



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201251189 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 12 月 16 日

---

(21)申請案號：101110242

(22)申請日：中華民國 101 (2012) 年 03 月 23 日

(51)Int. Cl. : *H01M8/00 (2006.01)*

*H01M8/10 (2006.01)*

(30)優先權：2011/03/25 美國

61/467,444

(71)申請人：博隆能源股份有限公司(美國) BLOOM ENERGY CORPORATION (US)  
美國

(72)發明人：荷魯 雷恩 HALLUM, RYAN (US)；賈斯達 麥可 GASDA, MICHAEL (US)；波  
勒汀 艾恩 BALLANTINE, ARNE (US)；歐思瓦 拉維 OSWAL, RAVI (US)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：52 項 圖式數：3 共 35 頁

---

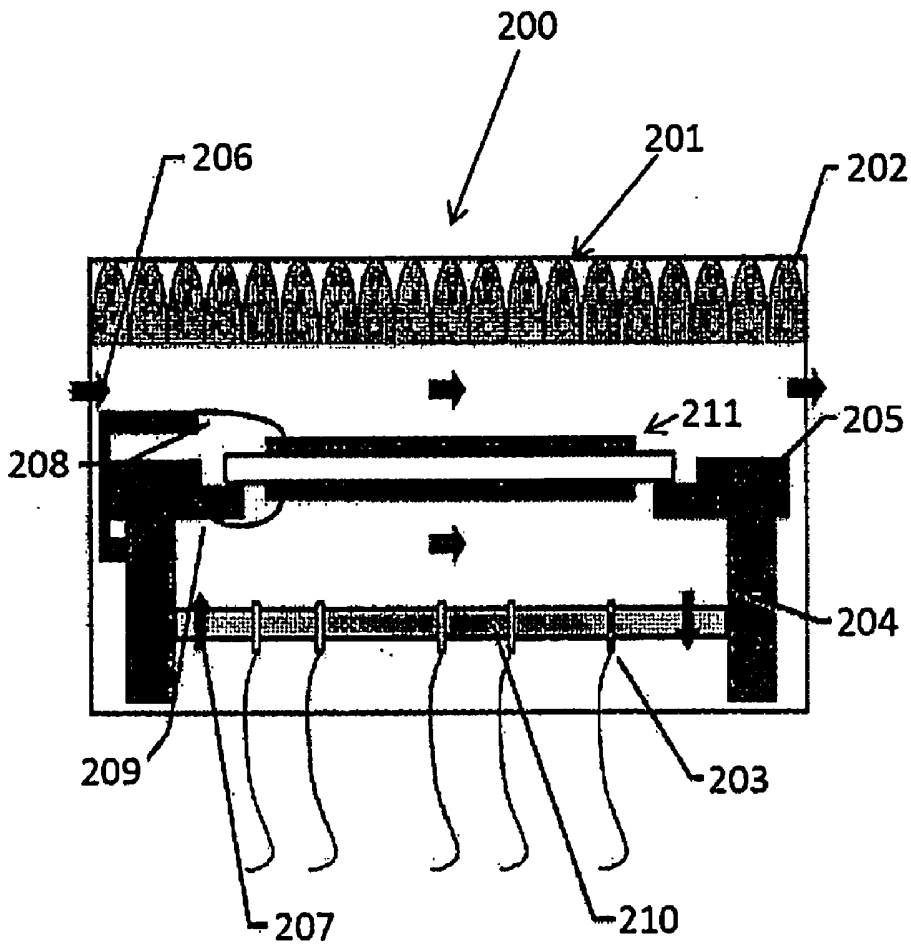
(54)名稱

用於固態氧化物燃料電池(SOFC)製造之快速熱處理

RAPID THERMAL PROCESSING FOR SOFC MANUFACTURING

(57)摘要

本發明係關於熱處理固態氧化物燃料電池(SOFC)系統中之至少一個組件之方法。該方法包括使用快速熱處理加熱該至少一個組件，其中該快速熱處理以約 50°C/sec 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。



- 200：快速熱處理裝置
- 201：室
- 202：輻射熱源
- 203：溫度量測器件
- 204：支撐結構
- 205：固定結構
- 206：正面清除
- 207：背面清除
- 208：上部探針
- 209：下部探針
- 210：反射板
- 211：固態氧化物燃料電池系統組件



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201251189 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 12 月 16 日

---

(21)申請案號：101110242

(22)申請日：中華民國 101 (2012) 年 03 月 23 日

(51)Int. Cl. : *H01M8/00 (2006.01)*

*H01M8/10 (2006.01)*

(30)優先權：2011/03/25 美國

61/467,444

(71)申請人：博隆能源股份有限公司(美國) BLOOM ENERGY CORPORATION (US)  
美國

(72)發明人：荷魯 雷恩 HALLUM, RYAN (US)；賈斯達 麥可 GASDA, MICHAEL (US)；波  
勒汀 艾恩 BALLANTINE, ARNE (US)；歐思瓦 拉維 OSWAL, RAVI (US)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：52 項 圖式數：3 共 35 頁

---

(54)名稱

用於固態氧化物燃料電池(SOFC)製造之快速熱處理

RAPID THERMAL PROCESSING FOR SOFC MANUFACTURING

(57)摘要

本發明係關於熱處理固態氧化物燃料電池(SOFC)系統中之至少一個組件之方法。該方法包括使用快速熱處理加熱該至少一個組件，其中該快速熱處理以約 50°C/sec 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。

## 六、發明說明：

### 【發明所屬之技術領域】

本發明概言之係關於固態氧化物燃料電池(SOFC)系統組件且更特定而言係關於快速熱處理(RTP)在製造SOFC系統組件中之用途。

本申請案主張於2011年3月25日申請之美國臨時申請案61/467,444之優先權，申請案61/467,444全文以引用方式併入本文中。

### 【先前技術】

在高溫燃料電池系統(例如固態氧化物燃料電池(SOFC)系統)中，氧化流穿過燃料電池之陰極側，而燃料流穿過燃料電池之陽極側。氧化流通常係空氣，而燃料流可為氫及/或烴燃料，例如甲烷、天然氣、戊烷、乙醇或甲醇。以介於750°C與950°C之間之典型溫度操作之燃料電池能夠使帶負電氧離子自陰極流動流(flow stream)傳輸至陽極流動流，其中該離子與游離氫或烴分子中之氫組合以形成水蒸氣及/或與一氧化碳組合以形成二氧化碳。來自帶負電離子之過剩電子被送回到燃料電池之陰極側而穿過在陽極與陰極之間完成之電路，從而使得電流穿過該電路。

