

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5586848号
(P5586848)

(45) 発行日 平成26年9月10日 (2014. 9. 10)

(24) 登録日 平成26年8月1日 (2014. 8. 1)

(51) Int. Cl.	F I
C 2 3 C 4/18 (2006. 01)	C 2 3 C 4/18
H O 1 M 8/02 (2006. 01)	H O 1 M 8/02 S
C 2 3 C 4/04 (2006. 01)	C 2 3 C 4/04
H O 1 M 8/12 (2006. 01)	H O 1 M 8/12

請求項の数 1 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2008-535010 (P2008-535010)	(73) 特許権者	502124444
(86) (22) 出願日	平成18年10月9日 (2006. 10. 9)		コミッサリア ア レネルジー アトミー
(65) 公表番号	特表2009-511743 (P2009-511743A)		ク エ オ ゼネルジ ザルタナティヴ
(43) 公表日	平成21年3月19日 (2009. 3. 19)		フランス国 エフー75015 パリ、
(86) 国際出願番号	PCT/EP2006/067213		バティマン 「 ル ポナン デー 」 ,
(87) 国際公開番号	W02007/042505		リュ ルブラン 25
(87) 国際公開日	平成19年4月19日 (2007. 4. 19)	(74) 代理人	100109726
審査請求日	平成21年10月1日 (2009. 10. 1)		弁理士 園田 吉隆
(31) 優先権主張番号	0553094	(74) 代理人	100101199
(32) 優先日	平成17年10月11日 (2005. 10. 11)		弁理士 小林 義敦
(33) 優先権主張国	フランス (FR)	(72) 発明者	ビアンチ, リュック
			フランス国 エフー37260 アルタヌ
			シュール アンドゥル, リュ ドゥ
			ラ フォンテーヌ サントゥ, 2

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱溶射により形成される安定した接合部

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

複合材料要素 (1) であって、複合材料は、
基質の表面に露出する微細亀裂の 3 次元相互接続網 (4) の形態の微細亀裂基質 (7)
と、
基質に分散されるセラミック溶剤またはガラスから成る添加物 (6) とを含み、
添加物 (6) は、複合材料を所定温度にした場合に軟化し、そして微細亀裂網 (4) の
毛細管現象によって基質の前記表面に移動し、当該表面を被覆する気密バリア層を形成す
る物質であり、

基質に分散させる添加物の量は、露出したままの基質の表面を被覆するのに十分な量で
ある、複合材料要素 (1) 。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高温で作動する接合部及びシール材の分野に関し、非限定的であるが、特に、
作動温度が通常 600～1000℃である固体酸化物型燃料電池、または SOFC の用途
に関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池は、例えば水素などの燃料である第 1 試薬が、酸素などの酸化剤である第 2 試

10

20

薬と電気化学的に反応して、直流電流及び熱を生成する構成のデバイスである。燃料電池は、2つの導電性多孔質電極、すなわち電気絶縁性であるがイオン伝導性の電解質（固体酸化物型燃料電池（SOFC）の場合は固体電解質）によって分離されるアノード及びカソードから成る。アノードは一般に、サーメット（セラミックと金属の合成語）ニッケル-ジルコニウムから成り、カソードは不純物を添加した亜マンガ酸ランタンから成る。電解質に最も一般に使用される材料はイットリア添加ジルコニウムである。

【0003】

SOFC（固体酸化物型燃料電池）では、酸素がカソードで電子と反応して酸化物イオンを生成し、酸化物イオンが電解質中を移動してアノードに到達する。アノードに供給される燃料が酸化物イオンと反応して水及び電子を生成する。電子がアノードからカソードに、外部電気回路を通ることにより循環する。

