

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7546112号
(P7546112)

(45)発行日 令和6年9月5日(2024.9.5)

(24)登録日 令和6年8月28日(2024.8.28)

(51)国際特許分類

H 01 M	8/243(2016.01)	H 01 M	8/243
H 01 M	8/0271(2016.01)	H 01 M	8/0271
H 01 M	8/04 (2016.01)	H 01 M	8/04 Z
H 01 M	8/1226(2016.01)	H 01 M	8/1226
H 01 M	8/2465(2016.01)	H 01 M	8/2465

請求項の数 7 (全16頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2023-104536(P2023-104536)
(22)出願日	令和5年6月26日(2023.6.26)
(62)分割の表示	特願2021-509513(P2021-509513) の分割
原出願日	令和2年3月25日(2020.3.25)
(65)公開番号	特開2023-126839(P2023-126839) A)
(43)公開日	令和5年9月12日(2023.9.12)
審査請求日	令和5年6月26日(2023.6.26)
(31)優先権主張番号	特願2019-60825(P2019-60825)
(32)優先日	平成31年3月27日(2019.3.27)
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)
(31)優先権主張番号	特願2019-177294(P2019-177294)
(32)優先日	令和1年9月27日(2019.9.27)
	最終頁に続く

(73)特許権者	000006633 京セラ株式会社 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地
(74)代理人	110002147 弁理士法人酒井国際特許事務所
(72)発明者	今仲 和也 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地 京セラ株式会社内
(72)発明者	古内 史人 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地 京セラ株式会社内
審査官	山本 雄一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 セルスタック装置、モジュール及びモジュール収容装置

(57)【特許請求の範囲】**【請求項1】**

少なくとも1つのセルと、支持部材と、前記セルと前記支持部材とを接合する接合部材と、を備え、

前記支持部材は、支持部材本体、及び該支持部材本体と前記接合部材との間に位置しクラックを含むクラック含有層、を有し、

前記接合部材は、第1ガスに接する第1端部、及び前記第1ガスとは異なる第2ガスに接する第2端部を有し、

前記クラック含有層は、無機酸化物を含み、

前記クラックは、前記無機酸化物のクラックであり、

前記支持部材と前記接合部材との界面に垂直な方向を第1方向とし、前記接合部材の前記第1端部から前記第2端部に向かう方向を第2方向としたとき、該第2方向において、前記クラックの最大長さが、前記接合部材の長さより小さく、

前記接合部材に接する部位に位置する前記クラックの内部に、前記接合部材に含まれる接合材に用いられる金属を含む前記クラックを有する、セルスタック装置。

【請求項2】

前記第1方向及び前記第2方向に沿う断面において、前記クラックの最大長さが、前記接合部材の第2方向の長さの2/3以下である、請求項1に記載のセルスタック装置。

【請求項3】

前記支持部材本体が、前記第2方向の一部に、前記接合部材と直接接する第1部位を有

する、請求項 1 または 2 に記載のセルスタック装置。

【請求項 4】

前記第 1 部位は、前記支持部材本体の前記第 2 方向における 2 つの端部のうち少なくともいづれか一方の端部に位置する、請求項 3 に記載のセルスタック装置。

【請求項 5】

前記支持部材の前記クラック含有層を有する面の算術平均粗さが、前記クラック含有層を有さない面の算術平均粗さより大きい、請求項 1 ~ 4 のいづれか 1 つに記載のセルスタック装置。

【請求項 6】

収容容器、及び該収容容器内に収容された請求項 1 ~ 5 のいづれか 1 つに記載のセルスタック装置を備える、モジュール。 10

【請求項 7】

外装ケースと、該外装ケース内に収容された、請求項 6 に記載のモジュール及び該モジュールを運転する補機と、を備える、モジュール収容装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、セルスタック装置、モジュール及びモジュール収容装置に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、次世代エネルギーとして、セルスタック装置を収容容器に収容した燃料電池装置が提案されている。セルスタック装置は、複数の燃料電池セル、当該複数の燃料電池セルを互いに電気的に接続する集電部材、及びガスタンクを備えている。立設された状態で配列された燃料電池セル及び集電部材の下端部は、ガスタンクに固定されている。 20

【0003】

たとえば、特許文献 1 の燃料電池セルスタック装置では、複数の燃料電池セルの一端部が固定材で支持部材に接合されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】特開 2013 - 157191 号公報 30

【発明の概要】

【0005】

本開示のセルスタック装置は、少なくとも 1 つのセルと、支持部材と、前記セルと前記支持部材とを接合する接合部材と、を備える。前記支持部材は、支持部材本体、及び該支持部材本体と前記接合部材との間に位置しクラックを含むクラック含有層を有する。前記接合部材は、第 1 ガスに接する第 1 端部、及び第 1 ガスとは異なる第 2 ガスに接する第 2 端部を有する。前記支持部材と前記接合部材との界面に垂直な方向を第 1 方向とし、前記接合部材の前記第 1 端部から前記第 2 端部に向かう方向を第 2 方向としたとき、該第 2 方向において、前記クラックの最大長さが、前記接合部材の長さより小さい。 40

