

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5093645号
(P5093645)

(45) 発行日 平成24年12月12日 (2012.12.12)

(24) 登録日 平成24年9月28日 (2012.9.28)

(51) Int. Cl.		F I	
HO 1 M	8/02 (2006.01)	HO 1 M	8/02 S
HO 1 M	8/12 (2006.01)	HO 1 M	8/12
HO 1 M	8/04 (2006.01)	HO 1 M	8/04 H

請求項の数 11 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2006-513882 (P2006-513882)	(73) 特許権者	899000057 学校法人日本大学 東京都千代田区九段南四丁目8番24号
(86) (22) 出願日	平成17年5月24日 (2005.5.24)	(74) 代理人	100124257 弁理士 生井 和平
(86) 国際出願番号	PCT/JP2005/009428	(72) 発明者	野村 浩司 日本国東京都千代田区九段南四丁目8番24号 学校法人 日本大学内
(87) 国際公開番号	W02005/117179	(72) 発明者	▲高▼波 歳久 日本国東京都江戸川区西葛西2-22-3 8-109
(87) 国際公開日	平成17年12月8日 (2005.12.8)		
審査請求日	平成20年5月22日 (2008.5.22)	審査官	長谷山 健
(31) 優先権主張番号	特願2004-159954 (P2004-159954)		
(32) 優先日	平成16年5月28日 (2004.5.28)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

燃料電池の動作温度が高温である固体酸化物形燃料電池であって、該燃料電池は、
 固体電解質と空気極と燃料極とからなる燃料電池セルと、
 前記空気極に接する空気領域と、
 前記燃料極に接する燃料領域と、
 前記空気領域と燃料領域との間のシール領域に、該シール領域のガス圧が前記空気領域及び燃料領域のガス圧よりも僅かに高くなるように不燃性ガスを供給する不燃性ガス供給口を有する、前記空気領域と燃料領域との間に挟まれる前記燃料電池セルの周縁端部をシールするための不燃性ガスによるシール手段と、
 を有することを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の固体酸化物形燃料電池において、前記不燃性ガスは、窒素ガスであることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 3】

請求項 1 又は請求項 2 に記載の固体酸化物形燃料電池において、前記不燃性ガスは、前記固体酸化物形燃料電池から排出される排気ガスであることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 4】

請求項 1 乃至請求項 3 の何れかに記載の固体酸化物形燃料電池であって、前記空気領域

と燃料領域とその間に挟まれる前記燃料電池セルとからなる燃料電池ユニットを複数有し、さらに、前記複数の燃料電池ユニットを分離して積層するための複数のセパレータを有することを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の固体酸化物形燃料電池において、前記シール手段は、前記複数の燃料電池ユニットの間に挟まれる前記セパレータの周縁端部をシールすることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 6】

請求項 1 乃至請求項 5 の何れかに記載の固体酸化物形燃料電池において、前記シール手段は、前記燃料電池セルに固着されていないことを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

10

【請求項 7】

請求項 1 乃至請求項 6 の何れかに記載の固体酸化物形燃料電池であって、さらに、前記シール手段の動作が異常となったときに機能するフェイルセーフ手段を有することを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 8】

請求項 7 に記載の固体酸化物形燃料電池において、前記フェイルセーフ手段は、複数の不燃性ガス供給手段からなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

【請求項 9】

請求項 7 又は請求項 8 に記載の固体酸化物形燃料電池において、前記フェイルセーフ手段は、前記燃料領域への燃料供給を遮断する手段からなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

20

【請求項 10】

固体電解質と空気極と燃料極とからなる燃料電池セルと、前記空気極に接する空気領域と、前記燃料極に接する燃料領域とを有する固体酸化物形燃料電池において、前記空気領域と燃料領域との間のシール領域をシールする方法であって、該方法は、

前記空気領域と燃料領域との間に挟まれる前記燃料電池セルの周縁端部をシールするための不燃性ガスを前記シール領域に、前記空気領域及び燃料領域のガス圧よりも僅かに高いガス圧で供給しながら、燃料電池の燃料を供給することを特徴とする固体酸化物形燃料電池のシール方法。

【請求項 11】

30

請求項 10 に記載の固体酸化物形燃料電池のシール方法であって、さらに、前記不燃性ガスの供給に異常があった場合には、燃料電池への燃料の供給を停止することを特徴とする固体酸化物形燃料電池のシール方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法に関し、特に、不燃性ガスをシール材として用いる固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法に関する。

