

(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2016-12565  
(P2016-12565A)

(43) 公開日 平成28年1月21日(2016.1.21)

| (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           | 5G307 |  |
| HO 1 M       | 8/12   | (2016.01) | HO 1 M  | 8/12  |  |             | 5H026 |  |
| HO 1 B       | 5/00   | (2006.01) | HO 1 B  | 5/00  |  |             |       |  |
| C 2 2 C      | 38/00  | (2006.01) | C 2 2 C | 38/00 |  | 3 O 2 Z     |       |  |
| C 2 2 C      | 19/05  | (2006.01) | C 2 2 C | 19/05 |  | J           |       |  |

審査請求 有 請求項の数 9 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2015-161667 (P2015-161667)  
 (22) 出願日 平成27年8月19日 (2015. 8. 19)  
 (62) 分割の表示 特願2014-515688 (P2014-515688) の分割  
 原出願日 平成25年5月17日 (2013. 5. 17)  
 (31) 優先権主張番号 特願2012-113501 (P2012-113501)  
 (32) 優先日 平成24年5月17日 (2012. 5. 17)  
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 000006633  
 京セラ株式会社  
 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地  
 (72) 発明者 東 昌彦  
 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地  
 京セラ株式会社内  
 Fターム(参考) 5G307 AA02  
 5H026 AA06 CC06 CV02 CX10 EE02  
 EE08 HH03

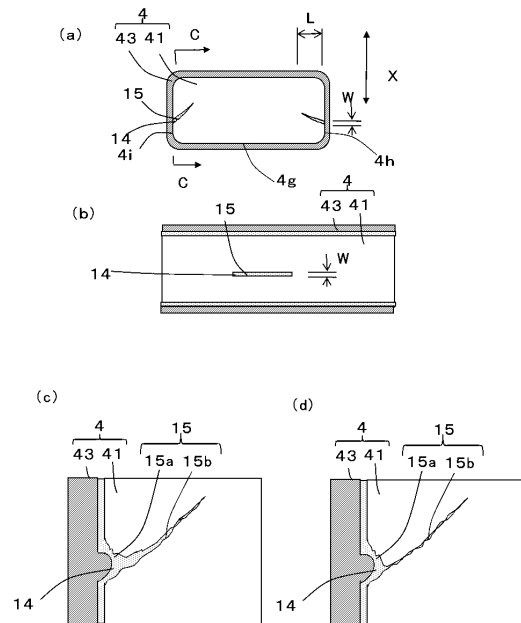
(54) 【発明の名称】 導電部材およびセルスタックならびにモジュール、モジュール収容装置

(57) 【要約】

【課題】 導電基体の凹溝を被覆層で被覆できる導電部材およびセルスタックならびに電気化学モジュール、電気化学装置を提供する。

【解決手段】 Crを含有する合金からなる導電基体41と、該導電基体41の表面に酸化クロム14を介して被覆された被覆層43とを含み、導電基体41は表面から内部に向けて延びる凹溝15を有し、該凹溝15の内部に酸化クロム14が埋まっており、凹溝15内に埋まっている酸化クロム14の表面が被覆層43で被覆されている。

【選択図】 図4



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

C r を含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、前記導電基体は表面から内部に向けて延びる凹溝を有し、該凹溝の内部に前記酸化クロムが埋まっており、前記凹溝内に埋まっている前記酸化クロムの表面が前記被覆層で被覆されていることを特徴とする導電部材。

**【請求項 2】**

前記導電基体を断面視したときに、前記導電基体の表面側に存在する凹部と、該凹部から前記導電基体の内部に向けて線状に延びる亀裂とを具備することを特徴とする請求項 1 に記載の導電部材。

10

**【請求項 3】**

前記凹部内に埋まっている前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでいることを特徴とする請求項 2 に記載の導電部材。

**【請求項 4】**

前記導電基体を断面視したときに、前記酸化クロムは、前記導電基体の表面側の凹部内に存在するとともに、該凹部から前記導電基体の内部に向けて線状に点在しており、前記凹部内に埋まっている前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでいることを特徴とする請求項 1 に記載の導電部材。

20

**【請求項 5】**

前記導電基体の表面から 20 μ m 以上内部の前記凹溝内には、前記被覆層を構成する材料が存在しないことを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の導電部材。

**【請求項 6】**

複数の電気化学セルを、請求項 1 乃至 5 のうち何れかに記載の導電部材により電氣的に接続してなることを特徴とするセルスタック。

**【請求項 7】**

請求項 6 に記載のセルスタックを、収納容器内に収納してなることを特徴とする電気化学モジュール。

**【請求項 8】**

請求項 7 に記載の電気化学モジュールと、該電気化学モジュールを作動させるための補機とを、外装ケース内に収納してなることを特徴とする電気化学装置。

30

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、導電基体の表面が被覆層で被覆された導電部材およびセルスタックならびに電気化学モジュール、電気化学装置に関する。

**【背景技術】****【0002】**

近年、次世代エネルギーとして、燃料ガス（水素含有ガス）と酸素含有ガス（空気等）とを用いて、例えば、600～1000 の高温下で発電する固体酸化物形の燃料電池セルが知られている。そして、この燃料電池セルが集電部材を介して複数個電氣的に直列に接続してなるセルスタックが知られている（例えば、特許文献 1 参照）。

40

**【0003】**

この特許文献 1 では、集電部材として耐熱性が必要であるため、C r を含有する合金からなる集電基板の表面を、C r の拡散を低減する被覆層で被覆したものが使用されている。集電基板はプレス加工による剪断力で所定形状に切断等され、加工される。この後に、集電基板の表面に、ディッピングやスパッタリング法等により被覆層が被覆され、これにより集電部材が構成されている。

