

211623

公告本

申請日期	81年6月8日
案號	81104455
類別	H01M 10/26

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

~~新穎~~發明專利說明書

一、發明名稱	中文	電化變換裝置及形成元件結構之覆蓋方法
	英文	Electrochemical converter assembly and overlay methods of forming component structures
二、發明人	姓名	徐世薰 Hsu Michael S.
	籍貫 (國籍)	美國
	住、居所	美國麻州01773·林肯·隆德希爾路 Round Hill Road Lincoln, Massachusetts 01773 USA
三、申請人	姓名 (名稱)	徐世薰 Hsu Michael S.
	籍貫 (國籍)	美國
	住、居所 (事務所)	美國麻州01773·林肯·隆德希爾路 Round Hill Road Lincoln, Massachusetts 01773 USA
	代表人 姓名	

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明 (1)

本發明之背景

本發明係關於採用固態氧化物電解質之電化變換器及其製法，以及採用此等組件或方法之組合體。

電化變換器，在燃料電池（發電機）模式中，實行燃料一對一電變換及在電解裝置（燃料合成器）模式中，實行電一對一燃料變換。僅基於電化反應的自由能與熱函間之關係，此等變換器能具有高效率。此等變換器並不受Carnot循環考慮所限制。

電化之能量變換器中之主要組件是一系列的電解質單元（將電極施加至其上）及相似系列的經配置在各電解質單元間之互連器而產生系列之電連接。每一電解質單元是具有低離子電阻之離子導體，容許在變換器之操作狀況下，輸送離子（種）類，自一個電極／電極界面至相對之電極／電極界面。

所熟知者：當在高溫下（例如大約1,000℃）操作時，各種固態氧化物電解質，例如：氧化鋯，使用各種化合物（例如，氧化鎂、氧化鈣或氧化釷）予以穩定者，可滿足此等要求。此等電解質物料利用氧離子來攜帶電流。該電解質不應是對於電子有傳導性，因電子可造成變換器短路。在另一方面，互連器必須是一種良好電子導體。

反應之氣體，電極和電解質的相互作用，係發生在電極／電解質界面上，它需要：各電極應充分多孔來容納反應之氣體類，並容許產物種類出口。

電化之變換器更進一步在下列各美國專利案中予以敘

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝  
訂  
線

## 五、發明說明 (2)

述：No. 4, 614, 628; 4, 629, 537 和 4, 721, 556; 所有此等均併入本文以供參考。尤其，USN 4, 614, 628 揭示：固態氧化物電解質構造及其形成之方法。根據此參考資料，此等電解質構造係經由下列 (1) 至 (5) 之操作予以製成：(1) 經由等離子體沈積，形成固態氧化物電解質層在一種基質上；(2) 自基質上，移下該固態氧化物層；(3) 燒結該固態氧化物層；(4) 沈積一種燃料電極材料在經燒結之固態氧化物層之一個表面上；及 (5) 沈積一種氧化劑 (或空氣) 電極材料在經燒結之固態氧化物層的第二表面上。

雖然根據此方法所形成之構造是令人滿意，但是燒結的步驟涉及增加成本且耗時。使用此方法，亦有缺點即：由於在隨著步驟 2 後之處理期間，於處理它時，可能損害及電解質，所以相當低之產量。當製造互連器板時，遇到相似之困難，尤其當使用導電之陶瓷物料時。因此，可能需要提供：用以形成此等構造之經變更之步驟及 / 或序列之另種方法。

因此，本發明的一個目的是提供製造供使用於電化能量變換器中之固態氧化物電解質及 / 或互連器構造之較為經濟而可靠之方法。亦是本發明之一個目的在提供各種方法，它將在其形成期間，損壞或破壞各板的危險減至最少。本發明的此等及其他目標，對於精於此項技藝之人士，自下列之內容，將顯然可見。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝  
訂  
線







## 五、發明說明 (6)

解質 / 電極板 1 0 (如圖 1 D 中所示) 與基質相分離, 舉例而言, 經由機械或人工方法。

在圖 2 A、2 B、2 C 與 2 D 中, 相似之電解質 / 電極板 1 0 A 經由倒轉各步驟之順序予以形成, 即, 經由首先沈積陰極 (氧化劑電極) 物料 1 8 (圖 2 A 中), 繼以沈積電解質層 1 6 (圖 2 B 中), 然後沈積陽極 (燃料電極) 層 1 2 (圖 2 C 中)。隨著完成陽極沈積後, 將板 1 0 A 自基質 1 4 上移下, 如圖 2 D 中所示。

