



(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2014년12월22일

(11) 등록번호 10-1475392

(24) 등록일자 2014년12월16일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 8/02 (2006.01) *H01M 8/12* (2006.01)
- (21) 출원번호 10-2009-7015849
- (22) 출원일자(국제) 2007년12월27일
 심사청구일자 2012년12월21일
- (85) 번역문제출일자 2009년07월28일
- (65) 공개번호 10-2009-0106564
- (43) 공개일자 2009년10월09일
- (86) 국제출원번호 PCT/US2007/026356
- (87) 국제공개번호 WO 2008/085488
 국제공개일자 2008년07월17일
- (30) 우선권주장
 60/877,503 2006년12월28일 미국(US)
 60/877,504 2006년12월28일 미국(US)
- (56) 선행기술조사문헌
 US06106967 A
 US20060147778 A1
 US20070009784 A1
 Journal of Power Sources, Vol.154, pp.180-183

- (73) 특허권자
 생-고뱅 세라믹스 앤드 플라스틱, 인코포레이티드
 미국 매사추세츠 01615-0138, 우스터 피.오.박스 15138 뉴 본드 스트리트 1
- (72) 발명자
 나렌달, 예시완쓰
 미국 01886 매사추세츠 웨스트포드 카리슬 로드 34
- (74) 대리인
 장훈

전체 청구항 수 : 총 11 항

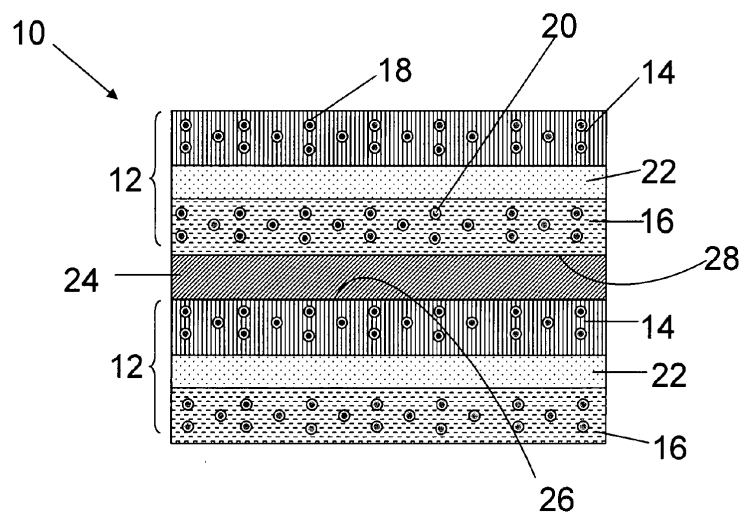
심사관 : 조기윤

(54) 발명의 명칭 고체 산화물 연료전지를 위한 티타네이트 및 금속 상호연결부

(57) 요약

고체 산화물 연료전지(SOFC)는 다수의 하위-셀을 포함한다. 각각의 하위-셀은 산소 가스 소스와 유체 소통하는 제 1 전극, 연료 가스 소스와 유체 소통하는 제 2 전극, 및 제 1 전극과 제 2 전극 사이의 고체 전해질을 포함한다. 추가적으로, SOFC는 하위-셀들 사이의 상호연결부를 포함한다. 일 실시예에서, SOFC는 각각의 하위-셀의 (뒷면에 계속)

대표도



제 1 전극과 접촉하는 제 1 표면 및 각각의 하위-셀의 제 2 전극과 접촉하는 제 2 표면을 포함하고; 그리고 상호연결부는 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 필수 구성으로 포함하며, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다. 다른 실시예에서, 상호연결부는 각각의 하위-셀의 제 1 전극과 접촉하는 제 1 층, 및 각각의 하위-셀의 제 2 전극과 접촉하는 제 2 층을 포함한다. 제 1 층은 금속, 금속 합금 및 이의 혼합물로 이루어진 그룹으로부터 선택된 전기적으로 전도성인 물질을 포함한다. 제 2 층은 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 포함하고, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다. 상기 설명된 고체 산화물 연료전지는 상기에서 설명된 상호연결부를 가진 하위-셀의 각각을 연결함에 의해 형성된다.

특허청구의 범위

청구항 1

고체 산화물 연료전지로서,

다수의 하위-셀; 및 상기 하위-셀 사이의 상호연결부를 포함하고,

상기 하위-셀의 각각이,

- i) 산소 가스 소스와 유체 소통하는 제1 전극;
- ii) 연료 가스 소스와 유체 소통하는 제2 전극; 및
- iii) 상기 제1 전극 및 상기 제2 전극 사이의 고체 전해질을 포함하고,

상기 상호연결부가,

i) 금속, 금속 합금 또는 금속의 혼합물을 포함하는 제1 층으로서, 각각의 하위-셀의 제1 전극과 접촉하는 제1 층; 및

ii) La를 포함하는 n-도펀트를 갖는 Sr-티타네이트(SrTiO_3)를 포함하는 제2 층으로서, 각각의 하위-셀의 제2 전극과 접촉하는 제2 층을 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 2