【0006】

本開示のモジュールは、収容容器、及び該収容容器内に収容された上記のセルスタック装置を備える。

【0007】

本開示のモジュール収容装置は、外装ケースと、該外装ケース内に収容された上記のモジュール及び該モジュールを運転する補機と、を備える。

【図面の簡単な説明】

【0008】

【図 1】セルの例の 1 つを示す横断面図である。

【図 2】図 1 のセルの下面図である。 50

【図3】図1のセルの上面図である。

【図4】セルスタック装置の例の1つを示す斜視図である。

【図5】図4のv-v線断面図である。

【図6】図4のv_i-v_i線断面図である。

【図7】図6のA領域の拡大図である。

【図8】セルスタック装置の例の1つにおけるA領域の拡大図である。

【図9】セルスタック装置の例の1つにおけるA領域の拡大図である。

【図10】モジュールの例の1つを示す外観斜視図である。

【図11】モジュール収容装置例の1つを概略的に示す斜視図である。

【図12】平板型セルの例の1つを示す斜視図である。

【図13】平板型セルスタックの例の1つを示す断面図である。

【図14】図13の第1接合部材近傍の拡大図である。

【発明を実施するための形態】

【0009】

(セル)

セルスタックを構成するセルの例の1つとして、固体酸化物形の燃料電池セルについて説明する。図1は、セルの例の1つを示す横断面図、図2は図1の下面図、図3は図1の上面図である。これらの図面において、セル1の一部の部材の厚さを、実際の厚さより拡大して示している。

【0010】

図1に示すセル1は、中空平板型で、細長い板状である。図2に示すように、セル1の全体を図1の下側から見た形状は、例えば、長さ方向Lの辺の長さが5cm以上、50cm以下であり、この長さ方向Lに直交する幅方向Wの長さが1cm以上、10cm以下である長方形である。セル1の全体の厚み方向Tの厚さは1mm以上、5mm以下である。以下、特に明記しない限り、セル1の上、下とは、図2及び図3の長さ方向の上、下を意味する。

【0011】

図1に示すように、セル1は、導電性支持基板2、素子部及びインターロケクタ6を有している。以下、導電性支持基板2を支持基板2という場合がある。支持基板2は、一対の対向する平坦な第1面n₁、第2面n₂、及び第1面n₁と第2面n₂とを接続する一対の円弧状の側面mを有する柱状である。セル1は、支持基板2の第1面n₁上に素子部を備えている。素子部は、燃料極3、固体電解質層4及び空気極5を有している。セル1は、第2面n₂上にインターロケクタ6を備えている。

【0012】

セル1は、図2に示すように、空気極5の下端とセル1の下端との間に、固体電解質層4が表面に露出した部位を有する。インターロケクタ6は、図3に示すように、セル1の下端まで延びている。セル1の一対の円弧状の側面mの表面は、固体電解質層4である。すなわち、セル1の下端部の表面は、インターロケクタ6または固体電解質層4である。

【0013】

支持基板2は、ガスが流れるガス流路2aを内部に備えている。図1に示す支持基板2の例の1つは6つのガス流路2aを備えている。支持基板2は、ガス透過性及び導電性を有している。支持基板2がガス透過性を有することで、ガス流路2aを流れる燃料ガスを燃料極3まで透過させることができる。支持基板2が導電性を有することで、素子部が発電した電気を、インターロケクタ6を介して集電することができる。支持基板2の材料は、例えば、鉄族金属成分と無機酸化物との複合材料であってもよい。例えば、鉄族金属成分はNi及び/またはNiOであってもよい。例えば、無機酸化物は特定の希土類元素酸化物であってもよい。希土類元素はYを含む。

【0014】

燃料極3は、一般的に公知のものを使用してもよい。燃料極3の材料は、多孔質の導電性セラミックス、例えば安定化ジルコニアと、Ni及び/またはNiOとの複合材料であ

10

20

30

40

50

つてもよい。安定化ジルコニアとは、カルシウム、マグネシウム、または希土類元素酸化物が固溶している ZrO_2 であり、部分安定化ジルコニアを含む。希土類元素酸化物は、例えば Y_2O_3 等であってもよい。

【0015】

固体電解質層 4 は、イオン伝導性とガス遮断性を有している。固体電解質層 4 は、イオン伝導性を有する電解質であり、燃料極 3 と空気極 5 との間でイオンの橋渡しをする。固体電解質層 4 がガス遮断性を有することにより、燃料ガスと酸素含有ガスとのリークが生じにくくなる。固体電解質層 4 の材料は、例えば 3 モル%以上、15 モル%以下の希土類元素酸化物が固溶した ZrO_2 であってもよい。希土類元素酸化物は、例えば Y_2O_3 等であってもよい。固体電解質層 4 の材料は、イオン伝導性とガス遮断性を有していれば、他の材料であってもよい。

10

【0016】

空気極 5 の材料は、一般的に用いられるものであれば特に制限はない。空気極 5 の材料は、例えば、いわゆる ABO_3 型のペロブスカイト型酸化物の導電性セラミックスであってもよい。ペロブスカイト型酸化物は、例えば、A サイトに Sr と La が共存する複合酸化物であってもよい。ペロブスカイト型酸化物の例としては、 $La_xSr_{1-x}Co_yFe_{1-y}O_3$ 、 $La_xSr_{1-x}MnO_3$ 、 $La_xSr_{1-x}FeO_3$ 、及び $La_xSr_{1-x}CrO_3$ 等が挙げられる。なお、 x は $0 < x < 1$ 、 y は $0 < y < 1$ である。空気極 5 はガス透過性を有している。空気極 5 は、20%以上、特に 30%以上、50%以下の範囲の開気孔率を有していてもよい。

20

【0017】

インターネクタ 6 は、導電性を有し、緻密質である。インターネクタ 6 の材料は、例えばランタンクロマイド系のペロブスカイト型酸化物 ($LaCrO_3$ 系酸化物)、又はランタンストロンチウムチタン系のペロブスカイト型酸化物 ($LaSrTiO_3$ 系酸化物) であってもよい。これらの材料は、導電性を有し、かつ水素含有ガス等の燃料ガス及び空気等の酸素含有ガスと接触しても還元も酸化もされない。インターネクタ 6 は、93%以上、特に 95%以上の相対密度を有していてもよい。インターネクタ 6 がこのように緻密質であることで、支持基板 2 のガス流路 2a を流通する燃料ガス、及び支持基板 2 の外側を流通する酸素含有ガスのリークが生じにくくなる。

