

(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2018-174040

(P2018-174040A)

(43) 公開日 平成30年11月8日(2018.11.8)

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード (参考)		
HO 1 M	8/0202	(2016.01)	HO 1 M	8/02	Y	5H018		
HO 1 M	4/86	(2006.01)	HO 1 M	4/86	U	5H126		
HO 1 M	8/02	(2016.01)	HO 1 M	8/02	E			
HO 1 M	8/24	(2016.01)	HO 1 M	8/24	E			
HO 1 M	8/12	(2016.01)	HO 1 M	8/12				

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 24 頁)

(21) 出願番号 特願2017-70012(P2017-70012)  
 (22) 出願日 平成29年3月31日(2017.3.31)

(71) 出願人 000004547  
 日本特殊陶業株式会社  
 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号  
 (74) 代理人 110001911  
 特許業務法人アルファ国際特許事務所  
 (72) 発明者 村瀬 智聡  
 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号  
 日本特殊陶業株式会社内  
 (72) 発明者 片山 恵一  
 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号  
 日本特殊陶業株式会社内  
 (72) 発明者 山際 勝也  
 愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号  
 日本特殊陶業株式会社内

最終頁に続く

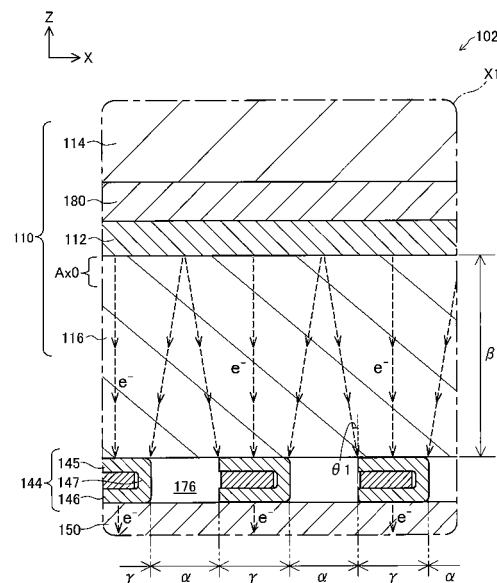
(54) 【発明の名称】 電気化学反応単位および電気化学反応セルスタック

(57) 【要約】

【課題】 電気化学反応単位の性能を向上させる。

【解決手段】 電気化学反応単位は、電解質層と、電解質層に対して第1の方向の一方側に配置された空気極と、電解質層に対して第1の方向の他方側に配置された燃料極と、を有する単セルを備える。電気化学反応単位は、さらに、燃料極における第1の方向の他方側の表面に導通する複数の集電部を有する集電体を備える。燃料極における集電体側の部分の気孔率は、35%以上である。複数の集電部の内の特定集電部について、第1の方向に直交する第2の方向における特定集電部と隣の集電部との間の最短距離 に対する、第1の方向における燃料極の厚さ の比である第1の比率 ( / ) は、0.20以上である。

【選択図】 図13



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

電解質層と、前記電解質層に対して第 1 の方向の一方側に配置された空気極と、前記電解質層に対して前記第 1 の方向の他方側に配置された燃料極と、を備える電気化学反応単セルと、

前記燃料極に対して前記第 1 の方向の前記他方側に配置され、前記燃料極における前記第 1 の方向の前記他方側の表面に導通する複数の集電部を有する導電性の集電体と、を備える電気化学反応単位において、

前記燃料極における前記集電体側の部分の気孔率は、35%以上であり、

前記複数の集電部の内の少なくとも 1 つである特定集電部について、前記第 1 の方向に直交する第 2 の方向における前記特定集電部と前記特定集電部の隣に位置する前記集電部との間の最短距離 に対する、前記第 1 の方向における前記燃料極の厚さ の比である第 1 の比率 ( / ) は、0.20 以上であることを特徴とする、電気化学反応単位。

10

**【請求項 2】**

請求項 1 に記載の電気化学反応単位において、

前記特定集電部について、前記第 2 の方向における前記特定集電部の前記燃料極に対向する部分の幅 に対する、前記第 1 の方向における前記燃料極の厚さ の比である第 2 の比率 ( / ) は、0.06 以上であることを特徴とする、電気化学反応単位。

**【請求項 3】**

請求項 2 に記載の電気化学反応単位において、

前記特定集電部について、前記第 1 の比率 ( / ) は、0.40 以上であることを特徴とする、電気化学反応単位。

20

**【請求項 4】**

請求項 3 に記載の電気化学反応単位において、

前記特定集電部について、前記第 2 の比率 ( / ) は、0.50 以下であることを特徴とする、電気化学反応単位。

**【請求項 5】**

請求項 4 に記載の電気化学反応単位において、

前記特定集電部について、前記第 1 の比率 ( / ) は、0.60 以下であることを特徴とする、電気化学反応単位。

30

**【請求項 6】**

請求項 1 から請求項 5 までのいずれか一項に記載の電気化学反応単位において、

前記燃料極における前記第 1 の方向の前記他方側の部分の気孔率は、前記燃料極における前記第 1 の方向の前記一方側の部分の気孔率より高いことを特徴とする、電気化学反応単位。

**【請求項 7】**

請求項 1 から請求項 6 までのいずれか一項に記載の電気化学反応単位において、

前記電気化学反応単セルは、燃料電池単セルであることを特徴とする、電気化学反応単位。

**【請求項 8】**

前記第 1 の方向に並べて配列された複数の電気化学反応単位を備える電気化学反応セルスタックにおいて、

40

前記複数の電気化学反応単位の少なくとも 1 つは、請求項 1 から請求項 7 までのいずれか一項に記載の電気化学反応単位であることを特徴とする、電気化学反応セルスタック。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本明細書によって開示される技術は、電気化学反応単位に関する。

**【背景技術】****【0002】**

50

水素と酸素との電気化学反応を利用して発電を行う燃料電池の1つとして、固体酸化物形の燃料電池（以下、「SOFC」という）が知られている。SOFCの構成単位である燃料電池発電単位（以下、「発電単位」という）は、燃料電池単セル（以下、「単セル」という）を備える。単セルは、電解質層と、電解質層に対して所定の方向（以下、「第1の方向」という）の一方側に配置された空気極と、電解質層に対して第1の方向の他方側に配置された燃料極とを含む。

【0003】

また、発電単位は、燃料極に対して第1の方向の上記他方側に配置された導電性の集電体を備える。集電体は、単セルにおける発電反応によって生じる電力を取り出すための部材である。集電体は、燃料極における第1の方向の上記他方側の表面に導通する複数の集電部を有する。発電運転時には、燃料極の該表面と集電体の各集電部とが導通する部分において、燃料極と集電体との間の電子のやりとりが行われる。また、燃料極に面する燃料室に供給された燃料ガスは、燃料極の該表面の内、集電体の各集電部と対向しない（各集電部に覆われていない）部分から燃料極内に流入する。

10

【0004】

従来、発電単位の性能を向上させるため、燃料極の厚さ（第1の方向における厚さ）の好ましい範囲が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

20

【特許文献1】特開平9-190824号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかし、従来のように燃料極の厚さの好ましい範囲を考慮するだけでは、発電単位の性能を十分に向上させることができず、さらなる性能向上の余地がある。

【0007】

なお、このような課題は、水の電気分解反応を利用して水素の生成を行う固体酸化物形の電解セル（以下、「SOEC」という）の構成単位である電解セル単位にも共通の課題である。なお、本明細書では、燃料電池発電単位と電解セル単位とをまとめて、電気化学反応単位と呼ぶ。

30

【0008】

本明細書では、上述した課題を解決することが可能な技術を開示する。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本明細書に開示される技術は、例えば、以下の形態として実現することが可能である。

【0010】

(1) 本明細書に開示される電気化学反応単位は、電解質層と、前記電解質層に対して第1の方向の一方側に配置された空気極と、前記電解質層に対して前記第1の方向の他方側に配置された燃料極と、を備える電気化学反応単セルと、前記燃料極に対して前記第1の方向の前記他方側に配置され、前記燃料極における前記第1の方向の前記他方側の表面に導通する複数の集電部を有する導電性の集電体と、を備える電気化学反応単位において、前記燃料極における前記集電体側の部分の気孔率は、35%以上であり、前記複数の集電部の内の少なくとも1つである特定集電部について、前記第1の方向に直交する第2の方向における前記特定集電部と前記特定集電部の隣に位置する前記集電部との間の最短距離

40

に対する、前記第1の方向における前記燃料極の厚さの比である第1の比率（ $\frac{\text{最短距離}}{\text{厚さ}}$ ）は、0.20以上である。本電気化学反応単位では、燃料極における集電体側の部分の気孔率が35%以上であるため、ガスを燃料極内に良好に進入させることができ、ガス拡散分極の増大を抑制することができる。また、本電気化学反応単位は、燃料極の厚さがある程度厚く、および/または、集電体の集電部と集電部との間の最短距離がある程度

50

短い構成であるため、燃料極における反応場（電解質層側の部分）で発生した電子が第1の方向に対する傾きがある程度の範囲の方向に沿って移動するときに、燃料極における反応場の内、そこで発生した電子が集電体の集電部に到達しにくい領域を減らすことができ、活性化分極の増大を抑制することによって電気化学反応単位の性能を向上させることができる。従って、本電気化学反応単位によれば、電気化学反応単位の性能を向上させることができる。

【0011】

(2) 上記電気化学反応単位において、前記特定集電部について、前記第2の方向における前記特定集電部の前記燃料極に対向する部分の幅に対する、前記第1の方向における前記燃料極の厚さの比である第2の比率（ $\frac{\text{幅}}{\text{厚さ}}$ ）は、0.06以上である構成としてもよい。本電気化学反応単位は、燃料極の厚さがある程度厚く、および/または、集電体の集電部の幅がある程度狭い構成であるため、燃料極内に流入した燃料ガスが第1の方向に対する傾きがある程度の範囲の方向に沿って流れるときに、燃料極における反応場の内、燃料ガスが到達しにくい領域を減らすことができ、ガス拡散分極の増大を抑制することができる。従って、本電気化学反応単位によれば、電気化学反応単位の性能を向上させることができる。

10

【0012】

(3) 上記電気化学反応単位において、前記特定集電部について、前記第1の比率（ $\frac{\text{厚さ}}{\text{最短距離}}$ ）は、0.40以上である構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、燃料極の厚さをより厚くする、および/または、集電体の集電部と集電部との間の最短距離をより短くすることができるため、燃料極における反応場の内、そこで発生した電子が集電体の集電部に到達しにくい領域をさらに効果的に減らすことができ、活性化分極の増大をさらに効果的に抑制することによって電気化学反応単位の性能をさらに効果的に向上させることができる。従って、本電気化学反応単位によれば、電気化学反応単位の性能をさらに効果的に向上させることができる。

