

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3731650号
(P3731650)

(45) 発行日 平成18年1月5日(2006.1.5)

(24) 登録日 平成17年10月21日(2005.10.21)

(51) Int. Cl.	F I				
HO 1 M 8/24 (2006.01)	HO 1 M	8/24	E		
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 11 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2001-332088 (P2001-332088)	(73) 特許権者	000003997
(22) 出願日	平成13年10月30日(2001.10.30)		日産自動車株式会社
(65) 公開番号	特開2003-132933 (P2003-132933A)		神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
(43) 公開日	平成15年5月9日(2003.5.9)	(74) 代理人	100102141
審査請求日	平成16年6月28日(2004.6.28)		弁理士 的場 基憲
		(72) 発明者	榑引 圭子
			神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
		(72) 発明者	秦野 正治
			神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
		(72) 発明者	柴田 格
			神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

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】

電解質層と、該電解質層の一方の面に形成された燃料極層と、他方の面に形成された空気極層からなるセルを有する平板状セル板が複数枚積層されてなる燃料電池スタックを備えた燃料電池において、

第1のセル板と、第1のセル板とは燃料極層および空気極層の形成位置を逆にした第2のセル板とが交互に積層されてなる燃料電池スタックの少なくとも1枚以上のセル板ごとに燃焼ヒーター板が配設されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項2】

燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備えたものであることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。 10

【請求項3】

燃焼ヒーター板に備えたガス不透過層がガス隔壁として機能するものであることを特徴とする請求項2記載の燃料電池。

【請求項4】

ガス不透過層が多孔質燃焼担体の全面を覆っていることを特徴とする請求項3記載の燃料電池。

【請求項5】

電解質層と、該電解質層の一方の面に形成された燃料極層と、他方の面に形成された空気極層からなるセルを有する平板状セル板が複数枚積層されてなる燃料電池スタックを備 20

えた燃料電池において、

前記燃料電池スタックのセル板の間に燃焼ヒーター板が配設され、

該燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備えたものであり、

上記ガス不透過層がガス隔壁として機能し、かつ該ガス不透過層の一部がセル板側に開口していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 6】

電解質層と、該電解質層の一方の面に形成された燃料極層と、他方の面に形成された空気極層からなるセルを有する平板状セル板が複数枚積層されてなる燃料電池スタックを備えた燃料電池において、

前記燃料電池スタックのセル板の間に燃焼ヒーター板が配設され、

該燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備えたものであり、

上記多孔質燃焼担体が発電用ガスの流路として機能するものであることを特徴とする燃料電池。

【請求項 7】

燃焼ヒーター板に備えたガス不透過層が電気伝導性を有し、インターコネクタとして機能するものであることを特徴とする請求項 2 ないし 6 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 8】

燃焼ヒーター板の多孔質燃焼担体に触媒を担持させてあることを特徴とする請求項 2 ないし 7 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 9】

複数の円筒型セルを備えた円筒型燃料電池スタックを備えた燃料電池において、

前記燃料電池スタック内に多孔質燃焼担体と着火機構を具備した燃焼ヒーターが配設され、加熱用燃料が燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体に供給されると共に、空気がスタックチャンパー内に供給されるように配管してあることを特徴とする燃料電池。

【請求項 10】

燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体の燃焼面が上記円筒型セルの発電層形成部分に相対向するように配設されていることを特徴とする請求項 9 記載の燃料電池。

【請求項 11】

燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体が上記円筒型セルの間を埋めるように配設されていることを特徴とする請求項 9 記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電解質と燃料極および空気極を備え、電気化学反応により電気エネルギーを得る固体酸化物型燃料電池などの燃料電池に係わり、特に、燃焼ヒーターを組み込むことによって、燃料電池の始動性、再起動性の向上を可能にした燃料電池に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は、酸素イオンあるいはプロトンなどのイオン導電性を有する電解質を多孔質の空気極と燃料極とで挟んだ構造を有し、空気極側に酸素ガスを含む酸化性ガスを、燃料極側に水素や炭化水素ガスを含む還元性ガスをそれぞれ供給し、これらのガスが電解質を介して電気化学的に反応することにより、起電力を生じる電池である。

【0003】

このような燃料電池のひとつである固体電解質型燃料電池としては、従来、例えば特開平 5 - 205753 号公報には、固体電解質板の表裏にアノードとカソードをそれぞれ配した単電池板と、燃料ガスが流通するガス溝を一方の面に、酸化剤ガスが流通するガス溝を他方の面にそれぞれ形成してなるセパレータとを交互に積層した平板型スタックを備えた固体電解質型燃料電池が開示されている。また、特開平 8 - 102327 号公報には、内

10

20

30

40

50

部に複数のガス流路を備え、セパレータ機能を併せ持つセル板を形成するための中空平板状燃料電池基板が提案されている。

【0004】

なお、このような固体酸化物型燃料電池においては、通常、運転温度が800～1000程度にもなるため、燃料電池の起動時には運転温度まで加熱することが必要になるが、上記公報のいずれにも、このような燃料電池スタックを加熱するための具体的手段については、とくに言及されていない。

【0005】

一方、円筒型スタックに関しては、Journal of Power Sources 71(1998)271-274には、複数の円筒型セルの円筒内側に燃料を、セルの外側に空気を導入して発電することが記載されると共に、起動時にはセル円筒の内側に水素と空気を混合して導入し、セル上部に配置された着火コイルにより点火して燃焼させることが記載されている。また、第45回SOFC研究会予稿集には、燃焼用円筒をセルとは別に設置することが提案されている。

10

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

上記公報に記載された平板型スタックの場合には、上記したようにいずれも加熱手段を備えていないことから、起動に際しては、スタックの外部に設置された加熱装置によってスタック全体を加熱することになることから、加熱効率が低く、起動にかなりの時間を要することになる。また、Journal of Power Sourcesに記載された円筒型スタックの場合には、起動時にはセルが燃焼筒として機能することから、セルの内壁および外壁に設置した電極層は損傷したり、酸化したりすることによって電極特性が低下するという問題点がある。

