

104 年度政府科技發展計畫 績效報告

計畫名稱：高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構(2/5)

主管機關：行政院原子能委員會

執行單位：核能研究所

中華民國 105 年 3 月 28 日

【104 年度績效自評意見暨回復說明(D007)】

計畫名稱：電漿在綠色節能環境之開發與應用

績效自評審查委員：駱尚廉、許鈺宗、江誠榮、洪慧芬

序號	審查意見	回復說明
壹、執行之內容與原計畫目標符合程度(自評評等：8) 9-10：超越計畫原訂目標。 8：達成計畫原訂目標。 7：大致與原計畫目標相符。 1-6：未達原訂目標。		
1-1	本計畫以綠色節能環境概念為主軸，逐步開發出輕、薄及可撓曲之全固態薄膜光伏、薄膜調光、薄膜儲能及薄膜聚光光熱等關鍵節能元件及其整合型系統。分項計畫包括電漿薄膜技術在可撓式節能及能源元件整合系統開發與應用、電漿薄膜聚光光熱電整合系統應用開發、電漿技術運用於綠色環境零碳排放整合開發驗證、工業電漿技術及應用系統平台開發建置，各分項計畫均達其原預定之目標。	謝謝委員肯定。
貳、計畫經費及人力運用之妥適度(自評評等：9) 9-10：與原規劃一致。 7-8：與原規劃大致相符，差異處經機關說明後可以接受。 1-6：與原規劃不盡相符，且計畫經費、人力與工作無法匹配。		
2-1	1. 經費運用妥善。 2. 104 年度規劃投入研究人力 50 人年，實際投入人力 42.86 人年，預定與實際投入人力差異主要為單位人員	謝謝委員肯定。

	有異動含退休、離職，在充份發揮人力配置下，不影響對計畫階段性目標的完成。	
參、已獲得之主要成果(重大突破)與成果滿意度(自評評等：9) 9-10：達成原訂 KPI，且獲得成果績效超越原計畫預期。 8：達成原訂 KPI，且獲得成果績效與原計畫預期相符。 7：大致達成計畫原訂 KPI 與預期效益。 1-6：未達成計畫原訂 KPI 與預期效益。		
3-1	計畫執行成果之 KPI 與預期成效一致性高。	謝謝委員肯定。
肆、評估主要成就及成果之價值與貢獻度(自評評等：9) 9-10：超越原計畫預期效益。 8：與原計畫預期效益相符。 7：大致與原計畫預期效益相符。 1-6：未達成原計畫預期效益。		
4-1	【學術成就(科技基礎研究)】 1. 相關研究成果已發表國內外期刊或是研討會，建議敘明期刊 IF 值。 2. 各分項計畫均有一定數量研究論文、專利與報告產出。研究論文之品質佳，專利實用性高。	1. 感謝委員意見，未來期刊論文將加入 IF 值說明。 2. 謝謝委員肯定。
4-2	【技術創新(科技技術創新)】 1. 創新獨特的卷對卷(R2R)電弧電漿鍍製節能膜技術，為本所電漿技術歷年最大突破，讓高階節能膜低成本化，技轉國內最大節能膜公司，簽約金 2500 萬元。積極專利布局高能量密度之全固態薄膜鋰電池元件，技術成熟後商機可期。	1. 謝謝委員肯定。

	2. 智慧財產之專利申請與技術授權表現優。 3. 創新技術未來之應用情境，具體清楚。	2. 謝謝委員肯定。 3. 謝謝委員肯定。
4-3	【經濟效益(經濟產業促進)】 1. 與國內最大節能膜公司技術合作開發暨技術授權案全程 8 年，開發 R2R 電弧/磁控複合製程設備技術，提供低成本節能膜整體解決方案，合作開發期暨技術輔導期 2 年，收取 2,200 萬元；技術授權期 6 年，其授權金暨權利金 300 萬元，總收入合計 2,500 萬元，研發成果運用收入 3,34 萬元上繳國庫。 2. 計畫之研發成果完成 5 件技轉/先期參與案，有助於環境節能推廣，成效良好。 3. 促成投資與創業育成均達成目標。	1. 謝謝委員肯定。 2. 謝謝委員肯定。 3. 謝謝委員肯定。
4-4	【社會影響(社會福祉提升、環境保護安全)】 電弧電漿製程創新突破鍍製高階隔熱膜並通過驗證，促成國內最大規模節能膜廠商東○與本所於雲林斗六新廠簽訂技術授權及合作合約。本技術使整體製程單純化，大幅降低成本，有利建築物、汽車高性能隔熱膜貼膜普及化，協助節能政策推動。且提升就業人數未來可期。	謝謝委員肯定。
4-5	【其他效益】	

	1. 獲得 2015 台北國際發明展暨技術交易展競賽組金牌獎，顯示研發成果之重要性，並獲得肯定與廠商熱烈回響。 2. 碩、博士培育人數可再加強，與國內單位合作佳，國際合作暫無。	1. 謝謝委員肯定。 2. 感謝委員意見，未來將積極與學術單位合作，加強基礎研究，增加碩、博士培育人數；並積極參加國際研討會與參訪國際知名研究機構，爭取國際合作機會。
伍、跨部會協調或與相關計畫之配合程度(自評評等：9) 10：認同機關所提計畫執行無須跨部會協調，且不須與其他計畫配合。 9-10：跨部會協調或與相關計畫之配合情形良好。 7-8：跨部會協調或與相關計畫之配合情形尚屬良好。 1-6：跨部會協調或與相關計畫之配合情形仍待加強。		
5-1	與具無線控制電路驅動設計能力之廠商及學研單位進行技術合作，發展可結合居家智能應用之智慧型電致變色窗控制技術。	謝謝委員肯定。
陸、後續工作構想及重點之妥適度(自評評等：9) 9-10：後續工作構想良好；屆期計畫成果之後續推廣措施良好。 7-8：後續工作構想尚屬良好；屆期計畫之後續推廣措施尚屬良好。 1-6：後續工作構想有待加強；未規劃適當之屆期計畫後續推廣措施。		
6-1	未來擬藉由技術服務等合作形式持續與國內光電大廠針對現有電致變色所使用之金屬氧化物薄膜，進行結合有機及無機材料之前瞻複合型元件之開發，突破目前有機元件應用瓶頸，提升現有光電產品性價比。	謝謝委員肯定。
6-2	本計畫對於後續工作能兼顧技術發展與產業應用，規劃良	謝謝委員的意見與肯定。

	好，另建議未來能以跨部會合作方式將技術成果推向業界。	
柒、總體績效評量暨綜合意見 (自評評等：9) (10:極優 9:優 8:良 7:可 6:尚可 5:普通 4:略差 3:差 2:極差 1:劣)		
7-1	本計劃是以綠色節能環境概念為主軸，分項計畫包括電漿薄膜技術在可撓式節能及能源元件整合系統開發與應用、電漿薄膜聚光光熱電整合系統應用開發、電漿技術運用於綠色環境零碳排放整合開發驗證、工業電漿技術及應用系統平台開發建置等。無論在專利、論文與智財推廣均有不錯產出，與國內學術單位合作也達成人才培育之目標， <u>但碩、博士人才培育可再增加。雖然本計畫為研究型計畫，但後續計畫之重點宜放在實際應用之開發，建議現有之技術成果透過跨部會方式協助推向業界。</u> 計畫整體表現值得鼓勵。	謝謝委員的意見、肯定與建議，未來將積極與學術單位合作，加強基礎研究，增加碩、博士培育人數；另外在電弧電漿技術創新帶動國內節能膜產業方面，將進一步透過跨部會合作方式(如與內政部建築研究所合作)推向業界，或直接與廠商合作，共同申請業界科專，落實產業應用成果。
7-2	本計畫之執行符合原訂計畫目標，達成原訂 KPI，且獲得成果績效超越原計畫預期。	謝謝委員肯定。
7-3	本計畫年度各項 KPI 如期如質完成，成效良好。在技術移轉方面，突破技術障礙，完成具指標意義之 R2R 電弧/濺鍍相關技轉案簽屬，值得肯定。惟研發項目涵蓋面極廣，仍建議研發項目能更集中，以達更好成效。	謝謝委員的意見與肯定。未來將聚焦於 (1)住商節能：R2R 電弧電漿技術創新帶動節能膜產業(電致變色膜等)。(2)工業節能：建立智慧熱管餘熱回收節能關鍵技術，驗證逆流熱虹吸回路技術的節能效益，並向耗能和空調產業推廣。(3)智慧節能生活：開發 R2R 可撓式智慧調光薄膜整合型元件

		(PV+EC+Li 電池+無線遙控技術)，應用於建築與汽車節能上，成為未來智慧綠建築及車聯網的關鍵節能元件。(4)固態鋰電池：與半導體或面板廠商合作，開發太陽光電、熱電和壓電的環境能源獵能器。
7-4	本計畫配合未來組改後新主軸研究方向，定位清楚，期望執行力落實，開創綠色節能之親和環境，更加發控未來轉型為能源研究所之主要角色。	謝謝委員的意見與肯定。

目 錄

【104 年度績效自評意見暨回復說明(D007)】	2
【104 年度政府科技發展計畫績效報告基本資料表(A003)】	10
第一部分(系統填寫)	11
壹、 目的、架構與主要內容	12
一、 目的與預期成效	12
(一) 目的	12
(二) 預期成效	14
(三) 實際達成與原預期差異說明	15
二、 架構	17
三、 主要內容	18
(一) 內容	18
(二) 實際執行與原規劃差異說明	18
貳、 經費與人力執行情形	19
一、 經費執行情形	19
(一) 經資門經費表 (E005)	19
(二) 經費支用說明	19
(三) 經費實際支用與原規劃差異說明	19
二、 計畫人力運用情形	20
(一) 計畫人力結構 (E004)	20
(二) 人力實際進用與原規劃差異說明	20
參、 已獲得之主要成果與重大突破(含量化 output)(E003) (系統填寫) ..	21
第二部分(自行上傳)	27
壹、 主要成就及成果之價值與貢獻度(outcome)	28
一、 學術成就(科技基礎研究)	28
二、 技術創新(科技技術創新)	40
三、 經濟效益(經濟產業促進)	45
四、 社會影響(社會福祉提升、環境保護安全)	46
五、 其他效益(科技政策管理、人才培育、法規制度、國際合作、推動輔導等)	47

貳、 跨部會協調或與相關計畫之配合	49
參、 檢討與展望	49
附錄一：期末分項工作成果說明	51

【104 年度政府科技發展計畫績效報告基本資料表 (A003)】

審議編號	104-2001-02-癸-03				
計畫名稱	能源國家型科技計畫－高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構(2/5)				
主管機關	行政院原子能委員會				
執行單位	核能研究所				
計畫主持人	姓名	李瑞益	職稱	研究員	
	服務機關	行政院原子能委員會核能研究所			
	電話	(03)471-1400 轉 6761	電子郵件	rylee@iner.gov.tw	
計畫類別	能源國家型科技計畫				
計畫群組及比重	環境科技 70%，工程科技 30%				
執行期間	104 年 01 月 01 日 至 104 年 12 月 31 日				
全程期間	103 年 01 月 01 日 至 107 年 12 月 31 日				
全程計畫 資源投入 (104 年度以前 請填決算數)	年度	經費(千元)		人力(人/年)	
	103	54,908		47.1	
	104	51,406		49.0	
	105	77,187		51.8	
	106	80,275		51.8	
	107	80,275		51.8	
	合計	344,051		251.5	
當年度 經費投入 明細 (請填決算數)	104 年度	人事費	-	土地建築	-
		材料費	10,770	儀器設備	10,713
		其他經常支出	25,667	其他資本支出	4,256
		經常門小計	36,437	資本門小計	14,969
		經費小計(千元)		51,406	
計畫連絡人	姓名	葉瑞珍	職稱	技術員	
	服務機關	行政院原子能委員會核能研究所			
	電話	(03)471-1400 轉 6771	電子郵件	rjyeh@iner.gov.tw	

第一部分(系統填寫)

壹、目的、架構與主要內容

一、目的與預期成效

(一) 目的

本所投入環境能源科技研發，致力於高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構之總目標，係在建立固態氧化物燃料電池之關鍵技術；規劃在五年(103~107 年)內分別完成：

1. 建立3~5 kW SOFC發電系統，其電熱效率大於88%，並推展產業平台之建立。
2. 完成3~5 kW SOFC系統(含CHP組合)之製造、生產、實地驗證及技轉合作，以行銷國內外商用市場為主要目標。
3. 開發前瞻性金屬支撐型固態氧化物燃料電池之材料及元件製作技術。最大功率輸出： 250 mW/cm^2 (@600°C, H_2)、 600 mW/cm^2 (@800°C, H_2)，衰減率 $\leq 1\%/1,000 \text{ h}$ 及 $200\sim 300 \text{ mW/cm}^2$ (<600°C, H_2)；並建立無貫穿龜裂之LSM保護膜大氣電漿噴塗技術和1~3 kW級MSC電池堆電池片製作。
4. 開發自製燃料重組觸媒合成、分析及測試，觸媒之燃料轉化率達98%以上；配合SOFC系統溫度及不同進料需求，開發不同溫度區間(450~550°C、550~650°C及650~750°C)等自製重組觸媒，降低自製觸媒成本，以因應產業化平台建構之需求。

以上計畫之推動，將有助於達成國家科學技術發展計畫總目標之第二、三、四項，即創造產業競爭優勢，增進全民生活品質及促進國家永續發展之目標。並可落實溫室氣體減量、節約能源及推動能源新利用技術研發與應用之策略。

103 年度工作重點如下：

1. 固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構
 - (1) 低軟化點、高強度耐壓之玻璃陶瓷或混成密封材料研製；金屬連接板披覆保護膜之低真空製程開發；金屬連接板/電池單元介面層材料研製及高溫穩定性研究。
 - (2) 3~5 kW 電池堆設計及實驗設施建立；平板型重組器開發及相關測試。
 - (3) 1 kW 級無電熱裝置之 SOFC 發電系統之設計及測試，且連續運轉 1,000 h。
2. 廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發
 - (1) INER SOFC-MEA-10 小型量產，其單元電池基本規格如下：a.電池片大小 $10\times 10 \text{ cm}^2$ ；b.操作溫度 600~800°C；c.最大功率 $\geq 600 \text{ W/cm}^2$ (at

- 600~800°C)；d.正常操作功率密度 250~350 mW/cm² (20~28 W/MEA at 600~800°C)；e.耐久度 1,000 h for 電池堆操作；f.劣化率<1.0%/kh；g.電池片厚度 700 μm (10×10 cm²)。
- (2) 先進材料及 SOFC-MEA 之研發與 SOFC-CO₂-ECC 系統發展：INER-SOFC-MEA-15 (15×15 cm²)；b. SOFC-CO₂-ECC 系統研發：系統建立。
3. 金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製
- (1) 關鍵性 SOFC 粉末克級自製及造粒技術建立：完成陰極粉末 SSC 之合成測試及分析及外購電解質粉末 LSGM 之造粒技術建立。
- (2) 研製 10×10~15×15 cm² 電漿噴塗金屬支撐基板，並分析基板及電池特性。
- (3) 建立 1 kW 級 MSC 電池片。
- (4) MSC 電池特性量測、耐久測試及分析，耐久度：2,000 h；劣化率：~1%/1,000 h；最大功率密度(P_{max})：250 mW/cm² (@600°C)、600 mW/cm² (@800°C) (燃料為 H₂)。
4. 固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發
- (1) 開發奈米重組觸媒及載體改質，並藉由觸媒特性鑑定分析技術之建立，分析觸媒反應前後物性、化性及結構之變化，提供作為改善之理論基礎。
- (2) 開發新觸媒製程，合成低貴金屬用量之奈米重組觸媒。
- (3) 配合 1 kW 系統連續 1,000 h 運轉，CHP 效率高於 70%，完成所需之自製重組觸媒。

104 年度之發展重點如下：

1. 固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構
- (1) 低軟化點、高強度耐壓之玻璃陶瓷或混成密封材料研製；金屬連接板披覆保護膜之低真空製程開發；SOFC 電池堆介面層及電極材料研製與高溫穩定性研究。
- (2) 新型之內建歧管電池堆測試及該型式之 3~5 kW 電池堆設計；完成電池單元測試標準實驗室之建立。
- (3) 進行 3~5 kW SOFC 無電熱裝置發電系統之設計。完成 3~5 kW SOFC 熱工元件整合裝置之開發。其 CH₄ 重組效率達 90%以上。
2. 廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發
- (1) INER SOFC-MEA-10 小型量產。
- (2) 先進材料及 SOFC-MEA 之研發、陶瓷管擠出成型製程研發與 SOFC-CO₂-ECC 系統發展。
3. 金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製
- (1) 36 片(~1 kW)MSC 電池片製作。
- (2) 關鍵性 SOFC 粉末克級自製、MSC 電池片及連接板保護膜層研發。

4. 固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發

- (1) 進行低貴金屬用量之奈米重組觸媒天然氣重組測試，耐久性測試後，天然氣觸媒轉化率可維持 98% 以上。
- (2) 開發系統操作溫度為 650~750°C 之自製重組觸媒。
- (3) 開發 3~5 kW 系統所需之自製奈米白金系重組觸媒，甲烷重組效率高於 98%。

(二) 預期成效

1. 固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構

- (1) 完成不同金屬連接板披覆錳鈷氧化物保護膜之高溫(800°C, 3,000 h)面積比電阻量測。
- (2) 完成商業化電池單元之陰、陽極無流道測試座效能測試評估。
- (3) 完成縮小型單片裝電池堆測試，提供 3~5 kW 發電系統電池堆之設計選擇。
- (4) 完成 3~5 kW SOFC 無電熱裝置發電系統之三合一熱工元件測試，在 CH₄ 進料為 12.6 LPM 時其重組效率達 90% 以上，且同時能將陰極空氣在 200 LPM 時預熱至 650°C。

2. 廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件及材料技術研發

- (1) HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs (10×10 cm²) 供 SOFC-Stack 使用。
- (2) HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs (10×10 cm²) 與進行 BSCF 陶瓷基板開發研製。

3. 金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製

- (1) LSGMC 粉末造粒成果實品。
- (2) 10×10~15×15 cm² 高透氣鎳基多孔基板實品。
- (3) 電漿噴塗 LSM 或 CMC 保護膜性能及 single cell MSC 電池堆測試結果。
- (4) 完成 36 片 10×10 cm² MSC 電池片製備。

4. 固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發

- (1) 完成奈米重組觸媒及載體改質。
- (2) 完成自製重組觸媒合成 500 g。
- (3) 完成自製重組觸媒合成 1,000 g。
- (4) 完成自製重組觸媒合成 1,500 g。

(三) 實際達成與原預期差異說明

預期成果(查核點)	實際執行情形	差異分析
(一)固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構		
1. 完成不同金屬連接板披覆錳鈷氧化物保護膜之高溫(800°C, 3,000 h)面積比電阻量測。	進行 Crofer22H、Crofer22APU、ss441 披覆 $Mn_{1.5}Co_{1.5}O_4$ 保護膜，於 800°C 之面積比電阻(ASR)電性量測 9,735 h，其中 ss441/MCO 鍍膜試樣之 ASR 值介於 9.56~18.42 $m\Omega cm^2$ 。	符合目標
2. 完成商業化電池單元之陰、陽極無流道測試座效能測試評估。	完成商業化 Elcogen 電池片於無流道測試座高、低流量測試，其效能皆優於有流道的環境，主要是陰、陽極流場空間壓縮，分壓增加使得 OCV 上升，同時幫助空氣與燃料更容易進入電池單元陰、陽極，提升電池效能。	符合目標
3. 完成縮小型單片裝電池堆測試，提供 3~5 kW 發電系統電池堆之設計選擇。	在單片電池堆實際組裝測試，於 700°C 及電流 60 A 條件下，功率輸出可達 47 W ($580 mW/cm^2$)。體積約減少 34%，1 kW 電池堆則約減少 50%，有利於達成 3~5 kW 系統之體積目標。	符合目標
4. 完成 3~5 kW SOFC 無電熱裝置發電系統之三合一熱工元件測試，在 CH_4 進料為 12.6 LPM 時其重組效率達 90%以上，且同時能將陰極空氣在 200 LPM 時預熱至 650°C。	完成 3~5 kW SOFC 熱工元件整合裝置之測試，在重組器之進料為 $N_2=16.8 LPM$ 、 $Air=14.4 LPM$ 及 $Water=24.4 cc/min$ 時(燃料額定值之 80%)，陰極空氣為 260 LPM，燃燒器需添加額外之冷卻空氣 270 LPM，控制燃燒器內最高溫度約為 870°C，此時陰陽極出口溫度分別達 714.5°C 及 773°C，且重組後之氣體成份為 $H_2=59\%$ 、 $CO=20.5\%$ 、 $CO_2=1.68\%$ 及 $CH_4=0\%$ ，天然氣重組率達 100%。	符合目標
(二)廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件及材料技術研發		
1. HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs ($10\times 10 cm^2$)供 SOFC-Stack 使用。	進行電池單元小型量產並完成 10 片電池單元產品；協助技轉廠家試製電池產品($10\times 10 cm^2$) 15 片以上，並進行電池單元/電池堆測試。	符合目標
2. HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs ($10\times 10 cm^2$)供 SOFC-Stack 使用。	專利技術輔導協助技轉廠家，研製電池產品($10\times 10 cm^2$) 25 片以上，單片電池 Power density P_{max} 接近於 $400 mW/cm^2$ (800°C)，並進行電池單元/電池堆測試。	符合目標
3. HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs ($10\times 10 cm^2$) 與進行 BSCF 陶瓷基板開發	進行電池單元小型量產並完成 15 片電池單元產品；專利技術輔導協助技轉廠家，研製電池產品($10\times 10 cm^2$) 25 片以上，單片電池 Power density P_{max} 接近於 $400 mW/cm^2$	符合目標

研製。	(800°C)，並進行電池單元/電池堆測試。完成 BSCF 陶瓷粉體研製並進行基板開發研製。	
4. HT-SOFC-MEA 單元電池生產 25 pcs (10×10 cm ²) 與進行 BSCF 陶瓷基板開發研製。	本年度至目前累計已生產陶瓷基板電池片超過 20 片並進行電池製作技術改良，YSZ 系列電池產品發電效能精進成果可達 Power density $P_{\max}=450 \text{ mW/cm}^2$ (800°C)；協助技轉廠家製作電池產品 100 片以上 (10×10 cm ²)，單片電池 Power density $P_{\max}=400 \text{ mW/cm}^2$ (800°C)，並進行電池單元/電池堆測試；完成新穎電解質與陰極材料之合成與特性分析(LSGM/ESB/BSCF)。	符合目標
(三)金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製		
1. LSGMC 粉末造粒成果實品。	每批次可造粒之粉末重量為 200 公克，粉末主要落在 20~60 μm 之間。	符合目標
2. 10×10~15×15 cm ² 高透氣鎳基多孔基板實品。	完成 10×10 cm ² 之背面具有預留孔道之多孔金屬基板製備技術開發，已利用該技術完成 9 片電池基板製作，且已安排進行電池片製作。	符合目標
3. 電漿噴塗 LSM 或 CMC 保護膜性能及 single cell MSC 電池堆測試結果。	電漿噴塗 LSM 保護膜於 Crofer22H、Crofer22APU 以及 SS441 金屬連接板之高溫 ASR 量測結果歷經 9,668 小時，在超過 1 年的總測試時間下(包含 5 次熱循環)，具 LSM 保護膜之三種金屬連接板其高溫 ASR 值皆遠低於國際標準值 100 mΩcm ² ，分別為 13.39、8.67 與 13.69 mΩcm ² ，而且平均 ASR 上升率也都低於本計畫之門檻值 2.5 μΩcm ² /h，分別為 1.24、0.75 與 1.23 μΩcm ² /h，顯示電漿噴塗技術能達到金屬連接板保護膜之電性品質要求。 以 MSC 電池片搭配具電漿噴塗 LSM 保護膜之金屬連接板組成之單電池堆，經過發電與高溫長時穩定性測試後，結果顯示在 750 與 700°C 測試溫度下，發電功率可達 48 W(電壓為 0.72 V)與 41.3 W(電壓為 0.68 V)，在 700°C、400 mA/cm ² 定電流密度下測試 1,767 小時後，衰退率約 0.77%/1,000 h，確認 APS LSM 保護膜層和 MSC 均具備良好的電性穩定性表現。	符合目標
4. 完成 36 片 10×10 cm ² MSC 電池片製備。	已於 11 月底完成 36 片 10×10 cm ² 之 MS-SOFC 電池片製備，待後續電池框架披覆保護膜與焊接作業完成後，即可交由電池堆組裝小組進行封裝堆疊程序。	符合目標

(四)固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發		
1. 完成奈米重組觸媒及載體改質。	完成一批多孔性氧化鋁載體和含奈米碳管改質之觸媒載體。完成 SOFC 用奈米重組觸媒合成，正進行 SEM、EDS、TEM 及 XRD 分析與性能測試，持續進行合成 OO 公司研究案所需之自製奈米天然氣重組觸媒。	符合目標
2. 完成自製重組觸媒合成 500 g。	完成自製 3~5 kW 系統連續運轉所需之重組觸媒重量 500 g。	符合目標
3. 完成自製重組觸媒合成 1,000 g。	完成自製重組觸媒 1,000 g；完成自製重組觸媒 2,000 小時之耐久性測試，其活性尚未減少，後續將持續進行。	符合目標
4. 完成自製重組觸媒合成 1,500 g。	完成自製重組觸媒 1,500 g；完成自製重組觸媒 3,000 小時之耐久性測試，其活性尚未減少，後續將持續進行。	符合目標

二、架構

單位：千元

細部計畫		分項計畫		主持人	共同主持人	執行機關	說明
名稱	預算數/ (初編決算數)	名稱	預算數/ (初編決算數)				
高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構	51,406 (51,066)	1.固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構	27,639 (27,356)	李瑞益	程永能	核研所	
		2.廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發	12,281 (12,267)		林泰男	核研所	
		3.金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製	8,043 (8,021)		黃振興	核研所	
		4.固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發	3,443 (3,422)		許寧逸	核研所	

三、 主要內容

(一) 內容

本計畫配合政府潔淨能源技術發展與應用，促進節能減碳之政策，延續本所對新能源技術之投入，將工作重點聚焦在高溫燃料電池相關之系統與材料，致力於本所獨特之 SOFC 技術的研發。本年度規劃完成項目包括：建立 3~5 kW SOFC 發電系統並推展產業平台之建立，完成 3~5 kW SOFC 系統(含 CHP 組合)之製造、生產、實地驗證及技轉合作，以行銷國內外商用市場為主要目標；發展金屬支撐型固態氧化物燃料電池之材料及元件製作技術；開發自製燃料重組觸媒合成、分析及測試技術，降低自製觸媒成本，以因應產業化平台建構之需求。計畫之推動將有助於創造產業競爭優勢，並可落實溫室氣體減量、節約能源及推動能源新利用之目標。

(二) 實際執行與原規劃差異說明

無差異

貳、經費與人力執行情形

一、經費執行情形

(一) 經資門經費表 (E005)

單位：千元；%

	104 年度					105 年度 預算數	106 年度 申請數	備註
	預算數 (a)	初編決算數			執行率 (d/a)			
		實支數 (b)	保留數 (c)	合計 (d=b+c)				
總計	51,406	51,066		51,066	99.34%	51,997	65,000	
一、經常門小計	36,437	36,097		36,097	99.07%	34,345	40,949	
(1)人事費								
(2)材料費								
(3)其他經常支出								
二、資本門小計	14,969	14,969		14,969	100%	17,652	24,506	
(1)土地建築								
(2)儀器設備								
(3)其他資本支出								