### 【發明內容】

一實施例係關於熱處理固態氧化物燃料電池(SOFC)系統中之至少一個組件之方法。該方法包括使用快速熱處理加熱該組件，其中該快速熱處理以約100°C/min或更大之速率加熱該組件之至少一部分。

另一實施例係關於用於提供至少一個固態氧化物燃料電池系統組件之快速熱處理之裝置。該裝置包括室，其經組態以固持至少一個組件；及至少一個熱源，其經組態以約 $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 或更大之速率加熱該至少一個組件之至少一部分。該裝置亦在該室中包括開口，其經組態以允許至少一個處理器件進入該室，該至少一個處理器件經組態以探測或操縱該至少一個組件。

### 【實施方式】

本發明者已認識到，SOFC系統組件之快速熱處理(RTP)可提供優於習用熱處理(例如爐退火)之優點。快速熱處理係通常使用熱板、鎢-鹵素燈、弧光燈、閃光燈、雷射或脈衝電子束在數秒內將物件快速地加熱至高溫之製程。快速熱處理可以約 $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 或更大之速率加熱該物件之至少一部分。舉例而言，該速率可超過 $60^{\circ}\text{C}/\text{min}$ (即， $1^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ )、 $5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 、 $25^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 、 $50^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 、 $100^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 、 $250^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 、 $500^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 或 $1000^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ ，例如 $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 至 $1500^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 。

RTP之優點可包括(例如)縮短循環次數、降低設備成本及減少能量使用。此外，RTP可使用單件流來實施，該單件流允許較低等級之半成品(WIP)且通常允許更快地彌補缺陷，從而使得碎片減少。相反，爐退火通常要求對一批次之大量系統組件實施退火以達成可接受之生產量。因此，不必分批次處理試圖改良爐之總設備效率(OEE)。即，RTP使得可用單獨熱製程來熱處理每一不同部分。

RTP亦可使得能夠以習用熱處理方法無法達成之方式處理燃料電池。另一優點可為能夠使製造線之保證點進一步向上遊移動。此進而可使得製程更一致。使用RTP亦可能夠更快速實施研究及研發。

出於本申請案之目的，「摻雜」意指將元素(例如，鎳、鏷、鋨及諸如此類)或化合物(例如，二氧化鈾、氧化釷)添加至SOFC組件之基質中。該元素或化合物可為帶電或中性。如下文更詳細論述，可將摻雜劑添加至SOFC組件之表面並利用快速熱退火製程使其熱擴散至SOFC組件中。

圖1圖解說明一實施例之SOFC堆疊，其中每一SOFC 1皆包含陰極電極7、固態氧化物電解質5及陽極電極3。氣流隔離件9(在平面堆疊中稱作氣流隔板)將該堆疊中之個別電池隔開，其在肋10之間含有氣流通路或通道8。在一實施例中，陽極電極3可包含鎳金屬陶瓷材料。即，含有陶瓷相及含鎳相之混合相材料。舉例而言，陽極電極3可包含經鎳穩定之氧化鋯金屬陶瓷，例如經鎳-氧化釷穩定之氧化鋯(YSZ)、經鎳-氧化釷穩定之氧化鋯(SSZ)；或經鎳摻雜之二氧化鈾金屬陶瓷，例如經鎳-氧化釷摻雜之二氧化鈾(GDC)金屬陶瓷或經鎳-氧化釷摻雜之二氧化鈾(SDC)金屬陶瓷。可使用之其他金屬陶瓷材料揭示於美國專利第11/785,034號及第11/907,204號中，其全文此處以引用方式併入本文中。

陰極電極7包含導電材料，例如導電鈣鈦礦材料。陰極電極7可包含(例如)亞錳酸鏷鋨(LSM)。LSM因其與經摻雜氧化鋯電解質相容且具有(CTE)與SSZ或YSZ類似之熱膨脹

係數而係有利的。另外，LSM與YSZ具有低程度化學反應性，從而延長材料壽命。亦可使用包含LSM及YSZ之複合陰極。替代陰極材料包括混合離子/電子導電(MIEC)陶瓷，例如鈣鈦礦LSCo或LSCr或貴金屬材料(例如Pt)。

固態氧化物電解質5可包含諸如經氧化釷穩定之氧化鋯(YSZ)(例如8%氧化釷形式)、經氧化釷穩定之氧化鋯(SSZ)(例如9 mol%  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ -9SSZ)及經釷摻雜之二氧化鈾(GDC)等材料。可在固態氧化物電解質5與陰極電極7及/或陽極電極3之間提供一種或更多種接觸材料。

氣流隔離件互連9可為位於燃料電池堆疊中之個別電池之間之金屬板。氣流隔離件互連9串聯連接堆疊中之每一SOFC，以使得可將每一電池產生之電組合。其亦提供流通路8使燃料及氧化劑流動穿過該流通路。由於氣流隔離件9係在高溫下暴露於電池之氧化側及還原側二者，故氣流隔離件9較佳包含在高溫下穩定之材料。在一實施例中，氣流隔離件9包含基於鉻、鎳或鋼之合金，例如含有4-6 wt% Fe及0-1 wt% Y之鉻合金。

圖2圖解說明可用於快速熱處理本發明實施例之SOFC系統組件211之快速熱處理裝置200。SOFC系統組件211包括SOFC 1、密封及互連9。快速熱處理裝置200包括室201，SOFC組件211係放置於該室中。較佳地，快速熱處理裝置200之室201包含隔熱材料。快速熱處理裝置200通常包括眾多輻射熱源202，然而，最少可使用一個輻射熱源202。輻射熱源202可包括但不限於燈、雷射及脈衝電子束。

如圖2中所圖解說明，輻射熱源202係位於室201之頂壁上。在替代實施例中，輻射熱源202可位於底壁、一或多個側壁、或頂壁、側壁及底壁之任一組合上。以此方式，可將不同強度之輻射供應至SOFC系統組件211之不同側或相同表面之不同部分。此外，可使多個輻射熱源202中之不同者或不同組以不同時間量及/或不同強度操作。以此方式，可將不同量之輻射供應至SOFC系統組件211之不同側或相同表面之不同部分。舉例而言，可用來自閃光燈之高強度、短時間閃光(例如，長度為1 ms至1,000 ms之閃光)輻射來加熱SOFC系統組件211之一側(例如陽極電極3)以使陽極電極3獨立於陰極電極7加熱。以此方式，可使陽極電極3還原、燒盡或燒結，而不會損壞陰極電極7且不會使SOFC系統組件211(例如SOFC電池)之陽極側與陰極側隔離。舉例而言，可在陽極上使用短持續時間閃光脈衝同時使氫氣或另一還原氣體流經電池之陽極側及陰極側二者來還原陽極。一般而言，組件211之每一側上(例如，SOFC電池之陽極側及陰極側上)之輻射之強度及持續時間獨立地控制組件之每一側(例如，陽極電極及陰極電極)之加熱，例如燒結或共燒製。

