

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2020-511754

(P2020-511754A)

(43) 公表日 令和2年4月16日(2020.4.16)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>HO 1 M 8/0258 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/0258	4 K O 2 1
<b>HO 1 M 8/0273 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/0273	5 H 1 2 6
<b>HO 1 M 8/1213 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/1213	
<b>HO 1 M 8/028 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/028	
<b>HO 1 M 8/02 (2016.01)</b>	HO 1 M 8/02	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 22 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2019-550808 (P2019-550808)  
 (86) (22) 出願日 平成30年2月22日 (2018. 2. 22)  
 (85) 翻訳文提出日 令和1年11月12日 (2019. 11. 12)  
 (86) 国際出願番号 PCT/AT2018/000008  
 (87) 国際公開番号 W02018/165683  
 (87) 国際公開日 平成30年9月20日 (2018. 9. 20)  
 (31) 優先権主張番号 GM55/2017  
 (32) 優先日 平成29年3月16日 (2017. 3. 16)  
 (33) 優先権主張国・地域又は機関  
 オーストリア (AT)

(71) 出願人 390040486  
 ブランゼー エスエー  
 オーストリア共和国 6600 ロイッテ  
 , メタルヴェルク-ブランゼー-シュトラ  
 ーセ71  
 (74) 代理人 100075166  
 弁理士 山口 巖  
 (74) 代理人 100133167  
 弁理士 山本 浩  
 (74) 代理人 100169627  
 弁理士 竹本 美奈  
 (72) 発明者 ビーネルト, クリスチャン  
 オーストリア共和国 6600 ロイッテ  
 , メタルヴェルク-ブランゼー-シュトラ  
 ーセ71, ブランゼー エスエー内  
 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気化学モジュール用の機能化された多孔質ガス案内部材

(57) 【要約】

本発明は、電気化学モジュール(20)用の多孔性又は部分的に多孔性のガス案内部材(10, 10')に関する。電気化学モジュール(20)は、少なくとも1つの電気化学的活性層を含む層構造(23)を有する少なくとも1つの電気化学セルユニット(21)と、電気化学セルユニット(21)と共に気密なプロセスガス空間(26)を形成する金属製の気密なハウジング(24; 25)とを有する。ハウジング(24; 25)は少なくとも1つの側面で電気化学セルユニット(21)の領域を越えて延在し、電気化学セルユニットに開口するプロセスガス案内空間(27; 27')を形成し、プロセスガス案内空間(27; 27')の領域にプロセスガスの供給又は排出用のガス通路開口部(28; 28')を有する。ガス案内部材(10; 10')はプロセスガス案内空間(27; 27')内の配置用に適合化され、その表面はプロセスガスとの相互作用のために機能化される。

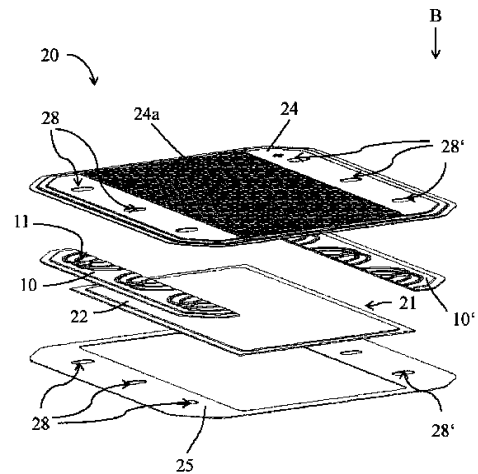


Fig. 2

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

電気化学モジュール(20)用の多孔質または少なくとも部分的に多孔質のガス案内部材(10, 10')であって、

前記電気化学モジュール(20)は、少なくとも1つの電気化学的活性層を含む層構造(23)を備えた少なくとも1つの電気化学セルユニット(21)と、該電気化学セルユニット(21)と共に気密なプロセスガス空間(26)を形成する金属製の気密なハウジング(24; 25)とを有し、

前記ハウジング(24; 25)は、少なくとも1つの側面において、前記電気化学セルユニット(21)の領域を越えて延在し、前記電気化学セルユニットに対して開口したプロセスガス案内空間(27; 27')を形成し、かつ該プロセスガス案内空間(27; 27')の領域内に、プロセスガスの供給および/または排出用の少なくとも1つのガス通路開口部(28; 28')を有し、

前記ガス案内部材(10, 10')が、前記プロセスガス案内空間(27; 27')内への配置のために適合化されており、かつ前記ガス案内部材の表面がプロセスガスとの相互作用のために機能化されていることを特徴とするガス案内部材。

**【請求項 2】**

前記ガス案内部材(10, 10')が、前記電気化学セルユニット(21)とは別体の構成要素として形成されていることを特徴とする請求項1記載のガス案内部材。

**【請求項 3】**

前記ガス案内部材(10, 10')が、前記電気化学モジュールの積層方向に沿って両側で前記ハウジングを支持するために適合化されていることを特徴とする請求項1又は2記載のガス案内部材。

**【請求項 4】**

電気化学モジュール(20')用の多孔質または少なくとも部分的に多孔質のガス案内部材(10'', 10''')であって、

前記電気化学モジュール(20')が、少なくとも1つの電気化学的活性層を含む層構造(23)を備えた少なくとも1つの電気化学セルユニット(21)と、該電気化学セルユニットと共に気密なプロセスガス空間(26)を形成する金属製の気密なハウジングとを有し、

前記ハウジングが、少なくとも1つの側面において、前記電気化学セルユニット(21)の領域を越えて延在し、前記電気化学セルユニットに対して開口したプロセスガス案内空間(27; 27')を形成し、かつ該プロセスガス案内空間の領域内に、プロセスガスの供給および/または排出用の少なくとも1つのガス通路開口部(28; 28')を有し、

前記ガス案内部材(10'', 10''')が、前記プロセスガス案内空間(27; 27')のハウジング部分として形成されており、かつ前記プロセスガス案内用の内部空間に面する前記ガス案内部材の表面が、プロセスガスとの相互作用のために機能化されていることを特徴とするガス案内部材。

**【請求項 5】**

前記ガス案内部材(10'', 10''')が、前記電気化学セルユニット(21)の金属製の支持基板(22)と一体に形成されていることを特徴とする請求項4記載のガス案内部材。

**【請求項 6】**

前記ガス案内部材(10, 10', 10'', 10''')が、反応ガスの触媒改質のために機能化されていることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項に記載のガス案内部材。

**【請求項 7】**

前記触媒改質のための機能化が、ニッケル、白金若しくはパラジウム、またはこれらの金属の酸化物のうち少なくとも1つの導入によって行われることを特徴とする請求項6記

10

20

30

40

50

載のガス案内材。

【請求項 8】

前記ガス案内材（10, 10', 10'', 10'''）が、前記反応ガスの浄化のために、特に硫黄、塩素、酸素または炭素のうち少なくとも1つに対する前記反応ガスの浄化のために機能化されていることを特徴とする、請求項1乃至5のいずれか1項に記載のガス案内材。

【請求項 9】

前記反応ガスを硫黄または塩素のうち少なくとも1つに対して浄化するための機能化が、ニッケル、コバルト、クロムまたはセリウムのうち少なくとも1つの導入によって行われることを特徴とする請求項8記載のガス案内材。

10

【請求項 10】

前記反応ガスを酸素に対して浄化するための機能化が、クロム、銅またはチタンのうち少なくとも1つの導入によって行われることを特徴とする請求項8記載のガス案内材。

【請求項 11】

前記反応ガスを炭素（煤）に対して浄化するための機能化が、チタンの導入によって行われることを特徴とする請求項8に記載のガス案内材。

【請求項 12】

前記ガス案内材（10, 10', 10'', 10'''）が、生成ガスを浄化するために、特にクロムまたは酸素のうち少なくとも1つに対して生成ガスを浄化するために機能化されていることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項に記載のガス案内材。

20

【請求項 13】

前記生成ガスをクロムに対して浄化するための機能化が、酸化物セラミックの導入によって行われ、特にCu-Ni-Mnスピネルの導入によって行われることを特徴とする請求項12記載のガス案内材。

