(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 201222961 A1
(43)公開日： 中華民國 101 (2012) 年 06 月 01 日

(21)申請案號：100129273 (22)申請日： 中華民國 100 (2011) 年 08 月 16 日
(51)Int. Cl.： *H01M4/88 (2006.01)* *H01M8/10 (2006.01)*
(30)優先權：2010/08/17 美國 61/374,424
(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：艾爾 巴塔維 伊瑪德 EL BATAWI, EMAD (CH)；牧諾 派萃 MUNOZ, PATRICK (US)；古延 狄恩 NGUYEN, DIEN (US)
(74)代理人：陳長文
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：28 項 圖式數：10 共 46 頁

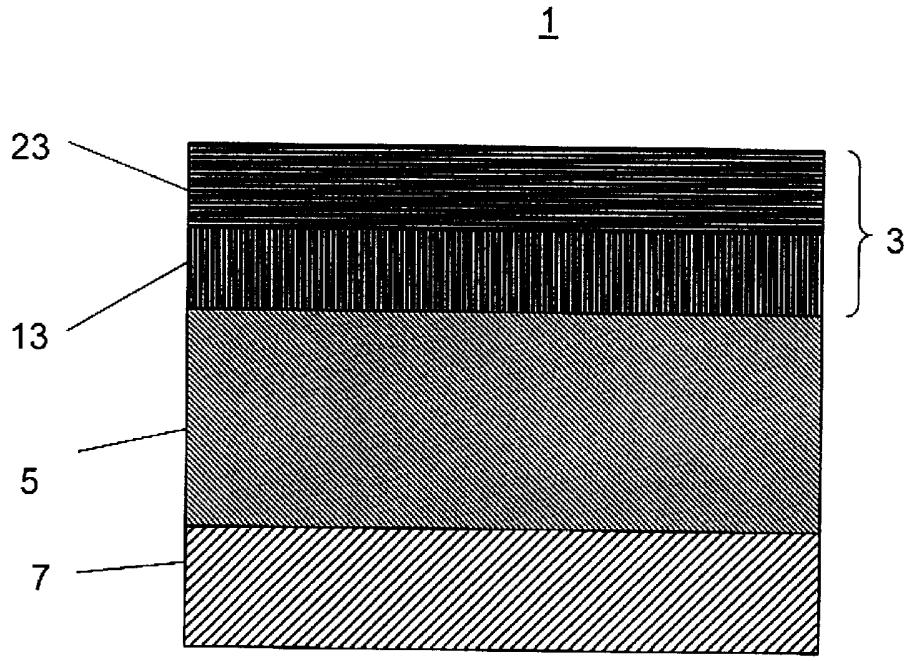
(54)名稱

固態氧化物燃料電池之製造方法

METHOD FOR SOLID OXIDE FUEL CELL FABRICATION

(57)摘要

本發明係關於一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括在平面固態氧化物電解質之第一側上形成第一電極之第一亞層及乾燥該第一電極之第一亞層。該方法亦包括在燒成第一電極之第一亞層之前，在第一電極之乾燥第一亞層上形成第一電極之第二亞層，在相同的第一燒成步驟期間，燒成第一電極之第一亞層及第二亞層，並在固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。



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
13：陽極電極之第一部份
23：陽極電極之第二部份

(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 201222961 A1
(43)公開日： 中華民國 101 (2012) 年 06 月 01 日

(21)申請案號：100129273 (22)申請日： 中華民國 100 (2011) 年 08 月 16 日
(51)Int. Cl.： *H01M4/88 (2006.01)* *H01M8/10 (2006.01)*
(30)優先權：2010/08/17 美國 61/374,424
(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：艾爾 巴塔維 伊瑪德 EL BATAWI, EMAD (CH)；牧諾 派萃 MUNOZ, PATRICK (US)；古延 狄恩 NGUYEN, DIEN (US)
(74)代理人：陳長文
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：28 項 圖式數：10 共 46 頁

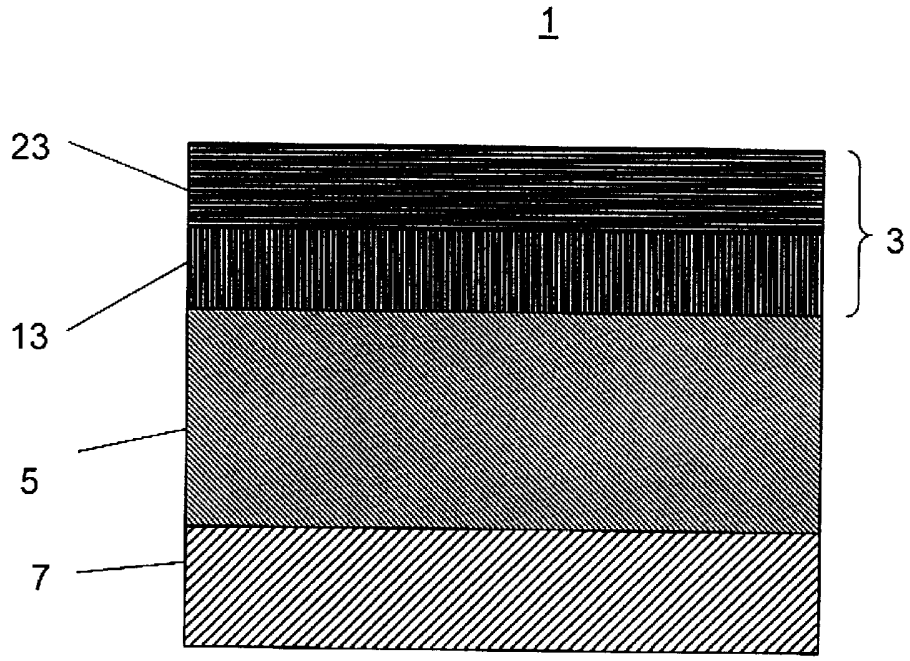
(54)名稱

固態氧化物燃料電池之製造方法

METHOD FOR SOLID OXIDE FUEL CELL FABRICATION

(57)摘要

本發明係關於一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括在平面固態氧化物電解質之第一側上形成第一電極之第一亞層及乾燥該第一電極之第一亞層。該方法亦包括在燒成第一電極之第一亞層之前，在第一電極之乾燥第一亞層上形成第一電極之第二亞層，在相同的第一燒成步驟期間，燒成第一電極之第一亞層及第二亞層，並在固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。



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
13：陽極電極之第一部份
23：陽極電極之第二部份

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明一般係關於燃料電池組件以及關於固態氧化物燃料電池陽極與陰極材料之製造。

【先前技術】

燃料電池為可將燃料中儲存的能量高效地轉換成電能的電化學裝置。電解槽電池為可使用電能將既定材料(諸如水)還原以產生燃料(諸如氫)的電化學裝置。燃料電池及電解槽電池可包括以燃料電池及電解模式操作之可逆電池。

在高溫燃料電池系統中，諸如固態氧化物燃料電池(SOFC)系統，氧化流流經燃料電池的陰極側而燃料流流經燃料電池的陽極側。氧化流一般為空氣，而燃料流可謂烴燃料，諸如甲烷、天然氣、丙烷、戊烷、乙醇或甲醇。一般在750℃至950℃間之溫度下操作之燃料電池使帶負電荷氧離子從陰極流輸送至陽極流，於該處該離子與游離氫或烴分子中的氫結合形成水蒸氣及/或與一氧化碳結合形成二氧化碳。來自負電荷離子的過量電子沿路透過在陽極與陰極之間完成的電路返回至燃料電池的陰極側，產生流經該電路之電流。固態氧化物可逆燃料電池(SORFC)系統以燃料電池或放電模式從燃料及氧化劑產生電能及反應物產物(例如經氧化燃料)及以電解或充電模式使用電能產生燃料及氧化劑。

在極端燃料不足條件下操作之陽極電極通常遭到不可逆的損壞。該類不足條件通常出現在電池堆疊，其中經隔離

重複元件(例如特定燃料電池)獲得比其臨近元件(例如臨近燃料電池)更少的燃料。此等元件見證超過100%之有效燃料利用。類似條件發生在系統轉換或操作異常期間，於該處供給至電池之燃料與電流消耗不相符。在該等情形下，流入陽極之氧離子將使陽極組份氧化。在傳統陽極之三相界存在之鎳將自發性氧化。從Ni金屬至NiO之相改變伴隨著體積變化，其導致在陽極/電解質交界處之機械損壞。該機械損壞之特徵為電極從電解質脫層，這增加了電池的比電阻並急劇降低堆疊性能。為避免鎳氧化及電極電解質交界處之機械損壞(其會導致脫層)，一種先前技術之解決方法為使用全陶瓷陽極。儘管陶瓷陽極顯示在燃料不足情形下之較佳穩定性，但是其與高極化損失有關。

固態氧化物燃料電池使用烴基燃料予以操作。SOFC係以兩種模式之一者操作：預重組模式或內部重組模式。在預重組模式中，烴燃料在進入燃料電池之前預先重組成合成氣($CO+H_2$)。陽極提供用以氧化預重組燃料之電催化活性表面並確保足夠的氧化物-離子性及電子傳導。在內部重組模式中，烴燃料進入固體氧化物燃料電池，於該處其暴露至陽極。如在預重組模式中，陽極提供燃料氧化反應及離子與電子輸送。然而，陽極必須亦使烴燃料進行內部重組。現階段技術中陽極為複合物。此類陽極係由主要為電導體(諸如Ni金屬)之電催化材料與氧化物-離子傳導材料組成。一般而言，現階段技術中陽極為Ni-氧化鈰及Ni-氧化鋯。在內部重組模式下操作之此等陽極容易受陽極脫層

而失效、受在烴燃料進入燃料電池之前沿的結構失效或從Ni-碳化物內部形成導致脆化之鎳粉化所影響。

【發明內容】

本發明係關於一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括在平面固態氧化物電解質之第一側上形成第一電極之第一亞層及乾燥該第一電極之第一亞層。該方法亦包括在燒成第一電極之第一亞層之前，在第一電極之乾燥第一亞層上形成第一電極之第二亞層，在相同的第一燒成步驟期間，燒成第一電極之第一亞層及第二亞層，並在固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。

【實施方式】

在本發明之一實施例中，SOFC陽極電極係藉由絲網印刷兩或多層陽極亞層而形成。此等亞層經個別印刷並使之在低溫下乾燥及隨後其以單一陽極層燒成而予以燒成。因此在本實施例中，並非依序沉積(例如印刷)及燒成各陽極亞層，然後沉積下一陽極亞層，本實施例之方法包括在電解質上沉積(例如絲網印刷)第一陽極亞層，使第一亞層在相對較低溫度下乾燥，然後在乾燥但未燒成之第一陽極亞層頂部沉積(例如絲網印刷)第二陽極亞層。在沉積並乾燥所有或所需數量陽極亞層後，多個陽極亞層一起以一個燒成步驟及在比乾燥溫度至少高三倍的溫度下燒成。例如，乾燥步驟可在低於150℃之溫度(如50至100℃，例如70至80℃)下進行。燒成步驟可在高於1000℃之溫度(如1100℃至1400℃)下進行。

