

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2011-238629

(P2011-238629A)

(43) 公開日 平成23年11月24日(2011.11.24)

| (51) Int. Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|-----------------------|---------------|-------------|
| HO 1 M 8/02 (2006.01) | HO 1 M 8/02 E | 5H026 |
| HO 1 M 8/24 (2006.01) | HO 1 M 8/24 E | |
| HO 1 M 8/12 (2006.01) | HO 1 M 8/24 Z | |
| | HO 1 M 8/12 | |

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 19 頁)

(21) 出願番号 特願2011-184915 (P2011-184915)
 (22) 出願日 平成23年8月26日 (2011. 8. 26)
 (62) 分割の表示 特願2009-269453 (P2009-269453)
 の分割
 原出願日 平成21年11月27日 (2009. 11. 27)

(71) 出願人 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
 (72) 発明者 岩本 隆幸
 鹿児島県霧島市国分山下町1番4号 京セラ株式会社総合研究所内
 Fターム(参考) 5H026 AA06 CV02 CX10

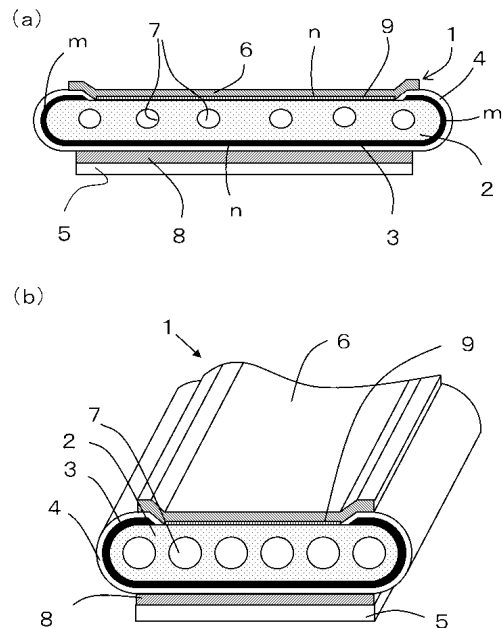
(54) 【発明の名称】 燃料電池セルならびにそれを用いたセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置

(57) 【要約】

【課題】燃料極層からの燃料ガスのリークを抑制し、発電効率の向上した燃料電池セルならびにそれを備えるセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置を提供する。

【解決手段】柱状の導電性支持体2の表面に、緻密質なインターコネクタ6をそなえとともに、インターコネクタ6が隣接して、鉄族金属および鉄族金属の酸化物のうち少なくとも一方を含有する多孔質の燃料極層3と、緻密質な固体電解質層4と、多孔質の空気極層5がこの順に積層された積層体、燃料極層3とインターコネクタ6との間に固体電解質4の一部を介在させて備えていることにより、燃料ガスのリークを抑制することができ長期信頼性の向上した燃料電池セルとすることができる。あわせて、長期信頼性の向上したセルスタック装置12、燃料電池モジュール、および燃料電池装置とすることができる。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

柱状の導電性支持体の表面に、緻密質なインターコネクタを備えるとともに、該インターコネクタに隣接して鉄族金属および鉄族金属の酸化物のうち少なくとも一方を含有する多孔質の燃料極層と、緻密質な固体電解質層と、多孔質の空気極層とがこの順に積層された積層体を、前記燃料極層と前記インターコネクタとの間に前記固体電解質の一部を介在させて備えていることを特徴とする燃料電池セル。

【請求項 2】

前記燃料電池セルの周方向における前記インターコネクタの両端部が、前記燃料電池セルの周方向における前記固体電解質層の両端部上に積層されていることを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池セル。

10

【請求項 3】

前記燃料電池セルの周方向における前記固体電解質層の両端部が、前記燃料電池セルの周方向における前記インターコネクタの両端部上に積層されていることを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池セル。

【請求項 4】

請求項 1 乃至 3 のうちいずれかに記載の燃料電池セルを、集電部材を介して立設させた状態で複数個配列し、電氣的に直列に接続してなるセルスタックと、前記燃料電池セルの下端部を固定するとともに、前記燃料電池セルに燃料ガスを供給するためのマニホールドとを具備することを特徴とするセルスタック装置。

20

【請求項 5】

請求項 4 に記載のセルスタック装置を収納容器内に収納してなることを特徴とする燃料電池モジュール。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の燃料電池モジュールと、該燃料電池モジュールを動作させるための補機とを外装ケース内に収納してなることを特徴とする燃料電池装置。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、導電性支持体の表面に、インターコネクタと、燃料極層と、固体電解質層と、空気極層とを備える燃料電池セルならびにそれを用いたセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置に関する。

30

【背景技術】**【0002】**

近年、次世代エネルギーとして、燃料電池セルを電氣的に直列に複数個接続してなるセルスタック装置を、収納容器内に収容してなる燃料電池装置が種々提案されている。

【0003】

このようなセルスタック装置を構成する燃料電池セルとしては、燃料ガスを流すための燃料ガス流路を内部に有する導電性支持体の一方側の主面上に多孔質の燃料極層、緻密質な固体電解質層および空気極層がこの順に積層され、他方側の主面上に、密着層、緻密質なインターコネクタが設けられているとともに、固体電解質の両端部が一方側の主面まで延設され、密着層を介してインターコネクタの両端部とそれぞれ重畳している燃料電池セルが提案されている（特許文献1参照。）。

40

【0004】

また、このような燃料電池セルの複数個を集電部材を介して電氣的に直列に接続してなるセルスタック装置が提案されている（例えば、特許文献2参照。）。

【先行技術文献】**【特許文献】****【0005】**

【特許文献 1】 特開 2005 - 158529 号公報

50

【特許文献2】特開2008-135304号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

ところで、燃料電池装置の作動時に、燃料極層、密着層とインターコネクタとの熱膨張差や、燃料極層、密着層に含有される鉄族の金属酸化物が鉄族金属に還元されることに伴う還元収縮により、燃料極層、密着層とインターコネクタとの接合面が剥離する場合があります、その場合に燃料電池セルの内部に設けられた燃料ガス流路を流れた燃料ガスが多孔質の燃料極層、密着層からリークし、燃料電池セルの長期信頼性が低下するおそれがある。

【0007】

それゆえ、本発明は燃料ガス流路を流れた燃料ガスがリークすることを抑制することができる燃料電池セルならびにそれを備えたセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明の燃料電池セルは、柱状の導電性支持体の表面に、緻密質なインターコネクタを備えるとともに、該インターコネクタに隣接して鉄族金属および鉄族金属の酸化物のうち少なくとも一方を含有する多孔質の燃料極層と、緻密質な固体電解質層と、多孔質の空気極層とがこの順に積層された積層体を、前記燃料極層と前記インターコネクタとの間に前記固体電解質の一部を介在させて備えていることを特徴とする。

