

(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2012-181927
(P2012-181927A)

(43) 公開日 平成24年9月20日 (2012.9.20)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 8/02 (2006.01)	HO 1 M 8/02 Z	5 H 0 2 6
HO 1 M 8/12 (2006.01)	HO 1 M 8/12	
	HO 1 M 8/02 Y	

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2011-42089 (P2011-42089)	(71) 出願人	000006633
(22) 出願日	平成23年2月28日 (2011. 2. 28)		京セラ株式会社
		(72) 発明者	松上 和人
			鹿児島県霧島市国分山下町 1 番 4 号 京セラ株式会社総合研究所内
		F ターム (参考)	5H026 AA06 EE13 HH03 HH05

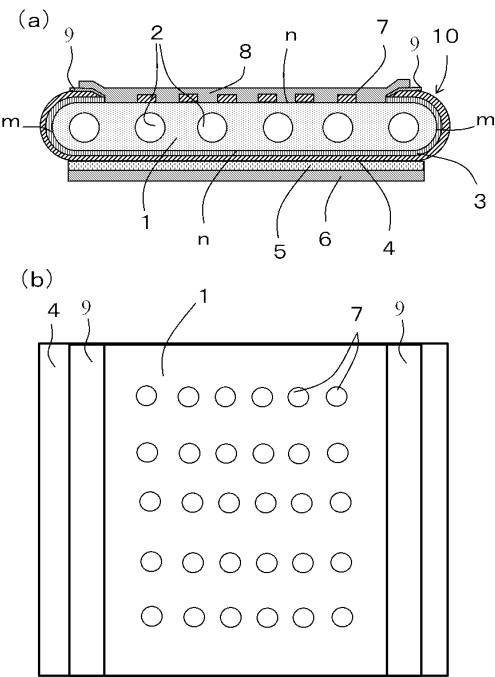
(54) 【発明の名称】 固体酸化物形燃料電池セルおよび燃料電池モジュール

(57) 【要約】

【課題】 導電性支持体とインターコネクタとの間の導通が良好で、インターコネクタの中間層への接合強度が高い固体酸化物形燃料電池セルおよび燃料電池モジュールを提供する。

【解決手段】 ZrO_2 を除く無機酸化物と Ni とを含有する導電性支持体 1 に、燃料極層 3、固体電解質層 4 および空気極層 6 を備えた発電部が設けられているとともに、該発電部が設けられていない導電性支持体 1 の部分に La を含有するペロブスカイト型酸化物からなるインターコネクタ 8 が設けられている固体酸化物形燃料電池セルであって、導電性支持体 1 とインターコネクタ 8 との間に、複数の Zr を含有する中間層 7 が所定間隔をおいて形成されていることを特徴とする。

【選択図】 図 1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ZrO₂を除く無機酸化物とNiとを含有する導電性支持体に、燃料極層、固体電解質層および空気極層を備えた発電部が設けられているとともに、該発電部が設けられていない前記導電性支持体の部分にLaを含有するペロブスカイト型酸化物からなるインターコネクタが設けられている固体酸化物形燃料電池セルであって、前記導電性支持体と前記インターコネクタとの間に、複数のZrを含有する中間層が所定間隔をおいて形成されていることを特徴とする固体酸化物形燃料電池セル。

【請求項 2】

前記導電性支持体は、内部に燃料ガスを流通させるための燃料ガス流路を有するとともに、前記導電性支持体は、前記固体電解質層と前記インターコネクタとで気密に囲まれていることを特徴とする請求項 1 に記載の固体酸化物形燃料電池セル。

10

【請求項 3】

前記導電性支持体が柱状であり、複数の前記中間層は、前記導電性支持体の長さ方向の両端部に、前記導電性支持体の長さ方向中央部よりも高い密度で形成されていることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の固体酸化物形燃料電池セル。

【請求項 4】

請求項 1 乃至 3 のうちいずれかに記載された固体酸化物形燃料電池セルを収納容器内に収納してなることを特徴とする燃料電池モジュール。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体酸化物形燃料電池セルおよび燃料電池モジュールに関し、特に、導電性支持体に発電部が設けられているとともに、該発電部が設けられていない導電性支持体の部分にLaを含有するペロブスカイト型酸化物からなるインターコネクタが設けられている固体酸化物形燃料電池セルおよび燃料電池モジュールに関するものである。

【背景技術】

【0002】

近年、次世代エネルギーとして、固体酸化物形燃料電池セルを収納容器内に収容した燃料電池モジュールが種々提案されている。

30

【0003】

このような固体酸化物形燃料電池セルとして、互いに平行な一对の平坦面を有し、内部に燃料ガスを流通させるための燃料ガス流路を有するとともに、Niを含有してなる導電性支持体の一方側の平坦面上に、燃料極層、固体電解質層、空気極層を順に積層し、他方側の平坦面上にインターコネクタを積層してなる固体酸化物形燃料電池セルが提案されている（例えば、特許文献 1 参照）。

