



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I880974 B

(45)公告日：中華民國 114 (2025) 年 04 月 21 日

(21)申請案號：109137463

(22)申請日：中華民國 109 (2020) 年 10 月 28 日

(51)Int. Cl. : **H01M8/24 (2016.01)**

(30)優先權：2019/10/28 歐洲專利局 19205619.0

(71)申請人：丹麥商托普索公司 (丹麥) HALDOR TOPSOE A/S (DK)

丹麥

(72)發明人：高岡 雷爾 KUENGAS, RAINER (EE)；黑瑞德 卡森 湯瑪士 HEIREDAL-
CLAUSEN, THOMAS (DK)；班歐 班吉 彼得 卡斯塔 BLENNOW, BENGT
PETER GUSTAV (SE)；諾比 托比亞 荷 NOERBY, TOBIAS HOLT (DK)；羅斯
漢森 傑普 RASS-HANSEN, JEPPE (DK)

(74)代理人：閻啓泰；林景郁

(56)參考文獻：

CN 103636044A

US 2007/0087256A1

審查人員：黃敬皓

申請專利範圍項數：13 項 圖式數：1 共 15 頁

(54)名稱

在陽極腔室和陰極腔室之間具有壓差的固態氧化物電池堆疊

(57)摘要

SOC 堆疊具有在接觸點之間具有最大距離之互連件，這些接觸點經設計以補償互連件之一側與另一側之間的壓差。

A SOC stack has interconnects with a maximum distance between the contact points which are designed to compensate for pressure difference between one side of the interconnect to the other side.

指定代表圖：

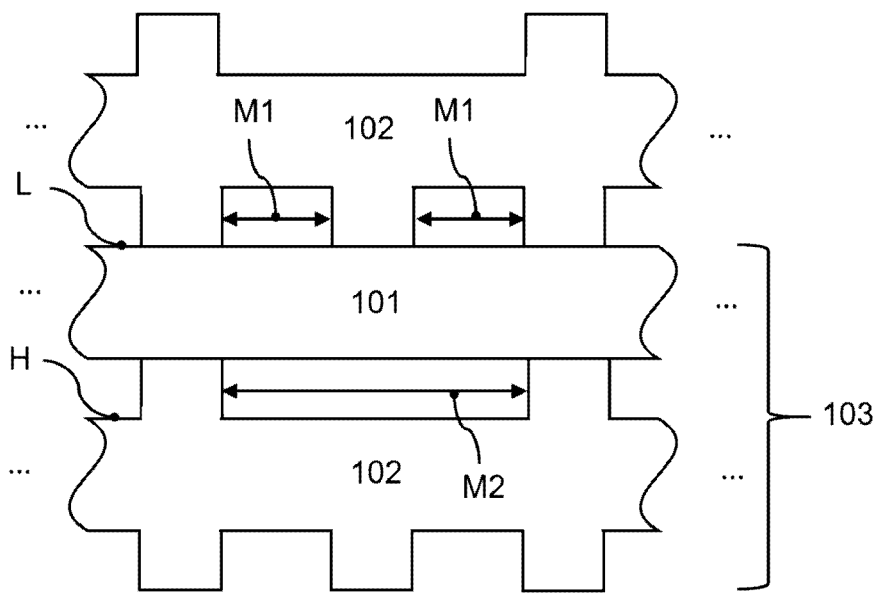


圖 1

符號簡單說明：

101:固態氧化物電池

102:互連件

103:電池單元

H:高壓側

L:低壓側

M1:每一互連件之第二側上之接觸區域的兩個相鄰邊緣之間的最大距離

M2:每一互連件之第一側上之接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離



I880974

【發明摘要】

【中文發明名稱】 在陽極腔室和陰極腔室之間具有壓差的固態氧化物電池堆疊

【英文發明名稱】 SOLID OXIDE CELL STACK WITH A PRESSURE DIFFERENCE BETWEEN ANODE AND CATHODE COMPARTMENTS

【中文】

SOC堆疊具有在接觸點之間具有最大距離之互連件，這些接觸點經設計以補償互連件之一側與另一側之間的壓差。

【英文】

A SOC stack has interconnects with a maximum distance between the contact points which are designed to compensate for pressure difference between one side of the interconnect to the other side.