**【先行技術文献】**

50

## 【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2005-339904号公報

## 【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、従来、集電基板をプレス加工する際に、集電基板に生じる剪断力で、集電基板の側面から内部に向けて延びる凹溝（亀裂）が生じる場合がある。この凹溝の開口は大きく、かつ深いことに起因し、凹溝の内面全体に被覆層を形成することは困難であったため、集電基板の表面の被覆層に凹溝に基づく開口部が存在しており、この被覆層の開口部を起点として集電基板が酸化していき、耐熱性が低下していくおそれがあった。

10

【0006】

本発明は、導電基体の凹溝を被覆層で被覆できる集電部材およびセルスタックならびに電気化学モジュール、電気化学装置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】

【0007】

本発明の導電部材は、Crを含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、前記導電基体は表面から内部に向けて延びる凹溝を有し、該凹溝の内部に前記酸化クロムが埋まっており、前記凹溝内に埋まっている前記酸化クロムの表面が前記被覆層で被覆されていることを特徴とする。

20

【0008】

本発明のセルスタックは、複数の電気化学セルを、上記導電部材により電氣的に接続してなることを特徴とする。

【0009】

また、本発明の電気化学モジュールは、上記セルスタックを、収納容器内に収納してなることを特徴とする。

【0010】

さらに、本発明の電気化学装置は、上記電気化学モジュールと、該電気化学モジュールを作動させるための補機とを、外装ケース内に収納してなることを特徴とする。

【発明の効果】

30

【0011】

本発明の導電部材によれば、導電基体の凹溝の内部は酸化クロムで埋まっており、この凹溝内に埋まっている酸化クロムの表面および導電基体の表面が被覆層で被覆されている。これにより、導電基体の凹溝を被覆層で覆うことができ、凹溝からの耐熱性の低下を抑制することができる。従って、このような導電部材をセルスタック、電気化学モジュールおよび電気化学装置に用いることにより、長期信頼性を向上することができる。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】セルスタック装置を示す図で、(a)は側面図、(b)は(a)の一部を拡大して示す断面図である。

40

【図2】図1の燃料電池用集電部材を抜粋して示す斜視図である。

【図3】(a)は図2に示す燃料電池用集電部材のA-A線から見た側面図、(b)は図2に示す燃料電池用集電部材のB-B線断面図である。

【図4】(a)は図3(b)に示す燃料電池用集電部材の集電片を拡大して示す拡大断面図、(b)は(a)のC-C線断面図、(c)は(a)の凹溝部分を拡大して示す拡大断面図、(d)は(c)よりもプレス圧を高くして、凹溝の厚さを狭くした場合の拡大断面図である。

【図5】燃料電池用集電部材の製造工程の前半を示す説明図である。

【図6】燃料電池用集電部材の製造工程の後半を示す説明図である。

【図7】図1に示すセルスタック装置における燃料電池セルと燃料電池用集電部材との接

50

合状態を示す縦断面図である。

【図 8】図 1 に示すセルスタック装置を収納容器に収納してなる燃料電池モジュールを分解して示す外観斜視図である。

【図 9】図 8 に示す燃料電池モジュールを外装ケースに収納してなる燃料電池装置を示す斜視図である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

先ず、導電部材として燃料電池用集電部材を備えてなるセルスタック装置について図 1 を用いて説明する。セルスタック装置 1 は、固体酸化物形の燃料電池セル 3 を有している。この燃料電池セル 3 は、内部にガス流路 12 を有し、一对の対向する主面をもつ全体的に見て柱状の導電性支持体 7 と、この導電性支持体 7 の一方の主面上に内側電極層である燃料極層 8 と、固体電解質層 9 と、外側電極層である酸素極層 10 とをこの順に配置してなる発電部を備えている。導電性支持体 7 の他方の主面には、インターコネクタ 11 を配置し、柱状（中空平板状）の燃料電池セル 3 が構成されている。

10

【0014】

そして、これらの燃料電池セル 3 の複数個を 1 列に配列し、隣接する燃料電池セル 3 間に燃料電池用集電部材（導電部材）4（以下、単に集電部材 4 という）を配置することで、燃料電池セル 3 同士を電氣的に直列に接続してなるセルスタック 2 が構成されている。

【0015】

燃料電池セル 3 と集電部材 4 とは、詳しくは後述するが、導電性接合材 13 を介して接合されており、それにより、複数個の燃料電池セル 3 を、集電部材 4 を介して電氣的および機械的に接合して、セルスタック 2 を構成している。

20

【0016】

また、インターコネクタ 11 の外面には P 型半導体層（図示せず）を設けることもできる。集電部材 4 を、P 型半導体層を介してインターコネクタ 11 に接続させることより、両者の接触がオーム接触となって電位降下を少なくすることができる。この P 型半導体層は、酸素極層 10 の外面にも設けてもよい。

【0017】

セルスタック 2 を構成する各燃料電池セル 3 の下端部は、ガスタンク 6 に、ガラス等のシール材（図示せず）により固定されており、これにより、ガスタンク 6 の燃料ガスを、燃料電池セル 3 の内部に設けられたガス流路 12 を介して燃料電池セル 3 の燃料極層 8 に供給することができる。

30

【0018】

図 1 に示すセルスタック装置 1 においては、燃料電池セル 3 のガス流路 12 の内部を燃料ガスとして水素含有ガスが流れるとともに、燃料電池セル 3 の外側、特に燃料電池セル 3 の間に配置された集電部材 4 の内部空間を酸素含有ガス（空気）が流れる構成となる。それにより、燃料極層 8 にガスタンク 6 から燃料ガスが供給され、酸素極層 10 に酸素含有ガスが供給されることで、燃料電池セル 3 の発電が行なわれる。