【0004】

そして、このような固体酸化物形燃料電池セルの複数個を、集電部材を介して電氣的に接続してなる燃料電池セルスタック装置が提案されている（例えば、特許文献 2 参照）。

【0005】

40

従来、固体酸化物形燃料電池セルは、導電性支持体の周囲を取り囲むように形成された緻密質なZrO₂系焼結体からなる固体電解質層と、この固体電解質層の両端部に、緻密質なLaCrO₃系焼結体からなるインターコネクタの両端部を接合し、また、導電性支持体とインターコネクタとの間を中間層を介して接合し、固体電解質層とインターコネクタとにより導電性支持体の周囲を気密に取り囲み、導電性支持体の内部を通過する燃料ガスが、固体電解質層とインターコネクタとにより形成された空間から外部に漏出しないように構成されていた。

【0006】

中間層としては、NiまたはNiOと、希土類元素が固溶したジルコニアもしくは希土類元素酸化物とから形成された焼結体が知られている（例えば、特許文献 3 参照）。

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開2008-84716号公報

【特許文献2】特開2008-135304号公報

【特許文献3】特開2004-265734号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

しかしながら、NiまたはNiOと、希土類元素が固溶したジルコニアとから形成された中間層では、その上面に形成されるLaCrO₃系焼結体からなるインターコネクタからのLaが中間層のZrと反応して界面にランタンジルコネートを形成し、中間層へのインターコネクタの接合強度を向上できるものの、ランタンジルコネートの電気抵抗が大きいため、導電性支持体とインターコネクタとの間の導通を阻害し、固体酸化物形燃料電池セルの発電性能が低下するおそれがあった。

10

【0009】

また、導電性支持体とインターコネクタとの間に、NiまたはNiOと、希土類元素酸化物とから形成された中間層を形成した場合には、中間層と導電性支持体との間に電気抵抗の低いランタンジルコネート等の反応生成物が形成されないため、導電性支持体とインターコネクタとの間の導通は良好なものの、インターコネクタの中間層への接合強度が低くなるおそれがあった。

20

【0010】

本発明は、導電性支持体とインターコネクタとの間の導通が良好で、インターコネクタの中間層への接合強度が高い固体酸化物形燃料電池セルおよび燃料電池モジュールを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明の固体酸化物形燃料電池セルは、ZrO₂を除く無機酸化物とNiとを含有する導電性支持体に、燃料極層、固体電解質層および空気極層を備えた発電部が設けられているとともに、該発電部が設けられていない前記導電性支持体の部分にLaを含有するペロブスカイト型酸化物からなるインターコネクタが設けられている固体酸化物形燃料電池セルであって、前記導電性支持体と前記インターコネクタとの間に、Zrを含有する複数の中間層が所定間隔をおいて形成されていることを特徴とする。

30

【0012】

本発明の燃料電池モジュールは、上記固体酸化物形燃料電池セルを収納容器内に収納してなることを特徴とする。

【発明の効果】

【0013】

本発明の固体酸化物形燃料電池セルは、ZrO₂を除く無機酸化物とNiとを含有する導電性支持体と、Laを含有するペロブスカイト型酸化物からなるインターコネクタとの間に、Zrを含有する複数の中間層が所定間隔をおいて形成されているため、中間層とインターコネクタの間にはランタンジルコネートが生成し、中間層とインターコネクタとの接合強度を向上できるとともに、中間層が形成されていない部分では、導電性支持体とインターコネクタとの間に電気抵抗の大きいランタンジルコネートが生成しないため、導電性支持体とインターコネクタとの間で高い導通を維持できる。これにより、中間層が形成されている部分では、導電性支持体とインターコネクタとの接合強度を高く維持でき、中間層が形成されていない部分では、導電性支持体とインターコネクタとの間の電気抵抗を小さくして高い導通を維持できる。

40

【図面の簡単な説明】

【0014】

50

【図 1】固体酸化物形燃料電池セルを示すもので、(a) は横断面図、(b) はインターコネクタの記載を省略した状態の側面図である。

【図 2】中間層を、導電性支持体の長さ方向の両端部に、導電性支持体の長さ方向中央部よりも高い密度で形成した状態を示すもので、インターコネクタの記載を省略した状態の側面図である。

【図 3】燃料電池セルスタック装置の一例を示し、(a) は燃料電池セルスタック装置を概略的に示す側面図、(b) は (a) の燃料電池セルスタック装置の破線で囲った部分の一部を示す断面図である。