20

【0007】

さらに、上記SOFC研究会予稿集に記載された方法では、燃焼筒が円筒形であるために、位置によってセルの加熱の程度が異なり、また1本のセルでも均等に加熱され難いことから、セルに熱応力がかかりやすく、破損の原因となる。また、一部のセルが急速に加熱されても、すべてのセルが均一に加熱されて各セルの発電出力が均等になるのに時間がかかり、各セルの発電出力がばらついている場合には、スタック全体としての発電出力に大きな損失が生じるという問題がある。例えば、電氣的に並列に接続されている複数のセルの一部の温度が異なり、発電電圧が小さいセルや内部抵抗が大きいセルが接続されている場合、そのセルによる発電電力が取り出せないばかりか、高出力のセルの発電電力を内部で消費してしまったり、局所的に発熱したりして大きな損失が生じることがあり、このような問題点を解消してセルの発電部分を効率的かつ均等に加熱し、起動に要する時間を短くすることが課題となっていた。

30

【0008】

【発明の目的】

本発明は、従来の燃料電池における上記課題に鑑みてなされたものであって、セルの発電層部分を発電可能な温度まで速やかに、かつ均一に加熱することができ、起動性に優れると共に、発電開始直後から発電損失が少なく、高出力密度で発電することができ、しかも熱衝撃による破損を防止して耐久性に優れた燃料電池を提供することを目的としている。

40

【0009】

【問題を解決するための手段】

本発明に係わる燃料電池は、電解質層と、該電解質層の一方の面に形成された燃料極層と、他方の面に形成された空気極層からなるセルを有する平板状セル板が複数枚積層されてなる燃料電池スタックを備えた燃料電池において、第1のセル板と、第1のセル板とは燃料極層および空気極層の形成位置を逆にした第2のセル板とが交互に積層されてなる燃料電池スタックの少なくとも1枚以上のセル板ごとに燃焼ヒーター板が配設されている構成とし、燃料電池におけるこのような構成を前述した従来の課題を解決するための手段としたことを特徴としている。

50

【0010】

本発明に係わる上記燃料電池の好適形態は、燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備えたものである構成とし、さらにはこのガス不透過層がガス隔壁として機能するものである構成とし、さらにまた、このガス不透過層が多孔質燃焼担体の全面を覆っている構成としたことを特徴としている。

【0011】

本発明に係わる他の燃料電池は、電解質層と、該電解質層の一方の面に形成された燃料極層と、他方の面に形成された空気極層からなるセルを有する平板状セル板が複数枚積層されてなる燃料電池スタックを備えた燃料電池において、前記燃料電池スタックのセル板の間に燃焼ヒーター板が配設され、該燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備えたものであり、上記ガス不透過層がガス隔壁として機能し、かつ該ガス不透過層の一部がセル板側に開口している構成としたことを特徴とし、さらに他の燃料電池においては、同様の燃料電池において、前記燃料電池スタックのセル板の間に燃焼ヒーター板が配設され、この燃焼ヒーター板が板状の多孔質燃焼担体と、該燃焼担体の全面あるいは一部を覆うガス不透過層を備え、上記多孔質燃焼担体が発電用ガスの流路として機能するものであることを特徴としている。

10

【0012】

そして、本発明に係わる上記燃料電池の好適形態として、燃焼ヒーター板に備えたガス不透過層が電気伝導性を有し、インターコネクタとして機能するものである構成としたことを特徴とし、さらには、燃焼ヒーター板の多孔質燃焼担体に触媒を担持させることもできる。

20

【0013】

本発明に係わるさらに他の燃料電池は、複数の円筒型セルを備えた円筒型燃料電池スタックを備えた燃料電池において、前記燃料電池スタック内に多孔質燃焼担体と着火機構を具備した燃焼ヒーターが配設され、加熱用燃料が燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体に供給されると共に、空気がスタックチャンバー内に供給されるように配管してある構成としたことを特徴としており、好適形態としては、燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体の燃焼面が上記円筒型セルの発電層形成部分に相対向するように配設したり、燃焼ヒーターの多孔質燃焼担体がセル間を埋めるように配設したりすることができる。

【0014】

【発明の実施の形態】

本発明に係わる燃料電池においては、燃料電池スタックのセル板とセル板の間に燃焼ヒーター板が配設されており、スタック全体を外部から過熱するのではなく、セル板間に挿入された燃焼ヒーターによってセル部分を直接加熱するため、発電可能な温度まで速やかに加熱され、電池の起動性が大幅に向上することになる。

30

【0015】

燃焼ヒーター板は、例えば、セラミックスあるいは耐熱金属製の多孔質燃焼担体と、該多孔質燃焼担体の全面、あるいはその一部を覆うガス不透過層からなる板状の部材を使用することができ、着火機構を備え、燃料供給口から燃料、あるいは燃料と空気との混合気体を供給し、多孔質担体の燃焼面の微細孔から噴出させて燃焼させる。したがって、均質な燃焼面が形成されることとなり、燃焼面の相対向するセル板部分が均等に昇温することとなり、温度傾斜に基づく変形や層剥離を防止して電池の耐久性が向上すると共に、起動直後から高出力密度が達成されることになる。

40

【0016】

燃焼ヒーター板の多孔質燃焼担体としては、例えばコージェライト、アルミナ、チタニア、セリア、ジルコニアなどを主成分とするセラミックス多孔体や、耐熱鋼、ステンレス鋼、ニッケル合金、銅合金、チタン合金などを主成分とする多孔質金属体あるいは金属フェルト体等を使用することができる。

【0017】

また、多孔質燃焼担体の表面を覆うガス不透過層としては、例えば耐熱鋼やステンレス鋼

50

などの薄板を使用することができ、当該不透過層はガス隔壁としても機能し、さらに上記のような電気伝導性を備えた材料を使用することにより、インターコネクタとしても機能させることができる。