【請求項 14】

前記酸素に対しての浄化のための機能化が、Ti、Cuまたは半化学量論的なスピネル化合物のうち少なくとも1つの導入によって行われることを特徴とする請求項12記載のガス案内材。

【請求項 15】

前記導入が、合金化によって行われるか、またはコーティング方法によって行われ、特に蒸着法、浸漬コーティング、または懸濁液またはペーストの塗布方法を用いたコーティング方法によって行われることを特徴とする請求項7、9、10、11、13又は14のいずれか1項に記載のガス案内材。

30

【請求項 16】

前記ガス案内材（10, 10', 10'', 10'''）の前記基材が、粉末合金により製造された、鉄またはクロムのうち少なくとも1つに基づくフェライト合金であることを特徴とする請求項1乃至15のいずれか1項に記載のガス案内材。

【請求項 17】

前記ガス案内材（10, 10', 10'', 10'''）が、少なくとも1つのガス案内構造（12）を有することを特徴とする請求項1乃至16のいずれか1項に記載のガス案内材。

40

【請求項 18】

少なくとも1つの電気化学的活性層を含む層構造（23）を備えた実質的に板状の電気化学セルユニット（21）と、該電気化学セルユニット（21）と共に気密なプロセスガス空間（26）を形成する金属製の気密なハウジング（24；25）とを有する電気化学モジュール（20；20'）であって、

前記ハウジング（24；25）が、少なくとも1つの側面において、前記電気化学セルユニット（21）の領域を越えて延在し、前記ハウジング（24；25）が、前記電気化学セルユニットに対して開口したプロセスガス案内空間（27；27'）を形成し、プロセスガスの供給および/または排出用のプロセスガス案内空間（27；27'）の領

50

域内に少なくとも1つのガス通路開口部(28; 28')を有する、前記電気化学モジュール(20; 20')において、

前記プロセスガス案内空間(27; 27')内で、前記ガス通路開口部の領域内に、請求項1または請求項1に従属した請求項2、3、6乃至17のいずれか1項に記載の少なくとも1つのガス案内部材(10; 10')が配置されており、該ガス案内部材(10; 10')が前記電気化学モジュール(20; 20')の積層方向(B)に沿ったハウジングの支持に用いられるか、または

前記プロセスガス案内空間の前記ハウジングが請求項4または請求項4に従属した請求項5乃至17のいずれか1項に記載の少なくとも1つのガス案内部材(10'', 10''')によって少なくとも部分的に形成されているか、のうちの少なくとも一方であることを特徴とする電気化学モジュール(20; 20')。

10

#### 【請求項19】

前記ハウジング(24; 25)が、少なくとも2つの側面において、前記電気化学セルユニット(21)の領域を越えて延在して、少なくとも1つの第1のガス案内部材(10; 10'')が割り当てられている反応ガス用の少なくとも1つのガス導入開口部(28)を有する第1のプロセスガス案内空間(27)と、少なくとも1つの第2のガス案内部材(10'; 10''')が割り当てられている生成ガス用の少なくとも1つのガス導出開口部(28')を有する第2のプロセスガス案内空間(27')とが形成されており、

前記第1のプロセスガス案内空間に割り当てられた前記第1のガス案内部材(10; 10'')の機能化が、前記第2のプロセスガス案内空間に割り当てられた前記第2のガス案内部材(10'; 10''')の機能化と異なることを特徴とする請求項18記載の電気化学モジュール。

20

#### 【請求項20】

前記第1のガス案内部材(10; 10'')が反応ガスの処理のために機能化されているか、前記第2のガス案内部材(10'; 10''')が生成ガスの後処理のために機能化されているか、のうちの少なくとも一方であることを特徴とする請求項19記載の電気化学モジュール。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

30

#### 【0001】

本発明は、請求項1および請求項4に記載の電気化学モジュールへの配置用に機能化された多孔質ガス案内部材、および請求項18に記載の電気化学モジュールに関する。

#### 【背景技術】

#### 【0002】

本発明に係る多孔質ガス案内部材は、とりわけ高温型燃料電池または固体酸化物形燃料電池(SOFC; Solid Oxide Fuel Cell)、固体酸化物形電解セル(SOEC; Solid Oxide Electrolyser Cell)およびリバーシブル固体酸化物形燃料電池(R-SOFC; Reversible SOFC)として実施可能な電気化学モジュール(電気化学的装置)に使用される。その基本構成では、電気化学モジュールの電気化学的に活性なセルが、気体透過性のアノードと気体透過性のカソードとの間に配置された気密な固体の電解質を含んでいる。アノード、電解質およびカソードのような電気化学的に活性な構成要素は、しばしば比較的薄い層として形成されている。そのために必要な機械的な支持機能は、それぞれ適切な厚さに形成された電気化学的に活性な層の1つ、例えば電解質、アノードまたはカソードによって提供されているか(これらの場合、電解質支持型セル、アノード支持型セルまたはカソード支持型セルと称せられる)、または、これらの機能層とは別体に形成された構成要素、例えばセラミックまたは金属製の支持基板によって提供されている。別体に形成された金属製の支持基板を用いる後者の場合では、そのシステムは、金属基板支持型セル(MSC; Metal substrate Supported Cell)と称せられる。MSCでは、

40

50

厚さが減少し、温度が上昇するにつれて電気抵抗が減少する電解質は、比較的薄く（例えば、 $2 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲内の厚さに）することができるので、MSCは、約 $600 \sim 800$ の比較的低い動作温度で動作することができる（これに対して、例えば電解質支持型セルは、場合によっては、 $1000$ までの動作温度で動作可能である）。それらの特定の利点に基づいて、MSCは、乗用車又は商用車の電源（APU-補助電源ユニット）などの移動用途に特に適している。

#### 【0003】

通常、電気化学的に活性なセルは、平面状の個別の素子として形成されていて、これらの素子は、対応する（金属製の）ハウジング部品（例えば、インターコネクタ、フレームプレート、ガス管路等）と共に上下に配置されて積層体（スタック）を形成し、電氣的に直列に接触させられている。対応するハウジング部品は、積層体の個々のセルにおいて、それぞれ互いに別々にプロセスガスを供給するが、これは、燃料電池の場合、アノードへの燃料（例えば、天然ガスまたはバイオガスなどの、水素または炭化水素を含有する燃料）の供給およびカソードへの酸化剤（酸素、空気）の供給、ならびに電気化学反応中に生成されるガスのアノード側およびカソード側での排出を意味する。個々の電気化学セルに関して、1つの積層体内では、電解質の両側に、それぞれ1つのプロセスガス空間が形成されているが、積層体の機能のためには、それらのプロセスガス空間が確実に互いに気密に分離されていることが非常に重要である。積層体は、閉鎖構造として実施されてもよいし、または特許文献1に例示されているように開放構造として実施されてもよく、後者の場合、その積層体では1つのプロセスガス空間のみが気密に密閉され、例えば燃料電池の場合には、燃料の供給/または反応生成物の排出がされるアノード側のプロセスガス空間のみが、気密に密閉され、一方、例えば酸化剤は積層体内を自由に流れる。

10

20

#### 【0004】

特に、天然ガスのような炭化水素含有燃料を用いた燃料電池として構成された電気化学モジュールの動作では、使用時にさまざまな課題が発生している。例えば、燃料電池は、硫黄又は塩素による燃料中の不純物に対して非常に敏感であり、そのような燃料中の不純物は、効率および寿命を著しく損なうため、事前に適切な予防策が講じられなければならない。さらに、電気化学反応のためには、炭化水素含有燃料から水素ガスを発生させなければならない。この目的のために工業的に確立されている方法の一つは、水蒸気改質であり、その際、水素が吸熱反応で遊離させられているが、この水蒸気改質は、通常、積層体の上流側に置かれて積層体とは空間的に分離された装置内で行われている。この外部改質に加えて、いわゆる内部改質が知られており、この場合、水素生成および電気化学反応は、共にアノードにおいて行われているため、改質触媒は、アノード上に直接に配置されているか、もしくはMSCの場合には、燃料電池の電気化学反応が行われる、電気化学的に活性な金属製の支持基板上に直接に配置されている。この一例が、特許文献2に記載されており、その例では、支持基板の電気化学的に活性な領域が、改質触媒で機能化されている。電気化学反応は発熱反応であり、改質が吸熱反応であるため、これら2つの反応を組み合わせることの利点は直接的な熱伝達にある。しかし、電池の活性領域、特にアノードにおいて発生し得る炭素の堆積またはコーキングは、電池の電気化学的機能を損なう可能性があるために不利である。