【0019】

セルスタック装置 1 は、燃料電池セル 3 の配列方向 x の両端から、集電部材 4 を介してセルスタック 2 を挟持するように、弾性変形可能な導電性の挟持部材 5 を配置して構成され、この挟持部材 5 の下端部は、ガスタンク 6 に固定されている。挟持部材 5 は、セルスタック 2 の両端に位置するように設けられた平板部 5a と、燃料電池セル 3 の配列方向 x に沿って外側に向けて延びた形状で、セルスタック 2（燃料電池セル 3）の発電により生じる電流を引き出すための電流引出部 5b とを有している。

40

【0020】

以下に、図 1 の燃料電池セル 3 を構成する各部材について説明する。

【0021】

燃料極層 8 は、一般的に公知のものを使用することができ、多孔質の導電性セラミックス、例えば希土類元素酸化物が固溶している  $ZrO_2$ （安定化ジルコニアと称する）と N

50

i および / または  $\text{NiO}$  とで構成することができる。

【0022】

固体電解質層9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、燃料ガスと酸素含有ガスとのリークを防止するためにガス遮断性を有することが必要とされ、3～15モル%の希土類元素（希土類元素酸化物）が固溶した $\text{ZrO}_2$ で構成される。なお、上記特性を有する限りにおいては、他の材料等を用いて構成してもよい。

【0023】

酸素極層10は、一般的に用いられるものであれば特に制限はなく、例えば、いわゆる $\text{ABO}_3$ 型のペロブスカイト型複合酸化物からなる導電性セラミックスで構成することができる。酸素極層10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20%以上、特に30～50%の範囲とすることができる。酸素極層10としては、例えば、Bサイトに $\text{Mn}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Co}$ などが存在するランタンマンガンナイト( $\text{LaSrMnO}_3$ )、ランタンフェライト( $\text{LaSrFeO}_3$ )、ランタンコバルタイト( $\text{LaSrCoO}_3$ )などの少なくとも一種を用いることができる。

10

【0024】

インターコネクタ11は、導電性セラミックスで構成することができるが、燃料ガス（水素含有ガス）および酸素含有ガス（空気等）と接触するため、耐還元性及び耐酸化性を有することが必要であり、ランタンクロマイト( $\text{LaCrO}_3$ )を用いることができる。インターコネクタ11は、導電性支持体7に存在する複数のガス流路12を流通する燃料ガス、および導電性支持体7の外側を流通する酸素含有ガスのリークを防止するために緻密質でなければならず、93%以上、特に95%以上の相対密度であることが好ましい。

20

【0025】

導電性支持体7としては、燃料ガスを燃料極層8まで透過するためにガス透過性であること、さらには、インターコネクタ11を介して集電するために導電性であることが必要とされる。したがって、導電性支持体7としては、かかる要求を満足する材質を用いる必要があり、例えば導電性セラミックスやサーメット等を用いることができる。

【0026】

なお、燃料電池セル3を作製するにあたり、燃料極層8または固体電解質層9との同時焼成により導電性支持体7を作製する場合においては、鉄属金属成分と特定希土類元素酸化物とから導電性支持体7を構成することができる。また、導電性支持体7は、ガス透過性を備えるために開気孔率が30%以上、特に35～50%の範囲にあるのが好適であり、そしてまたその導電率は50S/cm以上、さらには300S/cm以上、440S/cm以上にしてもよい。

30

【0027】

さらに、P型半導体層（図示せず）としては、遷移金属ペロブスカイト型酸化物からなる層を例示することができる。具体的には、インターコネクタ11を構成するランタンクロマイトよりも電子伝導性が大きいもの、例えば、Bサイトに $\text{Mn}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Co}$ などが存在するランタンマンガンナイト( $\text{LaSrMnO}_3$ )、ランタンフェライト( $\text{LaSrFeO}_3$ )、ランタンコバルタイト( $\text{LaSrCoO}_3$ )などの少なくとも一種からなるP型半導体セラミックスを用いることができる。このようなP型半導体層の厚みは、一般に、30～100 $\mu\text{m}$ の範囲とすることが好ましい。

40

【0028】

導電性接合材13は、燃料電池セル3と集電部材4とを接合するもので、導電性セラミックス等を用いて構成することができる。導電性セラミックスとしては、酸素極層10を構成するものと同様のものを用いることができ、酸素極層10と同じ成分により構成すると、酸素極層10と導電性接合材13との接合強度が高くなるため好ましい。

【0029】

具体的には、 $\text{LaSrCoFeO}_3$ 、 $\text{LaSrMnO}_3$ 、 $\text{LaSrCoO}_3$ 等を用いることができる。これらの材料を単一の材料を用いて作製してもよく、2種以上組み合わせで導電性接合材13を作製してもよい。

50

## 【0030】

また、導電性接合材13は、粒径の異なる異種材料により構成してもよく、粒径の同じ異種材料により構成してもよい。さらに、粒径の異なる同材料により構成してもよく、粒径の同じ同材料により構成してもよい。異なる粒径を用いた場合には微粒の粒径を0.1~0.5 $\mu\text{m}$ 、粗粒の粒径を1.0~3.0 $\mu\text{m}$ とすることが好ましい。また同じ粒径で導電性接合材13を構成する場合は、粒径が0.5~3 $\mu\text{m}$ とすることが好ましい。

## 【0031】

このように、異なる粒径の材料を用いて導電性接合材13を作製することにより、粒径の大きな粗粒が導電性接合材13の強度を向上させるとともに、粒径の小さな微粒が導電性接合材13の焼結性を向上させることができる。