제1항에 있어서, 각각의 하위-셀이 상기 산소 가스 소스와 유체 소통하는 제1 가스 채널 및 상기 연료 가스 소스와 유체 소통하는 제2 가스 채널을 추가로 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 3

제2항에 있어서, 상기 제1 전극이 상기 제1 가스 채널을 적어도 부분적으로 한정하고, 상기 제2 전극이 상기 제2 가스 채널을 적어도 부분적으로 한정하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 4

제1항에 있어서, 상기 상호연결부가 평면인, 고체 산화물 연료전지.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 고체 전해질이 ZrO_2 계 물질, CeO_2 계 물질 및 란타나이드-갈레이트계 물질로 이루어진 그룹으로부터 선택된 하나 이상의 물질을 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 6

제1항에 있어서, 상기 제1 전극이 La-망가네이트계 물질을 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 7

제1항에 있어서, 상기 제2 전극이 Ni 서밋을 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 8

제1항에 있어서, 상기 상호연결부의 제1 층이 Cr-계 합금, 페리틱 강, Ni-계 초합금 및 $\text{Ni-Fe-Y}_2\text{O}_3$ 합금으로 이루어진 그룹으로부터 선택된 하나 이상의 물질을 포함하는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 9

제1항에 있어서, 상기 셀들 중 하나 이상의 상기 제1 전극 및 제2 전극의 각각의 두께가 1mm 내지 2mm의 범위에 있는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 10

제9항에 있어서, 상기 상호연결부의 두께가 10 μm 내지 200 μm의 범위에 있는, 고체 산화물 연료전지.

청구항 11

다수의 하위-셀을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 형성하는 방법으로서,

상호연결부로 상기 하위-셀의 각각을 연결시키는 단계를 포함하고,

상기 하위-셀의 각각이,

- i) 산소 가스 소스와 유체 소통하는 제1 전극;
- ii) 연료 가스 소스와 유체 소통하는 제2 전극; 및
- iii) 상기 제1 전극 및 상기 제2 전극 사이의 고체 전해질을 포함하고,

상기 상호연결부가,

i) 전기적으로 전도성인 금속, 금속 합금 또는 금속의 혼합물로 된 제1 층으로서, 각각의 하위-셀의 제1 전극과 접촉하는 제1 층; 및

ii) La를 포함하는 n-도펀트를 갖는 Sr-티타네이트(SrTiO₃)를 포함하는 제2 층으로서, 각각의 하위-셀의 제2 전극과 접촉하는 제2 층을 포함하는, 다수의 하위-셀을 포함하는 고체 산화물 연료전지를 형성하는 방법.

청구항 12

삭제

청구항 13

삭제

청구항 14

삭제

청구항 15

삭제

청구항 16

삭제

청구항 17

삭제

청구항 18

삭제

청구항 19

삭제

청구항 20

삭제

청구항 21

삭제

청구항 22

삭제

청구항 23

삭제

청구항 24

삭제

청구항 25

삭제

청구항 26

삭제

청구항 27

삭제

청구항 28

삭제

청구항 29

삭제

청구항 30

삭제

청구항 31

삭제

청구항 32

삭제

청구항 33

삭제

청구항 34

삭제

명세서

기술분야

*관련 출원

[0001]

[0002]

이 출원은 2006년 12월 28일 출원된 미국 가출원 제 60/877,503호 및 제 60/877,504호를 우선권으로 주장하고 있다. 이 출원들의 전체 내용은 여기서 참조로 인용된다.

[0003] 본 발명은 고체 산화물 연료전지를 위한 티타네이트 및 금속 상호연결부에 관한 것이다.

배경 기술

[0004] 연료전지는 화학 반응에 의해 전기를 생성하는 소자이다. 다양한 연료전지 중에서, 고체 산화물 연료전지는 전해질로서 금속(예를 들어 칼슘 또는 지르코늄) 산화물의 단단한 세라믹 화합물(hard, ceramic compound)을 이용한다. 일반적으로, 고체 산화물 연료전지에서, O₂와 같은 산소 가스는 캐소드(cathode)에서 산소 이온(O²⁻)으로 환원되고, 애노드(anode)로부터 H₂ 가스와 같은 연료 가스는 산소 이온과 함께 산화되어 물을 형성한다.

[0005] 상호연결부는 고체 산화물 연료전지의 상업화를 제한하는 중요한 문제 중 하나이다. 현재, 평면 셀을 연구하는 대부분의 회사 및 연구소는 코팅된 금속 상호연결부를 이용하고 있다. 예를 들면, 오스트리아의 Plansee AG로부터의 파우더 야금 조성물(powder metallurgy formulations), 및 Crofer 22 APU와 같은 페리틱 스테인리스강계 금속 상호연결부(ferritic stainless steel based metal interconnects)는 고체 산화물 연료전지로서 좋은 CTE(열 팽창 계수) 미스매치(mismatch) 및 좋은 용화성(compatibility)을 갖는다. 그러나, Cr₂O₃와 같은 금속 산화물을 형성하도록 작동 동안 금속 상호연결부의 산화 및 이후의 전극층 및/또는 전극-전해질 인터페이스로의 금속 산화물의 금속의 이동(예를 들어 크롬 이동)은 고체 산화물 연료전지에서 성능 저하를 유도하는 주요 메커니즘 중의 하나이다.