【図 4】燃料電池モジュールの一例を示す外観斜視図である。

【図 5】燃料電池装置の一部を省略して示す斜視図である。

10

【発明を実施するための形態】

【0015】

図 1 は、本形態の固体酸化物形燃料電池セル（以下、燃料電池セルと略す）の一例を示すものであり、(a) はその横断面図、(b) は (a) において、島状に複数形成された中間層が明確になるように、インターコネクタの記載を省略した側面図である。なお、両図面において、燃料電池セル 10 の各構成を一部拡大して示している。また、図 1 (b) は、長さ方向に縮小して記載しており、実際は上下方向に長い形状とされている。

【0016】

この燃料電池セル 10 は、中空平板型の燃料電池セル 10 で、断面が扁平状で、全体的に見て楕円柱状をした、Ni と ZrO_2 を除く無機酸化物とを含有する多孔質の導電性支持体 1 を備えている。導電性支持体 1 の内部には、適当な間隔で複数の燃料ガス流路 2 が長手方向に形成されており、燃料電池セル 10 は、この導電性支持体 1 上に各種の部材が設けられた構造を有している。

20

【0017】

導電性支持体 1 は、図 1 に示されている形状から理解されるように、互いに平行な一对の平坦面 n と、一对の平坦面 n をそれぞれ接続する弧状面（側面）m とで構成されている。平坦面 n の両面は互いにほぼ平行に形成されており、一方の平坦面 n（下面）と両側の弧状面 m を覆うように多孔質な燃料極層 3 が設けられており、さらに、この燃料極層 3 を覆うように、緻密質な固体電解質層 4 が積層されている。また、固体電解質層 4 の上には、反応防止層 5 を介して、燃料極層 3 と対面するように、多孔質な空気極層 6 が積層されている。

30

【0018】

燃料極層 3、固体電解質層 4、反応防止層 5 および空気極層 6 により発電部が構成されており、この発電部が導電性支持体 1 に設けられている。導電性支持体 1 は、内部に燃料ガスを流通させるための燃料ガス流路 2 を有するとともに、導電性支持体 1 は、固体電解質層 4 とインターコネクタ 8 とで気密に囲まれている。

【0019】

燃料極層 3 および固体電解質層 4 は、両端の弧状面 m を経由して他方の平坦面 n（上面）まで形成されており、 ZrO_2 系焼結体からなる固体電解質層 4 の両端部に、 $LaCrO_3$ 系焼結体からなるインターコネクタ 8 の両端部が焼結体からなる接合層 9 を介して接合され、固体電解質層 4 とインターコネクタ 8 で導電性支持体 1 を取り囲み、内部を流通する燃料ガスが外部に漏出しないように構成されている。

40

【0020】

言い換えると、平面形状が矩形状のインターコネクタ 8 が導電性支持体 1 の上端から下端まで形成されており、その左右両側端部が、固体電解質層 4 の開口した両端部の表面に、接合層 9 を介して接合している。

【0021】

また、燃料極層 3 および固体電解質層 4 が積層されていない他方の平坦面 n（上面）には、複数の中間層 7 が所定間隔をおいて形成され、さらに La を含有するインターコネクタ 8 が形成されており、複数の中間層 7 は、導電性支持体 1 とインターコネクタ 8 との間

50

に島状に存在している。

【0022】

複数の中間層7は円板状をなしており、図1(b)に示すように、セルの長さ方向に5個、横方向に6個行列をなして配列され、これらの複数の中間層7は相互に所定間隔をおいて形成されている。個数や配列については、自由に設定することができる。中間層7は、主面の形状が円状でなくても、例えば三角形、四角形等の多角形であってもよく、楕円形状であっても良い。

【0023】

中間層7は、Zrを含有している。特に、Niと希土類元素が固溶したZrO₂とを含有していることが望ましい。例えば、NiあるいはNiOの含有量は、65～35体積%であるのが好ましい。さらに、これらの中間層7は緻密質であることが好ましく、その厚みは、7～13μmであるのが好ましい。中間層7は、Niと希土類元素が固溶したZrO₂とを含有するものであるが、その他に希土類元素酸化物、例えばY₂O₃を含有しても良い。

【0024】

また、Niは必ずしも必要ではないが、導電性支持体1との接合強度を向上するため、Niを含有することが望ましい。さらに、Niの代わりに、もしくはNiとともにFe、Coを含有することもできる。中間層7とインターコネクタ8との間には、ランタンジルコネート層が形成されている。

【0025】

このような燃料電池セルでは、導電性支持体1とインターコネクタ8との間に、複数のNiと希土類元素が固溶したZrO₂とを含有する中間層7が所定間隔をおいて形成されているため、中間層7と、この中間層7が接触するインターコネクタ8表面との間にはランタンジルコネートが生成し、中間層7とインターコネクタ8との接合強度を向上できる。

