

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6216784号  
(P6216784)

(45) 発行日 平成29年10月18日(2017.10.18)

(24) 登録日 平成29年9月29日(2017.9.29)

(51) Int.Cl.

F I

**C 2 3 C** 8/28 (2006.01)  
**B 2 2 F** 3/10 (2006.01)  
**B 2 2 F** 3/11 (2006.01)  
**C 2 2 C** 27/06 (2006.01)  
**H O 1 M** 8/12 (2016.01)

C 2 3 C 8/28  
 B 2 2 F 3/10 F  
 B 2 2 F 3/11 Z  
 C 2 2 C 27/06  
 H O 1 M 8/12

請求項の数 32 (全 21 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2015-521079 (P2015-521079)  
 (86) (22) 出願日 平成25年7月8日(2013.7.8)  
 (65) 公表番号 特表2015-530479 (P2015-530479A)  
 (43) 公表日 平成27年10月15日(2015.10.15)  
 (86) 国際出願番号 PCT/IB2013/001476  
 (87) 国際公開番号 W02014/009788  
 (87) 国際公開日 平成26年1月16日(2014.1.16)  
 審査請求日 平成28年6月9日(2016.6.9)  
 (31) 優先権主張番号 61/669,537  
 (32) 優先日 平成24年7月9日(2012.7.9)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)  
 (31) 優先権主張番号 61/701,956  
 (32) 優先日 平成24年9月17日(2012.9.17)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 317003903  
 スタックボール インターナショナル パ  
 ウダー メタル, リミテッド  
 カナダ国 オンタリオ州 エル9ジー 4  
 ヴィー5, アンカスター, コーモラント  
 ロード 1 3 2 5  
 (74) 代理人 100126572  
 弁理士 村越 智史  
 (74) 代理人 100125195  
 弁理士 尾畑 雄一  
 (72) 発明者 シヴァナ, ロビット  
 カナダ国 オンタリオ州 エム8ダブリュ  
 ー 4ジェイ7, トロント, オルダークレ  
 スト ロード 2 3 8

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料セルインターコネクタ及び燃料セルインターコネクタの製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも90wt%のクロームを含む多孔性の部品を酸化させる方法であって、  
 所定時間の期間の間、前記部品を酸化温度範囲に曝すために前記部品を炉で酸化させる  
 工程と、

前記酸化させる工程中に、制御された雰囲気気を炉に供給する工程とを含み、

前記制御された雰囲気気は、

少なくとも、30vol%の窒素と、

少なくとも、10vol%の酸素と、

少なくとも、10vol%の水蒸気と、を含み、

前記酸化させる工程による多孔性の部品の窒素成分の増加が0.1wt%未満であり、  
 前記酸化させる工程の後の多孔性の部品は、実質的にクローム及び鉄から構成される、こ  
 とを特徴とする方法。

【請求項 2】

前記酸化させる工程の後、前記部品が、0.2wt%未満の窒素を含むことを特徴とす  
 る請求項1記載の方法。

【請求項 3】

前記酸化させる工程の後、前記部品が、0.15wt%未満の窒素を含むことを特徴と  
 する請求項1記載の方法。

【請求項 4】

前記制御された雰囲気は、50 vol %の大気を含むことを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項5】

前記制御された雰囲気は、少なくとも20 vol %の水蒸気を含むことを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項6】

前記制御された雰囲気は、10～30 vol %の水蒸気を含むことを特徴とする請求項5記載の方法。

【請求項7】

前記制御された雰囲気を生成するため、水蒸気を大気に添加する工程をさらに含む請求項1記載の方法。

10

【請求項8】

前記酸化温度範囲は750を超え、前記所定時間の期間は少なくとも5時間であることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項9】

前記酸化させる工程の間、前記部品を前記炉に進行方向で供給する工程をさらに含み、前記制御された雰囲気は、前記炉に前記進行方向で供給されることを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項10】

前記酸化させる工程の間、前記部品を前記炉に進行方向で供給する工程をさらに含み、前記制御された雰囲気は、前記炉に前記進行方向の逆方向で供給されることを特徴とする請求項1記載の方法。

20

【請求項11】

前記部品には、S O F C インターコネクタが含まれることを特徴とする請求項1の方法。

【請求項12】

最終インターコネクタの所望の形状を有する未焼結のインターコネクタを形成するために、粉末ブレンドを単一プレス圧縮を行う工程と、

焼結されたインターコネクタを形成するために、単一プレス圧縮された前記未焼結のインターコネクタを焼結する工程と、

30

最終インターコネクタを形成するために、前記焼結されたインターコネクタを酸化させる工程と、を含み、

前記粉末ブレンドは、クロームと鉄とを含み、前記粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも50 wt %が、45 μmより小さい鉄粒子であり、

前記焼結されたインターコネクタは、実質的にクロームと鉄から構成され、少なくとも90 wt %のクロームと、少なくとも3 wt %の鉄とを含む、

前記酸化させる工程は、所定時間の期間の間、酸化温度範囲で前記焼結されたインターコネクタを曝すことで、前記焼結されたインターコネクタを炉で酸化させて最終インターコネクタを得ることを含み、

該酸化中に、前記炉に制御された雰囲気を供給し、

40

前記制御された雰囲気は、

少なくとも、30 vol %の窒素と、

少なくとも、10 vol %の酸素と、

少なくとも、10 vol %の水蒸気と、を含み、

前記酸化させる工程による前記最終インターコネクタの窒素成分の増加は0.1 wt %未満である、

固体酸化物燃料セルのインターコネクタを製造する方法。

【請求項13】

前記粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも80 wt %が、45 μmより小さい鉄粒子であることを特徴とする請求項12記載の方法。

50

## 【請求項 14】

前記粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも90wt%が、45μmより小さい鉄粒子であることを特徴とする請求項13記載の方法。

## 【請求項 15】

前記粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも50wt%が、20μmより小さい鉄粒子であることを特徴とする請求項12記載の方法。

## 【請求項 16】

前記焼結されたインターコネクタは、94.5～95.5wt%のクロームと4.5～5.5wt%の鉄とを含むことを特徴とする請求項12記載の方法。

## 【請求項 17】

マスター鉄/滑剤ブレンドを生成するために、鉄粉末と有機滑剤とをブレンドする工程と、

前記粉末ブレンドを生成するため、前記マスター鉄/滑剤ブレンドとクローム粉末とをブレンドする工程と、

前記焼結する工程の前に、前記未焼結のインターコネクタを脱滑する工程と、

をさらに含み、

該滑剤は、前記マスター鉄/滑剤ブレンドのうちの少なくとも5wt%を構成する請求項12記載の方法。

## 【請求項 18】

前記滑剤は、前記マスターの鉄滑剤ブレンドのうちの少なくとも10wt%を構成することを特徴とする請求項17記載の方法。

## 【請求項 19】

前記焼結する工程において、該焼結は、焼結サイクル時間の間、1425を超えない焼結温度範囲で行われることを特徴とする請求項12記載の方法。

## 【請求項 20】

前記焼結温度範囲は、1400を超えないことを特徴とする請求項19記載の方法。

## 【請求項 21】

前記焼結温度範囲は、1150を下回らず、前記焼結サイクル時間は、3時間未満であることを特徴とする請求項19記載の方法。

## 【請求項 22】

前記焼結サイクル時間が2時間未満であることを特徴とする請求項21記載の方法。

## 【請求項 23】

前記焼結する工程により、少なくとも70%のクロームの鉄への放散が発生することを特徴とする請求項19記載の方法。

## 【請求項 24】

前記焼結する工程により、少なくとも80%のクロームの鉄への放散が発生することを特徴とする請求項23記載の方法。

## 【請求項 25】

前記最終インターコネクタは、空気及びS O F Cの燃料に対し非透過であることを特徴とする請求項12記載の方法。

## 【請求項 26】

前記酸化させる工程において、酸素を含むガスを炉にインターコネクタの進行方向で供給する間、前記焼結されたインターコネクタを連続式熱処理炉に前記インターコネクタの進行方向で通過させることを特徴とする請求項25記載の方法。

## 【請求項 27】

前記酸化の後、前記最終インターコネクタが、0.2wt%未満の窒素を含むことを特徴とする請求項25記載の方法。

## 【請求項 28】

前記最終インターコネクタは、前記インターコネクタの使用中に空気又はガスが流動す

10

20

30

40

50

るよう設計されたフローフィールドを含み、

前記フローフィールドは、S O F C 燃料及び空気に対して非透過性を有し、

前記最終インターコネクタは、平均密度が  $6.8 \text{ g/cc}$  未満の前記フローフィールドを有することを特徴とする請求項 25 記載の方法。

【請求項 29】

前記最終インターコネクタは、平均密度が  $6.75 \text{ g/cc}$  未満の前記フローフィールドを有する請求項 28 記載の方法。

【請求項 30】

前記未焼結のインターコネクタは、前記インターコネクタの使用中に空気又はガスが流動するよう設計されたフローフィールドを含み、

前記未焼結のインターコネクタは、平均密度が  $6.75 \text{ g/cc}$  未満の前記フローフィールドを有する

ことを特徴とする請求項 12 記載の方法。

【請求項 31】

前記未焼結のインターコネクタは、平均密度が  $6.70 \text{ g/cc}$  未満の前記フローフィールドを有する請求項 30 記載の方法。

【請求項 32】

請求項 1 ないし請求項 11 のいずれか 1 項に記載の方法により多孔性の部品を酸化することを含む多孔性の部品の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