【背景技術】

【0002】

40

燃料電池はその電解質によって様々な形式に分類されるが、その中で固体酸化物形燃料電池（以下、本明細書では SOFC と略す。）は、電解質に高温でイオン導電性を持つ酸化物を用いるものである。SOFC は、各種燃料電池の中で最も高温で運転されるものであり、その電池動作温度は 800 ~ 1000 に達する。運転温度が高温であるため、SOFC に用いられる装置の材質の選択は難しく、通常、ほとんどの部分がセラミックスで作成される。

【0003】

図 1 を用いて、従来の SOFC の燃料電池セル部分のシール方法を説明する。固体電解質 1 と空気極 2 と燃料極 3 とからなる燃料電池セルは、燃料管 4 にシール材 5 を用いて固着されている。燃料電池は反応ガスである水素と酸素を外部より供給し、化学反応させる

50

ことで起電力を得るものである。特に燃料ガスとして用いられる水素は分子量が小さく、無色、無臭の可燃性ガスであるため、僅かな隙間からでも漏れやすいので、燃料電池セルと燃料管との間には高いガスバリア性を有するシール材が要求される。

【0004】

ここで、SOFCの動作温度が高温になることから、このシール材5にはゴムやシリコン系のシール材等を用いることはできない。SOFCでは、一般的にはセラミックスやガラス質等をシール材として用いて、燃料電池セルを燃料管に完全に固着している。

【0005】

このように、800 を超える高温領域でのシール技術は非常に重要な意味を持っており、様々なシール方法が開発されている。例えば特許文献1、特許文献2、特許文献3では、シール部がSOFCの動作温度より高い融点を持つ超微粒子酸化物を主成分とするシール液剤を塗布して焼成することで得られる焼結体からなるシール材を用いたものを開示している。

10

【0006】

また、ガラス質等を用いたシール方法としては、例えば特許文献4では、珪酸ソーダガラスの組成比を制御して、固相線以上、液相線以下の固液共存範囲で固相がマトリックスを形成し、液層がシール材として機能する2元系以上の酸化物からなるシール材を開示している。また、特許文献5では、セラミックス繊維で補強された金属箔を骨材とし、この骨材に珪酸ソーダガラスを保持させたシール材を開示している。特許文献6では、セパレータを予め酸素雰囲気中で熱処理して表面に酸化物層を形成することにより、セパレータとガラス質のシール材の適合性を上げ、シール性を向上させている。特許文献7、特許文献8では、円筒形セルとフランジ間、及びフランジとガスシール板(仕切板)間のシールにガラスを用いる固体電解質燃料電池を開示している。

20

【0007】

また、特許文献9では、セパレータの上下面にそれぞれ凹部と突起部を備え、これらが嵌合するありほぞ継ぎ手構造とするとともに、セパレータと固体電解質の間に耐熱性金属のガスケットを挿入し互いに面接触させて気密性を確保する方法を開示している。

【0008】

特許文献10では、固体電解質燃料電池において、接合しようとする2つの材料の成分をともに含んだ材料をシール材として用いるシール方法を開示している。上述の技術は、平板型の燃料電池を対象としているが、円筒型構造の燃料電池の場合、円筒形のセルとこれを保持する仕切板との間をシールする必要がある。

30

【0009】

さらに、特許文献11では、金属部材が貯留部に充填され境界部の一部又は全部に金属部材が充填されるシール性を有する複合体を開示している。

【0010】

これらの従来技術はすべてシール材により燃料電池セルが燃料管等に完全に固着されるものであった。

【0011】

【特許文献1】特開平11-154525号公報

40

【特許文献2】特開平10-116624号公報

【特許文献3】特開平10-12252号公報

【特許文献4】特開平5-325999号公報

【特許文献5】特開平6-231784号公報

【特許文献6】特開平8-7904号公報

【特許文献7】特開平5-29010号公報

【特許文献8】特開平5-29011号公報

【特許文献9】特開平9-115530号公報

【特許文献10】特開平9-129251号公報

【特許文献11】特開2002-349714号公報

50

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

しかしながら、従来のようなシール方法を用いた場合、燃料電池セルは完全に固着されているため、燃料電池セル自体の点検やメンテナンスを行いたくてもできなかった。燃料電池セルを交換する場合には、燃料電池セルやその周辺のシール材を破壊するしかなく、その交換には手間とコストがかかるものであった。また、燃料電池セルがまだ再利用できるものであったとしても、取り出すには破壊するしかなかったため再利用することもできなかった。