[0006] 금속 상호연결부가 비교적 제작하고 프로세스하기 쉽지만, 이는 작동 동안 상호연결-애노드/캐소드 인터페이스에서 Cr₂O₃와 같은 금속 산화물의 형성 때문에 부분적으로 높은 전력 감쇠(degradation) 속도(예를 들어 10%/1,000h)를 일반적으로 나타낸다. 란탄 크로마이트(LaCrO₃)계 세라믹 상호연결부는 금속 상호연결부 및 전극의 인터페이스 상에 형성된 Cr₂O₃와 비교하여 LaCrO₃의 낮은 Cr 증기 압력 및 비교적 높은 열역학적 안정성 때문에 부분적으로 금속 상호연결부보다 낮은 감쇠 속도를 가진다. 그러나, 도핑된 LaCrO₃는 일반적으로 환원 조건 하에서 결과적인 밀봉 실패 및 비틀림(warping) 또는 뒤틀림(distortion)의 일정한 다른 형태와 같은 치수 변화를 일반적으로 나타낸다. LaCrO₃에 관련된 다른 문제는 비교적 낮은 소결성(sinterability)이다.

[0007] 따라서, 이전에 언급한 문제들의 하나 이상을 해결하는 고체 산화물 연료전지를 위한 새로운 상호연결부의 개발에 대한 요구가 있다.

발명의 상세한 설명

[0008] 본 발명은 다수의 하위-셀을 포함하는 고체 산화물 연료전지(SOFC) 및 SOFC를 제작하는 방법에 관한 것이다. 각각의 하위-셀은 산소 가스 소스와 유체 소통하는 제 1 전극, 연료 가스 소스와 유체 소통하는 제 2 전극, 그리고 제 1 전극 및 제 2 전극 사이의 고체 전해질을 포함한다. SOFC는 하위-셀들 사이의 상호연결부를 추가로 포함한다.

[0009] 일 실시예에서, 상호연결부는 각각의 하위-셀의 제 1 전극과 접촉한 제 1 표면, 및 각각의 하위-셀의 제 2 전극과 접촉하는 제 2 표면을 갖는다. 상호연결부는 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 필수 구성으로 포함하고, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다.

[0010] 다른 실시예에서, 상호연결부는 각각의 하위-셀의 제 1 전극과 접촉하는 제 1 층, 및 각각의 하위-셀의 제 2 전극과 접촉하는 제 2 층을 포함한다. 제 1 층은 금속, 금속 합금 및 이의 혼합물로 이루어진 그룹으로부터 선택된 전기적으로 전도성인 물질을 포함한다. 제 2 층은 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 포함하고, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다.

[0011] 또한, 본 발명은 상기에서 설명된 고체 산화물 연료전지를 형성하는 방법을 포함한다. 이 방법은 상기 설명된 상호연결부로 하위-셀의 각각을 연결시키는 단계를 포함한다.

[0012] 본 발명의 도핑된 M-티타네이트(예를 들어 MTiO₃), 특히 n-도핑된 SrTiO₃ 또는 CaTiO₃와 같은 n-도핑된 M-티타네

이트는, 종래의 p-도핑된 LaCrO_3 와 비교할 때, SOFC의 작동 동안 적은 산소 빈 자리 형성(oxygen vacancy formation)을 나타내고, 이에 의해 종래의 p-도핑된 LaCrO_3 와 연관된 래티스 팽창 문제점들(lattice expansion problems)을 제한하거나 또는 제거한다. 또한, 도핑된 M-티타네이트는 효과적인 산화 배리어로서 기능을 할 수 있고, 이에 의해 SOFC의 작동 수명을 연장시킨다.

