(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 105143518 B
(45)授权公告日 2018.11.20

(21)申请号 201380076266.8
(22)申请日 2013.05.02
(65)同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 105143518 A
(43)申请公布日 2015.12.09
(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2015.11.02
(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/EP2013/059131 2013.05.02
(87)PCT国际申请的公布数据
WO2014/177212 EN 2014.11.06
(73)专利权人 托普索公司
地址 丹麦灵比
(72)发明人 T.海雷达-克劳森
C.布奇霍茨弗雷德里克森
(74)专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司 72001
代理人 严志军 胡斌
(51)Int.Cl.
C25B 9/00(2006.01)
C25B 9/18(2006.01)
H01M 8/0258(2016.01)
C25B 15/08(2006.01)
H01M 8/2483(2016.01)
H01M 8/2428(2016.01)
H01M 8/12(2016.01)

(56)对比文件
CN 105393394 A,2016.03.09,
CN 1503998 A,2004.06.09,
CN 1264240 C,2006.07.12,
CN 101253647 A,2008.08.27,
US 2010/0297535 A1,2010.11.25,
DE 102010020178 A1,2011.11.17,
US 2009/0325023 A1,2009.12.31,
US 2005/0255367 A1,2005.11.17,
US 6492053 B1,2002.12.10,

审查员 刘重阳

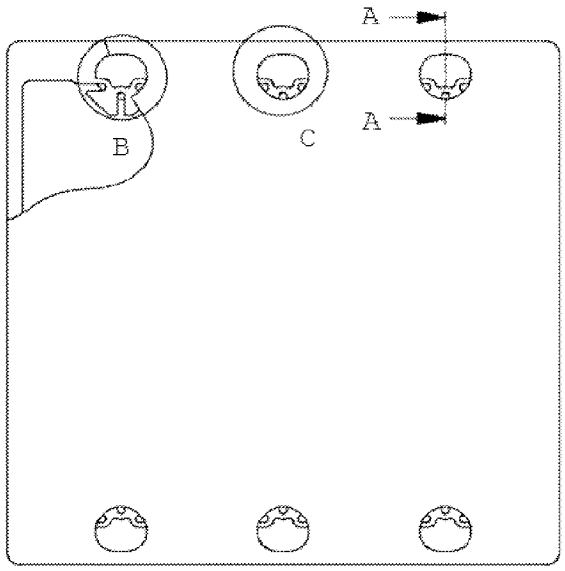
权利要求书2页 说明书6页 附图6页

(54)发明名称

用于SOEC单元的气体入口

(57)摘要

用于SOC单元的多气体入口或出口通过具有切口的叠层提供以用于重叠的气体通道。



CN 105143518 B

1.固体氧化物电解电池堆，其包括多个堆叠的电池单元，每个单元包括电池层和互连件层，其中一个互连件层分隔所述电池堆中的一个电池单元与相邻电池单元，其中，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体入口开口，并且其中，相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体入口开口，其中，所述第一气体入口开口和所述第二气体入口开口部分地重叠，所述重叠限定其中入口气体从所述第一气体入口开口流到所述第二气体入口开口的共同的气体入口区域。

2.根据权利要求1所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第一气体入口开口的所述层与包括所述至少一个第二气体入口开口的所述层是连贯的。

3.根据前述权利要求中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第二气体入口开口的所述层还包括形成至少一个气体入口流引导部的至少一个突出物。

4.根据权利要求3所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个气体入口流引导部与所述至少一个第一气体入口开口的一部分至少部分地重叠并且因此形成至少一个多通道气体入口。

5.根据权利要求1或2所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体出口开口，并且其中，相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体出口开口，其中，所述第一气体出口开口和所述第二气体出口开口部分地重叠，所述重叠限定其中出口气体从所述第一气体出口开口流到所述第二气体出口开口的共同的气体出口区域。

6.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第二气体出口开口的所述层还包括形成至少一个气体出口流引导部的至少一个突出物。

7.根据权利要求6所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个气体出口流引导部与所述至少一个第一气体出口开口的一部分至少部分地重叠并且因此形成至少一个多通道气体出口。

8.根据权利要求1或2所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述单元还包括至少一个间隔件层。

9.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述单元还包括至少一个间隔件层。

10.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口或者所述至少一个第一气体出口开口是切通的开口、凹口或其组合。

11.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口或者所述至少一个第一气体出口开口是切通的孔。

12.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口或者所述至少一个第二气体出口开口是切通的开口、凹口或其组合。

13.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口或者所述至少一个第二气体出口开口是切通的孔。

14.根据权利要求5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口或者所述至少一个第一气体出口开口位于所述互连件层中。

15.根据权利要求9所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第二气

体入口开口或者所述至少一个第二气体出口开口位于所述至少一个间隔件层中。

16.用于将入口气体引导到固体氧化物电解电池堆中的电池单元的方法，所述固体氧化物电解电池堆包括多个堆叠的电池单元，每个单元包括电池层和互连件层，其中一个互连件层分隔所述电池堆中的一个电池单元与相邻电池单元，其中，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体入口开口，并且相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体入口开口，其中，所述第一气体入口开口和所述第二气体入口开口部分地重叠，所述重叠限定共同的气体入口区域，所述方法包括以下步骤：

