

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5300199号  
(P5300199)

(45) 発行日 平成25年9月25日 (2013.9.25)

(24) 登録日 平成25年6月28日 (2013.6.28)

(51) Int. Cl.		F I			
HO 1 M	8/02	(2006.01)	HO 1 M	8/02	Y
HO 1 M	8/12	(2006.01)	HO 1 M	8/12	
HO 1 M	8/24	(2006.01)	HO 1 M	8/24	E

請求項の数 7 (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2007-17863 (P2007-17863)	(73) 特許権者	000006633
(22) 出願日	平成19年1月29日 (2007.1.29)		京セラ株式会社
(65) 公開番号	特開2008-186666 (P2008-186666A)		京都市伏見区竹田鳥羽殿町 6 番地
(43) 公開日	平成20年8月14日 (2008.8.14)	(72) 発明者	島津 健児
審査請求日	平成21年8月18日 (2009.8.18)		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
		(72) 発明者	深水 則光
			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
		審査官	佐藤 知絵

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

複数の中空型の燃料電池セルを電氣的に直列に接続してなるセルスタックを収納容器に収納してなるとともに、

前記燃料電池セルが内部に燃料ガス流路を有し、かつ、固体電解質層の内面に燃料極層、外面に酸素極層を具備してなり、前記複数の燃料電池セルの前記燃料ガス流路の一方端部を前記収納容器内の燃料ガス室にそれぞれ連通せしめ、前記燃料ガス室内の燃料ガスを前記燃料電池セルの前記燃料ガス流路を介して前記燃料極層に供給し、かつ、前記燃料電池セルの前記酸素極層に酸素含有ガスを供給し、発電させる燃料電池であって、

前記複数の燃料電池セルの前記燃料ガス流路形成方向に、前記酸素極層と電氣的に接続される前記酸素極層よりも導電率の高い高導電率層をそれぞれ設けるとともに、

一方の前記燃料電池セルの燃料極層と、該一方の燃料電池セルと隣り合う他方の前記燃料電池セルの前記高導電率層とを、集電部材により電氣的に接続してなり、

前記高導電率層は、前記固体電解質層に接合していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】

前記集電部材の端部が前記燃料電池セルの前記燃料ガス流路形成方向に延設され、前記燃料極層と電氣的に接続されていることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】

前記収納容器内に収容され、前記複数の燃料電池セルの一方端部を固定するマニホルドをさらに備え、

10

20

前記マニホールドの内部が前記燃料ガス室とされていることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の燃料電池。

【請求項 4】

複数の中空型の燃料電池セルを電氣的に直列に接続してなるセルスタックを収納容器に収納してなるとともに、

前記燃料電池セルが内部に酸素含有ガス流路を有し、かつ、固体電解質層の内面に酸素極層、外面に燃料極層を具備してなり、前記複数の燃料電池セルの酸素含有ガス流路の一方端部を前記収納容器内の酸素含有ガス室にそれぞれ連通せしめ、前記酸素含有ガス室内の酸素含有ガスを前記燃料電池セルの前記酸素含有ガス流路を介して前記酸素極層に供給し、かつ、前記燃料電池セルの前記燃料極層に燃料ガスを供給し、発電させる燃料電池であって、

10

前記複数の燃料電池セルの酸素含有ガス流路形成方向に、前記燃料極層と電氣的に接続される集電部材をそれぞれ設けるとともに、

一方の前記燃料電池セルの前記酸素極層と、該一方の燃料電池セルと隣り合う他方の前記燃料電池セルの前記集電部材とを、前記酸素極層よりも導電率の高い高導電率層により電氣的に接続してなり、

前記高導電率層は、前記固体電解質層に接合していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 5】

前記複数の燃料電池セルには、前記酸素極層に電氣的に接続する前記高導電率層がそれぞれ前記酸素含有ガス流路形成方向に設けられていることを特徴とする請求項 4 記載の燃料電池。

20

【請求項 6】

前記収納容器内に收容され、前記複数の燃料電池セルの一方端部を固定するマニホールドをさらに備え、

前記マニホールドの内部が前記酸素含有ガス室とされていることを特徴とする請求項 4 または 5 に記載の燃料電池。

【請求項 7】

前記集電部材は Cr を含有する耐熱性合金からなることを特徴とする請求項 1 ないし 6 のうちいずれかに記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

30

【技術分野】

【0001】

本発明は、複数の中空型燃料電池セルを電氣的に直列に接続してなるセルスタックを収納容器内に収納してなる燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

次世代エネルギーとして、近年、複数の燃料電池セルからなるスタックを収納容器に收容した燃料電池が種々提案されている。

【0003】

図 9 は従来の中空平板型の固体電解質形燃料電池セルのセルスタックを示すもので、このセルスタックは、複数の燃料電池セル 223 (223a、223b) を集合させ、一方の燃料電池セル 223a と他方の燃料電池セル 223b との間に、金属部材などからなる集電部材 225 を介在させ、一方の燃料電池セル 223a の外側電極層 (空気極層) 228 と他方の燃料電池セル 223b のインターコネクタ 230 を介して内側電極層 (燃料極層) 227 とを電氣的に接続して構成されていた。

40

【0004】

燃料電池セル 223 (223a、223b) は、扁平状の内側電極層 227 の外周面に、固体電解質層 229、外側電極層 228 を順次設けて構成されており、固体電解質層 229、外側電極層 228 から露出した内側電極層 227 には、外側電極層 228 に接続しないようにインターコネクタ 230 が設けられている。内側電極層 227 内にはガス流路

50

を構成する複数のガス通過孔 232 が形成されている。

【0005】

一方の燃料電池セル 223a と他方の燃料電池セル 223b との電氣的接続は、他方の燃料電池セル 223b の内側電極層 227 を、該内側電極層 227 に設けられたインターコネクタ 230、集電部材 225 を介して、一方の燃料電池セル 223a の外側電極層 228 に接続することにより行われていた（例えば特許文献 1 参照）。