【0018】

着火機構としては、通常の着火コイルや着火プラグを使用することができ、加熱用燃料と空気の混合領域、あるいはその下流に設置することができる。

【0019】

なお、本発明に係わる燃料電池においては、セル板の構成には特に限定されず、例えば電解質支持型セル、電極支持型セル、さらにはニッケル、ステンレススチール等の多孔質金属基板上に電解質と共に両電極を形成した多孔質金属基板支持型セルなどを適用することができる。

10

【0020】

また、燃料極材料としては、例えばニッケル、ニッケルサーメット、白金など、空気極材料としては、例えば $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ 、 $La_{1-x}Sr_xCoO_3$ などのペロブスカイト型酸化物、銀などを使用することができるが、これらのみ限定されるものではない。

【0021】

電解質材料としては、 Nd_2O_3 、 Sm_2O_3 、 Y_2O_3 、 Gd_2O_3 、 Sc_2O_3 などを固溶した安定化ジルコニア (ZrO_2) や、 CeO_2 、 Bi_2O_3 、 $LaGaO_3$ などを主成分とする固体電解質を使用することができるが、これらに限定されるものではなく、スルホン酸基を含有するフッ素系イオン交換膜、例えば、DuPont社のNafionを電解質として具備したPEM型燃料電池とすることもできる。

20

【0022】

本発明に係わる燃料電池を構成するスタック層構造としては、電解質層と燃料極及び空気極層からなるセル板と、セパレータとを交互に積層した通常タイプの燃料スタックにおけるセパレータの全てを前記燃焼ヒーター板に置き換えた構造とすることができる。また、所定枚数ごとに1枚のセパレータを燃焼ヒーター板に置き換えること、すなわちセパレータを例えば1枚おきあるいは2枚おきに燃焼ヒーター板に置き換えるようにすることもできる。

【0023】

図1および図2は、このような平板型燃料電池スタックの積層構造例を示すものであって、図1は全てのセパレータを燃焼ヒーター板に置き換えた参考的な構造を示すものである。

30

【0024】

すなわち、図1に示す燃料電池スタック1は、電解質層2aの図中上面側に燃料極層2bが、その裏面側に空気極層2cがそれぞれ形成されたセル板2と、燃焼ヒーター板3とを交互に積層した構造を有している。なお、図において、符号4は空気流路、符号5は水素などを流すための燃料流路である。

【0025】

ここで、燃焼ヒーター板3は、例えばステンレス鋼の多孔質体からなる燃焼担体3aと、例えばステンレス鋼の薄板からなるガス不透過層3bから構成されている。このとき、図示するようにガス不透過層3bによって多孔質燃焼担体3aの全面を覆うようになることができ、起動時に燃焼ヒーター板3のガス供給口3cから加熱用燃料と空気を導入し、図示しない着火機構によって点火し、燃焼を開始させてガス不透過層3bを加熱し、これによってセル板2が加熱される。このようにガス不透過層3bによって多孔質燃焼担体3aの全面を覆うことによって、ガス不透過層3bがガス隔壁となつて、燃焼ヒーター板3がセパレータとして機能することから、燃焼用ガスと発電用ガスをそれぞれ分離して燃料電池スタック1内に導入することができ、発電中においても発電出力制御と独立してセル板2を容易に追い加熱することができるようになる。また、このときのセル板2の加熱がガス不透過層3bを介して間接的に行われるため、熱衝撃が緩和され、より均質な昇温が

40

50

行われることになる。また、セル板 2 の過昇温を防止したり、停止させたりする目的で冷却する場合、冷却用空気を導入するための冷却版として機能させることができる。

【0026】

さらに、燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3 b に上記したステンレス鋼のような電気伝導性のものを用いることにより、集電機能やセル板間の電気接続機能を備えたインターコネクタとして機能させることができ、これによりインターコネクタ部材の点数を少なくして製造工程が簡略化されることになる。

【0027】

なお、起動に際して、燃料電池スタック 1 内に設置された燃焼ヒーター板 3 のすべてを燃焼させてセル板 2 を速やかに昇温させることができるのは言うまでもないが、このような場合の他に、要求起動時間や加熱開始時のスタック 1 の温度などによっては、燃焼ヒーター板 3 に選択的に燃料を供給して、一部のヒーター板 3 のみによってセル板 2 を加熱するようになすこともできる。一部のヒーター板のみに冷却空気を流すことも可能である。それゆえ、均質に加熱冷却ができるだけでなく、発電運転時におけるスタックの温調をきめ細かく、素早く行うことができる。

【0028】

図 2 は、セパレータ 6 を 1 枚おきに燃焼ヒーター板 3 に置き換えた積層構造例を示すものであって、燃焼ヒーター板 3 - セル板 2 - セパレータ 6 - セル板 2 - 燃焼ヒーター板 3 - セル板 2 の順に積層されている。

【0029】

このとき、燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3 b の一部を開放させることにより、発電用の空気を 사용하여燃焼担体 3 a の表面で燃料ガスを燃焼させるようにすることができる。すなわち、この実施形態における燃焼ヒーター板 3 においては、燃焼担体 3 a のセル板 2 に対向する面の一部にガス不透過層 3 b が形成されていない部分があり、起動に際しては当該燃焼ヒーター板 3 のガス供給口 3 c から燃料を、燃料電池スタック 1 の空気流路 4 に空気をそれぞれ導入することによって燃料を燃焼担体 3 a の開口表面で燃焼させて、セル板 2 を加熱する。発電用の燃料はスタック 1 の燃料流路 5 に供給され、前記空気流路 4 に供給される空気とによって発電が行われる。