• 将入口气体提供到所述至少一个第一气体入口开口，

• 使所述入口气体沿第一方向流过所述第一气体入口开口，

• 使所述入口气体沿第二方向流过共同的气体入口区域，

• 使所述入口气体沿第三方向流过所述至少一个第二入口气体开口。

17.根据权利要求16所述的方法，其特征在于，所述第二方向整体上不同于所述第一方向和所述第三方向。

18.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述第三方向整体上是在与所述至少一个电池层相同的二维平面上。

19.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述第二方向整体上和所述至少一个电池层之间的角度至少为5°。

20.根据权利要求19所述的方法，其特征在于，所述第二方向整体上和所述至少一个电池层之间的角度至少为30°。

21.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口位于所述互连件层中。

22.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述单元还包括至少一个间隔件层。

23.根据权利要求22所述的方法，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口位于所述至少一个间隔件层中。

24.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口是切通的开口、凹口或其组合。

25.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口是切通的孔。

26.根据权利要求16或17所述的方法，其特征在于，所述入口气体是阳极气体或阴极气体。

用于SOEC单元的气体入口

技术领域

[0001] 本发明涉及用于固体氧化物电池(SOC)单元的气体入口，特别是固体氧化物燃料电池(SOFC)单元或者固体氧化物电解电池(SOEC)单元，特别是用于包含在SOC堆中的SOC单元。

背景技术

[0002] 固体氧化物燃料电池(SOFC)包括能使氧离子传导的固体电解质，氧被还原为氧离子的阴极以及氢被氧化的阳极。SOFC中的总反应是氢和氧电化学地反应以生成电、热和水。为了生成所需的氢，阳极通常具有催化活性以用于碳氢化合物(特别是天然气)的蒸汽转化，由此产生氢、二氧化碳和一氧化碳。甲烷(天然气的主要成分)的蒸汽转化可以通过以下方程式描述：

[0003] $CH_4 + H_2O \rightarrow CO + 3H_2$

[0004] $CH_4 + CO_2 \rightarrow 2CO + 2H_2$

[0005] $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$

[0006] 在操作过程期间，将氧化剂(诸如空气)供给到阴极区域中的固体氧化物燃料电池。将燃料(诸如氢)供给到燃料电池的阳极区域中。作为备选，在阳极区域中供给碳氢燃料(诸如甲烷)，它在阳极区域通过上述反应转变成氢和碳氧化物。氢通过多孔阳极，并且在阳极/-电解质界面与已经通过电解质扩散的产生于阳极侧上的氧离子反应。利用来自电池的外部电路的电子的输入在阴极侧中形成氧离子。

[0007] 为了增加电压，将若干电池单元组装以形成堆叠，并且通过互连件链接在一起。互连件用作气体屏障以分离相邻电池单元的阳极(燃料)侧和阴极(空气/氧)侧，并且同时，它们容许相邻电池之间的电流传导，即，在一个电池的具有过剩电子的阳极以及邻近电池的需要电子的用于还原过程的阴极之间。此外，互连件通常设置有多个流路以用于互连件的一侧的燃料气体和相反侧的氧化剂气体的通路。为了优化SOFC堆的性能，应当使正值的范围最大化而在应当最小化的相关负值的另一范围上无不可接受的后果。这些值中的一些是：

[0008]

待最大化的值	待最小化的值
- 燃料利用率	- 价格
- 电效率	- 尺寸
- 使用期限	- (到一个点的温度)
	- 生产时间
	- 失效率
	- 构件数量
	- 附加损失(加热，冷却，鼓风机..)

[0009] 几乎所有上述列出的值是相互关联的，这意味着改变一个值将影响其他值。燃料

电池中的气流的特征和上述值之间的一些关系在这里提到：

[0010] 燃料利用率：

[0011] 互连件的燃料侧上的流路应当被设计为寻求到堆中的每个电池相等量的燃料，即，应当不存在穿过堆的燃料侧的流-“短路”。

[0012] 附加损失：

[0013] SOFC堆中的处理气体流路的设计和其燃料电池单元应当寻求至少在空气侧上和潜在地在互连件的燃料侧上实现对于每流量的低压力损失，这将降低到鼓风机的附加损失。

[0014] 电效率：

[0015] 互连件导致阳极和相邻电池层的阴极之间的电流。因此，为了减小内部电阻，互连件的导电接触点(以下仅称为“接触点”)应被设计为建立到电极(阳极和阴极)的良好电接触并且该接触点不应当相隔很远，接触点相隔很远将迫使电流通过电极的较长距离，从而导致较高的内部电阻。

[0016] 使用期限：

[0017] 关于互连件，取决于互连件的燃料和空气侧两者上均匀的流分布、很少的构件和材料上均匀的保护涂层等等。

[0018] 价格：

[0019] 互连件价格贡献可通过不使用贵金属材料、通过减少互连件的生产时间和尽可能减少材料损耗而降低。

[0020] 尺寸：

[0021] 当互连件设计确保活性电池区域的高利用率时，减小燃料堆的总体尺寸。应当减少具有低燃料或者空气流的死区，并且应当尽可能减小用于密封表面的非活性区域。

[0022] 温度：

[0023] 温度应当足够高以确保电池中的催化反应，但足够低以避免电池构件的加速退化。互连件因此应该有助于在不超过最大温度的情况下给出高的平均温度的均匀温度分布。

[0024] 生产时间.