【0006】

しかしながら、このようなセルスタックでは、燃料電池セルにインターコネクタ 230 を形成する必要があり、燃料電池セルの構造が複雑であり、作製が困難であるという問題があった。このため、従来、インターコネクタを有しない燃料電池セルを用いたセルスタックが知られている。

10

【0007】

このようなセルスタックとしては、特許文献 2 に記載されるように、インターコネクタを有しない複数の燃料電池セルを所定間隔を置いて配置し、一方の燃料電池セルの内側電極層と、隣り合う他方の燃料電池セルの外側電極層とを、導電部材により燃料電池セルの端部にて電氣的に接続されている。

【特許文献 1】特開 2003 - 282101 号公報

【特許文献 2】特開 2004 - 31172 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0008】

しかしながら、特許文献 2 に記載されたセルスタックでは、一方の燃料電池セルの内側電極層と、隣り合う他方の燃料電池セルの外側電極層とを、導電部材により燃料電池セルの端部にて電氣的に接続していたため、電流が、一方の燃料電池セルの内側電極層を長さ方向に燃料電池セルの端部まで流れ、導電部材を介して、隣り合う他方の燃料電池セルの外側電極層に流れ、この外側電極層を長さ方向に流れる必要があり、内側電極層、外側電極層を燃料電池セルの長さ方向に電流が流れるため燃料電池セル間の抵抗が大きく、発電性能が低下するという問題があった。

【0009】

特に、酸素極層は導電性セラミックで構成されていたため、燃料電池セルの酸素極層を長さ方向に電流が流れる場合には抵抗が大きくなり、発電性能が大きく低下するという問題があった。

30

【0010】

本発明は、燃料電池セル間の抵抗を小さくできる燃料電池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】

本発明の燃料電池は、複数の中空型の燃料電池セルを電氣的に直列に接続してなるセルスタックを収納容器に収納してなるとともに、前記燃料電池セルが内部に燃料ガス流路を有し、かつ、固体電解質層の内面に燃料極層、外面に酸素極層を具備してなり、前記複数の燃料電池セルの前記燃料ガス流路の一方端部を前記収納容器内の燃料ガス室にそれぞれ連通せしめ、前記燃料ガス室内の燃料ガスを前記燃料電池セルの前記燃料ガス流路を介して前記燃料極層に供給し、かつ、前記燃料電池セルの前記酸素極層に酸素含有ガスを供給し、発電させる燃料電池であって、前記複数の燃料電池セルの前記燃料ガス流路形成方向に、前記酸素極層と電氣的に接続される前記酸素極層よりも導電率の高い高導電率層をそれぞれ設けるとともに、一方の前記燃料電池セルの燃料極層と、該一方の燃料電池セルと隣り合う他方の前記燃料電池セルの前記高導電率層とを、集電部材により電氣的に接続してなり、前記高導電率層は、前記固体電解質層に接合していることを特徴とする。

40

【0012】

このような燃料電池では、内部に燃料ガス流路を有し、固体電解質層の内面に燃料極層

50

、外面に酸素極層を具備する中空型燃料電池セルを用いるタイプで、酸素含有雰囲気10に晒される酸素極層側では、酸素含有雰囲気10で高導電率を有する導電性セラミック、貴金属からなる高導電率層、例えば、酸素極材料、貴金属材料からなるペーストを塗布熱処理して形成された緻密な高導電率ペースト塗布層を、一方、還元雰囲気に晒され酸化されにくい燃料極層側では、還元雰囲気で高導電率を有する、例えば、Crを含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材を用いることにより、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルを電氣的に直列に確実に接続できるとともに、還元雰囲気に晒される燃料極層側では、例えば導電率の高い耐熱性合金板を、酸素含有雰囲気に晒される酸素極層側では、酸素含有雰囲気10でも高い導電率を有する、例えば高導電率ペースト塗布層を設けたため、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルとの間の電気抵抗を小さくすることができる。また、このような燃料電池では、高導電率層を多孔質の電極層に接合するのではなく、緻密な固体電解質層に接合するため、高導電率層の固体電解質層への接合強度を大きくすることができ、酸素極層に高導電率層を設けないため、酸素極層の剥離をも防止することができる。

#### 【0013】

還元雰囲気に晒され酸化されにくい燃料極層側で、燃料極層よりも導電率の高い耐熱性合金を用いることができ、Crを含有する耐熱性合金を用いる場合、耐熱性合金は酸化されないためクロムが拡散することもなく、燃料電池セルがCr被毒により劣化することがない。また、酸化雰囲気に晒される酸素極層側では、酸素極層よりも導電率の高い、例えば、酸素極材料を用いた緻密な高導電率層、導電性セラミックを用いた高導電率層、酸化されにくい貴金属を用いた高導電率層を使用できる。20

#### 【0014】

また、本発明の燃料電池は、前記集電部材の端部が前記燃料電池セルの燃料ガス流路形成方向に延設され、前記燃料極層と電氣的に接続されていることを特徴とする。

#### 【0015】

このような燃料電池では、電流は、一般に燃料極層よりも電気抵抗の小さい集電部材を燃料ガス流路形成方向に流れ、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルとの間の電気抵抗をさらに小さくすることができる。また、本発明の燃料電池は、収納容器内に収容され、複数の燃料電池セルの一方端部を固定するマニホールドをさらに備え、マニホールドの内部が燃料ガス室とされていることにより、燃料ガス室をマニホールドにより容易に形成でき、収納容器内の構造を簡略化できる。30