【0030】

この場合、燃焼担体 3 a のガス不透過層 3 b が形成されていない面の近傍で燃焼が行われ、当該燃焼担体 3 a の微細孔の径や、多孔質度（空隙率）を調整することによって、均一に面燃焼させることができ、空気が燃焼面の上面から導入されることから、均質な面燃焼制御が容易なものとなり、セル板 2 が直接加熱されるためセル板 2 を急速に加熱することができ、短時間での起動が可能になる。なお、この場合にも燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3 b を電気伝導性のものとする事により、インターコネクタとして機能させることができることは言うまでもない。

【0031】

本発明に係わる燃料電池においては、燃焼ヒーター板 3 の多孔質燃焼担体 3 a を加熱用燃料あるいは加熱用燃料と空気の混合気体の流路として機能させ、セル加熱用のヒーターとして使用する一方、発電時には発電用ガス、すなわち燃料ガスあるいは空気の流路として機能させることができる。

【0032】

図 3 は、このような燃料電池スタックの積層例を示すものであって、図示するスタック 1 は、多孔質燃焼担体 3 a の図中上面側にガス不透過層 3 b の開口部を備えた燃焼ヒーター板 3 とセル板 2 とが交互に積層された構造を有し、当該燃料電池の起動時には、前記ヒーター板 3 のガス供給孔 3 c から加熱用燃料と空気を混合して供給し、多孔質燃焼担体 3 a におけるガス不透過層 3 b の開口部分で燃焼させてセル板 2 を加熱すると共に、発電時には、前記ガス供給孔 3 c から空気のみを供給し、この空気と燃料流路 5 から供給される燃料とによって発電されるようになっている。なお、この場合も燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3 b を電気伝導性のものを用いることにより、インターコネクタとしての機能を付

10

20

30

40

50

与することができる。

【0033】

この場合、燃焼ヒーター板3が発電用ガスの流路を兼ねることによって、積層する部品点数が減少し、スタックの小型化、あるいは単位容積当たりのセル板の積層数を増すことによって、燃料電池の発電出力が増加することになる。また、積層部品点数に減少によってスタックの熱容量が減り、急速加熱が可能となって機動性が向上する。さらに、燃焼ヒーター板3の多孔質燃焼担体3aがガスディフューザーとして機能することから、発電用ガスをセル面にまんべんなく均等に供給することができ、セル板内の発電出力分布を均等なものとすることができ、スタック全体の出力損失が低減されることになる。

【0034】

図4は、交互に積層されたセル板2と、このセル板2とは燃料極層2bと空気極層2cの位置を逆転させたセル板2との間に燃焼ヒーター板3を挿入した燃料電池スタックの積層形態を示すものである。

【0035】

すなわち、セル板は、電解質層2aの上面側に燃料極層2bを、その下面側に空気極層2cを形成したセル板2と、この逆に電解質層2aの上面側に空気極層2cを、その下面側に燃料極層2bをそれぞれ形成したセル板2の2種類からなり、これらセル板2および2が交互に積層されていると共に、これらセル板2、2の2枚おきに、多孔質燃焼基板3aの表裏両面にガス不透過層3bの開口部を備えた燃焼ヒーター板3が挿入されており、ガス不透過層3bの開口部は、セル板2、2の空気極2c、2cにそれぞれ相対向するように配置され、セル板2 - セル板2 - 燃焼ヒーター板3 - セル板2 - セル板2 - 燃焼ヒーター板3 - セル板2の順に積層されている。

【0036】

この場合も、燃焼ヒーター板3は空気流路を兼ねるようになっており、上記同様に、燃料電池の起動時には、ヒーター板3のガス供給孔3cから加熱用燃料と空気の混合ガスが供給され、発電時には、前記ガス供給孔3cから空気のみが供給されるようになっている。

【0037】

さらに、本発明に係わる燃料電池においては、燃焼ヒーター板3の多孔質燃焼担体3aに、例えば燃焼による発熱量を増加させたり、均質に燃焼させたり、燃料を改質したり、燃焼後の排ガス成分を制御したりするために、ロジウム、ルテニウム、白金、パラジウム、ニッケル、コバルトあるいはこれらを主成分とする合金などの触媒を担持することができ、これによって、繰り返し昇温に際しても安定した燃焼が可能になると共に、燃焼加熱時の排気成分を制御することができ、特にこの排気ガスを発電用燃料ガスとして利用する場合に発電出力が増加するように燃料の部分酸化反応や改質反応を制御して排気ガス成分を調整することができる。

【0038】

図5は、このような触媒担持層を備えた燃焼ヒーター板3を用いたスタック構造の実施形態を示すものであって、当該燃料電池スタック1は、空気流路として機能する多孔質金属基板7の表面に、空気極層2cと電解質層2aと燃料極層2bがこの順序に支持された構造のセル板2と、多孔質燃焼担体3aと触媒担持層3eとガス不透過層3bからなる燃焼ヒーター板3とを交互に積層したものであって、当該燃料電池の起動時には、燃焼ヒーター板3の多孔質燃焼担体3aに加熱用燃料と空気の混合ガスが供給され、発電時には当該多孔質燃焼担体3aに発電用燃料のみが供給されるようになっており、セル板2の多孔質金属基板7に空気が供給されることにより発電が行なわれるようになっている。

【0039】

図6は、上記のような燃焼ヒーターを円筒型の燃料電池スタックに適用したスタック構造例を示すものであって、図に示す燃料電池スタック1は、スタックチャンバー10内に複数の円筒型セル11を備えると共に、前記スタックチャンバー10の内壁に耐熱金属フェルトなどからなる多孔質燃焼担体12aと図示しない着火機構を備えた燃焼ヒーター12を備えており、前記多孔質燃焼担体12aの燃焼面が円筒型セル11の発電層形成部分に