[0025] 互连件本身的生产时间应尽可能减少且互连件设计也应有助于整个堆的快速组装。一般而言，对于互连件设计并非必需的每个构件而言，在生产时间上存在增益。

[0026] 失效率.

[0027] 互连件生产方法和材料应当允许低的互连件失效率(诸如互连气体屏障中的不希望的孔、不均匀的材料厚度或者特征)。此外，当互连件设计减少待组装的构件的总数并且减小密封表面的长度时，可降低组装电池堆的失效率。

[0028] 构件数量.

[0029] 除了如已经提到的最小化错误和组装时间，构件数量的减少导致降低的价格。

[0030] 阳极和阴极气流在SOFC堆中分布的方式是通过对于两种过程气体中的每种气体具有共同的歧管。歧管可以是内部的或者是外部的。歧管借助于通向每个层的通道将过程气体供给到SOFC堆中的各个层。该通道通常位于被包括在SOFC堆中的重复元件的一个层中，即，在间隔件中或互连件中。

[0031] 间隔件或互连件通常具有贯穿材料压制、切割或者蚀刻的一个入口通道。仅仅具有一个入口通道的原因在于，间隔件必须是整体构件。该解决方案容许间隔件或者互连件通道的廉价和可控制造，因为可控的尺寸给出可控的压降。

[0032] 制造过程气体通道(其容许多个通道)的另一种方式是通过蚀刻、压印、冲压或以其它方式使通道部分地穿过间隔件或者连接件。这意味着该间隔件可以是整体构件，但是使通道部分地穿过材料的方法并不准确，其引起气体通道中不确定和不可控的压降。

[0033] 如果跨过仅仅部分地穿过间隔件或者连接件的材料形成的气体通道应用密封材料，则气体通道中将出现更加不确定和不可控的压降。当然，密封材料可为丝网印刷的以匹配仅所需的表面，或者胶合的且从气体通道切去，这将降低不确定压降的风险，但这是昂贵且耗时的。

[0034] US6492053公开了一种包括互连件和间隔件的燃料电池堆。互连件和间隔件两者均具有用于氧/燃料的流的入口歧管和出口歧管。入口歧管和出口歧管具有在其表面上的用于沿阳极和阴极分布氧/燃料的凹槽/通路。然而，互连件和间隔件的凹槽/通路彼此不对齐，并且因此它们的几何形状不能被组合以实现多个入口点。而且，由于凹槽/通路在连接件和间隔件两者的表面上，多个入口点的形成是不可行的。

[0035] US2010297535公开了具有流动通道的燃料电池的双极板。流动板具有多个通道以用于在燃料电池的活性区域之间均匀地分布流体。该文献没有描述第二层以及在其内的类似通道。

[0036] US2005016729公开了一种支撑在导热互连板中的陶瓷燃料电池，并且多个板形成名为堆叠的传导加热器。连接多个堆叠形成燃料电池的棒。通过将多个棒端对端地连接，形成燃料电池串。串的长度可为一千英尺或更多，大小形成为穿透地下资源层，例如油。预加热器使串达到超过700℃的操作温度，并且然后经由多个进给燃料电池燃料和氧化剂的管道将燃料电池维持在此温度，并且将排气传送到行星表面。歧管可在串与行星表面之间使用以继续该多个管道并且用作排气和氧化剂/燃料之间的热交换器。

[0037] 上述描述的已知技术都不提供对上述问题的简单、高效和故障安全的解决方案。

[0038] 因此，参照上面列出的要考虑的事项，存在对于牢靠、简单、廉价并且易于生产和处理的多通道气体入口解决方案的需要以提供用于SOFC单元的高效和最小化失效的气体入口。由于相应的电池单元也可用于固体氧化物电解，该气体入口解决方案还可被用于SOEC单元，因此，寻求了用于SOC单元的解决方案。

[0039] 这些和其它目的通过如下所述的本发明实现。

[0040] 本发明的概要

[0041] 燃料电池或者电解电池堆包括在每个电池中的重复元件。通过使用电池堆中的重复元件的两个层来产生用于电池的入口通道，有可能产生具有多通道入口的简单的连贯构件。

[0042] 本发明是在两个层中具有不同的通道，它们以这样的方式重叠，使得引导来自一个构件中的通道的流到其他构件中的一个通道或者有利地尤其是多个通道，并且然后进入堆中的电池的活性区域。根据这个原理，有可能在电池堆中的每个重复元件中形成多通道，其中具有容易处理的连贯构件。