20

【0013】

(4) 上記電気化学反応単位において、前記特定集電部について、前記第2の比率（ $\frac{\text{厚さ}}{\text{幅}}$ ）は、0.50以下である構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、燃料極の厚さが過度に厚くなることを抑制できる、および/または、集電体の集電部の幅が過度に狭くなることを抑制できるため、ガス拡散分極の増大や応力集中による燃料極の破損を抑制することによって電気化学反応単位の性能を効果的に向上させることができる。

30

【0014】

(5) 上記電気化学反応単位において、前記特定集電部について、前記第1の比率（ $\frac{\text{厚さ}}{\text{最短距離}}$ ）は、0.60以下である構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、燃料極の厚さが過度に厚くなることを抑制できる、および/または、集電体の集電部と集電部との間の最短距離が過度に短くなることを抑制できる。第1の燃料極層の厚さが過度に厚くなることを抑制することにより、ガス拡散分極の増大を抑制することができる。また、集電体の集電部と集電部との間の最短距離が過度に短くなることを抑制することにより、流路が狭くなることによるガスの圧力損失の増大が抑制され、セル面内に均一にガスが分配される。以上のことにより、電気化学反応単位の性能をより一層効果的に向上させることができる。

40

【0015】

(6) 上記電気化学反応単位において、前記燃料極における前記第1の方向の前記他方側の部分の気孔率は、前記燃料極における前記第1の方向の前記一方側の部分の気孔率より高い構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、反応場（三相界面長さ）を確保しつつ、ガス拡散分極の増大を抑制することができる。

【0016】

(7) 上記電気化学反応単位において、前記電気化学反応単セルは、燃料電池単セルである構成としてもよい。本電気化学反応単位によれば、電気化学反応単位の発電性能を向上させることができる。

50

## 【 0 0 1 7 】

なお、本明細書に開示される技術は、種々の形態で実現することが可能であり、例えば、電気化学反応単位（燃料電池発電単位または電解セル単位）、複数の電気化学反応単位を備える電気化学反応セルスタック（燃料電池スタックまたは電解セルスタック）、それらの製造方法等の形態で実現することが可能である。

## 【 図面の簡単な説明 】

## 【 0 0 1 8 】

【 図 1 】 実施形態における燃料電池スタック 1 0 0 の外観構成を示す斜視図である。

【 図 2 】 図 1 の I I - I I の位置における燃料電池スタック 1 0 0 の X Z 断面構成を示す説明図である。

【 図 3 】 図 1 の I I I - I I I の位置における燃料電池スタック 1 0 0 の Y Z 断面構成を示す説明図である。

【 図 4 】 図 2 に示す断面と同一の位置における互いに隣接する 2 つの発電単位 1 0 2 の X Z 断面構成を示す説明図である。

【 図 5 】 図 3 に示す断面と同一の位置における互いに隣接する 2 つの発電単位 1 0 2 の Y Z 断面構成を示す説明図である。

【 図 6 】 図 4 の V I - V I の位置における発電単位 1 0 2 の X Y 断面構成を示す説明図である。

【 図 7 】 図 4 の V I I - V I I の位置における発電単位 1 0 2 の X Y 断面構成を示す説明図である。

【 図 8 】 集電部幅 および集電部間最短距離 の特定に用いる断面 S E 1 を示す説明図である。

【 図 9 】 集電部幅 および集電部間最短距離 の特定に用いる断面 S E 1 を示す説明図である。

【 図 1 0 】 性能評価結果を示す説明図である。

【 図 1 1 】 第 1 の比率  $R_1$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 2 】 第 1 の比率  $R_1$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 3 】 第 1 の比率  $R_1$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 4 】 第 2 の比率  $R_2$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 5 】 第 2 の比率  $R_2$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 6 】 第 2 の比率  $R_2$  ( = / ) と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。

【 図 1 7 】 燃料極 1 1 6 の気孔率の特定方法を示す説明図である。

## 【 発明を実施するための形態 】

## 【 0 0 1 9 】

A . 実施形態 :

A - 1 . 構成 :

( 燃料電池スタック 1 0 0 の構成 )

図 1 は、実施形態における燃料電池スタック 1 0 0 の外観構成を示す斜視図であり、図 2 は、図 1 ( および後述する図 6 , 7 ) の I I - I I の位置における燃料電池スタック 1 0 0 の X Z 断面構成を示す説明図であり、図 3 は、図 1 ( および後述する図 6 , 7 ) の I I I - I I I の位置における燃料電池スタック 1 0 0 の Y Z 断面構成を示す説明図である。各図には、方向を特定するための互いに直交する X Y Z 軸が示されている。本明細書では、便宜的に、Z 軸正方向を上方向と呼び、Z 軸負方向を下方向と呼ぶものとするが、燃料電池スタック 1 0 0 は実際にはそのような向きとは異なる向きで設置されてもよい。図

10

20

30

40

50

4 以降についても同様である。

【0020】

燃料電池スタック100は、複数の（本実施形態では7つの）燃料電池発電単位（以下、単に「発電単位」という）102と、一对のエンドプレート104、106とを備える。7つの発電単位102は、所定の配列方向（本実施形態では上下方向）に並べて配置されている。一对のエンドプレート104、106は、7つの発電単位102から構成される集合体を上下から挟むように配置されている。なお、上記配列方向（上下方向）は、特許請求の範囲における第1の方向に相当する。

【0021】

燃料電池スタック100を構成する各層（発電単位102、エンドプレート104、106）のZ方向回りの周縁部には、上下方向に貫通する複数の（本実施形態では8つの）孔が形成されており、各層に形成され互に対応する孔同士が上下方向に連通して、一方のエンドプレート104から他方のエンドプレート106にわたって上下方向に延びる連通孔108を構成している。以下の説明では、連通孔108を構成するために燃料電池スタック100の各層に形成された孔も、連通孔108と呼ぶ場合がある。

【0022】

各連通孔108には上下方向に延びるボルト22が挿通されており、ボルト22とボルト22の両側に嵌められたナット24とによって、燃料電池スタック100は締結されている。なお、図2および図3に示すように、ボルト22の一方の側（上側）に嵌められたナット24と燃料電池スタック100の上端を構成するエンドプレート104の上側表面との間、および、ボルト22の他方の側（下側）に嵌められたナット24と燃料電池スタック100の下端を構成するエンドプレート106の下側表面との間には、絶縁シート26が介在している。ただし、後述のガス通路部材27が設けられた箇所では、ナット24とエンドプレート106の表面との間に、ガス通路部材27とガス通路部材27の上側および下側のそれぞれに配置された絶縁シート26とが介在している。絶縁シート26は、例えばマイカシートや、セラミック繊維シート、セラミック圧粉シート、ガラスシート、ガラスセラミック複合剤等により構成される。

【0023】

各ボルト22の軸部の外径は各連通孔108の内径より小さい。そのため、各ボルト22の軸部の外周面と各連通孔108の内周面との間には、空間が確保されている。図1および図2に示すように、燃料電池スタック100のZ方向回りの外周における1つの辺（Y軸に平行な2つの辺の内のX軸正方向側の辺）の midpoint 付近に位置するボルト22（ボルト22A）と、そのボルト22Aが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、燃料電池スタック100の外部から酸化剤ガスOGが導入され、その酸化剤ガスOGを各発電単位102に供給するガス流路である酸化剤ガス導入マニホールド161として機能し、該辺の反対側の辺（Y軸に平行な2つの辺の内のX軸負方向側の辺）の midpoint 付近に位置するボルト22（ボルト22B）と、そのボルト22Bが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、各発電単位102の空気室166から排出されたガスである酸化剤オフガスOOGを燃料電池スタック100の外部へと排出する酸化剤ガス排出マニホールド162として機能する。なお、本実施形態では、酸化剤ガスOGとして、例えば空気が使用される。

【0024】

また、図1および図3に示すように、燃料電池スタック100のZ方向回りの外周における1つの辺（X軸に平行な2つの辺の内のY軸正方向側の辺）の midpoint 付近に位置するボルト22（ボルト22D）と、そのボルト22Dが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、燃料電池スタック100の外部から燃料ガスFGが導入され、その燃料ガスFGを各発電単位102に供給する燃料ガス導入マニホールド171として機能し、該辺の反対側の辺（X軸に平行な2つの辺の内のY軸負方向側の辺）の midpoint 付近に位置するボルト22（ボルト22E）と、そのボルト22Eが挿通された連通孔108とにより形成された空間は、各発電単位102の燃料室176から排出されたガスである燃料オフガ

10

20

30

40

50

ス F O G を燃料電池スタック 1 0 0 の外部へと排出する燃料ガス排出マニホールド 1 7 2 として機能する。なお、本実施形態では、燃料ガス F G として、例えば都市ガスを改質した水素リッチなガスが使用される。

#### 【 0 0 2 5 】

燃料電池スタック 1 0 0 には、4つのガス通路部材 2 7 が設けられている。各ガス通路部材 2 7 は、中空筒状の本体部 2 8 と、本体部 2 8 の側面から分岐した中空筒状の分岐部 2 9 とを有している。分岐部 2 9 の孔は本体部 2 8 の孔と連通している。各ガス通路部材 2 7 の分岐部 2 9 には、ガス配管（図示せず）が接続される。また、図 2 に示すように、酸化剤ガス導入マニホールド 1 6 1 を形成するボルト 2 2 A の位置に配置されたガス通路部材 2 7 の本体部 2 8 の孔は、酸化剤ガス導入マニホールド 1 6 1 に連通しており、酸化剤ガス排出マニホールド 1 6 2 を形成するボルト 2 2 B の位置に配置されたガス通路部材 2 7 の本体部 2 8 の孔は、酸化剤ガス排出マニホールド 1 6 2 に連通している。また、図 3 に示すように、燃料ガス導入マニホールド 1 7 1 を形成するボルト 2 2 D の位置に配置されたガス通路部材 2 7 の本体部 2 8 の孔は、燃料ガス導入マニホールド 1 7 1 に連通しており、燃料ガス排出マニホールド 1 7 2 を形成するボルト 2 2 E の位置に配置されたガス通路部材 2 7 の本体部 2 8 の孔は、燃料ガス排出マニホールド 1 7 2 に連通している。

10

#### 【 0 0 2 6 】

（エンドプレート 1 0 4 ， 1 0 6 の構成）

一対のエンドプレート 1 0 4 ， 1 0 6 は、略矩形の平板形状の導電性部材であり、例えばステンレスにより形成されている。一方のエンドプレート 1 0 4 は、最も上に位置する発電単位 1 0 2 の上側に配置され、他方のエンドプレート 1 0 6 は、最も下に位置する発電単位 1 0 2 の下側に配置されている。一対のエンドプレート 1 0 4 ， 1 0 6 によって複数の発電単位 1 0 2 が押圧された状態で挟持されている。上側のエンドプレート 1 0 4 は、燃料電池スタック 1 0 0 のプラス側の出力端子として機能し、下側のエンドプレート 1 0 6 は、燃料電池スタック 1 0 0 のマイナス側の出力端子として機能する。

