

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5084246号
(P5084246)

(45) 発行日 平成24年11月28日 (2012.11.28)

(24) 登録日 平成24年9月14日 (2012.9.14)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 M 8/02 (2006.01)

H O 1 M 8/02 E

B O 1 D 63/00 (2006.01)

B O 1 D 63/00 5 0 0

B O 1 D 63/02 (2006.01)

B O 1 D 63/02

B O 1 D 69/10 (2006.01)

B O 1 D 69/10

H O 1 M 8/10 (2006.01)

H O 1 M 8/10

請求項の数 8 (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2006-342129 (P2006-342129)
 (22) 出願日 平成18年12月20日 (2006.12.20)
 (65) 公開番号 特開2007-194206 (P2007-194206A)
 (43) 公開日 平成19年8月2日 (2007.8.2)
 審査請求日 平成21年11月12日 (2009.11.12)
 (31) 優先権主張番号 特願2005-369691 (P2005-369691)
 (32) 優先日 平成17年12月22日 (2005.12.22)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000004385
 N O K 株式会社
 東京都港区芝大門1丁目12番15号
 (73) 特許権者 000003207
 トヨタ自動車株式会社
 愛知県豊田市トヨタ町1番地
 (74) 代理人 100066005
 弁理士 吉田 俊夫
 (74) 代理人 100114351
 弁理士 吉田 和子
 (72) 発明者 簗島 建司
 神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 N O
 K 株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池モジュール

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

内側多孔質電極層、内側触媒層、電解質層、外側触媒層および外側多孔質電極層よりなる中空系型電解質セルをほぼU字形に形成し、その両端部を一体的にポッティングし、該ポッティング層表面に集電層を設けることにより構成した燃料電池モジュールにおいて、セルの一方端部の内側多孔質電極層が接触した集電層と、他方端部の外側多孔質電極層が接触した集電層とを、絶縁性仕切り板で絶縁して構成した燃料電池モジュール。

【請求項 2】

各集電層のブロックにそれぞれ電極端子部が設けられた請求項 1 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 3】

内側および外側多孔質電極層が接触した集電層を、それぞれ導電性ペースト層で形成させた請求項 1 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 4】

内側および外側多孔質電極層が接触した集電層を、皿状の導電性集電用プレートで形成させた請求項 1 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 5】

導電性集電用プレートの貫通孔とそこに貫通させた中空系型電解質セルの内側および外側多孔質電極層との間の間隙が導電性ペーストで充填された請求項 4 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 6】

内側多孔質電極層が珪素化チタンTiSiを主成分として形成された導電性セラミックス層からなる請求項 1 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 7】

中空系型電解質セル群が用いられ、中空系型電解質セルの内側多孔質電極と隣り合う中空系型電解質セルの外側多孔質電極とが集電層によって直列つなぎされ、両端のブロックには電極端子部が設けられた請求項 1、4 または 5 記載の燃料電池モジュール。

【請求項 8】

複数の中空系型電解質セル群を並列に配置し、各中空系型電解質セルの一方端部群側と他方端部群側との間に絶縁性仕切り板が設けられ、該仕切り板によって仕切られた各集電層に電極端子部が設けられた請求項 1、4、5 または 7 記載の燃料電池モジュール。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池モジュールに関する。さらに詳しくは、ほぼU字形に形成した中空系型電解質セルの両端部を一体的にポッティングした燃料電池モジュールに関する。

【背景技術】

【0002】

複数の中空系型電解質セルを用いた構造の燃料電池モジュールは、電解質層、その内側電極層および外側電極層などからなる構造を有している。内側電極層の内部および外側電極層の外側には、それぞれ燃料となる流体が流れている。電解質層は、イオン導電体であるばかりではなく、各燃料流体のクロスリークが最小量となるように設計されている。また、内側および外側の各電極層は、電極として働くだけでなく、これら燃料となる流体および発電の結果生成した水等の生成物が透過・拡散できるように、多孔質層として形成されている。

【0003】

そして、基本的には、中空系型電解質セルの外部側を流れる流体と内部側を流れる流体とを分離するためのシール機構として、図 11 に示されるように、燃料電池モジュールの両端部にポッティング部を設けることなどが行われている。この図 11 に縦断面図として示された従来例の基本構成においては、筒状ケース 1 内に収容された中空系型電解質セル 2 の両端部にポッティング層 3、3' が設けられており、燃料Aはケース壁に穿設された貫通口 4 から導入されて貫通口 5 から排気され、また燃料Bは中空系型電解質セルの入口 6 から導入されて出口7から排気される。