[0043] 本发明的特征

[0044] 1．固体氧化物电解电池堆，其包括多个堆叠的电池单元，每个单元包括电池层和互连件层，其中一个互连件层分隔所述电池堆中的一个电池单元与相邻电池单元，其中，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体入口开口，并且其中，相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体入口开口，其中，所述第一气体入口开口和所述第二气体入口开口部分地重叠，所述重叠限定其中入口气体从所述第一气体入口开口流到所述第二气体入口开口的共同的气体入口区域。

[0045] 2．根据特征1所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第一气体入口开口的所述层与包括所述至少一个第二气体入口开口的所述层是连贯的。

[0046] 3．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第二气体入口开口的所述层还包括形成至少一个气体入口流引导部的至少一个突出物。

[0047] 4．根据特征3所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个气体入口流引导部与所述至少一个第一气体入口开口的一部分至少部分地重叠并且因此形成至少一个多通道气体入口。

[0048] 5．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体出口开口，并且其中，相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体出口开口，其中，所述第一气体出口开口和所述第二气体出口开口部分地重叠，所述重叠限定其中出口气体从所述第一气体出口开口流到所述第二气体出口开口的共同的气体出口区域。

[0049] 6．根据特征5所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，包括所述至少一个第二气体出口开口的所述层还包括形成至少一个气体出口流引导部的至少一个突出物。

[0050] 7．根据特征6所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个气体出口流引导部与所述至少一个第一气体出口开口的一部分至少部分地重叠并且因此形成至少一个多通道气体出口。

[0051] 8．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述单元还包括至少一个间隔件层。

[0052] 9．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口或者所述至少一个第一气体出口开口是切通的孔、切通的开口、凹口或其组合。

[0053] 10．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口或者所述至少一个第二气体出口开口是切通的孔、切通的开口、凹口或其组合。

[0054] 11．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口或者所述至少一个第一气体出口开口位于所述互连件层中。

[0055] 12．根据前述特征中任一项所述的固体氧化物电解电池堆，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口或者所述至少一个第二气体出口开口位于所述至少一个间隔件层中。

[0056] 13．用于将入口气体引导到固体氧化物电解电池堆中的电池单元的方法，所述固体氧化物电解电池堆包括多个堆叠的电池单元，每个单元包括电池层和互连件层，其中一

个互连件层分隔所述电池堆中的一个电池单元与相邻电池单元，其中，至少一个电池单元中的所述层中的至少一个层具有至少一个第一气体入口开口，并且相同电池单元中的至少一个相邻层具有至少一个第二气体入口开口，其中，所述第一气体入口开口和所述第二气体入口开口部分地重叠，所述重叠限定共同的气体入口区域，所述方法包括以下步骤：

[0057] ·将入口气体提供到所述至少一个第一气体入口开口，

[0058] ·使所述入口气体沿第一方向流过所述第一气体入口开口，

[0059] ·使所述入口气体沿第二方向流过共同的气体入口区域，

[0060] ·使所述入口气体沿第三方向流过所述至少一个第二入口气体开口。

[0061] 14．根据特征13所述的方法，其特征在于，所述第二方向整体上不同于所述第一方向和所述第三方向。

[0062] 15．根据特征13或14所述的方法，其特征在于，所述第三方向整体上是在与所述至少一个电池层相同的二维平面上。

[0063] 16．根据特征13到15中任一项所述的方法，其特征在于，所述第二方向整体上和所述至少一个电池层之间的角度至少为5°，优选地至少30°。

[0064] 17.根据特征13到16中任一项所述的方法，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口位于所述互连件层中。

[0065] 18．根据特征13到17中任一项所述的方法，其特征在于，所述单元还包括至少一个间隔件层。

[0066] 19．根据特征18所述的方法，其特征在于，所述至少一个第二气体入口开口位于所述至少一个间隔件层中。

[0067] 20．根据特征13到19中任一项所述的方法，其特征在于，所述至少一个第一气体入口开口是切通的孔、切通的开口、凹口或其组合。

[0068] 21．根据特征13到20中任一项所述的方法，其特征在于，所述入口气体是阳极气体或阴极气体。

附图说明

[0069] 通过示出本发明的实施例的示例的附图进一步说明了本发明。

[0070] 图1示出了其中底层的一部分被切掉的固体氧化物电池的组装重复元件的底视图。

[0071] 图2在等距视图中示出了图1的重复元件，

[0072] 图3示出了图1的重复元件的一部分的侧切A-A，

[0073] 图4示出了图1的重复元件的一部分(B)的放大图，

[0074] 图5示出了图1的重复元件的一部分(C)的放大图，和

[0075] 图6示出了图2的重复元件的一部分(D)的放大图。

[0076] 详细说明

[0077] 在本发明的一个实施例中，层、间隔件、互连件和电池中的气体通道始终被切通并且将在一个连贯构件中。

[0078] 图1示出了其中底层的一部分被切掉的固体氧化物电池的组装重复元件的底视图。在图2上示出同样的视图，但是为等距的。底层可为包括电解质和电极的电池，可以看