【0009】

このような燃料電池セルにおいては、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を介在させて備えていることから、インターコネクタと、燃料極層、固体電解質層および空気極層が積層された積層体との接合面が剥離した場合において、燃料ガスが多孔質の燃料極層から燃料電池セルの外側へ漏れる（リーク）ことを抑制するまたは防止することができる。それにより、燃料電池セルの長期信頼性を向上させることができる。

【0010】

また、本発明の燃料電池セルは、前記燃料電池セルの周方向における前記インターコネクタの両端部が、前記燃料電池セルの周方向における前記固体電解質層の両端部上に積層されていることが好ましい。

【0011】

このような燃料電池セルにおいては、燃料電池セルの周方向におけるインターコネクタの両端部が燃料電池セルの周方向における固体電解質層の両端部上に積層されていることから、インターコネクタと固体電解質層との接合面積を大きくすることができ、インターコネクタと積層体とが剥離することを抑制することができる。それにより、長期信頼性の向上した燃料電池セルとすることができる。

【0012】

また、本発明の燃料電池セルは、前記燃料電池セルの周方向における前記固体電解質層の両端部が、前記燃料電池セルの周方向における前記インターコネクタの両端部上に積層されていることが好ましい。

【0013】

このような燃料電池セルにおいては、燃料電池セルの周方向における固体電解質層の両端部が燃料電池セルの周方向におけるインターコネクタの両端部上に積層されていることから、インターコネクタと固体電解質層との接合面積を大きくすることができ、インターコネクタと積層体とが剥離することを抑制することができる。それにより、長期信頼性の向上した燃料電池セルとすることができる。

【0014】

本発明のセルスタック装置は、上記のうちいずれかに記載の燃料電池セルを、集電部材を介して立設させた状態で複数個配列し、電氣的に直列に接続してなるセルスタックと、前記燃料電池セルの下端部を固定するとともに、前記燃料電池セルに燃料ガスを供給する

10

20

30

40

50

ためのマニホールドとを具備することを特徴とする。

【0015】

このようなセルスタック装置においては、燃料ガスのリークを抑制（防止）することができる燃料電池セルを複数個配列してなることから、長期信頼性の向上したセルスタック装置とすることができる。

【0016】

本発明の燃料電池モジュールは、上記に記載のセルスタック装置を収納容器に収納してなることから、長期信頼性の向上した燃料電池モジュールとすることができる。

【0017】

本発明の燃料電池装置は、上記に記載の燃料電池モジュールと、燃料電池モジュールを動作させるための補機とを外装ケース内に収納してなることから、長期信頼性の向上した燃料電池装置とすることができる。

10

【発明の効果】

【0018】

本発明の燃料電池セルは、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を介在させて備えていることから、インターコネクタと、燃料極層、固体電解質層および空気極層が積層された積層体との接合面が剥離した場合において、燃料極層から燃料ガスがリークすることを抑制することができることから、燃料電池セルの長期信頼性を向上させることができる。また上記の燃料電池セルを備えることで、長期信頼性の向上したセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置とすることができる。

20

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】本発明の燃料電池セルの一例を示したものであり、(a)はその横断面図、(b)は(a)の斜視図である。

【図2】本発明の燃料電池セルの他の一例を示したものであり、(a)はその横断面図、(b)は(a)の斜視図である。

【図3】本発明のセルスタック装置の一例を示し、(a)はセルスタック装置を概略的に示す側面図、(b)は(a)のセルスタック装置の点線枠で囲った部分の一部を拡大した平面図である。

【図4】本発明の燃料電池モジュールの一例を示す外観斜視図である。

30

【図5】本発明の燃料電池装置の一例を示す分解斜視図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

図1は、本発明の燃料電池セルの一例を示すものであり、(a)は横断面図、(b)は(a)の斜視図である。なお、両図面において、燃料電池セル1の各構成を一部拡大等して示している。また、同一の部材に関しては同一の符号を付するものとし、以下同様とする。

【0021】

燃料電池セル1は、中空平板型の形状をしており、全体的に見て楕円柱状をした導電性支持体2を備えている。導電性支持体2の内部には、所定の間隔で長手方向の一端から他端まで貫通した複数の燃料ガス流路7が形成されており、燃料電池セル1はこの導電性支持体2上に各種の部材が設けられた構造を有している。

40

【0022】

導電性支持体2は、図1に示されている形状から理解されるように、互いに平行な一対の平坦面nと、一対の平坦面nをそれぞれ接続する弧状面(側面)mとで構成されている。

【0023】

導電性支持体2の一方の平坦面nには、緻密質なインターコネクタ6が導電性支持体2の長手方向の一端から他端にかけて設けられており、インターコネクタ6に隣接した状態で、インターコネクタ6が設けられていない他方の平坦面nおよび両側面mに多孔質の燃

50

料極層 3 と、燃料極層 3 の外面を覆うように緻密質な固体電解質層 4 と、多孔質の空気極層 5 とが積層された積層体とが設けられている。なお図 1 に示す燃料電池セル 1 においては、導電性支持体 2 の他方の主面における固体電解質層 4 上には中間層 8 を介して、燃料極層 3 (より詳しくはインターコネクタ 6) と対面するように空気極層 5 が積層されている。

【0024】

図 1 に示す燃料電池セル 1 においては、燃料極層 3 および固体電解質層 4 は、両端の弧状面 m を経由してインターコネクタ 6 の燃料電池セル 1 の周方向 (幅方向) における両側部まで延設しており、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に固体電解質層 4 の一部を介在させて設けられており、導電性支持体 2 の表面 (外面) が外部に露出しないように、それぞれが当接するように設けられている。なお、燃料極層 3 は空気極層 5 と対面する領域にのみ設け、その他の領域は固体電解質 4 にて覆う構成としてもよい。

10

【0025】

また、導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との間に密着層 9 を設けてもよい。密着層 9 を設けることで導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との接合を強固にすることができる。

【0026】

ここで、燃料電池セル 1 は、燃料極層 3 と空気極層 5 との対面している部分が電極として機能することにより発電する。即ち、空気極層 5 の外側に空気等の酸素含有ガスを流し、且つ導電性支持体 2 内の燃料ガス流路 7 に燃料ガス (水素含有ガス) を流し、所定の作

20

【0027】

以下に、本発明の燃料電池セル 1 を構成する各部材について説明する。

【0028】

導電性支持体 2 は、燃料ガスを燃料極層 3 まで透過させるためにガス透過性であること、インターコネクタ 6 を介して集電を行うために導電性であることが要求されることから、例えば、Ni および NiO のうち少なくとも一方と、特定の希土類酸化物とにより形成されることが好ましい。