10

20

30

40

50

相対向するように配置されている。

【0040】

上記燃料電池スタック1においては、起動時に燃焼ヒーター12のガス供給口12bから多孔質燃焼担体12aに加熱用燃料が供給されると共に、スタックチャンパー10の空気供給口10aから空気が供給されることによって、加熱用燃料が燃焼担体12aの表面において燃焼し、円筒型セル11の主に発電層形成部分が急速に加熱され、セルの温度分布を均一なものとして燃料電池スタック1を速やかに起動させることができる。発電時には、燃料供給口10bから発電用燃料が、上記空気供給口10aから空気が供給されることによって発電が進行する。スタックチャンパー10の燃料排気口10cからは発電用燃料の残余が、空気排気口10dからは、燃焼排気ガスあるいは発電に用いられた空気の残余

10

【0041】

図7(a)および(b)は、円筒型燃料電池スタックの他の構造例を示すものであって、図に示す燃料電池スタック1は、スタックチャンパー10内に複数の円筒型セル11を備えると共に、これらセル11の間を埋めるように、燃焼ヒーター12の多孔質燃焼担体12aが配設されている。この場合、多孔質燃焼担体は、電氣的に絶縁をすることが好ましい。あるいは、少なくともセル表面上の電極に相対する面を絶縁処理することが好ましい

20

【0042】

上記燃料電池スタック1においては、起動に際して、スタックチャンパー10の燃料供給口10bから加熱用燃料と空気の混合気体が供給されることによって、当該加熱用燃料が燃焼担体12aの表面において燃焼し、各円筒型セル11がより速やか、かつ均等に加熱されることになり、起動性がより向上すると共に、スタック全体の出力損失が低減されることになる。昇温後には、前記燃料供給口10bから供給された発電用燃料が多孔質燃焼担体12aの微小孔から噴出すると共に、空気供給口10aから空気が供給されることによって発電が行なわれる。このとき、燃焼ヒーター12の多孔質燃焼担体12aがガスデフューザーとして機能するので、セル面全体に発電用燃料を均等に供給することができ、

30

【0043】

【実施例】

以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

40

【0044】

参考例

(a) 燃焼ヒーター板

多孔質燃焼担体3aとして、Fe-Cr-Al系耐熱鋼からなる厚さ2mmの金属フェルトを使用し、当該燃焼担体3aの全面を耐熱鋼からなる薄板(ガス不透過層3b)で覆うと共に、側面の一部に加熱用ガスの供給口3cと排気口3dを形成することによって、図1に示すような燃焼ヒーター板3を得た。このとき、通常のセパレータと同様に、流路制御と加熱面積増大のために、ガス不透過層3bの上に、相対向するセル板の電極材料と同一の材料層を形成するようになすこともできる。

【0045】

50

(b) セル板 (空気極支持型)

まず最初に、平均粒径 $3 \sim 10 \mu\text{m}$ のランタンストロンチウムマンガネート (LaSrMnO_3) 粉末に溶媒とバインダーを加えて混合し、押し出し成形によって板状に加工し、これを $1300 \sim 1500$ で焼成することによって $50 \times 50 \times \text{mm}$ の空気極基板を形成した。次いで、この空気極 2c としての基板の上に、平均粒径 $0.5 \mu\text{m}$ の YSZ 粉を含むスラリーをスラリーコーティング法により塗布し、 $1200 \sim 1400$ で焼成して電解質層 2a を形成した。そして、当該電解質層 2a の上に、平均粒径 $1 \sim 5 \mu\text{m}$ の Ni 粉と平均粒径 $1 \mu\text{m}$ の YSZ 粉を含むスラリーをスラリーコーティング法によって塗布し、 $1100 \sim 1400$ で焼成して燃料極層 2b を形成し、これによって空気極支持型のセル板 2 を得た。

10

【0046】

(c) スタックの積層

通常の平板型スタックと同様に、上記セル板 2 と燃焼ヒーター板 3 とを図 1 に示すように交互に 10 層づつ積層し、燃料電池スタック 1 とした。そして、通常の平板型スタックにおいてはインターコネクタによってセパレータ上層のセル板と下層のセル板とが直列に電気接続されるのと同様に、燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3b を介して上下層のセル板 2 を直列に接続した。

【0047】

(d) 加熱テスト

加熱用燃料ガスとしてプロパンを使用し、プロパンと空気を混合して上記燃焼ヒーター板 3 のガス供給口 3c から導入し、ガス供給口 3c の手前に設置した着火機構によって点火して燃焼を開始した。このとき、要求される起動時間や発電温度に応じて加熱用ガスの空気/燃料比やガス流量などを調整することができる。セル板 2 の表面に設置した熱電対によりセル板 2 の温度を測定し、セル板温度の時間的変化を調査したところ、図 8 に示すように、10 分間で室温から 700 まで昇温することが確認された。また、昇温に際してセル板 2 の表面における温度分布のばらつきもほとんどなく均等に昇温することが観察されると共に、セル板 2 に割れや剥離などの損傷も全く発生しないことが確認された。

20

【0048】

(e) 発電テスト

セル板 2 の温度を 700 に保持しながら、発電用燃料ガスとして水素を燃料流路 5 に導入すると共に、空気を空気流路 4 に供給して発電を開始した。その結果、図 8 に併せて示すように、 700 への昇温直後から安定した発電出力が得られ、 0.1 W/cm^2 の発電出力が得られることが判明した。

30

【0049】

実施例 1

上記参考例と同様のセル板 2 と、同じく参考例に示した燃焼ヒーター板 3 と基本的に同様の構造を有し、セル板 2 との対向面にガス不透過層 3b が形成されていないタイプの燃焼ヒーター板 3 と、ランタン-クロム系酸化物板の両面に燃料極材料および空気極材料で流路を形成したセパレータ 6 を使用し、図 2 に示したように、セル板とセパレータが交互に積層されてなる通常のスタックにおけるセパレータを 1 枚おきに前記燃焼ヒーター板 3 に置き換えることによって、4 枚のセル板 2 と、2 枚の燃焼ヒーター板 3 と、3 枚のセパレータ 6 からなる燃料電池スタック 1 (セパレータ 6 - セル板 2 - 燃焼ヒーター板 3 - セル板 2 - セパレータ 6 - セル板 2 - 燃焼ヒーター板 3 - セル板 2 - セパレータ 6) とした。そして、実施例 1 と同様に、燃焼ヒーター板 3 のガス不透過層 3b を介して各セル板 2 を直列に接続した。