另外，如所圖解說明，快速熱處理裝置200包括位於SOFC系統組件211之對置側上之可選反射板210。反射板210將來自輻射熱源202之輻射反射至SOFC系統組件211之下側，藉此加熱SOFC系統組件211之下表面並減少SOFC系統組件211內之熱梯度。



視情況，複數個溫度量測器件203(例如高溫計)可沿反射板210排列。在一實施例中，溫度量測器件203可經由控制器(未顯示)以操作方式連接至輻射熱源202。在此實施例中，可個別地控制輻射熱源202之功率以使得基於溫度量測器件203所感測之溫度調節輻射熱源202之輻射輸出(例如，時間及/或強度)。以此方式，可使用來自溫度量測器件203之回饋來減少或消除SOFC系統組件211中之溫度梯度。

可利用固定結構205(例如基座環)將SOFC系統組件211保持在適當位置。當使用基座環時，該基座環可包含吸收快速熱處理中所用輻射(例如，紫外輻射)並將其轉化成熱之材料。固定結構205可包含陶瓷，例如氧化鋁或氧化鋁纖維複合材料。固定結構205藉由支撐結構204支撐，該支撐結構可以旋轉方式連接至馬達(未顯示)。以此方式，SOFC系統組件211可在室201中旋轉以減少SOFC系統組件211之頂部表面及/或底部表面上之熱梯度。此組態類似於具有可旋轉型樣之微波爐操作。在替代實施例中，快速熱處理裝置200包括用於連續操作之連續輓或輸送帶(未顯示)。另一選擇為，固定結構205足夠大以使得可同時處理一個以上之SOFC系統組件211。

快速熱處理裝置200可視情況包括網版印刷機(未顯示)(例如，網版印刷框架及墨水源)。其他可選特徵包括密封分配裝置(例如，玻璃態玻璃或玻璃陶瓷分配器)及預加熱爐及/或後處理爐(例如，電阻爐或感應爐)。另一些可選特

徵包括帶式爐及機器人。機器人可經組態以將SOFC系統組件211自帶式爐轉移至室。快速熱處理裝置200亦可視情況包括升高機構以有助於將SOFC系統組件211轉移至快速熱處理裝置200中之固定結構205及自其轉移。

在一實施例中，快速熱處理裝置200包括一或多個探針(例如，下部探針209及/或上部探針208)，可使用該等探針來量測SOFC系統組件211在其經受熱處理時之電性質或機械性質。舉例而言，下部探針209及上部探針208可經組態以量測穿透SOFC系統組件211之電導率。電導率變化至預定程度可指示已完成組件211之材料之快速熱處理引發之相變且熱處理應結束。可量測穿透平面(through-plane)或平面內之電導率。另一選擇為，可使用電化學阻抗譜來量測穿透平面或平面內組件性質或可量測組件之機械強度。另一選擇為，可量測因熱應力或應變導致之材料缺陷之傳播以發現裂縫，或可利用探針施加機械應力或應變以量測應力或應變對組件之電性質及/或物理/機械性質之影響。另一選擇為，下部探針209或上部探針208可經組態以施加足夠應力以使兩個組件部分在快速熱處理期間密封在一起。

在另一實施例中，快速熱處理裝置200包括正面清除206及/或背面清除207。正面清除206及背面清除207可包括用於供應反應性氣體(例如氧及空氣)或惰性氣體(例如氮氣、氫氣、氬氣及諸如此類)之導管。反應性氣體可包括可納入SOFC系統組件211中且藉此充當合金元素或摻雜劑之原

子。在一實施例中，正面清除206或背面清除207提供反應性氣體，而另一者提供惰性氣體。以此方式，SOFC系統組件211之一部分或表面可經反應性地處理，而另一部分或表面受惰性氣體保護。另一選擇為，可使用惰性氣體作為冷卻劑。以此方式，可將SOFC系統組件211之一側冷卻，而將另一側加熱。另一選擇為，可用冷板(散熱片)使不同氣體(其可或可不處於相同溫度)流經SOFC系統組件211之不同側或使氣體在SOFC系統組件211之一側上流動來冷卻SOFC系統組件211之一側，而遮蔽另一側(例如用保護層)。

可藉由以下方式來達成摻雜：使包含金屬或稀土元素之氣體流經電解質，同時使用快速熱處理加熱陽極電極3、陰極電極7或固態氧化物電解質5。適宜摻雜劑包括但不限於鎳、銅、鋁、錳及稀土元素。亦可藉由以下方式達成摻雜：藉由以下方式將材料沈積於SOFC系統組件211上：(A)網版印刷或滾塗(rolled-on)墨水、(B)物理或化學氣相沈積、(C)DC或RF電漿濺射或磁控管濺射、(D)噴墨印刷或其他印刷，(E)電漿噴射沈積、(F)電弧放電、(G)電子束沈積及(H)原子層沈積，隨後使用快速熱處理加熱所沈積材料以使摻雜劑自該材料擴散遍及至電池陽極、陰極或電解質中之至少一者中。

在一實施例中，藉由墨水網版印刷將陽極電極3及陰極電極7印刷至固態氧化物電解質5之對置側上。印刷製程通常包括使用黏合劑，該黏合劑促進SOFC電極沈積但在電

極沈積後藉由燒盡來去除。在此實施例中，可使用快速熱處理來燒盡來自印刷SOFC陽極3及/或印刷SOFC陰極7之黏合劑。通常，此實施例係在反應性氧化氣氛中實施。另外，由於SOFC陽極電極3及SOFC陰極電極7包含不同材料，故可在第一陽極燒盡溫度及第二陰極燒盡溫度下實施燒盡。即，可將SOFC陽極電極3或SOFC陰極電極7沈積，實施燒盡且然後沈積另一電極並實施第二燒盡。另一選擇為，來自綠色電極之黏合劑可在將其燒結前燒盡。

燒盡來自印刷SOFC陽極電極3、印刷SOFC陰極電極7及固態氧化物電解質5之黏合劑可導致廢氣之產生。在此情形下，可藉由使載氣流動(例如，只要藉助正面清除206及/或背面清除207)來去除廢氣。另一選擇為，可藉由產生真空、控制快速熱處理之溫度及/或升溫速率或在快速熱處理前燒盡黏合劑來去除廢氣。