【0004】

中空系膜は、導電性セラミックス等の無機系多孔質中空系膜群モジュールとしても用いられており、かかるモジュールはほぼU字形としてガス分離装置等にも用いられている。

【特許文献 1】特開 2001 - 212422 号公報

【特許文献 2】特開 2003 - 144861 号公報

【特許文献 3】特開 2004 - 158335 号公報

【0005】

かかるほぼU字形のモジュールは、燃料電池のモジュールとしても用いられており、図 1 の中空系型電解質セルの中心線縦断面図に示されるように、その基本的な構成は、内側から順に内側多孔質電極層 11、内側触媒層 12、電解質層 13、外側触媒層 14 および外側多孔質電極層 15 よりなる。これらの各層の長さは、内側多孔質電極層 11 が最も長く、外側の層は順次同じ長さかあるいは短く設定される。

【0006】

ほぼU字形の中空系型電解質セルよりなる燃料電池単体をモジュール化することで、その本数に比例して電流を多く取り出すことができる。最大の電流値を得るためには、モジュール化する際に中空系型電解質セルである燃料電池単体は並列に、すべて同じ向きに配置され、こうした状態に固定するために、ポッティング層がほぼU字形の中空系型電解

10

20

30

40

50

質セル両端に一体的に設けられる。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の目的は、ほぼU字形の中空系型電解質セルの両端部を一体的にポッティングし、該ポッティング層表面に集電層を設けることにより構成した燃料電池モジュールにおいて、モジュール片側からの配線が可能で、1モジュール当り最大の電流を取り出すことを可能とした燃料電池モジュールを提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

かかる本発明の目的は、内側多孔質電極層、内側触媒層、電解質層、外側触媒層および外側多孔質電極層よりなる中空系型電解質セルをほぼU字形に形成し、その両端部を一体的にポッティングし、該ポッティング層表面に集電層を設けることにより構成した燃料電池モジュールにおいて、セルの一方端部の外側多孔質電極層が接触した集電層と、他方端部の内側多孔質電極層が接触した集電層とを、絶縁性仕切り板で絶縁して構成した燃料電池モジュールによって達成され、内側および外側多孔質電極層が接触した集電層はそれぞれ導電性ペースト層で形成され、あるいは目皿状の導電性集電用プレートで形成される。

【発明の効果】

【0009】

本発明に係る燃料電池モジュールにおいては、モジュール片側からの配線が可能で、1モジュール当り最大の電流を取り出すことが可能である。このとき、モジュール片側からの配線が可能となることで、燃料電池システムとしての省スペースを実現し、配線の簡素化を実現することができる。また、ほぼU字形の中空系型電解質セルの固定化が片側のみであるため、線膨張係数の違いによる熱応力の影響を受け難く、各部材の選定や温度領域の拡大につなげることができる。さらに、このようなモジュールを複数個並べて直列に配線することで、電圧を上げることができる。

【0010】

内側および外側多孔質電極層が接触した集電層は、導電性ペースト層として形成させることもできるが、これを目皿状の集電用プレートで形成させた場合には、複数の中空系型電解質セルから集電された電流が抵抗値の小さい導電性集電用プレートに主に流れるので、発電効率の向上が図られ、かつ電流負荷による発熱の影響を大幅に軽減することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

図1は、本発明の燃料電池モジュール作製に用いられる中空系型電解質セルの中心線縦断面図であり、また図2は、本発明に係る燃料電池モジュールの一実施態様を示す中心線縦断面図である。中空系型電解質セル2はほぼU字形に形成されて、その両端部をポッティング層21で一体的にポッティングされており、U字形に形成された中空系型電解質セル2は、前述の如くセル中心部の内側から順に内側多孔質電極層11、内側触媒層12、電解質層13、外側触媒層14および外側多孔質電極層15から構成されている。

