

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電解質層と前記電解質層を挟んで第 1 の方向に互いに対向する空気極および燃料極とを含む電気化学反応単セルと、

前記電気化学反応単セルの前記燃料極側に配置された金属製のインターコネクタと、

前記燃料極と前記インターコネクタとの間に配置され、前記燃料極の表面に接する複数の凸部を有する金属製の集電体と、を備える電気化学反応単位において、

前記第 1 の方向視で、前記集電体の前記凸部における前記燃料極との接触面と、前記集電体における前記インターコネクタとの接触面と、の両方に重なる重複領域の一部である第 1 の領域において、前記集電体と前記インターコネクタとが接合されており、

10

前記重複領域の一部であって前記第 1 の領域を取り囲む第 2 の領域において、前記インターコネクタにおける前記燃料極に対向する側の表面に耐酸化性の被膜が形成されていることを特徴とする、電気化学反応単位。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の電気化学反応単位において、

前記重複領域以外の領域である非重複領域の少なくとも一部の領域において、前記インターコネクタにおける前記燃料極に対向する側の表面に前記耐酸化性の被膜が形成されていることを特徴とする、電気化学反応単位。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学反応単位において、

20

前記第 1 の領域において、前記集電体と前記インターコネクタとが拡散層を介して接合されていることを特徴とする、電気化学反応単位。

【請求項 4】

請求項 1 から請求項 3 までのいずれか一項に記載の電気化学反応単位において、

前記耐酸化性の被膜は、クロム酸化物を含むことを特徴とする、電気化学反応単位。

【請求項 5】

前記第 1 の方向に並べて配列された複数の電気化学反応単位を備える電気化学反応セルスタックにおいて、

前記複数の電気化学反応単位の少なくとも 1 つは、請求項 1 から請求項 4 までのいずれか一項に記載の電気化学反応単位であることを特徴とする、電気化学反応セルスタック。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本明細書によって開示される技術は、電気化学反応単位に関する。

【背景技術】

【0002】

水素と酸素との電気化学反応を利用して発電を行う燃料電池の 1 つとして、固体酸化物形の燃料電池（以下、「SOFC」という）が知られている。SOFC の構成単位である燃料電池発電単位（以下、単に「発電単位」という）は、少なくとも、燃料電池単セル（以下、単に「単セル」という）と、インターコネクタと、集電体とを備える。単セルは、固体酸化物を含む電解質層と、電解質層を挟んで所定の方向に互いに対向する空気極および燃料極とを含む。インターコネクタは、単セルの燃料極側に配置された金属製の部材である。集電体は、燃料極とインターコネクタとの間に配置された金属製の部材であって、燃料極の表面に接する複数の凸部を有し、単セル（の燃料極）とインターコネクタとの間の導電性（電氣的接続）を確保する。

40

【0003】

従来、インターコネクタにおける燃料極に対向する側の表面の内、集電体と接触せずに露出している領域に、耐酸化性の被膜（例えば、 Cr_2O_3 等のクロム酸化物の被膜）を形成して、インターコネクタの酸化の進行を防ぐ技術が知られている（例えば、特許文献 1 参照）。

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2010-199058号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

上記従来技術では、集電体とインターコネクタとの接触領域に酸素が進入し、該接触領域において耐酸化性の被膜が成長するおそれがある。一般に、耐酸化性の被膜は高い電気抵抗を有するため、集電体とインターコネクタとの接触領域において耐酸化性の被膜が成長すると、集電体とインターコネクタとの間の導通面積が小さくなる。その結果、電流集中による局所的な温度上昇が引き起こされ、電極構造が変化して発電単位の性能が低下するおそれがある。

10

【0006】

なお、このような課題は、水の電気分解反応を利用して水素の生成を行う固体酸化物形の電解セル（以下、「SOEC」という）の構成単位である電解セル単位にも共通の課題である。なお、本明細書では、燃料電池発電単位と電解セル単位とをまとめて電気化学反応単位と呼ぶ。また、このような課題は、SOFCやSOECに限らず、他のタイプの電気化学反応単位にも共通の課題である。

【0007】

20

本明細書では、上述した課題を解決することが可能な技術を開示する。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本明細書に開示される技術は、例えば、以下の形態として実現することが可能である。

【0009】

(1) 本明細書に開示される電気化学反応単位は、電解質層と前記電解質層を挟んで第1の方向に互いに対向する空気極および燃料極を含む電気化学反応単セルと、前記電気化学反応単セルの前記燃料極側に配置された金属製のインターコネクタと、前記燃料極と前記インターコネクタとの間に配置され、前記燃料極の表面に接する複数の凸部を有する金属製の集電体と、を備える電気化学反応単位において、前記第1の方向視で、前記集電体の前記凸部における前記燃料極との接触面と、前記集電体における前記インターコネクタとの接触面と、の両方に重なる重複領域の一部である第1の領域において、前記集電体と前記インターコネクタとが接合されており、前記重複領域の一部であって前記第1の領域を取り囲む第2の領域において、前記インターコネクタにおける前記燃料極に対向する側の表面に耐酸化性の被膜が形成されている。本電気化学反応単位によれば、集電体とインターコネクタとが接合された部分において高抵抗な耐酸化性の被膜の形成を抑え、集電体とインターコネクタとの間の導電性を確保することができる。また、集電体とインターコネクタとの間における第2の領域より内側の第1の領域への酸素の進入を抑制することができ、高抵抗な耐酸化性の被膜が第1の領域に向かって成長することを抑制することができる。集電体とインターコネクタとの間の導電性が確保された領域の面積が減少すること（つまり、運転中の導電性が確保された領域の面積の変化）を抑制することができる。その結果、集電体とインターコネクタとの間の導電領域の面積減少による電流集中を抑制することができ、電流集中による局所的な温度上昇によって電極構造が変化し、電気化学反応単位の性能が低下することを抑制することができる。

30

40

【0010】

(2) 上記電気化学反応単位において、前記重複領域以外の領域である非重複領域の少なくとも一部の領域において、前記インターコネクタにおける前記燃料極に対向する側の表面に前記耐酸化性の被膜が形成されている構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、インターコネクタの酸化の進行を防ぐことができる。

【0011】

50

(3) 上記電気化学反応単位において、前記第1の領域において、前記集電体と前記インターコネクタとが拡散層を介して接合されている構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、集電体とインターコネクタとの間の導電性を確実に確保することができる。

【0012】

(4) 上記電気化学反応単位において、前記耐酸化性の被膜は、クロム酸化物を含む構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、Crを含むインターコネクタを用いる際に、クロム酸化物を含む耐酸化性の被膜が第1の領域まで進行することを抑制することができる。

【0013】

なお、本明細書に開示される技術は、種々の形態で実現することが可能であり、例えば、電気化学反応単位（燃料電池発電単位または電解セル単位）、複数の電気化学反応単位を備える電気化学反応セルスタック（燃料電池スタックまたは電解セルスタック）、それらの製造方法等の形態で実現することが可能である。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本実施形態における燃料電池スタック100の外観構成を示す斜視図である。