関連出願の相互参照

本出願は、2012年9月17日に出願された米国特許仮出願第61/701,956号（発明の名称：「FUEL CELL INTERCONNECTOR AND METHOD FOR MAKING A FUEL CELL INTERCONNECTOR」）及び2012年7月9日に出願された米国特許仮出願第61/669,537号（発明の名称：「FUEL CELL INTERCONNECTOR AND METHOD FOR MAKING A FUEL CELL INTERCONNECTOR」）からの優先権を主張するものであり、これらの出願の全内容は参照により本明細書に組み入れられる。

【0002】

本発明は、固体酸化物燃料セル（S O F C、solid oxide fuel cells）のインターコネクタ、及び圧力をかけた粉末冶金法を用いたS O F Cのインターコネクタを製造する方法に関する。さらに、及び/又は代替的に、本発明は、S O F C用のインターコネクタといった多孔性クロム合金を制御して酸化することに関する。

【背景技術】

【0003】

S O F Cは、燃料を酸化することで直接電気を生成する。S O F Cの典型的な平面形状において、電解質層（固体酸化物、又はセラミック）が、二つの電極（カソード層、及びアノード層）により挟まれている。燃料は、アノード層（酸化する側）の外側を流れて、アノードに $\text{H}_2$ を提供する。空気は、カソード層（還元する側）の外側を流れて、カソード層に $\text{O}_2$ を提供する。 $\text{H}_2$ と $\text{O}_2$ からの $\text{O}^-$ が反応し、 $\text{H}_2\text{O}$ が生成される。この $\text{H}_2\text{O}$ はアノードの燃料側で消費される。この反応は、アノードからカソードへの電子流を生じさせ、電気を提供することになる。

【0004】

S O F Cの電気出力が直列に組合わされるよう、個々のS O F Cは、典型的にはスタックされる。インターコネクタ（インターコネクタプレート、又はセパレータプレートとしても知られる）は、隣接するS O F Cを隔てる。その結果、インターコネクタの両側は、

S O F C の燃料側 / 酸化する側、及びこの S O F C と隣り合う S O F C の空気側 / 還元する側に露出している。インターコネクタは、典型的には、S O F C スタックの破滅的な故障及び制御不能な燃焼を最小化するために、実質的に気体相の空気と燃料に対し非透過性を持つよう設計されている。P M 製造プロセスにおいて、高い温度での酸化プロセスの工程が、しばしば用いられる。これにより、内部の多孔の壁における酸化物の層の成長が促進される。これにより、内部の孔チャネルが、形成された酸化物フィルムにより保護されるようになり、この酸化プロセスにより、酸化されない条件下と比べ、非透過性について所望される低下が提供される。

【 0 0 0 5 】

端プレートは、S O F C のスタックの端に配置されており、片側のインターコネクタとして機能する。簡便のため、本明細書において、端プレートも、インターコネクタと言及する。

【 0 0 0 6 】

S O F C の典型的な動作温度は、6 0 0 から 1 0 0 0 の間である。

【 0 0 0 7 】

米国特許第 7 , 3 9 0 , 4 5 6 号、同第 8 , 1 7 3 , 0 6 3 号、及び同第 6 , 3 1 6 , 1 3 6 号、及び米国特許出願公開公報第 2 0 1 1 / 0 1 3 5 5 3 1 号には、様々なインターコネクタ及び、インターコネクタの製造方法が開示される。

【 0 0 0 8 】

粉末冶金 ( powder metallurgy、P M ) による製造方法は、P M により網状の形状を形成することができるので、インターコネクタの製造に用いられてきた。しかしながら、生産される部品は、関連する製造方法と、最終部品の機能に対する問題を引き起こすことになる残存する内部の多孔を含みうる。

【 発明の概要 】

【 0 0 0 9 】

インターコネクタ中のクロームニトリド ( C r N ' s ) の存在は、以下の二つの理由に基づき、望ましくない傾向にある。すなわち、一つ目は、ニトリドの形成が、インターコネクタの寸法変化を引き起こしうることである。過大なニトリドの形成は、製品として許容できる寸法変化を超えた、インターコネクタの反りを引き起こし、製造収率を下げてしまう。二つ目は、低いレベルのニトリドが、製造された寸法に対して大きな影響を与えないとしても、さらに低いレベルのニトリドにおいても、S O F C の機能という観点で望ましくないことである。通常の S O F C の動作において、インターコネクタは、長い間、空気と高い温度とに曝されることになる。このような環境においては、インターコネクタの材料に元来存在するニトリドが大きくなり得、S O F C の動作中においてインターコネクタの元来の寸法からの変化を引き起こしうる。このような寸法変化は、S O F C スタック内の接面の一致性を損ない、S O F C の動作する時間に応じて、電気効率が、加速的に劣化することを引き起こす。

【 0 0 1 0 】

本発明の一又は複数の実施形態は、多孔性のクローム部品 ( インターコネクタといった、粉末冶金による ( P M ) 部品 ) に対する、部品内のニトリドの形成を減少させるような酸化プロセスを提供する。

【 0 0 1 1 】

本発明の一又は複数の実施形態は、少なくとも 2 0 w t % のクロームを含む多孔性の部品を酸化する方法を提供する。前記方法は、所定期間の間、酸化温度の範囲に部品を曝す目的で、炉の中の部品を酸化させる工程と、前記酸化させる工程において、前記炉に制御された雰囲気を提供する工程とを含む。前記制御された雰囲気には、少なくとも 3 0 v o l % の窒素、少なくとも 1 0 v o l % の酸素、及び少なくとも 1 0 v o l % 水蒸気が含まれる。前記酸化させる工程により、多孔性の部品の窒素分が、0 . 1 w t % 未満増加する。

【 0 0 1 2 】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記酸化させる工程の後、この部品には、0.3、0.2、0.15、及び/又は0.10wt%未満の酸素が含まれることを特徴とする。

【0013】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記制御された雰囲気には、少なくとも50vol%の大気が含まれる。

【0014】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記制御された雰囲気には、少なくとも20vol%の水蒸気が含まれる。

【0015】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記制御された雰囲気には、10～30vol%の水蒸気が含まれる。

【0016】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記方法は、前記制御された雰囲気を生成するため、水蒸気を大気に添加する工程をさらに含んでもよい。

【0017】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記酸化温度の範囲は750を超え、前記所定期間は、少なくとも5時間である。

【0018】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記方法は、前記酸化させる工程の間、前記部品を炉に進行方向で供給する工程を含み、前記制御された雰囲気は、炉に前記進行方向で供給されることを特徴とする。

【0019】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記方法は、前記参加させる工程の間、前記部品を炉に進行方向で供給する工程をさらに含み、前記制御された雰囲気は、炉に前記進行方向と逆方向で供給されることを特徴とする。

【0020】

様々な実施形態において、前記部品と前記制御された雰囲気は、前記酸化させる工程において、並流又は逆流方向で炉に供給されてもよい。

【0021】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記部品には、S O F C インターコネクタが含まれてもよい。

【0022】

空気/燃料の非透過性を獲得するために、P M インターコネクタの密度が最大化されなければならないことは、インターコネクタ産業における一般的な通念である。鉄粒子がより粗いと、より圧縮性が高くなるので、インターコネクタの密度を最大化し、それにより、空気/燃料の非透過性を最大化するための努力において、この産業界は、このようなより粗い鉄粒子に依存してきた。対照的に、本発明の発明者は、金型に関する発明の様々な実施形態に基づいて、よりきめの細かい鉄粒子を用い、より低い密度においても、すぐれた非透過性を獲得できることを発見した。よりきめの細かい鉄粒子の使用により、より粗い鉄粒子を材料とする、より密度の高いインターコネクタによって得られる微細構造よりも、より簡便に酸化から保護することができるインターコネクタの微細構造が得られる。様々な実施形態において、よりきめの細かいサイズの鉄粒子を用いた、より低いインターコネクタの密度においても、すぐれた非透過性が獲得されるので、より安価な製造技術を可能とすることができ(例えば、より高価な二重プレスの手順を避け、より低い焼結温度及び/又はより短い焼結時間を用いてたとしても、より小さいサイズの鉄粒子は、クロームが鉄に放散することを促進し、この放散により、目標とする熱膨張係数(c o e f f i c i e n t o f t h e r m a l e x p a n s i o n、CTE)がより早く獲得されるからである)、及びインターコネクタ中のクロームをより少なく使用することにより、マテリアルコストを削減できる。一又は複数の実施形態において、クロームは高価であり

10

20

30

40

50

、インターコネクタはS O F Cハードウェアのコストにおいて主要な一部を構成するため、クロームの量の要求基準が減ることは、有利である。インターコネクタの全体の重さを減少させることは、コスト上の大きな優位性を提供することになる。