#### 【0016】

本発明の燃料電池は、複数の中空型の燃料電池セルを電氣的に直列に接続してなるセルスタックを収納容器に収納してなるとともに、前記燃料電池セルが内部に酸素含有ガス流路を有し、かつ、固体電解質層の内面に酸素極層、外面に燃料極層を具備してなり、前記複数の燃料電池セルの酸素含有ガス流路の一方端部を前記収納容器内の酸素含有ガス室にそれぞれ連通せしめ、前記酸素含有ガス室内の酸素含有ガスを前記燃料電池セルの前記酸素含有ガス流路を介して前記酸素極層に供給し、かつ、前記燃料電池セルの前記燃料極層に燃料ガスを供給し、発電させる燃料電池であって、前記複数の燃料電池セルの酸素含有ガス流路形成方向に、前記燃料極層と電氣的に接続される集電部材をそれぞれ設けるとともに、一方の前記燃料電池セルの前記酸素極層と、該一方の燃料電池セルと隣り合う他方の前記燃料電池セルの前記集電部材とを、前記酸素極層よりも導電率の高い高導電率層により電氣的に接続してなり、前記高導電率層は、前記固体電解質層に接合していることを特徴とする。40

#### 【0017】

このような燃料電池では、内部に酸素含有ガス流路を有し、固体電解質層の内面に酸素極層、外面に燃料極層を具備する中空型燃料電池セルを用いるタイプで、酸素含有雰囲気に晒される酸素極層側では、例えば、酸素極材料からなる緻密な高導電率層を、一方、還元雰囲気に晒される燃料極層側では、例えば、Crを含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材を用いることにより、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルを電氣的に直列50

に確実に接続することができるとともに、還元雰囲気には晒される燃料極層側では導電率の高い耐熱性合金を、酸素含有雰囲気には晒される酸素極層側では、酸素含有雰囲気でも高い導電率を有する高導電率層を設けたため、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルとの間の電気抵抗を小さくすることができる。また、このような燃料電池では、高導電率層を多孔質の電極層に接合するのではなく、緻密な固体電解質層に接合するため、高導電率層の固体電解質層への接合強度を大きくすることができ、酸素極層に高導電率層を設けないため、酸素極層の剥離をも防止することができる。

【0018】

また、本発明の燃料電池は、前記複数の燃料電池セルには、その酸素極層に電氣的に接続する高導電率層がそれぞれ酸素含有ガス流路形成方向に設けられていることを特徴とする。このような燃料電池では、電流は、一般に酸素極層よりも電気抵抗の小さい高導電率層を燃料ガス流路形成方向に流れ、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルとの間の電気抵抗をさらに小さくすることができる。

10

【0019】

また、本発明の燃料電池は、本発明の燃料電池は、収納容器内に收容され、複数の燃料電池セルの一方端部を固定するマニホールドをさらに備え、マニホールドの内部が燃料ガス室とされていることを特徴とする。このような燃料電池では、酸素含有ガス室をマニホールドにより容易に形成でき、収納容器内の構造を簡略化できる。

【0020】

さらに、本発明の燃料電池は、前記集電部材はCrを含有する耐熱性合金からなることを特徴とする。このような燃料電池では、燃料極層側で高温でも抵抗の低い耐熱性合金を用いて燃料電池セル間を電氣的に接続するため、燃料電池セル間の電気抵抗を小さくできる。

20

【発明の効果】

【0022】

本発明の燃料電池では、酸素含有雰囲気には晒される酸素極層側では、例えば、酸素極材料からなる緻密な高導電率層を、一方、還元雰囲気には晒される燃料極層側では、例えば、Crを含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材を用いることにより、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルを電氣的に直列に確実に接続することができるとともに、還元雰囲気には晒される燃料極層側では導電率の高い耐熱性合金を、酸素含有雰囲気には晒される酸素極層側では、酸素含有雰囲気でも高い導電率を有する高導電率層を設けたため、一方の燃料電池セルと他方の燃料電池セルとの間の電気抵抗を小さくすることができる。また、このような燃料電池では、高導電率層を多孔質の電極層に接合するのではなく、緻密な固体電解質層に接合するため、高導電率層の固体電解質層への接合強度を大きくすることができ、酸素極層に高導電率層を設けないため、酸素極層の剥離をも防止することができる。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0023】

以下、図面を参照しつつ本発明の実施形態を説明する。図1は、複数の中空型燃料電池セル11を電氣的に直列に接続してなるセルスタック13が、マニホールド15に固定され、複数の燃料電池セル11がマニホールド15に立設している。

40

【0024】

燃料電池は、燃料電池セル11がマニホールド15に立設した状態でこれを収納容器内に収納して構成されており、複数の燃料電池セル11の燃料ガス流路17の一方端部が、収納容器に収納されたマニホールド15の燃料ガス室19にそれぞれ連通されている。

【0025】

マニホールド15は、図示の例では直方体のケース部15aと上面のガラスシール部15bとからなる筐体形状であるが円筒形状でもよい。ガラスシール部15bは、マニホールド15の天板を構成する。

50

## 【 0 0 2 6 】

燃料電池セル 1 1 は、図 2 に示すように、支持基板（支持体）2 1、内側電極層である燃料極層 2 3、及び固体電解質層 2 5、外側電極層である酸素極層 2 7 を具備して構成されており、いわゆるインターコネクタレス構造とされている。

## 【 0 0 2 7 】

支持基板 2 1 は細長く延びる柱状（薄板柱状片）であり、平坦な両面と半円形状の両側面を有する。支持基板 2 1 にはこれを軸長方向（長さ方向）に貫通する複数個（図示の場合は 6 個）の燃料ガス流路 1 7 が形成されている。

## 【 0 0 2 8 】

この支持基板 2 1 を取り囲むように、環状の燃料極層 2 3 が形成され、この燃料極層 2 3 を取り囲むように環状の固体電解質層 2 5 が設けられ、この固体電解質層 2 5 を取り囲むように環状の酸素極層 2 7 が設けられている。