【指定代表圖】 圖1

【代表圖之符號簡單說明】

101:固態氧化物電池

102:互連件

103:電池單元

H:高壓側

L:低壓側

M1:每一互連件之第二側上之接觸區域的兩個相鄰邊緣之間的最大距離

M2:每一互連件之第一側上之接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 在陽極腔室和陰極腔室之間具有壓差的固態氧化物電池堆疊

【英文發明名稱】 SOLID OXIDE CELL STACK WITH A PRESSURE DIFFERENCE BETWEEN ANODE AND CATHODE COMPARTMENTS

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種固態氧化物電池(SOC)堆疊，特定言之固態氧化物燃料電池（SOFC）單元或固態氧化物電解電池（SOEC）單元，特定言之係針對在SOC單元之燃料腔室與SOC單元之氧氣腔室之間具有壓差的SOC堆疊，這些SOC單元堆疊於彼此之上以形成SOC堆疊。

【先前技術】

【0002】 本發明提出一種用於固態氧化物電池(SOC)堆疊之設計，該設計在堆疊之燃料腔室與氧氣腔室之間具有壓差的情況下對操作而言係機械穩固的。此係藉由選擇SOC之低壓側上之接觸點/肋片之間的距離使得SOC歸因於電池兩側之間施加的壓差而經歷之最大張應力顯著低於SOC之韋布強度（Weibull distribution）來達成。

【0003】 固態氧化物電池（SOC）通常由陶瓷和金屬陶瓷複合物（陶金）材料之層構成。不管所選擇之電池幾何形狀(管狀、平面、整合式平面等)如何，電池層中之一者與其他層相比通常相當厚，且為較薄層提供機械支撐。舉例而言，在經電解質支撐之電池中，氣密電解質層（由例如經穩定之氧化鋯或經摻雜之二氧化鈾組成）通常為電池中之最厚層。此類電池之機械強度係由電解質之特

性確定。在經燃料電極支撐之電池中，燃料電極為電池中之最厚層，且電池之機械特性係由燃料電極確定。燃料電極通常為陶金材料，其包含金屬Ni及氧離子傳導材料，如經穩定之氧化鋯或經摻雜之二氧化鈾。由於使用陶瓷材料，因此SOC為脆性的。若當材料經受應力時，其斷裂或在極少或無塑性變形之情況下失效，則該材料被視為脆性的。相比之下，當延性材料經受應力時，其能夠在破裂之前經歷顯著塑性變形。

【0004】 為了增加SOC單元之輸出，若干SOC經串聯連接以形成SOC堆疊。堆疊中之單一SOC之機械失效通常導致整個堆疊失效。堆疊中之電池數目愈高，電池之可允許失效率愈低。舉例而言，若電池失效率為1/1000，則相對應之堆疊失效率對於10單元堆疊為1/100，但對於100電池堆疊為1/10。為了實現低電池失效率，應使通常根據韋布強度及韋布模數（Weibull modulus）表徵之電池強度達到最大。應理解，陶瓷材料之強度並非固有特性，而是取決於缺陷之尺寸及分佈，這些缺陷在製造過程期間出現且充當應力集中點。因此，此類樣品之失效機率按照統計學分佈且通常使用韋布分佈來表徵。韋布分佈對由缺陷尺寸之分佈而產生之樣品強度的變化率進行定量。根據該分佈，失效機率 P_f 以如下形式提供

$$P_f = 1 - \exp [- (\sigma/\sigma_0)^m] ,$$

其中 σ 為施加應力， σ_0 為韋布強度，及 m 為韋布模數。可使用多種方法(如環球（ball-on-ring）、4點彎曲（4-point-bending）、環環（ring-on-ring）等)來估計韋布強度及韋布模數。

【0005】 在操作期間，固態氧化物電池經反應物氣體饋入。舉例而言，當SOC在固態氧化物燃料電池模式中操作時，SOC之燃料側可經如氫氣、甲烷、天然氣、合成氣等之燃料饋入，且SOC之氧氣側可經如空氣之氧化劑饋入。當SOC在固態氧化物電解模式中操作時，SOC之燃料側可經例如蒸汽及/或二氧化碳饋