【0023】

本発明の一又は複数の実施形態により、優れた非透過性と寸法特性を有するS O F Cを製造する、より早く、より安価な方法が提供される。

【0024】

本発明の一又は複数の実施形態により、インターコネクタあたりのクロームの量を減少させることを可能とし、それによりインターコネクタのマテリアルコストを減少させることを可能とするS O F Cインターコネクタが提供される。

10

【0025】

本発明の一又は複数の実施形態により、高いクローム分（例えば、90%以上）、細かい寸法の許容誤差、隣接する電解質の熱膨張特性とマッチした熱膨張特性、及び/又はよい非透過特性を有するS O F Cインターコネクタの成形加工を可能とする粉末金属（Powder Metal、PM）プロセスが提供される。この組合せを有するものは、スタンピングやローリングといった他の方法では、直ちに製造することができない。一又は複数の実施形態において、このPMプロセスは、とても精密で、コスト効率性がよい部品の成形加工を提供し、とても細かい寸法の許容誤差を提供する。

【0026】

本発明の一又は複数の実施形態において、固体酸化物燃料セルのためのインターコネクタを製造する方法が提供される。本方法は、最終インターコネクタに所望される形状を有する未焼結のインターコネクタを形成するために、粉末ブレンドを単一プレス圧縮を行う工程を含む。前記粉末ブレンドは、クロームと鉄を含む。前記パウダーブレンドの鉄分の少なくとも50wt%は、45μmより小さい鉄粒子である。前記方法は、焼結されたインターコネクタを形成するため、単一プレスされた未焼結のインターコネクタを焼結させる工程をさらに含む。焼結されたインターコネクタは、少なくとも90wt%のクローム、及び少なくとも3wt%の鉄を含む。

20

【0027】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、粉末ブレンドの鉄分のうち少なくとも60、70、80、及び/又は90wt%は、60μmより小さい鉄粒子で構成される。

30

【0028】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、粉末ブレンドの鉄分のうち少なくとも60、70、80、及び/又は90wt%は、45μmより小さい鉄粒子で構成される。

【0029】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも40、50、60、70、80、及び/又は90wt%は、30μmより小さい鉄粒子で構成される。

【0030】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、粉末ブレンドの鉄分のうち、少なくとも30、40、50、60、70、80、及び/又は90wt%は、20μmより小さい鉄粒子から構成される。

40

【0031】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、焼結されたインターコネクタは、94.5~95.5wt%のクロームと4.5~5.5wt%の鉄とを含む。

【0032】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、マスター鉄/滑剤ブレンドを形成するため、鉄の粉末と有機滑剤とをブレンドする。前記滑剤は、前記マスター鉄/滑剤ブレンドのうち少なくとも5wt%を構成する。前記方法は、前記粉末ブレンドを形成する

50

ため、前記マスター鉄／滑剤ブレンドとクローム粉末とをブレンドする工程と、前記焼結する工程の前に、前記未焼結のインターコネクタを脱滑する工程とを含む。

【0033】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記滑剤は、前記マスターの鉄／滑剤ブレンドのうち、少なくとも1、5、10、及び／又は20wt%含まれる。

【0034】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記焼結する工程では、焼結サイクル時間の間、1450、1425、及び／又は1400を超えない焼結温度の範囲で、焼結が行われる。

【0035】

本実施形態のうち一又は複数の実施形態において、前記酸化温度の範囲は、1150未満とならず、前記焼結サイクル時間は、3、2、及び／又は1.5時間未満である。

【0036】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記焼結する工程により、クロームのうち少なくとも70%、及び／又は80%が鉄に放散する。

【0037】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記方法は、最終インターコネクタを形成するために前記焼結されたインターコネクタを酸化させる工程を含み、前記最終インターコネクタは空気及びS O F Cの燃料に対し非透過であることを特徴とする。本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記酸化させる工程は、酸素を含むガスを炉に前記インターコネクタの進行方向で供給する間、前記焼結されたインターコネクタを連続式熱処理炉に前記インターコネクタの進行方向で通過させる工程を含む。一又は複数の実施形態において、最終インターコネクタは、空気又はガスがインターコネクタの使用中に流動するよう設計されたフローフィールドを含み、前記フローフィールドは、S O F C燃料及びガスに対し不浸透性を有し、前記最終インターコネクタにおいて、前記フローフィールドの平均密度が6.8、6.75、及び／又は6.73g/cc未満である。

【0038】

一又は複数の実施形態において、未焼結のインターコネクタは、空気又はガスがインターコネクタの使用中に流れるよう設計されたフローフィールドを含み、前記未焼結のインターコネクタにおいて、前記フローフィールドの平均密度が6.75、6.73、及び／又は6.70g/cc未満である。

【0039】

本発明の一又は複数の実施形態において、固体酸化物燃料セルのためのインターコネクタを提供する。前記インターコネクタは、少なくとも90wt%のクローム、及び少なくとも3wt%の鉄を含む焼結されたボディから構成される。前記ボディは、前記インターコネクタの使用中に空気又はガスが流動するよう設計されたフローフィールドを定める。前記フローフィールドの平均密度が、6.75g/cc未満である。前記フローフィールドは、S O F C燃料及び空気に対して非透過性を有する。

【0040】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記インターコネクタは、粉末ブレンドの鉄のうち少なくとも50wt%が45μmより小さい鉄粒子から構成される圧縮された粉末ブレンドより形成される。

【0041】

本実施形態における一又は複数の実施形態において、前記インターコネクタは、本明細書で開示される方法のそれぞれに従って製造される。

【0042】

本発明の一又は複数の実施形態において、固体酸化物燃料セルのためのインターコネクタを提供する。前記インターコネクタは、少なくとも90wt%のクローム、及び少なくとも3wt%の鉄を含む焼結されたボディから構成される。前記インターコネクタは、粉末ブレンドの鉄のうち少なくとも50wt%が45μmより小さい鉄粒子から構成される

10

20

30

40

50



圧縮された粉末ブレンドより形成される。

【 0 0 4 3 】

本発明の様々な実施形態に係るこれらの又は他の態様は、関連する構成要素の動作方法及び機能、そして製造における各部分の組み合わせと経済性と同様に、添付図面を参照しつつ以下の詳細な説明と添付の特許請求の範囲を検討することによってさらに明らかになる。これらはいずれも本明細書の一部を構成する。本明細書において、同様の参照符号は種々の図における対応部分を表している。本発明の一の実施形態において、本明細書又は図面で描写される構造部品は、必ずしも寸法通りには記載されていない。添付図面は例示及び説明のためのものであり、本発明の発明特定事項の定義として用いることは意図されていない。また、任意の一つの実施形態において説明した構造的な特徴は、他の実施形態においても用いられ得る。本明細書及び特許請求の範囲における用法によれば、単数形の「a」、「an」及び「the」には複数のものへの言及が含まれる。ただし、文脈によって別に解すべきことが明白な明白な場合はこの限りでない。

10

【図面の簡単な説明】

【 0 0 4 4 】

本発明の実施形態及びそれらの他の目的及び他の特徴をより理解するために、以下の添付図面と共に用いられる以下の記載が参照される。

【 0 0 4 5 】

【図 1】本発明の実施形態における S O F C スタックの模式的な断面図

【 0 0 4 6 】

20

【図 2】図 1 の S O F C スタックの部分断面図

【 0 0 4 7 】

【図 3】図 1 の S O F C スタックのインターコネクタの部分断面図

【 0 0 4 8 】

【図 4】本発明の様々な実施形態における図 3 のインターコネクタの製造を示すフローチャート

【 0 0 4 9 】

【図 5】図 1 の S O F C スタックのインターコネクタの平面図

【 0 0 5 0 】

【図 6】多孔性のクローム合金中のクロームニトリドの形成の性質を示す図

30

【 0 0 5 1 】

【図 7】本発明の実施形態における酸化プロセスで用いられる雰囲気、温度、及び時間を示す図

【 0 0 5 2 】

【図 8】本発明の実施形態における酸化雰囲気の最終窒素含有に対する影響を示す図

【 0 0 5 3 】

【図 9】本発明の一又は複数の実施形態における酸化炉でのインターコネクタの酸化を示す模式的な図

【発明を実施するための形態】

【 0 0 5 4 】

40

図 1 及び図 2 は、本発明の実施形態における S O F C スタック 1 0 を示す。S O F C スタック 1 0 は複数の S O F C 1 5 を含む。各々の S O F C 1 5 は、二つの電極（アノードプレート 3 0 及びカソードプレート 4 0 ）の間に挟まれる電解質プレート 2 0 を含む。燃料 6 0 の経路としての燃料側経路 5 0 （すなわち、連続したチャンネル）は、それぞれのアノードプレート 3 0 に隣接して配置される。空気 8 0 の経路としての空気側経路 7 0 （すなわち、連続したチャンネル）は、それぞれのカソードプレート 4 0 に隣接して配置される。インターコネクタ 1 0 0 は、一つの S O F C 1 5 の前記燃料側経路 5 0 を、隣接する S O F C 1 5 の前記空気側経路 7 0 から隔てさせている。