然而，燒盡黏合劑而不進一步熱處理可導致SOFC電極3、7機械性變弱。因此，在一實施例中，可進一步對SOFC電極3、7實施快速熱處理以燒結SOFC陽極3及/或SOFC陰極7。在此實施例中，將SOFC系統組件211加熱至適當燒結溫度。除燒結SOFC電極3、7以外，SOFC電解質5或氣流隔離件互連9亦可藉由快速熱處理來燒結。注意，陽極電極3、陰極電極7及固態氧化物電解質7之燒結溫度可相同或不同。在一實施例中，可首先在低溫下對SOFC電解質5或氣流隔離件互連9實施快速熱處理以燒盡黏合劑且然後在較高溫度下燒結。在一實施例中，沈積陽極電極

3或陰極電極7中之一者。實施低溫快速熱處理以燒盡且然後實施較高溫度快速熱處理以燒結電極。然後，沈積另一電極，隨後低溫燒盡及高溫燒結。在替代實施例中，可將強化層沈積於SOFC電解質5上且然後使用快速熱處理來燒結。另一選擇為，可藉由對鐵與鉻粉末之混合物實施粉末冶金壓製隨後實施高溫快速熱處理以燒結粉末來形成氣流隔離件互連9。

在一實施例中，用呈氧化態然後經還原(例如，可沈積NiO並在陽極中還原成Ni)之材料印刷SOFC陽極3及/或SOFC陰極7。在此實施例中，可藉由在還原氣氛(例如含有氫或混合氣體(forming gas))中實施快速熱處理來還原SOFC陽極3及/或SOFC陰極7。在另一實施例中，可在反應性氣氛中實施快速熱處理。以此方式，可摻雜SOFC電解質5、SOFC陽極3及/或SOFC陰極7。在此實施例中，可將額外氧引入LSM陰極或YSZ或SSZ電解質中。在替代實施例中，可實施快速熱處理以使印刷SOFC陽極3擴散至SOFC電解質5中或使SOFC陰極7擴散至SOFC電解質5中。

在替代實施例中，在快速熱處理期間可用下部探針209及/或上部探針208檢查(監測)SOFC電解質5之電導率。另一選擇為，可藉由(例如)使用下部探針209及/或上部探針208量測SOFC之電壓、電流或電容以監測SOFC 1之電化學性能。在另一實施例中，在快速熱退火期間檢查SOFC電解質5之機械完整性。

在另一實施例中，可藉由沈積含Cr合金及快速熱處理將

Cr擴散障壁施加至氣流隔離件互連9。在另一實施例中，對SOFC與互連9之堆疊實施快速熱處理以燒盡來自SOFC堆疊密封材料之黏合劑。與其燒盡黏合劑，不如可將SOFC堆疊加熱至更溫和溫度使SOFC堆疊密封材料(例如，玻璃或玻璃陶瓷密封件)熔化並流動以將互連9密封至電池。在一實施例中，可對SOFC堆疊實施快速熱處理以破壞密封件且然後單體化成個別SOFC電池用於SOFC堆疊整修。另外，可在SOFC堆疊單體化後藉由快速熱處理來破壞或熔化將電池與互連保持在一起之密封件以自氣流隔離件互連9去除黏合至氣流隔離件互連9之單體化SOFC電解質5。

可藉由使用快速熱處理將熱施加至SOFC堆疊之頂部電池或互連，從而引起熱膨脹以破壞密封件來達成單體化。另一選擇為，可藉由使用快速熱處理將熱施加至SOFC堆疊之一橫向側，從而引起熱膨脹以使燃料電池堆疊中之所有密封件分開來達成單體化。另外，可在自動化製程中使用快速熱處理將一致熱衝擊施加至SOFC堆疊。

在一實施例中，在沈積及快速熱處理陽極之前形成SOFC陰極電極7。在實施例中，可在處理陽極的同時保護陰極。可藉由實施陽極還原不足以損壞陰極電極7之一段時間(例如數毫秒至數秒，例如1毫秒至10秒，包括10毫秒至500毫秒)來保護陰極電極7。另一選擇為，可藉由使還原氣體流經陽極電極3並使惰性氣體流經陰極電極7或較佳在高於還原氣體之壓力下使惰性氣體流動至陰極電極7以

迫使還原氣體遠離陰極來保護陰極電極7。另一選擇為，可藉由將陽極電極3置於真空中或密封於具有氫氣之室中同時使陰極電極7處於惰性環境中，或以機械方式分離(例如，安置於單獨室中)陰極電極7與陽極電極3以防止還原氣體達到陰極來保護陰極電極7。另一選擇為，可有效地冷卻陰極(例如，使用來自正面清除206或背面清除207之冷卻氣體)。

在替代實施例中，在將陰極電極7沈積至電解質5上之前還原SOFC陽極。在此實施例中，該方法可包括將陰極材料燒結不足以氧化陽極3之一段時間(例如數毫秒至數秒，例如1毫秒至10秒，包括10毫秒至500毫秒)。另一選擇為，該方法可包括使還原氣體流經陽極電極3用於保護並使惰性氣體流經陰極電極7或較佳使惰性氣體在高於還原氣體之壓力下流動至陰極材料以迫使還原氣體遠離陰極電極7。該方法可包括將陽極電極3置於真空或具有還原氣體之密封室中同時使陰極電極7處於惰性環境中，或以機械方式分離(例如，安置於各別室中)陰極電極7與陽極電極3以防止來自SOFC陰極側之氧氣到達陽極電極3。另一選擇為，該方法可包括冷卻陽極電極3以防止氧化或在惰性氣體環境中實施整個陰極處理製程(例如，使用來自正面清除206或背面清除207之冷卻氣體)。

在另一實施例中，該方法可進一步包括將堆疊密封材料(例如玻璃或玻璃陶瓷密封件)施加至氣流隔離件互連9或固態氧化物電解質5。該方法可進一步包括將機械壓力施加

至堆疊密封材料以設定密封尺寸，及藉由快速熱處理來熔化密封材料同時將其壓製於氣流隔離件互連9與SOFC電解質之間以產生堆疊之重複單元。

在一實施例中，可在SOFC系統組件211之不同區域中達成不同電性質及/或機械性質，即可處理SOFC系統組件211中之不同x-y位置以具有不同性質。此可藉由(例如)在SOFC系統組件211表面上施加不同強度燈來達成。另一選擇為，此可藉由使不同氣體流經SOFC系統組件211之表面之不同部分或不同表面，或使用雷射以使SOFC系統組件211表面與材料以預定圖案反應來達成。藉由使不同氣體流經SOFC系統組件211之表面之不同部分或不同表面，可將不同摻雜劑(及摻雜劑濃度)引入SOFC系統組件211之表面之不同部分或不同表面中。摻雜劑大小及電荷(若帶電)二者均影響摻雜材料之性質。退火之量(無論藉由燈或雷射)影響結晶度及晶粒大小，亦影響經處理SOFC系統組件211之材料之性質。