30

40

#### 【0005】

電気化学モジュールの効率を高めるためには、プロセスガスを電気化学的活性層に対して均一に提供することが重要である。すなわち、一方では反应用のガスを均一に供給し、他方では発生した、反応したガスを均一に排出することが重要である。その際、圧力低下は可能な限り低くすべきである。ガスの提供は、電気化学モジュール内で、通常、相互接続部（インターコネクタ）内に一体化された分配構造によって水平方向に行われる。このために、隣接する電気化学セルの電氣的接触の機能も行う相互接続部は、その両側にガス案内構造を有しているが、この構造は、例えば突起状（ノブ状）、リブ状または波状に形成されることがある。多くの用途では、相互接続部は、適切な形状の金属薄板部材によって形成されていて、該薄板部材は、積層体内の他の構成要素と同様に、重量の最適化のた

50

めに可能な限り薄く設計されている。この薄い構造では、積層体の製造中または動作中に機械的応力が生じる場合に、特に縁部領域において、溶接部（溶接シーム部）の変形および/または亀裂をもたらし易いため、必要とされる気密性の状態の確保が困難になり得る。

【0006】

水素の均一な供給は、例えば特許文献2のような内部改質の場合に、特に課題がある。というのは、水素の形成が燃料ガスの流入に依存していて、さらに燃料電池の温度分布と密接に関連しているからである。

【先行技術文献】

【特許文献】

10

【0007】

【特許文献1】欧州登録特許第1278259号明細書

【特許文献2】米国特許出願公開第2012/0121999号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の課題は、電気化学モジュールをさらに改良すると共に、電気化学モジュールの性能および/または寿命に対して良好な影響を及ぼすガス案内部材を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

20

【0009】

この課題は、請求項1及び請求項4によるガス案内部材並びに請求項18による電気化学モジュールによって解決される。本発明に係る有利な発展形態は、各従属請求項に記載されている。

【0010】

本発明によるガス案内部材は、高温型燃料電池もしくは固体酸化物形燃料電池（SOFC）、固体酸化物形電解セル（SOEC）、またはリバーシブル固体酸化物形燃料電池（R-SOFC）として実施可能な電気化学モジュールに使用される。このような電気化学モジュールの基本構造は、少なくとも1つの電気化学的活性層を含む層構造を備える電気化学セルユニット（電池装置）を特徴とするが、このセルユニットはさらに支持基板も含むことができる。ここで、電気化学的活性層は、とりわけアノード層、電解質層又はカソード層として理解することができるが、必要であれば、層構造は、他の層（例えば、電解質とカソードとの間のセリウム-ガドリニウム酸化物からなる層）を有することができる。その際に、全ての電気化学的活性層が存在する必要はなく、むしろ、層構造は、1つだけの電気化学的活性層（例えば、アノード）を有することができ、好ましくは、2つの電気化学的活性層（例えば、アノードおよび電解質）を有することもでき、さらにその他の複数の層、特に電気化学セルユニットを完成するための層を、後から追加してもよい。電気化学セルユニットは、電解質支持型セル、アノード支持型セル、またはカソード支持型セルとして形成することができる（それら名前の層は、より厚くされて、機械的に支持する機能を担う）。本発明の好ましい実施形態では、金属基板支持型セル（MSC）の場合、ガス透過性の中央領域において、好ましくは170 $\mu\text{m}$ ~1.5mmの範囲内、特に好ましくは250 $\mu\text{m}$ ~800 $\mu\text{m}$ の範囲内の厚さを有する、多孔質のプレート形状の金属製の支持基板上に、積層体が配置されている。この場合、支持基板は、電気化学セルユニットの一部を形成する。積層体の層形成は、公知の方法で行われ、好ましくは、例えばスパッタリングのようなPVD（物理蒸着）、および/または、例えばフレイム溶射もしくはプラズマ溶射のような熱コーティング（熱被覆）法、および/または、例えばスクリーンプリンティング、湿式粉末コーティングなどの湿式化学法によって行われるが、電気化学セルユニットの層構造全体を実現するために、これらの方法のいくつかを組み合わせてもよい。アノードは、通常、支持基板のすぐ後に続く電気化学的活性層であり、一方、カソードは、電解質の側で支持基板とは反対（離れる）側に形成されている。しかし、代替

30

40

50

的に、両電極の逆の配置も可能である。

#### 【0011】

アノード（例えば、MSCの場合、ニッケルと、酸化イットリウムで完全に安定化された二酸化ジルコニウムとから成る複合体で形成されるもの）だけではなく、カソード（例えば、MSCの場合、 $(La, Sr)(Co, Fe)O_3$ のような混合導電性のペロブスカイトで形成されるもの）も、ガス透過性を有するように形成されている。アノードとカソードとの間には、金属酸化物（例えば、酸化イットリウムで完全に安定化された二酸化ジルコニウム）からなる固体のセラミック材料を有する、気密な固体の電解質が形成され、これは酸素イオンに対しては伝導性を有するが、電子に対しては伝導性を有しない。あるいは、固体電解質はプロトンに対して導電性を有してもよく、これは、より新しいSOFC（例えば、金属酸化物、特に酸化バリウム - ジルコニウム、酸化バリウム - セリウム、酸化ランタン - タングステン、または酸化ランタン - ニオブから成る固体電解質）に関係する。

10

#### 【0012】

電気化学モジュールは、さらに、電気化学セルユニットと共に気密なプロセスガス空間を形成する、少なくとも1つの金属製の気密なハウジングを有する。プロセスガス空間は、電気化学セルユニットの領域では、気密な電解質によって制限される。反対側では、プロセスガス空間は、通常、相互接続部によって制限されていて、この相互接続部は、本発明では、ハウジングの一部と見なされる。相互接続部は、電気化学セルユニットの気密要素に対して気密の仕方で接続され、必要ならばプロセスガス空間の残りの境界を形成する追加のハウジング部品と組み合わせられて、特に周囲を囲むフレームプレート（フレームパネル）等と組み合わせられて、気密に接続される。MSCの場合、相互接続部の気密な接続は、好ましくは追加のハウジング部品を介する、例えば周囲を囲むフレームプレートを介する、はんだ付け接続および/または溶接接続によって行われる。周囲を囲むフレームプレートは、さらに支持基板に対しても気密に接続されており、従って、気密な電解質と共に気密なプロセスガス空間を形成する。電解質支持型セルの場合、接続は、焼結接続、または封止材（例えば、ガラスはんだ）の塗布によって行うことができる。

20

#### 【0013】

本発明において、「気密」とは、特に、十分な気密な状態における漏れ率が、標準的に、 $10^{-3} \text{ hPa} \cdot \text{dm}^3 / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$ （hPa：ヘクトパスカル、 $\text{dm}^3$ ：立方デシメートル、 $\text{cm}^2$ ：平方センチメートル、s：秒）よりも小さいことを意味する（大気中で昇圧法により測定した。この際、レムシャイト所在のDr. Wiesner社製の器具の、Integra DDVを使用し、差圧 $d p = 100 \text{ hPa}$ で測定した）。

30

#### 【0014】

ハウジングは、電気化学セルユニットの少なくとも1つの側面（側部）において、電気化学セルユニットの領域を越えて延在し、電気化学セルユニットに対して開口（解放）したプロセスガス案内空間を形成するが、プロセスガス空間の部分空間として形成する。したがって、プロセスガス空間は、（理論的には）2つの部分領域に細分化されていて、すなわち、電気化学セルユニットの層構造の直下の内部領域と、その内部領域を取り囲むプロセスガス案内空間とに細分化されている。

