



- (51) 국제특허분류:
H01M 8/12 (2006.01) H01M 8/02 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2011/009734
- (22) 국제출원일: 2011년 12월 16일 (16.12.2011)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2010-0129331 2010년 12월 16일 (16.12.2010) KR
- (71) 출원인 (US 을(를) 제외한 모든 지정국에 대하여): 한국
에너지기술연구원 (KOREA INSTITUTE OF EN-
ERGY RESEARCH) [KR/KR]; 대전광역시 유성구 장
동 71-2, 305-343 Daejeon (KR).
- (72) 발명자: 권
- (75) 발명자/출원인 (US 에 한하여): 유지행 (YU, Ji-Haeng)
[KR/KR]; 대전광역시 서구 도안동 수목토아파트 102-
1404, 302-318 Daejeon (KR). 이희락 (LEE, Hee-Lak)
[KR/KR]; 대전광역시 서구 갈마동 295-24 지나동 302
호, 302-170 Daejeon (KR). 한인섭 (HAN, In-Sub)
[KR/KR]; 충청남도 금산군 추부면 장대리 230-1, 312-
942 Chungcheongnam-do (KR). 서두원 (SEO, Doo-Won)
[KR/KR]; 대전광역시 유성구 신성동 대림두레아파트

102 동 104 호, 305-720 Daejeon (KR). 홍기석 (HONG,
Kee-Seog) [KR/KR]; 대전광역시 서구 둔산 2 동 908-3
은조롱아파트 302 호, 302-827 Daejeon (KR). 김세영
(KIM, Se-Young) [KR/KR]; 경기도 성남시 분당구 야
탑동 목련마을아파트 601 동 804 호, 463-070 Gyeonggi-
do (KR). 우상국 (WOO, Sang-Kuk) [KR/KR]; 대전광역시
유성구 지족동 반석마을아파트 202 동 702 호, 305-
772 Daejeon (KR). 김선동 (KIM, Sun-Dong) [KR/KR];
대전광역시 유성구 반석동 612 반석마을아파트 703 동
2104 호, 305-150 Daejeon (KR).

(74) 대리인: 한양특허법인 (HANYANG PATENT FIRM);
서울특별시 강남구 도곡동 412-1 한양빌딩, 135-854
Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의
국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO,
AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA,
CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ,
EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR,
HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KZ, LA,
LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK,
MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE,
PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG,
SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ,
UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[다음 쪽 계속]

(54) Title: FLAT TUBULAR OR PLATE TYPE SOLID OXIDE FUEL CELL

(54) 발명의 명칭 : 평관형 또는 평판형 고체 산화물 연료전지

[도 3]



(57) Abstract: The present invention relates to a solid oxide fuel cell comprising: a plurality of unit cells; and connection layers among the plurality of unit cells. Each unit cell includes a negative pole; a positive pole; and a solid electrolyte between the negative pole and the positive pole. Each connection layer includes i) a first layer comprising La-ferrite containing one or more selected from a group consisting of Sr, Ca and Ba; and ii) a second layer comprising La-ferrite containing one or more selected from a group consisting of Sr, Ca and Ba, and one or more cerias selected from a group consisting of Gd-doped ceria (GDC), La-doped ceria (LDC) and Sm-doped ceria (SDC), wherein the first layer contacts the positive pole of each unit cell and the second layer contacts the negative pole of each unit cell.

(57) 요약서:

[다음 쪽 계속]



(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

규칙 4.17에 의한 선언서:

— 특허출원 및 특허를 받을 수 있는 출원인의 자격에 관한 선언 (규칙 4.17(ii))

공개:

— 국제조사보고서 없이 공개하며 보고서 접수 후 이를 별도 공개함 (규칙 48.2(g))

본 발명은 고체 산화물 연료전지로서, 다수의 단위셀; 및 상기 다수의 단위셀 사이의 연결재층을 포함하고, 상기 단위셀은, 음극; 양극; 및 상기 음극 및 양극 사이에 고체 전해질을 포함하고, 상기 연결재층은, i) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트를 포함하는 제 1 층; 및 ii) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트와, GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아를 포함하는 제 2 층을 포함하며, 상기 제 1 층은 각각의 단위셀의 양극과 접촉하며, 상기 제 2 층은 각각의 단위셀의 음극과 접촉하는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지에 관한 것이다.

【명세서】

평판형 또는 평판형 고체 산화물 연료전지

【기술분야】

본 발명은 평판형 또는 평판형 고체 산화물 연료전지에 관한 것이다. 본 출원은 2010년 12월 16일에 한국 특허청에 제출된 한국 특허 출원 제10-2010-0129331호의 출원일의 이익을 주장하며, 그 내용 전부는 본 명세서에 포함된다.