10

【0004】

アノード、電解質、及びカソードから成る各単位セルは、1ボルトにも満たない電圧しか生成しない。電圧を更に大きくして、電力変換を燃料電池の下流側で容易にするために、幾つかのセルを直列に電氣的に接続し、そして結合して積層体とする。セル積層体は幾つかのセルから成り、これらのセルは「バイポーラ」または「インターコネクタ」と呼ばれるプレートによって分離される。インターコネクタは導電体であり、そして2つの隣接セルのアノードとカソードとの間に配置される。このインターコネクタは電流を集電することができ、そして或る場合には、ガスを電極に供給することができる。

20

【0005】

固体燃料電池（SOFC）型の電流発生器を使用する際の主な問題の一つは、2つのガスシステム、すなわち燃料ガス（水素）と酸化剤ガス（空気）とを分離するシール機能を確保することであり、このシール機能が正しく行なわれない場合には、内部燃焼反応がセル内で発生し、理想的な作動を妨げる。

【0006】

SOFC積層体の密閉接合構造に現在使用されている接合部は、特に雲母板を使用する場合には固体である場合があるが、ほとんどの場合において、（混合物が溶剤及び／又は有機バインダーに分散するので）ガラス複合体またはガラス-セラミックペースト混合物の形態を採り、接合対象の部分に使用され、複合体または混合物はSOFCの作動温度で結晶化することにより、または溶解することにより固化する。

30

【0007】

この最後のタイプの接合部は通常もろく、かつSOFC積層体の種々の構成成分の膨張率の差を吸収するにはほとんど適さず、その結果、使用中に割れが発生し、そして熱サイクル耐性に劣るという問題が生じる。

【0008】

幾つかの代替手段がこれらの問題を解決するために提案されている。これらの代替手段のほとんどは、セラミック繊維を利用する接合部に関するものであり、セラミック繊維にセラミック粒子及び／又はガラス粒子を含浸させることにより、作動温度における所定の弾性率を維持し、かつSOFCセルに加わる熱サイクル耐性を更に高くしている。この事例については、国際特許出願公開番号WO-A-02/17416号、米国特許出願公開番号第6271158号、及び米国特許出願公開番号第6541146号を参照することができる。

40

【0009】

接合部の接着性を利用して、接合部を接合対象の部分に形成して、厚さに対する非常に正確な制御を可能にする方法は、国際特許出願公開番号WO-A-99/54131号に記載されているようなセリグラフィー、または圧縮ガスによる溶射方法である。接合部に繊維を利用する事例では、或る場合において事前に機械的に圧縮することにより、自己構造化接合部を作製することができる。

【0010】

本方法に固有の理由でプラズマ溶射により形成されるセラミック被膜は、非常に微細な

50

亀裂が発生している薄板状の微細構造を有し、微細構造は、所定部分に衝突して被覆する性質を持つ素粒子を積層させることにより形成される。この事例については、Ann. Phys. Fr., 14 (1989), 261～310ページに掲載されたP. Fauchaisらによる“Plasma spraying: a review”と題する記事を参照することができる。このようにして従来から得られているコーティングは、クラック網が3次元で相互に連結することによって、主要露出面において約10%の全体空隙率を有する。このクラック網は、基板と接触する粒子が急激に冷却されている間に発生する応力が緩和される結果、直接現われたものであり、そして積層欠陥によって2次的に発生する。このクラック網は、プラズマ溶射によって形成される堆積膜のシール材に欠陥が生じる結果現われたものである。

10

【0011】

しかしながら、気密被膜はプラズマ溶射によって形成することができ、特に、金属部分を腐食から保護するためのSSCC (Self Sealing Ceramic Coatings: 自己気密型セラミックコーティング) に用いられる。ここに開示される原理によれば、コーティングを構成する材料による酸化反応を可能にすることにより被膜の孔を塞いで、容積が増大した安定な酸化物を形成し、これにより、微細孔を相互に連結しているクラック網を埋めるという効果が得られる。この事例については、独国特許出願公開第3631536号、及び英国特許出願公開第2217349号を参照することができる。

