



(10) **DE 601 03 347 T2** 2005.06.02

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 1 202 369 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: 601 03 347.7

(96) Europäisches Aktenzeichen: 01 125 146.9

(96) Europäischer Anmeldetag: 23.10.2001

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: 02.05.2002

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: 19.05.2004

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: 02.06.2005

(30) Unionspriorität:

2000322671 23.10.2000 JP

(73) Patentinhaber:

Toho Gas Co. Ltd., Nagoya, Aichi, JP

(74) Vertreter:

PRÜFER & PARTNER GbR, 81545 München

(51) Int CI.7: **H01M 8/12**

C04B 35/486

(84) Benannte Vertragsstaaten:

AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR

(72) Erfinder:

Ukai, Kenji, Tokai-shi, Aichi-ken, 476-0005, JP; Mizutani, Yasunobu, Tokai-shi, Aichi-ken,

476-0005, JP

(54) Bezeichnung: Festoxidbrennstoffzelle mit unterstütztem elektrolytischem Film

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

HINTERGRUND DER ERFINDUNG 1. Gebiet der Erfindung

[0001] Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine Festoxid- bzw. Feststoffoxid-Brennstoffzelle, insbesondere bezieht sie sich auf eine Festoxid- bzw. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem Träger-Elektrolytfilm, die für Verteil-Kraftwerke oder Co-Erzeugungssysteme in Städten geeignet ist, sowie auf Brennstoffzellen, die in Kraftfahrzeugen verwendet werden.

2. Beschreibung des verwandten Stands der Technik

[0002] Die Feststoffoxid-Brennstoffzelle (nachfolgend als "SOFC" bezeichnet) ist eine Brennstoffzelle, die Oxidionen-leitfähige Feststoffelektrolyte als Elektrolyt anwendet. Ihr Aufbau wird grob in einen zylindrischen Typ, einen planaren Typ sowie einen Einblockschicht-Typ unterteilt. Unter diesen zeigt der planare Typ eine hohe Wirksamkeit bei der Leistungserzeugung aufgrund seines relativ niedrigen inneren Widerstands sowie hoher Leistungsdichten pro Volumeneinheit, was aus seinem laminierten Aufbau resultiert, der viele dünne Zellen umfaßt.

[0003] Die SOFC vom planaren Typ wird ferner unterteilt in einen Typ vom selbsttragenden Elektrolytfilm sowie einen Typ vom getragenen Elektrolytfilm. In Fig. 5A wird ein schematisches Blockdiagramm für eine SOFC vom selbsttragenden Elektrolytfilm-Typ gezeigt. In der Figur weist eine SOFC 10 mit einem selbsttragenden Elektrolytfilm eine Struktur auf, bei der eine dünne Brennstoffelektrode 14 und eine Luftelektrode 16 mit beiden Seiten eines selbsttragenden Elektrolytfilms 12 mit einer Dicke von 300 bis 500 µm verbunden sind, um einen Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 18 zu bilden, und der Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 18 wird zwischen zwei Gastrenner 20, 20 eingebracht.

[0004] Da die Betriebstemperatur der SOFC 10 mit einem selbsttragenden Elektrolytfilm im allgemeinen etwa 1.000°C beträgt, laufen Reaktionen in einer Zelle schnell ab. Es erlaubt ebenso eine interne Reformierung und gestattet eine Miniaturisierung sowie Wirksamkeitsverbesserung der Zelle. Zusätzlich hat es viele Forschungsberichte über die SOFC mit einem selbsttragenden Elektrolytfilm gegeben und ihre Zuverlässigkeit und Haltbarkeit sind bestätigt worden

[0005] Die SOFC 10 mit einem selbsttragenden Elektrolytfilm erfordert jedoch eine ziemlich lange Zeitdauer zur Anhebung der Temperatur auf ihren Betriebsbereich. Teure hitzebeständige Materialien sind für die umgebenden Teile der SOFC 10 erforderlich, und ihre Gasabdichtung ist ebenfalls schwierig in

den Griff zu bekommen. Um diese Probleme zu vermeiden, sollte die Betriebstemperatur der SOFC 10 herabgesetzt werden. Das bloße Herabsetzen der Betriebstemperatur führt jedoch zur Erhöhung des Widerstands im Elektrolytfilm 12, was nicht zu höheren Outputs führt. Dies deshalb, weil die Leitfähigkeit der Oxidionenleitfähigen Feststoffelektrolyte im allgemeinen von der Temperatur abhängt und in dem Maße abnimmt, wie die Temperatur abnimmt.

[0006] Andererseits weist eine SOFC 30 mit einem getragenen Elektrolytfilm, wie in Fig. 5B gezeigt, eine Struktur auf, bei der ein sehr dünner Elektrolytfilm 32 durch eine dicke Brennstoffelektrode 34 (nachfolgend als Brennstoffelektrodensubstrat bezeichnet) getragen wird, und eine dünne Luftelektrode 36 ist mit der anderen Oberfläche des Elektrolytfilms 32 verbunden, wodurch ein Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 38 gebildet wird, und der Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 38 wird zwischen zwei Gastrenner 40, 40 eingebracht.

[0007] Da der widerstand des Elektrolytfilms 32 proportional zu seinem spezifischen Widerstand und seiner Dicke ist, kann der Gesamtwiderstand des Elektrolytfilms 32 durch Dünnermachen der Dicke erniedrigt werden, selbst wenn der spezifische Widerstand des Elektrolytfilms 32 erhöht wird. Aus diesem Grund kann die Betriebstemperatur für die SOFC 30 mit einem getragenen Elektrolytfilm auf 700 bis 850°C ohne Minderung ihres Outputs erniedrigt werden. Darüber hinaus können billige Materialien wie rostfreier Stahl für die umgebenden Teil verwendet werden, was zur Kostenreduzierung der SOFC 30 führt. Ferner können eine Einengung der Temperaturaufheizzeit und eine leichte Gasabdichtung bewerkstelligt werden, so daß die Nützlichkeit und Haltbarkeit der SOFC 30 weiter verbessert werden.

[0008] Bei dem Brennstoffelektrodensubstrat **34** für die SOFC **30** mit einem getragenen Elektrolytfilm wird ein Cermet, welches Nickel und Yttriumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid umfaßt, was eine Zusammensetzung von ZrO_2 , welches 8 Mol-% Y_2O_3 enthält (nachfolgend als 8YSZ bezeichnet), aufweist, verwendet. 8YSZ wird gewöhnlich auch für den Elektrolytfilm **32** verwendet. (siehe z.B. "SILID OXIDE FUEL CELL VI", S.C. Singhal, M. Dokiya (Hrsg.), S. 822–S. 829).