出，存在用于气体通道的六个切口，其可为气体入口或气体出口或者两者。在底层之上的层(在该实施例中为间隔件)相比顶层具有不同的通道。间隔件中的六个气体通道切口中的每个切口比底层中的连贯切口小，但是相对于间隔件中的每个切口，存在“翼”，其与底层中的较大切口部分重叠并且因此当层在电池堆中组装时形成多通道入口或出口。

[0079] 在图1中，通过五个切口中的每个切口，可看到与底层中的切口重叠的多通道的第一部分(在图5中的放大图“C”中更清楚地看出)，并且在图的名为“B”的部分中的第六切口上，由于底层的一部分的切除，可看到有些多通道的全部。这在图4中的放大图“B”中更清楚地示出。

[0080] 在图3中，这种多通道类型的气体入口用如箭头所示的气流示出。气流的主要部分经过多通道入口并且进一步流到电池堆(未示出)的后续重复元件。但是由于堆的压力分布，气流的一部分经由如上所述的形成于间隔件中的翼提供的多通道进入示出的元件。在图6中，视图“D”更清楚地示出了通到示出的重复元件并且进一步到后续重复元件(未示出)的气体流路。在图6中清楚的是，多个入口怎样将气体流在多个方向上分配到活性区域中以提供高效和均匀的分配。还清楚的是，即使每层被整体切通，层的重叠如何提供多个入口而不使翼为浮动元件，其提供容易且廉价的制造和组装，但获得了多入口的益处。