在本發明之另一實施例中，陰極電極係藉由絲網印刷兩或多層陰極亞層而形成。此等亞層經個別印刷並使其在低溫下乾燥及隨後其以單一陰極層燒成予以燒成。因此在本實施例中，並非依序沉積(例如印刷)及燒成各陰極亞層，然後沉積下一陰極亞層，本實施例之方法包括於電解質上沉積(例如絲網印刷)第一陰極亞層，使第一亞層在相對較低溫度下乾燥，且然後在乾燥但未燒成之第一陰極亞層頂部沉積(例如絲網印刷)第二陰極亞層。在沉積並乾燥所有或所需數量之陰極亞層後，多個陰極亞層一起以一個燒成步驟及在比乾燥溫度高至少三倍的溫度下燒成。例如，乾燥步驟可以在低於150℃之溫度(如50至100℃，例如70至80℃)下進行。燒成步驟可在高於1000℃之溫度(如1100℃至1400℃)下進行。

在本發明之另一實施例中，陽極及陰極電極均係藉由絲網印刷兩或多層陽極亞層及兩或多層陰極亞層而形成。此等亞層經個別印刷並使之在低溫下乾燥及隨後以單一陽極層燒成而燒成該陽極亞層及以單一陰極層燒成而燒成該陰極亞層。較佳，該陽極與陰極層燒成步驟為分開之燒成步驟。因此，陽極或陰極亞層之一先沉積、乾燥及然後一起燒成。然後其他陽極或陰極亞層經沉積、乾燥及隨後一起燒成。陽極或陰極亞層之一可先沉積、乾燥及隨後燒成。

在另一實施例中，陽極及陰極層燒成係在同一步驟中進行。在該情形下，含有經乾燥陽極及陰極電極層之電解質提供於爐子內及使陽極與陰極在相同步驟期間共同燒成。

在以上實施例中，絲網印刷為較佳亞層沉積法。例如，絲網印刷可以具有高線密度之壓延網篩進行。在絲網印刷方法中，陽極與陰極油墨較佳地為自行調勻(self-leveling)且具有80至93重量百分比之較高固體負載。該油墨調配物及以高固體負載之良好流變性為特徵的電催化劑顆粒形態可形成含高度活性電催化劑的極薄亞層(例如絲網印刷)。當此等亞層燒結成固態氧化物電解質時，其形成稠密電極，例如具有有限殘餘變形之稠密陽極電極。

在本發明之另一實施例中，用於固態氧化物燃料電池之陽極電極允許在陽極上對烴燃料直接內部重組及在燃料不足情形下進行可靠操作。內部重組陽極將消除預重組器或外部重組器的需要，因此明顯減少了成本。固態氧化物燃料電池(SOFC)包括陰極電極、固態氧化物電解質及包括第一部份及第二部份之陽極電極，使得第一部份位於電解質及第二部份之間。陽極電極包括含有含鎳相及陶瓷相之金屬陶瓷(cermet)。陽極電極之第一部份為包括含鎳相及陶瓷相之金屬陶瓷，而具有比陽極電極之第二部份更低的孔隙率及更低的含鎳相對陶瓷相之比率。如在先前實施例中所述，陽極電極之該兩部份可以自分別沉積、分別乾燥之亞層形成，其隨後一起燒成。

在一個實施例中，該第二部份進一步包括含鎳相，其中高度電催化活性之鎳係部份由具有比鎳更低電催化活性之金屬組成(包括非電催化金屬)。該金屬可包括鈷(Co)及/或銅(Cu)，其較佳(但非必須)與鎳合金化以降低含鎳相之催

化活性。降低催化活性產生更低之熱機械應力，本發明者相信此會導致降低陽極脫層及機械損壞。替代鎳金屬陶瓷，諸如鎳合金金屬陶瓷(例如Ni-Co合金金屬陶瓷)亦顯示比所有其他參數保持恒定的純Ni金屬陶瓷更低的電催化活性。

本發明之實施例提供用於固態氧化物燃料電池之陽極電極，諸如可逆SOFCs(即SORFC)及不可逆SOFCs，其在極端燃料不足條件下不會發生不可逆地退化。本發明之實施例進行烴基燃料之內部重組而不對陽極造成機械損壞。陽極電極比先前技術Ni-YSZ陽極顯示改良輸出效率及極化損失。因此，該陽極進行燃料氧化、離子及電子輸送及在燃料不足調件下重組烴燃料。而且，在不足情形後，本發明實施例之陽極電極的性能幾乎不受影響及對陽極之機械退化最小。

本發明一實施例之陽極電極為包括含鎳相(即包括鎳之金屬相)及陶瓷相之金屬陶瓷。含鎳相較佳地包含處於還原態之鎳或處於還原態之含有一或多種其他金屬(諸如鈷及/或銅)的鎳。該相在其呈氧化態時形成金屬氧化物。因此，陽極電極較佳係在還原氛圍下退火，然後經操作以將鎳氧化物還原成鎳。含鎳相可主要僅由鎳組成或其可以包括鎳之外的其他金屬。例如，含鎳相可以包括鎳與其他金屬(諸如鈷或銅)的合金。金屬相較佳地以小於500奈米(諸如100至400奈米)之平均顆粒大小精細地分佈於陶瓷相中，從而減少在鎳轉換成鎳氧化物時產生的應力。陶瓷相

較佳包括經摻雜氧化鈰，諸如氧化釤、氯化釓或氧化釔摻雜之氧化鈰(換言之，該氧化鈰可包括當併入至氧化鈰時形成氧化物之Sm、Gd及/或Y摻雜元素)。較佳，經摻雜氧化鈰相組成包括$Ce_{(1-x)}A_xO_2$，其中A包括Sm、Gd或Y中之至少一種，及x大於0.1但小於0.4。例如，x可在0.15至0.3之範圍且可等於0.2。氧化釤摻雜之氧化鈰(SDC)係較佳。而且，經摻雜氧化鈰可為非化學計量，且每一金屬原子含有多於或少於兩個氧原子。或者，該陶瓷相包括不同混合之離子及導電相，諸如鈣鈦礦陶瓷相(如$(La, Sr)(Mn,Cr)O_3$)，其包括LSM、鍶鑭鉻鐵礦、$(La_xSr_{1-x})(Mn_yCr_{1-y})O_3$，其中$0.6<x<0.9$，$0.1<y<0.4$，如$x=0.8$，$y=0.2$等。

在本發明之一實施例中，陽極電極在靠近電解質之部份含有比靠近與該電極遠離之電極表面之部份(亦即背向電解質之「自由」電極表面)更少的鎳相。在本發明之另一實施例中，陽極電極在靠近電解質之部份含有比靠近與電極遠離之「自由」電極表面之部份更少的孔隙率。在本發明之另一實施例中，陽極電極在靠近與電解質遠離之電極表面之部份含有諸如與鎳合金化之Co及/或Cu的其他金屬。若需要，可從靠近電解質之陽極部份略去其他金屬(亦即非有意引入之Cu或Co，但可能存在非刻意背景之Cu或Co雜質或擴散)。較佳，該陽極電極在靠近電解質部份含有較少鎳及較少孔隙率及在遠離電極部份含有其他金屬。

圖1說明根據本發明之一實施例的固態氧化物燃料電池

(SOFC)1。電池1包括陽極電極3、固態氧化物電解質5及陰極電極7。電解質5可以包括經穩定氧化鋯，諸如經氧化釔穩定之氧化鋯(SSZ)或經氧化釓穩定之氧化鋯(YSZ)。或者，該電解質5可以包括其他離子性傳導材料，諸如經摻雜氧化鈰。該陰極電極7可包括導電性材料，諸如導電性鈣鈦礦材料，諸如鑭鍶水錳礦(LSM)。亦可使用其他傳導性鈣鈦礦，諸如鑭鍶輝鈷礦$(La,Sr)CoO_3$、鑭鍶鈷鐵氧體$(La,Sr)(Co,Fe)O_3$等，或金屬諸如Pt。在一實施例中，該陰極電極7係由若干個別沉積之亞層組成，如下將更詳細地敘述。相比藉由先前技術絲網印刷法形成之單層電極，此使得陰極電極更厚。

如圖1所示，該陽極電極3包括第一部份13及第二部份23。該第一部份13位於電解質5及第二部份23之間。如上所述，較佳，該陽極電極之第一部份13包含比陽極電極之第二部份23更低的含鎳相對陶瓷相之比率。而且，較佳，該陽極電極之第一部份13包含比陽極電極之第二部份23更低的孔隙率。另外，該第二部份23包含與鎳合金化的其他金屬，諸如Co或Cu。或者，Co或Cu可與Ni分開(例如非預先合金化)提供至陽極電極內。因而，孔隙率及含鎳相對陶瓷相之比率以陽極電極3在從電解質5至陽極電極3之相反面的方向上的厚度為函數而增加。第二部份中之其他金屬為階梯函數。第一部份不含其他金屬，而第二部份包含均一濃度。

例如，陽極電極之第一部份13可以包含5-30體積百分比

之孔隙率及1-20體積百分比之鎳相含量。陽極電極之第二部份23可以包含31-60體積百分比之孔隙率及21-60體積百分比之鎳相含量。含鎳相可視需要包含1-50原子百分比(諸如5-30原子%)之其他金屬(諸如鈷及/或銅)，且其餘為鎳。

在一實施例中，該陽極電極3之第一部份13及第二部份23包含個別亞層。因此，第一區13包含與電解質5接觸之第一亞層及第二區23包含位於第一亞層13上之第二亞層。第一亞層13包含比第二亞層23更低之孔隙率及更低之鎳對經摻雜氧化鈰之比率。如上所述，第二亞層23可包含其他金屬，諸如Co或Cu。

第一亞層13可包含1-15體積百分比之含鎳相，5-30百分比之孔隙(諸如5-20或15-25體積百分比之孔隙)及其餘為經摻雜氧化鈰相。例如，介於1-5體積百分比之含鎳相，介於5-10體積百分比之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。第二亞層23包含超過20體積百分比之含鎳相，介於20-60體積百分比之孔隙(諸如40-50%之孔隙)及其餘為經摻雜氧化鈰相。例如，其包含30-50體積百分比間之含鎳相(其視需要包含1-30原子%，諸如5-10原子% Co及/或Cu及其餘為Ni)，30-50體積百分比間之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。在第一亞層13中，含鎳相對於含經摻雜氧化鈰相之體積比率可在1:8至1:10之範圍內，例如1:9。在第二亞層23中，含鎳相對於含摻雜氧化鈰相之體積比率可在3:1至5:1之範圍內，例如4:1。第一亞層13可以包含5-25重量百分比之含鎳相(諸如10-20重量百分比之含鎳相)，及75-95重量

百分比之含經摻雜氧化鈰相(諸如80-90重量百分比之經摻雜氧化鈰相)。第二亞層23可包含60-85重量百分比之含鎳相(諸如70-75重量百分比之含鎳相)，及15-40重量百分比之含經摻雜氧化鈰相(諸如25-30重量百分比之經摻雜氧化鈰相)。鎳對於陶瓷之最適比率係由最佳陽極性能所需之必要電子傳導性、離子傳導性、孔隙率及電催化性質所決定。