入，而如氧氣、蒸汽、氮氣或二氧化碳之沖洗氣體可經饋入至氧氣側。

【0006】 原則上可以自由選擇SOC之每一側上的氣體之壓力。然而，由於SOC之脆性，領域中之慣例為完全避免在操作期間發生之壓差。然而，操作在SOC堆疊之燃料側與氧氣側之間具有非零壓差的堆疊（若可能）將具有顯著優勢。

【0007】 舉例而言，US6902840 B2教示需要使穿過堆疊之陽極及陰極側之氣體的壓差降至最小，且提出使用混合器/處理器來操作及混合該燃料廢氣及氧化劑氣體供應，使得在陽極側之出口處的該燃料廢氣壓力與陰極側之入口處的氧化劑氣體壓力之間的差減小。

【0008】 在另一個實例中，US 2011/0027683 A1提出使用具有螺旋密封幾何結構之密封材料以避免密封失效、電解質失效（電解質薄層褶皺、壓曲或波紋之應力誘發的斷裂）或歸因於裝置、密封件及電池支撐框架之間的氣體差壓及相互作用的裝置失效。

【發明內容】

【0009】 現在，已證明有可能藉由向SOC之低壓側提供足夠的機械支撐來操作在堆疊之燃料側與氧氣側之間具有壓差的SOC堆疊。更具體而言，本發明提出一種堆疊設計，其中選擇SOC之低壓側上之接觸點/肋片之間的距離，使得SOC歸因於電池兩側之間施加的壓差而經歷之最大張應力顯著低於SOC之韋布強度。

【0010】 能夠操作在燃料腔室與氧氣腔室之間具有穩態或暫時壓差之SOC堆疊具有若干優勢。

【0011】 腔室之間的暫時壓差可以在堆疊操作期間發生，例如，當改變流動速率時或當啟動/停止鼓風機/壓縮機時。一種針對此類暫時壓差而穩固之堆疊

設計將允許較便宜之壓力控制設備用於監測/控制氧氣及腔室燃料腔室的入口壓力。另外，本發明將使對緩衝槽（例如，用於蒸汽）之需求降至最低，這些緩衝槽通常用於消除暫時壓差。

【0012】 在固態氧化物電解模式中，通常以加壓狀態提供燃料側進料氣體（舉例而言蒸汽、 CO_2 或其混合物），且應加壓所得產物（ H_2 、 CO 或合成氣）。因此，需要在高壓下操作堆疊之燃料側腔室以避免氣體在進入堆疊之前的額外解壓縮及產物氣體在離開堆疊之後的再壓縮兩者。根據當前最新技術，此情形暗示堆疊之氧氣側腔室需要加壓至與燃料側腔室相同之壓力。因此，需要額外壓縮器以用於氧氣側氣體在進入堆疊之前對其進行加壓。所提出之本發明不需要氧氣側壓縮器且因此將涉及在CAPEX及OPEX兩者中之顯著成本節省。另外，在根據本發明建構之堆疊中，氧氣側與燃料側氣體之入口壓力不必精確匹配，此簡化了系統設計且不需要緩衝槽。

【0013】 在固態氧化物燃料電池模式中，常常以加壓狀態提供燃料側進料氣體（例如， H_2 、 CH_4 、天然氣等），且一種（另一產物為電）所得產物氣體（ CO_2 、蒸汽）若經加壓可以有利地用於驅動燃氣渦輪機。因此，需要在高壓下操作堆疊之燃料側腔室以避免氣體在進入堆疊之前的額外解壓縮及產物氣體在離開堆疊之後的再壓縮兩者。根據當前最新技術，此情形暗示堆疊之氧氣側腔室需要加壓至與燃料側腔室相同之壓力。因此，需要額外壓縮器以用於氧氣側氣體在進入堆疊之前對其進行加壓。所提出之本發明不需要氧氣側壓縮器且因此將涉及在CAPEX及OPEX兩者中之顯著成本節省。

【0014】 更具體而言，本發明根據申請專利範圍藉由提供包含如此項技術中已知的複數個堆疊電池單元之固態氧化物電池堆疊來解決上文所論述之問題。每一單元包含電池層中之固態氧化物電池及互連件層中之互連件。一個互連件層將電池堆疊中之一個電池單元與相鄰電池單元分離，且因此在電池單元之

