

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5023429号
(P5023429)

(45) 発行日 平成24年9月12日(2012.9.12)

(24) 登録日 平成24年6月29日(2012.6.29)

(51) Int.Cl.		F I			
HO 1 M	8/24	(2006.01)	HO 1 M	8/24	T
HO 1 M	8/02	(2006.01)	HO 1 M	8/02	B
HO 1 M	8/12	(2006.01)	HO 1 M	8/02	R
			HO 1 M	8/12	

請求項の数 4 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2005-11244 (P2005-11244)	(73) 特許権者	000006264
(22) 出願日	平成17年1月19日(2005.1.19)		三菱マテリアル株式会社
(65) 公開番号	特開2006-120589 (P2006-120589A)		東京都千代田区大手町一丁目3番2号
(43) 公開日	平成18年5月11日(2006.5.11)	(73) 特許権者	000156938
審査請求日	平成20年1月15日(2008.1.15)		関西電力株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2004-235864 (P2004-235864)		大阪府大阪市北区中之島三丁目6番16号
(32) 優先日	平成16年8月13日(2004.8.13)	(74) 代理人	100096862
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		弁理士 清水 千春
		(72) 発明者	村上 直也
			茨城県那珂郡那珂町向山1002-14
			三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 平板積層型燃料電池

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

固体電解質層の一方の面に燃料極層が形成されるとともに他方の面に空気極層が形成された発電セルと、上記燃料極層側および空気極層の外側に配されるとともに上記燃料極層側に燃料ガスを供給する燃料ガス通路および上記空気極層側に酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス通路が形成されたセパレータを交互に積層した燃料電池スタックの上下端部に、各々上締付板および下締付板を配設して成る平板積層型燃料電池において、

上記セパレータは、上記発電セルが位置する部分と、当該部分から外方に延出する一対の連結部分と、これら連結部分の先端部に形成されて各々上記燃料ガス通路または酸化剤ガス通路と連通するガス孔が穿設されたマニホールド部分とを有し、上記マニホールド部分が絶縁性のガスケットを間に介して積層されることにより上記積層方向に貫通する上記燃料ガスまたは酸化剤ガス用の内部マニホールドが形成されるとともに、

上記下締付板は、平板状に形成され、かつ上記上締付板は、中央部分に上記セパレータの上記発電セルが位置する部分が露出する孔が形成され、これら上下締付板の周縁部同士がボルトによって締め付けられることにより上記内部マニホールドを構成する上記マニホールド部分と上記ガスケットとが機械的に密着・接合されるとともに、上記孔内に錘が配設されることにより上記セパレータの上記発電セルが位置する部分と上記発電セルとが密着されてなり、

かつ前記セパレータのマニホールド部分と発電セルが位置する部分とを繋ぐ連絡部分に、上記発電セルが位置する部分と上記マニホールド部分との高さのバラツキを吸収し得る

可撓性を持たせたことを特徴とする平板積層型燃料電池。

【請求項 2】

前記連絡部分の少なくとも一部を幅狭・肉薄としたことを特徴とする請求項 1 に記載の平板積層型燃料電池。

【請求項 3】

前記連絡部分をセパレータの周縁に沿う細長帯状としたことを特徴とする請求項 1 に記載の平板積層型燃料電池。

【請求項 4】

前記連絡部分に断熱材または断熱塗料を用いた断熱処理を施したことを特徴とする請求項 1 から請求項 3 までの何れかに記載の平板積層型燃料電池。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、平板積層型燃料電池に関し、詳しくは、積層体の各発電部分の密着性とマニホールド部分のガスシール性を両立させた平板積層型燃料電池に関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、燃料の有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する燃料電池は高効率でクリーンな発電装置として注目されている。この燃料電池は、酸化物イオン導電体から成る固体電解質層を両側から空気極層（カソード）と燃料極層（アノード）で挟み込んだ積層構造を有する。

20

【0003】

発電時、反应用ガスとして空気極層側に酸化剤ガス（酸素）が、また燃料極層側に燃料ガス（ H_2 、 CO 、 CH_4 等）が供給される。空気極層と燃料極層は、反应用ガスが固体電解質層との界面に到達することができるよう、何れも多孔質の層とされている。

