

(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

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
(72)発明者	内林 淳 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地
審査官	京セラ株式会社内 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

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。

【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気的に接続する電気的接続部を備える、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。

【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。

【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気的に接続する 1 つ又は複数の電気的接続部」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。

【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

10

20

30

40

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、電気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もつて配列されている。支持基板10の上下面とは、互いに平行な両側の主面(平面)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「横縞型」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もてて位置している。図 1 A 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。

【 0 0 1 2 】

本実施形態では、支持基板 10 は正面の複数箇所に、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、周間に亘って支持基板 10 の材料からなる周方向に閉じた側壁と、で囲ま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 における下側の正面が第一正面 101 であり、上側の正面が第二正面 102 である。

【 0 0 1 3 】

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。

【 0 0 1 4 】

絶縁性セラミックスは、MgO (酸化マグネシウム)、又は、「MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (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)、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (イットリア) が使用されてもよい。

【 0 0 1 5 】

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における絶縁性が確保され得る。

【 0 0 1 6 】

支持基板 10 の厚さは、1 mm ~ 5 mm 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。

【 0 0 1 7 】

図 2 に示すように、支持基板 10 の第二正面 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 1 B 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、で囲ま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。

【 0 0 1 8 】

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。

【 0 0 1 9 】

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、で囲ま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

## 【0020】

各第3凹部21bには、導電性の緻密質体であるインターロネクタ30が充填され埋設されている。各インターロネクタ30は直方体状である。インターロネクタ30は、電子伝導性を有する緻密な焼成体である。各インターロネクタ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。

## 【0021】

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、インターロネクタ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。

## 【0022】

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Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(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、5μm～30μm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、50μm～500μmであってもよい。

10

## 【0023】

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。

20

## 【0024】

インターロネクタ30は、例えば、LaCrO<sub>3</sub>(ランタンクロマイト)を含んでいてもよい。または、(Sr, La)TiO<sub>3</sub>(ストロンチウムチタネート)を含んでいてもよい。インターロネクタ30の厚さは、10μm～100μmであってもよい。気孔率は10%以下であってもよい。

## 【0025】

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、複数のインターロネクタ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、3μm～50μmであってもよい。

30

## 【0026】

支持基板10における長手方向に延びる外周面の全面は、インターロネクタ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。

40

## 【0027】

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、インターロネクタ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。

## 【0028】

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を上方からみた形状は、燃料極活性部22と略同一の長方形である。

50

## 【0029】

反応防止膜は、例えば、(Ce, Gd)O<sub>2</sub>(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 μm~50 μmであってもよい。空気極60は、例えば、(La, Sr)(Co, Fe)O<sub>3</sub>(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<sub>3</sub>(ランタンストロンチウムフェライト、LSF)、La(Ni, Fe)O<sub>3</sub>(ランタンニッケルフェライト、LNF)、(La, Sr)CoO<sub>3</sub>(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層構造を有してもよい。空気極60の厚さは、10 μm~100 μmであってもよい。

10

## 【0030】

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。

## 【0031】

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置いて配置されている。

20

## 【0032】

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、インターロネクタ30とを跨ぐように、空気極60、固体電解質膜40、および、インターロネクタ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。

## 【0033】

空気極集電部70は、例えば、(La, Sr)(Co, Fe)O<sub>3</sub>(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<sub>3</sub>(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 μm~500 μmであってもよい。空気極集電部70の気孔率は20~60%であってもよい。

30

## 【0034】

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およびインターロネクタ30」を介して電気的に接続される。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が電気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およびインターロネクタ30」を含む「発電素子部A」以外の部分を「電気的接続部B」とする。

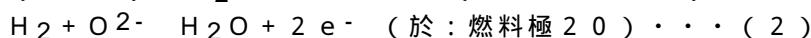
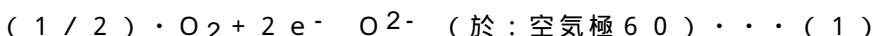
## 【0035】

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

## 【0036】

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。



## 【0037】

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のインターフェクタ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、表側と裏側とを電気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、一方の正面側と他方の正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。