另一選擇為，該方法可包括控制SOFC系統組件211在室201中之位置以使該組件之第一部分完全暴露於熱並使第二部分部分地暴露於熱。另一選擇為，該方法包括使用遮罩以圖案化或引起組成、孔隙率、厚度、擴散長度或其他物理性質之梯度(例如，相對於較小開口，遮罩中較大大小之開口允許較大量摻雜劑或輻射到達下伏SOFC系統組件211，從而提供一系列開口大小，因此達成性質梯度)，或使用反射器、孔口或透鏡以放大、減弱或改變快速熱處



理輻射之強度或SOFC系統組件211之快速熱處理輻射之暴露時間。

可使用升溫及保持步驟之不同變化形式來實施加熱。在一實施例中，使用快速熱處理之加熱包括將溫度升溫至第一溫度並在許多個步驟中之所有步驟中均保持在該第一溫度下。另一選擇為，該方法包括對許多個步驟中之每一步驟施加加熱步驟，包括突增至處理溫度且然後在每一加熱步驟之間冷卻。該等步驟中每一者之處理溫度可與任一其他步驟相同或不同。另一選擇為，可藉由升溫至第一溫度並在第一溫度下保持第一時間段，然後突增至第二溫度並在第二溫度下保持第二時間段來實施快速熱處理。

在一實施例中，可根據一或多個條件來調節快速熱處理。舉例而言，可基於室流出物之變化藉由停止黏合劑燒盡來調節該處理。另一選擇為，可藉由基於至少一個組件之電性能停止退火或藉由量測陽極或陰極電導率並基於量測結果改變快速熱處理來實施前饋製程調節來調節該處理。另一選擇為，可藉由使中心-至-邊緣偏離退火平均溫度以補償可能過厚/薄之中心至邊緣之沈積來調節該處理。

在一實施例中，該方法進一步包括提供仿石英氣流隔離件以在快速熱處理期間囊封固態氧化物電解質5。石英氣流隔離件可以散熱片形式組態於電解質或遮罩之一側上以減小固態氧化物電解質5之輻射之強度。可在將電池置於堆疊之前去除仿石英氣流隔離件。

圖3圖解說明一實施例之實例快速熱方案。根據此方案，以第一升溫速率 $\Delta_1$ 加熱SOFC系統組件211直至達到溫度 $T_1$ 。使SOFC系統組件211在此溫度下保持時間 $t_1$ 且然後以第二升溫速率 $\Delta_2$ 加熱直至達到溫度 $T_2$ 。將SOFC系統組件211在此溫度下保持時間 $t_2$ 且然後冷卻。如所圖解說明，第二升溫速率 $\Delta_2$ 大於第一升溫速率 $\Delta_1$ 。在替代實施例中，第一升溫速率 $\Delta_1$ 大於第二升溫速率 $\Delta_2$ 。第一保持時間 $t_1$ 與第二保持時間 $t_2$ 可彼此相同或不同。若不同，保持時間可更長或更短。此外，快速熱處理不限於兩個升溫事件。可使用一個、三個、四個或任一數量升溫事件來實施快速熱處理。此外，如圖解說明，方案之冷卻部分係以等於第二升溫速率 $\Delta_2$ 為負之速率實施。此僅用於圖解說明。方案之冷卻部分獨立於加熱部分。此外，與加熱部分類似，快速熱處理方案之冷卻部分可在一系列具有或不具有保持部分之步驟中實施。

作為實例，可以 $2^\circ\text{C}/\text{sec}$ 之第一升溫速率 $\Delta_1$ 加熱綠色陽極電極3或綠色陰極電極7(對於低溫黏合劑燒盡而言)並以 $6^\circ\text{C}/\text{sec}$ 至 $20^\circ\text{C}/\text{sec}$ 之第二速率 $\Delta_2$ 加熱(對於燒結而言)。在另一實例中，可藉由首先以約 $5^\circ\text{C}/\text{sec}$ (例如 $5.3^\circ\text{C}/\text{sec}$ )之第一升溫速率 $\Delta_1$ 加熱，且然後以約 $6^\circ\text{C}/\text{sec}$ (例如 $6.5^\circ\text{C}/\text{sec}$ )之第二速率 $\Delta_2$ 加熱來實施陰極墨水鑒定。可使用快速熱處理方案以單一升溫速率 $\Delta$ 實施電解質電導率及電化學測試。升溫速率可在 $4^\circ\text{C}/\text{sec}$ 至 $6^\circ\text{C}/\text{sec}$ 範圍內，例如 $5^\circ\text{C}/\text{sec}$ 。

儘管上述係指尤佳實施例，但應瞭解，本發明不受此限

制。熟習此項技術者將構想可對所揭示實施例作出各種修改且該等修改意欲在本發明範疇內。舉例而言，快速熱處理可用於上文所述步驟中之任一者或任一組合。本文所引用之所有公開案、專利申請案及專利全文均以引用方式併入本文中。

### 【圖式簡單說明】

圖1圖解說明SOFC堆疊之側剖視圖。

圖2圖解說明可用於本發明實施例之SOFC組件之快速熱處理之裝置。

圖3係圖解說明實施例之實例快速熱處理方案之時間溫度曲線圖。

### 【主要元件符號說明】

1	固態氧化物燃料電池
3	陽極電極
5	固態氧化物電解質
7	陰極電極
8	氣流通路/氣流通道
9	氣流隔離件
10	肋
200	快速熱處理裝置
201	室
202	輻射熱源
203	溫度量測器件
204	支撐結構

205	固定結構
206	正面清除
207	背面清除
208	上部探針
209	下部探針
210	反射板
211	固態氧化物燃料電池系統組件

# 發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：101110242

H01M 8/00 (2006.01)

※申請日：101.3.23

※IPC 分類：H01M 8/10 (2006.01)

## 一、發明名稱：(中文/英文)

用於固態氧化物燃料電池(SOFC)製造之快速熱處理

RAPID THERMAL PROCESSING FOR SOFC MANUFACTURING

## 二、中文發明摘要：

本發明係關於熱處理固態氧化物燃料電池(SOFC)系統中之至少一個組件之方法。該方法包括使用快速熱處理加熱該至少一個組件，其中該快速熱處理以約50°C/sec或更大之速率加熱該組件之至少一部分。

## 三、英文發明摘要：

Methods of heat treating at least one component of a solid oxide fuel cell (SOFC) system. The method includes heating the at least one component with a rapid thermal process, wherein the rapid thermal process heats at least a portion of the component at a rate of approximately 50° C/sec or more.