因此，陽極電極3可包含多層亞層，各層在組成、結構及鎳含量上不同。各層厚約3-30微米，例如5-10微米厚。較佳，第一亞層13為3-6微米厚及第二亞層23為6-10微米厚以達到9-16微米的總厚度。相比於遠離電解質之一或多層亞層，與電解質接觸之第一亞層具有更高密度及更低鎳含量。確定孔隙率梯度，其在靠近電解質從約5-15%變化，在陽極電極的自由表面增加至約50%。電極中之鎳含量以與孔隙率之相同方式增加。遠離電解質之第二亞層視需要具有與鎳合金化之其他金屬，諸如Co或Cu。

在本發明之另一實施例中，第一區13及第二區23各可包含多層亞層。例如，各區13、23可包含兩層亞層，使得陽極電極3總共包含四層亞層。在該情形下，第一區13包含與電解質接觸之第一亞層及位於第一亞層上之第二亞層，而第二區23包含位於第二亞層上之第三亞層及位於第三亞層上之第四亞層。在該結構中，從第一亞層至第四亞層，陽極電極之孔隙率增加，及從第一亞層至第四亞層，陽極電極之鎳相含量增加。換言之，與電解質5接觸之亞層具

有最低之孔隙率及鎳相含量，而離電解質最遠之亞層具有最大孔隙率及鎳相含量(及最低經摻雜氧化鈰相含量)。

例如與電解質5最接近之第一亞層可包含1-5體積百分比之含鎳相，5-15體積百分比之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。第二亞層可包含6-20體積百分比之含鎳相，20-40體積百分比之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。第三亞層可包含25-35體積百分比之含鎳相，30-50體積百分比之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。離電解質5最遠之第四亞層可包含35-45體積百分比之含鎳相(其視需要包含1-30原子%，諸如5-10原子% Co及/或Cu及其餘為Ni)，40-60體積百分比之孔隙及其餘為經摻雜氧化鈰相。

燃料電池堆疊經常係由多個SOFC 1構成平面元件、管件或其他幾何形狀。燃料及空氣必須提供至可能較大的電化學活性表面。如圖4所示，燃料電池堆疊中之一組件為分離堆疊中個別電池之所謂的氣流隔離物(在平面堆疊中稱為氣流隔板)9。氣流隔板將流入堆疊中之一個電池之燃料電極(即陽極3)中之燃料(諸如烴燃料)與流入堆疊中相鄰電池之空氣電極(即陰極7)之氧化劑(諸如空氣)分離。隔離物9包含位在脊10之間的氣流通道或渠道8。通常，氣流隔板9亦被用做互連物，用以電連接一個電池之燃料電極3及相鄰電池之空氣電極7。在該情形下，充當互連物之氣流隔板係由導電材料製成或包含導電材料。可在陽極電極與互連物之間提供導電接觸層，例如鎳接觸層。圖4顯示下面SOFC 1係位於兩個氣體隔板9之間。

而且，儘管圖4顯示該堆疊包含多個平面或板狀燃料電池，然而燃料電池可具有其他結構，諸如管形。而且，儘管圖4顯示垂直定向之堆疊，但燃料電池亦可以水平方向或在垂直與水平之間的任何其他適宜方向堆疊。

文中使用之術語「燃料電池堆疊」意指共用一個通用燃料入口及排氣通道或冒出口之多個堆疊燃料電池。文中使用之「燃料電池堆疊」包括一區別的電實體，其包含連接至堆疊之能量調節設備及能量(亦即電力)輸出之兩端板。因此，在一些結構中，來自該區別的電實體之電能量輸出可與其他堆疊分開控制。文中使用之術語「燃料電池堆疊」亦包括區別的電實體之一部份。例如，堆疊可以共用相同端板。在該情形下，堆疊共同包括區別的電實體，諸如柱。在該情形下，無法分開控制來自兩個堆疊之電能量輸出。

一種形成如圖1、2及3所示之平面、電解質承載之SOFC 1之方法包括在平面固態氧化物電解質5之第一側上形成陰極電極7及在平面固態氧化物電解質5之第二側上形成金屬陶瓷陽極電極3，使得與電解質鄰近之陽極電極的第一部份含有比位在遠離電解質之陽極電極的第二部份更低的孔隙率及更低之含鎳相對陶瓷相的比率。陽極與陰極可在電解質之相對側上以任何順序形成。

包含如圖1所示之多個亞層的陽極電極可藉由絲網印刷法或藉由其他適宜方法形成。例如，可將包含低孔隙率及低鎳含量之第一亞層13絲網印刷在電解質5上，繼而在第

一亞層13上絲網印刷具有更高孔隙率及更高鎳含量之第二亞層23。如上所述，亞層13可經絲網印刷在電解質5上，然後在低於150℃(諸如約70℃)之溫度下乾燥，隨後在經乾燥亞層13上絲網印刷亞層23，視需要乾燥亞層23，及最後在高於1000℃之溫度下燒成亞層13及23兩者。

現將敘述藉由絲網印刷、乾燥及燒成製造陽極與陰極電極之非限制性示例性方法。

將裸露的板狀固態氧化物電解質5(諸如經氧化釔穩定之氧化鋯電解質)去掉包裝並置於槽型盒101中。將各盒安裝在升降機103中，其將個別電解質基板5定位於步移式傳送帶105上。該步移式傳送帶將電解質基板5傳送至印刷工具板107，同時在該過程期間使基板暴露至最小程度的磨蝕。可使用拾取頭109將來自步移式傳送帶末端之電解質基板置於工具板上。該拾取頭可配置有Bernoulli墊或真空伸縮插腳陣列以拾取電解質基板。

一旦拾取頭109將電解質基板5降低置於工具板107上，則開始絲網印刷週期。首先，多個定位夾銷111朝基板5向內塌陷。銷可以被固定及/或負載壓力。結合向內之移動使基板定位至預定對準位置。使用工具板107少量真空以保持基板5避免在夾銷之間振盪。一旦基板定位，施加挾持真空且所有夾銷111撤出並遠離工作區。此後，工具板107之支架113在網篩115(例如，具有高線密度之壓延網篩)下往復運動並開始印刷週期。印刷週期包括使用適宜絲網印刷油墨(諸如80-93重量百分比之較高固體負載的油墨)，

及界定沉積油墨圖像及油墨沉積特徵之絲網工具的絲網印刷法。

可調節各製程參數以實現所需層之沉積厚度及品質。可藉由調節印刷設置進行微細調節及可藉由調節絲網印刷過程中之絲網配置進行粗調節。

在另一實施例中，可在印刷步驟之前將油墨分散在絲網上，因此在乾燥之前減少絲網上油墨暴露於外部環境之時間。此會增加製程穩定性且油墨之黏度不會因乾燥而改變。該方法亦減少或消除污染並減少油墨浪費。

在完成電極絲網印刷循環後，電解質基板5或經手動或藉由任何適宜機械或裝置(諸如拾取頭109)從工具板107移走。工具板回到其原始位置以接受下一基板。先前印刷之基板5沿傳送帶117向下傳送至預定拾取位置。另一拾取頭119(諸如機器人拾取頭)下降並以兩或多個栓件包圍基板。栓件未對基板施加壓力以將對基板之切損或損壞降到最低。拾取頭升起並以重力固定基板。然後，該拾取頭將電解質基板傳送至乾燥帶121並將基板釋放在乾燥帶上。

可以使用任何適宜乾燥器。例如，乾燥器120可包括乾燥器傳送帶121，例如傳送經過由一或多個紅外加熱燈125加熱之紅外加熱區123的編織不鏽鋼帶或其他適宜傳送帶。電解質基板5藉由帶121傳送至加熱區123並在加熱區經加熱燈125加熱。在加熱過程期間，一定百分比之油墨有機物從電極釋放，其準備基板供進一步處理。

帶121可保持持續移動同時攜帶基板通過加熱區。或

者，帶121可將基板傳送至加熱區，然後停住並使基板受熱，進而在完成加熱後將基板移開加熱區。若需要，乾燥器可以包含兩或多條帶及/或兩或多個加熱區。在兩或多條帶121之情形下，拾取頭119可經操作員或控制系統預先程序化或控制以平行而非連續地依序將基板置於不同帶上以乾燥基板。

然後，藉手動或機械將經乾燥電極基板5從乾燥器120移出。可使用任何適宜機械。例如，Bernoulli機械墊或配有伸縮插腳之真空拾取頭127可位於靠近乾燥器出口處。該墊或頭從乾燥器帶上移開基板並將其置於步移式傳送帶129上。步移式傳送帶將基板傳送至出口升降機131，其隨後將基板5載入盒133中以供進一步處理。

對於包含兩或多層亞層之電極，諸如上述陽極電極，此等亞層係分開印刷並使之在低溫下乾燥，然後其以單一陽極層燒成而燒成。因此，如上所述，在第一陽極亞層印刷在電解質基板上並在乾燥器乾燥後，電解質從乾燥器返回至絲網印刷站以在第一陽極亞層上沉積第二陽極亞層。在第二陽極亞層沉積在第一亞層上並在乾燥器乾燥後，將電解質基板從乾燥器提供到爐子中，於該處多個陽極亞層以一個燒成步驟在比乾燥溫度至少高三倍的溫度下一起燒成。例如，乾燥步驟可在低於150℃之溫度(如50至100℃，例如70至80℃)下進行。燒成步驟可在高於1000℃之溫度(如1100℃至1400℃)下進行。

在另一實施例中，陽極或陰極亞層交互印刷而不經歷乾

燥過程。在該「濕碰濕(wet-on-wet)」過程中，第一亞層絲網印刷在電解質上，隨後將第二亞層絲網印刷在相同電極之潮濕第一亞層上，再燒成、或乾燥並燒成該電極之潮濕亞層。例如兩個陽極亞層13、23可沉積在電解質5上而無須在沉積第一13及第二23陽極亞層之間的中間乾燥步驟。在該情形下，第一陽極亞層13沉積(例如絲網印刷)在電解質上，及在該第一亞層仍潮濕時，將第二陽極亞層23沉積(例如絲網印刷)在潮濕第一亞層13上。然後，使兩層亞層13、23乾燥及燒成，或燒成而不乾燥。較佳而言，在第一亞層13之絲網印刷期間使用之第一亞層13之油墨比第二亞層23之絲網印刷期間使用之第二亞層23之油墨具有更高黏度。第一亞層油墨具有比第二亞層油墨密度高出10%至200%之黏度。該方法增加了製程處理量，改良陽極之氧化還原性能並消除兩層亞層之間明顯的界限。例如，陽極3之底部(即相當於靠近電解質5之亞層13的陽極3的部份)具有比陽極3之頂部(即相當於遠離電解質5之亞層23的陽極3的部份)更少的鎳相及更多的氧化鈰相。然而，並非在亞層13、23之間具有明顯界限，反倒是位於陽極之頂部與底部之間具有中間含量之鎳相與氧化鈰相的擴散介面(例如，比陽極底部含有更多鎳及比陽極頂部含有較少鎳)。