【0013】

本発明は、斯かる実情に鑑み、安全で高いガスバリア性を有する一方、容易に燃料電池セルを取り外すことも可能な固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法を提供しようとするものである。

【課題を解決するための手段】

【0014】

上述した本発明の目的を達成するために、本発明による固体酸化物形燃料電池は、固体電解質と空気極と燃料極とからなる燃料電池セルと、空気極に接する空気領域と、燃料極に接する燃料領域と、燃料電池セルの部分の空気領域と燃料領域との間をシールするための不燃性ガスによるシール手段とを有するものである。

【0015】

ここで、シール手段は、空気領域と燃料領域との間に設けられるシール領域と、該シール領域に不燃性ガスを供給する不燃性ガス供給口とを有するものであれば良い。

【0016】

また、シール領域のガス圧は、空気領域及び燃料領域のガス圧よりも僅かに高くすれば良い。

【0017】

また、シール手段は、空気領域と燃料領域との間に挟まれる燃料電池セルの端部をシールすれば良い。

【0018】

なお、不燃性ガスは、窒素ガスを用いることが可能である。また、固体酸化物形燃料電池から排出される排気ガスを用いても良い。

【0019】

さらに、空気領域と燃料領域とその間に挟まれる燃料電池セルとからなる燃料電池ユニットを複数用いてスタック型とし、複数の燃料電池ユニットを分離して積層するための複数のセパレータを有する構成としても良い。

【0020】

このとき、シール手段は、複数の燃料電池ユニットの間に挟まれるセパレータの端部もシールするようにしても良い。

【0021】

なお、シール手段は、燃料電池セルに固着されていなければ良い。

【0022】

さらに、シール手段の動作が異常となったときに機能するフェイルセーフ手段を有するようにしても良い。これは、複数の不燃性ガス供給手段からなるものや、燃料領域への燃料供給を遮断する手段からなるものであれば良い。

【0023】

また、本発明のシール方法は、空気領域と燃料領域との間をシールするための不燃性ガスをシール領域に供給しながら、燃料電池の燃料を供給するものである。

【発明の効果】

【0024】

本発明の固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法には、高いガスバリア性を有する一

10

20

30

40

50

方、容易に燃料電池セルを取り外すことも可能という利点がある。したがって、燃料電池セルの点検やメンテナンスが容易に行えるようになり、燃料電池セルを交換する場合にも安価に簡単に短時間で交換することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0025】

以下、本発明を実施するための最良の形態を図示例と共に説明する。図2は、本発明の第1実施例のSOFCの燃料電池セルのシール部分を説明するための模式的な断面図である。また、図3は図2のSOFCのシール部分の説明をするのに用いる一部断面の模式的な斜視図である。図中、図1と同一の符号を付した部分は同一機能部分を表わしている。なお、以下の説明では平板型の燃料電池セルを図示例に挙げて説明するが、本発明はこれ

10

【0026】

図2に示すように、固体電解質1と空気極2と燃料極3とからなる燃料電池セルが、燃料管4の支持部40に置かれている。そして、燃料電池セルの上部にはセルカバー6が載せられ、燃料電池セルを固定している。なお、セルカバー6は燃料電池セルを完全に固定するようなものではなく、錘として載せられているものである。さらに、燃料管4の外側を覆うように、燃料管と同心円上で僅かな隙間をもってシール用ガス管7が設けられる。ここで燃料管4には、シール用ガス管7から不燃性ガスをシール領域8に供給するための不燃性ガス供給口9が設けられている。なお、図示例では不燃性ガス供給口9は4箇所

20

【0027】

SOFCにおいて、空気領域10に燃料領域11の燃料、例えば水素等が入り込むと、爆発の危険性があるため、本発明のSOFCでは、空気領域10と燃料領域11との間に挟まれる燃料電池セルの端部をシール領域8でシールしている。シール領域8には、不燃性ガス供給口9を介してシール用ガス管7から不燃性ガスを導入し、不燃性ガスが満たされる。この不燃性ガスにより、空気領域10と燃料領域11の間がシールされる。