## 七、申請專利範圍：

1. 一種熱處理固態氧化物燃料電池(SOFC)系統中之至少一個組件之方法，其包含使用快速熱處理加熱該至少一個組件，其中該快速熱處理以約 $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。
2. 如請求項1之方法，其中該加熱包含將該至少一個組件暴露於來自熱燈、雷射或脈衝電子束之輻射。
3. 如請求項1之方法，其中該加熱進一步包含選自由下列組成之群之步驟中之一或多者：燒盡來自印刷SOFC陽極之黏合劑，燒盡來自印刷SOFC陰極之黏合劑，燒結該SOFC陽極，燒結該SOFC陰極，燒結SOFC電解質，燒結該電解質上之強化層，燒結互連，還原該SOFC陽極，摻雜該SOFC電解質，摻雜該SOFC陽極，摻雜該SOFC陰極，使該SOFC陽極擴散至該SOFC電解質中，使該SOFC陰極擴散至該SOFC電解質中，檢查該SOFC電解質之電導率，檢查該SOFC電池之電化學性能，檢查該SOFC電解質之機械完整性，將Cr擴散障壁施加至該SOFC互連，燒盡來自SOFC堆疊密封材料之黏合劑，熔化該SOFC堆疊密封材料，單體化SOFC電池用於SOFC堆疊整修，在該SOFC堆疊整修期間自互連去除該單體化SOFC電解質。
4. 如請求項2之方法，其中該至少一個組件具有第一側及第二側，該方法進一步包含將該至少一個組件之該第一側暴露於第一強度輻射及將該第二側暴露於第二強度輻

射，其中該第二強度與該第一強度不同。

5. 如請求項1之方法，其中該至少一個組件具有第一側及第二側，該方法進一步包含將該至少一個組件之該第一側暴露於輻射達第一時間量及將該第二側暴露於輻射達第二時間量，其中該第二時間量與該第一時間量不同。
6. 如請求項1之方法，其中該至少一個組件具有第一側及第二側，該方法進一步包含將該組件之該第一側暴露於輻射，同時冷卻該組件之該第二側。
7. 如請求項1之方法，其中冷卻包含下列中之至少一者：  
(i)使用冷板，(ii)在該第一側上使用第一氣流及在該第二側上使用第二氣流，其中該第一側及該第二側上之該等氣流不同，或(iii)使氣體在一側上流動並遮蔽該至少一個組件之另一側。
8. 如請求項1之方法，其進一步包含在燒結的同時藉由在燒結期間使攜載摻雜劑之氣體流經該至少一個組件來摻雜SOFC電極。
9. 如請求項1之方法，其進一步包含藉由使氫氣流動至該陽極電極同時加熱該陽極電極來同時燒結並還原SOFC陽極電極。
10. 如請求項3之方法，其進一步包含實施複數個該等步驟之群組。
11. 如請求項10之方法，其中該至少一個組件係具有印刷陽極電極及印刷陰極電極之SOFC且其中該方法進一步包含使用快速熱處理用於下列中之至少一者：

在有助於去除來自該陽極之黏合劑及來自該陰極之黏合劑之氣體環境中將該電池加熱至黏合劑燒盡溫度；

將該電池加熱至陰極燒結溫度；

將該電池加熱至陽極燒結溫度；

引入摻雜氣體並將該電池加熱至摻雜溫度；

還原該陽極；

檢查該電池之電導率；

檢查該所檢查電池之性能；及

冷卻該電池。

12. 如請求項11之方法，其中將該電池加熱至該黏合劑燒盡溫度進一步包含將該電池加熱至陽極黏合劑燒盡溫度及陰極黏合劑燒盡溫度，其中該陽極黏合劑燒盡溫度與該陰極黏合劑燒盡溫度不同。

13. 如請求項11之方法，其中該陽極燒結溫度與該陰極燒結溫度不同。

14. 如請求項11之方法，其進一步包含將陽極側氣體供應至該SOFC陽極電極及將陰極側氣體供應至該SOFC陰極電極，其中該陽極側氣體與該陰極側氣體相同或不同。

15. 如請求項3之方法，其中燒盡來自該印刷陽極之該等黏合劑及燒盡來自該印刷陰極之該等黏合劑導致廢氣之產生，且該方法進一步包含藉由下列中之至少一者去除該廢氣：使載氣流動，產生真空，控制快速熱處理之溫度及/或升溫速率，或在該快速熱處理之前燒盡該等黏合劑。



16. 如請求項3之方法，其中還原該陽極進一步包含使還原氣體流動穿過室，同時在該室中使用快速熱處理加熱該SOFC。

17. 如請求項16之方法，其中該至少一個組件係具有印刷陰極之SOFC且該方法進一步包含藉由以下方式來保護該陰極：

實施該陽極還原達不足以損壞該陰極之時間段；或  
使還原氣體流經該陽極並使惰性氣體流經該陰極；或  
在高於該還原氣體之壓力下使惰性氣體流動至該陰極電極以迫使該還原氣體遠離該陰極；或

