

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 632 989**

51 Int. Cl.:

H01M 8/1213 (2006.01)

H01M 8/124 (2006.01)

H01M 8/0217 (2006.01)

H01M 8/0236 (2006.01)

H01M 8/0297 (2006.01)

H01M 4/86 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **28.08.2014** **PCT/EP2014/068210**

87 Fecha y número de publicación internacional: **19.03.2015** **WO15036246**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **28.08.2014** **E 14758836 (2)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **12.04.2017** **EP 3005460**

54 Título: **Procedimiento para la unión de un elemento de contacto eléctricamente conductor con al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado a una celda de combustible**

30 Prioridad:

10.09.2013 DE 102013218053

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

18.09.2017

73 Titular/es:

**SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT (100.0%)
Werner-von-Siemens-Straße 1
80333 München, DE**

72 Inventor/es:

**LEONIDE, ANDRÉ y
GREINER, HORST**

74 Agente/Representante:

CARVAJAL Y URQUIJO, Isabel

ES 2 632 989 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Procedimiento para la unión de un elemento de contacto eléctricamente conductor con al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado a una celda de combustible.

5 La invención se refiere a un procedimiento para la unión de un elemento de contacto eléctricamente conductor con al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado a una celda de combustible.

10 En el marco de la fabricación de una celda de combustible, en particular de una celda de combustible de alta temperatura, es decir, de una celda de combustible cuya temperatura de funcionamiento se encuentra por encima de 500 °C, es conocido unir un elemento de contacto eléctricamente conductor, el cual puede presentarse en particular en forma de una capa de contacto, con un componente de celda de combustible eléctricamente conductor perteneciente o asignado a la celda de combustible, como por ejemplo, un electrodo o disponer respectivamente un elemento de contacto eléctricamente conductor sobre un correspondiente componente de celda de combustible eléctricamente conductor. El elemento de contacto eléctricamente conductor sirve en particular para asegurar o para mejorar el contacto eléctrico entre el componente de celda de combustible eléctricamente conductor y otros componentes eléctricamente conductores de la celda de combustible.

15 La unión o la colocación del elemento de contacto eléctricamente conductor sobre el componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado a la celda de combustible se produce hasta ahora típicamente mediante procedimiento de revestimiento de polvo húmedo o procedimiento de serigrafía.

20 Los procedimientos de revestimiento de polvo húmedo requieren habitualmente antes de la aplicación propiamente dicha del elemento de contacto eléctricamente conductor una protección mediante cinta adhesiva laboriosa del componente de celda de combustible eléctricamente conductor a revestir, para garantizar que el elemento de contacto eléctricamente conductor se dispone exclusivamente sobre las zonas a revestir del componente de celda de combustible eléctricamente conductor. En el caso del procedimiento de serigrafía existe el riesgo de una extensión no deseada del elemento de contacto eléctricamente conductor a aplicar en este caso en forma de pasta, por zonas que no han de revestirse del componente de celda de combustible eléctricamente conductor.

25 Otro procedimiento del estado de la técnica lo divulga el documento US 5,629,103 A.

La invención se basa por lo tanto en la tarea de indicar un procedimiento mejorado frente a ello para la disposición o la unión de un elemento de contacto eléctricamente conductor con al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado a una celda de combustible.

30 Esta tarea se soluciona según la invención mediante un procedimiento del tipo mencionado inicialmente, el cual se caracteriza por los siguientes pasos:

- poner a disposición un elemento de contacto soluble en un disolvente, el cual presente a temperaturas por encima de los 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C, propiedades de conducción eléctrica, así como un componente de celda de combustible eléctricamente conductor,
- aplicar un disolvente para disgregar o disolver al menos el elemento de contacto, sobre el elemento de contacto y/o el componente de celda de combustible eléctricamente conductor,
- disponer el elemento de contacto sobre el componente de celda de combustible eléctricamente conductor,
- evaporar el disolvente bajo la configuración de una unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible.