【発明の開示】

20

【発明が解決しようとする課題】**【0012】**

本発明の一つの目的は、気密バリアが形成された表面を有する複合材料要素を実現することにある。

本発明の別の目的は、先行技術における接合部とは異なる、漏れを防止する安定した接合部を実現することにある。

【課題を解決するための手段】**【0013】**

この場合、セラミック基質を有する安定した接合部は、熱溶射によって生成されるガラス溶剤粒子またはセラミック溶剤粒子を付着させることにより形成される。これによって、効果的なシール材をSOFC型固体燃料電池を構成する2つの層の間に形成することができる。安定した接合部は、例えば接合対象のこれらの層の片側に、または両側にプラズマ溶射を行うことにより形成することができる。接合部は安定しており、変形することがなく、かつ当該接合部の支持体に大気温度で固着する。接合部が形成され、そして接合特性が、SOFCの作動温度において作動中に、セラミック基質の容積において、好ましくは接合対象界面に向かって、毛細管現象によるガラス相での移動メカニズムが生じることにより得られる。

30

【0014】

本発明による漏れ防止接合部に使用されるメカニズムは、上に列挙した独国特許出願公開第3631536号、及び英国特許出願公開第2217349号において使用されるメカニズムとは基本的に異なる。本発明に関しては、目的とし形成される被膜の容積において化学反応は生じないが、第2ガラス相の移動が毛細管現象により微細亀裂網において生じることにより、一方では被膜を被膜容積内に密閉し、他方ではセラミック基質を被覆して密閉機能を対向表面に付与するという2つの効果が得られるからである。

40

【0015】

従って、本発明の目的は、複合材料要素を提供することであり、複合材料は、基質の表面に露出する微細亀裂の3次元相互接続網の形態の微細亀裂基質と、基質に分散されるセラミック溶剤またはガラス溶剤から成る添加物とを含み、添加物は、複合材料を所定温度にした場合に軟化し、そして微細亀裂網の毛細管現象によって要素の前記表面に向かって移動する。最初に分散させる添加物の量は、露出したままの複合材料の表面を被覆して気

50

密バリアを前記表面に形成するように、基質と比較して十分に大きい割合に設定される。

【0016】

基質は、金属酸化物、炭化物、窒化物、シリサイド、及びホウ化物の中から選択される少なくとも一つの材料により構成することができる。基質は、金属及び金属合金から選択される少なくとも一つの材料により構成することができる。

添加物は、ガラス、セラミック溶剤、及び金属合金の中から選択される少なくとも一つの材料により構成することができる。

複合材料要素は、5%～85%重量の添加物を含むことができる。

前記所定温度は、100℃から1500℃までの上下限を含む範囲の温度である。

【0017】

本発明の目的は更に、上に定義される複合材料要素により構成される安定した接合部を提供することにある、この複合材料要素の温度は、添加物層によって、露出したままの前記表面が被覆されるように前記所定温度に設定される。

【0018】

この安定した接合部では、複合材料要素は、熱溶射によって第1部分に固着するように最初に溶着形成される要素とすることができ、添加物コーティングは、露出したままの前記表面を被覆して、前記気密バリアを、露出したままのこの表面に対向する第2部分に形成する。複合材料要素は自己構造化要素、すなわち初期段階において、第1部分を接合するために露出したままの表面と、そして第2部分を接合するために露出したままの表面とを有する要素とすることもでき、添加物コーティングで、露出したままの表面を被覆することにより、気密バリアを2つの部分の各々に形成する。

【0019】

本発明の目的は更に、上に定義される複合材料要素を形成する方法を提供することにある、前記方法は、セラミック基質を形成するように調整された材料、及び添加物を形成するように調整された材料を少なくとも一つの被着表面に熱溶射するステップを含む。

【0020】

熱溶射は、プラズマ溶射、酸素アセチレン炎溶射、HVOF (High Velocity Oxy Fuel: 高速酸素燃料) 溶射、HVOF (High Velocity Air Fuel: 高速空気燃料) 溶射、爆発ガン溶射、ワイヤアーク溶射及びパウダーアーク溶射、直流アークプラズマ溶射、誘導プラズマ溶射、低温ガス動的溶射（または、「低温溶射」）の方法、及びこれらの方法の内の少なくとも2つを組み合わせた方法の中から選択することができる。