將該陽極置於真空以及氫氣中，同時使該陰極處於惰性環境中；或

以機械方式分離該陰極與該陽極以防止該還原氣體到達該陰極；或

有效地冷卻該陰極。

18. 如請求項16之方法，其中該至少一個組件係SOFC，其中在將該陰極電極施加至該SOFC之前還原該SOFC陽極，該方法進一步包含下列中之至少一者：

施加該陰極達不足以氧化該陽極之時間段；或

使還原氣體流經該陽極用於保護並使惰性氣體流經該陰極；或

在高於還原氣體之壓力下使惰性氣體流動至該陰極以迫使該還原氣體遠離該陰極；或

將該陽極置於真空以及還原氣體中，同時使該陰極處

於惰性環境中；或

以機械方式分離該陰極與該陽極以防止來自 SOFC 陰極側之氧氣到達該陽極；或

冷卻該陽極以防止氧化；或

在惰性氣體環境中實施整個陰極處理製程。

19. 如請求項 1 之方法，其中該至少一個組件包含固態氧化物電解質，該方法進一步包含藉由下列中之至少一者來檢查該電解質之品質：

量測穿透平面或平面內之電解質電導率；或

量測穿透平面或平面內之電化學阻抗譜；或

量測機械強度；或

藉助熱應力傳播材料缺陷以發現裂縫。

20. 如請求項 3 之方法，其進一步包含：

將該堆疊密封材料施加至互連或 SOFC 電解質；

將機械壓力施加至該堆疊密封材料以設定密封尺寸；及

熔化該密封材料並將其壓製於該互連與該 SOFC 電解質之間以產生重複單元。

21. 如請求項 3 之方法，其中摻雜該陽極、摻雜該陰極或摻雜該電解質進一步包含：

藉由使包含稀土元素之氣體流經該電解質來摻雜該 SOFC 電解質，同時使用快速熱處理加熱該 SOFC 電解質；

用稀土元素摻雜該 SOFC 陽極，同時使用快速熱處理加熱該 SOFC 陽極；或

用鋁、鋇或稀土元素摻雜該陰極，同時使用快速熱處理加熱該 SOFC 陰極。

22. 如請求項 21 之方法，其中該摻雜係藉由選自由下列組成之群之方法實施：(A) 網版印刷或滾塗(roll-on)墨水，(B) 物理或化學氣相沈積，(C) DC 或 RF 電漿濺射或磁控管濺射，(D) 噴墨印刷或其他印刷，(E) 電漿噴射沈積，(F) 電弧放電，(G) 電子束沈積及 (H) 原子層沈積，隨後使用快速熱處理加熱以使摻雜劑擴散遍及陽極、陰極或電解質中之至少一者中。

23. 如請求項 1 之方法，其進一步包含獲得該至少一個組件之性質之 x-y 差異，其包含實施下列中之一或多者：

在該至少一個組件之表面上施加不同強度燈；

使不同氣體流經該至少一個組件之表面；

使用雷射以使該組件之該表面與材料以預定圖案反應；

控制該至少一個組件在室中之位置以使該組件之第一部分完全暴露於該熱且第二部分部分地暴露於該熱；

使用遮罩以圖案化或引起組成、孔隙率、厚度、擴散長度或其他物理性質之梯度；或

使用反射器、孔口或透鏡以放大、減弱或改變在該組件上之該快速熱處理輻射之強度或該快速熱處理輻射之暴露時間。

24. 如請求項 3 之方法，其中單體化電池用於堆疊整修或在整修期間自互連去除電解質進一步包含實施下列中之一

或多者：

使用快速熱處理將熱施加至頂層，從而引起熱膨脹以破壞密封；或

使用快速熱處理將熱施加至一側，從而引起熱膨脹以使燃料電池之堆疊中的所有該等電池分開；

在自動化製程中使用快速熱處理將一致熱衝擊施加至該至少一個組件。

25. 如請求項10之方法，其中使用快速熱處理加熱進一步包含：

升溫至第一溫度並在複數個步驟群組之所有步驟中均保持在該第一溫度下；或

對該複數個該步驟群組中之每一步驟施加加熱步驟包含突增至處理溫度及在該複數個加熱步驟之該等步驟中之每一者之間冷卻，其中該等步驟中之每一者之處理溫度與任一其他步驟相同或不同；或

升溫至第一溫度並在該第一溫度下保持第一時間段，然後突增至第二溫度並在該第二溫度下保持第二時間段。

26. 如請求項1之方法，其中該快速熱處理係根據下列中之一或多者來調節：

基於室流出物中之變化停止黏合劑燒盡；

基於該至少一個組件之電性能停止退火；

藉由量測陽極或陰極沈積並基於該量測改變該快速熱處理來實施前饋製程調節；及

使中心-至-邊緣偏離退火平均溫度以補償可能厚/薄之中心至邊緣之沈積。

27. 如請求項1之方法，其進一步包含製造石英互連以在快速熱處理期間囊封SOFC之電解質。
28. 如請求項27之方法，其將該等石英互連以散熱片形式組態於電解質或遮罩之一側上以減小該電解質上之輻射之強度。
29. 如請求項1之方法，其中該快速熱處理以約 $5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。
30. 如請求項29之方法，其中該快速熱處理以約 $25^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。
31. 如請求項30之方法，其中該快速熱處理以約 $50^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 或更大之速率加熱該組件之至少一部分。
32. 一種用於提供至少一個固態氧化物燃料電池系統組件之快速熱處理之裝置，其包含：
  - 室，其經組態以固持該至少一個組件；
  - 至少一個熱源，其經組態以約 $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 或更大之速率加熱該至少一個組件之至少一部分；及
  - 該室中之開口，其經組態以允許至少一個處理器件進入該室中，該至少一個處理器件經組態以探測或操縱該至少一個組件。
33. 如請求項32之裝置，其中該至少一個處理器件包含於該室中且能夠觸及該組件之電壓或電流探針。
34. 如請求項32之裝置，其中該至少一個處理器件包含至少

- 一個機械運動器件以將應力施加至該組件。
35. 如請求項34之裝置，其中該機械運動器件經組態以測試該組件之機械完整性或改變該至少一個組件之物理參數。
  36. 如請求項34之裝置，其中該機械運動器件經組態以施加應力以將兩個部分密封在一起。
  37. 如請求項32之裝置，其中該裝置經組態以將不同氣流、組合物或溫度施加至該至少一個組件之第一側及第二側。
  38. 如請求項32之裝置，其進一步包含真空器件，該真空器件經組態以將該室之一部分或全部抽真空。
  39. 如請求項32之裝置，其中該裝置經組態以將不同輻射強度施加至該至少一個組件之不同側或部分。
  40. 如請求項32之裝置，其中該裝置經組態以處理安裝於卡匣中之複數個該等組件。
  41. 如請求項32之裝置，其中該裝置經組態以在板或連續輓或輸送帶上處理複數個該等組件。
  42. 如請求項32之裝置，其進一步包含網版印刷機。
  43. 如請求項32之裝置，其進一步包含密封分配器件。
  44. 如請求項32之裝置，其進一步包含預加熱爐及/或後處理爐。
  45. 如請求項32之裝置，其進一步包含帶式爐及機器人，該機器人經組態以將組件自該帶式爐轉移至該室。
  46. 如請求項32之裝置，其進一步在該室中包含基座，該基

座組態於該組件上方或下方。

47. 如請求項46之裝置，其進一步包含熱電偶或高溫計，其經組態以量測該至少一個組件之溫度；及控制器，其經組態以利用來自該熱電偶或高溫計之回饋來控制該至少一個熱源。
48. 如請求項46之裝置，其中該基座進一步包含利用快速熱處理製程中所用之輻射耦合之塗層。
49. 如請求項46之裝置，其進一步包含控制器，該控制器經組態以將該基座及該至少一個組件維持在基本上相同溫度下。
50. 如請求項32之裝置，其進一步包含熱板，該熱板經組態以固持該組件。
51. 如請求項32之裝置，其進一步包含升高機構及背面清除機構。
52. 如請求項32之裝置，其進一步包含馬達，該馬達經組態以使熱組件在該室中旋轉。

