

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6440178号  
(P6440178)

(45) 発行日 平成30年12月19日(2018.12.19)

(24) 登録日 平成30年11月30日(2018.11.30)

(51) Int. Cl.	F I	
HO 1 M 8/02 (2016.01)	HO 1 M 8/02	
HO 1 M 8/0247 (2016.01)	HO 1 M 8/0247	
HO 1 M 8/0276 (2016.01)	HO 1 M 8/0276	
HO 1 M 8/1213 (2016.01)	HO 1 M 8/1213	
HO 1 M 4/86 (2006.01)	HO 1 M 4/86	U
請求項の数 8 (全 13 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2017-536333 (P2017-536333)	(73) 特許権者	500239823
(86) (22) 出願日	平成28年7月27日(2016.7.27)		エルジー・ケム・リミテッド
(65) 公表番号	特表2018-511140 (P2018-511140A)		大韓民国 07336 ソウル, ヨンドウ ンポーグ, ヨイーデロ 128
(43) 公表日	平成30年4月19日(2018.4.19)	(74) 代理人	110000877
(86) 国際出願番号	PCT/KR2016/008217		龍華国際特許業務法人
(87) 国際公開番号	W02017/034163	(72) 発明者	ホ、ヨンヒュク
(87) 国際公開日	平成29年3月2日(2017.3.2)		大韓民国・ソウル・ヨンドウ ンポーグ・ヨイーデロ・128 エルジー・ケム・リミ テッド内
審査請求日	平成29年8月23日(2017.8.23)	(72) 発明者	チョイ、クアンウク
(31) 優先権主張番号	10-2015-0121179		大韓民国・ソウル・ヨンドウ ンポーグ・ヨイーデロ・128 エルジー・ケム・リミ テッド内
(32) 優先日	平成27年8月27日(2015.8.27)		
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)		
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】 平板型固体酸化物燃料電池およびこれを含む電池モジュール

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

多孔性セラミック支持体と、  
前記多孔性セラミック支持体上に備えられた燃料極と、  
前記燃料極上に備えられた電解質層と、  
前記電解質層上に備えられた空気極と、  
前記燃料極に連結され、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられる燃料極集電体とを含む平板型固体酸化物燃料電池であって、

前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられた燃料極の一部上に備えられた金属メッシュ層と、

前記金属メッシュ層に連結され、多孔性セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた延長線とを含むものである、

平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項2】

前記燃料極の周縁部のうちの少なくとも一部は、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられ、

前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前

記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられた燃料極の一部と燃料極集電体とが連結されるものである、

請求項 1 に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 3】

前記空気極に連結され、前記空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた空気極集電体をさらに含む、

請求項 1 または 2 に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 4】

前記多孔性セラミック支持体は、Mg、Ca、Y、Al、およびZrのうちの少なくとも1つの酸化物を含むものである、

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 5】

前記多孔性セラミック支持体は、MgO、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、CaO、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、およびZr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のうちの少なくとも1つの酸化物を含むものである、

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 6】

前記多孔性セラミック支持体の厚さは、200 μm以上5mm以下である、

請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 7】

前記燃料極集電体は、ニッケルまたは銅を含むものである、

請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の平板型固体酸化物燃料電池。

【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の平板型固体酸化物燃料電池を単位電池として含む電池モジュール。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、2015年8月27日付で韓国特許庁に提出された韓国特許出願第10-2015-0121179号の出願日の利益を主張し、その内容のすべては本明細書に組み込まれる。

【0002】

本明細書は、平板型固体酸化物燃料電池に関する。具体的には、本明細書は、燃料極、電解質層、および空気極が順次に備えられた平板型固体酸化物燃料電池に関する。

【背景技術】

【0003】

最近、石油や石炭のような既存のエネルギー資源の枯渇が予測されるにつれ、これらを代替できるエネルギーへの関心が高まっている。このような代替エネルギーの一つとして、燃料電池は高効率であり、NO<sub>x</sub>およびSO<sub>x</sub>などの公害物質を排出せず、使用される燃料が豊富であるなどの利点によって特に注目されている。

【0004】

燃料電池は、燃料と酸化剤の化学反応エネルギーを電気エネルギーに変換させる発電システムであって、燃料としては水素とメタノール、ブタンなどのような炭化水素が、酸化剤としては酸素が代表的に使用される。