【0026】

一方、中間層7が形成されていない部分、すなわち、導電性支持体1の表面にインターコネクタ8が直接形成された部分は、導電性支持体1とインターコネクタ8との間に、電気抵抗の大きいランタンジルコネートが生成しないため、導電性支持体1とインターコネクタ8との間の導通を高く維持できる。

【0027】

これにより、中間層7が形成されている部分では、導電性支持体1とインターコネクタ8との接合強度を向上でき、中間層7が形成されていない部分では、導電性支持体1とインターコネクタ8との間の電気抵抗を小さくして導通を向上できる。

【0028】

中間層7は、インターコネクタ8側にドーム状に盛り上がった形状であることが望ましい。これにより、各素材間の熱膨張差に起因する応力を緩和することが可能となり、中間層を安定に形成することができる。

【0029】

燃料電池セル10は、燃料極層3と空気極層6とが固体電解質層4を介して対面している部分が電極として機能して発電する。即ち、空気極層6の外側に空気等の酸素含有ガスを流し、且つ導電性支持体1内の燃料ガス流路2に燃料ガス（水素含有ガス）を流し、所定の作動温度まで加熱することにより発電する。そして、かかる発電によって生成した電流は、導電性支持体1に取り付けられているインターコネクタ8を介して集電される。

【0030】

以下に、本形態の燃料電池セル10を構成する各部材について説明する。

【0031】

導電性支持体1は、燃料ガスを燃料極層3まで透過させるためにガス透過性であること、インターコネクタ8を介して集電を行うために導電性であることが要求されることから、例えば、Niと、ZrO₂を除く無機酸化物、例えば、特定の希土類酸化物とにより形

10

20

30

40

50

成されることが好ましい。

ZrO_2 を除く無機酸化物としては、 ZrO_2 以外であれば特に限定されるものではないが、下記のように熱膨張係数の観点、およびインターコネクタ8の構成元素と殆ど反応しないものである。

【0032】

特定の希土類酸化物とは、導電性支持体1の熱膨張係数を固体電解質層4の熱膨張係数に近づけるために使用されるものであり、Y、Lu、Yb、Tm、Er、Ho、Dy、Gd、Sm、Prからなる群より選択される少なくとも1種の元素を含む希土類酸化物が、Niおよび／またはNiOとの組み合わせで使用することができる。このような希土類酸化物の具体例としては、 Y_2O_3 、 Lu_2O_3 、 Yb_2O_3 、 Tm_2O_3 、 Er_2O_3 、 Ho_2O_3 、 Dy_2O_3 、 Gd_2O_3 、 Sm_2O_3 、 Pr_2O_3 を例示することができ、Niおよび／またはNiOとの固溶、反応が殆どなく、また、熱膨張係数が固体電解質層4と同程度であり、かつ安価であるという点から、 Y_2O_3 、 Yb_2O_3 が好ましい。

【0033】

また、本形態においては、導電性支持体1の良好な導電率を維持し、かつ熱膨張係数を固体電解質層4と近似させるという点で、Niおよび／またはNiO：希土類酸化物＝35：65～65：35の体積比で存在することが好ましい。なお、導電性支持体1中には、要求される特性が損なわれない限りの範囲で、他の金属成分や酸化物成分を含有していてもよい。

【0034】

また、導電性支持体1は、燃料ガス透過性を有していることが必要であるため、通常、開気孔率が30%以上、特に35～50%の範囲にあることが好ましい。また、導電性支持体1の導電率は、300S/cm以上、特に440S/cm以上であることが好ましい。

【0035】

なお、導電性支持体1の平坦面nの長さ（導電性支持体1の幅方向の長さ）は、通常、15～35mm、弧状面mの長さ（弧の長さ）は、2～8mmであり、導電性支持体1の厚み（平坦面n間の厚み）は1.5～5mmであることが好ましい。導電性支持体1の長さは、100～150mmとされている。

【0036】

燃料極層3は、電極反応を生じさせるものであり、それ自体公知の多孔質の導電性セラミックスにより形成することが好ましい。例えば、希土類元素が固溶した ZrO_2 または希土類元素が固溶した CeO_2 と、Niおよび／またはNiOとから形成することができる。なお、希土類元素としては、導電性支持体1において例示した希土類元素を用いることができ、例えばYが固溶した ZrO_2 （YSZ）とNiおよび／またはNiOとから形成することができる。

【0037】

燃料極層3中の希土類元素が固溶した ZrO_2 または希土類元素が固溶している CeO_2 の含有量は、35～65体積%の範囲にあるのが好ましく、またNiあるいはNiOの含有量は、65～35体積%であるのが好ましい。さらに、この燃料極層3の開気孔率は、15%以上、特に20～40%の範囲にあるのが好ましく、その厚みは、1～30μmであるのが好ましい。

