

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-134362

(P2004-134362A)

(43) 公開日 平成16年4月30日(2004.4.30)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02	HO 1 M 8/02 E	5HO 1 8
HO 1 M 4/88	HO 1 M 8/02 B	5HO 2 6
// HO 1 M 8/10	HO 1 M 8/02 M	
HO 1 M 8/12	HO 1 M 4/88 Z	
	HO 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 10 O L 外国語出願 (全 21 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2003-164475 (P2003-164475)	(71) 出願人	390041542
(22) 出願日	平成15年6月10日 (2003. 6. 10)		ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ
(31) 優先権主張番号	10/166, 909		GENERAL ELECTRIC CO
(32) 優先日	平成14年6月11日 (2002. 6. 11)		MPANY
(33) 優先権主張国	米国 (US)		アメリカ合衆国、ニューヨーク州、スケネクタデー、リバーロード、1 番
		(74) 代理人	100093908
			弁理士 松本 研一
		(74) 代理人	100105588
			弁理士 小倉 博
		(74) 代理人	100106541
			弁理士 伊藤 信和

最終頁に続く

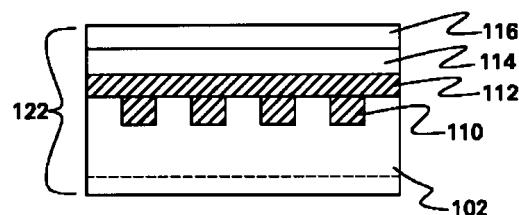
(54) 【発明の名称】 相互接続部支持燃料電池アセンブリ、プレフォーム及び製造方法

## (57) 【要約】

【課題】燃料電池アセンブリ 1 0 0 は、少なくとも 2 つの電極 1 1 2、1 1 6 及び電解質 1 1 4 を含む少なくとも 1 つの燃料電池 1 1 8 を含む。

【解決手段】相互接続部構造 1 0 2 は、除去可能な犠牲材料 1 1 0 により当初規定される少なくとも 1 つの流路 1 0 4 を含む。燃料電池アセンブリを形成する方法は、少なくとも 1 つの流路を有する相互接続部構造を提供する工程と、流路の中へ犠牲材料を付着させる工程と、相互接続部構造及び犠牲材料の上に電極又は電極 / 電解質材料を付着させる工程と、犠牲材料を除去するように燃料電池を処理する工程とを含む。

【選択図】 図 6



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも 2 つの電極 1 1 2、1 1 6 及びそれらの間に挿入された電解質 1 1 4 を含む少なくとも 1 つの燃料電池 1 1 8 と、

前記電極 1 1 2、1 1 6 の少なくとも一方又は前記電解質 1 1 4 と密接に接触し、除去可能な犠牲材料 1 1 0 により当初規定される少なくとも 1 つの流路 1 0 4 を含み、前記電極 1 1 2、1 1 6 及び前記電解質 1 1 4 の支持を行う相互接続部構造 1 0 2 とを具備する燃料電池アセンブリ 1 0 0。

## 【請求項 2】

前記電解質 1 1 4 はほぼガスを透過できないような厚さを有する請求項 1 記載の燃料電池アセンブリ 1 0 0。 10

## 【請求項 3】

前記電解質 1 1 4 の厚さは約 50  $\mu\text{m}$  までである請求項 2 記載の燃料電池アセンブリ 1 0 0。

## 【請求項 4】

前記相互接続部構造 1 0 2 は薄い成形金属、ステンレス鋼、輝コバルト鉬、セラミック、 $\text{LaCrO}_3$ 、 $\text{CoCr}_2\text{O}_4$ 、Inconel (商標) 600、Inconel (商標) 601、Hastelloy (商標) - X、Hastelloy (商標) - 230 及びそれらの組み合わせのうちの 1 つから形成されている請求項 1 記載の燃料電池アセンブリ 1 0 0。 20

## 【請求項 5】

前記犠牲材料 1 1 0 はポリマー、塩、ポリマーフォーム、可溶性物質、ポリウレタン、パラフィン及び低密度発泡ポリマーから成る材料群から選択された材料から形成されている請求項 1 記載の燃料電池アセンブリ 1 0 0。

## 【請求項 6】

相互接続部支持構造 1 0 2 と、

前記相互接続部支持構造 1 0 2 の内部に配置された少なくとも 1 つの流路 1 0 4 と、

前記流路 1 0 4 の内部に配置され、その上に付着のための面を形成する除去可能な犠牲材料 1 1 0 とを具備する相互接続部プレフォーム。 30

## 【請求項 7】

前記犠牲材料 1 1 0 はポリマー、ポリマーフォーム、ポリウレタン、塩、パラフィン、低密度発泡ポリマー及び可溶性物質のうちの 1 つから形成されている請求項 6 記載の相互接続部プレフォーム。 40

## 【請求項 8】

前記犠牲材料 1 1 0 は加熱、化学的エッチング、アブレーション又は溶解により除去可能である請求項 6 記載の相互接続部プレフォーム。

## 【請求項 9】

燃料電池アセンブリを形成する方法において、

少なくとも 1 つの流路を有する相互接続部構造を提供する工程と、

前記少なくとも 1 つの流路の中へ犠牲材料を付着させる工程と、 40

前記相互接続部構造及び前記犠牲材料の上に電極及び電解質のうちの少なくとも一方を付着させる工程と、

前記犠牲材料を除去するように前記燃料電池アセンブリを処理する工程から成る方法。

## 【請求項 10】

前記電極及び電解質材料のうちの少なくとも一方を付着させる工程は、スパッタリング、ゾル-ゲル、テープカレンダリング、ジェット蒸気付着、拡張熱プラズマ付着、電気泳動付着、プラズマエンハンスド化学気相成長、CVD、PVD 又はそれらの組み合わせから成る方法群から選択された方法から成る請求項 9 記載の燃料電池を形成する方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【 0 0 0 1 】