【0004】

発電セル内において、空気極層側に供給された酸素は、空気極層内の気孔を通過して固体電解質層との界面近傍に到達し、この部分で空気極層から電子を受け取って酸化物イオン（ O^{2-} ）にイオン化される。この酸化物イオンは、燃料極層に向かって固体電解質層内を拡散移動する。燃料極層との界面近傍に到達した酸化物イオンは、この部分で、燃料ガスと反応して反応生成物（ H_2O 、 CO_2 等）を生じ、燃料極層に電子を放出する。尚、電極反応で生じた電子は、別ルートの外部負荷にて起電力として取り出すことができる。

30

【0005】

平板積層型燃料電池は、これら発電セルとセパレータを交互に多数積層してスタック化すると共に、その両端より積層方向に荷重を掛けてスタックの各構成要素を相互に圧接・密着させることにより構成される。

上記セパレータは、発電セル間を電氣的に接続すると同時に発電セルに対して反应用ガスを供給する機能を有し、その内部に、燃料ガスを燃料極層側に誘導する燃料ガス通路と、酸化剤ガスを空気極層側に誘導する酸化剤ガス通路とを備える。このような平板積層型の燃料電池は、例えば、特許文献 1 に開示されている。

40

【0006】

外部反应用ガスをセパレータに供給するためのガス導入機構として、特許文献 1 に開示されるような、燃料電池スタックの外周に外部マニホールドを設け、多数の接続管を介して各セパレータに各ガスを供給する構造と、図 5 に示されるような、厚さ数 mm のステンレス板等で構成される各セパレータ 8 の周縁部にガス孔 13、14 を設け、このガス孔から各ガス通路 11、12 を通して各発電セルの各電極面に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給するようにした内部マニホールド構造とが知られている。

尚、内部マニホールドでは、図 3 に示すように、上下に積層されるセパレータ 8 のガス孔同士は、各セパレータ間に介在されたリング状の絶縁性ガスケット 15、16 によって連通される。

50

【特許文献1】特開2004-55195号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

ところで、平板積層型燃料電池は、複数の発電要素を積層して構成される発電セルを、更にセパレータ等の導電部材を介して多数積層した構造であるから、安定した電池性能を確保するために構成要素相互の優れた密着性が要求される。特に、内部マニホールドの場合は、各構成要素の密着性に加え、ガスケット部分のガスシール性も要求される。

このため、平板積層型燃料電池の場合は、スタック組立後にその両端より積層方向に荷重を掛けて各構成要素を圧接させる構造と成されており、例えば、特許文献1では、スタック上下端に配した締付板をボルトにて締め付けすることにより積層体を一括して加重している。

10

【0008】

ところが、特に、内部マニホールド構造では、スタック中央の発電部分とスタック縁部のマニホールド部分とで積層される構成要素が異なるため、マニホールド部分と発電部分を締付板を用いて上下より締め付けると、剛性の高いセパレータ板をもってその縁部と中央部が同じ変位量で締め付けられることから、双方の高さの違いが起因して各部の締め付けが不十分となり、各構成要素の密着性が損なわれるという問題がある。

この結果、発電部分では密着不良により電気的な接触抵抗が増大し、発電性能や発電効率の低下を招くことになり、また、マニホールド部分では、ガスケットとガス孔のシール性が低下し、ガス漏れによる発電性能の低下を招くことになる。

20

【0009】

尚、過大な締め付けは各構成要素の高温クリープを促進し、発電セルの破損を招く恐れがあるため、スタックの締め付けは、発電部分の電気的な接触性とマニホールド部分のガスシール性を確保するのに十分で、且つ、最小にするのが好ましい。

【0010】

本発明は、このような問題に鑑み成されたもので、燃料電池スタックにおける発電部分の密着性とマニホールド部分のガスシール性の向上を図った平板積層型燃料電池を提供することを目的としている。