【 0 0 5 5 】

インターコネクタ 1 0 0 は、S O F C スタック内で用いられるのに適切な形及びサイズ

50

であればどんな形及びサイズであってもよい。図 2 及び図 5 で示される実施形態において、インターコネクタ 100 のいずれの側においても、隆起 110 と谷 120 が交互に連続して含まれている。図 2 で示されるとおり、隆起 110 と谷 120 と電極 30、40 それぞれとの間で形成される空間によって、燃料及び空気側経路 50、70 それぞれが形成されるように、インターコネクタ 100 の両側にある隆起 110 が、隣接する SOFC 15 の電極 30 及び 40 それぞれに接している。

#### 【0056】

図 5 はインターコネクタ 100 の燃料側の平面図である。燃料側経路 50 は、インターコネクタ 100 内のくぼみ 130 によって定められる。このくぼみ 130 は、このくぼみ 130 から隆起する隆起 110 と谷 120 を定める。燃料供給及び排出プレナム領域 140、150 は、隆起 110 / 谷 120 それぞれの上流及び下流側で定められる。燃料供給孔 160 は、燃料供給プレナム 140 に通じている。燃料排出孔 170 は、燃料排出プレナム 150 に通じている。燃料 60 は、供給口 160 から燃料側経路 50 及び供給プレナム 140 へと流れ、谷 120 を介して排出プレナム 150 (生成された水とともに) へと流れ、そして排出口 170 の外へ流れる。

#### 【0057】

対応する空気側くぼみ 130'、谷 120、隆起 110、及び空気供給及び排出プレナム 140'、150' 及び孔 160'、170' は、インターコネクタ 100 の反対側に配置されており、図 5 において破線で示されている。

#### 【0058】

インターコネクタ 100 は、燃料又は空気が流れるよう設計されるインターコネクタ 100 の領域に向けられるフローフィールドを含む。図 5 で示されるインターコネクタ 100 において、このインターコネクタ 100 のフローフィールドは、くぼみ 130、130' の境界によって閉ざされ、一般的にプラス (+) の形状を有している。くぼみ 130、130' の外のインターコネクタ 100 の境界周辺は、フローフィールドの一部とはならない。空気 / 燃料経路 50、70 が、インターコネクタの縁を越えて延伸する実施形態 (すなわち、図 5 で示されるとおり、インターコネクタの上、下、左、及び / 又は右) において、インターコネクタのフローフィールドは、この縁まで延伸する。以下でより詳細に説明されるとおり、インターコネクタ 100 のフローフィールドの部分が、燃料 60 及び燃料 70 に対し非透過性を有することは、典型的には重要である。

#### 【0059】

図 2 及び図 5 で示される実施形態において、インターコネクタ 100 の一方の側の隆起 110 及び谷 120 は、インターコネクタ 100 の他方の側の隆起 110 及び谷 120 に対し相対的に垂直に延伸する。その結果、図 2 に示されるとおり、燃料側経路 50 はシートへ延伸し、空気側経路 70 は左右に延伸する。すなわち、燃料 60 がある方向に流れる場合、空気 80 はその方向の垂直方向に流れるように、SOFC スタック 10 は設計されている。しかしながら、他の代替的な実施形態において、燃料及び空気側経路 50、70 は平行であってもよく (例えば、図 3 で示される代替的なインターコネクタ 100' で示されているとおりでもよい)、本発明の範囲から外れなければ、他のどのような相対方向でもよい。

#### 【0060】

以下、様々な実施形態におけるインターコネクタの製造方法が、図 4 を参照して説明される。

#### 【0061】

クローム (Cr) ベース粉末 200 は、ハンマーミル、ピンミル、及び / 又は他の適した粉碎機により約 20 mm から 6 mm にまで粉碎した粗クローム原料により生成され、分類される。様々な実施形態において、粗クローム原料は、少なくとも、90%、95%、97%、98%、99%、及び / 又は 99.3% のクローム (例えば、他の適した方法を用いて生成されたクローム粉末、アルミノサーミッククローム) を含む。

#### 【0062】

他に述べられない限り、本明細書で開示される全ての百分率は、重量百分率である。他に述べられない限り、粒子のサイズは、矩形開口を用いた篩い分けによる分類を参照する。例えば、 $45\text{ }\mu\text{m}$ より小さい粒子とは、 $45\text{ }\mu\text{m} \times 45\text{ }\mu\text{m}$ の矩形開口を通じて落ちる粒子を意味する。対照的に、任意の  $d \times X$  値（例えば、 $D50$ ）は、粒子の数（重量ではない）で、 $X\%$ の粒子を言及する。すなわち、 $100\text{ }\mu\text{m}$ の  $D50$  値を有する粉末は、（質量ではなく粒子の数で） $50\%$ の粒子が、 $100\text{ }\mu\text{m}$ より大きく、 $50\%$ が  $100\text{ }\mu\text{m}$ より小さい。

#### 【0063】

様々な実施形態において、適した篩を介し、 $160\text{ }\mu\text{m}$ 以下に分類され（すなわち、実質的に全ての粒子が、 $160\text{ }\mu\text{m} \times 160\text{ }\mu\text{m}$ の開口を通じて落ち）、 $80$ から $150\text{ }\mu\text{m}$ 、及び/又は $110$ から $150\text{ }\mu\text{m}$ の間の  $D50$  値を有し、最大 $5\%$ 、 $10\%$ 、 $20\%$ 、及び/又は $30\%$ のクローム粒子が $45\text{ }\mu\text{m}$ より小さいクローム粉末が、クロームベース粉末 $200$ となる。様々な実施形態において、クロームベース粉末 $200$ は、 $200\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $5\%$ を超えず、 $160\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $10\%$ を超えず、 $63\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものがほぼ $100\%$ であり、及び $45\text{ }\mu\text{m}$ より小さいものが $1\%$ を超えないクローム粒子を含む。様々な他の実施形態において、クロームベース粉末 $200$ は、 $160\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $1\%$ を超えず、 $63\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが少なくとも $75\%$ を超えず、及び $45\text{ }\mu\text{m}$ より小さいものが $15\%$ を超えないクローム粒子を含む。様々な実施形態において、クロームベース粉末 $200$ は、 $200\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $0.1\%$ を超えず、 $160\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $2\%$ を超えず、 $63\text{ }\mu\text{m}$ より大きいものが $80 - 100\%$ 及び/又は $84 - 96\%$ であり、 $45\text{ }\mu\text{m}$ より小さいものが $5\%$ を超えないクローム粒子を含む。

#### 【0064】

鉄（Fe）粉末 $220$ は、マスター鉄/滑剤ブレンド $240$ を生成するために、滑剤（例えば、有機滑剤、有機金属系滑剤、又は圧縮PMで用いられうる他の種類の適した滑剤） $230$ と、ブレンドされる。様々な実施形態において、鉄粉末 $220$ は、少なくとも $95\%$ 、 $97\%$ 、 $98\%$ 、 $99\%$ 、 $99.5\%$ 、及び/又は $99.9\%$ の純度の鉄を含む。様々な実施形態において、鉄粉末 $220$ は、少なくとも $30\%$ 、 $40\%$ 、 $50\%$ 、 $60\%$ 、 $70\%$ 、 $80\%$ 、 $90\%$ 、 $95\%$ 、 $97\%$ 、 $98\%$ 、 $99\%$ 、 $99.5\%$ 、 $99.6\%$ 、 $99.7\%$ 、 $99.8\%$ 、及び/又は $99.9\%$ が、 $75$ 、 $70$ 、 $60$ 、 $50$ 、 $45$ 、 $40$ 、 $35$ 、 $30$ 、 $25$ 、 $20$ 、 $15$ 、及び/又は $10\text{ }\mu\text{m}$ より小さい鉄粒子を含む。様々な実施形態において、鉄粉末 $220$ は、これらの百分率及びサイズの任意の組合せで鉄粒子が含まれていてもよい（例えば、 $30\%$ が $75\text{ }\mu\text{m}$ より小さいものから $99.9\%$ が $10\text{ }\mu\text{m}$ より小さいものまでのどのような値でもよい）。

#### 【0065】

鉄粉末 $220$ は、例えば少なくとも $90\%$ の鉄粒子が $50\text{ }\mu\text{m}$ より小さい鉄粒子、及び少なくとも $50\%$ が $20\text{ }\mu\text{m}$ より小さい鉄粒子といったように異なる成分から構成されてもよい。いずれにせよ、上記で列挙した百分率とサイズの任意の組合せが用いられうる。より小さな鉄粒子において非透過性の特性が改善される必要はあるものの、より粗く及びよりきめ細かな鉄粒子が、より大きな鉄粒子のよりよい流動及び圧縮特性を提供するために用いられてもよい。