【0005】

燃料電池には、高分子電解質型燃料電池(PEMFC)、直接メタノール型燃料電池(DMFC)、リン酸型燃料電池(PAFC)、アルカリ型燃料電池(AFC)、熔融炭酸塩型燃料電池(MCFC)、固体酸化物形燃料電池(SOFC)などがある。

【0006】

図1は、固体酸化物形燃料電池の電気発生原理を概略的に示すもので、固体酸化物形燃料電池は、電解質層(Electrolyte)と、該電解質層の両面に形成される燃料

10

20

30

40

50

極 (Anode) および空気極 (Cathode) とから構成される。固体酸化物形燃料電池の電気発生原理を示す図 1 を参照すれば、空気極で空気が電気化学的に還元されながら酸素イオンが生成され、生成された酸素イオンは電解質層を介して燃料極に伝達される。燃料極では水素、メタノール、ブタンなどのような燃料が注入され、燃料が酸素イオンと結合して電気化学的に酸化されながら電子を出し水を生成する。この反応によって外部回路に電子の移動が発生する。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本明細書は、平板型固体酸化物燃料電池を提供する。具体的には、本明細書は、燃料極、電解質層、および空気極が順次に備えられた平板型固体酸化物燃料電池を提供する。

10

【課題を解決するための手段】

【0008】

本明細書は、多孔性セラミック支持体と、前記多孔性セラミック支持体上に備えられた燃料極と、前記燃料極上に備えられた電解質層と、前記電解質層上に備えられた空気極と、前記燃料極に連結され、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられる燃料極集電体とを含む平板型固体酸化物燃料電池を提供する。

【0009】

また、本明細書は、平板型固体酸化物燃料電池を単位電池として含む電池モジュールを提供する。

20

【発明の効果】

【0010】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する固体酸化物燃料電池は、安定したガスの密封が可能であるという利点がある。

【0011】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、高い開回路電位を有することができる。

【0012】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、電池効率が增加する。

30

【0013】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、長期安定性が高い。

【0014】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、燃料極集電体のために安価な材料を使用可能で、費用が低減できる。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図 1】固体酸化物燃料電池 (SOFC) の電気発生原理を示す概略図である。

40

【図 2】比較例の燃料極集電体の位置の構造図である。

【図 3】実施例の燃料極集電体の位置の構造図である。

【図 4】比較例のコインセルを空気極側から撮影したイメージである。

【図 5】実施例のコインセルを空気極側 (下) および燃料極側 (上) から撮影したイメージである。

【図 6】実施例および比較例の温度による開回路電位を示すグラフである。

【図 7】実施例および比較例の I - V - P 曲線を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下、本明細書について詳細に説明する。

50

## 【0017】

本明細書は、多孔性セラミック支持体、燃料極、電解質層、および空気極が順次に備えられた平板型固体酸化物燃料電池を提供する。

## 【0018】

前記多孔性セラミック支持体は、他の層に比べて相対的に厚さが厚く、平板型固体酸化物燃料電池の他の層を支持する層をいう。

## 【0019】

前記多孔性セラミック支持体は、燃料極側に備えられるため、燃料極に燃料が注入できるように多孔性であることが好ましい。

## 【0020】

前記多孔性セラミック支持体の空隙率は、20%以上60%以下であってもよい。具体的には、前記多孔性セラミック支持体の気孔率は、30%以上50%以下であってもよい。

10

## 【0021】

前記多孔性セラミック支持体の気孔の直径は、0.1 μm以上10 μm以下であってもよい。具体的には、前記多孔性セラミック支持体の気孔の直径は、0.5 μm以上5 μm以下であってもよい。より具体的には、前記多孔性セラミック支持体の直径は、0.5 μm以上2 μm以下であってもよい。

## 【0022】

前記多孔性セラミック支持体は、酸素イオン伝導度および電気伝導度がないか、酸素イオン伝導度および電気伝導度があるとしても燃料極として要求される酸素イオン伝導度および電気伝導度に及ばず燃料極として機能を果たせないセラミックで作られたものや、その材料が安価なものであってもよい。

20

## 【0023】

前記多孔性セラミック支持体は、Mg、Ca、Y、Al、およびZrのうちの少なくとも1つの酸化物を含むことができる。前記多孔性セラミック支持体は、MgO、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、CaO、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、およびZr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のうちの少なくとも1つの酸化物を含むことができる。

## 【0024】

前記多孔性セラミック支持体の厚さは、200 μm以上5 mm以下であってもよい。この場合、電池駆動の際に反応物と生成物を円滑に移動させることができ、要求される機械的強度が維持されるという利点がある。