40

#### 【0015】

プロセスガス案内空間の領域内では、ハウジングにガス通路開口部が形成されていて、それらは、プロセスガスの供給および/または排出に役立つ。ガス通路開口部は、例えば、相互接続部の縁部領域と、周囲を囲むフレームプレートのようなハウジング部品とに、一体化（統合）することができる。

#### 【0016】

プロセスガス空間の内部領域における電気化学セルユニット用の供給は、好ましくは相互接続部に一体化された分配構造によって行われる。好ましくは、相互接続部は、例えばノブ形状、リブ状または波状に形成されている適切な形状の、金属薄板部材によって形成される。

50

## 【0017】

電気化学モジュールをSOFCとして動作させる際、アノードには、燃料（例えば、水素、または従来の炭化水素、例えば、メタン、天然ガス、バイオガス等、場合によっては、完全にまたは部分的に予め改質されたもの）が、相互接続部のガス通路開口部および分配構造を介して供給されて、そこで燃料が触媒作用により酸化させられて、電子を放出する。電子が燃料電池から案内されて、電気負荷（消費）を介してカソードに流れる。カソードでは、酸化剤（例えば、酸素または空気）が、電子を受け取ることによって還元される。電解質が酸素イオンに対して伝導性である場合に、カソードにおいて生じる酸素イオンが、電解質を介してアノードに流れて、対応する界面において燃料と反応することによって、電気回路が閉成する。

10

## 【0018】

固体酸化物形電解セル（SOEC）として電気化学モジュールが動作する場合には、電流の使用によって、酸化還元反応が強制され、例えば水の水素および酸素への変換が強制される。SOECの構造は、基本的には上記で概説したSOFCの構造に対応するが、ただし、カソードとアノードの役割が逆になる。リバーシブル固体酸化物燃料電池（R-SOFC）の場合では、SOEC、またはSOFCのいずれとしても動作可能である。

## 【0019】

本発明によれば、ガス案内部材が提供される。このガス案内部材は、好ましくは粉末冶金によって製造されており、したがって、例えば、縁部および/または表面においてプレスまたは局所溶融によって後処理される場合、多孔質もしくは少なくとも部分的に多孔質である。ガス案内部材は、プロセスガス案内空間の領域内に配置される。ガス案内部材の多孔質構造は、プロセスガス案内空間の領域内でプロセスガスと相互作用することができる表面積を増大させるのに役立つ。ガス案内部材の表面は、少なくとも部分的に機能化されており、それによって、プロセスガスの操作のための反応性表面または触媒活性表面を提供する。機能化された表面によって、反応剤（反応物質）側ではガスを処理すること、特に浄化および/または改質することができ、生成物側ではガスを後処理すること、特に浄化することができる。ガス案内部材は、プロセスガスと触媒的および/または反応的に作用する材料を、ガス案内部材の材料内に導入するか、表面コーティングとして被着するか、そのうち少なくともいずれか一方によって機能化される。したがって、触媒材料および/または反応性材料は、焼結ガス案内部材を製造するための原料粉末（物質）に混ぜられる（合金化される）か、焼結工程後に、プロセスガスと接するガス案内部材の表面に対してコーティングプロセスによって被着されるか、そのうち少なくともいずれか一方であってよい。コーティングプロセスは、当業者に公知の従来の方法によって実施することができ、例えば、気相からの種々の蒸着法（物理蒸着、化学蒸着）によって、浸漬コーティング（構成要素が、適切な機能材料を有する溶融物または溶液で浸透または含浸される）によって、または懸濁液またはペーストの適用（特に、セラミック材料での機能化のため）によって、実施することができる。表面積拡大のためには、多孔質表面構造がコーティングプロセス中に保持されるならば有利である。すなわち、多孔質表面をカバー層で覆わず、主として多孔質構造の（内側）表面のみを被覆する。表面コーティングによる機能化は、全体的に格別に有利である。なぜならば、その場合、必要とされる触媒材料および/または反応性材料が、当該材料をガス案内部材の材料に添加する場合と比べてより少なくてすむからである。

20

30

40

## 【0020】

機能化されたガス案内部材をプロセスガス案内空間の領域内に配置することによって、プロセスガスを操作するための化学反応は、電気化学セルユニットで直接行われる電気化学反応とは別々に進行する。この分離によって、ガス案内部材に生じ得る堆積または変質は、電気化学セルユニット内の反応に直接的な悪影響を及ぼさず、さらに、ガス供給領域およびガス排出領域のための異なる機能化が可能であって、それぞれの特有の要求に対して独立して最適化することができるため、決定的な利点を有する。

## 【0021】

50

好ましい変形実施形態の一つでは、ガス案内部材が、電気化学セルユニットおよびハウジングとは別体の構成要素として構成されている。この場合、ガス案内部材は、プロセスガス案内空間内への配置のために適合化されており、換言すれば、ガス案内部材の形状は、プロセスガス案内空間の内部（空間）に適合化されている。好ましくは、ガス案内部材は、平坦に形成されており、一つの主に広がる平面を有する平坦な本体を有する。有利な変形形態の一つでは、ガス案内部材は、垂直方向（電気化学モジュールの積層方向）における支持要素として構成されている。この場合、ガス案内部材の厚さは、プロセスガス案内空間の内部空間の高さに応じて選択されるので、ガス案内部材は、その上面（上部）がプロセスガス案内空間の上部ハウジング部分に当接するとともに、その下面（下部）がプロセスガス案内空間の下部ハウジング部分に当接するため、ハウジング縁部領域に圧力が加えられた場合にハウジング縁部領域の圧縮が防がれる。さらに、ガス案内部材を平坦に構成する場合は、ハウジング縁部領域の曲げ剛性およびねじり剛性が増大するため、ハウジング縁部領域が曲げまたは他の変形から保護される。その結果、モジュールの縁部領域においては、実際上しばしば気密性の点で弱点となっている、個々のハウジング部分および/または電気化学セルユニットの間の溶接シーム部または他の接合部、例えばはんだ付けまたは焼結された接合部への付加的な応力を回避することができる。電気化学モジュールの動作中に、別体に作成されたガス案内部材は、プロセスガス案内空間内に配置され、有利にはプロセスガス案内空間内に全面的に配置されるが、すなわち、プロセスガス案内空間内において電気化学セルユニットの層構造の真下の領域の外側に全面的に配置される。

10

20

30

40

50

#### 【0022】

別の実施形態では、プロセスガス案内空間の内部空間内に別体の構成要素を配置させる代わりに、機能化されたガス案内部材を、プロセスガス案内空間またはその一部の境界として実施することができ、すなわち、プロセスガス案内空間のハウジングの一部（ハウジング部分）として実施することができる。その場合に、表面の機能化は、合金化によって行われるか、またはプロセスガス案内空間の内部空間に面するガス案内部材の表面において行われる。M S Cの場合、ガス案内部材は、好ましくは電気化学セルユニットの領域を越えて延在する金属製の支持基板の縁部領域によって形成される。したがって、ガス案内部材は、電気化学的活性層が配置されていない金属製の支持基板の縁部側の部分によって形成される。ガス案内部材は、支持基板と一体に製造され、好ましくは一枚岩的に製造され、すなわち、一部品から製造される。この場合に、機能化は、好ましくは、支持基板の基材（材料）に含まれていない元素または化合物によって行われる。特に、F eまたはC rのうち少なくとも1つを含有する支持基板の場合には、さらに追加の元素または追加の化合物が機能化のために提供される。ガス案内部材がこの領域においてハウジングとしての機能を果たすことができるためには、もちろん、何らかの手段を講じることによって多孔質のガス案内部材が気密にされなければならない、このことは、例えば、プロセスガス案内空間とは反対側でのプレスおよび/または局所的な表面溶融によって行うことができる。好ましい変形例の一つでは、ガス案内部材が支持基板の一体部分として作成され、機能化が合金化によってではなく、表面のコーティングによって行われ、特に蒸着法、浸漬コーティング、または懸濁液もしくはペーストの塗布によって行われる。それによって、機能化を比較的成本効率よく、異なる領域に対して異なるように行って、それぞれの特定の要求に対して最適化することができるので、柔軟に実施できる。例えば、プロセスガスが供給されるガス通路開口部を有する支持基板の縁部領域は、プロセスガスが排出されるガス通路開口部を有する支持基板の縁部領域とは異なって機能化することができる。