【배경기술】

고체 산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell: 이하, SOFC라 한다.)의 단위셀은 산소 이온 전도성을 갖는 전해질과 그 양면에 위치한 음극 및 양극으로 이루어져 있다. 각 전극에 산소와 수소를 각각 공급하면, 양극에서 산소의 환원반응을 통해 생성된 산소이온이 전해질을 지나 양극으로 이동한 다음 음극에 공급된 수소와 반응하여 물을 형성하게 된다. 이때 음극에서 생성된 전자가 양극으로 전달되어 소모되는 과정에서 외부 회로로 전자가 흐르게 되므로 이를 이용하여 전기 에너지를 생산하는 것이다.

상기 단위셀은 연결재로 연결되어 있다. 보다 상세하게 설명하면, 연결재는 기본적으로 한 셀의 음극과 이웃하는 셀의 양극을 전기적으로 연결한다. 또한 연결재는 음극에 공급되는 공기가스와 양극에 공급되는 연료가스의 혼합을 물리적으로 차단하는 역할을 해야 한다. 상기 연결재는 금속 연결재와 세라믹 연결재가 주로 사용된다.

상기 세라믹 연결재의 경우, 고온에서의 기계적 성질이 우수하지만 치밀하지 못하여 가스가 누출되거나, 전극과 반응하거나, 연료전지의 작동 중에 전극과 박리되는 문제가 발생된다.

【발명의 상세한 설명】

【기술적 과제】

본 발명의 목적은 막이 치밀하여 가스가 누출되지 않는 연결재층을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 제공하는 것이다.

본 발명의 목적은 다공성 전극 상에 치밀하게 코팅 가능한 연결재층을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 제공하는 것이다.

본 발명의 목적은 전극과 반응하지 않는 연결재층을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 제공하는 것이다.

본 발명의 목적은 연료전지의 작동 중에 전극과 박리되지 않는 연결재층을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 제공하는 것이다.

【기술적 해결방법】

본 발명은 고체 산화물 연료전지로서, 다수의 단위셀; 및 상기 다수의 단위셀 사이의 연결재층을 포함하고, 상기 단위셀은, 음극; 양극; 및 상기 음극 및 양극 사이에 고체 전해질을 포함하고, 상기 연결재층은, i) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트를 포함하는 제 1층; 및 ii) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트와, GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아를 포함하는 제 2층을 포함하며, 상기 제 1층은 각각의 단위셀의 양극과 접촉하며, 상기 제 2층은 각각의 단위셀의 음극과 접촉하는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지를 제공한다.

【유리한 효과】

본 발명의 고체 산화물 연료전지에 포함되는 연결재층은 막이 치밀하여 가스가 누출되지 않고, 다공성 전극 상에 치밀하게 코팅 가능하다. 본 발명의 고체 산화물 연료전지에 포함되는 연결재층은 전극과 반응하지 않으며, 연료전지의 작동 중에 전극과 박리되지 않는다. 본 발명의 고체산화물 연료전지에 포함되는 연결재층은 충분한 전도성을 가지기 때문에 단위셀 사이를 전기적으로 연결시킨다.

【도면의 간단한 설명】

도 1은 본 발명에 따른 고체 산화물 연료 전지 중 평판형 단위셀의 일례를 도시한 단면도이다.

도 2 내지 4는 실시예 1의 연료전지의 단면사진이다.

도 5는 비교예 1의 연료전지의 단면사진이다.

도 6은 비교예 2의 연료전지의 단면사진이다.

도 7은 실시예 1에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 측정한 결과이다.

도 8은 비교예 1에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 측정한 결과이다.

도 9는 비교예 2에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 측정한 결과이다.

【발명의 실시를 위한 형태】

이하, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 용이하게 실시할 수 있을 정도로 바람직한 실시예를 첨부된 도면을 참조하여 상세하게 설명하면 다음과 같다.

본 발명은 고체 산화물 연료전지로서, 다수의 단위셀; 및 상기 다수의 단위셀 사이의 연결재층을 포함하고, 상기 단위셀은, 음극; 양극; 및 상기 음극 및 양극 사이에 고체 전해질을 포함한다.

도 1은 본 발명에 따른 고체 산화물 연료 전지 중 평판형 단위셀의 일례를 도시한 단면도이다.

도 1에 예시된 경우에 있어서, 단위셀(111)은 음극(116)을 지지체로 하고, 대략 중앙에 위치한 다수의 연료 흐름부(114)를 포함한다. 상기 음극(116)은 다공성인 것이 바람직하다. 상기 음극(116)은 주로 NiO, NiO 및 YSZ(Yttria-stabilized zirconia)의 혼합물, Ni 및 YSZ의 혼합물 또는 NiO 및 GDC(Gd-doped CeO₂)의 혼합물을 포함하는 것이 바람직하다.