(二) 經費支用說明

1. 本年度編列經常門 36,437 千元，佔 70.88%。主要用途為支應水電費、權利使用費、資訊服務費、臨時人員酬金、委辦費、物品、一般事務費、房屋建築養護費、設施及機儀設備養護費等。
2. 本年度編列資本門 14,969 千元，佔 29.12%。主要用途為支應桌上型拉曼光譜儀、資料擷取控制系統、熱工元件整合模組、水質淨化系統、氣源環路與控制系統、天然氣脫硫器、電力調控系統、奈米研磨分散機、旋轉鍍膜機、高溫燒結爐、電漿噴塗中控及氣體分配系統、雜項設備等。

(三) 經費實際支用與原規劃差異說明

1. 本年度經常門編列 36,437 千元，實支數 36,097 千元，執行率達 99.07%，符合原規劃。
2. 本年度編列資本門 14,969 千元，實支數 14,969 千元，執行率達 100%，符合原規劃。

二、計畫人力運用情形

(一) 計畫人力結構 (E004)

計畫名稱	執行情形	104 年度							105 年度 總人力 (預算數)	106 年度 總人力 (申請數)
		研究員級	副研究員級	助理研究員級	助理級	技術人員	其他	總人力(人年)		
1.固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構	原訂	0.8	6.5	13.8	0	9.2		30.3	26.9	20.7
	實際	0.8	7.1	11	1	7.9		27.8	—	—
	差異	0	0.6	-2.8	1	-1.3		-2.5	—	—
2.廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發	原訂	0	3	4.5	1	1.4		9.9	6.9	6.4
	實際	0	1.1	2.4	0	0.4		3.9	—	—
	差異	0	-1.9	-2.1	-1	-1		-6	—	—
3.金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製	原訂	1	3	2.7	0.2	0		6.9	6.9	7.1
	實際	1	4	1.4	0.6	0		7	—	—
	差異	0	1	-1.3	0.4	0		0.1	—	—
4.固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發	原訂	0	0.5	0.8	0	0.6		1.9	4.1	3.7
	實際	0	0.8	1.5	0	0.6		2.9	—	—
	差異	0	0.3	0.7	0	0		1	—	—
高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構	原訂	1.8	13	21.8	1.2	11.2		49	44.8	37.9
	實際	1.8	13	16.3	1.6	8.9		41.6	—	—
	差異	0	0	-5.5	0.4	-2.3		-7.4	—	—

(二) 人力實際進用與原規劃差異說明

本計畫全年人力，原訂參與為 49 人年，實際參與為 41.6 人年，相差-7.4 人年。原因為人員退休、替代役役期屆滿，及工作異動所致，雖有新進 4 員，人力尚不足，將繼續徵聘人員。

參、已獲得之主要成果與重大突破(含量化 output)(E003) (系統填寫)

屬性	績效指標類別	績效指標項目		104 年度		105 年度目標值	106 年度目標值	效益說明 (每項以 500 字為限)	重大突破
				原訂目標值	實際達成值				
學術成就 (科技基礎研究)	A.論文	期刊論文	國內(篇)					國外重要期刊論文數 SCI 8 篇、EI、8 篇，合計 16 篇。刊登於 Journal of Colloid And Interface Science、International Journal of Hydrogen Energy、Advances in Solid Oxide Fuel Cells、IEEE Transactions on Plasma Science、ECS transactions 等國際知名期刊，提高國際能見度。	在國際知名期刊刊登研究報告，除展示研發成果外，並可與該領域之專家做交流，促進學術及技術水平之提昇。
			國外(篇)	6	16	5	5		
		研討會論文	國內(篇)	8	19	8	8		
			國外(篇)		6				
		專書論文	國內(篇)						
			國外(篇)						
	B.合作團隊(計畫)養成	機構內跨領域合作團隊(計畫)數						各分項計畫均將建置專業實驗室，包括：(1)SOFC 電池堆設計及組裝技術開發實驗室、(2)SOFC 發電系統設計及驗證實驗室；(3) SOFC 材料與元件研製實驗室、(4)SOFC-MEA 測試團隊實驗室；(5)電漿噴塗鍍膜專業實驗室；(6)建置重組觸媒合成、分析與測試專業實驗室等。	建立專業開發及標準驗證平台。
		跨機構合作團隊(計畫)數							
		跨國合作團隊(計畫)數							
		簽訂合作協議數							
		形成研究中心數							
		形成實驗室數		6	6	5	5		
學術成就 ()	C.培育及延攬人才	博士培育/訓人數		3		2		藉由與國內學界之合作計畫，有效整合國內的研發能量；從基礎研究突破研發瓶頸，並培育人才，做為研發後盾。	
		碩士培育/訓人數			3		2		

科技基礎研究	D1.研究報告	研究報告篇數			14	20	14	13	呈現研發之成果及後續研發的重點及方向，使研發成果可交流、傳承。		
	E.辦理學術活動	學術會議、研討會、論壇次數					1	1	推廣計畫研究成果。		
	F.形成課程/教材/手冊/軟體	形成課程件數							撰寫 GCTool 解析 SOFC BOP，提供相關領域學習及從業人員技術指引。		
		製作教材件數			1	1		1			
		製作手冊件數									
自由軟體授權釋出教材件數											
技術創新（科技技術創新）	G.智慧財產	申請中	國內	發明專利(件)	5	6	4	8	相關研究於國外投入的時間遠早於國內，並多以專利權保護、壟斷。國內欲在該等領域有所突破，需充分掌握專利佈局，以突破國外專利權之壟斷，使計畫之研發成果可推展至產業界。	建立自主的專利技術，後續可供國內業界參考、擴充，促進國內產業升級。	
				新型/新式樣(件)							
				商標(件)							
				品種(件)							
			國外	發明專利(件)	5	10	4				
				新型/新式樣(件)							
				商標(件)							
				品種(件)							
		已獲准	國內	發明專利(件)		10					
				新型/新式樣(件)							
				商標(件)							
				品種(件)							
			國外	發明專利(件)		14					
				新型/新式樣(件)							
				商標(件)							
				品種(件)							

技術創新 (科技技術創新)	H.技術報告及檢驗方法	新技術開發或技術升級開發之技術報告篇數		2	4	2	2	記載研發的歷程及標準作業程序，以利技術傳承；後續的研發可在既有的基礎上，繼續發揚光大。	
		新檢驗方法數							
	I2.參與技術活動	發表於國內外技術活動(包含技術研討會、技術說明會、競賽活動等)場次		1	14	1	1	國際技術研討會 7 場次、國內技術活動 7 場次，發表於國際研討會，技術交流，增加能見度。	
	J1.技轉與智財授權	技轉(含先期技術) <u>國內</u> 廠商或機構	件數					103.09.12 完成與 OOO 公司簽訂「kW 級 SOFC 發電系統技術」先期技術移轉。總金額為 3,000 千元。 103.01.16 完成與 OO 公司之「固態氧化物燃料電池陶瓷基板支撐型單元電池製作技術」技術授權案。總金額 13,000 千元。 103.11.24 完成與 OO 公司簽訂第一期技術授權案 4,630 千元及 104.11.02 簽訂第二期技術授權案 4,810 千元。 (103~104 年合計技術授權金 25,440 千元)	
			金額(千元)						
		技轉(含先期技術) <u>國外</u> 廠商或機構	件數						
			金額(千元)						
		專利授權 <u>國內</u> 廠商或機構	件數	2	1	2	2		
			金額(千元)		4,810		9,000		
		專利授權 <u>國外</u> 廠商或機構	件數						
			金額(千元)						
		自由軟體授權件數							
		其他(不含專利)授權	件數						
			金額(千元)						
	S1.技術服務(含委託案及工業服務)	技術服務件數			1			與 OO 公司簽訂「生質物氣化結合 SOFC 發電試驗」委託研究案。總金額為 800 千元。	
		技術服務家數			1				
		技術服務金額(千元)			800				

經濟效益 (經濟產業促進)	L.促成投資		促成廠商投資件數		2	2	1	OO 公司生產投資 10,000 千元；OO 公司研發投資 5,000 千元。	
			促成生產投資金額(千元)		10,000				
			促成研發投資金額(千元)		5,000	15,000	10,000		
			促成新創事業投資金額(千元)						
			促成產值提升或新創事業所推出新產品產值(千元)						
	M.創新產業或模式建立		參與產業發展環境、體系或營模式件數			1	1		
	T.促成與學界或產業團體合作研究		媒合與推廣活動辦理次數					與中央大學、清華大學、元智大學分別進行：「環境氣氛對 SOFC 接合件高溫耐久機械性質之影響」、「先進金屬連接板材的材料組織工程及成形性研究」、「應用於中溫固態氧化物燃料電池之新穎陰極材料開發」學術合作。從理論面/基本面進行技術開發，以達技術產業化的目標。	
			促成合作研究件數	3	3	2	2		
			廠商研究配合款金額(千元)		1,695				
			合作研究產品上市項數						
社會影響	社會福祉提升	R.增加就業	廠商增聘人數		10			成功輔導廠商建立基礎電池商品生產線，因計畫的執行，聘用計畫相關研發人力，以創造就業機會。	

104 年度計畫績效指標實際達成與原訂目標差異說明：

項目	年度目標	年度衡量指標	實際達成度
高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構	學術成就、技術創新、經濟效益	• 國外期刊申請 6 篇。 • 會議論文發表 8 篇。 • 研究報告 14 篇。 • 形成教材 1 件。 • 國外專利獲得及申請 5 件、國內專利獲得及申請 5 件。 • 技術報告 2 篇。 • 技術活動 1 場次。 • 促成與學界團體合作研究 3 件。 • 研究團隊養成 6 隊。 • 博碩士培育 3 人。 • 技術移轉 2 件。	• 國外期刊獲得 16 篇。 • 會議論文獲得 25 篇。 • 研究報告 20 篇。 • 形成教材 1 件。 • 國外專利已獲證 14 件及申請中 10 件、國內專利已獲證 10 件及申請中 6 件。 • 技術報告 4 篇。 • 國際研討會 7 場次、國內研討會 7 場次。 • 促成與學界團體合作研究 3 件。 • 研究團隊養成 6 隊。 • 培育碩士 3 人。 • 技術移轉 1 件。
(一)固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構	學術成就、技術創新、經濟效益	• 國外期刊申請 2 篇。 • 會議論文發表 4 篇。 • 研究報告 6 篇。 • 形成教材 1 件。 • 國外專利獲得及申請 2 件、國內專利獲得及申請 2 件。 • 技術報告 2 篇。 • 技術活動 1 場次。 • 促成與學界團體合作研究 2 件。 • 研究團隊養成 2 隊。 • 技術移轉 1 件。	• 國外期刊獲得 7 篇。 • 會議論文獲得 11 篇。 • 研究報告 12 篇。 • 形成教材 1 件。 • 國外專利已獲證 8 件及申請中 2 件、國內專利已獲證 3 件及申請中 3 件。 • 技術報告 3 篇。 • 國際研討會 3 場次、國內研討會 2 場次。 • 促成與學界團體合作研究 2 件。 • 研究團隊養成 2 隊。 • 技術移轉 1 件。
(二)廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件	學術成就、技術創新、經濟效益	• 國外期刊申請 2 篇。 • 會議論文發表 2 篇。	• 國外期刊獲得 3 篇。 • 會議論文獲得 6 篇。

及材料技術研發		• 研究報告 5 篇。 • 國外專利獲得及申請 1 件、國內專利獲得及申請 1 件。 • 技術報告 0 篇。 • 促成與學界團體合作研究 1 件。 • 研究團隊養成 2 隊。 • 技術移轉 1 件。	• 研究報告 5 篇。 • 國外專利已獲證 2 件及申請中 2 件、國內專利已獲證 1 件。 • 技術報告 1 篇。 • 國際研討會 3 場次、國內研討會 3 場次。 • 促成與學界團體合作研究 1 件。 • 研究團隊養成 2 隊。 • 技術移轉 0 件。
(三)金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製	學術成就、技術創新、經濟效益	• 國外期刊申請 1 篇。 • 會議論文發表 2 篇。 • 研究報告 1 篇。 • 國外專利獲得及申請 1 件、國內專利獲得及申請 1 件。 • 研究團隊養成 1 隊。	• 國外期刊獲得 6 篇。 • 會議論文獲得 7 篇。 • 研究報告 1 篇。 • 國外專利已獲證 4 件及申請中 5 件、國內專利已獲證 3 件及申請中 1 件。 • 國際研討會 1 場次、國內研討會 2 場次。 • 研究團隊養成 1 隊。
(四)固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發	學術成就、技術創新、經濟效益	• 國外期刊申請 1 篇。 • 會議論文發表 0 篇。 • 研究報告 2 篇。 • 國外專利獲得及申請 1 件、國內專利獲得及申請 1 件。 • 研究團隊養成 1 隊。	• 國外期刊獲得 0 篇。 • 會議論文發表 1 篇。 • 研究報告 2 篇。 • 國外專利申請中 1 件、國內專利已獲證 3 件及申請中 2 件。 • 研究團隊養成 1 隊。

第二部分(自行上傳)

壹、主要成就及成果之價值與貢獻度(outcome)

一、學術成就(科技基礎研究)

本計畫 103 年度共發表 52 篇論文，包含國外期刊發表 10 篇 (7 篇屬 SCI 論文、3 篇 EI 論文)；國內期刊 1 篇；國內外會議論文 28 篇；研究報告 13 篇；培育 2 位碩士。

本計畫 104 年度共發表 61 篇論文，包含國外期刊論文共 16 篇 (8 篇屬 SCI 論文、8 篇 EI 論文)，國內外會議論文 25 篇；研究報告 20 篇；培育 3 位碩士。

- 主要論文發表(103~104 年)：連接板材料、MSC、ASC 電池單元、重組觸媒等於「J. of Colloid And Interface Science」、「I. J. of Hydrogen Energy」、「IEEE Transactions on Plasma Science」、「J. of The Ceramic Society of Japan」、「J. of Power Sources」、「J. of Alloys and Compounds」，合計發表 SCI 論文 15 篇。於「Key Engineering Materials」、「Advances in Solid Oxide Fuel Cells X: Ceramic Engineering and Science Proceedings」、「ECS transactions」，合計發表 EI 論文 11 篇。

本年度學術成就說明如下：

1. 「Effects of oxygen functional groups on the enhancement of the hydrogen spillover of Pd-doped activated carbon」，作者：鍾翠芸、陳建宏、曾惠萍、曹正熙、余明昇，已刊登於 0021-9797, J. of Colloid And Interface Science, 441, 98~105 (SCI)，2015，Impact Factor=3.583。價值與貢獻：目前的研究指出含氧官能基會有氫溢出效應有助提升碳材室溫儲氫量，然而大多數團隊都無法有再現此結果。本篇證實含氧官能基有氫溢出的效應有助提升碳材室溫儲氫量，並定量含氧官能基的種類，探討何種氧官能可大幅提升碳材室溫儲氫量。
2. 「Effects of reduction process on the electrochemical and microstructural properties for electrolyte-supported SOFC」，作者：程世偉、蔡俊煌、吳思翰、劉建國、程永能、李瑞益，已刊登於 0360-3199, I. J. of Hydrogen Energy, 40, 1534~1540 (SCI)，2015，Impact Factor=3.448。價值與貢獻：還原程序於固態氧化物燃料電池開始操作前扮演著重要一環節，還原後的陽極必須有足夠的孔隙率用於傳遞燃料氣體和良好的導電性減少比電阻。於本研究中探討不同還原程序如何影響電解質支撐型固體氧化物燃料電池電化學和微結構性質。研究中採取三種不同還原程序還原相同結構的電池，於程序 1 利用 20% 氫氣進行程溫還原(室溫至 800°C)；程序 2 和 3 則是溫度升至 800 和 700°C 再通 20% 氫氣進行還原。電性測試結果顯示，以程溫還原的電池性能表現具有較低的功率輸出和較高的歐姆和極化阻抗，反之以高溫還原程序還原的電池具備高功率輸出和較低的歐姆和極化阻抗。微結構分析也證實電池經高溫還原後，其陽極具有較佳的鍍金屬結合度和高孔隙率的微結構。本研究結果可為固態氧化物燃料電池和電池堆操作程序標準化依據，提升電池和電池堆性能。
3. 「Fine Al₂O₃ Powder Produced by Radio-Frequency Plasma from Aluminum Dross」，作者：楊昇府、王多美、莊謝宗揚、蔣世傑、黃振興、曾錦清，已刊登

- 於 0093-3813, IEEE Transactions on Plasma Science, 42, 12, 3751~3755 (SCI), 2015。價值與貢獻：發展建置感應耦合電漿純化系統，提取高純度和細粒徑氧化鋁，作為燃料電池金屬合金基板物料來源，符合原始材料特殊需求，減少購置成本。
4. 「Fabrication and characterization of the anode-supported solid oxide fuel cell with Ni current collector layer」，作者：高維欣、林泰男、李茂傳，已刊登於 1882-0743, J. of The Ceramic Society of Japan, 123, 217~221 (SCI), 2015, Impact Factor=0.846。價值與貢獻：陽極支撐型單元電池以網版印刷製備雙層陰極，披覆一薄鎳層在多孔 Ni-YSZ 陽極上當電流收集層，有效改善電性效能。有塗佈鎳電流收集層之電池在 800°C 時，其最大功率密度為 366 mW cm⁻²，效能提升可達 1.3 倍。鎳電流收集層與單元電池之間的接觸壓力在高電流密度區間對電池電性有很大影響。
 5. 「Performance and Long term Durability of Metal-Supported Solid Oxide Fuel Cells」，作者：蔡俊煌、黃振興、張鈞量、楊昇府、程世偉、莊謝宗揚、黃德榮、李瑞益，已刊登於 1882-0743, J. of The Ceramic Society of Japan, 123, 1436, 205~212 (SCI), 2015。價值與貢獻：本研究進行大氣電漿噴塗製備的金屬支撐型固態氧化物燃料電池的長時間操作穩定性測試，電性測試結果顯示，MSC 電池在 750、700 和 650 度功率分別為 40.4、31.2 和 22.7 瓦特具高功率輸出性能。MSC 電池在 700°C 定電流 400 mA cm⁻² 的測試條件下，進行 3,000 小時耐久性測試，測試期間利用電流-電壓曲線和交流阻抗的量測來追蹤電池的歐姆阻抗和極化阻抗隨時間的變化，結果顯示電池衰退主要因為濃度極化、活性極化和歐姆阻抗增加造成電池性能的衰退。衰退後的電池在 OCV 狀態下經過 820°C 熱處理 4 小時，電池性能經此熱處理程序能有效回復。由測試後電池微結構分析結果顯示，電池性能衰退的原因為陽極微結構改變和電池電極層熱膨脹係數差異造成介面的剝離，進而增加活性極化和歐姆阻抗。本研究有利於清楚掌握造成 MSC 電池性能衰退的反應機制，可為提升 MSC 電池長時間穩定性的改善依據。
 6. 「Interfacial characterization of nickel-yttria-stabilized zirconia cermet anode/interconnect joints with Ag-Pd-Ga active filler for use in solid-oxide fuel cells」，作者：趙芝龍、朱俊麟、傅尹坤、徐瑞坤、李雄、程永能，已刊登於 0360-3199, I. J. of Hydrogen Energy, 40, 1523~1533 (SCI), 2015。價值與貢獻：本文利用活性填料 Ag-Pd-Ga 於真空中將連接板與 Ni-YSZ 以硬焊之方法使其接合，探討其於室溫及 800°C 時之張力及剪力強度。結果顯示金屬與陶瓷之接合良好且界面平滑，並比 GC9 接合方式有較佳之接合強度。本文主要是尋求電池堆組件接合之新可能替代方案，以利大量生產及品保作業，對本所 SOFC 電池堆組裝及商業化之推展有所助益。
 7. 「Development of an advanced bond coat for solid oxide fuel cell interconnector applications」，作者：葉安洲、陳佑明、劉建國、熊惟甲，已刊登於 0378-7753, J. of Power Sources, 296, 426~432 (SCI), 2015, Impact Factor=6.127。價值與貢獻：本研究選用鎳鐵基超合金 HRA929 做為固態氧化物燃料電池堆之金屬連接板，

並以熱力學平衡分析軟體計算並設計與 HRA929 成分組成相近之合金。研製得熱膨脹系數與 HRA929 相匹配及熱力學穩定之合金組成，組成包括 Ni, Fe, Co, Ti, Al, Nb, Cr，將此合金利用直流磁控濺鍍法於 HRA929 表面鍍覆一層約 1 μm 厚做為抗氧化保護層，並分析此合金保護層之特性。研究結果顯示合金保護層之熱膨脹係數與 HRA929 相匹配，且具低的高溫面積比電阻值($<10 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$)，以及優異的抗氧化能力(速率常數 $2.92\times 10^{-13} \text{ g}^2 \text{ cm}^{-4} \text{ s}^{-1}$)。此外，此一合金保護層與 HRA929 基板及摻鋁錳酸釷氧化物(LSM)膜層之接著界面於 800°C 能夠保持穩定，無擴散情形發生，具有高溫應用潛力。

8. 「Preparation and characterization of SOFC cathodes made of SSC nanofibers」，作者：張鈞量、許慶雄、黃晉邦、許品豪、黃炳淮，已刊登於 0925-8388, J. of Alloys and Compounds, 620, 233~239 (SCI)，2015。價值與貢獻：利用靜電紡絲技術進行奈米纖維氧化物粉末之製備，所製備得到之 SSC 奈米纖維應用於 SOFC 電池的陰極，結果顯示具有奈米纖維結構之 SSC 陰極具有優異的電化學性質，其 ASR 值於 500、550 與 600°C 條件下，分別僅達 0.533、0.187 與 0.061 Ωcm^2 ，全電池量測結果顯示，其發電功率在 700°C 量測溫度時可達 1.09 W/cm²。
9. 「Synthesis of $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ powder and its application as composite cathode for intermediate temperature solid oxide fuel cell」，作者：林泰男、李茂傳、李瑞益，已刊登於 Advances in Solid Oxide Fuel Cells X: Ceramic Engineering and Science Proceedings, 35, 3, 55~64 (EI)。價值與貢獻：利用本所開發之奈米粉體合成技術 GNC method 所開發之高效能鈣鋁鋁鈷氧化物材料，搭配鈣摻雜之二氧化鈾成為複合陰極，應用於中溫 SOFC 電池單元 800°C 操作可得發電功率達 600 mWcm⁻² 以上，電性效能劣化率每千小時小於 1%，具商業可行性。
10. 「The Preparation of Pervoskite Oxide Powders Adopted in ITSOFC via Inductively Coupled Plasma Technique」，作者：張鈞量、黃振興、蔡俊煌、莊謝宗揚、莊誌銘、楊昇府，已刊登於 ECS transactions, 1, 51, 269~276 (EI)。價值與貢獻：利用感應偶和電漿技術，成功地將含有金屬離子的反應前驅物溶液輸送至熱電漿火炬中，透過熱電漿的高溫將先驅物溶液氣化後再急速淬冷之，金屬元素經此過程產生成核反應，並且透過自行設計之奈微米粉末收集系統取得氧化物粉末，目前已可成功製備 SSC、LSCM、BPCF 等多元氧化物粉末，粉末不純相之 S/P 值小於 6%，而且化學成分差異比小於 10%。
11. 「Oscillation phenomenon of the cell performance for an anode-supported solid oxide fuel cell with a low-porosity / high-thickness anode structure」，作者：高維欣、林泰男、張揚狀、李茂傳，已刊登於 Key Engineering Materials, 656-657, 124~128 (EI)。價值與貢獻：製備具低孔隙度陽極之陽極支撐型固態氧化物燃料電池並探討其電化學特性，其電化學特性顯示其在定電流密度操作下電池電位會產生震盪現象，低孔隙度陽極會降低擴散係數及導致水蒸氣累積。電池電位之震盪現象主要是由反應區介面傳導的濃度極化產生，濃度極化對電池造成的嚴重影響會在電池於高電流密度、陽極側的低氫氣濃度及進料流速操作時發生；成果有助於陽極基板研製參數參考。

12. 「Characterization and Performance of a High-temperature Glass Sealant for Solid Oxide Fuel Cell」，作者：劉建國、李瑞益、蔡坤釗、吳思翰、林金福，已刊登於 *Advances in Solid Oxide Fuel Cells X*, 35, 3, 65~75 (EI)。價值與貢獻：本研究探討本所研發之高溫玻璃封裝劑(GC9)特性，以及應用於金屬連接板與陶瓷電池片之封接效能。內容包括 GC9 玻璃之等溫與非等溫結晶行為及動力學參數、熱性特徵溫度、熱膨脹曲線、微結構、高溫洩漏率等。結果顯示於 800°C, 1,000 小時測試，GC9 應用於與連接板及電池片接著緊密，界面穩定無反應，洩漏率(2.25×10^{-5} mbar·l/s/cm)低，熱性參數等亦均符合應用要求。應用此一封裝材料於 SOFC 電池堆組裝，高溫實證操作時間已超過 6,000 小時，封裝效能亦符合要求。
 13. 「Application of Taguchi method to optimize the operating parameters for a Solid Oxide Fuel Cell」，作者：林靖凱、程世偉、盧昶瑋、程永能、李瑞益、郭弘毅、林泰男，已刊登於 *Key Engineering Materials*, 656-657, 544~548 (EI)。價值與貢獻：本文應用田口實驗分析方法進行 SOFC 操作參數設計與分析，該分析方法將可提供相關 SOFC 測試工作者之一參數選擇參考與測試方法之依據。
 14. 「Optimization of operating conditions for an SOFC stack」，作者：盧昶瑋、吳思翰、林弘翔、鍾汶修、林靖凱、程永能、李瑞益，已刊登於 *Key Engineering Materials*, 656-657, 119~123 (EI)。價值與貢獻：建立氫氣流量與電流、電壓、燃料使用率之電池堆性能曲線圖，提供系統操作之依據。
 15. 「Recoverable Performance of Plasma-Sprayed Metal-Supported Solid Oxide Fuel Cell」，作者：黃振興、蔡俊煌、張鈞量、莊誌銘、楊昇府、程世偉、莊謝宗揚、李瑞益，已刊登於 *Advances in Solid Oxide Fuel Cells X: Ceramic Engineering and Science Proceedings*, 35, 3, 23~31 (EI)。價值與貢獻：提供一種方法可將長期工作導致電性衰減的電池做大幅度或完全恢復電性的方法，可降低電池片長時工作的衰減率，達到延長電池使用壽命。
 16. 「Preparation and characterization of protective LSM coatings produced by atmospheric plasma spraying」，作者：張鈞量、黃振興、蔡俊煌、楊昇府、熊惟甲、黃德榮、莊謝宗揚，已刊登於 *Key Engineering Materials*, 656-657, 68~73 (EI)。價值與貢獻：利用核研所自行開發的高品質大氣電漿噴塗技術，進行金屬連接板 LSM 保護膜的製備，得到的 LSM 膜層具有高緻密性與附著性，經過 600 小時的高溫長時電性量測後，其 ASR 值與平均 ASR 上升率皆符合商業化門檻，最低分別可達到 $1.69 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ 與 $0.573 \text{ }\mu\Omega\text{cm}^2/\text{h}$ 。
- 會議論文
1. 「固態氧化物燃料電池系統熱電比與性能分析」，作者：羅世坤、程世偉、黃正男、譚學怡、林京翰、洪文堂、李瑞益、陳俊達、王俊修、鄒穎、林勳佑，已發表於第九屆氫能與燃料電池研討會，台南大學，2014-10-03~04。價值與貢獻：分析燃料電池系統電熱效率，並探討系統操作條件，且與產業界進行合作研究，以利系統技術推廣。
 2. 「千瓦級固態氧化物電池系統驗證與分析」，作者：羅世坤、黃正男、譚學怡、林京翰、洪文堂、李瑞益、陳俊達、王俊修、鄒穎、林勳佑，已發表於第三十

一屆中國機械工程協會，台中逢甲大學，2014-12-06~07。價值與貢獻：使用 ASC 電池片進行系統測試，並運轉時間約 500 小時，建立系統長時間運轉資料，以利後續系統驗證分析。