40 Según el procedimiento según la invención, en un primer paso se pone a disposición un elemento de contacto que puede disolverse en un disolvente, así como un componente de celda de combustible eléctricamente conductor asignado o que puede asignarse a una celda de combustible, es decir, en particular a una celda de combustible de alta temperatura, cuya temperatura de funcionamiento se encuentra por encima de los 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C, como en particular un electrodo, preferentemente un cátodo.

45 Con un elemento de contacto eléctricamente conductor se entiende un componente, el cual debido a su materialidad o estructura química/física presenta en particular en el intervalo de la temperatura de funcionamiento de una celda de combustible o celda de combustible de alta temperatura, es decir, a temperaturas de por encima de 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C, propiedades de conducción eléctrica, es decir, en particular una conductividad de electrones. El elemento de contacto eléctricamente conductor se presenta típicamente en forma de una (delgada) lámina o capa.

50 Es esencial que se ponga a disposición un elemento de contacto eléctricamente conductor, el cual debido a su materialidad o a su estructura química/física sea soluble en un determinado disolvente, a especificar con mayor detalle, es decir, que pueda disgregarse o disolverse al ser humectado con el disolvente y de esta manera pueda

trasladarse al menos por el lado de la superficie de un estado de agregado sólido a uno líquido. El elemento de contacto eléctricamente conductor puesto a disposición en el primer paso del procedimiento según la invención está formado por lo tanto a partir de un material soluble en un disolvente o comprende un material de este tipo.

En un segundo paso del procedimiento según la invención, que sigue al primer paso, se aplica un disolvente sobre el elemento de contacto y/o el componente de celda de combustible. En este caso ha de buscarse una suficiente humectación del elemento de contacto y/o del componente de celda de combustible con el disolvente, para continuar realizando una unión lo suficientemente estable entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible. Naturalmente se usa en este paso un disolvente, el cual es adecuado para disgregar o disolver al menos el elemento de contacto. La elección del disolvente se produce por lo tanto de forma conveniente en dependencia de la materialidad o de la estructura química/física del elemento de contacto.

Puede ser suficiente en este caso, aplicar el disolvente al menos por secciones sobre el elemento de contacto o al menos por secciones sobre el componente de celda de combustible. La unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible puede mejorarse no obstante también normalmente, debido a que se aplica disolvente tanto sobre el elemento de contacto, como también sobre el componente de celda de combustible. El disolvente puede aplicarse sobre el lado del elemento de contacto dirigido hacia el componente de celda de combustible y/o alejado del componente de celda de combustible.

La aplicación del disolvente puede producirse por ejemplo también, mediante aplicación con un pincel, pulverización o vertido. Es concebible también, sumergir el elemento de contacto a humectar con el disolvente y/o el componente de celda de combustible a humectar con el disolvente o secciones de superficie a humectar pertenecientes a éstos, en un baño de un disolvente. Naturalmente pueden usarse básicamente también otras técnicas de aplicación diferentes a las mencionadas para la aplicación del disolvente sobre el elemento de contacto y/o el componente de celda de combustible.

En un tercer paso del procedimiento según la invención, que sigue al segundo paso, se dispone el elemento de contacto sobre el componente de celda de combustible eléctricamente conductor. El elemento de contacto se encuentra tras la disposición sobre el componente de celda de combustible, al menos por secciones, en particular completamente, de manera plana o directamente sobre el componente de celda de combustible.

En un cuarto paso según la invención, que sigue al tercer paso, se evapora el disolvente bajo la configuración de una unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible. En este paso se produce la configuración propiamente dicha de una unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible. En el caso de la unión se trata en principio de una unión pegada establecida mediante un pegamento de disolvente, entre dos partes a unir. La unión establecida según la invención mediante la evaporación del disolvente es por lo tanto normalmente en unión de materiales y de esta manera correspondientemente estable.