【0012】

ここで、中空系型電解質セルを形成する各部分の内、内側多孔質電極層は例えば珪素化チタン TiSi_2 粉末を高分子物質の有機溶媒溶液中に高充填した製膜原液から複合膜を製膜し、得られた複合膜を約1300～1800℃で焼成し、その際少くとも400℃以上の加熱温度範囲では真空または不活性雰囲気環境下で焼成を行って得られた、珪素化チタン TiSi_2 を主成分として形成される導電性多孔質セラミックス等から形成され、外側多孔質電極層はカーボン等から形成される。内側および外側触媒層は、例えば白金を担持させたカーボン等から形成される。また、電解質層は、例えば固体高分子形電解質またはそれを多孔質体に充填したもの、あるいは電解質成分を無機支持体に担持させた有機無機電解質または無機電解質等から形成され、これらの中空系型電解質セルを複数本収容するケースとしては例え

10

20

30

40

50

ばポリスルホン樹脂製のものが用いられる。

【特許文献４】特開２００６－１５１７３７号公報

【００１３】

ポッティング層２１表面には、集電層２２、２３が設けられ、これらの集電層は絶縁性仕切り板２４によって互いに絶縁されている。これらの集電層２２、２３と中空系型電解質セル２とは、セルの一方端部の内側多孔質電極層１１が集電層２２と、また他方端部の外側多孔質電極層１５が集電層２３とそれぞれ接触するように構成されており、ただし外側多孔質電極層１５は上記一方端部側において、ポッティング層２１によって集電層２２と絶縁されており、各集電層のブロックにはそれぞれ電極端子部としてのバスバー２５、２７が設けられている。

10

【００１４】

このようにして形成される燃料電池モジュールの作製は、例えば有底筒状、箱状等のケース１内にＵ字形中空系型電解質セル２の複数本を同じ向きに治具を用いて配置し、まず電極取出し側においてケースに設けられた貫通孔からパラフィンを流し込み、セル群を仮固定する。このとき、治具には絶縁性仕切り板２４を配置しておく。このパラフィン上に、パラフィンと同様にして絶縁性ポッティング剤２１を流し込み、固定する。これにより、絶縁性仕切り板２４も同時に固定される。治具を除去した後、仮固定していたパラフィンを融解除去し、ケース開放端側から集電層２２および２３を形成する導電性ペーストを流し込む。このとき、これらの集電層の取出配線となるバスバー２５および２７をポッティング層２１上に配置し、同時に固定する。

20

【００１５】

また、内側および外側多孔質電極層が接触した集電層(以下、内側および外側集電層と略称)を形成させる導電性ペーストとしては、例えば市販の銀ペースト等が用いられ、あるいはこれに代えて半田等を用いてもよい。また、その厚さは導電性ペーストの導電性の程度によって決められる。ポッティング層は、例えば絶縁性のエポキシ樹脂、ウレタン系接着剤、無機接着剤等のポッティング剤から形成され、絶縁層や絶縁体部は例えばエポキシ樹脂、ウレタン系接着剤等の樹脂系のものやガラス等の無機系のものから形成される。

【００１６】

このように、内側および外側集電層は導電性ペーストで形成せしめることもできるが、導電性ペーストや導電性接着剤は、ペーストや接着剤の形成に高分子材料を用いているため、導電性物質である銅、銀等の金属単体またはカーボンプレートなどよりも、抵抗値が１～２桁高くなるという問題がみられる。

30

【００１７】

このため、導電性ペーストで形成させた集電層の抵抗は、導電性物質単体よりも抵抗値が高くなり、抵抗値が高いと取り出せる電力が少なくなるばかりではなく、発熱の原因ともなる。すなわち、定電流回路としてみると、取り出せる電流の電圧が低下することとなる。また、中空系型電解質セルの充填本数および表面積を増すと、集電層には大電流が流れることになり、発熱量の増大に伴う中空系型電解質セルや周辺部材への熱的負荷が増大することになる。このため、安定した燃料電池モジュールの運転に対し、冷却機構などの装備を十分に行う必要が出てくる場合もみられる。

40

【００１８】

こうした課題は、内側および外側集電層を導電性ペーストで形成せしめる代りに、皿状の導電性集電用プレートを用いることによって、その問題点の軽減を図ることができる。

【００１９】

集電用プレートは、銅、銀等の金属単体やその合金あるいはカーボンなどの導電性物質で構成され、必要に応じこれにメッキなどの表面処理を行ったものであってもよい。この集電用プレートは、中空系型電解質セルを通す貫通孔を有し、皿状となっている。図３～４には、内側または外側集電用として用いられるプレート３１、３３の斜視図が示されており、その貫通孔３２、３４の内径は内側または外側多孔質電極層１１、１５の外径よ