【0018】

30

(セルスタック装置)

図 4 はセルスタック装置の例の 1 つを示す斜視図である。図 5 は図 4 の v - v 線断面図である。セルスタック装置 10 は、セルスタック 11、固定部材 7、及びガスタンク 8 を備える。セルスタック 11 は、セル 1 の厚み方向 T に配列または積層された複数のセル 1 と、隣り合うセル 1 同士を電気的に直列に接続する導電部材 9a と、セル 1 の配列方向すなわち厚み方向 T の両端に配置された一対の端部導電部材 9b とを備えている。固定部材 7 は、第 1 接合部材 7a 及び支持部材 7b を有する。

【0019】

図 5 に示すように、支持部材 7b は、複数のセル 1 の下端部が挿入される挿入孔 12 と、ガスタンク 8 に接合されるタンク接合部を有している。複数のセル 1 の下端部と挿入孔 12 の内壁とは、第 1 接合部材 7a で接合されている。図 5 では、支持部材 7b は 1 つの挿入孔 12 を有し、その 1 つの挿入孔 12 に、1 列に配列された複数のセル 1 の下端部全てが挿入されている。支持部材 7b は、複数の挿入孔 12 を有していてもよく、複数の挿入孔 12 のそれぞれに 1 つのセル 1 の下端部が挿入されていてもよい。

40

【0020】

ガスタンク 8 は、1 つ以上の開口部と、開口部の周囲に設けられ、第 2 接合部材 8a が充填された凹溝 8b と、を有する。ガスタンク 8 は、複数のセル 1 に燃料ガスを供給する。支持部材 7b のタンク接合部は、ガスタンク 8 の凹溝 8b に充填された第 2 接合部材 8a によりガスタンク 8 と接合されている。支持部材 7b 及びガスタンク 8 は例えば金属製であってもよい。

50

【 0 0 2 1 】

図4に示すセルスタック装置10では、支持部材7b及びガスタンク8により形成される内部空間に燃料ガスが貯留される。この内部空間を単にガスタンク8の内部空間という場合もある。一方、外部空間には空気などの酸素含有ガスが存在する。ガスタンク8にはガス流通管13が接続されている。後述する改質器で生成された燃料ガスが、このガス流通管13を通じてガスタンク8に供給され、さらにセル1の内部のガス流路2aに供給される。

【 0 0 2 2 】

水素リッチな燃料ガスは、例えば原燃料を水蒸気改質等することにより生成される。水蒸気改質により生成された燃料ガスは、水蒸気を含む。

10

【 0 0 2 3 】

第1接合部材7a及び第2接合部材8aはそれぞれ、燃料ガスが貯留される内部空間の構成要素の一つである。第1接合部材7a及び第2接合部材8aは、いずれも内部空間に接する第1端部及び外部空間に接する第2端部を有している。言い換えれば、第1接合部材7a及び第2接合部材8aの第1端部は、内部空間の燃料ガスに接する部位であり、第1接合部材7a及び第2接合部材8aの第2端部は、外部空間の酸素含有ガスに接する部位である。この場合、燃料ガスは第1端部に接する第1ガスであり、酸素含有ガスは第2端部に接し、第1ガスとは異なる第2ガスである。

【 0 0 2 4 】

図4に示すセルスタック装置は、厚み方向Tに配列された複数のセル1の列を2つ備えている。複数のセル1の列は、それぞれ支持部材7bに固定されている。図4では、ガスタンク8は上面に2つの開口部を有し、この開口部のそれぞれに1つの支持部材7bが配置される。すなわち、図4では、燃料ガスが貯留される内部空間は、1つのガスタンク8及び2つの支持部材7bにより形成されている。

20

【 0 0 2 5 】

挿入孔12の形状は、例えば、上面視で長円形状である。セル1の配列方向すなわち厚み方向Tにおける挿入孔12の長さは、例えば、セルスタック11の両端に位置する一対の端部導電部材9bの間の距離よりも長い。また、セル1の幅方向Wにおける挿入孔12の幅は、例えば、セル1の幅方向Wの長さよりも長い。

【 0 0 2 6 】

30

図4に示すように、挿入孔12とセル1の下端部との間には、固化された第1接合部材7aが充填されている。第1接合部材7aにより、複数のセル1の下端部はそれぞれ挿入孔12と接合・固定されるとともに、隣り合うセル1の下端部同士が接合されている。各セル1のガス流路2aの下端は、ガスタンク8の内部空間と連通している。

【 0 0 2 7 】

第1接合部材7a及び第2接合部材8aは、絶縁性を有していてもよい。第1接合部材7a及び第2接合部材8aの材料は、例えば非晶質ガラスでもよいし、結晶化ガラスでもよい。結晶化ガラスは、例えば、 $\text{SiO}_2 - \text{CaO}$ 系、 $\text{MgO} - \text{B}_2\text{O}_3$ 系、 $\text{La}_2\text{O}_3 - \text{B}_2\text{O}_3 - \text{MgO}$ 系、 $\text{La}_2\text{O}_3 - \text{B}_2\text{O}_3 - \text{ZnO}$ 系、 $\text{SiO}_2 - \text{CaO} - \text{ZnO}$ 系の結晶化ガラスでもよい。