20

#### 【 0 0 2 7 】

（発電単位 1 0 2 の構成）

図 4 は、図 2 に示す断面と同一の位置における互いに隣接する 2 つの発電単位 1 0 2 の X Z 断面構成を示す説明図であり、図 5 は、図 3 に示す断面と同一の位置における互いに隣接する 2 つの発電単位 1 0 2 の Y Z 断面構成を示す説明図である。図 4 の下部には、発電単位 1 0 2 の一部分の X Z 断面構成が拡大して示されている。また、図 6 は、図 4 の V I - V I の位置における発電単位 1 0 2 の X Y 断面構成を示す説明図であり、図 7 は、図 4 の V I I - V I I の位置における発電単位 1 0 2 の X Y 断面構成を示す説明図である。

30

#### 【 0 0 2 8 】

図 4 および図 5 に示すように、発電単位 1 0 2 は、単セル 1 1 0 と、セパレータ 1 2 0 と、空気極側フレーム 1 3 0 と、空気極側集電体 1 3 4 と、燃料極側フレーム 1 4 0 と、燃料極側集電体 1 4 4 と、発電単位 1 0 2 の最上層および最下層を構成する一対のインターコネクタ 1 5 0 とを備えている。セパレータ 1 2 0 、空気極側フレーム 1 3 0 、燃料極側フレーム 1 4 0 、インターコネクタ 1 5 0 における Z 方向回りの周縁部には、上述したボルト 2 2 が挿通される連通孔 1 0 8 に対応する孔が形成されている。

40

#### 【 0 0 2 9 】

インターコネクタ 1 5 0 は、略矩形の平板形状の導電性部材であり、例えばフェライト系ステンレスにより形成されている。インターコネクタ 1 5 0 は、発電単位 1 0 2 間の電氣的導通を確保すると共に、発電単位 1 0 2 間での反応ガスの混合を防止する。なお、本実施形態では、2つの発電単位 1 0 2 が隣接して配置されている場合、1つのインターコネクタ 1 5 0 は、隣接する 2 つの発電単位 1 0 2 に共有されている。すなわち、ある発電単位 1 0 2 における上側のインターコネクタ 1 5 0 は、その発電単位 1 0 2 の上側に隣接する他の発電単位 1 0 2 における下側のインターコネクタ 1 5 0 と同一部材である。また、燃料電池スタック 1 0 0 は一対のエンドプレート 1 0 4 ， 1 0 6 を備えているため、燃料電池スタック 1 0 0 において最も上に位置する発電単位 1 0 2 は上側のインターコネク

50

タ 1 5 0 を備えておらず、最も下に位置する発電単位 1 0 2 は下側のインターコネクタ 1 5 0 を備えていない（図 2 および図 3 参照）。

【 0 0 3 0 】

単セル 1 1 0 は、電解質層 1 1 2 と、電解質層 1 1 2 の上下方向（第 1 の方向）の一方側（上側）に配置された空気極（カソード）1 1 4 と、電解質層 1 1 2 の上下方向の他方側（下側）に配置された燃料極（アノード）1 1 6 と、電解質層 1 1 2 と空気極 1 1 4 との間に配置された中間層 1 8 0 とを備える。なお、本実施形態の単セル 1 1 0 は、燃料極 1 1 6 で単セル 1 1 0 を構成する他の層（電解質層 1 1 2、空気極 1 1 4、中間層 1 8 0）を支持する燃料極支持形の単セルである。

【 0 0 3 1 】

電解質層 1 1 2 は、Z 方向視で略矩形の平板形状部材であり、緻密な層である。電解質層 1 1 2 は、例えば、Y S Z（イットリア安定化ジルコニア）、S c S Z（スカンジウム安定化ジルコニア）、S D C（サマリウムドープセリア）、G D C（ガドリニウムドープセリア）、ペロブスカイト型酸化物等の固体酸化物により形成されている。すなわち、本実施形態の単セル 1 1 0（発電単位 1 0 2）は、電解質として固体酸化物を用いる固体酸化物形燃料電池（S O F C）である。

【 0 0 3 2 】

空気極 1 1 4 は、Z 方向視で電解質層 1 1 2 より小さい略矩形の平板形状部材であり、多孔質な層である。空気極 1 1 4 は、例えば、L S C F（ランタンストロンチウムコバルト鉄酸化物）等のペロブスカイト型酸化物を含むように形成されている。

【 0 0 3 3 】

燃料極 1 1 6 は、Z 方向視で電解質層 1 1 2 と略同一の大きさの略矩形の平板形状部材であり、多孔質な層である。燃料極 1 1 6 は、例えば、N i と酸化物イオン伝導性セラミックス粒子（例えば、Y S Z）とからなるサーメットにより形成されている。なお、本実施形態では、燃料極 1 1 6 の気孔率は、Z 軸方向に平行な方向において概ね一様であるが、Z 軸方向において異なり得る。例えば、燃料極 1 1 6 における下側（電解質層 1 1 2 から離れた側）の部分の気孔率（後述の燃料極 1 1 6 における集電体側部分の気孔率 R O 1）は、燃料極 1 1 6 における上側（電解質層 1 1 2 に近い側）の部分の気孔率（後述の燃料極 1 1 6 における電解質層側部分の気孔率 R O 2）より高い。このような構成によれば、反応場（三相界面長さ）を確保しつつ、ガス拡散分極の増大を抑制することができる。燃料極 1 1 6 における上記下側の部分の気孔率（気孔率 R O 1）は、ガス拡散性を確保するためある程度高いことが好ましい。具体的には、燃料極 1 1 6 における上記下側の部分の気孔率（気孔率 R O 1）は、35%以上であることが好ましく、55%以下であることが好ましい。また、燃料極 1 1 6 における上記上側の部分の気孔率（気孔率 R O 2）は、10%以上であることが好ましく、30%以下であることが好ましい。

【 0 0 3 4 】

中間層 1 8 0 は、略矩形の平板形状部材であり、G D C（ガドリニウムドープセリア）を含むように形成されている。中間層 1 8 0 は、空気極 1 1 4 から拡散した元素（例えば、S r）が電解質層 1 1 2 に含まれる元素（例えば、Z r）と反応して高抵抗な物質（例えば、S r Z r O<sub>3</sub>）が生成されることを抑制する。

【 0 0 3 5 】

セパレータ 1 2 0 は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔 1 2 1 が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、金属により形成されている。セパレータ 1 2 0 における孔 1 2 1 の周囲部分は、電解質層 1 1 2 における空気極 1 1 4 の側の表面の周縁部に対向している。セパレータ 1 2 0 は、その対向した部分に配置されたロウ材（例えば A g ロウ）により形成された接合部 1 2 4 により、電解質層 1 1 2（単セル 1 1 0）と接合されている。セパレータ 1 2 0 により、空気極 1 1 4 に面する空気室 1 6 6 と燃料極 1 1 6 に面する燃料室 1 7 6 とが区画され、単セル 1 1 0 の周縁部における一方の電極側から他方の電極側へのガスのリークが抑制される。

【 0 0 3 6 】

10

20

30

40

50



図４～６に示すように、空気極側フレーム１３０は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔１３１が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、マイカ等の絶縁体により形成されている。空気極側フレーム１３０の孔１３１は、空気極１１４に面する空気室１６６を構成する。空気極側フレーム１３０は、セパレータ１２０における電解質層１１２に対向する側とは反対側の表面の周縁部と、インターコネクタ１５０における空気極１１４に対向する側の表面の周縁部とに接触している。また、空気極側フレーム１３０によって、発電単位１０２に含まれる一対のインターコネクタ１５０間が電氣的に絶縁される。また、空気極側フレーム１３０には、酸化剤ガス導入マニホールド１６１と空気室１６６とを連通する酸化剤ガス供給連通孔１３２と、空気室１６６と酸化剤ガス排出マニホールド１６２とを連通する酸化剤ガス排出連通孔１３３とが形成されている。

10

#### 【００３７】

図４，５，７に示すように、燃料極側フレーム１４０は、中央付近に上下方向に貫通する略矩形の孔１４１が形成されたフレーム状の部材であり、例えば、金属により形成されている。燃料極側フレーム１４０の孔１４１は、燃料極１１６に面する燃料室１７６を構成する。燃料極側フレーム１４０は、セパレータ１２０における電解質層１１２に対向する側の表面の周縁部と、インターコネクタ１５０における燃料極１１６に対向する側の表面の周縁部とに接触している。また、燃料極側フレーム１４０には、燃料ガス導入マニホールド１７１と燃料室１７６とを連通する燃料ガス供給連通孔１４２と、燃料室１７６と燃料ガス排出マニホールド１７２とを連通する燃料ガス排出連通孔１４３とが形成されている。

20

#### 【００３８】

図４，５，７に示すように、燃料極側集電体１４４は、燃料室１７６内（より詳細には、燃料極１１６の下側）に配置されている。燃料極側集電体１４４は、導電性を有し、かつ、ガス透過性を有さない部材であり、例えばニッケルやニッケル合金、ステンレス等により形成されている。

#### 【００３９】

燃料極側集電体１４４は、インターコネクタ対向部１４６と、複数の電極対向部１４５と、各電極対向部１４５とインターコネクタ対向部１４６とをつなぐ接続部１４７とを備えている。図７における部分拡大図に示すように、燃料極側集電体１４４は、略矩形の平板部材（例えばニッケル箔）に切り込みを入れ、複数の矩形部分を曲げ起こすように加工することにより製造される。曲げ起こされた各矩形部分が電極対向部１４５となり、曲げ起こされた部分以外の穴ＯＰが開いた状態の平板部分がインターコネクタ対向部１４６となり、電極対向部１４５とインターコネクタ対向部１４６とをつなぐ部分が接続部１４７となる。なお、図７における部分拡大図では、燃料極側集電体１４４の製造方法を示すため、一部の矩形部分について、曲げ起こし加工が完了する前の状態を示している。

30

#### 【００４０】

各電極対向部１４５は、燃料極１１６における電解質層１１２に対向する側とは反対側の表面に接触している。すなわち、各電極対向部１４５は、燃料極１１６における下側の表面に導通している。インターコネクタ対向部１４６は、インターコネクタ１５０における燃料極１１６に対向する側の表面に接触している。ただし、上述したように、燃料電池スタック１００において最も下に位置する発電単位１０２は下側のインターコネクタ１５０を備えていないため、当該発電単位１０２におけるインターコネクタ対向部１４６は、下側のエンドプレート１０６に接触している。燃料極側集電体１４４は、このような構成であるため、燃料極１１６とインターコネクタ１５０（またはエンドプレート１０６）とを電氣的に接続する。なお、電極対向部１４５とインターコネクタ対向部１４６との間には、例えばマイカにより形成されたスペーサー１４９が配置されている。そのため、燃料極側集電体１４４が温度サイクルや反応ガス圧力変動による発電単位１０２の変形に追随し、燃料極側集電体１４４を介した燃料極１１６とインターコネクタ１５０（またはエンドプレート１０６）との電氣的接続が良好に維持される。燃料極側集電体１４４は、特許請求の範囲における集電体に相当し、複数の電極対向部１４５は、特許請求の範囲にお