【0021】

細孔形成材料も熱溶射ステップの間に溶射することができる。

被着表面は、本発明による安定した接合部によって第2部分に接合されるように構成される第1部分の表面とすることができる。

【0022】

次に、本発明は、気密状態の安定した接合部を形成する方法を更に有し、前記方法は、
一複合材料要素を形成する方法を第1部分の前記表面に適用するステップと、
一前記第2部分の表面を、露出したままの前記表面に対向するように配置するステップと、
一複合材料要素の温度を前記所定温度に設定して、露出したままの前記表面のコーティングを形成するステップとを含み、前記コーティングは、露出したままの前記表面に対向して配置される前記第2部分の表面に固着する性質を有する。

被着表面は、複合材料要素を再生するための剥離界面とすることもできる。

【0023】

次に、本発明は、気密状態の安定した接合部を形成する方法を更に有し、前記方法は、
一剥離界面に形成される複合材料要素を、第1部分の第1表面と第2部分の第2表面との間に、第1表面及び第2表面が互いに対向するように配置するステップと、
一複合材料要素の温度を前記所定温度に設定して、露出したままの複合材料要素の表面の

10

20

30

40

50

コーティングを形成するステップとを含み、前記コーティングは、一方では、第1部分の第1表面に固着し、そして他方では、第2部分の第2表面に固着する性質を有する。

【0024】

圧力を第1部分と第2部分との間に加えて、第1部分の第1表面を第2部分の第2表面に近接する方向に引き付けようとすると同時に、複合材料要素の温度を所定温度に設定して、コーティングまたはこれらのコーティングの固着性を高める。

【実施例】

【0025】

以下に非制限的な例として、添付の図とともに提示される記述を一読することにより本発明が一層明らかになるとともに、他の利点及び特徴が明らかになる。

10

【0026】

本発明は、高温で作動し、かつプラズマ溶射によって形成される安定した接合部に関し、非限定例として、特にSOFC型の燃料電池要素の漏れ防止接合の事例に適用することができる。作動温度は、SOFC（固体酸化物型燃料電池）用途の場合は、熱サイクル条件の大気温度から最大使用可能温度までの温度を含む600～1000℃の範囲である。

【0027】

本記述では、「セラミック」、「ガラス」、または「溶剤」という用語は、共有結合またはイオン結合を有する非金属無機固体材料に使用される。非金属無機固体材料として、金属酸化物を挙げることができ、更に広義には、炭化物、窒化物、シリサイド、ホウ化物、及び他の種類の非酸化物材料だけでなく、これらの構成成分により形成される全ての明確な混合物または化合物を挙げることができる。ガラスは結晶度によってセラミックから区別される。

20

【0028】

セラミック被膜をプラズマ溶射により形成する場合に適用される「微細亀裂」及び／又は「微細亀裂網」という用語はクラックを指し、クラックは、熱応力が解放されることによって、概略的には、分布粒子間の被膜の成長方向に直交する平面（薄板）で、そして薄板内部の被膜の成長方向に平行な平面で発生し、相互接続される露出空隙網がコーティング容積内に形成される。コーティングの断面に観察されるこれらのクラックの固有寸法は、幅で約0.1 μm～1 μmであり、この範囲は、溶射材料の性質、及び形成条件に従って変化し得る。被膜が形成されている間の粒子積層欠陥は、これらの欠陥に関する限り、円形を有し、かつ概略1マイクロメートルよりも大きい、または数十マイクロメートルものサイズよりも大きいサイズを有する「閉じた空隙」が形成される原因となる。この専門用語はこの技術分野の当業者に共通に受け入れられているものである。