La unión establecida mediante la evaporación del disolvente, entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible puede realizarse de manera comparativamente sencilla y rápida, de manera que el procedimiento según la invención representa una posibilidad muy eficiente, desde el punto de vista de la técnica de fabricación, de la fabricación de una unión entre un correspondiente elemento de contacto y un correspondiente componente de celda de combustible. La rápida configuración de la unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible es ventajosa en particular también para la manejabilidad del conjunto de componentes producido con el procedimiento según la invención, asignado o a asignarse a una celda de combustible.

El procedimiento de evaporación del disolvente se produce en condiciones normales o estándar, en particular a temperatura ambiente (aproximadamente 25 °C) y una presión de 1 atm, normalmente por sí mismo. El procedimiento de evaporación del disolvente puede controlarse o favorecerse o acelerarse eventualmente mediante el ajuste preciso de determinadas condiciones de proceso, como por ejemplo, presión y/o temperatura.

Naturalmente es concebible que tras la unión del elemento de contacto con el componente de celda de combustible se dispongan sobre el elemento de contacto o se unan con éste otros componentes de celda de combustible asignados o que pueden asignarse a la celda de combustible, como por ejemplo, una placa de interconexión. El procedimiento según la invención para la unión de un elemento de contacto eléctricamente conductor con al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor, asignado a una celda de combustible puede ser de esta manera parte de un procedimiento para la producción de una celda de combustible, en particular de una celda de combustible de alta temperatura.

En el marco del procedimiento según la invención se usa típicamente un elemento de contacto conformado a partir de un óxido de metal o que comprende un óxido de metal. En particular se usa un elemento de contacto eléctricamente conductor formado a partir de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, abreviado LSCF, en particular de la fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$ o que comprende un elemento de contacto eléctricamente conductor

de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, abreviado LSCF, en particular de la fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$. El elemento de contacto eléctricamente conductor usado puede estar formado alternativamente también a partir de manganita dopada con lantano y estroncio, abreviado LSM, en particular de la fórmula $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$, o comprender manganita dopada con lantano y estroncio, abreviado LSM, en particular de la fórmula $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$.

5 En este sentido ha de mencionarse que el componente de celda de combustible puede estar formado del mismo material que el elemento de contacto. El componente de celda de combustible puede estar formado por lo tanto también de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, abreviado LSCF, en particular de la fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$ o comprender ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, abreviado LSCF, en particular de la fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$.

10 El material que forma el elemento de contacto eléctricamente conductor usado en el marco del procedimiento según la invención convenientemente no está sinterizado y de esta manera no es frágil, lo cual facilita la manejabilidad y la procesabilidad del elemento de contacto en el marco del procedimiento según la invención.

En el marco del procedimiento según la invención se usa como elemento de contacto eléctricamente conductor en particular un componente o material tipo placa, preferentemente tipo lámina. El elemento de contacto puede presentarse de esta manera en forma de una placa, o preferentemente, de una lámina, y de esta manera básicamente con una geometría plana. El uso de un elemento de contacto configurado como lámina tiene la ventaja, de que el elemento de contacto tiene una configuración particularmente delgada y de esta manera no modifica esencialmente la estructura general de una celda de combustible en sus dimensiones. El grosor o la altura del elemento de contacto se encuentra por ejemplo, en el rango entre 50 y 300 μm , en particular en el rango entre 100 y 200 μm .

En el marco del procedimiento según la invención, el elemento de contacto eléctricamente conductor puede dotarse antes de aplicarse el disolvente, de al menos una escotadura o perforación. Las escotaduras o las perforaciones pueden producirse mediante procesos de estampado en el elemento de contacto. La forma geométrica del elemento de contacto puede adaptarse de esta manera a otros componentes que se unen en la combinación general de una celda de combustible al lado alejado del componente de celda de combustible, del elemento de contacto, como por ejemplo, placas de interconexión. El contorno de la superficie del elemento de contacto puede adaptarse por lo tanto convenientemente al contorno de la superficie de un componente a disponer sobre el elemento de contacto o a unir con éste en la combinación general de la celda de combustible, como por ejemplo, una placa de interconexión o configurarse este correspondientemente, es decir, de manera opuesta.