40

50

る複数の集電部に相当する。

【0041】

図4～6に示すように、空気極側集電体134は、空気室166内に配置されている。空気極側集電体134は、複数の略四角柱状の集電体要素135から構成されており、例えば、フェライト系ステンレスにより形成されている。空気極側集電体134は、空気極114における電解質層112に対向する側とは反対側の表面と、インターコネクタ150における空気極114に対向する側の表面とに接触している。ただし、上述したように、燃料電池スタック100において最も上に位置する発電単位102は上側のインターコネクタ150を備えていないため、当該発電単位102における空気極側集電体134は、上側のエンドプレート104に接触している。空気極側集電体134は、このような構成であるため、空気極114とインターコネクタ150（またはエンドプレート104）とを電氣的に接続する。なお、本実施形態では、空気極側集電体134（集電体要素135）とインターコネクタ150とは一体の部材として形成されている。すなわち、該一体の部材の内の、上下方向（Z軸方向）に直交する平板形状の部分がインターコネクタ150として機能し、該平板形状の部分から空気極114に向けて突出するように形成された複数の集電体要素135が空気極側集電体134として機能する。

10

【0042】

また、図4および図5に示すように、空気極側集電体134（集電体要素135）の表面は、導電性のコート136によって覆われている。コート136は、例えば、スピネル型酸化物により形成されている。以下の説明では、特記しない限り、空気極側集電体134（集電体要素135）は「コート136に覆われた空気極側集電体134（集電体要素135）」を意味する。なお、図6では、コート136の図示を省略している。また、図4および図5に示すように、空気極114と空気極側集電体134（集電体要素135）とは、導電性を有する接合層138により接合されている。接合層138は、例えば、スピネル型酸化物により形成されている。接合層138により、空気極114と空気極側集電体134とが電氣的に接続される。先に、空気極側集電体134は空気極114の表面と接触していると説明したが、正確には、空気極側集電体134と空気極114との間には接合層138が介在している。

20

【0043】

A-2. 燃料電池スタック100の動作：

30

図2および図4に示すように、酸化剤ガス導入マニホールド161の位置に設けられたガス通路部材27の分岐部29に接続されたガス配管（図示せず）を介して酸化剤ガスOGが供給されると、酸化剤ガスOGは、ガス通路部材27の分岐部29および本体部28の孔を介して酸化剤ガス導入マニホールド161に供給され、酸化剤ガス導入マニホールド161から各発電単位102の酸化剤ガス供給連通孔132を介して、空気室166に供給される。また、図3および図5に示すように、燃料ガス導入マニホールド171の位置に設けられたガス通路部材27の分岐部29に接続されたガス配管（図示せず）を介して燃料ガスFGが供給されると、燃料ガスFGは、ガス通路部材27の分岐部29および本体部28の孔を介して燃料ガス導入マニホールド171に供給され、燃料ガス導入マニホールド171から各発電単位102の燃料ガス供給連通孔142を介して、燃料室176に供給される。

40

【0044】

各発電単位102の空気室166に酸化剤ガスOGが供給され、燃料室176に燃料ガスFGが供給されると、単セル110において酸化剤ガスOGおよび燃料ガスFGの電気化学反応による発電が行われる。この発電反応は発熱反応である。各発電単位102において、単セル110の空気極114は空気極側集電体134を介してインターコネクタ150に電氣的に接続され、燃料極116は燃料極側集電体144を介してインターコネクタ150に電氣的に接続されている。また、燃料電池スタック100に含まれる複数の発電単位102は、電氣的に直列に接続されている。そのため、燃料電池スタック100の出力端子として機能するエンドプレート104、106から、各発電単位102において

50

生成された電気エネルギーが取り出される。なお、SOFCは、比較的高温（例えば700から1000）で発電が行われることから、起動後、発電により発生する熱で高温が維持できる状態になるまで、燃料電池スタック100が加熱器（図示せず）により加熱されてもよい。

【0045】

各発電単位102の空気室166から排出された酸化剤オフガスOOGは、図2および図4に示すように、酸化剤ガス排出連通孔133を介して酸化剤ガス排出マニホールド162に排出され、さらに酸化剤ガス排出マニホールド162の位置に設けられたガス通路部材27の本体部28および分岐部29の孔を経て、当該分岐部29に接続されたガス配管（図示せず）を介して燃料電池スタック100の外部に排出される。また、各発電単位102の燃料室176から排出された燃料オフガスFOGは、図3および図5に示すように、燃料ガス排出連通孔143を介して燃料ガス排出マニホールド172に排出され、さらに燃料ガス排出マニホールド172の位置に設けられたガス通路部材27の本体部28および分岐部29の孔を経て、当該分岐部29に接続されたガス配管（図示しない）を介して燃料電池スタック100の外部に排出される。

10

【0046】

A-3. 性能評価：

本実施形態の燃料電池スタック100を構成する各発電単位102は、燃料極116と燃料極側集電体144の電極対向部145との関係に特徴がある。以下、燃料極116と燃料極側集電体144の電極対向部145との関係に関して行った性能評価について説明する。

20

【0047】

（各パラメータについて）

図4に示すように、本性能評価では、Z軸方向における燃料極116の厚さを、「燃料極厚さ」という。なお、燃料極116の厚さが一様ではない場合には、燃料極厚さは、燃料極116（ただし、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向する部分）における最薄部の厚さとする。

【0048】

また、燃料極側集電体144の各電極対向部145における燃料極116に対向する部分（燃料極116に接触する部分）の幅（Z軸方向に直交する方向の大きさ）を、「集電部幅」という。

30

【0049】

なお、集電部幅の特定は、図8および図9に示すように、燃料極側集電体144の電極対向部145のXY断面において、電極対向部145の外周線に4点（P1～P4）以上で内接する仮想楕円VEを設定したときの、該仮想楕円VEの短径Amを含み、かつ、Z軸方向に平行な断面SE1（図8および図9の例ではYZ断面）において行うものとする。

【0050】

また、上記断面SE1における集電部幅の測定位置は、燃料極116（ただし、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向する部分）における最薄部の下端位置から、下方に距離Lx（=10μm）だけ離れた位置とする。例えば、図4に示すように、燃料極116の厚さが略一様である構成では、集電部幅は、上記断面SE1（図4の例ではXZ断面）における、燃料極116の下面から距離Lx（=10μm）だけ下方に位置し、かつ、Z軸方向に直交する仮想直線VL1上において特定される。

40

【0051】

また、一の電極対向部145とその隣に位置する他の電極対向部145との間の最短距離（Z軸方向に直交する方向における最短距離）を、「集電部間最短距離」という。集電部間最短距離は、集電部幅と同様に、上記断面SE1における上記仮想直線VL1上において特定される（図4参照）。

【0052】

50

また、集電部間最短距離 に対する燃料極厚さ の比率 ( / ) を、「第 1 の比率 R 1」という。第 1 の比率 R 1 の値が高いことは、集電部間最短距離 の値が小さいこと (すなわち、2 つの電極対向部 1 4 5 間の間隔が狭いこと)、および / または、燃料極厚さ の値が大きいことを意味する。また、集電部幅 に対する燃料極厚さ の比率 ( / ) を、「第 2 の比率 R 2」という。第 2 の比率 R 2 の値が高いことは、集電部幅 の値が小さいこと (すなわち、電極対向部 1 4 5 の幅が狭いこと)、および / または、燃料極厚さ の値が大きいことを意味する。

#### 【 0 0 5 3 】

(各サンプルについて)

図 1 0 は、性能評価結果を示す説明図である。図 1 0 に示すように、性能評価に用いられた発電単位 1 0 2 の各サンプル ( S 1 ~ S 1 4 ) は、上述した集電部間最短距離 、燃料極厚さ 、および、集電部幅 の値が互いに異なっており、その結果、第 1 の比率 R 1 および第 2 の比率 R 2 の値が互いに異なっている。さらに、各サンプルは、燃料極 1 1 6 における燃料極側集電体 1 4 4 に近い側の部分 (以下、「集電体側部分」という) の気孔率 R O 1、および、燃料極 1 1 6 における電解質層 1 1 2 に近い側の部分 (以下、「電解質層側部分」という) の気孔率 R O 2 の値が互いに異なっている。図 1 0 に示すように、性能評価に用いられたすべてのサンプルにおいて、燃料極 1 1 6 の集電体側部分の気孔率 R O 1 は、燃料極 1 1 6 の電解質層側部の気孔率 R O 2 より高くなっている。気孔率 R O 1 および気孔率 R O 2 の特定方法については、後述する。

10

#### 【 0 0 5 4 】

各サンプルの作製にあたり、燃料極 1 1 6 を N i および Y S Z からなるサーメットにより形成した。また、燃料極 1 1 6 の集電体側部分の気孔率 R O 1 および電解質層側部の気孔率 R O 2 を、原料の粒度を調整したり焼成温度を調整したりすることによって調整した。また、燃料極側集電体 1 4 4 (電極対向部 1 4 5、インターコネクタ対向部 1 4 6、接続部 1 4 7) を N i 箔により構成し、スペーサー 1 4 9 をマイカにより構成した。各サンプルについて、電極対向部 1 4 5 等の形状や配置を互いに異ならせることにより、集電部間最短距離 および集電部幅 の値を互いに異ならせた。

20

#### 【 0 0 5 5 】

(評価方法について)

本性能評価では、発電性能についての評価を行った。具体的には、作製した発電単位 1 0 2 の各サンプルについて、温度 : 7 0 0 、電流密度 : 0 . 5 5 A / c m <sup>2</sup> の条件における初期電圧を測定し、初期電圧の値に応じて以下のように「 A 」 ~ 「 G 」の 7 段階で評価した ( 「 A 」が最も優れているという評価であり、「 G 」が最も劣っているという評価である ) 。

30

- ・評価 : 「 A 」 . . . 初期電圧 : 0 . 9 2 V 以上
- ・評価 : 「 B 」 . . . 初期電圧 : 0 . 9 1 5 V 以上、0 . 9 2 V 未満
- ・評価 : 「 C 」 . . . 初期電圧 : 0 . 9 1 V 以上、0 . 9 1 5 V 未満
- ・評価 : 「 D 」 . . . 初期電圧 : 0 . 9 0 5 V 以上、0 . 9 1 V 未満
- ・評価 : 「 E 」 . . . 初期電圧 : 0 . 9 V 以上、0 . 9 0 5 V 未満
- ・評価 : 「 F 」 . . . 初期電圧 : 0 . 8 V 以上、0 . 9 V 未満
- ・評価 : 「 G 」 . . . 初期電圧 : 0 . 8 V 未満

40

#### 【 0 0 5 6 】

(評価結果について)

(サンプル S 1 について)