30

【0029】

「プラズマ形成」という用語は、熱溶射によって溶着する方法の変形例を指し、この変形例では、剥離を容易にする界面によって、界面の基板の上に形成される被膜の付着を喪失させることにより、薄い自己構造化層を形成することができ、この自己構造化層を処理する、または加工することにより、被膜が形成されていた基板の構造を再生することができる。

【0030】

40

本発明による接合部は、セラミック基質から成る複合プラズマ溶射被膜によって特徴付けられ、セラミック基質では、セラミック溶剤粒子またはガラス溶剤粒子が分散され、溶剤粒子は以降、「添加物」と表記することとする。このようにして形成される被膜または安定した接合部は、図1に模式的に示す固有の微細構造を有する。

【0031】

図1は、プラズマ溶射法によって基板2の上に溶着形成される複合材料要素1を断面図として示しており、基板2は金属基板、半導体基板、またはセラミック基板とすることができる。複合材料が溶着形成される基板2の表面3は粗表面であり、この粗表面によって複合材料の結合力を強めることができる。

【0032】

50

プラズマ溶射によるセラミック被膜に從來から観察されるように、基質にはこの場合、極めて微細な亀裂が生じる。コーティングの表面5に露出する、この3次元の相互接続された微細亀裂網4を使用することによって、添加物が毛細管現象により材料表面に向かって移動して接合部を形成する。この移動は、接合部が作動温度になることによって添加物が軟化して、粘度が十分小さくなり、かつ添加物と基質との間の反応が制限されない場合に可能になる。これらの状態が最終的な基準であり、この基準によって基質材料と添加物の組み合わせに何を選択するかが調整される。

【0033】

添加物の移動に必要な微細亀裂網の形成は、微細亀裂網が、例えばセラミックをプラズマ溶射している間に生成プロセスによって直接形成されることがない場合に、溶射する基質と結合する細孔形成剤を使用することにより「人工的に」行なうことができる。

10

【0034】

図1の断面図は、セラミック基質7に分散させた添加物6だけでなく、熱的に溶着する材料の閉じた空隙に最初から何も充填されない状態のボイド8を示している。

【0035】

接合部の作動メカニズムを説明するため、900℃または更に広範囲には基質材料と添加物の組み合わせに適合する温度範囲での使用の後に、接合部から採取したサンプルが微細構造変化を起こす様子を図2A及び2Bに示す。

【0036】

接合部の温度を当該接合部の作動温度に設定することによって、添加物を十分軟化させることができるが、セラミック基質は全く改質されないので、添加物が毛細管現象によって微細亀裂網に入り込んで基質の露出表面に向かって移動し、露出表面が過剰の添加物によって被覆されることになる。

20

【0037】

図2Aは、複合材料要素1の露出表面5が溶剤層9によって被覆される様子を示している。溶剤残渣を含む、または含まない閉じた空隙10、溶剤の残留粒子11、及び最初から何も充填されない閉じた空隙8は、まだ複合材料に含まれている。微細亀裂網4が溶剤で充填される。

【0038】

冷却後、溶剤及びセラミック基質の光学コントラストが低いので、添加物で充填された基質に固有の微細亀裂はこの時点では全く観察することができず、そして閉じた残留空隙のみを観察することができ、閉じた残留空隙は、コーティングが形成されている間に粒子積層欠陥が生成されることで閉じた空隙が初期段階で形成されることにより、或いは初期段階で添加物の粒子を含んでいた空洞が発生することにより形成され、この場合、空洞は、添加物が微細亀裂の中に入って被膜の表面に向かって移動することにより部分的に、または完全に空になるのが観察される。従って、これらの空洞は、添加物の「貯蔵部」と類似の構造となり得る。作動温度で作動させている間に添加物を微細亀裂に充填することによって、初期段階では微細亀裂の傷を含むセラミック基質が気密状態になるという利点が更にもたらされる。この様子を図2Bに示す。