30

## 【0025】

具体的には、前記多孔性セラミック支持体の厚さは、500 μm以上2 mm以下であってもよい。

## 【0026】

前記多孔性セラミック支持体の製造方法は特に限定はないが、前記多孔性セラミック支持体用スラリーを基材上にコーティングして、これを乾燥後に焼結することができる。具体的には、前記多孔性セラミック支持体用スラリーを基材上にコーティングした後、乾燥して多孔性セラミック支持体用グリーンシートを製造し、前記グリーンシートを移動後にラミネートして個別焼成するか、他の層のグリーンシートと共に同時焼成することができる。

40

## 【0027】

前記多孔性セラミック支持体用グリーンシートの厚さは、400 μm以上1500 μm以下であってもよい。

## 【0028】

前記平板型固体酸化物燃料電池は、前記燃料極に連結され、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられる燃料極集電体をさらに含む。

## 【0029】

50

前記多孔性セラミック支持体と電解質層との間に備えられた燃料極は、燃料極集電体に連結される。具体的には、前記多孔性セラミック支持体と電解質層との間に備えられた燃料極は、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられる燃料極集電体に連結される。

【0030】

前記多孔性セラミック支持体と電解質層との間に備えられた燃料極の周縁部のうちの少なくとも一部は、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられ、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられた燃料極の一部と燃料極集電体とが連結される。

10

【0031】

前記燃料極集電体は、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられた燃料極の一部上に備えられた金属メッシュ層と、前記金属メッシュ層に連結され、多孔性セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた延長線とを含むことができる。

【0032】

前記燃料極集電体は、前記多孔性セラミック支持体を基準として前記空気極の備えられた方向と反対方向の前記多孔性セラミック支持体の面まで延びて備えられた燃料極の一部上に備えられ、互いに離隔した2以上の金属メッシュ層と、前記2以上の金属メッシュ層とそれぞれ連結され、多孔性セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた2以上の延長線とを含むことができる。

20

【0033】

前記燃料極の2以上の延長線が備えられる方向は、燃料極の燃料が供給される方向であってもよいし、つまり、前記燃料極の2以上の延長線が備えられる方向は、燃料極の2以上の延長線が燃料には露出するものの、空気極に供給される空気に露出しない方向を意味する。

【0034】

前記燃料極の2以上の延長線が備えられる方向は、多孔性セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びる。この時、前記燃料極の2以上の延長線が備えられる方向は、前記多孔性セラミック支持体の電解質層の備えられた面の反対面に対して $0^\circ$ の角度を有する方向を含むことができる。具体的には、前記燃料極の2以上の延長線が備えられる方向は、前記多孔性セラミック支持体の電解質層の備えられた面の反対面に平行な方向、または多孔性セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に垂直な方向、または鋭角をなす方向であってもよい。

30

【0035】

前記燃料極は、固体酸化物燃料電池用燃料極に適用できるように、酸素イオン伝導性を有する第1無機物を含むことができ、前記第1無機物の種類は特に限定はないが、前記第1無機物は、イットリア(yttria)安定化酸化ジルコニウム(zirconia) ( $YSZ: (Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.05 \sim 0.15$ )、スカンジウム安定化酸化ジルコニウム( $ScSZ: (Sc_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.05 \sim 0.15$ )、サマリウムドープセリア(ceria) ( $SDC: (Sm_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ガドリニウムドープセリア(ceria) ( $GDC: (Gd_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ランタンストロンチウムマンガン酸化物(Lanthanum strontium manganese oxide: LSM)、ランタンストロンチウムコバルトフェライト(Lanthanum strontium cobalt ferrite: LSCF)、ランタンストロンチウムニッケルフェライト(Lanthanum strontium nickel ferrite: LSNF)、ランタンカルシウムニッケルフェライト(Lanthanum calcium nickel ferrite: LCNF)、ランタ

40

50

ンストロンチウム銅酸化物 (Lanthanum strontium copper oxide: LSC)、ガドリニウムストロンチウムコバルト酸化物 (Gadolinium strontium cobalt oxide: GSC)、ランタンストロンチウムフェライト (Lanthanum strontium ferrite: LSF)、サマリウムストロンチウムコバルト酸化物 (Samarium strontium cobalt oxide: SSC) およびバリウムストロンチウムコバルトフェライト (Barium Strontium cobalt ferrite: BSCF)、並びにランタンストロンチウムガリウムマグネシウム酸化物 (Lanthanum strontium gallium magnesium oxide: LSGM) のうちの少なくとも1つを含むことができる。