如上所述，在印刷及乾燥製程後，各基板進行稱為「燒成」之熱製程，其包括燒盡電解質基板及燒結。可使用高溫爐進行燒成(例如，燒盡及燒結兩者可在相同爐子中進行)。

對於陽極與陰極電極燒成步驟，可以不同方式將電解質基板載入爐子中。對於首先燒成之電極，可面對面將基板堆成堆疊，然後放入爐子中。對於其次燒成的電極，可將各基板置於爐子中而不接觸鄰近基板。例如，可將基板插入一或多個陶瓷支撐體、框架或船型體中，然後將其插入爐子中。

例如，對於首先沉積並燒成陽極然後沉積並燒成陰極的燃料電池，可使用下列方法。多個平面(例如板狀)固態氧化物電解質各具有第一主要側及第二主要側。在多個平面固態氧化物電解質之各第一主要側上形成第一電極。該第一電極可藉由上述雙重絲網印刷法或藉任何其他適宜方法形成。將多個固態氧化物電解質堆成堆疊，使得堆疊中各對相鄰電解質之包含第一電極的第一主要側面向彼此。因此，除了堆疊中的頂端及底部電解質，堆疊中各對相鄰電解質之第二主要側面向堆疊中相鄰電解質之第二主要側。然後燒成該堆疊。較佳，堆疊中各電解質之第二主要側在燒成步驟期間缺少電極，且堆疊中各對相鄰電解質之包含第一電極的第一主要側在燒成期間彼此接觸。

例如，對於陽極電極之燒成，可將燃料電池(例如，具有印刷陽極之電解質基板)彼此接觸堆成堆疊。電池可以交替方式面對面定向。換言之，一對相鄰電池之陽極電極彼此接觸放置，及兩個其他相鄰電池之未印刷陰極側接觸電池對之未印刷陰極側。因此，將陽極印刷電解質基板以印刷面面向彼此的方式放置。將後續基板以相同方式堆疊

產生作為一個單元一起處理之「包(pack)」或基板堆疊。各包置於架子上。將一重量(諸如陶瓷塊或蓋)置於頂部以產生稱為約束燒結的條件。一旦一個架子裝滿，便將後續陶瓷塊及支架垂直放置，產生第二層。一旦第二層裝滿，構建後續層至爐子最大容積。然後啟動爐子燒成程序(例如，溫度-時間方案)，其將完成陽極燒成製程。因為可以該方式燒成大量電池堆疊，故爐子保持高的處理量。以兩種不同油墨配方及印刷條件形成之陽極與陰極電極的電池結構使得兩層印刷基板成對面對面堆疊並在燒結期間預防黏合。

較佳，陽極與陰極層燒成步驟為個別燒成步驟。因此，在陽極亞層沉積、乾燥及隨後一起燒成後，將電解質基板上下倒置並回到印刷站。如下將敘述在印刷站，沉積、乾燥一或多層陰極亞層及隨後一起燒成。

對於陰極電極燒成而言，將電池(如電極基板，較好在一側印刷有燒成陽極及在另一側印刷有未燒成陰極)固定於陶瓷支撐體、框架或船型體(稱為「夾具」)中。此等陶瓷夾具將各電池固定定位並與相鄰電池隔開。該夾具避免電池在燒成期間嚴重變形，以避免將彎度引入部件中。陶瓷夾具可由具有高純度氧化鋁(例如99.9%純度)或其他適宜材料製成。

在另一實施例中，陽極與陰極層燒成係在同一步驟中進行。在該情形下，將包含經乾燥陽極與陰極電極層之電解質基板提供至爐子中並使陽極與陰極在相同步驟期間共燒

成。共燒成可抵消當各側分別燒結時發生之電池彎度。可以兩側均已印刷並彼此成堆疊接觸的電池(例如，第一電池之陽極與相鄰第二電池之陽極接觸，及第一電池之陰極與相鄰第三電池之陰極接觸)進行共燒成，而不使用陶瓷夾具以支撐各個別電池並使相鄰電池彼此分離。

在另一實施例中，在放入燃料電池堆疊之前，陰極電極並尚未燒結。在該實施例中，將陽極層或亞層印刷在電解質上、乾燥並燒結。然後將陰極層或亞層印刷在電解質上並乾燥，但未燒結而完成一個固態氧化物燃料電池。然後，將具有乾燥但未燒結之陰極的固態氧化物燃料電池置於固態氧化物燃料電池堆疊中，其中相鄰燃料電池係藉由傳導性(例如金屬)互連物/氣體隔板分開並由玻璃或玻璃陶瓷密封件密封。然後燒結整個堆疊以燒結玻璃或玻璃陶瓷密封件。當堆疊中之密封件燒結時，同時發生所有堆疊中之電池的陰極電極的燒結。因此，在該實施例中，密封件與固態氧化物燃料電池堆疊(其包含SOFCs及互連物)中之未燒成及未燒結的陰極電極在同一步驟中燒結。

爐子燒成溫度設定可包括第一時間段或步驟，在此期間爐子保持穩定溫度傾斜率，緩慢升溫或降溫，在該溫度，黏合劑開始自經印刷且乾燥油墨中燒除。該第一步驟之時間長度為使黏合劑完全燒除的時間。然後將爐溫升至用於發生電極燒成之第二時間段或步驟的第二且更高之燒結溫度。該燒成溫度歷程可包括在第一溫度下加熱基板足以燒除電極油墨黏合劑之時間，然後在比第一溫度更高之第二

溫度下加熱基板足以燒結電極之時間。燒成可在高於1000℃的溫度(諸如1100℃至1400℃)下進行。陽極與陰極電極層可在1100至1200℃下燃燒並在低於1300℃之溫度(諸如1200至1300℃)下燒結，因此減少爐子成本。

較佳，在陽極與陰極燒成期間使用對流爐子處理以完成黏合劑燒盡。對流爐子處理確保存在足夠的空氣流來氧化並清除掉黏合劑氣化物種。在另一實施例中，可在陽極及/或陰極燒成將黏合劑燒盡階段期間使用富含氧氣的空氣(例如，向空氣中添加氧使得周圍包含比大氣壓空氣更高濃度的氧)、純氧或其他活性氧化氛圍，以改良該方法之效率及處理量。燒成之燒結階段可以在大氣空氣或惰性環境(例如氮環境)下進行。因此，在此實施例中，第一燒盡燒成步驟或階段係在包含比第二燒結燒成步驟或階段更高氧含量的環境下進行。

以Ni-Co合金製造陽極可藉由先以所需化學計量合成$Ni_{1-x}Co_xO$粉末並與所需量之SDC粉末混合而達成。例如，$0.05 \leq x \leq 0.3$。任何適宜油墨加工(即將粉末與油墨溶劑混合)、油墨沉積(諸如上述絲網印刷)及燒成/燒結步驟(諸如上述者)可用於陽極製造。在陽極還原期間，$Ni_{1-x}Co_xO$/SDC複合物還原成Ni-Co/SDC 金屬陶瓷及孔隙度。或者，該Ni-Co合金(亦即金屬合金而非金屬氧化物)可製成粉末形式，與SDC混合，沉積並在還原氛圍中燒結，產生具有不同微結構組成之相似陽極。可使用其他合金元素，諸如Cu，替代Co或除Co外亦使用其他合金元素。同樣地，可

使用其他陶瓷材料，諸如GDC等，替代SDC或除SDC外亦可使用GDC。

圖5A及5B描述陰極在圖像頂部至陽極在底部而定向之SOFC之掃描式電子顯微鏡圖像。圖像中之最頂層為陰極電極7。下一層為電解質層5。底層為陽極3。陽極係由兩層亞層13及23組成。SEM圖像顯示陽極亞層使用非重組烴燃料在燃料不足條件下操作後之情形。

圖5A說明根據比較例製造之SOFC的圖像。該比較例之SOFC敘述於2007年10月10日申請之美國申請號11/907,204中，其以引用之方式全文併入本文。該比較例之SOFC在上層亞層23中缺少Cu或Co。該比較例之SOFC顯示適當性能。然而，圖像顯示存在一些裂痕之證據。

圖5B說明根據本發明之實施例製造之SOFC的圖像。相較於比較例之約30微米厚的陽極，本發明之陽極更薄，例如約9-16微米。陽極在上層亞層中亦包含鈷取代鎳。本發明實施例之陽極顯示不存在結構或機械失效，諸如裂痕、脫層或粉化。未受限於特定理論，本發明者將此變化歸因於在鎳相中添加了Co，形成Ni-Co合金。據信，減少之鎳濃度會減少陽極表面之催化活性，導致重組反應蔓延至整個陽極表面而非將重組反應限制在陽極前沿。因為該反應分散，得以顯著減少熱機械應力。因此，相較於比較例之陽極，本發明實例之陽極損壞較少或無損壞。

圖6顯示機械負載測試結果。測試係由僅以陽極之電池的四點彎曲測試組成。圖表繪製了比較例(線「COMP」)

及本發明實例(線「INV」)之結果。比較例之結果圖顯示具有0.16943標準偏差之1.369 kgf之平均機械負載。來自本發明實例之數據圖顯示具有0.06952標準偏差之1.435 kgf之平均機械負載。儘管兩種類型的電池均顯示可接受的結果，但本發明實例之電池在其失效負載中顯示隨時一致的結果，而比較例之電池顯示許多異常值及一般不一致的性能。本發明實例之電池對於失效具有更高的平均負載以及一致性，這表明在電解質與電極之間之介面優於比較例電池。這可歸因於本發明實例之陽極較少或無裂痕所致。

圖7描述根據比較例及本發明實例之若干燃料電池堆疊在30 amp操作下之中位電壓匯集結果圖。一個測試堆疊包含根據比較例製造之一些電池及根據本發明實例製造之其他電池。數據表徵電池堆疊在壽命初期於操作條件下之輸出電壓相對於溫度關係。隨著溫度自770℃變化至850℃，在1.9之蒸汽與甲烷(例如碳)比及90%之燃料利用率下，測量輸出電位。結果顯示本發明之更高的輸出電位(諸如約60 mV之較高電位)，因此，相比於比較例之充分結果，提供改良的結果。在770℃下之比較例數據表明存在一些焦化，該焦化係在該相同溫度下本發明實例中並未見到者。

圖8為包含根據比較例及本發明實例之電池的25個電池堆疊以75%燃料利用率及在850°C下操作200小時後的輸出電壓圖。畫圈數據點表明本發明實例之電池在操作200小時後的輸出電壓結果。未畫圈數據點表明比較例之電池在

操作200小時後的輸出電壓結果。顯示本發明之電池在操作後均顯示比比較例電池堆疊更低的輸出電壓劣化度。

圖9為比較例之純鎳及本發明實例之Ni-Co合金(10原子百分比之Co，90原子百分比之Ni)在750及800°C下之甲烷轉化率相對於天然氣流速(每分鐘標準升)之圖。由圖可見，純Ni的電催化重組轉化率比Ni-Co合金高，其中對於兩個第二層23，金屬與陶瓷的體積比率相同。質量流速越高，催化劑必須重組所有甲烷的效率越大。因為甲烷在較低質量流速下檢測到，因此Ni-Co催化劑提供更慢的催化反應。