또한, 상기 단위셀(111)은 상기 음극(116)의 표면에 얇은 두께로 위치한 전해질층(117)을 포함하고, 상기 전해질층(117)의 소정 영역에 위치한 양극(118)을 포함한다. 도면에서는 일례로서 상기 양극(118)은 음극(116)의 하부면에 위치하지만, 이에 한정되는 것은 아니다. 상기 양극(118)은 다공성인 것이 바람직하다. 상기 양극(118)은 주로 LSM 또는 LSC를 포함하는 것이 바람직하다.

또한, 상기 단위셀(111)은 상기 음극(116)의 상부면에 위치하고, 다수의 평판형 단위셀(111)이 적층되어 전기적으로 연결될 수 있도록 하는 연결재층(119)을 포함한다. 상기 연결재층(119)은 공기가 원활히 지나갈 수 있도록 표면에 요철을 포함하는 것이 바람직하다.

본 발명에서 상기 연결재층(119)은, 제 1층 및 제 2층을 포함하는 것으로 i) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트를

포함하는 제 1층; 및 ii) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트와, GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아를 포함하는 제 2층을 포함한다. 이때, 상기 제 1층은 각각의 단위셀의 양극과 접촉하며, 상기 제 2층은 각각의 단위셀의 음극과 접촉한다.

상기 Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트는 $(La_{1-x}Sr_x)FeO_3$, $(La_{1-x}Ca_x)FeO_3$ 또는 $(La_{1-x}Ba_x)FeO_3$ 이고, x는 0.05~0.5인 것이 바람직하다. 상기 Ca, Sr 및 Ba은 +2가의 이온이고, La^{+3} 이온과 크기가 비슷하므로, 상기 Ca, Sr 및 Ba를 La-페라이트에 포함함으로써, $LaFeO_3$ 의 전도성을 향상시켜주는 역할을 한다.

상기 Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트 및 GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아의 중량비가 95:5~50:50로 포함하는 것이 바람직하다. 상기 Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트 및 GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아의 중량비가 상술한 범위를 만족하면 전자전도도가 연결재층 전반에 걸쳐 우수하고, 저항이 높지 않으며, 전압강하가 발생하지 않는 이점이 있다.

상기 연결재층(119)이 제 1층 및 제 2층을 포함함으로써, 막이 치밀하여 가스가 누출되지 않고, 다공성 전극 상에 치밀하게 코팅 가능하다. 또한, 연결재층은 전극과 반응하지 않고, 연료전지의 작동 중에 전극과 박리되는 것을 억제하는 효과가 있는 것으로, 특히 상기 연결재층은 음극으로부터 박리가 잘 일어나지 않는다.

상기 연결재층(119)의 두께는 특별히 한정되지 않지만, $10\mu m \sim 50\mu m$ 인 것이 바람직하다. 보다 상세하게는 상기 제 1층은 $2 \sim 15\mu m$ 인 것이 바람직하고, 상기 제 2층은 $8 \sim 35\mu m$ 인 것이 바람직하다. 상기 연결재층의 두께가 상술한 범위를 만족하면, 막이 치밀하여 가스가 누출되지 않고, 다공성 전극 상에 치밀하게 코팅 가능하다. 또한, 연결재층은 전극과 반응하지 않고, 연료전지의 작동 중에 전극과 박리되지 않는 효과가 있다.

이하에서, 실시예 및 시험예를 통하여 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다. 그러나, 본 발명의 범위가 하기의 실시예 및 시험예에 의하여 한정되는 것은 아니다.

실시예 1 및 비교예 1, 2: 고체 산화물 연료전지의 제조

<실시예 1>

연료흐름부가 형성된 평판형 음극 지지체(Ni-YSZ(Yttria Stabilized Zirconia)) 표면에 전해질을 코팅하여 열처리한 후 고체전해질층(YSZ)을 $20\mu m$ 의 두께로 형성하였다. 상기 고체전해질이 형성된 음극 지지체의 하부에 LSM 및 YSZ가 50:50의 중량비로 포함된 양극을 형성하였다. 상기 양극이 형성되지 않은 일면에 2층 구조의 연결재층을 형성하였다. 상기 연결재층은 $La_{0.8}Sr_{0.2}FeO_{3-d}$ (상기 d는 온도변화에 의한 산소농도의 변화에 따라 달라지는 값이기 때문에 미지수로 나타낸다.)를 포함하는 제 1층(CI)과 $La_{0.8}Sr_{0.2}FeO_{3-d}$ 및 GDC(Gd doped ceria)를 포함하는 제 2층(CI-GDC)으로 구성되었다. 이때, $La_{0.8}Sr_{0.2}FeO_{3-d}$ 와 GDC는 6:4의

중량비로 포함된다. 상기 제 1층은 $15\mu\text{m}$, 제 2층은 $8\mu\text{m}$ 의 두께로 형성하였다. 단면사진은 도 2 내지 4에 나타내었다. 구체적으로, 도 2는 음극지지체에 연결재층이 적층된 구역의 단면사진이고, 도 3 및 4는 음극지지체에 고체전해질층 및 연결재층이 적층된 구역의 단면사진이다.

