

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014 年 12 月 31 日(31.12.2014)



(10) 国際公開番号

WO 2014/208739 A1

- (51) 国際特許分類:
H01M 8/24 (2006.01) H01M 8/12 (2006.01)
H01M 8/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/067219
- (22) 国際出願日: 2014 年 6 月 27 日(27.06.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-136710 2013 年 6 月 28 日(28.06.2013) JP
特願 2014-005312 2014 年 1 月 15 日(15.01.2014) JP
- (71) 出願人: 日本特殊陶業株式会社 (NGK SPARK PLUG CO., LTD.) [JP/JP]; 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 堀田 信行 (HOTTA, Nobuyuki); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号 日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 森川 哲也 (MORIKAWA, Tetsuya); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号 日本特殊陶業株式

会社内 Aichi (JP). 勝田 隼人 (KATSUDA, Hayato); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号 日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP). 墨泰志 (SUMI, Hiroshi); 〒4678525 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町 1 4 番 1 8 号 日本特殊陶業株式会社内 Aichi (JP).

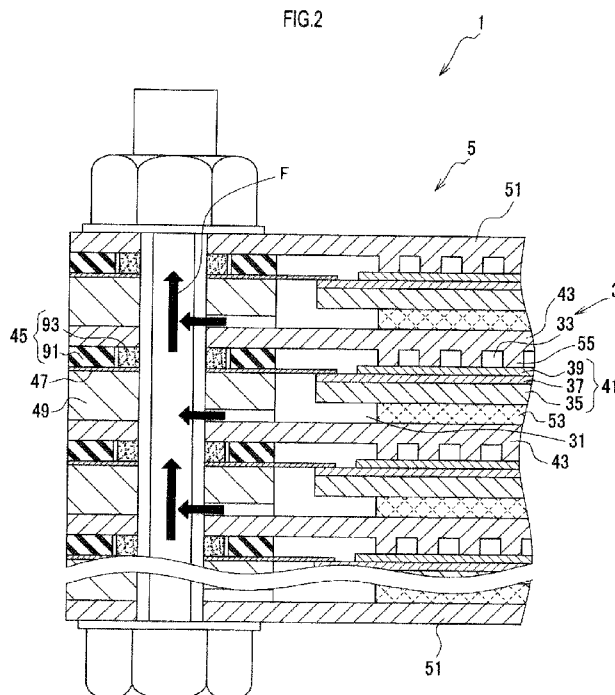
(74) 代理人: 名古屋国際特許業務法人 (NAGOYA INTERNATIONAL PATENT FIRM); 〒4600003 愛知県名古屋市中区錦一丁目 2 0 番 1 9 号 名神ビル Aichi (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: 燃料電池及びその製造方法



(57) Abstract: A fuel cell according to one embodiment of the present invention is a planar fuel cell wherein a plurality of plate-like fuel cell units, each of which has an electrolyte layer, a fuel electrode and an air electrode, are stacked. This fuel cell is provided with a fuel manifold, which communicates with a space on the fuel electrode side, and/or an oxidant manifold, which communicates with a space on the air electrode side. A compression sealing material and a glass sealing material are arranged in parallel around the fuel manifold and/or the oxidant manifold.

(57) 要約: 本発明の第 1 局面の燃料電池は、電解質層と、燃料極と、空気極と、を有する板状の燃料電池セルが複数積層された、平板型の燃料電池である。該燃料電池には、前記燃料極側の空間に連通する燃料マニホールド及び前記空気極側の空間に連通する酸化剤マニホールドのうち少なくとも一方が設けられている。前記少なくとも一方のマニホールドの周囲には、コンプレッションシール材とガラスシール材とが並列に配置されている。

WO 2014/208739 A1



(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：燃料電池及びその製造方法

関連出願の相互参照

[0001] 本国際出願は、2013年6月28日に日本国特許庁に出願された日本国特許出願第2013-136710号及び2014年1月15日に日本国特許庁に出願された日本国特許出願第2014-005312号に基づく優先権を主張するものであり、日本国特許出願第2013-136710号及び日本国特許出願第2014-005312号の全内容を参照により本国際出願に援用する。

技術分野

[0002] 本発明は、固体酸化物形燃料電池等の燃料電池のガスシールに関し、燃料電池内部に2種のガス(燃料ガスおよび空気等の酸化剤ガス)を分離した状態で導入して発電を行う燃料電池及びその製造方法に関する。

背景技術

[0003] 従来より、例えば固体酸化物形燃料電池として、例えば平板状の固体酸化物層(固体電解質層)の一方の側に燃料ガスに接する燃料極を設けるとともに、他方の側に酸化剤ガスに接する空気極を設け、更に燃料極や空気極に到る流路(燃料流路、空気流路)等を設けて燃料電池セルを構成し、この燃料電池セルとインターコネクタ板とを交互に積層してスタック化したもの(燃料電池スタック)が知られている。

[0004] 詳しくは、前記燃料電池セルとしては、例えば、燃料極及び空気極を備えた固体酸化物層を含む単セルと、固体酸化物層に接合されて燃料ガスと酸化剤ガスの流路を分離するセパレータと、燃料極の周囲に配置された燃料極フレームと、空気極の周囲に配置された空気極フレームと、燃料電池セルの板厚方向の外側に配置されたインターコネクタ等から構成されたものが知られている。

[0005] また、燃料電池スタックでは、積層された燃料電池セルの燃料流路や空気

流路に、燃料ガスや空気を供給するため、或いは、燃料電池セルの燃料流路や空気流路から、（反応後の）燃料ガスや空気を排出するために、燃料電池スタックの外縁部分（フレーム部分）に、燃料電池スタックを積層方向に貫くように、燃料ガス用のマニホールドと空気用のマニホールドが設けられたものが知られている。

[0006] 更に、近年では、燃料電池の積層された単セルの間などからガス（特に燃料ガス）がリーク（漏出）することを防止するために、燃料電池スタックを構成する各部材間（例えばインターコネクタとセパレータとの間など）において、単セルの外縁部分を枠状に囲むとともに、マニホールドの周囲を囲むように、シール材を配置する技術が開発されている。

[0007] 上述したシール材を用いてガスシールする技術としては、マイカ等の（圧力を加えてシールする）コンプレッションシール材を用いた技術（特許文献1参照）や、ガラスやガラスセラミックを含むシール材を用いた技術（特許文献2、3）や、マニホールドの周囲を同心状に囲むセラミック製のシール材を用いた技術（特許文献4参照）などが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開2012-124020号公報

特許文献2：特開2009-43550号公報

特許文献3：特開2002-141083号公報

特許文献4：特開2005-294153号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] しかしながら、コンプレッションシール材を用いてガスシールする場合には、コンプレッションシール材とインターコネクタやセパレータとの界面からのガス漏れを完全に防止することは難しいという問題があった。また、コンプレッションシール材自身からのガス漏れが生じることもあった。そして

、このようにガス漏れ（特に燃料ガスのガス漏れ）が発生すると、発電効率の低下や、漏れたガスの後処理の必要があるという問題があった。

[0010] また、ガラスを材料とするシール材を用いる場合には、シール性は高いが、強い力が加わった場合などには、ガラス割れが発生することがあった。しかも、ガラスが軟化するような高温環境下では、ガラスが変形して周囲に広がり積層方向の厚さ変化が発生する。その場合、その後の熱サイクルなどでガラス割れが発生したり、さらには、例えば燃料電池セル間における電氣的な接続が保てないことがあった。

[0011] 更に、セラミック製の環状のシール材を用いる場合には、強い力が加わった場合には、シール材に割れが生じて、ガス漏れが発生する恐れがあった。

シール材の割れを防止するとともに、ガス漏れを好適に防止できる燃料電池及びその製造方法を提供することが望ましい。

課題を解決するための手段

[0012] （１）本発明の第１局面の燃料電池は、電解質層と、該電解質層の一方の面に設けられて燃料ガスに接する燃料極と、該電解質層の他方の面に設けられて酸化剤ガスに接する空気極と、を有する板状の燃料電池セルが、複数積層されるとともに、該燃料電池セルが前記積層方向から押圧された状態で組み付けられた平板型の燃料電池において、前記燃料電池には、前記燃料極側の空間に連通する燃料マニホールド及び前記空気極側の空間に連通する酸化剤マニホールドのうち少なくとも一方が、前記積層方向に延びるように設けられており、前記燃料マニホールド及び前記酸化剤マニホールドの少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲には、前記燃料電池を構成する部材によって前記積層方向から挟まれるとともに、前記少なくとも一方のマニホールドを囲むように、前記燃料電池セルが広がる平面に沿って、コンプレッションシール材とガラスシール材とが並列に配置されている。

[0013] 本発明の第１局面の燃料電池では、燃料マニホールドや酸化剤マニホールドの周囲には、燃料電池を構成する部材（例えばセパレータやインターコネクタやエンドプレート等）によって積層方向から挟まれるとともに、前記マ

ニホールドを囲むように、燃料電池セルが広がる平面（即ちマニホールドの延びる軸方向に対する外周方向：径方向）に沿って、コンプレッションシール材とガラスシール材とが並列に配置されている。

[0014] 従って、コンプレッションシール材及びガラスシール材によって（特に周囲に密着するガラスシール材によって）、燃料電池を構成する部材同士の間における各マニホールドから又は各マニホールドへのガス漏れを好適に防止することができる。なお、ここで防止とは、完全に防止の意味だけではなく、従来よりも、リークを低減できる意味を含むものである（以下同様）。

[0015] また、積層方向から大きな力が加わった場合でも、コンプレッションシール材によって、過大な力がガラスシール材に加わることを抑制できるので、ガラスシール材が割れることを防止でき、この点からも好適にガス漏れを防止することができる。

[0016] 更に、高温環境下で使用されてガラスが軟化した場合でも、コンプレッションシール材によって、ガラスシール材の過度の変形が抑制されるので、積層方向の厚さを維持することが出来、熱サイクルが加わってもガラス割れを抑制することができる。また、安定した電気接続も可能となる。

[0017] このように、第1局面の燃料電池では、ガス漏れ（特に燃料ガスのガス漏れ）の発生を好適に防止できるので、発電効率が高く、漏れたガスの後処理の必要が無い（又は後処理が容易である）などの顕著な効果を奏する。

[0018] なお、ここで、マニホールドとは、積層方向に延びるガス（燃料ガス又は酸化剤ガス）の流路であって、その流路の途中でガスの流路が分岐している。

（2）本発明の第2局面の燃料電池では、前記少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲に、環状に前記ガラスシール材が配置されているとともに、該ガラスシール材の外周側に、前記コンプレッションシール材が配置されていてもよい。

[0019] また、ガラスシール材の外周側を囲むようにコンプレッションシール材が配置されていてもよい。これによれば、ガラスが軟化した場合でも、ガラス

が周囲に広がり難いという利点がある。

[0020] (3) 本発明の第3局面の燃料電池では、前記少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲に、環状に前記コンプレッションシール材が配置されているとともに、該コンプレッションシール材の外周側に、前記ガラスシール材が配置されていてもよい。

[0021] また、コンプレッションシール材の外側を囲むようにガラスシール材が配置されていてもよい。これによれば、ガラスシール材の面積を十分に確保することができるので、ガラスによるガスシール性が高いという利点がある。

[0022] (4) 本発明の第4局面の燃料電池では、前記燃料電池は、ボルト締めによって、前記積層方向に押圧されて組み付けられていてもよい。

この場合、ボルト（及びボルトに螺合するナット）によって、燃料電池を締め付け押圧して固定するので、固定が容易であるとともに、確実に固定できるという利点がある。

[0023] (5) 本発明の第5局面の燃料電池では、前記燃料電池を構成する部材は、前記燃料極側の空間と空気極側の空間とを分離するセパレータ、前記燃料電池セルを区分するとともに各燃料電池セル間の導通を確保するインターコネクタ、前記燃料電池の積層方向の端部を構成するエンドプレートのうち、少なくとも1種であってもよい。

[0024] 上述の記載は、燃料電池を構成する部材を例示したものである。

燃料電池を構成する部材としては、燃料極側の空間（燃料流路）と空気極側の空間（空気流路）とを分離するセパレータや、燃料電池の構成単位である燃料電池セルを区分するとともに、各燃料電池セル間の導通を確保するインターコネクタや、燃料電池の積層方向の端部を構成する部材であるエンドプレートが挙げられる。