図 1 0 に示すように、サンプル S 1 の評価結果は、最も低い「 G 」評価であった。サンプル S 1 では、燃料極 1 1 6 の集電体側部分の気孔率 R O 1 が 2 0 % であり、他のサンプル (いずれも集電体側部分の気孔率 R O 1 が 3 5 % 以上である) と比べて低い値となっている。そのため、サンプル S 1 では、燃料室 1 7 6 に供給された燃料ガス F G が燃料極 1 1 6 内に良好に進入せず、燃料極 1 1 6 における反応場 (電解質層 1 1 2 側の部分) において燃料ガス F G が不足することによってガス拡散分極が極めて大きくなり、その結果、

50

初期電圧が極めて低くなったものと考えられる。この結果から、発電単位102の発電性能向上（発電性能低下の抑制）のためには、燃料極116の集電体側部分の気孔率R01は35%以上であることが好ましいと言える。

【0057】

（サンプルS2について）

サンプルS2の評価結果は、2番目に低い「F」評価であった。サンプルS2では、燃料極116の集電体側部分の気孔率R01が35%以上ではあるものの、第1の比率R1（ $= \frac{\text{燃料極側集電体144の面積}}{\text{燃料極116の面積}}$ ）が0.19であり、サンプルS3～S14（いずれも第1の比率R1が0.20以上である）と比べて低い値となっている。そのため、サンプルS2では、以下に説明するように、サンプルS3～S14と比べて初期電圧が低くなったものと考えられる。

10

【0058】

図11から図13は、第1の比率R1（ $= \frac{\text{燃料極側集電体144の面積}}{\text{燃料極116の面積}}$ ）と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。図11から図13には、発電単位102の一部（図4のX1部）のXZ断面構成が示されている。図11に示す発電単位102の構成では、図13に示す発電単位102の構成と比較して、集電部間最短距離の値が大きい。そのため、図11に示す発電単位102の構成では、図13に示す発電単位102の構成と比較して、第1の比率R1の値が小さくなっている。また、図12に示す発電単位102の構成では、図13に示す発電単位102の構成と比較して、燃料極厚さの値が小さい。そのため、図12に示す発電単位102の構成では、図13に示す発電単位102の構成と比較して、第1の比率R1の値が小さくなっている。

20

【0059】

ここで、燃料極116における反応場A×0（燃料極116における電解質層112側の部分）での電極反応により発生した電子は、燃料極116内を通過して燃料極側集電体144内に進入するが、燃料極116と燃料極側集電体144との間の電子（ $e^-$ ）のやりとりは、燃料極116の表面の内、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向しない（接しない）部分（すなわち、集電部間最短距離に対応する部分）では行われず、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向する（接する）部分（すなわち、集電部幅に対応する部分）で行われる。また、燃料極116における反応場A×0で発生した電子は、Z軸方向に対する傾きが概ね所定値1以内の範囲の方向に沿って、燃料極側集電体144に向けて流れる。そのため、図11に示すように集電部間最短距離の値が比較的大きい構成や図12に示すように燃料極厚さの値が比較的小さい構成（すなわち、第1の比率R1の値が比較的小さい構成）では、反応場A×0の内の一部の領域A×1で発生した電子が燃料極側集電体144の電極対向部145に到達しにくくなることによって活性化分極が大きくなり、その結果、発電単位102の初期電圧が低くなる。

30

【0060】

これに対し、図13に示す発電単位102の構成では、図11に示す発電単位102の構成と比較して、集電部間最短距離の値が小さく、また、図12に示す発電単位102の構成と比較して、燃料極厚さの値が大きい。すなわち、図13に示す発電単位102の構成では、図11および図12に示す発電単位102の構成と比較して、第1の比率R1の値が大きい。図13に示す発電単位102の構成では、集電部間最短距離の値が比較的小さいため、燃料極116の反応場A×0の内、そこで発生した電子が燃料極側集電体144の電極対向部145に到達しにくい領域の面積を減らすことができる。また、図13に示す発電単位102の構成では、燃料極厚さの値が比較的大きいため、燃料極116の反応場A×0で発生した電子の、Z軸方向に直交する方向への移動距離を比較的大くすることができる。従って、図13に示すように、第1の比率R1の値が比較的大きい構成では、燃料極116の反応場A×0で発生した電子が燃料極側集電体144の電極対向部145に到達しにくい領域を減らすことができ、活性化分極の増大を抑制することによって初期電圧の低下を抑制することができる。

40

【0061】

上述したように、第1の比率R1（ $= \frac{\text{燃料極側集電体144の面積}}{\text{燃料極116の面積}}$ ）が0.20未満であるサンプルS2の評

50

価結果が、第1の比率R1が0.20以上であるサンプルS3～S14の評価結果より劣ることを考慮すると、発電単位102の発電性能向上（発電性能低下の抑制）のためには、第1の比率R1は0.20以上であることが好ましいと言える。

【0062】

（サンプルS3，S4について）

サンプルS3，S4の評価結果は、3番目に低い「E」評価であった。サンプルS3，S4では、燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1が35%以上であり、かつ、第1の比率R1（ $= \frac{\text{燃料極側集電体側部分の気孔率RO1}}{\text{燃料極側集電体側部分の面積}}$ ）が0.20以上であるものの、第2の比率R2（ $= \frac{\text{燃料極側集電体側部分の気孔率RO1}}{\text{燃料極側集電体側部分の厚さ}}$ ）が0.06未満であり、サンプルS5～S14（いずれも第2の比率R2が0.06以上である）と比べて低い値となっている。そのため、サンプルS3，S4では、以下に説明するように、サンプルS5～S14と比べて初期電圧が低くなったものと考えられる。

10

【0063】

図14から図16は、第2の比率R2（ $= \frac{\text{燃料極側集電体側部分の気孔率RO1}}{\text{燃料極側集電体側部分の厚さ}}$ ）と発電性能との関係を概念的に示す説明図である。図14から図16には、発電単位102の一部（図4のX1部）のXZ断面構成が示されている。図14に示す発電単位102の構成では、図16に示す発電単位102の構成と比較して、集電部幅の値が大きい。そのため、図14に示す発電単位102の構成では、図16に示す発電単位102の構成と比較して、第2の比率R2の値が小さくなっている。また、図15に示す発電単位102の構成では、図16に示す発電単位102の構成と比較して、燃料極厚さの値が小さい。そのため、図15に示す発電単位102の構成では、図16に示す発電単位102の構成と比較して、第2の比率R2の値が小さくなっている。

20

【0064】

ここで、燃料室176に供給された燃料ガスFGは、燃料極116の表面の内、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向する（接触する）部分（すなわち、集電部幅に対応する部分）からは流入せず、燃料極側集電体144の電極対向部145に対向しない（接触しない）部分（すなわち、集電部間最短距離に対応する部分）から燃料極116内に流入する。また、燃料極116内に流入した燃料ガスFGは、Z軸方向に対する傾きが概ね所定値2以内の範囲の方向に沿って、燃料極116における反応場Ax0（燃料極116における電解質層112側の部分）に向けて流れる。そのため、図14に示すように集電部幅の値が比較的大きい構成や図15に示すように燃料極厚さの値が比較的小さい構成（すなわち、第2の比率R2の値が比較的小さい構成）では、燃料極116の反応場Ax0の内の一部の領域Ax2に燃料ガスFGが到達しにくくなることによってガス拡散分極が大きくなり、その結果、発電単位102の初期電圧が低くなる。

30

【0065】

これに対し、図16に示す発電単位102の構成では、図14に示す発電単位102の構成と比較して、集電部幅の値が小さく、また、図15に示す発電単位102の構成と比較して、燃料極厚さの値が大きい。すなわち、図16に示す発電単位102の構成では、図14および図15に示す発電単位102の構成と比較して、第2の比率R2の値が大きい。図16に示す発電単位102の構成では、集電部幅の値が比較的小さいため、燃料極116の反応場Ax0の内、燃料ガスFGが到達しにくい領域の面積を減らすことができる。また、図16に示す発電単位102の構成では、燃料極厚さの値が比較的大きいため、燃料極116内に進入した燃料ガスFGの、Z軸方向に直交する方向への移動距離（拡散距離）を比較的長くすることができる。従って、図16に示すように、第2の比率R2の値が比較的大きい構成では、燃料極116の反応場Ax0の内、燃料ガスFGが到達しにくい領域を減らすことができ、ガス拡散分極の増大を抑制することによって初期電圧の低下を抑制することができる。

40

【0066】

上述したように、第2の比率R2（ $= \frac{\text{燃料極側集電体側部分の気孔率RO1}}{\text{燃料極側集電体側部分の厚さ}}$ ）が0.06未満であるサンプルS3，S4の評価結果が、第2の比率R2が0.06以上であるサンプルS5～S14の評価結果より劣ることを考慮すると、発電単位102のさらなる発電性能向上（発電性能低下の抑

50

制)のためには、第2の比率R2は0.06以上であることが好ましいと言える。

【0067】

(サンプルS5～S7について)

サンプルS5～S7の評価結果は、4番目に低い(すなわち、4番目に高い)「D」評価であった。サンプルS5～S7では、燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1が35%以上であり、第1の比率R1(= / )が0.20以上であり、かつ、第2の比率R2(= / )が0.06以上であるものの、第1の比率R1が0.40未満であり、サンプルS8～S14(いずれも第1の比率R1が0.40以上である)と比べて低い値となっている。上述したように、第1の比率R1の値が大きいほど、燃料極116の反応場A×0で発生した電子が燃料極側集電体144の電極対向部145に到達しにくい領域を減らすことができ、活性化分極の増大を抑制することによって発電性能を向上させる(発電性能の低下を抑制する)ことができる。第1の比率R1(= / )が0.40未満であるサンプルS5～S7の評価結果が、第1の比率R1が0.40以上であるサンプルS8～S14の評価結果より劣ることを考慮すると、発電単位102のさらなる発電性能向上(発電性能低下の抑制)のためには、第1の比率R1は0.40以上であることが好ましいと言える。

10

【0068】

(サンプルS8について)

サンプルS8の評価結果は、5番目に低い(すなわち、3番目に高い)「C」評価であった。サンプルS8では、燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1が35%以上であり、第1の比率R1(= / )が0.40以上であり、かつ、第2の比率R2(= / )が0.06以上であるものの、第2の比率R2が0.50を超えており、サンプルS9～S14(いずれも第2の比率R2が0.50以下である)と比べて過度に高い値となっている。第2の比率R2が過度に高いということは、燃料極厚さの値が過度に大きいこと、および/または、集電部幅の値が過度に小さいことを意味する。燃料極厚さの値が過度に大きいと、燃料極116の表面から反応場A×0までの燃料ガスFGの拡散経路が過度に長くなるため、ガス拡散分極が大きくなり、その結果、初期電圧が低くなる上に、燃料極116を形成するための使用材料量の増加や燃料極116と他の層との界面剥離の可能性増加を引き起こす。また、集電部幅の値が過度に小さいと、燃料極116と燃料極側集電体144との接触面積が過度に小さくなるため、応力が集中して燃料極116の破損を引き起こし、その結果、初期電圧が低くなる。これらの内の少なくとも1つの理由によって、サンプルS8では、初期電圧が低くなったものと考えられる。第2の比率R2(= / )が0.50を超えるサンプルS8の評価結果が、第2の比率R2が0.50以下であるサンプルS9～S14の評価結果より劣ることを考慮すると、発電単位102のさらなる発電性能向上(発電性能低下の抑制)のためには、第2の比率R2は0.50以下であることが好ましいと言える。