本発明は一般に燃料電池に関し、特に相互接続部支持燃料電池アセンブリ、プレフォーム及び製造方法に関する。

## 【 背景技術 】

## 【 0 0 0 2 】

燃料電池、例えば、固体酸化物燃料電池（S O F C）は、大規模発電、配電及び自動車を含む数多くの用途に適用することが可能な電気化学的装置である。重要な努力目標の1つは、特に表面積の大きな電極及び電解質材料を製造するための費用効率の高い方法を開発することである。

## 【 0 0 0 3 】

これまで、電池の製造には陽極支持、陰極支持又は電解質支持の方法が使用されていた。これらの構成要素はそれぞれ薄いのが望ましいが、通常、陽極、陰極及び電解質は全てもろいセラミックから製造されている。必然的に、従来の燃料電池においては、セル製造時の支持を行うために、これらの構成要素の少なくとも1つを厚くしなければならない。従って、燃料電池製造に際して支持方法を改善する必要がある。

## 【 考案の開示 】

## 【 課題を解決するための手段 】

## 【 0 0 0 4 】

燃料電池アセンブリは、電解質により分離された少なくとも2つの電極を含む燃料電池と、通常は相互接続部構造を介して電極に試薬を配分する手段とを含む。相互接続部構造は、除去可能な犠牲材料により当初規定される少なくとも1つの流路を含む。燃料電池アセンブリを形成する方法は、少なくとも1つの流路を有する相互接続部構造を提供する工程と、流路の中へ犠牲材料を付着させる工程と、相互接続部構造及び犠牲材料の上に電極又は電極/電解質材料を付着させる工程と、犠牲材料を除去するように燃料電池を処理する工程とを含む。

## 【 発明を実施するための最良の形態 】

## 【 0 0 0 5 】

燃料電池、例えば、固体酸化物燃料電池（S O F C）は、イオン電導層を介して燃料とオキシダントを電気化学的に組み合わせることにより電気を発生するエネルギー変換装置である。図1に示すように、平面燃料電池10の一例は相互接続部分12と、電解質18により分離された一对の電極、すなわち、陰極14及び陽極16とを具備する。各々の燃料電池10は、直列又は並列に、あるいは直列と並列を組み合わせることで積み重ねられて、合計出力を発生することができる燃料電池スタックシステム又は構造を形成することが可能である繰り返し電池ユニット20である。

## 【 0 0 0 6 】

相互接続部分12は陰極14と密接に接触する複数の空気流路24と、隣接する繰り返し電池ユニット20の陽極16と密接に接触する複数の燃料流路26とを規定している。ただし、空気流路24が陽極16と接触し、燃料流路26が陰極14と接触していても良い。動作中、燃料流れ28は燃料流路26に供給され、通常は加熱空気である空気流れ30は空気流路24に供給される。

## 【 0 0 0 7 】

図2に示すように、例えば、天然ガスである燃料流れ28は陽極16へ送り出され、酸化反応を受け、外部電気回路32へ電子を放出する。空気流れ30は陰極14へ送り出され、外部電気回路32から電子を受け取り、還元反応を受ける。電解質18は陽極16と陰極14との間でイオンを導通させる。電子の流れは直流電気を発生し、このプロセスはいくつかの排気ガスと、熱を発生させる。

## 【 0 0 0 8 】

一例の管状燃料電池50は、図3に示すように、内側陰極管52と、外側陽極管54と、それらの間に配置された電解質層56とを具備する。陰極管54上に相互接続部58が配置され、電解質層56と密接に接触している。各管状燃料電池50は、直列又は並列に、

10

20

30

40

50

あるいは直列と並列を組み合わせる互いに結束されて、総合的に出力を発生することができる燃料電池束又は構造を形成することが可能である繰返し電池ユニットである。

【0009】

動作中、陰極管52内部に空気流れ60が供給され、外側陽極管52の外表面には燃料流れ62が供給される。加熱された空気流れ60と燃料流れ62は先に説明した構成と同様に電気化学的に反応する。

【0010】

1つのスタック又は束における個別の電池の数は燃料電池システムの電圧を決定し、アンペア数定格は主として電極の表面積によって決まる。重要な努力目標の1つは、各々が抵抗損失を減少させるために相対的に薄い横断面を有し、製造及び組み立てにかかる費用を最小限に抑えるために大きな表面積を有するような陽極材料、陰極材料及び電解質材料を製造する費用効率の高い方法を開発することである。

10

【0011】

本発明の一実施例に従って、相互接続部支持平面燃料電池100を図4から図7に示す。

【0012】

相互接続部分102は、相互接続部分102の本体の中に配置された複数の流体流路104を規定する。流体流路104の一部は空気流路106であり、流体流路104の一部は燃料流路108である。相互接続部分102の主な機能は、1つの繰返し可能電池ユニットの陽極を隣接する電池ユニットの陰極に電気的に接続することである。更に、相互接続部分102は均一な電流分布を示すべきであり、ガスを透過してはならず、還元環境と酸化環境の双方で安定しているべきであり、且つ多様な温度で電子流れを支援するために適切な電導率を有していなければならない。相互接続部分102は、薄い成形金属、ステンレス鋼、輝コバルト鈳、セラミック、 $\text{LaCrO}_3$ 、 $\text{CoCr}_2\text{O}_4$ 、Inconel (商標) 600、Inconel (商標) 601、Hastelloy (商標) - X、Hastelloy (商標) - 230及びそれらの組み合わせを含むが、それらには限定されない、上述のような特性を有する多数の材料から製造できる。相互接続部分102は、通常、約0.1mmから約5mmの範囲の厚さを有し、約0.25mmから約0.5mmの範囲の厚さを有するのが好ましい。

20

【0013】

電池の製造を支援するため、相互接続部分102は電極材料又は電解質材料を付着させるか、被覆するか、又は他の方法で配置する(その後、付着させる)ための適切な表面を提供しなければならない。従って、図5に示すように、付着に適する相対的に一様な支持面を相互接続部分102の上に形成するために、流体流路104の少なくとも一部は犠牲材料110で充填される。犠牲材料110は流体流路104を埋め、電極材料又は電解質材料を付着させるための一時的基板を形成する。相互接続部分102を電池製造の支持構造として使用することにより、相互接続部分102の上に層ごとの付着を行うことができる低コストで面積の広い製造メカニズムが得られる。相互接続部分102は一様な横断面又は拡張する横断面、あるいは管状、方形又はその他の金属成形可能な形状を持つ流体流路104を有することができる。