5 <비교예 1>

연료흐름부가 형성된 평판형 음극 지지체(NiO-YSZ) 표면에 전해질을 코팅하여 열처리한 후 고체전해질층(YSZ)을 $20\mu\text{m}$ 의 두께로 형성하였다. 상기 고체전해질이 형성된 음극 지지체의 하부에 LSM 및 YSZ가 50:50의 중량비로 포함된 양극을 형성하였다. 상기 양극이 형성되지 않은 일면에 2층 구조의 연결재층을
10 형성하였다. 상기 연결재층은 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{FeO}_{3-d}$ (상기 d는 온도변화에 의한 산소농도의 변화에 따라 달라지는 값이기 때문에 미지수로 나타낸다.)를 포함하는 제 1층(CI), LDC(La-doped ceria)로만 구성된 제 2층(LDC)으로 구성되었다. 상기 제 1층은 $4.66\mu\text{m}$, 제 2층은 $10.7\mu\text{m}$ 의 두께로 형성하였다. 단면사진은 도 5에 나타내었다.

<비교예 2>

15 연료흐름부가 형성된 평판형 음극 지지체(NiO-YSZ) 표면에 전해질을 코팅하여 열처리한 후 고체전해질층(YSZ)을 $20\mu\text{m}$ 의 두께로 형성하였다. 상기 고체전해질이 형성된 음극 지지체의 하부에 LSM 및 YSZ가 50:50의 중량비로 포함된 양극을 형성하였다. 상기 양극이 형성되지 않은 일면에 1층 구조이고 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{FeO}_{3-d}$ (상기 d는 온도변화에 의한 산소농도의 변화에 따라 달라지는 값이기 때문에
20 미지수로 나타낸다.)를 포함하는 연결재층을 $8.14\mu\text{m}$ 의 두께로 형성하였다(CI). 단면사진은 도 6에 나타내었다.

시험예: 단위셀 위에 코팅된 연결재층의 면비저항

<면비저항 평가>

단위셀 위에 코팅된 연결재 층의 면비저항을 측정하기 위하여 실시예 1 및
25 비교예 1, 2의 음극과 연결재층 상단에 백금(Pt)을 칠하여 양단에 전류를 인가한 후 전압을 측정하여 전류-전압 곡선의 기울기로부터 면비저항을 측정하였다. 이때, 연료전지의 작동조건에서 면비저항을 측정하기 위하여 음극에는 수소를 주입하고, 연결재층에는 산소를 주입한 상태에서 면비저항을 측정하였다.

30 도 7은 실시예 1에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 800°C 에서 5일 간 측정한 결과이다. 5일에 걸쳐 측정한 면비저항은 약 $0.03\Omega\text{cm}^2$ 으로 매우 낮은 값을 나타내었다. 종래 연료전지에서 단위셀의 면비저항은 $0.2\sim 0.5\Omega\text{cm}^2$ 인 것과 비교할 때, 면비저항이 낮기 때문에 셀과 셀 사이의 접촉저항을 낮출 수 있어서 연료전지의 성능이 높아지게 된다.

35 도 8은 비교예 1에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 온도별로 측정한 것이다. $700\sim 900^\circ\text{C}$ 의 측정구간에서 상기의 연결재층의 면비저항은 $1.2\sim 0.5\Omega\text{cm}^2$ 을 보였다. 이것은 제 2층이 LDC층만 포함할 경우, 연결재층의 면비저항이 증가하여 셀의 성능을 저하시키는 것을 나타낸다.

40 도 9은 비교예 2에 따른 연료전지의 연결재층의 면비저항을 온도별로 측정한 것이다. $700\sim 900^\circ\text{C}$ 의 측정구간에서 상기의 연결재층의 면비저항은 $0.08\sim 0.09\Omega\text{cm}^2$ 을 보였다. 이것은 실시예 1과 같이 GDC를 포함하는 제 2층을 포함하는 경우와 비교하여 높은 면비저항 값을 나타내는 것이다. 이는 비교예 2가 제 2층이 개재되지 않음으로써 음극층과 부분적이 박리가 일어났기 때문이다. 이러한 박리는 단위셀의 장기성능을 저하시키는 문제를 야기한다.

【특허 청구범위】

【청구항 1】

고체 산화물 연료전지로서,
 다수의 단위셀; 및
 상기 다수의 단위셀 사이의 연결재층을 포함하고,
 상기 단위셀은,
 음극;
 양극; 및
 상기 음극 및 양극 사이에 고체 전해질을 포함하고,
 상기 연결재층은,
 i) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트를 포함하는 제 1층; 및
 ii) Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트와, GDC(Gd doped ceria), LDC(La-doped ceria) 및 SDC(Sm-doped ceria)로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아를 포함하는 제 2층을 포함하며,
 상기 제 1층은 각각의 단위셀의 양극과 접촉하며, 상기 제 2층은 각각의 단위셀의 음극과 접촉하는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지.