[0025] (6) 本発明の第6局面の燃料電池では、前記コンプレッションシール材と前記ガラスシール材とは、各燃料電池セル間を分離するインターコネクタ又は前記燃料電池の積層側の端部に配置されたエンドプレートと、前記電解質層に接合されて前記燃料極側の空間と前記空気極側の空間とを分離するセ

パレータとの間に配置されていてもよい。

[0026] 上述の記載は、コンプレッションシール材とガラスシール材を配置する場所を例示したものである。これによって、インターコネクタ又はエンドプレートとセパレータとの間からのガス漏れを好適に防止できる。

[0027] (7) 本発明の第7局面の燃料電池の製造方法は、前記第1～第6局面のいずれかに記載の燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、前記燃料電池を構成する部材によって前記積層方向において挟まれるとともに、前記積層方向に沿って設けられた前記燃料マニホールド及び前記酸化剤マニホールドの少なくとも一方の周囲を囲むように、前記コンプレッションシール材と前記ガラスシール材となるガラス材料とを同一平面上に配置する第1工程と、前記第1工程の後に、前記燃料電池の積層方向より圧力を加えて、前記コンプレッションシール材を押圧する第2工程と、前記第2工程の後に、前記ガラス材料が軟化する温度以上で加熱し、その後冷却することによって、前記ガラスシール材を形成するとともに、該ガラスシール材を、前記燃料電池を構成する部材に接合する第3工程と、を有する。

[0028] この場合、コンプレッションシール材とガラスシール材となるガラス材料とを、燃料電池を構成する部材によって積層方向において挟まれるように配置するとともに、積層方向に沿って設けられた燃料マニホールド及び酸化剤マニホールドの少なくとも一方の周囲を囲むように、(例えばセパレータ等の表面の)同一平面上に配置し、その後、燃料電池の積層方向より圧力を加えて、コンプレッションシール材を押圧し、その後、ガラス材料が軟化する温度以上で加熱し、その後冷却する(即ち軟化したガラス材料を冷却して固化させる)。これによって、ガラスシール材を形成するとともに、ガラスシール材を、燃料電池を構成する部材(例えばセパレータやインターコネクタ)に接合する。

[0029] この製造方法によって、上述した燃料電池を好適に製造することができる。

なお、以下に、本発明の各構成について説明する。

前記燃料電池としては、固体酸化物形燃料電池（S O F C）が挙げられる。

[0030] コンプレッションシール材とは、（積層方向における）押圧によって自身に変形して周囲（積層方向）の構成に密着してガスシールを行う部材である。このコンプレッションシール材としては、例えばマイカ又はバーミキュライトを含むシート状等の部材を用いることができる。

[0031] このコンプレッションシール材としては、ガスシール性に加え、一定以上は圧縮されない弾性ストッパーとしての機能や、電気絶縁性等を有するものを採用できる。

ガラスシール材としては、通常のガラス（例えば非結晶化ガラス）を用いることができるが、それ以外に、結晶化ガラス、部分結晶化ガラス（半結晶化ガラス）を用いることができる。また、ガラス成分以外に、セラミックなど各種の材料を添加してもよい。

[0032] なお、ガラスの組成としては特に限定されず、燃料電池の製造時に、加熱によって軟化し、積層方向の部材に密着してガスシールできる周知の材料から適宜選択して使用することができる。

[0033] また、ガラスシール材を形成する際には、プリフォーム（仮焼したガラス）やシート状のガラス材料を配置する方法や、ガラスペーストによる印刷、ガラス材料のディスペンサーによる塗布などの方法を採用できる。

[0034] なお、ガラスシール材は、燃料マニホールドの周囲のみに配置してもよい。

各燃料電池セルを積層方向から押圧する部材として、ボルトを使用する場合には、ボルトの熱膨張係数としてガラスシール材の熱膨張係数より大きいものが好ましい。これにより、燃料電池の運転時等（ガラスが軟化しないとき）に、ボルトによってガラスシール材に圧縮応力をかけることができるので、（引張応力が加わる場合に比べて）ガラスの割れを低減できる。

[0035] また、ガラスシール材に十分な圧縮力を加えるためには、（ボルトに螺合する）ナットの直下、即ち、ナットをボルトの軸方向に沿って投影した場合

に、その投影領域内にガラスシール材が一部又は全体が存在するように配置することが望ましい。なお、ナットの外径の2倍（ナットの径方向の寸法の2倍）の範囲内にガラスシール材が存在していることが好ましい。

[0036] なお、積層方向に延びる燃料マニホールド及び空気マニホールドと、これらのマニホールドに挿入される前記ボルトとを、同軸に配置することができる。

図面の簡単な説明

[0037] [図1A-1B]図1 Aは実施例1の固体酸化物形燃料電池の平面図、図1 Bはその固体酸化物形燃料電池の側面図である。

[図2]固体酸化物形燃料電池を積層方向に破断した状態を示す説明図である。

[図3]固体酸化物形燃料電池のカセットを分解した状態を示す斜視図である。

[図4]固体酸化物形燃料電池のカセットとガスシール部との積層部分を分解して示す斜視図である。

[図5]カセット上に配置されたコンプレッションシール材及びガラスシール材を含むガスシール部を示す平面図である。

[図6A-6B]図6 Aは燃料ガスの流路を示す説明図、図6 Bは空気の流路を示す説明図である。

[図7A-7C]固体酸化物形燃料電池の製造手順を示す説明図である。

[図8A-8C]ガラスシール材によるシールの状態（形成手順）を示す説明図である。

[図9]実施例2の固体酸化物形燃料電池のガスシール部を示す平面図である。

[図10]実施例2の固体酸化物形燃料電池で用いる空気極フレームを示す斜視図である。

[図11]実施例3の固体酸化物形燃料電池のガスシール部を示す平面図である。

[図12]実施例4の固体酸化物形燃料電池を積層方向に破断した状態を示す説明図である。

[図13]実施例4の固体酸化物形燃料電池を積層方向に破断した状態を（燃料

ガスの流路を加えて）示す説明図である。

[図14]実施例4の固体酸化物形燃料電池のナットの周囲のガスシール部を示す平面図である。

符号の説明

- [0038] 1…（固体酸化物形）燃料電池
3…燃料電池セル
5…燃料電池スタック
11、12、13、14、15、16、17、18、131…ボルト
19、133…ナット
35…燃料極
37…固体酸化物層
39…空気極
41…セル本体（単セル）
43…インターコネクタ
45、101、121、137、143…ガスシール部
47…セパレータ
49…燃料極フレーム
51、135、141…エンドプレート
57…カセット
61、62、63、64、65、66、67、68、145…挿通孔
91、111、123、125、147、151…コンプレッションシール材
93、103、105、107、109、127、149、153…ガラスシール材

発明を実施するための形態

- [0039] 以下、本発明が適用された燃料電池及びその製造方法の実施例について、図面を用いて説明する。なお、以下の実施例では、燃料電池として固体酸化物形燃料電池（SOFC）を例に挙げて説明する。

[実施例 1]

a) まず、本実施例 1 の固体酸化物形燃料電池の概略構成について説明する。なお、以下では「固体酸化物形」を省略する。

[0040] 図 1 A - 1 B に示す様に、燃料電池 1 は、燃料ガス（例えば水素）と酸化剤ガス（例えば空気）との供給を受けて発電を行う装置である。

この燃料電池 1 は、発電単位（発電セル）である平板形の燃料電池セル 3 が、複数個（例えば 24 段）積層された燃料電池スタック 5 と、燃料電池スタック 5 を積層方向（図 1 B の上下方向）貫く複数のボルト 11 ~ 18 と、各ボルト 11 ~ 18 の端部（ここでは上部）に螺合する各ナット 19（総称）とを備えている。

[0041] なお、前記燃料電池スタック 5 は、複数個の燃料電池セル 3 が電氣的に直列に接続されたものである。

また、図 1 A に示す様に、各ボルト 11 ~ 18 のうち、第 2 ボルト 12 に螺合するナット 19 には、燃料ガスを燃料電池 1 に供給する燃料ガス導入管 21 が設けられ、第 4 ボルト 14 に螺合するナット 19 には、酸化剤ガス（以下、単に空気と記す）を燃料電池 1 に供給する空気導入管 23 が設けられ、第 6 ボルト 16 に螺合するナット 19 には、発電後の燃料ガスを燃料電池 1 から排出する燃料ガス排出管 25 が設けられ、第 8 ボルト 18 に螺合するナット 19 には、発電後の空気を燃料電池 1 から排出する空気排出管 27 が設けられている。

[0042] 以下、各構成について説明する。

図 2 に示す様に、前記燃料電池スタック 5 を構成する各燃料電池セル 3 は、いわゆる燃料極支持膜形タイプの板状の燃料電池セル 3 であり、この燃料電池セル 3 には、上下一対の（導電性を有する）インターコネクタ 43、43 の間に、燃料ガスが流れる燃料流路 31 と空気が流れる空気流路 33 とが分離して設けられている。

[0043] また、燃料電池セル 3 には、燃料流路 31 側に、板状の燃料極（アノード）35 が配置されているとともに、燃料極 35 の表面（図 2 上側）には、薄

膜の固体電解質層である固体酸化物層 37 が形成されている。更に、固体酸化物層 37 の表面（図 2 上側）には、薄膜の空気極（カソード）39 が形成されている。なお、燃料極 35 と固体酸化物層 37 と空気極 39 とをセル本体（単セル）41 と称する。

[0044] 更に、燃料電池セル 3 内には、燃料極 35 と図 2 下側のインターコネクタ 43 との間に、（金属メッシュ等からなる通気性を有する）燃料極側集電体 53 が配置され、また、各インターコネクタ 43 の一方（図 2 下方）の表面には、空気極側集電体 55 となるブロック状の多数の凸部が一体に形成されている。

[0045] また、この燃料電池セル 3 は、セル本体（単セル）41 を囲むように、空気極 39 側のシート状のガスシール部 45 と、セル本体（単セル）41 の外縁部（詳しくは固体酸化物層 37 の外縁部）の上面に接合して空気流路 33 と燃料流路 31 との間を遮断するセパレータ 47 と、燃料流路 31 側に配置された燃料極フレーム 49 とを備えており、それらが積層されて一体に構成されている。

[0046] なお、燃料電池 1 の積層方向の両端の（インターコネクタ 43 と同様な導電性を有する）板材を、エンドプレート 51 と称する。

ここで、固体酸化物層 37 としては、YSZ、ScSZ、SDC、GDC、ペロブスカイト系酸化物等の材料が使用できる。また、燃料極 35 としては、Ni 及び Ni とセラミックとのサーメットが使用でき、空気極 39 としては、ペロブスカイト系酸化物、各種貴金属及び貴金属とセラミックとのサーメットが使用できる。

[0047] 更に、インターコネクタ 43、エンドプレート 51、セパレータ 47、燃料極フレーム 49 としては、例えば SUS430、SUS444 等のフェライト系ステンレスからなる金属板が使用できる。また、各ボルト 11～18 やナット 19 は、例えばインコネル（登録商標）からなる金属部材を採用できる。

[0048] なお、各金属板の熱膨張係数としては、 $8 \sim 14 \times 10^{-6} / K$ （20～30

0℃)の範囲を採用でき、ボルト11～18やナット19の熱膨張係数としては、金属板より熱膨張係数が大きな例えば $16 \times 10^{-6}/K$ (20～300℃)を採用できる。

[0049] 以下に、燃料電池セル3を構成する各部材について、更に詳細に説明する。

なお、燃料電池セル3の平面形状は正方形であるので、燃料電池セル3を構成する各部材の平面形状も正方形である。

[0050] 図3に分解して示す様に、燃料極側集電体53が載置されたインターコネクタ43と、燃料極フレーム49と、セル本体(単セル)41に接合されたセパレータ47とは、同図の上下方向に積層されて、(後述するレーザー溶接によって)一体となって、燃料電池のカセット57として構成されている。

[0051] このうち、インターコネクタ43は、正方形の板材であり、その外縁部には、前記ボルト11～18が貫挿される挿通孔(第1～第8挿通孔)61～68が、ほぼ等間隔に形成されている。つまり、インターコネクタ43の四隅と各辺の midpoint に対応する位置に、8箇所挿通孔61～68(なお、各部材における挿通孔には同じ番号を付す)が形成されている。

[0052] 前記挿通孔61～68のうち、四隅の第1、第3、第5、第7挿通孔61、63、65、67は、燃料ガスや空気のガス流路として用いられない丸孔である。

また、対向する辺に設けられた第2、第6挿通孔62、66は、辺に沿った寸法が長い長円形である、このうち、第2挿通孔62が、燃料ガスを燃料電池セル3内の燃料流路31に導入する燃料ガスの導入路(燃料ガスの導入側の燃料マニホールド)である。一方、第6挿通孔66が、燃料ガスを燃料電池セル3内の燃料流路31から排出する燃料ガスの排出路(燃料ガスの排出側の燃料マニホールド)である。