10

## 【0036】

前記燃料極集電体は、ニッケル、銅、白金、銀、およびパラジウムのうちの少なくとも1つを含むことができる。具体的には、前記燃料極集電体は、ニッケルまたは銅を含むことができる。

## 【0037】

前記燃料極の厚さは、10 μm以上100 μm以下であってもよい。具体的には、前記燃料極の厚さは、20 μm以上50 μm以下であってもよい。

## 【0038】

前記燃料極の気孔率は、10%以上50%以下であってもよい。具体的には、前記燃料極の気孔率は、10%以上30%以下であってもよい。

20

## 【0039】

前記燃料極の気孔の直径は、0.1 μm以上10 μm以下であってもよい。具体的には、前記燃料極の気孔の直径は、0.5 μm以上5 μm以下であってもよい。より具体的には、前記燃料極の直径は、0.5 μm以上2 μm以下であってもよい。

## 【0040】

前記燃料極の製造方法は特に限定はないが、例えば、硬化された多孔性セラミック支持体上に燃料極用スラリーをコーティングして、これを乾燥および硬化するか、燃料極スラリーを別の離型紙上にコーティングし、乾燥して燃料極用グリーンシートを製造し、製造された燃料極用グリーンシートを、硬化された多孔性セラミック支持体上にラミネートした後、これを硬化して燃料極を製造することができる。

30

## 【0041】

前記燃料極用グリーンシートの厚さは、10 μm以上100 μm以下であってもよい。

## 【0042】

前記燃料極用スラリーは、酸素イオン伝導性を有する第1無機物粒子を含み、必要に応じて、前記燃料極用スラリーは、バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒をさらに含んでもよく、前記バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒は特に限定はなく、当該技術分野で知られている通常の使用材料を使用することができる。

## 【0043】

前記燃料極用スラリーは、NiOをさらに含んでもよい。

## 【0044】

本明細書において、前記グリーンシートは、完全な最終製品でない、次の段階で加工が可能な状態のフィルム形態の膜を意味する。つまり、前記グリーンシートは、無機物粒子および溶媒を含むコーティング組成物で塗布してシート状に乾燥させたものであり、前記グリーンシートは、若干の溶媒を含みつつシート形態を維持可能な半乾燥状態のシートをいう。

40

## 【0045】

前記電解質層は、酸素イオン伝導性を有する第2無機物を含むことができ、前記第2無機物の種類は特に限定はないが、前記第2無機物は、イットリア (yttria) 安定化酸化ジルコニウム (zirconia) (YSZ:  $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ 、 $x = 0.05 \sim 0.15$ )、スカンジウム安定化酸化ジルコニウム (ScSZ:  $(Sc_2O$

50

$3) x (ZrO_2)_{1-x}$ 、 $x = 0.05 \sim 0.15$ )、サマリウムドープセリア (ceria) (SDC:  $(Sm_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ 、 $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ガドリニウムドープセリア (ceria) (GDC:  $(Gd_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ 、 $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ランタンストロンチウムマンガン酸化物 (Lanthanum strontium manganese oxide: LSM)、ランタンストロンチウムコバルトフェライト (Lanthanum strontium cobalt ferrite: LSCF)、ランタンストロンチウムニッケルフェライト (Lanthanum strontium nickel ferrite: LSNF)、ランタンカルシウムニッケルフェライト (Lanthanum calcium nickel ferrite: LCNF)、ランタンストロンチウム銅酸化物 (Lanthanum strontium copper oxide: LSC)、ガドリニウムストロンチウムコバルト酸化物 (Gadolinium strontium cobalt oxide: GSC)、ランタンストロンチウムフェライト (Lanthanum strontium ferrite: LSF)、サマリウムストロンチウムコバルト酸化物 (Samarium strontium cobalt oxide: SSC) およびバリウムストロンチウムコバルトフェライト (Barium Strontium cobalt ferrite: BSCF)、並びにランタンストロンチウムガリウムマグネシウム酸化物 (Lanthanum strontium gallium magnesium oxide: LSGM) のうちの少なくとも1つを含むことができる。

10

## 【0046】

前記電解質層の第2無機物は、燃料極の第1無機物と同一であってもよい。

20

## 【0047】

前記電解質層の厚さは、 $3 \mu m$ 以上 $30 \mu m$ 以下であってもよい。具体的には、前記電解質層の厚さは、 $3 \mu m$ 以上 $10 \mu m$ 以下であってもよい。