실시예

- [0017] 이전의 내용은 첨부된 도면에서 도시된 것처럼 본 발명의 예시적 실시예의 더욱 구체적인 이하의 설명으로부터 명확하게 나타날 것이고, 도면에서 동일한 도면 부호는 다른 도면들에 걸쳐 동일한 부품을 지칭하는 것이다. 도면은 스케일대로 그려진 것은 아니고 본 발명의 실시예의 도시에 따라 강조되었다.
- [0018] 도 1은 본 발명의 연료전지(10)를 도시한다. 연료전지(10)는 다수의 하위-셀(12)을 포함한다. 각각의 하위-셀(12)은 제 1 전극(14) 및 제 2 전극(16)을 포함한다. 일반적으로, 제 1 및 제 2 전극(14, 16)은 다공성이다. 연료전지(10)에서, 제 1 전극(14)은 공기와 같은 산소 가스의 소스와 유체 소통하는 다수의 제 1 가스 채널(18)을 적어도 부분적으로 형성한다. 제 2 전극(16)은 제 2 전극(16)에서 인시츄(in situ)로 H_2 로 변환될 수 있는 천연 가스 또는 H_2 가스와 같은 연료 가스 소스와 유체 소통하는 다수의 제 2 가스 채널(20)을 적어도 부분적으로 형성한다.
- [0019] 도 1에서 제 1 전극(14) 및 제 2 전극(16)은 다수의 가스 채널(18, 20)을 형성하지만, 전극과 유체 소통하는 개별층으로서 또는 각각의 전극에서 미세구조화된 채널(예를 들어 그루브된 채널)과 같은 다른 유형의 가스 채널들이 본 발명에서 이용될 수도 있다. 예를 들면, 도 2를 참고하면, 제 1 가스 채널(18)은 상호연결부(24)에 의해 적어도 부분적으로 그리고 제 1 전극(14)에 의해 적어도 부분적으로 한정되고, 제 2 가스 채널(20)은 제 2 전극(16)에 의해 적어도 부분적으로 그리고 상호연결부(24)에 의해 적어도 부분적으로 한정된다.
- [0020] 이 기술분야에서 공지된 어떠한 적절한 캐소드 물질은 그 전체 내용이 여기서 참조로 인용된 예를 들어 "고온 고체 산화물 연료전지: 펀더멘탈스, 디자인 및 이용" pp 119-143, Dingham 등, Ed., Elsevier Ltd.(2003) 에서 제 1 전극에 이용될 수 있다. 일 실시예에서, 제 1 전극(14)은 La-망가네이트(예를 들어 $\text{La}_{1-k}\text{MnO}_3$, 이 경우 a는 0과 동일하거나 그 초과이고, 0.1과 동일하거나 그 미만이다) 또는 La-페라이트계 물질을 포함한다. 일반적으로 La-망가네이트 또는 La-페라이트계 물질은 Sr, Ca, Ba, Mg, Ni, Co 또는 Fe와 같은 하나 이상의 적절한 도펀트로 도핑된다. 도핑된 La-망가네이트계 물질의 예는 LaSr-망가네이트(LSM)(예를 들어 $\text{La}_{1-k}\text{Sr}_k\text{MnO}_3$, 이 경우 k는 0.1과 동일하거나 또는 그 초과이고 0.3과 동일하거나 그 미만이며, $(\text{La}+\text{Sr})/\text{Mn}$ 은 약 1.0 내지 약 0.95(몰랄비)의 범위에 있다) 및 LaCa-망가네이트(예를 들어 $\text{La}_{1-k}\text{Ca}_k\text{MnO}_3$, k는 0.1과 동일하거나 그 초과이고 0.3과 동일하거나 그 미만이며, $(\text{La}+\text{Ca})/\text{Mn}$ 은 약 1.0 내지 약 0.95(몰랄비)의 범위에 있다)를 포함한다. 도핑된 La-페라이트계 물질의 예는 LaSrCo-페라이트(LSCF)(예를 들어 $\text{La}_{1-q}\text{Sr}_q\text{Co}_{1-j}\text{Fe}_j\text{O}_3$, 이 경우 q 및 j의 각각은 독립적으로 0.1과 동일하거나 그 초과이고 0.4와 동일하거나 그 미만이고, $(\text{La}+\text{Sr})/(\text{Fe}+\text{Co})$ 는 약 1.0 내지 약 0.95(몰랄비)의 범위에 있다)를 포함한다. 일 특정한 실시예에서, 제 1 전극(14)은 LaSr-망가네이트(LSM)(예를 들어 $\text{La}_{1-k}\text{Sr}_k\text{MnO}_3$) 및 LaSrCo-페라이트(LSCF) 중 하나 이상을 포함한다. 공통적인 예들은 $(\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2})_{0.98}\text{MnO}_{3\pm\delta}$ (δ 는 0과 동일하거나 또는 그 초과이고 0.3과 동일하거나 또는 그 미만이다) 및 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ 을 포함한다.
- [0021] 이 기술분야에서 공지된 어떠한 적절한 애노드 물질은 그 전체 내용이 여기서 참조로 인용된 예를 들어 "고온 고체 산화물 연료전지: 펀더멘탈스, 디자인 및 이용" pp 149-169, Dingham 등, Ed., Elsevier Ltd.(2003) 에서 제 2 전극에 이용될 수 있다. 일 실시예에서, 제 2 전극(16)은 니켈(Ni) 서밋(cermet)을 포함한다. 여기서 이용된 것처럼, "Ni 서밋"이란 문구는 약 20wt%-70wt%의 Ni와 같은 Ni를 포함하는 세라믹 금속 복합물을 의미하는 것이다. Ni 서밋의 예들은 약 15wt%의 Y_2O_3 를 함유한 ZrO_2 와 같은 Ni 및 이트리아-안정화된 지르코니아(YSZ)를 포함한 물질과 Ni 및 Y-지르코니아 또는 Sc-지르코니아를 포함한 물질이다. 애노드 물질의 추가적인 예는 Cu-세륨 산화물이다. Ni 서밋의 특정 예는 67wt% Ni 및 33wt% YSZ를 포함한다.
- [0022] 일반적으로, 제 1 및 제 2 전극들(14, 16)의 각각의 두께는 독립적으로 약 0.5mm 내지 약 2mm의 범위에 있다. 특별하게, 제 1 및 제 2 전극(14, 16)의 각각의 두께는 독립적으로 약 1mm 내지 약 2mm의 범위에 있다.
- [0023] 고체 전해질(22)은 제 1 전극(14) 및 제 2 전극(16) 사이에 있다. 이 기술분야에서 공지된 어떠한 적절한 고체