【図2】図1のII-IIの位置における燃料電池スタック100のXZ断面構成を示す説明図である。

【図3】図1のIII-IIIの位置における燃料電池スタック100のYZ断面構成を示す説明図である。

【図4】図2に示す断面と同一の位置における互いに隣接する2つの発電単位102のXZ断面構成を示す説明図である。

【図5】図3に示す断面と同一の位置における互いに隣接する2つの発電単位102のYZ断面構成を示す説明図である。

【図6】図4および図5のVI-VIの位置における発電単位102のXY断面構成を示す説明図である。

【図7】図4および図5のVII-VIIの位置における発電単位102のXY断面構成を示す説明図である。

【図8】燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すXZ断面図である。

【図9】燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すYZ断面図である。

【図10】燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すXY断面図である。

【図11】変形例における燃料極側集電体144aおよびインターコネクタ150の詳細構成を示すXZ断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0015】

A. 実施形態：

A-1. 装置構成：

(燃料電池スタック100の構成)

図1は、本実施形態における燃料電池スタック100の外観構成を示す斜視図であり、図2は、図1のII-IIの位置における燃料電池スタック100のXZ断面構成を示す説明図であり、図3は、図1のIII-IIIの位置における燃料電池スタック100のYZ断面構成を示す説明図である。各図には、方向を特定するための互いに直交するXYZ軸が示されている。本明細書では、便宜的に、Z軸正方向を上方向と呼び、Z軸負方向を下方向と呼ぶものとするが、燃料電池スタック100は実際にはそのような向きとは異なる向きで設置されてもよい。図4以降についても同様である。

【0016】

燃料電池スタック100は、複数の（本実施形態では7つの）燃料電池発電単位（以下

10

20

30

40

50

、単に「発電単位」という) 102と、一対のエンドプレート104, 106とを備える。7つの発電単位102は、所定の配列方向(本実施形態では上下方向)に並べて配置されている。一対のエンドプレート104, 106は、7つの発電単位102から構成される集合体を上下から挟むように配置されている。なお、上記配列方向(上下方向)は、特許請求の範囲における第1の方向に相当する。

【0017】

燃料電池スタック100を構成する各層(発電単位102、エンドプレート104, 106)のZ方向回りの周縁部には、上下方向に貫通する複数の(本実施形態では8つの)孔が形成されており、各層に形成され互に対応する孔同士が上下方向に連通して、一方のエンドプレート104から他方のエンドプレート106にわたって上下方向に延びる連
10
通孔108を構成している。以下の説明では、連通孔108を構成するために燃料電池スタック100の各層に形成された孔も、連通孔108と呼ぶ場合がある。

【0018】

各連通孔108には上下方向に延びるボルト22が挿通されており、ボルト22とボルト22の両側に嵌められたナット24とによって、燃料電池スタック100は締結されている。なお、図2および図3に示すように、ボルト22の一方の側(上側)に嵌められたナット24と燃料電池スタック100の上端を構成するエンドプレート104の上側表面との間、および、ボルト22の他方の側(下側)に嵌められたナット24と燃料電池スタック100の下端を構成するエンドプレート106の下側表面との間には、絶縁シート26が介在している。ただし、後述のガス通路部材27が設けられた箇所では、ナット24
20
とエンドプレート106の表面との間に、ガス通路部材27とガス通路部材27の上側および下側のそれぞれに配置された絶縁シート26とが介在している。絶縁シート26は、例えばマイカシートや、セラミック繊維シート、セラミック圧粉シート、ガラスシート、ガラスセラミック複合剤等により構成される。

【0019】

各ボルト22の軸部の外径は各連通孔108の内径より小さい。そのため、各ボルト22の軸部の外周面と各連通孔108の内周面との間には、空間が確保されている。図1および図2に示すように、燃料電池スタック100のZ方向回りの外周における1つの辺(Y軸に平行な2つの辺の内のX軸正方向側の辺)の midpoint 付近に位置するボルト22(ボルト22A)と、そのボルト22Aが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、
30
燃料電池スタック100の外部から酸化剤ガスOGが導入され、その酸化剤ガスOGを各発電単位102に供給するガス流路である酸化剤ガス導入マニホールド161として機能し、該辺の反対側の辺(Y軸に平行な2つの辺の内のX軸負方向側の辺)の midpoint 付近に位置するボルト22(ボルト22B)と、そのボルト22Bが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、各発電単位102の空気室166から排出されたガスである酸化剤オフガスOOGを燃料電池スタック100の外部へと排出する酸化剤ガス排出マニホールド162として機能する。なお、本実施形態では、酸化剤ガスOGとして、例えば空気が使用される。

【0020】

また、図1および図3に示すように、燃料電池スタック100のZ方向回りの外周における1つの辺(X軸に平行な2つの辺の内のY軸正方向側の辺)の midpoint 付近に位置するボルト22(ボルト22D)と、そのボルト22Dが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、燃料電池スタック100の外部から燃料ガスFGが導入され、その燃料ガスFGを各発電単位102に供給する燃料ガス導入マニホールド171として機能し、該辺の反対側の辺(X軸に平行な2つの辺の内のY軸負方向側の辺)の midpoint 付近に位置するボルト22(ボルト22E)と、そのボルト22Eが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、各発電単位102の燃料室176から排出されたガスである燃料オフガスFOGを燃料電池スタック100の外部へと排出する燃料ガス排出マニホールド172として機能する。なお、本実施形態では、燃料ガスFGとして、例えば都市ガスを改質した水素リッチなガスが使用される。
40
50

【0021】

燃料電池スタック100には、4つのガス通路部材27が設けられている。各ガス通路部材27は、中空筒状の本体部28と、本体部28の側面から分岐した中空筒状の分岐部29とを有している。分岐部29の孔は本体部28の孔と連通している。各ガス通路部材27の分岐部29には、ガス配管（図示せず）が接続される。また、図2に示すように、酸化剤ガス導入マニホールド161を形成するボルト22Aの位置に配置されたガス通路部材27の本体部28の孔は、酸化剤ガス導入マニホールド161に連通しており、酸化剤ガス排出マニホールド162を形成するボルト22Bの位置に配置されたガス通路部材27の本体部28の孔は、酸化剤ガス排出マニホールド162に連通している。また、図3に示すように、燃料ガス導入マニホールド171を形成するボルト22Dの位置に配置されたガス通路部材27の本体部28の孔は、燃料ガス導入マニホールド171に連通しており、燃料ガス排出マニホールド172を形成するボルト22Eの位置に配置されたガス通路部材27の本体部28の孔は、燃料ガス排出マニホールド172に連通している。