【0029】

特定の希土類酸化物とは、導電性支持体 2 の熱膨張係数を固体電解質層 4 の熱膨張係数に近づけるために使用されるものであり、Y、Lu (ルテチウム)、Yb、Tm (ツリウム)、Er (エルビウム)、Ho (ホルミウム)、Dy (ジスプロシウム)、Gd、Sm、Pr (プラセオジウム) からなる群より選択される少なくとも 1 種の元素を含む希土類酸化物が、Ni および NiO のうち少なくとも一方との組み合わせで使用することができる。このような希土類酸化物の具体例としては、 Y_2O_3 、 Lu_2O_3 、 Yb_2O_3 、 Tm_2O_3 、 Er_2O_3 、 Ho_2O_3 、 Dy_2O_3 、 Gd_2O_3 、 Sm_2O_3 、 Pr_2O_3 を例示することができ、Ni および NiO のうち少なくとも一方との固溶、反応が殆どなく、また、熱膨張係数が固体電解質層 4 とほとんど同程度であり、かつ安価であるという点から、 Y_2O_3 、 Yb_2O_3 が好ましい。

30

40

【0030】

また、本発明においては、導電性支持体 2 の良好な導電率を維持し、かつ熱膨張係数を固体電解質層 4 と近似させるという点で、焼成 - 還元後における体積比率が、Ni : 希土類元素酸化物 (例えば、Ni : Y_2O_3) が 35 : 65 ~ 65 : 35 (Ni / (Ni + Y)) がモル比で 65 ~ 86 mol% の範囲にあることが好ましい。なお、導電性支持体 2 中には、要求される特性が損なわれない限りの範囲で、他の金属成分や酸化物成分を含有していてもよい。

【0031】

また、導電性支持体 2 は、ガス透過性を有していることが必要であるため、通常、気孔率が 30% 以上、特に 35 ~ 50% の範囲にあることが好ましい。また、導電性支持体 2

50

の導電率は、 50 S/cm 以上、より好ましくは 300 S/cm 以上、特に好ましくは 440 S/cm 以上とすることがよい。

【0032】

なお、導電性支持体2の平坦面nの長さ（導電性支持体2の幅方向の長さ）は、通常、 $15\sim 35\text{ mm}$ 、弧状面mの長さ（弧の長さ）は、 $2\sim 8\text{ mm}$ であり、導電性支持体2の厚み（平坦面n間の厚み）は $1.5\sim 5\text{ mm}$ であることが好ましい。

【0033】

燃料極層3は、電極反応を生じさせるものであり、鉄族金属であるNiおよびNiOのうち少なくとも一方と、希土類元素が固溶した ZrO_2 とから形成することができる。なお、希土類元素としては、導電性支持体2において例示した希土類元素（Y等）を用いることができる。

10

【0034】

燃料極層3において、NiおよびNiOのうち少なくとも一方と、希土類元素が固溶した ZrO_2 の含有量は、焼成・還元後における体積比率が、Ni：希土類元素が固溶した ZrO_2 （例えば、NiO：YSZ）が $35:65\sim 65:35$ の範囲にあるのが好ましい。さらに、この燃料極層3の気孔率は、 15% 以上、特に $20\sim 40\%$ の範囲にあるのが好ましく、その厚みは、 $1\sim 30\text{ }\mu\text{m}$ であるのが好ましい。例えば、燃料極層4の厚みがあまり薄いと、性能が低下するおそれがあり、またあまり厚いと、後述する固体電解質層4と燃料極層3との間で熱膨張係数差等による剥離やクラックを生じるおそれがある。

【0035】

20

固体電解質層4は、 $3\sim 15\text{ mol\%}$ のY（イットリウム）、Sc（スカンジウム）、Yb（イッテルビウム）等の希土類元素を含有した部分安定化あるいは安定化 ZrO_2 からなる緻密質なセラミックスを用いるのが好ましい。また、希土類元素としては、安価であるという点からYが好ましい。さらに、固体電解質層4は、ガス透過を防止するという点から、相対密度（アルキメデス法による）が 93% 以上、特に 95% 以上の緻密質であることが望ましく、かつその厚みが $5\sim 50\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましい。

【0036】

なお、固体電解質層4と後述する空気極層5の間に、固体電解質層4と空気極層5との接合を強固とするとともに、固体電解質層4の成分と空気極層5の成分とが反応して電気抵抗の高い反応層が形成されることを抑制する目的で中間層8を備えることもでき、図1

30

【0037】

ここで、中間層8は、Ce（セリウム）と他の希土類元素とを含有する組成にて形成することができるが、例えば、 $(\text{CeO}_2)_{1-x}(\text{REO}_{1.5})_x$ （REはSm、Y、Yb、Gdの少なくとも1種であり、 x は $0 < x \leq 0.3$ を満足する数。）で表される組成を有していることが好ましい。さらには、電気抵抗を低減するという点から、REとしてSmやGdを用いることが好ましく、例えば $10\sim 20\text{ mol\%}$ の $\text{SmO}_{1.5}$ または $\text{GdO}_{1.5}$ が固溶した CeO_2 からなることが好ましい。なお、中間層8は例えば2層より構成することもでき、この場合1層目を固体電解質層4と同時に焼成により設けた後に、同時焼成よりも 200 以上低い温度にて2層目を別途焼成することが好ましい。

40

【0038】

また、空気極層5は、ガス透過性を有する必要があるが、従って、空気極層5を形成する導電性セラミックス（ペロブスカイト型酸化物）は、気孔率が 20% 以上、特に $30\sim 50\%$ の範囲にあることが好ましい。さらに、空気極層5の厚みは、集電性という点から $30\sim 100\text{ }\mu\text{m}$ であることが好ましい。

【0039】

また、導電性支持体2の空気極層5側と反対側の表面（一方の平坦面n）上には、密着層9を介してインターコネクタ6が積層されている。

【0040】

インターコネクタ6は、導電性セラミックスにより形成されることが好ましいが、燃料

50

ガス（水素含有ガス）および酸素含有ガスと接触するため、耐還元性、耐酸化性を有していることが必要である。このため、耐還元性、耐酸化性を有する導電性セラミックスとしては、一般に、ランタクロマイト系のペロブスカイト型酸化物（ LaCrO_3 系酸化物）が使用され、特に導電性支持体 2 と固体電解質層 4 との熱膨張係数を近づける目的から、 LaCrO_3 系酸化物が用いられる。

【0041】

また、インターコネクタ 6 の厚みは、ガスのリーク防止と電気抵抗という点から、 $10 \sim 50 \mu\text{m}$ であることが好ましい。この範囲よりも厚みが薄いと、ガスのリークを生じやすく、またこの範囲よりも厚みが大きいと、電気抵抗が大きく、電位降下により集電機能が低下してしまうおそれがある。

10

【0042】

さらに、導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との間には、インターコネクタ 6 と導電性支持体 2 との間の熱膨張係数差を軽減する等のために密着層 9 を設けることもできる。

【0043】

密着層 9 は、例えば、希土類元素酸化物、希土類元素が固溶した ZrO_2 、希土類元素が固溶した CeO_2 のうち少なくとも 1 種と、Ni および NiO のうち少なくとも一方から形成することができる。より具体的には、例えば Y_2O_3 と Ni および NiO のうち少なくとも一方からなる組成や、Y が固溶した ZrO_2 （YSZ）と Ni および NiO のうち少なくとも一方からなる組成、Y、Sm、Gd 等が固溶した CeO_2 と Ni および NiO のうち少なくとも一方からなる組成から形成することができる。なお、希土類元素酸化物や希土類元素が固溶した ZrO_2 （ CeO_2 ）と、Ni および NiO のうち少なくとも一方とは、焼成 - 還元後における体積比率が $40 : 60 \sim 60 : 40$ の範囲となるように形成することが好ましい。