30

【0014】

犠牲材料110は、電極材料又は電解質材料の付着のための一時的基板を形成し且つ付着プロセスが完了した後に適切な処理により除去されることが可能である任意の材料から形成できる。犠牲材料110は、例えば、ポリマー、塩、ポリマーフォーム、可溶性物質、ポリウレタン、パラフィン、低密度発泡ポリマーなどであっても良い。犠牲材料110を除去するための方法としては、加熱、化学的エッチング、アブレーション、溶解又は対応する犠牲材料110に適する何らかの除去方法などが考えられる。

40

【0015】

陽極層112は、通常は、図6に示すように、付着又は陽極シートなどを乗せることにより相互接続部102及び犠牲材料110の基板の上に配置される。電極材料(陽極又は陰極)又は電解質材料、あるいはその組み合わせを相互接続部102及び犠牲材料110の

50

基板のプレフォームの上に最初に付着させるか、又はその他の方法により形成しても良いであろうということは認識される。陽極層 112 を第 1 の層として使用することは便宜上の単なる一例である。

【0016】

陽極層 112 の主な目的は、燃料電池内へ導入された燃料の電気化学的酸化のための反応場所を提供することである。更に、陽極材料は燃料還元環境において安定しているべきであり、燃料電池の動作条件における燃料ガスの反応に対して適切な電子電導率、表面積及び触媒作用を有していなければならない、且つガスを反応場所まで搬送できるようにするために十分な多孔率を有していなければならない。陽極は、金属、ニッケル (Ni)、Ni 合金、銀 (Ag)、銅 (Cu)、金、プラチナ、パラジウム、ロジウム及びイリジウムなどの貴金属、コバルト、ルテニウム、Ni - 酸化イットリウム安定化酸化ジルコニウム (YSZ) サーメット、Cu - YSZ サーメット、Ni - 酸化セリウムサーメット、セラミック又はそれらの組み合わせを含むが、これらには限定されない、上述のような特性を有する多数の材料から製造できる。

10

【0017】

図 6 に示すように、陽極層 112 の上には通常は付着によって電解質層 114 が配置される。電解質層 114 の主な目的は、陽極層 112 と陰極層との間でイオンを導通させることである。電解質層 114 は一方の電極で発生されたイオンを他方の電極へ搬送して、電子流れからの電荷の平衡を保ち且つ燃料電池 100 における電気回路を完成させる。更に、電解質層 114 は燃料電池 100 内で燃料をオキシダントから分離する。従って、電解質層 114 は還元環境と酸化環境の双方で安定していなければならない、反応ガスを透過してはならず、且つ動作条件の下で適切な電導率を有していなければならない。通常、電解質層 114 は電子的にほぼ絶縁性である。電解質層 114 は、 $ZrO_2$ 、YSZ、不純物添加酸化セリウム、 $CeO_2$ 、三二酸化ビスマス、酸化黄緑石、不純物添加ジルコン酸塩、酸化灰チタン石材料及びそれらの組み合わせを含むが、これらには限定されない、上述のような特性を有する多数の材料から製造できる。

20

【0018】

電解質層 114 は、通常、電解質がほぼガスを透過しないような厚さを有する。電解質層 114 の厚さは通常は  $50\text{ }\mu\text{m}$  未満であり、約  $0.1\text{ }\mu\text{m}$  から約  $10\text{ }\mu\text{m}$  の範囲の厚さであるのが好ましく、約  $1\text{ }\mu\text{m}$  から約  $5\text{ }\mu\text{m}$  の範囲の厚さであるのが最も好ましい。

30

【0019】

図 6 に示すように、繰り返し可能電池ユニット 118 を完成するために電解質層 114 の上に陰極層 116 が配置される。陰極層 116 の主な目的は、オキシダントの電気化学的還元のための反応場所を提供することである。従って、陰極層 116 は酸化環境の中で安定していなければならない、燃料電池の動作条件におけるオキシダントガスの反応に対して十分な電子電導率、表面積及び触媒反応を有していなければならない、且つガスを反応場所まで搬送できるように十分な多孔率を有していなければならない。陰極層 116 は、導電性酸化物、灰チタン石、不純物添加  $LaMnO_3$ 、Sr 添加  $LaMoO_4$  (SLM)、スズ添加酸化インジウム ( $In_2O_3$ )、ストロンチウム添加  $PrMnO_3$ 、 $LaFeO_3$  -  $LaCoO_3$ 、 $RuO_2$  - YSZ、La 輝コバルト鉱及びそれらの組み合わせを含むが、これらには限定されない、上述のような特性を有する多数の材料から製造できる。

40

【0020】

電極 112、116 は、通常、例えば、約  $1\text{ m}^2/\text{g}$  から約  $1000\text{ m}^2/\text{g}$  の範囲の、電気化学的反応を支援するのに十分な表面積を有する。電極 112、116 は、通常、約  $80\text{ }^\circ\text{C}$  から約  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  の間、好ましくは約  $300\text{ }^\circ\text{C}$  から約  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  の間で熱的に安定している。

【0021】

燃料電池 100 は、流体流路 104 から犠牲材料 110 を除去するために処理され、図 7 に示すように、流体流路 104 が開放される。

【0022】

50

燃料電池 100 は固体酸化物燃料電池、プロトン交換膜又は固体ポリマー燃料電池、溶融炭酸塩燃料電池、リン酸燃料電池、アルカリ燃料電池、ダイレクトメタノール燃料電池、再生燃料電池、亜鉛空気燃料電池又はプロトニックセラミック燃料電池を含むが、これらには限定されない、流路を必要とするどのような種類の燃料電池であっても良い。