【청구항 2】

청구항 1에 있어서,
 상기 Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트는 $(La_{1-x}Sr_x)FeO_3$, $(La_{1-x}Ca_x)FeO_3$ 또는 $(La_{1-x}Ba_x)FeO_3$ 이고, x는 0.05~0.5인 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지.

【청구항 3】

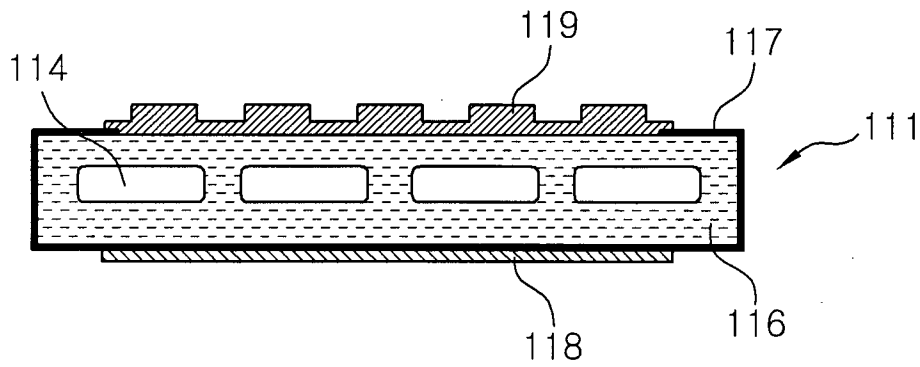
청구항 1에 있어서,
 상기 제 2층은 Sr, Ca 및 Ba로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상이 포함된 La-페라이트 및 GDC, LDC 및 SDC로 이루어진 군에서 선택되는 하나 이상의 세리아의 중량비가 95:5~50:50인 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지.

【청구항 4】

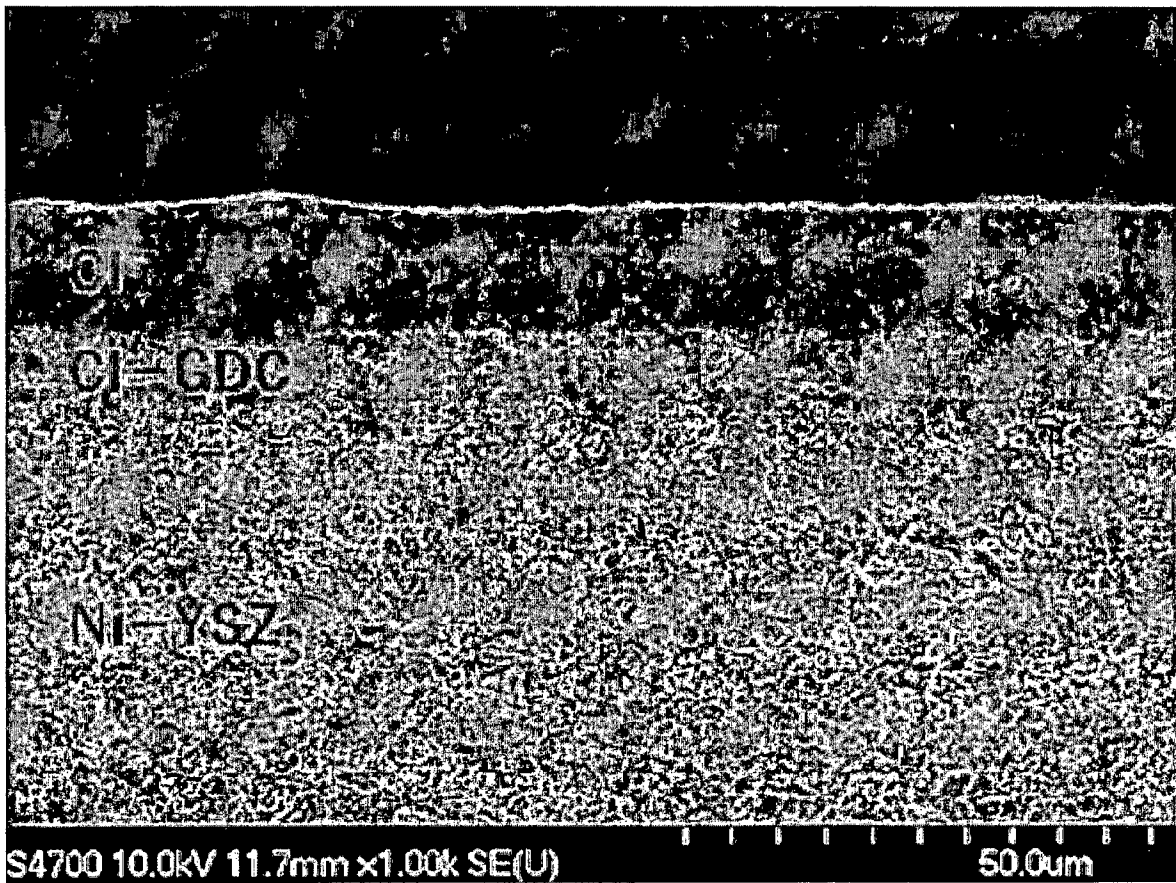
청구항 1에 있어서,
 상기 음극 및 양극은 다공성인 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료 전지.