陽極電極包含在與電解質之三相界處之富含摻雜氧化鈰相介面及與遠離電解質之陽極電極的「自由」表面(亦即陽極3面向互連物的表面)鄰近的富含鎳相區域。未受限於具體理論，本發明者相信本發明實施例之陽極電極在極高燃料利用率條件下的更高穩定性主要係歸因於在三相界之富含氧化鈰介面之存在。摻雜氧化鈰之混合離子及電子傳導性充當通過電解質之氧離子流之緩衝，因此緩和了鎳快速轉化成鎳氧化物。避免了電極/電解質之機械損壞且建立正常操作條件後，可觀察到陽極中最小的極化改變。因為氧化鈰基陶瓷比鎳具有更低電子傳導性，故少量鎳的存在改善了第一亞層的傳導性，而在燃料不足情形下不會對機械穩定性造成任何不利影響。

陽極電極進而包含遠離電解質之鎳合金之富含金屬區。本發明者相信降低鎳濃度將從前沿分散陽極之蒸汽重組反

應區。因為鎳為如此強的電催化劑，故據信，高Ni濃度導致在陽極長度之數釐米範圍內(即在前沿，於該處烴燃料進入陽極與互連物之間的陽極空間)發生大量重組。升高濃度之高度吸熱蒸汽重組導致熱機械應力及引起陽極脫層。藉由在整個上層陽極亞層中以具有較少催化性或不具催化性之金屬(諸如Cu及/或Co)替代而部份使Ni催化劑失活，可以使重組反應從燃料入口至出口遍佈陽極表面之整個長度(亦即區域)，及降低高溫梯度。降低之溫度梯度導致在電池的前沿更低的熱機械應力並因此將陽極脫層及失效機制肇因降到最低。這亦會減少粉化及Ni碳化物形成。而且，由於陽極之經摻雜氧化鈰之陶瓷相(諸如SDC)為電催化活性，故陽極之總體催化活性未顯著減少。

已提出以上本發明之敘述用於說明及敘述目的。不欲排外地或限制本發明至揭示之精確形式，且鑒於上述教示可進行修改及變化或可獲自本發明之實務。選擇敘述以解釋本發明之理論及其實際應用。預期本發明之範圍係藉由文中所附申請專利範圍及其等效性加以界定。

【圖式簡單說明】

圖1及2說明側截面圖及圖3說明本發明實施例之SOFCs的俯視圖。

圖4說明本發明實施例之SOFC堆疊的側截面圖。

圖5A及5B說明在固態氧化物燃料中之陽極電極亞層的SEM圖。圖5A說明比較例之陽極。圖5B說明本發明實例之陽極。

圖6說明對比較例及本發明之實例之電池的機械負載測試數據之作圖。

圖7為對比較例及本發明實例之電池堆疊在改變溫度時若干電池堆疊匯集之壽命初期中位輸出電壓之作圖。

圖8為含有根據比較例(未畫圈)及本發明實例(畫圈)之電池的25個電池堆疊在操作200小時後的電池電壓之作圖。

圖9為在750及800°C下對比較例之純鎳及對本發明實例之Ni-Co合金之甲烷轉化率與質量流速之圖表。

圖10為用以製造本發明一實施例之SOFC電池之設備及方法步驟之示意圖。

【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	氣流通道
9	氣流隔板
10	脊
13	陽極電極之第一部份
23	陽極電極之第二部份
103	升降機
105	步移式傳送帶
107	工具板
109	拾取頭

111	定位夾銷
113	支架
115	網篩
117	傳送帶
119	拾取頭
120	乾燥器
121	乾燥帶
123	紅外加熱區
125	紅外加熱燈
127	真空拾取頭
129	步移式傳送帶
131	出口升降機
133	盒

201222961

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：100129213

※申請日：100.8.16　※IPC 分類：H01M 4/88 (2006.01)
H01M 8/10 (2006.01)

一、發明名稱：（中文/英文）

固態氧化物燃料電池之製造方法

METHOD FOR SOLID OXIDE FUEL CELL FABRICATION

二、中文發明摘要：

本發明係關於一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括在平面固態氧化物電解質之第一側上形成第一電極之第一亞層及乾燥該第一電極之第一亞層。該方法亦包括在燒成第一電極之第一亞層之前，在第一電極之乾燥第一亞層上形成第一電極之第二亞層，在相同的第一燒成步驟期間，燒成第一電極之第一亞層及第二亞層，並在固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。

三、英文發明摘要：

A method of making a solid oxide fuel cell (SOFC) includes forming a first sublayer of a first electrode on a first side of a planar solid oxide electrolyte and drying the first sublayer of the first electrode. The method also includes forming a second sublayer of the first electrode on the dried first sublayer of the first electrode prior to firing the first sublayer of the first electrode, firing the first and second sublayers of the first electrode during the same first firing step, and forming a second electrode on a second side of the solid oxide electrolyte.

七、申請專利範圍：

1. 一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括：

在平面固態氧化物電解質之第一側上形成第一電極之第一亞層；

乾燥該第一電極之第一亞層；

在燒成第一電極之第一亞層之前，在第一電極之乾燥第一亞層上形成第一電極之第二亞層；

在相同的第一燒成步驟期間，燒成該第一電極之該第一亞層及第二亞層；及

在該固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。

2. 如請求項1之方法，其中該乾燥步驟係在第一溫度下進行，該燒成步驟係在第二溫度下進行，且該第二溫度為該第一溫度的至少三倍。

3. 如請求項2之方法，其中該第一溫度係低於150℃及該第二溫度係高於1000℃。

4. 如請求項1之方法，其中該第一電極包括陽極電極。

5. 如請求項4之方法，其中：

該陽極電極之該第一亞層包括含有含鎳相及含經摻雜氧化鈰相之金屬陶瓷；

該陽極電極之該第二亞層包括含有含鎳相及含經摻雜氧化鈰相之金屬陶瓷；及

該陽極電極之該第一亞層具有比該陽極電極之該第二亞層更低的含鎳相對陶瓷相之比率。

6. 如請求項5之方法，其中該經摻雜氧化鈰相包括經Sm摻

雜之氧化鈰相且該含鎳相包括鎳或1-50原子百分比之Co或Cu之至少一者及其餘為鎳。

7. 如請求項1之方法，其中該第一電極包括陰極電極。

8. 如請求項1之方法，其中該形成第二電極之步驟包括：

在該平面固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極之第一亞層；

乾燥該第二電極之第一亞層；

在燒成該第二電極之第一亞層之前，在該第二電極之乾燥第一亞層上形成第二電極之第二亞層；及

燒成該第二電極之該第一亞層及第二亞層。

9. 如請求項8之方法，其中該第二電極之第一及第二亞層之燒成步驟包括發生在該第一燒成步驟之後的第二燒成步驟。

10. 如請求項8之方法，其中該第二電極之第一及第二亞層之燒成步驟包括該第一燒成步驟，以使得該第一及第二電極係在相同的第一燒成步驟期間燒成。

11. 如請求項1之方法，其進一步包括在該第一燒成步驟之前乾燥該第一電極之該第二亞層。

12. 如請求項1之方法，其中：

形成該第一電極之第一亞層之該步驟包括絲網印刷該第一亞層；及

形成該第一電極之第二亞層之該步驟包括絲網印刷該第二亞層。

13. 如請求項12之方法，其中形成該第一電極之第一亞層之

該步驟包括：

將該電解質置於槽型盒中；

將該盒安裝在升降機中，其將該電解質定位於傳送帶上；

將該電解質傳送至絲網印刷工具板；

將該電解質對準於絲網印刷工具板上之位置；

施加挾持真空以將該電解質固定於該絲網印刷工具板上；及

使用包括80至93重量百分比之固體的油墨絲網印刷該第一電極之第一亞層。

14. 如請求項13之方法，其中乾燥該第一電極之第一亞層之該步驟包括將該電解質置於帶上，傳送該電解質至加熱區，及利用紅外加熱燈乾燥該第一電極之第一亞層。

15. 如請求項1之方法，其中該第一燒成步驟包括將固態氧化物電解質堆疊置於爐子中，以使印刷有該第一電極之電解質的表面面向彼此且接觸並對流燒成該第一電極。

16. 如請求項15之方法，其中：

該第一燒成步驟包括在第一溫度下之第一環境中進行的燒盡階段及在第二溫度下之第二環境中進行的燒結階段；

該第二溫度係高於該第一溫度；及

該第一環境包含比該第二環境更多的氧含量。

17. 如請求項15之方法，其中形成該第二電極之該步驟包括在該平面固態氧化物電解質之第二側上絲網印刷該第二

電極，乾燥該第二電極及在第二燒成步驟中燒成該第二電極。

18. 如請求項17之方法，其中該第二燒成步驟包括將包含經乾燥第二電極之該電解質插入陶瓷夾具中，將該夾具置於爐子中以使該電解質不會接觸到鄰近電解質，及燒成該第二電極。