3. 「陽極回收噴嘴幾何參數分析」，作者：鍾汶修、林弘翔、程永能、李瑞益，已發表於第三十一屆中國機械工程協會，台中逢甲大學，2014-12-06~07。價值與貢獻：探討 SOFC 陽極回收噴嘴之不同噴嘴直徑比及混合腔室長度，對於不同入口壓力下之 3 維模擬計算結果進行分析與討論，進而達到陽極回收噴嘴幾何設計最佳化。
4. 「燃料使用率對 SOFC 效能之影響」，作者：程世偉、林靖凱、程永能、李瑞益，已發表於第九屆氫能與燃料電池研討會，台南大學，2014-10-03~04。價值與貢獻：本文探討於不同燃料使用率條件下其 SOFC 效能之變化情形，此可幫助 SOFC 電池單元測試者了解燃料使用率於 SOFC 之兩者關係，並提供日後測試之方法參考。
5. 「製備具鈮穩定氧化鋯-鎳錳複合陰極之固態氧化物燃料電池與其特性評估」，作者：郭弘毅、林泰男、郭任淵、高維欣、葉俊彥，已發表於第九屆氫能與燃料電池研討會，台南大學，2014-10-02~04。價值與貢獻：研製具鈮穩定氧化鋯-鎳錳複合陰極之 SOFC 商品規格電池單元，整體電池厚度減至 600 μm 以下，單片發電功率穩定達 28 W 以上，此項產品規格目前已完成技術輔導授權業者進行電池產品生產。
6. 「金屬支撐型固態氧化物燃料電池之性能和穩定性測試」，作者：蔡俊煌、黃振興、張鈞量、楊昇府、莊謝宗揚、程世偉、黃德榮，已發表於第九屆氫能與燃料電池研討會，台南大學，2014-10-02~04。價值與貢獻：本研究進行大面積金屬支撐型固態氧化物燃料電池的長時間穩定性測試，電池利用大氣電漿噴塗技術製備，其六層架構組成分別為多孔鎳鐵作為金屬支撐， $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cr}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCM)夾層，奈米結構 $\text{Ce}_{0.55}\text{La}_{0.45}\text{O}_{3-\delta}$ (LDC)/鎳作為陽極，LDC 作為緩衝層， $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ (LSGM)作為電解質層， $\text{Sm}_{0.15}\text{Ce}_{0.85}\text{O}_{3-\delta}$ (SDC)作為屏障層， $\text{SDC-Sm}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_{3-\delta}$ (SSC)作為陰極層。在 750、700 和 650°C 下，可得到此電池具顯著的電性，其電池輸出功率分別為 40.4、31.2 和 22.7 W。電池在 700°C 定電流 400 mA cm^{-2} 的測試條件下進行 3,000 小時耐久性測試。本研究究針對 MSC 電池性能及長時間穩定性進行測試，結果有利於日後 MSC 電池性能精進之比較依據。
7. 「結合數值計算與參數設計分析於 PEMFC 研究」，作者：吳聖儒、鄭善仁、林靖凱，已發表於中國機械工程學會第三十一屆全國學術研討會，台中逢甲大學，2014-12-06~07。價值與貢獻：本文以 CFD 結合軟計算分析方法，進行 PEMFC 參數設計與探討，該方法亦可適用於 SOFC 並進行參數之最佳化與分析，未來將能提供 CFD 數值模擬分析者另一分析方式之選擇。
8. 「應用田口方法於 SOFC 操作參數最佳化」，作者：林靖凱、程世偉、程永能、李瑞益，已發表於中國機械工程學會第三十一屆全國學術研討會，台中逢甲大學，2014-12-06~07。價值與貢獻：本文應用田口實驗設計分析方法進行 SOFC

單元電池之操作參數最佳化，並與單片裝短電池堆之結果做一比較，驗證了使用本文之分析方法，能使電池單元測試與短電池堆測試之測試結果相近，並能提供日後電池單元與電池堆測試者之一測試參考依據。

9. 「連接板以脈衝直流磁控濺鍍法披覆(Mn, Co)₃O₄膜層之微結構及電性研究」，作者：楊朋、曾惠萍、吳錦裕、熊惟甲、李瑞益，已發表於中國機械工程學會第三十一屆全國學術研討會，台中逢甲大學，2014-12-06~07。價值與貢獻：降低SOFC運轉長時效後，因不鏽鋼連接板Cr揮發毒化，造成運轉功率降低。
10. 「透過陰極複合材料之選擇改善電池性能並製作符合商業規格之陽極支撐型固態氧化物燃料電池」，作者：郭弘毅、林泰男、郭任淵、高維欣、葉俊彥，已發表於2014台灣化學工程學會61周年年會暨科技部化學工程學門成果發表會，元智大學，2014-12-12~13。價值與貢獻：透過陰極複合材料之選擇(YSZ-LSM與GDC-LSM)探討改善電池性能之可行性，並製作符合商業規格之陽極支撐型固態氧化物燃料電池。
11. 「固態氧化物燃料電池系統用燃料重組奈米觸媒研發」，作者：周宜欣、黃孟涵、許寧逸，已發表於2014台灣化學工程學會61周年年會暨科技部化學工程學門成果發表會，元智大學，2014-12-12~13。價值與貢獻：開發具有不易粉化和抗積碳之白金觸媒，特點為以高硬度的 α -氧化鋁為載體，於載體上塗佈一層氧化鈾作為輔媒，當白金觸媒表面產生沉積碳原子，可藉由具釋氧和儲氧特性的氧化鈾，脫附儲存的氧分子，使碳原子反應形成CO₂氣體排出。
12. 「操作參數最佳化對固態氧化物燃料電池性能研究」，作者：盧昶瑋、吳思翰、林弘翔、程永能、李瑞益，已發表於第九屆全國氫能與燃料電池學術研討會暨2014台灣能源學會年度大會，國立臺南大學，2014-10-03~04。價值與貢獻：燃料流量影響最大的在於燃料使用率與電效率，故如欲獲得理想的燃料使用率和電效率，燃料流量的調控就不得不重視，整合出的性能曲線圖提供是電池堆或是系統上，在未來進行相關測試時，皆能具備更完整並詳盡的資料做為實驗測試的參考依據。
13. 「大氣電漿噴塗製備具不同陰極材料之金屬支撐型固態氧化物燃料電池電性比較」，作者：蔡俊煌、黃振興、張鈞量、楊昇府、莊謝宗揚、程世偉、黃德榮、吳明修、林靖凱，已發表於2015中華民國陶業研究學會年會，台北市劍潭青年活動中心，2015-05-22。價值與貢獻：本研究利用大氣電漿噴塗製備4種不同陰極層的電池進行電性與穩定性測試比較。由電性IVP曲線和AC Impedance阻抗量測發現，BSCF/C的陰極有最高的功率輸出和最小的歐姆和極化阻抗；而LSCo陰極電池則具備較佳的穩定性。本研究可為更換MSC電池陰極材料，提升MSC電池性能及長時間穩定性的改善依據。
14. 「不銹鋼表面鍍覆錳鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究」，作者：曾惠萍、楊朋、丁桓展、鍾翠芸、劉建國、李瑞益，已發表於2015中華民國陶業研究學會年會，台北市劍潭青年活動中心，2015-05-22。價值與貢獻：以常溫系統透過電化學量測及等效電路模擬推估保護層與各氧化層間電性之關係，作為保護層改質之方向與依據。

15. 「雲母/BaO-Al₂O₃-B₂O₃-SiO₂ 基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能」，劉建國、熊惟甲、李瑞益，已發表於 2015 中華民國陶業研究學會年會，台北市劍潭青年活動中心，2015-05-22。價值與貢獻：本研究探討藉由片狀雲母混摻於玻璃基質內，提升金雲母/BaO-Al₂O₃-B₂O₃-SiO₂ 基玻璃混摻密封劑之高溫電阻及破裂韌性。不同雲母含量之摻加可調整試樣之熱膨脹係數與不銹鋼相匹配，雲母/玻璃粉末混摻燒結試樣之常溫破斷強度隨雲母添加比例增加而降低，然而試樣之延性則隨之增加；燒結試樣於高溫長時效之電阻值隨量測時間而上升，其電阻值均遠大於金屬連接板之高溫電阻值；與不銹鋼基板經高溫接著固化後，經 50 次熱循環洩漏測試，其平均洩漏率亦低於可容許上限值，可驗證雲母/玻璃混成型密封劑應用於 SOFC 封裝之適用性。
16. 「以甘胺酸-硝酸鹽法合成鉕安定氧化鈹粉體及其特性分析」，作者：郭任淵、林泰男、葉俊彥、郭弘毅、高維欣、廖明威、陳佑明，已發表於 2015 中華民國陶業研究學會年會，台北市劍潭青年活動中心，2015-05-22。價值與貢獻：傳統固態氧化物燃料電池之電解質材料主要以氧化鋯系列為主，然其操作溫度高而衍生出其它缺點，若以離子傳導率較高之氧化鈹系列的材料作為電解質，將有助於降低操作溫度。本研究以甘胺酸-硝酸鹽燃燒法製備鉕安定氧化鈹 (Er_{0.4}Bi_{1.6}O_{3-δ}, ESB) 粉末，其優點為成品粉末粒徑小、比表面積大，有利於低溫下燒結成緻密材料，後續可朝下降低操作溫度之 SOFC 應用。
17. 「固態氧化物燃料電池 YxBa_{2-x}Co₂O_{5+δ}(x=1.1, 1.2)陰極材料之合成及性質研究」，作者：王政安、黃元廷、洪逸明、郭任淵、林泰男，已發表於 2015 中華民國陶業研究學會年會，台北市劍潭青年活動中心，2015-05-22。價值與貢獻：以固態反應法合成 Y_{0.8}Ba_{1.2}Co₂O_{5+δ} 之陰極材料，並進行材料特性分析，YBCO 經過適當煅燒處理可得雙鈣鈦礦結晶結構，其離導特性隨煅燒溫度上升而提升。YBCO 之熱膨脹係數測得結果為 19.1×10⁻⁶，接近於 SDC 電解質材料。實驗得知 YBCO 在 950°C 以下不會與 SDC 產生相互間的二次相生成反應；其於中低溫 SOFC 之應用可具潛在價值。
18. 「製備具鉕穩定氧化鋯-鐳錳複合陰極之固態氧化物燃料電池與其耐久性評估」，作者：葉俊彥、林泰男、郭弘毅、高維欣、陳佑明、廖明威、郭任淵，已發表於 2015 第十屆全國氫能與燃料電池學術研討會，中央大學，2015-10-02~03。價值與貢獻：研製具鉕穩定氧化鋯-鐳錳複合陰極之 SOFC 商品規格電池單元，整體電池厚度減至 600 μm 以下，電性效能耐久性測試顯示其發電效能穩定，電性效能劣化率每千小時小於 1%，具商業可行性。此項產品規格目前已完成技術輔導授權業者進行電池產品生產。
19. 「以電化學法沉積鐵於多孔鎳作為大氣電漿噴塗基板」，作者：吳明修、黃振興、蔡俊煌、楊昇府、張鈞量、黃德榮，已發表於 2015 第十屆全國氫能與燃料電池學術研討會，中央大學，2015-10-02~03。價值與貢獻：相較於鎳粉與鐵粉混合之鎳鐵多孔合金基板需要在高真空度的爐子才能達成理想的機械強度，於本研究中採取以純鎳為骨架的方式，沉積鐵後合金化，能在相對低的真空度之燒結爐下達成高強度的多孔鎳鐵合金。有利該合金於未來的低成本快速大量製造。

20. 「Development of Recovery System for Extracting Silicon Carbide from Photovoltaic Industry Abrasive Slurry」，作者：楊昇府、黃振興、莊謝宗揚、蔡俊煌、張鈞量、黃德榮，已發表於 The International Conference on Machining, Materials and Mechanical Technologies, Taipei, Taiwan, 2014-08-31~09-05，國際研討會論文。價值與貢獻：發展光電半導體切削料純化系統，提取高純度和細粒徑碳化矽，作為燃料電池金屬合金基板物料來源，符合原始材料特殊需求，減少購置成本。
21. 「Fabrication of the anode-supported solid oxide fuel cell with composite cathodes and the performance evaluation upon long-term operation」，作者：林泰男、張揚狀、李茂傳、李瑞益，已發表於 39th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites S3 : 12th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC) : Materials, Science and Technology, Daytona Beach Florida, USA, 2015-01-25~30，國際研討會論文。價值與貢獻：研製商品化規格之 SOFC (Ni-YSZ/YSZ/GDC-LSM/LSM; $10 \times 10 \text{ cm}^2$)，在活化程序下，電極極化阻抗由 $1.86 \Omega \text{ cm}^2$ 下降到 $1.60 \Omega \text{ cm}^2$ ，但在長時間測試下，電極極化阻抗會隨著時間增加而增加，主要是電池片發生衰退現象。在操作溫度為 800°C 和 0.6V 下，其輸出功率可達 257 mWcm^{-2} ，在低電流密度或高電壓之操作條件下可延長電池壽命，但輸出功率將下降。本項成果可為本所 ASC 電池產品效能穩定性驗證參考指標。
22. 「Electrical and Microstructural Evolutions of $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ Coated Ferritic Stainless Steels after Long-term Aging at 800°C 」，作者：劉建國、楊朋、熊惟甲、李瑞益、吳錦裕，已發表於 39th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites S3 : 12th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC) : Materials, Science and Technology, Daytona Beach Florida, USA, 2015-01-25~30，國際研討會論文。價值與貢獻：本研究探討以 4 種商用不銹鋼為基板，並於其表面以脈衝直流磁控濺鍍方式鍍覆一層約 $3.5 \mu\text{m}$ 之摻鋇錳酸鋁氧化物($\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$, LSM)，以應用為固態氧化物燃料電池堆之金屬鍍膜連接板。試樣置於 800°C 中持溫 10,103 小時，過程量測並記錄式樣之高溫面積比電阻值(ASR)。經持溫 10,103 小時後，其對應之 ASR 值分別為 49.9, 16.4, 19.4 及 $4.6 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 。此外，本研究亦提出 2 階段式鍍膜程序，以減低 LSM 鍍膜因高溫煅燒而產生之裂隙問題。
23. 「Ni-Mo Porous Alloy Fabricated as Supporting Component for Metal-Supported Solid Oxide Fuel Cell and Cell Performance」，作者：楊昇府、莊謝宗揚、黃振興、蔡俊煌、張鈞量、黃德榮、李瑞益，已發表於 ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV, Glasgow, Scotland, UK, 2015-07-26~31，國際研討會論文。價值與貢獻：導入業界粉末冶金程序單元，包括前驅物料噴霧乾燥(Spray dryer)、造粒、模具設計、油壓成型(Compression molding)與燒結，來獲得均一、高良率及可工作性的多孔金屬支撐基板。完成多孔金屬支撐基板 compression molding 製程所需模具(60×60 與 $120 \times 120 \text{ mm}^2$)的驗證與生胚試體的成型、燒結和電池性能測試。

24. 「Fabrication of $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ cathode material and its application for Sr- and Mg-doped LaGaO_3 electrolyte-supported solid oxide fuel cell」, 作者：林泰男、李瑞益、郭任淵、石原達己、細井航平, 已發表於 ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC–XIV, Glasgow, Scotland, UK, 2015-07-26~31, 國際研討會論文。價值與貢獻：以 GNC 粉末合成法研製新穎陰極材料 $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$, 並完成材料特性分析, SBSC 於 $1,000^\circ\text{C}$ 段稍可得完整之雙鈣鈦礦結晶結構, 應用於 LSGM 電解質支撐電池 ($\text{NiFe-CMF}||\text{LSGM}||\text{SBSC}$) 並進行元件製作與電性效能測試分析, 在操作溫度為 800°C 下, 其輸出功率可達 550 mWcm^{-2} 以上, 可拓展新穎奈米粉體合成技術於 SOFC 之應用領域。
25. 「Material Characteristics and Electrochemical Performance of $\text{YxBa}_{2-x}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ Cathode for Solid Oxide Fuel Cell」, 作者：洪逸明、王政安、郭任淵、林泰男, 已發表於 ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC–XIV, Glasgow, Scotland, UK, 2015-07-26~31, 國際研討會論文。價值與貢獻：以固態反應法合成 $\text{Y}_{0.8}\text{Ba}_{1.2}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ 之陰極材料, 並進行材料特性分析, YBCO 經過適當煅燒處理可得雙鈣鈦礦結晶結構, 其離導特性隨煅燒溫度上升而提升。YBCO 之熱膨脹係數測得結果為 19.1×10^{-6} , 接近於 SDC 電解質材料。實驗得知 YBCO 在 950°C 以下不會與 SDC 產生相互間的二次相生成反應；其於中低溫 SOFC 之應用可具潛在價值。

● 技術交流活動

1. 本所與日本九州大學於 104 年 1 月簽訂「固態氧化物燃料電池技術合作」之合作意願書(MOU), 應用本所開發之新穎陰極材料於電解質支撐系列電池, 拓展新穎奈米粉體合成技術於 SOFC 之應用領域。林泰男博士與日本九州大學石原達己教授合作之論文成果, 發表於第十四屆國際固態氧化物燃料電池會議 (ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC–XIV)。
2. 美國陶瓷協會持續邀請本所為 ICAA2015 第十二屆 SOFC 國際會議之籌組單位；1 月 25~30 日, 劉建國博士及林泰男博士赴美國佛羅里達州代托納比奇市, 參加第 39 屆國際先進陶瓷與複合材料會議及展覽會暨第 12 屆國際固態氧化物燃料電池材料、科學與技術研討會, 並做論文發表。2 場次
3. 5 月 22 日, 計畫成員赴台北市劍潭青年活動中心, 參加 2015 中華民國陶業研究學會年會。5 場次
4. 7 月 26 日, 楊昇府博士參加國際電化學協會於英國蘇格蘭格拉斯哥市舉辦的第十四屆國際固態氧化物燃料電池研討會, 口頭發表論文, 並參訪英國倫敦帝國大學, 促進國際合作交流。3 場次
5. 10 月 2 日, 計畫成員赴中央大學參加 2015 第十屆全國氫能與燃料電池學術研討會。2 場次
6. 11 月 28~29 日, 劉建國博士及黃亮維先生, 赴江蘇省鎮江市(中國大陸)參加第 16 屆全國氫能會議暨第 8 屆兩岸三地氫能研討會, 並做論文發表。2 場次

● 研究報告

1. 「赴上海參加第 15 屆全國氫能會議暨第 7 屆兩岸三地氫能研討會出國報告」，作者：程永能。價值與貢獻：大陸全國氫能會議暨兩岸三地氫能研討會為高水平的學術交流平台，參加該研討會可汲取大陸 SOFC 之研發經驗，藉由論文發表與大陸學者交換心得，瞭解其研發現況，作為本所未來相關研發工作及方向之參考。
2. 「固態氧化物燃料電池單元效能評估」，作者：程世偉、林靖凱、蔡俊煌、林泰男、程永能、李瑞益。價值與貢獻：實驗過程中藉由交流阻抗分析，探討各階段的電化學特性；透過實驗設計方法，比較不同燃料量與當量比之差異，以擬出該電池單元的最佳化操作條件。此外，為了解電池片與測試座可承受升降溫速度與瞬間電流的能力，分別以 2-4 °C/min 的升溫速率進行熱循環與瞬間電流負載等測試，結果顯示電池單元效能並無明顯衰退，即該電池單元效能具良好的抗熱循環特性，且目前使用的電池單元測試座可操作範圍之廣泛。
3. 「環境效應對 SOFC 玻璃陶瓷接合劑高溫機械性質之影響」，作者：林志光。價值與貢獻：本研究目的在探討還原環境對於玻璃陶瓷和金屬連接板接合件的接合強度及破壞模式的影響，所使用的玻璃陶瓷為核能研究所開發一款代號為 GC-9 的材質，金屬連接板則是使用代號為 Crofer 22 H 的商用肥粒鐵系不銹鋼。藉由製作兩款三明治試片，分別量測接合件在室溫與 800°C 還原環境下的剪力及張力強度，同時評估還原環境時效處理對接合件強度的影響，並比較在還原環境與氧化環境下接合件所受之影響。
4. 「合金設計耐熱連接板合金材料」，作者：許哲銘、葉安洲。價值與貢獻：本計畫將提出三種不同成分之超合金(添加 Co、Ti、Ta、W、Al、Mn、Mo、Cu...)，探討此三種相異的新材料在高溫工作環境下的氧化行為、電性數據、熱膨脹係數...等，藉此研究提高連接板耐用性，並提升國內能源相關產業之研究水平。
5. 「kW 級 SOFC 系統於 OO 公司電池堆運轉性能測試報告書」，作者：羅世坤、林京翰、譚學怡、黃正男、丁桓展、施勇全、洪文堂、李瑞益、賴振坡、鍾增光。價值與貢獻：本研究探討與分析使用天然氣為燃料之 kW 級 SOFC 系統於 OO 公司使用 Elcogen 電池堆長時間運轉與整體性能。
6. 「La_{0.6}Sr_{0.4}Co_{0.2}Fe_{0.8}O₃/Cu₂O 混摻物做為固態氧化物燃料電池堆接觸層材料之研究」，作者：熊惟甲、劉建國、盧昶瑋、吳思翰。價值與貢獻：LSCF 粉末在一般 SOFC 運轉溫度下未能獲得良好的燒結效果，致使電導率偏低。本研究嘗試於 LSCF 中混摻少量導電度較佳之 Cu₂O 粉末，觀察對導電性改善情形，Cu₂O 混摻比例分別為 2.46、4.85、7.18、11.63、15.84 及 21.74 wt%。由 800°C 600 小時電導率量測發現，電導率隨 Cu₂O 混摻比例逐漸升高，至 7.18 wt%達最高值，之後則隨 Cu₂O 比例增加而降低。微結構觀察發現 Cu₂O 於高溫下氧化為結構膨鬆之 CuO，造成電阻增加，然因 CuO 本身之導電性較 LSCF 為佳，故適量添加仍有助於導電性提昇。
7. 「Sr₂MgMoO_{6-δ} 陽極材料合成、特性及導電性研究」，作者：鍾翠芸、劉建國、黃裕清、曾惠萍、李瑞益。價值與貢獻：本研究以檸檬酸做為螯合劑，利用溶膠-凝膠熱分解法(sol-gel thermolysis method)合成具有雙鈣鈦礦相之鋇鎂鉬氧化

物($\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta}$, SMMO)，應用於固態氧化物燃料電池(solid oxide fuel cell, SOFC)之陽極材料。進行 SMMO 材料之成相結構、成分組成、氧化還原特性、熱膨脹係數及導電率等分析。SMMO 在 800°C , H_2 測試條件之導電率為 0.361 S/cm ，活化能為 0.218 eV ，表現出好的導電性。

8. 「第二代 1-kW SOFC 發電系統之驗證」，作者：黃正男、洪文堂、羅世坤、譚學怡、林京翰、施勇全、劉庭瑋、程永能、李瑞益。價值與貢獻：本所開發之 1-kW 無電熱式 SOFC 發電系統已完成整合組裝及驗證測試。本報告探討發電系統操作程序及不同測試條件下之影響，藉由測試結果與累積之經驗，不僅利於擬定系統最佳運轉程序，更有提升系統效率之功效。
9. 「赴日本九州大學應用化學系進行燃料電池技術國外實習報告」，作者：林泰男。價值與貢獻：核能研究所化工組林泰男博士奉派赴日本福岡市九州大學石原達己教授(Tasumi Ishihara)實驗室進行燃料電池技術研習與合作討論。進行相關之業界參訪，包含千野(Chino corp.)、東陶(TOTO)、京瓷(Kyocera)、三菱日立電力系統(Mitsubishi Hitachi Power System)等廠家以及九州大學石原教授實驗室，針對家用型發電系統 ENE-FARM 或大型 SOFC 系統以及 SOFC 電池技術開發進行考察，參訪過程與石原教授建立良好互動關係。基於雙方在 SOFC 技術研發尋求未來合作機會，本次石原教授接受本所派員前往日本九州大學實習，針對固態氧化物燃料電池電極製作技術進行 30 天研習行程與技術合作討論事項。
10. 「千瓦級 SOFC 發電系統於 OO 公司測試報告」，作者：羅世坤、黃正男、譚學怡、丁桓展、林京翰、施勇全、洪文堂、賴振坡、鍾增光、李瑞益。價值與貢獻：由本所提供 1 kW 之 SOFC 電池堆及燃燒重組器與熱交換器等熱工元件，將其組成 kW 級 SOFC 發電系統並在 OO 公司進行 500 小時之長期測試，藉此合作計畫汲取 SOFC 發電系統之開發經驗，加速國內切入 SOFC 發電系統之開發領域。本報告主要說明 SOFC 工作原理、BOP 規劃設計、SOFC 熱工組件、發電系統之開發、SOFC 控制邏輯規劃與發電系統之測試過程及結果。
11. 「多孔性觸媒載體製程開發與特性分析」，作者：周宜欣、黃孟涵、許寧逸、邱顯都、曾華源、林素賢。價值與貢獻：將該載體分別依 $4^\circ\text{C}/\text{min}$ 煅燒至 $1,200^\circ\text{C}$ 進行相轉化成 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ，將不同程序升溫之載體進行破碎耐壓強度測試。載體經煅燒至 $1,200^\circ\text{C}$ ，轉化成 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ，較其他型態之 Al_2O_3 ，孔隙度與比表面積皆為最低。另外，新製程開發載體之觸媒具有高甲烷轉化率，可達 90%，優於商用觸媒之甲烷轉化率 70%。
12. 「赴日本陶瓷協會參加 SOFC 專書討論會出國報告」，作者：李瑞益。價值與貢獻：日本陶瓷協會邀請本所固態氧化物燃料電池計畫主持人李瑞益博士為該專輯的國際編輯委員之一。至東京日本陶瓷協會集會，就專輯的形式、內容、期程、未來規劃及後續行動項目，進行討論，期使論文的層面更為廣泛而深入。參加 SOFC 專書討論會及順道至日本東京 Big Sight 舉辦的第十一屆燃料電池展覽場參觀之過程、心得及建議事項，以供計畫執行之參考。
13. 「緻密型熱工元件整合裝置測試報告」，作者：林京翰、洪文堂、黃正男、羅世坤、譚學怡、施勇全、劉庭瑋、李瑞益。價值與貢獻：本所開發之熱工元件整

合裝置將燃燒器、重組器、熱交換器與蒸汽產生器整合為一體化之元件，此設計可移除各部件連接所需的管路配置並有效降低系統熱散失，藉此提高其熱效率。為使系統體積更為緻密，針對熱工元件整合裝置內部空間、尺寸進行修改，遂開發出緻密型熱工元件整合裝置。