40

【 0 0 2 8 】

セルスタック装置10は、図5に示すように、厚み方向Tに配列された複数のセル1のうち、隣り合うセル1同士を電気的に直列に接続する導電部材9aを備えている。導電部材9aは、隣り合うセル1のうち一方のセル1の燃料極3と、もう一方のセル1の空気極5とを電気的に直列に接続している。なお、図4では、導電部材9aの図示を省略している。

【 0 0 2 9 】

また、セルスタック装置10は、図5に示すように、厚み方向Tに配列された複数のセル1の外側に、1対の端部導電部材9bを備えている。端部導電部材9bは、厚み方向Tに配列された複数のセル1のうち、最も外側に位置する一対のセル1にそれぞれ電気的に

50

接続されている。端部導電部材 9 b は、厚み方向 T の外側に突出する引出部 9 c を有している。引出部 9 c は、セル 1 が発電した電気を集電して外部に引き出す。

【 0 0 3 0 】

図 6 は図 4 の v i - v i 断面図である。図 7 は図 6 の破線で示した A 領域の拡大図である。

【 0 0 3 1 】

図 6 及び図 7 において、支持部材 7 b の挿入孔 1 2 に面する部位と、セル 1 の下端部との間には、第 1 接合部材 7 a が存在する。支持部材 7 b と第 1 接合部材 7 a とセル 1 とを含む第 1 接合部材 7 a の高さ方向に沿った任意の断面において、支持部材 7 b と第 1 接合部材 7 a との界面に垂直な方向を第 1 方向とし、第 1 接合部材 7 a の高さ方向を第 2 方向 y とする。

10

【 0 0 3 2 】

第 2 方向 y は、第 1 接合部材 7 a の燃料ガスすなわち第 1 ガスに接する第 1 端部から、酸素含有ガスすなわち第 2 ガスに接する第 2 端部に向かう方向である。言い換えれば、第 2 方向 y は、第 1 端部と第 2 端部とを最短で結ぶ方向である。なお、第 1 接合部材 7 a の高さを、第 1 接合部材 7 a の第 2 方向 y の長さという場合もある。

20

【 0 0 3 3 】

図 6 では、第 1 方向 x はセル 1 の幅方向 W とおおむね一致し、第 2 方向 y はセル 1 の長さ方向 L と一致する。図 5 では、第 1 方向 x はセル 1 の厚み方向 T とおおむね一致し、第 2 方向 y はセル 1 の長さ方向 L と一致する。以下、第 1 接合部材 7 a の高さ方向に沿った断面を、縦断面という場合もある。

20

【 0 0 3 4 】

図 7 に示すように、セル 1 の固体電解質層 4 は第 1 接合部材 7 a と当接している。セル 1 は固体電解質層 4 の内側に多孔質かつ導電性を有する燃料極 3 及び支持基板 2 を有している。固体電解質層 4 は、第 1 接合部材 7 a との間にセル補強層を有していてもよい。セル補強層の材料は、例えば 3 モル%以上、5 モル%以下の Y₂O₃ が固溶した ZrO₂ を主成分とする材料でもよい。

【 0 0 3 5 】

図 7 に示すように、支持部材 7 b は支持部材本体 7 b 1 と第 1 接合部材 7 a との間にクラック 7 b c を含むクラック含有層 7 b 2 を有している。クラック 7 b c の第 2 方向 y の最大長さは、第 1 接合部材 7 a の第 2 方向 y の高さより小さい。

30

【 0 0 3 6 】

ガラスである第 1 接合部材 7 a と金属である支持部材本体 7 b 1 とは、熱膨張率が異なる場合が多い。そのため、第 1 接合部材 7 a の支持部材本体 7 b 1 との境界付近には、セル 1 の運転及び停止に伴う昇温・降温により応力が発生する。この応力に起因して、第 1 接合部材 7 a にクラックが生じやすい。第 1 接合部材 7 a にクラックが生じると、そのクラックから燃料ガスのリークが生じ、セルスタック装置の耐久性が低下する懸念があった。

【 0 0 3 7 】

支持部材本体 7 b 1 と第 1 接合部材 7 a との間にクラック含有層 7 b 2 が存在すると、第 1 接合部材 7 a と支持部材本体 7 b 1 との間で生じた応力が、クラック含有層 7 b 2 に含まれるクラック 7 b c により緩和され、第 1 接合部材 7 a にはクラックが発生し難くなる。その結果、セルスタック装置 1 0 の耐久性を高めることができる。クラック 7 b c 自体は最大長さが第 1 接合部材の高さより小さく、ガスタンク 8 の内部空間と外部とを連通していない。クラック含有層 7 b 2 は、支持部材 7 b と第 1 接合部材 7 a との境界付近の少なくとも一部に配置されることで応力を緩和することができる。クラック含有層 7 b 2 は、支持部材 7 b の第 1 接合部材 7 a との境界付近全体に分散して配置されてもよい。クラック含有層 7 b 2 は、支持部材 7 b のうち、特に第 1 接合部材 7 a にクラックが発生しやすい特定の部位にのみ設けられていてもよい。なお、図 7 には、クラック含有層 7 b 2 に含まれるクラック 7 b c の一部のみを示している。

40

【 0 0 3 8 】

50

任意の縦断面において、第1接合部材7aの第2方向yの高さをhとし、クラック含有層7b2に含まれるクラック7bcの第2方向yの最大長さをlとする。lはhの2/3以下であってもよい。lがhの2/3以下であることで、第1接合部材7aと支持部材7bとの間で生じた応力を緩和できる。また、クラック含有層7b2に含まれるクラック7bcが仮に応力により進展したとしても、lがhの2/3以下であることで、ガスタンク8の内部空間と外部との間で連通しにくくなり、クラック含有層7b2において燃料ガス又は酸素含有ガスのリークが生じにくくなる。