#### 【0023】

図 8 は、平面燃料電池 100 のような相互接続部支持燃料電池を製造する方法の一例を示すフローチャートである。

#### 【0024】

まず、上に乗せるために相互接続部分を位置決めする (S1)。相互接続部分は、例えば、ステンレス鋼などの打ち抜き金属薄板から製造できる。次に、電極及び電解質を層ごとに付着させるための基板を形成するために、相互接続部分の流体流路の中に犠牲材料を付着させる (S2)。例えば、発泡材料である犠牲材料は、流体流路を埋めるように噴霧又は注入されるか、あるいはその他の方法により塗布される。犠牲材料がこの後の電極材料又は電解質材料の付着を妨害するのを防止するように、必要な中間工程が実行される。中間工程の一例は、流体流路を被覆するようにほぼ平坦なシートを相互接続部の上に配置することであろう。次に、相互接続支持部分の両側で流体流路開口を介して犠牲材料を導入し、発泡材料が流路に完全に充満して、上部シートと接触するまで、流路を充填する。次に、相互接続部分からシートを除去し、次の層の付着を完了することができる。中間工程の別の例は、流体流路が完全に満たされるか、又はわずかなあふれを生じるまで、犠牲材料を流路に導入することである。その後、基板を平坦にし、平坦で清浄な付着のための面を形成するように、相互接続部から余剰の又はあふれた犠牲材料をかき取る。

#### 【0025】

次に、電極材料の一方、この場合には陽極材料を相互接続部 - 犠牲材料基板の上に付着させる (S3)。次に、電解質材料を陽極材料の上に付着させる (S4)。その後、陰極材料を電解質材料の上に付着させる (S5)。最後に、相互接続部支持燃料電池を処理して、犠牲材料を除去する (S6)。

#### 【0026】

電極材料又は電解質材料を基板上に付着又はその他の方法により配置する方法には、スパッタリング、ゾル - ゲル、テープカレンダリング、ジェット蒸気付着、拡張熱プラズマ付着 (本出願と共通の譲受人に譲渡された同時係属出願、書類番号 120505、名称「Method for Manufacturing Fuel Cells and Articles Made Therewith」の中で更に詳細に述べられている)、電気泳動付着、プラズマエンハンスド化学気相成長、CVD、PVDなどを含めて数多くあるが、これらには限定されない。

#### 【0027】

本発明を図示し且つ説明したが、本発明の趣旨から全く逸脱せずに様々な変形及び置き換えを行うことが可能であるため、本発明はここで示す詳細に限定されるべきではない。従って、日常の実験作業程度を使用して当業者がここで開示した発明の他の変形及び等価の構成を思い浮かべることは可能であり、そのような変形及び等価の構成は全て特許請求の範囲により定義される本発明の趣旨の範囲内に入ると考えられる。

#### 【0028】

特許請求の範囲に示されている図中符号は本発明の範囲を狭めるのではなく、理解を容易にすることを意図している。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0029】

【図 1】本発明の一実施例としての平面燃料電池 10 の概略図。

【図 2】陽極 16 と陰極 14 との間の電子の流れを示す、平面燃料電池 10 の概略部分横断面図。

【図 3】本発明の一実施例の管状燃料電池 50 の概略図。

【図 4】相互接続部分 102 の横断面図。

【図 5】犠牲材料 1 1 0 で充填された相互接続部分 1 0 2 の横断面図。

【図 6】犠牲材料 1 1 0 で充填された相互接続部分 1 0 2 の上に配置された陽極層 1 1 2 の横断面図。

【図 7】犠牲材料 1 1 0 が流体流路 1 0 4 から除去された燃料電池 1 0 0 の横断面図。

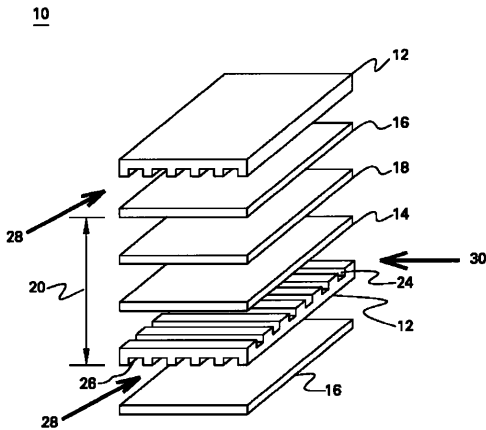
【図 8】平面燃料電池 1 0 0 などの相互接続部支持燃料電池の製造方法の一例を示すフローチャート。

【符号の説明】

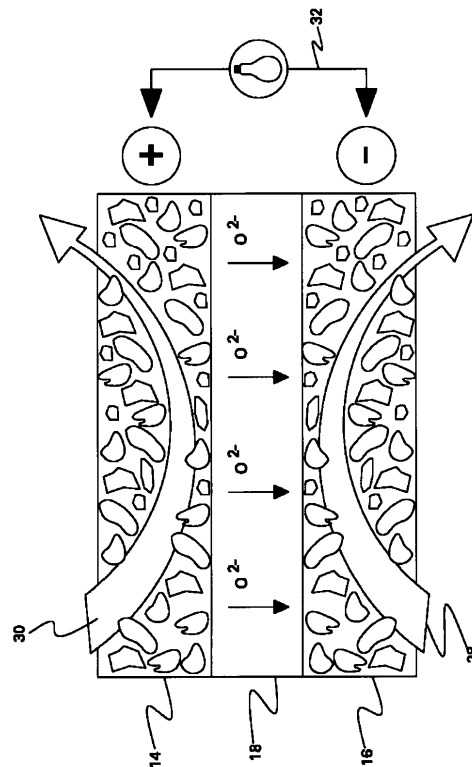
【 0 0 3 0 】

1 0 0 ... 相互接続部支持平面燃料電池、1 0 2 ... 相互接続部分、1 0 4 ... 流体流路、1 0 6 ... 空気流路、1 0 8 ... 燃料流路、1 1 0 ... 犠牲材料、1 1 2 ... 陽極層、1 1 4 ... 電解質層、1 1 6 ... 陰極層、1 1 8 ... 繰り返し可能電池ユニット