14. 「甲烷重組產氫觸媒技術開發」，作者：黃孟涵、周宜欣、許寧逸。價值與貢獻：本研究是利用天然氣或甲烷氣體以 steam reforming 產氫，主要探討開發新式環狀重組觸媒製程不同的反應結果；重組反應結果顯示，載體經熱處理所製成之 Pt/CeO₂/α-Al₂O₃ 觸媒其甲烷轉化率比沒有經過熱處理的載體高，並且重組反應後觸媒沒有積碳。
15. 「離子傳輸膜技術開發可行性評估」，作者：林泰男、高維欣、葉俊彥、郭任淵、郭弘毅、陳佑明、廖明威。價值與貢獻：計畫目標在於氧離子傳輸膜元件之研製同時進行氧氣產生率的量測分析，期能透過 OTM 元件的測試操作氣體分離程序產生高純度之氧氣，可提供減碳技術中之氧氣分離及可攜式醫療氧氣機之產業應用，有相當重要助益。
16. 「利用固態氧化物燃料電池將二氧化碳轉化為一氧化碳程序之可行性評估」，作者：高維欣、林泰男、廖明威、陳佑明、郭任淵、郭弘毅、葉俊彥。價值與貢獻：本計畫目標是在發展一利用固態氧化物燃料電池進行二氧化碳轉化為一氧化碳之新穎程序，結果顯示二氧化碳在此程序下可以有效地轉化為一氧化碳，於本文中評估此程序之可行性。
17. 「赴英國參加第十四屆國際固態氧化物燃料電池研討會與參訪英國倫敦帝國大學出國報告」，作者：楊昇府。價值與貢獻：核能研究所物理組楊昇府博士奉派赴英國蘇格蘭格拉斯哥參加美國電化學學會主辦之第十四屆國際固態氧化物燃料電池研討會。探討主題包括：SOFC 電池片、電池堆和電池系統之設計、效能、與耐久性探討；陽極材料、電解質材料、陰極材料製程和效能；連接板與鍍保護膜、模擬、相容性燃料運轉、固態氧化物電解電池等議題，可促進技術與學術交流，掌握關鍵技術，並了解國際趨勢，進而建立合作管道及對象，有助於計畫之執行，並對我國推廣 SOFC 產業及其相關領域研發有很大的助益。透過專家討論交流會議，可拓展研究深度與提升國際同業審查應對能力，並提升本所固態氧化物燃料電池相關技術能力。
18. 「以甘氨酸-硝酸鹽燃燒合成法(GNC)製備奈米級鋇鋁鈷鐵氧化物(BSCF)粉體」，作者：葉俊彥、林泰男、高維欣、郭弘毅、廖明威、陳佑明、郭任淵。價值與貢獻：BSCF 之初始合成粉體是以鋇、鋁、鈷及鐵之硝酸鹽與甘氨酸為原料，加入去離子水混合後，加熱並均勻攪拌反應而得；再將合成而得之粉體，分別施以 600~1,000°C 之熱處理，再藉由 X 光繞射儀、掃描式電子顯微鏡、比表面積分析儀及真密度分析儀，對不同溫度熱處理過之粉體進行特性鑑定，以了解其相成分、微結構、顆粒大小、比表面積及燒結密度等性質。
19. 「1-kW 緻密型固態氧化物燃料電池發電系統設計與組裝」，作者：劉庭瑋、黃正男、洪文堂、羅世坤、譚學怡、林京翰、施勇全、賴振坡、鍾增光、李瑞益。價值與貢獻：本所自行研發組裝之 1-kW 無電熱式固態氧化物燃料電池測試系

統，經過多次啞電池堆與實際發電測試，其測試時間已超過 5,000 小時，系統並無任何重大元件損壞，足可驗證系統之耐久性。藉由實務經驗之累積，不僅助於開發熱工元件，對於系統效率之提昇與降低成本更有助益。

20. 「以甘氨酸-硝酸鹽燃燒合成法(GNC)製備鐳鋁鎂($\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$)粉末」，作者：陳佑明、林泰男、郭弘毅、郭任淵、高維欣、廖明威、葉俊彥。價值與貢獻：本研究藉由甘氨酸-硝酸鹽燃燒合成法(Glycine Nitrate Combustion; GNC)製備鐳鋁鎂($\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$)粉末，並透過適當的熱處理條件得到純相之 LSGM9182 粉末。LSGM9182 粉末可經由 GNC 法直接合成，初始粉末之平均粒徑大小為 190 nm。隨著熱處理溫度升高，LSGM9182 平均粒徑增大、比表面積下降、粉末逐漸變緻密且鈣鈦礦結構開始出現。當煅燒溫度為 1,450°C 時，可得到純相之 LSGM9182 粉末，其平均粒徑為 4.43 μm 。LSGM9182 升溫至 1,500°C 之線性收縮率為 3%。

二、技術創新(科技技術創新)

本計畫 103 年度完成專利申請共 38 件，(含獲得 26 件：國內 17 件、國外 9 件；申請中 12 件：國內 7 件、國外 5 件)；技術移轉 3 件，技轉金額為 20,630 千元；產學合作 2 件，合作金額為 130 萬元；完成技術報告 1 篇。

本計畫 104 年度完成專利申請共 40 件，(含獲得 24 件：國內 10 件、國外 14 件，另申請中 16 件：國內 6 件、國外 10 件)；技術移轉 1 件，技轉金額為 4,810 千元(103~104 年合計 25,440 千元)；技術服務 1 件，技服金額為 80 萬元；產學合作 3 件，合作金額為 169.5 萬元；完成技術報告 4 篇。

- 103~104 年共完成專利申請 78 件，(含獲得 50 件：國內 27 件、國外 23 件；申請中 28 件：國內 13 件、國外 15 件)。本年度技術創新效益說明如下：

已獲證專利：24 件

1. 「固態氧化物燃料電池之處理方法及其裝置」，作者：黃振興、張鈞量、蔡俊煌、粘勝輝、莊誌銘、程世偉，中華民國發明專利，I496343。價值與貢獻：一種創新熱處理大氣電漿噴塗技術製作的金屬支撐固態氧化物燃料電池片的裝置及方法，可提升電池膜層間的結合力、電池電性表現及電池的平整度。
2. 「固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之製作方法」，作者：黃振興、蔡俊煌、余任豐、張鈞量、林君孟、程世偉，美國發明專利，US9,093,691B2。價值與貢獻：本發明採用金屬基板內氣體通道壁上形成一層可吸收氧氣之多孔膜層之技術，可製作具高效率、高機械強度、低損失及抗氧化之固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之方法。
3. 「固態氧化物燃料電池熱工元件整合裝置」，作者：洪文堂、黃正男、羅世坤、譚學怡、丁桓展、賴振坡，歐盟發明專利，EP2704242A1。價值與貢獻：本發明之特點為將燃燒器、重組器及熱交換器整合為一單一元件，由於各組件間無管線銜接，因此，更易於與電池堆組裝成固態氧化物燃料電池發電系統，且能使系統更為緻密簡潔，有效減少系統體積進而降低系統熱散失以提升系統之整體效率。

4. 「應用於燃料電池發電系統之燃燒重組器」，作者：洪文堂、黃正男、蔡禹擎、譚學怡、羅世坤、林明達、賴振坡、程永能、李瑞益，歐盟發明專利，EP2573045A2。價值與貢獻：本發明之特點為重組器將燃燒器包覆其內，同時吸收燃燒器燃燒後產生之高溫氣流、及燃燒器之傳導與輻射之熱能，不僅可降低表面溫度且重組器與燃燒器之間無管線連接，因此能有效降低熱散失，同時可降低燃燒器之操作溫度。
5. 「多功能固態氧化物燃料電池檢測裝置」，作者：程世偉、胥耀華、程永能、李瑞益，美國發明專利，US8,928,328B2。價值與貢獻：一種多功能的固態氧化物燃料電池檢測裝置，以複數個大小相同、位置對稱，且各具有一組電壓線與電流線的獨立集電單元，分別設於陰、陽極分流板。可量測電池片不同位置之開路電壓、效能、阻抗、耐久性及局部劣化等。
6. 「固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之製作方法」，作者：黃振興、蔡俊煌、余任豐、張鈞量、林君孟、程世偉，歐盟發明專利，EP26210009B1。價值與貢獻：本發明為一種固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之創新製作方法，於金屬基板內氣體通道壁上形成一層可吸收氧氣之多孔膜層，改善燃料電池因空氣跑入陽極時，造成陽極氧化而斷裂，進而使燃料電池無法運轉之問題。
7. 「固態氧化物燃料電池及其製作方法」，作者：黃振興、蔡俊煌，美國發明專利，US8,921,003B2。價值與貢獻：以大氣電漿噴塗技術製作一種創新金屬支撐固態氧化物燃料電池裝置的方法，電池裝置包括金屬框架、多孔性金屬底材、陽極層、電解質層、陰極介面層以及陰極電流收集層。陽極層為多孔奈米結構。
8. 「一種利用動態與靜置交替之儲氫裝置及其方法」，作者：曾惠萍、余明昇、曹正熙、鍾翠芸、陳建宏，中華民國發明專利，I476146。價值與貢獻：以斷續流動與靜置儲氫交替的填充方式，改善傳統靜置儲氫達飽和後即失去把氫原子推到更遠的石墨結構的動力，適時的提供壓差做為驅動力，能有效的加快氫氣的吸附速率及增加總氫氣吸附值。
9. 「模組式燃料電池之結構與封裝設計裝置」，作者：余冬帝、程永能、李瑞益、李堅雄，美國發明專利，US8,932,738B2。價值與貢獻：本專利係複數單元電池堆以同一方向堆疊於該殼體之容置空間內，一密封盤及一蓋體依序封蓋於該殼體之容置空間開口，該蓋體外側結合銜接座，該銜接座一側設有導流管連通於電池堆分流歧管，再銜接於複數支線分流歧管。本燃料電池之組合結構發明結構簡單、易於生產且便於拆卸，可降低生產成本、提昇產品競爭力。
10. 「固態氧化物燃料電池堆在封裝製程中元件間最佳接觸壓力量測方法及其量測裝置」，作者：李茂傳、高維欣、林泰男、吳思翰、程永能、張揚狀、李瑞益、王俊修，歐盟發明專利，EP2365570B1。價值與貢獻：提供一種固態氧化物燃料電池堆在封裝製程中元件間最佳接觸壓力之量測方法，藉以減少固態氧化物燃料電池堆因組裝所造成之效能損失。本發明亦提供一種可以執行該量測方法之量測裝置。

11. 「高性能固態氧化物燃料電池膜電極組合元件(單元電池)中全緻密之濺鍍電解質層之製作程序」，作者：林泰男、李茂傳、高維欣、張揚狀、王俊修、林立夫，美國發明專利，US8,920,612B2。價值與貢獻：藉由薄膜製程之磁控濺鍍法製備電解質層，並結合燃料電池膜電極組製作程序，如刮刀成型、薄帶層合、真空熱壓、網板印刷、旋轉鍍膜或電漿噴塗等，與燒結技術最佳化之控制，製備全緻密/氣密電解質層。
12. 「應用於燃料電池發電系統之燃燒重組器」，作者：洪文堂、黃正男、蔡禹擎、譚學怡、羅世坤、林明達、賴振坡、程永能、李瑞益，美國發明專利，US8,883,360B2。價值與貢獻：重組器將燃燒器包覆其內，同時吸收燃燒器燃燒後產生之高溫氣流、及燃燒器之傳導與輻射之熱能。重組器與燃燒器之間無管線連接，因此能有效降低熱散失，同時可降低燃燒器之操作溫度以降低系統運作時之風險。
13. 「以低電壓電泳電鍍法製作使用奈米碳材承載觸媒之薄膜燃料電池電極」，作者：鄭俊才、黃婉敏，中華民國發明專利，I459622。價值與貢獻：低電壓電泳電鍍法製作使用奈米碳材承載觸媒之薄膜燃料電池電極。
14. 「合成甲醇及二甲醚之 Cu-Zn-Al 觸媒製備方法」，作者：簡俊清、許寧逸、邱顯都、林素賢、黃婉敏，中華民國發明專利，I462777。價值與貢獻：一種 Cu-Zn-Al 觸媒製備方法，係具有可相對地提高整體反應之轉化率、反應選擇率及有效降低成本之優勢。
15. 「在奈米二氧化矽上製作奈米鉑觸媒之方法」，作者：簡俊清、許寧逸，中華民國發明專利，I467844。價值與貢獻：一種在奈米二氧化矽上製作奈米鉑觸媒之方法，於高溫下進行化學還原法將鉑錯離子還原成具數奈米直徑之鉑原子簇附著在奈米二氧化矽粉體上，以獲得一以奈米二氧化矽當載體之奈米鉑觸媒(Pt/nano-SiO₂)。
16. 「應用於高溫燃料電池之多孔性介質燃燒器」，作者：蔡禹擎、顏子翔、洪文堂、黃正男、王宏瑜、黃維屏、李堅雄，歐盟發明專利，EP2314917A3。價值與貢獻：在不同運轉條件下，包含系統啟動、穩態運轉、動態負載變化以及停機時所衍生之不同氣流條件，藉由提升系統熱回收量以增進系統效率，並減少廢氣中之污染排放，構成具有寬廣之操作區域及低污染排放之燃燒裝置。
17. 「金屬支撐型之固態氧化物燃料電池之結構」，作者：黃振興、蔡俊煌、張鈞量、粘勝輝、莊誌銘、程世偉，中華民國發明專利，I487183。價值與貢獻：本發明具有較佳的電特性、再氧化穩定性及耐久性，並以金屬支撐而達到高熱傳導的效果；另外於結構上，具有較多的奈米級三相界面，可有效提升固態氧化物燃料電池的效能，並降低固態氧化物燃料電池工作溫度。
18. 「固態氧化物燃料電池熱工元件整合裝置」，作者：洪文堂、黃正男、羅世坤、譚學怡、丁桓展、賴振坡，中華民國發明專利，I502801。價值與貢獻：可使燃燒器、重組器及熱交換器整合為單一元件，易與電池堆組裝成固態氧化物燃料電池發電系統，達到結構簡單、減少體積、減少污染物之排放、操作靈活、降低設備與操作成本、降低系統熱散失及提升系統整體效率。

19. 「固態氧化物燃料電池堆模組結構」，作者：熊惟甲、劉建國、吳思翰、楊朋、李堅雄，美國發明專利，US9,112,218B2。價值與貢獻：一種固態氧化物燃料電池堆模組結構，其將一體之燃料電池堆模組化，可依輸出功率需求將數個模組堆疊為電池堆，並達到良好之氣體密封性，遇個別模組故障時，可方便拆卸更換。
20. 「平板型固態氧化物燃料電池連接板封裝結構改良」，作者：邱耀平、程永能、林金福，歐盟發明專利，EP1830425B1。價值與貢獻：由於在電池堆的零組件中，發電基板較脆弱，不易製成大面積之發電基板，且大面積之發電基板易於電池堆組裝過程發生破裂，本創作藉連接板並、串接成大反應面積，減少法線方向之電池單元層數，降低電池堆封裝之困難度。
21. 「一種用於固態氧化物燃料電池之雙層陽極-金屬基板結構及其製作方法」，作者：黃振興、蔡俊煌、余任豐、張鈞量、林君孟、程世偉，美國發明專利，US9,142,838B2。價值與貢獻：一種用於固態氧化物燃料電池之雙層陽極-金屬基板結構及其製作方法，具高效率及低損失的奈米結構，多孔金屬基板利用含細粒鎳或鐵吸氧性能，可改善燃料電池因空氣跑入基板至陽極時，造成陽極氧化而斷裂，進而使燃料電池無法運轉之問題。
22. 「緻密型固態氧化物燃料電池發電系統」，作者：洪文堂、黃正男、羅世坤、譚學怡、林京翰、施勇全，中華民國發明專利，I506846。價值與貢獻：其特點乃有別於傳統之固態氧化物燃料電池發電系統以電熱裝置以進行電池堆之升溫，而以熱工元件整合裝置之燃燒器產生之尾氣熱能將進入電池堆之陰陽極氣體進行加熱，進一步以燃燒器之熱輻射、熱傳導及陰陽極氣體之熱對流同時對電池堆進行加熱，使電池堆達到操作溫度時而可輸出電力，不僅使系統更易組裝，且系統無需任何電熱裝置有效降低系統之成本，更可大幅減少系統體積以減少系統之熱散失有效提升系統之整體效率。
23. 「具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法」，作者：林泰男、郭任淵、郭弘毅、高維欣、葉俊彥，中華民國發明專利，I509869。價值與貢獻：陽極經陣列式孔洞處理具高導電率及低燃料氣體阻抗的平板型固態氧化物燃料電池的製備方法，藉由刮刀成型製程製作陽極薄帶生胚，之後於外側之一或複數個陽極薄帶生胚上製作陣列式孔洞結構，經燒結程序製成陽極基板。
24. 「保護固態氧化物燃料電池金屬連接板之膜層生成方法」，作者：黃振興、張鈞量、蔡俊煌、莊謝宗揚、楊昇府、黃德榮，中華民國發明專利，I508351。價值與貢獻：金屬連接板進行預熱或預氧化與預熱之程序，提供數個粉團群，並將粉團送入高速電漿火焰中，以高速撞擊該金屬連接板表面，形成無貫穿裂縫保護層及中間膜層。該中間膜層與金屬連板接觸的部份會開始逐漸轉化成連續緻密的錳鉻尖晶石層。

尚在申請中專利：16 件

1. 【平板型固態氧化物燃料電池堆單元及平板型固態氧化物燃料電池堆模組】：美國發明專利，申請案號 14/588,483；歐盟發明專利，申請案號 15152175.4。

2. 【具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法】：日本發明專利，申請案號 2015-029312；美國發明專利，申請案號 14/645,104。
3. 【燃料重組蜂巢觸媒反應裝置】：美國發明專利，申請案號 14/614,683。
4. 【用於固態氧化物燃料電池之高透氣多孔基板及其製作方法】：美國發明專利，申請案號 14/681,532。
5. 【環狀載體觸媒製作方法】：中華民國發明專利，申請案號 104120617。
6. 【甲烷重組產氫觸媒載體之製備方法】：中華民國發明專利，申請案號 104123788。
7. 【一種用於固態氧化物燃料電池之雙層陽極-金屬基板結構及其製作方法】：美國發明專利，申請案號 14/820,347。
8. 【高穩定高效率固態氧化物燃料電池陽極結構及其製造方法】：美國發明專利，申請案號 14/874,753。
9. 【保護固態氧化物燃料電池金屬連接板之膜層生成方法】：美國發明專利，申請案號 14/847,119。
10. 【固態氧化物燃料電池之處理方法及其裝置】：美國發明專利，申請案號 14/883,763。
11. 【固態氧化物電解電池測試裝置】：中華民國發明專利，申請案號 104134765。
12. 【高效率燃料電池發電模組】：中華民國發明專利，申請案號 104134766。
13. 【具雙鈣鈦礦結構之鋇鎂鉬氧化物材料及其製造方法】：中華民國發明專利，申請案號 104135001。
14. 【透氣金屬基板、金屬支撐固態氧化物燃料電池及其製作方法】：中華民國發明專利，申請案號 104136183。

(一) 技術移轉與技術服務：

1. 與 ○○○ 公司於 103.09.12 簽訂「kW 級 SOFC 發電系統技術」先期技術移轉，執行期程至 104.01.12，全程總計 4 個月。先期參與費用總額為 300 萬元，已於 103.09.26 入帳。透過本所科技研發成果之推廣應用，促進國內產業技術升級，強化本土綠能產業國際競爭力，落實本計畫技術開發及產業化平台建構之成效。
2. 與 ○○ 公司之「固態氧化物燃料電池陶瓷基板支撐型單元電池製作技術」專利技術授權案於 103.01.16 完成簽約，合約授權金額總值達 1,300 萬元；104 年度已完成授權金總值 700 萬元之繳款事項(104 年 2 月收入第三期授權金新台幣 200 萬元整)；期能透過技術授權相關專利予國內廠商，達成 SOFC 產業平台建立之成效。
3. 103.11.24 完成與 ○○ 公司「kW 級固態氧化物燃料電池發電系統」第一期技術授權案之結案，總收入為 4,630 千元及 104.11.02 完成簽訂第二期技術授權案，簽約金 4,810 千元，電池堆將安裝於系統上，進行效能測試。該案有助於 ○○ 人員熟悉 SOFC 系統之運作，並累積系統操作與驗證之經驗，對國內 SOFC 產業之發展有正面之影響。
4. 完成 ○○ 公司「1 kW SOFC 發電系統熱能回收」委託研究案之立案，金額為 34 萬。該委託研究計畫之相關設計及系統修正，可提升該系統之熱能管理，除回饋應用至本所之系統外，該系統之整體熱能效率之提升，有助於日後商業應用

之系統電熱效能，具經濟效益。

5. OO 公司 Bio+SOFC 案收入 80 萬，其為進行生質物氣化結合 SOFC 發電試驗，其主要目標為利用尤加利木屑為生質物料源，於本所進行氣化以產出合成氣及粗淨化及深淨化處理、評析合成氣在處理前後的組成狀況、並進行三片裝 SOFC 電池堆之效能測試，做為後續評估生質物結合 SOFC 可行性的參考。結果顯示，SOFC 能夠很好地適應生質物組成變化的特點，與傳統發電方式相比，SOFC 發電可望具有更好的經濟性、環境友好特性及社會效益，極具發展前景。

(二) 技術報告：

1. 「kW 級固態氧化物燃料電池無電熱發電系統之標準程序操作手冊」，作者：劉庭瑋、羅世坤、洪文堂、黃正男、譚學怡、林京翰、丁桓展、施勇全。價值與貢獻：藉由此操作手冊，以利於新進同仁安全操作 SOFC 發電系統。
2. 「SOFC 系統點火槍小型化設計與製作」，作者：羅世坤、鍾增光、黃正男、譚學怡、林京翰、施勇全、劉庭瑋、洪文堂、賴振坡。價值與貢獻，可降低系統點火槍之成本，並縮小系統整體體積。
3. 「ProboStat 於固態氧化物燃料電池測試上之應用」，作者：廖明威、林泰男、高維欣、郭弘毅、葉俊彥、陳佑明、郭任淵。價值與貢獻：固態氧化物燃料電池具有高化學能-電能轉換效率、高燃料選擇性、及環境友善性等優點，惟其氧化物電極與電解質材料須於高溫下才能進行電子傳導與離子傳導以發生燃料電池電化學反應。ProboStat 乃一針對固態材料高溫下之電化學特性所設計之量測設備，藉由此量測設備可瞭解單元電池運作時的電流電壓特性或是各元件間阻抗值等特性，對於燃料電池材料後端應用研究而言十分重要。本篇報告將詳細說明 ProboStat 實際應用於固態氧化物燃料電池測試之原理、操作流程、及實驗數據分析討論。
4. 「Radiometer VoltaLab 40 電化學量測系統操作手冊(第 2 版)冊」，作者：曾惠萍、雍敦元、楊朋、劉建國、李瑞益。價值與貢獻：建立以電化學設備量測不鏽鋼連接板及保護層鍍膜之電性的標準操作程序，使相關量測方法能得到再現性及一致性，並使其他使用者於操作上有所依據；改版目的新增交流頻譜阻抗量測之校正程序，提升電性量測之準確性。

三、經濟效益(經濟產業促進)

- (一) 本計畫執行積極建構國內 SOFC 產業平台，除了 kW 級 SOFC 發電系統已技術授權 OO、OO 公司之外，並吸引國內民間廠商積極與本所洽簽 SOFC 發電系統技術移轉，未來結合國內業者自製之電池堆，預期將成為國內第一家 SOFC 系統整合公司。有利於形成國內自主技術之 SOFC 產業聚落，開創本土綠能產業利基。
- (二) 進行 YSZ 系列電池產品之陽極基板改質，在不減損發電效能的前提下，引入高強度之 YSZ 於陽極生胚製作，減少電極基板厚度，可減少材料成本與製作程序，提升大量生產之可行性與經濟效益。
- (三) 國內電漿噴塗業界大廠 OO 科技股份有限公司已完成「金屬支撐型固態氧化物燃料電池單元製作技術」技轉案之領標與投標作業，透過本技轉案之執行，可擴大

國內產業在 SOFC 關鍵組件之生產技術水平並建立量產能力，強化國內 SOFC 產業鏈之經濟規模。

- (四) 基於大量生產重組觸媒及計劃推動產業化平台，已委託 OO 公司根據本所提供之製程，完成數批多孔性氧化鋁載體和含 CNT 觸媒載體，已完成部分相關性能測試，將 OO 公司載體合成重組觸媒之製作及測試，發現此載體之觸媒具有高甲烷轉化率，可達 90%，優於商用觸媒之甲烷轉化率 70%，後續將再進行此一觸媒的長期測試。
- (五) 本所與 OO 公司合作之“kW 級 SOFC 發電系統”第一期技術授權案，於 OOO 建置一 SOFC 發電系統，並完成第一階段之性能測試，目前正進行第二期技術授權案相關事宜。透過本所科技研發成果之推廣應用，促進國內產業技術升級，增進民生福祉，實踐本計畫技術開發及產業化平台建構之成效。
- (六) 與 OO 公司之「固態氧化物燃料電池陶瓷基板支撐型單元電池製作技術」專利技術授權案執行順利，到目前 1 年 9 個月已完成 89 次雙邊討論與技術輔導(累計 317 小時技服時數)，成功技轉該公司建立工廠端自有電池製作技術；OO 公司規劃於本年度第四季截止完成製作 200 片以上該技轉之第一代 YSZ 電池產品，以提供未來本所燃材組與國內業界電池堆與系統使用，目前同步協助業者進行電池堆電性效能改良工作。
- (七) 發電系統技術授權給 OO 公司，以加速技術產業化的目標。並就品質及性能持續進行精進及改善，以落實技術產業本土化的目標，期盼為我國建立一新興綠能產業，創造就業並提升國民福祉。
- (八) OO 委託本所進行生質物氣化結合 SOFC 測試，由 OO 提供尤加利木屑，本所進行氣化、淨化後，進行 SOFC 電池堆效能測試，顯示效能已在國際水平之上，有助於後續之產業應用及發展。
- (九) 與台灣 OOO 公司進行多孔金屬基板製備與材質改善之產業合作，相關研發成果可落實於金屬支撐型電池片之製備技術精進，加速國內 SOFC 產業聚落之形成。
- (十) 持續推動電漿噴塗技術於金屬支撐型固態氧化物燃料電池製備技術應用之技術授權案，規劃將本計畫中與金屬支撐型固態氧化物燃料電池片製備技術相關之國內外專利計 12 件同步授權于國內產業，達到扶植與保護國內廠商以及擴大經濟規模之目的。

四、社會影響(社會福祉提升、環境保護安全)

- (一) SOFC 為一新能源技術，本所與 OO 公司之專利技術授權案執行近兩年，成功輔導廠商進行電池單元產品製作技術開發與產品驗證，業者已完成 100 片以上效能良好之電池產品製作，目前與本所電池堆工作小組進行後續電池堆專利技術授權案磋商，呼應政府發展替代能源施政目標。
- (二) 參展 2015 年台北國際發明暨技術交易展，透過動態實體模型展示本所開發觸媒對於抗積碳原理與催化反應機制，並以簡易明瞭且生動表達本所研發成果，藉此吸引與提高廠商技術運用與技術授權可能性，並對一般大眾廣宣成果，以提升本項技術之能見度。

- (三) 經濟能源農業處及教育科學文化處、台灣師範大學、菲律賓 Mapua 科技學院、光陽機車公司等所國內學術單位及外賓，共約 2 百多人次參訪 SOFC 實驗室，藉以了解本所 SOFC 之發展現況，並增進在校學生對研究實務及能源領域之認知及興趣。
- (四) 本計畫本年度執行期間，共投入自聘 10 人、替代役 15 人、專支人員 10 人，共創造了 35 個就業機會。
- (五) 本計畫推動之「電漿噴塗金屬支撐型固態氧化物燃料電池片製備技術」案將相關技術移轉至國內廠商-OO 科技股份有限公司，該公司為因應本案之執行將再投入 4 至 5 名之專員級以上之人力，增加國民就業機會。
- (六) 本所結合氯化、淨化與 SOFC 發電技術，接受 OO 公司委託進行生質物(尤加利木)氯化結合 SOFC 發電之可行性測試，期盼拓展 SOFC 之應用並為我國建立一新興能源產業。
- (七) 為減少在電漿噴塗過程中，技術人員進出噴塗室之次數與時間，開發一套自動掀蓋保溫裝置，該裝置設計概念可應用於 MSC 電池片生產，提升試片持溫能力，減少能源耗損，並可降低技術人力需求，降低生產成本。
- (八) 完成開發第三代 1 kW SOFC 發電系統，並於操作電流為 36 A，成功產出 1,063 W 電能，發電效率約為 42%。
- (九) 使用創新自研高透氣多孔 Ni-Mo 金屬基板，發電功率提升 1.66 倍，燃料使用率提升 1.63 倍，達到提升電池片的能源使用效益。
- (十) 配合 SOFC 計畫與 OO 公司之技術授權案，提供所需之自製奈米天然氣重組觸媒，提升 SOFC 發電系統整體自製率與燃料使用多元性。