[0009] Das Brennstoffelektrodensubstrat wirkt als Elektronendonator und -akzeptor, liefert gleichzeitig Brennstoffgas in der Nähe des Elektrolytfilms, und entfernt Umsetzungsprodukte aus dem System. Es umfaßt poröse Materialien mit Gasdurchlässigkeit. 8YSZ selbst ist ein Material, welches eine ziemlich geringe mechanische Festigkeit aufweist. Deshalb war die herkömmliche SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm unter Verwendung von Ni-8YSZ als dem Brennstoffelektrodensubstrat mit einem Pro-

blem behaftet, daß die elektrische Zelle leicht bricht und somit eine geringe Zuverlässigkeit aufweist.

[0010] Andererseits ist die Zuverlässigkeit einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm unter Verwendung von Ni-8YSZ verbessert worden, indem ein dickeres Brennstoffelektrodensubstrat verwendet wurde, da ihre mechanische Festigkeit verstärkt wird. Das dickere Substrat führt jedoch zu einer schlechteren Gasdurchlässigkeit, was in niedrigeren Outputs der SOFC resultiert. Im Fall einer planaren SOFC werden im allgemeinen viele Zellen in einer laminierten Stapelung angewandt. Somit vergrößert ein dickeres Brennstoffelektrodensubstrat die notwendige Menge an Ausgangsmaterialien sowie die Materialkosten und die Dicke der Stapelung insgesamt, und verringert die Outputdichte pro Volumeneinheit.

[0011] Um den Output einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm zu verbessern, ist es wesentlich, den Widerstand des Elektrolytfilms zu verringern. Andererseits wird die Oxidionen-Leitfähigkeit eines Feststoffelektrolyten im allgemeinen durch seine Zusammensetzung bestimmt. Um den Widerstand des Elektrolytfilms bei niedrigen Temperaturen beim Festhalten an herkömmlichem 8YSZ zu verringern, muß deshalb die Dicke des Elektrolytfilms weiter verringert werden. Zur Trennung der Reaktionsgase braucht der Elektrolytfilm jedoch eine Trennfunktion. Ein dünnerer Elektrolytfilm führt zu Schwierigkeiten, seine Gasdichtheitsqualität zu behalten. Somit gibt es gewisse Grenzen zur Anhebung des Outputs der SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm durch Verdünnung des Elektrolytfilms.

ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

[0012] Die vorliegende Erfindung erfolgte angesichts der obigen Umstände und hat zur Aufgabe, die obigen Probleme zu lösen und eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm bereitzustellen, die übermäßig zuverlässig ist, hohe Outputs erzielt und hohe Outputdichten pro Volumeneinheit zeigt.

[0013] Um die Aufgaben zu lösen und in Übereinstimmung mit dem Zweck der vorliegenden Erfindung, wie sie ausgeführt wird und hier in aller Breite beschrieben wird, weist eine Feststoffoxidbrennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm einen Elektrolytfilm auf, der einen Oxidionen-Leitfähigkeit zeigenden, ersten Feststoffelektrolyten, eine als Substrat wirkende Brennstoffelektrode, die - ggf. über einen Zwischen-Cermetfilm, der einen zweiten Katalysator und einen Oxidionen-Leitfähigkeit zeigenden, dritten Elektrolyten umfaßt - mit einer Oberfläche des Elektrolytfilms verbunden ist, sowie eine Luftelektrode, die mit der anderen Oberfläche des Elektrolytfilms verbunden ist, umfaßt, wodurch insgesamt ein Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau gebildet wird, wobei das Brennstoffelektrodensubstrat dadurch gekennzeichnet ist, daß es ein Cermet eines ersten Katalysators und eines zweiten Feststoffelektrolyten, der Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt und eine Biegefestigkeit von 500 MPa oder mehr aufweist, umfaßt, wobei die Biegefestigkeit definiert ist durch den gemessenen Wert von gesinterten Materialien, die nur den zweiten Feststoffelektrolyten umfassen und relative Dichten von mehr als 95% aufweisen.

[0014] Die vorliegende Erfindung wendet ein Cermet, welches den ersten Katalysator und den zweiten, eine hohe mechanische Festigkeit aufweisenden Feststoffelektrolyten umfaßt, als das Brennstoffelektrodensubstrat für eine SOFC an, die einen getragenen Elektrolytfilm aufweist. Deshalb wird bewirkt, daß die Brennstoffzelle weniger zu Brüchen neigt, was zu verbesserter Zuverlässigkeit führt. Das Brennstoffelektrodensubstrat kann darüber hinaus dünner gemacht werden, um die Outputdichte pro Volumeneinheit zu verbessern.

[0015] Wenn Scandiumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, welches 9 bis 12 Mol-% Scandiumoxid (Sc_2O_3) enthält, für den ersten Feststoffelektrolyten verwendet wird, der einen Elektrolytfilm aufbaut, wird der spezifische Widerstand des Elektrolytfilms seinerseits verringert, so daß der Leistungsoutput einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm weiter verbessert wird.

[0016] Ferner führt die Einrichtung einer Zwischen-Cermetschicht, die den zweiten Katalysator und den dritten Feststoffelektrolyten umfaßt, der bei niedrigen Temperaturen eine hohe Oxidionen-Leitfähigkeit besitzt, zwischen dem Elektrolytfilm und dem Elektrodensubstrat zu einer Verminderung des Grenzflächenwiderstands zwischen dem Elektrolytfilm und dem Brennstoffelektrodensubstrat, wodurch eine weitere Verbesserung des Leistungserzeugungsvermögens der SOFC bewirkt wird.

[0017] Zusätzliche Aufgaben und Vorteile der Erfindung werden teilweise in der nachfolgenden Beschreibung wiedergegeben und ergeben sich teilweise naheliegend aus der Beschreibung, oder können aus dem Praktizieren der Erfindung erfahren werden. Die Gegenstände und Vorteile der Erfindung können durch die Mittel und Kombinationen realisiert und erreicht werden, die in den Ansprüchen besonders hervorgehoben sind.

KURZBESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0018] Die beigefügten Zeichnungen, die in dieser Spezifikation eingeschlossen sind und einen Teil davon bilden, veranschaulichen Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung und dienen zusammen mit der Beschreibung zur Erläuterung der Gegenstände, Vorteile und Prinzipien der Erfindung. Bezüglich der Zeichnungen:

[0019] Fig. 1 ist ein schematisches Blockdiagramm für eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm bezüglich der bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung;

[0020] Fig. 2 ist eine typische Grafik für eine allgemeine Beziehung zwischen der Leerlaufspannung einer SOFC und dem tatsächlichen Spannungsoutput;

[0021] Fig. 3 ist eine Grafik, die die Abhängigkeit des Spannungsoutputs und dem Output der Leistungsdichte von der Stromdichte der SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm veranschaulicht, wenn Wasserstoff als Brennstoffgas verwendet wird und Sauerstoff als ein Oxidationsgas verwendet wird;

[0022] Fig. 4 ist eine Grafik, die die Abhängigkeit des Spannungsoutputs und des Outputs der Leistungsdichte von der Stromdichte der SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm veranschaulicht, wenn Wasserstoff als ein Brennstoffgas verwendet wird und Luft als ein Oxidationsgas verwendet wird;

[0023] Fig. 5A ist ein schematisches Blockdiagramm für eine SOFC mit einem selbsttragenden Elektrolytfilm; und

[0024] Fig. 5B ist ein schematisches Blockdiagramm für eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm.

DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORMEN

[0025] Eine detaillierte Beschreibung einer bevorzugten Ausführungsform einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm unter Ausführung der vorliegenden Erfindung wird nun unter Bezugnahme auf die beigefügten Zeichnungen gegeben. In Fig. 1 ist eine Schnittansicht einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm in bezug auf die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung gezeigt. In der Figur besitzt eine SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm eine Struktur, bei der ein Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 60 zwischen zwei Gastrenner 62, 62 gebracht ist. Der Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 60 ist mit einem Elektrolytfilm 52, einem Brennstoffelektrodensubstrat 54, einer Luftelektrode 56 und einer Zwischenschicht 58 ausgestattet.

[0026] Zuerst wird eine Erläuterung über den Elektrolytfilm 52 gegeben. Der Elektrolytfilm 52 umfaßt einen ersten Feststoffelektrolyt, der Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt. Viele Materialien sind als Feststoffelektrolyt bekannt, der Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt. In der vorliegenden Erfindung kann jedoch irgendeiner der bekannten Feststoffelektrolyte für den Elektrolytfilm 52 verwendet werden. Es ist klar, daß der Umfang der vorliegenden Erfindung außer wie in den An-

sprüchen angegeben nicht begrenzt ist.

[0027] Für den im Elektrolytfilm **52** angewandten ersten Feststoffelektrolyt werden als bevorzugte Ausführungsformen besonders die folgenden Substanzen genannt: YSZ mit 8 bis 10 Mol-% als Stabilisator zugefügtem Yttriumoxid (Y_2O_3) , Calciumoxidstabilisiertes Zirkoniumoxid (CSZ) mit 9 bis 12 Mol-% als Stabilisator zugefügtem Calciumoxid (CaO), Scandiumoxidstabilisiertes Zirkoniumoxid (ScSZ) mit 9 bis 12 Mol-% als Stabilisator zugefügtem Scandiumoxid (Sc $_2O_3$). Unter diesen besitzt ScSZ eine höhere Oxidionen-Leitfähigkeit als andere Materialien und ist daher für den ersten Feststoffelektrolyten besonders geeignet.

[0028] Wenn ScSZ als dem ersten Feststoffelektrolyt verwendet wird, beträgt sein Scandiumoxid-Gehalt im ScSZ vorzugsweise 9 bis 12 Mol-%. Ein Scandiumoxid-Gehalt von weniger als 9 Mol-% führt zu einer verringerten Oxidionen-Leitfähigkeit im Elektrolytfilm 52 und ist nicht bevorzugt. Ein Scandiumoxid-Gehalt von mehr als 12 Mol-% führt ebenso zu einer verringerten Oxidionen-Leitfähigkeit im Elektrolytfilm 52 und ist nicht bevorzugt. Der Scandiumoxid-Gehalt im ScSZ beträgt weiter bevorzugt 10 bis 11 Mol-%.

[0029] Für den ersten Feststoffelektrolyten kann ScSZ verwendet werden, bei dem nur Scandiumoxid in der Festphase gelöst ist, oder es können Spurenmengen von Yttriumoxid (Y_2O_3) oder Ceroxid (CeO_2) zusätzlich hinzugefügt werden. Im Fall der weiteren Zugabe von Yttriumoxid zu ScSZ beträgt der Gehalt vorzugsweise weniger als 2 Mol-%. Ein Yttriumoxid-Gehalt von mehr als 2 Mol-% verringert die Oxidionen-Leitfähigkeit des Elektrolytfilms **52** und ist nicht bevorzugt. Der Yttriumoxid-Gehalt im ScSZ ist weiter bevorzugt 0,5 bis 1 Mol-%.

[0030] Bei der Zugabe von Ceroxid zu ScSZ beträgt der Gehalt vorzugsweise weniger als 2 Mol-%. Ein Ceroxid-Gehalt von mehr als 2 Mol-% verringert die Oxidionen-Leitfähigkeit des Elektrolytfilms **52** und ist nicht bevorzugt. Der Ceroxid-Gehalt im ScSZ beträgt weiter bevorzugt 0,5 bis 1 Mol-%.

[0031] Es ist bevorzugt, daß der erste Feststoffelektrolyt ein Kompositmaterial von ScSZ mit Aluminiumoxid (Al₂O₃) ist. Beim Kompositmaterial von ScSZ mit Aluminiumoxid beträgt der Aluminiumoxid-Gehalt vorzugsweise weniger als 2 Gew.-% von ScSZ. Ein Aluminiumoxid-Gehalt von mehr als 2 Gew.-% verringert die Oxidionen-Leitfähigkeit des Elektrolytfilms **52** und ist nicht bevorzugt. Der Aluminiumoxid-Gehalt im ScSZ beträgt weiter bevorzugt 0,5 bis 1 Gew.-%.

[0032] Es ist ferner bevorzugt, daß der erste Feststoffelektrolyt gefertigt wird, indem eine Spezies, die aus Yttriumoxid und Ceroxid oder beidem ausge-

DE 601 03 347 T2 2005.06.02

wählt wird, in der Festphase des ScSZ gelöst wird. Es ist ebenfalls bevorzugt, daß der erste Feststoffelektrolyt gefertigt wird durch ein Kompositmaterial von Aluminiumoxid mit ScSZ, welches hergestellt wurde, indem eine Spezies, die aus Yttriumoxid und Ceroxid oder beidem ausgewählt wurde, in der Festphase des ScSZ gelöst wird.

[0033] Die Dicke des Elektrolytfilms 52 wird in der Abhängigkeit von der Materialeigenschaft des Elektrolytfilms 52 und der Kombination des Brennstoffelektrodensubstrats 54 der Luftelektrode 56 sowie der Zwischenschicht 58, die später zu beschreiben sind, bestimmt, so daß die vorgeschriebene Oxidionen-Leitfähigkeit und die ausreichende Gasdichtheitseigenschaft bei Betriebstemperaturen des SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm beibehalten werden. Die Dicke des Elektrolytfilms 52 liegt gewöhnlicherweise in einem Bereich von 10 bis 20 μm .