전해질은 그 전체 내용이 여기서 참조로 인용된 예를 들어 "고온 고체 산화물 연료전지: 펀더멘탈스, 디자인 및 이용" pp 83-112, Dinghal 등, Ed., Elsevier Ltd.(2003) 에서 설명된 것들과 같이 본 발명에서 이용될 수 있다. 예들은 Sc₂O₃-도핑된 ZrO₂, Y₂O₃-도핑된 ZrO₂, 및 Yb₂O₃-도핑된 ZrO₂와 같은 ZrO₂계 물질; Sm₂O₃-도핑된 CeO₂, Gd₂O₃-도핑된 CeO₂, Y₂O₃-도핑된 CeO₂ 및 CaO-도핑된 CeO₂와 같은 CeO₂계 물질; Ca, Sr, Ba, Mg, Co, Ni, Fe 또는 그 혼합물로 도핑된 LaGaO₃와 같은 Ln-갈레이트계(gallate based) 물질(Ln = La, Pr, Nd 또는 Sm과 같은 란타나이드(lanthanide))(예를 들어 La_{0.8}Sr_{0.2}Ga_{0.8}Mg_{0.2}O₃, La_{0.8}Sr_{0.2}Ga_{0.8}Mg_{0.15}Co_{0.05}O₃, La_{0.9}Sr_{0.1}Ga_{0.8}Mg_{0.2}O₃, LaSrGa₃O₇ 또는 La_{0.9}A_{0.1}Ga₃이고 A = Sr, Ca 또는 Ba); 및 이의 혼합물을 포함한다. 다른 예들은 도핑된 이트륨-지르코네이트(예를 들어 YZr₂O₇), 도핑된 가돌리늄-티타네이트(예를 들어 Gd₂Ti₂O₇) 및 브라운밀러라이트(예를 들어 Ba₂In₂O₆ 또는 Ba₂In₂O₅)를 포함한다. 특정 실시예에서, 전해질(22)은 8mol% Y₂O₃로 도핑된 ZrO₂(즉, 8mol% Y₂O₃-도핑된 ZrO₂)를 포함한다.

[0024] 일반적으로, 고체 전해질(22)의 두께는 약 5 μm 내지 약 10 μm와 같이 약 5 μm 내지 약 20 μm의 범위에 있다. 대안적으로, 고체 전해질(22)의 두께는 약 100 μm보다 두껍다(예를 들어 약 100 μm 내지 약 500 μm). 약 100 μm보다 두꺼운 두께를 갖는 고체 전해질(22)을 이용한 실시예에서, 고체 전해질(22)은 연료전지(10)를 위한 구조적 지지를 제공할 수 있다.

[0025] 연료전지(10)는 셀들(12) 사이에서 상호연결부(24)를 포함한다. 도 1을 참고하면, 일 실시예에서, 상호연결부(24)는 제 1 전극(14)과 접촉한 제 1 표면(26) 및 제 2 전극(16)과 접촉한 제 2 표면(28)을 갖는다. 상호연결부(24)는 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 필수 구성으로 포함하고, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다. 여기서 이용된 것처럼, "필수 구성으로 포함한다"는 문구는 상호연결부(24)가 상호연결부(24)의 성질에 실질적으로 영향을 미칠 수 있는 다른 금속 산화물을 포함하지 않는다는 의미이다. 적절한 도펀트 물질의 예는 La, Y, Nb, Mn, V, Cr, W, Mo, Si, Sr, Ca, Mg, Ni, Co, V 및 Ti를 포함한다. 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 Sr-티타네이트(예를 들어 SrTiO₃), Ca-티타네이트(예를 들어 CaTiO₃), Ba-티타네이트(예를 들어 BaTiO₃), 또는 Mg-티타네이트(예를 들어 MgTiO₃)이다. 다른 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 n-도핑된 Sr-티타네이트 또는 n-도핑된 Ca-티타네이트와 같이 n-도핑된다. 또 다른 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 La, Y, Nb, Mn, V, Cr, W, Mo 및 Si로 이루어진 그룹으로부터 선택된 적어도 하나의 도펀트로 도핑된 Sr-티타네이트이다.