【課題を解決するための手段】

30

【0011】

すなわち、請求項1に記載の本発明は、固体電解質層の一方の面に燃料極層が形成されるとともに他方の面に空気極層が形成された発電セルと、上記燃料極層側および空気極層の外側に配されるとともに上記燃料極層側に燃料ガスを供給する燃料ガス通路および上記空気極層側に酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス通路が形成されたセパレータを交互に積層した燃料電池スタックの上下端部に、各々上締付板および下締付板を配設して成る平板積層型燃料電池において、上記セパレータは、上記発電セルが位置する部分と、当該部分から外方に延出する一対の連結部分と、これら連結部分の先端部に形成されて各々上記燃料ガス通路または酸化剤ガス通路と連通するガス孔が穿設されたマニホールド部分とを有し、上記マニホールド部分が絶縁性のガスケットを間に介して積層されることにより上記積層方向に貫通する上記燃料ガスまたは酸化剤ガス用の内部マニホールドが形成されるとともに、上記下締付板は、平板状に形成され、かつ上記上締付板は、中央部分に上記セパレータの上記発電セルが位置する部分が露出する孔が形成され、これら上下締付板の周縁部同士がボルトによって締め付けられることにより上記内部マニホールドを構成する上記マニホールド部分と上記ガスケットとが機械的に密着・接合されるとともに、上記孔内に錘が配設されることにより上記セパレータの上記発電セルが位置する部分と上記発電セルとが密着されてなり、かつ前記セパレータのマニホールド部分と発電セルが位置する部分とを繋ぐ連絡部分に、上記発電セルが位置する部分と上記マニホールド部分との高さのバラツキを吸収し得る可撓性を持たせたことを特徴としている。

40

【0012】

50

また、請求項 2 に記載の本発明は、請求項 1 に記載の平板積層型燃料電池において、前記連絡部分の少なくとも一部を幅狭・肉薄としたことを特徴としている。

【0013】

また、請求項 3 に記載の本発明は、請求項 1 に記載の平板積層型燃料電池において、前記連絡部分をセパレータの周縁に沿う細長帯状としたことを特徴としている。

【0014】

また、請求項 4 に記載の本発明は、請求項 1 から請求項 3 までの何れかに記載の平板積層型燃料電池において、前記連絡部分に断熱材または断熱塗料を用いた断熱処理を施したことを特徴としている。

【0016】

ここで、請求項 1 から請求項 3 に記載の構成では、セパレータに掛かる荷重をマニホール部分と発電セルが位置する部分とに分離することができ、これにより、マニホール部分と発電セルの位置する部分の高さのバラツキ等を吸収して双方を確実に加重することができる。その結果、マニホール部分と発電セルの位置する部分のそれぞれに最適な荷重を掛けることができ、積層体を構成する各発電要素相互の密着性とマニホール部分のガスシール性が向上し、発電性能および発電効率の向上が図れる。

また、請求項 4 に記載の構成では、断熱材や断熱塗料により連絡部分を断熱処理することにより、マニホールからの反应用ガスがこの連絡部分を通過する間に加熱、または冷却されるのが抑制でき、よって、反应用ガスはマニホール内に導入された好適温度の状態発電セルに供給されることになり、これにより、発電セル部分の温度が安定し、各発電要素の密着性は向上する。

【発明の効果】

【0017】

以上説明したように、本発明によれば、セパレータのマニホール部分と発電セルが位置する部分を繋ぐ連絡部分に荷重に対する可撓性を持たせたので、セパレータに掛かる荷重をマニホール部分と発電セルが位置する部分とに分けることができ、これにより、マニホール部分と発電セルの位置する部分の高さのバラツキ等を吸収して双方を好適荷重にて締め付けることができる。

その結果、各発電部分の密着性とマニホール部分のガスシール性が向上し、発電性能と発電効率の向上が図れる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

以下、図面に基づいて本発明の実施形態を説明する。

図 1 は本発明が適用された平板積層型固体酸化物形燃料電池の構成を示し、図 2 は本発明に係るセパレータの構造を示し、図 3 は本発明に係る単セルの構成を示している。

【0019】

図 3 に示すように、単セル 10 は、固体電解質層 2 の両面に燃料極層 3 と空気極層 4 を配した発電セル 5 と、燃料極層 3 の外側に配した燃料極集電体 6 と、空気極層 4 の外側に配した空気極集電体 7 と、各集電体 6、7 の外側に配したセパレータ 8 とで構成されている。

【0020】

これら発電要素の内、固体電解質層 2 はイットリアを添加した安定化ジルコニア (YSZ) 等で構成され、燃料極層 3 は Ni、Co 等の金属あるいは Ni-YSZ、Co-YSZ 等のサーメットで構成され、空気極層 4 は LaMnO_3 、 LaCoO_3 等で構成され、燃料極集電体 6 は Ni 基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、空気極集電体 7 は Ag 基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、セパレータ 8 はステンレス等で構成されている。