40

【0050】

そして、起動に際して、燃焼ヒーター板 3 のガス供給口 3c からプロパンガスを、空気流路 4 に空気をそれぞれ導入して、当該ヒーター板 3 に設置した図示しない着火機構によって点火し、加熱を開始する。所定温度に昇温された後は、加熱用燃料 (プロパンガス) の流量を停止あるいは減少させると共に、燃料流路 5 に発電用燃料ガスとして水素を供給す

50

ることによって発電を開始する。この実施例に係わる上記燃料電池においては、室温から700まで約15分で昇温し、昇温後は 0.2 W/cm^2 の発電出力が得られることが確認された。

【0051】

実施例2

上記参考例と同様のセル板2と、多孔質燃焼担体3aとして、一般的な排ガス処理触媒コンバータと同様にして触媒としてPtを担持したコーゼライト製のハニカムを使用すると共に、当該燃焼担体3aのセル板2との対向面にガス不透過層3bが形成されていない燃焼ヒーター板3を使用したこと以外は参考例と同様の積層構造を有する燃料電池スタック1(図3参照)を得た。

10

【0052】

当該燃料電池の起動に際しては、燃焼ヒーター板3のガス供給口3cから加熱用燃料(プロパンガス)と空気との混合ガスを導入してセル板2を加熱した。所定温度に昇温後は、燃料/空気比を減少させると共に、燃料流路5に発電用燃料ガス(水素)を供給することによって発電を開始した。この実施例に係わる上記燃料電池においては、触媒としてPtを用いていることから、加熱用燃料の燃焼が均質かつ効率的なものとなつて、炭化して目詰まりすることなく燃焼させて加熱できると共に、燃焼ヒーター板3の多孔質燃焼担体3aが空気のディフューザーとして機能することから、セル板2の全面に均等に発電用ガスを供給することができ、発電出力分布を均一なものとするができる。また、当該燃料電池においては、室温から700まで約17分で昇温させることができ、昇温後は 0.2 W/cm^2 の発電出力が得られることが確認された。

20

【0053】

実施例3

上記参考例と同様のセル板2と、このセル板2とは燃料極層2bと空気極層cの形成面を逆にしたセル板2と、参考例に示した燃焼ヒーター板3と基本的に同様の構造を有し、燃焼担体2aの両面にガス不透過層3bが形成されていない開口部を有するタイプの燃焼ヒーター板3を用いて、図4に示すように、セル板2-セル板2-燃焼ヒーター板3-セル板2-セル板2-燃焼ヒーター板3の順序に積層され、合計6枚のセル板2, 2と、3枚の燃焼ヒーター板3からなる燃料電池スタック1を得た。

【0054】

当該スタック1を用いた燃料電池においては、単位容積当たりのセル板の積層密度が増し、出力密度が向上すると共に、セル板2, 2をむらなく急速加熱することができ、機動性をより向上させることができ、当該燃料電池においては、室温から700まで約18分で昇温し、昇温後において 0.25 W/cm^2 の発電出力が得られることが確認された。

30

【0055】

実施例4

上記参考例と同様のセル板2と、Ptからなる触媒を担持した多孔質燃焼担体3aを備えた燃焼ヒーター板3と、インコネルからなる発泡金属8とを交互に積層すると共に、当該積層体の上部にインコネル製の集電板9を積層することにより直列化された図9に示す燃料電池スタック1を作製した。そして、当該スタック1を図10に示すように、筐体20内に固定すると共に、燃焼ヒーター板3のガス不透過層3bを絶縁するために、その先端部にアルミナ製絶縁部材21をろう付けした。また、筐体20と燃料電池スタック1の隙間にはセラミックスウールを詰め込み、スタック1の筐体20内での移動を防止するようにした。

40

【0056】

このような燃料電池の起動に際しては、燃焼ヒーター板3に加熱用燃料(プロパンガス)と空気との混合ガスを導入してセル板2を加熱すると共に、所定温度に昇温した後は、当該燃焼ヒーター板3に発電用燃料(水素)を供給すると共に、筐体20内に空気を供給することによって発電を行った。この実施例に係わる燃料電池においては、室温から700

50

まで約20分で昇温させることができ、昇温後は 0.18 W/cm^2 の発電出力が得られることが認められた。

【0057】

実施例5

YSZからなる電解質基体の外周部に、YSZ/Ni-Oサーメットからなる燃料極層と、LSMからなる空気極層とを順次形成してなる公知の円筒型セル11をスタックチャンパー10内に10本配設することによって、図6に示すような円筒型燃料電池スタック1を作製した。燃焼ヒーター12は、スタックチャンパー10の内壁面に設置され、耐熱鋼からなる金属フェルト(多孔質燃焼担体)12aが円筒型セル11の発電層形成部分近傍に相対向するように配置され、耐熱鋼金属フェルト12aの側面にはガス不透過層12cが形成され、裏面側にはガス供給口12bが形成されている。

10

【0058】

当該燃料電池の起動に際しては、燃焼ヒーター12の裏面側のガス供給口12bから加熱用燃料と空気を混合して導入し、図示しない着火機構によって点火し燃料を燃焼させて円筒型セル11を加熱するようになっており、昇温後は、当該ガス供給口12bから空気のみ、あるいは空気/燃料比を大きくした混合ガスを供給し、スタックチャンパー10の空気供給口10aから空気を供給することによって発電が行なわれる。なお、発電時においても燃焼ヒーター12の燃焼による保温を行うために、空気供給口10aから空気を供給する一方、燃焼ヒーター12のガス供給口12bから加熱用燃料と空気の混合ガスを供給することもできる。