19. 如請求項1之方法，其中：

該第一電極包括陽極電極；及

該第二電極包括陰極電極。

20. 如請求項19之方法，其中形成該第二電極之該步驟包括：

在該第一燒成步驟之後，在該固態氧化物電解質之第二側上印刷該陰極電極；

乾燥該陰極電極；

將包含該燒成陽極電極及該經乾燥但未燒成之陰極電極的該電解質置於固態氧化物燃料電池堆疊中；

在該固態氧化物燃料電池堆疊內形成玻璃或玻璃陶瓷密封件；及

燒結該固態氧化物燃料電池堆疊以燒結該玻璃或玻璃陶瓷密封件及在同一步驟中燒結該陰極電極。

21. 一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括：

提供複數個平面固態氧化物電解質，各電解質具有第一主要側及第二主要側；

在該複數個平面固態氧化物電解質各者之第一主要側

上形成第一電極；

將該複數個固態氧化物電解質堆成堆疊，使得該堆疊中包含各對相鄰電解質之該第一電極的第一主要側面向彼此；及

燒成該堆疊。

22. 如請求項21之方法，其中：

該堆疊中各電解質之第二主要側在燒成步驟期間缺少電極；及

該堆疊中包含各對相鄰電解質之該第一電極的該等第一主要側在燒成步驟期間彼此接觸。

23. 如請求項22之方法，其中除了該堆疊中之頂端及底部電解質以外，該堆疊中各對相鄰電解質之第二主要側面向該堆疊中相鄰電解質之第二主要側。

24. 如請求項22之方法，其進一步包括：

在該形成步驟之後及該燒成步驟之前乾燥該第一電極；及

在該燒成步驟後，在該複數個平面固態氧化物電解質之各者的第二主要側上形成第二電極。

25. 如請求項21之方法，其中：

該第一電極包括陽極電極；

形成該第一電極之該步驟包括絲網印刷該第一電極之第一亞層，乾燥該第一亞層，及在該第一亞層上絲網印刷該第一電極之第二亞層；及

該燒成步驟包括將該堆疊置於爐子中，將一重量置於

堆疊上並對流燒成該第一電極。

26. 一種製造固態氧化物燃料電池(SOFC)之方法，其包括：

在平面固態氧化物電解質之第一側上印刷第一電極之潮濕第一亞層；