10

## 【0032】

次に、集電部材4について図2~4を用いて説明する。図2に示す集電部材4は、隣接する一方の燃料電池セル3と接合される複数の第1集電片4aと、隣接する他方の燃料電池セル3と接合される複数の第2集電片4bと、複数の第1集電片4aおよび複数の第2集電片4bの一端同士を連結する第1連結部4cと、複数の第1集電片4aおよび複数の第2集電片4bの他端同士を連結する第2連結部4dとを一組のユニットとしている。そして、これらのユニットの複数組が、燃料電池セル3の長手方向に導電性連結片4eにより連結されて構成されている。第1集電片4aおよび第2集電片4bは、燃料電池セル3に接合される部位を示し、これらの部位が燃料電池セル3により電力を取り出す集電部4fとなっている。また、第1集電片4aと第2集電片4bとの間が、酸素含有ガスが通過する空間とされている。

20

## 【0033】

燃料電池セル3において、上述したように、固体電解質層9を介して燃料極層8と、酸素極層10とが対向する部位が発電する部位となる。それゆえ、燃料電池セル3の発電部で発電された電流を効率よく集電するにあたり、集電部材4の燃料電池セル3の長手方向に沿った長さは、燃料電池セル3における酸素極層10の長手方向における長さと同程度以上とすることがよい。集電部材4の構造はこれに限定されるものではない。

## 【0034】

集電部材4は、セルスタック装置1の作動時に高温の酸化雰囲気中に曝されることから、集電基板(導電基板)41の表面全体に被覆層43を形成してなり、これにより、集電部材4の劣化を低減することができる。なお、図2、図3(a)では被覆層43を省略し、図4では、集電基板41の表面全体に被覆層43を形成した状態を示し、集電基板41の断面を示す斜線は省略している。

30

## 【0035】

集電部材4は、耐熱性および高温の酸化性雰囲気中で導電性を有する必要があるため、集電基板41は、例えば合金により作製することができる。特に、集電部材4は、高温の酸化雰囲気中に曝されることから、集電基板41は4~30質量%の割合でCrを含有する合金で構成されている。集電基板41は、例えば、Fe-Cr系の合金やNi-Cr系の合金等により作製できる。集電基板41は高温用(600~1000)の導電基板である。

40

## 【0036】

また、集電基板41のCrが燃料電池セル3に拡散することを低減するために、被覆層43として、Znの酸化物、あるいはLaおよびSrを含有するペロブスカイト型複合酸化物等を用いることができる。被覆層43はCrの拡散を低減できればよく、上記材料以外であっても良い。

## 【0037】

図3に示すように、第1集電片4aおよび第2集電片4bは、燃料電池セル3の配列方向xに対して異なる角度で交差する第1表面4g、燃料電池セル3の配列方向xと平行に形成された第2表面4hおよび第3表面4iを有している。言い換えると、燃料電池セル3と対向する第1表面4gと、第1表面4gの両側に隣り合う第2表面4hおよび第3表

50

面 4 i とを有している。この第 2 表面 4 h および第 3 表面 4 i が、集電基板 4 1 の側面である。

【 0 0 3 8 】

そして、第 1 集電片 4 a および第 2 集電片 4 b の第 2 表面 4 h および第 3 表面 4 i には複数の凹溝 1 5 が形成されており、これらの凹溝 1 5 内には酸化クロム 1 4 が埋まっている。言い換えると、プレス加工時の剪断力で切断され、厚み方向に形成された面（側面）には、亀裂状の凹溝 1 5 が形成されており、これらの凹溝 1 5 内には酸化クロム 1 4 が充填されている。この酸化クロム 1 4 は、集電基板 4 1 の熱処理時に、集電基板 4 1 内部から集電基板 4 1 の凹溝 1 5 の表面に拡散してきた Cr を酸化して形成されている。

【 0 0 3 9 】

凹溝 1 5 は、図 3 ( b )、図 4 ( c ) に示すように、集電基板 4 1 の厚み方向（配列方向 x ）の内壁面が当接するほどほぼ閉じられており、開口しているとしても、厚み W が狭い面状の空間であって、内部が先細り形状に形成され、凹溝 1 5 内には、酸化クロム 1 4 がほぼ充填され凹溝 1 5 が酸化クロム 1 4 でほぼ埋設されている。

【 0 0 4 0 】

図 4 ( c ) で説明すると、凹溝 1 5 は、集電基板 4 1 の厚み方向の断面において（集電基板 4 1 を断面視したとき）、集電基板 4 1 の側面側に形成された厚みが大きい凹部 1 5 a と、該凹部 1 5 a から集電基板 4 1 の内部に向けて線状に伸び、凹部 1 5 a よりも厚みが小さい亀裂 1 5 b とを具備するとともに、凹部 1 5 a 内に埋まっている酸化クロム 1 4 の表面は凹んでおり、この凹んだ部分に、被覆層 4 3 の酸化クロム 1 4 側の面の一部が食い込んでいる。被覆層 4 3 は、凹部 1 5 a 内の酸化クロム 1 4 表面全体を覆っている。

【 0 0 4 1 】

また、酸化クロム 1 4 は、図 4 ( d ) に示すように、対向する凹溝 1 5 の内壁面が当接するほど閉じられた面状の空間内に埋設され、集電基板 4 1 の厚み方向の断面で、複数の酸化クロム 1 4 の塊が線状に並んで点在するように見える場合がある。一つ一つの酸化クロム 1 4 の塊は、集電基板 4 1 の厚み方向の断面で見れば、球状ではなく、楕円状または棒状に見える。