在圖 3 A、3 B、3 C 與 3 D 中, 互連器板 2 1 係由經由一種技術, 例如: 等離子體沈積, 首先沈積一種陽極 (燃料電極) 物料 1 2 在固態基質 1 4 上予以製成, 如圖 3 A 中所示。在陽極物料 1 2 固化後, 經由等離子體沈積等, 將一個互連器塗層 2 3 蓋覆在陽極 1 2 之經暴露表面上, 如圖 3 B 中所示。然後, 再度宜經由沈積, 將一個陰極 (氧化劑電極) 物料 1 8 施加在互連器塗層 2 3 上, 如圖 3 C 中所示。然後將所產生之互連器板 2 3 (如圖 3 D 中所示) 與基質相分離, 舉例而言, 經由機械或人工方法。

在圖 4 A、4 B、4 C 與 4 D 中, 相似之互連器板 2 1 A 係由倒轉各步驟之順序予以形成, 即, 經由首先沈積陰極 (氧化劑電極) 物料 1 8 (圖 4 A 中), 繼以沈積互連器層 1 6 (圖 4 B 中), 然後沈積陽極 (燃料電極) 層 1 2 (圖 4 C 中)。隨著完成陽極沈積後, 將板 2 1 A 自基質 1 4 上移下, 如圖 4 D 中所示。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝  
訂  
線

## 五、發明說明 (7)

金屬陶瓷是供使用以形成本發明之陽極層的較佳物料，舉例而言，包括：沈積  $ZrO_2 / Ni$  或  $ZrO_2 / NiO$ 。陰極物料宜包括一種鈣鈦礦物料，例如： $LaMnO_3 (Sr)$ 。經形成作為經蓋覆層之電解質，如圖 1 A 至 1 D 及 2 A 至 2 D 中所示者，包括一種陶瓷，例如以由氧化鎂、氧化鈣、氧化釷及其混合物所組成之該團中所選出之一種物料予以穩定化之氧化鋯。當將互連器形成為多層構造時，如圖 3 A - 3 D 中及 4 A - 4 D 中所示者，它可以由金屬、金屬、氧化物、合金、金屬陶瓷或碳化物予以造成。例示之導電性互連物料包括：鉑、 $Cr - Ni - Fe$  合金、 $Ni$  合金、 $La (Sr) CrO_3$  金屬陶瓷和  $SiC$ 。典型，此等層的每一者（例如：陽極、陰極、電解質及 / 或互連器），係以範圍在大約  $25 \mu m$  至大約  $300 \mu m$  間之厚度予以施加；宜自大約  $50 \mu m$  至大約  $250 \mu m$ 。

如上文所述及，經蓋覆之構造各個別層可以經由等離子體沈積予以形成。在此技術中，典型，將欲予沈積之物料，以粉末形成，懸浮入工作氣體中，然後使懸浮體通經電弧放電。將物料粒子加熱至熔融狀態，並自噴嘴射出至基質上，或先前所沈積之層上。此項技藝在該項技藝中是眾所周知，且各種系統（此等系統便利它）在商業上可供利用，舉例而言，包括：由麻州，Westborough市之Bay State磨料公司）所造之Bay State等離子體噴射系統。另種方式，沈積可經由其他方法予以實現，包括：熱等離

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝  
訂  
線

## 五、發明說明 (8)

子體沈積和化學沈積等方法。

可再使用之基質物料，宜包括一種物料例如：  
Cu、Al 或 C。可以將完成之電解質／電極及／或互連  
器等板，經由各種技術，自基質上移下，包括：機械衝擊  
或熱淬火。

在一種另外之方法中（在圖 5 A、5 B、5 C 和 5 D  
中所示），使用為精於該項技藝者熟悉之掩蔽技術，可將  
一種或其他電極（例如：陰極 2 2）形成具有流動通過之  
圖樣。尤其，一旦電解層 1 6 固化（或在將電極層部份沈  
積後），可以將噴在其上，或屏蔽在其上，或機械之掩蔽  
物料 2 4 選擇性施加來防止陰極物料 2 2 的局部化聚積（  
圖 5 B）。隨著沈積陰極層 2 2 後，掩蔽 2 4 可以經由熱  
或化學方法予以移去而暴露出通道外形（圖 5 C）。當將  
掩蔽 2 4 移去時，可以使用所述之技術，將現在具有通道  
之板 1 0 B 自基體 1 4 上移下。另種方法，通道可以在將  
電極層經由掩蔽構造之頂部予以沈積，然後選擇性蝕刻掉  
部份的電極而造成通道後，予以形成。