八、圖式：

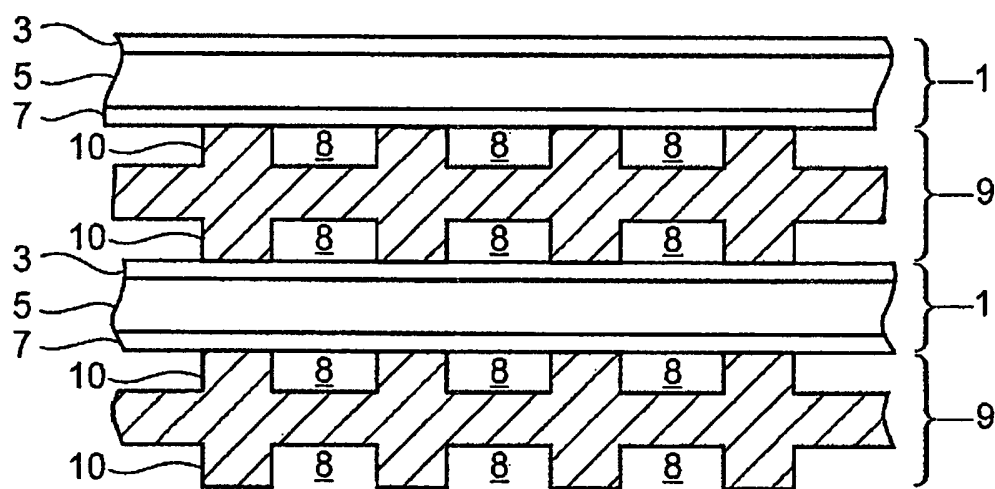


圖 1



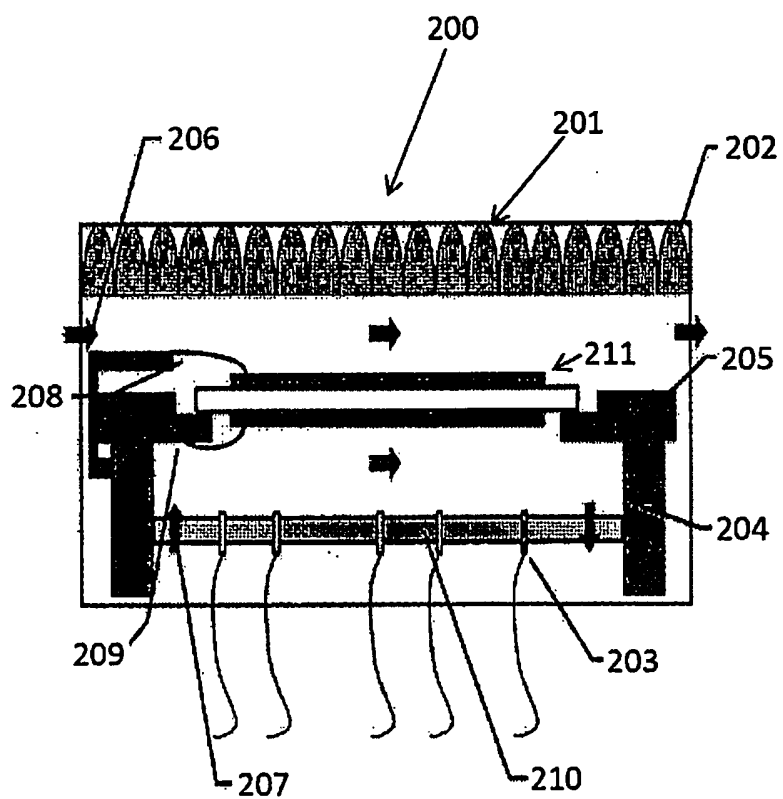


圖2

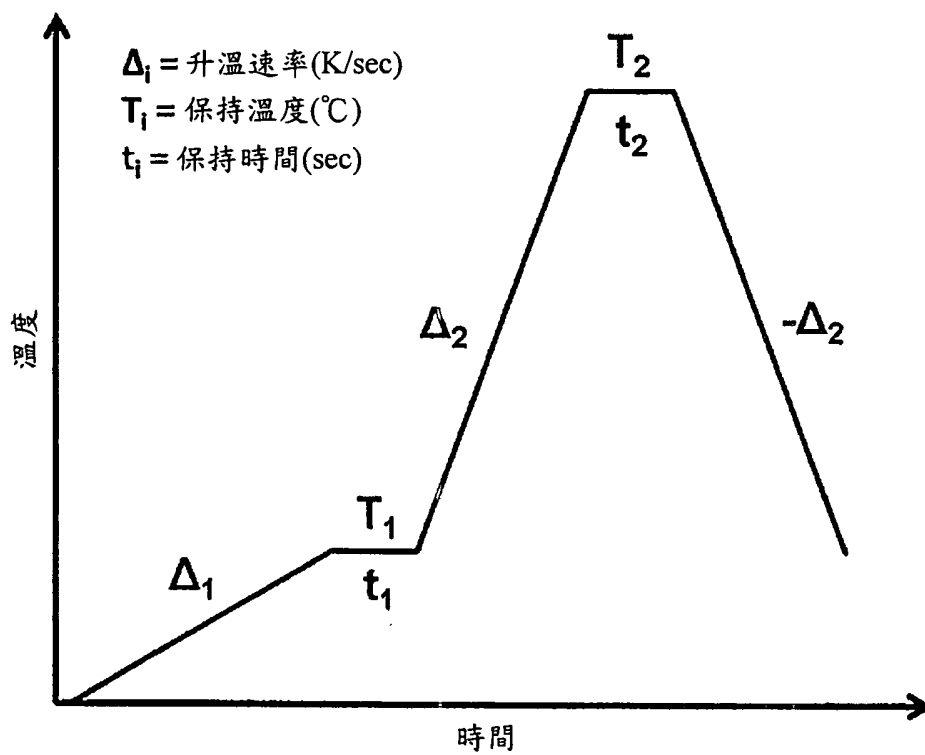


圖3

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(2)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

200	快速熱處理裝置
201	室
202	輻射熱源
203	溫度量測器件
204	支撐結構
205	固定結構
206	正面清除
207	背面清除
208	上部探針
209	下部探針
210	反射板
211	固態氧化物燃料電池系統組件

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)