【 0 0 4 2 】

図 4 ( d ) の構造は、プレスによる加圧力を図 4 ( c ) の場合よりも増加することにより達成することができる。凹溝 1 5 内の酸化クロム 1 4 は、集電基板 4 1 の厚み方向の断面において、集電基板 4 1 の側面側に形成された凹部 1 5 a 内に存在するとともに、該凹部 1 5 a から集電基板 4 1 の内部に向けて線状に点在するように構成されている。凹部 1 5 a 内に埋まっている酸化クロム 1 4 の表面は凹んでおり、この凹んだ部分に、被覆層 4 3 の酸化クロム 1 4 側の面の一部が食い込んでいる。被覆層 4 3 は、凹部 1 5 a 内の酸化クロム 1 4 表面全体を覆っている。

【 0 0 4 3 】

集電基板 4 1 の内部に向けて線状に点在するとは、直線状でも曲線状でもよく、また、凹溝 1 5 を構成する内壁面が当接するほどほぼ閉じられており、このほぼ閉じられた部分では、酸化クロム 1 4 が存在しないように見え、酸化クロム 1 4 の塊が点在するように見える。

【 0 0 4 4 】

集電基板 4 1 の側面から 2 0 μ m 以上内部の凹溝 1 5 内には、被覆層 4 3 を構成する材料が配置されていない。すなわち、集電基板 4 1 の側面から 2 0 μ m 以上内部の凹溝 1 5 内には酸化クロム 1 4 が存在しており、被覆層 4 3 は、凹溝 1 5 の凹部 1 5 a 内の酸化クロム 1 4 の表面全体を覆っている。なお、集電基板 4 1 の側面から 2 0 μ m 以上内部とは、集電基板 4 1 の厚み方向の断面において、集電基板 4 1 の凹溝 1 5 の上下の側面間を結ぶ直線から、2 0 μ m 以上内部という意味である。

【 0 0 4 5 】

図 4 では、凹溝 1 5 は、集電基板 4 1 の側面を構成する第 2 表面 4 h、第 3 表面 4 i から、第 1 表面 4 g と反対側に向けて斜めに設けられている。

10

20

30

40

50

## 【0046】

凹溝15は、集電部4fの第2表面4h、第3表面4iから内部に向けて5～30 $\mu$ mの深さ(図4(a)で示すL)で設けられており、凹溝15の凹部15aは閉じられているか、開口しているとしても、1～5 $\mu$ mの厚み(開口幅:図4で示すW)とされている。これにより、後述するように酸化クロム14が充填されやすくなり、集電基板41の凹溝15を被覆層43により被覆することができ、集電基板41の表面全体を被覆層43で隙間無く被覆することが可能となる。これにより、集電部材4の凹溝15からの酸化を抑制し、耐熱性を向上できる。

## 【0047】

集電基板41、酸化クロム14、被覆層43の順に熱膨張係数が小さくなるため、さらに、凹溝15内にも酸化クロム14を構成する材料が存在するため、集電基板41からの被覆層43の剥離を抑制できる。

10

## 【0048】

次に、集電部材4の作製方法について説明する。図5(a)に示すように、下型19a1と上型19b1とを具備したプレス加工機の下型19a1上に、一枚の矩形をした厚み0.1～1mmの板状の集電基板41を載置する。この後、上型19b1を下降させることにより、図5(b)に示すように、集電基板41の幅方向に延びるスリットを形成する。スリットを形成する形状の上型19b1を、スリット部分がくり抜かれた下型19a1の穴内に挿入して、剪断力により集電基板41にスリットを形成する。この際、図5(c)に示すように、剪断力により集電基板41の側面(第1集電片4a、第2集電片4b

20

## 【0049】

そして、図6(d)に示すように、下型19a2と上型19b2とで挟持して、集電基板41の主面側を押圧することにより、図6(e)に示すように、楔状の凹溝15の開口部が狭まり、厚みが小さい亀裂状の凹溝15とできる。すなわち、剪断力により形成された凹溝15は、集電基板41の側面側に厚みがある程度大きい開口である凹部15aと、凹部15aから内部側に向けて厚みが凹部15aよりも小さい裂け目状の亀裂15bとを有することとなる。この際、集電基板41の角部を丸めるような下型19a2と上型19b2を用いて加圧することにより、集電基板41の角部を丸めることができ、この部分に被覆層43を容易に形成できるようになる。

30

## 【0050】

この後、集電基板41を、例えば、大気中500～1000で0.5～5時間熱処理し、集電基板41の表面に層状の酸化クロム14を形成するとともに、図6(f)に示すように、凹溝15の内表面に酸化クロム14を析出させ、凹溝15の内部が酸化クロム14で埋められている。なお、集電基板41の熱処理条件により、凹溝15内における酸化クロム14の充填程度を制御できる。すなわち、凹溝15の寸法が同じなら、熱処理温度を高くすることにより、または熱処理時間を長くすることにより、集電基板41からクロムを集電基板41表面まで拡散させ、酸化クロム14を多く生成でき、凹溝15内に酸化クロム14を充填させることができる。

## 【0051】

また、図6(d)に示す、下型19a2と上型19b2とによる加圧力を調整することで、凹溝15の厚みを調整できる。すなわち、プレス圧を高くすることにより、凹溝15の厚みを狭くでき、凹溝15内を酸化クロム14で埋設し易くでき、例えば、図4(d)に示す構造とすることができる。プレス圧は、例えば、1～100kg/mm<sup>2</sup>とすることができる。

40

## 【0052】

下型19a2と上型19b2とによる加圧力を制御し、熱処理条件を制御することにより、凹溝15内を酸化クロム14で完全に埋設することなく、集電基板41の凹溝15の表面から少し凹むように酸化クロム14を形成することができる。この形態では、被覆層43を構成する材料が酸化クロム14の凹みに配置されており、被覆層43の集電基板4