當然，應了解者：可再度倒轉上述之陽極物料和陰極  
物料之施加順序（關於有通道之構造）。即，可以將陰極  
物料起始施加至基質上，繼以沈積電解質和陽極物料；然  
後，創造氣體通過通道之網路在陽極層中。相似，亦可同  
樣將通道形成在多層互連器板的陽極層或陰極層中。

可以將本發明之板構造用於電化能量變換器中，其中  
，各電解質／電極板及互連器板，係以交錯關係予以堆疊

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝  
訂  
線







四、中文發明摘要(發明之名稱：

**電化變換裝置及形成元件結構之覆蓋方法**

本文中所揭示者，是形成高性能，電化變換器組件之方法。此等組件係由形成第一電極物料在一種基質上予以製造。其次，將一種薄電解質或互連器塗層沈積在該電極物料上。在最後步驟中，將第二電極物料沈積在電解質上，或互連器上，並將完全構造自基質上移下。可以使用經由本發明之方法所形成之電解質／電極板和互連器板，來製造電化變換器。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

英文發明摘要(發明之名稱：

**ELECTROCHEMICAL CONVERTER ASSEMBLY  
AND OVERLAY METHODS OF FORMING  
COMPONENT STRUCTURES**

Disclosed is a method of forming high performance, electrochemical converter components. The components are manufactured by forming a first electrode material on a substrate. Next, a thin electrolyte or interconnector coating is deposited on the electrode material. In the final step, a second electrode material is deposited on the electrolyte or interconnector, and the complete structure is removed from the substrate. The electrolyte/electrodes plates and interconnector plates formed by the method of this invention may be used in the manufacture of electrochemical converters.

訂

線

附註：本案已向

國(地區) 申請專利，申請日期：

案號：

美國

1991.6.4

710,767

## 六、申請專利範圍

1. 一種形成固態氧化物電解質／電極板之方法，包括下列各步驟：

沈積第一電極物料在一基質上；

沈積一薄電解質塗層在第一電極物料上；

沈積第二電極物料在固態電解質層上；及

移除基質而產生固態氧化物電解質板。

2. 如申請專利範圍第1項之方法，其中，第一電極物料是燃料電極。

3. 如申請專利範圍第2項之方法，其中，燃料電極物料是  $ZrO_2 / Ni$  或  $ZrO_2 / NiO$ 。

4. 如申請專利範圍第2項之方法，其中，第二電極是一種氧化劑電極物料。

5. 如申請專利範圍第4項之方法，其中，氧化劑電極物料是  $La(Sr)MnO_3$ 。

6. 如申請專利範圍第1項之方法，其中，電解質是一種離子式導體。

7. 如申請專利範圍第6項之方法，其中，電解質塗層是  $ZrO_2 / Y_2O_3$ 。

8. 如申請專利範圍第1項之方法，其中，第一電極物料是一種氧化劑電極。

9. 如申請專利範圍第8項之方法，其中，氧化劑電極物料是  $La(Sr)MnO_3$ 。

10. 如申請專利範圍第1項之方法，其中，第二電極物料是一種燃料電極。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

1 1 . 如申請專利範圍第 1 0 項之方法，其中，燃料電極物料是  $ZrO_2/Ni$  或  $ZrO_2/NiO$ 。

1 2 . 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中，該方法另外包括：形成一種通道圖型在至少一個的電極物料中。

1 3 . 一種電解質／電極板，係由申請專利範圍第 1 項之方法予以形成。

1 4 . 一種形成互連器板之方法，包括下列各步驟：

沈積第一電極物料在一基質上；

沈積一薄互連器塗層在第一電極物料上；

沈積第二電極物料在固態互連器層上；及

移除基質而產生固態氧化物互連器板。

1 5 . 如申請專利範圍第 1 4 項之方法，其中，第一電極物料是燃料電極。

1 6 . 如申請專利範圍第 1 5 項之方法，其中，燃料電極物料是  $ZrO_2/Ni$  或  $ZrO_2/NiO$ 。

1 7 . 如申請專利範圍第 1 4 項之方法，其中，第二電極是一種氧化劑電極物料。

1 8 . 如申請專利範圍第 1 7 項之方法，其中，氧化劑電極物料是  $La(Sr)MnO_3$ 。

1 9 . 如申請專利範圍第 1 4 項之方法，其中，互連器包括一種電子式導電之物料。

2 0 . 如申請專利範圍第 1 9 項之方法，其中，互連器是  $La(Sr)CrO_3$ 。

2 1 . 如申請專利範圍第 1 4 項之方法，其中，第一

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

211023

六、申請專利範圍

電極物料是一種氧化劑電極。

22. 如申請專利範圍第22項之方法，其中，氧化劑電極物料是  $\text{La}(\text{Sr})\text{MnO}_3$ 。

23. 如申請專利範圍第14項之方法，其中，第二電極物料是一種燃料電極。

24. 如申請專利範圍第10項之方法，其中，燃料電極物料是  $\text{ZrO}_2/\text{Ni}$  或  $\text{ZrO}_2/\text{NiO}$ 。