[0053] 更に、他の対向する辺に設けられた第4、第8挿通孔64、68は丸孔であり、このうち、第4挿通孔64が、空気を燃料電池セル3内の空気流路3

3に導入する空気の導入路（空気の導入側の空気マニホールド）である。一方、第8挿通孔68が、空気を燃料電池セル3内の空気流路33から排出する空気の排出路（空気の排出側の空気マニホールド）である。

[0054] なお、各燃料マニホールドや空気マニホールドと、各燃料マニホールドや空気マニホールドに挿通される各ボルト11～18とは、それぞれ同軸に配置されている。

前記燃料極フレーム49は、正方形の枠状の板材であり、その外縁部には、前記ボルト11～18が貫挿される前記第1～第8挿通孔61～68が形成されている。

[0055] このうち、第2、第6挿通孔62、66には、長手方向に（貫通孔である）スリット71、73が形成されており、燃料極フレーム49のインターコネクタ43側（同図下側）には、各スリット71、73と枠内の開口部75とを連通するように、複数の（燃料ガスの流路となる）溝77、79が形成されている。

[0056] 前記セパレータ47は、正方形の枠状の板材であり、その外縁部には、前記ボルト11～18が貫挿される前記第1～第8挿通孔61～68が形成されている。

そして、上述した構成のカセット57は、図4に示すように、間にシート状のガスシール部45を介して積層されている。

[0057] 特に、本実施例1におけるガスシール部45は、図5に示すように、マイカからなるシート状のコンプレッションシール材91と、ガラスからなるガラスシール材93とから構成されている。なお、コンプレッションシール材91及びガラスシール材93は、電気絶縁性を有している。

[0058] 具体的には、燃料電池セル3の積層方向（図5の紙面の厚み方向）に延びる燃料マニホールドの周囲には、燃料電池スタック5を構成するインターコネクタ43（又はエンドプレート51）やセパレータ47によって積層方向から挟まれるとともに、燃料マニホールドを外側（外周側）から囲むように、燃料電池セル3が広がる平面（紙面の広がる平面）に沿って、ガラスシール材93が形成されている。

ル材 9 3 とコンプレッションシール材 9 1 とが内側から順番に並列に配置されている。

[0059] つまり、ボルト 1 2、1 6、従って燃料マニホールドである第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 の軸方向から見て（平面視にて）、燃料マニホールドの周囲を軸方向と垂直の径方向から囲むように、ガラスシール材 9 3 とコンプレッションシール材 9 1 とが、同心状に配置されている。すなわち、内側に環状のガラスシール材 9 3 が配置され、その外周側を全て囲むように、コンプレッションシール材 9 1 が配置されている。

[0060] 詳しくは、コンプレッションシール材 9 1 は、正方形の枠状の部材であり、その外縁部には、前記ボルト 1 1 ～ 1 8 が貫挿される前記第 1 ～ 第 8 挿通孔 6 1 ～ 6 8 が形成されている。なお、コンプレッションシール材 9 1 の厚みは、組み付ける前は 0.40 mm であり、組み付け後は 0.36 mm である。

[0061] このうち、第 1、第 3、第 5、第 7 挿通孔 6 1、6 3、6 5、6 7 は丸孔であり、第 4、第 8 挿通孔 6 4、6 8 は、それより直径が大きな丸孔であり、第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 は、長円形の長孔である。

[0062] また、コンプレッションシール材 9 1 には、空気の流路として、各第 4、第 8 挿通孔 6 4、6 8 と枠内の開口部 9 9 と連通するように、それぞれ連通路 9 5、9 7 が設けられている。

[0063] また、第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 の内周側には、積層方向（図 5 の紙面と垂直方向）から見て、セパレータ 4 7 の第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 の周囲を囲むように、厚み 0.3 mm × 幅 3.0 mm の環状のガラスシール材 9 3 が配置されている。

[0064] このガラスシール材 9 3 は、ガラスを含む（例えばガラスを主成分とする）ガス封止材である。ここでは、例えば、市販の結晶化ガラスのプリフォーム（仮焼結体）を用いることができ、その軟化点は例えば 770℃ である。

[0065] また、このガラスシール材 9 3 としては、熱膨張係数が周囲の金属板（例えばフェライト系ステンレス製）の熱膨張係数に近いもの、例えば熱膨張係

数が $8 \sim 14 \times 10^{-6} / \text{K}$ ($20 \sim 300^\circ\text{C}$) が望ましく (例えば $11 \times 10^{-6} / \text{K}$ ($20 \sim 300^\circ\text{C}$))、例えば SCHOTT 社製の G018-311 を用いることができる。

[0066] なお、燃料電池 1 の運転温度は、例えば 700°C であるが、ガスシール部 45 近傍では、 650°C 程度であるので、ガラスシール材 93 として、運転時のガスシール部 45 の温度より軟化点の高いものが用いられる。

[0067] b) 次に、本実施例 1 におけるガスの流路について簡単に説明する。

<燃料ガスの流路>

図 6 A に示すように、燃料ガス導入管 21 から燃料電池スタック 5 内に導入された燃料ガスは、第 2 ボルト 12 が挿通される (導入側の燃料マニホールドである) 第 2 挿通孔 62 に導入される。

[0068] なお、第 2 ボルト 12 の先端 (同図上方) には、軸方向に溝 (図示せず) が形成しており、この溝を介して燃料ガス導入管 21 内の空間と第 2 挿通孔 62 内とが連通している (燃料ガスの排出側と、空気の導入側及び排出側も、同様な構造となっている)。

[0069] この燃料ガスは、第 2 挿通孔 62 から、各燃料電池セル 3 の燃料極フレーム 49 の溝 77 を介して、燃料電池セル 3 の内部の燃料流路 31 内に導入される。

その後、燃料電池セル 3 内にて発電に寄与した残余の燃料ガスは、燃料極フレーム 49 の他の溝 79 を介して、第 6 ボルト 16 が挿通される (排出側の燃料マニホールドである) 第 6 挿通孔 66 を介して、燃料ガス排出管 25 から燃料電池スタック 5 外に排出される。

[0070] <空気の流路>

図 6 B に示すように、空気導入管 23 から燃料電池スタック 5 内に導入された空気は、第 4 ボルト 14 が挿通される (導入側の空気マニホールドである) 第 4 挿通孔 64 に導入される。

[0071] この空気は、第 4 挿通孔 64 から、各燃料電池セル 3 のコンプレッションシール材 91 の連通路 95 を介して、燃料電池セル 3 の内部の空気流路 33

内に導入される。

その後、燃料電池セル 3 内にて発電に寄与した残余の空気は、コンプレッションシール材 9 1 の他の連通路 9 7 を介して、第 8 ボルト 1 8 が挿通される（排出側の空気マニホールドである）第 8 挿通孔 6 8 を介して、空気排出管 2 7 から燃料電池スタック 5 外に排出される。

[0072] c) 次に、燃料電池 1 の製造方法について説明する。

図 7 A に示すように、定法に従って、燃料極 3 5 と固体酸化物層 3 7 と空気極 3 9 とが一体となった（正方形の板状の）セル本体（単セル）4 1 を作製し、このセル本体（単セル）4 1 の外縁部に枠状のセパレータ 4 7 を、ろう付けする。

[0073] 次に、図 7 B に示すように、燃料極フレーム 4 9 をセパレータ 4 7 とインターコネクタ 4 3（又はエンドプレート 5 1）とで挟み、レーザー溶接によって、燃料極フレーム 4 9 とセパレータ 4 7 とインターコネクタ 4 3（又はエンドプレート 5 1）とを一体に接合して、燃料電池のカセット 5 7 を作製する。

[0074] なお、レーザー溶接によって、燃料マニホールドである第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 と、空気マニホールドである第 4、第 8 挿通孔 6 4、6 8 との周囲を、それぞれ環状に接合するとともに、セパレータ 4 7 とインターコネクタ 4 3（又はエンドプレート 5 1）との外縁部を環状に接合する。

[0075] 従って、燃料電池のカセット 5 7 の内部の燃料流路 3 1 と燃料マニホールド（第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6）と空気マニホールド（第 4、第 8 挿通孔 6 4、6 8）との間のガスリークは完全に防止される。

[0076] 次に、図 7 C に示すように、燃料電池の各カセット 5 7 の間に、コンプレッションシール材 9 1 及びガラスシール材 9 3（となるガラス材料）からなるガスシール部 4 5（となる材料）を配置する。

[0077] 詳しくは、前記図 5 に示すように、各セパレータ 4 7 の表面の同一平面上において、燃料マニホールド（第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6）を完全に囲むように環状のガラスシール材 9 3（となるガラス材料）を配置するとともに

、ガラスシール材 93（となるガラス材料）の周囲を完全に囲むようにコンプレッションシール材 91 を配置する。

[0078] その後、前記図 7 C に示すように、各挿通孔 61～68 に各ボルト 11～18 を挿通し、ボルト 11～18 及びナット 19 を締め付けることによって、燃料電池スタック 5 を積層方向（図 7 C の上下方向）に押圧して、燃料電池スタック 5 を一体化する。

[0079] この段階では、図 8 A に示すように、コンプレッションシール材 91 の厚みは 0.36 mm であり、（軟化する前の）ガラスシール材 93 の厚み 0.30 mm より大きいので、ガラスシール材 93 とインターコネクタ 43（又はエンドプレート 51）との間には、若干の隙間がある。

[0080] 次に、燃料電池スタック 5（詳しくはガラスシール材 93（となるガラス材料））を、ガラスの結晶化温度以上の例えば 850℃ に 2 時間加熱し、ガラスを結晶化させる。ガラスの軟化点（770℃）から結晶化温度の昇温過程で、ガラスシール材 93 は軟化し、図 8 B に示すように、自身の表面張力によって丸くなって、上方に凸の状態となり、最終的に上方のインターコネクタ 43（又はエンドプレート 51）に接触する。さらに、850℃－2 時間の加熱によってガラスは結晶化する。

[0081] その後、冷却することによって、図 8 C に示すように、ガラスシール材 93 は、セパレータ 47 とインターコネクタ 43（又はエンドプレート 51）とに強固に接合する。

なお、ガラスを加熱するとガラスシール材 93 が軟化するが、上述のように、ボルト 11～18 の熱膨張係数は、セパレータ 47、インターコネクタ 43、燃料極フレーム 49 等のような積層方向に配置された金属板の熱膨張係数や、ガラスシール材 93 の熱膨張係数より大きいので、ガラスの加熱時には、燃料電池スタック 5 は全体が緩んだ状態となる（ボルト 11～18 の押圧力は減るが、無くなっている訳ではない）。その後、冷却されると、ボルト 11～18 等が積層方向に縮んで（元に戻って）圧縮場となっているので、ガラスシール材 93 が圧縮された状態で封止される（即ちガラスによっ

て封止される)。

[0082] このようにして、ガスシールの構成が実現されるとともに、燃料電池 1 が完成する。

d) 本実施例 1 の効果について説明する。

本実施例 1 では、燃料マニホールドである第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6 と、空気マニホールドである第 4、第 8 挿通孔 6 4、6 8 との周囲には、セパレータ 4 7 やインターコネクタ 4 3 (又はエンドプレート 5 1) によって積層方向から挟まれるとともに、各マニホールドを囲むように、ガスシール部 4 5 が配置されている。

[0083] 詳しくは、(例えば図 5 に示す平面視で) 各マニホールドを囲むように、燃料電池セル 3 が広がる平面 (即ち各マニホールドの径方向) に沿って、環状のガラスシール材 9 3 が配置され、更にそのガラスシール材 9 3 を同一平面上にて径方向から囲むように、コンプレッションシール材 9 1 が並列に配置されている。

[0084] 従って、コンプレッションシール材 9 1 及びガラスシール材 9 3 によって (特に周囲に密着するガラスシール材 9 3 によって)、セパレータ 4 7 とインターコネクタ 4 3 (又はエンドプレート 5 1) との間における各マニホールドから又は各マニホールドへのガス漏れを好適に防止することができる。

[0085] また、積層方向から大きな力が加わった場合でも、コンプレッションシール材 9 1 によって、過大な力がガラスシール材 9 3 に加わることを抑制できるので、ガラスシール材 9 3 が割れることを防止でき、この点からも好適にガス漏れを防止することができる。