## 【0048】

前記電解質層の製造方法は特に限定はないが、例えば、焼結された燃料極または燃料極用グリーンシート上に燃料極用スラリーをコーティングして、これを乾燥および硬化するか、電解質層用スラリーを別の離型紙上にコーティングし、乾燥して電解質層用グリーンシートを製造し、製造された電解質層用グリーンシートを、焼結された燃料極または燃料極用グリーンシート上にラミネートした後、これを硬化して電解質層を製造することができる。

30

## 【0049】

前記電解質層用グリーンシートの厚さは、 $5 \mu m$ 以上 $30 \mu m$ 以下であってもよい。

## 【0050】

前記電解質層用スラリーは、酸素イオン伝導性を有する第2無機物粒子を含み、必要に応じて、前記電解質層用スラリーは、バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒をさらに含んでもよく、前記バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒は特に限定はなく、当該技術分野で知られている通常の使用することができる。

## 【0051】

前記平板型固体酸化物燃料電池は、電解質層上に備えられた空気極と、前記空気極に連結され、前記空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた空気極集電体とを含むことができる。

40

## 【0052】

前記空気極集電体は、前記空気極の少なくとも一部上に備えられた金属メッシュ層と、前記金属メッシュ層に連結され、前記空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた延長線とを含むことができる。

## 【0053】

前記空気極集電体は、前記空気極の少なくとも一部上に備えられ、互いに離隔した2以上の金属メッシュ層と、前記2以上の金属メッシュ層とそれぞれ連結され、前記空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に延びて備えられた2以上の延長線とを

50

含むことができる。

【0054】

前記空気極の2以上の延長線が備えられる方向は、空気極の空気が供給される方向であってもよいし、つまり、前記空気極の2以上の延長線が備えられる方向は、空気極の2以上の延長線が空気には露出するものの、燃料極に供給される燃料に露出しない方向を意味する。

【0055】

前記空気極の2以上の延長線が備えられる方向は、空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に延びる。この時、前記空気極の2以上の延長線が備えられる方向は、前記空気極の電解質層の備えられた面の反対面に対して $0^\circ$ の角度を有する方向を含むことができる。具体的には、前記空気極の2以上の延長線が備えられる方向は、前記空気極の電解質層の備えられた面の反対面に平行な方向、または空気極を基準として電解質層の備えられた方向と反対方向に垂直な方向、または鋭角をなす方向であってもよい。

10

【0056】

前記空気極は、固体酸化燃料電池用空気極に適用できるように、酸素イオン伝導性を有する第3無機物を含むことができ、前記第3無機物の種類は特に限定はないが、前記第3無機物は、イットリア(yttria)安定化酸化ジルコニウム(zirconia) ( $YSZ : (Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.05 \sim 0.15$ )、スカンジウム安定化酸化ジルコニウム( $ScSZ : (Sc_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.05 \sim 0.15$ )、サマリウムドープセリア(ceria) ( $SDC : (Sm_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ガドリニウムドープセリア(ceria) ( $GDC : (Gd_2O_3)_x (CeO_2)_{1-x}$ ,  $x = 0.02 \sim 0.4$ )、ランタンストロンチウムマンガン酸化物(Lanthanum strontium manganese oxide: LSM)、ランタンストロンチウムコバルトフェライト(Lanthanum strontium cobalt ferrite: LSCF)、ランタンストロンチウムニッケルフェライト(Lanthanum strontium nickel ferrite: LSNF)、ランタンカルシウムニッケルフェライト(Lanthanum calcium nickel ferrite: LCNF)、ランタンストロンチウム銅酸化物(Lanthanum strontium copper oxide: LSC)、ガドリニウムストロンチウムコバルト酸化物(Gadolinium strontium cobalt oxide: GSC)、ランタンストロンチウムフェライト(Lanthanum strontium ferrite: LSF)、サマリウムストロンチウムコバルト酸化物(Samarium strontium cobalt oxide: SSC)およびバリウムストロンチウムコバルトフェライト(Barium strontium cobalt ferrite: BSCF)、並びにランタンストロンチウムガリウムマグネシウム酸化物(Lanthanum strontium gallium magnesium oxide: LSGM)のうち少なくとも1つを含むことができる。

20

30

【0057】

前記空気極集電体は、白金(Pt)、銀(Ag)、銀-パラジウム(Ag-Pd)、ランタンストロンチウムマンガナイト(lanthanum strontium manganite, LSM)、およびランタンストロンチウムマンガナイト-銀(LSM-Ag)のうち少なくとも1つを含むことができる。