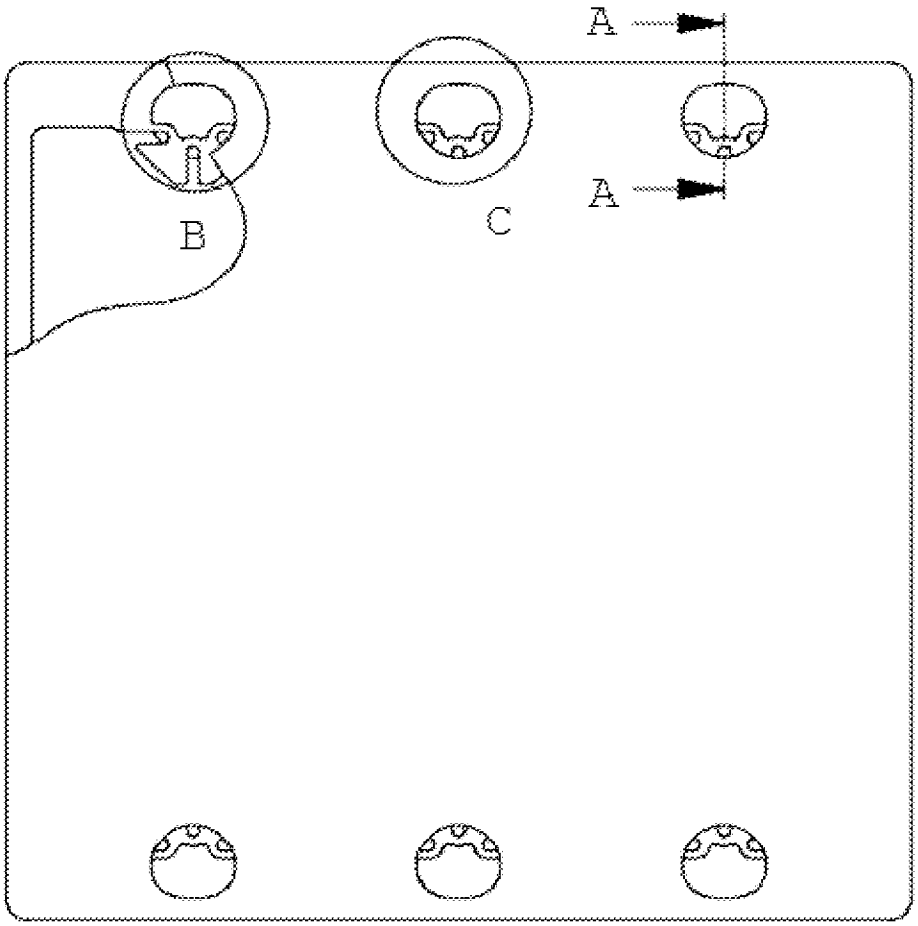


图 1

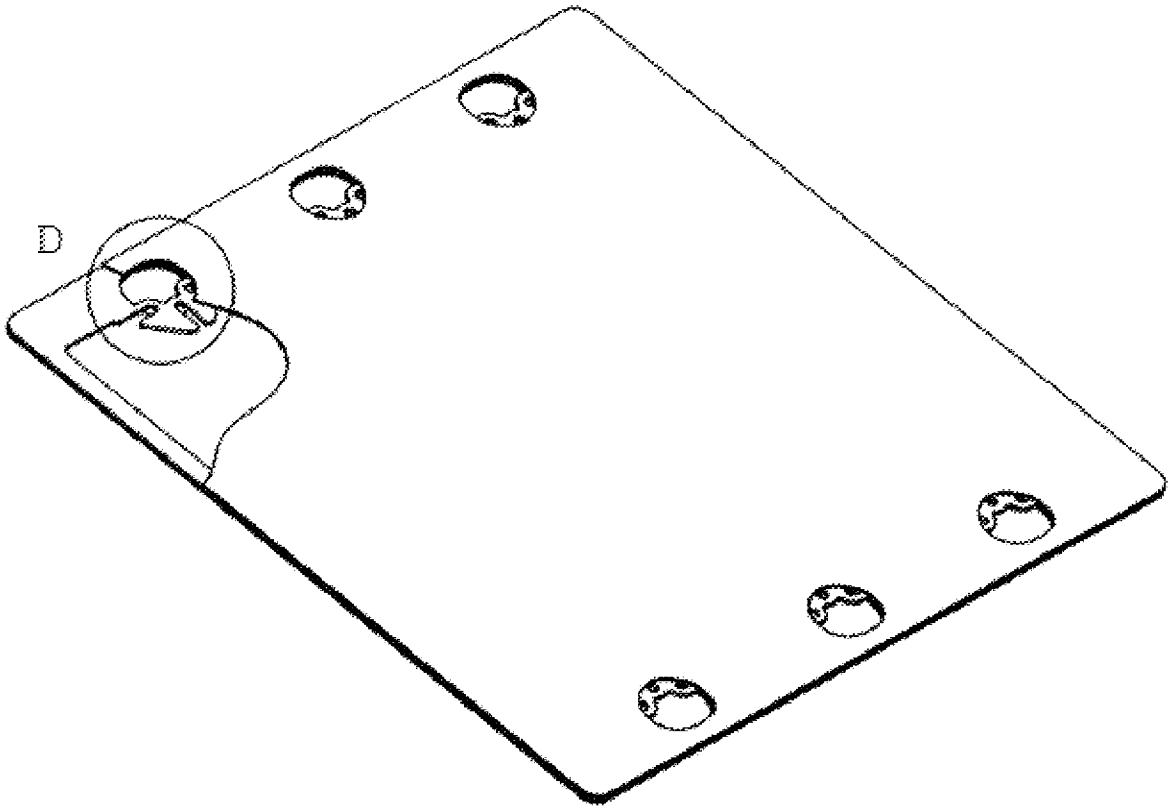


图 2