10

【0022】

（エンドプレート104，106の構成）

一対のエンドプレート104，106は、略矩形の平板形状の導電性部材であり、例えばステンレスにより形成されている。一方のエンドプレート104は、最も上に位置する発電単位102の上側に配置され、他方のエンドプレート106は、最も下に位置する発電単位102の下側に配置されている。一対のエンドプレート104，106によって複数の発電単位102が押圧された状態で挟持されている。上側のエンドプレート104は、燃料電池スタック100のプラス側の出力端子として機能し、下側のエンドプレート106は、燃料電池スタック100のマイナス側の出力端子として機能する。

20

【0023】

（発電単位102の構成）

図4は、図2に示す断面と同一の位置における互いに隣接する2つの発電単位102のXZ断面構成を示す説明図であり、図5は、図3に示す断面と同一の位置における互いに隣接する2つの発電単位102のYZ断面構成を示す説明図である。また、図6は、図4および図5のVI-VIの位置における発電単位102のXY断面構成を示す説明図であり、図7は、図4および図5のVII-VIIの位置における発電単位102のXY断面構成を示す説明図である。なお、図7には、後述する燃料極側集電体144の一部の構成が拡大して示されている。

30

【0024】

図4および図5に示すように、発電単位102は、単セル110と、セパレータ120と、空気極側フレーム130と、空気極側集電体134と、燃料極側フレーム140と、燃料極側集電体144と、発電単位102の最上層および最下層を構成する一対のインターコネクタ150とを備えている。セパレータ120、空気極側フレーム130、燃料極側フレーム140、インターコネクタ150におけるZ方向回りの周縁部には、上述したボルト22が挿通される連通孔108に対応する孔が形成されている。

【0025】

インターコネクタ150は、略矩形の平板形状の導電性部材である。本実施形態では、インターコネクタ150はステンレス鋼材により形成されている。インターコネクタ150は、発電単位102間の電氣的導通を確保すると共に、発電単位102間での反応ガスの混合を防止する。なお、本実施形態では、2つの発電単位102が隣接して配置されている場合、1つのインターコネクタ150は、隣接する2つの発電単位102に共有されている。すなわち、ある発電単位102における上側のインターコネクタ150は、その発電単位102の上側に隣接する他の発電単位102における下側のインターコネクタ150と同一部材である。また、燃料電池スタック100は一対のエンドプレート104，106を備えているため、燃料電池スタック100において最も上に位置する発電単位102は上側のインターコネクタ150を備えておらず、最も下に位置する発電単位102は下側のインターコネクタ150を備えていない（図2および図3参照）。

40

50

【0026】

単セル110は、電解質層112と、電解質層112を挟んで上下方向（発電単位102が並ぶ配列方向）に互いに対向する空気極（カソード）114および燃料極（アノード）116とを備える。なお、本実施形態の単セル110は、燃料極116で電解質層112および空気極114を支持する燃料極支持形の単セルである。

【0027】

電解質層112は、Z方向視で略矩形の平板形状部材であり、緻密な層である。電解質層112は、例えば、YSZ（イットリア安定化ジルコニア）、ScSZ（スカンジウム安定化ジルコニア）、SDC（サマリウムドーブセリア）、GDC（ガドリニウムドーブセリア）、ペロブスカイト型酸化物等の固体酸化物により形成されている。空気極114は、Z方向視で電解質層112より小さい略矩形の平板形状部材であり、多孔質な層である。空気極114は、例えば、ペロブスカイト型酸化物（例えばLSCF（ランタンストロンチウムコバルト鉄酸化物）、LSM（ランタンストロンチウムマンガン酸化物）、LNF（ランタンニッケル鉄））により形成されている。燃料極116は、Z方向視で電解質層112と略同一の大きさの略矩形の平板形状部材であり、多孔質な層である。燃料極116は、例えば、Ni（ニッケル）、Niとセラミック粒子からなるサーメット、Ni基合金等により形成されている。このように、本実施形態の単セル110（発電単位102）は、電解質として固体酸化物を用いる固体酸化物形燃料電池（SOFC）である。

【0028】

セパレータ120は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔121が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、金属により形成されている。セパレータ120における孔121の周囲部分は、電解質層112における空気極114の側の表面の周縁部に対向している。セパレータ120は、その対向した部分に配置されたロウ材（例えばAgロウ）により形成された接合部124により、電解質層112（単セル110）と接合されている。セパレータ120により、空気極114に面する空気室166と燃料極116に面する燃料室176とが区画され、単セル110の周縁部における一方の電極側から他方の電極側へのガスのリークが抑制される。

【0029】

図6に示すように、空気極側フレーム130は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔131が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、マイカ等の絶縁体により形成されている。空気極側フレーム130の孔131は、空気極114に面する空気室166を構成する。空気極側フレーム130は、セパレータ120における電解質層112に対向する側とは反対側の表面の周縁部と、インターコネクタ150における空気極114に対向する側の表面の周縁部とに接触している。また、空気極側フレーム130によって、発電単位102に含まれる一対のインターコネクタ150間が電氣的に絶縁される。また、空気極側フレーム130には、酸化剤ガス導入マニホールド161と空気室166とを連通する酸化剤ガス供給連通孔132と、空気室166と酸化剤ガス排出マニホールド162とを連通する酸化剤ガス排出連通孔133とが形成されている。

【0030】

図7に示すように、燃料極側フレーム140は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔141が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、金属により形成されている。燃料極側フレーム140の孔141は、燃料極116に面する燃料室176を構成する。燃料極側フレーム140は、セパレータ120における電解質層112に対向する側の表面の周縁部と、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の周縁部とに接触している。また、燃料極側フレーム140には、燃料ガス導入マニホールド171と燃料室176とを連通する燃料ガス供給連通孔142と、燃料室176と燃料ガス排出マニホールド172とを連通する燃料ガス排出連通孔143とが形成されている。

【0031】

図6に示すように、空気極側集電体134は、空気室166内に配置されている。空気極側集電体134は、複数の略四角柱状の集電体要素135から構成されており、例えば

10

20

30

40

50

、フェライト系ステンレスにより形成されている。空気極側集電体 134 は、空気極 114 における電解質層 112 に対向する側とは反対側の表面と、インターコネクタ 150 における空気極 114 に対向する側の表面とに接触している。ただし、上述したように、燃料電池スタック 100 において最も上に位置する発電単位 102 は上側のインターコネクタ 150 を備えていないため、当該発電単位 102 における空気極側集電体 134 は、上側のエンドプレート 104 に接触している。空気極側集電体 134 は、このような構成であるため、空気極 114 とインターコネクタ 150（またはエンドプレート 104）とを電氣的に接続する。なお、本実施形態では、空気極側集電体 134 とインターコネクタ 150 とは一体の部材として形成されている。すなわち、該一体の部材の内の、上下方向（Z 軸方向）に直交する平板形の部分がインターコネクタ 150 として機能し、該平板形の部分から空気極 114 に向けて突出するように形成された複数の凸部である集電体要素 135 が空気極側集電体 134 として機能する。また、空気極側集電体 134 とインターコネクタ 150 との一体部材は、導電性のコートによって覆われていてもよく、空気極 114 と空気極側集電体 134 との間には、両者を接合する導電性の接合層が介在していてもよい。