20

【0044】

また、図示していないが、インターコネクタ 6 の外面（上面）には、P 型半導体層を設けることが好ましい。集電部材を、P 型半導体層を介してインターコネクタ 6 に接続させることにより、両者の接触がオーム接触となり、電位降下を少なくでき、集電性能の低下を有効に回避することが可能となる。

【0045】

このような P 型半導体層としては、遷移金属ペロブスカイト型酸化物からなる層を例示することができる。具体的には、電子伝導性が大きいもの、例えば、B サイトに Mn、Fe、Co などが存在する LaMnO_3 系酸化物、 LaFeO_3 系酸化物、 LaCoO_3 系酸化物などの少なくとも一種からなる P 型半導体セラミックスを使用することができる。このような P 型半導体層の厚みは、一般に、 $30 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。

30

【0046】

ところで、従来の燃料電池セルにおいては、燃料電池セルの作製時や、還元処理時に、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との熱膨張差や、燃料極層 3 に含有される鉄族の金属酸化物が鉄族金属に還元されることに伴う還元収縮により、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との接合面が剥離する場合があります。燃料電池セル 1 の内部に設けられた燃料ガス流路 7 を流れた燃料ガスが多孔質の燃料極層 3 からリークし、燃料電池セル 1 の長期信頼性が低下するおそれがある。

40

【0047】

図 1 に示す燃料電池セル 1 は、燃料電池セル 1 の周方向（幅方向）におけるインターコネクタ 6 の両端部が燃料電池セル 1 の幅方向における固体電解質層 4 の両端部に積層されており、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に固体電解質層 4 の一部を介在させ、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 とそれぞれ当接するように設けられている。燃料電池セル 1 は、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に緻密質な固体電解質層 4 の一部を介在させて備えていることから、インターコネクタ 6 と、燃料極層 3、固体電解質層 4 および空気極層 5 が積層された積層体との接合面が剥離した場合において、燃料ガスが多孔質の燃

50

料極層 3 からリークすることを抑制することができる。そのため、燃料電池セル 1 の長期信頼性を向上させることができる。

【0048】

ところで、上述した燃料電池セル 1 を作製して、燃料ガス流路 7 に燃料ガスを流して還元処理を行なった場合に、燃料極層 3 および密着層 9 に含有される NiO が還元されて Ni となることに伴って、燃料極層 3 および密着層 9 に空隙が生じ、燃料極層 3 および密着層 9 から燃料ガスがリークする場合がある。

【0049】

しかしながら、図 1 に示す燃料電池セル 1 は、燃料極層 3 および密着層 9 とインターコネクタ 6 との間に緻密な固体電解質層 4 の一部を介在させて備えていることから、燃料極層 3 および密着層 9 に含有される NiO が Ni に還元され、燃料極層 3 および密着層 9 に空隙が生じた場合にも、燃料ガスがリークすることを抑制でき、燃料電池セル 1 の発電効率が低下することを抑制することができる。

10

【0050】

また、図 2 に示す燃料電池セル 10 は、燃料電池セル 1 の幅方向における固体電解質層 4 の両端部が燃料電池セル 1 の幅方向における両端部インターコネクタ 6 に積層されており、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に固体電解質層 4 の一部を介在させ、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 とそれぞれ当接するように設けられている。それにより、固体電解質層 4 とインターコネクタ 6 との接合面積を増やすことができ、インターコネクタ 6 と積層体（固体電解質層 4）とが剥離することを抑制することができる。

20

【0051】

それにより、燃料極層 3 から燃料ガスがリークすることを抑制することができ、長期信頼性の向上した燃料電池セルとすることができる。

【0052】

以上説明した本発明の燃料電池セル 1 の作製方法について説明する。

【0053】

先ず、Ni および NiO の少なくとも一方の粉末と、 Y_2O_3 などの希土類酸化物の粉末と、有機バインダーと、溶媒とを混合して坯土を調製し、この坯土を用いて押出成形により導電性支持体成形体を作製し、これを乾燥する。なお、導電性支持体成形体として、導電性支持体成形体を 900 ~ 1000 にて 2 ~ 6 時間仮焼した仮焼体を用いてもよい。

30

【0054】

次に、例えば所定の調合組成に従い NiO、 Y_2O_3 が固溶した ZrO_2 (YSZ) の素原料を秤量、混合する。この後、混合した粉体に、有機バインダーおよび溶媒を混合して燃料極層用スラリーを調製する。

【0055】

さらに、希土類元素が固溶した ZrO_2 粉末に、トルエン、バインダー、市販の分散剤等を加えてスラリー化したものをドクターブレード等の方法により、7 ~ 75 μm の厚さに成形してシート状の固体電解質層 4 成形体を作製する。得られたシート状の固体電解質層成形体上に燃料極層用スラリーを塗布して燃料極層成形体が形成された積層体成形体を形成し、この積層体成形体を、燃料極層成形体を下面として導電性支持体成形体に積層する。なお、この際、固体電解質層成形体の大きさを燃料極層 3 成形体よりも大きくすることで、燃料電池セル 1 は、燃料極層成形体の外面を覆うとともに、後に形成されるインターコネクタと燃料極層との間に固体電解質層の一部を介在させて備えることができる。

40

【0056】

なお、燃料極層用スラリーを導電性支持体成形体の所定位置に塗布し乾燥して、燃料極層成形体が外面に露出しないように固体電解質層成形体を導電性支持体成形体（燃料極層成形体）に積層しても良い。

【0057】

続いて固体電解質層 4 と空気極層 5 との間に配置する中間層 8 成形体を形成する。

50

【0058】

例えば、 $GdO_{1.5}$ が固溶した CeO_2 粉末を $800 \sim 900$ にて $2 \sim 6$ 時間、熱処理を行い、その後、湿式解砕して凝集度を $5 \sim 35$ に調整し、中間層成形体用の原料粉末を調整する。湿式解砕は溶媒を用いて $10 \sim 20$ 時間ボールミルすることが望ましい。なお、中間層を $SmO_{1.5}$ が固溶した CeO_2 粉末より形成する場合も同様である。

【0059】

そして、凝集度が調製された中間層成形体の原料粉末に、溶媒としてトルエンを添加し、中間層用スラリーを作製し、このスラリーを固体電解質層成形体上に塗布して中間層成形体を作製する。なお、シート状の中間層成形体を作製し、これを固体電解質層成形体上に積層してもよい。

10

【0060】

続いて、インターコネクタ用材料（例えば、 $LaCrMgO_3$ 系酸化物粉末）、有機バインダー及び溶媒を混合してスラリーを調製し、インターコネクタ用シートを作製する。