五、其他效益(科技政策管理、人才培育、法規制度、國際合作、推動輔導等)

- (一) 本所與奧地利-Plansee SE 公司及德國-IKTS 研究院續簽訂三方保密協定，合作有關電池單元、金屬連接板及電池堆技術之合作開發，期間自 2014.01.01 至 2015.12.31。2015.05.21 日，Plansee SE 公司 SOFC Manager Dr. Andreas Venskutonis, Product Manager Mr. Stefan Skrabs 及台灣分公司曾柏誠工程師，做 SOFC 技術之交流及合作事宜討論。
- (二) 與美國 Montana State University 及義大利 Genoa University 之團隊合作進行 SOFC 鍍膜金屬連接板高溫氧化行為研究，探討鍍鎳膜之 SS441 不銹鋼於氧化/還原雙氣氛及通電流情況下之氧化行為。將量測鍍膜試樣於 800°C 及無電流/施加電流條件下持溫 500 小時之電阻變化，將探討電流對於 SOFC 連接板高溫氧化機制。與美國蒙大拿大學團隊合作研究論文「High-temperature (800°C) dual atmosphere corrosion of electroless nickel-plated ferritic stainless steel」，及「固態氧化物燃料電池其還原程序對電化學效能與微結構特性之影響」發表於 J. of Hydrogen Energy 期刊。
- (三) 本計畫參加台北世貿 2015 台北國際發明暨技術交易展，競賽區參展技術項目獲獎為：「無電熱 SOFC 發電系統」(金牌)、「高性能固態氧化物燃料電池膜電極組

- 合元件中全緻密之濺鍍電解質層之創新製作程序」(金牌)、「高穩定高效率固態氧化物燃料電池陽極結構及其製造方法」(金牌)、「多功能固態氧化物燃料電池檢測裝置」(銀牌)、「固態氧化物燃料電池及其製作方法」(銀牌)。本年度計畫共獲三金二銀之獎項。顯示計畫執行成效獲得所外單位肯定。
- (四) 計畫主持人李瑞益博士應日本陶瓷協會之邀，赴東京參加該協會 SOFC 專書編審討論會，與美國康州大學、日本 AIST、韓國 KIST 專家學者就專輯的形式、內容、期程、規劃及後續作業，進行討論，並與吳思翰博士參觀第十一屆日本國際氫能與燃料電池研討暨展覽會。李主持人受邀擔任 JCSJ 期刊 SOFC 專輯之國際編審委員，透過參與國際間之交流及活動，有助於呈現國內在 SOFC 領域的成效、拓展國際人脈及合作關係及對國內外 SOFC 技術之發展做出貢獻。
- (五) 自 2010 年起，歐盟燃料電池論壇邀請本所 SOFC 計畫主持人李瑞益博士為論壇之國際諮議委員；2013 年起，美國陶瓷協會邀請本所為 SOFC 國際論壇籌組單位之一，並由李員擔任籌組委員；2014 年日本陶瓷協會邀請李員擔任 JCSJ 期刊 SOFC 專輯之國際編審委員。本所於 SOFC 開發之進展，在技術及學術面上之成效已廣為國際所認知。透過參與國際間之交流及活動，有助於呈現國內在 SOFC 領域的成效、拓展國際人脈及合作關係及對國內外 SOFC 技術之發展做出貢獻。
- (六) 美國陶瓷協會持續邀請本所為 ICAA2015 第十二屆 SOFC 國際會議之籌組單位；2015 年 1 月，本所 SOFC 計畫劉建國博士及林泰男博士代表參與會議，並做論文發表。彰顯本所於固態氧化物燃料電池發電系統領域研發成果，並藉由會議平台瞭解國際最新之相關研發現況，裨利於本所研發計畫及執行相關委託研究計畫工作推動。
- (七) 本所與日本九州大學於 104 年 1 月簽訂「固態氧化物燃料電池技術合作」之合作意願書(MOU)，應用本所開發之新穎陰極材料於電解質支撐系列電池，拓展新穎奈米粉體合成技術於 SOFC 之應用領域。林泰男博士與日本九州大學石原達己教授合作之論文成果，發表於第十四屆國際固態氧化物燃料電池會議 (ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV)。另林泰男博士獲邀擔任 2015 中華民國陶業年會學術論文發表會之 session chair。
- (八) 楊昇府博士參加國際電化學協會於英國蘇格蘭格拉斯哥市舉辦的第十四屆國際固態氧化物燃料電池研討會，口頭發表論文，並參訪英國倫敦帝國大學，促進國際合作交流。
- (九) 本計畫「無電熱 SOFC 發電系統」、「高性能固態氧化物燃料電池膜電極組合元件中全緻密之濺鍍電解質層之創新製作程序」分別獲得本所所慶研發競賽「甲等」、「佳作」獎項。另計畫成員，以「奈米羅浮宮」參加 2015 年台灣奈米影像暨奈米新詩創作競賽獲佳作。SOFC-MEA 相關專利技術榮獲第十二屆國家新創獎一學研新創獎肯定，展現本所研發成果量能。
- (十) 本計畫參加第 10 屆全國氫能與燃料電池學術研討會，發表 1 篇海報論文，探討全尺寸 SOFC-MEA 之研製與複合陰極所表現的耐久性特性研究，獲得燃料海報展示競賽燃料電池組第 1 名。

- (十一)以 Elcogen 商業電池單元進行 60 次熱循環測試，前 30 次為 250~700°C，後 30 次為 50~700°C，最初測試電壓為 0.918 V，功率為 29.744 W，歷經 60 次循環後最終電壓為 0.857 V，功率降至 27.767 W。顯示該電池單元能有效承受多次之升降溫，而電池效能無明顯之衰退現象。此熱循環測試方法亦能提供所內研發之電池單元進行測試，用以驗證相關性能。
- (十二)參加於中鋼公司舉辦之 2015 中國材料科學學會年會，分享本所重組觸媒之研發能量予業界先進與相互交流，有助於後續拓展合作研究之機會。
- (十三)中央大學：「環境氣氛對 SOFC 接合件高溫耐久機械性質之影響」委託計畫，培育碩士生 1 人進行金屬與陶瓷材料封接應力強度與模擬分析。培育之人才可於能源與機械應力等相關領域發展。
- (十四)清華大學：「先進金屬連接板材的材料組織工程及成形性研究」委託計畫。培養碩士生 1 人進行新型連接板合金材料之微結構改良及成形性加強。培育之人才可於燃料電池、高溫合金材料等相關領域發展。
- (十五)元智大學：「應用於中溫固態氧化物燃料電池之新穎陰極材料開發」委託計畫。培養碩士生 1 人進行 SDC 系列電池單元相關之新穎陰極材料開發。培育之人才可於燃料電池、陶瓷材料合成與特性分析等相關領域發展。
- (十六)為進行以氣化生質物為燃料之 SOFC 測試，本所自行研發以 PLC 結合相關硬體進行控制及資料擷取之程式撰寫，並以電池單元進行效能及相關測試。測試結果顯示該控制單元可符合電池單元及電池堆測試之所需，有效簡化控制系統並減少體積，並可隨測試爐隨時進行遷移，提升系統使用之彈性。
- (十七)OO 公司至本所參訪 SOFC 觸媒合成實驗室，並進行重組觸媒合成實驗流程操作實習，與其人員進行觸媒製程及測試交流，有助於後續拓展合作研究應用評估規劃。
- (十八)製作「GCTool 解析 SOFC BOP」教材，提供 OO 公司做為系統規劃設計教學之用。

貳、跨部會協調或與相關計畫之配合

- 一、持續與多家國內廠商進行 SOFC 技術合作，其中包含基板與電池片功能層製作技術，多孔基板製作目前已經和台灣 OOO 公司完成保密協議之簽署，電池片功能層製備技術則持續和國內電漿噴塗大廠-OO 科技公司進行合作。
- 二、與中央大學合作「環境氣氛對 SOFC 接合件高溫耐久機械性質之影響」計畫；與清華大學合作「先進金屬連接板材的材料組織工程及成形性研究」計畫；與元智大學合作「應用於中溫固態氧化物燃料電池之新穎陰極材料開發」計畫。

參、檢討與展望

- 一、技轉與商業化為計畫執行之主要目標，技術商業化的兩大要件為技術的成熟度及成本，目前國際上 SOFC 技術之成熟度已漸達到初步目標，然成本部分仍偏高。於成本部分，量產數量與生產方式為決定成本之中重要因素。計畫下年度工作重點為：

- 推展技轉相關事宜，盼協助業者取得相關驗證計畫，透過驗證取得初步之需求量，進行初步量產，而後逐步擴展國內外之需求，廠商擴增量產數量，以期降低整體成本，提升國內相關產業競爭力。
- 進行系統組件性能及耐久性精進，開發 3~5 kW SOFC 發電系統。

填表人： 李瑞益 聯絡電話： 03-4711400#6761 傳真電話： 03-4713980

E-mail： rylee@iner.gov.tw

主管或主持人簽名： 李 瑞 益

附錄一：期末分項工作成果說明

高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨 產業化平台建構

(104 年度) 期末分項工作成果說明

目 錄

頁次

固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構-連接板及封裝材料研發.....	1-1
固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構-系統研發	2-1
固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構-電池單元與電池堆之測試及分析 .	3-1
廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發.....	4-1
金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製	5-1
固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發	6-1

固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構－ 連接板及封裝材料研發

一、前言

連接板及封裝材料研發之主要工作項目，包括低熔點高強度之新穎密封材料研製、連接板材料、製程及設計，以及電池堆封裝檢測程序等，說明如后：

(一) 研究創新之SOFC密封材料及封裝技術

配合SOFC研發朝向中低溫(<800°C)操作溫度之趨勢，研製以矽酸鹽或硼酸鹽玻璃為基底，改變成分比例或添加降低熔點及增進流動性之元素，以熔融製程製備玻璃密封材料，或添加無機顆粒混合物，並藉由熱處理及玻璃/陶瓷分相比例之控制，研製低軟化點($\leq 700^\circ\text{C}$)之玻璃陶瓷或混成密封材料。目前已完成以GC9玻璃為基礎，精進其 B_2O_3 及降低 BaO 組成比例，滿足熱膨脹係數 $\geq 8 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 及軟化點 690°C 。此外，亦研製不同質量比例混摻之雲母/GC9玻璃混成物應用為SOFC高溫封裝劑，混摻比例1:4, 1:9試樣之高溫(800°C)長時(>2,700小時)電阻值分別為289及69 k Ω ，破斷強度分別為26及35 MPa，雲母/玻璃粉末混摻(比例1:9)密封劑與Crofer22APU不銹鋼基板經高溫接著固化後，經50次熱循環(RT $\leftrightarrow$ 800°C)洩漏測試，其平均洩漏率值為 2.1×10^{-4} mbar·l/s/cm，亦低於可容許上限值(5.2×10^{-4} mbar·l/s/cm)，符合SOFC電池堆密封之需求。其效益包括：a.減少玻璃之稀土原料使用；b.藉由無機物混摻提升密封劑高溫機械強度；以及c.符合SOFC高溫封裝材料電性要求。

(二) 連接板材料、製程及特性研發

SOFC金屬連接板熱處理、鍍膜製程及介面層材料研製，除了已完成Crofer22H/LSM、ZMG232L/LSM、ZMG232G10/LSM與ITM/LSM等金屬連接板/鍍膜系統之高溫(800°C)面積比電阻(ASR)長時(10,103 h)量測，其面積比電阻(ASR)值分別為49.9, 16.4, 19.4及4.6 m $\Omega \cdot \text{cm}^2$ ；並完成ss441不銹鋼預氧化及鍍覆 $\text{Mn}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{O}_4$ (MCO)試樣之電化學量測分析及氧化微結構觀察。此外，亦探討以不同預氧化條件之ss441鍍覆MnCo氧化物保護層進行高溫長時電性量測，結果顯示不銹鋼基板預氧化，以及使用MCO作為保護膜材料，均有提升鍍膜連接板高溫抗氧化性及降低ASR值之效果。本年度計畫針對ss441/MCO之連接板鍍膜系統，研究於不同熱處理程序對鍍膜金屬連接板鍍膜表面結構及電阻特性之影響，得出一可降低鉻揮發及維持強度及電性之最佳化熱處理程序，並進行最佳化熱處理金屬連接板之長時效驗證。同時，亦將進行SOFC金屬連接板保護層之低真空披覆製程研究，以及SOFC金屬連接板/電池單元之三合一介面層(保護層、接觸層、集電層)材料研製。

(三) 電池堆封裝檢測程序

SOFC電池堆於封裝、組裝之量產化程序時，產品品質的控管為重要的一環。因此，電池堆的檢驗便成為必要的程序之一，其中密封性是否完整為重要的檢驗

項目，包括封(組)裝缺陷、氣孔及裂隙等，以避免高溫操作時造成陰陽極氣體互通，導致電池堆內部發生局部燃燒損壞電池片，造成整個電池堆失效。密封完整性不易由肉眼觀察得知，缺陷(如穿孔)可能非常微小或缺陷位於電池堆內部。因此，可能的檢驗方式為進行氣體洩漏測試或藉由X-ray、超音波等進行穿透式造影等非破壞檢測方式進行。目前所研製之密封材料已實際用於電池堆組裝，並經高溫(800°C)長時(1,000 h)封裝穩定性及耐久性驗證，其抗熱循環次數可大於50次，平均洩漏率為 2.25×10^{-5} mbar·l/s/cm，特性能滿足電池堆需求。本年度計畫開發非破壞性檢測技術，例如利用高能X-ray或超音波等設備，檢測電池堆金屬/玻璃陶瓷或陶瓷/玻璃陶瓷的封裝界面，藉由成像對微細之缺陷加以判定與分析，開發SOFC電池堆封裝非破壞性檢測技術，建立電池堆封裝品管程序。

此外，常用為SOFC之陽極材料之Ni/YSZ陶金，具有高催化效率及性能穩定等特性。然而，於高溫環境中隨著時間之增加，細小且分散的金屬Ni顆粒逐漸團聚成大顆粒，降低Ni的催化活性，且減少氣體的擴散通道。若使用天然氣或甲烷等碳氫化合物作為燃料，Ni基陽極材料存在碳沉積和硫中毒等問題；因此，開發高性能陽極材料是SOFC當前必須解決的問題之一。Sr₂MgMoO_{6-δ} (SMMO)為一種雙鈣鈦礦結構的金屬氧化物，電化學反應可在電極/氣體的相界面上發生，而不侷限於三相界面，有效降低電池的濃差極化。文獻指出，以SMMO做為SOFC之陽極材料可應用於較高的氧分壓和操作溫度，且其具有相結構穩定性，並與多種電解質材料相容，而不發生物理和化學反應，且此材料具有高氧化還原(Redox)穩定性，適合使用其他生質原料來源之碳氫化合物燃料，而不會出現碳沉積、硫中毒等現象。本研究針對SMMO的製備流程進行探討，以及自製且利用Ba, Ce/Sr及Cu/Mg等取代以改質SMMO陽極材料，提升其電性並對其結構和性能進行分析。

本年度亦同時開發硬焊合金並應用於金屬支撐型SOFC封裝，做為電池片金屬基板與框架及電解質層與框架之封裝劑。目前先以商用合金Ag-Cu-Ti系列焊料進行YSZ電解質與Crofer22H金屬框架之接合實驗，後續將藉由混摻低熱膨脹係數之陶瓷顆粒或纖維改善焊料熱物性質，並試驗最佳封裝參數。

綜合上述，本年度之計畫工作重點包括：(1)以矽酸鹽或硼酸鹽玻璃為基底，改變成分比例或添加降低熔點及增進流動性之元素，以熔融製程製備玻璃密封材料，或添加無機顆粒混合物，並藉由熱處理及玻璃/陶瓷分相比例之控制，研製低軟化點($\leq 700^\circ\text{C}$)高強度耐壓之玻璃陶瓷或混成密封材料，進行與SOFC相關元件接著，並藉由高溫熱循環洩漏率的量測評估高溫穩定性，以及藉由高溫長時間洩漏率的量測驗證其耐久性；(2)玻璃陶瓷封裝元件設計及一體成型參數最佳化之製程實作，以及進行封裝元件高溫長時穩定性及耐久性效能驗證；(3)利用測漏、超音波或高能射線等技術，檢測金屬/玻璃陶瓷或陶瓷/玻璃陶瓷的封裝界面，藉由成像對微細之缺陷加以判定與分析，進行封裝製程及電池堆之非破壞檢測方法及程序研究評估精進；(4)針對不同之金屬連接板材料，研究於不同氣氛、溫度環境下，以及不同熱處理程序對鍍膜金屬連接板表面結構及強度等特性之影響，得出一可降低鉻揮發及維持強度及電性之最佳化熱處理程序，持續進行最佳化熱處理金屬連接板之長時效驗證；以及(5)SOFC金屬連接板保護層之低真空披覆製程研究，選定較佳之保護層材料及以低真空披覆方法，進行鍍膜層高

溫長時效(1,000小時以上)監測，以瞭解導電度變化及鉻揮發情形。同時研製SOFC電池堆新穎介面層及電極材料與高溫電性量測。

二、實驗方法步驟

(一) 雲母/BaO-Al₂O₃-B₂O₃-SiO₂基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能

本節實驗為使用金雲母(Phlogopite mica)與BaO-Al₂O₃-B₂O₃-SiO₂基玻璃粉末混摻製得混成型密封材料。金雲母片材購自Cogebi Inc.公司，其分子式為KMg₃(AlSiO₁₀)(OH)₂，將雲母片材置於電爐中以850°C烘烤6 h以除去結晶水，爐冷後球磨成粉末。玻璃材料則為自行開發之鋇鋁矽酸鹽基玻璃(GC9)，組成包括BaO, Al₂O₃, B₂O₃, SiO₂, CaO, La₂O₃, ZrO₂等。上述原料(純度≥99.5%)經配料、混勻後，於高溫電爐中以5°C/min之升溫速率，加熱至1,550°C形成玻璃並持溫10 h後，將玻璃膏倒出淬冷於石墨板上成型，並立即置入680°C之退火爐中持溫8 h後爐冷至室溫，以消除殘留之熱應力。所得之玻璃塊材經粉碎、球磨及過篩程序，製得粒徑小於45 μm之粉末。秤取雲母粉末與玻璃粉末各依0:1、1:9及1:4之質量比例($x=0, 0.1, 0.2$)，加入適當溶劑混合均勻後，製得雲母/玻璃混成密封劑。此外，藉由成分優化之玻璃基封裝材料，亦成功推廣適用於與其他陶瓷元件(如HTM, P-SOFC等)之電解質的高溫接著。

1. 熱膨脹係數量測

分別將製得之雲母/玻璃混成密封劑($x=0, 0.1, 0.2$)以120°C烘乾，再經球磨、過篩造粒程序，將所得粉末置入模具中施加270 MPa之壓力並持壓60 s，製成直徑8 mm、高度20 mm之圓柱狀試片。將試片置入高溫爐中以5°C/min之升溫速率加熱至830°C後持溫1 h進行燒結，再冷卻至750°C並持溫4 h進行結晶化。所得雲母/玻璃混摻燒結體經切割、研磨，使成上下面保持平行之試片。將試片置於高溫熱膨脹儀(SETARAM DHT 2050kN, France)中以氬氣為保護氣氛，並以5°C/min之升溫速率及1 g之荷重，由室溫升溫至試片軟化或900°C為止，過程之溫度及試樣伸長量由電腦即時紀錄。

2. 微結構觀察

燒結及結晶化完成之雲母/玻璃混摻試樣($x=0, 0.1, 0.2$)分別經切割、研磨、拋光處理，以金相顯微鏡(Olympus BX60M-F5, Japan)觀察試片之微結構，使用10倍物鏡倍率，並透過CCD紀錄影像。

3. 高溫黏度與機械強度量測

將雲母/玻璃混成密封劑($x=0, 0.1, 0.2$)以120°C烘乾，再經球磨、過篩造粒程序，將所得粉末置入模具中施加270 MPa之壓力並持壓60 s，製成直徑8 mm及高度6 mm之圓柱狀試片，再置入高溫平行板式黏度儀(Rheotronic III, Theta, USA)中，施以0.025 MPa之荷載，以5°C/min之升溫速率加熱至850°C，並記錄試片黏度及高度隨溫度之變化。此外，將前述不同混摻比例之雲母/玻璃密封劑粉末置入模具中施加46.8 MPa之壓力持壓60 s，製成直徑40 mm、高度1.1 mm之圓餅狀試片。將試片置入高溫爐中以5°C/min之升溫速率加熱至850°C後持溫4 h進行燒結，再冷卻至750°C並持溫4 h進行結晶化。燒結及

結晶化完成之圓餅狀試片經研磨、拋光程序後，置於拉伸試驗機中，進行 Ring-on-ring 測試，夾頭位移速率 5 mm/min，分別量測試片於室溫之破斷強度，每組混摻比例試樣至少量測 3 個試片。

4. 高溫電阻量測

取不同混摻比例($x=0, 0.1, 0.2$)之雲母/玻璃燒結體片狀試片，厚度 1 mm，分別於試片兩面塗覆 Ag 膠做為導電極，置入 800°C 高溫爐中持溫，使用 2 點 4 線式量測法，利用 Keithley 2400 電錶施予試片適當的電流值，並利用 Keithley 2700 電錶量測基板兩端點電壓值，由電腦計算並記錄其電阻值隨持溫時間之變化。

5. 高溫熱循環密封洩漏率量測

取雲母/玻璃混摻比例 $x=0.2$ 之密封劑，塗佈於上下兩層 Crofer22APU 不銹鋼 (ThyssenKrupp VDM GmbH, Germany) 基板之間，經高溫接著固化程序後，製成一封膠範圍為高度 0.5 mm、寬度 7 mm 及邊長 45 mm 之矩形中空結構試片，上基板開孔接管使可通入氣體，將洩漏率量測試片施加 0.031 MPa 之應力並通入 2 psi 之 He 氣後，於室溫與 800°C 之間進行反復昇降溫，昇/降溫速率為 2°C/min，於 800°C 持溫總時間超過 1,000 h，記錄密封壓力隨持溫時間的變化，並計算其洩漏率。

(二) 金屬連接板批覆保護膜試樣高溫電性量測及氧化層分析

本節實驗方法為以肥粒鐵系不銹鋼 ss441，試片尺寸 $1 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ ，試片表面經細研磨(#1200 砂紙)，先經不同溫度(800, 850°C)及 2 LPM 空氣氣氛預氧化 25 小時，再以脈衝直流磁控濺鍍方法分別披覆 1.5、3.5 μm 度之 MCO 保護膜。鍍膜試樣進行高溫長時(800°C、10,000 h)面積比電阻量測，以及進行氧化層觀察分析。

1. 保護層鍍覆

本節鍍覆錳鈷氧化物(MCO)膜採用脈衝直流磁控濺鍍(Pulsed DC Magnetron Sputtering)方式，濺鍍靶材為 $\text{Mn}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{O}_4$ ，與連接板基板距離為 5 cm，濺鍍功率 100 W，使用 Ar 為濺鍍氣氛及流量 130 sccm，腔體真空度 $7.5 \sim 8.0 \times 10^{-3}$ torr，2 組鍍膜厚度分別約為 1~2 μm 及 3~4 μm 。濺鍍完成之鍍膜試樣，均依電池堆組裝之封裝固化程序，經高溫爐 850°C 煅燒 4 h，亦使陶瓷保護膜形成完全結晶結構形態。

2. 微結構觀察及結晶結構分析

特性分析包括使用 SEM (Hitachi S-4800I SEM, Japan) 觀察微結構，利用 EDS (Horiba EX-250 EDS, Japan) 分析元素組成及分佈，XRD (Bruker D8 Discover, Germany) 繞射分析用以獲得鍍膜之結晶結構。

3. 高溫電性量測

面積比電阻(Area Specific Resistance, ASR)電性量測為先於試片鍍膜面塗覆固定面積(0.28 cm^2)之 Au 導電極，反面則將氧化層磨除，以金線做為導線並使用 2 點 4 線式量測法，利用 Keithley 2400 電錶施予基板固定的電流值(140 mA)，並利用 Keithley 2700 電錶量測基板兩端點電壓值。試片持溫 800°C 於空氣氣氛(流量固定 2 l/min)，計算並記錄其電阻值，所得值乘以 Au 膠塗覆面積即得 ASR 值。

(三) 不銹鋼表面鍍覆錳鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究

本節實驗方法為取ss441不銹鋼，裁切成 $1 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ 之尺寸，以碳化矽砂紙依序(#260, #800, #1200)進行研磨，使表面平整並去除氧化層洗淨後，以脈衝直流磁控濺鍍(Mn, Co) $_3$ O $_4$ 陶瓷保護膜，濺鍍靶材為UMAT公司所製造(Mn, Co) $_3$ O $_4$ 尖晶石結構陶瓷靶，靶材與不銹鋼基板距離為5 cm，濺鍍時電源輸出功率為100 W，Ar氣氣流量為130 sccm，腔體真空度維持於 $7.5 \sim 8.0 \times 10^{-3}$ torr，濺鍍時間分別為100及200分鐘，鍍膜厚度分別為 $1.5 \pm 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ 及 $3.5 \pm 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ 。濺鍍完成之鍍膜試樣，經高溫爐850°C煅燒4小時，煅燒之升降溫速度為 $\pm 1^\circ\text{C}$ ，期間於350°C、600°C各持溫1小時，整個煅燒程序約歷時34小時，使陶瓷保護膜形成(Mn, Co) $_3$ O $_4$ 之尖晶石結構結晶形態，完成樣品的備製。

1. 微結構觀察

使用掃描式電子顯微鏡(Hitachi S-4800I SEM, Japan)觀察試樣之微結構，以15 kV之電子加速電壓及SE成像觀察試樣表面型態，並以能量分散式X-ray元素分析儀(HORIBA EMAX-Energy EDS, Japan)分析試樣之元素種類與成分組成。

2. 結晶結構量測

以X-ray粉末繞射儀(Burker D8 Discover, Germany)及低掠角繞射分析鍍膜層之結晶結構，使用Cu靶及 K_α 之X光($1.5406 \text{ }\text{\AA}$)，操作電壓及電流分別為40 kV及40 mA，掃描角度範圍 $2\theta = 15 \sim 80^\circ$ ，掃描速率為 $4^\circ/\text{min}$ ，掠射角度為 1° 。

3. 電化學量測分析

電化學量測以Radiometer Analytical公司的VoltaLab PZG301設備進行，系統選用三極電解槽，參考電極為Ag/AgCl (sat.)，輔助電極為白金線，工作電極面積為 $10 \times 10 \text{ mm}^2$ 的預氧化試片，量測溫度為室溫，電解液為硼酸緩衝液($0.075 \text{ M Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O} + 0.3 \text{ M H}_3\text{BO}_3$; pH 8.2)，緩衝液在量測前先以氮氣除氣30分鐘，每片試片量測前先以緩衝液靜置1小時，電化學阻抗頻譜掃描電位為 -0.3 V ，掃描頻率範圍為 $10 \text{ kHz} \sim 0.1 \text{ Hz}$ ，輸入交流電的振幅為 10 mV rms ，每個電位量測之間間隔30秒。

(四) 固態氧化物燃料電池堆介面層(保護層、集電層、接觸層)材料研製及電性量測

本節實驗為SOFC電池堆陰極及連接板介面之保護層、集電層、接觸層材料研製，包括： $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 MnCo_2O_4 (MCO)等接觸層材料粉末壓錠、 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 摻雜10 wt%之 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 MnCo_2O_4 (MCO)粉末壓錠，以及 $\text{Ni}_{0.33}/\text{Co}_{0.67}$ 摻雜10wt%之 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 MnCo_2O_4 (MCO)與Mn/Co摻雜10wt%之 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_3$ (LSC)之漿料塗佈於兩片ss441不銹鋼片間之三明治試樣等，於高溫800°C之電阻量測。