10

#### 【0039】

本開示のセル1は、ガス流路11より第一正面101側に位置する第一部位1aと、ガス流路11より第二正面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正面101側の第一部位1aと図2の上側に位置する第二正面102側の第二部位1bとで異なっていてもよい。本実施形態においては、第二正面102側のガス流路壁W2の全長が第一正面101側のガス流路壁W1の全長より小さい。

20

#### 【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正面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正面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となる。温度が低く上記の反応が起こりにくい側に第一正面101を対面させることで、燃料ガスが第一正面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とため、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正面102を対面させることで、燃料ガスが第二正面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とため、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。

30

#### 【0042】

図2の実施形態においては、上述する断面視において、第一正面101側のガス流路壁Wは波状である。この構成により、燃料ガスが第一正面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とため、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正面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。

40

#### 【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が伸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、第一正面101側のガス流路壁W1が第二正面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、第一正面101側のガス流路壁W1の全長が第二正面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正面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】

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いてよい。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。

10

#### 【 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できるとなる。この構成によつても、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。

20

#### 【 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。

30

#### 【 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、かつ第一部位 1a 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 とで異なっていてよい。

#### 【 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いてよい。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 の第一部位 1a 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。

40

#### 【 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部位 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。第一部位 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 を透過して第一部位 101 側の燃料極 20 まで到達しやすくなり、ひいては第一部位 1

50

01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10の第一主面101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102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。

#### 【0052】

支持基板10の気孔率は次に記載の方法で分析できる。まず、支持基板10の幅方向の長さを四等分するように、支持基板10の長手方向すなわちガス流路11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11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11を含む支持基板10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10cの部分と気孔10c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101側の支持基板10の領域のうち気孔10cが占める割合、及び第二主面102側の支持基板10の領域のうち気孔10c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10cが占める割合から、第一部位1aにおける支持基板10の平均気孔率及び第二部位1bにおける支持基板10の平均気孔率を算出する。

#### 【0053】

支持基板10の第一主面101側と第二主面102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10gの第二主面102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102側の支持基板10が第一主面101側より緻密となり、すなわち第一主面101側の支持基板10より第二主面102側の支持基板10の気孔率を低くできる。

#### 【0054】

図4の実施形態のように、支持基板10のガス流路11から第一主面101までの長さとガス流路11から第二主面102までの長さとが異なっていてもよい。本実施形態においては、支持基板10のガス流路11から第二主面102までの長さが、ガス流路11から第一主面101までの長さより大きい。

#### 【0055】

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102を対面させ、温度が低い側に第一主面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。ガス流路11から第一主面101までの支持基板10の長さがガス流路11から第二主面102までの支持基板10の長さより小さいため、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101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10の第一主面101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102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。

#### 【0056】

ガス流路11から第一主面101までの長さ及びガス流路11から第二主面102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10の幅方向の長さを四等分するように、支持基板10の長手方向すなわちガス流路11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11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11を含む支持基板10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10cを含めた支持基板10の領域を特定する。次いで、各断面における、第一主面101側の支持基板10の領域の面積の値、及び第二主面102側の支持基板10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1aにおける支持基板10の平均面積値及び第二部位1bにおける支持基板10の平均面積値を算出する

10

20

30

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 から其々の正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 から第一正面 1 0 1 までの長さとガス流路 1 1 から第二正面 1 0 2 までの長さとが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 から正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 とで異なつてもよい。

【 0 0 5 8 】

セル 1 が、平板状の支持基板 1 0 の第一正面 1 0 1 上に第一発電素子部 A 1 を有し、第 2 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。

10

【 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 】

先ず、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。

20

【 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、プランジャー押出機を用いて、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。

30

【 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 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、インターロネクタの成形体 3 0 g をそれぞれ配置する。各インターロネクタの成形体 3 0 g は、例えば、インターロネクタ 3 0 の材料、例えば、LaCrO<sub>3</sub> 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。

40

【 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ロネクタの成形体 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、デイッピング法等を利用する。