30

【0039】

図3は、本発明による漏れ防止接合部の断面図であり、接合部は第1要素の上に溶着形成され、そして接合部によって、気密層が接合対象の第2要素に形成される。この気密層は、セラミック基質の表面に移動した添加物から成る層であり、接合部が接合対象の表面と接触するときの気密バリアを形成するのに使用される。

40

【0040】

図3の実施形態では、接合部20は、例えばプラズマによって、接合対象の2つの要素の内の一方の要素の粗表面23の上に、例えば要素21の上に溶射することにより形成される。次に、第2要素22を接合部20の露出表面に直接接触させる。この第2部分と接合部とを確実に密着させるために、荷重を加えることができる。次に、構造全体を接合部の作動温度にすることにより、添加物を毛細管現象によりセラミック基質の表面に移動さ

50

せる。添加物を作動温度で粘性流動化し、添加物で接合部 20 と第 2 要素 22 との間の接触不良に起因する割れ目を充填することにより、気密バリア層 24 を形成することができる。接合部 20 では、溶剤残渣を含む、または含まない閉じた空隙 25、残留溶剤粒子 26、及び最初から何も充填されない閉じた空隙 27 を観察することができる。

【0041】

この漏れ防止バリアを形成する添加物層の厚さは、接合部の表面状態、及び接合部に対向する要素の表面状態に直接関係するので、接触する材料の性質及び微細構造そのものに関係する。この厚さは、平滑表面接触部分または粗表面接触部分の表面状態に関して、約 1 マイクロメートル～数十マイクロメートルとすることができる。

【0042】

前述の例では、接合部は、接合対象の 2 つの平坦表面の内的一方の表面にプラズマ溶射することにより溶着形成され、次に他方の表面を接合部に直接接触させる。セラミック基質によって得られる接合部の安定性によって、接合部の使用がこのタイプの構成に制限されることがなくなる。従って、自己構造化する接合部を、通常 50 μm ～数ミリメートルの厚さにプラズマ溶射により形成する技術を実現することにより、接合部を、接合対象の 2 つの表面の間に直接挿入することができる。この場合、接合部を所定温度にしながら、添加物で基質の 2 つの露出表面を被覆することにより、図 4 に示すように気密状態を確保することができる。

【0043】

図 4 では、プラズマ溶射により形成される接合部 30 は、要素 31 及び 32 に対向する平坦表面を、溶剤により形成される気密層 33 及び 34 によって接合するように作用する。

従って、接合部に適用することができる形態は平坦構造に制限されず、プラズマ溶射を適用することができる全てのタイプの 3 次元構造に拡張することができる。チューブ、窪み表面または突出表面、或いはこれらの構造を組み合わせた構造の上に形成されるコーティングの例を列挙することができる。

【0044】

粘性添加物は使用温度で移動するメカニズムを示すので、接合部によって金属-金属接合体、セラミック-セラミック接合体、及びセラミック-金属接合体が、これらの接合体の表面状態に関わらず実現することができる。

【0045】

接合部は、接合対象の 2 つの表面の内的一方の表面に均一に、あるいは両方の表面に溶着形成することができ、または 2 つの表面の間の自己構造化部分に挿入することもできる。

【0046】

次に、一つの例を SOFC 用途の事例において提示するが、この事例では、接合部を平板状セル積層体の上に、内径 20 mm 及び外径 30 mm、及び厚さ 150 μm のリング状に溶着形成して、水素系を空気系から図 5 で説明される構成に従って分離している。

【0047】

図 5 は、ある燃料電池の一部分の断面図である。対称軸の左側に位置する部分のみを示している。図 5 は、多孔質のアノードガス拡散層 41 と、サーメット電極 42 と、高密度セラミック電解質 43 と、多孔質のセラミックカソード 44 と、そして金属バイポーラプレート 45 とを示している。軸 40 を中心とする漏れ防止リング状接合部 46 は、電解質 43 の表面とバイポーラプレート 45 の表面との間に配置される。接合部 46 は、プラズマ溶射を金属バイポーラプレート 45 に施し、そしてイットリア添加ジルコニア電解質 43 と接触するように配置することにより形成される。200 $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ の荷重をこの積層体に加え、そして作動温度を 900 $^{\circ}\text{C}$ に設定する。