40

【0058】

前記空気極の厚さは、 $10 \mu m$ 以上 $100 \mu m$ 以下であってもよい。具体的には、前記空気極の厚さは、 $20 \mu m$ 以上 $50 \mu m$ 以下であってもよい。

【0059】

前記空気極の気孔率は、 $10\%$ 以上 $50\%$ 以下であってもよい。具体的には、前記空気極の気孔率は、 $20\%$ 以上 $40\%$ 以下であってもよい。

【0060】

50

前記空気極の気孔の直径は、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $10\ \mu\text{m}$ 以下であってもよい。具体的には、前記空気極の気孔の直径は、 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上 $5\ \mu\text{m}$ 以下であってもよい。より具体的には、前記空気極の直径は、 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上 $2\ \mu\text{m}$ 以下であってもよい。

【0061】

前記空気極の製造方法は特に限定はないが、例えば、焼結された電解質層上に燃料極用スラリーをコーティングして、これを乾燥および硬化するか、空気極スラリーを別の離型紙上にコーティングして乾燥して空気極用グリーンシートを製造し、製造された空気極用グリーンシートを、焼結された電解質層上にラミネートした後、これを硬化して空気極を製造することができる。

【0062】

前記空気極用グリーンシートの厚さは、 $10\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下であってもよい。

【0063】

前記空気極用スラリーは、酸素イオン伝導性を有する第3無機物粒子を含み、必要に応じて、前記空気極用スラリーは、バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒をさらに含んでもよく、前記バインダー樹脂、可塑剤、分散剤、および溶媒は特に限定はなく、当該技術分野で知られている通常の使用することができる。

【0064】

多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、燃料極の外角に位置した多孔性セラミック支持体が酸素イオン伝導性および電気伝導性が低いので、多孔性セラミック支持体と電解質層との間に位置した燃料極と直接的に連結された集電体を介して燃料極に集電しなければならない。

【0065】

このためには、燃料極上に集電のための金属メッシュパターンを形成しなければならないが、燃料極と電解質層との接触すべき面に前記集電体の金属メッシュパターンを形成すると、相対的に燃料極と電解質層との接触面積が減少し、燃料極と電解質層との界面の接着が安定的でなく、安定したガスの密封が難しいという欠点がある。

【0066】

一方、電解質層を燃料極より小さく形成し、露出した燃料極上に金属メッシュパターンを形成することができるが、この場合、電池の構造が複雑になるという欠点がある。

【0067】

この場合、露出した燃料極上に形成された金属メッシュパターンに連結して外部に延びる方向が酸素を含む空気極の方向に設計されるため、前記燃料極集電体の材料は、酸化雰囲気中で安定した素材を使用しなければならない。この時、燃料極集電体の材料として使用される、酸化雰囲気中で安定した素材は、銀、金、白金など価格が高い貴金属系金属を使用することが一般的である。

【0068】

しかし、本明細書に係る多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、空気が供給される方向でない、燃料が供給される方向に燃料極を集電するため、相対的に安価なニッケル、銅などの材料を使用可能なため、費用が低減できる。

【0069】

本明細書に係る多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、電解質層と燃料極との間に集電構造がなく、平らな燃料極上に電解質層を形成可能で、安定したガスの密封が可能であるという利点がある。

【0070】

本明細書に係る多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、電解質層と燃料極との間に集電構造がなく、平らな燃料極上に電解質層を形成可能で、高い開路電位を有することができる。

【0071】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、電池効率が增加する。

10

20

30

40

50

## 【0072】

本明細書により製造された多孔性セラミック支持体を有する平板型固体酸化物燃料電池は、安定したガスの密封によって長期安定性が高い。

## 【0073】

本明細書は、前記平板型固体酸化物燃料電池を単位電池として含む電池モジュールを提供する。

## 【0074】

前記電池モジュールは、前記平板型固体酸化物燃料電池を含む単位電池と、前記単位電池の間に備えられたセパレータとを含むスタックと、燃料をスタックに供給する燃料供給部と、酸化剤をスタックに供給する酸化剤供給部とを含むことができる。

10

## 【0075】

前記電池モジュールは、具体的には、家庭用電気発電および暖房、地域発電用スタック、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、プラグ-インハイブリッド電気自動車、または電力貯蔵装置の電源として使用できる。