10

## 【 0 0 2 9 】

支持基板 2 1 は燃料ガスを燃料極層 2 3 まで透過させるためにガス透過性であることが要求され、かかる要求を満足する多孔質の導電性サーメットから形成することができる。

## 【 0 0 3 0 】

燃料極層 2 3 及び / 又は固体電解質層 2 5 との同時焼成により燃料電池セル 1 1 を製造するためには、燃料極層 2 3 及び / 又は固体電解質層 2 5 の熱膨張率と近似する熱膨張率を有する材料で、支持基板 2 1 を形成することが好ましい。

## 【 0 0 3 1 】

支持基板 2 1 は、所要ガス透過性を備えるために開気孔率が 3 0 % 以上、特に 3 5 乃至 5 0 % の範囲にあるのが好適であり、そしてまたその導電率は 3 0 0 S / c m 以上、特に 4 4 0 S / c m 以上であるのが好ましい。

20

## 【 0 0 3 2 】

酸素極層 2 7 は多孔質の導電性セラミック、所謂  $A B O_3$  型のペロブスカイト型酸化物、例えば  $L a F e O_3$  系セラミックスからなる導電性セラミックから形成することができる。酸素極層 2 7 はガス透過性を有していることが必要であり、開気孔率が 2 0 % 以上、特に 3 0 ~ 5 0 % の範囲にあることが好ましい。

## 【 0 0 3 3 】

固体電解質層 2 5 は、電極間の電子の橋渡しをする電解質としての機能を有していると同時に、燃料ガスと空気とのリークを防止するためにガス遮断性を有するものであることが必要であり、通常、3 ~ 1 5 モル % の希土類元素が固溶した  $Z r O_2$  から形成されている。

30

## 【 0 0 3 4 】

燃料極層 2 3 は、例えば希土類元素が固溶している  $Z r O_2$ （安定化ジルコニアと称されている）と  $N i$  及び / 又は  $N i O$  とから形成することができる。

## 【 0 0 3 5 】

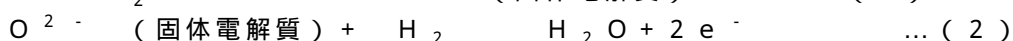
支持基板 2 1 の燃料ガス流路 1 7 には、水素リッチな燃料ガスを供給し流通させる一方、燃料電池セル 1 1 の周囲には空気（すなわち酸素含有ガス）を供給し、燃料ガスは、燃料電池セル 1 1 の支持基板 2 1 を軸方向に貫通する燃料ガス流路 1 7 を上方へ通過し、その間に発電反応が行われる。

40

## 【 0 0 3 6 】

酸素極層 2 7 で下記式（ 1 ）の電極反応を生じ、燃料極層 2 3 で下記式（ 2 ）の電極反応を生じることによって発電する。

## 【 0 0 3 7 】



そして、本発明では、燃料電池セル 1 1 には、図 2 に示すように、酸素極層 2 7 に電氣的に接続する高導電率層 3 1 が燃料ガス流路形成方向 z にそれぞれ設けられている。この高導電率層 3 1 は固体電解質層 2 5 に接合しており、酸素極層 2 7 が形成されていない固

50

体電解質層 2 5 に形成され、高導電率層 3 1 の両端部は、酸素極層 2 7 の端部に接続されている。

【 0 0 3 8 】

高導電率層 3 1 は、酸素含有ガス（酸素含有雰囲気）中、発電温度において、少なくとも酸素極層 2 7 よりも導電率が高いものであり、例えば、A g、A g - P d 等の貴金属材料、例えば、酸素極層に用いられる酸素極材料で、酸素極層よりも緻密質なもの、さらには、例えば、ランタンクロマイト系のような導電性セラミックが使用できる。

【 0 0 3 9 】

酸素極層 2 7 よりも高導電率層 3 1 が高導電率であるか否かについては、燃料電池セルの酸素極層 2 7 に、抵抗測定器の両端子を所定距離において当接して所定間隔における酸素極層 2 7 の抵抗を測定し、一方、高導電率層 3 1 にも、同様にして抵抗測定器の両端子を所定距離において当接して所定間隔における高導電率層 3 1 の抵抗を測定し、これらの抵抗を比較することにより、導電率の比較を行うことができる。

10

【 0 0 4 0 】

このような燃料電池セル 1 1 は、支持基板成形体に燃料極層成形体、固体電解質層成形体を形成し、同時焼成した後、例えば、酸素極材料と有機成分を含有するペーストを焼結体の長さ方向に塗布し、焼き付けて高導電率層 3 1 を形成し、この後、酸素極材料と有機成分と気孔形成材を含有するペーストを、高導電率層 3 1 が形成されていない固体電解質層 2 5 上に塗布し、焼き付けて、高導電率層 3 1 よりも多孔質の酸素極層 2 7 を形成することにより作製することができる。

20

【 0 0 4 1 】

この燃料電池セル 1 1 の支持基板 2 1 の下端面には、図 3 に示すように、集電部材 3 3 の一端部が、マニホールド 1 5 の内部空間（燃料ガス室）において挿入され、支持基板 2 1 の内部に適宜の長さだけ延在している。

【 0 0 4 2 】

集電部材 3 3 は、例えば、C r を含有する耐熱性合金から構成されており、燃料ガス（還元雰囲気）中、発電温度において、支持基板 2 1、燃料極層 2 3 よりも高導電率とされている。

【 0 0 4 3 】

集電部材 3 3 は、隣り合う他方の燃料電池セル 1 1 の酸素極層 2 7 と電気的に接続すべく、リード線部 3 3 a の終端位置に幅方向に拡がる分岐基部 3 3 b を設け、分岐基部 3 3 b を起点として複数本の枝状部 3 3 c を分岐させて支持基板 2 1 の下端部直下まで延在させ、隣接する燃料ガス流路 1 7 間に穿設された適宜の接合穴へ挿入されるように端部 3 3 d が鉛直上方に曲げられている（図 1 参照）。集電部材 3 3 の端部 3 3 d の形状は図示の例に限定されない。