【図 1】

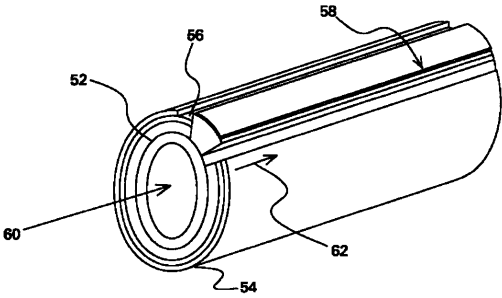


【図 2】

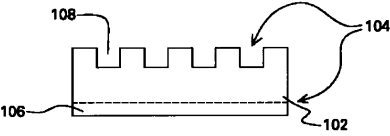


【図 3】

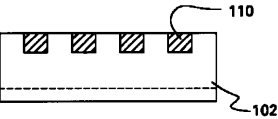
50



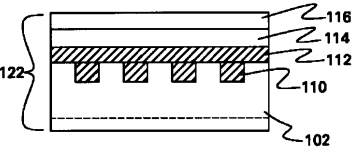
【図 4】



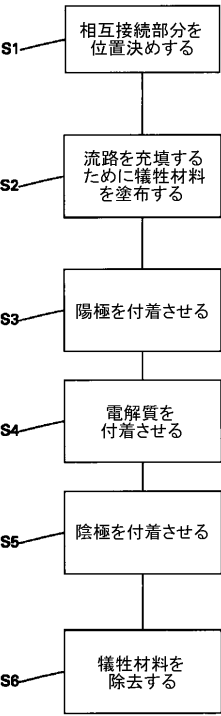
【図 5】



【図 6】



【図 8】





## フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

F I

テーマコード(参考)

H 0 1 M 8/12

(72)発明者 チャン・ウェイ

アメリカ合衆国、ニューヨーク州、ニスカユナ、ノース・ウッド・コート、1 0 1 3 番

(72)発明者 ケネス・ウォルター・プロウォール

アメリカ合衆国、ニューヨーク州、ニスカユナ、セージモント・コート、1 2 6 5 番

F ターム(参考) 5H018 AA03 AA04 AA05 AA06 AA07 AS02 AS03 AS07 BB00 BB01

BB07

5H026 AA03 AA04 AA05 AA06 AA08 BB00 BB01 BB04 CC03 EE02

EE08 EE13 HH03

【外国語明細書】

## 1. Title of Invention

INTERCONNECT SUPPORTED FUEL CELL ASSEMBLY, PREFORM AND  
METHOD OF FABRICATION

## 2. Claims

1. A fuel cell assembly 100 comprising:

at least one fuel cell 118 including at least two electrodes 112, 116 and an electrolyte 114 interposed therebetween, and

an interconnect structure 102 in intimate contact with at least one of said electrodes 112, 116 or said electrolyte 114, said interconnect structure 102 including at least one flow channel 104 initially defined by a removable sacrificial material 110, which interconnect structure 102 provides support for said electrodes 112, 116 and said electrolyte 114.

2. A fuel cell assembly 100 in accordance with claim 1, wherein said electrolyte 114 has a thickness such that said electrolyte 114 is substantially gas impermeable.

3. A fuel cell assembly 100 in accordance with claim 2, wherein said electrolyte 114 thickness is up to about 50 $\mu$ m thick.

4. A fuel cell assembly 100 in accordance with claim 1, wherein said interconnect structure 102 comprises one of a thin-formed metal, stainless steel, cobaltite, ceramic,  $\text{LaCrO}_3$ ,  $\text{CoCr}_2\text{O}_4$ , Inconel 600, Inconel 601, Hastelloy X, and HA-230 and combinations thereof.

5. A fuel cell assembly 100 in accordance with claim 1, wherein said sacrificial material 110 comprises a material selected from the group consisting of a polymer, a salt, a polymer foam, soluble materials, polyurethane, paraffin, and low density foamed polymers

6. An interconnect preform comprising:

an interconnect support structure 102;  
at least one flow channel 104 disposed within said interconnect support structure 102; and  
a removable sacrificial material 110 disposed within said flow channel 104 to provide a surface for deposition thereupon.

7. An interconnect preform in accordance with claim 6, wherein said sacrificial material 110 comprises one of a polymer, a polymer foam, polyurethane, salt, paraffin, low density foamed polymer, and soluble materials.

8. An interconnect preform in accordance with claim 6, wherein said sacrificial material 110 is removable by heating, chemical etching, ablation, or dissolution.

9. A method of forming a fuel cell assembly, said method comprising the steps of:

providing an interconnect structure having at least one flow channel therein;  
depositing a sacrificial material into said at least one flow channel;  
depositing at least one of an electrode and an electrolyte material upon said interconnect structure and said sacrificial material; and  
processing said fuel cell assembly so as to remove said sacrificial material.

10. A method of forming a fuel cell assembly in accordance with claim 9, wherein said step of depositing at least one of an electrode and an electrolyte material comprises a method selected from the group consisting of sputtering, sol-gel, tape calendaring, jet vapor deposition, expanding thermal plasma deposition, electrophoretic deposition, plasma enhanced chemical vapor deposition, CVD, PVD or combinations thereof.

### **3. Detailed Description of Invention**

#### **BACKGROUND OF INVENTION**

This invention relates generally to fuel cells and more specifically to interconnect supported fuel cell assemblies, preforms and methods of fabrication.

Fuel cells, for example Solid Oxide Fuel Cells (SOFC), are electrochemical devices that have many potential applications including large-scale power generation, distributed power and automobiles. One of the key challenges is to develop cost effective processes to manufacture electrode and electrolyte materials, especially with large surface areas.

In the past, anode, cathode or electrolyte supported approaches were used for cell fabrication. It is desirable for each of these components to be thin but the anode, cathode and electrolyte are all typically made of fragile based ceramics. Necessarily, in conventional fuel cells, in order to provide support for cell fabrication, at least one of the components must be thick.

Accordingly, there is a need for an improved support approach for fuel cell fabrication.

