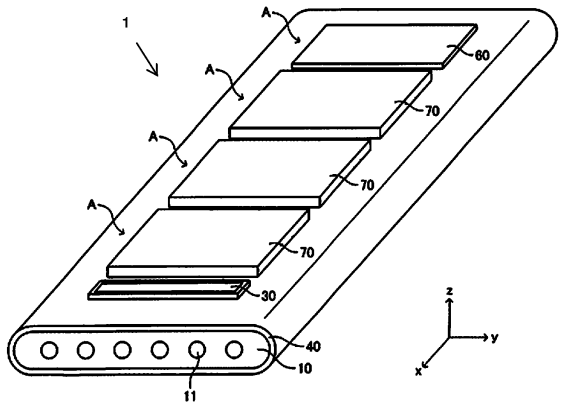
40

50

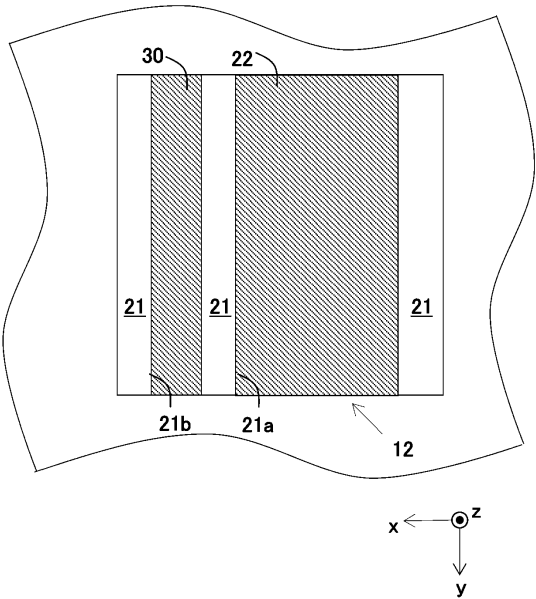
- B 電氣的接續部
- 1 0 支持基板
- 1 0 1 第一主面
- 1 0 2 第二主面
- 1 1 ガス流路
- W ガス流路壁
- 2 0 燃料極
- 4 0 固体電解質
- 6 0 空氣極
- 7 0 空氣極集電部
- 8 0 セルスタック装置
- 8 1 セルスタック
- 8 1 C セルスタック中央
- 8 2 固定部材