在燒成該第一電極之第一亞層之前，於該第一電極之該潮濕第一亞層上印刷該第一電極之第二亞層；

在該相同的第一燒成步驟期間燒成該第一電極之該第一亞層及第二亞層；及

在該固態氧化物電解質之第二側上形成第二電極。

27. 如請求項26之方法，其中：

該第一電極包括陽極電極；

印刷該潮濕第一亞層之該步驟包括使用第一油墨絲網印刷該第一亞層；

印刷該第二亞層之該步驟包括使用具有比該第一油墨更低黏度的第二油墨絲網印刷該第二亞層；及

印刷該第二亞層之該步驟係在乾燥該第一亞層之前進行。

28. 如請求項26之方法，其進一步包括在印刷該第二亞層之該步驟之後及在該燒成步驟之前，乾燥該第一及該第二亞層。

S

八、圖式：

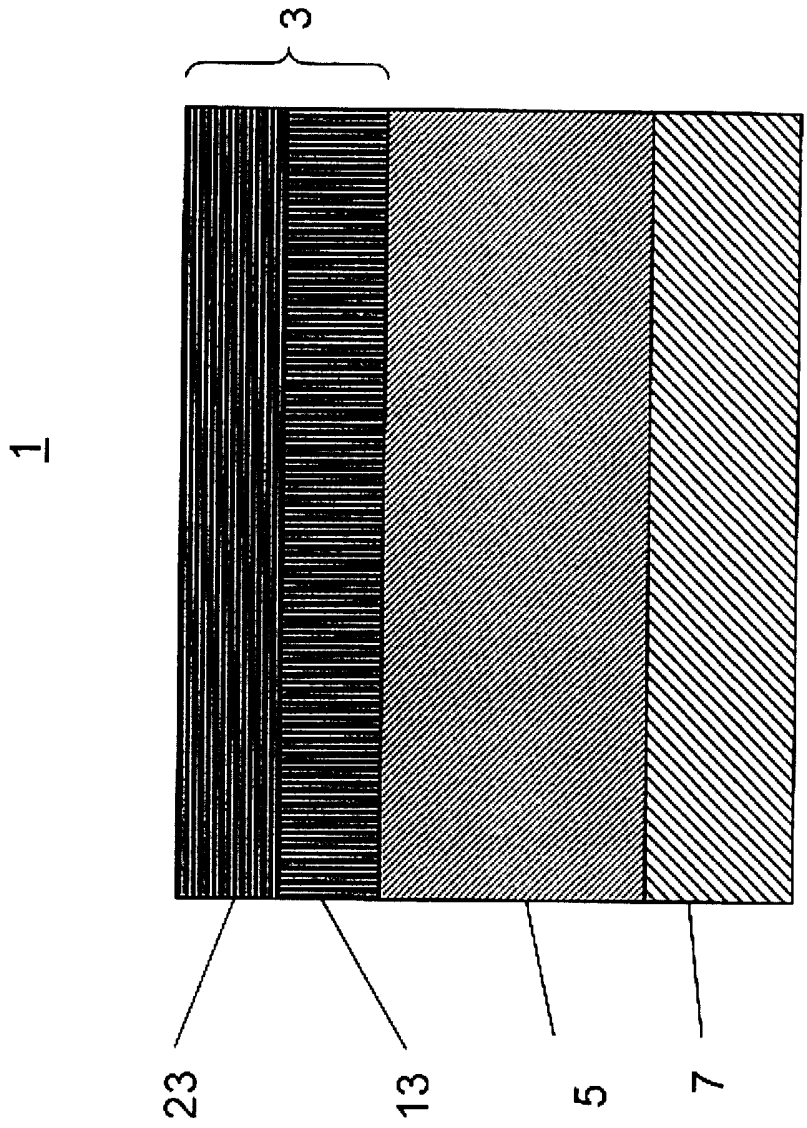


圖 1

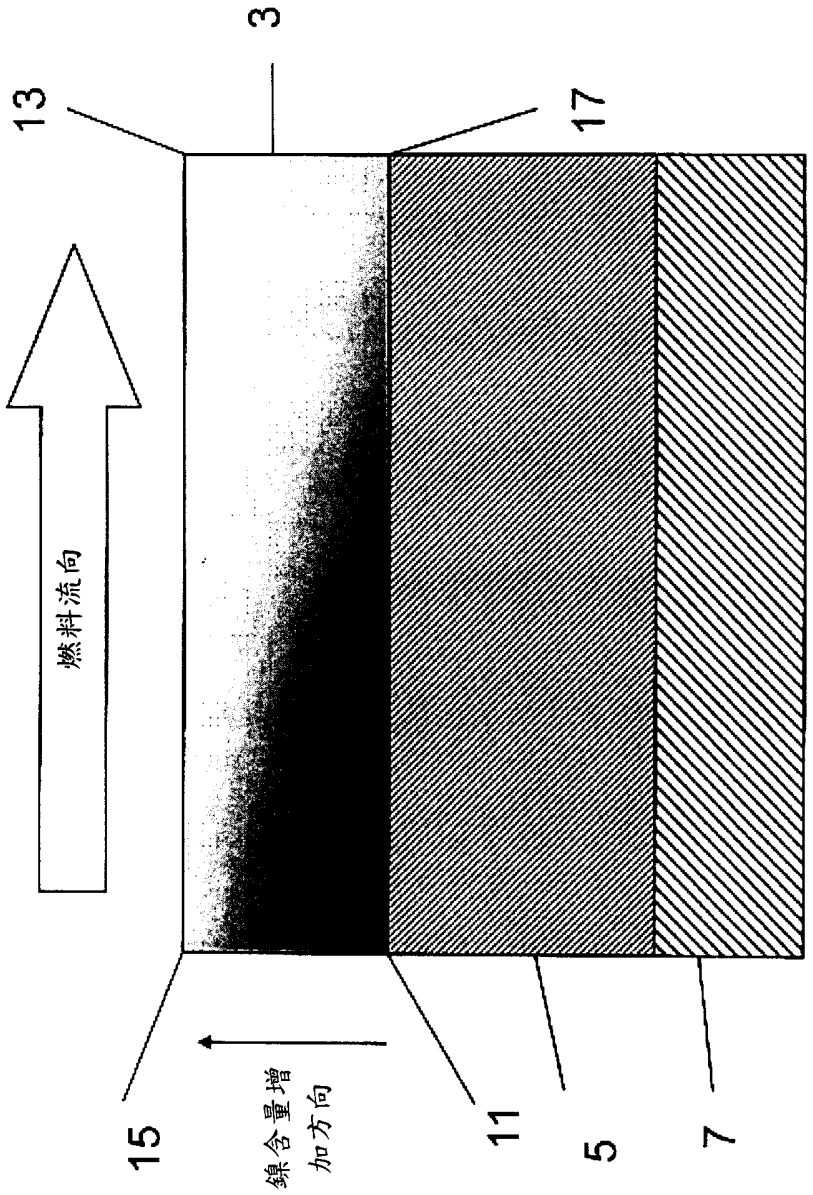


圖 2

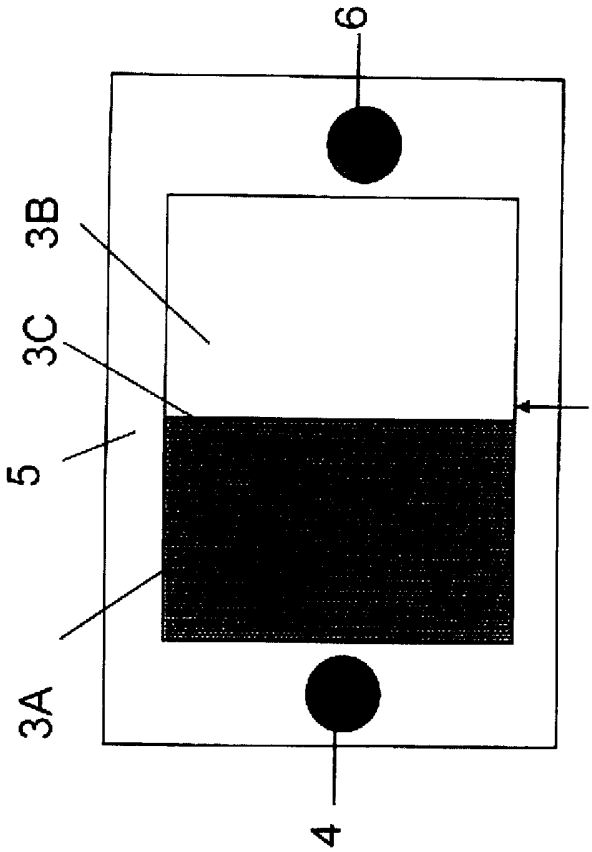


圖 3

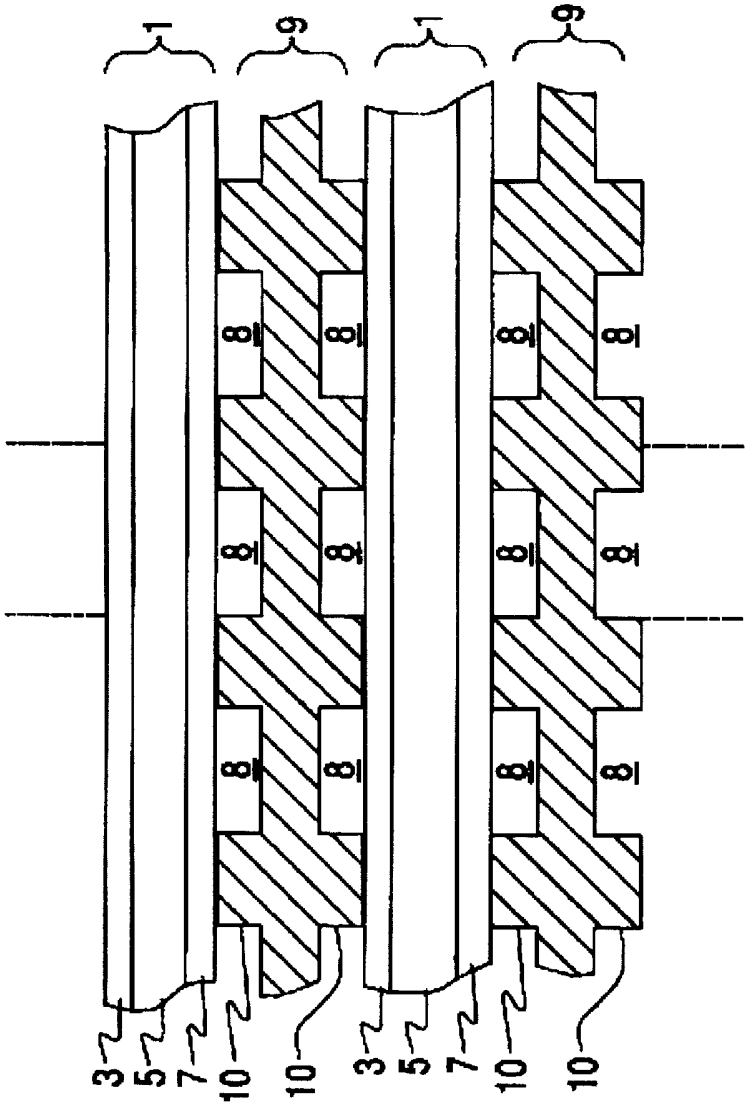


圖 4

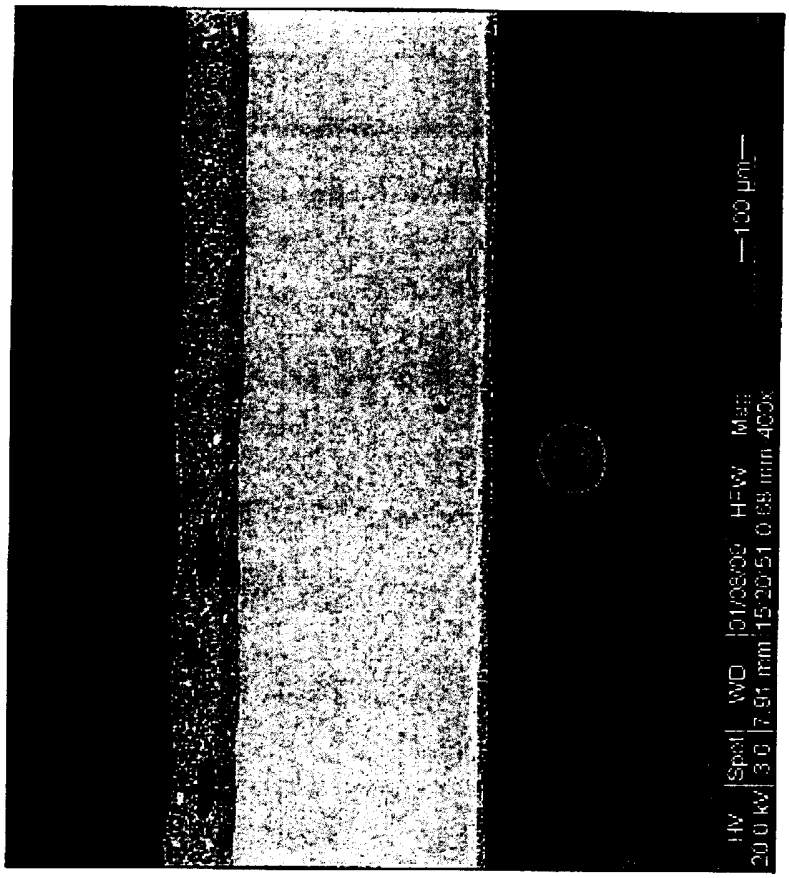

HV Spot WD 01/08/09 HFW Mag
20.0 kV 3.0 7.91 mm 15:20:51 0.68 mm 400x
—100 µm—

圖 5B

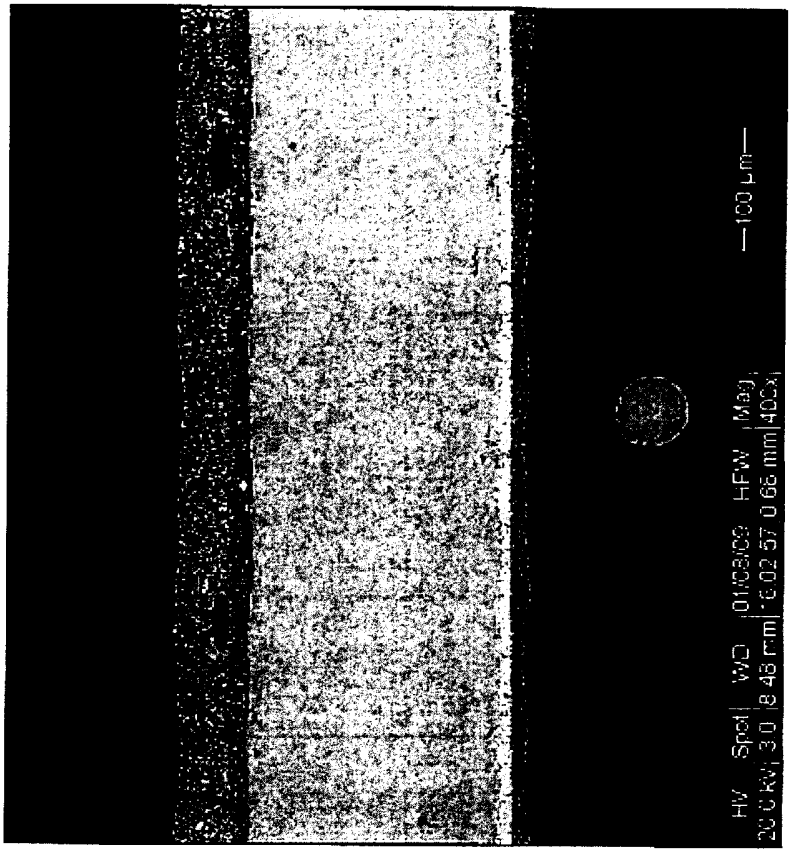

HV Spot WD 01/08/09 HFW Mag
20.0 kV 3.0 8.48 mm 16:02:57 0.66 mm 400x
—100 µm—

圖 5A

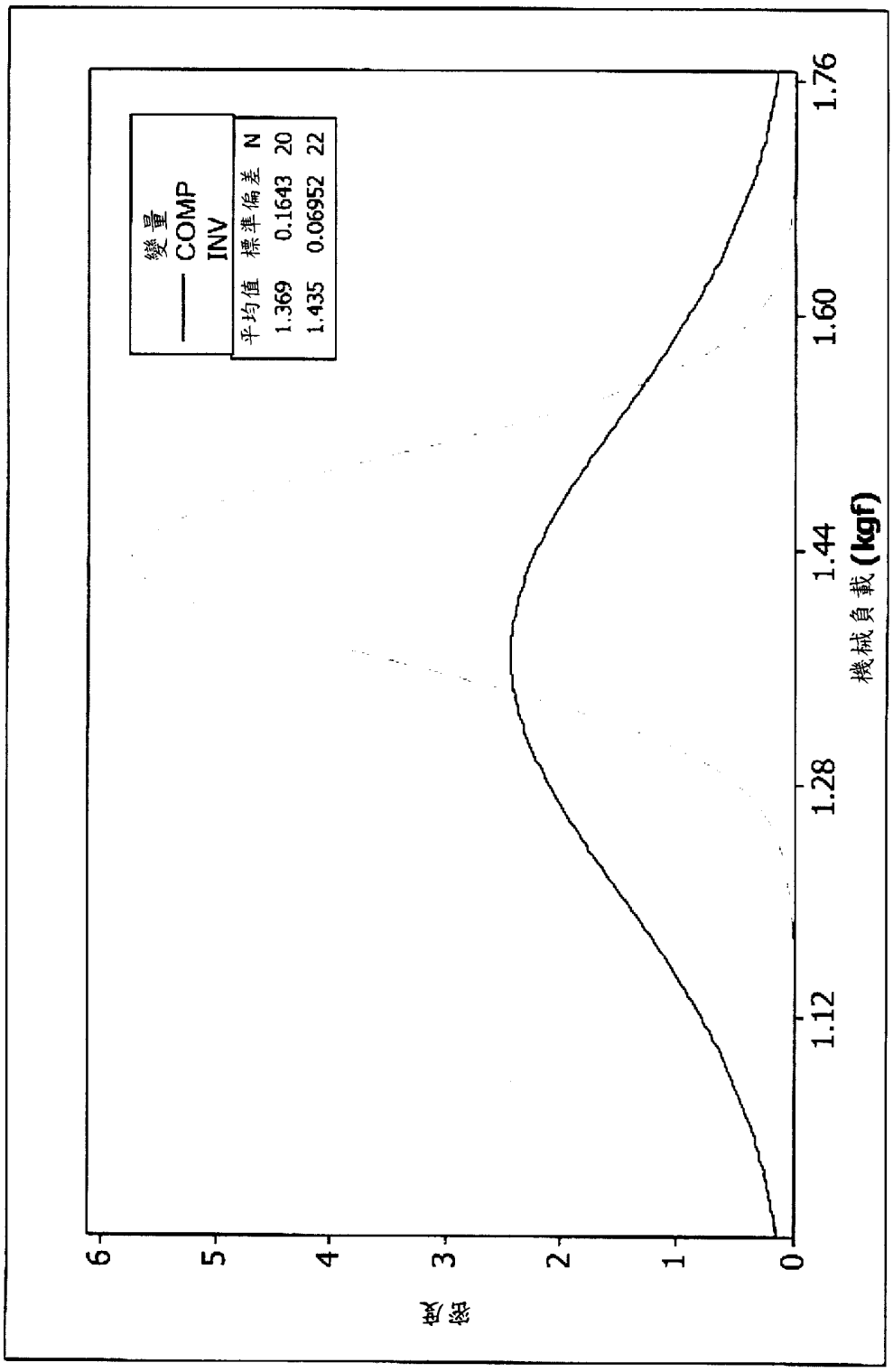

變量
COMP
INV
平均值 標準偏差 N
1.369 0.1643 20
1.435 0.06952 22
0
1
2
3
4
5
6
1.12
1.28
1.44
1.60
1.76
機械負載 (kgf)