1. 試樣製備

將LSCF、LSM、MCO，以及 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 及混摻LSCF、LSM、MCO等加入適當之溶劑調和成漿料(固含量80%)，分別經70及120°C烘乾，以及球磨、篩分、造粒等程序後，將粉末置入模具中，以壓模機施以390 MPa壓力及持壓60 s，製

成直徑 8 mm、厚度 1 至 2 mm 之壓錠試樣。將 $\text{Ni}_{0.33}/\text{Co}_{0.67}$ 與 10wt% 之 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 MnCo_2O_4 (MCO)，以及 Mn/Co 與 10wt% 之 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_3$ (LSC)調和為漿料，塗佈於 2 片 ss441 不銹鋼之間，製得面積 $1 \times 1 \text{ cm}^2$ 之試樣。

2. 高溫電性量測

面積比電阻(Area Specific Resistance, ASR)量測為於試樣之二側塗佈金膠做為導電極，並連接金線作為導線；使用 2 點 4 線式量測法，利用 Keithley 2400 電錶施予基板固定的電流密度值(0.5 A/cm^2)，並利用 Keithley 2700 電錶量測基板兩端點電壓值。試片持溫 800°C 於空氣氣氛中，計算並記錄其電阻值，所得值乘以試樣塗佈導電極面積即得 ASR 值。

(五) $\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta}$ 陽極材料合成、改質、特性及導電性研

本研究以檸檬酸做為螯合劑，利用溶膠-凝膠熱分解法(sol-gel thermolysis method)合成具有雙鈣鈦礦相之鋇鎂鉬氧化物($\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta}$, SMMO)，應用於固態氧化物燃料電池(solid oxide fuel cell, SOFC)之陽極材料。利用X光繞射(X-ray diffraction, XRD)、感應耦合電漿-原子放射光譜儀(Inductively coupled plasma with atomic emission spectroscopy, ICP-AES)、熱重分析儀(Thermogravimetric analyzer, TGA)、熱機械分析儀(Thermomechanical Analyzer, TMA)及交流阻抗分析儀(AC Impedance Analyzer)等儀器，分別進行SMMO材料之成相結構、成分組成、氧化還原特性、熱膨脹係數及導電率等分析。研究顯示合成之SMMO粉末經 $1,200^\circ\text{C}/24$ 小時/空氣氣氛下與 $1,300^\circ\text{C}/4$ 小時/5% H_2/Ar 還原氣氛下之連續煅燒程序，可得到純相結構之SMMO材料。ICP分析顯示金屬成分莫耳比與理論值相符；TGA分析指出在5% H_2/Ar 氣氛下，溫度在 $600\sim 1,000^\circ\text{C}$ 之間有質量降低，歸因於氧空缺(oxygen vacancies)形成；SMMO溫度在 $300\sim 1,000 \text{ K}$ ，平均熱膨脹係數 $\alpha_{\text{mean}}=12.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ；SMMO在 800°C ， H_2 測試條件之導電率為 0.361 S/cm ，活化能為 0.218 eV ，表現出好的導電性。此外，本研究亦探討煅燒條件對於Cu-doped SMMO粉末中不純相的影響，改變粉末煅燒氣氛、煅燒溫度、煅燒時間、粉末篩分及流動氣氛等參數，利用X光繞射(X-ray diffraction, XRD)量測煅燒後Cu-doped SMMO粉末結晶相，計算不純雜相之比率。實驗結果顯示，Cu-doped SMMO粉末於空氣氣氛煅燒處理較於5% H_2/Ar 還原氣氛下容易移除不純相，且Cu-doped SMMO粉末經由篩分($\phi \leq 53 \mu\text{m}$)後，並於溫度 $1,200^\circ\text{C}$ 流動空氣氣氛下煅燒48小時，可以得到 Sr_3MoO_6 不純相S/P比值 $<2\%$ 之Cu-doped SMMO粉末。

1. 試樣製備

依化學莫耳數比分別秤取 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 、 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 及 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 等金屬前驅鹽，分別溶於去離子水中後混合，加入檸檬酸水溶液，並持續攪拌混合均勻。將混合均勻的溶液以升溫速率 5°C/min 加熱至 80°C ，於溫度 80°C 下加熱並持續攪拌至形成凝膠狀。將凝膠狀的試樣於溫度 110°C 並抽真空至乾燥，再研磨成細粉後，移入高溫爐，以升溫速率 5°C/min 加熱至 400°C ，在 400°C 下持溫 6 小時之熱處理，使有機物分解。再將粉末研磨為細粉，再以升溫速率 5°C/min 加熱至 800°C ，在 800°C 下持溫 10 小時之熱處理，使有機物充分熱分

解，形成具有 $\text{Sr}_2\text{MgMoO}_6$ 結構之粉末。另按化學計量比(1:1)秤取 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 、 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 及 $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 及 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 等粉末(純度 >99.99%，購自 Sigma-Aldrich)，分別溶於去離子水中並加以混合均勻溶解，加入檸檬酸(citric acid)於金屬離子混合溶液中，並以磁石不斷攪拌 1 小時使其混合均勻，於加熱包中加熱至所需的溫度，直至形成淡藍綠色的 sol-gel，放入烘箱中加熱至 110°C ，形成深藍色海綿狀粉末，將粉末進行磨細，放入高溫爐中進行 400°C 及 800°C 熱處理，使其有機物充分分解，並進行後續煅燒程序處理，即得到雙鈣鈦礦相之 Cu-doped SMMO 陽極粉末。

2. 熱膨脹係數量測

SMMO 粉末添加黏結劑(20wt%)及適量溶劑，經混勻、烘乾、造粒及過篩後，利用油壓機將粉末壓成圓柱狀試樣。試樣經燒結後置於熱機械分析儀(PerkinElmer Diamond TMA, USA)以 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 之速率，由室溫加熱至 $1,000^\circ\text{C}$ ，並記錄試片於升溫過程之熱膨脹曲線，量測過程爐內以 $50\text{ ml}/\text{min}$ 之氮氣作為保護氣氛。

3. 結晶結構分析

SMMO 粉末試樣以 X-ray 粉末繞射儀(Burker D8 Discover, Germany)分析成相之結晶結構，使用 Cu 靶及 $K\alpha$ 之 X 光($1.5406\text{ \AA}$)，操作電壓及電流分別為 40 kV 及 40 mA ，掃描角度範圍 $2\theta = 10\sim 80^\circ$ ，掃描速率為 $0.96^\circ/\text{min}$ 。針對不純相含量比率計算，定義為 S/P 比值，即為不純相最高強度除以 Cu-doped SMMO 最高強度(112)之比值。

4. 微結構觀察及組成分析

使用掃描式電子顯微鏡(Hitachi S-4800I SEM, Japan)觀察 SMMO 粉末及壓錠燒結試樣之微結構，以 15 kV 之電子加速電壓及 SE 成像觀察試片表面型態，並以能量分散式 X-ray 元素分析儀(HORIBA EMAX-Energy EDS, Japan)分析試片之元素種類與濃度組成。此外，利用影像分析軟體(Image Pro Plus)，分析 SEM 微結構觀察影像並計算 SMMO 壓錠燒結後試樣之孔隙率。

5. 高溫電導率量測

SMMO 壓錠試樣表面塗上一層金膠，以升降溫速率 $2^\circ\text{C}/\text{min}$ ，溫度從室溫升到 850°C 並持溫 1 小時。以 Pt 網做為電極，置入氧化鋁治具中，將 Pt 網之兩端接上交流阻抗分析儀，加熱槽內通入流量 $40\text{ ml}/\text{min}$ 之 $\text{N}_2(\text{g})$ ，以升溫速率 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ ，溫度從室溫升到 800°C ，再將氣體切換成 $\text{H}_2(\text{g})$ 通入加熱槽內，定電壓於 25 mV ，進行試樣活化並量測試樣電阻，直至量測出試樣的電阻值為恆定值。再以交流阻抗分析儀量測電導率，量測頻率範圍為 $0.1\text{ Hz}\sim 1\text{ MHz}$ ，量測溫度範圍從 800°C 到 500°C ，降溫速率以 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 降至預定量測的溫度並平衡 30 min ，再進行量測。所得數據取 $\ln(\sigma T)$ 對 $1/T$ 做圖，求得活化能值。

(六) 多元合金焊料於 SOFC 之封裝研究

本研究為開發硬焊合金做為電池片金屬基板與框架及電解質層與框架之封裝劑，並應用於 SOFC 電池堆封裝製程，包括以 ASC 及 MSC 單元電池組裝之電池堆。目前以商用合金 Ag-Cu-Ti 系列焊料進行 YSZ 電解質與 Crofer22H 金屬框架之

接合實驗，並藉由混摻低熱膨脹係數之陶瓷顆粒或纖維改善焊料熱物性質，以及獲得最佳封裝參數。

1. 試樣製備

使用商用硬焊合金Cusil-ABA添加1% PVA黏著劑，研磨並以篩網選出 $<75\ \mu\text{m}$ 粉體進行壓錠，荷重為2 tons維持2 min，後續通Ar氣氛在 550°C 持溫90 min分解PVA與 650°C 持溫30 min燒結，體密度可達 $8.37\ \text{g/cm}^3$ 。

2. 接著潤濕試驗

將商用Cusil-ABA合金與溶劑PVA摻和，以droplet方式分別與Crofer22H及YSZ基板接著，置入氣氛爐中抽真空至 $10^{-2}\sim 10^{-1}\ \text{torr}$ 或以充填氬氣後，以昇溫速率 5°C/min 加熱至 750 、 850 、 $1,000^\circ\text{C}$ ，持溫不同時間後，冷卻至室溫，觀察界面接著微結構或計算接觸角。

三、結果與討論

(一) 雲母/ $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能

雲母具有高熱耐受性及耐壓縮性，GC9玻璃則具有高熱膨脹係數，以及高溫熱物、化性穩定等特性。本研究以不同質量比例($x=0, 0.1, 0.2$)之雲母和GC9玻璃粉末混摻後進行燒結及結晶化，製成混成型之高溫密封劑(圖1)，並探討其電性及機械性質。先前之研究已揭示GC9玻璃粉末壓錠經燒結及結晶化處理後，其密度為 $4.34\ \text{g/cm}^3$ ，於燒結及結晶化過程其體積收縮率約為20%，而以相同條件處理之金雲母試片密度則為 $2.11\ \text{g/cm}^3$ ，其體積膨脹率約為3%。當雲母含量低($\leq 5\ \text{wt}\%$)時，其量測密度與理論密度相近，而當雲母含量 $\geq 10\ \text{wt}\%$ 時，其量測密度與理論密度呈現顯著之負偏差，其原因為隨著雲母含量的增加，試片內部因雲母與玻璃基質發生化學反應而生成許多孔洞，然而因所生成之氣孔僅侷限於雲母與玻璃陶瓷界面，因此多為封閉型之孔洞。不同混摻質量比例($x=0, 0.1, 0.2$)之雲母/玻璃粉末經燒結及結晶化處理後試樣之熱膨脹係數分別為 $10.6\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 、 $18.1\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 及 $11.8\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 。不同混摻比例試樣之高溫黏度均隨溫度上升而增加，惟相互之差異並不明顯，於 800°C 附近則為摻加雲母量多者之黏度較高(圖2)。試樣之常溫破斷強度隨雲母添加比例增加而降低，然而試樣之延性則隨之增加， $x=0, 0.1, 0.2$ 混摻試樣之平均破斷強度分別為61、35及26 MPa。此外，雲母/GC9玻璃粉末燒結試片($x=0, 0.1, 0.2$)於高溫(800°C)長時效($\sim 2,700\ \text{h}$)之電阻值隨量測時間而上升，其阻值分別為391, 69, 289 k Ω ，均遠大於SOFC連接板之高溫電阻值，可驗證雲母/玻璃混成型密封劑應用於SOFC封裝之絕緣適用性。雲母/玻璃粉末混摻($x=0.1$)密封劑與Crofer22APU不銹鋼基板經高溫接著固化後，經50次熱循環($\text{RT}\leftrightarrow 800^\circ\text{C}$)洩漏測試，其平均洩漏率值為 $2.1\times 10^{-4}\ \text{mbar}\cdot\text{l/s/cm}$ ，亦低於可容許上限值($5.2\times 10^{-4}\ \text{mbar}\cdot\text{l/s/cm}$)(圖3)。

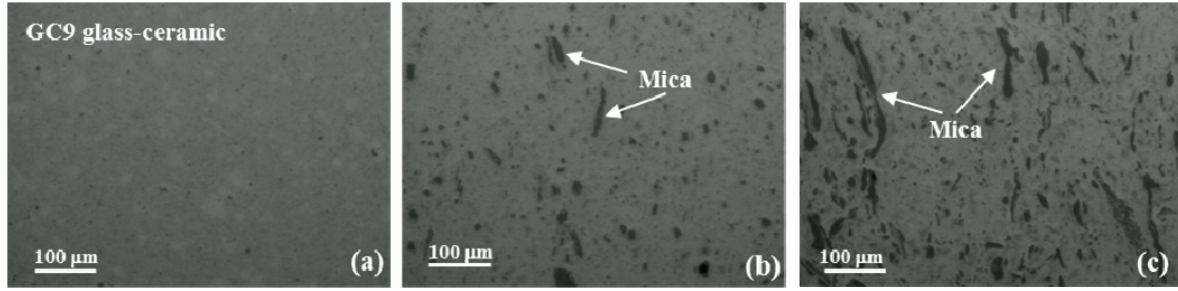


圖 1. 雲母/GC9 玻璃混摻比例 x 為(a) 0, (b) 0.1 及(c) 0.2 之燒結體剖面微結構

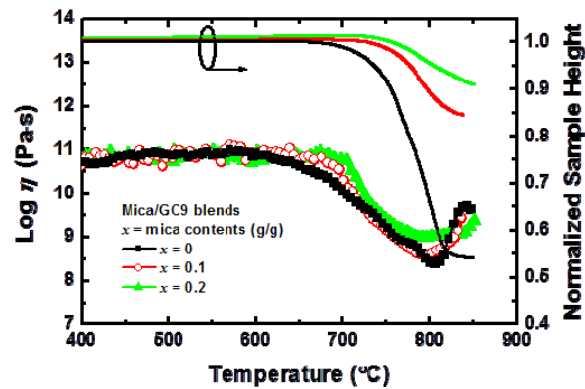


圖 2. 不同混摻比例之雲母/GC9 玻璃試樣高溫黏度及形變隨溫度之演變關係

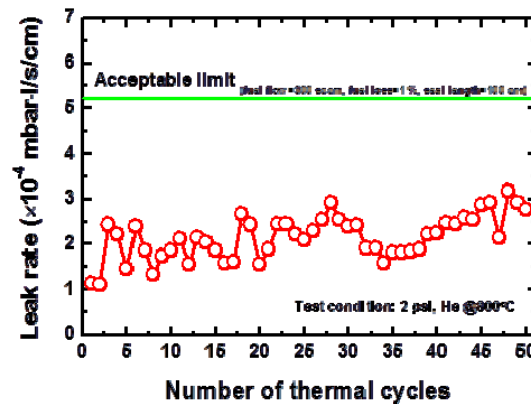


圖 3. 混摻比例 $x=0.2$ 之雲母/GC9 玻璃試樣高溫熱循環洩漏率

以GC9玻璃成分組成為基礎，優化組成元素之La/Ca莫耳比例，研製完成SBBALCZ系玻璃的熱膨脹係數介於7.74~11.8 ppm/°C (RT~600°C)，黏度介於 $10^{7.2} \sim 10^{8.9}$ Pa·s (@800°C)，洩漏率小於 10^{-4} mbar·l/s/cm。並可適用於(1) HTM電解質層(SCZY)；(2) O-SOFC電解質層(LSGM)；(3) P-SOFC電解質層(BSCYI)，等之高溫(700~900°C)接著。已完成上述元件與SBBALCZ玻璃封裝劑高溫(800°C)長時(1,000 h)接著耐久性與穩定性試驗(圖4)。

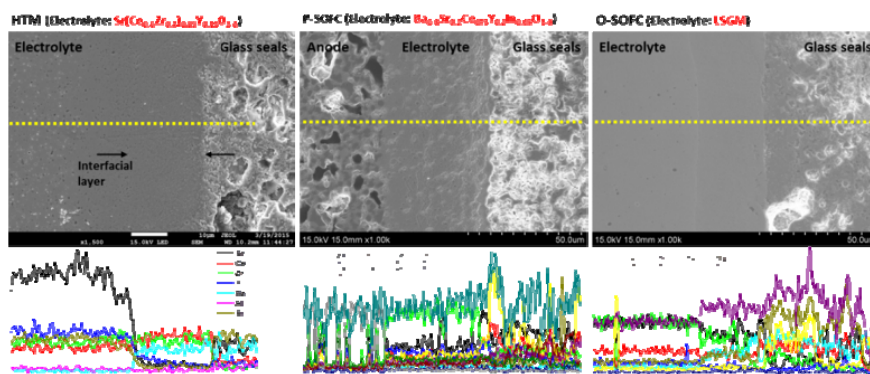


圖 4. SBBALCZ 玻璃封裝劑分別與 HTM、P-SOFC、O-SOFC 之電解質層於高溫(800°C)封接 1,000 小時後之界面微觀結構與組成元素分布(Line scan)

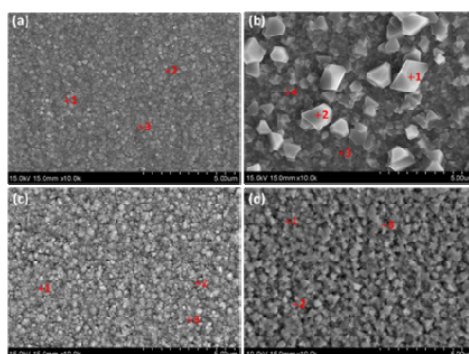


圖 5. ss441 披覆不同厚度 $(\text{Mn,Co})_3\text{O}_4$ 保護膜之表面形貌。(a)1.5 μm 初鍍膜；(b)1.5 μm 初鍍膜煅燒(850°C, 4 h)後；(c)3.5 μm 初鍍膜；(d)3.5 μm 初鍍膜煅燒(850°C, 4 h)後

(二) 金屬連接板批覆保護膜試樣高溫長時電性量測及氧化層分析

於金屬連接板表面鍍覆 MnCo 氧化物，可做為阻擋 Cr 擴散之保護層，MnCo 氧化物鍍膜使用尖晶石相之 $\text{Mn}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{O}_4$ 為靶材，由於 $\text{Mn}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{O}_4$ 與不銹鋼基材表面經高溫生成之 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 氧化層同為尖晶石結構，因此除熱膨脹係數較匹配，可有效減少界面層熱應力之外，經高溫熱處理程序後，亦不易因相變化致體積收縮，而引致裂紋產生。此外，本研究亦著重於金屬不銹鋼基材經預氧化處理，再施以保護膜層披覆，可藉由預氧化層及保護膜層等雙重效果，增益阻抑 Cr 擴散及抗氧化之功效(圖 5)。本研究已完成應用脈衝直流磁控濺鍍(Pulsed DC Magnetron Sputtering)法於 ss441 不銹鋼連接板表面披覆 $\text{Mn}_{1.5}\text{Co}_{1.5}\text{O}_4$ 保護層，並進行鍍膜試樣之高溫長時面積比電阻(ASR)量測。ss441 之 Cr 含量約 18wt%，抗氧化能力較 Crofer22APU (Cr:22wt%) 差，但成本約為後者之 1/10；尖晶石結構 $(\text{Mn,Co})_3\text{O}_4$ 之電性較佳，且與不銹鋼高溫預氧化層 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 結構契合，鍍膜不易皸裂。鍍膜試樣經於 800°C 累計持溫 9,735 小時之觀察及量測結果顯示，經預氧化處理之 ss441 試樣的氧化層附着情形顯著優於未預氧化試片。分別經 800°C 及 850°C, 25 小時預氧化處理後，再分別鍍覆 1.5 μm 及 3.5 μm 厚度 MCO 膜試樣之高溫 ASR 值介於 9.56~18.42 $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 之間，仍大幅低於實際應用之可接受值 100 $\text{m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ，以 800°C, 25 h 預氧化及 MCO 膜厚 3.5 μm 試樣之 ASR 值最低(圖 6)。結果

可驗證預氧化處理對於ss441不銹鋼披覆 $(\text{Mn}, \text{Co})_3\text{O}_4$ 保護膜，具有顯著提升鍍膜試樣之高溫電性及抗氧化能力。氧化層與電性演變之分析進行中(圖7)。

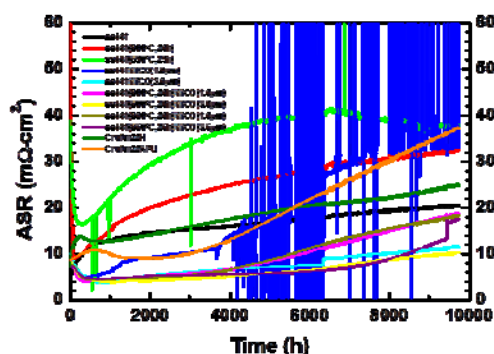


圖 6. Crofer22H、Crofer22APU 裸材及不同預氧化處理之 ss441 金屬連接板披覆不同厚度 MCO 膜試樣之高溫(800°C)面積比電阻(ASR)演變曲線

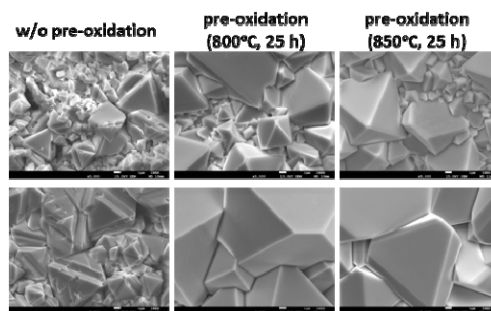


圖 7. ss441/MCO 鍍膜試樣經 800°C 持溫 9,735 h 後之表面形貌微結構。(鍍膜厚度：上列為 1.5 μm ；下列為 3.5 μm)

(三) 不銹鋼表面鍍覆錳鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究

先前之研究已顯示使用800°C預氧化製程及配合LSM保護膜披覆可有效抑制氧化層增生並阻絕Cr元素擴散。本研究以脈衝直流磁控濺鍍方式於商用之肥粒鐵系ss441不銹鋼基板表面鍍覆錳鈷氧化物 $(\text{Mn,Co})_3\text{O}_4$ 保護膜，並探討不同厚度($1.5 \pm 0.2 \mu\text{m}$ 及 $3.5 \pm 0.2 \mu\text{m}$)之保護膜層及基板氧化層組成與電化學阻抗之關係。初鍍膜試樣經850°C煅燒4小時熱處理，分別量測室溫下之電化學阻抗頻譜，並透過等效電路模擬各膜層的阻抗且與XRD、SEM/EDS之分析觀察比較。研究結果顯示， $(\text{Mn,Co})_3\text{O}_4$ 初鍍膜之等效電路模擬值約為120 Ω ，而1.5及3.5 μm 厚度之保護膜煅燒後的阻抗則分別為422 Ω 及203 Ω ，1.5 μm 厚度保護膜阻抗偏高的原因與 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 尖晶石生成有關，由SEM表面及截面分析發現1.5 μm 的保護膜高溫抗氧化力不足，保護膜表面生成 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 尖晶石造成膜面不平整，而3.5 μm 的保護膜試片無此現象。本研究同時探討ss441不銹鋼試片於不同氧分壓條件(空氣、低真空、氬氣)預氧化之氧化層平坦度及結晶結構觀察，XRD量測結果顯示，於真空條件($\sim 2 \times 10^{-2}$ torr)預氧化試樣之 $(\text{Mn,Cr})_3\text{O}_4$ 及 Cr_2O_3 繞射峰強度較於氬氣氣氛之試樣高；氧化層平坦度則依序為低真空、氬氣、空氣(氧化條件)。

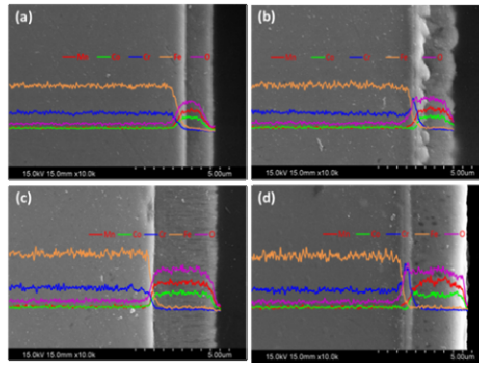


圖 8. ss441/MCO 鍍膜試樣之橫截面 SEM 微結構圖及 EDS 成份分析圖譜。(a)1.5 μm 初鍍膜；(b)1.5 μm 初鍍膜煅燒(850°C, 4 h)後；(c)3.5 μm 初鍍膜；(d)3.5 μm 初鍍膜煅燒(850°C, 4 h)後

(圖8)為ss441/(Mn,Co) $_3$ O $_4$ 鍍膜厚度1.5及3.5 μm 兩種厚度之初鍍膜及熱處理後試片之橫截面微結構SEM圖。(圖8(a)及6(c))鍍膜之厚度均勻，表面平整。經熱處理過後，圖8(b)的表面保護層鍍膜厚度不均，且出現裂隙，推測為基材經熱處理後生成氧化層所導致。由(圖8(b)、8(d))截面的EDS元素分析圖譜，顯示鍍膜層與基材之間生成Cr濃度較高之氧化層，然而內層的氧化層成長均勻，故膜面平整。以等效電路(圖9)模擬後，將(Mn,Co) $_3$ O $_4$ 膜層熱處理前後試樣，隨不同膜厚其阻抗的變化表示於(圖10)，由圖中所示，初鍍膜的阻抗受鍍膜厚度影響差異較小，其模擬阻抗值約為120 Ω ，而煅燒後1.5及3.5 μm 的(Mn,Co) $_3$ O $_4$ 保護層阻抗值分別為422 Ω 、203 Ω ，3.5 μm 厚度的(Mn,Co) $_3$ O $_4$ 經過熱處理後，其阻抗值較1.5 μm 厚度者小，推測原因為1.5 μm 試樣受到內部(Mn,Cr) $_3$ O $_4$ 及Cr $_2$ O $_3$ 氧化層增厚影響，膜面厚度不均且不平整，加上(Mn,Co) $_3$ O $_4$ 鍍膜中混合有(Mn,Cr) $_3$ O $_4$ 尖晶石結構導致阻抗增加。

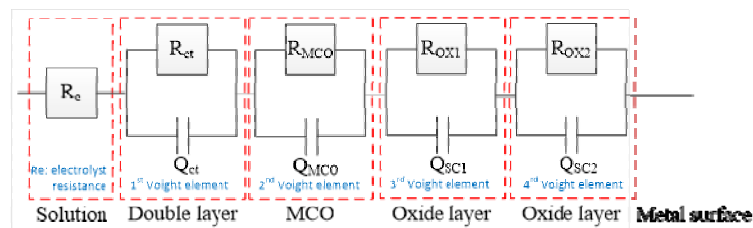


圖 9. 預氧化 ss441/MCO 鍍膜經煅燒後試樣之 EIS 量測數據等效電路模型

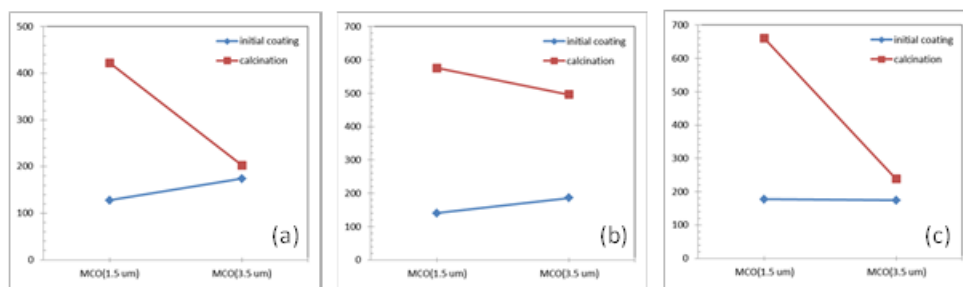


圖 10. 以等效電路模擬所得之鍍膜與氧化層：(a)(Mn,Co) $_3$ O $_4$ ；(b)(Mn,Cr) $_3$ O $_4$ ；(c)Cr $_2$ O $_3$ 之阻抗圖