【0061】

続いて、導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との間に位置する密着層 9 成形体を形成する。例えば、 Y が固溶した ZrO_2 と NiO が体積比で $40 : 60 \sim 60 : 40$ の範囲となるように混合して乾燥し、有機バインダー等を加えて密着層用スラリーを調整する。調整した密着層用スラリーを、インターコネクタ用シートに塗布して密着層 9 成形体を形成し、この密着層成形体側の面を導電性支持体成形体に積層する。

20

【0062】

なお、図 2 に示す燃料電池セル 10 の場合は、導電性支持体 2 成形体を作製した後に密着層成形体を介してインターコネクタ用シートを導電性支持体成形体に積層し、その後に固体電解質 4 成形体および燃料極層成形体を導電性支持体成形体に、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に固体電解質層 4 の一部を介在させて設けられるように積層して作製すればよい。

【0063】

次いで、上記の積層成形体を脱バインダー処理し、酸素含有雰囲気中、 $1400 \sim 1600$ にて $2 \sim 6$ 時間、同時焼結（同時焼成）する。

【0064】

なお、中間層 8 を 2 層から形成する場合には、空気極層側の中間層は、同時焼成された中間層 8（1 層目）の上面に、上述の中間層用スラリーを塗布した後、上記同時焼成時の温度よりも 200 以上低い温度にて焼成する。

30

【0065】

次いで、空気極層用材料（例えば、 $LaCoO_3$ 系酸化物粉末）、溶媒および増孔剤を含有するスラリーをディッピング等により中間層 8 上に塗布する。また、インターコネクタ 6 の所定の位置に、必要により P 型半導体層用材料（例えば、 $LaCoO_3$ 系酸化物粉末）と溶媒を含むスラリーを、ディッピング等により塗布し、 $1000 \sim 1300$ で、 $2 \sim 6$ 時間焼き付けることにより、図 1 に示す構造の本発明の燃料電池セル 1 を製造できる。なお、燃料電池セル 1 は、その後、内部に水素ガスを流し、導電性支持体 2 および燃料極層 3 の還元処理を行なうのが好ましい。その際、例えば $750 \sim 1000$ にて $5 \sim$

40

【0066】

以上のように、本発明の燃料電池セル 1 の作製時において、燃料電池セル 1 は、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間に固体電解質層 4 の一部を介在させて備えていることから、多孔質の燃料極層を緻密質なインターコネクタおよび緻密質な固体電解質層で封止されていることにより、燃料ガスが多孔質の燃料極層 3 からリークすることを抑制することができる。それにより、長期信頼性の向上した燃料電池セル 1 とすることができる。

【0067】

さらに、インターコネクタ 6 の両端部が、燃料電池セル 1 の幅方向における固体電解質層 4 の両端部上に積層されていることから、固体電解質層 4 とインターコネクタ 6 との接

50

合面積を増やすことができ、インターコネクタ 6 と積層体（固体電解質層 4）とが剥離することを抑制することができる。

【0068】

また、燃料電池セル 1 の周方向（幅方向）における固体電解質層 4 の両端部が、燃料電池セル 10 の幅方向におけるインターコネクタ 6 の両端部上に積層されていることから、固体電解質層 4 とインターコネクタ 6 との接合面積を増やすことができ、インターコネクタ 6 と積層体（固体電解質層 4）とが剥離することを抑制することができる。

【0069】

なお、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 との間とは、導電性支持体 2 の表面において、燃料極層 3 とインターコネクタ 6 とが設けられていない領域を意味する。

10

【0070】

図 3 は、上述した燃料電池セル 1 の複数個を、集電部材 14 を介して電氣的に直列に接続して構成されるセルスタック装置の一例を示したものであり、(a) はセルスタック装置 12 を概略的に示す側面図、(b) は(a) のセルスタック装置 12 の一部拡大平面図であり、(a) で示した点線枠で囲った部分を抜粋して示している。なお、(b) において(a) で示した点線枠で囲った部分に対応する部分を明確とするために矢印にて示している。

【0071】

なお、セルスタック装置 12 においては、各燃料電池セル 1 を集電部材 14 を介して配列することでセルスタック 13 を構成しており、各燃料電池セル 1 の下端が、燃料電池セル 1 に燃料ガスを供給するためのマニホール 15 に、ガラスシール材等の接着剤により固定されている。また、燃料電池セル 1 の配列方向の両端から集電部材 14 を介してセルスタック 13 を挟持するように、マニホール 15 に下端が固定された弾性変形可能な導電部材 16 を具備している。

20

【0072】

また、図 3 に示す導電部材 16 においては、燃料電池セル 1 の配列方向に沿って外側に向けて延びた形状で、セルスタック 13（燃料電池セル 1）の発電により生じる電流を引出すための電流引出し部 17 が設けられている。

【0073】

ここで、本発明のセルスタック装置 12 においては、上述した燃料電池セル 1 を用いて、セルスタック 13 を構成することにより、多孔質の燃料極層を緻密質なインターコネクタおよび緻密質な固体電解質層で封止されていることにより、燃料ガスが多孔質の燃料極層 3 からリークすることを抑制することができ、長期信頼性の向上したセルスタック装置 12 とすることができる。

30

【0074】

図 4 は、本発明のセルスタック装置 12 を収納容器内に収納してなる燃料電池モジュール 20 の一例を示す外観斜視図であり、直方体状の収納容器 21 の内部に、図 4 に示したセルスタック装置 12 を収納して構成されている。

【0075】

なお、燃料電池セル 1 にて使用する燃料ガスを得るために、天然ガスや灯油等の原燃料を改質して燃料ガスを生成するための改質器 22 がセルスタック 13 の上方に配置されている。そして、改質器 22 で生成された燃料ガスは、ガス流通管 23 を介してマニホール 15 に供給され、マニホール 15 を介して燃料電池セル 1 の内部に設けられた燃料ガス流路 7 に供給される。

40

【0076】

なお、図 5 においては、収納容器 21 の一部（前後面）を取り外し、内部に収納されているセルスタック装置 12 および改質器 22 を後方に取り出した状態を示している。ここで、図 4 に示した燃料電池モジュール 20 においては、セルスタック装置 12 を、収納容器 21 内にスライドして収納することが可能である。なお、セルスタック装置 12 は、改質器 22 を含むものとしても良い。

50

【 0 0 7 7 】

また収納容器 2 1 の内部に設けられた酸素含有ガス導入部材 2 4 は、図 5 においてはマニホールド 1 5 に並置されたセルスタック 1 3 の間に配置されるとともに、酸素含有ガスが燃料ガスの流れに合わせて、燃料電池セル 1 の側方を下端部から上端部に向けて流れるように、燃料電池セル 1 の下端部に酸素含有ガスを供給する。そして、燃料電池セル 1 の燃料ガス流路より排出される燃料ガスと酸素含有ガスとを燃料電池セル 1 の上端部側で燃焼させることにより、燃料電池セル 1 の温度を上昇させることができ、セルスタック装置 1 2 の起動を早めることができる。また、燃料電池セル 1 の上端部側にて、燃料電池セル 1 の燃料ガス流路から排出される燃料ガスと酸素含有ガスとを燃焼させることにより、燃料電池セル 1 (セルスタック 1 3) の上方に配置された改質器 2 2 を効率よく温めることができる。それにより、改質器 2 2 で効率よく改質反応を行うことができる。