20

【0059】

実施例6

実施例5で用いた円筒型セル11を同様にスタックチャンパー10内に10本配設することによって、図7(a)および(b)に示すような円筒型燃料電池スタック1を作製した。当該スタック1においては、燃焼ヒーター12の多孔質燃焼担体12aとしてコージエライトからなるセラミックス製担体が用いられ、当該燃焼担体12aには、前記円筒型セル11を差し込むための貫通孔が形成されていると共に、燃焼を安定化するためや燃料の改質を行う機能を持つ触媒が担持されている。そして、当該燃焼担体12aにはその中心部に加熱用ガスを供給するための導入管13が設けてある。

【0060】

当該燃料電池の起動に際しては、スタックチャンパー10の燃料供給口10bから加熱用燃料と空気の混合気体が供給され、昇温後は、前記燃料供給口10bから発電用燃料のみ、あるいは発電用燃料が高い空気との混合ガスが供給されると共に、空気供給口10aから空気が供給されることによって発電が行なわれる。

30

【0061】

【発明の効果】

以上、説明したように、本発明に係わる燃料電池は、燃料電池スタック内に燃焼ヒーターが配設されたものであるから、セル板あるいは円筒型セルの発電層形成部分をむらなく均等に、しかも急速に直接加熱でき、燃料電池の始動時や再起動時の立ち上がり時間を短くすることができると共に、発電出力の局部的なばらつきを防止して発電損失が少なく、発電開始直後から高出力密度で発電することが可能となるという極めて優れた効果がもたらされる。

40

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造の参考例を示す概略断面図である。

【図2】 本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造の実施形態としてセパレータを含む例を示す概略断面図である。

【図3】 同じく本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造の他の実施形態として燃焼ヒーター板が発電用ガスの流路を兼ねる例を示す概略断面図である。

【図4】 同じく本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造のさらに他の実施形態と

50

して燃料極と空気極の位置が反対のセル板の積層例を示す概略断面図である。

【図5】 本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造の別の実施形態として燃焼ヒーター板の燃焼担体に触媒を担持させた例を示す概略断面図である。

【図6】 本発明に係わる燃料電池におけるスタック構造のさらに別の実施形態として円筒型セルを用いた例を示す概略断面図である。

【図7】 (a) 同じく円筒型セルを用いたスタック構造の他の例を示す概略断面図である。

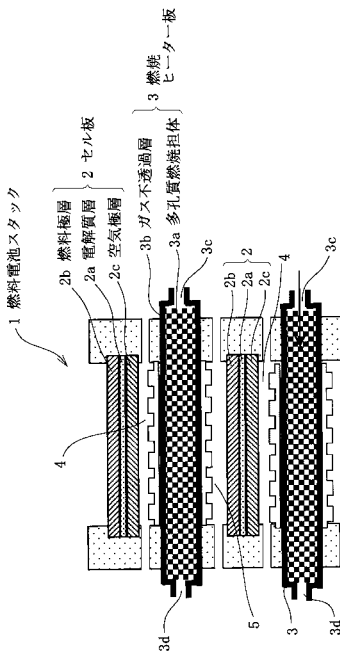
(b) 図7(a)に示した燃料電池スタックの斜視図である。

【図8】 本発明の参考例に係わる燃料電池において、加熱開始後の時間経過に伴うセル板温度および発電出力の変化を示すグラフである。

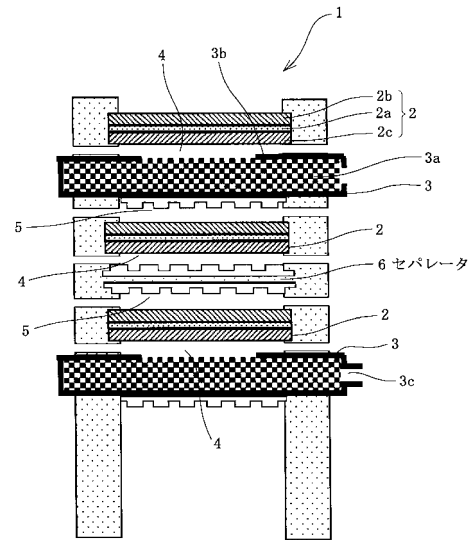
【図9】 本発明の実施例4に係わる燃料電池スタックの構造を示す概略断面図である。