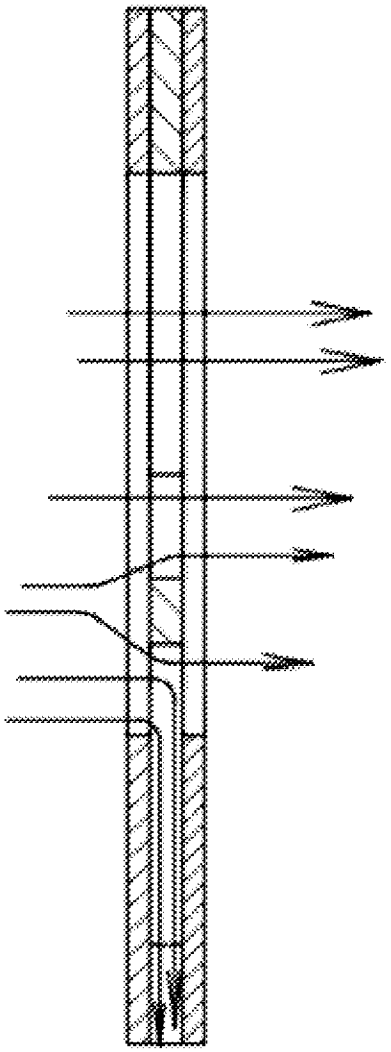


图 3

B

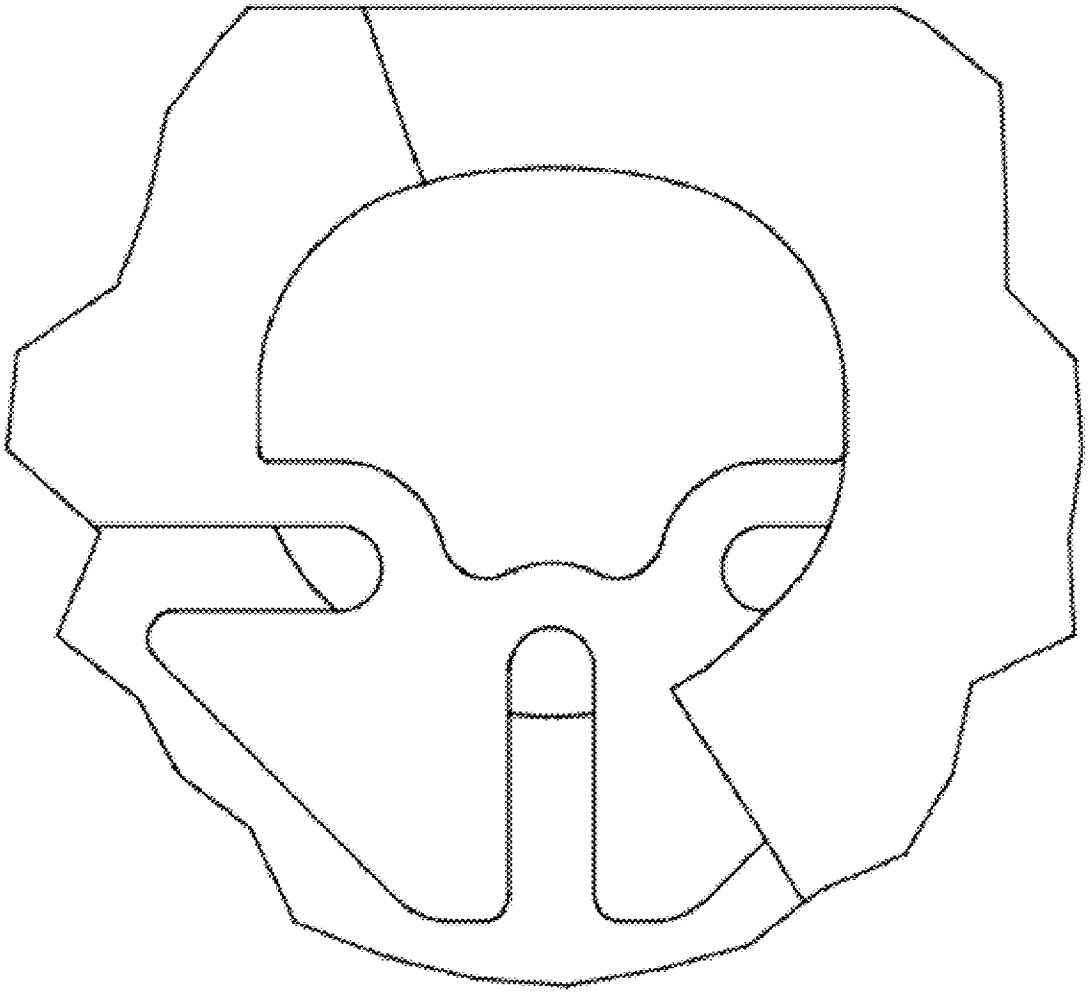


图 4

C