【0038】

また、燃料極層3は、空気極層6に対面する位置に形成されていればよい。例えば空気極層6が設けられている側の平坦面nにのみ燃料極層3が形成されていてもよい。すなわち、燃料極層3は平坦面nにのみ設けられ、固体電解質層4が燃料極層3上、導電性支持体1の両弧状面m上および燃料極層3が形成されていない他方の平坦面n上に形成された構造をしたものであってもよい。

【0039】

固体電解質層4は、3～15モル%のY、Sc、Yb等の希土類元素を含有した部分安

定化あるいは安定化 ZrO_2 からなる緻密質なセラミックスを用いるのが好ましい。また、希土類元素としては、安価であるという点から Y が好ましい。さらに、固体電解質層 4 は、ガス透過を防止するという点から、相対密度（アルキメデス法による）が 93% 以上、特に 95% 以上の緻密質であることが望ましく、かつその厚みが 5～50 μm であることが好ましい。

【0040】

なお、固体電解質層 4 と後述する空気極層 6 との間に、固体電解質層 4 と空気極層 6 との接合を強固とするとともに、固体電解質層 4 の成分と空気極層 6 の成分とが反応して電気抵抗の高い反応層が形成されることを抑制する目的で反応防止層 5 を備えることもでき、図 1 に示した燃料電池セル 10 においては反応防止層 5 を備えた例を示している。

10

【0041】

ここで、反応防止層 5 としては、Ce と Ce 以外の他の希土類元素とを含有する組成にて形成することができ、例えば、 $(CeO_2)_{1-x}(REO_{1.5})_x$ （式中、RE は Sm、Y、Yb、Gd の少なくとも 1 種であり、x は $0 < x \leq 0.3$ を満足する数）で表される組成を有していることが好ましい。さらには、電気抵抗を低減するという点から、RE として Sm や Gd を用いることが好ましく、例えば 10～20 モル%の $SmO_{1.5}$ または $GdO_{1.5}$ が固溶した CeO_2 からなることが好ましい。

【0042】

空気極層 6 としては、いわゆる ABO_3 型のペロブスカイト型酸化物からなる導電性セラミックスにより形成することが好ましい。かかるペロブスカイト型酸化物としては、遷移金属ペロブスカイト型酸化物、特に A サイトに Sr と La が共存する $LaMnO_3$ 系酸化物、 $LaFeO_3$ 系酸化物、 $LaCoO_3$ 系酸化物の少なくとも 1 種が好ましく、600～1000℃程度の作動温度での電気伝導性が高いという点から $LaCoO_3$ 系酸化物が特に好ましい。なお、上記ペロブスカイト型酸化物においては、B サイトに、Co とともに Fe や Mn が存在しても良い。

20

【0043】

また、空気極層 6 は、ガス透過性を有する必要があるため、従って、空気極層 6 を形成する導電性セラミックス（ペロブスカイト型酸化物）は、開気孔率が 20% 以上、特に 30～50% の範囲にあることが好ましい。さらに、空気極層 6 の厚みは、集電性という点から 30～100 μm であることが好ましい。

30

【0044】

また、導電性支持体 1 の空気極層 6 側と反対側の平坦面 n 上には、中間層 7 を介してインターコネクタ 8 が積層されている。

【0045】

インターコネクタ 8 としては、La を含有するペロブスカイト型酸化物からなる導電性セラミックスにより形成されている。燃料ガス（水素含有ガス）および酸素含有ガスと接触するため、耐還元性、耐酸化性を有していることが必要である。このため、耐還元性、耐酸化性を有する導電性セラミックスとしては、例えば、La と、Cr または Ti とを含有するペロブスカイト型酸化物（ $LaCrO_3$ 系酸化物、 $LaTiO_3$ 系酸化物）を用いることができる。導電性支持体 1 および固体電解質層 4 の熱膨張係数に近づける目的から、B サイトに Mg が存在する $LaCrMgO_3$ 系酸化物を用いることができる。

40

【0046】

また、インターコネクタ 8 の厚みは、ガスのリーク防止と電気抵抗という点から、10～50 μm であることが好ましい。この範囲ならばガスのリークを防止できるとともに、電気抵抗を小さくできる。

【0047】

上記した固体電解質層 4 の両端部には、インターコネクタ 8 の両端部が接合層 9 を介して接合されている。

【0048】

以上説明した本形態の燃料電池セル 10 の作製方法の一例について説明する。

50

【0049】

先ず、例えば、Niおよび／またはNiO粉末と、 Y_2O_3 などの希土類酸化物の粉末と、有機バインダーと、溶媒とを混合して坯土を調製し、この坯土を用いて押出成形により導電性支持体成形体を作製し、これを乾燥する。なお、導電性支持体成形体として、導電性支持体成形体を900～1000℃にて2～6時間仮焼した仮焼体を用いてもよい。