25. 如申請專利範圍第14項之方法，其中，該方法另外包括：形成一種通道圖型在至少一個的電極物料中。

26. 一種互連器／電極板，係由申請專利範圍第14項之方法予以形成。

27. 一種形成複合電池堆疊之方法，包括下列各步驟：

- a. 沈積第一電極物料在一基質上；
  - b. 沈積一薄電解質塗層在第一電極物料上；
  - c. 沈積第二電極物料在固態電解質層上；及
  - d. 沈積一薄互連器塗層在第二電極物料上；
  - e. 沈積第一電極物料在互連器塗層上；
- 重複步驟 b、c、d 和 e 之上述循環；及  
移除基質而產生複合多個電池堆疊構造。

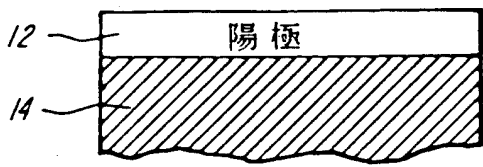
28. 一種複合電化電池堆疊，係由申請專利範圍第27項之方法予以形成。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

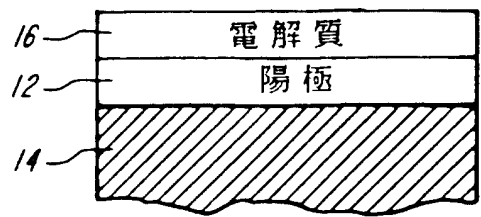
裝

訂

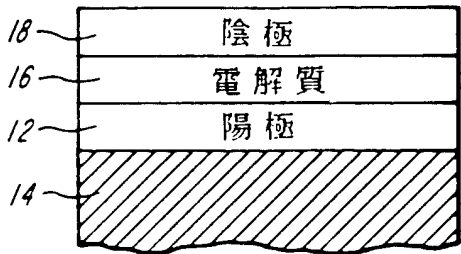
線



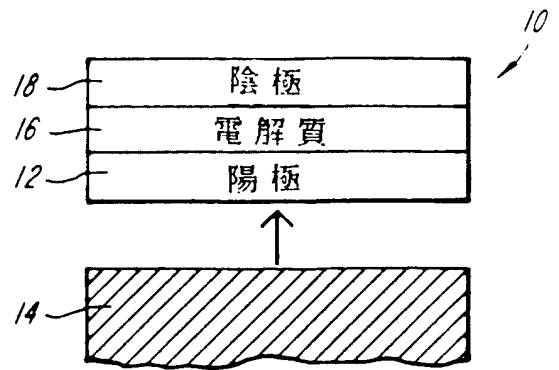
第 1A 圖



第 1B 圖



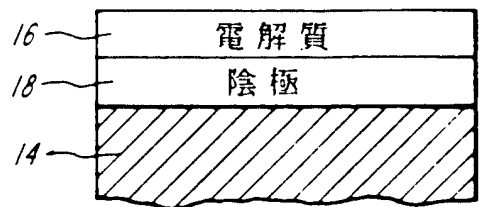
第 1C 圖