10

【 0 0 7 8 】

さらに、本発明の燃料電池モジュール 2 0 においても、発電効率が向上した燃料電池セル 1 を用いて構成されるセルスタック装置 1 2 を収納容器 2 1 内に収納してなることから、発電効率が向上した燃料電池モジュール 2 0 とすることができる。

【 0 0 7 9 】

図 5 は、外装ケース内に図 5 で示した燃料電池モジュール 2 0 と、燃料電池セルスタック装置 1 2 を動作させるための補機とを収納してなる本発明の燃料電池装置の一例を示す分解斜視図である。なお、図 5 においては一部構成を省略して示している。

20

【 0 0 8 0 】

図 5 に示す燃料電池装置 2 5 は、支柱 2 6 と外装板 2 7 から構成される外装ケース内を仕切板 2 8 により上下に区画し、その上方側を上述した燃料電池モジュール 2 0 を収納するモジュール収納室 2 9 とし、下方側を燃料電池モジュール 2 0 を動作させるための補機類を収納する補機収納室 3 0 として構成されている。なお、補機収納室 2 8 に収納する補機類を省略して示している。

【 0 0 8 1 】

また、仕切板 2 8 には、補機収納室 3 0 の空気をモジュール収納室 2 9 側に流すための空気流通口 3 1 が設けられており、モジュール収納室 2 9 を構成する外装板 2 7 の一部に、モジュール収納室 2 9 内の空気を排気するための排気口 3 2 が設けられている。

【 0 0 8 2 】

このような燃料電池装置 2 5 においては、上述したように、発電効率を向上することができる燃料電池モジュール 2 0 をモジュール収納室 2 9 に収納して構成されることにより、発電効率の向上した燃料電池装置 2 5 とすることができる。

30

【 0 0 8 3 】

以上、本発明について詳細に説明したが、本発明は上述の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の用紙を逸脱しない範囲内において、種々の変更、改良等が可能である。

【 0 0 8 4 】

例えば、本発明の燃料電池セル 1 においては、中空平板形状のものについて示したが、円筒状の燃料電池セルにおいても本発明を用いることができる。また、本発明の燃料電池セル 1 においては、インターコネクタ 6 が設けられている領域以外のほぼ全域に積層体を備える例を示したが、インターコネクタ 6 と燃料極層 3 との間に固体電解質層 4 が設けられていればよく、燃料ガスがリークしない燃料電池セルとすることができる。

40

【 実施例 】

【 0 0 8 5 】

先ず、平均粒径 $0.5 \mu\text{m}$ の NiO 粉末と、平均粒径 $0.9 \mu\text{m}$ の Y_2O_3 粉末を焼成 - 還元後における体積比率が、 NiO が 48 体積%、 Y_2O_3 が 52 体積% になるように混合し、有機バインダーと溶媒にて作製した坯土を押し出成形法にて成形し、乾燥、脱脂して導電性支持体成形体を作製した。なお、試料 No. 1 においては、 Y_2O_3 粉末の焼成 - 還元後における体積比率が、 NiO が 45 体積%、 Y_2O_3 が 55 体積% となるように

50

した。

【0086】

次に、8 mol %のYが固溶したマイクロトラック法による粒径が $0.8 \mu\text{m}$ の ZrO_2 粉末（固体電解質層原料粉末）と有機バインダーと溶媒とを混合して得られたスラリーを用いて、ドクターブレード法にて厚み $30 \mu\text{m}$ の固体電解質層用シートを作製した。

【0087】

次に平均粒径 $0.5 \mu\text{m}$ のNiO粉末と Y_2O_3 が固溶した ZrO_2 粉末と有機バインダーと溶媒とを混合した燃料極層用スラリーを作製し、固体電解質層用シート上に燃料極層用スラリーを塗布して燃料極層成形体を形成した積層体成形体を形成した。なお、各試料において、固体電解質層用シートおよび燃料極層用シートは、後に作製するインターコネクタと、燃料極層と固体電解質層が積層された積層体との間において、固体電解質層の一部を介在させて備えるように、表1に示すように構成されるように適宜調整して形成した。続いて、燃料極層成形体側の面を下にして導電性支持体成形体の所定位置に積層した。

10

【0088】

続いて、上記のように燃料極層成形体および固体電解質層成形体を積層した積層成形体を1000にて3時間仮焼処理した。

【0089】

次に、 CeO_2 を85モル%、他の希土類元素の酸化物($\text{GdO}_{1.5}$)を15モル%含む複合酸化物を、溶媒としてイソプロピルアルコール(IPA)を用いて振動ミル又はボールミルにて粉碎し、900にて4時間仮焼処理を行い、再度ボールミルにて解砕処理し、セラミック粒子の凝集度を調整し、中間層用の原料粉末を得た。この粉末にアクリル系バインダーとトルエンとを添加し、混合して作製した中間層用のスラリーを得られた積層仮焼体の固体電解質層仮焼体上に、スクリーン印刷法にて塗布し、中間層成形体を作製した。

20

【0090】

次に、適宜粒径が調整されたNiO粉末と8 mol %の Y_2O_3 が固溶した ZrO_2 粉末と有機バインダーと溶媒とを混合した密着層用スラリーを作製した。

【0091】

続いて、 LaCrO_3 系酸化物と、有機バインダーと溶媒とを混合したインターコネクタ用スラリーを用いて、ドクターブレード法にて厚み $30 \mu\text{m}$ のインターコネクタ用シートを作製した。このインターコネクタ用シートの一方側表面に、上述の密着層用スラリーを塗布し、その密着層用スラリーを塗布した面を、燃料極層成形体および固体電解質層成形体が形成されていない導電性支持体成形体の他方側の平坦部上に、インターコネクタの両端部が固体電解質層上に位置するように積層し、試料No. 1、2用の各層が積層された積層体を作製した。

30

【0092】

一方、導電性支持体成形体の所定の位置に、密着層用スラリーが塗布されたインターコネクタ用シートを積層し、続いて固体電解質層用シート上に燃料極層用スラリーを塗布して燃料極層成形体を形成した積層体成形体を、固体電解質層の両端部がインターコネクタの両端部上に位置するように積層し、続いて固体電解質層成形体上に中間層成形体を作成し、試料No. 3、4用の各層が積層された積層体を作製した。

40

【0093】

そして、これらの各層が積層された試料No. 1~4の各積層体を、大気中1510にて3時間同時焼成した。

【0094】

次に、平均粒径 $2 \mu\text{m}$ の LaSrCoFeO_3 の粉末と、イソプロピルアルコールとからなる混合液を作製し、積層焼結体の中間層の表面に噴霧塗布し、空気極層成形体を形成し、1100にて4時間で焼き付け、空気極層を形成し、表1に示す構成の燃料電池セルを作製した。