[0086] 更に、高温環境下で使用されてガラスが軟化した場合でも、コンプレッションシール材 9 1 によって、ガラスシール材 9 3 の過度の変形が抑制されるので、ガラスが周囲に広がって電気接続性が低下することを防止できる。

[0087] このように、本実施例 1 では、燃料ガスのガス漏れの発生を好適に防止できるので、発電効率が高く、漏れたガスの後処理の必要が無い (又は後処理が容易である) という顕著な効果を奏する。

[0088] また、本実施例１では、ボルト１１～１８とナット１９とによって、燃料電池スタック５を締め付け押圧して固定するので、固定が容易であるとともに、確実に固定できるという利点がある。

[0089] 更に、燃料電池１の運転の実施（ＯＮ）及び停止（ＯＦＦ）に応じて、燃料電池１の温度が変動するが、本実施例１では、上述した構成（各部の熱膨張係数の関係）によって、温度が変動しても、ガラスシール材９３等を常に押圧できるので、その点からも、ガス漏れを防止できるという利点がある。

[実施例２]

次に、実施例２について説明するが、前記実施例１と同様な内容の説明は省略する。

[0090] 本実施例２は、実施例１とは、燃料電池のガスシール部の構成が異なるので、ガスシール部について説明する。なお、その他の構成については、前記実施例１と同様な番号を使用する。

[0091] 図９に示すように、本実施例２の燃料電池１のガスシール部１０１では、燃料マニホールドである第２、第６挿通孔６２、６６の周囲を、環状のガラスシール材１０３、１０５で囲むとともに、空気マニホールドである第４、第８挿通孔６４、６８の周囲も、環状のガラスシール材１０７、１０９で囲んでいる。

[0092] また、コンプレッションシール材１１１は、実施例１と同様に四角枠状であり、各ガラスシール材１０３、１０５、１０７、１０９の外周を囲むように配置されている。

更に、本実施例２では、ガスシール部１０１とセパレータ４７との間に、図１０に示すように、実施例１の枠状の燃料極フレーム４９と同様な（但し向きは平面視で９０度異なっている）空気極フレーム１１８を配置している（実施例３も同様）。

[0093] この空気極フレーム１１８は、第４、第８挿通孔６４、６８から辺に沿って延びる貫通孔であるスリット１１３、１１４とスリット１１３、１１４から空気極３９側に延びる溝１１６、１１７とを有する枠状の部材であり、空

気極フレーム 118 のスリット 113、114 及び溝 116、117 とを介して、第 4、第 8 挿通孔 64、68 と空気極 39 側とを連通している。

[0094] 従って、本実施例 2 では、前記実施例 1 と同様な効果を奏するとともに、燃料ガスのリークだけでなく、空気のリークも防止できる。よって、ガス流量を精度良く調節できるので、より精密に燃料電池 1 の運転を行うことができるという利点がある。

[実施例 3]

次に、実施例 3 について説明するが、前記実施例 1 と同様な内容の説明は省略する。

[0095] 本実施例 3 は、実施例 1 とは、燃料電池のガスシール部の構成が異なるので、ガスシール部について説明する。なお、その他の構成については、前記実施例 1 と同様な番号を使用する。

[0096] 図 11 に示すように、本実施例 3 の燃料電池 1 のガスシール部 121 は、実施例 1 と同様な材料からなるコンプレッションシール材 123、125 とガラスシール材 127 とから構成されているが、その配置が逆である。

[0097] 詳しくは、実施例 1 にてガラスシール材が用いられる場所、即ち、燃料マニホールドである第 2、第 6 挿通孔 62、66 の周囲に、環状のコンプレッションシール材 123、125 が配置されている。また、実施例 1 にてコンプレッションシール材が用いられる場所に、即ち、コンプレッションシール材 123、125 の周囲を囲むように、四角枠状のガラスシール材 127 が配置されている。

[0098] よって、本実施例 3 では、前記実施例 1 と同様な効果を奏するとともに、ガラスのシール部分が多いので、ガスシール性に優れているという利点がある。

[実施例 4]

次に、実施例 4 について説明するが、前記実施例 1 と同様な内容の説明は省略する。

[0099] 本実施例 4 は、実施例 1 とは、燃料電池のボルト及びナットのガスシール

部分の構成が異なるので、このガスシール部分について説明する。なお、その他の構成については、前記実施例 1 と同様な番号を使用する。

[0100] a) 図 1 2 に示す様に、本実施例 4 の燃料電池 1 では、実施例 1 と同様な構成の燃料電池スタック 5 を積層方向に貫くように、（実施例 1 と同様に）複数のボルト 1 3 1 が配置されている。

[0101] 特に本実施例 4 では、ボルト 1 3 1 に螺合するナット 1 3 3 と一方（同図上方）のエンドプレート 1 3 5 との間に、環状の第 1 ガスシール部 1 3 7 が設けられており、且つ、ボルト 1 3 1 の頭部 1 3 9 と他方（同図下方）のエンドプレート 1 4 1 との間に、（第 1 ガスシール部 1 3 7 と同様な）環状の第 2 ガスシール部 1 4 3 が設けられている。

[0102] なお、本発明の燃料電池を構成する部材には、上記（頭部 1 3 9 を含む）ボルト 1 3 1、ナット 1 3 3、及びエンドプレート 1 3 5、1 4 1 等が含まれている。

ここで、ボルト 1 3 1 が挿通される挿通孔 1 4 5 は、前記実施例 1 と同様な燃料マニホールドであるが、前記実施例 2 と同様に、燃料マニホールドと空気マニホールドの両方でもよい。

[0103] このうち、第 1 ガスシール部 1 3 7 は、ボルト 1 3 1（及び挿通孔 1 4 5）の周囲を囲むように配置された環状のコンプレッションシール材 1 4 7 と、コンプレッションシール材 1 4 7 の周囲を囲むとともに、ナット 1 3 3 やエンドプレート 1 3 5 に接合した環状のガラスシール材 1 4 9 とから構成されている。

[0104] 同様に、第 2 ガスシール部 1 4 3 は、ボルト 1 3 1（及び第 2、第 6 挿通孔 6 2、6 6）の周囲を囲むように配置された環状のコンプレッションシール材 1 5 1 と、コンプレッションシール材 1 5 1 の周囲を囲むとともに、ボルト 1 3 1 の頭部 1 3 9 やエンドプレート 1 4 1 に接合した環状のガラスシール材 1 5 3 とから構成されている。なお、前記ガラスシール材 1 4 9、1 5 3 としては、例えば前記実施例 1 のガラスシール材 9 3 と同様な材料などを使用できる。

[0105] b) 次に、本実施例4の要部である第1ガスシール部137及び第2ガスシール部143について、更に詳細に説明する。

図13に示す様に、本実施例4の燃料電池1では、燃料マニホールドを構成する第2挿通孔62及び第6挿通孔66の一方（同図上方）の開口端（開口部）62a、66aをガスシールするために、第1ガスシール部137が設けられ、他方（同図下方）の開口端（開口部）62b、66bをガスシールするために、第2ガスシール部143が設けられている。

[0106] 詳しくは、第1ガスシール部137は、図13の上方の一方のエンドプレート135と（燃料マニホールドである第2、第6挿通孔62、66の一方の開口部62a、66a側に配置された）各ナット133との間、つまり、一方のエンドプレート135の上面135aと各ナット133の下面133aとの間をガスシールするように設けられている。

[0107] なお、ナット133は、図13の上方から見て（平面視で）、燃料マニホールドの一方（図13上方）の開口部62a、66aを覆うように設けられている。

同様に、第2ガスシール部143は、図13の下方の他方のエンドプレート141と（燃料マニホールドである第2、第6挿通孔62、66の他方の開口部62b、66b側に配置された）各ボルト131の頭部139の間、つまり、他方のエンドプレート141の下面141bと各ボルト131の頭部139の上面139bとの間をガスシールするように設けられている。

[0108] なお、ボルト131の頭部139は、図13の下方から見て（平面視で）、燃料マニホールドの他方（図13下方）の開口部62b、66bを覆うように設けられている。

このうち、第1ガスシール部137は、同一平面上にて（図13の上下方向から見て：平面視で）、各ボルト131の軸部150（及び各挿通孔62、66）の周囲を囲むように配置された環状のコンプレッションシール材147と、コンプレッションシール材147の外側の周囲を囲むように配置された（ナット133やエンドプレート135に接合した）環状のガスシール材148とを有している。

ル材 1 4 9 とから構成されている。

[0109] 具体的には、ボルト 1 3 1 のうち、燃料電池スタック 5 から（図 1 3 の上方に）突出する部分の径方向における周囲には、その周囲を外側（外周側）から囲むように、エンドプレート 1 3 5 及びナット 1 3 3 によって、燃料電池セル 3 の積層方向（図 1 3 の上下方向）から挟まれるとともに、燃料電池セル 3 が広がる平面（積層方向と垂直の平面）に沿って、コンプレッションシール材 1 4 7 とガラスシール材 1 4 9 とが順番に並列に配置されている。

[0110] つまり、図 1 4 に示すように、ボルト 1 3 1 の軸方向から見て（平面視にて）、ボルト 1 3 1 の軸部 1 5 0 の周囲を囲むように、即ち、軸部 1 5 0 を軸方向と垂直の径方向から囲むように、コンプレッションシール材 1 4 7 とガラスシール材 1 4 9 とが、同心円状に配置されている。すなわち、内側に環状のコンプレッションシール材 1 4 7 が配置され、その外周側を全て囲むように、環状のガラスシール材 1 4 9 が配置されている。

[0111] 図 1 3 に戻り、同様に、第 2 ガスシール部 1 4 3 は、同一平面上にて（図 1 3 の上下方向から見て：平面視で）、各ボルト 1 3 1 の軸部 1 5 0（及び各挿通孔 6 2、6 6）の周囲を囲むように配置された環状のコンプレッションシール材 1 5 1 と、コンプレッションシール材 1 5 1 の外側の周囲を囲むように配置された（各ボルト 1 3 1 の頭部 1 3 9 やエンドプレート 1 4 1 に接合した）環状のガラスシール材 1 5 3 とから構成されている。

[0112] 具体的には、ボルト 1 3 1 のうち、燃料電池スタック 5 から（図 1 3 の下方に）突出する部分の径方向における周囲には、その周囲を外側（外周側）から囲むように、エンドプレート 1 4 1 及びボルト 1 3 1 の頭部 1 3 9 によって、燃料電池セル 3 の積層方向から挟まれるとともに、燃料電池セル 3 が広がる平面に沿って、コンプレッションシール材 1 5 1 とガラスシール材 1 5 3 とが順番に並列に配置されている。

[0113] つまり、前記図 1 4 に示すように、ボルト 1 3 1 の軸方向から見て（平面視にて）、ボルト 1 3 1 の軸部 1 5 0 の周囲を囲むように、即ち、軸部 1 5 0 を軸方向と垂直の径方向から囲むように、コンプレッションシール材 1 5

1 とガラスシール材 1 5 3 とが、同心円状に配置されている。すなわち、内側に環状のコンプレッションシール材 1 5 1 が配置され、その外周側を全て囲むように、環状のガラスシール材 1 5 3 が配置されている。

[0114] 前記第 1、第 2 ガスシール部 1 3 7、1 4 3 では、各コンプレッションシール材 1 4 7、1 5 1 は、前記ガスシール部 4 5 と同様に、マイカからなるシート状の部材であり、各ガラスシール材 1 4 9、1 5 3 は、ガラスから構成されている。なお、両コンプレッションシール材 1 4 7、1 5 1 及び各ガラスシール材 1 4 9、1 5 3 も、電気絶縁性を有している。

[0115] 詳しくは、各コンプレッションシール材 1 4 7、1 5 1 は、外径 1 7 mm × 内径 1 1 mm) の円環であり、組み付ける前の厚みは 0. 5 mm であり、組み付け後（圧縮後）の厚みは 0. 4 mm である。

[0116] また、各ガラスシール材 1 4 9、1 5 3 は、ガラスを含む（例えばガラスを主成分とする）ガス封止材である。ここでは、前記ガスシール部 4 5 と同様に、例えば、市販の結晶化ガラスのプリフォーム（仮焼結体）を用いることができ、その軟化点は例えば 7 7 0 °C である。