【도면】

【도 1】



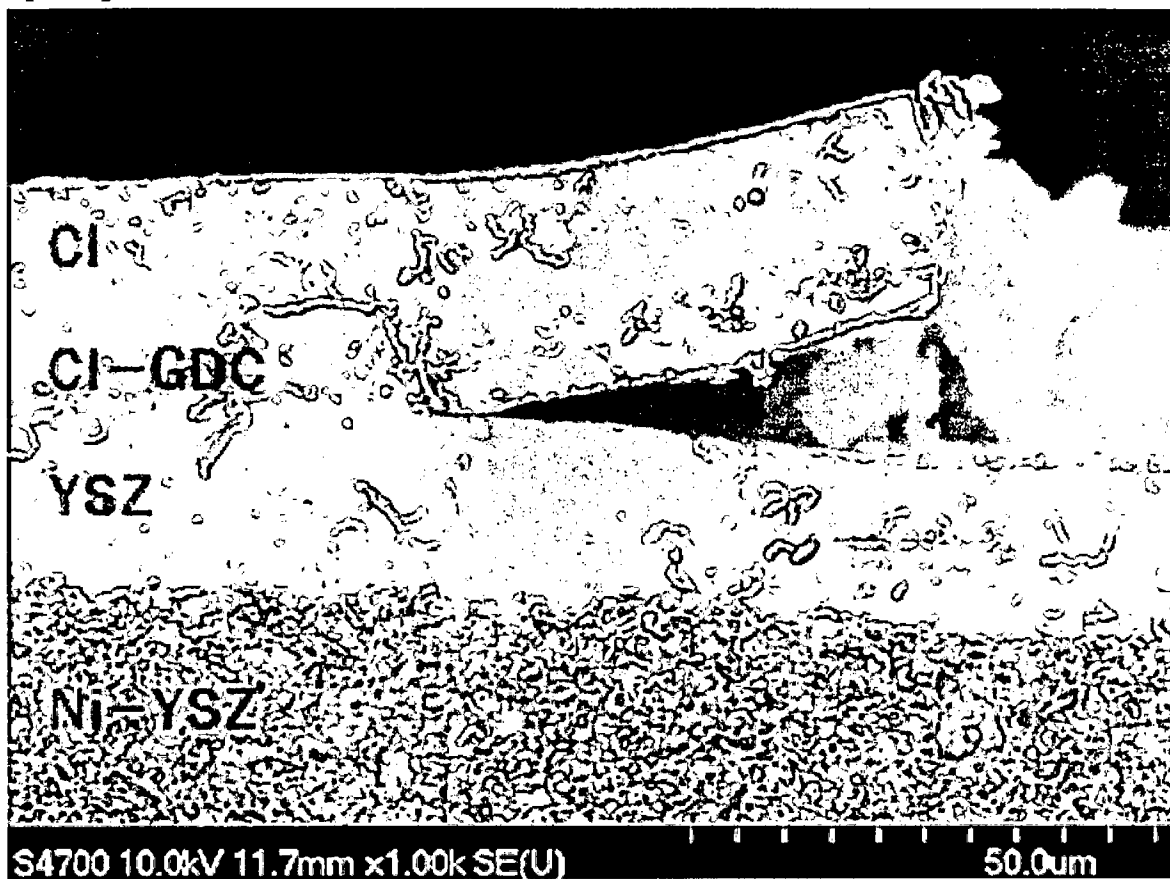
【도 2】



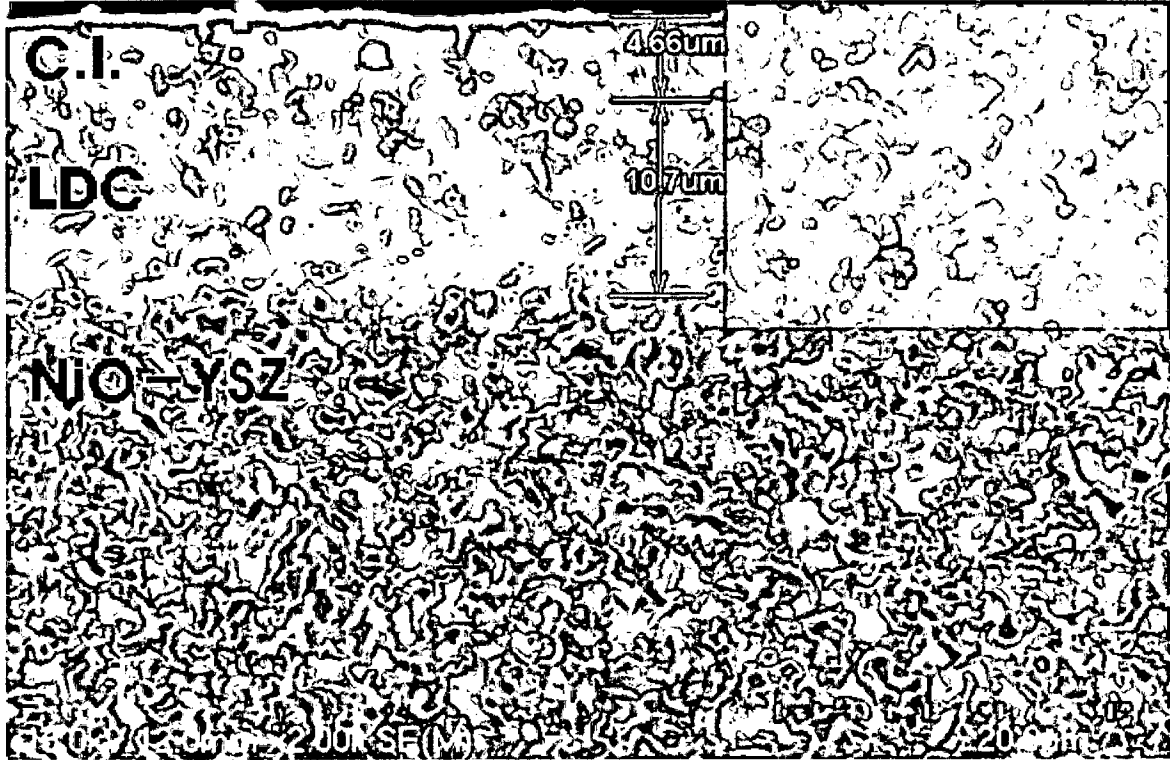