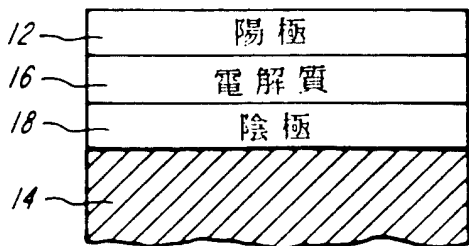
第 1D 圖



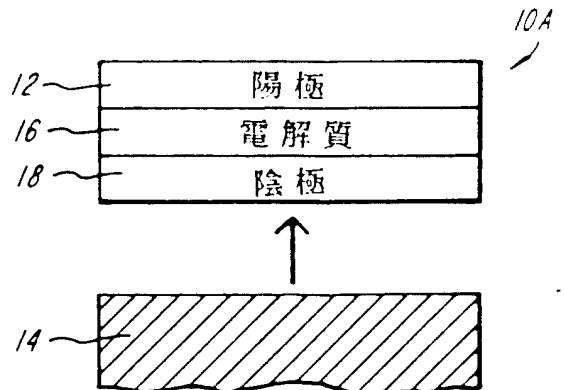
第 2A 圖



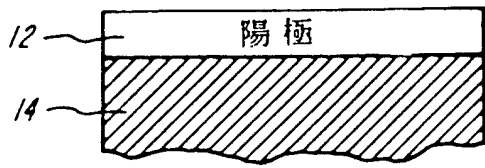
第 2B 圖



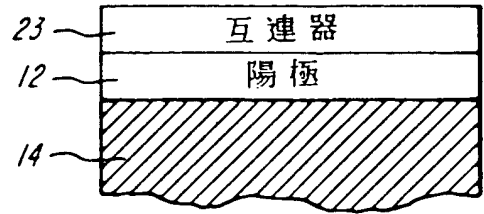
第 2C 圖



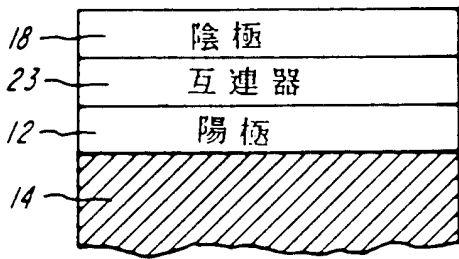
第 2D 圖



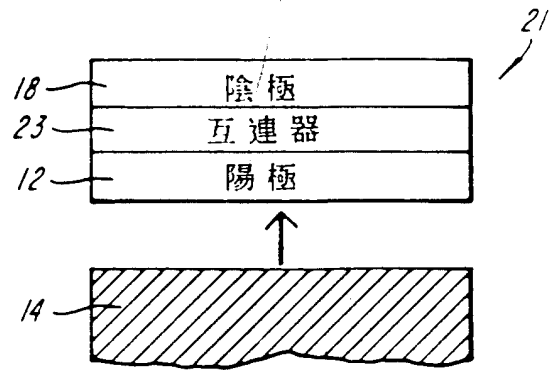
第3A圖