#### 【0023】

プロセスガスの操作および機械的な役割（主として別体に構成されたガス案内部材の場合）に加えて、ガス案内部材には、プロセスガス案内空間内でのガスの流れを改善するという重要な役割を有する。ガスの流れを最適化するためには、ガス案内部材にガス案内（管路）構造が形成されているとよく、これらのガス案内構造は、ガス通路開口部を通してプロセスガス空間の内部領域に流入するガスを、さらに相互接続部のガス案内構造へと導き、そして、プロセスガス空間の内部領域から流出するガスを、導出用のガス通路開口部

へと導く。ガス案内構造は、ガス案内部材がガス分配器としての役割を果たすべきか、それともガス収集器としての役割を果たすべきかに応じて、異なるように構成することができる。ガス案内部材の機能化は、ガス案内構造の形状と関連付けることができる。すなわち、ガス案内部材の機能化は、意図的に、プロセスガスとより高い度合いで接する表面領域において、集中的に行うことができる。

#### 【0024】

以下では、別体に作成されたガス案内部材の例を使用して、ガス案内構造の可能な最適化の態様について説明する。もちろん、適切である限り、個々の態様は、ハウジングの一部として実施されて、プロセスガス案内空間に面する機能化表面とともに、対応するガス案内構造が備えられたガス案内部材に適用することができる。ガス案内部材には、連続的なガス通路開口部が一体化されていてもよく、そして、電気化学モジュール内での配置において、ガス案内部材のガス通路開口部は、プロセスガス案内空間（ハウジング）のガス通路開口部と互いに整列されていてもよい。従って、垂直方向に連続するガス流路が、積層体内に生じる。ガス案内部材は、ガス通路開口部から内部プロセスガス空間に面する側縁まで主に広がる平面において、少なくとも1つの方向にてガス透過性である。この目的のために、ガス案内部材は、概して、または少なくともこの方向において、開放された連続する多孔性を有し、この場合、特にプロセスガスが沿って流れる内面が機能化されている。ガスの流れを最適化するために、ガス案内部材のガス透過性（多孔性）は、空間的に変化させることができ（例えば、ガス案内部材の多孔性の段階的変化または局所的に異なる密度化、特に不均等なプレスによって行う）、あるいは、より高いガス流速（処理率）のために、ガス案内部材は、代替的にまたは追加的に、主に広がる平面に沿って、少なくとも1つの流路または複数の流路を有することができる。表面が有利に機能化されている1つの流路または複数の流路は、好ましくは表面に形成され、例えば、フライス削り、プレス、または圧延によって、ガス案内部材（ハウジング部分として作成されたガス案内部材およびそれとは別体に作成された構成要素）の表面に相当する構造を形成することができる。本明細書において、閉じた多孔性と、ガス通路開口部から側縁まで延在する表面の流路構造とを有する多孔性のガス案内部材は、同様に、ガス通路開口部から側縁までガス透過性であるとみなされる。また、1つ又は複数の流路は、少なくとも部分的に、ガス案内部材の厚さ全体にわたって延在すること、すなわち、流路が表面的だけで形成されていないことも考えられ得る。この実施形態の利点は、より高いガス流量（処理率）にあるが、しかし構成要素が一体（一部品）のままであり、分割されないようにしなければならない。これを確保するために、厚さ全体にわたって延在する流路が、それらの経路を介して、表面の流路構造内または多孔質構造内へ移行されてもよい。流路の数および形状は、流動特性および所望の反応に関して最適化される。

#### 【0025】

本発明によるガス案内部材は、粉末冶金によって製造され、機能化のための材料は、焼結部品の製造時に原料粉末に添加されるか、焼結部品の表面が焼結工程後に少なくとも部分的に機能化用の材料でコーティングされるか、そのうち少なくともいずれか一方である。ガス案内部材を製造するための原料材料としては、好ましくは金属含有粉末、より好ましくは耐食性合金の粉末、例えばCr（クロム）またはFe（鉄）の少なくとも1つに基づく材料の組み合わせからなる粉末が使用され、その際、CrおよびFeの含有量が、合計で少なくとも50重量%であり、好ましくは合計で少なくとも80重量%であり、より好ましくは少なくとも90重量%である粉末が使用される。この場合、ガス案内部材はフェライト合金からなる。好ましくは、ガス案内部材の粉末冶金による製造は、原料粉末をプレスすることによって（必要に応じて機能化のための材料の添加を伴う）、必要に応じて有機バインダー（結合剤）を添加して、続いて焼結プロセスを行うことによって、公知の方法で行われる。

#### 【0026】

MSCにおいて別体に形成された構成要素としてのガス案内部材を使用する場合、ガス案内部材は、好ましくは、MSCの支持基板と同じ材料または実質的に同じ材料（すなわ

10

20

30

40

50

ち、機能化用の材料の添加のみを伴う)からなる。この場合には、熱膨張が同じであり、温度起因応力を避けることができるので有利である。

【0027】

上述のように、本発明によるガス案内部材は、電気化学モジュール内で使用され、特にMSCに使用される。好ましい実施形態の一つでは、プロセスガスの供給および排出のために、電気化学モジュールが、それぞれ異なるように構成されたガス案内部材を有する。その場合、ガス案内部材は、使用される材料、それらの形状、多孔性、流路構造などとして形成されたガス案内構造の形状などの点で異なってもよい。特に、機能化は、プロセスガスの供給および排出のために使用されるガス案内部材の場合には、それぞれ相違させることができ、また、異なる役割に対してそれぞれ最適化することもできる。プロセスガス(反応ガス)の供給に使用されるガス案内部材は、反応ガスの処理に適合化され、プロセスガス(生成ガス)の排出に使用されるガス案内部材は、生成ガスの後処理に適合化される。

10

【0028】

特に、SOFcで使用される場合、ガス案内部材は、反応ガスの触媒改質のために機能化されていてもよい。触媒改質のためには、ニッケル(Ni)、白金(Pt)、若しくはパラジウム(Pd)又はこれらの金属の酸化物のうち少なくとも1つ、例えばNiOなどの材料が有用であることが実証されている(特に、鉄および/またはクロムをベースとする粉末冶金により製造された合金からなるガス案内部材を使用する場合)。均質に合金化する場合、これらの金属および/または金属酸化物の割合は、合計で少なくとも1重量%、好ましくは少なくとも2重量%であるべきである。この機能化によって、反応ガスの流量を維持しながら、電気化学反応のために追加の水素が生成される。好ましい効果のために、これらの材料は、基材中に合金化されるか、またはプロセスガスが接触および/または流動する表面をコーティングプロセスによって(例えば、浸漬コーティング(懸濁液浸漬)または種々の気相からの蒸着法によって)コーティングされてもよい。その場合、多孔質構造にとって有害である湿潤効果(ウェッティング効果)のため、浸漬プロセスよりも合金化または蒸着の方が好ましい。

20

【0029】

ガス案内部材は、さらに、硫黄、塩素、酸素または炭素のうち少なくとも1つなどの不純物に対して反応ガスを浄化するために、機能化することができる。不純物は、導入された材料と反応するため、セルユニットの電気化学的活性層に損傷を与える虞が低減される。硫黄または塩素のうち少なくとも1つを除去するために反応ガスの浄化に用いられる元素(ゲッター原子または除去用の原子)としては、Ni、コバルト(Co)、クロム(Cr)、スカンジウム(Sc)またはセリウム(Ce)のうち少なくとも1つが使用され、このうち、触媒改質の点で上記の性質を有するNiおよびCeが好ましい。酸素に関して生成ガス(プロダクトガス)を浄化するのに好ましい元素は、Cr、銅(Cu)またはチタン(Ti)のうち少なくとも1つであり、このうち、Tiは、炭素に対する抑制効果のために、したがって煤形成を防止するその同時作用のために、格別に有利である。これらのゲッター原子は、通常、ppm範囲の残量しか保持することができないが、しかし、電気化学モジュールの性能及び寿命に関して測定可能なプラスの効果をも有する。材料の導入は、ここでも、基材中への合金化、懸濁液による浸漬コーティング、または気相からの蒸着法によっても行われるが、このうち、柔軟性のために蒸着法が好ましい。