[0117] また、このガラスシール材 1 4 9、1 5 3 としては、熱膨張係数が周囲の金属板（例えばフェライト系ステンレス製）の熱膨張係数に近いもの、例えば熱膨張係数が $8 \sim 14 \times 10^{-6} / \text{K}$ (20 ~ 300 °C) が望ましく（例えば $11 \times 10^{-6} / \text{K}$ (20 ~ 300 °C) ）、例えば S C H O T T 社製の G 0 1 8 - 3 1 1 を用いることができる。

[0118] なお、燃料電池 1 の運転温度は、例えば 7 0 0 °C であるが、第 1、第 2 ガスシール部 1 3 7、1 4 3 近傍では、6 4 0 °C 程度であるので、ガラスシール材 1 4 9、1 5 3 として、運転時における前記第 1、第 2 ガスシール部 1 3 7、1 4 3 の温度より軟化点の高いものが用いられる。また、ガスシール部 4 5 のガラスシール材 9 3 と、第 1、第 2 ガスシール部 1 3 7、1 4 3 のガラスシール材 1 4 9、1 5 3 として、異なる材料（例えば軟化点が異なる材料）を用いてもよい。

[0119] なお、燃料ガスが流れない第 1、第 3、第 4、第 5、第 7、第 8 挿通孔 6

1、63、64、65、67、68に挿通された他のボルト131及びそれらに螺合するナット133については、ガスシールする必要は無いので、単に、スペーサとして、第1、第2ガスシール部137、143で使用されたと同様な環状のマイカからなるコンプレッションシール材（図示せず）のみが使用されている。

[0120] 或いは、空気マニホールドに対応する第4、第8挿通孔64、68の開口部を、燃料マニホールドと同様にガスシールするように、第1、第2ガスシール部137、143と同様な構成のガスシール部（図示せず）を設けてもよい。

[0121] 又は、第1～第8挿通孔61～68の全ての開口部を全てガスシールするように、第1、第2ガスシール部137、143と同様な構成のガスシール部（図示せず）を設けてもよい。

[0122] 上述した構成、例えば第1ガスシール部137を形成する場合には、図14に示すように、ボルト131の周囲に環状のコンプレッションシール材147を配置するとともに、コンプレッションシール材147の周囲に環状のガラスシール材149（となるガラス材料）を配置する。

[0123] そして、ボルト131及びナット133を締め付けて、燃料電池1を押圧して組み付けた後に、加熱によってガラスシール材149、153を軟化させて、周囲の部材と接合させ、その後冷却する。

[0124] 本実施例4は、前記実施例1と同様な効果を奏するとともに、燃料電池スタック5とナット133やボルト131の頭部139との隙間からガスがリークすることを効果的に防止できるという利点がある。

[0125] 以上、本発明の実施例について説明したが、本発明は、前記実施例に限定されるものではなく、種々の態様を採ることができる。

（1）例えば、燃料電池スタックを積層方向に押圧する方法としては、上述したボルト及びナットの螺合による締め付け以外に、例えば積層方向に荷重を加えるように錘を乗せる方法、バネを利用して積層方向に押圧する方法などが挙げられる。

[0126] (2) 前記ボルトとしては、例えば（内部に空間の無い）中実のボルトや、（例えば軸方向に沿って空間がある）中空のボルトなどを採用できる。

なお、各燃料マニホールドや空気マニホールドと、各燃料マニホールドや空気マニホールドに挿通される各ボルトとは、それぞれ同軸に配置されていなくともよい（図示せず）。また、各ボルトは、各燃料マニホールドや空気マニホールドの外部に配置されていてもよい（図示せず）。

[0127] (3) また、本発明は、固体酸化物形燃料電池（S O F C）に限らず、運転温度域が約 6 0 0℃以上の高温タイプの燃料電池、例えば熔融炭酸塩形燃料電池（M C F C）等に適用可能である。

請求の範囲

- [請求項1] 電解質層と、該電解質層の一方の面に設けられて燃料ガスに接する燃料極と、該電解質層の他方の面に設けられて酸化剤ガスに接する空気極と、を有する板状の燃料電池セルが、複数積層されるとともに、該燃料電池セルが前記積層方向から押圧された状態で組み付けられた平板型の燃料電池において、
- 前記燃料電池には、前記燃料極側の空間に連通する燃料マニホールド及び前記空気極側の空間に連通する酸化剤マニホールドのうち少なくとも一方が、前記積層方向に延びるように設けられており、
- 前記燃料マニホールド及び前記酸化剤マニホールドの少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲には、前記燃料電池を構成する部材によって前記積層方向から挟まれるとともに、前記少なくとも一方のマニホールドを囲むように、前記燃料電池セルが広がる平面に沿って、コンプレッションシール材とガラスシール材とが並列に配置されていることを特徴とする燃料電池。
- [請求項2] 前記少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲に、環状に前記ガラスシール材が配置されるとともに、該ガラスシール材の外周側に、前記コンプレッションシール材が配置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。
- [請求項3] 前記少なくとも一方の前記積層方向に延びるマニホールドの周囲に、環状に前記コンプレッションシール材が配置されるとともに、該コンプレッションシール材の外周側に、前記ガラスシール材が配置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。
- [請求項4] 前記燃料電池は、ボルト締めによって、前記積層方向に押圧されて組み付けられていることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の燃料電池。
- [請求項5] 前記燃料電池を構成する部材は、前記燃料極側の空間と前記空気極側の空間とを分離するセパレータ、前記燃料電池セルを区分するとと

もに各燃料電池セル間の導通を確保するインターコネクタ、前記燃料電池の積層方向の端部を構成するエンドプレートのうち、少なくとも1種であることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載の燃料電池。

[請求項6] 前記コンプレッションシール材と前記ガラスシール材とは、各燃料電池セル間を分離するインターコネクタ又は前記燃料電池の積層側の端部に配置されたエンドプレートと、前記電解質層に接合されて前記燃料極側の空間と前記空気極側の空間とを分離するセパレータとの間に配置されていることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載の燃料電池。

[請求項7] 前記請求項1～6のいずれか1項に記載の燃料電池を製造する燃料電池の製造方法において、

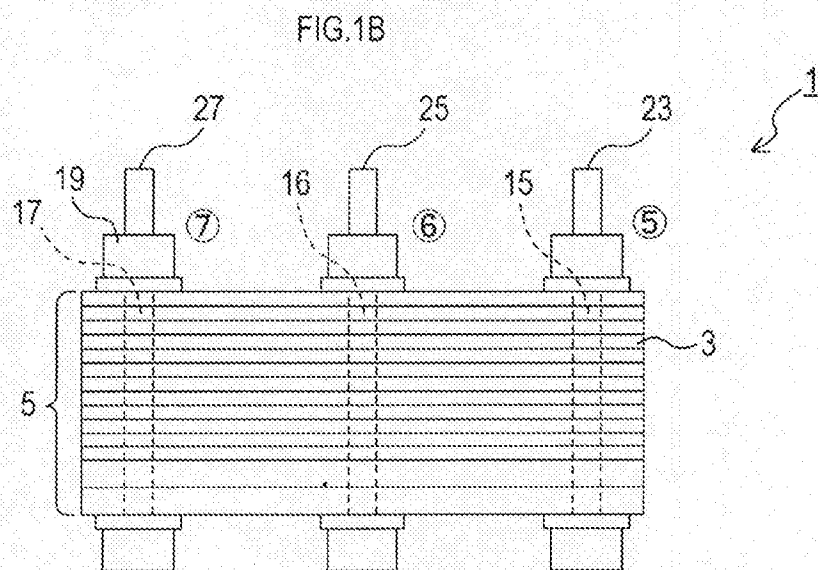
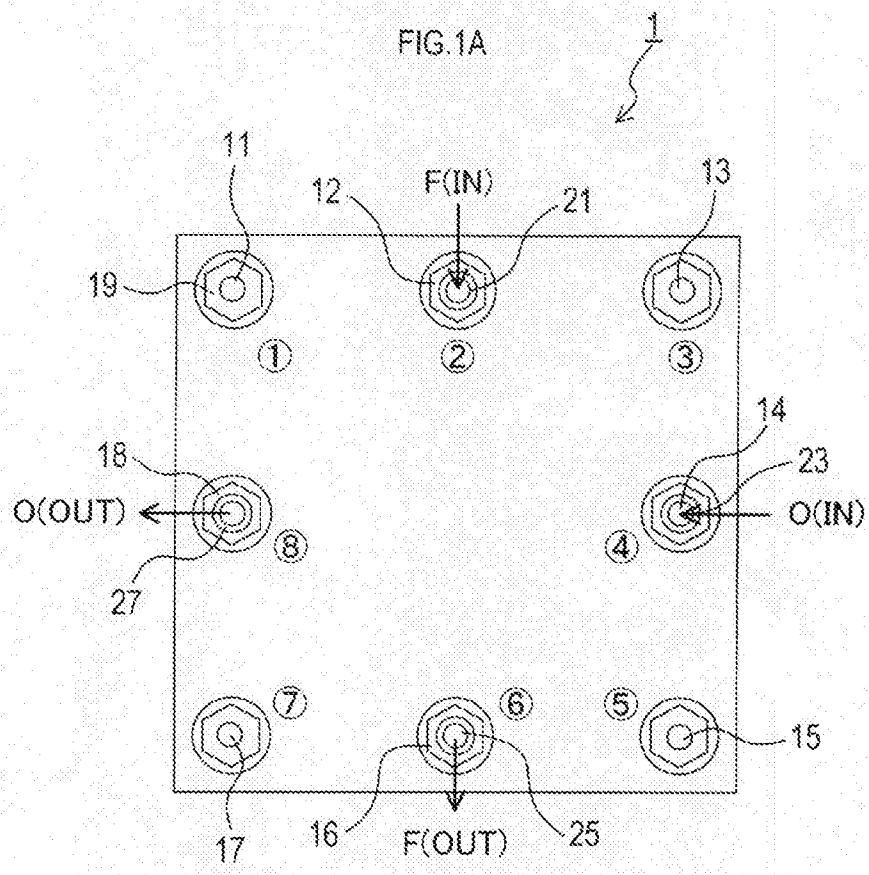
前記燃料電池を構成する部材によって前記積層方向において挟まれるとともに、前記積層方向に沿って設けられた前記燃料マニホールド及び前記酸化剤マニホールドの少なくとも一方の周囲を囲むように、前記コンプレッションシール材と前記ガラスシール材となるガラス材料とを同一平面上に配置する第1工程と、

前記第1工程の後に、前記燃料電池の積層方向より圧力を加えて、前記コンプレッションシール材を押圧する第2工程と、

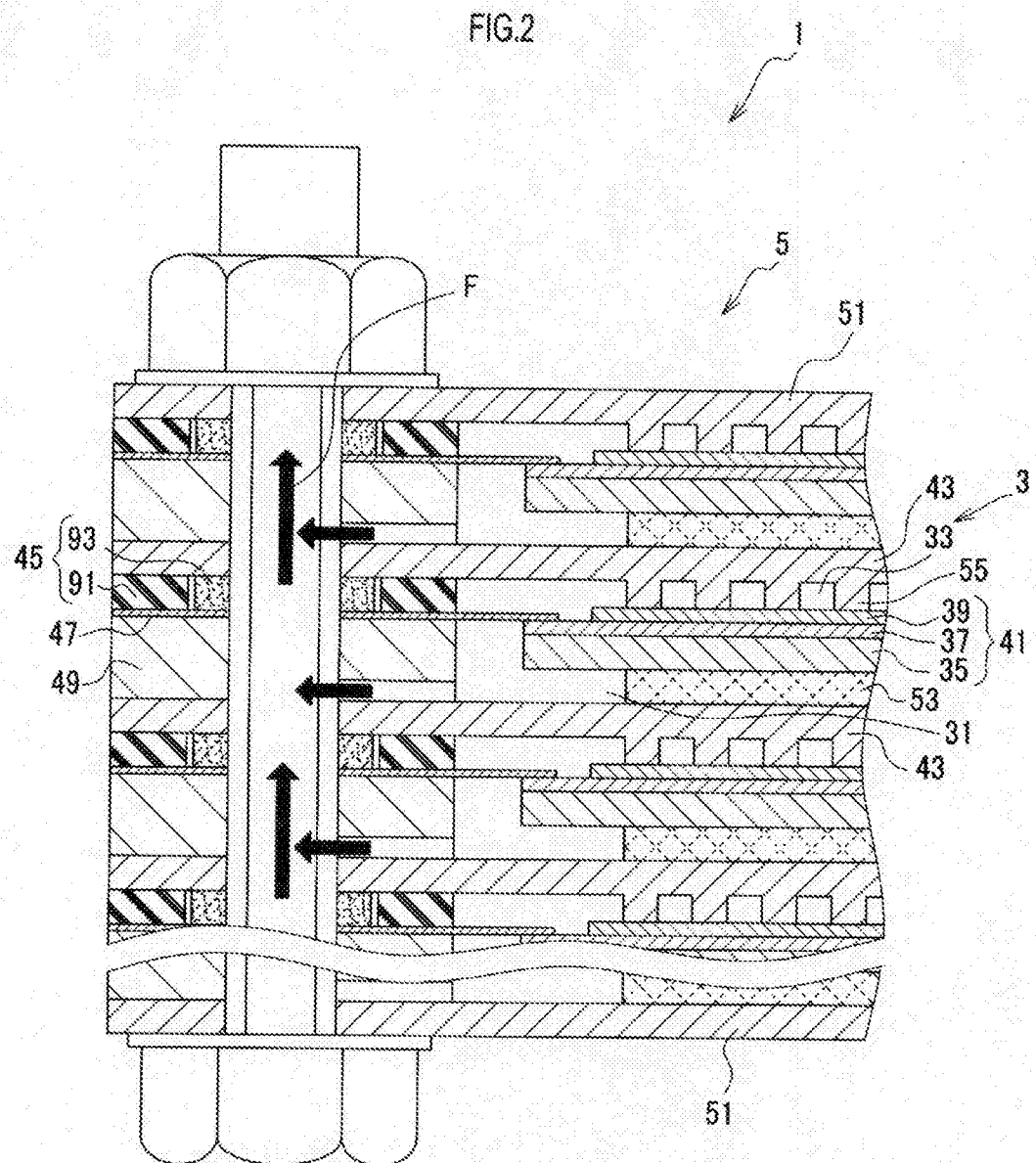
前記第2工程の後に、前記ガラス材料が軟化する温度以上で加熱し、その後冷却することによって、前記ガラスシール材を形成するとともに、該ガラスシール材を、前記燃料電池を構成する部材に接合する第3工程と、