【0028】

ここで、導入される不燃性ガスは、例えば窒素ガスであり、空気領域10や燃料領域11のガス圧よりも僅かに高くなる状態で供給されることが好ましい。勿論完全に等しいガス圧であっても良いが、僅かに高いガス圧とすることで、空気領域10の空気や燃料領域11の燃料がシール領域8に漏れ出ることを完全に防ぐことが可能である。なお、不燃性ガスのガス圧が高すぎる場合には、空気領域10や燃料領域11に漏れた不燃性ガスにより、燃料や空気を希釈してしまうことになるため、燃料や空気がシール領域8に入り込まない程度の僅かに高いガス圧を保つように制御されることが好ましい。なお、まず不燃性ガスを供給し、その状態で燃料を供給するようになれば、装置起動時でも、燃料が空気領域の方へ、又は空気が燃料領域の方へ流出する可能性はない。

30

【0029】

また、不燃性ガスとして常に新しい窒素を用意するのではなく、燃料電池から排出される排気ガスをシール用の不燃性ガスとして再利用することも可能である。例えば、燃料側の排気であるオフガスには水素も混入しているため、コジェネレーションとして空気を混ぜて燃焼させた熱を利用したりするが、このとき排出される排気ガスも不燃性ガスとして利用可能である。

40

【0030】

ここで、通常、SOFCにおいて、空気領域10と燃料領域11のガス圧は一致させて使用する。これは、燃料電池セルは1mm未満と薄い構造であり、熱応力に加えてガス圧の差による機械的応力を受けると燃料電池セルが割れてしまう可能性があるからである。したがって、シール用の不燃性ガスが一方の側のみに流出する可能性はない。但し、空気領域と燃料領域のガス圧の差が、燃料電池セルが応力に耐えられる程度の微小な差である場合には、ガス圧が高いほうに合わせて、それよりも僅かに高いガス圧の不燃性ガスを供

50

給する必要がある。

【0031】

なお、図示例ではシール領域8は、固体電解質1と燃料管4とセルカバー6とに囲まれた部屋状の領域となっているが、本発明はこれに限定されず、部屋状の領域が無く密着した状態となっていて勿論構わない。即ち、この場合、密着している状態における僅かな隙間部分がシール領域となるわけである。また、本発明のシール方法は、完全に固着された状態で使うことは意図していないが、固着された状態であっても、漏れた場合の安全策等として本発明のシール方法を用いることも勿論可能である。

【0032】

このように、本発明のシール部分は、シール材として不燃性ガスを用いるガスシールであるため完全に固着する必要がない。また、ガスであるため、高温になっても問題なくシール機能を有するものである。ただし、不活性ガスの供給が何らかのトラブルで停止した場合には、簡単に燃料と空気が混合する危険性がある。したがって、これを防止するためのフェイルセーフ機能を設けることが好ましい。具体的なフェイルセーフ機能としては、例えばシール用ガス管への不燃性ガスの供給器を複数設けておき、一つが故障しても別の供給器により供給可能なようにしておくことが考えられる。さらに、異常を感知した場合に、即、燃料の供給を停止できるようにしても良い。このようなものに限らず、あらゆるフェイルセーフ機能を本願に適用することが可能である。

【0033】

次に、本発明の第2実施例のSOFCを説明する。図4は、燃料電池セルを複数スタックしたSOFCに、本発明のシール手段を適用した例を説明するための模式的な断面図である。図中、図2と同一の符号を付した部分は同一機能部分を表わしている。空気領域10と燃料電池セルと燃料領域11とが1ユニットとして燃料電池を構成し、これがセパレータ15を介して積層されている。このようなスタック型のSOFCであっても、空気領域と燃料領域との間、即ち、燃料電池セルの端部を不活性ガスによりシールすることが可能である。さらに、セパレータ15と燃料管4又はセルカバー6とは、完全に固着していても良いが、固着しない場合には、燃料電池セルの部分と同様に、セパレータの端部をシールするようにしても良い。この場合も燃料電池セルと同様に、セパレータ15の端部にシール領域を設け、そこに不燃性ガスを供給するための不燃性ガス供給口を設ければ良い。

【0034】

なお、本発明の固体酸化物形燃料電池及びそのシール方法は、上述の図示例にのみ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変更を加え得ることは勿論である。例えば、円筒型の燃料電池セルの場合では、これを保持する仕切り板との間に本発明のシール手段を設ければ良い。即ち、仕切り板内部に不燃性ガス供給口を設け、燃料電池セルと仕切り板の境界部分にシール領域を設ければ良い。さらに、燃料電池セルがセラミックシール材等で燃料管等に完全に固着されたものであっても、漏れ防止のフェイルセーフ手段として本願のシール手段を設けることも勿論可能である。