圖 6

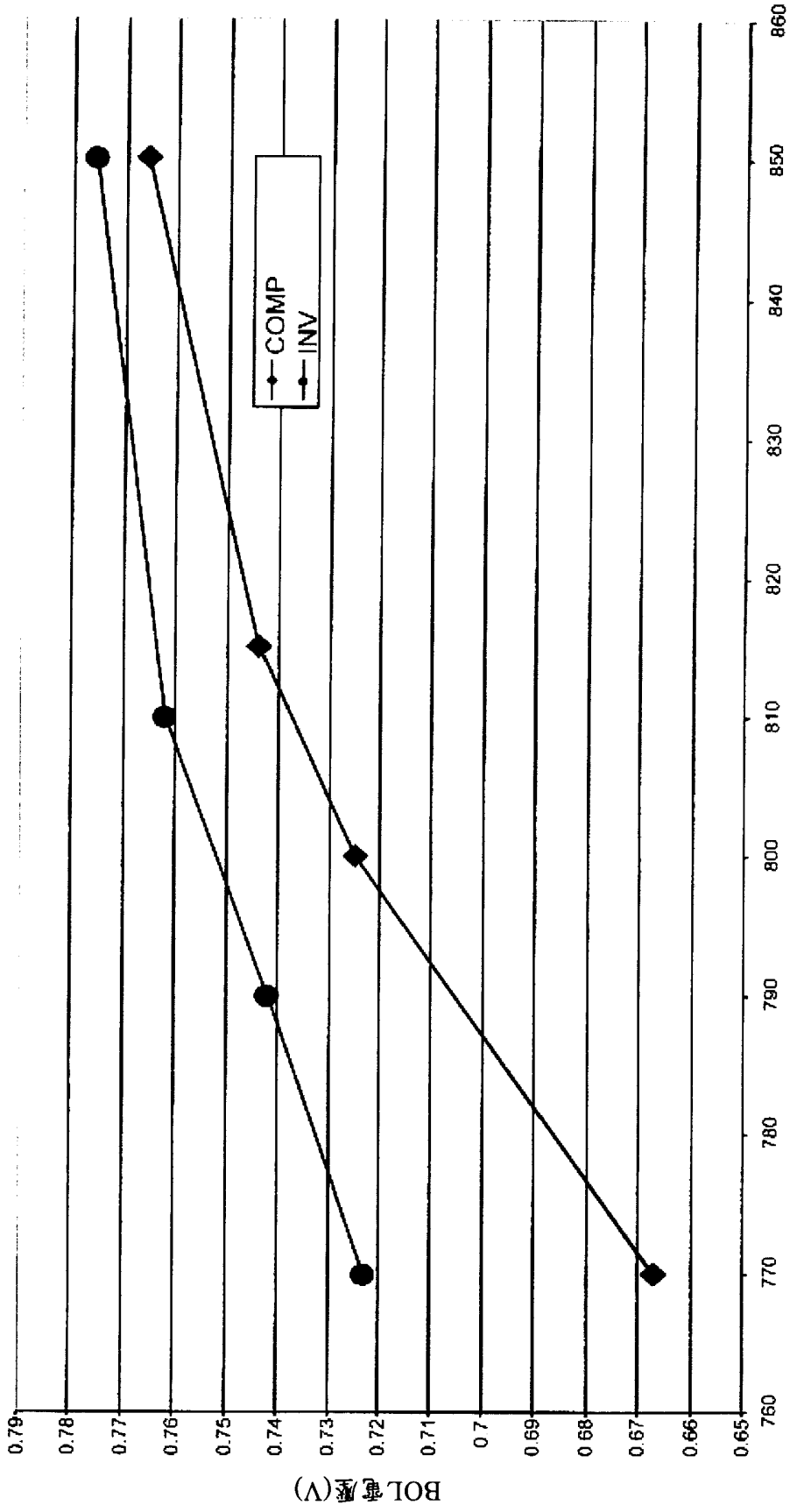

BOL電壓(V)
0.79
0.78
0.77
0.76
0.75
0.74
0.73
0.72
0.71
0.7
0.69
0.68
0.67
0.66
0.65
COMP
INV
760
770
780
790
800
810
820
830
840
850
860
溫度

圖 7

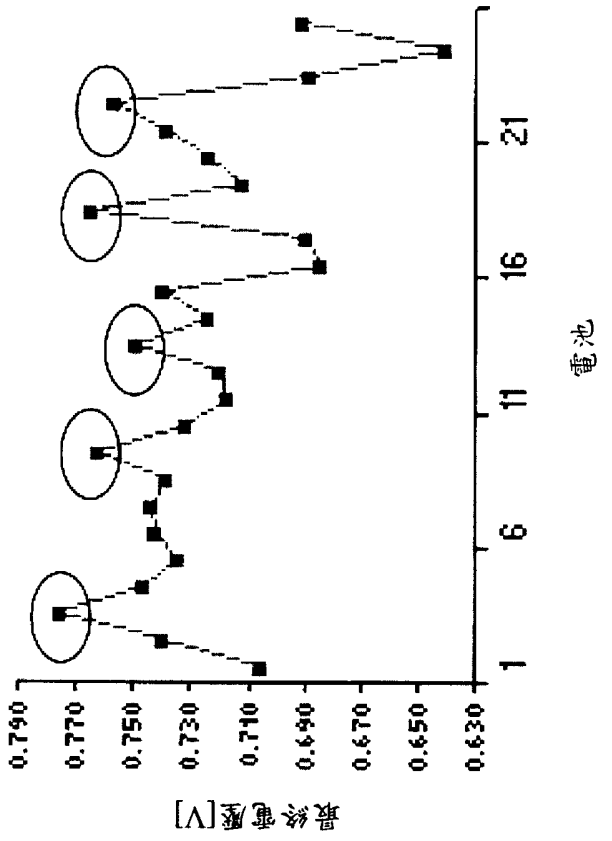

最終電壓[V]
0.790
0.770
0.750
0.730
0.710
0.690
0.670
0.650
0.630
1
6
11
16
21
電池

圖 8

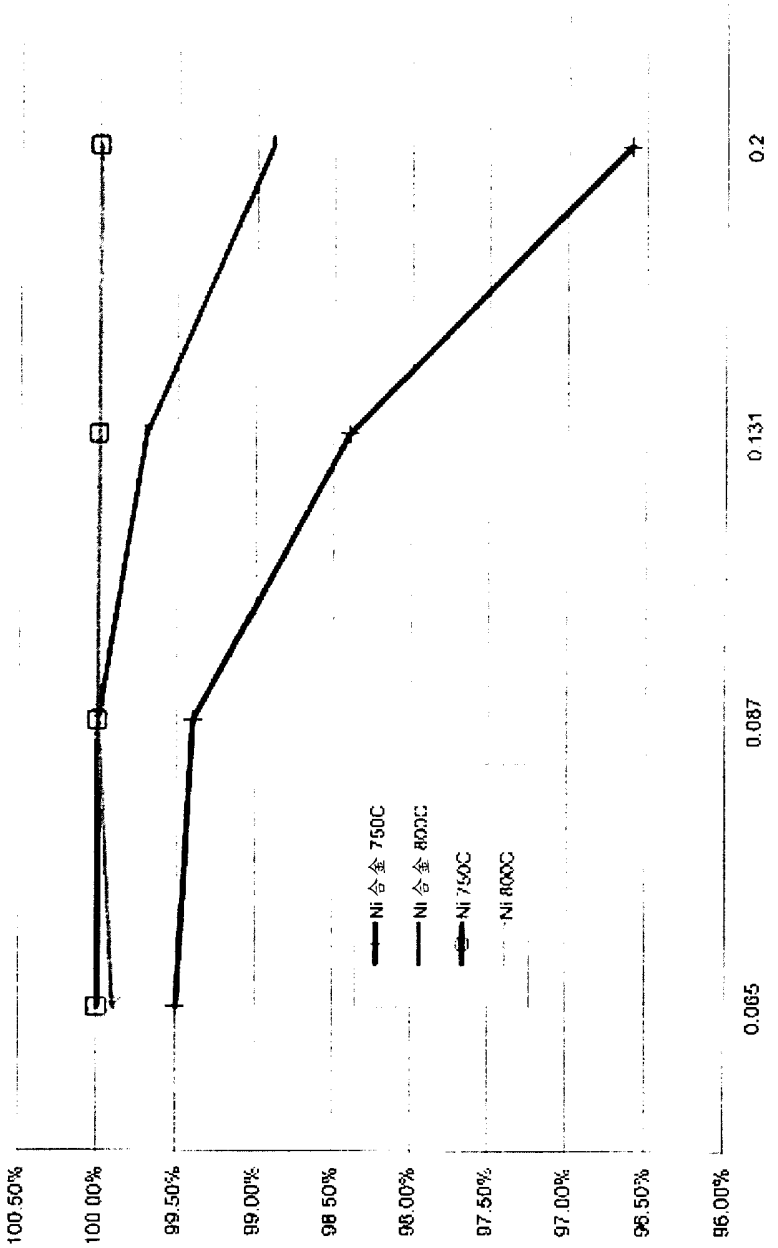

CH4轉化率相對於質量流速
100.50%
100.00%
99.50%
99.00%
98.50%
98.00%
97.50%
97.00%
96.50%
96.00%
Ni 合金 750C
Ni 合金 800C
Ni 750C
Ni 800C
0.065
0.087
0.131
0.2
質量流量 (slm)

圖 9

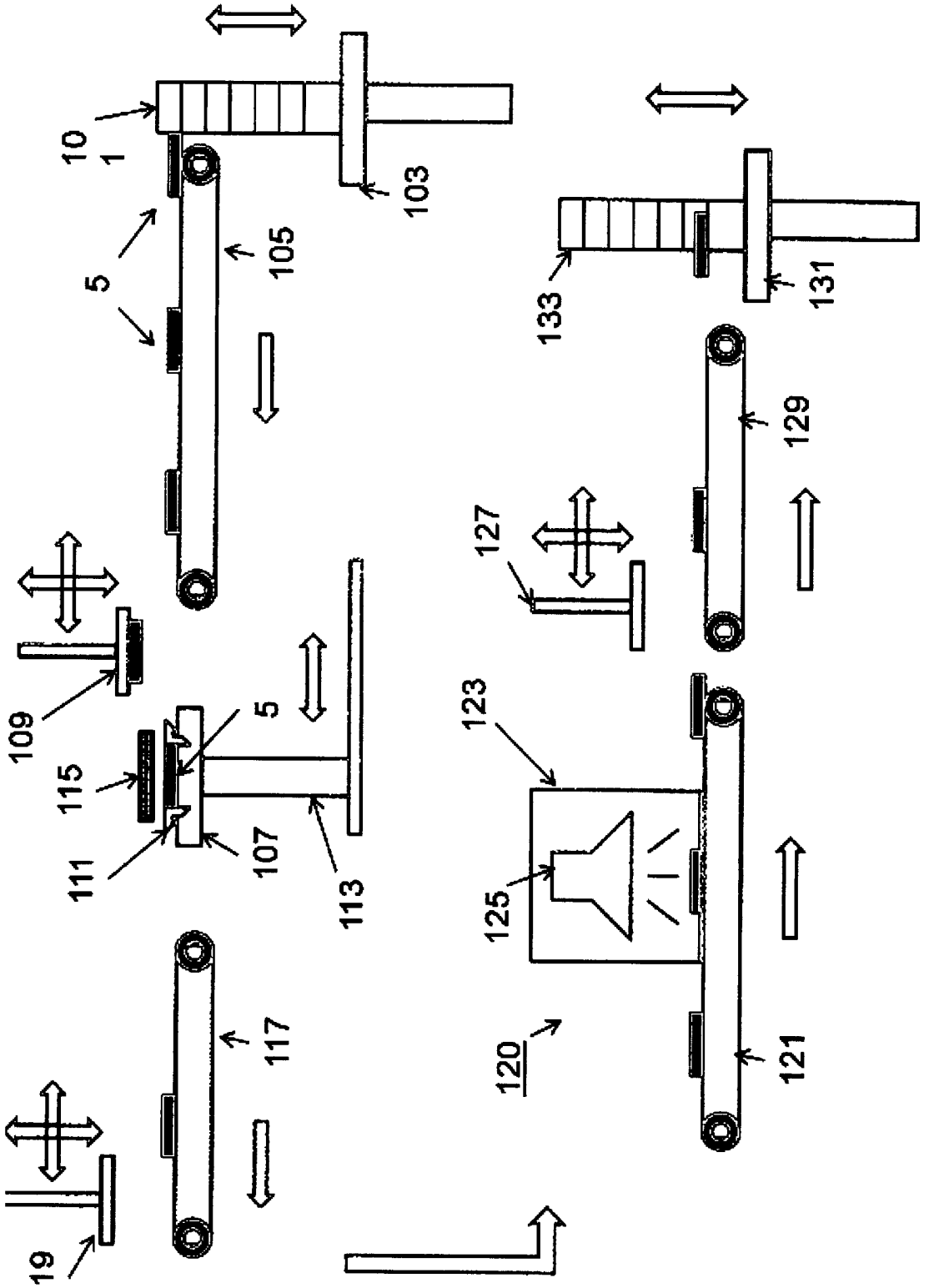

10
1
103
5
105
109
115
111
107
5
113
117
119
133
131
129
127
123
125
120
121

圖 10

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第（1）圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

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
13	陽極電極之第一部份
23	陽極電極之第二部份

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）