En el marco del procedimiento según la invención se usa como disolvente en particular un disolvente orgánico, en particular etanol. Básicamente pueden usarse no obstante también, teniendo en cuenta la materialidad o la estructura química/física del elemento de contacto, también disolventes diferentes, en particular orgánicos. Siempre y cuando el elemento de contacto esté formado a partir de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto o comprenda ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, ha resultado ser particularmente adecuado para los fines previstos según la invención, en particular el etanol.

En el marco del procedimiento según la invención puede estar previsto de forma conveniente, que en el disolvente se disuelva antes de aplicar éste sobre el elemento de contacto y/o el componente de celda de combustible, una determinada cantidad del material que forma el elemento de contacto. El disolvente se presenta de esta manera como emulsión de disolvente con material que forma el elemento de contacto disuelto en éste. En lo referente a la proporción, el material disuelto, que forma el elemento de contacto, tiene en la emulsión una proporción de volumen en el intervalo de 10 – 40 %, en particular de aproximadamente el 20 %. Mediante el uso de un disolvente de este tipo, que se presenta como emulsión, puede mejorarse la estabilidad de la unión entre el elemento de contacto y el componente de celda de combustible.

La invención se refiere además de ello, a una celda de combustible, en particular a una celda de combustible de alta temperatura, es decir, una celda de combustible con una temperatura de funcionamiento de por encima de los 500 °C, en particular en el intervalo de entre 600 y 1000 °C, comprendiendo al menos un componente de celda de combustible eléctricamente conductor, en particular un electrodo, preferentemente un cátodo, y al menos un elemento de contacto eléctricamente conductor unido con éste según el procedimiento descrito con anterioridad. En correspondencia con ello, para la celda de combustible según la invención tienen validez de forma análoga todas las explicaciones en relación con el procedimiento según la invención.

Otras ventajas, características y detalles de la invención resultan del siguiente ejemplo de realización descrito, así como de los dibujos. En este caso muestran:

Las Figs. 1 – 3 respectivamente una representación de principio de un elemento de contacto y de un componente de celda de combustible en el marco de la realización de un procedimiento según un ejemplo de realización de la invención; y

La Fig. 4 una representación de principio de un recorte de una celda de combustible.

Las Figs. 1 – 3 muestran respectivamente una representación de principio de un elemento de contacto 1 eléctricamente conductor y de un componente de celda de combustible 2 eléctricamente conductor en el marco de la realización de un procedimiento según un ejemplo de realización de la invención. Las Figs. 1 - 3 muestran respectivamente vistas en sección del elemento de contacto 1, como también del componente de celda de combustible 2.

La Fig. 1 muestra la puesta a disposición prevista en el primer paso del procedimiento según la invención, de un elemento de contacto 1 y de un componente de celda de combustible 2. El elemento de contacto 1 ha de disponerse a continuación sobre el componente de celda de combustible 2 o unirse con éste de forma estable o imperdible (compárense las Figs. 2, 3).

El elemento de contacto 1 está formado a partir de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto no sinterizada, fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$. El elemento de contacto 1 se presenta como lámina con un grosor o una altura de aproximadamente 100 μm .

Como puede verse, en el elemento de contacto 1 hay configuradas perforaciones 3. Las perforaciones 3, configuradas en particular mediante procesos de estampación, y la forma realizada de esta manera, del elemento de contacto 1, están adaptadas a otros componentes que se unen en la combinación general de una celda de combustible 4 (compárense la Fig. 4) al lado del elemento de contacto 1 alejado del componente de celda de combustible 2, como por ejemplo, placas de interconexión. El contorno de la superficie del elemento de contacto 1 está configurado de esta manera típicamente, en comparación con el contorno de la superficie de un componente a disponer en la combinación en general sobre la celda de combustible 4 o a unir con ésta, de forma opuesta.