50

りやや大きく設定されている。集電用プレートの厚さは、例えば50Aの電流を流すとした場合、約0.5~2mm程度であり、これ以上の大電流タイプのモジュールでは、電流が最も集中する電極端子をプレート上に数ヶ所設け、過大な電流の集中を分散させることができる。

【0020】

中空系型電解質セルと各集電用プレートとは、集電用プレートとその貫通孔に貫通させた中空系型電解質セルの内側および外側多孔質電極層11、15との間の間隙43、44に充填または塗布された導電性ペーストまたは導電性接着剤によって、電氣的接続が施される。発電時には、これら電氣的接続部の導電性ペーストなどにも電流が流れることになるが、この場合の電流負荷は中空系型電解質セル1本分の電流であるので、発熱等の影響はあまり問題とはならない。このように、間隙43、44において電氣的接続がなされる程度の導電性材料の充填または塗布で所望の目的は達成されるものの、下記固定用アームを設けていない場合などには、集電用プレートの確実な固定のためにも導電性ペースト層22'、23'をプレートの上部に設けることが好ましく、ただし固定上などに問題がなければ上部についてはプレートが露出状態であってもよい。

10

【0021】

各集電用プレートには、電力を外部に取り出すための集電用電極端子35、36(前記バスバーに相当)が集電用プレート31、33と一体となるように設けられる。この際、各集電用プレートには、これを筒状ケース1に固定するための手段、例えば図3~4に示される集電用プレートにあっては、導電性集電用プレートの筒状ケースへの固定を確実にし、またモジュール組立作業を容易とさせるビス止め固定用アーム39、振動等による集電層の脱離などの固定上の問題を容易に改善させるという効果を奏する、アンカー効果用切欠部40を有するポッティング部埋込用アーム41などを付設することもできる。さらに、図5に示される如く、パラフィン透過用のスリット42を穿設し、パラフィンの回り込みを容易にすることもできる。

20

【0022】

図6は、内側および外側集電用プレート31、33を用いて構成した燃料電池モジュールの一実施態様の縦断面図であり、他の符号は符号22'、23'を導電性ペースト層とした以外、図2のそれと同じである。

【0023】

このような構成の燃料電池モジュールは、図7の(a)~(d)の各工程を経て作製される。まず、中空系型電解質セル2および内側および外側集電用プレート31、33を、筒状ケースに設けられた貫通孔、例えば燃料導入用貫通孔4から流し込んだパラフィン30を用いて固定する(a)。次いで、絶縁性ポッティング剤を筒状ケースの所定位置に設けられた貫通孔、例えば上記貫通孔4から注入して硬化させ、絶縁性ポッティング層21を形成させる。その後、仮固定用のパラフィン30をケース開放端から融解除去、溶剤溶解除去等の手段で除去し(c)、導電性ペーストを筒状ケースの開放端側から流し込み、導電性ペースト層で目皿貫通孔と中空系型電解質セルの相当する外周部分との間隙43、44を埋めると共に、必要に応じて導電性ペースト層22'23'を形成させ、モジュールを完成させる(d)。

30

40

【0024】

中空系型電解質セルよりなる燃料電池単体は、それを複数本並列にモジュール化することで、セル本数に比例して電流を多く取り出すことができる。最大の電流値を得るためには、モジュール化する際に燃料電池単体をすべて同じ向きに配置する。このため、ポッティング層21が燃料電池単体2の両端部に一体的に設けられ、燃料電池単体を固定させる。

【0025】

ポッティング層21は、電解質層13の内側を流れる燃料とその外側を流れる燃料(流体導入口4、流体排出口5による)とを分離する役割も担っている。このとき、集電および燃料となる流体を中空系型電解質セル内に導入するために、中空系型電解質セルの各先

50

端部分 2 a、2 bはポッティング層21よりも外側に突出させておくようにする(図2参照)。

【0026】

この図2に示されるように、集電層22、23は、ポッティング層21の上に配置される。このとき、一方の集電層22はセルの一方端部の内側多孔質電極層11と接触させ、他方の集電層23はセルの他方端部の外側多孔質電極層15と接触させるように、中空系型電解質セルの各末端の長さが調整される。