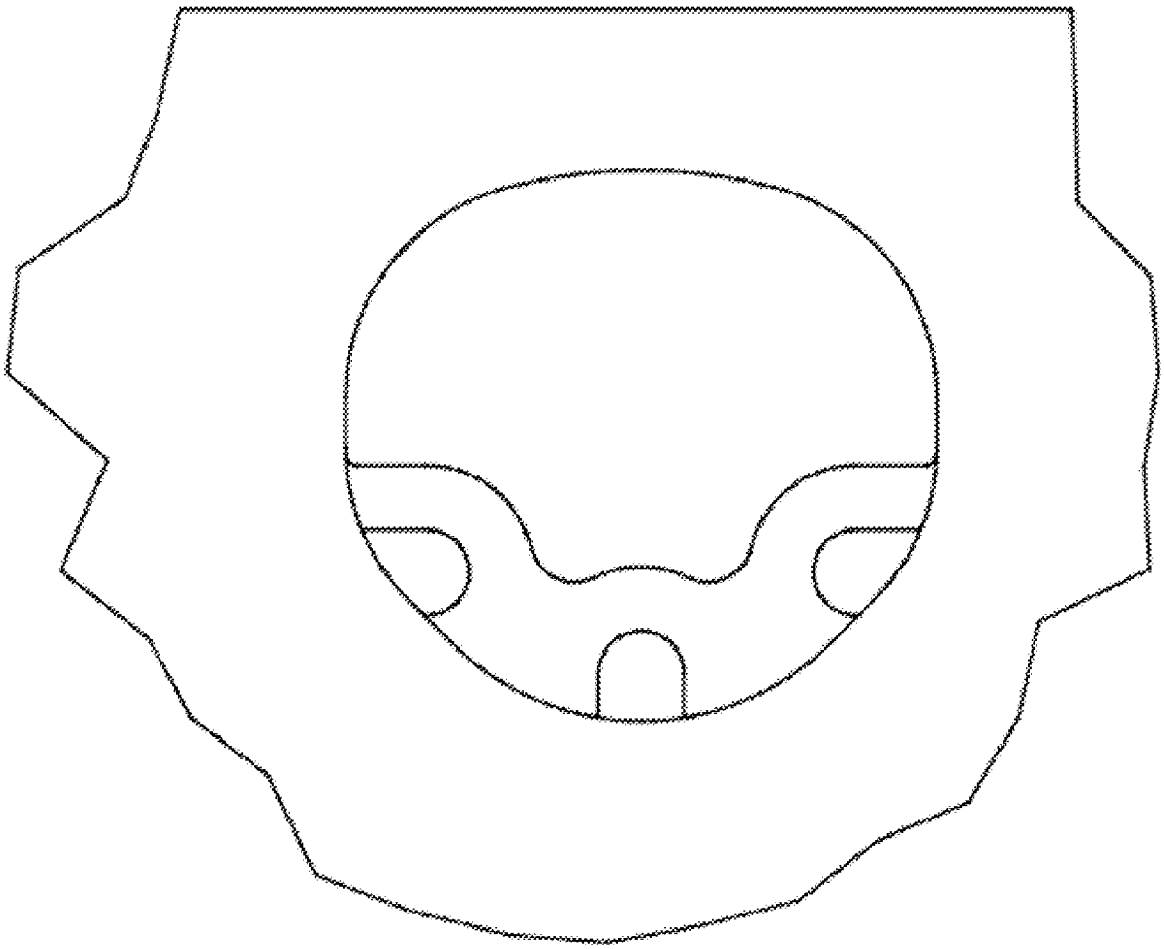


图 5

D

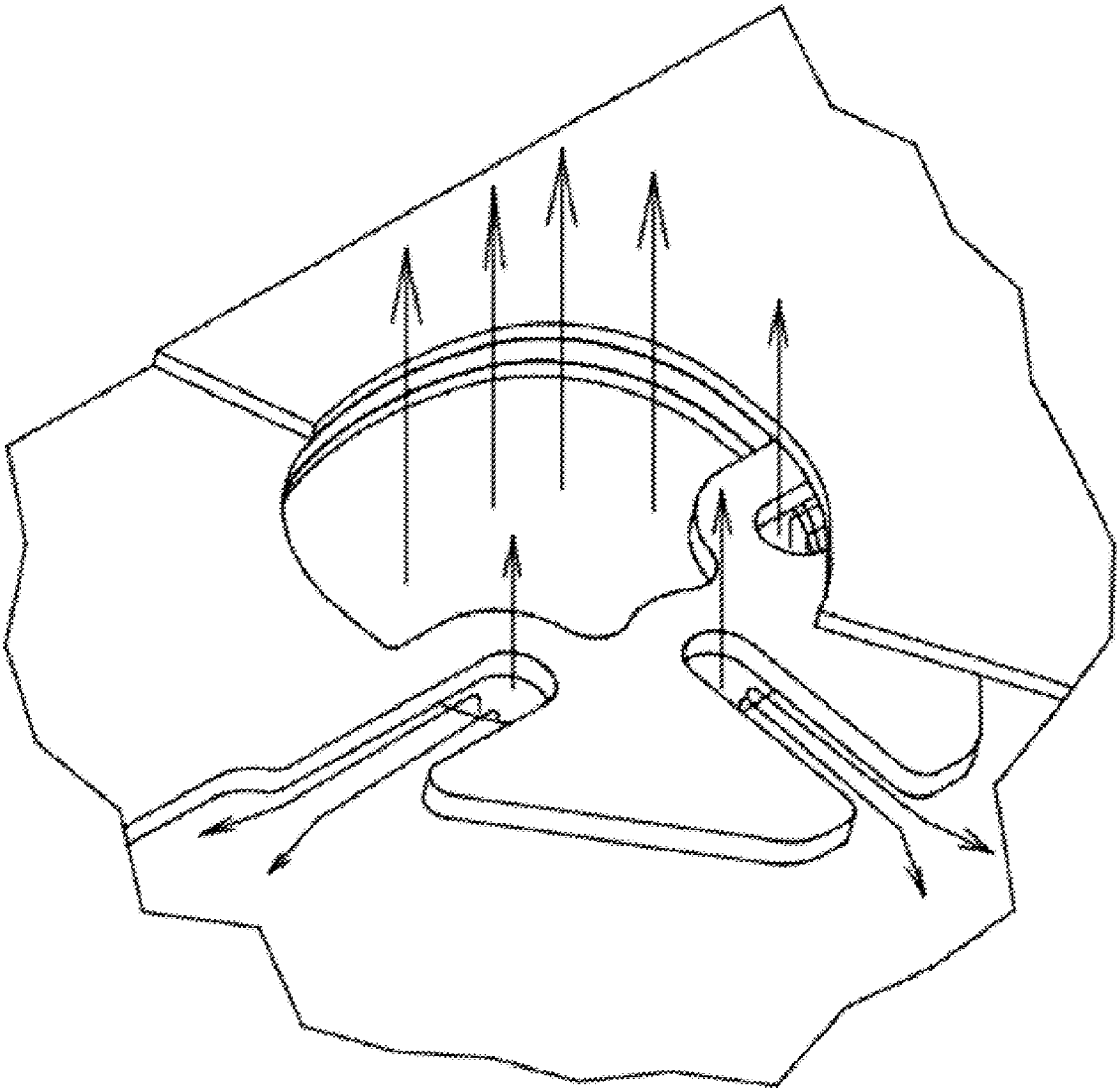


图 6