10

【0032】

図 7 に示すように、燃料極側集電体 144 は、燃料室 176 内に配置されている。燃料極側集電体 144 は、インターコネクタ対向部 146 と、複数の電極対向部 145 と、電極対向部 145 とインターコネクタ対向部 146 とをつなぐ複数の接続部 147 とを備えており、導電性材料により形成されている。本実施形態では、燃料極側集電体 144 は、ニッケル箔（例えば厚さ 10～200 μm）により形成されている。図 7 における部分拡大図に示すように、燃料極側集電体 144 は、略矩形のニッケル箔に切り込みを入れ、複数の矩形部分を曲げ起こすように加工することにより製造される。曲げ起こされた各矩形部分が電極対向部 145 となり、曲げ起こされた部分以外の穴 O P が開いた状態の平板部分がインターコネクタ対向部 146 となり、電極対向部 145 とインターコネクタ対向部 146 とをつなぐ部分が接続部 147 となる。なお、図 7 における部分拡大図では、燃料極側集電体 144 の製造方法を示すため、一部の矩形部分について、曲げ起こし加工が完了する前の状態を示している。電極対向部 145 は、燃料極 116 における電解質層 112 に対向する側とは反対側の表面に接触しており、インターコネクタ対向部 146 は、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に接触している。ただし、上述したように、燃料電池スタック 100 において最も下に位置する発電単位 102 は下側のインターコネクタ 150 を備えていないため、当該発電単位 102 におけるインターコネクタ対向部 146 は、下側のエンドプレート 106 に接触している。燃料極側集電体 144 は、このような構成であるため、燃料極 116 とインターコネクタ 150（またはエンドプレート 106）とを電氣的に接続する。なお、電極対向部 145 とインターコネクタ対向部 146 との間には、例えばマイカにより形成されたスペーサー 149 が配置されている。そのため、燃料極側集電体 144 が温度サイクルや反応ガス圧力変動による発電単位 102 の変形に追随し、燃料極側集電体 144 を介した燃料極 116 とインターコネクタ 150（またはエンドプレート 106）との電氣的接続が良好に維持される。燃料極側集電体 144 は、特許請求の範囲における集電体に相当し、電極対向部 145 は、特許請求の範囲における凸部に相当する。なお、電極対向部 145 は、第 1 の方向視で、燃料極 116 の外形をインターコネクタ 150 に投影した領域の範囲内に配置されている。

20

30

40

【0033】

A-2. 燃料電池スタック 100 の動作：

図 2、図 4 および図 6 に示すように、酸化剤ガス導入マニホールド 161 の位置に設けられたガス通路部材 27 の分岐部 29 に接続されたガス配管（図示せず）を介して酸化剤ガス O₂ が供給されると、酸化剤ガス O₂ は、ガス通路部材 27 の分岐部 29 および本体部 28 の孔を介して酸化剤ガス導入マニホールド 161 に供給され、酸化剤ガス導入マニホールド 161 から各発電単位 102 の酸化剤ガス供給連通孔 132 を介して、空気室 1

50

66に供給される。また、図3、図5および図7に示すように、燃料ガス導入マニホールド171の位置に設けられたガス通路部材27の分岐部29に接続されたガス配管（図示せず）を介して燃料ガスFGが供給されると、燃料ガスFGは、ガス通路部材27の分岐部29および本体部28の孔を介して燃料ガス導入マニホールド171に供給され、燃料ガス導入マニホールド171から各発電単位102の燃料ガス供給連通孔142を介して、燃料室176に供給される。

【0034】

各発電単位102の空気室166に酸化剤ガスOGが供給され、燃料室176に燃料ガスFGが供給されると、単セル110において酸化剤ガスOGに含まれる酸素と燃料ガスFGに含まれる水素との電気化学反応による発電が行われる。この発電反応は発熱反応である。各発電単位102において、単セル110の空気極114は空気極側集電体134を介して一方のインターコネクタ150に電氣的に接続され、燃料極116は燃料極側集電体144を介して他方のインターコネクタ150に電氣的に接続されている。また、燃料電池スタック100に含まれる複数の発電単位102は、電氣的に直列に接続されている。そのため、燃料電池スタック100の出力端子として機能するエンドプレート104、106から、各発電単位102において生成された電気エネルギーが取り出される。なお、SOFCは、比較的高温（例えば700℃から1000℃）で発電が行われることから、起動後、発電により発生する熱で高温が維持できる状態になるまで、燃料電池スタック100が加熱器（図示せず）により加熱されてもよい。

【0035】

各発電単位102の空気室166から排出された酸化剤オフガスOOGは、図2、図4および図6に示すように、酸化剤ガス排出連通孔133を介して酸化剤ガス排出マニホールド162に排出され、さらに酸化剤ガス排出マニホールド162の位置に設けられたガス通路部材27の本体部28および分岐部29の孔を経て、当該分岐部29に接続されたガス配管（図示せず）を介して燃料電池スタック100の外部に排出される。また、各発電単位102の燃料室176から排出された燃料オフガスFOGは、図3、図5および図7に示すように、燃料ガス排出連通孔143を介して燃料ガス排出マニホールド172に排出され、さらに燃料ガス排出マニホールド172の位置に設けられたガス通路部材27の本体部28および分岐部29の孔を経て、当該分岐部29に接続されたガス配管（図示しない）を介して燃料電池スタック100の外部に排出される。

【0036】

A-3. 燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成：

図8は、燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すXZ断面図である。図8には、図4のX1部の拡大図であり、図10のVII-VIIの位置の断面図が示されている。また、図9は、燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すYZ断面図である。図9には、図5のX2部の拡大図であり、図10のIX-IXの位置の断面図が示されている。また、図10は、燃料極側集電体144およびインターコネクタ150の詳細構成を示すXY断面図である。図10には、図7のX3部の位置の拡大図であり、図8および図9のX-Xの位置の断面図が示されている。

【0037】

図8から図10までに示すように、以下の説明では、燃料極側集電体144およびインターコネクタ150において、Z方向視で、燃料極側集電体144の各電極対向部145における燃料極116との接触面と、燃料極側集電体144のインターコネクタ対向部146におけるインターコネクタ150との接触面と、の両方に重なる領域を、重複領域ARoという。上述したように、燃料極側集電体144は複数の電極対向部（凸部）145を有するため、重複領域ARoは複数存在する。各重複領域ARoは、主として、燃料極側集電体144にZ方向の圧縮力（接圧）が作用する領域であると共に、燃料極側集電体144が燃料極116とインターコネクタ150との間の導電経路として機能する領域である。なお、本実施形態では、インターコネクタ対向部146におけるZ方向視で各電極