## 【実施例】

## 【0076】

以下、実施例を通じて本明細書をより詳細に説明する。しかし、以下の実施例は本明細書を例示するためのものに過ぎず、本明細書を限定するためのものではない。

## 【0077】

## [実施例]

$MgAl_2O_4$  (固形分総重量を基準として10wt.% carbon black) をパウダープレスで作製したセラミック支持体を1200 で2時間仮焼結した。

20

## 【0078】

仮焼結されたセラミック支持体をNiO-GDC (NiO:GDCの重量比=61:39) スラリーにディップコーティングして、仮焼結されたセラミック支持体の全体表面に燃料極(機能層)スラリーを塗布し、1200 で2時間仮焼結した。

## 【0079】

仮焼結された燃料極(機能層)をYSZスラリーにディップコーティングして、仮焼結された燃料極(機能層)の全体表面に電解質膜を塗布した後、仮焼結されたセラミック支持体、仮焼結された燃料極(機能層)、および電解質スラリーを1500 で3時間同時に完全焼結した。

30

## 【0080】

完全焼結された電解質層の一面にLSMペーストをハンドプリンティング(有効面積を除く部分をテープ-マスキング処理し、ガラスで押してコーティングする方法)して空気極を形成した後、1200 で2時間同時に完全焼結した。

## 【0081】

製造された単位セルを空気極側(下)および燃料極側(上)から撮影して図5に示した。

## 【0082】

図5の上の写真のように、燃料極は、セラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びて備えられ、燃料極集電体としてセラミック支持体を基準として空気極の備えられた方向と反対方向に延びた燃料極上に、白金メッシュと、前記白金メッシュに連結された白金線とを形成した。

40

## 【0083】

また、図5の下の写真のように、空気極集電体として、空気極上に、白金メッシュと、前記白金メッシュに連結された白金線とを形成した。

## 【0084】

前記空気極集電体および燃料極集電体を1000 で2時間焼結した。

## 【0085】

アレムコ社のセラミック密封材である571密封材を設け、これを約100 で2時間

50

以上キュアリングして、単位セルを製造した。

【0086】

[比較例]

図2の構造のように、実施例の燃料極を電解質層の備えられた面の反対面まで延ばして備えるのではなく、多孔性セラミック支持体と電解質層との間にのみ燃料極を備え、燃料極の一面の真ん中の一部にのみ電解質層を形成し、燃料極集電体として、燃料極の電解質層の備えられた面と同じ面上に、白金メッシュと、前記白金メッシュに連結された白金線とを形成したことを除き、実施例と同様にして単位セルを製造した。

【0087】

製造された単位セルを空気極側から撮影して図4に示した。

10

【0088】

[実験例1]

実施例および比較例の温度による開回路電位(Open Circuit Voltage、OCV)を測定して、その結果を図6に示した。

【0089】

OCVは、電流が流れない状態(仕事をしない状態)での電圧差を意味する。OCV値が高いほどセルの性能が優れている傾向を示すが、このOCV値に最も大きく影響を及ぼす要素は、電解質の安定性とガスの密封状態である。すなわち、電解質が十分に安定的に塗布されていると、OCV値は高くなり、反応ガス(燃料および空気)が完全に密封されて、燃焼反応なくすべて電気化学反応が起こるとすれば、理論値に近いOCVを示す。比較例のOCVが低くなるのは、ガスの密封部位が電解質ですべて覆われた状態でないため、電解質/燃料極/燃料極集電体付近でガス漏れがあったと見られる。すなわち、既存の集電方式では完全なガスの密封が難しく、低いOCVが現れるしかない。

20

【0090】

[実験例2]

実施例または比較例で製造された単位セルを目的の温度(850)まで昇温させた後、燃料極には水素を、空気極には空気(Air)を供給しながら電流を次第に上昇させる。連続的に電位変化データを収集し、それぞれの温度における出力を計算する。より詳細な電気化学的分析のために交流インピーダンス実験を並行するが、高い周波数(frequency)から段階的に低い周波数(frequency)を入力信号として得たインピーダンス値を極左標線図(Nyquist plot)を通して当該周波数における電気化学反応を類推する。

30

【0091】

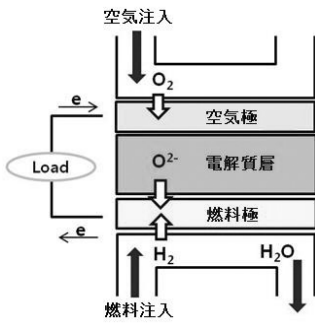
実施例および比較例で製造されたコインセルの性能を測定して、その結果を図7に示した。