30

40

【0030】

同様に、生成ガスの後処理のための機能を有する中心部を導入することができる。生成ガス(排出するガス)は、対応して機能化されたガス案内部材によって、特に揮発性Crイオンを有する不純物に関して、浄化することができる。Cr不純物に関する対応する機能化は、例えば、 $AB_2O_4$ の構造(ここで、AはCuまたはNi族から選ばれた元素であり、Bはマンガン(Mn)の元素である)のCu-Ni-Mnスピネルのような酸化物セラミックによって行われてもよく、その機能化は、蒸着法、懸濁液もしくはペーストを用いた浸漬法または塗布法により、または金属元素の変換によって行うことができる。

50

## 【0031】

排出用のガスラインからの酸素の逆方向の拡散を防止するために、ガス案内部材が酸素ゲッター（酸素除去部）で機能化されていてもよい。この酸素ゲッターは、アノードの酸化を防止することが意図されている。酸素ゲッターとしては、Ti、Cuまたは半化学量論的な（化学量論比以下の）スピネル化合物のうち少なくとも1つが適しており、このうち、好ましくはTiまたはCuのうち少なくとも1つが使用される。これら2つの金属は、蒸着法によってガス案内部材の多孔質表面に蒸着されることが好ましい。必要に応じて、逆方向への拡散の抑制が、適切なガス案内構造によってさらに付与されていてもよい。

## 【0032】

要約すると、特にSOFCで使用するために、ガス案内部材は、反応ガス側ではNi、Pt、Pd（および/またはこれらの金属の酸化物）、Co、Cr、Sc、セリウム、Cuおよび/またはTiで機能化することができる。ガス案内部材は、生成物（プロダクトガス）側での可能な機能化は、Ti、Cuおよび/または酸化物セラミック、特にCu-Ni-Mnスピネルを含む。反応ガス側と生成ガス側とのガス案内部材の機能化のための好ましい組み合わせとしては、反応ガス側のNiまたはNiOと生成ガス側のTiとの組み合わせと、反応ガス側のNiまたはNiOと生成ガス側のCuとの組み合わせ等が挙げられる。

10

## 【0033】

添付の図面を参照する以下の実施例の説明に基づいて、本発明のさらなる利点を明らかにする。なお、添付の図面では、本発明を具体的に説明する目的から、大きさの比率は、常に縮尺どおりに示されているわけではない。また、異なる図面において、一致する構成要素に対しては同じ参照番号を使用している。

20

## 【図面の簡単な説明】

## 【0034】

【図1a】図1aは、電気化学モジュールに使用するための機能化されたガス案内部材の第1の実施形態を示した斜視図である。（実施例1）

【図1b】図1bは、図1aのガス案内部材を示した平面図である。（実施例1）

【図1c】図1cは、図1aのガス案内部材を示した側面図である。（実施例1）

【図2】図2は、プロセスガスの供給または排出用のプロセスガス案内空間に、図1a～cに示したガス案内部材を有する、電気化学モジュールの第1の実施形態を示した分解図である（図2の電気化学モジュールは、流路の良好な視認性のために、図3のモジュールと比較して上下逆に示されていることに留意されたい）。（実施例1）

30

【図3】図3は、図2に示した電気化学モジュールを3つ有する積層体を示した断面図である。（実施例1）

【図4】図4は、電気化学モジュールの第2の実施形態を示した分解図である。（実施例2）

【図5】図5は、図4に示した電気化学モジュールを3つ有する積層体を示した断面図である。（実施例2）

## 【発明を実施するための形態】

## 【実施例1】

40

## 【0035】

図1aは、機能化されたガス案内部材（10）の第1の実施形態を斜視図で示している。このガス案内部材（10）は、別体の構成要素として構成されており、電気化学モジュール、特にSOFCにおいて、プロセスガス案内空間内に配置される。プロセスガス案内空間内における実現可能なこの配置の一例は、後述の図2及び図3により明らかにする。図1bは、ガス案内部材（10）を平面図で示しており、図1cは、ガス案内部材（10）を側部（A）から見た側面図で示しており、その際、電気化学モジュール（20）内への配置状態では、側部（A）はプロセスガス空間の内部に面する。ガス案内部材（10）は、粉末冶金により、50重量%より大きいFeと、15～35重量%の範囲内のCrとを含むFe系合金から製造された。焼結プロセス後に多孔性ガス案内部材が、好ましく

50

は20～60%の多孔性、特に40～50%の多孔性を有するように、150 $\mu$ mより小さな粒径、特に100 $\mu$ mより小さな粒径を有する粉末が選択された。選択する粒径が小さいほど、ガス案内部材を薄く形成することができる。好ましくは、開放された(オープンな)多孔性が設定される(すなわち、個々の隣接する気孔の間でガス交換が可能である)。ガス案内部材は、好ましくは、170 $\mu$ m～1.5mmの範囲内の厚さ、特に250 $\mu$ m～800 $\mu$ mの範囲内の厚さを有する。平坦に形成されたガス案内部材は、複数のガス通路開口部(11)を有し、図示の例では3つの中央のガス通路開口部(11)を有していて、電気化学モジュールの動作中に、これらのガス通路開口部(11)を通してそれぞれプロセスガスが供給されて、また排出される。プロセスガスの流れは、ガス案内(管路)構造によって導かれるが、本実施例では、表面に形成されて、ガス通路開口部から側縁(A)まで延在する放射状(星型)の流路(12)によって導かれる。ガス通路開口部(11)から分岐する流路は、最初は内部プロセスガス空間から離れる方向に分岐できるが、側縁(A)に向けて内部プロセスガス空間の方向に弓形に向きが再配向されている。残りの側縁(13)(側縁(A)を除く)では、ガス案内部材が気密の仕方でプレスされている。電気化学モジュールの動作中、プロセスガスは、ガス通路開口部(11)から、流路(12)および気孔を通して、ガス案内部材の側縁(A)に向かって流れ、そこからさらにプロセスガスは内部のプロセスガス空間内に流れる。内部プロセスガス空間は、多数から成る流路によってきわめて均等にガスの供給がされる。プロセスガスを排出するためにガス案内部材を使用する場合、ガスは逆方向に流れる。

10

20

**【0036】**

機能化のために、ガス案内部材の表面は、流路を有する側が、PVD装置によって、1 $\mu$ mより小さい厚さの機能層(14)でコーティングされた。この操作中、ガス案内部材の多孔質表面構造がコーティングプロセスの間維持されるようにした。すなわち、開放型の多孔質表面がカバー層によって覆われないようにして、滑らかな表面と比較して表面積の大きな機能化表面を維持するように注意した。特に、プロセスガスがその上を流れて、したがってプロセスガスとより高い度合いで接する流路の表面が十分にコーティングされることにも注意した。

**【0037】**

プロセスガスの処理または後処理のために異なる機能化を有するように、複数のガス案内部材が製造された。これらのガス案内部材は、SOF内での使用が想定されている。ガス案内部材の第1の実施では、Niでコーティングされ、第2の実施では、NiOでコーティングされた。両ガス案内部材は、燃料ガス(燃焼ガス)の処理に使用することができ、両実施での機能化された表面は、燃料ガスの改質のために触媒として作用し、また、塩素および硫黄に対するゲッター効果(除去効果)を有する。排出するガスの後処理用のガス案内部材のために、排出するガスの流れからCrイオンを濾過する、Tiコーティングが選択された。