30

【 0 0 4 4 】

好適には、集電部材 3 3 の一方の端部 3 3 d が、接合穴の内部で導電性接着剤により支持基板 2 1 と接合されることにより、確実な電気的接続と固定状態が得られる。

【 0 0 4 5 】

図示しないが、さらに簡易な形態として、集電部材 3 3 の一方の端部 3 3 d を支持基板 2 1 の内部に挿入せず、支持基板 2 1 の下端部に接合させるだけでもよい。

40

【 0 0 4 6 】

いずれにしても、集電部材 3 3 と支持基板 2 1 の下端部（または下端部近傍の内部）との接合は、燃料ガス流路 1 7 の開口及び貫通孔を閉塞させないように行う。

【 0 0 4 7 】

集電部材 3 3 の他方の端部 3 3 e は、マニホールド 1 5 のガラスシール部 1 5 b 中において、燃料電池セル 1 1 の高導電率層 3 1 と電気的に接続されている。言い換えれば、集電部材 3 3 の他方の端部 3 3 e、高導電率層 3 1 の端部は、酸素含有雰囲気にも還元雰囲気にも晒されておらず、これにより、高導電率層 3 1 の変質を防止できるとともに、集電部材を構成する C r を含有する耐熱性合金からクロムが拡散することを防止できる。

50

## 【 0 0 4 8 】

以上のような燃料電池では、酸素含有雰囲気に晒される酸素極層 2 7 側では、例えば、酸素極材料からなるペーストを塗布熱処理して形成された緻密な高導電率ペースト塗布層 3 1 を、一方、還元雰囲気に晒される燃料極層 2 3 側では、例えば、Cr を含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材 3 3 を用いることにより、一方の燃料電池セル 1 1 と他方の燃料電池セル 1 1 を電氣的に直列に確実に接続することができるとともに、還元雰囲気に晒される燃料極層 2 3 側では導電率の高い耐熱性合金板を、酸素含有雰囲気に晒される酸素極層 2 7 側では、酸素含有雰囲気でも高い導電率を有する高導電率ペースト塗布層 3 1 を設けたため、一方の燃料電池セル 1 1 と他方の燃料電池セル 1 1 との間の電気抵抗を小さくすることができる。

10

## 【 0 0 4 9 】

図 4 は、本発明の他の形態の燃料電池を示すもので、この形態では、集電部材 3 3 の一方の端部 3 3 d を支持基板 2 1 の内部に深く挿入した場合である。この図 4 では、集電部材 3 3 の端部 3 3 d が燃料ガス流路形成方向 z に延設され、集電部材 3 3 の端部 3 3 d は、燃料電池セル 1 1 の上端面から所定間隔を離れた位置まで延設されている。燃料電池セル 1 1 の上端面から所定間隔を離れた位置まで延設されているため、燃料ガス流路 1 7 から酸素含有ガスが侵入してきたとしても、端部 3 3 d の延設位置までは侵入せず、集電部材 3 3 の端部 3 3 d の酸化を防止でき、クロムの拡散を防止できる。

## 【 0 0 5 0 】

この形態でも、端部 3 3 d は、接合穴の内部に挿入されて導電性接着剤により支持基板 2 1 と接合されている。

20

## 【 0 0 5 1 】

尚、接合穴の形成が困難な場合には、支持基板成形体を作製する際に、予め端部 3 3 d の挿入用の接合穴を形成し、集電部材 3 3 の端部 3 3 d の一部を、予め形成された接合穴に挿入し、導電性接着剤により支持基板 2 1 と接合しても良い。

## 【 0 0 5 2 】

このような燃料電池では、電流は、一般に燃料極層 2 3、支持基板 2 1 よりも電気抵抗の小さい(高導電率の)集電部材 3 3 を燃料ガス流路形成方向 z に流れ、一方の燃料電池セル 1 1 と他方の燃料電池セル 1 1 との間の電気抵抗をさらに小さくすることができる。

## 【 0 0 5 3 】

図 5 は、本発明の他の形態の燃料電池を示すもので、この形態は、内部に酸素含有ガス流路を有し、固体電解質層の内面に酸素極層、外面に燃料極層を具備する中空型燃料電池セルを用いるタイプである。

30

## 【 0 0 5 4 】

図 5 で用いる燃料電池セル 4 1 は、図 6 に示すように、支持基板 5 1、内側電極層である酸素極層 5 3、及び固体電解質層 5 5、外側電極層である燃料極層 5 7 を具備して構成されており、いわゆるインターコネクタレス構造とされている。

## 【 0 0 5 5 】

支持基板 5 1 は細長く延びる柱状(薄板柱状片)であり、平坦な両面と半円形状の両側面を有する。支持基板 5 1 にはこれを軸長方向(長さ方向)に貫通する複数個(図示の場合は 6 個)の酸素含有ガス通路 5 9 が形成されている。

40

## 【 0 0 5 6 】

この支持基板 5 1 を取り囲むように、環状の酸素極層 5 3 が形成され、この酸素極層 5 3 を取り囲むように環状の固体電解質層 5 5 が設けられ、この固体電解質層 5 5 を取り囲むように環状の燃料極層 5 7 が設けられている。

## 【 0 0 5 7 】

支持基板 5 1 は空気を酸素極層 5 3 まで透過させるためにガス透過性であることが要求され、かかる要求を満足する多孔質の導電性セラミック(若しくはサーメット)から形成することができる。

## 【 0 0 5 8 】

50



酸素極層 5 7 及び / 又は固体電解質層 5 5 との同時焼成によりセル 4 1 を製造するためには、酸素極層 5 3 及び / 又は固体電解質層 5 5 の熱膨張率と近似する熱膨張率を有する材料で、支持基板 5 1 を形成することが好ましい。支持基板 5 1 を酸素極層 5 3 とは全く異なる材料で形成することができるが、例えば、酸素極層 5 3 と構成元素が同一の材料から、又は、酸素極層 5 3 と主成分が同一材料から、さらには、酸素極層 5 3 と同一材料から構成することが望ましい。