[0026] 다른 실시예에서, 도 2에서 도시된 것처럼, 상호연결부(24)는 제 1 전극(14)과 접촉하는 제 1 층(36) 및 제 2 전극(16)과 접촉하는 제 2 층(38)을 포함한다. 제 1 층(36)은 금속, 금속 합금 및 이의 혼합물로부터 선택된 전기적으로 전도성인 물질을 포함한다. 제 1 층(36)에 적절한 전기적으로 전도성인 물질의 예는 Cr-계 합금, 페리틱 강(ferritic steels), Ni-계 초합금 및 Ni-Fe-Y₂O₃ 합금을 포함한다. 제 2 층(38)은 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 포함하고, 이 경우 M은 알칼리 토금속이다. 바람직하게, 제 2 층(38)에 포함된 물질은 n-도핑된다. 적절한 도펀트 물질의 예는 La, Y, Nb, Mn, V, Cr, W, Mo, Si, Sr, Ca, Mg, Ni, Co, V 및 Ti를 포함한다. 적절한 n-도펀트는 La, Y, Nb, Mn, V, Cr, W, Mo 및 Si를 포함한다. 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 Sr-티타네이트(예를 들어 SrTiO₃), Ca-티타네이트(예를 들어 CaTiO₃), Ba-티타네이트(예를 들어 BaTiO₃), 또는 Mg-티타네이트(예를 들어 MgTiO₃)이다. 다른 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 n-도핑된 Sr-티타네이트 또는 n-도핑된 Ca-티타네이트와 같은 n-도핑된 것이다. 또 다른 특정 실시예에서, M-티타네이트계 페롭스카이트는 La, Y, Nb, Mn, V, Cr, W, Mo 및 Si로 이루어진 그룹으로부터 선택된 하나 이상의 도펀트로 도핑된 Sr-티타네이트이다.

[0027] M-티타네이트계 페롭스카이트는 그 전체 내용이 여기서 참조로 인용된 예를 들어 "고온 고체 산화물 연료전지: 펀더멘탈스, 디자인 및 이용" pp 120-123, Dinghal 등, Ed., Elsevier Ltd.(2003) 에서 공지된 페롭스카이트 구조를 갖는다. 이 페롭스카이트 구조는 화학식 ABO₃를 갖는 많은 산화물에 의해 채택된다. 일반적인 결정 구조는 단위 셀의 중앙에 A-양이온, 단위 셀의 코너의 B-양이온, 그리고 단위 셀의 각각의 에지의 중앙의 음이온(예를 들어 O²⁻)을 가진 기본 입방체이다. 이상적인 구조는 기본 입방체이지만, A 및 B 양이온들 사이의 비율의 차이는 다수의 상이한 소위 뒤틀림(distortion)을 일으킬 수 있고, 그 중 기울어짐(tilting)은 가장 공통적인 것이다. 여기서 이용된 것처럼, "M-티타네이트계 페롭스카이트"란 구조는 이러한 뒤틀림을 포함한다. "M-티타네이트계 페롭스카이트"에서, M 원자는 일반적으로 A-양이온 위치를 차지하고, Ti 원자는 일반적으로 B-양이온

자리를 차지한다.