20

30

【0069】

(サンプルS9について)

サンプルS9の評価結果は、6番目に低い(すなわち、2番目に高い)「B」評価であった。サンプルS9では、燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1が35%以上であり、第1の比率R1(= / )が0.40以上であり、かつ、第2の比率R2(= / )が0.06以上、0.50以下であるものの、第1の比率R1が0.60を超えており、サンプルS10～S14(いずれも第1の比率R1が0.60以下である)と比べて過度に高い値となっている。第1の比率R1が過度に高いということは、燃料極厚さの値が過度に大きいこと、および/または、集電部間最短距離の値が過度に小さいことを意味する。燃料極厚さの値が過度に大きいと、燃料極116の表面から反応場A×0までの燃料ガスFGの拡散経路が過度に長くなるため、ガス拡散分極が大きくなり、その結果、初期電圧が低くなる上に、燃料極116を形成するための使用材料量の増加や燃料極116と他の層との界面剥離の可能性増加を引き起こす。また、集電部間最短距離の値が過度に小さいと、燃料極116における燃料極側集電体144の電極対向部145に覆

40

50

われていない部分の面積が過度に小さくなるため、燃料室 176 に供給された燃料ガス FG が燃料極 116 内に良好に進入せず、ガス拡散分極が大きくなり、その結果、初期電圧が低くなる。また、集電部間最短距離の値が過度に小さいと、ガス流路が過度に狭くなることによってガスの圧力損失が増大し、セル面内に均一にガスが分配されにくくなり、その結果、初期電圧が低くなる。これらの内の少なくとも 1 つの理由によって、サンプル S9 では、初期電圧が低くなったものと考えられる。第 1 の比率  $R_1$  ( = / ) が 0.60 を超えるサンプル S9 の評価結果が、第 1 の比率  $R_1$  が 0.60 以下であるサンプル S10 ~ S14 の評価結果より劣ることを考慮すると、発電単位 102 のさらなる発電性能向上 ( 発電性能低下の抑制 ) のためには、第 1 の比率  $R_1$  は 0.60 以下であることが好ましいと言える。

10

#### 【0070】

( 性能評価結果のまとめ )

以上説明した性能評価結果を参照すると、発電単位 102 の発電性能向上 ( 発電性能低下の抑制 ) のためには、燃料極 116 の集電体側部分の気孔率  $RO_1$  が 35% 以上であり、かつ、第 1 の比率  $R_1$  ( 集電部間最短距離に対する燃料極厚さの比 ( / ) ) が 0.20 以上であることが好ましく、第 2 の比率  $R_2$  ( 集電部幅に対する燃料極厚さの比 ( / ) ) が 0.06 以上であることがさらに好ましく、第 1 の比率  $R_1$  が 0.40 以上であることがさらに好ましく、第 2 の比率  $R_2$  が 0.50 以下であることがさらに好ましく、第 1 の比率  $R_1$  が 0.60 以下であることが最も好ましいと言える。

20

#### 【0071】

A - 4 . 燃料極 116 の気孔率の特定方法 :

上述した燃料極 116 の集電体側部分の気孔率  $RO_1$  の特定は、水谷惟恭著「セラミックプロセッシング」( 技報堂出版 ) の p . 193 - 195 の記載を参考に、以下の方法に従って行った ( 図 17 参照 ) 。まず、発電単位 102 ( 単セル 110 ) において、燃料ガス FG の流れ方向 ( 図 5 および図 7 に示すように本実施形態では Y 軸方向 ) に沿って並ぶ任意の 3 つの位置で、燃料ガス FG の流れ方向に略直交する断面 ( 本実施形態では XZ 断面 ) を設定し、各断面の任意の 3 カ所で、燃料極 116 における燃料極側集電体 144 側の表面を含む部分が写った FIB - SEM ( 加速電圧 1.5 kV ) における SEM 画像 ( 5000 倍 ) を得る。つまり、9 つの SEM 画像が得られる。上記各 SEM 画像において、燃料極 116 における燃料極側集電体 144 側の表面付近に、Z 軸方向に直交する 5 本の仮想直線 VL ( VL11 ~ VL15 ) を 1 μm 間隔で設定する。5 本の仮想直線 VL のそれぞれにおいて、気孔にあたる各部分の長さを測定し、仮想直線 VL の全長に対する気孔にあたる各部分の長さの合計の比を、当該仮想直線 VL 上における気孔率とする。すべての SEM 画像において設定されたすべての仮想直線 VL 上における気孔率の平均値を、燃料極 116 の集電体側部分の気孔率  $RO_1$  とする。

30

#### 【0072】

同様に、燃料極 116 の電解質層側部分の気孔率  $RO_2$  の特定は、以下の方法に従って行った ( 図 17 参照 ) 。まず、発電単位 102 ( 単セル 110 ) において、燃料ガス FG の流れ方向 ( 本実施形態では Y 軸方向 ) に沿って並ぶ任意の 3 つの位置で、燃料ガス FG の流れ方向に略直交する断面 ( 本実施形態では XZ 断面 ) を設定し、各断面の任意の 3 カ所で、燃料極 116 における電解質層 112 側の表面を含む部分が写った FIB - SEM ( 加速電圧 1.5 kV ) における SEM 画像 ( 5000 倍 ) を得る。つまり、9 つの SEM 画像が得られる。上記各 SEM 画像において、燃料極 116 における電解質層 112 側の表面付近に、Z 軸方向に直交する 5 本の仮想直線 VL ( VL21 ~ VL25 ) を 1 μm 間隔で設定する。なお、燃料極 116 における電解質層 112 側の表面は、上記各 SEM 画像において、燃料極 116 と電解質層 112 との構成物質の相違等に基づき特定することができる。5 本の仮想直線 VL のそれぞれにおいて、気孔にあたる各部分の長さを測定し、仮想直線 VL の全長に対する気孔にあたる各部分の長さの合計の比を、当該仮想直線 VL 上における気孔率とする。すべての SEM 画像において設定されたすべての仮想直線 VL 上における気孔率の平均値を、燃料極 116 の電解質層側部分の気孔率  $RO_2$  とする

40

50



。

【0073】

B．変形例：

本明細書で開示される技術は、上述の実施形態に限られるものではなく、その要旨を逸脱しない範囲において種々の形態に変形することができ、例えば次のような変形も可能である。

【0074】

上記実施形態における単セル110、発電単位102または燃料電池スタック100の構成は、あくまで一例であり、種々変形可能である。例えば、上記実施形態では、燃料極116は、単層構成であるとしているが、燃料極116が、構成の互いに異なる複数の層から構成されているとしてもよい。燃料極116が複数の層から構成されている場合でも、上下方向（第1の方向）における燃料極116の厚さは、燃料極116全体の厚さ（各層の厚さの合計）を意味する。

10

【0075】

例えば、燃料極116が、燃料極側集電体144側に位置する第1の燃料極層（基板層）と、電解質層112側に位置する第2の燃料極層（活性層）との二層構成であるとしてもよい。このような構成では、上下方向（第1の方向）における燃料極116の厚さは、第1の燃料極層（基板層）の厚さと第2の燃料極層（活性層）の厚さとの合計を意味する。なお、このような構成でも、燃料極116における第1の燃料極層（基板層）の気孔率（燃料極116における集電体側部分の気孔率R01）は、燃料極116における第2の燃料極層（活性層）の気孔率（燃料極116における電解質層側の部分の気孔率R02）より高いことが好ましい。例えば、燃料極116における第1の燃料極層（基板層）の気孔率（燃料極116における集電体側部分の気孔率R01）は、35%以上であることが好ましく、55%以下であることが好ましい。また、燃料極116における第2の燃料極層（活性層）の気孔率（燃料極116における電解質層側の部分の気孔率R02）は、10%以上であることが好ましく、30%以下であることが好ましい。

20

【0076】

また、上記実施形態では、燃料極側集電体144が、電極対向部145とインターコネクタ対向部146と接続部147とから構成されているが、燃料極側集電体144は、燃料極116の表面に導通する複数の集電部を有する限りにおいて、他の構成であってもよい。例えば、燃料極側集電体144は、空気極側集電体134と同様に、複数の略四角柱状の集電体要素から構成されていてもよい。そのような構成では、複数の集電体要素が複数の集電部として機能する。また、上記実施形態では、電極対向部145とインターコネクタ対向部146との間にスペーサー149が配置されているが、スペーサー149は省略可能である。

30

【0077】

また、上記実施形態において、燃料極116における燃料極側集電体144側の表面に、ガス透過性を有する導電性材料（例えば、Niで形成された細かいピッチ（電極対向部145の配置ピッチより細かいピッチ）のメッシュ材）が配置されており、燃料極116の該表面が、該ガス透過性を有する導電性材料を介して、燃料極側集電体144の電極対向部145に導通しているとしてもよい。そのような構成では、燃料極116が特許請求の範囲における燃料極に相当し、燃料極側集電体144が特許請求の範囲における集電体に相当し、該ガス透過性を有する導電性材料は特許請求の範囲における燃料極にも集電体にも相当しない。

40

【0078】

また、上記実施形態において、燃料極側集電体144が導電性のコートにより覆われていてもよい。そのような構成において、該コートがガス透過性を有しない場合には、燃料極側集電体144および該コートが特許請求の範囲における集電体に相当し、該コートがガス透過性を有する場合には、燃料極側集電体144が特許請求の範囲における集電体に相当し、該コートは特許請求の範囲における燃料極にも集電体にも相当しない。

50

## 【0079】

なお、上述した集電部間最短距離、燃料極厚さ、集電部幅は、それぞれ、以下の範囲であることが好ましい。

- ・ 1000 μm 集電部間最短距離 3000 μm
- ・ 210 μm 燃料極厚さ 1210 μm
- ・ 500 μm 集電部幅 9000 μm

## 【0080】

また、上記実施形態では、単セル110が中間層180を備えているが、単セル110は必ずしも中間層180を備える必要は無い。また、上記実施形態では、インターコネクタ150と空気極側集電体134とが一体部材であるが、インターコネクタ150と空気極側集電体134とが別部材であってもよい。また、上記実施形態では、空気極側集電体134がコート136に覆われているが、空気極側集電体134がコート136に覆われていないとしてもよい。また、上記実施形態では、空気極側集電体134が接合層138を介して空気極114に接しているが、空気極側集電体134が接合層138を介さずに空気極114に接しているとしてもよい。