【 0 0 5 9 】

酸素極層 5 3 は多孔質の導電性セラミック、所謂  $ABO_3$  型のペロブスカイト型酸化物、例えば  $LaMnO_3$  系セラミックスからなる導電性セラミックから形成することができる。固体電解質層 5 5 は、通常、3 ~ 15 モル%の希土類元素が固溶した  $ZrO_2$  から形成され、燃料極層 5 7 は、例えば希土類元素が固溶している  $ZrO_2$  (安定化ジルコニアと称されている) と  $Ni$  及び / 又は  $NiO$  とから形成することができる。

10

【 0 0 6 0 】

そして、図 5 に示すように、複数の中空型燃料電池セル 4 1 を電気的に直列に接続してなるセルスタック 4 3 が、マニホール 1 5 に固定され、複数の燃料電池セル 4 1 がマニホール 1 5 に立設している。

【 0 0 6 1 】

燃料電池は、燃料電池セル 4 1 がマニホール 1 5 に立設した状態でこれを収納容器内に収納して構成されており、複数の燃料電池セル 4 1 の酸素含有ガス流路 5 9 の一方端部が、収納容器に収納されたマニホール 1 5 の酸素含有ガス室 5 9 にそれぞれ連通されている。

20

【 0 0 6 2 】

マニホール 1 5 は、図示の例では直方体のケース部 1 5 a と上面のガラスシール部 1 5 b とからなる筐体形状であるが円筒形状でもよい。ガラスシール部 1 5 b は、マニホール 1 5 の天板を構成する。

【 0 0 6 3 】

そして、一方の燃料電池セル 4 1 の燃料極層 5 7 と、他方の燃料電池セル 4 1 の支持基板 5 1、酸素極層 5 3 とが電気的に接続されている。即ち、一方の燃料電池セル 4 1 の燃料極層 5 7 には、例えば、 $Cr$  を含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材 6 1 がその上面に接合され、この集電部材 6 1 は、燃料電池セル 4 1 の酸素含有ガス流路 5 9 形成方向に延設されている。集電部材 6 1 は、燃料ガス雰囲気中、発電温度において、燃料極層 5 7 よりも高導電率とされている。尚、集電部材 6 1 は、便宜上黒塗りで示した。

30

【 0 0 6 4 】

一方、他方の燃料電池セル 4 1 の支持基板 5 1、酸素極層 5 3 には、マニホール 1 5 のガラスシール部 1 5 b 内面に形成された高導電率層 6 3 が接続されており、この高導電率層 6 3 は、マニホール 1 5 内の酸素含有ガス室 5 9 の雰囲気中、発電温度において、支持基板 5 1、酸素極層 5 3 よりも高導電率とされている。高導電率層 6 3 として用いられる材料は、上記と同様である。集電部材 6 1 と高導電率層 6 3 は、ガラスシール部 1 5 b 中で接続されている。

【 0 0 6 5 】

以上のような燃料電池では、酸素含有雰囲気に晒される酸素極層 5 3 側では、例えば、酸素極材料からなる緻密な高導電率ペースト塗布層を、一方、還元雰囲気に晒される燃料極層 5 7 側では、例えば、 $Cr$  を含有する耐熱性合金からなる板状の集電部材 6 3 を用いることにより、一方の燃料電池セル 4 1 と他方の燃料電池セル 4 1 を電気的に直列に確実に接続することができるとともに、還元雰囲気に晒される燃料極層 5 7 側では導電率の高い耐熱性合金板を、酸化雰囲気に晒される酸素極層 5 3 側では、酸素含有雰囲気でも高い導電率を有する高導電率ペースト塗布層を設けたため、一方の燃料電池セル 4 1 と他方の燃料電池セル 4 1 との間の電気抵抗を小さくすることができる。

40

【 0 0 6 6 】

図 7 は、内部に酸素含有ガス流路を有する中空型燃料電池セルを用いるタイプの他の形

50

態の燃料電池を示すもので、この形態では、燃料電池セルの酸素極層 5 3 に電氣的に接続する高導電率層 7 8 が酸素含有ガス流路形成方向 z に設けられ、マニホールド 1 5 のガラスシール部 1 5 b 内面に形成された高導電率層 6 3 に接続されている。

【 0 0 6 7 】

即ち、燃料電池セル 4 1 は、図 8 に示すように、支持基板 5 1 の平坦な外周面に長さ方向に凹部 7 6 が形成されており、該凹部 7 6 内には、支持基板 5 1、酸素極層 5 3 よりも高い導電率を有する高導電率層 7 8 が形成されている。この高導電率層 7 8 の表面は、支持基板 5 1 の表面と同一面とされており、支持基板 5 1 の凹部 7 6 内の高導電率層 7 8 を覆うように酸素極層 5 3 が形成されている。

【 0 0 6 8 】

凹部 7 6 は、支持基板 5 1 の平坦な対向する両面に、それぞれ対向するように 5 本ずつ形成されている。これらの凹部 7 6 に形成された高導電率層 7 8 は、酸素極層 5 3 とは全く異なる材料で構成することができるが、酸素極層 5 3 と構成元素が同一の材料から、又は、酸素極層 5 3 と主成分が同一材料から、さらには、酸素極層 5 3 と同一材料から構成することが望ましい。

【 0 0 6 9 】

尚、支持基板 5 1、酸素極層 5 3 よりも高い導電率を有するには、酸素極層 5 3 と同一材料から構成した場合には、酸素極層 5 3 よりも緻密質とすることにより、導電率を高めることができ、また、異なる材料を用いる場合には、高い導電率材料を用いることにより導電性を高めることができる。