【0039】

クラック含有層7b2に含まれるクラック7bcの一部は、クラック7bcの内部に、第1接合部材7aに含まれる接合材を有していてもよい。言い換えれば、図8に示すように、クラック含有層7b2は、内部に接合材を有するクラック7b3を有していてもよい。一部のクラック7bcが内部に接合材を有するクラック7b3であることで、クラック含有層7b2において燃料ガス又は酸素含有ガスのリークがより生じにくくなる。

10

【0040】

内部に接合材を有するクラック7b3は、クラック含有層7b2の第1接合部材7aに接する部位の近傍に位置していてもよい。クラック含有層7b2の第1接合部材7aに接する部位の近傍に、内部に接合材を有するクラック7b3を有することで、第1接合部材7aとクラック含有層7b2、さらには支持部材本体7b1とがより強く接合される。その結果、第1接合部材7aと、クラック含有層7b2及び支持部材本体7b1とが剥がれ難くなる。クラック含有層7b2は、第1接合部材7aに含まれる接合材とは異なる材料を内部に含むクラック7b3を有していてもよい。

20

【0041】

支持部材7bは、図9に示すように、第1接合部材7aの高さ方向、すなわち第2方向yにおいて、その一部に、支持部材本体7b1と第1接合部材7aとが直接接する第1部位7b4を有していてもよい。すなわち、支持部材本体7b1は、第1部位7b4において、クラック含有層7b2を介さずに第1接合部材7aと直接接していてもよい。第1部位7b4は、支持部材7bが第1接合部材7aに面する部位の上端部または下端部に配置されてもよいし、上端と下端との中間に配置されてもよい。支持部材本体7b1と第1接合部材7aとが直接接する第1部位7b4が、支持部材7bが第1接合部材7aに面する部位の第2方向yにおいて、その一部に配置されることで、クラック含有層7b2に含まれるクラック7bcが、ガスタンク8の内部空間と外部との間で連通しにくくなり、燃料ガスのリークが生じにくくなる。

30

【0042】

第1部位7b4は、第1接合部材7aの高さ方向である第2方向yにおいて、第1接合部材7aの少なくともいずれか一方の端部に位置してもよい。セルスタック11は稼働中に高温となり、固定部材7の上部と下部に温度差が生じる。支持部材7bが第1接合部材7aに面する部位の第2方向yの両端部にクラック含有層7b2が配置された場合、両端部の温度差に起因する熱応力により、両端部に位置するクラック7bcが進展してガスタンク8の内部空間と外部との間で連通する懸念がある。第1部位7b4を支持部材7bの第1接合部材7aと面する面の少なくともいずれか一方の端部に配置し、クラック7bcを両端部に配置しないことで、燃料ガスのリークが生じにくくなる。第1部位7b4は、第2方向yの上端部に配置されてもよい。クラック7bcは、特に第2方向yの上端部において熱応力により進展しやすいが、第1部位7b4を第2方向yの上端部に配置することでクラック7bcが進展し難くなる。

40

【0043】

クラック含有層7b2の材料は、例えば無機酸化物であってもよい。すなわち、クラック含有層7b2の材料は、ガラスの第1接合部材7a及び金属の支持部材7bのいずれとも異なる材料であってもよい。無機酸化物は、例えば、酸化アルミニウム(アルミナ)、酸化マグネシウム(マグネシア)、酸化シリコン(シリカ)、酸化ジルコニア(ジルコニア)、酸化クロム(クロミア)、酸化チタン(チタニア)及びこれらの複合酸化物など

50

でもよい。ジルコニアは、上述の安定化ジルコニアでもよい。複合酸化物は、例えばフォルステライト及びコーディエライトなどから選択してもよい。クラック含有層 7 b 2 の材料は、導電率の低い材料でもよく、絶縁性の材料でもよい。クラック含有層 7 b 2 の材料が導電率の低い材料、または絶縁性の材料であることで、高い耐電圧及び高い絶縁抵抗を有するセルスタック装置 10 とすることができます。

【 0 0 4 4 】

特にアルミナ及びフォルステライトは、支持部材本体 7 b 1 の金属材料との熱膨張係数の差が小さいため、温度差による生じる熱応力が小さくなる。したがって、クラック含有層 7 b 2 を支持部材 7 b 1 に強固に接合することができ、クラック含有層 7 b 2 が支持部材本体 7 b 1 から剥離し難くなる。

10

【 0 0 4 5 】

支持部材 7 b において、クラック含有層 7 b 2 を有する面の算術平均粗さと、クラック含有層 7 b 2 を有さない支持部材本体 7 b 1 の面の算術平均粗さとが、異なっていてよい。クラック含有層 7 b 2 を有する面とは、クラック含有層 7 b 2 を有する部位の、クラック含有層 7 b 2 の面、またはクラック含有層 7 b 2 と支持部材本体 7 b 1 との界面である。また、支持部材 7 b において、クラック含有層 7 b 2 を有する面のクラック含有層 7 b 2 の面の算術平均粗さと、クラック含有層 7 b 2 と支持部材本体 7 b 1 との界面の算術平均粗さとが異なっていてよい。

【 0 0 4 6 】

クラック含有層 7 b 2 を有さない支持部材本体 7 b 1 の面の算術平均粗さを R 0 とする。クラック含有層 7 b 2 を有する部位の支持部材本体 7 b 1 の面の算術平均粗さを R 1、クラック含有層 7 b 2 の面の算術平均粗さを R 2 とする。

20

【 0 0 4 7 】

R 1 は R 0 より大きくてもよい。支持部材本体 7 b 1 のより算術平均粗さが大きい面、すなわち R 1 を有する面にクラック含有層 7 b 2 を配置することで、クラック含有層 7 b 2 を支持部材本体 7 b 1 に、より強固に接合できる。