【0050】

次に、例えば所定の調合組成に従いNiO、 Y_2O_3 が固溶した ZrO_2 （YSZ）の素原料を秤量、混合する。この後、混合した粉体に、有機バインダーおよび溶媒を混合して燃料極層用スラリーを調製する。

【0051】

さらに、希土類元素が固溶した ZrO_2 粉末に、トルエン、バインダー、市販の分散剤等を加えてスラリー化したものをドクターブレード等の方法により、7～75μmの厚さに成形してシート状の固体電解質層成形体を作製する。得られたシート状の固体電解質層成形体上に燃料極層用スラリーを塗布して燃料極層成形体を形成し、この燃料極層成形体側の面を導電性支持体成形体に積層する。なお、燃料極層用スラリーを導電性支持体成形体の所定位置に塗布し乾燥して、固体電解質層成形体を導電性支持体成形体（燃料極層成形体）に積層しても良い。

【0052】

続いて固体電解質層4と空気極層6との間に配置する反応防止層5を形成する。

【0053】

例えば、 $GdO_{1.5}$ が固溶した CeO_2 粉末を800～900℃にて2～6時間、熱処理を行い、反応防止層成形体用の原料粉末を調整する。

【0054】

そして、反応防止層成形体の原料粉末に、溶媒としてトルエンを添加し、中間層用スラリーを作製し、このスラリーを固体電解質層成形体上に塗布して反応防止層の塗布膜を形成し、成形体を作製する。なお、シート状の成形体を作製し、これを固体電解質層成形体上に積層してもよい。

【0055】

続いて、インターコネクタ用材料（例えば、 $LaCrMgO_3$ 系酸化物粉末）、有機バインダー及び溶媒を混合してスラリーを調製し、インターコネクタ用シートを作製する。

【0056】

続いて、導電性支持体1とインターコネクタ8との間に位置する中間層成形体を形成する。例えば、Yが固溶した ZrO_2 とNiOが体積比で40：60～60：40の範囲となるように混合して乾燥し、有機バインダー等を加えて中間層用スラリーを調整し、導電性支持体成形体に塗布して中間層成形体を形成する。中間層は多数の島状に形成されているため、中間層成形体を複数の島状に形成するため、例えばスクリーン印刷により、図1（b）に示すように行列をなして形成する。

【0057】

この後、例えば、MgOを50～68モル％と、 Y_2O_3 を30～47モル％と、 La_2O_3 を3～5モル％とからなる接合層形成材料、有機バインダー及び溶媒を混合してスラリーを調製し、このスラリーを、固体電解質層成形体の両端部に塗布して接合層成形体を作製し、この接合層成形体の上に、インターコネクタ用シートの端部を積層するように、かつ、中間層成形体が形成された導電性支持体成形体上に積層し、積層成形体を作製する。

【0058】

次いで、上記の積層成形体を脱バインダー処理し、酸素含有雰囲気中、1400～1450℃にて2～6時間、同時焼結（同時焼成）する。

【0059】

さらに、空気極層用材料（例えば、 $LaCoO_3$ 系酸化物粉末）、溶媒および増孔剤を含有するスラリーをディッピング等により反応防止層上に塗布し、1000～1300℃

10

20

30

40

50

で、2～6時間焼き付けることにより、図1に示す構造の本形態の燃料電池セル10を製造できる。なお、燃料電池セル10は、その後、内部に水素ガスを流し、導電性支持体1および燃料極層3の還元処理を行なうのが好ましい。その際、たとえば750～1000℃にて5～20時間還元処理を行なうのが好ましい。

【0060】

図3は、上述した燃料電池セル10の複数個を、集電部材13を介して電氣的に直列に接続して構成される燃料電池セルスタック装置の一例を示したものであり、(a)は燃料電池セルスタック装置11を概略的に示す側面図、(b)は(a)の燃料電池セルスタック装置11の一部拡大断面図であり、(a)で示した破線で囲った部分を抜粋して示している。なお、(b)において(a)で示した破線で囲った部分に対応する部分を明確とするために矢印にて示しており、(b)で示す燃料電池セル10においては、上述した中間層7、反応防止層5等の一部の部材を省略して示している。