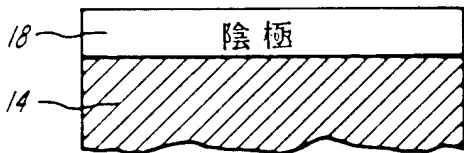
第3B圖



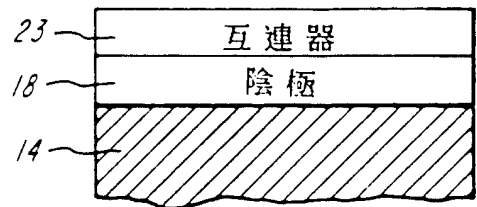
第3C圖



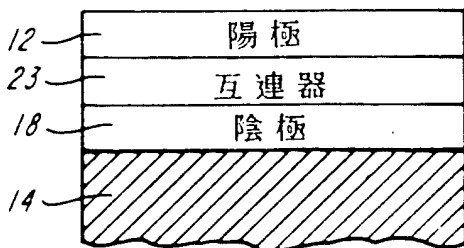
第3D圖



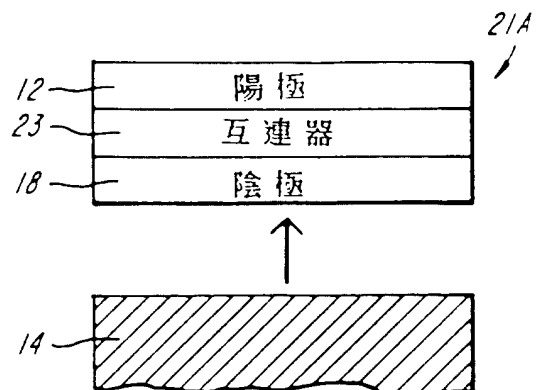
第4A圖



第4B圖

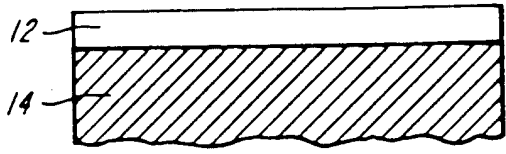


第4C圖

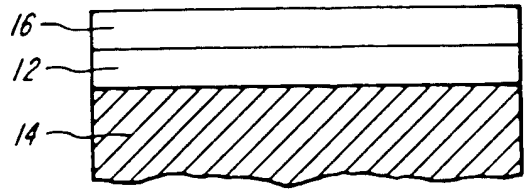


第4D圖