10

20

30

40

50

対向部 145 と重なる部分は、必ずインターコネクタ 150 と接触しているため、重複領域 A R o は、Z 方向視で各電極対向部 145 における燃料極 116 との接触面に重なる領域であると言える。

【0038】

また、以下の説明では、各重複領域 A R o 以外の領域を非重複領域 A R n という。本実施形態では、非重複領域 A R n は、1 つの連続した領域（ただし、各重複領域 A R o の部分が欠けた領域）である（図 10 参照）。

【0039】

本実施形態では、各重複領域 A R o の一部、具体的には、各重複領域 A R o における周縁部分を除く中央部分（以下、「中央部 C P」という）において、燃料極側集電体 144（のインターコネクタ対向部 146）とインターコネクタ 150 とが拡散接合されている。すなわち、各重複領域 A R o の中央部 C P において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが、燃料極側集電体 144 に含まれる金属原子とインターコネクタ 150 に含まれる金属原子とが相互に拡散して形成された拡散層 158 を介して接合されている。なお、各重複領域 A R o の中央部 C P は、特許請求の範囲における第 1 の領域に相当する。

【0040】

また、本実施形態では、非重複領域 A R n において、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に、耐酸化性被膜 152 が形成されている。さらに、各重複領域 A R o において中央部 C P を取り囲む上記周縁部分（以下、「周縁部 P P」という）においても、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に、耐酸化性被膜 152 が形成されている。なお、図 10 では、非重複領域 A R n と各重複領域 A R o とを明確に区別するために、非重複領域 A R n を表すハッチングと各重複領域 A R o の周縁部 P P を表すハッチングとを異ならせているが、耐酸化性被膜 152 は、非重複領域 A R n と各重複領域 A R o における周縁部 P P とにわたって連続的に形成されている（図 8 および図 9 参照）。耐酸化性被膜 152 は、インターコネクタ 150（具体的には、インターコネクタ 150 を形作る鋼材）よりも耐酸化性の高い（酸化し難い）被膜であり、インターコネクタ 150 の表面に形成されることによってインターコネクタ 150 の酸化の進行を防ぐものであるが、一般に高い電気抵抗を有する。本実施形態では、耐酸化性被膜 152 は、 Cr_2O_3 等のクロム酸化物を含む被膜である。各重複領域 A R o の周縁部 P P は、特許請求の範囲における第 2 の領域に相当する。

【0041】

A-4. 本実施形態の効果：

以上説明したように、本実施形態の燃料電池スタック 100 を構成する各発電単位 102 では、Z 方向視で、燃料極側集電体 144 の電極対向部 145 における燃料極 116 との接触面と、燃料極側集電体 144 におけるインターコネクタ 150 との接触面と、の両方に重なる各重複領域 A R o の一部の領域、具体的には、各重複領域 A R o の中央部 C P において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが拡散層 158 を介して接合されている。そのため、本実施形態の発電単位 102 によれば、拡散層 158 が形成された部分において高抵抗な耐酸化性被膜 152 の形成を抑え、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との間の導電性を確実に確保することができる。また、本実施形態の発電単位 102 では、各重複領域 A R o の他の一部、具体的には、各重複領域 A R o における中央部 C P を取り囲む周縁部 P P において、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に、クロム酸化物を含む耐酸化性被膜 152 が形成されている。そのため、本実施形態の発電単位 102 によれば、例えば運転時や停止時、水蒸気パージ時において燃料極側が酸化環境になっても、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との間における各重複領域 A R o の周縁部 P P より内側の領域（すなわち中央部 C P）への酸素の進入を抑制することができる。従って、高抵抗な耐酸化性被膜 152 が各重複領域 A R o の中央部 C P に向かって成長することを抑制することができる。従って、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との間の導電性が確保された領域の面

積が減少すること（使用中の導電性が確保された領域の面積の変化）を抑制することができる。その結果、燃料極側集電体144とインターコネクタ150との間の導電領域の面積減少による電流集中を抑制することができ、電流集中による局所的な温度上昇によって電極構造が変化し、発電単位102の性能が低下することを抑制することができる。

【0042】

また、本実施形態の発電単位102では、重複領域ARo以外の領域である非重複領域ARnにおいて、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面に、耐酸化性被膜152が形成されている。そのため、本実施形態の発電単位102によれば、インターコネクタ150の酸化の進行を防ぐことができる。

【0043】

A-5. 評価試験：

上記実施形態の効果について検証するために、インターコネクタ150に見立てたステンレス鋼板（50mm×50mm）の載置面上に、燃料極側集電体144に見立てたNi箔（10mm×10mm）を載置し、Ni箔に5MPaの接圧をかけた構成の実施例および比較例について、水素－水蒸気各50%環境で900℃、1000時間の熱処理を行う評価試験を行った。比較例では、ステンレス鋼板の載置面の内、Ni箔が載置されていない部分のみに耐酸化性被膜152としてのCr₂O₃被膜を形成されている。一方、実施例では、ステンレス鋼板の載置面の内、Ni箔が載置されていない部分に加えて、Ni箔が載置された部分における周縁部にも耐酸化性被膜152としてのCr₂O₃被膜が形成されている。比較例では、熱処理後に、Cr₂O₃被膜がNi箔が載置された部分へと進行していることが確認された。一方、実施例では、熱処理後に、Cr₂O₃被膜の進行は確認されなかった。この結果からも、上記実施形態の発電単位102の構成を採用すれば、耐酸化性被膜152の成長を抑制することができることが確認された。

【0044】

A-6. 製造方法：

上記実施形態の燃料極側集電体144およびインターコネクタ150は、例えば以下の製法により製造することができる。まず、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の一部に、耐酸化性被膜152を形成する。具体的には、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の内、各重複領域ARoの中央部CPを、酸素非透過性のマスクを用いてマスクングする。酸素非透過性のマスクとしては、例えば、スピネル型酸化物（例えば、Mn_{1.5}Co_{1.5}O₄やMnCo₂O₄、ZnCo₂O₄、ZnMnCoO₄、CuMn₂O₄）のコートを用いることができる。なお、インターコネクタ150における他の表面（空気極114に対向する側の表面等）についても、同様にマスクングする。この状態で、熱処理（例えば、大気中で900～1100℃、1～3時間の熱処理）を行うことにより、マスクングされていない部分、すなわち、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の内、非重複領域ARnと、各重複領域ARoの周縁部PPにおいて、ステンレス製のインターコネクタ150に含まれるCrが酸素と反応してクロム酸化物（Cr₂O₃等）を含む耐酸化性被膜152が形成される。

【0045】

なお、上記方法に代えて、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の全面に耐酸化性被膜152を形成し、その後、各重複領域ARoの中央部CPに形成された耐酸化性被膜152をブラスト処理等によって除去する方法を採用するとしてもよい。この方法によっても、インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面の内、非重複領域ARnと、各重複領域ARoの周縁部PPとに、耐酸化性被膜152を形成することができる。