【図面の簡単な説明】

【0035】

【図1】図1は、従来一般的なSOFCの燃料電池セル部のシール方法を説明するための模式的な断面図である。

【図2】図2は、本発明の第1実施例のSOFCの燃料電池セル部のシール方法を説明するための模式的な断面図である。

【図3】図3は、本発明の第1実施例のSOFCの燃料電池セル部のシール方法を説明するための模式的な斜視図である。

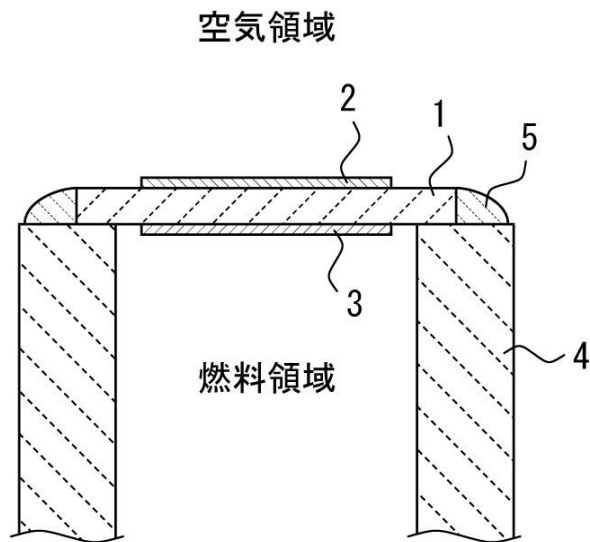
【図4】図4は、本発明の第2実施例のSOFCのスタック型の燃料電池セル部のシール方法を説明するための模式的な断面図である。

【符号の説明】

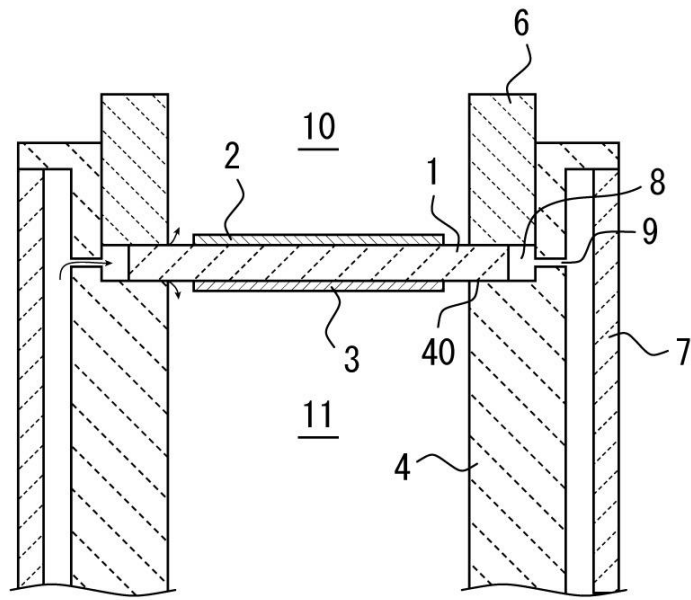
【0036】

- 1 固体電解質
- 2 空気極
- 3 燃料極
- 4 燃料管
- 5 シール材
- 6 セルカバー
- 7 シール用ガス管
- 8 シール領域
- 9 不燃性ガス供給口
- 10 空気領域
- 11 燃料領域
- 15 セパレータ
- 40 支持部