【 0 0 7 0 】

このような燃料電池セルは、先ず、気孔形成剤及び酸素極層材料を含有する坯土、ペーストと、酸素極層材料を含有し気孔形成剤を含有しないペーストを準備し、気孔形成剤及び酸素極層材料を含有する坯土を用いて押出成形し、凹部を有する支持基板成形体を作製する。この支持基板成形体の凹部内に酸素極層材料を含有し気孔形成剤を含有しないペーストを充填し、乾燥して高導電率層成形体を作製する。この後、気孔形成剤及び酸素極層材料を含有するペーストを、高導電率層成形体表面を含む支持基板成形体全周面に塗布し、乾燥して酸素極層成形体を作製し、この酸素極層成形体表面に固体電解質材料を含有するペーストを塗布し、乾燥して固体電解質成形体を作製した後、支持基板成形体、高導電率層成形体、酸素極層成形体及び固体電解質成形体を同時焼成する。この後、固体電解質層 5 5 表面に、燃料極層材料を含有するペーストを塗布し、焼き付けて燃料極層 5 7 を形成し、本発明の燃料電池セルを作製できる。

【 0 0 7 1 】

このような燃料電池では、電流は、一般に支持基板 5 1、酸素極層 5 3 よりも電気抵抗の小さい高導電率層 7 8 を酸素含有ガス流路形成方向 z に流れ、一方の燃料電池セル 4 1 と他方の燃料電池セル 4 1 との間の電気抵抗をさらに小さくすることができる。

【 0 0 7 2 】

尚、上記形態では、高導電率層 3 1、7 8 を燃料電池セル 1 1、4 1 のガス流路形成方向 z に形成した形態について説明したが、本発明では、上記形態に限定されるものではなく、周方向に形成された周方向高導電率層を、ガス流路形成方向 z に形成された高導電率層 3 1、7 8 に接続しても良い。この場合には、高導電率層 3 1、7 8 の形成面と対向する側から周方向高導電率層を介して集電することができ、酸素極層における電気抵抗をさらに小さくすることができ、発電効率を向上できる。例えば、図 2 のセルの場合には、固体電解質層 2 5 を取り囲むような環状の周方向高導電率層を形成することができ、図 8 のセルの場合には、支持基板 5 1 を取り囲むような環状の周方向高導電率層を形成することができる。

【 0 0 7 3 】

さらに、図 5 に記載された集電部材 6 1 についても周方向に形成された周方向集電部材を接続することができ、これにより、燃料極層における抵抗をさらに小さくできる。

【 0 0 7 4 】

10

20

30

40

50

また、上記形態では、燃料電池セルとして支持基板上に燃料極層、酸素極層を有する場合について説明したが、本発明では、支持基板を形成することなく、燃料極層、酸素極層自体を支持基板としても良い。さらに円筒型セルであってもよい。

【0075】

また、上記形態では、マニホールドによりガス室を形成した例について説明したが、収納容器内を仕切板で仕切り、ガス室としても良い。

【図面の簡単な説明】

【0076】

【図1】(a)は本発明の燃料電池を示す断面図であり、(b)は(a)の一部拡大断面図である。

10

【図2】図1で用いられる燃料電池セルを示す断面斜視図である。

【図3】燃料電池セルの支持基板に接続される集電部材を示す底面図である。

【図4】(a)は燃料電池セル内部に集電部材を延設した本発明の燃料電池を示す断面図であり、(b)は(a)の一部拡大断面図である。

【図5】(a)は燃料電池セル内部を酸素含有ガスが流通するタイプの燃料電池セルを用いた燃料電池を示す断面図であり、(b)は(a)の一部拡大断面図である。

【図6】図5で用いられる燃料電池セルを示す断面斜視図である。

【図7】(a)は図5の内部に高導電率層を延設した燃料電池セルを用いた燃料電池を示す断面図であり、(b)は(a)の一部拡大断面図である。

【図8】図7で用いられる燃料電池セルを示す断面斜視図である。

20

【図9】従来の燃料電池セルを示す断面図である。

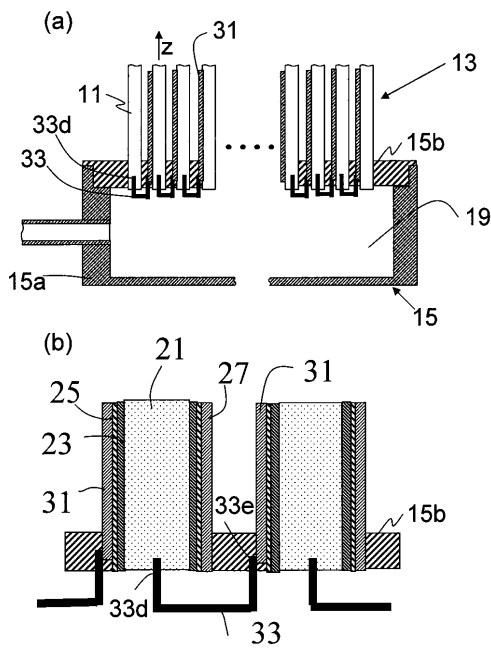
【符号の説明】

【0077】

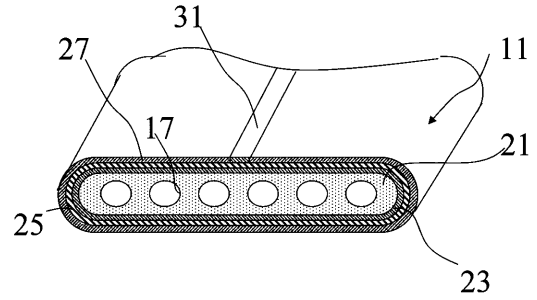
- 11、41：燃料電池セル
- 13、43：セルスタック
- 15：マニホールド
- 17、59：燃料ガス流路
- 19：燃料ガス室
- 21、51：支持基板
- 23、57：燃料極層
- 25、55：固体電解質層
- 27、53：酸素極層
- 31、63、78：高導電率層
- 33、61：集電部材
- 59：酸素含有ガス室