【0046】

インターコネクタ150における燃料極116に対向する側の表面に耐酸化性被膜152を形成した後、該表面上に燃料極側集電体144を配置する。このとき、燃料極側集電体144の各電極対向部145がZ方向視で各重複領域ARoに重なるように、燃料極側

集電体 144 とインターコネクタ 150 との位置合わせがなされる。

【0047】

その後、複数の発電単位 102 をスタッキングしてボルト 22 により締結することにより燃料電池スタック 100 を製造すると、燃料極側集電体 144 に接圧が作用する。そして、燃料電池スタック 100 に電流を流し、発電運転が正常に行われることを確認する。これにより、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが、各重複領域 A R o の中央部 C P において拡散接合される。

【0048】

B. 変形例：

本明細書で開示される技術は、上述の実施形態に限られるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲において種々の形態に変形することができ、例えば次のような変形も可能である。

【0049】

上記実施形態における燃料電池スタック 100 の構成は、あくまで一例であり、種々変形可能である。例えば、上記実施形態における燃料極側集電体 144 の構成は、あくまで一例であり、種々変形可能である。図 11 は、変形例における燃料極側集電体 144 a およびインターコネクタ 150 の詳細構成を示す X Z 断面図（図 8 に対応する部分の断面図）である。図 11 に示す変形例では、燃料極側集電体 144 a が、空気極側集電体 134 と同様に、複数の略四角柱状の集電体要素（凸部） 148 から構成されている。このような構成においても、Z 方向視で、燃料極側集電体 144 a の各集電体要素 148 における燃料極 116 との接触面と、燃料極側集電体 144 a におけるインターコネクタ 150 との接触面と、の両方に重なる各重複領域 A R o の一部の領域、具体的には、各重複領域 A R o の中央部 C P において、燃料極側集電体 144 a とインターコネクタ 150 とが拡散層 158 を介して接合されており、また、各重複領域 A R o の他の一部、具体的には、各重複領域 A R o における中央部 C P を取り囲む周縁部 P P において、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に、クロム酸化物を含む耐酸化性被膜 152 が形成されていれば、燃料極側集電体 144 a とインターコネクタ 150 との間の導電性を確実に確保しつつ、耐酸化性被膜 152 の成長による性能低下を抑制することができる。

【0050】

また、上記実施形態では、各重複領域 A R o の中央部 C P の全面において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが接合されているとしているが、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との接合領域の形態はこれに限られない。燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との接合領域は、周縁部 P P に取り囲まれた領域であればよく、例えば、中央部 C P の内の一部の島状の領域において両者は接合されておらず、中央部 C P の他の領域のみにおいて両者が接合されているとしてもよい。ただし、中央部 C P の全面において両者が接合されていると、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との間の導電性を向上させることができるため、好ましい。

【0051】

また、上記実施形態では、各重複領域 A R o の中央部 C P において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが拡散層 158 を介して接合されているとしているが、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との接合方法の形態はこれに限られない。例えば、この部分において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが、他の種類の接合層（例えば、N i ペースト）を介して接合されているとしてもよい。

【0052】

また、上記実施形態では、非重複領域 A R n の全領域において、インターコネクタ 150 における燃料極 116 に対向する側の表面に耐酸化性被膜 152 が形成されているとしているが、非重複領域 A R n の内の一部の領域のみにおいて、インターコネクタ 150 の該表面に耐酸化性被膜 152 が形成されているとしてもよい。また、非重複領域 A R n においては、インターコネクタ 150 の該表面に耐酸化性被膜 152 が形成されてないとし

てもよい。ただし、非重複領域 AR_n の全領域において、インターコネクタ 150 の該表面に耐酸化性被膜 152 が形成されていると、インターコネクタ 150 の酸化の進行を効果的に防ぐことができるため、好ましい。

【0053】

また、上記実施形態では、耐酸化性被膜 152 はクロム酸化物を含むとしているが、耐酸化性被膜 152 の組成はインターコネクタ 150 の材質に応じて種々変形可能である。例えば、インターコネクタ 150 を形作る鋼材がアルミニウムを用いて形成されている場合には、耐酸化性被膜 152 はアルミニウム酸化物 (Al_2O_3) を含むとしてもよい。

【0054】

また、上記実施形態では、すべての重複領域 AR_o について、中央部 CP において、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 とが拡散層 158 を介して接合され、かつ、周縁部 PP において、インターコネクタ 150 の表面に耐酸化性被膜 152 が形成されているとしているが、必ずしもすべての重複領域 AR_o について上記構成となっている必要は無い。少なくとも 1 つの重複領域 AR_o について上記構成となっていれば、少なくとも該重複領域 AR_o においては、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との間の導電性を確実に確保することができると共に、耐酸化性被膜 152 の成長を抑制することができる。

【0055】

また、燃料電池スタック 100 に含まれるすべての発電単位 102 において、上述した燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との接合構成やインターコネクタ 150 の表面における耐酸化性被膜 152 の構成が採用される必要は無く、少なくとも 1 つの発電単位 102 において該構成が採用されれば、該発電単位 102 について、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との導電性を確保しつつ、耐酸化性被膜 152 の成長を抑制することができる。

【0056】

また、上記実施形態において、燃料電池スタック 100 に含まれる単セル 110 の個数は、あくまで一例であり、単セル 110 の個数は燃料電池スタック 100 に要求される出力電圧等に応じて適宜決められる。また、上記実施形態における各部材を形成する材料は、あくまで例示であり、各部材が他の材料により形成されてもよい。

【0057】

本明細書において、部材（または部材のある部分、以下同様）A を挟んで部材 B と部材 C とが互いに対向するとは、部材 A と部材 B または部材 C とが隣接する形態に限定されず、部材 A と部材 B または部材 C との間に他の構成要素が介在する形態を含む。例えば、電解質層 112 と空気極 114 との間に他の層が設けられていてもよい。このような構成であっても、空気極 114 と燃料極 116 とは電解質層 112 を挟んで互いに対向すると言える。

【0058】

また、上記実施形態では、燃料電池スタック 100 は複数の平板形の発電単位 102 が積層された構成であるが、本発明は、他の構成、例えば国際公開第 2012/165409 号に記載されているように、複数の略円筒形の燃料電池単セルが直列に接続された構成にも同様に適用可能である。

【0059】

また、上記実施形態では、燃料ガスに含まれる水素と酸化剤ガスに含まれる酸素との電気化学反応を利用して発電を行う SOFC を対象としているが、本発明は、水の電気分解反応を利用して水素の生成を行う固体酸化物形電解セル (SOEC) の構成単位である電解セル単位や、複数の電解セル単位を備える電解セルスタックにも同様に適用可能である。なお、電解セルスタックの構成は、例えば特開 2016-81813 号公報に記載されているように公知であるためここでは詳述しないが、概略的には上述した実施形態における燃料電池スタック 100 と同様の構成である。すなわち、上述した実施形態における燃料電池スタック 100 を電解セルスタックと読み替え、発電単位 102 を電解セル単位と