#### **SUMMARY OF INVENTION**

A fuel cell assembly includes at least one fuel cell including at least two electrodes separated by an electrolyte, as well as a means for distributing reagent to the electrodes, typically via an interconnect structure. The interconnect structure includes at least one flow channel initially defined by a removable sacrificial material. A method of forming the fuel cell assembly includes the steps of providing the interconnect structure having the at least one flow channel, depositing a sacrificial material into the flow channel, depositing electrode/electrolyte materials upon the interconnect structure and the sacrificial material, and processing the fuel cell so as to remove the sacrificial material.

## DETAILED DESCRIPTION

A fuel cell, for example a Solid Oxide Fuel Cell (SOFC), is an energy conversion device that produces electricity by electrochemically combining a fuel and an oxidant across an ionic conducting layer. An exemplary planar fuel cell 10 comprises an interconnect portion 12, a pair of electrodes, a cathode 14 and an anode 16, separated by an electrolyte 18, as shown in Figure 1. Each fuel cell 10 is a repeat cell unit 20 capable of being stacked together in series, in parallel or both to form a fuel cell stack system or architecture capable of producing a summed output.

Interconnect portion 12 defines a plurality of airflow channels 24 in intimate contact with the cathode 14 and a plurality of fuel flow channels 26 in intimate contact with the anode 16 of an adjacent cell repeat unit 20, or vice versa. During operation, a fuel flow 28 is supplied to fuel flow channels 26 and an airflow 30, typically heated air, is supplied to the airflow channels 24.

As shown in Figure 2, the fuel flow 28, for example natural gas, is fed to the anode 16 and undergoes an oxidation reaction and releases electrons to an external electric circuit 32. The airflow 30 is fed to the cathode 14 and accepts electrons from the external electric circuit 32 and undergoes a reduction reaction. The electrolyte 18 conducts ions between the anode 16 and the cathode 14. The electron flow produces direct current electricity and the process produces certain exhaust gases and heat.

An exemplary tubular fuel cell 50 comprises an inner cathode tube 52, an outer anode tube 54, and an electrolyte layer 56 disposed therebetween, as shown in Figure 3. An interconnect 58 is disposed on the cathode tube 54 and is in intimate contact with the electrolyte layer 56. Each tubular fuel cell 50 is a repeat cell unit capable of being bundled together in series, in parallel or both to form a fuel cell bundle or architecture capable of producing a summed output.

During operation, an airflow 60 is supplied within inner cathode tube 52 and a fuel flow 62 is supplied upon the outer surface of outer anode tube 54. The heated airflow

60 and the fuel flow 62 electrochemically react in the same manner as discussed above.

The number of individual cells in a stack or bundle determines the voltage of the fuel cell system, and amperage rating is determined, in large part, by the surface area of the electrodes. One of the key challenges is to develop cost effective processes to manufacture anode, cathode and electrolyte materials, each having a relatively thin cross-sections, to reduce resistive losses, with large surface areas to minimize fabrication and assembly costs.

In accordance with one embodiment of the instant invention, an interconnect supported planar fuel cell 100 is shown in FIGS. 4-7.

An interconnect portion 102 defines a plurality of fluid flow channels 104 disposed within the body of the interconnect portion 102. A portion of the fluid flow channels 104 are airflow channels 106 and a portion of the fluid flow channels 104 are fuel flow channels 108. The primary function of the interconnect portion 102 is to electrically connect the anode of one repeatable cell unit to the cathode of an adjacent cell unit. In addition, the interconnect portion 102 should provide uniform current distribution, should be impermeable to gases, stable in both reducing and oxidizing environments and adequately conductive to support electron flow at a variety of temperatures. The interconnect portion 102 can be made of a number of materials having these properties, including but not limited to, thin-formed metal, stainless steel, cobaltite, ceramic,  $\text{LaCrO}_3$ ,  $\text{CoCr}_2\text{O}_4$ , Inconel 600, Inconel 601, Hastelloy X, and Hastelloy-230 and combinations thereof. The interconnect portion 102 typically has a thickness in the range between about 0.1mm to about 5mm and preferably between about 0.25mm to about 0.5 mm.

In order to support cell fabrication, the interconnect portion 102 must provide an appropriate surface for depositing, coating or otherwise disposing (hereinafter deposition) electrode or electrolyte materials. Accordingly, at least a portion of the fluid flow channels 104 are filled with a sacrificial material 110 to provide a relatively

uniform support surface on interconnect portion 102, suitable for deposition, as shown in Figure 5. The sacrificial material 110 fills the fluid flow channels 104 and provides a temporary substrate for deposition of electrode or electrolyte materials. The use of the interconnect portion 102 as a support structure for cell fabrication provides a low-cost, large-area fabrication mechanism allowing for layer-by-layer deposition upon the interconnect portion 102. Interconnect portion 102 can have a fluid flow channel 104 with a uniform cross-section or a divergent cross-section, a tubular, rectangular or other metal-formable geometry.

The sacrificial material 110 can be made of any material that can provide a temporary substrate for deposition of the electrode or electrolyte materials and be removed with appropriate processing after the deposition process is completed. The sacrificial material 110 can be, for example, a polymer, a salt, a polymer foam, soluble materials, polyurethane, paraffin, low density foamed polymers or the like. Processes for removal of the sacrificial material 110 can include heating, chemical etching, ablation, dissolution or any appropriate removal process for the corresponding sacrificial material 110.

An anode layer 112 is disposed upon the interconnect portion 102 and the sacrificial material 110 substrate, typically via deposition or by placement of an anode sheet or the like, as shown in Figure 6. It is recognized that either electrode material (anode or cathode) or the electrolyte material or a combination thereof could be initially deposited or otherwise provided upon the interconnect portion 102 and sacrificial material 110 substrate preform. The use of the anode layer 112 as the first layer is for purpose of example only.