#### 【0066】

一又は複数の実施形態において、鉄粉末 $220$ は、高い純度のきめ細やかな鉄粉末を含む。例えば、典型的な篩い分け分析において  $d10$  値が $5\text{ }\mu\text{m}$ 、 $d50$  値が $15$ ミクロン、及び  $d90$  値が $30$ ミクロンであり、化学分析（wt%）において、 $98 + \%$ の鉄、 $0.150\%$ の炭素、 $0.800\%$ の酸素、 $0.015\%$ の硫黄、及び $0.010\%$ のリンを有する粉末や、典型的な化学分析で、 $99.7\%$ の鉄、 $99.5\%$ の iron - met、 $0.09\%$ の O - tot、 $0.003\%$ の炭素、 $0.009\%$ の硫黄、 $0.005\%$ のリン、 $0.002\%$ の珪素、 $0.09\%$ のマンガン、及び典型的な篩い分け分析において、 $150$ ミクロンを超えるもので $0.0\%$ 、 $75 - 150$ ミクロンのものが $0.3\%$ 、 $6$

3 - 75ミクロンのものが1%、45 - 63ミクロンのものが12%、及び87%のものが45ミクロン以下を有する粉末、又はこのような粉末の混合物（例えば、75 / 25、50 / 50、25 / 75）がある。

【0067】

様々な実施形態において、マスター鉄 / 滑剤ブレンド240は、質量百分率で、1から30%、5から25%、10から20%、及び / 又は12.5から17.5%の有機滑剤230を有する。流動しやすさは粒子サイズと逆比例する傾向があるので、より小さい粒子サイズを有する鉄粉末220を用いた実施形態において、はじめに、より粗い鉄粉末に係る実施形態よりも多くの量の滑剤と個別に組合せてもよい。しかしながら、様々な実施形態において、滑剤230は、完全に除去されていてもよい。例えば、より粗い鉄粉末を用いた一又は複数の実施形態において、滑剤230は用いられなくてもよい。

10

【0068】

最終ブレンド粉末260を生成するために、クロームベース粉末200及びマスター鉄 / 滑剤ブレンド240が、ブレンドされてもよい。様々な実施形態において、最終ブレンド粉末260は、少なくとも90、91、92、93、94、及び / 又は95%のベースクローム粉末を含んでもよい。好ましくは、最終ブレンド粉末260の上記の残りとして、マスター鉄 / 滑剤ブレンド240が含まれてもよい。様々な実施形態において、最終ブレンド粉末260は、少なくとも0.4%の有機滑剤230を含んでもよい。様々な実施形態において、最終ブレンド粉末260は、少なくとも1から9%の鉄を含んでもよい。一又は複数の実施形態において、最終鉄ブレンド粉末260は、約94 - 96%のクローム、少なくとも4%及び / 又は5%の鉄、及び、少なくとも0.10%、0.2%、0.3%、及び / 又は0.4%の滑剤230を含んでもよい。一又は複数の実施形態において、最終ブレンド粉末260は、少なくとも0.65%の有機滑剤を含んでもよい。

20

【0069】

様々な実施形態において、最終ブレンド粉末260を生成するため、クロームベース粉末200及びマスター鉄 / 滑剤ブレンド240は、ほぼ室温（例えば、15 から27、及び / または約21）でブレンドされてもよい。一の実施形態において、ダブルコーンブレンダー（double cone blender）及び40分のブレンドサイクルが用いられてもよい。

【0070】

他の実施形態において、最終ブレンド粉末260を生成するため、クロームベース粉末200及びマスター鉄 / 滑剤ブレンド240は、室温を超えた温度（例えば、27、40、50、70、及び / 又は100 を超え、及び140、130、120、及び / 又は110 を下回る温度）でブレンドされてもよい。一の実施形態において、ジャケットダブルコーンブレンダー（jacketed DC blender）及び2時間サイクル（加熱時間及び乾燥ブレンド時間を含む）が用いられてもよい。一又は複数の実施形態において、高い温度によるブレンドは、よい流動特性を有することが証明されている。様々な実施形態において、ブレンド温度は、滑剤230の溶解温度を下回る温度に保たれる。

30

【0071】

最終インターコネクタ100の所望のキャビティ形状を有する金型キャビティに、最終ブレンド粉末260が、適切に充填される。最終ブレンド粉末260により金型キャビティが充填された後、未焼結のインターコネクタ280を形成するため、最終ブレンド粉末260は、閉空間の金型内で単一段階圧縮 / 加圧される。様々な実施形態において、未焼結のインターコネクタ280は、最終インターコネクタ100の最終形状及び最終サイズを実質的に有する（後工程の加圧、弾性反発、焼結、さらなる熱処理、及び / 又は酸化による形状及びサイズのマイナーチェンジを除く）。様々な実施形態において、単一段階圧縮は、隆起110、谷120、くぼみ130、130'、プレナム140、140'、150、150'、及び孔160、160'、170、170'を形成する。様々な実施形態において、圧縮は、加圧（例えば、水圧、ハイブリッド加圧、又は適切な任意の他の加圧）

40

50

40 - 100 T s i、及び/又は60 - 75 T s iで行われる。

【0072】

様々な実施形態において、圧縮/加圧は、伝統的な2段階加圧の手順（例えば、米国特許第8,173,063号に開示される2段階加圧）を介することなく、単一段階加圧の手順を介して行われる。

【0073】

様々な実施形態において、未焼結のインターコネクタ280は、少なくとも400、500、600、及び/又は700 p s iの生強度を有する。様々な実施形態において、未焼結のインターコネクタ280は、少なくとも6.50、6.55、6.60、6.63、6.65、及び/又は6.67 g / c c、及び/又は6.80、6.78、6.75、6.72、6.70、6.68、6.66、及び/又は6.65未満のフローフィールドの平均圧粉密度を有していてもよい。一又は複数の実施形態において、圧粉密度は、フローフィールドの平均で、約6.65 g / c cでもよい。

10

【0074】

一又は複数の実施形態において、滑剤230が用いられる場合、実質的に滑剤230を除去し、脱滑された未焼結のインターコネクタ300を形成するため、未焼結のインターコネクタ280は、300 から500 （例えば、約400 ）の空气中で、1から3時間、脱滑される。しかしながら、未焼結のインターコネクタ280の滑剤230の特性及び量、及びサイズ及び寸法により、代替的な温度及び/又は脱滑時間が用いられうる。

【0075】

20

焼結されたインターコネクタ320を形成するために、脱滑された未焼結のインターコネクタ300（又は、滑剤が用いられていない未焼結のインターコネクタ280）は、焼結される。様々な実施形態において、脱滑された未焼結のインターコネクタ300は、クロームと鉄粒子とを金属結合させ、クロームを鉄に放散させるため、30分から3時間、45分から2時間、及び/又は1時間から1.5（1 1 / 2）時間の焼結サイクル時間、焼結温度の範囲（例えば、少なくとも1150 、及び/又は1250 の温度、及び1450 、1425 、及び/又は1400 未満の温度）が維持された炉で、焼結される。様々な実施形態において、焼結サイクル時間は、前記焼結温度の範囲において、3、2、及び/又は1.5時間未満である。様々な実施形態において、焼結する環境は、少なくとも80%、少なくとも90%、及び/又は~100%のH<sub>2</sub>を含む。一又は複数の実施形態において、脱滑された未焼結のインターコネクタは、炉において70分のサイクル時間の間、70分サイクルの最中に1150 から380 の範囲の焼結温度で、約95%のH<sub>2</sub>と約5%のArを含む焼結環境で、焼結される。一又は複数の実施形態において、焼結する工程は、少なくとも5つのゾーンで温度管理が可能であり、2つの密封された出口を有するプッシャー式加熱炉で行われてもよい。

30

【0076】

所定の化学成分を有するインターコネクタ（例えば、95%のクローム/5%の鉄）において、より粗い鉄粒子は、放散が起こりうるクローム/鉄の接触ポイントをより少なくすることができる。より粗い鉄粒子は、それぞれの鉄粒子の中心への経路をより長くすることができる。所望の放散レベル、及び関連する熱膨張率（C T E）レベルの目標を得るためにより少ない接触ポイント、及びより長い経路を得るには、典型的には高い焼結温度（例えば、1450 を超える）、及び/又はより長い焼結時間が必要とされる。より高い焼結温度及びより長いプロセスタイムは、より高い製造コストを引き起こす傾向にある。対照的に、様々な実施形態において、より小さい鉄粒子サイズにおいては、より低い焼結温度及び焼結時間でもよく、そのような場合においても、所望の放散C T Eレベルを得ることができる。

40

【0077】

様々な実施形態において、焼結炉中の雰囲気の流れにより、放散のバリアとなる表面の酸化クローム及び鉄が減少し、粒子の結合及び放散の進展を許容することになる。

【0078】

50

様々な実施形態において、焼結する工程の温度プロファイルは、焼結されたインターコネクタ320において、少なくとも60%、70%、75%、78%、及び/又は80%のクロームが鉄に放散する放散レベルを達成することができる。様々な実施形態において、前記焼結する工程により、80 - 85%のクロームの鉄への放散が発生する。

#### 【0079】

様々な実施形態において、焼結されたインターコネクタ320は、少なくとも6.50、6.55、6.60、6.63、6.65、6.67、6.68、6.69、及び/又は6.70 g/ccの、及び/又は6.8、6.78、6.75、6.73、6.70、及び/又は6.68 g/cc未満のフローフィールドの平均密度を有していてもよい。一又は複数の実施形態において、焼結密度は、フローフィールドの平均で、約6.65 g/ccでもよい。様々な実施形態において、一部の高密度化は、焼結により達成される（未焼結のインターコネクタの密度から0.5 - 2%、密度が増加する）。