[0034] Dann erfolgt eine Erläuterung über das Brennstoffelektrodensubstrat 54. Das Brennstoffelektrodensubstrat 54 dient zum Tragen des Elektrolytfilms 52. Bei der sich auf die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung beziehenden SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm wird zu diesem Zweck ein Cermet angewandt, das den ersten Katalysator und einen zweiten Feststoffelektrolyten umfaßt, der Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt.

[0035] Im obigen Fall werden Katalysatoren, die gegenüber Brennstoffgas eine hohe Wirksamkeit aufweisen, als dem ersten Katalysator verwendet, der einen Teil des Brennstoffelektrodensubstrats 54 aufbaut. Bevorzugte Ausführungsformen für diese Katalysatoren schließen insbesondere Nickel (Ni), Kobalt (Co) und Ruthenium (Ru) ein. Es ist klar, daß der bevorzugte Umfang des ersten Katalysators aus irgendeinem der aufgelisteten Katalysatoren ausgewählt wird und auf keine Weise beschränkt ist. Der Gehalt des ersten Katalysators im Brennstoffelektrodensubstrat wird in Abhängigkeit von der Art des ersten Katalysators und den Betriebsbedingungen der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm bestimmt, so daß die Dreifachphasengrenze bei Betriebstemperaturen der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm erhalten bleibt, und daß notwendige Charakteristika für die vorgeschriebene elektrische Leitfähigkeit und thermische Expansionskoeffizienten, die mit denen von Elektrolyten vergleichbar sind, erhältlich sind.

[0036] Bezüglich des zweiten Feststoffelektrolyten, der einen weiteren Teil des Brennstoffelektrodensubstrats 54 aufbaut, ist ein Material auszuwählen, welches eine ausreichend hohe mechanische Festigkeit besitzt. Insbesondere wird als dem zweiten Feststoffelektrolyten ein Material bevorzugt, welches eine Biegefestigkeit besitzt, die 500 MPa übersteigt. Die

Biegefestigkeit ist hier durch den gemessenen Wert von gesinterten Materialien definiert, die nur den zweiten Feststoffelektrolyten umfassen und relative Dichten von mehr als 95% aufweisen. Um die SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm mit hoher Zuverlässigkeit zu erhalten, besitzt der zweite Feststoffelektrolyt besonders bevorzugt eine Biegefestigkeit von mehr als 1.000 MPa.

[0037] Bezüglich der bevorzugten Ausführungsformen für den zweiten Feststoffelektrolyten, die solche Bedingungen erfüllen, wird vorzugsweise Scandiumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, welches 3 bis 6 Mol-% Scandiumoxid ($\mathrm{Sc_2O_3}$) enthält, genannt. Ein Scandiumoxid-Gehalt von weniger als 3 Mol-% führt zu verringerter Oxidionen-Leitfähigkeit im Feststoffelektrodensubstrat 54 und ist nicht bevorzugt. Ein Scandiumoxid-Gehalt von mehr als 6 Mol-% andererseits führt zu verringerter Biegefestigkeit des Brennstoffelektrodensubstrats 54 und ist ebenfalls nicht bevorzugt.

[0038] Bezüglich anderer bevorzugter Ausführungsformen für den zweiten Feststoffelektrolyten wird Yttriumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, welches 2 bis 4 Mol-% Yttriumoxid (Y_2O_3) enthält, genannt. Ein Yttriumoxid-Gehalt von weniger als 2 Mol-% führt zu verminderter Oxidionen-Leitfähigkeit im Brennstoffelektrodensubstrat **54** und ist nicht bevorzugt. Ein Yttriumoxid-Gehalt von mehr als 4 Mol-% führt andererseits zu verringerter Biegefestigkeit des Brennstoffelektrodensubstrats **54** und ist ebenfalls nicht bevorzugt.

[0039] Dann erfolgt eine Erläuterung zur Luftelektrode **56**. Die Luftelektrode **56** ist eine als Film gebildete Elektrode, die an die verbleibende Oberfläche des Elektrolytfilms **52** gebunden ist.

[0040] Sie setzt sich aus Materialien zusammen, die im allgemeinen bei sehr hohen Temperaturen unter Sauerstoffatmosphäre chemisch stabil sind und hohe elektrische Leitfähigkeit besitzen. Bezüglich bevorzugter Ausführungsformen für solche Materialien werden insbesondere Edelmetalle wie Platin, komplexe Metalloxide wie LaSrMnO₃, LaCaMnO₃, LaMgMnO₃, LaSrCoO₃ und LaCaCoO₃ genannt.

[0041] In der vorliegenden Erfindung können irgendwelche der oben genannten Materialien für die Luftelektrode 56 verwendet werden und sind keineswegs begrenzt. Auch kann die Luftelektrode 56 ausschließlich die zuvor bezeichneten Materialien beinhalten, oder sie kann aus Kompositmaterialien aus den zuvor erwähnten Materialien und Oxidionen-leitfähigen Feststoffelektrolyten wie YSZ bestehen.

[0042] Als nächstes wird eine Erläuterung gegeben bezüglich der Zwischenschicht 58. Die Zwischenschicht 58 setzt sich aus einem Cermet des zweiten

DE 601 03 347 T2 2005.06.02

Katalysators und des dritten Feststoffelektrolyten, der Oxidionen-Leitfähigkeit aufweist, zusammen. Bezüglich des zweiten Katalysators, der einen Teil der Zwischenschicht 58 aufbaut, werden hier jene angewandt, die ausgezeichnete Wirksamkeit gegenüber Brennstoffgas zeigen. Bezüglich bevorzugter Ausführungsformen solcher Materialien werden insbesondere Nickel (Ni), Kobalt (Co) und Ruthenium (Ru) genannt. Es ist klar, daß der Umfang des bevorzugten zweiten Katalysators aus irgendeinem der aufgelisteten Katalysatoren ausgewählt wird und keineswegs begrenzt ist.

[0043] Der Gehalt des zweiten Katalysators in der Zwischenschicht 58 ist in Abhängigkeit von der verwendeten Spezies des zweiten Katalysators und der Betriebsbedingungen der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm festgelegt, so daß die Dreiphasengrenze bei Betriebstemperaturen des SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm erhalten bleibt und erforderliche Eigenschaften bezüglich vorbestimmter elektrischer Leitfähigkeit und thermischer Expansionskoeffizienten, die mit jenen des Elektrolyten vergleichbar sind, erhalten werden. Bei der Auswahl des in der Zwischenschicht 58 enthaltenen zweiten Katalysators ist ferner zu sagen, daß er gleich dem im Brennstoffelektrodensubstrat 54 enthaltenen ersten Katalysator oder ein davon verschiedenes Material sein kann.