30

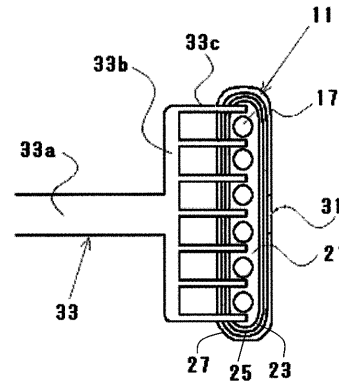
【図1】



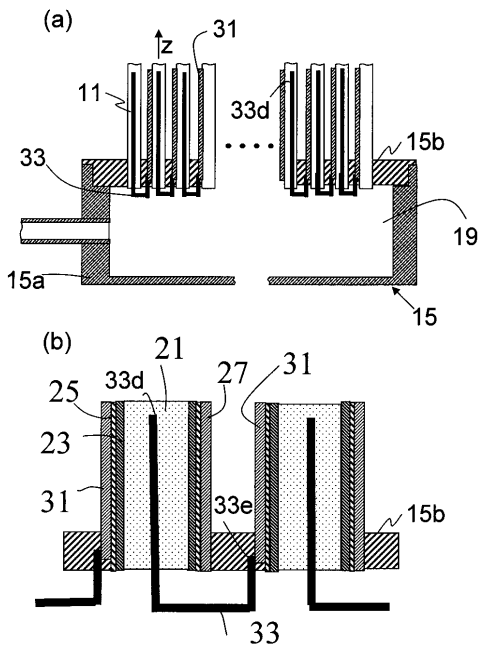
【図2】



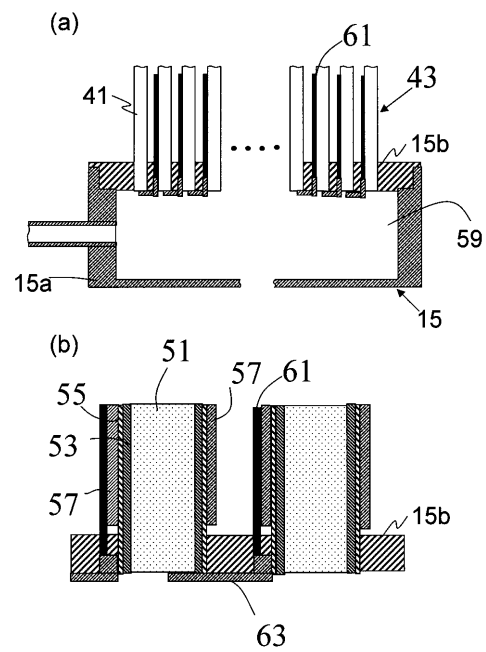
【図3】



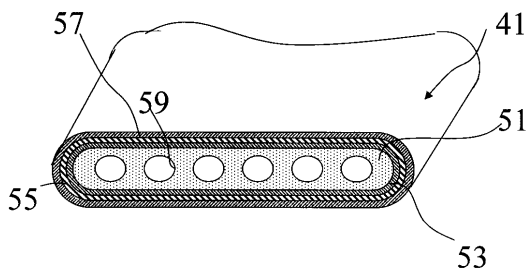
【図4】



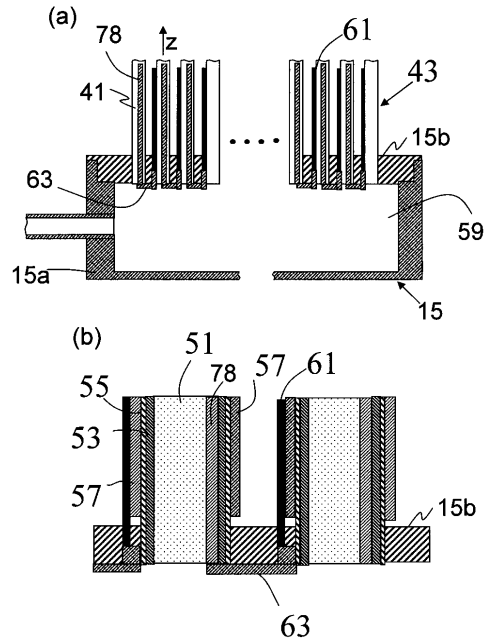
【図5】



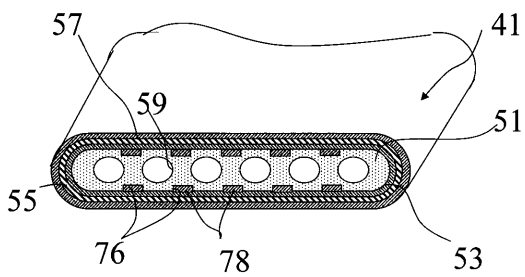
【図 6】



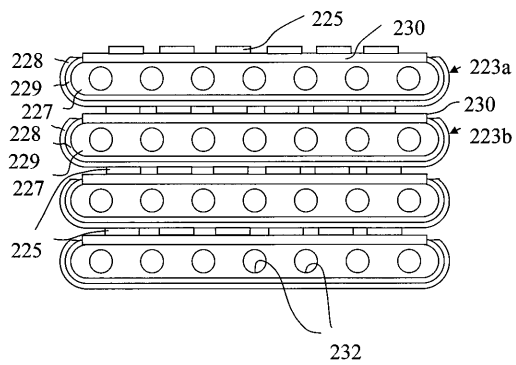
【図 7】



【図 8】



【図 9】



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2004-31172(JP,A)  
特開平9-274927(JP,A)  
特開2002-134137(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M	8/02
H01M	8/12
H01M	8/24