10

## 【0081】

また、上記実施形態において、燃料電池スタック100に含まれる単セル110（発電単位102）の個数は、あくまで一例であり、単セル110（発電単位102）の個数は燃料電池スタック100に要求される出力電圧等に応じて適宜決められる。また、上記実施形態における各部材を構成する材料は、あくまで例示であり、各部材が他の材料により構成されていてもよい。

20

## 【0082】

また、上記実施形態に記載した発電単位102の発電性能向上（発電性能低下の抑制）のための構成要件（例えば、燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1が35%以上であり、かつ、第1の比率R1（ $= \frac{\text{燃料極116の集電体側部分の気孔率RO1}}{\text{燃料極116の集電体側部分の面積}} \times 100$ ）が0.20以上であること等）は、必ずしも燃料電池スタック100を構成する複数の発電単位102のすべてにおいて満たされている必要はなく、燃料電池スタック100を構成する複数の発電単位102の内の少なくとも1つにおいて満たされていればよい。また、1つの発電単位102に注目したときに、該構成要件は、必ずしも燃料極側集電体144が備える複数の電極対向部145のすべてにおいて満たされている必要はなく、燃料極側集電体144が備える複数の電極対向部145の内、30%以上の電極対向部145において上記構成要件が満たされていることが好ましく、50%以上の電極対向部145において上記構成要件が満たされていることがより好ましく、70%以上の電極対向部145において上記構成要件が満たされていることがさらに好ましく、90%以上の電極対向部145において上記構成要件が満たされていることが最も好ましい。該構成要件が満たされている電極対向部145は、特許請求の範囲における特定集電部に相当する。

30

## 【0083】

また、上記実施形態では、燃料ガスに含まれる水素と酸化剤ガスに含まれる酸素との電気化学反応を利用して発電を行うSOFCを対象としているが、本発明は、水の電気分解反応を利用して水素の生成を行う固体酸化物形電解セル（SOEC）の構成単位である電解セル単位や、複数の電解セル単位を備える電解セルスタックにも同様に適用可能である。なお、電解セルスタックの構成は、例えば特開2016-81813号公報に記載されているように公知であるためここでは詳述しないが、概略的には上述した実施形態における燃料電池スタック100と同様の構成である。すなわち、上述した実施形態における燃料電池スタック100を電解セルスタックと読み替え、発電単位102を電解セル単位と読み替え、単セル110を電解単セルと読み替えればよい。ただし、電解セルスタックの運転の際には、空気極114がプラス（陽極）で燃料極116がマイナス（陰極）となる

40

50

ように両電極間に電圧が印加されると共に、連通孔 108 を介して原料ガスとしての水蒸気が供給される。これにより、各電解セル単位において水の電気分解反応が起こり、燃料室 176 で水素ガスが発生し、連通孔 108 を介して電解セルスタックの外部に水素が取り出される。このような構成の電解セル単位および電解セルスタックにおいても、性能向上（性能低下の抑制）のためには、上記実施形態と同様に、燃料極 116 の集電体側部分の気孔率  $R_{01}$  が 35% 以上であり、かつ、第 1 の比率  $R_1$  ( $= \quad / \quad$ ) が 0.20 以上であることが好ましく、第 2 の比率  $R_2$  ( $= \quad / \quad$ ) が 0.06 以上であることがさらに好ましく、第 1 の比率  $R_1$  が 0.40 以上であることがさらに好ましく、第 2 の比率  $R_2$  が 0.50 以下であることがさらに好ましく、第 1 の比率  $R_1$  が 0.60 以下であることが最も好ましい。

10

## 【0084】

また、上記実施形態では、固体酸化物形燃料電池 (SOFC) を例に説明したが、本発明は、熔融炭酸塩形燃料電池 (MCFC) といった他のタイプの燃料電池 (または電解セル) にも適用可能である。

## 【符号の説明】

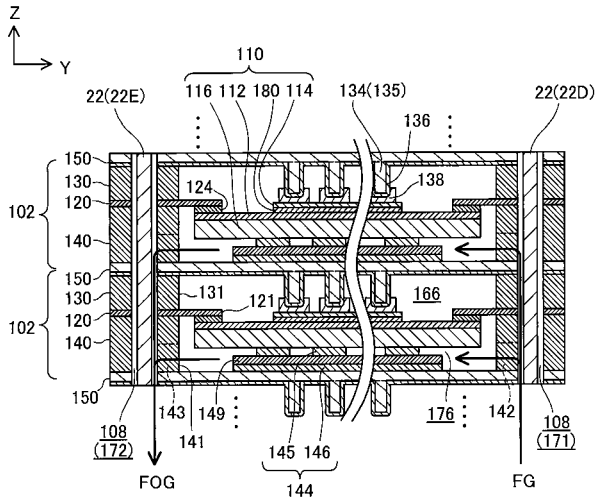
## 【0085】

22 : ボルト    24 : ナット    26 : 絶縁シート    27 : ガス通路部材    28 : 本体部  
 29 : 分岐部    100 : 燃料電池スタック    102 : 燃料電池発電単位    104 : エンドプレート  
 106 : エンドプレート    108 : 連通孔    110 : 単セル    112 : 電解質層  
 114 : 空気極    116 : 燃料極    120 : セパレータ    121 : 孔    124 : 接合部  
 130 : 空気極側フレーム    131 : 孔    132 : 酸化剤ガス供給連通孔    133 : 酸化剤ガス排出連通孔  
 134 : 空気極側集電体    135 : 集電体要素    136 : コート  
 138 : 接合層    140 : 燃料極側フレーム    141 : 孔    142 : 燃料ガス供給連通孔  
 143 : 燃料ガス排出連通孔    144 : 燃料極側集電体    145 : 電極対向部    146 : インターコネクタ対向部  
 147 : 接続部    149 : スペーサー    150 : インターコネクタ  
 161 : 酸化剤ガス導入マニホール    162 : 酸化剤ガス排出マニホール  
 166 : 空気室    171 : 燃料ガス導入マニホール    172 : 燃料ガス排出マニホール  
 176 : 燃料室    180 : 中間層