【도 3】



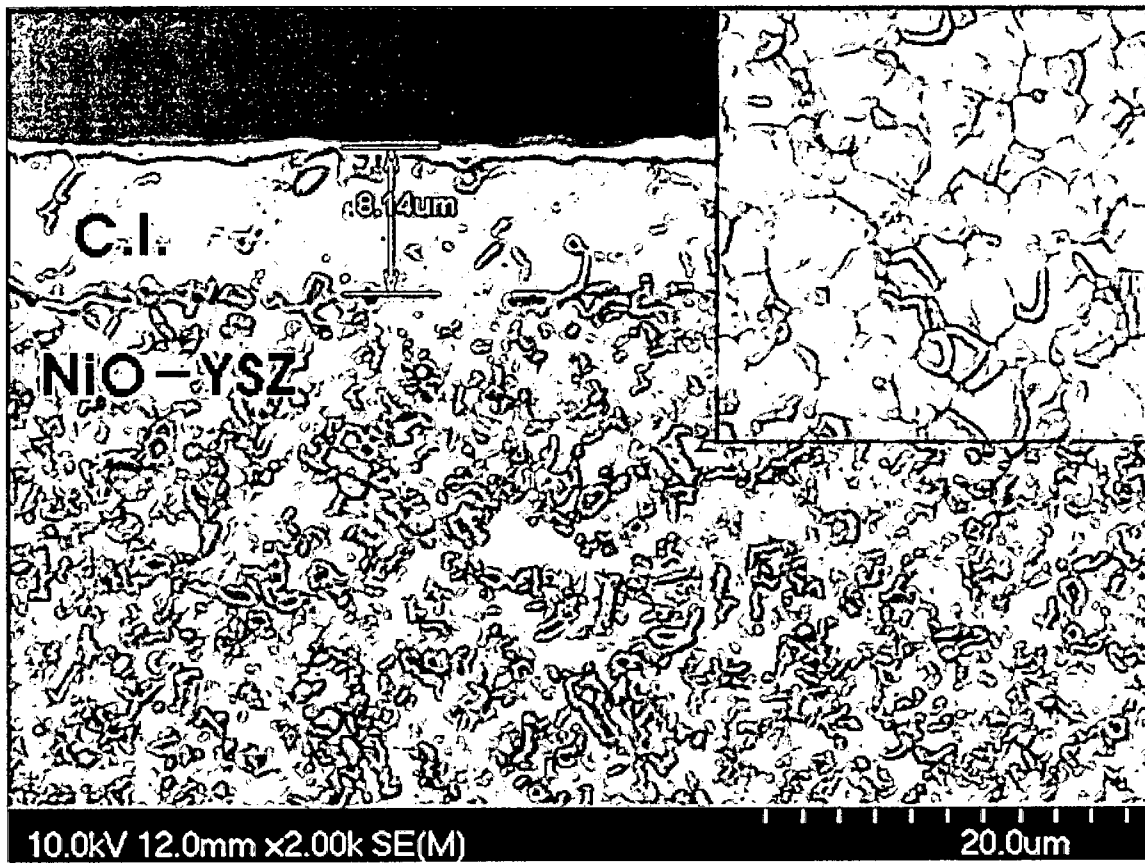
【도 4】



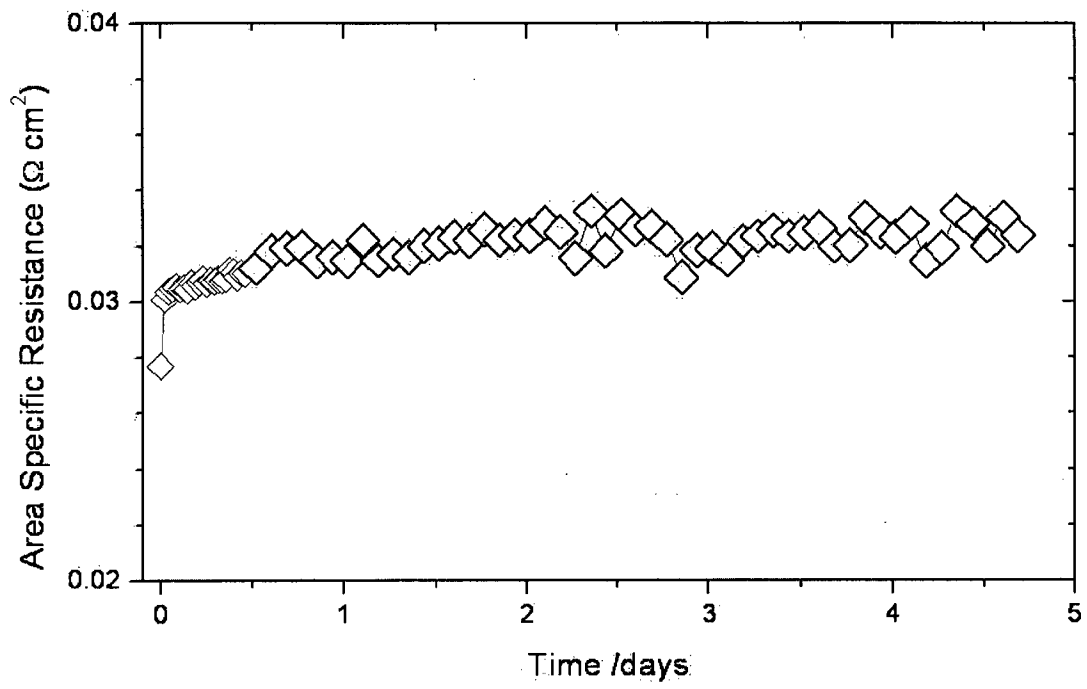