10

#### 【0080】

様々な実施形態において、焼結プロセスにより、0.10%、0.09%、0.08%、0.07%、及び/又は0.065%未満の窒素分を有する焼結されたインターコネクタを得ることができる。様々な実施形態において、低い窒素分により、最終インターコネクタの変形が、予防又は制限されうる。様々な実施形態において、インターコネクタの窒素分の減少は、インターコネクタが（例えば、焼結前後あるいは中に）曝される雰囲気中の窒素分を減少させることにより達成される。

#### 【0081】

20

SOF Cは、使用中（例えば、動作開始から、動作中、及び動作終了中）に、広い範囲の温度にさらされることとなり、典型的には、電解質プレート20と最終インターコネクタ100がSOF Cスタック10の動作開始、動作中、及び動作終了中に、同期して膨張するよう、最終インターコネクタ100は、電解質プレート20のCTEとほぼ同等のCTEを有することが好ましい。様々な実施形態において、クローム/鉄の比及び焼結プロトコル（これにより、クロームが鉄に放散する度合いを制御することができる）の組合せは、最終インターコネクタ100のCTEへ影響を与える。すなわち、クローム/鉄の比及び焼結プロトコルは、SOF C内で同じく使用される電解質のCTEと、最終インターコネクタ100のCTEとがマッチするようにしなければならない。一又は複数の実施形態において、インターコネクタ100は、95%のクローム/5%の鉄分を有し、80%を超える放散により、同じく使用される一又は複数の電解質プレート20に対しとても適したCTEが達成される。

30

#### 【0082】

様々な実施形態において、焼結されたインターコネクタ320は、なくとも5、10、15、及び又は20時間、及び40、35、30、及び/又は25時間未満の間、500から1100（例えば、少なくとも500、600、700、800、及び/又は900、及び/又は900から1000、及び/又は1200、1100、及び/又は1000未満）の酸化温度による酸化から守られ、温度において安定している。一又は複数の実施形態において、500及びそれを超えた温度で、程よい速さの酸化が始まる。一又は複数の実施形態において、20 - 24時間、950の酸化環境に焼結されたインターコネクタ320が維持されることにより酸化が行われる。図7は、インターコネクタが曝される炉の雰囲気が、5時間を超える間で大気温度（例えば、25）から950となる温度勾配を有する一又は複数の実施形態における酸化プロセスを示す。この環境は、24時間、950に保たれる。この環境は、7時間かけて大気温度に戻る勾配を有する。

40

#### 【0083】

図9に示されるとおり、様々な実施形態において、焼結されたインターコネクタ320は、最終インターコネクタ100が平面度を維持する助けとなるセラミックセッタの炉のメッシュベルト500にスタックされる。炉520内のインターコネクタ320の周りの環境に反応ガス（酸素）を供給するため、制御された雰囲気510は、（以下でより詳し

50

く説明されるが)メッシュベルト500と焼結されたインターコネクタ320とが流れる方向で酸化炉520に対して供給される。様々な実施形態において、このような一致した方向の流動は、インターコネクタ320が加熱される(例えば500 から700 の間)に従い、より高い温度(例えば700 あるいはそれを超える温度)で代わりに発生する窒化物形成の前の酸化を促進するこのような一致した流動は、さらに、又は代替的にインターコネクタが曝される温度を緩和することにより(例えば、酸化サイクルの最初の段階でインターコネクタが経験する温度が、ゆっくりとした勾配であがっていく、及び/又は一定の勾配であがっていくことにより)、酸化サイクルを改善することができる。代替的な実施形態において、インターコネクタ320は、連続的な流動炉の代わりに、一括炉(batch furnace)の中で酸化されてもよい酸化プロセスに対する酸素の利用可能な供給を維持するため、酸化のバッチプロセス(batch process)中、制御された雰囲気510は、前記一括炉に対して供給される。

10

#### 【0084】

様々な代替的な実施形態において、制御された雰囲気510は、炉520に対して、流動する方向と一致する方向ではなく、反対の方向で供給されてもよい。流動する方向と反対の方向に係る様々な実施形態において、制御された雰囲気は、酸化されたインターコネクタ100の出口がある炉の部分から、又はその周りから入り、炉520から排出されるのに、焼結されたインターコネクタが炉520に入る炉の部分、又はその周りから排出されてもよい。この代替的な反対方向の流動プロセスは、図9に示されるプロセスと類似するが、制御された雰囲気510の流れ及び矢印580は、反転した方向と場所で示され、加湿器560は、それに従い再配置される。

20

#### 【0085】

様々な実施形態において、インターコネクタ320が炉520に供給され始めるとすぐに、制御された雰囲気510は、全体の酸化サイクルの間、炉520に対して連続して供給される。代替的な実施形態において、インターコネクタ320は、酸化温度の環境に曝される(例えば、インターコネクタが300 、400 、及び/又は500 を超えた温度の環境に曝される)が、制御された雰囲気510は、炉520供給されるのみである。

#### 【0086】

図6に示されるとおり、焼結されたインターコネクタ320を大気(約1 - 4 %の水蒸気を含む空気)中で酸化する場合、クローム中のニトリドが内部の微細構造内に形成される。大気中での酸化プロセス後の図である図6が示すとおり、多孔性のCr合金のインターコネクタが大気中で酸化された後、微細構造は、気孔の周りの領域及び粉粒物の境界内部に窒素が濃縮される領域を示す傾向がある。

30

#### 【0087】

Crベース金属と大気中に含まれる窒素とが、温度上昇の下で組合わされた結果、ニトリドが形成される。様々な実施形態において、インターコネクタ中のこのようなニトリドの量を、好ましくは減少させた方がよい。従って、本発明の一又は複数の実施形態では、多孔性のクローム部品(例えば、インターコネクタといった、粉末冶金による部品)に対する、部品内のニトリドの形成を減少させる、及び/又は最小化させるような酸化プロセスが提供される。インターコネクタ中のニトリド形成の量を減少させると、製造時の全体のインターコネクタの収率を増加させることができ(例えば、許容できる寸法誤差内のインターコネクタ100が増えるため)、S O F Cスタックでの使用時の製品寿命、寸法の正確性が改善されたインターコネクタを提供することができる。窒素の吸収作用を減少させる方法は、高密度のCr材料に関する文献に記載されており、Michalikは、ニトリドの形成を抑制するため、(1)4 %のH<sub>2</sub>O及び4 %のH<sub>2</sub>と窒素の混合物、又は(2)10 %のH<sub>2</sub>Oと窒素の混合物を用いている。しかしながら、図8に示されるとおり、酸化後の窒素分が増加し、1wt %を超えることとなる多孔性のCr合金(例えばPMインターコネクタ)に適用すると、これらの方法は、非効率であることがわかっている。例えば、Michalik 2007 Effect of water vapour on growth and adherence of chro

40

50

mia scales, Julich Research Thesis参照。

【 0 0 8 8 】

図 8 に示されるとおり、一又は複数の実施形態において、窒素を有しないアルゴン / 酸素の混合気体内での酸化は、窒素分を 0 . 0 5 % 近辺とする酸化前レベルを維持できる。すなわち、本発明の様々な実施形態において、酸化プロセス中に、実質的に窒素を含まないアルゴン / 酸素雰囲気を用いられる。しかしながら、様々な実施形態において、プロセスで用いる雰囲気は高いコストが必要であり、又は、複雑で高いコストが必要な雰囲気のリサイクル機能を有する製造装置を用いる必要があるので、アルゴン / 酸素雰囲気の使用は、実用的ではない。

【 0 0 8 9 】

一又は複数の代替的な実施形態において、大気 5 4 0 と、上昇レベルの水蒸気 5 5 0 とを含む制御された雰囲気 5 1 0 の下で、インターコネクタ 3 2 0 は、酸化される。様々な実施形態において、図 9 に示されるとおり、制御された雰囲気 5 1 0 を生成するため加湿器 5 6 0 内で大気 5 4 0 に湿り気を与えることで、制御された雰囲気 5 1 0 が生成される。様々な実施形態において、酸化する工程中に、炉 5 2 0 に注入される制御された雰囲気 5 1 0 の水蒸気分は、大気 5 4 0 と、容積 ( volume ) 百分率で、少なくとも 5 %、1 0 %、1 5 %、2 0 %、及び / 又は 2 5 %、5 0 %、4 0 %、及び / 又は 3 5 % 未満、及び / 又は 1 0 % から 4 0 % の間、1 0 % から 3 0 % の間、及び / 又は 1 5 % から 2 5 % の間の水蒸気分を含む。一又は複数の実施形態において、制御された大気中の水蒸気分は 2 0 % である。これらの一又は複数の実施形態において、この制御された雰囲気 5 1 0 により、酸化された C r 合金中の最終窒素分を制御する / 制限する効率的な方法を提供できることがわかっている。様々な実施形態において、水蒸気 5 5 0 が加えられた大気 5 4 0 は、容量百分率で