【0021】

上記セパレータ 8 は、厚さ 2 ~ 3 mm のステンレス板で構成され、発電セル 5 間を電氣的に接続すると共に、発電セル 5 に対して反应用ガスを供給する機能を有し、その内部

10

20

30

40

50

に燃料ガスをセパレータ 8 の縁部から導入してセパレータ 8 の燃料極集電体 6 に対向する面のほぼ中央部 1 1 a から吐出する燃料ガス通路 1 1 と、酸化剤ガスをセパレータ 8 の縁部から導入してセパレータ 8 の空気極集電体 7 に対向する面のほぼ中央 1 2 a から吐出する酸化剤ガス通路 1 2 を有する。

【 0 0 2 2 】

また、セパレータ 8 の左右縁部には、板厚方向に貫通する一対のガス孔 1 3、1 4 が設けてあり、一方のガス孔 1 3 は燃料ガス通路 1 1 に、他方のガス孔 1 4 は酸化剤ガス通路 1 2 に連通し、各々のガス孔 1 3、1 4 からこれらのガス通路 1 1、1 2 を通して各発電セル 5 の各電極面に燃料ガスおよび酸化剤ガスが供給されるようになっている。尚、上下に積層されるセパレータ 8 のガス孔同士は、それぞれリング状の絶縁性ガスケット 1 5、1 6 にて連結されている。

10

【 0 0 2 3 】

本実施形態のセパレータは、例えば、図 2 に示すように、左右のマニホールド部分 8 a、8 a と中央の発電セル 5 が位置する部分 8 c とを繋ぐ連絡部分 8 b、8 b を肉薄・幅狭として積層方向の加重に対してある程度の可撓性を持たせた構造として、スタック組立後にセパレータ 8 に掛かる荷重をマニホールド部分 8 a と発電セル 5 が位置する部分 8 c とに分離させるようにしたもので、この点が図 5 に示した全体的に高い剛性を有する従来型と相違している。

【 0 0 2 4 】

連絡部分に可撓性を持たせることにより、構成要素の積層・組立で生じる周縁のマニホールド部分 8 a と中央の発電セル 5 の位置する部分の高さバラツキ等を吸収して各部 8 a、8 c が個々に確実な状態で加重されるようになる。即ち、上記した各部分 8 a、8 c は相互に影響を及ぼすことなく個々に加重される。

20

その結果、好適荷重により、積層体を構成する各発電要素の密着性とガスケット部分のガスシール性が向上し、発電性能および発電効率の向上が図れる。

【 0 0 2 5 】

上記構成の単セル 1 0 を、間にガスケット 1 5、1 6 を介在して順次積層していくことにより、図 1 に示す平板積層型の燃料電池スタック 1 が構成される。この燃料電池スタック 1 の上下両端に締付板 2 0 a と締付板 2 0 b が配設されている。

上締付板 2 0 a はドーナツ状を成し、この締付板 2 0 a をスタックの上端部に配置すると、中央部の孔 2 3 よりセパレータ 8 の中央部分、即ち、発電セルが位置する部分 8 c が露出するようになっている。一方、下締付板 2 0 b は円板状を成し、スタックの底部を下方より支持する。

30

【 0 0 2 6 】

燃料電池スタック 1 は、図 1 に示すように、スタック上下両端に締付板 2 0 a、2 0 b を配してその周縁部がボルト 2 1 にて締め付けられ、その強力な締め付け荷重により、主にスタック各層のマニホールド部分 8 a、8 a において、セパレータ 8 のガス孔 1 3、1 4 と各ガスケット 1 5、1 6 を機械的に密着・接合させる。締め付け荷重により、各々のガスケット 1 5、1 6 がそれぞれセパレータ 8 の各ガス孔 1 3、1 4 を介して積層方向に連結されることにより、スタック内部を積層方向に延びる燃料ガス用の管状マニホールドと酸化剤ガス用の管状マニホールドの 2 系統が形成される。

40

尚、発電時、各管状マニホールドには、外部から供給される燃料ガスと酸化剤ガスが流通し、各ガスが各セパレータ 8 のガス孔 1 3、1 4 より各ガス通路を介して各発電セル 5 の各電極面に分配・誘導される。