30

**【0038】**

図2及び図3には、電気化学モジュール内でのガス案内部材(10, 10')の配置が示されている。図2は、対応して機能化されたガス案内部材(10, 10')を有する電気化学モジュール(20)を分解図で示しており、図3は、積層された3つの電気化学モジュール(20)を有する積層体(30)を断面図で示している。なお、図2では、電気化学モジュールは、流路(12)の良好な視認性のために、図3のモジュールと比較して上下逆に示されていることに留意されたい。電気化学モジュール(20)は、それぞれ1つの電気化学セルユニット(21)を有するが、電気化学セルユニット(21)は、粉末冶金により製造された多孔質の金属製支持基板(22)からなり、その支持基板(22)上にはガス透過性領域内に少なくとも1つの電気化学的活性層を有する層構造(23)を有している。層構造(23)を有する支持基板(22)は、その縁部で、気密の仕方で一体にプレスされており、プレート形状(板状)の基本構造を有している。その基本構造は、変更実施例では、比較的小さな長さの寸法で表面積を増大させるために、局所的に湾曲形成されていてよく、例えば、波形に形成されていてよい。層構造とは反対側の支持

40

50

基板(22)の側面には、それぞれ1つの相互接続部(24)があり、その相互接続部(24)は、支持基板(22)と当接する領域にリブ構造(24a)を有する。リブ構造の長手方向は、図3の断面に沿っている。相互接続部(24)は、2つの対向する側面(側部)において電気化学セルユニット(21)の領域を越えて延在し、電気化学セルユニットを取り囲むフレームプレート(25)に対して外側縁部で当接する。その周囲を囲むフレームプレート(25)は、内側縁部において電気化学セルユニット(21)と気密の仕方  
 で結合されるとともに、外側縁部において相互接続部(24)と気密の仕方  
 で結合されているが、周縁状の溶接を介して結合されている。したがって、フレームプレート(25)および相互接続部(24)は、電気化学セルユニット(21)と共に気密なプロセスガス空間(26)を画定する、金属製の気密なハウジングの構成を成す。プロセスガス空間(26)は、(概念上)2つの対向するサブ(部分)空間(2つのプロセスガス案内空間(27, 27'))に分割されている。各部分空間は、電気化学セルユニット(21)領域の外側の領域に延在し、電気化学セルユニット(21)に向かう方向に開口している。この場合に、第1のプロセスガス案内空間(27)は、ハウジング(フレームプレートおよび相互接続部)内の対応するガス導入開口部(28)を介して、プロセスガスの供給に用いられ、これに対して反対側のプロセスガス案内空間(27')は、対応するガス導出開口部(28')を介して、プロセスガスの排出に用いられる(図3では、ガス通路開口部は、断面がガス通路開口部の側方にあるため示されていない)。積層体内では、垂直方向(積層体の積層方向(B))のガスの案内が、対応する流路構造によって行われ、該流路構造は、ガス通路開口部の領域において、通常のように、別体のインサートまたはインレー(29)と、シールと、さらにシーラント(例えば、ガラスはんだ)の的確な塗布とによって形成される。

10

20

30

40

#### 【0039】

供給用のプロセスガス案内空間(27)内には、表面が反応ガスの処理(改質、浄化)のために機能化されているガス案内材(10)が配置されている。また、生成ガスの後処理用に機能化されているガス案内材(10')が、生成ガスの排出のために反対側のプロセスガス案内空間(27')内に配置されている。したがって、供給および排出のために使用されるガス案内材(10, 10')は、好ましくは異なるように機能化されている。もちろん、これらのガス案内材は、他の特性(基材、形状、多孔性、流路の幾何学的形状など)に関しても異なっており、さらに使用目的に関してそれぞれ独立して最適化されていてもよい。

#### 【0040】

好ましくは、ガス案内材(10, 10')は、電気化学モジュールの積層方向(B)における支持要素として構成されている。そのために、ガス案内材の形状は、それぞれのプロセスガス案内空間の内側(内部空間)に対して適合化されている。各ガス案内材(10, 10')は、その上面がフレームプレート(25)、すなわち各プロセスガス案内空間(27, 27')の上側境界に当接し、かつその下側が相互接続部(24)、すなわち各プロセスガス案内空間の下側境界に当接する。特に有利なのは、各ガス案内材の上側および/または下側での平坦な当接である。したがって、各ガス案内材の厚さは、各プロセスガス案内空間(27, 27')の内部空間の高さに相当する。表面上に形成された流路(12)は、ガス案内材(10, 10')の下面側にある。ガス案内材の平坦な構造によって、薄いフレームプレート(25)と薄い相互接続部(24)とから成るハウジングの縁部領域の曲げ剛性およびねじり剛性が著しく高められており、これにより機械的負荷が加えられた際に溶接シーム部に亀裂が生じる虞が低減されている。有利な変更実施形態の一つでは、機能化されたガス案内材が、ハウジングにスポット溶接されて、固定される。

#### 【実施例2】

#### 【0041】

図4および図5は、ガス案内材(10'', 10''')がハウジングの一部を成すとともに、支持基板(22')と一体に形成されている、電気化学モジュール(20')

50

の第2の実施例を示す。多孔質支持基板(22')は、2つの対向する側部において、それぞれガス通路開口部(11, 11')が組み込まれている縁部領域で、気密の仕方でプレスされている。縁部領域は、層構造(23)に面する側で、溶融プロセス、例えばレーザービーム溶融によって気密にすることもできる。支持基板のこれらの対向する縁部領域は、層構造(23)を有するガス透過性領域の外側にある。それらの縁部領域は、それぞれ1つのガス案内材(10'', 10''')であり、2つのプロセスガス案内空間(27, 27')の上方の境界を画定する。プレス工程において、任意選択的に、ガス案内構造(12)が、支持基板の縁部領域の下側(プロセスガス案内空間の内部に面する側)に一体化させていてもよい。実施された変形例では、燃料ガスの供給が割り当てられた支持基板の縁部領域(10'')は、その下側がNiでコーティングされ、かつ、排出ガスの排出が割り当てられた縁部領域(10''')は、その下側がTiでコーティングされた。図1~図3の実施例と同様に、燃料ガスの処理および排出ガスの浄化が行われた。

10

## 【0042】

別体に形成されたガス案内材を有する図1~図3に示した実施例に限らず、一体化されたガス案内材を有する図4および図5に示した実施例においても、当然ながら、Niおよび/またはNiOコーティングおよびTiコーティングの他の機能化が考えられ得る。SOFCで使用されるためには、ガス案内材は、反応ガス側で、NiまたはNiOに限らず、Pt、Pd(および/またはこれらの2つの金属の酸化物)、Co、Cr、Sc、セリウム、Cuおよび/またはTiを用いて機能化することも可能である。生成物側のガス案内材の可能な機能化には、Ti、Cuおよび/または酸化物セラミック、特にCu-Ni-Mnスピネルが含まれる。

20

## 【符号の説明】

## 【0043】

- 10、10'、10''、10'''      ガス案内材
- 11      ガス通路開口部
- 12      流路(ガス案内構造)
- 13      側縁
- 14      機能層
- 20、20'      電気化学モジュール(電気化学的装置)
- 21      電気化学セルユニット(電気化学的電池装置)
- 22      支持基板
- 23      層構造
- 24      相互接続部またはインターコネクタ(ハウジング)
- 24 a      リブ構造
- 25      フレームプレート(ハウジング)
- 26      プロセスガス空間
- 27、27'      プロセスガス案内空間
- 28      ガス導入開口部(ガス通路開口部)
- 28'      ガス導出開口部(ガス通路開口部)
- 29      インサート
- 30      積層体(スタック)