- [0028] 상호연결부(24)는 평면 형상(도 1 및 2를 보라) 또는 미세구조화된(예를 들어 그루브화된) 형상(도 3을 보라)과 같이 어떠한 형상도 가질 수 있다. 일 특정 실시예에서, 연료전지(10)의 적어도 하나의 상호연결부(24)는 거의 평면이다.
- [0029] 일 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 약 10 μm 내지 약 1000 μm의 범위에 있다. 대안적으로, 상호연결부(24)의 두께는 약 0.005mm 내지 약 2.0mm의 범위에 있다. 일 특정 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 10 μm 내지 약 500 μm의 범위에 있다. 다른 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 10 μm 내지 약 200 μm의 범위에 있다. 또 다른 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 약 10 μm 내지 약 100 μm이다. 또 다른 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 약 10 μm 내지 약 75 μm이다. 또 다른 실시예에서, 상호연결부(24)의 두께는 약 15 μm 내지 약 65 μm이다.
- [0030] 일 특정 실시예에서, 제 1 전극(14) 및/또는 제 2 전극(16)은 약 0.5mm 내지 약 2mm, 더욱 구체적으로는 약 1mm 내지 약 2mm의 두께를 갖고; 상호연결부(24)는 약 10 μm 내지 약 200 μm, 구체적으로는 약 10 μm 내지 약 200 μm, 더욱 구체적으로는 약 10 μm 내지 약 100 μm의 두께를 갖는다.
- [0031] 다른 특정 실시예에서, 제 2 층(28)은 상기에서 설명된 SrLa-티타나이트계 페롭스카이트를 포함하고; 그리고 상호연결부(24)는 약 10 μm 내지 약 100 μm, 구체적으로는 약 10 μm 내지 약 75 μm, 더욱 구체적으로는 약 15 μm 내지 약 65 μm의 두께를 갖는다.
- [0032] 또 다른 특정 실시예에서, 적어도 하나의 셀(12)은 다공성 제 1 및 제 2 전극들(14, 16)을 포함하고, 이들 각각은 약 0.5mm 내지 약 2mm의 두께이고, 더욱 구체적으로는 약 1mm 내지 약 2mm의 두께이며; 고체 전해질(22)은 약 5 μm 내지 약 20 μm의 두께를 갖고; 상호연결부(24)는 거의 평면이며 약 10 μm 내지 약 200 μm의 두께를 갖는다.
- [0033] 또 다른 특정 실시예에서, 상호연결부(24)는 거의 평면이고; 제 1 및 제 2 전극들(14, 16)의 각각은 다공성이며; 그리고 제 1 전극(14)은 La-망가나이트 또는 La-페라이트계 물질(예를 들어 $La_{1-k}Sr_kMnO_3$ 또는 $La_{1-q}Sr_qCo_jFe_{1-j}O_3$, 이 경우 k, l 및 j의 각각의 값은 독립적으로 상기에서 설명된 것과 같다)을 포함하고, 제 2 전극(16)은 Ni-서밋(예를 들어 67wt% Ni 및 33wt% YSZ)를 포함한다. 이러한 특정 실시예의 일 태양에서, 전해질(22)은 8mol% Y_2O_3 도핑된 ZrO_2 를 포함한다.
- [0034] 또 다른 특정 실시예에서, 제 1 전극(14)은 $(La_{0.8}Sr_{0.2})_{0.98}MnO_{3\pm\delta}$ 또는 $La_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O_3$ 를 포함하고; 제 2 전극(16)은 67wt% Ni 및 33wt% YSZ를 포함한다. 이 실시예에서, 구체적으로, 전해질(22)은 8mol% Y_2O_3 -도핑된 ZrO_2 를 포함한다.
- [0035] 본 발명의 연료전지(10)는 다수의 하위-셀(12)의 어떠한 적절한 숫자를 포함할 수 있다. 일 실시예에서, 본 발명의 연료전지(10)는 적어도 30-50개의 하위-셀(12)을 포함한다. 연료전지(10)의 하위-셀(12)은 직렬로 또는 병렬로 연결될 수 있다.
- [0036] 본 발명의 연료전지는 도 3에서 도시된 것처럼 평면으로 쌓인 연료전지일 수 있다. 대안적으로, 도 4에서 도시된 것처럼, 본 발명의 연료전지는 관형 연료전지일 수 있다. 도 3 및 4에서 독립적으로 도시된 연료전지는 도 1 및 2에서 도시된 연료전지(10)에 대해서 설명된 것처럼 특정 변수들을 포함한 특징을 가질 수 있다(명확성을 위해, 셀 구성요소의 세부 내용들은 도 3 및 4에서 도시되지 않았다). 일반적으로, 도 3에서 도시된 것과 같은 평면 설계에서, 구성요소들은 평평하게 쌓인 채로 어셈블되고, 공기 및 연료는 상호연결부 안으로 설치된 채널을 통해서 유동한다. 일반적으로, 도 4에서 도시된 것과 같은 관형 설계에서, 구성요소들은 증공형 관의 형태로 어셈블되고, 셀은 관형 캐소오드 주위로 층으로 구성되며; 공기는 관의 내부를 통해 유동하고 연료는 외부 주위로 유동한다.
- [0037] 또한, 본 발명은 상기에서 설명된 것과 같은 연료전지를 형성하는 방법을 포함한다. 이 방법은 상기에서 설명된 것과 같은 다수의 하위-셀(12)을 형성하는 단계, 상호연결부(24)로 각각의 하위-셀(12)을 연결하는 단계를 포함한다. 하위-셀(12) 및 상호연결부(24)의 제작은 그 전체 내용이 여기서 참조로 인용된 예를 들어 "고온 고체 산화물 연료전지:펀더멘탈스, 디자인 및 이용" pp 83-225, Dinghal 등, Ed., Elsevier Ltd.(2003) 에서 공지된 어떠한 적절한 기술을 이용할 수 있다. 예를 들면, 평면으로 쌓인 본 발명의 연료전지는 미립자 프로세스 또는 증착 프로세스에 의해 제작될 수 있다. 본 발명의 관형 연료전지는 칼슘 함유-안정화된 지르코니아

(calcia-stabilized zirconia)와 같은 다공성 실린더형 관 상에 얇은 층들의 형태의 셀 구성요소를 가짐에 의해 제작될 수 있다.

[0038] 일반적으로, 테잎 캐스팅 또는 테잎 캘린더링(calendering)과 같은 적절한 미립자 프로세스는, 상승 온도에서의 치밀화 및 연료전지 구성요소(예를 들어 전극, 전해질, 및 상호연결부)로의 세라믹 파우더와 같은 파우더의 압축성형을 포함한다. 예를 들면, 본 발명의 전해질, 전극 또는 상호연결부를 위한 적절한 파우더 물질은 성분 산화물의 고체 상태 반응에 의해 만들어진다. 적절한 높은 표면적 파우더는 니트레이트 및 젤 생성물로서의 다른 용액으로부터 침전될 수 있고, 이는 건조되고 하소되며 결정질 입자를 만들도록 분쇄된다. 증착 프로세스는 적절한 화학적 또는 물리적 프로세스에 의해 지지대 상에 셀 구성요소의 형성을 포함할 수 있다. 증착의 예는 화학 기상 증착, 플라즈마 스프레이 및 스프레이 열분해를 포함한다.

[0039] 일 특정 실시예에서, 상호연결부(24)는 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트를 필수 구성으로 포함하고 (consists essentially of), 전극(14 또는 16) 중 어느 하나 위에 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트의 물질을 배치하고 상호연결부(24)를 생성하기 위해 이 물질을 소결함에 의해 제작된다. 일반적으로, 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트의 물질은 약 5 내지 약 50톤의 하중(load)으로 약 50°C 내지 약 80°C의 범위의 온도에서 배치된다. 일반적으로, 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트 물질은 높은 이론 밀도(예를 들어 약 90% 이론 밀도보다 크거나 또는 약 95% 이론 밀도보다 큼)를 갖는 상호연결부(24)를 형성하도록 소결된다.