[0044] Bezüglich des dritten Feststoffelektrolyten, der einen weiteren Teil der Zwischenschicht 58 aufbaut, sind Materialien anzuwenden, die eine hohe Oxidionen-Leitfähigkeit zeigen. Insbesondere ist ein Material bevorzugt, welches eine Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt, die 0,1 S/cm bei 800°C übersteigt. Bevorzugte Ausführungsformen des dritten Feststoffelektrolyten schließen ScSZ, welches 9 bis 12 Mol-% Scandiumoxid (Sc₂O₃) enthält, ein. Ein Scandiumoxid-Gehalt von weniger als 9 Mol-% führt zu verringerter Oxidionen-Leitfähigkeit in der Zwischenschicht 58 und ist nicht bevorzugt. Ein Scandiumoxid-Gehalt von mehr als 12 Mol-% andererseits führt zu verringerter Oxidionen-Leitfähigkeit in der Zwischenschicht 58 und ist ebenfalls nicht bevorzugt. Der Scandiumoxid-Gehalt von ScSZ ist weiter bevorzugt 10 bis 11 Mol-%.

[0045] Bezüglich des für den dritten Feststoffelektrolyten verwendeten ScSZ gilt, daß es eine feste Lösung mit Scandiumoxid alleine sein kann, oder es kann zusätzlich mit Spurenmengen von Yttriumoxid (Y_2O_3) , Ceroxid (CeO_2) oder Aluminiumoxid (Al_2O_3) versetzt werden, ähnlich zum Fall des als dem ersten Feststoffelektrolyten verwendeten ScSZ. Ähnlichkeiten setzen sich fort im Fall der weiteren Zugabe von Yttriumoxid und Ceroxid zu ScSZ vorzugsweise bei weniger als 2 Mol-%, und im Kompositmaterial mit Aluminiumoxid vorzugsweise bei weniger als 2 Gew.-%. Ferner kann der in der Zwischenschicht 58

verwendete dritte Feststoffelektrolyt gleich sein wie der für den Elektrolytfilm **52** verwendete erste Feststoffelektrolyt, oder es kann ein davon verschiedenes Material sein.

[0046] Nun wird eine Erläuterung gegeben bezüglich des Gastrenners 62. Der Gastrenner 62 ist eine Vorrichtung zum Zuführen von jeweils Brennstoffgas zum Brennstoffelektrodensubstrat 54 und Oxidationsgas zur Luftelektrode 56. Zu diesem Zweck ist jeder Gastrenner 62 mit einem Gasströmungsdurchlaß 62a zum Zuführen von Reaktionsgas ausgestattet. Der Gastrenner 62 arbeitet auch als Sammeleinrichtung für elektrischen Strom, der beim Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 60 erzeugt wird. Deshalb werden Materialien für den Gastrenner 62 angewandt, die Bedingungen wie eine Stabilität bei Betriebstemperaturen, eine hohe elektrische Leitfähigkeit sowie eine Gasdichtheitseigenschaft erfüllen (z.B. Lanthan/Chromit-basierte Oxide).

[0047] Als nächstes erfolgt eine Erläuterung bezüglich der Leistungsfähigkeit der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm in bezug auf die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung. Fig. 2 veranschaulicht eine typische Grafik für eine allgemeine Beziehung zwischen der Leerlaufspannung des SOFC und dem tatsächlichen Spannungsoutput. Die Leerlaufspannung des SOFC ist im allgemeinen bestimmt durch die Zusammensetzung des Brennstoffgases, das der Brennstoffelektrode zugeführt wird. Der Unterschied zwischen der Leerlaufspannung und dem Spannungsoutput, der beim Zuführen von elektrischem Strom zur SOFC tatsächlich erhalten wird, bzw. die Amplitude der Überspannung werden durch den Widerstand der Elektrolytmaterialien, den Reaktionswiderstand einer Brennstoffelektrode sowie den Reaktionswiderstand einer Luftelektrode bestimmt, wie in Fig. 2 gezeigt. Um den Output einer SOFC zu verbessern, ist es erforderlich, die Überspannung herabzusetzen.

[0048] Eine Herabsetzung der Betriebstemperatur für eine SOFC induziert andererseits eine verringerte Oxidionen-Leitfähigkeit der Elektrolytmaterialien oder erhöht den Widerstand von diesen, was zu einem erhöhten Verhältnis der Überspannung bei ihr führt. Bei der herkömmlichen SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm wird eine Reduzierung des Widerstands für Elektrolytmaterialien insgesamt bewerkstelligt durch ein Dünnermachen des Elektrolyten zu einem Film und durch Tragen des Elektrolytfilms mit einem Brennstoffelektrodensubstrat.

[0049] Es war jedoch ein allgemeiner Weg für die herkömmliche SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm, ein Ni-8YSZ-Cermet als dem Brennstoffelektrodensubstrat anzuwenden. 8YSZ hat eine relativ hohe Oxidionen-Leitfähigkeit. Seine Biegefestigkeit ist jedoch auf etwa 300 MPa begrenzt, was anzeigt,

DE 601 03 347 T2 2005.06.02

daß es zur erforderlichen Materialfestigkeit schwach ist. Somit verursacht es häufig Brüche in der Zelle, was zu einer schlechteren Zuverlässigkeit führt, wenn es als Material für ein Brennstoffelektrodensubstrat verwendet wird. Das Dickermachen des Brennstoffelektrodensubstrats andererseits, um dieses Problem zu vermeiden, führt zur schlechteren Gasdurchlässigkeit des Brennstoffelektrodensubstrats. Dies drückt sich im Reaktionswiderstand in der Brennstoffelektrode aus, was zu verringerten Outputs veranlaßt.

[0050] Die sich auf die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung beziehende SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm andererseits wendet den zweiten Feststoffelektrolyt mit einer ausreichend hohen mechanischen Festigkeit an wie YSZ, das 2 bis 4 Mol-% Yttriumoxid als eine feste Lösung enthält, oder ScSZ, das 3 bis 6 Mol-% Scandiumoxid als eine feste Lösung enthält, als den Materialien, die das Brennstoffelektrodensubstrat 54 aufbauen. Aus diesem Grund ist die mechanische Festigkeit für das Brennstoffelektrodensubstrat 54 verbessert. Deshalb führt es kaum zum Brechen von Zellen und zur schließlich verbesserten Zuverlässigkeit des SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm (50).

[0051] Es ist auch möglich, das Brennstoffelektrodensubstrat 54 dünn zu machen, ohne auf die Zuverlässigkeit aufgrund der erhöhten mechanischen Festigkeit im Substrat zu verzichten. Zum Beispiel war es üblich, die Dicke des Ni-8YSZ auf etwa 1 mm zu halten, um Brüche in der Zelle zu vermeiden, wenn das Material in einem Brennstoffelektrodensubstrat verwendet wird. Gemäß der vorliegenden Erfindung ist es möglich, das Brennstoffelektrodensubstrat 54 so dünn wie 0,3 mm zu machen. Das Dünnermachen erhöht die Gasdurchlässigkeit des Brennstoffelektrodensubstrats 54, was zu verbesserten Leistungserzeugungsoutputs für die SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm führt. Entsprechend wird die Gesamtdicke der Zellstapelung, die durch Laminierung einer vielfachen Anzahl der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm gemacht wird, verringert, was die Leistungsoutput-Dichten pro Einheitsvolumen verbessert. Ferner wird eine erforderliche Menge an Materialien verringert, was die Materialkosten für die SOFC 50 reduziert.