10

20

30

40

50

読み替え、単セル 110 を電解単セルと読み替えればよい。ただし、電解セルスタックの運転の際には、空気極 114 がプラス（陽極）で燃料極 116 がマイナス（陰極）となるように両電極間に電圧が印加されると共に、連通孔 108 を介して原料ガスとしての水蒸気が供給される。これにより、各電解セル単位において水の電気分解反応が起こり、燃料室 176 で水素ガスが発生し、連通孔 108 を介して電解セルスタックの外部に水素が取り出される。このような構成の電解セル単位においても、上述した燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との接合構成やインターコネクタ 150 の表面における耐酸化性被膜 152 の構成が採用されれば、燃料極側集電体 144 とインターコネクタ 150 との導電性を確保しつつ、耐酸化性被膜 152 の成長を抑制することができる。

【0060】

10

また、上記実施形態では、固体酸化物形燃料電池（SOFC）を例に説明したが、本発明は、熔融炭酸塩形燃料電池（MCFC）といった他のタイプの燃料電池（または電解セル）にも適用可能である。

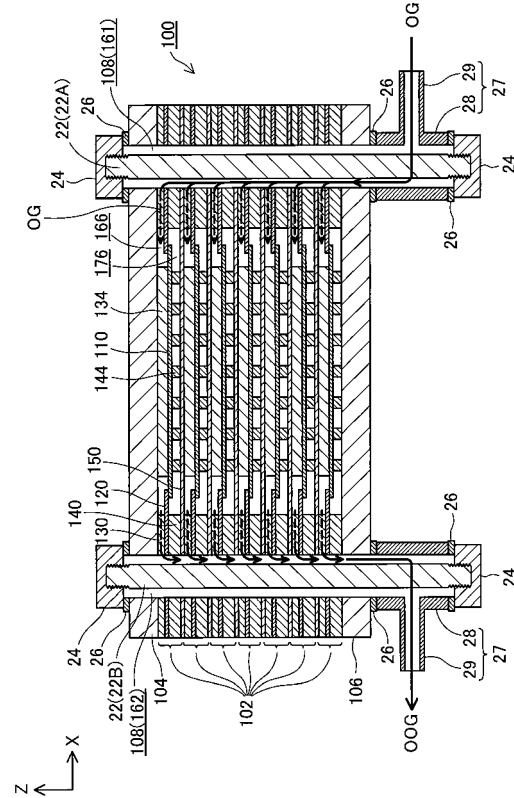
【符号の説明】

【0061】

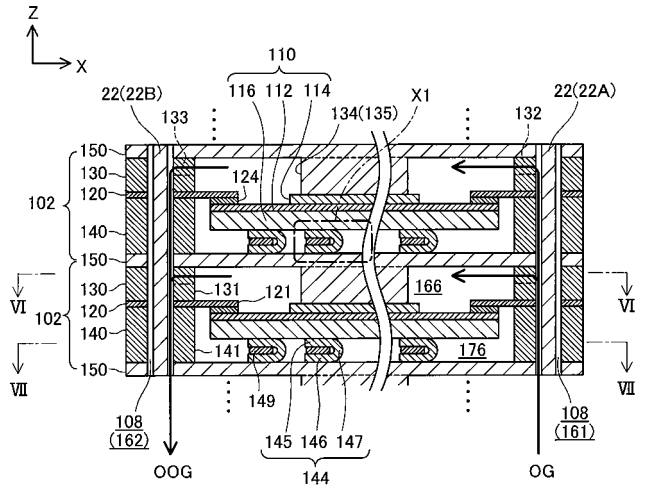
22：ボルト 24：ナット 26：絶縁シート 27：ガス通路部材 28：本体部
29：分岐部 100：燃料電池スタック 102：燃料電池発電単位 104：エンドプレート 106：エンドプレート 108：連通孔 110：単セル 112：電解質層 114：空気極 116：燃料極 120：セパレータ 121：孔 124：接合部 130：空気極側フレーム 131：孔 132：酸化剤ガス供給連通孔 133：酸化剤ガス排出連通孔 134：空気極側集電体 135：集電体要素 140：燃料極側フレーム 141：孔 142：燃料ガス供給連通孔 143：燃料ガス排出連通孔 144：燃料極側集電体 145：電極対向部 146：インターコネクタ対向部 147：接続部 148：集電体要素 149：スペーサー 150：インターコネクタ 152：耐酸化性被膜 158：拡散層 161：酸化剤ガス導入マニホールド 162：酸化剤ガス排出マニホールド 166：空気室 171：燃料ガス導入マニホールド 172：燃料ガス排出マニホールド 176：燃料室