50

## 【0065】

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。

## 【0066】

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

## 【0067】

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い場合には、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。

## 【0068】

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

## 【0069】

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、インターロネクタ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のインターロネクタ30とを跨ぐように、空気極集電部の成形膜を設ける。

## 【0070】

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

## 【0071】

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。

## 【0072】

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とずれていってもよい。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いてもよい。

40

## 【0073】

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。

## 【0074】

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80は、セルスタック81と固定部材82とを備える。セルスタック81は、複数個のセル1を有しており、各セル1は支持基板10の正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82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82はセル1のガス流路11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80はガス貯留空間に燃料ガスを供給する燃料ガス供給管83を備えている。

## 【0075】

各セル1の間には歯状の接続部材84が配置されている。このようなセルスタック装置80は、配列されたすべてのセル1を接続部材84により電気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。

10

## 【0076】

各セル1は、固定部材82に、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82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。

## 【0077】

ところで、図8で示すセルスタック装置80のセルスタック81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81の中心が比較的温度が高くなる。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80を組み上げる場合には、第二正面102を配列方向におけるセルスタック81の中心81Cが位置する側と対面するように、すなわち第一正面101をセルスタック81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。

20

## 【0078】

図8で示すように、例えば、セルスタック81のうち最も左に位置するセル1の第二正面102はセルスタック中心81Cが位置する側と対面しており、言い換えると、当該セル1の第一正面101はセルスタック中心81Cが位置する側と反対側と対面している。