【 0 0 2 7 】

また、上締付板 2 0 a の中央部（孔 2 3 の部分）には、縁部材 2 4 を介在して錘 2 2 が配設されており、この錘 2 2 による積層方向の荷重によりセパレータ 8 の中央部分 8 c が押圧されることにより、単セル 1 0 を構成する複数の発電要素が相互に密着させられて一体的に固定される。

尚、セパレータ 8 間に介在されている燃料極集電体 6 と空気極集電体 7 はスポンジ状の

50

多孔質焼結金属とされるから、錘 2 2 の荷重でこれらスポンジ状部材が弾性変形し、上下セパレータ 8 の間にある程度の弾力を持って圧接・挟持された状態となっている。

このため、錘 2 2 による発電部分の荷重は、上記したボルト 2 1 によるマニホールド部分 8 a の強力な締め付け荷重に比べて極端に少なくしても発電要素間に良好な電氣的接触性が得られることになり、荷重による各発電要素のダメージを極力軽減できる。

【 0 0 2 8 】

このように、本発明の燃料電池スタック 1 では、セパレータ 8 のマニホールド部分 8 a と発電セル 5 の位置する部分 8 c のそれぞれに他の部分に影響を与えずに最適荷重を掛け得る構造としている。この結果、スタックを構成する各発電要素の密着性とマニホールド部分 8 a のガスシール性をより一層向上した状態で両立させることが可能となる。

10

【 0 0 2 9 】

このような加重構造は、セパレータ 8 に設けた連絡部分 8 b の奏する可撓性により可能となるものであり、実施形態の燃料電池スタック 1 では、図 1 (a) に示すような連絡部分 8 b を細長帯状としたセパレータ 8 を用いている。

当セパレータ 8 も、マニホールド部分 8 a と発電セル 5 が位置する部分 8 c との連絡部分 8 b に荷重に対する可撓性を持たせた点は図 2 のセパレータ 8 の場合と同様であるが、本実施形態で連絡部分 8 b をセパレータ 8 に沿う細長帯状とすることにより、図 2 のように連絡部分 8 b の肉厚を他の部分より薄くしなくとも優れた可撓性が得られること、セパレータ 8 自体をコンパクトに纏められること等のメリットを有する。

【 0 0 3 0 】

20

尚、燃料電池スタック 1 に掛ける積層方向の荷重は構成要素の高温クリープ等を考慮して各発電要素の電氣的接触性とガスケットのシール性を確保可能な必要最小限に設定することが好ましく、本実施形態では、縁部のマニホールド部分 8 a は数百 k g f 程度に、中央部の発電部分 8 c は数 k g f 程度の荷重が設定されている。

【 0 0 3 1 】

また、図 1、図 2 において、セパレータ 8 の連絡部分 8 b の表面に図示しない断熱材や断熱塗料を用いた断熱処理を施すこともできる。連絡部分 8 b に断熱処理を施すことにより、各マニホールドからの反应用ガスがこの連絡部分 8 b を流通・通過する間に加熱、または冷却されるのが抑制でき、よって、反应用ガスはマニホールド内に導入された好適温度の状態でマニホールド部分 8 a より発電セル 5 に供給されることになり、これにより、発電セル部分 8 c の温度が安定し、各発電要素の密着性は向上する。

30

【 0 0 3 2 】

以上、本実施形態では円板状のセパレータ 8 を用いたが、セパレータ 8 の形状はこれに限定されるものではなく、例えば、図 4 に示すような四角形状のセパレータ 8 としても勿論構わない。本構成においても、図 1 (a) と同様に、マニホールド部分 8 a と発電セル 5 が位置する部分 8 c との連絡部分 8 b を細長帯状として荷重に対する可撓性を持たせている。当連絡部分 8 b においても、上記した断熱処理を施すことは勿論可能である。

【 0 0 3 3 】

尚、図 4 において、セパレータ 8 内部には、反应用ガスが流通する燃料ガス通路 1 1 と酸化剤ガス通路 1 2 がそれぞれ渦巻状に、且つ、それぞれが交差しないように入れ子状態に形成されている。従って、セパレータ 8 内に導入された反应用ガスは渦巻状に形成された各ガス通路 1 1、1 2 を通してセパレータ 8 内部の全域に流通する過程でセパレータ 8 と効率良く熱交換し、セパレータ 8 は面方向の全域に亘って均一に加熱される。よって、発電セル部分 8 c の温度はより安定し、各発電要素の密着性はより向上する。