[0052] Bei der herkömmlichen SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm ist 8YSZ gewöhnlicherweise für den Elektrolytfilm verwendet worden. Da die Oxidionen-Leitfähigkeit von Elektrolyten bei Betriebstemperaturen einer SOFC, die bei niedrigen Temperaturen wirkt, quasi durch die Zusammensetzung der verwendeten Materialien bestimmt wird, wird es erforderlich, den Elektrolytfilm viel dünner zu machen, um seinen Widerstand zu verringern, weshalb die Verwendung von 8YSZ als dem Material für einen

Elektrolyten fortgesetzt wurde. Ein zu dünner Elektrolytfilm erzeugt jedoch eine Schwierigkeit bei der Aufrechterhaltung seiner Gasdichtheitseigenschaft. Deshalb gibt es gewisse Grenzen bei der Verbesserung der Leistungsoutputs in Abhängigkeit vom Dünnermachen des Elektrolyten.

[0053] Die Verwendung der Feststoffelektrolyte mit hoher Oxidionen-Leitfähigkeit wie ScSZ, indem eine vorbestimmte Menge an Scandiumoxid in fester Lösung aufgelöst ist, anstelle des herkömmlichen 8YSZ führt andererseits zur Reduktion des spezifischen Widerstands des Elektrolytfilms selbst. Aus diesem Grund können höhere Outputs bewerkstelligt werden mit derselben Dicke des Elektrolytfilms wie zuvor.

[0054] Bei der herkömmlichen SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm umfaßt der Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau ferner eine Dreischichtstruktur, die ein Brennstoffelektrodensubstrat, einen Elektrolytfilm und eine Luftelektrode umfaßt. Bei einer SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm, die mit einem solchen Elektrolyt-Elektronen-Zusammenbau ausgestattet ist, führt die Verwendung eines sehr starken Materials für den das Brennstoffelektrodensubstrat aufbauenden Feststoffelektrolyt zum erhöhten Grenzflächenwiderstand zwischen dem Elektrolytfilm und dem Brennstoffelektrodensubstrat und erhöht schließlich die Überspannung.

[0055] Für die SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm in Übereinstimmung mit den bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung ist andererseits die Zwischenschicht 58, die den dritten Feststoffelektrolyten mit hoher Oxidionen-Leitfähigkeit enthält, zwischen dem Brennstoffelektrodensubstrat 50 und dem Elektrolytfilm 52 gelegt, so daß der Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 60 eine Vierschichtstruktur aufweist, wodurch die Verringerung des Grenzflächenwiderstands zwischen dem Elektrolytfilm 52 und dem Brennstoffelektrodensubstrat 54 ermöglicht wird. Aus diesem Grund wird eine Erhöhung der Überspannung aus dem Grenzflächenwiderstand unterdrückt, und das Leistungsvermögen der SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm wird weiter verbessert.

[0056] Dann wird eine Erläuterung gegeben bezüglich des SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm bezüglich der bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung. Die SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm bezüglich der bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung kann durch die folgende Prozedur hergestellt werden. Das heißt, der erste Katalysator und der zweite Feststoffelektrolyt werden zuerst in einem vorbestimmten Verhältnis vermischt und zu einer Lage geformt. Für das Formungsverfahren kann irgendein Verfahren verwendet werden, einschließlich des Druckformungsverfahrens, des Abstreifmesser- bzw. Rakelverfah-

rens etc., und ist nicht auf irgendeine Weise begrenzt. Dann wird die erhaltene geformte Lage gesintert, um das Brennstoffelektrodensubstrat **54** zu bilden.

[0057] Als nächstes wird die Aufschlämmung, die den zweiten Katalysator und den dritten Feststoffelektrolyten enthält, auf das Brennstoffelektrodensubstrat 54 aufgebracht, gefolgt von einer Sinterung zum Erzeugen der Zwischenschicht 58. Dann wird die Aufschlämmung, die den ersten Feststoffelektrolyten enthält, appliziert, gefolgt vom Sintern, um den Elektrolytfilm 52 zu bilden. Dann wird eine Aufschlämmung, die Materialien für die Luftelektrode enthält, auf die Oberfläche des Elektrolytfilms 52 appliziert, gefolgt vom Sintern zum Bilden der Luftelektrode 56. Der erhaltene Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau 60 wird zwischen die Gastrenner 62, 62 gelegt, wodurch die SOFC 50 mit einem getragenen Elektrolytfilm erzielt wird, die mit einer in Fig. 1 gezeigten Struktur ausgestattet ist.

[0058] Übrigens können für das Auftragverfahren der Zwischenschicht 58, des Elektrolytfilms 52 und der Luftelektrode 56 verschiedentliche Techniken verwendet werden, einschließlich des Siebdrucks, des Auftragens mit Bürste, des Aufsprühens und des Eintauchens, und das Verfahren ist überhaupt nicht auf irgendeine Weise begrenzt. Im oben erläuterten Beispiel wird ein Sinterverfahren individuell für das Brennstoffelektrodensubstrat 54, die Zwischenschicht 58, den Elektrolytfilm 52 und die Luftelektrode 56 angewandt. In dem Fall, daß die geeignetsten Temperaturen für die jeweilige Schicht nahe beieinander sind, ist ein gleichzeitiges Sintern von zwei oder mehr nebeneinander liegenden Schichten zulässig.

Beispiele

(Beispiel 1)

[0059] Eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm wurde durch die folgende Prozedur hergestellt: zuerst wurden gepulvertes Nickeloxid und ein Pulver, das eine Zusammensetzung von ZrO_3 -3 Mol-% Y_2O_3 aufwies (nachfolgend als 3YSZ bezeichnet), in einem Verhältnis von Ni:3YSZ=4:6 eingewogen, in einer Kugelmühle **24** Stunden vermischt, und getrocknet. Das erhaltene Pulver wurde durch das Abstreifmesserbzw. Rakelverfahren zu einer Lage geformt, gefolgt vom Sintern bei 1.000°C, um ein Brennstoffelektrodensubstrat zu erzielen. Das erhaltene Brennstoffelektrodensubstrat war etwa 0.3 mm dick.