を有することを特徴とする燃料電池の製造方法。

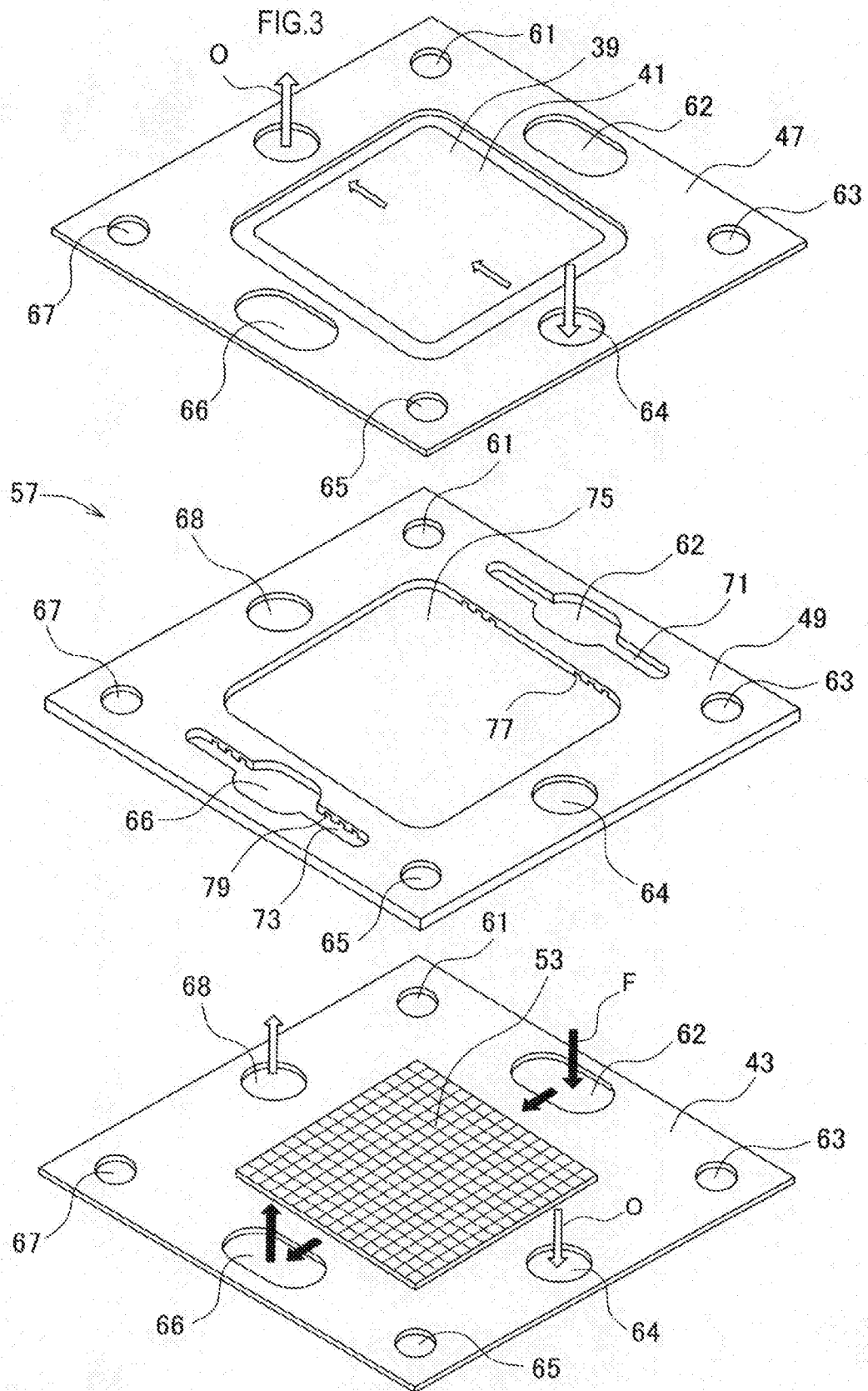
[図1A-1B]



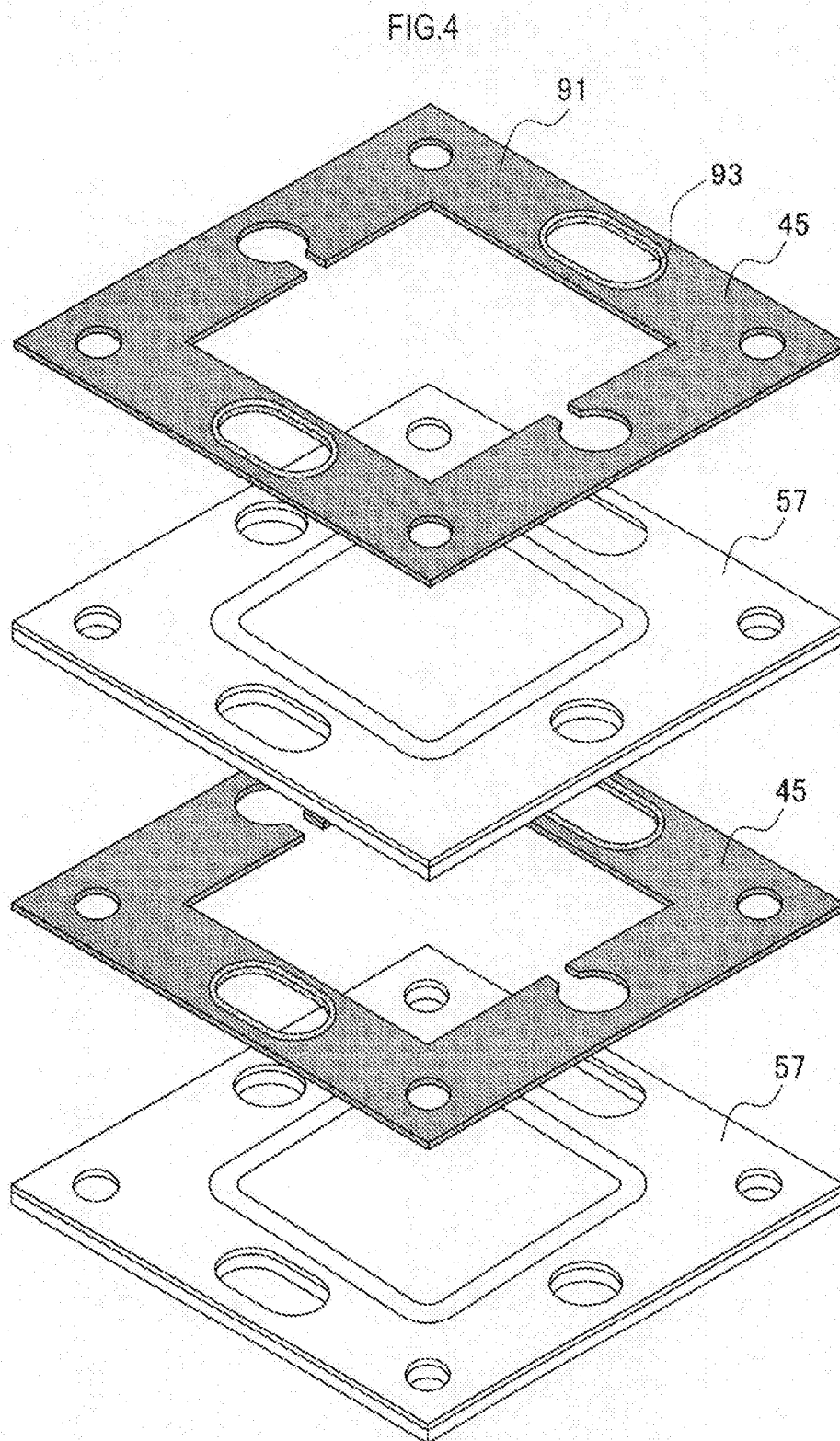
[図2]



[図3]

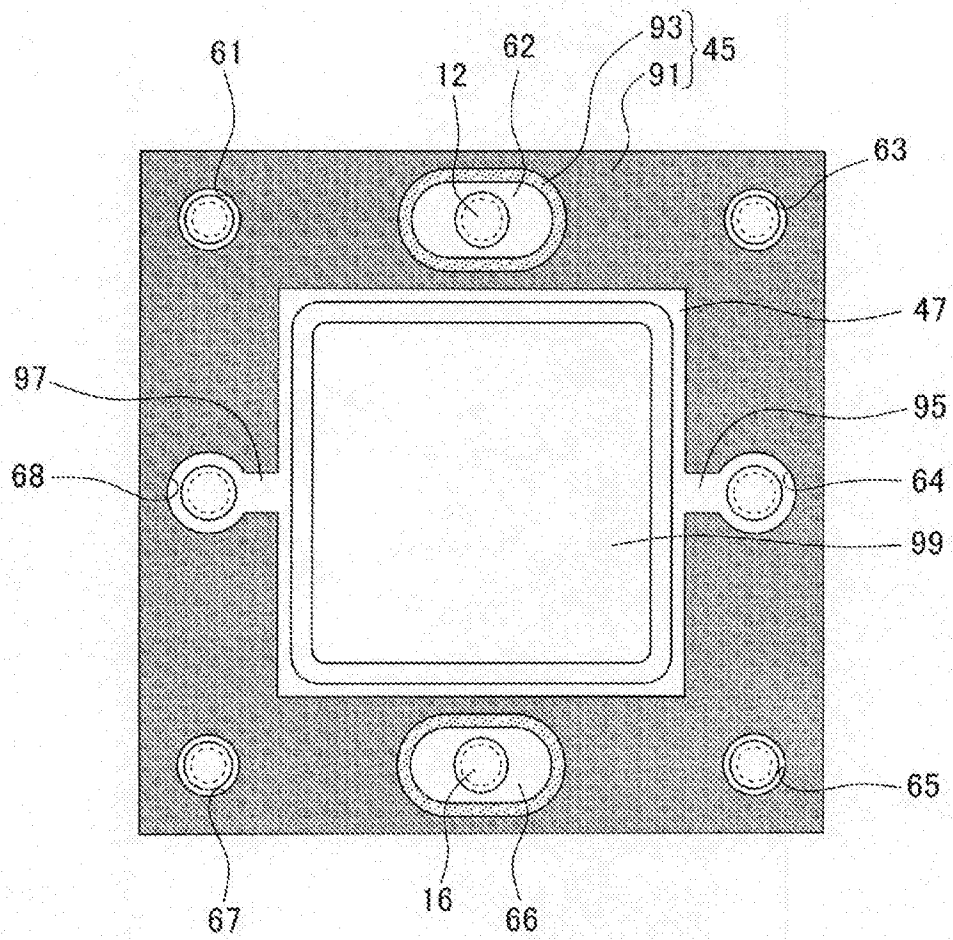


[図4]