【0095】

50

なお、作製した燃料電池セルの寸法は25mm×200mmで、導電性支持体の厚み(平坦面n間の厚み)は2mm、気孔率35%、燃料極層の厚さは10μm、気孔率24%、空気極層の厚みは50μm、気孔率40%、固体電解質層の相対密度は97%であった。

【0096】

ここで、各試料につき10個の燃料電池セルを作製し、各燃料電池セルにガスリークが生じていないかを確認するため、リーク試験を行なった。

【0097】

なお、リーク試験は、所定の部材により一方側の燃料ガス流路を封止した燃料電池セルを水の中にいれ、燃料電池セルの他方側から1.5~3.5kg/cm²に加圧されたHeガスを30~60秒供給する試験である。なお燃料電池セルから気泡が生じたものをガスリーク発生有りとし、燃料電池セルから気泡が生じなかったものをガスリーク発生無しとした。

10

【0098】

次に、この燃料電池セルの内部に水素ガス(燃料ガス)を流した状態で、850℃で10時間加熱して、導電性支持体および燃料極層の還元処理を施した。

【0099】

そして、還元処理後においても、上述した方法と同様のリーク試験を行なった。

【0100】

【表1】

20

| 試料No. | 燃料電池セルの構成 | ガスリーク発生数(個/個) | |
|-------|--|---------------|-------|
| | | 燃料電池セル作製時 | 還元処理後 |
| 1 | 固体電解質層上の両端部にインターコネクタをの両端部を配置し、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を設けた燃料電池セル | 0/10 | 0/10 |
| *2 | 固体電解質層上の両端部にインターコネクタの両端部を配置し、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を設けていない燃料電池セル | 3/10 | 7/10 |
| 3 | インターコネクタの両端部に固体電解質層の両端部を配置し、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を設けた燃料電池セル | 0/10 | 0/10 |
| *4 | インターコネクタ上の両端部に固体電解質層の両端部を配置し、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を設けていない燃料電池セル | 3/10 | 7/10 |

*は本発明の範囲外を示す

【0101】

30

表1の結果より、試料No. 2、4は、燃料電池セルの作製時においては、10個中3個の燃料電池セルに燃料ガスのリークが生じていたが還元処理後には10個中7個の燃料電池セルに燃料ガスのリークが生じていた。一方、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を介在させて備えている試料No. 1、3は、燃料電池セルの作製時および還元処理後のどちらの場合においても燃料ガスのリークが検出されなかった。

【0102】

これにより、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層の一部を介在させて備えたことにより、燃料ガスのリークを抑制することができることがわかった。

【0103】

40

また、燃料極層および固体電解質層を設けた後にインターコネクタを設ける場合と、インターコネクタを設けた後に燃料極層および固体電解質層を設ける場合のどちらにおいても、燃料極層とインターコネクタとの間に固体電解質層を設けることにより、燃料ガスのリークを抑制することができることがわかった。

【符号の説明】

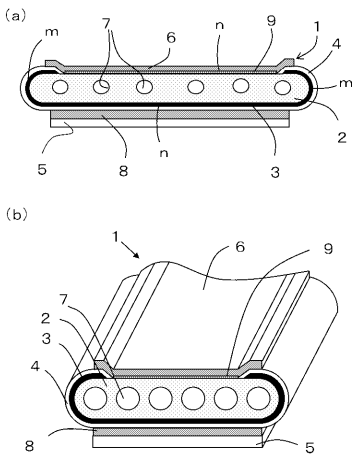
【0104】

- 1、10、11、32：燃料電池セル
- 2：導電性支持体
- 3：燃料極層
- 4：固体電解質層
- 5：空気極層

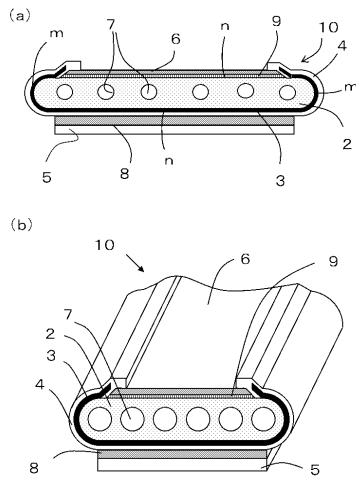
50

- 6 : インターコネクタ
- 7 : 燃料ガス流路
- 8 : 中間層
- 9 : 密着層
- 1 2 : セルスタック装置
- 2 0 : 燃料電池モジュール
- 2 5 : 燃料電池装置

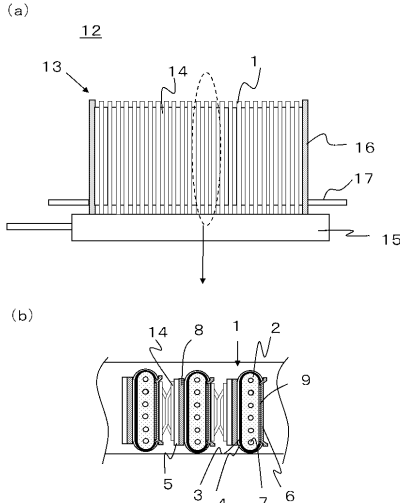
【 図 1 】



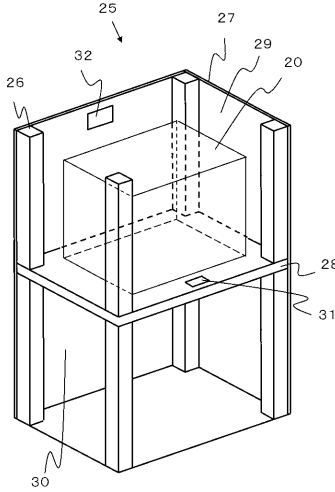
【 図 2 】



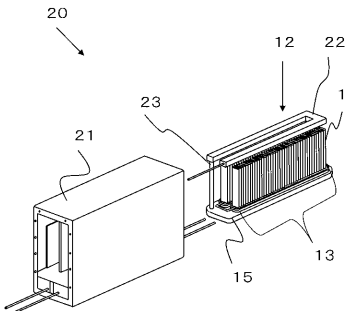
【図3】



【図5】



【図4】



【手続補正書】

【提出日】平成23年9月15日(2011.9.15)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

柱状の導電性支持体の一方側主面に、NiおよびNiOのうち少なくとも一方を含有する密着層と、該密着層上に設けられた緻密質なインターコネクタとを備え、他方側主面に、鉄族金属および鉄族金属の酸化物のうち少なくとも一方を含有する多孔質の燃料極層と、緻密質な固体電解質層と、多孔質の空気極層とがこの順に積層された積層体を備えてなり、前記固体電解質層の両端部が前記導電性支持体の他方側主面から側面を介して前記一方側主面まで延設され、前記固体電解質層の両端部と前記インターコネクタの両端部とが接合していることを特徴とする燃料電池セル。

【請求項2】

前記密着層は、前記固体電解質層の両端部間における前記導電性支持体にのみ設けられていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池セル。