(四) 固態氧化物燃料電池堆介面層(保護層、集電層、接觸層)材料研製及電性量測

美國太平洋西北國家實驗室(PNNL)之Z. Lu等人研製 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 應用於SOFC陰極與連接板之介面集電層材料，渠等之LSM/ $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ /AISI441試樣於 800°C , 1,200 h持溫後之ASR值為 $5.5 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 。本研究亦以 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 為基質，混摻10 wt%陰極材料，如 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ (LSCF)、 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (LSM)等，以及保護層材料，如 MnCo_2O_4 (MCO)。將混摻試樣壓錠後，量測其於 800°C 持溫之ASR值演變，初步結果顯示以 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ /MnCo₂O₄混摻試樣之ASR值為最低，如(圖11)所示。其等試樣經 800°C 持溫1,535小時後之微結構如(圖12(a)~(d))所示。此外，以接觸層材料LSCF、LSM、MCO粉末壓錠於高溫 800°C 進行導電率量測，累計持溫3,611小時，結果為LSCF： $4.84 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ，LSM： $11.90 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ，MCO： $13.73 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ 。另 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}$ /MCO粉末壓錠累計持溫4,464小時，ASR值約為 $4.9 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}^2$ ，其ASR曲線演變如(圖13)。另進行 $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}$ 粉末及混摻10wt% LSCF、LSM、MCO之漿料塗佈於ss441試片之 800°C 高溫電阻量測(試片皆經 850°C , 4 h熱處理)， $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}$ 試片累計持溫3,754小時，電阻為 $110.7 \text{ m}\Omega$ ，隨時間持平振盪；混摻試片累計持溫3,522小時，電阻為LSCF= $109.3 \text{ m}\Omega$ 、LSM= $70.9 \text{ m}\Omega$ 、MCO= $134.9 \text{ m}\Omega$ 。混摻試片之電阻亦隨時間持平振盪。Mn/Co粉末及混摻10wt% LSC、LSCF、LSM之漿料塗佈於ss441試片之 800°C 高溫電阻量測(試片皆經 850°C , 4 h熱處理)，則累計持溫2,872小時，電阻為Mn/Co= $73.8 \text{ m}\Omega$ 、LSC= $44.5 \text{ m}\Omega$ 、LSCF= $117.8 \text{ m}\Omega$ 、LSM= $94.4 \text{ m}\Omega$ 。Mn/Co及LSC試片之電阻隨時間持平振盪，LSCF、LSM混摻試片之值則微幅下降。(圖14)

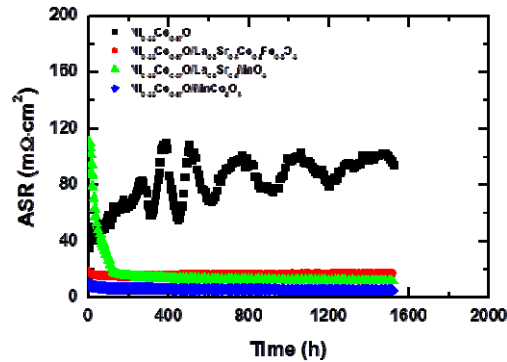


圖 11. $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 混摻 LSM, LSCF, MCO 氧化物之高溫(800°C)ASR 量測曲線演變

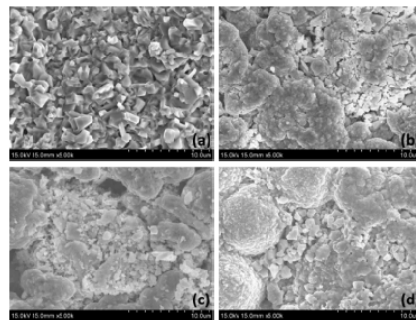


圖 12. (a) $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ ，以及混摻 LSM(b), LSCF(c), MCO(d)等氧化物於 800°C 經 1,535 小時後之微結構

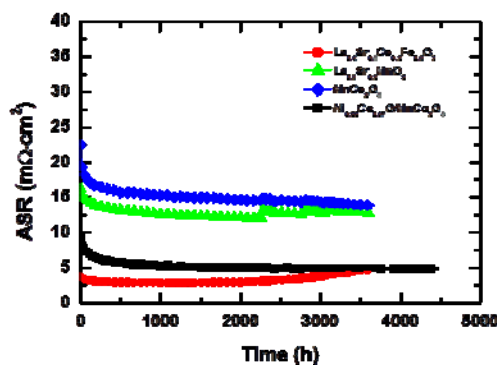


圖 13. $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}\text{O}$ 混摻 MCO 及 LSCF, LSM, MCO 等氧化物之高溫(800°C)ASR 量測曲線演變

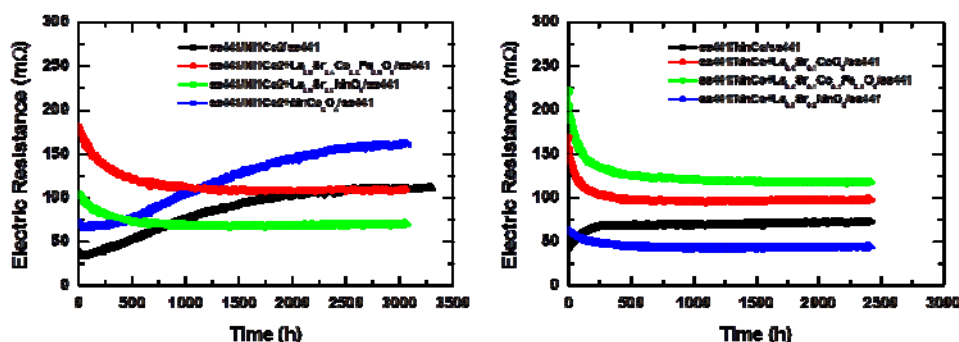


圖 14. (a) $\text{Ni}_{0.33}\text{Co}_{0.67}$ 與混摻 LSCF, LSM, MCO, 及(b) Mn/Co 與混摻 LSC, LSCF, LSM 等氧化物之高溫(800°C)ASR 量測曲線演變

(五) $\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta}$ 陽極材料合成、改質、特性及導電性研究

本研究以檸檬酸做為螯合劑，利用sol-gel法合成雙鈣鈦礦相之SMMO材料，未來應用於SOFC的陽極材料。調整煅燒條件並搭配ICP-AES分析及XRD分析儀鑑定，成功合成純相之SMMO材料，並且也針對純相之SMMO粉末進行穩定性研究及探討SMMO pellet的緻密程度、熱膨脹係數及導電率等研究。其相關研究彙整出四個重要結論：

1. 本研究成功合成純相之SMMO陽極材料。SMMO粉末經過1,200°C/24小時/空氣氣氛下與1,300°C/4小時/5% $\text{H}_2/\text{Ar}_{(g)}$ 還原氣氛下之連續煅燒程序，可有效移除SMMO粉末之 SrMoO_4 及 Sr_3MoO_6 不純相(圖15)。
2. 所合成之SMMO粉末經由XRD圖譜與TOPAS軟體分析得到晶相為triclinic結構(空間群為I-1)之純相SMMO材料，從ICP-AES分析SMMO粉末中Sr、Mg和Mo各金屬元素成分，其金屬莫耳比約為2:1:1，與理論值相同且SMMO粉末存放於真空環境中14個月，材料無產生不純相，顯示材料具有好的穩定性(圖16)。
3. SMMO粉末由TGA分析儀分析氧化還原特性，結果顯示具有好的抗Redox特性，多次氧化還原循環，材料化學性質穩定。
4. 所合成的SMMO粉末膨脹係數的平均TEC值為 $12.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ($300 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$) 與電解質材料 $\text{Ge}_{0.8}\text{Gd}_{0.2}\text{O}_{1.9}$ ($12.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) 的熱膨脹係數相匹配。

5. 所合成的SMMO材料在800°C、H_{2(g)}氣氛下，電導率可達0.361 S/cm，E_a為0.218 eV，顯示所合成出來的SMMO試樣其導電特性主要以電子電導性為主(圖17)。

此外，煅燒條件(煅燒氣氛、溫度、時間及粉末篩分)對於Cu-doped SMMO粉末中不純相的影響研究之實驗結果發現，Cu-doped SMMO粉末先經篩分($\phi \leq 53 \mu\text{m}$)，再經由溫度1,200°C流動空氣氣氛下煅燒48小時，可得到Sr₃MoO₆不純相S/P比值<2%之Cu-doped SMMO粉末，大幅降低Cu-doped SMMO粉末中的不純相(圖18)。以交流阻抗分析儀於800°C、氫氣氣氛下之電性量測結果則顯示，SMMO材料電導率為0.36 S/cm；而Sr₂Mg_{0.6}Cu_{0.4}MoO₆材料電導率為0.74 S/cm，相對於未以銅取代的SMMO材料電導率提升了106%之幅度，相關材料及製備方法已申請專利中。

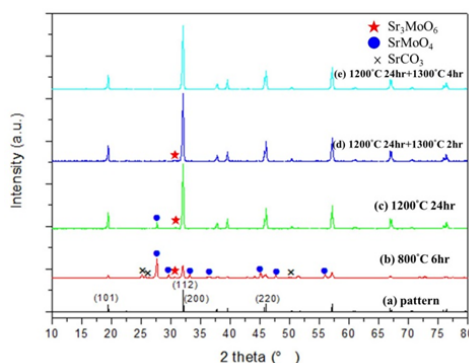


圖 15. SMMO 粉末先經空氣氣氛熱處理，再經 5%H₂/Ar_(g)氣氛下，不同煅燒程序之 XRD 圖譜

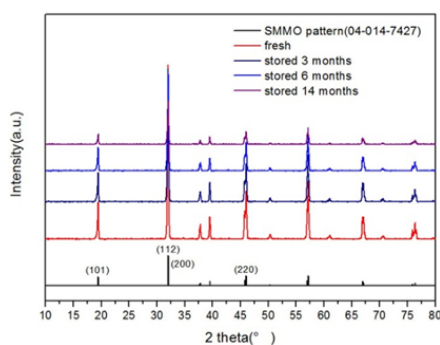


圖 16. SMMO 粉末存放於真空環境中，存放不同時間之 XRD 圖譜

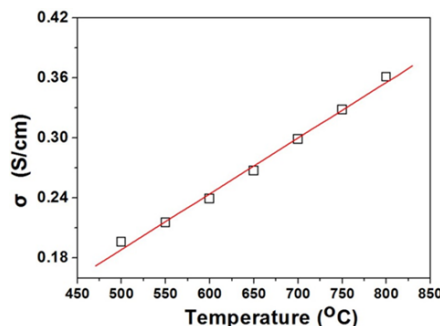


圖 17. SMMO pellet 試樣於 H_{2(g)}環境下，溫度對電導率圖

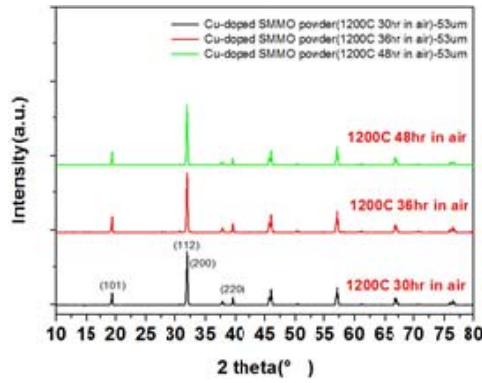


圖 18. Cu-doped SMMO 粉末於空氣氣氛、1,200°C 下，煅燒時間分別在 30 小時、36 小時及 48 小時下煅燒之 XRD 圖譜

(六) 多元合金焊料於 SOFC 之封裝研究

目前以商用合金 Ag-Cu-Ti 系列焊料進行 YSZ 電解質與 Crofer22H 金屬框架之接合實驗，以及接觸角之量測(圖 19)。目前之實驗結果顯示於溫度 750°C 時，Cusil-ABA 並不會熔化，僅呈現硬化；而於 850°C 時，Cusil-ABA 熔化，與 Crofer22H 試片之接觸角為 70°，而與 YSZ 試片之接觸角為 68°。1,000°C 時，Cusil-ABA[®] 與 Crofer22H 試片之潤濕性提昇(接觸角：47°)，與 YSZ 試片之潤濕性反而下降(接觸角：90°)。此系列焊料含 Ti 量低，後續將提升 Ti 含量，預期可改善與 YSZ 接著之潤濕性。本研究採原材料提供廠商建議階梯式升溫方式進行接合試驗(500°C & 700°C for 15 min, 830°C for 10 min@vacuum)，以 Cusil-ABA[®] 與 Crofer22H 及 YSZ 進行接著試驗，並進行接著試樣之橫截面微觀結構分析。結果顯示硬焊層元素種類含有 Ag, Cu, Ti, O，主要有三種相，分別為 Ag-Cu, Cu-rich 以及 TiO_x 等相，其中 Ti 偏析至 Crofer22H 與 YSZ 界面上，扮演潤濕(wetting)媒介，基材中 Fe, Zr 等元素與硬焊層之間並無交互擴散問題，且硬焊層厚度約 23 μm，如(圖 20)。後續進行相同條件之接合試驗與微結構觀察，驗證再現性，以及進行氣密與機械強度量測。

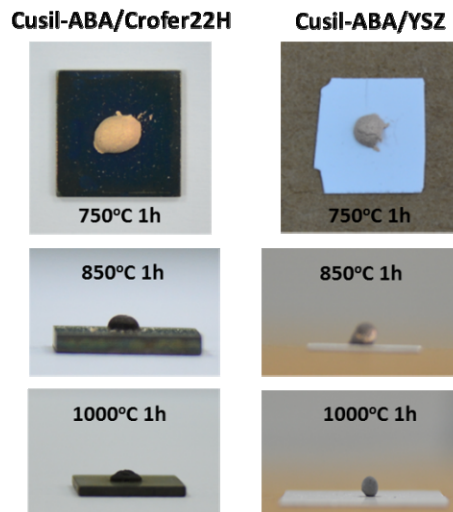


圖 19. Cusil-ABA[®] 合金與 Crofer22H 及 YSZ 接著潤濕試驗

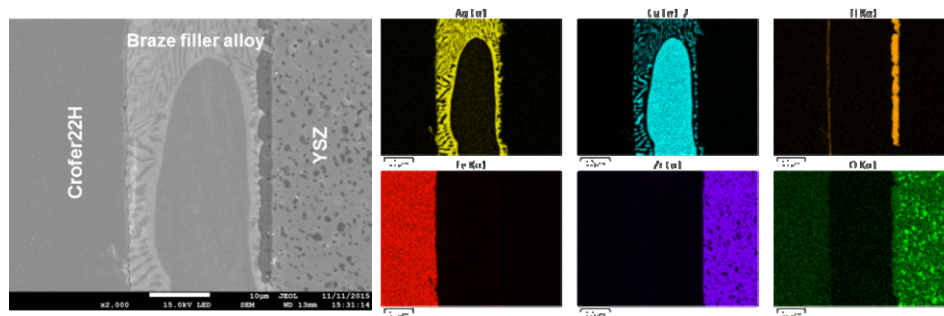


圖 20. Cusil-ABA[®]合金與 Crofer22H 及 YSZ 接著試樣橫截面微觀結構與元素分布

四、結語與未來工作重點

本年度連接板及密封材料子項的工作除配合達成計畫目標之外，未來實驗工作之重點將接續目前之工作成果並持續精進：

- (一) 低熔點耐壓玻璃陶瓷或混成密封材料之高溫長時封裝效能驗證，以及高溫封裝失效分析及建立失效補償模式。
- (二) 多元合金焊料於SOFC之封裝程序及材料開發。
- (三) SOFC金屬連接板保護層之低真空披覆製程及電化學特性研究暨電池堆介面層(保護層、接觸層、集電層)材料開發及研製。
- (四) 持續進行新穎SOFC陽極材料(SMMO)之研製、改質及特性分析。
- (五) 利用測漏、超音波或高能射線等技術，進行封裝材料及封裝製程之非破壞檢測方法及程序研究。

附註：學術活動及研究成果(包含子項人員主撰及共撰或共同發明人)

1. 期刊論文

- (1) Shih-Wei Cheng, Chun-Huang Tsai, Szu-Han Wu, Chien-Kuo Liu, Yung-Neng Cheng, and Ruey-Yi Lee, “Effects of Reduction Process on the Electrochemical and Microstructural Properties for Electrolyte Supported SOFC,” *Int. J. Hydro. Energy*, **40(3)**, 1534-1540 (2015).
- (2) Chih-Kuang Lin, Yu-An Liu, Si-Han Wu, Chien-Kuo Liu, and Ruey-Yi Lee, “Joint Strength of a Solid Oxide Fuel Cell Glass-ceramic Sealant with Metallic Interconnect in a Reducing Environment,” *J. Power Sources*, **280**, 272-288 (2015).
- (3) Chien-Kuo Liu, Kin-Fu Lin, and Ruey-Yi Lee, “Effects of Lanthanum-to-Calcium Ratio on the Thermal and Crystalline Properties of BaO–Al₂O₃–B₂O₃–SiO₂ Based Glass sealants for Solid Oxide Fuel Cells,” *J. Ceram. Soc. Japan*, **123(1436)**, 239-244 (2015).
- (4) Chien-Kuo Liu, Ruey-Yi Lee, Kun-Chao Tsai, Szu-Han Wu, and Kin-Fu Lin, “Characterization and Performance of a High-temperature Glass Sealant for Solid Oxide Fuel Cell,” *Advances in Solid Oxide Fuel Cells X*, **35(3)**, 65-75 (2015).

- (5) Chien-Kuo Liu, Peng Yang, Wei-Ja Shong, Ruey-Yi Lee, and Jin-Yu Wu, "Electrical and Microstructural Evolutions of $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ Coated Ferritic Stainless Steels after Long-term Aging at 800°C," *Advances in Solid Oxide Fuel Cells XI*, Accepted (2015).
- (6) Che-Ming Hsu, An-Chou Yeh, Wei-Ja Shong, and Chien-Kuo Liu, "Development of advanced metallic alloys for solid oxide fuel cell interconnector application," *J. Alloy. Compd.*, **656**, 903-911 (2015).

2. 國際會議(含大陸)會議

- (1) Chien-Kuo Liu, Peng Yang, Wei-Ja Shong, Ruey-Yi Lee, and Jin-Yu Wu, "Electrical and Microstructural Evolutions of $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ Coated Ferritic Stainless Steels after Long-term Aging at 800°C," The 39th International Conference & Exposition on Advanced Ceramic & Composites, Daytona Beach, FL (USA), Jan. 25-30 (2015).
- (2) Wei-Ja Shong, Chien-Kuo Liu, Chang-Wei Lu, and Szu-Han Wu, "Study on $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3\text{-Cu}_2\text{O}$ mixture as SOFC stack contact paste," 5th International Symposium on Advanced Ceramics and Technology for Sustainable Energy Applications toward a Low Carbon Society, Tainan (Taiwan), Nov. 8-11 (2015).
- (3) Peng Yang *et al.*, "The Influence of Spinel Protection Layers on the Interconnector ss441 for SOFCs," TACT 2015 International Thin Films Conference, Tainan (Taiwan), Nov. 15-18 (2015).
- (4) Liang-Wei Huang, Yau-Pin Chyou, and Ruey-Yi Lee, "The Application of Warm-Hot Gas Desulfurization Technology into SOFC Field by Iron-Based Sorbents," 第16屆全國氫能會議暨第8屆兩岸三地氫能研討會，江蘇省鎮江市(中國大陸)，Nov. 28-29 (2015).
- (5) Chien-Kuo Liu, Ruey-Yi Lee, Kin-Fu Lin, Szu-Han Wu, Kun-Chao Tsai, and Tung-Yuan Yung, "Development of High-temperature Glass-ceramic Sealant for Solid Oxide Fuel Cell Applications," 第16屆全國氫能會議暨第8屆兩岸三地氫能研討會，江蘇省鎮江市(中國大陸)，Nov. 28-29 (2015).
- (6) Chien-Kuo Liu, Wei-Ja Shong, and Ruey-Yi Lee, "Electrical and Mechanical Properties of Phlogopite mica/ $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Based Glass Sealants for Solid Oxide Fuel Cell," The 40th International Conference & Exposition on Advanced Ceramic & Composites, Daytona Beach, FL (USA), Jan. 24-29 (2016).

3. 國內會議

- (1) 曾惠萍、楊 朋、丁桓展、鍾翠芸、劉建國、李瑞益, "不銹鋼表面鍍覆錳鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究", 2015陶業年會, May 22, 台北市(劍潭海外青年活動中心), 台灣, 2015中華民國陶業研究學會年會暨學術論文發表會論文摘要集, p.70。
- (2) 劉建國、熊惟甲、李瑞益, "雲母/ $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能", 2015陶業年會, May 22, 台北市(劍潭海外青年活動中心), 台灣, 2015中華民國陶業研究學會年會暨學術論文發表會論文摘要集, p.181。
- (3) Tsui-Yun Chung, Chien-Kuo Liu, Jing-Kai Lin, Hui-Ping Tseng, and Ruey-Yi Lee,

“Synthesis, Characteristics and Electrical Conductivity of Cu-doped $\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta}$ Materials,” 2015化工年會，Nov. 5-7，義守大學。

- (4) 鍾翠芸、劉建國、曾惠萍、李瑞益，「 $\text{Sr}_2\text{Mg}_{1-x}\text{Cu}_x\text{MoO}_{6-\delta}$ 粉末合成與煅燒條件對粉末不純相影響之研究」，2015材料年會，Nov. 20-21，中鋼公司。

4. 專利

- (1) 曾惠萍等人，「一種利用動態與靜態交替之儲氫裝置及其方法」，中華民國專利 I476146號，2015/03/11。
- (2) W. J. Shong et al., “Solid oxide fuel cell stack modular structure,” 美國發明專利已獲通知領證。
- (3) 鍾翠芸、劉建國、林靖凱、曾惠萍、李瑞益，「具雙鈣鈦礦結構之鋇鎂鉬氧化物材料及其製造方法」，中華民國、美國專利申請中。

固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構－ 系統研發

一、前言

本計畫目標乃開發一輸出功率為 3~5 kW 且發電效率在 40% 以上之 SOFC 發電系統。本計畫首先以 Thermolib 為模擬工具，進行規劃 SOFC 之發電系統，本 SOFC 發電系統乃以 N.G. 為燃料且重組器以 $S/C=1.7$ 、 $O/C=0.3$ 進行燃料重組反應，電池堆之單電池操作電壓為 0.852 V、電流為 37 A，電池堆數量為 144 片。電池堆之燃料使用率為 62.6%、發電效率為 43.26%，此時電池堆之輸出功率為 4.545 kW，滿足系統設計需求。依據分析所得之平衡系統，可得到各熱工元件之溫度、壓力及質量流率，據此開發氣流分配盤、燃燒器、燃料重組器、燃燒重組器以及熱交換器等熱工元件，以建立國內 SOFC 各關鍵熱工元件製作之自主能力，然後再與電池堆組成新一代之 3~5 kW 無電熱式 SOFC 發電系統。

Thermolib 主要是建立在 MATLAB®/Simulink 下，為熱力學系統上的建模與模擬，燃料電池系統的建模與模擬。其主要功用可分成熱力學系統模組化設計，最佳化熱力學系統模型，系統模型與實際設備分析監控等。並包含基本元件庫(如熱交換器、泵、壓縮機、渦輪機、控制閥、化學反應器、燃料電池組等)、Sources & Sinks 元件庫、Thermodynamic States and Properties 熱動力狀態及性質元件庫、Reaction Chemistry 化學反應模組以及 Thermodynamic Balancing 熱動力平衡元件庫。上述模組皆可配合 MATLAB®/Simulink 使用，以期達成模組化系統設計之功效。本計畫在 100 年成功開發各熱工組件後，於該年底與電池堆組成本所第一代之 kW 級固態氧化物燃料電池發電系統，並成功發出 762 W 之電力。第一代 SOFC 發電系統之主要目的為測試各關鍵組件與電池堆組合後，輔以本所開發之控制邏輯以測試系統能否穩定運轉並發出電力，系統之升溫乃藉由高溫爐加熱，系統之整體體積略嫌龐大，熱散失量亦較為偏高。於 101 年開始進行燃燒器、燃料重組器、蒸汽產生器以及熱交換器等 SOFC 熱工元件之整合設計，經測試後其性能符合新一代進步型 SOFC 無電熱發電系統之需求。102 年以 SOFC 熱工元件之整合裝置與電池堆組裝成新一代進步型 SOFC 無電熱發電系統，並以 10 片裝本所自製電池堆進行系統之升溫測試，測試結果其性能符合預期，證實無電熱 kW 級 SOFC 發電系統之設計理念及控制邏輯符合電池堆之需求，無電熱裝置發電系統其體積較第一代 SOFC 原型系統體積減少 55% (目標值為體積減少 40%)。103 年在不影響 SOFC 發電系統性能下，致力於點火器及 SOFC 熱工元件整合裝置之縮小化，使系統在整合後其體積再縮小 20%，使系統能更為快速的進行升溫及提升系統效率。本年度將在現有研究基礎下，致力於 3~5 kW 級熱工元件整合裝置之開發及測試，再進一步進行 3~5 kW 級 SOFC 發電系統之設計；由於 3~5 kW 級 SOFC 發電系統與 kW 級 SOFC 發電系統之熱工元件整合裝置加工成本差距不大，所使用之 MFC、Blower 及 Water Pump 之成本亦接近，因此系統每 kW 之單價成本將大幅降低，極具市場之競爭力。

本年度亦同時進行kW級SOFC無電熱式發電系統之長期測試及kW級SOFC緻密型發電系統之性能測試，kW級SOFC無電熱式發電系統係結合本所組裝Elcogen 18片裝電池堆進行系統之長期測試，系統歷經稀釋氣體升溫、轉換至以氫氣進行P-I-V測試、轉換至以重組氣體進行P-I-V測試、並以重組氣體進行定電流長期穩定運轉至降載降溫，全程系統共運轉約800小時，系統熱工組件性能無衰退現象，驗證無電熱SOFC發電系統之設計及控制邏輯之可靠性。kW級SOFC緻密型發電系統則結合本所組裝Elcogen 36片裝電池堆以進行系統之性能測試，測試結果，系統發電效率約為43%，結合熱能回收，整體效率高達88%。

本年度同時執行與台灣OO公司綠能所簽訂之計畫[高溫燃料電池系統測試與關鍵零組件開發]，計畫之第一期目標為在綠能所建置一套結合啞電池堆之無電熱式kW級SOFC發電系統，並持續運轉100小時；在建置完成並進行先期測試後遂進行無電熱式SOFC發電系統之長期測試，測試共歷經4個階段。第一階段為點火成功後，陽極以 $H_2=4$ LPM、 $N_2=12$ LPM，陰極以 $Air=70$ LPM進行系統之升溫作業。當電池堆表面平均溫度達 $600^{\circ}C$ 以上時即開始進行第二階段重組氣體之轉換，其轉換程序採逐步調升陽極 CH_4 及 H_2O 之進料並同時調降 H_2 及 N_2 之進料，並控制燃燒器最高溫度在 $900\sim 950^{\circ}C$ 之間，至 H_2 及 N_2 調降至為零為止，並將陽極調升至額定燃料值之57.5% ($CH_4=2.42$ LPM)及 $S/C=2$ ，而陰極流量仍維持 $Air=70$ LPM。第三階段則將陰極流量調降至 $Air=60$ LPM，陽極進料維持不變，第四階段再將陰極流量調降至 $Air=50$ LPM，陽極進料仍維持不變，第三階段與第四階段其控制方式與第二階段相同，系統全程運轉歷程超過160小時，高於合約規範之100小時運轉時間。測試期間啞電池堆之表面平均溫度皆大於 $600^{\circ}C$ ，陰陽極氣體入口之溫度皆大於 $600^{\circ}C$ ， CH_4 轉化率皆大於98%，皆符合合約規範，為計畫拓展SOFC產業平台墊下一良好之基礎。