間提供氣體阻擋件。互連件亦用於提供氣流通道及電池單元之間的電接觸。此藉由使每一互連件包含在互連件的第一側上之一或多個突出接觸區域及在第二側上之一或多個突出接觸區域來解決，該互連件經調適以提供互連件與固態氧化物電池之間的機械及電接觸以及互連件之第一側及第二側上之接觸區域之間的氣流通道。應理解，每一互連件之兩側上的接觸區域至少相對於氣流通道之底部突出。特定針對本發明，每一固態氧化物電池具有面向相鄰互連件之第一側的高壓側及面向相鄰互連件之第二側的低壓側。互連件之第二側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為2.5 mm，從而SOC歸因於互連件之第一側與第二側之間施加的壓差而經歷的張應力亦具有與施加壓力及接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離相關的最大值。

【0015】 因此，對於具有給定強度之給定SOC單元及對於給定操作條件，互連件係根據本發明設計為提供SOC藉助於互連件之第二側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離而經歷之最大張應力。因此，在本發明之其他具體實例中，在關於SOC強度及/或壓差之不同應用之情況下，取決於所提及之操作條件及SOC強度，該最大差可以為0.3 mm、0.4 mm、0.5 mm、0.6 mm、0.7 mm、0.8 mm、0.9 mm、1.0 mm、1.2 mm、1.5 mm、1.8 mm或2.5 mm。

【0016】 根據本發明之另一個具體實例，所論述之在互連件之第一側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離相同於或大於在互連件之第二側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離。以此方式，互連件設計可針對不同程序參數及在互連件之任一側的張應力而調適。亦即，一側上之接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離適合於該側上之壓力及因此應力，而另一側上之壓力及應力可不同且該側上之所論述的距離可因此亦不同以滿足強度需求。

【0017】 在本發明之另一個具體實例中，SOC堆疊之互連件各自具有15 cm²與10000 cm²之間，較佳地64與500 cm²之間的面積。

【0018】 在本發明之一個具體實例中，電池單元可為陶瓷。此外，互連件可包含一或多個中間接觸增強層。在本發明之一個特定具體實例中，SOC堆疊為固態氧化物電解電池堆疊。

【0019】 根據本發明之一個具體實例，高壓側與低壓側之間的壓差為最小300毫巴。在本發明之另一個具體實例中，該壓差為最小1巴，較佳地為最小5巴或甚至最小15巴。應理解，互連件之第二側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離可相應地改變，使得壓差愈高，這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離愈小。

【0020】

本發明之特徵

1. 一種固態氧化物電池堆疊，其包含複數個堆疊電池單元，每一單元包含電池層中之固態氧化物電池及互連件層中之互連件，其中一個互連件層將該電池堆疊中之一個電池層與相鄰電池層分離，每一互連件包含在該互連件之第一側上的一或多個突出接觸區域及第二側上的一或多個突出接觸區域，該互連件經調適以提供互連件與固態氧化物電池之間的機械及電接觸，

其中每一固態氧化物電池具有面向相鄰互連件之該第一側的高壓側及面向相鄰互連件之該第二側的低壓側，且其中在這些互連件之該第二側上之這些接觸區域的兩個相鄰邊緣之間的最大距離為2.5 mm。

【0021】 2. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為2.0 mm。

【0022】 3. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.8 mm。

【0023】 4. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.5 mm。

【0024】 5. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.2 mm。

【0025】 6. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.0 mm。

【0026】 7. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.9 mm。

【0027】 8. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.8 mm。

【0028】 9. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.7 mm。

【0029】 10. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.6 mm。

【0030】 11. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.5 mm。

【0031】 12. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.4 mm。

【0032】 13. 如特徵1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為0.3 mm。

【0033】 14. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之該第一側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離相同於或大於這些互連件之該第二側上的這些接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離。

【0034】 15. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件中之每一者之面積在15 cm²與10000 cm²之間，較佳地在64與500 cm²之間。

【0035】 16. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些固態

氧化物電池為陶瓷電池。

【0036】 17. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件包含一或多個中間接觸增強層。

【0037】 18. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該固態氧化物電池堆疊為固態氧化物電解電池堆疊。

【0038】 19. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側與該低壓側之間的壓差為最小300毫巴。

【0039】 20. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側與該低壓側之間的壓差為最小1巴，較佳地為最小5巴，較佳地為最小15巴。