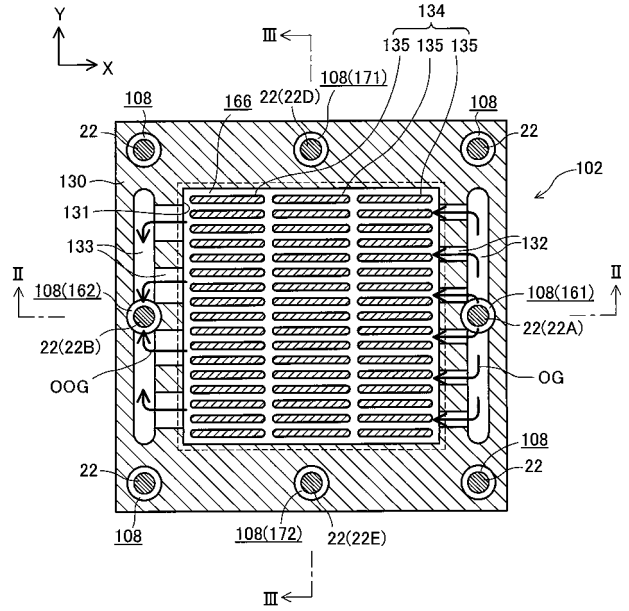
20



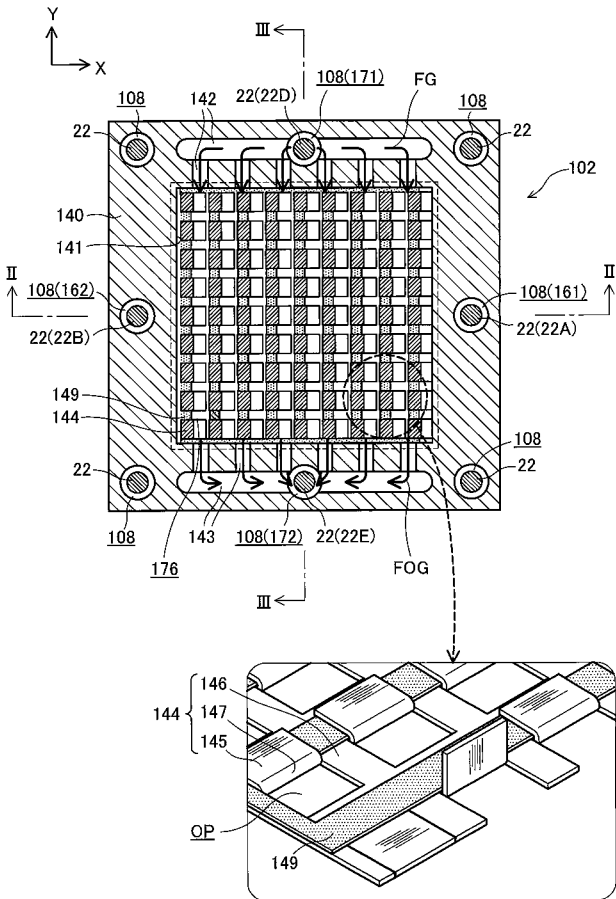
【 図 5 】



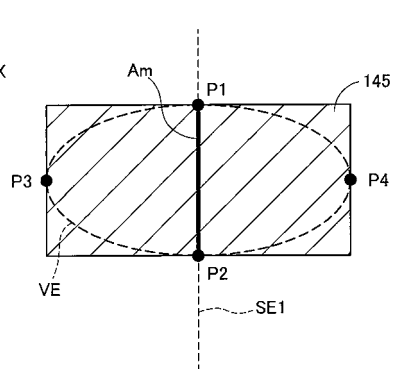
【 図 6 】



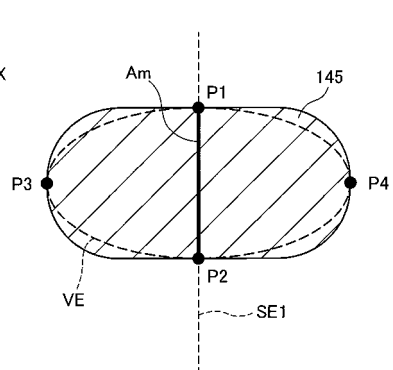
【 図 7 】



【 図 8 】



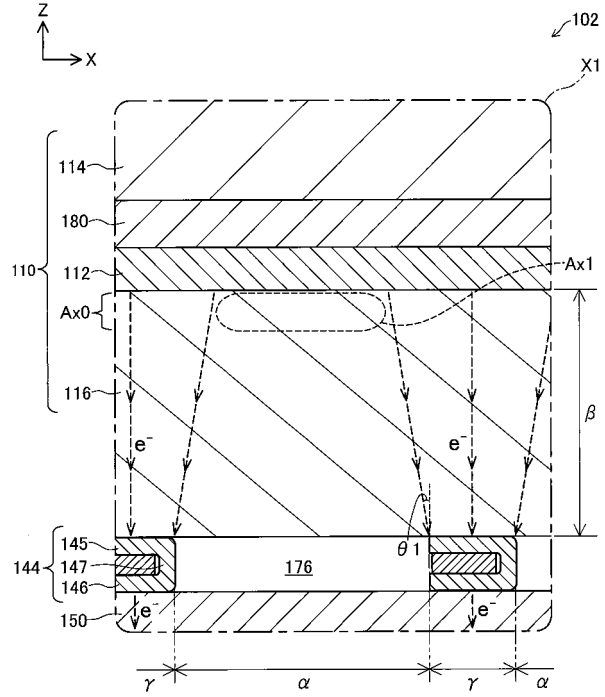
【 図 9 】



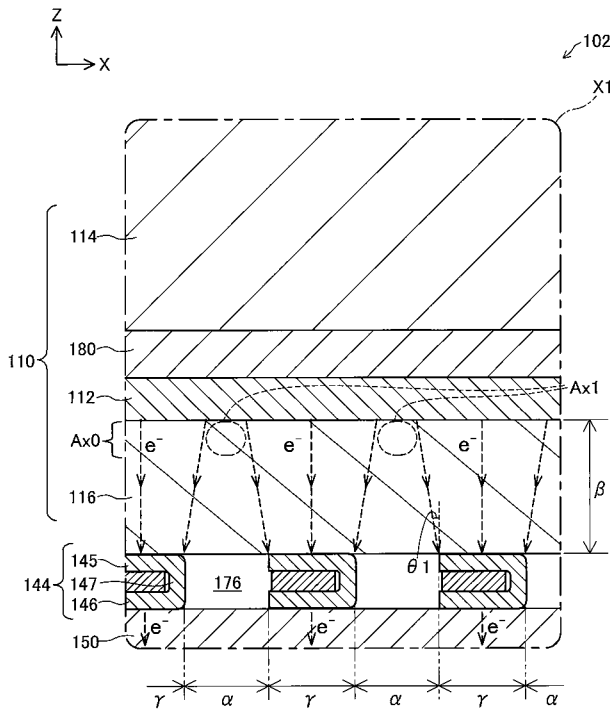
【図10】

サンプル No.	集電部間最長距離 $\alpha$ ( $\mu\text{m}$ )	燃料層厚さ $\beta$ ( $\mu\text{m}$ )	集電部幅 $\gamma$ ( $\mu\text{m}$ )	第1の比率R1 ( $\beta/\alpha$ )	第2の比率R2 ( $\beta/\gamma$ )	燃料層116の集電体部分の気孔率RO1 (%)	燃料層116の電解質層部分の気孔率RO2 (%)	性能評価結果
1	1550	820	5200	0.53	0.16	20	20	G
2	1450	280	550	0.19	0.51	45	17	F
3	2000	400	8500	0.20	0.05	43	18	E
4	1000	450	8500	0.45	0.05	44	21	E
5	2500	500	8500	0.20	0.06	45	22	D
6	1700	570	800	0.34	0.71	42	14	D
7	2000	780	2050	0.39	0.38	46	20	D
8	1800	1070	2100	0.59	0.51	43	15	C
9	1800	1100	4000	0.61	0.28	44	17	B
10	2000	1000	2000	0.50	0.50	46	15	A
11	1400	800	6000	0.57	0.13	45	13	A
12	2000	880	4000	0.44	0.22	44	15	A
13	2000	820	7500	0.41	0.11	42	17	A
14	1550	820	5200	0.53	0.16	43	18	A

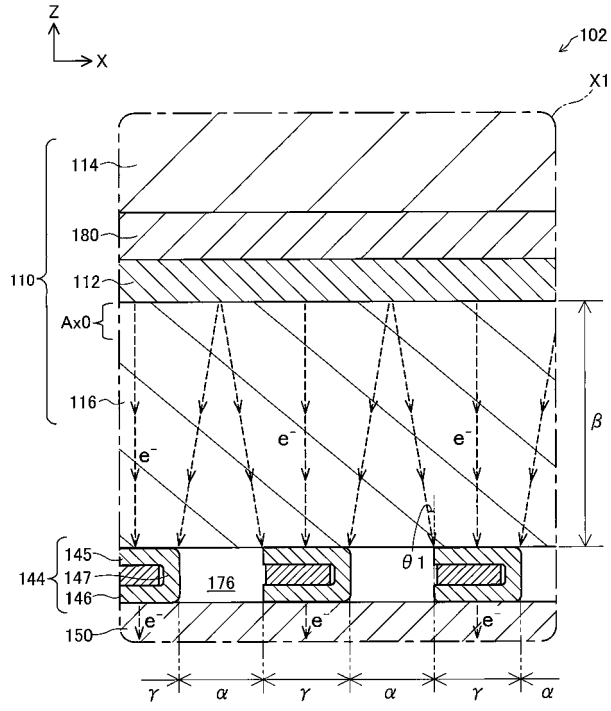
【図11】



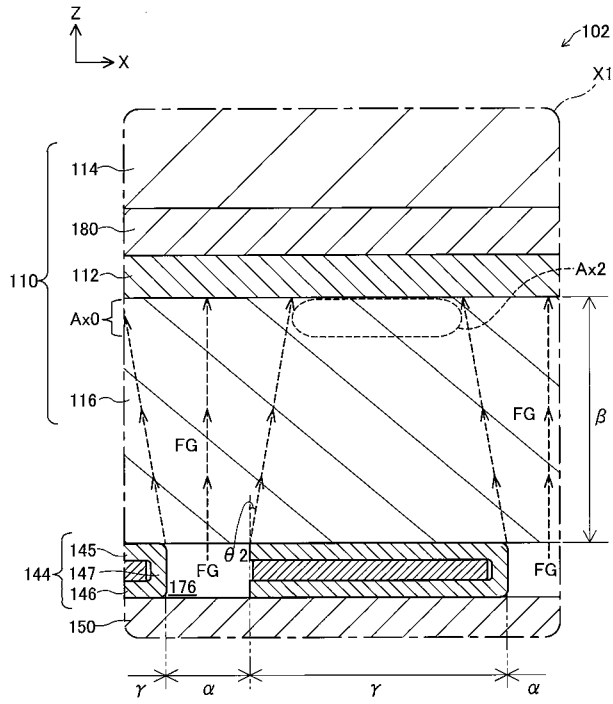
【図12】



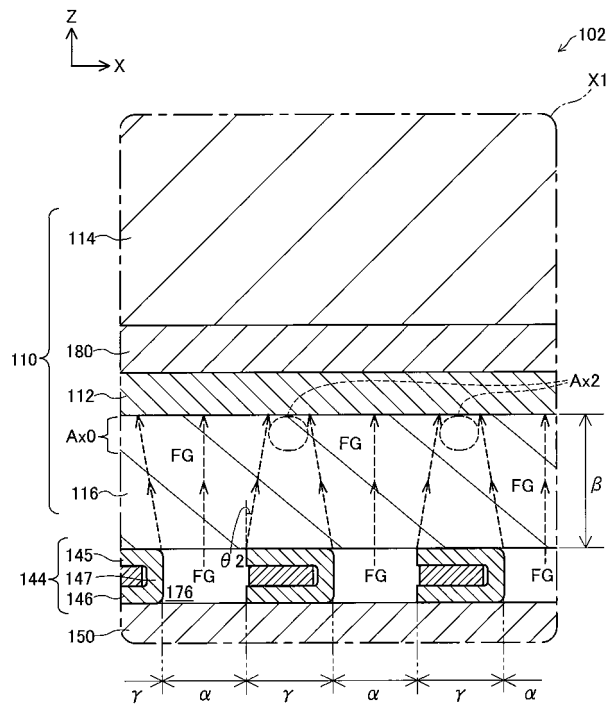
【図13】



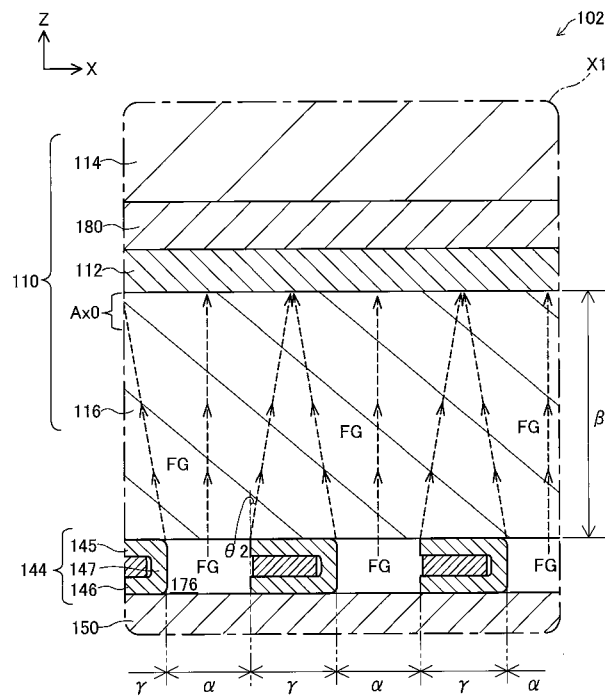
【 図 1 4 】



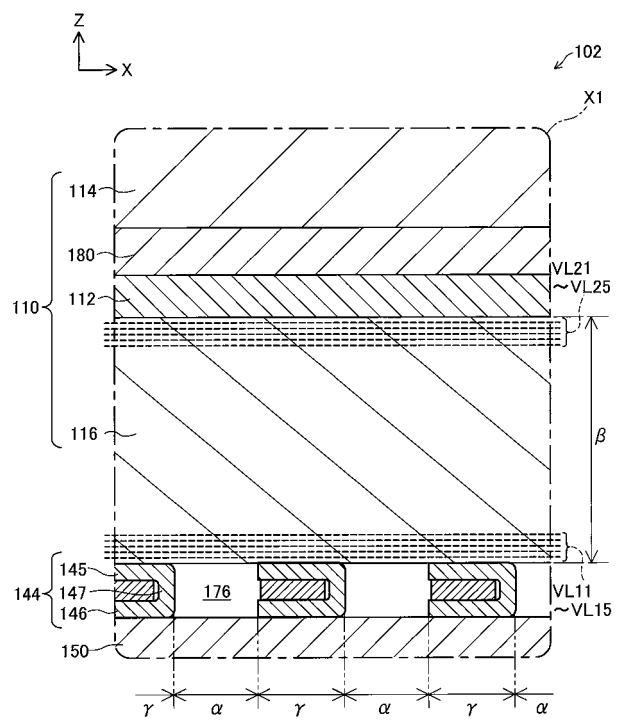
【 図 1 5 】



【 図 1 6 】



【 図 1 7 】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H018 AA06 AS02 EE04 EE12 EE13 HH03 HH04  
5H126 AA02 AA14 AA22 BB06 DD05 EE04 EE11 JJ03 JJ04