[0040] 다른 특정 실시예에서, 상호연결부(24)는 제 1 층(36) 및 제 2 층(38)을 포함하고, 제 1 층(36)을 형성하기 위해 화학 기상 증착과 같은 이 기술분야에서 알려진 적절한 증착 방법을 이용하여 전극(14) 위에 전기적으로 전도성인 물질을 증착시키고, 제 1 층(36) 위에 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트 물질을 배치함에 의해 형성된다. 일반적으로, 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트 물질은 약 5 내지 약 50톤의 하중으로 약 50°C 내지 약 80°C의 범위의 온도에서 배치된다. 일반적으로 도핑된 M-티타네이트계 페롭스카이트 물질은 소결되어 높은 이론 밀도(예를 들어 약 90% 이론 밀도를 초과하거나 또는 약 95% 이론 밀도를 초과함)를 갖는 상호연결부(24)를 형성하도록 소결된다.

[0041] 본 발명의 SOFC들은 운반 가능할 수 있다. 또한, 본 발명의 SOFC들은 집에서 전기 소스로서 이용될 수 있는데, 예를 들어 온수를 생성할 수 있다.

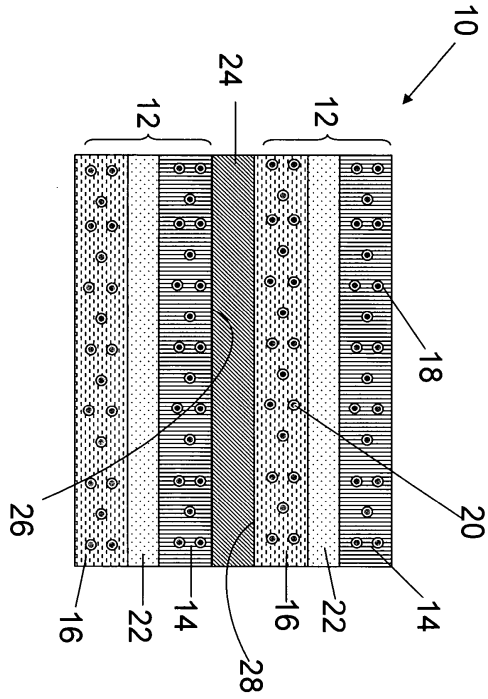
[0042] 본 발명은 그 예시적인 실시예들을 참고로 하여 설명되었고 도시되었지만, 당업자라면 그 형태 및 상세한 내용에서의 다양한 변경이 첨부된 청구항에 의해 둘러싸이는 본 발명의 범위로부터 벗어나지 아니한 채로 만들어질 수 있음을 이해할 것이다.

도면의 간단한 설명

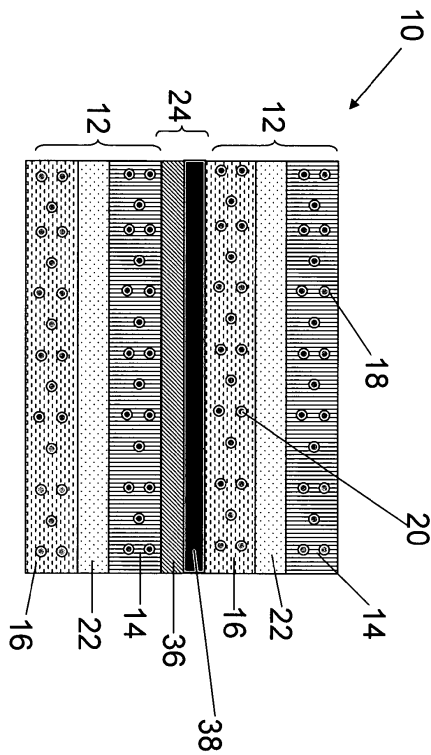
- [0013] 도 1은 본 발명의 일 실시예의 개략 단면도이다.
- [0014] 도 2는 본 발명의 다른 실시예의 개략 단면도이다.
- [0015] 도 3은 평면으로 쌓인 설계를 갖는 본 발명의 연료전지의 실시예의 개략도이다.
- [0016] 도 4는 관형 설계를 갖는 본 발명의 연료전지의 또 다른 실시예의 개략도이다.

도면

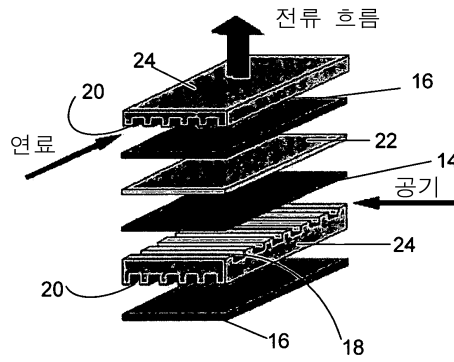
도면1



도면2



도면3



도면4