[図5]

FIG.5



[図6A-6B]

FIG.6B

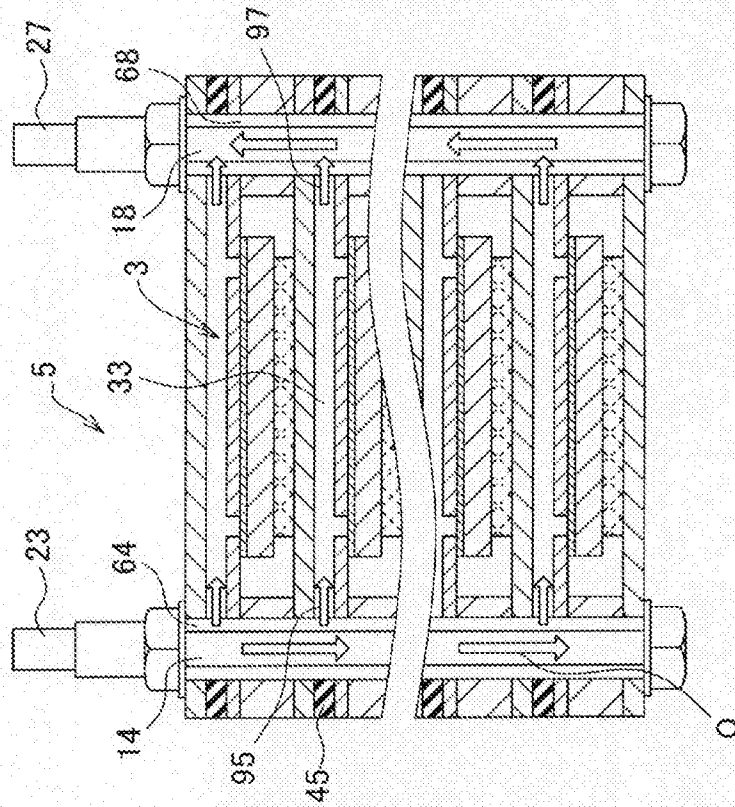
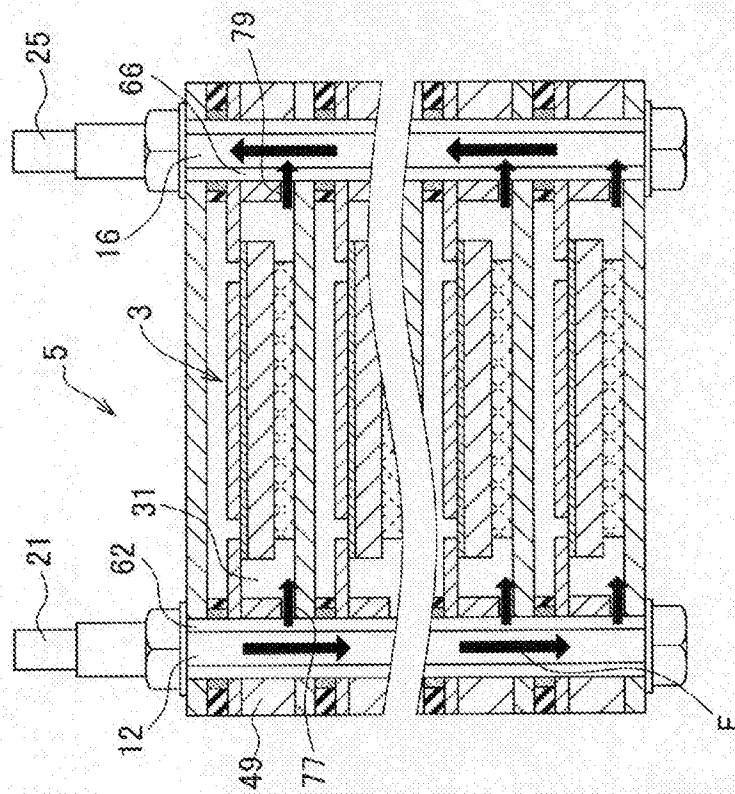


FIG.6A



[図7A-7C]

FIG.7A

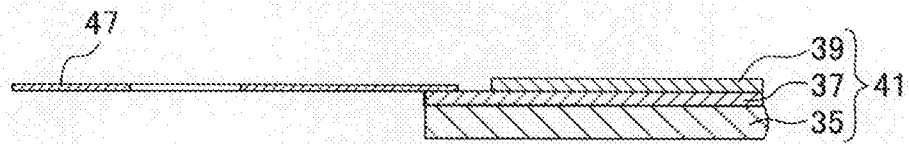


FIG.7B

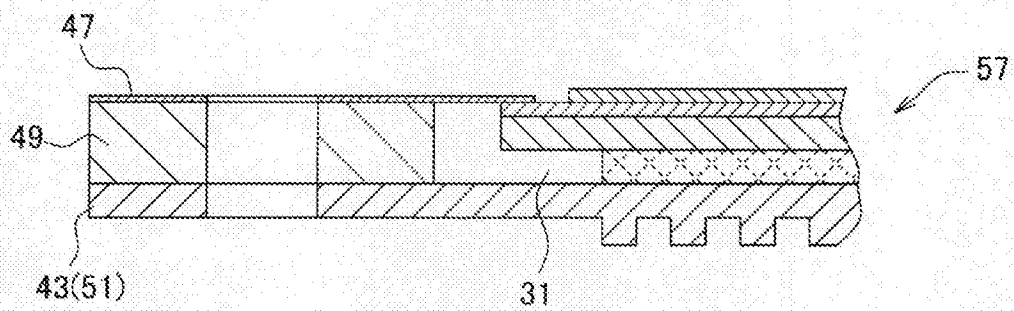
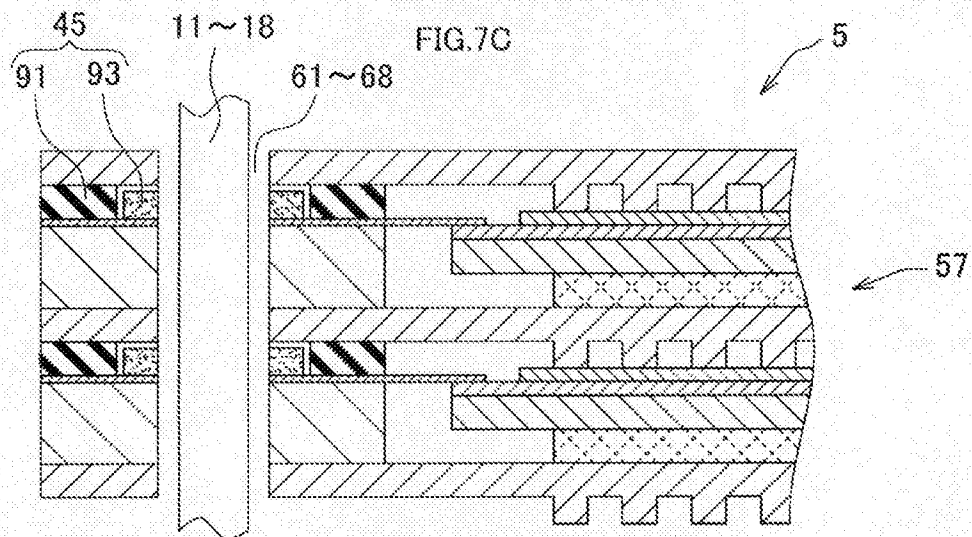


FIG.7C



[図8A-8C]

FIG.8A

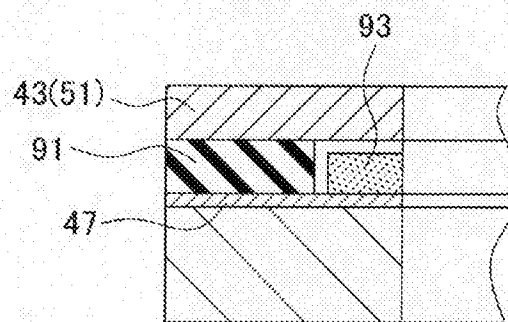


FIG.8B

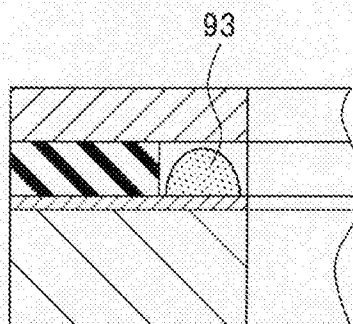
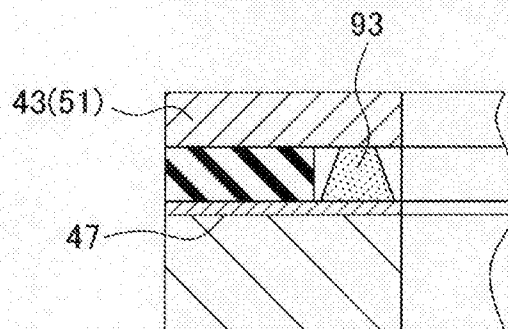
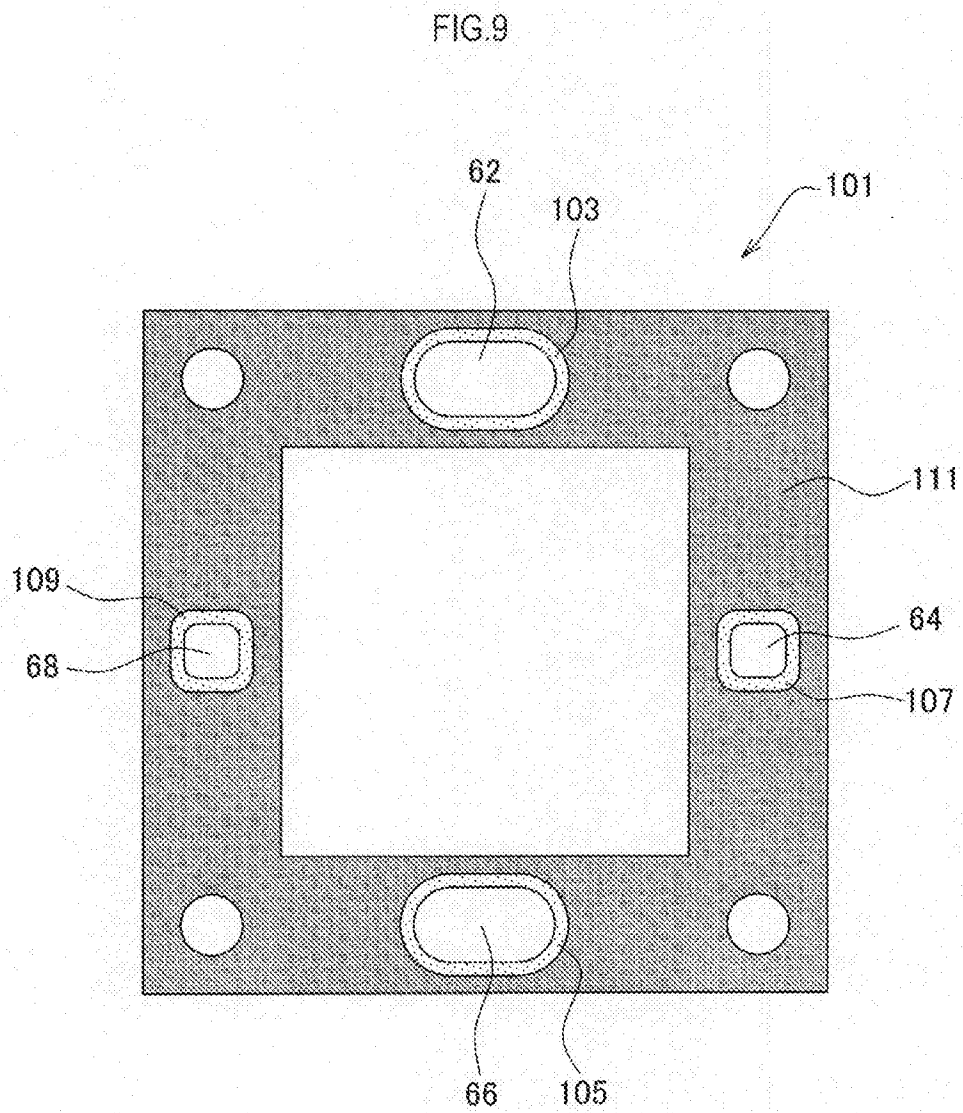