【0092】

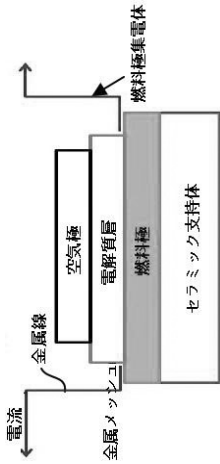
図7は、一般的に燃料電池の性能を示すI-V-P曲線である。図6の比較例でガスの密封が完全でなく、OCV値が低くなり、それによって性能が約1/2レベルと低く測定された。実施例のように、燃料極の電流集電を燃料供給方向に実施すれば、全面を電解質で塗布可能なため、ガスの密封が容易であり、高いOCV値を期待できるため、究極的に高い性能を示すことが分かる。

40

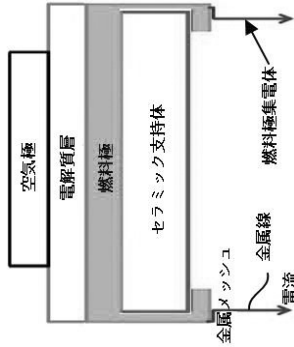
【図1】



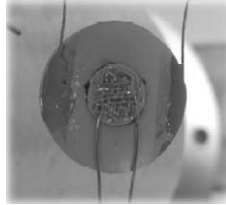
【図2】



【図3】



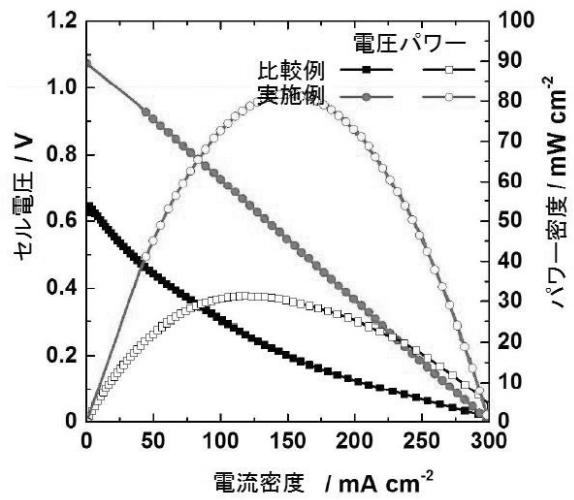
【図4】



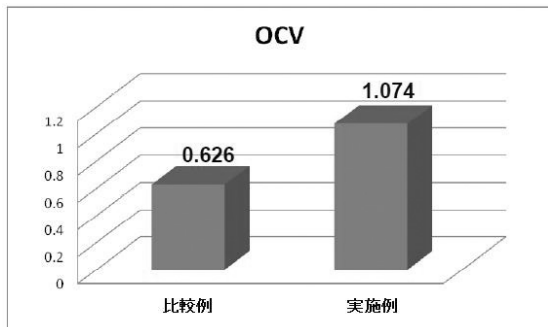
【図5】



【図7】



【図6】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
**H 0 1 M 8/12 (2016.01)** H 0 1 M 8/12 1 0 1  
 H 0 1 M 8/12 1 0 2 A

(72)発明者 イム、サンギョク  
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポ - グ・ヨイ - デロ・1 2 8 エルジー・ケム・リミテッド内  
 (72)発明者 オー、タクゲン  
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポ - グ・ヨイ - デロ・1 2 8 エルジー・ケム・リミテッド内  
 (72)発明者 チョイ、ジョン ミ  
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポ - グ・ヨイ - デロ・1 2 8 エルジー・ケム・リミテッド内  
 (72)発明者 ノ、タイ ミン  
 大韓民国・ソウル・ヨンドウンポ - グ・ヨイ - デロ・1 2 8 エルジー・ケム・リミテッド内

審査官 菊地 リチャード平八郎

(56)参考文献 特開2005 - 135713 (JP, A)  
 特開2015 - 144114 (JP, A)  
 国際公開第2014 / 021446 (WO, A1)  
 特開2011 - 165379 (JP, A)  
 特開2010 - 205534 (JP, A)  
 特開2004 - 152762 (JP, A)  
 特開2015 - 032527 (JP, A)  
 特開2007 - 149618 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
 H 0 1 M 8 / 0 2  
 H 0 1 M 8 / 1 2  
 H 0 1 M 4 / 8 6 - 4 / 9 6