40

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 3 4 】

【 図 1 】本発明が適用された平板積層型固体酸化物形燃料電池の構成を示し、(a) は上面図、(b) は側面図。

【 図 2 】本発明に係るセパレータの構造を示す図。

【 図 3 】本発明に係る単セルの構成を示す図。

50

【図4】本発明に係る図2とは別のセパレータの構造を示す図。

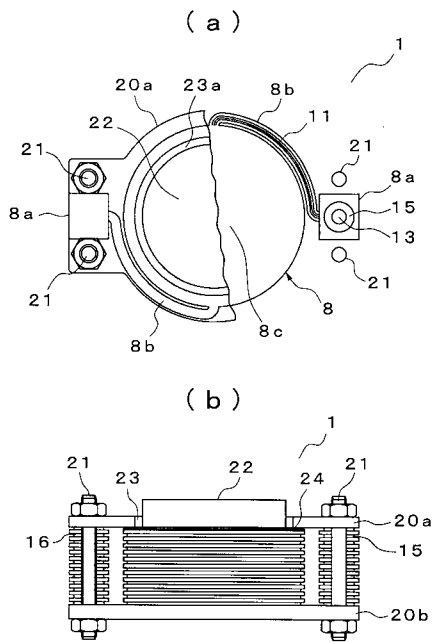
【図5】従来のセパレータの構造を示す図。

【符号の説明】

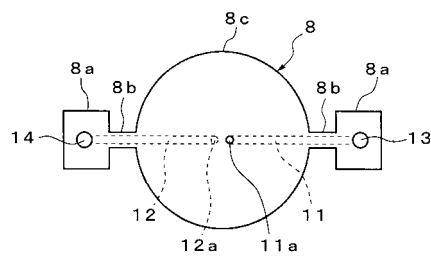
【0035】

- 1 積層体（燃料電池スタック）
- 5 発電セル
- 8 セパレータ
- 8 a マニホールド部分
- 8 b 連絡部分
- 8 c 発電セルが位置する部分
- 11、12 ガス通路（燃料ガス通路、酸化剤ガス通路）

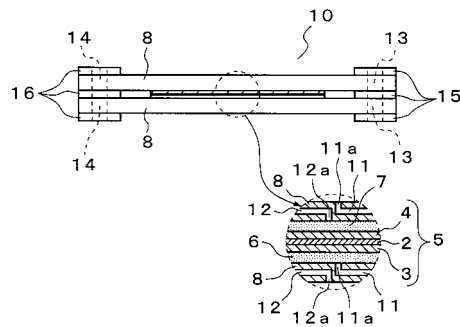
【図1】



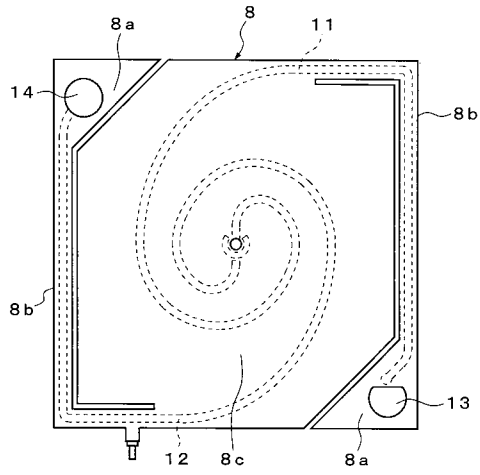
【図2】



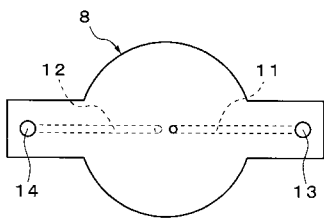
【図3】



【 4 】



【 5 】



フロントページの続き

(72)発明者 小谷 尚史

茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター
内

(72)発明者 駒田 紀一

茨城県那珂郡那珂町向山1002-14 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター
内

審査官 原 賢一

(56)参考文献 特開平11-016581(JP,A)

特開平06-275293(JP,A)

特開2004-146343(JP,A)

実開平03-109266(JP,U)

特開2005-183087(JP,A)

特開2005-209620(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/24

H01M 8/02

H01M 8/12