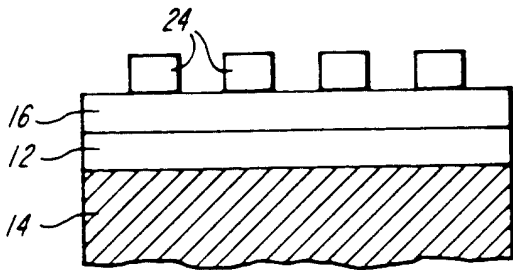
211623



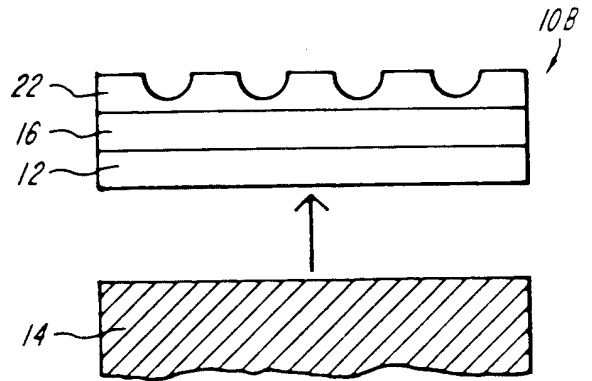
第5A圖



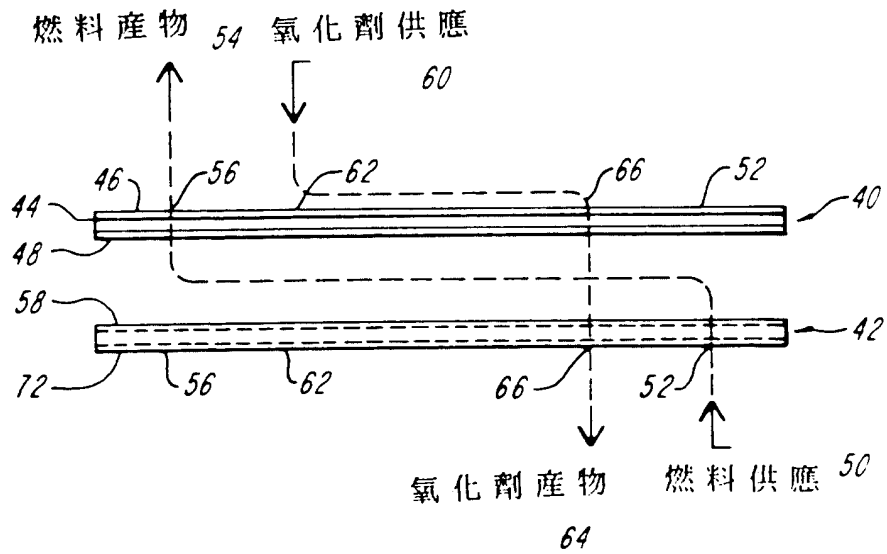
第5B圖



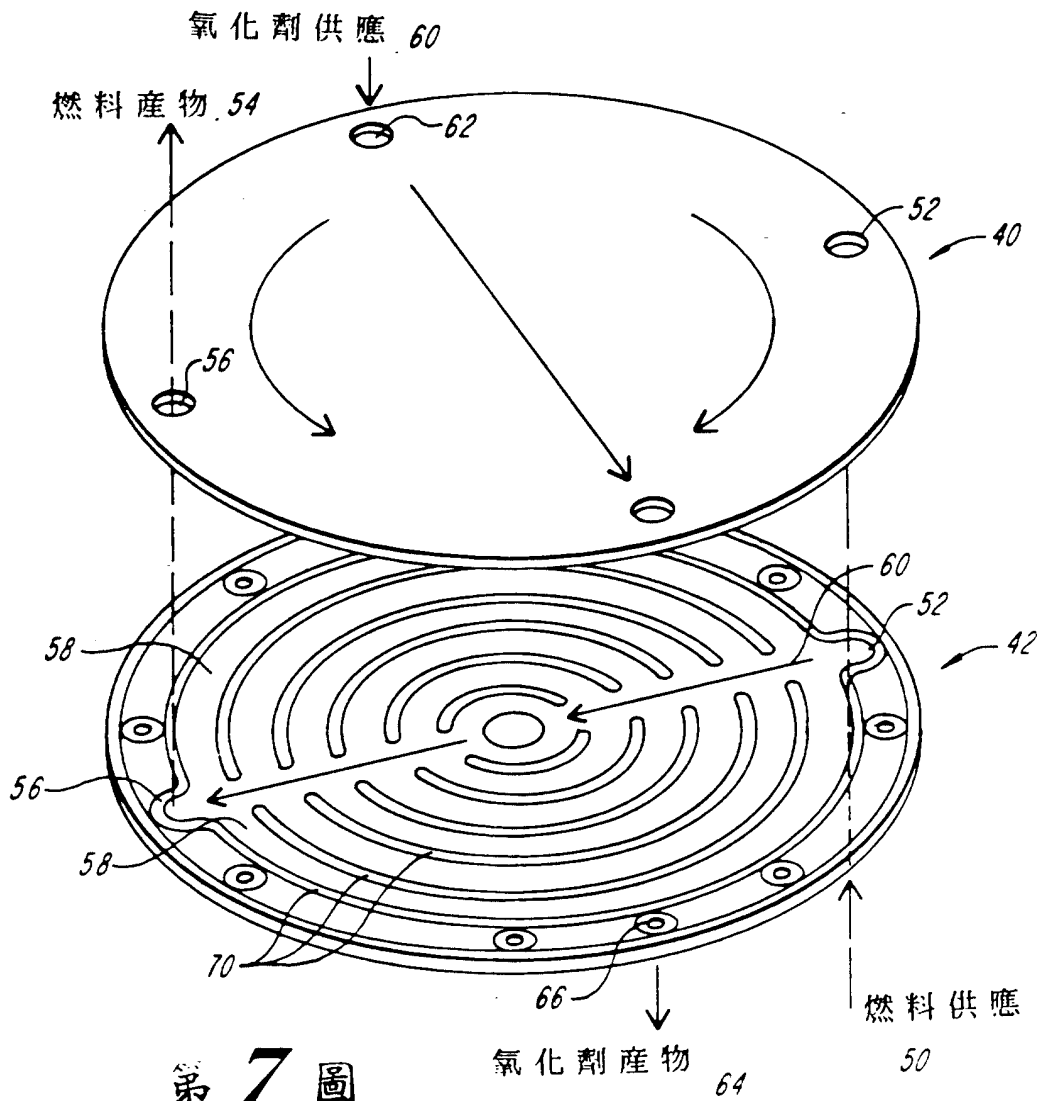
第5C圖



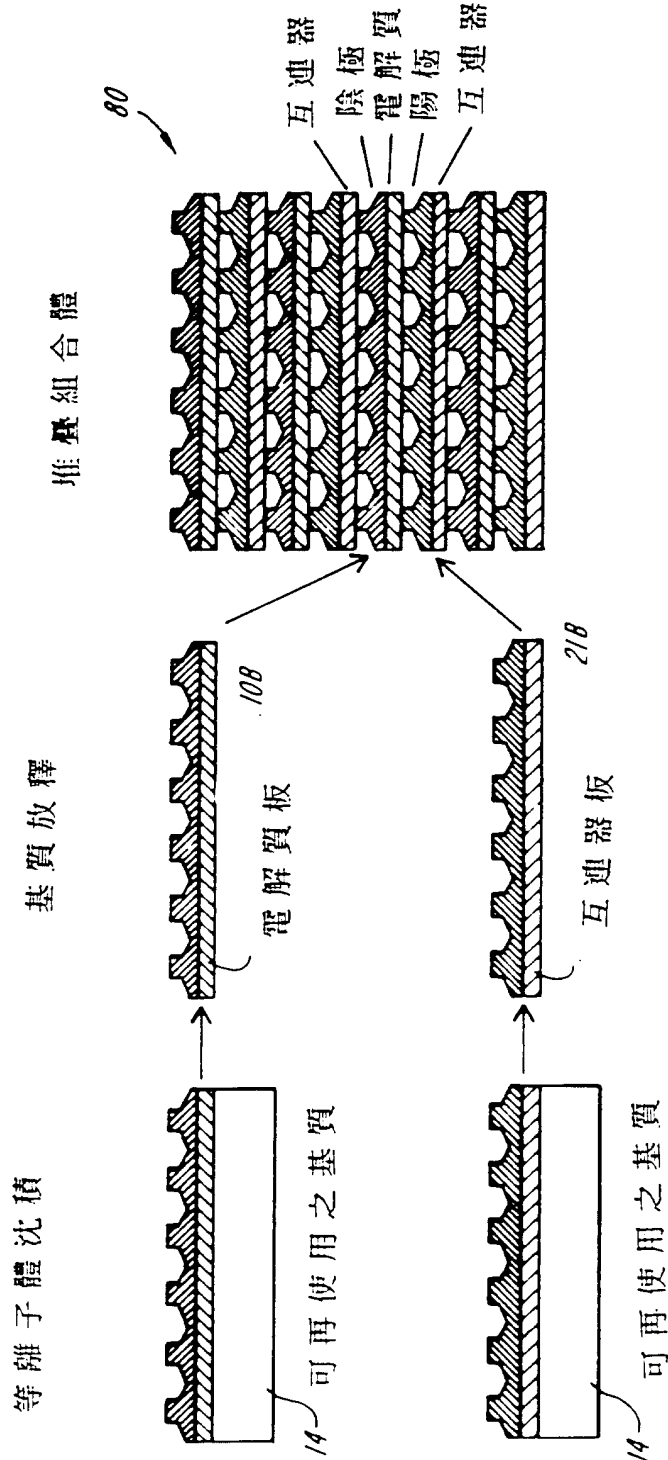
第5D圖



第6圖

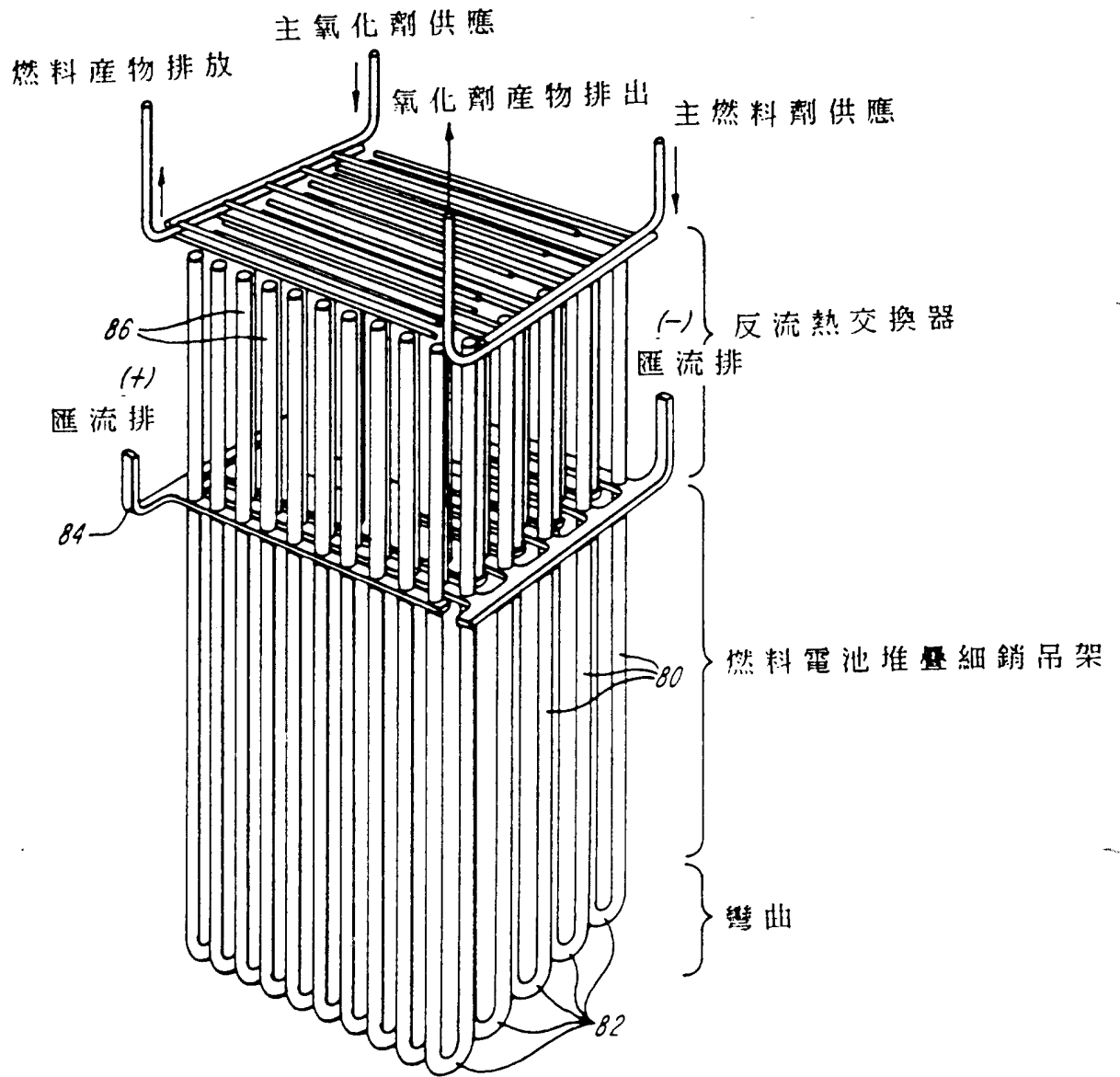


第 7 圖



第 8 圖

211623



第 9 圖