30

## 【0079】

## (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80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ます。

## 【0080】

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。

40

## 【符号の説明】

## 【0081】

1 . . . . . セル

1 a . . . 第一部位

1 b . . . 第二部位

A . . . . . 素子部

50

B . . . . . 電気的接続部

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 . . . . . 空気極

7 0 . . . . . 空気極集電部

8 0 . . . . . セルスタック装置

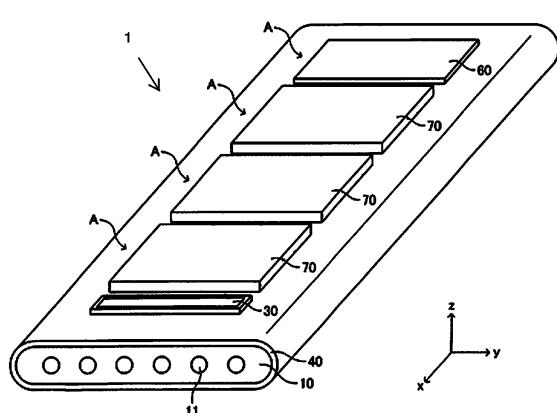
8 1 . . . . . セルスタック

8 1 C . . . . . セルスタック中央

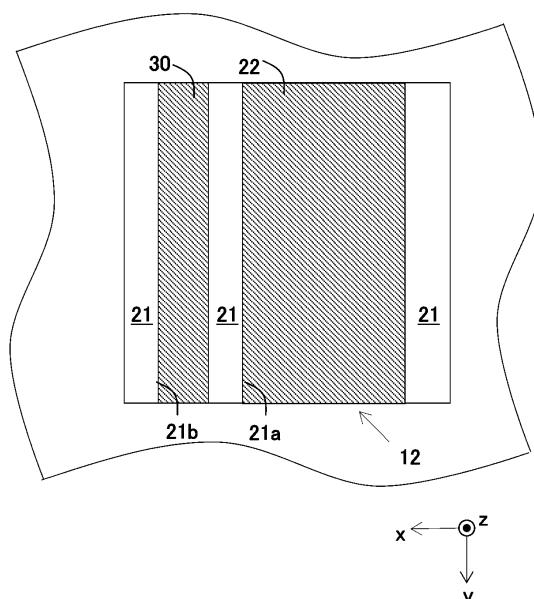
8 2 . . . . . 固定部材

【図面】

【図 1 A】



【図 1 B】



10

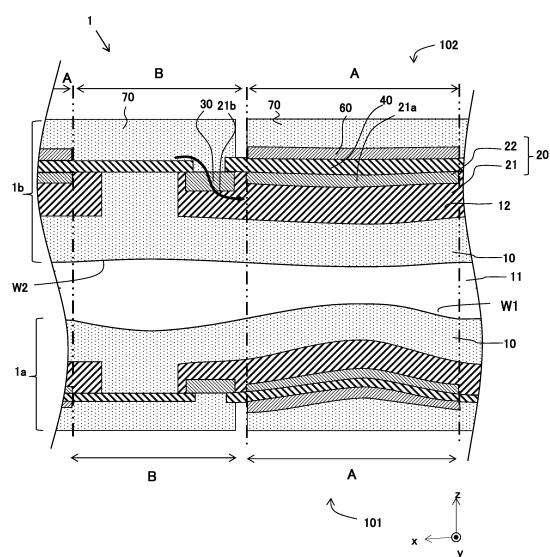
20

30

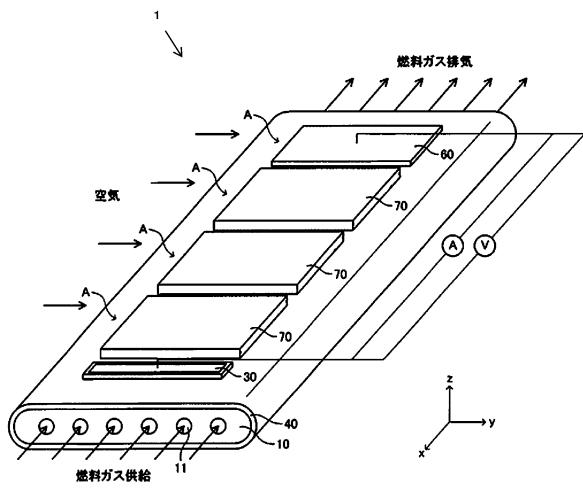
40

50

【 図 2 】



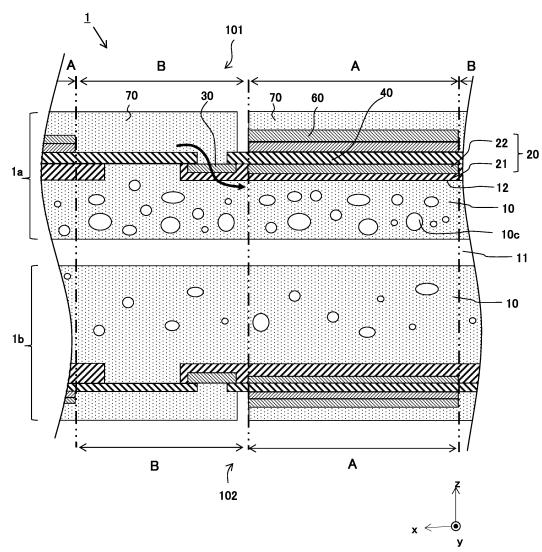