[0060] Als nächstes wurden gepulvertes Nickeloxid und ein Pulver, das eine Zusammensetzung von (ZrO_2 -11 Mol-% Sc_2O_3) 99 Gew.-% – Al_2O_3 1 Gew.-% (nachfolgend als 11S1A bezeichnet) besaß, in einem Verhältnis von Ni:11S1A=4:6 eingewogen, in einer

Kugelmühle **24** Stunden vermischt, und getrocknet. Dann wurde zum Bilden einer Aufschlämmung ein Bindemittel zum vermischten Pulver zugegeben. Die Aufschlämmung wurde durch das Siebdruckverfahren auf die Oberfläche eines Brennstoffelektrodensubstrats aufgebracht, um eine Zwischenschicht zu erzielen, und das Produkt wurde bei 1.300°C gesintert.

[0061] Als nächstes wurde zum Bilden einer Aufschlämmung ein Bindemittel zu einem Pulver von 11S1A zugegeben. Die Aufschlämmung wurde durch das Tauchverfahren auf die Oberfläche einer Zwischenschicht aufgebracht, um einen Elektrolytfilm zu erzielen, und das Produkt wurde bei 1.450°C gesintert.

[0062] Als nächstes wurden ein Pulver von La_{0,8}Sr_{0,2}MnO₃ (nachfolgend als LSM bezeichnet) und ein Pulver von 8YSZ in einem Verhältnis von LSM:8YSZ=8:2 eingewogen, in einer Kugelmühle 24 Stunden vermischt, und getrocknet. Dann wurde zum erhaltenen Material für eine Luftelektrode ein Bindemittel zugegeben. Die gebildete Aufschlämmung wurde durch das Siebdruckverfahren auf die Oberfläche eines Elektrolytfilms aufgebracht, um eine Luftelektrode zu erzielen, und das Produkt wurde bei 1.150°C gesintert. Ferner wurde der erhaltene Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau, der eine Vierschichtstruktur umfaßte, zwischen zwei Gastrenner gelegt, um eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm zu ergeben.

(Vergleichsbeispiel 1)

[0063] Eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm wurde durch die folgende Prozedur hergestellt: zuerst wurden gepulvertes Nickeloxid und ein Pulver, das eine Zusammensetzung von 8YSZ aufwies, in einem Verhältnis von Ni:8YSZ=4:6 eingewogen, in einer Kugelmühle **24** Stunden vermischt, und getrocknet. Das erhaltene Pulver wurde durch das Rbstreifmesser- bzw. Rakelverfahren zu einer Lage geformt, gefolgt vom Sintern bei 1.000°C, um ein Brennstoffelektrodensubstrat zu erzielen. Das erhaltene Brennstoffelektrodensubstrat war etwa 1 mm dick.

[0064] Dann wurde zum Bilden einer Aufschlämmung ein Bindemittel zum Pulver von 11S1A hinzugefügt. Die Aufschlämmung wurde durch das Tauchverfahren auf die Oberfläche eines Brennstoffelektrodensubstrats aufgebracht, um einen Elektrolytfilm zu erzielen, und das Produkt wurde bei 1.450°C gesintert.

[0065] Als nächstes wurden ein Pulver von LSM und ein Pulver von 8YSZ in einem Verhältnis von LSM:8YSZ=8:2 eingewogen, in einer Kugelmühle 24 Stunden vermischt, und getrocknet. Dann wurde für eine Luftelektrode ein Bindemittel zum erhaltenen

Material zugefügt. Die gebildete Aufschlemmung wurde durch das Siebdruckverfahren auf die Oberfläche eines Elektrolytfilms aufgebracht, um eine Luftelektrode zu erzielen, und das Produkt wurde bei 1.150°C gesintert. Ferner wurde der erhaltene Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau, der eine Dreischichtstruktur umfaßte, zwischen zwei Gastrenner gelegt, um eine SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm zu ergeben.

[0066] Es wurden mit den zwei Arten SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm, die im Beispiel 1 und im Vergleichsbeispiel 1 erhalten wurden, Leistungserzeugungsexperimente durchgeführt. Die Temperatur zur Leistungserzeugung wurde auf 750°C festgelegt, und Wasserstoff wurde als Brennstoffgas angewandt. Als Oxidationsgas wurde Sauerstoff oder Luft angewandt.

[0067] Fig. 3 veranschaulicht die Abhängigkeit des Spannungsoutputs und der Leistungsoutputdichte von der Stromdichte, wenn der Brennstoffelektrode Wasserstoff zugeführt wird und der Luftelektrode Sauerstoff zugeführt wird. Beim Vergleich der Spannungsoutputzahlen unter Bedingungen derselben Stromdichte wird klar, daß die SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm im Beispiel 1 einen größeren Spannungsoutput zeigt als die SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm im Vergleichsbeispiel 1. Während die maximale Leistungsoutputdichte im Vergleichbeispiel 1 etwa 0,7 W/cm² betrug, wurde der Wert für Beispiel 1 auf etwa 1,0 W/cm² verbessert.

[0068] Fig. 4 veranschaulicht die Abhängigkeit des Spannungsoutputs und der Leistungsoutputdichte von der Stromdichte, wenn der Brennstoffelektrode Wasserstoff zugeführt wird und der Luftelektrode Luft zugeführt wird. Beim Vergleich unter Bedingungen derselben Stromdichte wie in Fig. 4 wird entsprechend klar, daß die SOFC im Beispiel 1 einen größeren Spannungsoutput zeigt als die SOFC im Vergleichsbeispiel 1. Während die maximale Leistungsoutputdichte im Vergleichsbeispiel 1 etwa 0,53 W/cm² betrug, wurde der Wert für Beispiel 1 auf etwa 0,7 W/cm² verbessert.

[0069] Beide Arten SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm, die im Beispiel 1 und im Vergleichsbeispiel 1 erhalten wurden, zeigten Zahlen der maximalen Leistungsoutputdichte, die höher waren als die herkömmliche SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm unter Verwendung von 8YSZ als dem Elektrolytfilm. Dies deshalb, weil ScSZ, welches eine höhere Oxidionen-Leitfähigkeit als 8YSZ zeigt, bei diesen als Elektrolytfilm angewandt wird.

[0070] Wie oben gezeigt weist die SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm im Beispiel 1 ein höheres Maximum der Leistungsoutputdichte auf als die SOFC mit einem getragenen Elektrolytfilm im Ver-

gleichsbeispiel 1. Dies deshalb, weil 3YSZ, das eine höhere mechanische Festigkeit aufweist als 8YSZ, als einem Aufbaumaterial für das Brennstoffelektodensubstrat im Beispiel 1 verwendet wird. Dies macht das Brennstoffelektrodensubstrat dünner unter Erhalt der Verbesserung der Gasdurchlässigkeit für das Brennstoffelektrodensubstrat. Im Fall des Beispiels 1 ist eine Zwischenschicht zwischen dem Elektrolytfilm und dem Brennstoffelektrodensubstrat gelegt. Dies wirkt zur Verbesserung der Wirksamkeit des SOFC gegenüber dem Brennstoffgas und zur Reduzierung des Grenzflächenwiderstands zwischen dem Elektrolytfilm und dem Brennstoffelektrodensubstrat, was zum höheren Maximum der Leistungsoutputdichte führt.