【 0 0 4 8 】

R 2 は R 0 より大きくてもよい。クラック含有層 7 b 2 の R 2 を有する面、すなわち支持部材本体 7 b 1 の R 0 を有する面より算術平均粗さが大きい面と、第 1 接合部材 7 a とが接合されることで、第 1 接合部材 7 a とクラック含有層 7 b 2 とを、より強固に接合できる。

30

【 0 0 4 9 】

クラック含有層 7 b 2 の第 1 方向 x の厚さは、例えば 20 μm 以上、250 μm 以下程度であってもよい。クラック 7 b c の第 1 方向 x の幅または長さは、例えば 250 μm 以下であってもよい。クラック含有層 7 b 2 の第 1 方向 x の厚さは、第 1 接合部材 7 a との界面の上端から下端まで同じ厚さでもよいし、厚さが異なる部位を有していてよい。例えば、クラック含有層 7 b 2 の上端部の厚さが、下端部の厚さより厚くてもよいし、その逆でもよい。

【 0 0 5 0 】

(評価方法)

クラック含有層 7 b 2 及びクラック 7 b c の有無は、例えば固定部材 7 の第 1 接合部材 7 a と支持部材 7 b とを含み、第 2 方向 y に沿う断面、すなわち固定部材 7 の縦断面を、走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察することで確認できる。固定部材 7 の縦断面は、第 1 方向 x 及び第 2 方向 y に沿う断面でもよい。固定部材 7 が、第 1 接合部材 7 a と支持部材 7 b との境界付近にクラック 7 b c を有していれば、支持部材 7 b がクラック含有層 7 b 2 を有すると判断する。第 1 接合部材 7 a と支持部材 7 b との境界付近とは、支持部材本体 7 b 1 と第 1 接合部材 7 a との境界からの距離が概ね 100 μm 以下、さらには 50 μm 以下の領域である。第 1 接合部材 7 a の第 2 方向 y の高さ h、及びクラック 7 b c の最大長さ l は、例えば固定部材 7 の 10 か所の縦断面の画像を用いて、各画像における h 及び最大のクラック 7 b c の第 2 方向 y の長さを測定し、h の平均値とクラック 7 b c の最

40

50

大長さ l を算出すればよい。

【0051】

(製法)

クラック含有層 $7b_2$ を有する支持部材 $7b$ は、以下のような方法で作製できる。支持部材本体 $7b_1$ の第1接合部材 $7a$ と接合される部位に、例えば溶射法、蒸着法、電着法、スパッタリング法などの方法で無機酸化物膜を形成する。特に溶射法では、膜形成時の温度変化が急峻なため、無機酸化物膜中にマイクロクラックが形成されやすい。マイクロクラックとは、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下の幅を有するクラックとする。ここでクラックの幅とは、クラックを挟んで向かい合うクラック内面の距離である。マイクロクラックは、例えば支持部材本体 $7b_1$ の線熱膨張係数と、無機酸化物膜の線熱膨張係数との差から生じる応力により形成される場合もある。

10

【0052】

また、上述の材料のナノサイズの微粉末を用いてスラリーを作製し、支持部材本体 $7b_1$ に塗布して焼成してもよい。ナノサイズの微粉末を用いることで、クラック $7b_c$ を有するクラック含有層 $7b_2$ を形成することができる。

【0053】

セルスタック装置 10 は、以下のような方法で作製できる。所定の治具等を用いて、複数のセル 1 をスタッツ状に整列・固定する。次に、この状態を維持しつつ、複数のセル 1 の一端を、支持部材 $7b$ の挿入孔 12 に挿入する。次いで、非晶質ガラス等のペーストを、挿入孔 12 と複数のセル 1 の一端との隙間に充填する。

20

【0054】

次に、上記のように充填されたペーストに熱処理を行なう。この熱処理によって非晶質材料の温度がその結晶化温度まで到達すると、結晶化温度下にて、材料の内部で結晶相が生成されて、結晶化が進行する。熱処理後、治具を複数のセル 1 から取り外す。

【0055】

最後に、支持部材 $7b$ をガスタンク 8 に接合する。この工程においては、まずガスタンク 8 の凹溝 $8b$ 内に第2接合部材 $8a$ 用のペーストを充填する。そして、熱処理して結晶化させねばよい。このようにして、セルスタック装置 10 を製造することができる。

【0056】

(モジュール)

30

図 10 は、セルスタック装置を備えるモジュールの例の1つを示す外観斜視図である。

【0057】

モジュール 20 は、収容容器 21 、及び収容容器 21 内に収容されたセルスタック装置 10 を備えている。セルスタック装置 10 の上方には、改質器 22 が配置されている。

【0058】

改質器 22 は、天然ガス、灯油等の原燃料を改質して燃料ガスを生成し、セル 1 に供給する。原燃料は、原燃料供給管 23 を通じて改質器 22 に供給される。改質器 22 は、水を気化させる気化部 $22a$ と、改質部 $22b$ とを備えていてもよい。改質部 $22b$ は、図示しない改質触媒を備えており、原燃料を燃料ガスに改質する。このような改質器 22 は効率の高い改質反応である水蒸気改質を行うことができる。

40

【0059】

改質器 22 で生成された燃料ガスは、ガス流通管 13 、ガスタンク 8 、及び支持部材 $7b$ を通じて、セル 1 のガス流路 $2a$ に供給される。

【0060】

図 10 では、収容容器 21 の一部である前面部及び後面部を取り外し、収容容器 21 の内部に収容されているセルスタック装置 10 を後方に取り出した状態を示している。