50



1からの剥離を抑制できる。なお、下型19a2と上型19b2とによる加圧力を制御し、熱処理条件を制御することにより、集電基板41の表面とほぼ同一位置まで酸化クロム14を形成し、あるいは集電基板41の表面から少し飛び出るように酸化クロム14を形成することもできる。

【0053】

この後、集電基板41表面(詳細には、酸化クロム14の表面)、および凹溝15に埋まっている酸化クロム14の表面に、図6(g)に示すように、例えばスパッタリング法により被覆層43を形成することにより集電部材4を構成することができる。

【0054】

凹溝15の開口部が広くて浅い場合には、集電基板41の主面の加圧によっても開口部の厚みはそこまで狭まらないが、開口部が広いため、スパッタリング法等により凹溝15内の酸化クロム14を被覆層43で被覆できる。また、逆に、凹溝15の開口部が広くて深い場合には、凹溝15の内部側はプレスによって厚みが狭められ、酸化クロム14が充填され、凹溝15の開口部は、スパッタリング法等により凹溝15内の酸化クロム14を被覆層43で被覆できる。さらに、凹溝15の開口部が狭い場合には、凹溝15の開口部を被覆層43で被覆できる。

10

【0055】

なお、図5(c)、図6(d)~(g)は断面図であるが、集電基板41、被覆層43における斜線を削除した。また、集電基板41表面全体に酸化クロム14が形成されるが、図6(f)(g)では、凹溝15の酸化クロム14のみ記載している。

20

【0056】

また、図6(d)の工程で、6(e)~(g)に示すように、集電基板41の角部を丸めることができ、集電基板41の全周囲に被覆層を容易に形成できる。

【0057】

次に、集電部材4と燃料電池セル3との導電性接合材13による接合状態について、図7を用いて説明する。

【0058】

図7に示すように集電部材4と燃料電池セル3とは導電性接合材13を介して接合されている。つまり、導電性接合材13により、集電部材4と燃料電池セル3とは電気的および機械的に接続されている。導電性接合材13は、集電部材4の第1表面4g、第2表面4hおよび第3表面4iを覆うように設けられており、第2表面4hおよび第3表面4iに位置する導電性接合材13はそれぞれ接合される燃料電池セル3側の方に多くなるように設けられている。また、集電部材4の全周を被覆することにより、集電部材4を完全に覆うように導電性接合材13を設けてもよい。なお、図7では、被覆層43の記載を省略した。

30

【0059】

すなわち、図7では、導電性接合材13は、燃料電池セル3と集電部材4とを接合するために配置されており、燃料電池セル3の酸素極層10側には、酸素極層10の全面にわたり設けられている。燃料電池セル3のインターコネクタ11側には、導電性接合材13がインターコネクタ11の全面にわたり設けられている。なお、酸素極層10やインターコネクタ11の一部にのみ導電性接合材13を設けて、集電部材4と燃料電池セル3とを接合してもよい。

40

【0060】

次に、セルスタック装置1を収納容器21内に収納してなる燃料電池モジュール20について図8を用いて説明する。

【0061】

図8に示す燃料電池モジュール20は、燃料電池セル3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22をセルスタック2の上方に配置して構成されている。そして、改質器22で生成された燃料ガスは、ガス流通管23を介してガスタンク6に供給され、ガスタンク6を介して燃料電池セ

50

ル 3 の内部に設けられたガス流路 1 2 に供給される。

【 0 0 6 2 】

なお、図 8 においては、収納容器 2 1 の一部（前後面）を取り外し、内部に収納されているセルスタック装置 1 および改質器 2 2 を後方に取り出した状態を示している。ここで、図 8 に示した燃料電池モジュール 2 0 においては、セルスタック装置 1 を、収納容器 2 1 内にスライドして収納することが可能である。

【 0 0 6 3 】

また収納容器 2 1 の内部に設けられた酸素含有ガス導入部材 2 4 は、図 8 においてはガスタンク 6 に並置された一対のセルスタック 2 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 3 の側方を下端部側から上端部側に向かって流れるように、燃料電池セル 3 の下端部側に酸素含有ガスを供給するように構成されている。そして、燃料電池セル 3 のガス流路 1 2 より排出され、発電に使用されなかった余剰の燃料ガス（燃料オフガス）を燃料電池セル 3 の上端部の上方で燃焼させることにより、セルスタック 2 の温度を効果的に上昇させることができ、セルスタック装置 1 の起動を早めることができる。また、燃料電池セル 3 の上端部の上方にて、燃料電池セル 3 のガス流路 1 2 から排出される発電に使用されなかった燃料ガスを燃焼させることにより、セルスタック 2 の上方に配置された改質器 2 2 を温めることができる。それにより、改質器 2 2 で効率よく改質反応を行うことができる。

【 0 0 6 4 】

次に、燃料電池モジュール 2 0 と、燃料電池モジュール 2 0 を作動させるための補機（図示せず）とを外装ケースに収納してなる燃料電池装置 2 5 について図 9 を用いて説明する。

【 0 0 6 5 】

図 9 に示す燃料電池装置 2 5 は、支柱 2 6 と外装板 2 7 から構成される外装ケース内を仕切板 2 8 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 2 0 を収納するモジュール収納室 2 9 とし、下方側を燃料電池モジュール 2 0 を作動させるための補機を収納する補機収納室 3 0 として構成されている。なお、補機収納室 3 0 に収納する補機は省略している。

【 0 0 6 6 】

また、仕切板 2 8 には、補機収納室 3 0 の空気をモジュール収納室 2 9 側に流すための空気流通口 3 1 が設けられており、モジュール収納室 2 9 を構成する外装板 2 7 の一部に、モジュール収納室 2 9 内の空気を排気するための排気口 3 2 が設けられている。