【0040】 21. 如前述特徵中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側為燃料側。

【圖式簡單說明】

【0041】 [圖1]展示根據本發明之一個具體實例的SOC堆疊之一部分的部分原理側切口。

【實施方式】

【0042】 在下文中，將參考圖1解釋本發明之一個具體實例，該圖展示根據本發明之一個具體實例的SOC堆疊之一部分的部分原理側切口。

【0043】 展示具有高壓側H及低壓側L之一部分固態氧化物電池（SOC）101。應理解，若干SOC以層之形式堆疊於SOC堆疊中，其中互連件102將電池堆疊中之每一SOC與下一者分離。SOC與一個互連件各自形成電池單元103。該SOC之高壓側面向互連件之第一側且該SOC之低壓側面向互連件之第二側。互連件包含在互連件之第一側及第二側兩者上之突出接觸區域。根據本發明，每一互連

件的第二側上之接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離M1經調適為2.5 mm，以支撐電池單元。由於SOC之高壓側需要比低壓側少的支撐，所以每一互連件之第一側上的接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離M2可在本發明之一具體實例中大於M1。在本發明之另一個具體實例中，SOC之高壓側為SOC之燃料側。

【0044】

實施例

在含有9個單一重複電池單元之兩個短SOC堆疊中測試本發明之設計。低壓氧氣側上之接觸點/肋片之間的距離為1.3 mm，且燃料側經加壓至高達1.75絕壓 (bara)，在燃料至氧氣側之間得到高達750毫巴之壓差。

【0045】 第一測試在電解模式中進行，其中燃料在蒸汽中含有5%氫氣。在整個測試中，用空氣沖洗氧氣側且保持在環境壓力(1.013絕壓)。將入口氣體加熱至750℃且將堆疊安裝在鍋爐中，使圍繞堆疊之溫度穩定地保持在750℃。堆疊在大約0.75 A/cm²之電流密度下運作。以下為展示在增加燃料側壓力之情況下在所選擇操作點處之平均電池電壓的表。

燃料側壓力	壓差	平均電池電壓
[絕壓]	[毫巴]	[毫伏]
1.02	8	1255
1.26	250	1253
1.51	495	1248
1.76	742	1241

【0046】 如自該表所見，電池之平均電壓隨著燃料側壓力增大而減小，其在SOEC模式中對應於改良之效能。在此操作點處之增加之效能對應於幾乎不超過1%之減少的功率消耗。

【0047】 第二測試在SOFC模式中進行，其中燃料為60%氫氣及40%氨氣。同樣，在整個測試中，用空氣沖洗氧氣側且在環境壓力(1.013絕壓)下保持。將入口氣體加熱至700℃且將SOC堆疊安裝在鍋爐中，使圍繞SOC堆疊之溫度穩定地保持在700℃。SOC堆疊在大約0.28 A/cm²之電流密度下運作。以下為展示在增加

燃料側壓力之情況下在所選擇操作點處之平均電池電壓的表。

燃料側壓力	壓差	平均電池電壓
[絕壓]	[毫巴]	[毫伏]
1.01	0	874.7
1.26	243	877.2
1.51	492	878.5
1.75	740	879.5

如自該表所見，電池之平均電壓隨著燃料側壓力增大而增大，其在SOFC模式中對應於改良之效能。在此操作點處之增加之效能對應於大致0.6%之增加的功率輸出。

【符號說明】

【0048】

101:固態氧化物電池

102:互連件

103:電池單元

H:高壓側

L:低壓側

M1:每一互連件之第二側上之接觸區域的兩個相鄰邊緣之間的最大距離

M2:每一互連件之第一側上之接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的距離

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種固態氧化物電池堆疊，其包含複數個堆疊電池單元，每一堆疊電池單元包含電池層中之固態氧化物電池及互連件層中之互連件，其中一個互連件層將該固態氧化物電池堆疊中之一個電池層與相鄰電池層分離，每一互連件包含在該互連件之第一側上的一或多個突出接觸區域及第二側上的一或多個突出接觸區域，該互連件經調適以提供互連件與固態氧化物電池之間的機械及電接觸，