【図3】



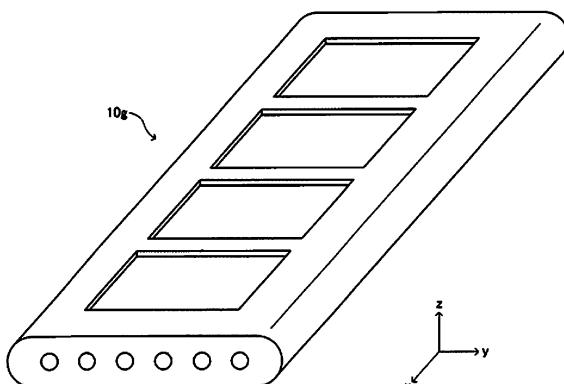
10

20

【 4 】



【 図 5 】

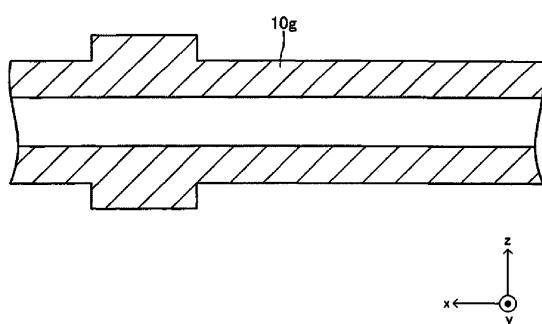


30

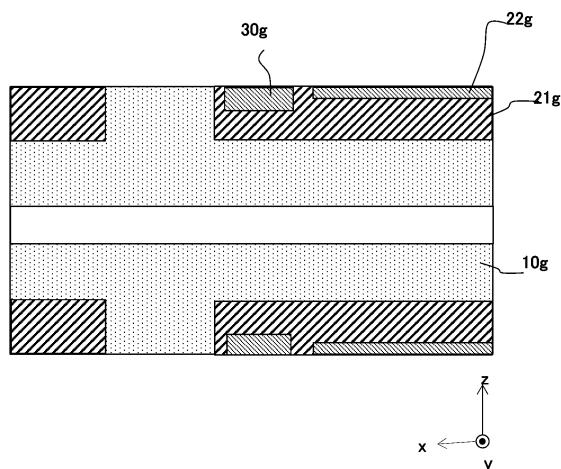
40

50

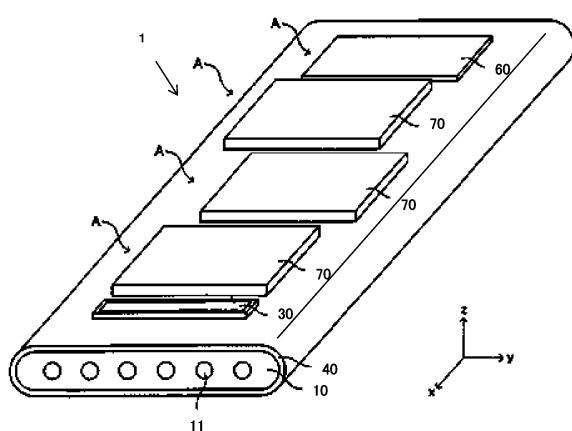
【図 6 A】



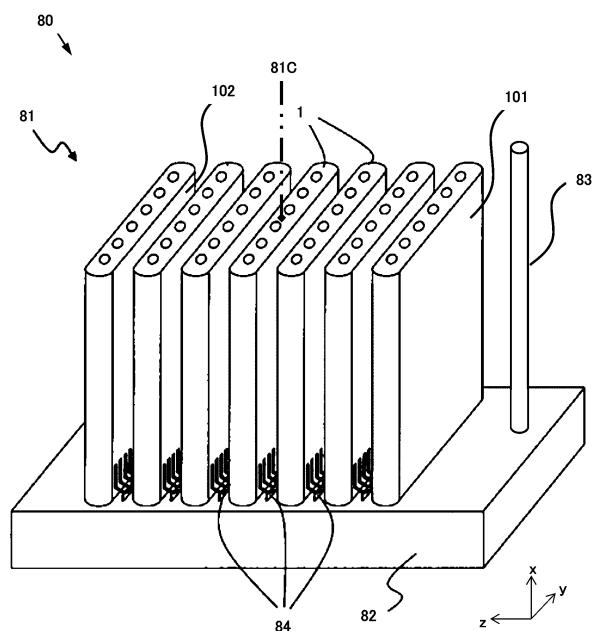
【図 6 B】



【図 7】



【図 8】



10

20

30

40

50

## フロントページの続き

## (51)国際特許分類

	F I		
H 01M	8/243(2016.01)	H 01M	8/243
H 01M	8/2465(2016.01)	H 01M	8/2465
H 01M	8/12 (2016.01)	H 01M	8/12 101
		H 01M	8/12 102C

## (56)参考文献

特開2011-249242 (JP, A)  
特開2015-170453 (JP, A)  
国際公開第2004/082058 (WO, A1)  
国際公開第2012/015051 (WO, A1)  
特開2017-062979 (JP, A)  
国際公開第2018/199095 (WO, A1)

## (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

H 01M 8 / 02  
H 01M 8 / 24  
H 01M 8 / 12