【 0 0 6 7 】

以上、本発明について詳細に説明したが、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。

【 0 0 6 8 】

例えば、上記形態では、セルスタック装置 1 の燃料電池用集電部材 4 を本発明の導電部材として説明したが、本発明の導電部材は燃料電池用に限定されるものではなく、高温の酸化性雰囲気で使用される用途、例えば酸素センサ用の導電部材に用いることができる。

【 0 0 6 9 】

また、上記形態では燃料電池セルおよび燃料電池モジュールならびに燃料電池装置について説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、電解セルに水蒸気と電圧とを付与して水蒸気（水）を電気分解することにより、水素と酸素（ $O_2$ ）を生成する電解セル（SOEC）およびこの電解セルを備える電解モジュールおよび電解装置にも適用することができる。

【 符号の説明 】

【 0 0 7 0 】

- 1：セルスタック装置
- 2：セルスタック

10

20

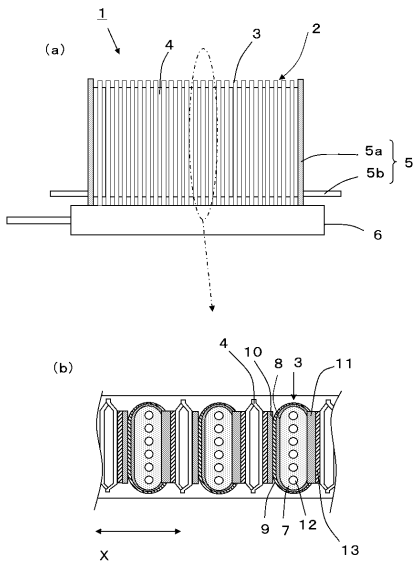
30

40

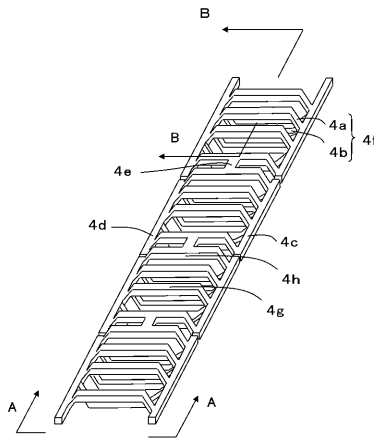
50

- 3 : 燃料電池セル
- 4 : 集電部材
- 6 : ガスタンク
- 13 : 導電性接合材
- 14 : 酸化クロム
- 15 : 凹溝
- 15 a : 凹部
- 15 b : 亀裂
- 20 : 燃料電池モジュール
- 21 : 収納容器
- 25 : 燃料電池装置
- 41 : 集電基板
- 43 : 被覆層