30

40

【図 1 a】

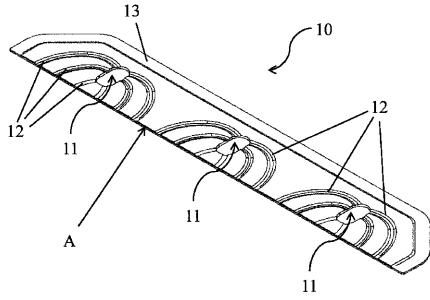


Fig. 1a

【図 1 b】

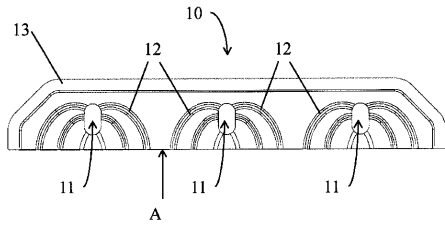


Fig. 1b

【図 1 c】

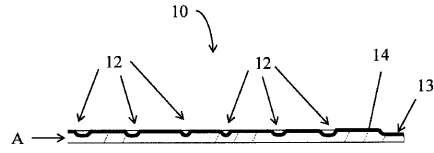


Fig. 1c

【図 2】

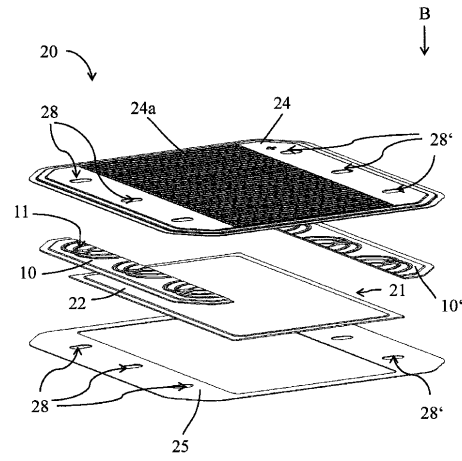


Fig. 2

【図 3】

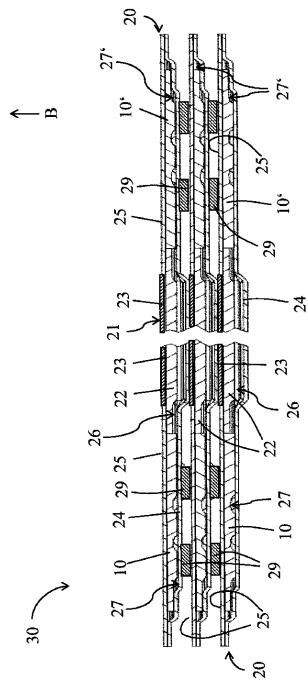


Fig. 3

【図 4】

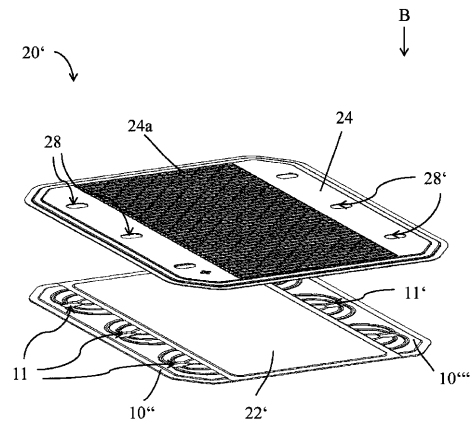


Fig. 4

【 図 5 】

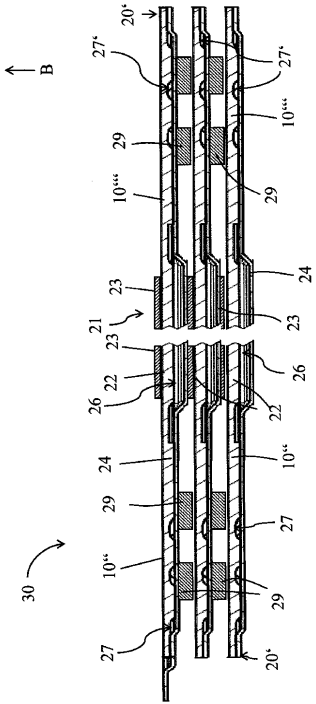


Fig. 5

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/AT2018/000008
---

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. H01M8/0243 H01M8/0245 H01M8/10 H01M8/0637 H01M8/0662 H01M8/0273 H01M8/0232 H01M8/1226 H01M8/242 ADD. According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01M Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/008093 A1 (PLANSEE SE [AT]) 19 January 2017 (2017-01-19) S.17, Z.19 - S.19, Z.30; S.8, Z.1-20; figures 1, 2a, 2b, 2c -----	1-20
X	US 2012/121999 A1 (LAURENCIN JEOME [FR] ET AL) 17 May 2012 (2012-05-17) cited in the application paragraphs [0078] - [0091], [0105], [0129] - [0133], [0166] - [0168], [0182] - [0183], [0185]; figures 5, 6 -----	1-10, 12-17
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
16 May 2018		28/05/2018
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Schmidtbauer, H

1

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/AT2018/000008

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2017008093 A1	19-01-2017	AT 14455 U2	15-11-2015
		CN 107925110 A	17-04-2018
		EP 3323168 A1	23-05-2018
		KR 20180030040 A	21-03-2018
		TW 201709601 A	01-03-2017
		WO 2017008093 A1	19-01-2017
-----			
US 2012121999 A1	17-05-2012	BR P11013931 A2	05-04-2016
		CN 102460793 A	16-05-2012
		DK 2430693 T3	24-06-2013
		EP 2430693 A1	21-03-2012
		ES 2415356 T3	25-07-2013
		FR 2945378 A1	12-11-2010
		JP 5668054 B2	12-02-2015
		JP 2012527068 A	01-11-2012
		US 2012121999 A1	17-05-2012
		WO 2010130692 A1	18-11-2010
-----			

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/AT2018/000008

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b>		
INV. H01M8/0243 H01M8/0245 H01M8/10 H01M8/0637 H01M8/0662 H01M8/0273 H01M8/0232 H01M8/1226 H01M8/242		
ADD. Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b>		
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) H01M		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	
	Betr. Anspruch Nr.	
X	WO 2017/008093 A1 (PLANSEE SE [AT]) 19. Januar 2017 (2017-01-19) S.17, Z.19 - S.19, Z.30; S.8, Z.1-20; Abbildungen 1, 2a, 2b, 2c -----	1-20
X	US 2012/121999 A1 (LAURENCIN JEOME [FR] ET AL) 17. Mai 2012 (2012-05-17) in der Anmeldung erwähnt Absätze [0078] - [0091], [0105], [0129] - [0133], [0166] - [0168], [0182] - [0183], [0185]; Abbildungen 5, 6 -----	1-10, 12-17
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :		
*A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist		
*E* frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist		
*L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)		
*O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht		
*P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist		
*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist		
*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden		
*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist		
*Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts	
16. Mai 2018	28/05/2018	
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Schmidtbauer, H	

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/AT2018/000008

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2017008093 A1	19-01-2017	AT 14455 U2	15-11-2015
		CN 107925110 A	17-04-2018
		EP 3323168 A1	23-05-2018
		KR 20180030040 A	21-03-2018
		TW 201709601 A	01-03-2017
		WO 2017008093 A1	19-01-2017
-----			
US 2012121999 A1	17-05-2012	BR P11013931 A2	05-04-2016
		CN 102460793 A	16-05-2012
		DK 2430693 T3	24-06-2013
		EP 2430693 A1	21-03-2012
		ES 2415356 T3	25-07-2013
		FR 2945378 A1	12-11-2010
		JP 5668054 B2	12-02-2015
		JP 2012527068 A	01-11-2012
		US 2012121999 A1	17-05-2012
		WO 2010130692 A1	18-11-2010
-----			

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I			テーマコード (参考)
<b>C 2 5 B 15/08 (2006.01)</b>	C 2 5 B	15/08	3 0 2	
<b>C 2 5 B 9/10 (2006.01)</b>	C 2 5 B	9/10		
<b>H 0 1 M 8/12 (2016.01)</b>	H 0 1 M	8/12	1 0 1	
	H 0 1 M	8/12	1 0 2 A	

(81) 指定国・地域 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT

(72) 発明者 シャフバウアー, ヴォルフガング  
 オーストリア共和国 6 6 0 0 ロイツテ, メタルヴェルク - ブランゼー - シュトラーセ 7 1, ブランゼー エスエー内  
 (72) 発明者 リュッティンガー, マティアス  
 オーストリア共和国 6 6 0 0 ロイツテ, メタルヴェルク - ブランゼー - シュトラーセ 7 1, ブランゼー エスエー内

F ターム (参考) 4K021 AA01 BA02 BC01 CA09 DB16 DB31 DB43 DB53  
 5H126 AA02 AA08 AA12 AA15 BB06 DD05 EE11 EE22 EE25 GG02  
 GG08 GG12 GG13 HH04