【図面】

【図 1 A】



【図 1 B】



10

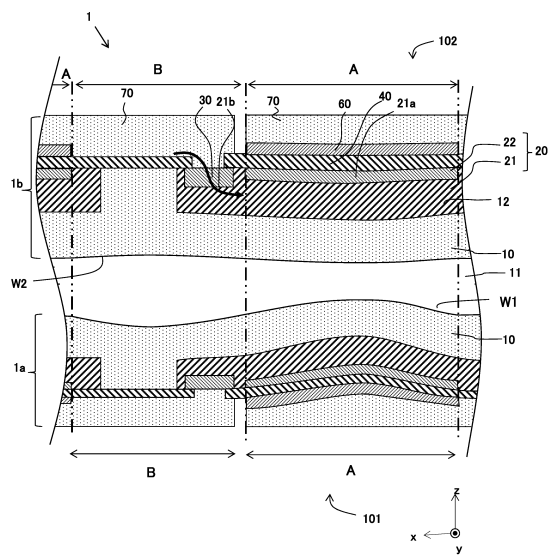
20

30

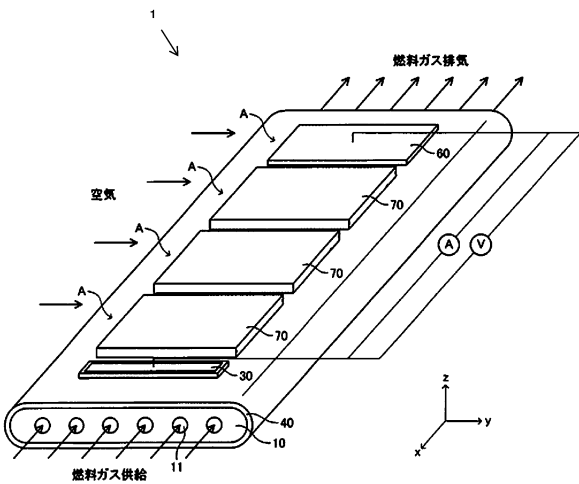
40

50

【図 2】



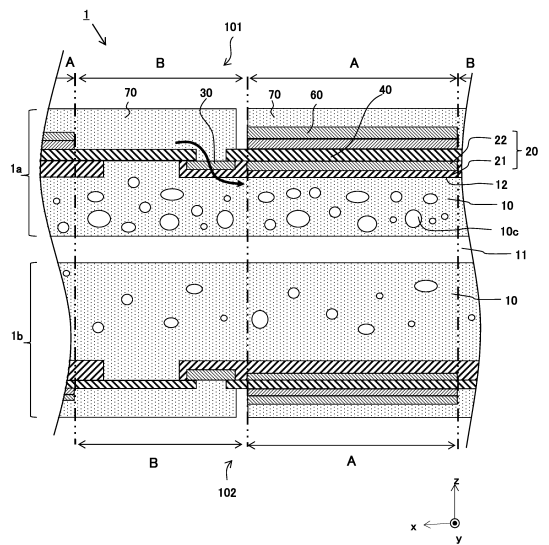
【図 3】



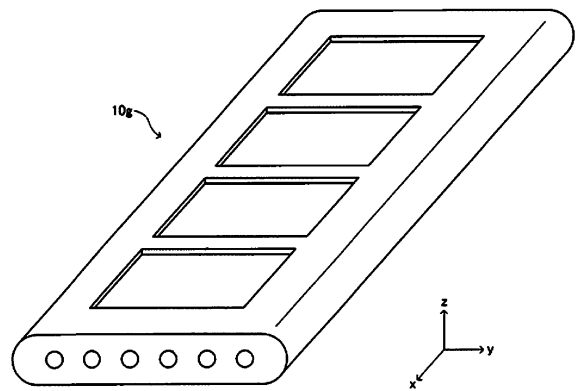
10

20

【図 4】



【図 5】

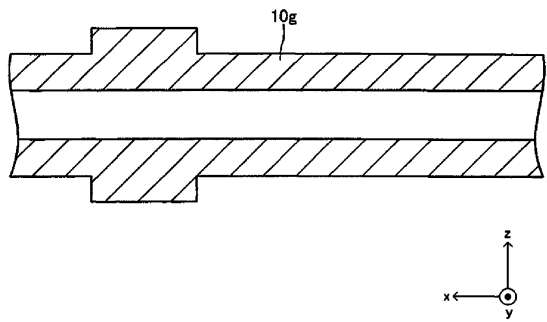


30

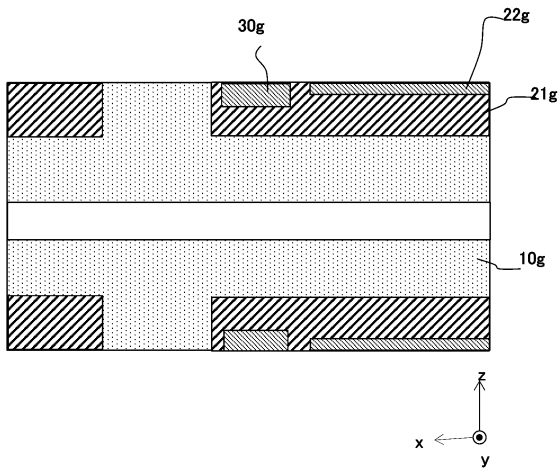
40

50

【図 6 A】

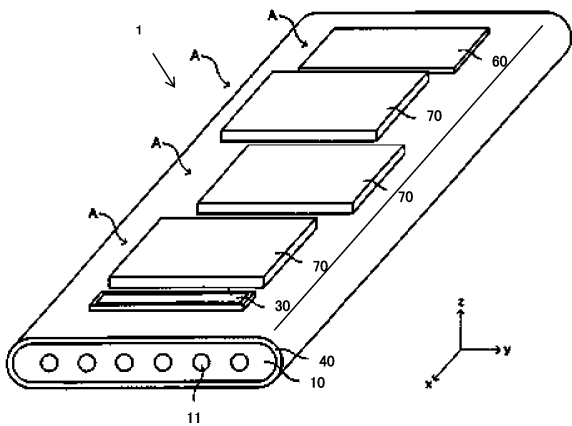


【図 6 B】

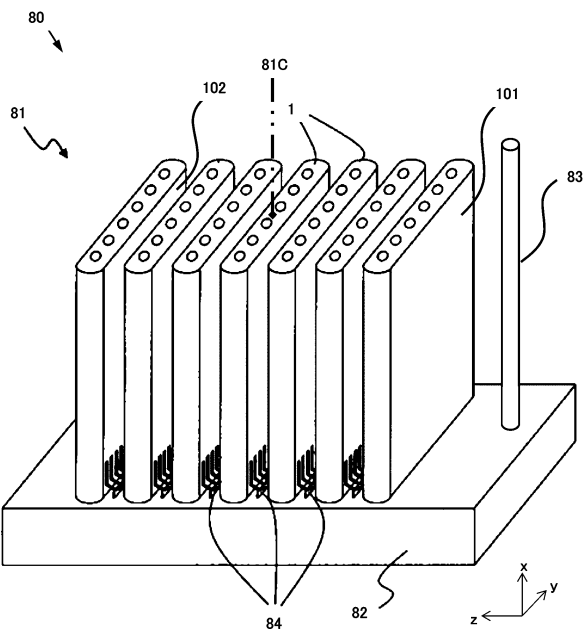


10

【図 7】



【図 8】



20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

H 0 1 M 8/243(2016.01)

H 0 1 M 8/243

H 0 1 M 8/2465(2016.01)

H 0 1 M 8/2465

H 0 1 M 8/12 (2016.01)

H 0 1 M 8/12 1 0 1

H 0 1 M 8/12 1 0 2 C

(56)参考文献

特開 2 0 1 1 - 2 4 9 2 4 2 (J P , A)

特開 2 0 1 5 - 1 7 0 4 5 3 (J P , A)

国際公開第 2 0 0 4 / 0 8 2 0 5 8 (W O , A 1)

国際公開第 2 0 1 2 / 0 1 5 0 5 1 (W O , A 1)

特開 2 0 1 7 - 0 6 2 9 7 9 (J P , A)

国際公開第 2 0 1 8 / 1 9 9 0 9 5 (W O , A 1)

(58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)

H 0 1 M 8 / 0 2

H 0 1 M 8 / 2 4

H 0 1 M 8 / 1 2