The main purpose of anode layer 112 is to provide reaction sites for the electrochemical oxidation of a fuel introduced into the fuel cell. In addition, the anode material should be stable in the fuel-reducing environment, have adequate electronic conductivity, surface area and catalytic activity for the fuel gas reaction at the fuel cell operating conditions and have sufficient porosity to allow gas transport to the reaction sites. The anode can be made of a number of materials having these

properties, including but not limited to, metal, nickel (Ni), Ni alloy, nickel (Ni), Ni alloy, silver (Ag), copper (Cu), noble metals, gold, platinum, palladium, rhodium and iridium, cobalt, ruthenium, Ni-yttria stabilized zirconia (YSZ) cermet, Cu-YSZ cermet, Ni-ceria, cermet, ceramics or combinations thereof.

An electrolyte layer 114 is disposed upon the anode layer 112, typically via deposition, as shown in Figure 6. The main purpose of electrolyte layer 114 is to conduct ions between the anode layer 114 and a cathode layer. The electrolyte layer 114 carries ions produced at one electrode to the other electrode to balance the charge from the electron flow and complete the electrical circuit in the fuel cell 100. Additionally, the electrolyte 114 separates the fuel from the oxidant in the fuel cell 100. Accordingly, the electrolyte 114 must be stable in both the reducing and oxidizing environments, impermeable to the reacting gases and adequately conductive at the operating conditions. Typically, the electrolyte layer 114 is substantially electronically insulating. The electrolyte layer 114 can be made of a number of materials having these properties, including but not limited to,  $ZrO_2$ , YSZ, doped ceria,  $CeO_2$ , Bismuth sesquioxide, pyrochlore oxides, doped zirconates, perovskite oxide materials and combinations thereof.

Electrolyte layer 114 typically has a thickness such that electrolyte is substantially gas impermeable. The thickness of electrolyte layer 114 is typically less than  $50\mu m$ , preferably in the range between about  $0.1\mu m$  thick to about  $10\mu m$ , and most preferably in the range between about  $1\mu m$  thick to about  $5\mu m$  thick.

A cathode layer 116 is disposed upon the electrolyte 114 to complete the repeatable cell unit 118, as shown in Figure 6. The main purpose of cathode layer 116 is to provide reaction sites for the electrochemical reduction of the oxidant. Accordingly, the cathode layer 116 must be stable in the oxidizing environment, have sufficient electronic conductivity, surface area and catalytic activity for the oxidant gas reaction at the fuel cell operating conditions and have sufficient porosity to allow gas transport to the reaction sites. The cathode layer 116 can be made of a number of materials having these properties, including but not limited to, an electrically conductive oxide,



perovskite, doped  $\text{LaMnO}_3$ , Sr-doped  $\text{LaMnO}_4$  (SLM), tin doped Indium Oxide ( $\text{In}_2\text{O}_3$ ), Strontium-doped  $\text{PrMnO}_3$ ,  $\text{LaFeO}_3$ - $\text{LaCoO}_3$ ,  $\text{RuO}_2$ -YSZ, La Cobaltite, and combinations thereof.

Electrodes 112, 116 typically have a surface area sufficient to support electrochemical reaction, for example in the range between about 1  $\text{m}^2/\text{g}$  to about 1000  $\text{m}^2/\text{g}$ . Electrodes 112, 114 are typically thermally stable between about 80C to about 1000C and preferably between about 300C to about 1000C.

The fuel cell 100 is processed to remove the sacrificial material 110 from the fluid flow channels 104 and the fluid flow channels 104 are opened, as shown in Figure 7.

Fuel cell 100 can be any type of fuel cell that requires flow channels including but not limited to solid oxide fuel cells, proton exchange membrane or solid polymer fuel cells, molten carbonate fuel cells, phosphoric acid fuel cells, alkaline fuel cells, direct methanol fuel cells, regenerative fuel cells, zinc air fuel cells, or protonic ceramic fuel cells.

Figure 8 is a flow chart that depicts an exemplary process for fabrication of an interconnect supported fuel cell such as planar fuel cell 100.

First, the interconnect portion is positioned for deposition (S1). The interconnect portion can be made, for example, from stamped sheet metal such as stainless steel or the like. Next, a sacrificial material is deposited within the fluid flow channels of the interconnect portion to provide a substrate for layer-by-layer deposition of the electrodes and the electrolyte (S2). The sacrificial material, for example a foam, is sprayed, poured, or otherwise applied so as to fill the fluid flow channels. Necessary intermediate steps are taken so as to prevent the sacrificial material from interfering with subsequent deposition of the electrode or electrolyte materials. One example of an intermediate steps would be to dispose a substantially flat sheet upon the interconnect so as to cover the fluid flow channels. The sacrificial material is then introduced via the fluid flow channel openings on either side of the interconnect support and the channels are filled until the foam completely fills the channels and

contacts the top sheet. The sheet is then removed from the interconnect portion and the deposition of the next layer can be completed. Another example of an intermediate step is introducing the sacrificial material into the fluid flow channels until the channels are completely filled or slightly overflowing. Any residue or overflow of the sacrificial material is then scraped off of the interconnect so as to planarize the substrate and provide a flat, clean surface for deposition.

Next, one of the electrode materials, in this case the anode material, is deposited upon the interconnect-sacrificial material substrate (S3). Next, the electrolyte material is deposited upon the anode materials (S4). Next, the cathode material is deposited upon the electrolyte material (S5). Finally, the interconnect supported fuel cell is processed to remove the sacrificial material (S6).

Many processes can be utilized to deposit or otherwise dispose the electrode or electrolyte materials upon the substrate, including but not limited to, sputtering, sol-gel, tape calendaring, jet vapor deposition, expanding thermal plasma deposition (discussed in greater detail in co-pending, commonly assigned application, Docket Number 120505, entitled "Method for Manufacturing Fuel Cells and Articles Made Therewith," which application is hereby incorporated by reference) electrophoretic deposition, plasma enhanced chemical vapor deposition, CVD, PVD, or the like.

While the invention has been illustrated and described, it is not intended to be limited to the details shown, since various modifications and substitutions can be made without departing in any way from the spirit of the present invention. As such, further modifications and equivalents of the invention herein disclosed can occur to persons skilled in the art using no more than routine experimentation, and all such modifications and equivalents are believed to be within the spirit and scope of the invention as defined by the claims.

The reference numbers depicted in claims are intended not to narrow the scope of the inventions but to understand them easily.