10

【0061】

なお、燃料電池セルスタック装置11においては、各燃料電池セル10を集電部材13を介して配列することで燃料電池セルスタック12を構成しており、各燃料電池セル10の下端部が、燃料電池セル10に燃料ガスを供給するためのガスタンク16に、ガラスシール材等の接着剤により固定されている。また、燃料電池セル10の配列方向の両端から集電部材13を介して燃料電池セルスタック12を挟持するように、ガスタンク16に下端部が固定された弾性変形可能な導電部材14を具備している。

【0062】

20

また、図3に示す導電部材14においては、燃料電池セル10の配列方向に沿って外側に向けて延びた形状で、燃料電池セルスタック12（燃料電池セル10）の発電により生じる電流を引出すための電流引出し部15が設けられている。

【0063】

ここで、本形態の燃料電池セルスタック装置11においては、上述した燃料電池セル10を用いて、燃料電池セルスタック12を構成することにより、長期信頼性が向上した燃料電池セルスタック装置11とすることができる。

【0064】

図3に示す燃料電池セルスタック装置11では、燃料電池セル10の下端部は、燃料電池セル10に燃料ガスを供給するためのガスタンク16に、ガラスシール材等の接着剤により固定されており、接着剤と燃料電池セル10のインターコネクタ層8とは膨張係数が異なるため、また、固定部においてはインターコネクタ層8に応力が作用しやすいため、また、燃料電池セル10の上端部では燃料ガスが燃焼して高温となるため、導電性支持体1とインターコネクタ層8との間に強い接合強度が要求されている。

30

【0065】

そこで、図2に示すように、中間層7を、導電性支持体1の長さ方向（図2の上下方向）の両端部に、導電性支持体1の長さ方向中央部よりも高い密度で形成されていることが望ましい。このように、導電性支持体1の長さ方向の両端部における中間層7の形成密度を高くすることにより、導電性支持体1の長さ方向の両端部において、導電性支持体1とインターコネクタ層8との間における接合強度を向上できる。

40

【0066】

一方で、燃料電極層3と固体電解質層4と空気極層6とが積層された発電部は、導電性支持体1の長さ方向の中央部に形成されており、両端部には形成されていないため、導電性支持体1の長さ方向中央部では中間層7の形成密度が低いことに起因して導電性支持体1とインターコネクタ層6との電気伝導性を高くでき、発電性能を向上できる。

【0067】

すなわち、導電性支持体1の長さ方向の両端部には、長さ方向中央部よりも、複数の中間層7を高い形成密度（導電性支持体1の一定面積に対する複数の中間層の面積）で形成した高密度形成部7aを有している。これらの高密度形成部7aの領域（面積）については適宜設定することができ、その形成密度についても適宜設定することができる。

50

【0068】

1個の中間層の大きさは、例えば、円板状の場合には、主面の寸法が1mm以上であることが望ましいが、導電性支持体1とインターコネクタ層6との接合強度を向上するためには、小さい、例えば直径5mm以下であることが望ましい。

【0069】

また、図2では、導電性支持体1の長さ方向の両端部に高密度形成部7aを形成したが、上端部、または下端部のいずれかに形成しても良いことは勿論である。

【0070】

図4は、燃料電池セルスタック装置11を収納容器内に収納してなる燃料電池モジュール18の一例を示す外観斜視図であり、直方体状の収納容器19の内部に、図3に示した燃料電池セルスタック装置11を収納して構成されている。

10

【0071】

なお、燃料電池セル10にて使用する燃料ガスを得るために、天然ガスや灯油等の原燃料を改質して燃料ガスを生成するための改質器20を燃料電池セルスタック12の上方に配置している。そして、改質器20で生成された燃料ガスは、ガス流通管21を介してガスタンク16に供給され、ガスタンク16を介して燃料電池セル10の内部に設けられたガス流路2に供給される。

【0072】

なお、図4においては、収納容器19の一部（前後面）を取り外し、内部に収納されている燃料電池セルスタック装置11および改質器20を後方に取り出した状態を示している。図4に示した燃料電池モジュール18においては、燃料電池セルスタック装置11を、収納容器19内にスライドして収納することが可能である。なお、燃料電池セルスタック装置11は、改質器20を含むものとしても良い。

20

【0073】

また収納容器19の内部に設けられた酸素含有ガス導入部材22は、図4においてはガスタンク16に並置された燃料電池セルスタック12の間に配置されるとともに、酸素含有ガスが燃料ガスの流れに合わせて、燃料電池セル10の側方を下端部から上端部に向けて流れるように、燃料電池セル10の下端部に酸素含有ガスを供給する。

【0074】

そして、燃料電池セル10のガス流路より排出される燃料ガスを酸素含有ガスと反応させて燃料電池セル10の上端部側で燃焼させることにより、燃料電池セル10の温度を上昇させることができ、燃料電池セルスタック装置11の起動を早めることができる。また、燃料電池セル10の上端部側にて、燃料電池セル10のガス流路から排出される燃料ガスと酸素含有ガスを燃焼させることにより、燃料電池セル10（燃料電池セルスタック12）の上方に配置された改質器20を温めることができる。それにより、改質器20で効率よく改質反応を行うことができる。