En el caso del componente de celda de combustible 2 se trata de un electrodo poroso conmutado como cátodo, para una celda de combustible o de una celda de combustible (compárense la Fig. 4). El componente de celda de combustible 2 está formado igualmente a partir de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto, fórmula $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-d}$. A diferencia del material que forma el elemento de contacto 1, el material que forma el componente de celda de combustible 2, está sin embargo, ya sinterizado. Básicamente puede usarse no obstante también, un material no sinterizado, que forme el componente de celda de combustible 2.

La Fig. 2 muestra la aplicación de un disolvente 5 orgánico líquido en forma de una emulsión o mezcla del material que forma el elemento de contacto 1 y etanol sobre las superficies de lado superior en la Fig. 2 del elemento de contacto 1 y del componente de celda de combustible 2. En el disolvente 5 que se presenta como emulsión hay contenida de esta manera ya una determinada cantidad, típicamente de aproximadamente el 20 % en volumen, del material disuelto que forma el elemento de contacto 1.

El disolvente 5 puede aplicarse por el lado del elemento de contacto sobre el lado dirigido hacia el componente de celda de combustible 2 y/o alejado del componente de celda de combustible 2, del elemento de contacto 1. La aplicación del disolvente 5 se produce por ejemplo, con un pincel. El disolvente 5 es adecuado para disgregar o disolver el elemento de contacto 1 al menos por el lado de la superficie.

Como se indica mediante la flecha P1 mostrada en la Fig. 2, se produce además de ello una disposición o colocación del elemento de contacto 1 sobre la superficie humectada con disolvente 5 del componente de celda de combustible 2.

La Fig. 3 muestra el estado, en el cual el elemento de contacto 1 ha sido dispuesto correspondientemente sobre el componente de celda de combustible 2. El elemento de contacto 1 está dispuesto en este caso de forma plana y directamente sobre el componente de celda de combustible 2. Tal como puede verse, en la Fig. 3 aún queda una determinada cantidad de disolvente 5 o de elemento de contacto 1 disuelto entre la parte no disuelta del elemento de contacto 1 y el componente de celda de combustible 2.

En un paso posterior del procedimiento se produce una evaporación o vaporización del disolvente 5, lo cual se indica mediante las flechas P2. El proceso de evaporación del disolvente puede controlarse o acelerarse mediante el ajuste preciso de determinadas condiciones de proceso, como por ejemplo, la presión y/o la temperatura.

La Fig. 4 muestra finalmente el estado en el cual el disolvente 5 está completamente evaporado o vaporizado. Resulta ahora un conjunto, el cual se usa o puede usarse en una celda de combustible 4, en particular una celda de combustible de alta temperatura, cuya temperatura de funcionamiento se encuentra por encima de 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C (compárense la Fig. 4).

La estructura de una celda de combustible o de una pila de varias celdas de combustible dispuestas unas sobre otras o unas junto a otras, es lo suficientemente conocida. Normalmente se une en este caso por el lado superior al

elemento de contacto 1, una placa de interconexión (no mostrado) y por el lado inferior al componente de celda de combustible 2, un electrolito (no mostrado).

Si bien la invención se ha ilustrado y descrito con gran detalle mediante el ejemplo de realización preferido, la invención no queda limitada por los ejemplos divulgados, y el experto puede derivar de ello otras variaciones, sin abandonar el ámbito de protección de la invención como se divulga en las reivindicaciones.