- ・ 6 0 - 9 5 %、7 0 - 9 0 %、7 0 - 8 5 %、7 5 - 8 5 %、及び / 又は約 7 8 % の窒素 ( N )
- ・ 5 - 3 5 %、1 0 - 3 0 %、1 5 - 2 5 %、及び / 又は約 2 1 % の酸素 ( O<sub>2</sub> )、及び
- ・ 0 - 4 % の水蒸気 ( H<sub>2</sub>O ) を含む。

大気 5 4 0 に加えられる水蒸気 5 5 0 の量は、大気 5 4 0 中の開始湿度に依存する。様々な実施形態において、制御された雰囲気を生成するため、より少ない水蒸気 5 5 0 がより湿度の高い空気 5 4 0 に加えられる。

【 0 0 9 0 】

様々な実施形態において、制御された雰囲気 5 1 0 は、

- ・ 3 0 - 9 5 %、4 0 - 9 0 %、4 5 - 8 0 %、4 5 - 7 0 %、5 0 - 6 0 % 及び / 又は約 5 5 % の窒素 ( N )、
- ・ 5 - 4 0 %、5 - 3 5 %、1 0 - 3 0 %、1 0 - 2 5 %、1 0 - 2 0 %、及び / 又は約 1 5 % の酸素 ( O<sub>2</sub> )、及び
- ・ 5 - 5 0 %、1 0 - 4 0 %、1 0 - 3 5 %、2 0 - 3 5 %、及び / 又は約 3 0 % の水蒸気 ( H<sub>2</sub>O ) を含む。

【 0 0 9 1 】

他に特定して述べられない限り、全ての雰囲気の百分率は、標準的な大気温度及び圧力 ( standard ambient temperature and pressure、SATP ) ( すなわち、2 5 ° C で 1 0 1 . 3 k P a ) における雰囲気に基づく容量百分率である。全ての雰囲気の百分率は、代替的に、SATP における分子百分率と考えてもよい。従って、様々な実施形態において、制御された雰囲気は、容量、及び / 又は分子濃度で、5 - 5 0 %、1 0 - 4 0 %、1 0 - 3 5 %、2 0 - 3 5 %、及び / 又は約 3 0 % の水蒸気 ( H<sub>2</sub>O ) を含む。様々な実施形態において、炉 5 2 0 に注入される制御された雰囲気 5 1 0 は、炉 5 2 0 に注入される容量百分率を計測するため、ほぼ SATP で注入される。代替的な実施形態において、SATP で雰囲気の百分率が計測されるものの、制御された雰囲気 5 1 0 は、他の温度又は圧力で注入されてもよい。

【 0 0 9 2 】



制御された雰囲気 510 の水蒸気分は、代替的に露点という観点から計測されてもよい。様々な実施形態において、制御された雰囲気 510 の（標準的な大気圧 101.3 kPa における）露点は、少なくとも 40、45、50、及び / 又は 55、及び / 又は 40 から 100 の間、45 から 90 の間、45 から 80 の間、50 から 80 の間、55 から 80 の間、及び / 又は約 60 である。

#### 【0093】

様々な実施形態において、制御された雰囲気 510 を生成するため、水蒸気 550 を追加する以外の他の方法で、大気 540 が、変更されてもよい。例えば、制御された雰囲気 510 を生成するために、酸素が大気 540 に加えられる。追加された酸素は、酸化率を上昇させ、酸化サイクル時間を減少させる。

10

#### 【0094】

様々な実施形態において、酸化プロセス中における、制御された雰囲気 510 の炉 520 への標準流量 (nominal flow) レートは、炉のベルト 500 の幅 1 インチ当たり、125 立方フィート / 時であり、最小で、炉のベルト 500 の幅 1 インチ当たり、42 立方フィート / 時、最大で炉のベルト 500 の幅 1 インチ当たり、208 立方フィート / 時である。様々な実施形態において、酸化プロセス中において、制御された雰囲気 510 は、炉 520 に、炉のベルト 500 の幅 1 インチ当たり、少なくとも 25、35、40、50、60、70、80、90、及び / 又は 100 立方フィート / 時、及び / 又は炉のベルト 500 の幅 1 インチ当たり、25 ~ 500、25 ~ 400、40 ~ 250 立方フィート / 時、供給される。一又は複数の実施形態において、炉のベルト 500 の幅は 18 インチである。一又は複数の実施形態において、27 個の焼結されたインターコネクタ 320 が、グラウンドアルミナセッタープレート (ground alumina setter plate) 上に 3 x 3 x 3 の配列でスタックされ、酸化され最終インターコネクタ 100 を形成する。一又は複数の代替的な実施形態において、金型の焼結されたインターコネクタ 320 がメッシュベルトを横切って横に 3 段、上下に 5 段にスタックされる。

20

#### 【0095】

様々な実施形態において、所望の加湿が、加湿器 560 を用いて行われる。加湿器 560 は、8 ポンド (lb.) / 時で、1000 立方フィート / 時の流量の炉に供給される制御された雰囲気 510 を加湿する。一又は複数の実施形態において、制御された雰囲気 510 は、炉 520 に、少なくとも 100、250、500、750 立方フィート / 時 (cubic feet per hour, cfh)、及び / 又は 100 ~ 5000 cfh、500 ~ 4000 cfh、及び / 又は 750 ~ 4000 cfh で、供給される。

30

#### 【0096】

図 9 に示されるとおり、酸化する工程において、反応ガスを炉 520 に流し、供給した後、使用された制御された雰囲気 510（ほとんど使用されない反応ガスと、ほとんど構成物が失われていないその他）は、排出ガス 580 として炉 520 から、すなわち炉 520 のベルト 500 の出口から排出される。様々な実施形態において、排出ガス 580 は、リサイクルされ、再供給されてもよい（例えば、排出ガス 580 を再度加湿し、制御された雰囲気 510 を生成してもよい）。

40

#### 【0097】

一又は複数の実施形態において、製造プロセスにより、酸化する工程後の窒素分として 1.0%、0.75%、0.5%、0.4%、0.3%、0.20%、0.17%、0.15%、0.12%、0.10%、及び / 又は 0.09% 以下を有する最終インターコネクタ 100 が形成される。図 8 で示されるとおり、水蒸気を含む制御された雰囲気中での酸化の後、窒素分は、大気中における酸化で観察される値と比べ、実質的に減少する（しかしながら、大気は、様々な実施形態において代替的に用いられる）。計測された窒素分は、窒素がないアルゴン / 酸素雰囲気中で酸化された場合に見られる窒素分と類似している。様々な実施形態において、前記酸化プロセスにより、最終インターコネクタ 100 の窒素分は、0.1、0.09、0.08、0.07、0.06、0.05、及び / 又は 0

50

． 0 0 w t % 未満増加した。

【 0 0 9 8 】

様々な実施形態において、酸化する工程により、酸化物の層が、インターコネクタの表面に形成され、前記酸化物（例えば、酸化クローム  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ）は、少なくとも 1、2、及び / 又は  $3\text{ }\mu\text{m}$  の厚さ、及び / 又は  $3\sim 4\text{ }\mu\text{m}$  の厚さを有する。

【 0 0 9 9 】

様々な実施形態において、酸化する工程により、最終インターコネクタ 1 0 0 が形成される。様々な実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 は、少なくとも 6 . 6 3、6 . 6 5、6 . 6 7、6 . 6 8、6 . 6 9、6 . 7 0、6 . 7 1、6 . 7 2、6 . 7 3、及び / 又は 6 . 7 1 g / c c、及び / 又は 6 . 8、6 . 7 8、6 . 7 5、6 . 7 4、6 . 7 3、6 . 7 2、及び / 又は 6 . 7 1 g / c c 未満のフローフィールドの平均密度を有していてもよい。一又は複数の実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 において、平均密度が、約 6 . 7 g / c c のフローフィールドの範囲内でもよい。一又は複数の実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 は、4 0 0、3 5 0、及び / 又は 3 0 0 ミクロンの範囲内で平坦である。様々な実施形態において、インターコネクタプレート 1 0 0 の全体の厚さが、1 . 5 ~ 3 . 5 mm（実施形態による）であり、厚さの変差は、最大 0 . 2 5、0 . 2 0、0 . 1 9、及び / 又は 0 . 1 8 0 ミクロンである（くぼみ 1 3 0、1 3 0' は含まれない）。

10

【 0 1 0 0 】

様々な実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 は、S O F C スタック 1 0 として使用される前に、さらに製造する工程（例えばコーティングなど）を経る。

20

【 0 1 0 1 】

上記の酸化プロセスは、特定のインターコネクタで記述されているが、本発明の範囲を逸脱しない限り、この酸化プロセスは、付加的に、又は代替的に様々な種類の他の構成装置のために用いられてもよい。例えば、上記の酸化プロセスは、他の製造技術を用いて製造されたインターコネクタ（例えば二重圧縮製造技術を用いて製造されたインターコネクタ）のために用いられてもよい。本発明に係る一又は複数の実施形態における酸化プロセスは、多孔性の P M 部品（例えば、高いクローム分を有する P M 部品）を酸化 / 不動態化するために用いられる。