30

【0075】

さらに、本形態の燃料電池モジュール18においても、上述した燃料電池セルスタック装置11を収納容器19内に収納してなることから、長期信頼性が向上した燃料電池モジュール18とすることができる。

40

【0076】

図5は、外装ケース内に図4で示した燃料電池モジュール18と、燃料電池セルスタック装置11を動作させるための補機とを収納してなる燃料電池装置を示す斜視図である。なお、図5においては一部構成を省略して示している。

【0077】

図5に示す燃料電池装置23は、支柱24と外装板25とから構成される外装ケース内を仕切板26により上下に区画し、その上方側を上述した燃料電池モジュール18を収納するモジュール収納室27とし、下方側を燃料電池モジュール18を動作させるための補機類を収納する補機収納室28として構成されている。なお、補機収納室28に収納する補機類は省略して示している。

50

【0078】

また、仕切板26には、補機収納室28の空気をモジュール収納室27側に流すための空気流通口29が設けられており、モジュール収納室27を構成する外装板25の一部に、モジュール収納室27内の空気を排気するための排気口30が設けられている。

【0079】

このような燃料電池装置23においては、上述したように、信頼性を向上することができる燃料電池モジュール18をモジュール収納室27に収納して構成されることにより、信頼性の向上した燃料電池装置23とすることができる。

【0080】

以上、本発明は上述の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において、種々の変更、改良等が可能である。

10

【0081】

例えば、上記形態では、中空平板型の固体電解質形燃料電池セルについて説明したが、円筒型の固体電解質形燃料電池セルであっても良いことは勿論である。

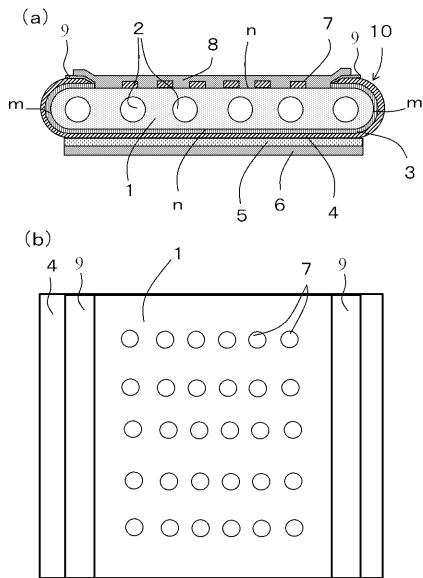
【符号の説明】

【0082】

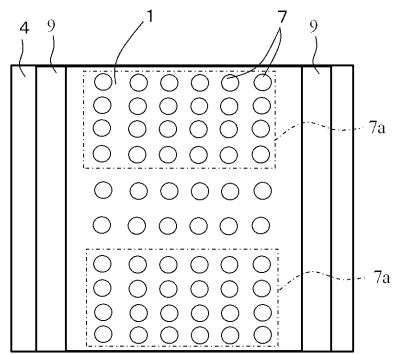
- 1：導電性支持体
- 2：燃料ガス流路
- 3：燃料極層
- 4：固体電解質層
- 5：反応防止層
- 6：空気極層
- 7：中間層
- 8：インターコネクタ
- 11：燃料電池セルスタック装置
- 18：燃料電池モジュール

20

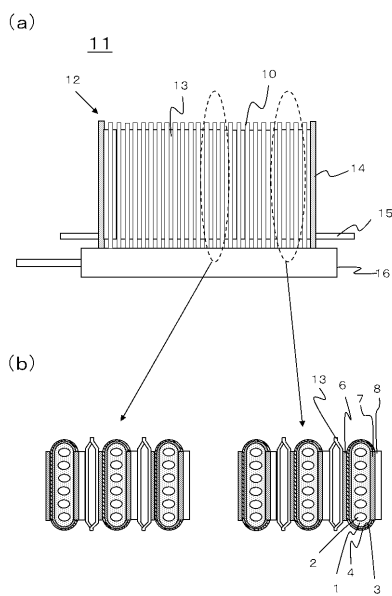
【図 1】



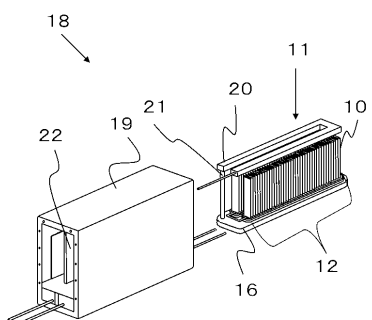
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【図 5】