【0061】

上述のモジュール 20 では、ガスの燃焼及びセル 1 の発電に伴い、通常発電時におけるモジュール 20 内の温度が 500 以上、 1000 以下程度となる。

【0062】

50

モジュール20のセルスタック装置10として、上述の固定部材7にクラック含有層7b2を有するセルスタック装置10を用いることで、第1接合部材7aにクラックが発生し難くなり、高い耐久性を備えたモジュール20とすることができます。

【0063】

(モジュール収容装置)

図11は、モジュール収容装置の例の1つを示す分解斜視図である。なお、図11においては一部の構成を省略して示している。モジュール収容装置は、外装ケースと、外装ケース内に収容されたモジュール及びモジュールを運転する補機とを備えている。

【0064】

図11に示すモジュール収容装置30の外装ケースは、支柱31及び外装板32を有する。仕切板33は、外装ケース内を上下に区画している。外装ケース内の仕切板33より上側の空間は、モジュール20を収容するモジュール収容室34であり、外装ケース内の仕切板33より下側の空間は、モジュール20を運転する補機を収容する補機収容室35である。なお、補機収容室35に収容する補機の記載は省略した。

10

【0065】

仕切板33は、補機収容室35の空気をモジュール収容室34側に流すための空気流通口36を有している。モジュール収容室34を形成する外装板32の一部は、モジュール収容室34内の空気を排気するための排気口37を有している。

【0066】

このようなモジュール収容装置30のモジュール収容室34に、上述の高い耐久性を備えたモジュール20を収容することで、高い耐久性を備えたモジュール収容装置30とすることができる。

20

【0067】

以上、本開示について詳細に説明したが、本開示は上述の実施の形態に限定されない。本開示のセルスタック装置、モジュール、及びモジュール収容装置は、本開示の要旨を逸脱しない範囲内において、種々の変更、改良等が可能である。

【0068】

また、本開示は、上述の支持基板の表面に燃料極、固体電解質層及び空気極を備えた発電素子部が1つのみ設けられた所謂「縦縞型」に限定されない。本開示のセルスタック装置は、支持基板の表面の互いに離れた複数個所にて発電素子部がそれぞれ設けられ、隣り合う発電素子部の間が電気的に接続された所謂「横縞型」のセルを積層した横縞型セルスタック装置に適用することができる。また、本開示は、「円筒型」セルのセルスタック装置に適用することもできる。さらに、本開示のセルスタック装置は、所謂「平板型」のセルを厚み方向に積層した平板型セルスタック装置に適用することもできる。

30

【0069】

平板型セルは、例えば図12に示すように、燃料極層3、固体電解質層4、及び空気極層5が積層された素子部を有している。平板型セルスタックは、例えば複数の平板型セルが金属層6により電気的に接続されている。金属層6は、隣接する平板型セル同士を電気的に接続するとともに、燃料極層3または空気極層5にガスを供給するガス流路を形成している。平板型セルスタック装置は、図13に示すように、平板型セルスタックの燃料ガスのガス流路と酸素含有ガスのガス流路とを気密に封止する封止材を有している。封止材はセルの固定部材7であり、第1接合部材7a及びフレームである支持部材7b、7cを有する。第1接合部材7aは、ガラスであってもよいし、銀口ウなどの金属材料であってもよい。

40

【0070】

支持部材7bは、燃料ガスの流路と酸素ガスの流路とを区画するいわゆるセパレータであってもよい。支持部材7b、7cの材料は、例えば導電性の金属であってもよいし、絶縁性のセラミックスであってもよい。支持部材7b、7cは両方またはいずれか一方が絶縁性の材料であってもよい。支持部材7b、7cが金属であった場合、支持部材7b、7cは金属層6と一体化していてもよい。

50

【0071】

支持部材7b、7cのうちいずれか1つは絶縁性であり、平板型セルを挟む2つの金属層6を互いに電気的に絶縁している。

【0072】

図14は、図13の破線で示したB領域の拡大図である。平板型セルスタック装置の場合も、上述の縦縞型セルスタック装置の場合と同様に、図14に示すように、支持部材7bが、支持部材本体7b1と第1接合部材7aとの間にクラック7bcを含むクラック含有層7b2を有することで、第1接合部材7aにおいてクラックを発生し難くすることができ、燃料ガス及び酸素含有ガスのリークを生じ難くすることができる。なお、図14において第1方向xは支持部材7bと第1接合部材7aとの界面に垂直な方向であり、第2方向yは図1の水平方向、すなわち第1接合部材7aの燃料ガスに接する第1端部から、酸素含有ガスに接する第2端部に向かう方向、言い換えれば第1端部と第2端部とを最短で結ぶ方向である。10

【0073】

また、上記実施形態では、「セル」、「セルスタック装置」、「モジュール」及び「モジュール収容装置」の例の1つとして燃料電池セル、燃料電池セルスタック装置、燃料電池モジュール及び燃料電池装置を示したが、他の例としてはそれぞれ、電解セル、電解セルスタック装置、電解モジュール及び電解装置であってもよい。

【符号の説明】**【0074】**

- 1 : セル
- 2 : 支持基板
- 2 a : ガス流路
- 3 : 燃料極
- 4 : 固体電解質層
- 5 : 空気極
- 6 : インターコネクタ、金属層
- 7 : 固定部材
- 7 a : 第1接合部材
- 7 b 、 7 c : 支持部材
- 7 b 1 : 支持部材本体
- 7 b 2 : クラック含有層
- 7 b 3 : 内部に接合材を含むクラック
- 7 b 4 : クラックを含まない界面、第1部位
- 8 : ガスタンク
- 8 a : 第2接合部材
- 8 b : 凹溝
- 1 0 : セルスタック装置
- 1 1 : セルスタック
- 1 2 : 挿入孔
- 1 3 : ガス流通管
- 2 0 : モジュール
- 2 1 : 収容容器
- 3 0 : モジュール収容装置