【 0 1 0 2 】

逆に、インターコネクタの製造プロセスが、様々な特定の酸化する工程を用いて記載されたが、製造方法と製造されたインターコネクタ 1 0 0 は、代替的に他の適した工程（例えば、代替的な酸化する工程、雰囲気として大気のみを用いる酸化する工程、完全に酸化する工程を除いた方法など）を用いて製造されてもよい。

30

【 0 1 0 3 】

様々な実施形態において、鉄粒子のサイズ、クローム粒子のサイズ、密度、表面の酸化、及び / 又は製造する工程の他の態様により、インターコネクタ 1 0 0 は、カソード側 7 0 から空気が、及びアノード側 5 0 から燃料が非透過となる。様々な実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 は、上記により、S O F C インターコネクタ 1 0 0 としてよい機能を有するようになるのに適した C T E、寸法の正確性、及び非透過性を得ることができる。

40

【 0 1 0 4 】

様々な実施形態において、最終インターコネクタ 1 0 0 は、実質的にクローム及び鉄から構成される。様々な実施形態において、インターコネクタ 1 0 0 は、少なくとも 9 9 . 0、9 9 . 5、9 9 . 7、9 9 . 8、9 9 . 8、9 9 . 9、9 9 . 9 9 % の鉄及びクロームを含む。

【 0 1 0 5 】

本明細書で使用されたとおり、「S O F C 燃料及び空気に非透過」という用語、及びそれに類似する用語は、S O F C インターコネクタ技術において理解される用語としての「非透過性」を意味する。S O F C インターコネクタの非透過性において、燃料及び空気に

50

対する完全な非透過性は必要とされない。むしろ、「非透過」とは、単にインターコネクタが、長期間故障せずにＳＯＦＣにより動作機能を提供するのに十分な非透過性でよい。

【 0 1 0 6 】

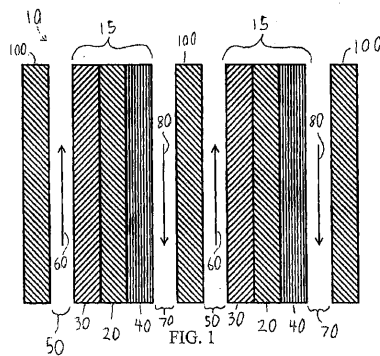
本発明の実施形態では、ＳＯＦＣインターコネクタ１００に関して記載されてきたが、本発明の実施形態は、他の種類の部品にも適用される。高密度で、及び／又は非透過性が所望される部品、及び／又は複雑な採集形態を有する部品に対して、様々な実施形態は特に適用することができる。

【 0 1 0 7 】

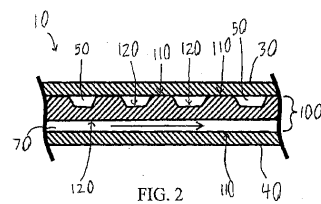
上述した様々な実施形態は、専ら本発明の実施形態の構造的及び機能的な原理を示すために与えられたものであって、限定的なものとして意図されたものではない。むしろ、本発明は、以下の特許請求の範囲の趣旨及び範囲内にある全ての変更、代替物、及び修正を含むことを意図している。

10

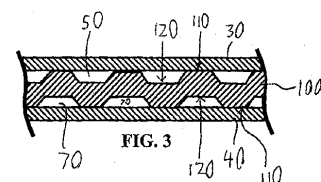
【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】

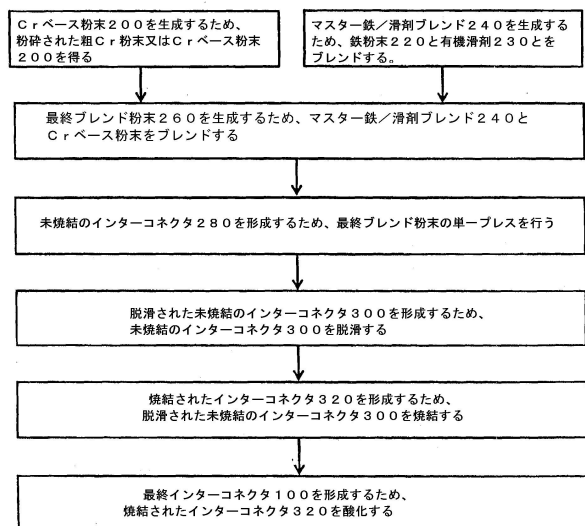
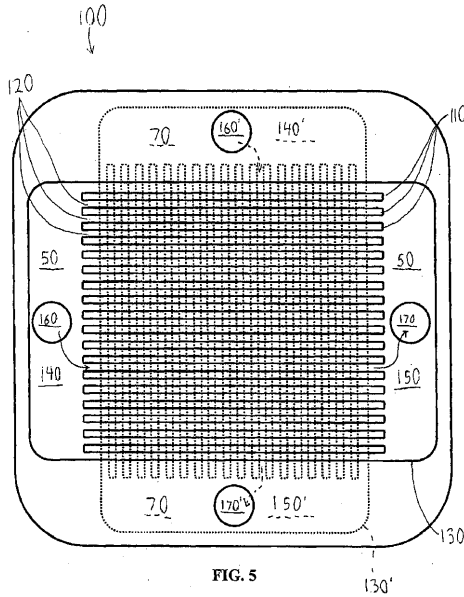
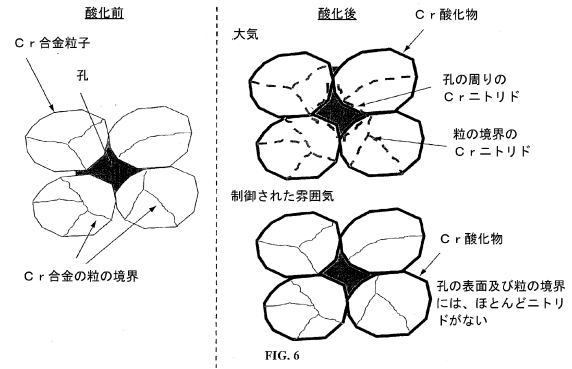


FIG. 4

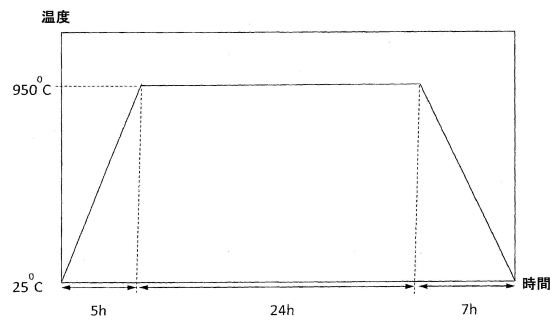
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【図 8】

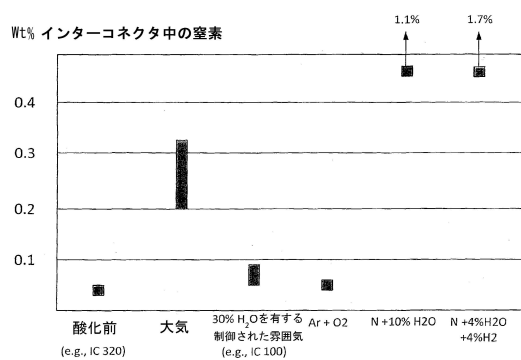
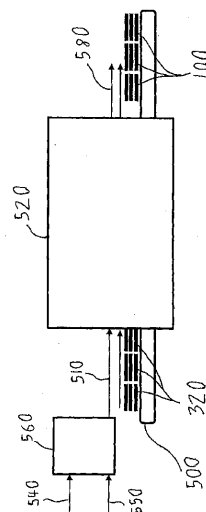


FIG. 8: 窒素分に対する酸化雰囲気の影響

【図 9】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I			
H 0 1 M	8/0202	(2016.01)	H 0 1 M	8/02	Y
C 2 3 C	8/12	(2006.01)	H 0 1 M	8/02	B
C 2 3 C	8/16	(2006.01)	C 2 3 C	8/12	
C 2 3 C	8/24	(2006.01)	C 2 3 C	8/16	
			C 2 3 C	8/24	

(72)発明者 アイレ, プレンダン  
 カナダ国 オンタリオ州 エルオーアール 2エイチ3, ウォーターダウン, ブルックハスト ク  
 レセント 36

(72)発明者 ローコック, ロジャー  
 カナダ国 オンタリオ州 エル7エヌ 2ビー7, パーリントン, ペン ドライブ 204

審査官 宮本 靖史

(56)参考文献 特開2010-219045(JP, A)  
 特表2012-508320(JP, A)  
 国際公開第2012/035900(WO, A1)  
 特開平04-329861(JP, A)  
 特開平10-183315(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 2 3 C 8 / 0 0 - 1 2 / 0 2  
 B 2 2 F 1 / 0 0 - 8 / 0 0  
 C 2 2 C 1 / 0 4 - 1 / 0 5  
 C 2 2 C 3 3 / 0 2  
 H 0 1 M 8 / 0 0 - 8 / 0 2  
 H 0 1 M 8 / 0 8 - 8 / 2 4