【図10】 図9に示した燃料電池スタックを筐体内に固定した状態を示す断面図および外観図である。

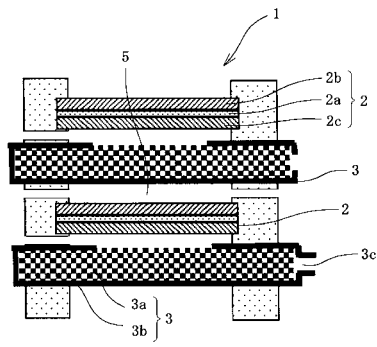
【図1】



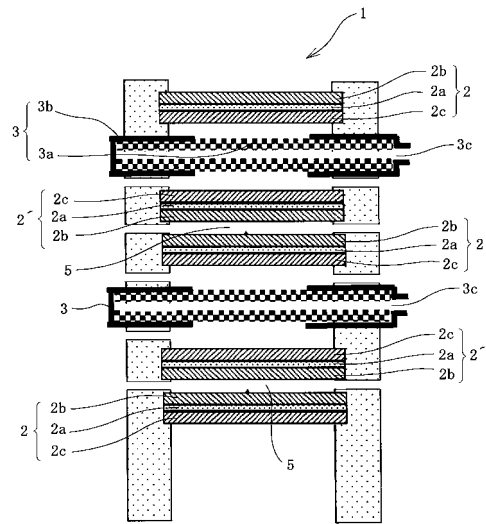
【図2】



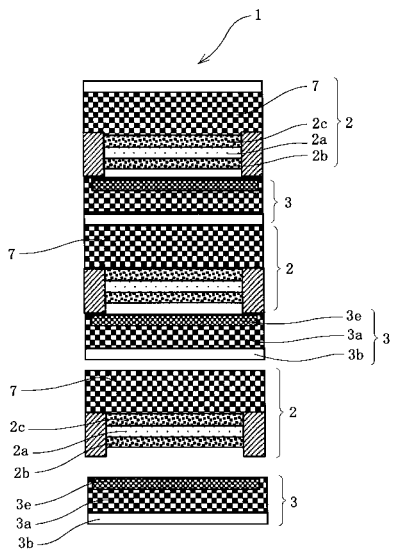
【 図 3 】



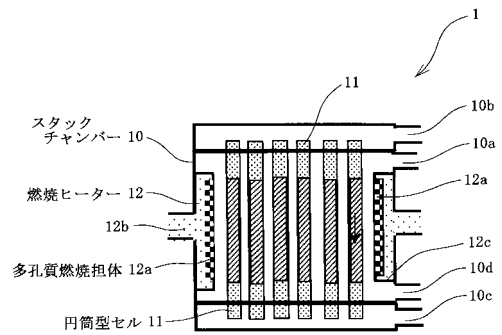
【 図 4 】



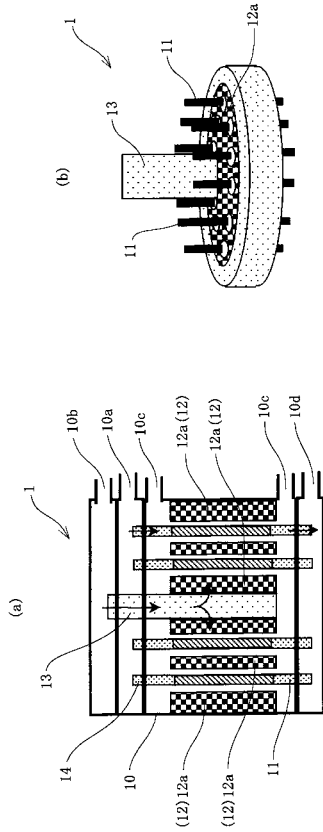
【 図 5 】



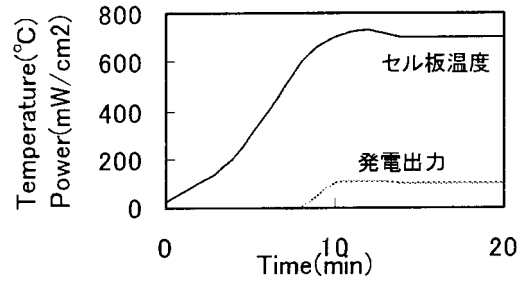
【 図 6 】



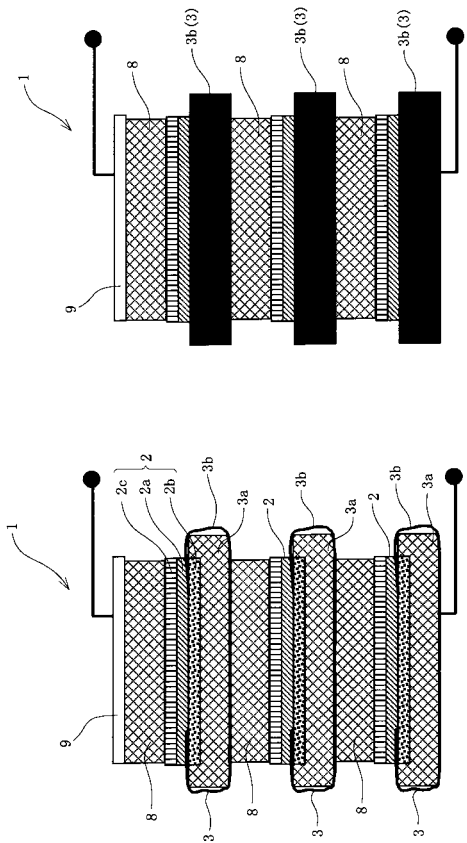
【 図 7 】



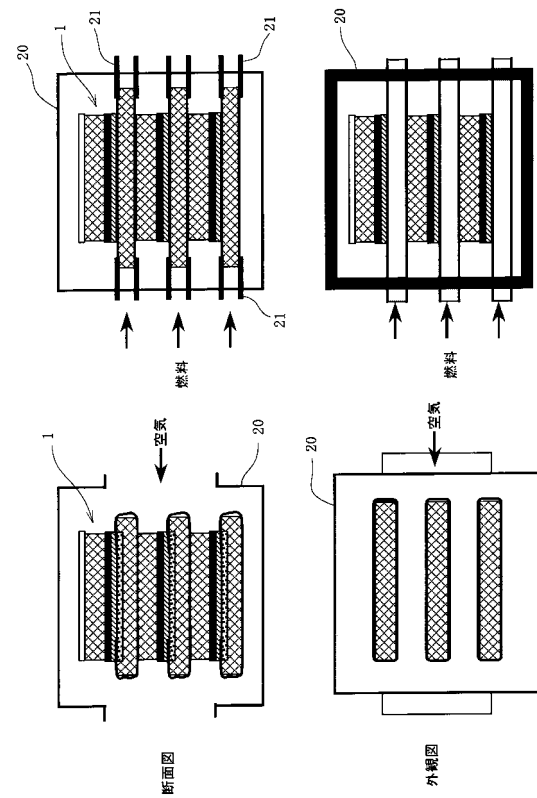
【 図 8 】



【 図 9 】



【 図 10 】



フロントページの続き

- (72)発明者 福沢 達弘
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 原 直樹
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 宋 東
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 菱谷 佳子
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 佐藤 文紀
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 内山 誠
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
- (72)発明者 山中 貢
神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

審査官 守安 太郎

- (56)参考文献 特開昭63-205058(JP,A)
特表2004-500691(JP,A)
特表2003-533002(JP,A)
特開2002-313391(JP,A)
特開平07-153470(JP,A)
特開平11-224683(JP,A)
実開平04-018964(JP,U)
特開平08-306380(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H01M 8/02-8/24