【도 5】



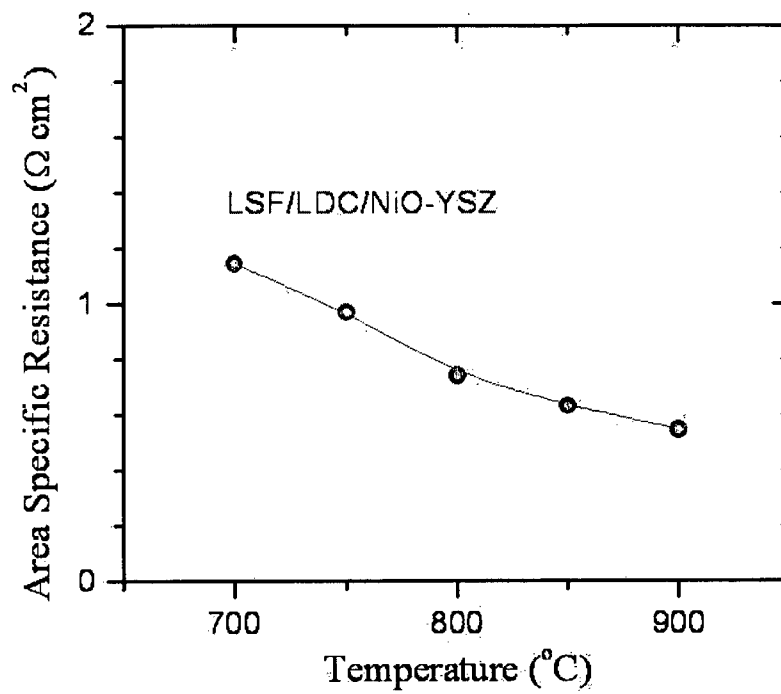
【도 6】



【図 7】



【図 8】



【図 9】