20

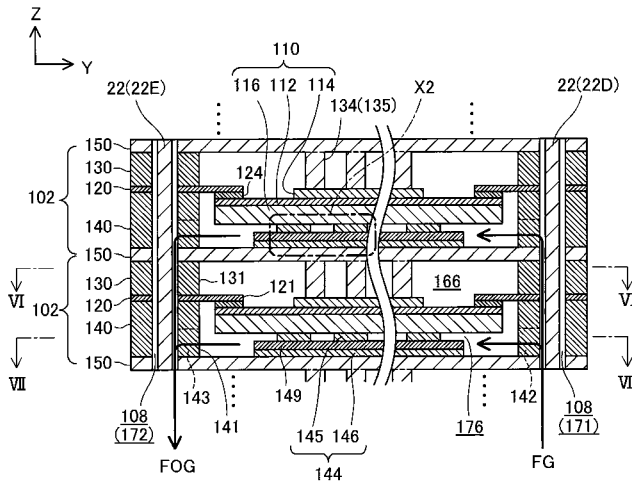
【圖 2】



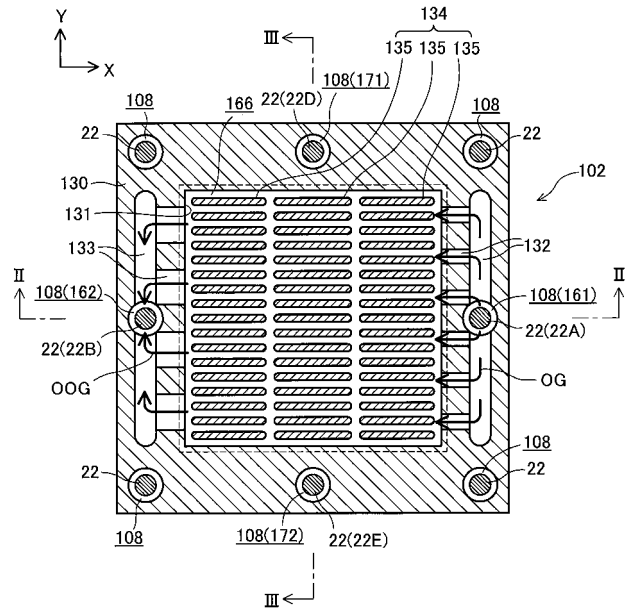
【 図 4 】



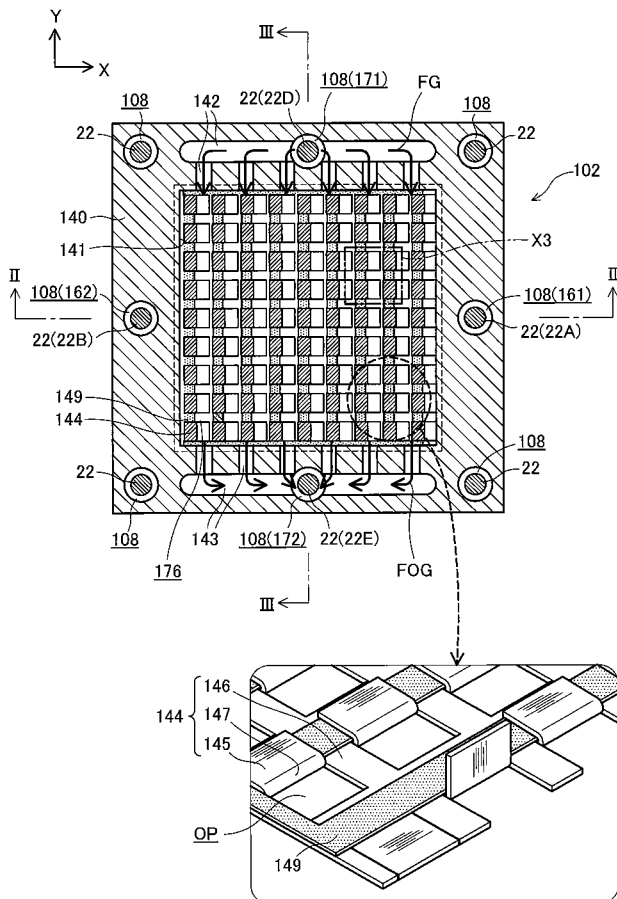
【図 5】



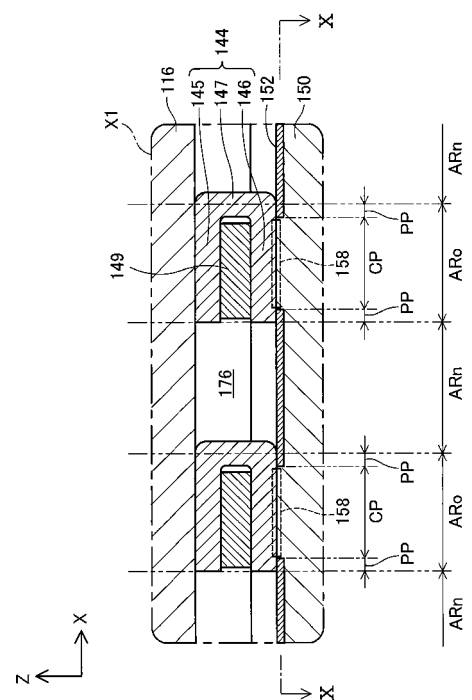
【図 6】



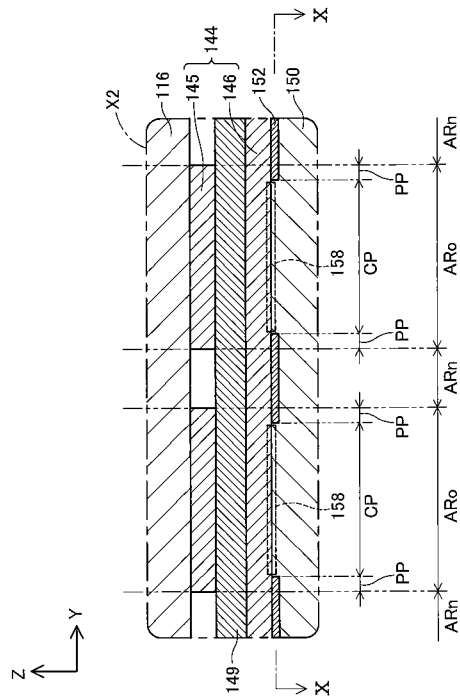
【図 7】



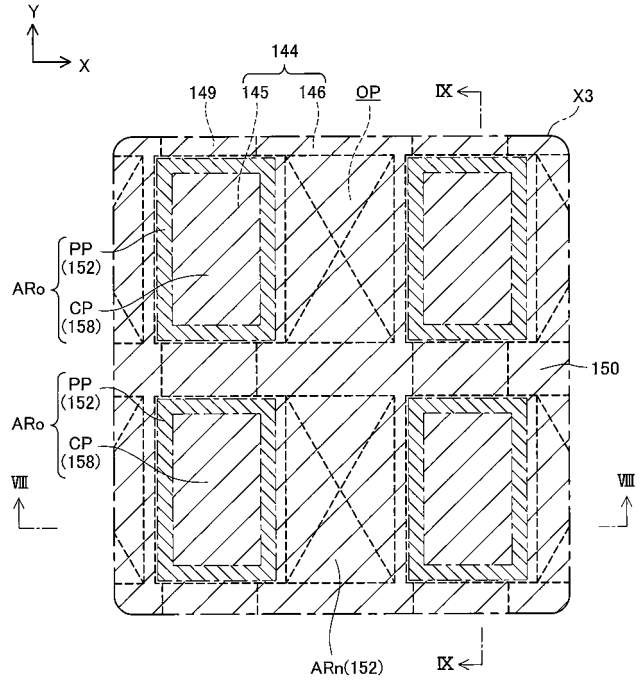
【図 8】



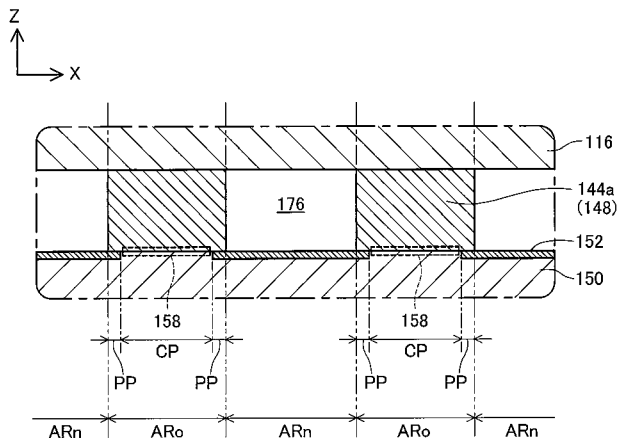
【図 9】



【図 10】



【図 11】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4K021 AA01 BA02 CA07 CA14 DB04 DC03
5H026 AA06 BB01 BB04 BB10 CC03 CC04 CC08
5H126 AA02 AA14 BB06 EE03 EE04 EE11 HH01 HH04 HH10