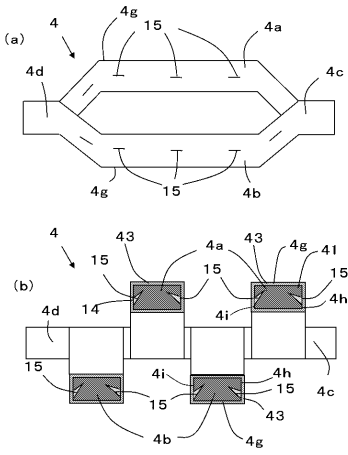
【図1】



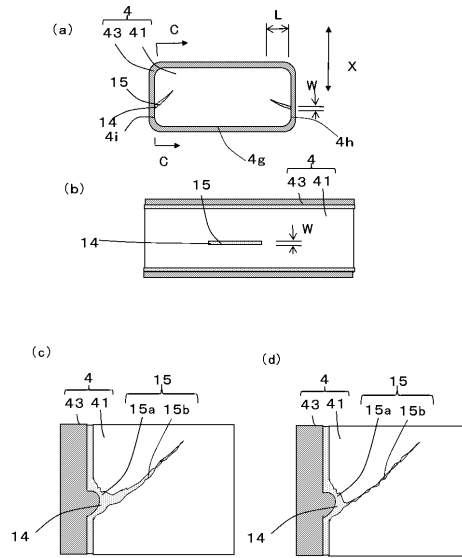
【図2】



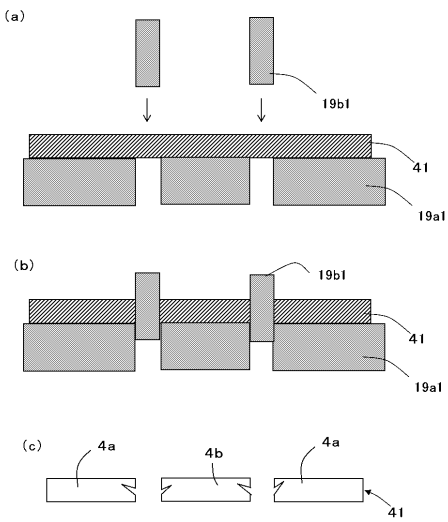
【 図 3 】



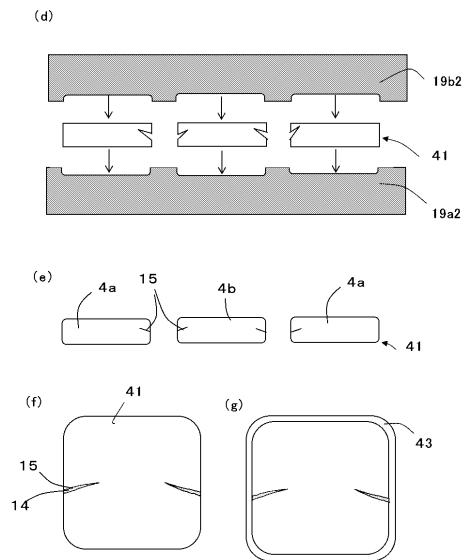
【 図 4 】



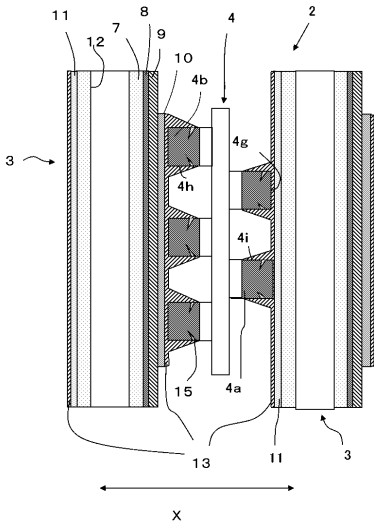
【 図 5 】



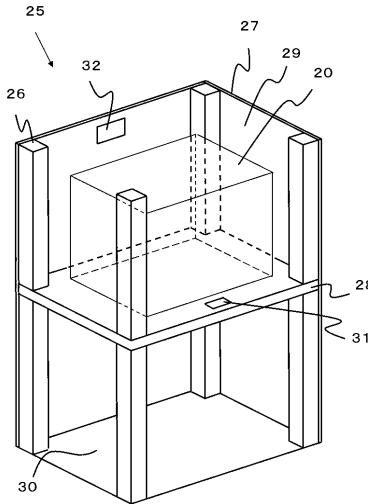
【 図 6 】



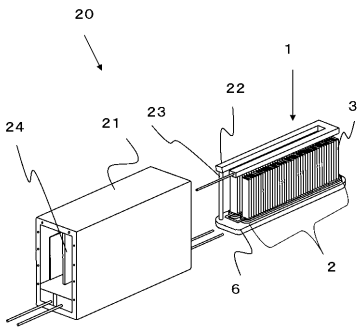
【図7】



【図9】



【図8】



【手続補正書】

【提出日】平成27年8月20日(2015.8.20)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

Crを含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、前記導電基体は表面から内部に向けて延びる凹溝を有し、該凹溝の内部に前記酸化クロムが埋まっており、前記凹溝内に埋まっている前記酸化クロムの表面が前記被覆層で被覆されており、前記凹溝は前記導電基体の表面に対して斜めに延びていることを特徴とする導電部材。

【請求項2】

前記導電基体を断面視したときに、前記導電基体の表面側に存在する凹部と、該凹部から前記導電基体の内部に向けて線状に延びる亀裂とを具備することを特徴とする請求項1に記載の導電部材。

【請求項3】

前記凹部に埋まっている前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでいることを特徴とする請求項2に記載の導電部材。

【請求項4】

前記導電基体を断面視したときに、前記酸化クロムは、前記導電基体の表面側の凹部に存在するとともに、該凹部から前記導電基体の内部に向けて線状に点在しており、前記

凹部内に埋まっている前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでいることを特徴とする請求項 1 に記載の導電部材。

【請求項 5】

前記導電基体の表面から 20 μm 以上内部の前記凹溝内には、前記被覆層を構成する材料が存在しないことを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の導電部材。

【請求項 6】

Cr を含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、

前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでおり、

前記酸化クロムの前記凹んだ部分と前記被覆層との境界は前記導電基体の表面より内部側に位置することを特徴とする導電部材。

【請求項 7】

複数のセルを、請求項 1 乃至 6 のうち何れかに記載の導電部材により電氣的に接続してなることを特徴とするセルスタック。

【請求項 8】

請求項 7 に記載のセルスタックを、収納容器内に収納してなることを特徴とするモジュール。

【請求項 9】

請求項 8 に記載のモジュールと、該モジュールを作動させるための補機とを、外装ケース内に収納してなることを特徴とするモジュール収容装置。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0001】

本発明は、導電基体の表面が被覆層で被覆された導電部材およびセルスタックならびにモジュール、モジュール収容装置に関する。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0006】

本発明は、導電基体の凹溝を被覆層で被覆できる集電部材およびセルスタックならびにモジュール、モジュール収容装置を提供することを目的とする。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0007】

本発明の導電部材は、Cr を含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、前記導電基体は表面から内部に向けて延びる凹溝を有し、該凹溝の内部に前記酸化クロムが埋まっており、前記凹溝内に埋まっている前記酸化クロムの表面が前記被覆層で被覆されており、前記凹溝は前記導電基体の表面に対して斜めに延びていることを特徴とする。

本発明の導電部材は、Cr を含有する合金からなる導電基体と、該導電基体の表面に酸

化クロムを介して被覆された被覆層とを含み、前記酸化クロムは表面が凹んでおり、該凹んだ部分に前記被覆層の前記酸化クロム側の面の一部が食い込んでおり、前記酸化クロムの前記凹んだ部分と前記被覆層との境界は前記導電基体の表面より内部側に位置することを特徴とする。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

本発明のセルスタックは、複数のセルを、上記導電部材により電氣的に接続してなることを特徴とする。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0009】

また、本発明のモジュールは、上記セルスタックを、収納容器内に収納してなることを特徴とする。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0010】

さらに、本発明のモジュール収容装置は、上記モジュールと、該モジュールを作動させるための補機とを、外装ケース内に収納してなることを特徴とする。

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0011】

本発明の導電部材によれば、導電基体の凹溝の内部は酸化クロムで埋まっており、この凹溝内に埋まっている酸化クロムの表面および導電基体の表面が被覆層で被覆されている。これにより、導電基体の凹溝を被覆層で覆うことができ、凹溝からの耐熱性の低下を抑制することができる。従って、このような導電部材をセルスタック、モジュールおよびモジュール収容装置に用いることにより、長期信頼性を向上することができる。