【請求項3】

請求項1または2に記載の燃料電池セルを、集電部材を介して立設させた状態で複数個配列し、電氣的に直列に接続してなるセルスタックと、前記燃料電池セルの下端部を固定するとともに、前記燃料電池セルに燃料ガスを供給するためのマニホールドとを具備することを特徴とするセルスタック装置。

【請求項4】

請求項 3 に記載のセルスタック装置を収納容器内に収納してなることを特徴とする燃料電池モジュール。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の燃料電池モジュールと、該燃料電池モジュールを動作させるための補機とを外装ケース内に収納してなることを特徴とする燃料電池装置。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

本発明の燃料電池セルは、柱状の導電性支持体の一方側主面に、Ni および NiO のうち少なくとも一方を含有する密着層と、該密着層上に設けられた緻密質なインターコネクタとを備え、他方側主面に、鉄族金属および鉄族金属の酸化物のうち少なくとも一方を含有する多孔質の燃料極層と、緻密質な固体電解質層と、多孔質の空気極層とがこの順に積層された積層体を備えてなり、前記固体電解質層の両端部が前記導電性支持体の他方側主面から側面を介して前記一方側主面まで延設され、前記固体電解質層の両端部と前記インターコネクタの両端部とが接合していることを特徴とする。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0009】

このような燃料電池セルにおいては、固体電解質層の両端部とインターコネクタの両端部とが接合していることから、燃料ガスが多孔質の燃料極層、密着層から燃料電池セルの外側へ漏れる（リーク）ことを抑制するまたは防止することができる。それにより、燃料電池セルの長期信頼性を向上させることができる。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 1 4

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 1 4 】

本発明のセルスタック装置は、上記の燃料電池セルを、集電部材を介して立設させた状態で複数個配列し、電氣的に直列に接続してなるセルスタックと、前記燃料電池セルの下端部を固定するとともに、前記燃料電池セルに燃料ガスを供給するためのマニホールドとを具備することを特徴とする。

【手続補正 9】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 1 8

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 1 8 】

本発明の燃料電池セルは、固体電解質層の両端部とインターコネクタの両端部とが接合していることから、燃料極層、密着層から燃料ガスがリークすることを抑制することができ、燃料電池セルの長期信頼性を向上させることができる。また上記の燃料電池セルを備えることで、長期信頼性の向上したセルスタック装置、燃料電池モジュールおよび燃料電池装置とすることができる。

【手続補正 10】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 5

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 2 5 】

また、導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との間に密着層 9 が設けられている。密着層 9 を設けることで導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との接合を強固にすることができる。

【手続補正 11】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 4 2

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 4 2 】

さらに、導電性支持体 2 とインターコネクタ 6 との間には、インターコネクタ 6 と導電性支持体 2 との間の熱膨張係数差を軽減する等のために密着層 9 が設けられている。

【手続補正 12】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 4 6

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 4 6 】

ところで、従来の燃料電池セルにおいては、燃料電池セルの作製時や、還元処理時に、燃料極層 3、密着層 9 とインターコネクタ 6 との熱膨張差や、燃料極層 3、密着層 9 に含有される鉄族の金属酸化物が鉄族金属に還元されることに伴う還元収縮により、燃料極層 3、密着層 9 とインターコネクタ 6 との接合面が剥離する場合があります。燃料電池セル 1 の内部に設けられた燃料ガス流路 7 を流れた燃料ガスが多孔質の燃料極層 3、密着層 9 からリークし、燃料電池セル 1 の長期信頼性が低下するおそれがある。

【手続補正 13】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 4 7

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 4 7 】

図 1 に示す燃料電池セル 1 は、燃料電池セル 1 の周方向（幅方向）におけるインターコネクタ 6 の両端部が燃料電池セル 1 の幅方向における固体電解質層 4 の両端部に積層され、接合されていることから、燃料ガスが多孔質の燃料極層 3、密着層 9 からリークすることを抑制することができる。そのため、燃料電池セル 1 の長期信頼性を向上させることができる。

【手続補正 1 4】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 4 9

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 4 9 】

しかしながら、図 1 に示す燃料電池セル 1 は、固体電解質層 4 の両端部とインターコネクタ 6 の両端部とが接合していることから、燃料極層 3 および密着層 9 に含有される NiO が Ni に還元され、燃料極層 3 および密着層 9 に空隙が生じた場合にも、燃料ガスがリークすることを抑制でき、燃料電池セル 1 の発電効率が低下することを抑制することができる。

【手続補正 1 5】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 5 0

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 5 0 】

また、図 2 に示す燃料電池セル 1 0 は、燃料電池セル 1 の幅方向における固体電解質層 4 の両端部が燃料電池セル 1 の幅方向における両端部インターコネクタ 6 に積層され、接合されている。それにより、固体電解質層 4 とインターコネクタ 6 との接合面積を増やすことができ、インターコネクタ 6 と積層体（固体電解質層 4）とが剥離することを抑制することができる。

【手続補正 1 6】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 5 1

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 5 1 】

それにより、燃料極層 3、密着層 9 から燃料ガスがリークすることを抑制することができる。長期信頼性の向上した燃料電池セルとすることができる。

【手続補正 1 7】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 6 6

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 6 6 】

以上のように、本発明の燃料電池セル 1 の作製時において、燃料電池セル 1 は、固体電解質層 4 の両端部とインターコネクタ 6 の両端部とが接合し、多孔質の燃料極層 3、密着層 9 が緻密質なインターコネクタおよび緻密質な固体電解質層で封止されていることにより、燃料ガスが多孔質の燃料極層 3、密着層 9 からリークすることを抑制することができる。それにより、長期信頼性の向上した燃料電池セル 1 とすることができる。

【手続補正 18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0068

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0068】

また、燃料電池セル1の周方向（幅方向）における固体電解質層4の両端部が、燃料電池セル10の幅方向におけるインターコネクタ6の両端部上に積層され、接合されていることから、固体電解質層4とインターコネクタ6との接合面積を増やすことができ、インターコネクタ6と積層体（固体電解質層4）とが剥離することを抑制することができる。

【手続補正 19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0073

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0073】

ここで、本発明のセルスタック装置12においては、上述した燃料電池セル1を用いて、セルスタック13を構成することにより、多孔質の燃料極層3、密着層9が緻密質なインターコネクタおよび緻密質な固体電解質層で封止されていることにより、燃料ガスが多孔質の燃料極層3、密着層9からリークすることを抑制することができ、長期信頼性の向上したセルスタック装置12とすることができる。

【手続補正 20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0084

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0084】

例えば、本発明の燃料電池セル1においては、中空平板形状のものについて示したが、円筒状の燃料電池セルにおいても本発明を用いることができる。また、本発明の燃料電池セル1においては、インターコネクタ6が設けられている領域以外のほぼ全域に積層体を備える例を示したが、固体電解質層の両端部とインターコネクタの両端部とが接合していればよく、燃料ガスがリークしない燃料電池セルとすることができる。