[0071] Die vorangehende Beschreibung der bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung sind zum Zweck der Veranschaulichung und der Beschreibung gebracht worden. Sie soll nicht erschöpfend sein oder die Erfindung auf die exakt beschriebene Form beschränken, und Modifikationen und Veränderungen sind im Licht der obigen Lehren möglich oder können aus der Praxis der Erfindung erfahren werden. Die Ausführungsformen, die gewählt und beschrieben wurden, um die Prinzipien der Erfindung sowie ihre praktische Anwendung zu erläutern, um dem Fachmann die Nutzung der Erfindung in verschiedenen Ausführungsformen und mit verschiedenen Modifikationen zu ermöglichen, sind für die spezielle, in Betracht gezogene Verwendung geeignet. Es ist vorgesehen, daß der Umfang der Erfindung durch die hier beigefügten Ansprüche definiert ist.

Patentansprüche

1. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm, umfassend:

einen Elektrolytfilm (**52**), der einen ersten Feststoffelektrolyt umfaßt, welcher Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt;

eine als Substrat (**54**) wirkende Brennstoffelektrode, die – gegebenfalls über einen Zwischenschicht-Cermetfilm (**58**), der einen zweiten Katalysator und einen dritten, Oxidionen-Leitfähigkeit zeigenden Elektrolyt umfaßt- mit einer Oberfläche des Elektrolytfilms verbunden ist, und

eine Luftelektrode (**56**), die mit der anderen Oberfläche des Elektrolytfilms verbunden ist, insgesamt einen Elektrolyt-Elektroden-Zusammenbau bildend,

dadurch gekennzeichnet, daß die als Substrat wirkende

Brennstoffelektrode ein Cermet eines ersten Katalysators und eines zweiten Feststoffelektrolyten, der Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt und eine Biegefestigkeit von 500 MPa oder mehr aufweist, umfaßt, wobei die Biegefestigkeit durch den gemessenen Wert von gesinterten Materialien definiert ist, die nur den zweiten Feststoffelektrolyten umfassen und relative Dichten von mehr als 95% aufweisen.

- 2. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm gemäß Anspruch 1, wobei der zweite Feststoffelektrolyt Yttriumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, das 2 bis 4 Mol-% Yttriumoxid (Y_2O_3) enthält, umfaßt.
- 3. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm gemäß Anspruch 1, wobei der zweite Feststoffelektrolyt Skandiumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, das 3 bis 6 Mol-% Skandiumoxid (Sc_2O_3) enthält, umfaßt.
- 4. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm gemäß Anspruch 1, 2 oder 3, wobei der erste Feststoffelektrolyt Skandiumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, das 9 bis 12 Mol-% Skandiumoxid (Sc₂O₃) enthält, umfaßt.
- 5. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm gemäß Anspruch 1, 2, 3 oder 4, wobei ein Zwischenschicht-Cermetfilm (58), der einen zweiten Katalysator und einen dritten Elektrolyt, der eine 0,1 S/cm bei 800°C übersteigende Oxidionen-Leitfähigkeit zeigt, umfaßt, zwischen dem Elektrolytfilm (52) und dem Brennstoffelektrodensubstrat (54) gelegt ist.
- 6. Feststoffoxid-Brennstoffzelle mit einem getragenen Elektrolytfilm gemäß Anspruch 5, wobei der dritte Feststoffelektrolyt Skandiumoxid-stabilisiertes Zirkoniumoxid, das 9 bis 12 Mol- % Skandiumoxid (Sc_2O_3) enthält, umfaßt .

Es folgen 3 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

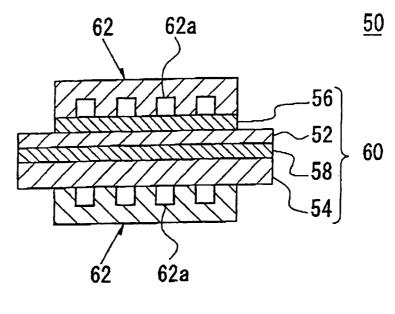


FIG. 1

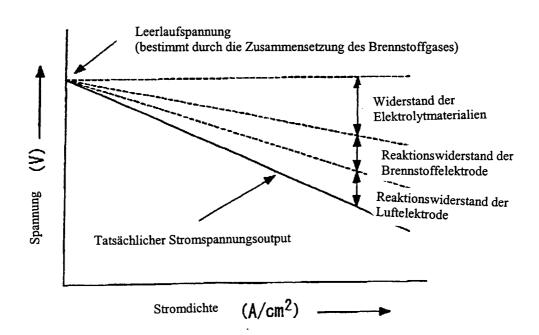


FIG. 2

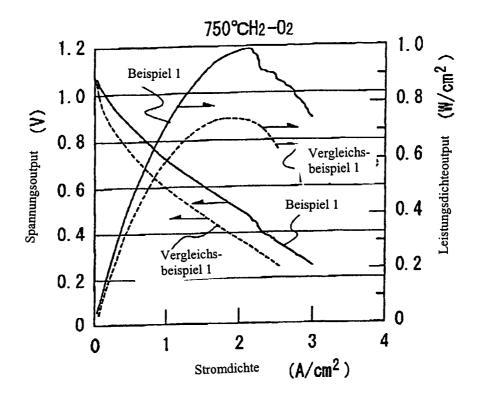


FIG. 3

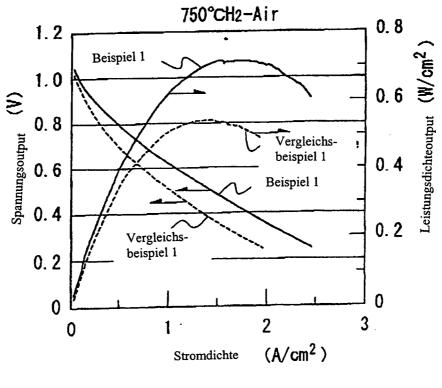


FIG. 4

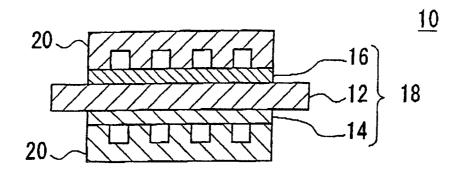


FIG. 5A

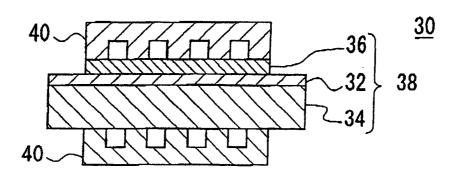


FIG. 5B