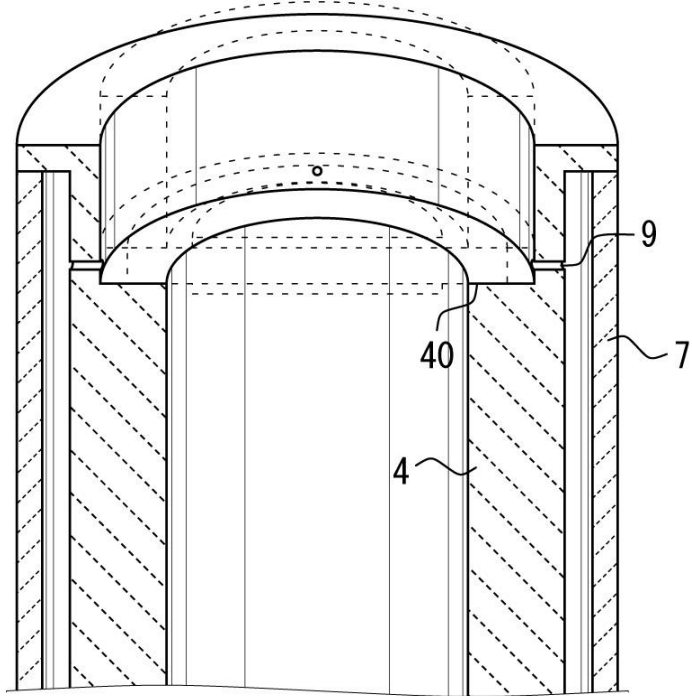
【図1】



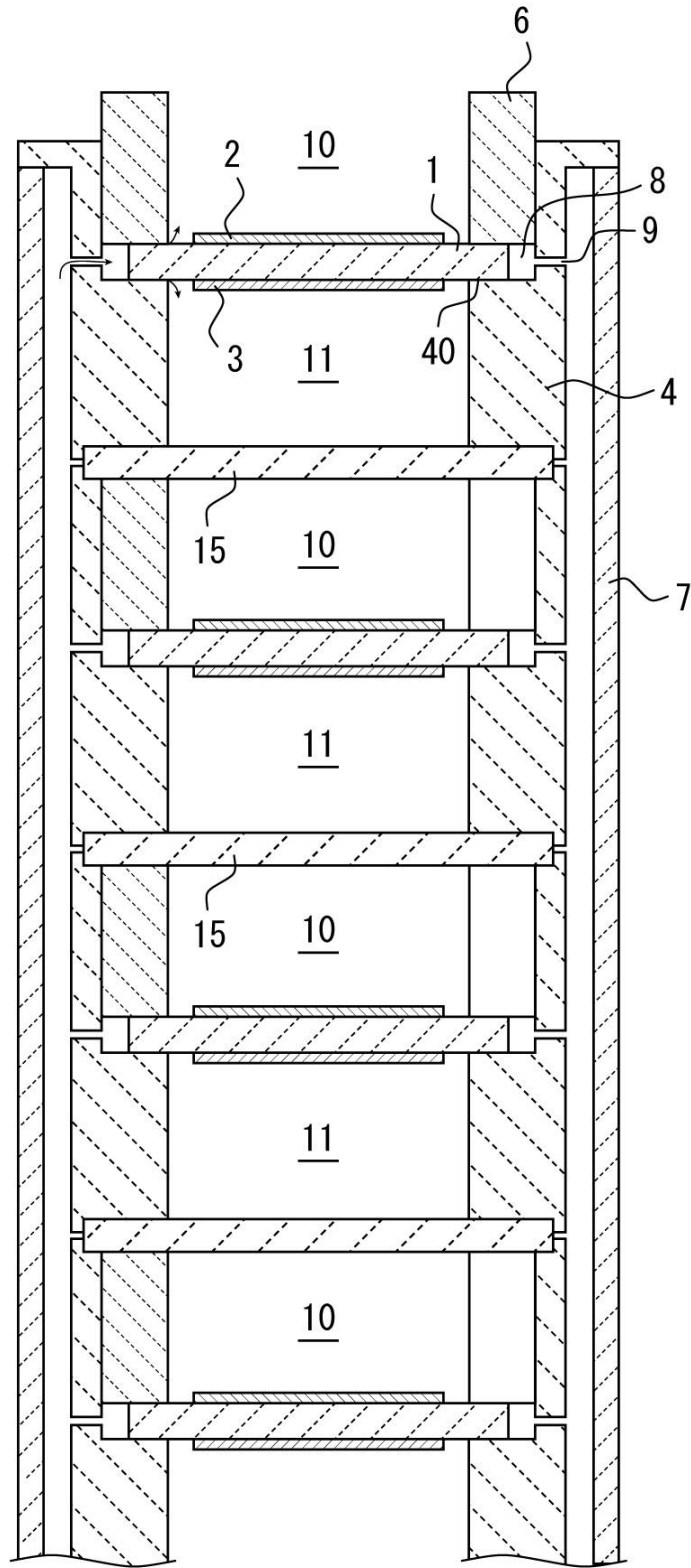
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

- (56)参考文献 特許第3102052(JP, B2)
実開昭63-125369(JP, U)
特開平06-231785(JP, A)
特開平08-148168(JP, A)
特開2002-298873(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 8/02

H01M 8/12

H01M 8/04