【0048】

使用する接合部のセラミック基質はイットリア添加ジルコニア（8%モル）であり、そして添加物は、商品番号 C105 で示され、かつフランスの DMC² 社（DMC² Fr

10

20

30

40

50

ance S. A.) 製のセラミック溶剤であり、20%重量の割合で基質に混入される。

【0049】

これらの条件で、5個のセルの積層体に関して得られる性能指数は、2つのガス系を分離する必要がない構成で検査された同じタイプの単一SOFCセルに関して得られる性能指数と同じである。更に、積層体のセル群の事後解析では、接合部の不良の原因となり得る空気と水素との間で発生する内部燃焼の痕跡は何も残っていないことが判明している。

【0050】

この接合部に対して積層体に対する実験条件と同じ条件、すなわち900℃で窒素を使用して行なわれる測定によって、印加圧力が70mbar低下した状態でリーク速度が4

10

【0051】

本発明による接合部は、当該接合部によって気密バリアが形成されるという利点の他に種々の利点をもたらす。基質に含まれる材料の容積割合は、基質の構造化特性が変化しない限り、用途に従って大きく変更することができる。得られる安定した接合部は加工することができ、そして大気温度では不活性であり、更に作動温度で形成される。セラミック基質の表面の溶剤が粘性を有するので、接合部は、接合対象の要素のゆがみ、及びわずかな移動をある程度、これらの要素が作動温度になっている間に吸収することができる。セラミック基質と接合対象の要素の表面との間の充填される部分の厚みが薄いので、接合部は、ガスを通す、または漏洩する可能性のある表面を最小にすることができる。接合部によって、2つの金属の間、2つのセラミックの間、または金属とセラミックとの間の漏れ防止結合を、これらの材料の表面状態に関係なく実現することができる。

20

【0052】

接合部は、熱溶射を、接合対象の2つの表面の内の一方の表面に施すことにより溶着形成することができる、または当該接合部が自己構造化することにより接合対象の2つの表面の間に収まるように形成することもできる。

【0053】

接合部は、当該接合部の安定した性質及びその形成方法によって、提示される溶着方法を適用することができる全てのタイプの構造及び形状（チューブ、窪み表面または突出表面、平面、またはこれらの要素の組み合わせ）の上に形成することができる。

30

【0054】

接合部の厚さは、1マイクロメートル～数ミリメートルの範囲で変化させることができる。接合部を一つだけ設ける場合、この接合部の厚さは一定とする、あるいは提示範囲に渡って制御性良く変化させることができる。

【0055】

接合部は、当該接合部の基質が安定した性質を持つので、縮小することがない、または作動中に当該接合部の熱膨張率によって発生する変化以外には、更に大きい寸法変化を示すことがない。

【0056】

接合部は、基質材料及び添加物の組み合わせの選択に応じて、電気絶縁体、導電体、またはイオン伝導体とすることができる。

40

【0057】

基質材料はセラミックとすることができる。基質材料は金属酸化物を含み、そして一般的に、炭化物、窒化物、シリサイド、ホウ化物、及び他の種類の全ての非酸化物材料だけでなく、これらの構成成分から得られる全ての明確な混合物または化合物を含む。金属または金属合金を使用することもできる。

添加物は一般に、ガラス、セラミック溶剤、または金属合金とすることができる。

【0058】

接合部は、当該接合部の作動温度での熱サイクルの後、当該接合部の気密性を大気温度で維持する。当該接合部の作動温度は、100℃～1500℃超の非常に広い温度範囲を

50

カバーすることができ、作動温度は、基質材料及び添加物の組み合わせに何を選択するかによって変わる。

【0059】

接合部の使用分野として、これらには制限されないが、次の項目を挙げることができる：
 ー高温摩擦摺動用途、
 ー耐腐食保護、
 ーろう付け、
 ーS O F Cまたは他のいずれかの用途に用いられる高温気密用接合体