FIG.8C

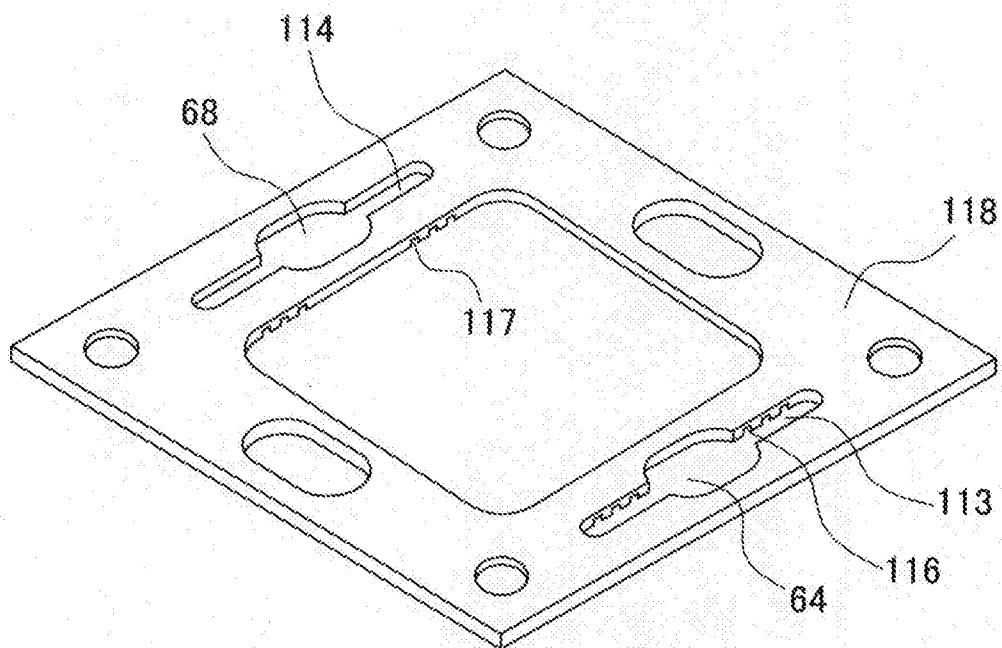


[図9]



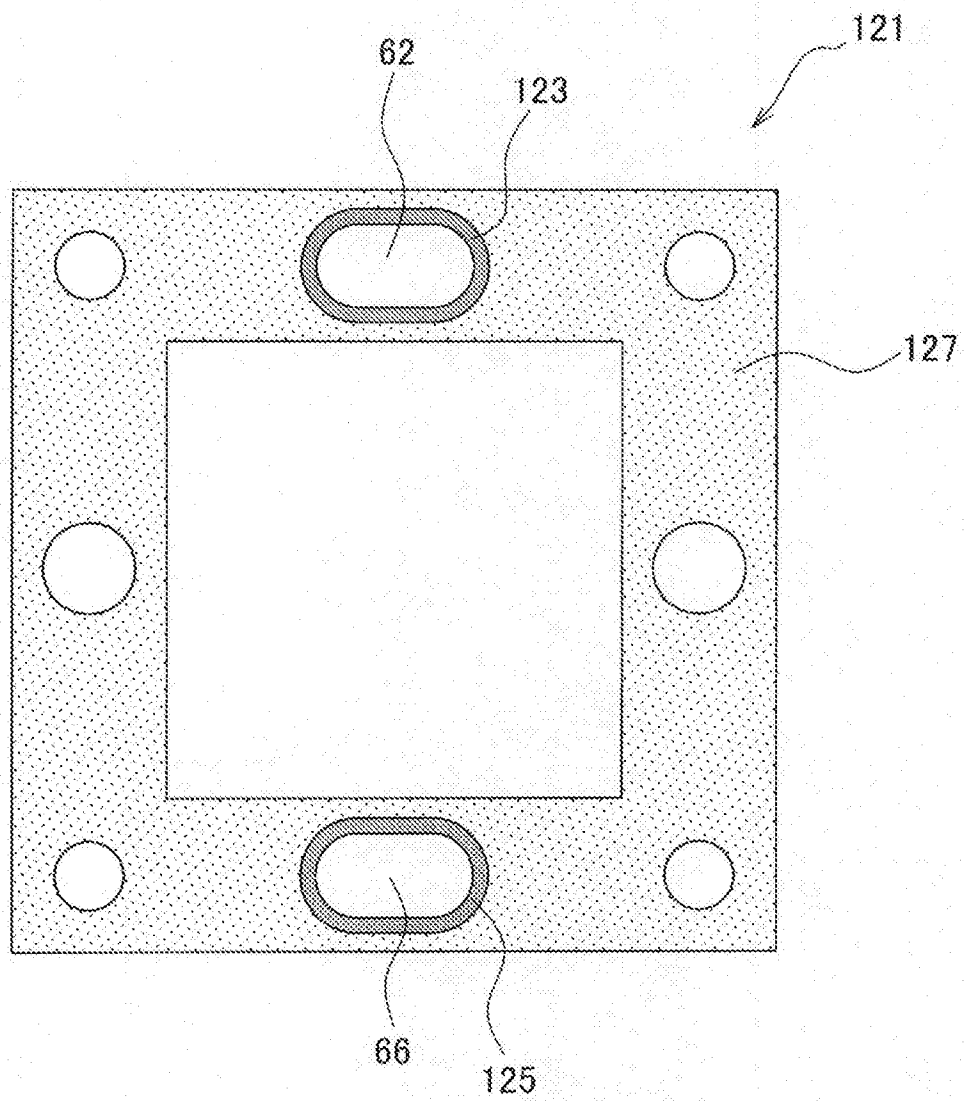
[図10]

FIG.10



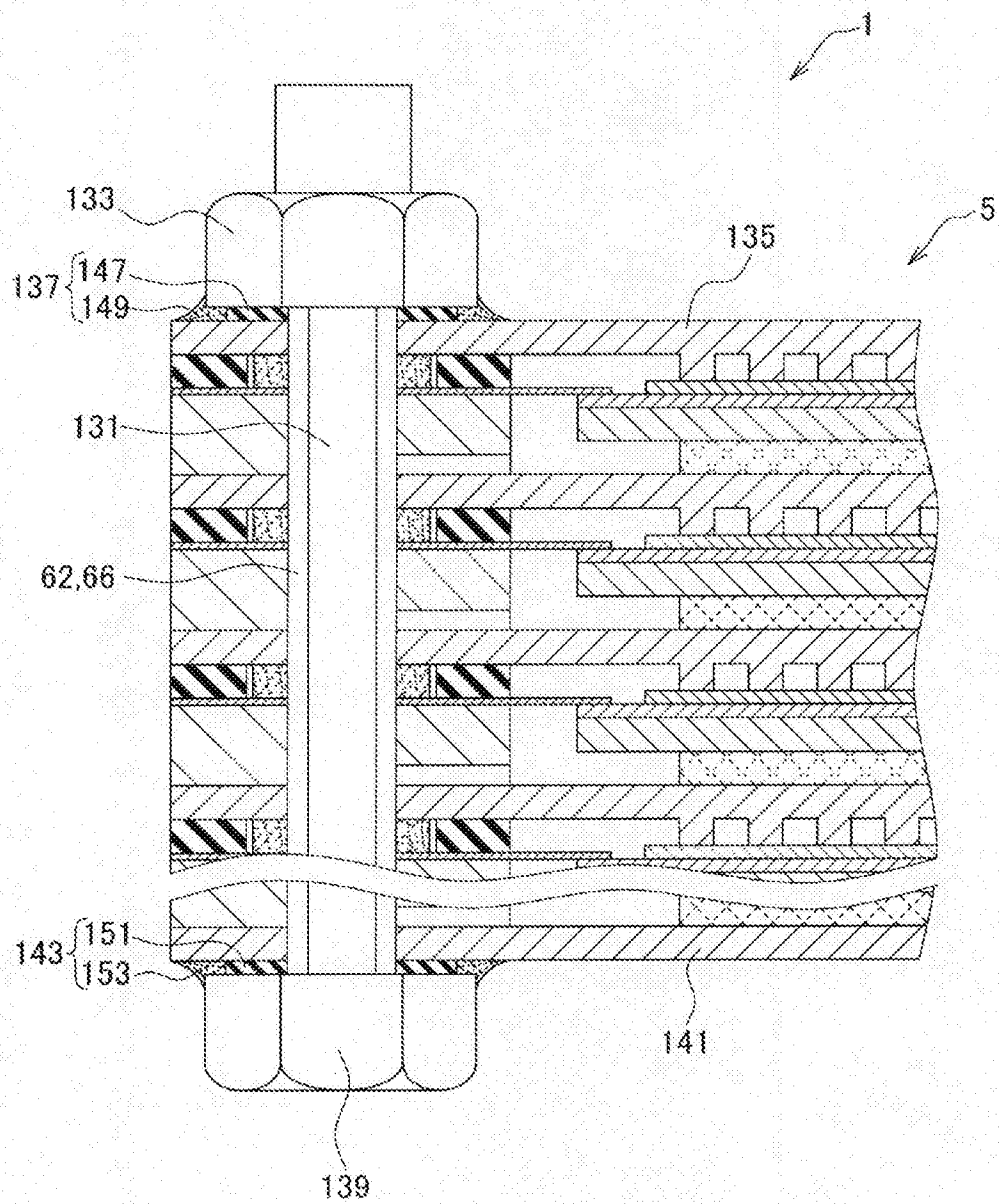
[図11]

FIG.11



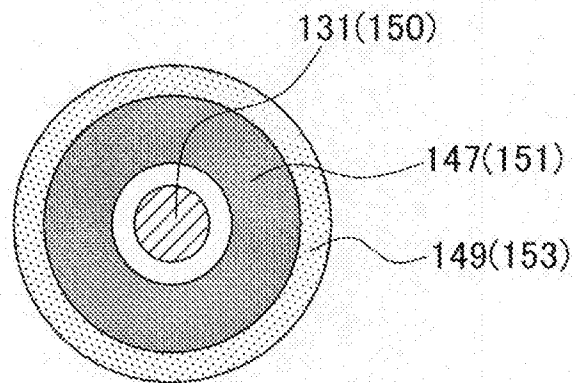
[図12]

FIG. 12



[図14]

FIG.14



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/067219

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M8/24(2006.01)i, H01M8/02(2006.01)i, H01M8/12(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M8/24, H01M8/02, H01M8/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2013-51128 A (Aisin Seiki Co., Ltd.), 14 March 2013 (14.03.2013), paragraphs [0015] to [0036]; fig. 1 to 3, 8, 9 (B) (Family: none)	1, 2, 4-7 3
Y	JP 2012-119164 A (Honda Motor Co., Ltd.), 21 June 2012 (21.06.2012), paragraphs [0036] to [0055]; fig. 3 & US 2013/0177829 A1 & EP 2647076 A & WO 2012/073640 A1	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 August, 2014 (19.08.14)

Date of mailing of the international search report
02 September, 2014 (02.09.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/067219

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2012-7727 A (NGK Spark Plug Co., Ltd., Tokyo Gas Co., Ltd.), 12 January 2012 (12.01.2012), paragraphs [0001], [0010] to [0015], [0131] to [0138]; fig. 14 (Family: none)	1-7
A	JP 2006-49195 A (Nissan Motor Co., Ltd.), 16 February 2006 (16.02.2006), paragraphs [0007] to [0015], [0021] to [0024]; fig. 1 (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01M8/24(2006.01)i, H01M8/02(2006.01)i, H01M8/12(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01M8/24, H01M8/02, H01M8/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 2013-51128 A（アイシン精機株式会社） 2013.03.14, 段落【0015】－【0036】、図1－3、8、9（B） （ファミリーなし）	1, 2, 4-7 3
Y	JP 2012-119164 A（本田技研工業株式会社） 2012.06.21, 段落【0036】－【0055】、図3 & US 2013/0177829 A1 & EP 2647076 A & WO 2012/073640 A1	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 9 . 0 8 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

0 2 . 0 9 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

佐藤 知絵

4 X

4 4 9 2

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2012-7727 A (日本特殊陶業株式会社、東京瓦斯株式会社) 2012.01.12, 段落【0001】、【0010】－【0015】、 【0131】－【0138】、図14 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2006-49195 A (日産自動車株式会社) 2006.02.16, 段落【0007】－【0015】、【0021】－ 【0024】、図1 (ファミリーなし)	1-7