【0027】

このようなモジュールにおいて、一方の燃料はほぼU字形の中空系型電解質セル2の一端側から導入され、他端側に排出される。このため、導入燃料ガスと排出燃料ガスとが混合しないように、セルの両端面側空間をそれぞれ仕切る仕切り板24が配置される。この仕切り板24は、集電層22、23の絶縁板としての役割を果たし、+電極と-電極とを分離する。

【0028】

かかる構成のモジュールは、並列つなぎによる電流値の増大を図ることができるが(図9~10参照)、図8に示される如くこれをさらに直列つなぎし、これにより電圧値を増大させることができ、燃料電池の高出力化が図られる。この場合、隣り合う中空系型電解質セル2、2'、...の内側多孔質電極層11と外側多孔質電極15とが集電層26によって接続され、両側のブロックには電極端子のバスバー25、27が設けられる。

【0029】

また、図9に示されるように、複数の中空系型電解質セル群2、2'、...は、各中空系型電解質セルの一方端部29群と他方端部28側との間に絶縁性仕切り板24を設け、この仕切り板によって仕切られた各集電層に電極端子部25、27を設けることにより、一般に並列に配置されるが、図10に示すようにセル群を斜めに配置し、仕切り板24の両側にセル両端部がずれた位置に配置することもできる。この場合には、デッドスペースが小さくなり、その面積を有効に利用することができ、特にU字部の曲率が大きいときに有効である。

【0030】

さらに、内側および外側多孔質電極層が接続した集電層を設けた場合には、図9~10に示される態様において、符号22は導電性ペースト層であって、その下部に内側集電用プレートが一体化されており、また符号23は導電性ペースト層であって、その下部に外側集電用プレートが一体化されており、符号25は内側集電用プレートの端子、27は外側集電用プレートの端子であり、その他の符号は図2と同じである。