【図面の簡単な説明】

【0060】

10

【図1】本発明による複合材料接合の断面図であり、当該接合の温度を所定温度に設定する前の断面図である。

【図2】図2 Aは接合の温度を所定温度に設定した後の図1の接合が、漏れ防止接合として使用される様子を示し、図2 Bは接合の温度を大気温度に戻した後の図1の接合を示す。

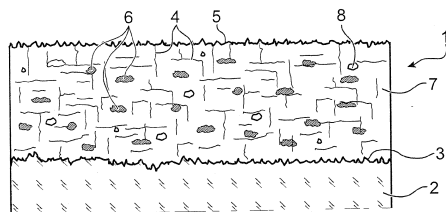
【図3】本発明による漏れ防止接合の断面図であり、当該接合が第1要素の上に溶着形成され、気密状態を接合対象の第2要素に対して実現する様子を示している。

【図4】本発明に従って形成され、かつ気密状態を接合対象の2つの要素に対して実現するプラズマ溶射接合の断面図である。

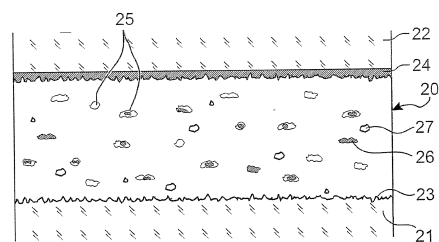
【図5】本発明による漏れ防止接合を含む、固体酸化物型燃料電池の一部分の断面図である。

20

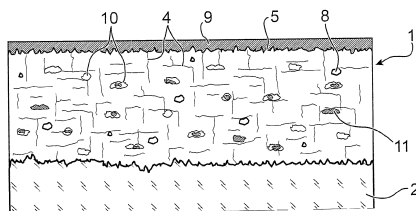
【図1】



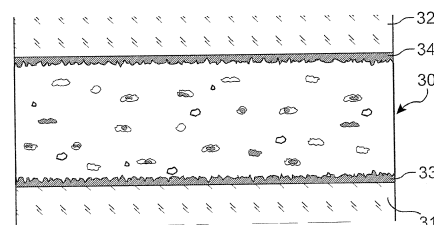
【図3】



【図2】

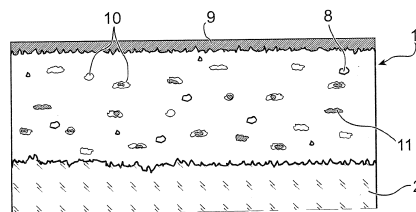


【図4】

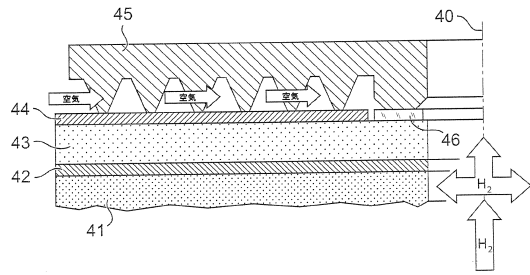


A

B



【図 5】



フロントページの続き

- (72)発明者 トゥールショア, ジョエル
フランス国 エフ-37300 ジュ レ トゥール, ボワ リポー
(72)発明者 ボリー, シャルル
フランス国 エフ-37300 ジュ レ トゥール, リュ デ オリヴィエ 3

審査官 衾屋 健太郎

- (56)参考文献 特開平10-259469 (JP, A)
特表平07-502249 (JP, A)
特開平03-087379 (JP, A)
特開2007-005296 (JP, A)
特開2001-214253 (JP, A)
特開2001-192802 (JP, A)
特開平09-217163 (JP, A)
特開昭61-064867 (JP, A)
特開平02-242564 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C23C 4/00-6/00