5

REIVINDICACIONES

- 5 1. Procedimiento para la unión de un elemento de contacto (1) eléctricamente conductor, el cual, a temperaturas por encima de 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C, presenta propiedades de conducción eléctrica, con al menos un componente de celda de combustible (2) eléctricamente conductor asignado a una celda de combustible (4), caracterizado por los pasos:
- poner a disposición un elemento de contacto (1) soluble en un disolvente (5), el cual presente a temperaturas por encima de los 500 °C, en particular entre 600 y 1000 °C, propiedades de conducción eléctrica, así como un componente de celda de combustible (2) eléctricamente conductor,
 - 10 - aplicar un disolvente (5) para disgregar o disolver al menos el elemento de contacto (1), sobre el elemento de contacto (1) y/o el componente de celda de combustible (2),
 - disponer el elemento de contacto (1) sobre el componente de celda de combustible (2),
 - evaporar el disolvente (5) bajo la configuración de una unión entre el elemento de contacto (1) y el componente de celda de combustible (2).
- 15 2. Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como elemento de contacto (1) se usa un material formado a partir de ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto o un material que comprende ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto o se usa un material de manganita dopada con lantano y estroncio o que comprende manganita dopada con lantano y estroncio.
3. Procedimiento según la reivindicación 2, caracterizado porque se usa una ferrita dopada con lantano, estroncio y cobalto sin sinterizar o una manganita dopada con lantano y estroncio sin sinterizar.
- 20 4. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque como elemento de contacto (2) se usa un material tipo placa, en particular tipo lámina.
5. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque el elemento de contacto (2) se provee antes de aplicarse el disolvente (5), de al menos una perforación (3).
- 25 6. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque como disolvente (5) se usa un disolvente orgánico, en particular etanol.
7. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque se usa como disolvente (5) una emulsión de disolvente (5) y material que forma el elemento de contacto (1) disuelto en éste.
8. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, caracterizado porque como componente de celda de combustible (2) eléctricamente conductor, se usa un electrodo, en particular un cátodo.
- 30 9. Celda de combustible (4), en particular celda de combustible de alta temperatura, comprendiendo al menos un componente de celda de combustible (2) eléctricamente conductor y al menos un elemento de contacto (1) eléctricamente conductor unido con éste según el procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores.

FIG 1

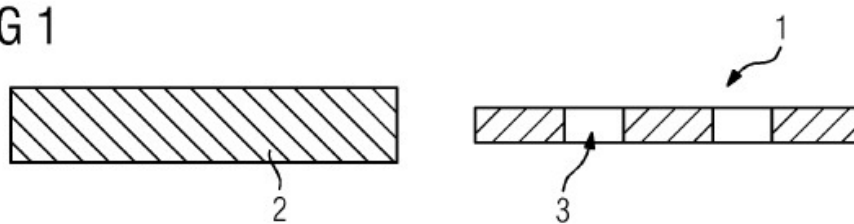


FIG 2

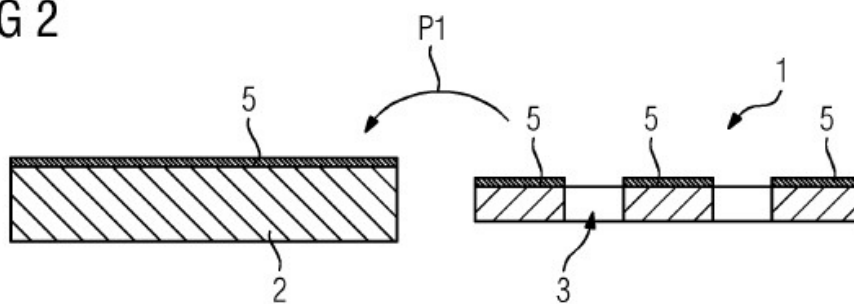


FIG 3

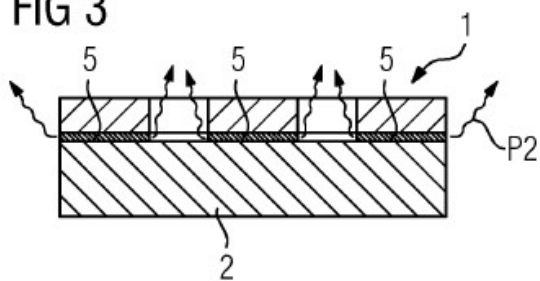


FIG 4