【図面の簡単な説明】

【0031】

【図1】本発明に係る燃料電池モジュールで用いられるU字形中空系型電解質セルの中心線縦断面図である。

【図2】本発明に係る燃料電池モジュールの一実施態様の中心線縦断面図である。

【図3】集電用プレートの一実施態様の斜視図である。

【図4】集電用プレートの他の実施態様の斜視図である。

【図5】集電用プレートのさらに他の実施態様の斜視図である。

【図6】外側および内側集電用プレートを用いた燃料電池モジュールの一実施態様の縦断面図である。

【図7】外側および内側集電用プレートを用いた燃料電池モジュールの作製順序を示す縦断面図である。

【図8】本発明の燃料電池モジュールを直列つなぎした一実施態様を示すその中心線縦断面図である。

【図9】本発明の燃料電池モジュールを並列つなぎした一実施態様を示すその平面図である。

【図10】本発明の燃料電池モジュールを並列つなぎした他の実施態様を示すその平面図である。

10

20

30

40

50

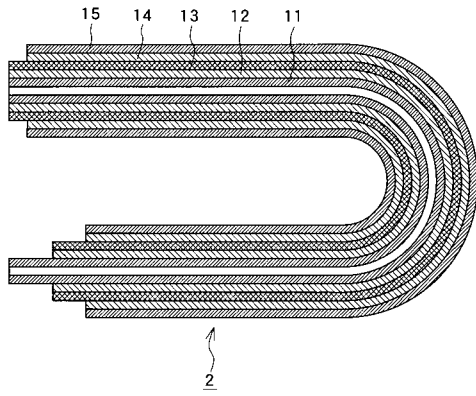
【図 1 1】従来例の燃料電池モジュールの縦断面図である。

【符号の説明】

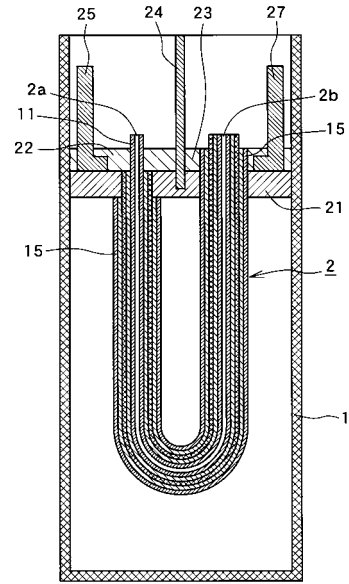
【 0 0 3 2 】

1	筒状ケース	
2	中空系型電解質セル	
2 a , 2 b	中空系型電解質セル先端部分	
3 , 3 '	ポッティング部	
4	燃料A導入口	
5	燃料A排気口	
6	燃料B導入口	10
7	燃料B排気口	
11	内側多孔質電極層	
12	内側触媒層	
13	電解質層	
14	外側触媒層	
15	外側多孔質電極層	
21	ポッティング層	
22	集電層	
22 '	導電性ペースト層	
23	集電層	20
23 '	導電性ペースト層	
24	絶縁性仕切り板	
25	集電層バスバー	
26	集電層	
27	集電層用バスバー	
28	中空系型電解質セルの他方端部	
29	中空系型電解質セルの一方端部	
30	仮止め用パラフィン	
31	内側集電用プレート	
33	外側集電用プレート	30
35 , 36	集電用電極端子	
43 , 44	間隙充填導電性ペースト	