其中每一固態氧化物電池具有面向相鄰互連件之第一側的高壓側及面向相鄰互連件之第二側的低壓側，且其中在這些互連件之所述第二側上之這些突出接觸區域的兩個相鄰邊緣之間的最大距離為超過1.0 mm至2.5 mm的範圍。

【請求項2】如請求項1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之所述第二側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為2.0 mm。

【請求項3】如請求項1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之所述第二側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.8 mm。

【請求項4】如請求項1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之所述第二側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.5 mm。

【請求項5】如請求項1之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之所述第二側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離為1.2 mm。

【請求項6】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件之所述第一側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離相同於或大於這些互連件之所述第二側上的這些突出接觸區域之兩個相鄰邊緣之間的最大距離。

【請求項7】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件中之每一者之面積在15 cm²與10000 cm²之間。

【請求項8】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些固態氧化物電池為陶瓷電池。

【請求項9】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中這些互連件包含一或多個中間接觸增強層。

【請求項10】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該固態氧化物電池堆疊為固態氧化物電解電池堆疊。

【請求項11】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側與該低壓側之間的壓差為最小300毫巴。

【請求項12】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側與該低壓側之間的壓差為最小1巴。

【請求項13】如請求項1至5中任一項之固態氧化物電池堆疊，其中該高壓側為燃料側。

【發明圖式】

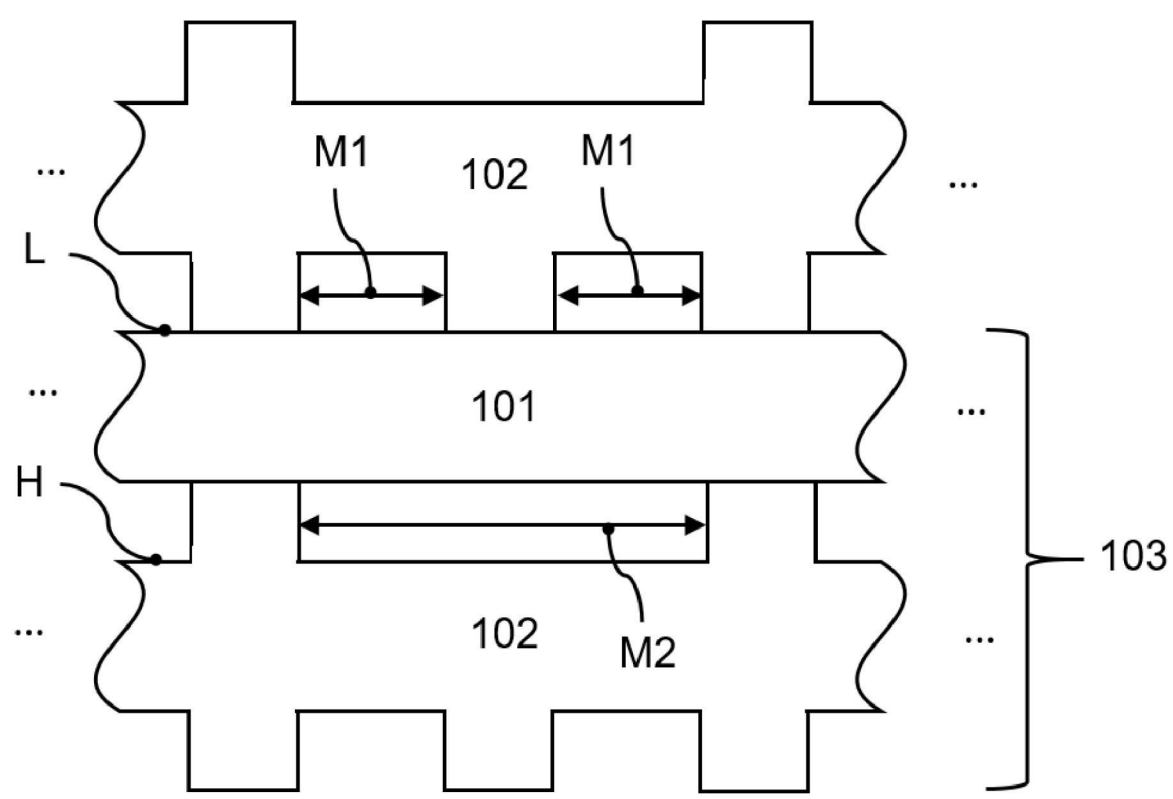


圖1