10

20

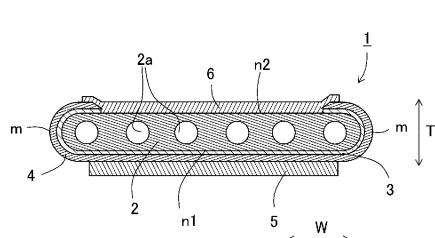
30

40

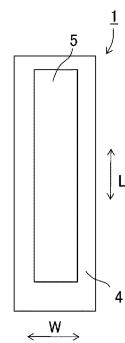
50

【図面】

【図1】

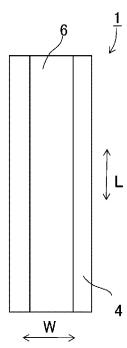


【図2】

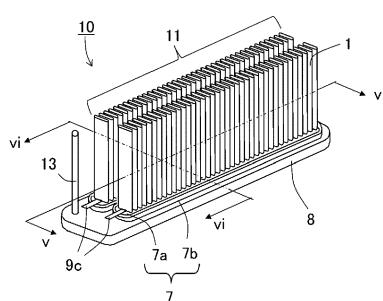


10

【図3】



【図4】



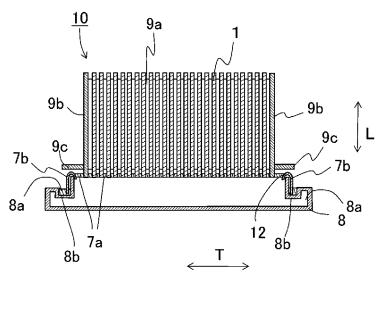
20

30

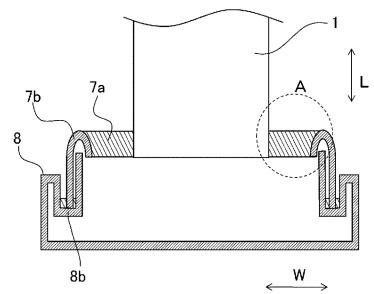
40

50

【図5】

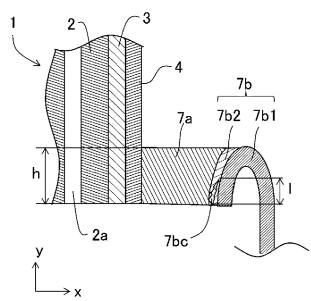


【図6】

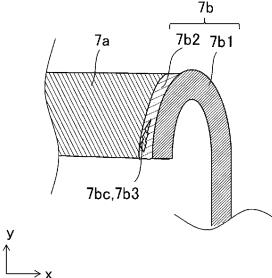


10

【図7】



【図8】



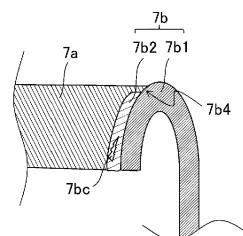
20

30

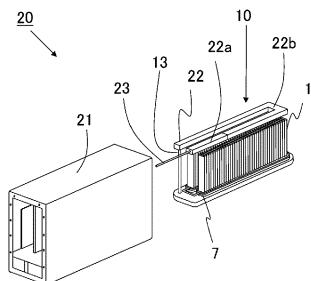
40

50

【図 9】

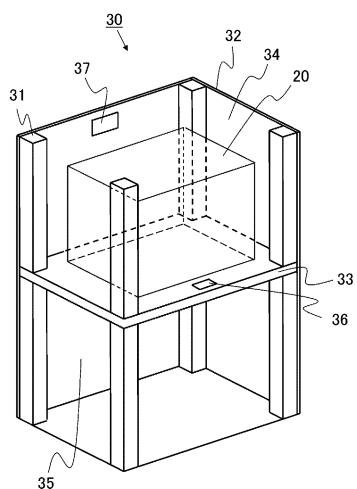


【図 10】

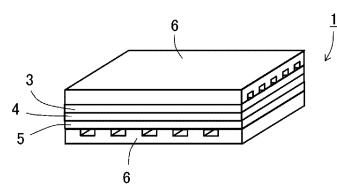


10

【図 11】



【図 12】



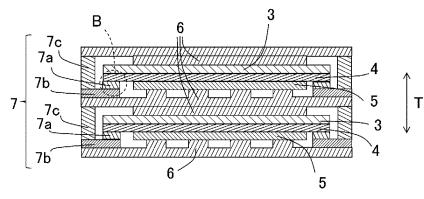
20

30

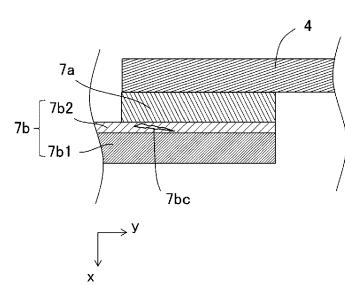
40

50

【図 1 3】



【図 1 4】



10

20

30

40

50

フロントページの続き**(51)国際特許分類**

H 01 M	8/2475(2016.01)	F I	H 01 M	8/2475
H 01 M	8/12 (2016.01)		H 01 M	8/12 101
			H 01 M	8/12 102A
			H 01 M	8/12 102B
			H 01 M	8/12 102C

(33)優先権主張国・地域又は機関

日本国(JP)

(56)参考文献 特開2018-106885 (JP, A)
特開2007-180000 (JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

H 01 M	8 / 00 - 8 / 0297
H 01 M	8 / 08 - 8 / 2495