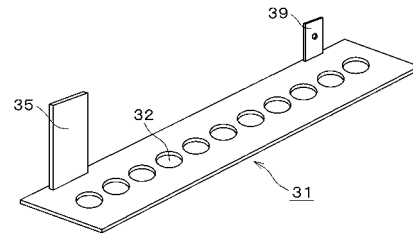
【図 1】



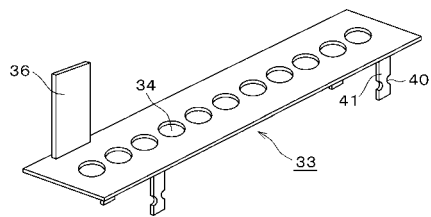
【図 2】



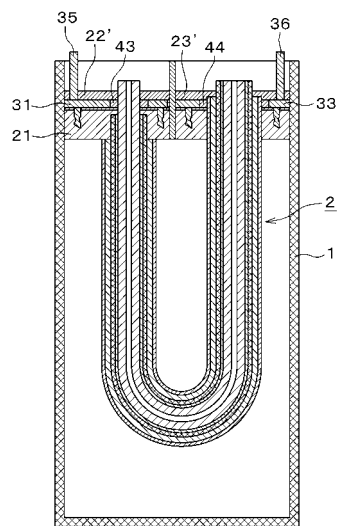
【図 3】



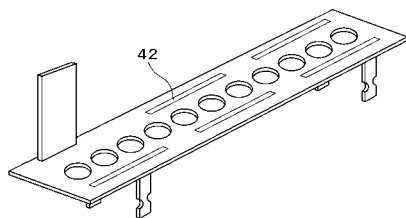
【図 4】



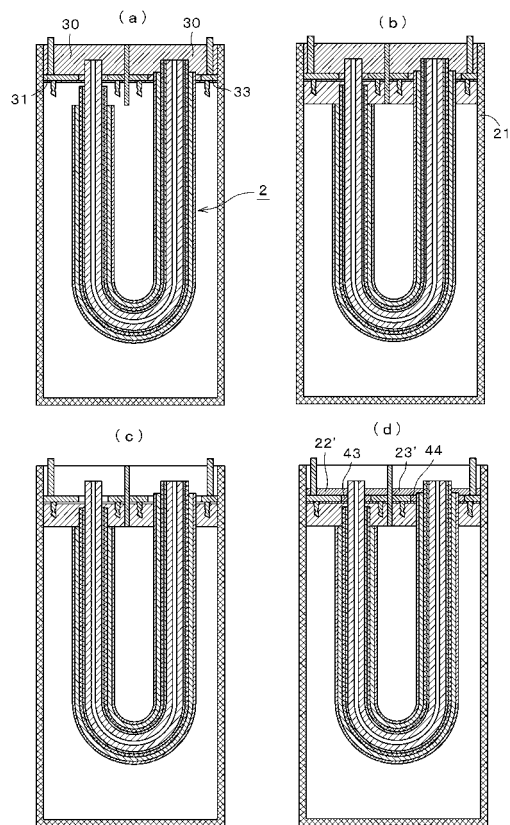
【図 6】



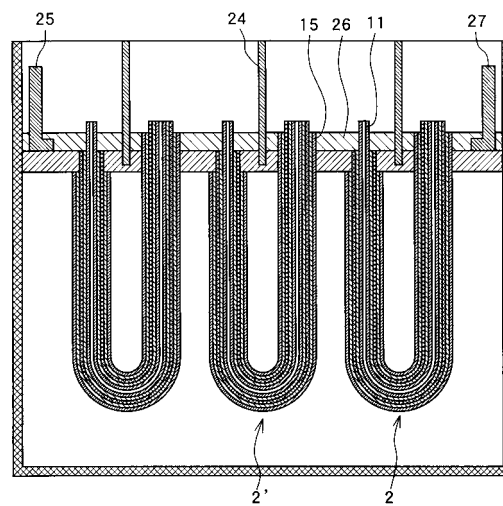
【図 5】



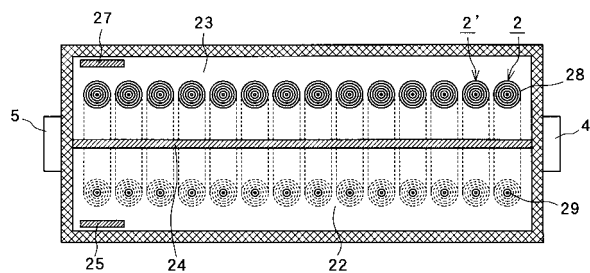
【図 7】



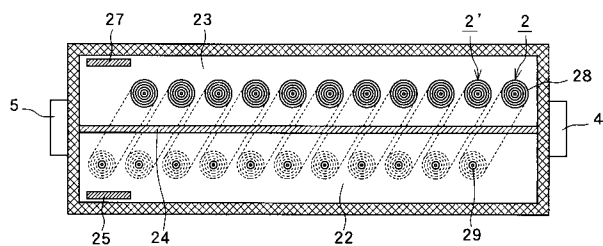
【図 8】



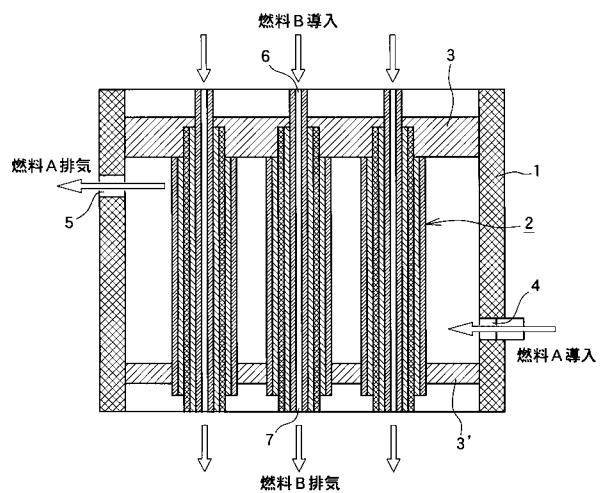
【図 9】



【図 10】



【図 11】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
H 0 1 M 4/86 (2006.01) H 0 1 M 8/02 Y
H 0 1 M 4/86 B

(72)発明者 宇田 徹
神奈川県藤沢市辻堂新町4 - 3 - 1 N O K株式会社内
(72)発明者 井川 雄介
神奈川県藤沢市辻堂新町4 - 3 - 1 N O K株式会社内
(72)発明者 佐藤 孝利
神奈川県藤沢市辻堂新町4 - 3 - 1 N O K株式会社内
(72)発明者 幸田 穰
神奈川県藤沢市辻堂新町4 - 3 - 1 N O K株式会社内
(72)発明者 今西 雅弘
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
(72)発明者 中西 治通
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
(72)発明者 村田 成亮
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

審査官 渡部 朋也

(56)参考文献 特開2004 - 319152 (J P , A)
特表2005 - 518075 (J P , A)
特開昭63 - 133464 (J P , A)
特開2006 - 294521 (J P , A)
特開2000 - 182642 (J P , A)
特開2002 - 298897 (J P , A)
特開2006 - 151737 (J P , A)
特開2001 - 043886 (J P , A)
特開2000 - 082483 (J P , A)
特開2007 - 194205 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B名)
H 0 1 M 8 / 0 2
B 0 1 D 6 3 / 0 0