## 4. Brief Description of Drawings

Figure 1 is a schematic planar fuel cell 10 as an exemplary embodiment of this invention.

Figure 2 is a schematic partial cross-section of a planar fuel cell 10 and shows an electron flow between the anode 16 and the cathode 14.

Figure 3 is a schematic tubular fuel cell 50 as an exemplary embodiment of this invention.

Figure 4 is a cross-section of an interconnect portion 102.

Figure 5 is a cross-section of an interconnect portion 102 filled with a sacrificial material 110.

Figure 6 is a cross-section of an anode layer 112 disposed upon the interconnect portion 102 filled with a sacrificial material 110.

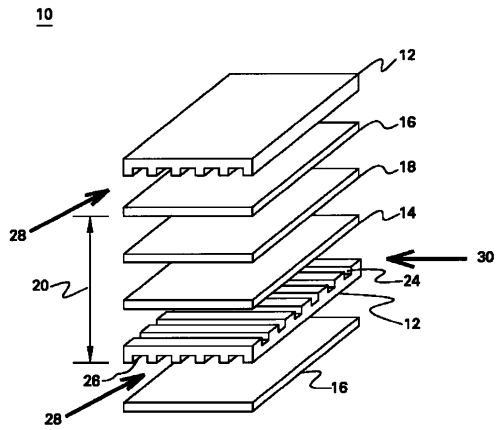
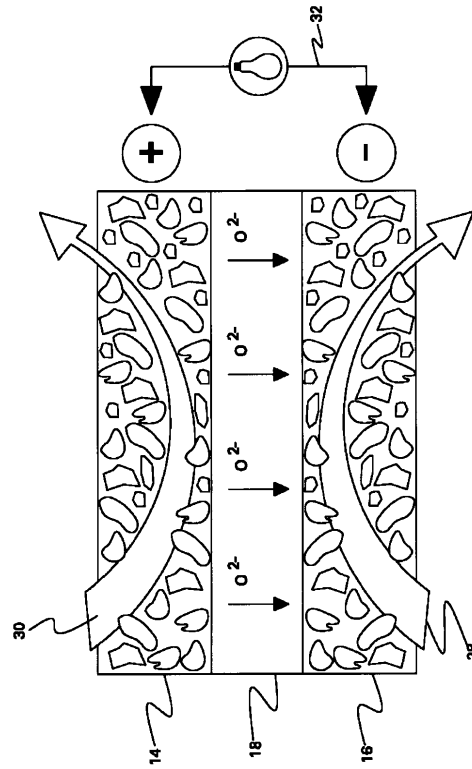
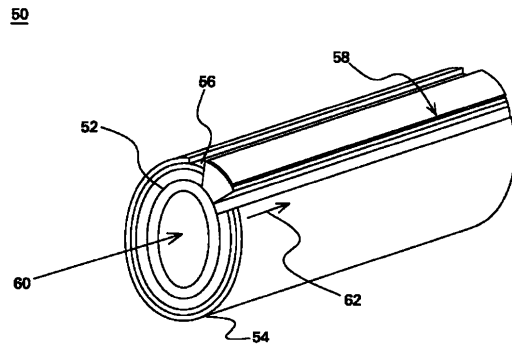
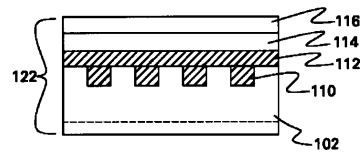
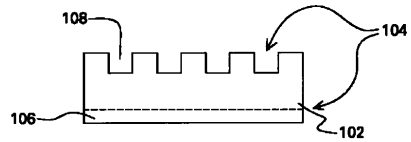
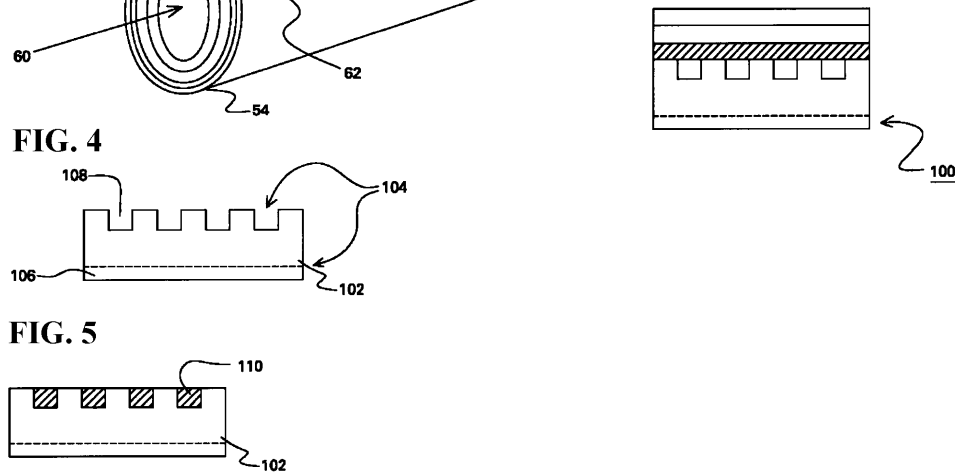
Figure 7 is a cross-section of an fuel cell 100 that the sacrificial material 110 was removed from the fluid flow channels 104.

Figure 8 is a flow chart that depicts an exemplary process for fabrication of an interconnect supported fuel cell such as planar fuel cell 100.

## 1. Abstract

A fuel cell assembly 100 includes at least one fuel cell 118 including at least two electrodes 112, 116 and an electrolyte 114. An interconnect structure 102 includes at least one flow channel 104 initially defined by a removable sacrificial material 110. A method of forming the fuel cell assembly includes the steps of providing the interconnect structure having at least one flow channel, depositing the sacrificial material into the flow channel, depositing an electrode or an electrode/electrolyte material upon the interconnect structure and the sacrificial material, and processing the fuel cell so as to remove the sacrificial material.

## 2. Representative Drawing: Figure 6

**FIG. 1****FIG. 2****FIG. 3****FIG. 6****FIG. 4****FIG. 7**

**FIG. 8**