二、實驗方法步驟

(十九) SOFC BOP規劃

本計畫目標乃開發一輸出功率3~5 kW級及發電效率在40%以上之SOFC發電系統。本研究以N.G.為燃料且重組器之 $S/C=1.7$ 、 $O/C=0.3$ ，電壓為0.852 V及電流為37 A，電池堆之燃料使用率為62.6%、發電效率為43.26%，且電池堆之輸出功率為4.545 kW，滿足系統設計需求如(圖1)所示。依Thermolib規劃出SOFC平衡系統，可得到各熱工元件之溫度、壓力及質量流率，據此以開發燃燒器、燃料重組器、以及熱交換器等SOFC熱工元件之整合裝置並進行測試，然後再再進一步進行3~5 kW級SOFC發電系統之設計。

(二十) 3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之開發及測試

1. 3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之設計概念

(圖2)所示為本計畫自行設計之3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之概念設計圖。其設計特點為將燃燒器、蒸汽產生器、重組器及熱交換器整合為一單一元件，燃燒器為於最內層，第二層為重組器，第三層為陰極空氣預熱器，最外層則為陰極熱空氣出口單元。由於各組件間無管線銜接，因此，更易於與電池堆組裝成固態氧化物燃料電池發電系統，且能使系統更為緻密簡潔，有效減少系

統體積進而降低系統熱散失以提升系統之整體效率。而重組器將燃燒器包覆其內，同時吸收燃燒器燃燒後產生之高溫氣流、及燃燒器之傳導與輻射之熱能，不僅可降低表面溫度且重組器與燃燒器之間無管線連接，因此能有效降低熱散失，同時可降低燃燒器之操作溫度以降低系統運作時之風險。而陰極空氣預熱器則用以加熱SOFC陰極端所需之空氣，新鮮空氣進入陰極空氣預熱器時，可同時吸收來自燃燒器高溫尾氣及陰極出口之高溫熱空氣之熱能，以預熱至SOFC陰極所需之入口溫度；然後，再與陽極之富氫氣體在SOFC內進行電化學反應，陰極空氣在SOFC內將再吸收熱能進而使溫度再提升，然後，再進入陰極熱空氣出口單元，並提供部份熱能供陰極空氣預熱器以預熱新鮮空氣，並達降溫之目的；然後，降溫後之陰極出口空氣再進入燃燒器內，與來自陽極之殘餘燃料在多孔性介質燃燒單元進行燃燒反應。

2. 3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置測試平台之建置及其性能測試

在設計3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置及製造完成後，需先建置一3~5 kW級熱工元件整合裝置測試平台以測試其性能是否符合系統需求。3~5 kW級熱工元件整合裝置測試平台及其測試結果如(圖3)所示，主要包含：熱工元件整合裝置、氣體及水供應之質量控制器、點火電極、熱電偶及氣體成份分析儀，並以資料擷取與控制系統來控制氣體及水之流量及燃燒器之內部溫度。在重組器之進料為N.G.=16.8 LPM、Air=14.4 LPM及Water=24.4 cc/min時(燃料額定值之80%)，陰極空氣為260 LPM，燃燒器需添加額外之冷卻空氣270 LPM，控制燃燒器內最高溫度約為870°C，此時陰陽極出口溫度分別達714.5°C及773°C，且重組後之氣體成份為H₂=59%、CO=20.5%、CO₂=1.68%及CH₄=0%，天然氣重組率達100%。

(二十一) 3-5 kW級SOFC 發電系統組裝圖

在完成3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置測試平台之建置及其性能測試後，驗證其性能符合3~5 kW級SOFC發電系統之要求，遂進行3~5 kW級SOFC 發電系統組裝之設計，(圖4)為其組裝之設計示意圖，其體積約為65×65×150 cm³。

(二十二) 無電熱式kW級SOFC發電系統之長期測試

持續進行無電熱式SOFC發電系統之長期測試以累積系統運轉經驗，並驗證系統熱工元件及控制邏輯之可靠性亦為本年度工作重點之一。(圖5)所示為無電熱式SOFC發電系統，結合以本所組裝Elcogen 18片裝電池堆之長期測試之結果圖，由圖所示系統歷經稀釋氣體升溫、轉換至以氫氣進行P-I-V測試、轉換至以重組氣體進行P-I-V測試、系統因Hood失效而進行停機、再次升溫後並以重組氣體進行定電流長期穩定運轉至降載降溫，全程系統共運轉約800小時，系統熱工組件性能無衰退現象，驗證無電熱SOFC發電系統之設計及控制邏輯之可靠性。(圖6)所示為無電熱式SOFC發電系統在結合Elcogen 18片裝電池堆長期測試之電力輸出曲線圖，期間曾進行電池堆增加電力輸出之短期測試，在陽級燃料進料為3.68 LPM時電流增加至39 A時功率輸出為553.5 W。

(二十三) 緻密型kW級SOFC發電系統之性能測試

kW級SOFC緻密型發電系統係進行熱工元件整合裝置之縮小化設計及進行管件之最佳化配置其體積較無電熱式kW級SOFC發電系統減少20%，因此其更為

緻密簡潔能有效減少系統之熱散失以增加系統之整體效率。系統使用計畫組裝 Elcogen 36 片裝電池堆以進行性能測試，測試結果，在 $\text{CH}_4=4.62$ LPM 及 $\text{H}_2\text{O}=6.8\text{c.c./min}$ 時，在定電流系統發 37A 時功率輸出為 1,081 W，發電效率約為 43%，結合熱能回收，整體效率高達 88%。(圖 7) 所示為緻密型 SOFC 發電系統結合電池堆之測試流程及結果圖，(圖 8) 所示為其電流電力輸出圖。

(二十四) 於台灣 OO 公司綠能所建置測試無電熱式 kW 級 SOFC 發電系統

本年度執行與台灣 OO 公司簽訂之計畫「高溫燃料電池系統測試與關鍵零組件開發」，計畫之第一期目標將為其在綠能所廠區建置一套結合啞電池堆之無電熱式 kW 級 SOFC 發電系統，並持續運轉 100 小時，測試條件為陽極進料 2.1 LPM 及陰極空氣為 60 LPM 時，其陰陽極出口可達 700°C 以上，電池堆表面平均溫度達 600°C ， CH_4 轉化率達 90% 以上。

在無電熱式 kW 級 SOFC 發電系統於核研所測試結果符合合約需求後，即開始進行包裝、運送、卸貨及安裝測漏等作業；在核研所進行包裝作業後，移載至台灣 OO 公司進行卸貨作業，經啞電池堆之安裝與測漏作業，其後進行高溫爐放置作業及安裝連接系統與抽風櫃之排氣管線，以利系統尾氣之順利排放，如(圖 9)。

在完成先期測試後確認系統之燃燒器、重組器正常運作，各控制元件與量測元件之作動亦正常運作，電腦、儀控裝置與各控制單元之間訊號傳遞亦無異常，僅氣體分析儀之氫氣氣體成份量測數值偶爾會突然劇降，評估其不影響整體效能，進行無電熱式 SOFC 發電系統之運轉驗證測試。

無電熱式 SOFC 發電系統長期運轉如(圖 10)所示共歷經 4 個階段。第一階段為點火成功後，陽極以 $\text{H}_2=4$ LPM、 $\text{N}_2=12$ LPM，陰極以 $\text{Air}=70$ LPM 進行系統之升溫作業。當電池堆表面平均溫度達 600°C 以上時即開始進行第二階段重組氣體之轉換，其轉換程序採逐步調升陽極 CH_4 及 H_2O 之進料並同時調降 H_2 及 N_2 之進料，並以燃燒器側之 CH_4 及冷卻空氣控制燃燒器最高溫度在 $900\sim 950^\circ\text{C}$ 之間，至 H_2 及 N_2 調降至為零為止，並將陽極調升至額定燃料值之 57.5% ($\text{CH}_4=2.42$ LPM) 及 $\text{S/C}=2$ ，而陰極流量仍維持 $\text{Air}=70$ LPM。第三階段則將陰極流量調降至 $\text{Air}=60$ LPM，陽極進料維持不變，第四階段再將陰極流量調降至 $\text{Air}=50$ LPM，陽極進料仍維持不變，第三階段與第四階段其控制方式與第二階段相同，系統全程運轉歷程超過 160 小時，高出合約規範之 100 小時運轉時間。

(圖 11) 所示為系統長期運轉測試時電池堆之溫度分佈圖，陽極進料為 57.5% 之額定燃料值及陰極氣體流量為 60 LPM 以下時，啞電池堆之表面平均溫度大於 600°C ，符合合約規範。(圖 12) 所示為系統長期運轉測試時陰陽極氣體入口之溫度分佈圖，全程測試陰陽極氣體入口之溫度皆大於 700°C ，亦符合合約規範。(圖 13) 所示為系統長期運轉測試時氣體分析儀各氣體成份之分佈圖，全程測試 CH_4 最高約 0.5%，其 CH_4 轉化率皆大於 98%，符合合約在陽極進料為 50% 之額定燃料值時， CH_4 轉化率大於 90% 之要求。

(二十五) 進行 OO 公司技術服務案「1 kW SOFC 系統尾氣熱回收設計」之規劃設計

OO 公司既有 kW 級固態氧化物燃料電池系統並無尾氣熱能回收裝置之設計，因此僅能估算其可回收之熱能並計算系統之整體效率。而藉由此技術服務

案，由尾氣管線內增加一組板式熱交換器，將其回收水與原先系統連接，藉此提升系統熱回收效率與增加尾氣排放之水回收，此設計將可實際計算系統之整體效率並回饋SOFC發電系統未來熱能回收之設計準則。尾氣熱回收設計於OO公司既有系統後端增設一水流量計與熱電偶，以及修改控制程式以增加擷取並紀錄水流量計及熱電偶訊號，可供測量冷卻水量與溫度變化量。

三、結果與討論

3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置經測試後其性能均符合系統之需求，驗證本計畫在SOFC系統熱工元件設計之能力，亦為未來設計3~5 kW級SOFC發電系統墊下一良好之基礎。第二代無電熱SOFC發電系統以Elcogen 18片裝電池堆進行長期測試，在歷經稀釋氣體升溫、轉換至以氫氣進行P-I-V測試、轉換至以重組氣體進行P-I-V測試、系統因Hood失效而進行停機、再次升溫後以重組氣體進行定電流長期運轉至降載降溫，全程系統共運轉超過800 h，在陽級燃料進料為3.68 LPM時電流增加至39 A時功率最大輸出達553.5 W，無電熱SOFC發電系統已累積運轉時數超過3,000小時，並經歷約30次之熱循環測試，各熱工組件性能無衰退現象，驗證無電熱SOFC發電系統之設計理念及控制邏輯之可靠性。緻密型kW級SOFC發電系統結合本所組裝Elcogen 36片裝電池堆以進行性能測試，測試結果，在 $\text{CH}_4=4.62$ LPM及 $\text{H}_2\text{O}=6.8\text{ c.c./min}$ 時，在定電流37 A時功率輸出為1,081 W，發電效率約為43%，結合熱能回收，整體效率高達88%。與台灣OO公司之合作計畫[高溫燃料電池系統測試與關鍵零組件開發]，在執行包裝、運送、卸貨及安裝極測漏等作業後已將無電熱式kW級SOFC發電系統成功裝置於台灣OO公司之氫能實驗室。在完成先期測試後，遂開始進行無電熱式SOFC發電系統於公司之長期運轉測試。在歷經160小時之測試，啞電池堆之表面平均溫度大於 600°C 、陰陽極氣體入口之溫度皆大於 700°C 以及 CH_4 轉化率大於98%，皆符合合約之規範。

四、結語與未來工作重點

在完成3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之設計及測試，及完成3~5 kW級SOFC發電系統之設計後，後續將進行3~5 kW級SOFC發電系統之組裝及測試。無電熱式kW級SOFC發電系統已成功裝置於台灣OO公司之氫能實驗室，本年度計畫為第一期計畫，計畫重點為完成kW級固態氧化物高溫燃料電池(SOFC)啞電池堆發電系統硬體組裝並安裝於台灣OO公司，以及完成內建啞電池堆之系統操作運轉測試。在完成發電系統硬體組裝、移載並安裝於台灣OO公司後，順利的完成100小時以上之長期測試，測試結果啞電池堆之表面平均溫度、陰陽極氣體入口之溫度以及 CH_4 之轉化率皆符合合約規範。而經由一系列SOFC之基礎訓練課程、BOP之規劃設計、熱工元件之概念設計、SOFC發電系統之組裝、SOFC發電系統之邏輯控制以及SOFC發電系統之實機操作，OO公司之合作夥伴亦紮下良好之根基。展望未來，第二期計畫將以實際之電池堆安裝於無電熱式kW級SOFC發電系統，進行以天然氣為燃料之升溫及電力拉載作業。

重要KPI指標

技術授權

執行與台灣OO公司簽署「高溫燃料電池系統測試與關鍵零組件開發」之委託研究案，金額共463萬。已完成計畫之履約標的。

與台灣OO公司簽署「高溫燃料電池系統測試與關鍵零組件開發」之第二期之委託研究案，金額共481萬。

技術服務

進行OO公司技術服務案「1 kW SOFC系統尾氣熱回收設計」之立案，金額共34萬元整。

榮譽事蹟

緻密型SOFC發電系統參與2015台北發明展之發明競賽榮獲金牌獎。

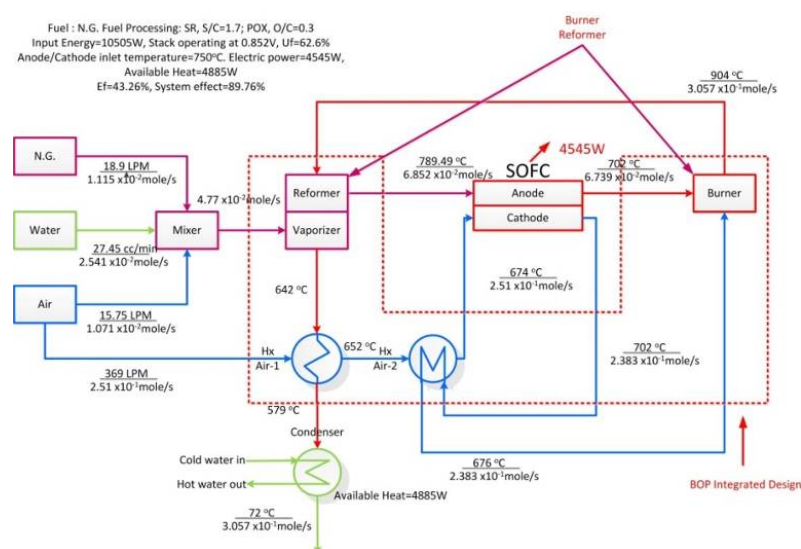


圖1. 以Thermolib規劃之3~5 kW級SOFC平衡系統

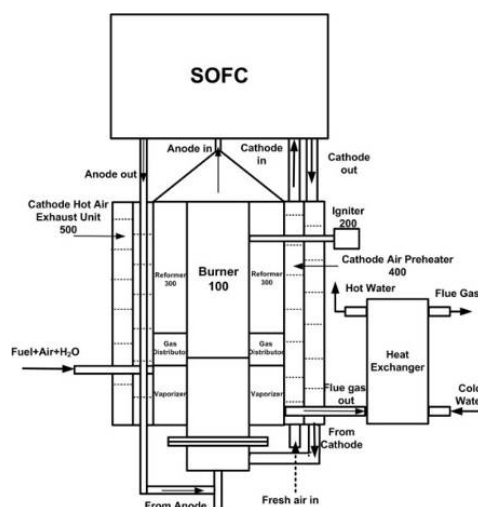


圖2. 3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之概念設計圖

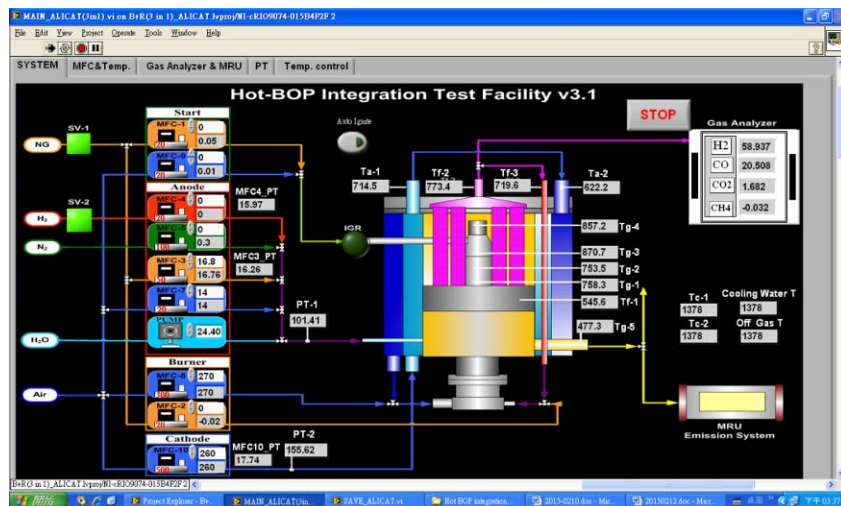


圖3. 3~5 kW級SOFC熱工元件整合裝置之測試流程及結果圖

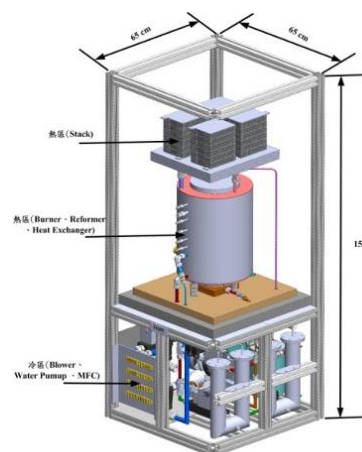


圖4. 3~5 kW級SOFC發電系統組裝之細部設計圖

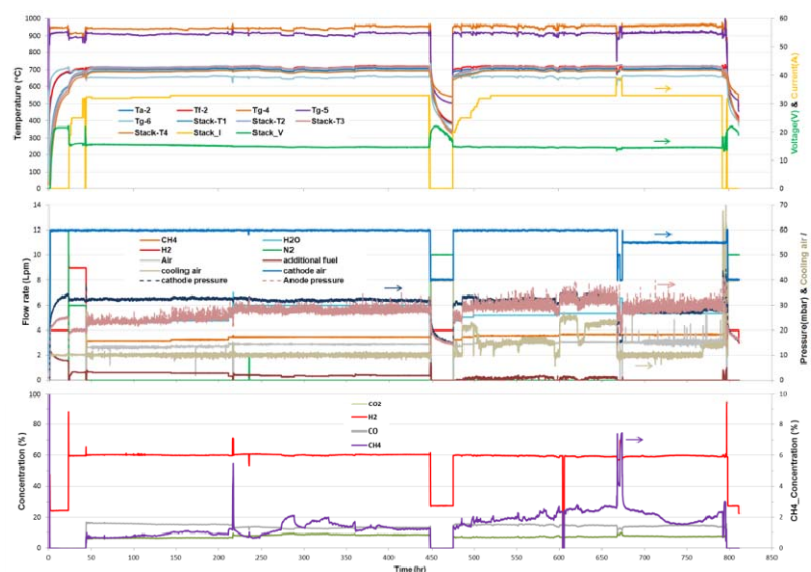


圖5. 無電熱式SOFC發電系統結合本所組裝500 W 級Elcogen 18片裝電池堆之長期測試之結果圖

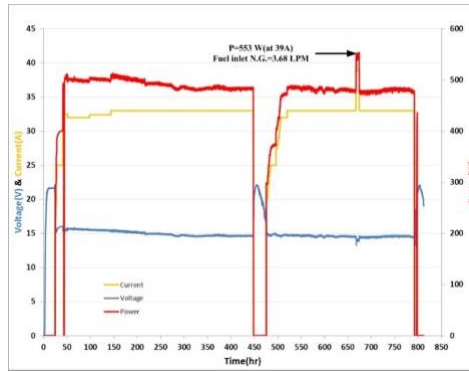


圖6. 無電熱式SOFC發電系統結合本所組裝500 W級Elcogen 18片裝電池堆之電力輸出圖

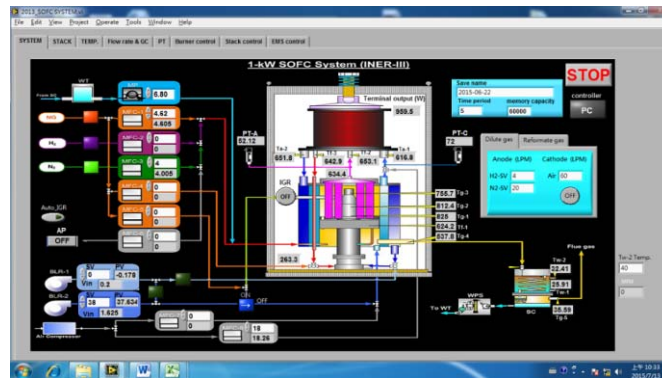


圖7. 緻密型SOFC發電系統結合本所組裝kW級Elcogen 36片裝電池堆之測試流程及結果圖

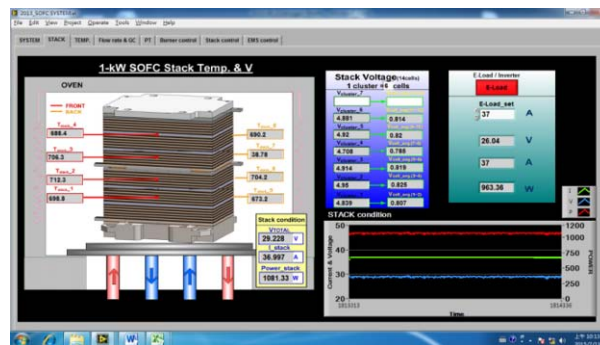


圖8. 緻密型SOFC發電系統結合本所組裝kW級Elcogen 36片裝電池堆之電流電力輸出圖



圖9. 進行高溫爐放置作業及安裝連接系統與抽風櫃之排氣管線

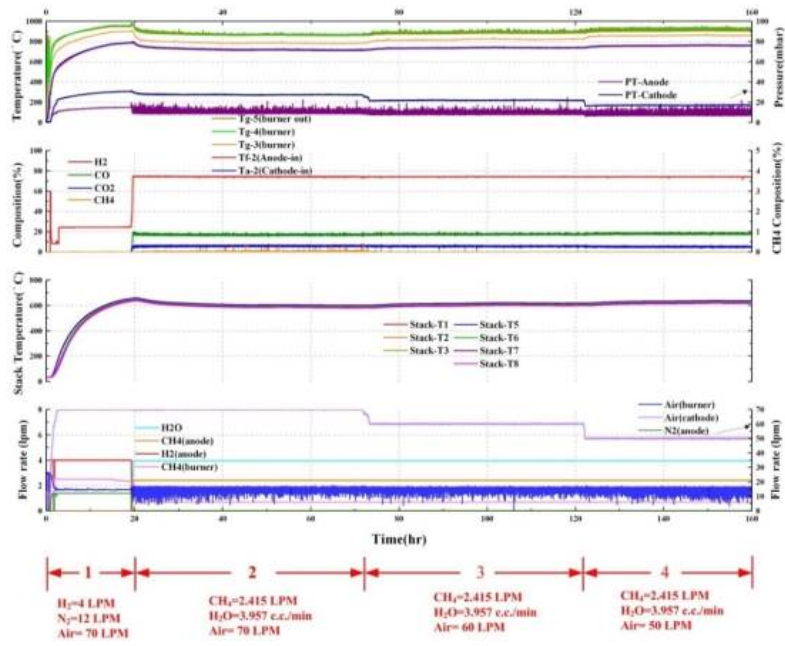


圖10. 無電熱式SOFC發電系統長期運轉之歷程

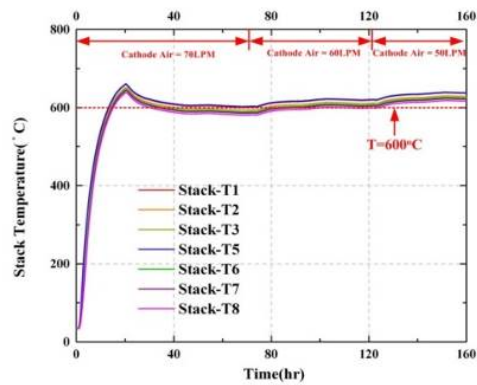


圖11. 系統進行長期運轉測試，電池堆之溫度分佈圖

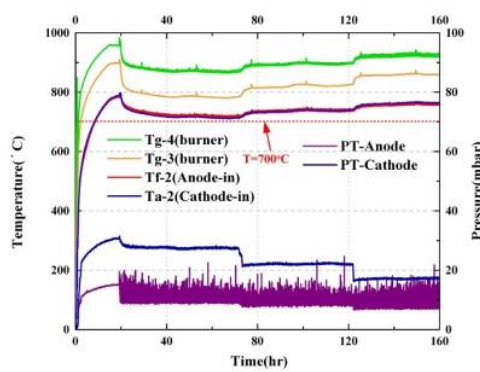


圖12. 系統進行長期運轉測試，陰陽極氣體入口之溫度分佈圖

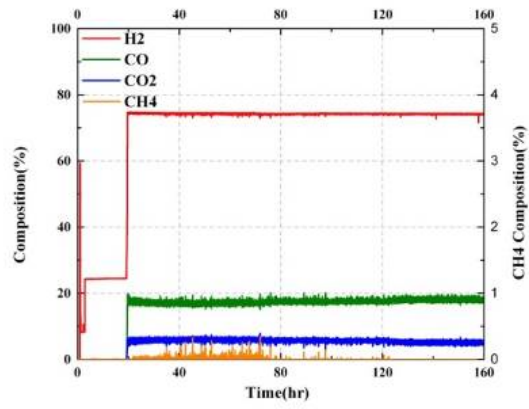


圖13. 系統進行長期運轉測試，氣體分析儀各氣體成份之分佈

固態氧化物燃料電池發電系統開發暨產業化建構－ 電池單元與電池堆之測試及分析

一、前言

電池單元及電池堆之測試與模擬分析是 SOFC 研究開發過程中必不可少的重要環節，測試的目的在於評估電池堆相關組件之材料、設計和性能等之表現，以建立標準作業程序進而提供最佳單元電池和電池堆相關數據以為後端系統測試之參考依據。模擬分析之目的則是預測和瞭解燃料電池操作參數之影響，以明瞭各電池堆運轉條件下其內部氣體濃度、溫度、電流密度與流場等的分佈，以利相關之實驗規劃與驗證。

在單元電池測試中，主要是評估單電池片的材料、效能、阻抗和衰減速率，建立並驗證本所自製與商業電池單元之效能檢測能力，以提供符合電池堆組裝規範所需之電池單元。在測試的過程，探討工作溫度、氣體成分與流量、電流密度、熱循環、燃料使用率等多個參數對電池單元性能之影響及其作用機制，藉以提出增加電池單元整體長期穩定性之方法，並將其應用於電池堆程序上。本所開發的平板式 SOFC 電池堆是由重複單元在垂直方向串聯而成，主要組件有電池片、金屬連接板和密封組件等。於設計模擬分析，需考慮燃料氣體和氧化氣體能夠分別均勻傳輸到多孔陽極和陰極的表面上，並保持電導組件的良好接觸和氣體隔絕之密封性質。於電池堆測試方面，重點為評估各組件間之連接情況及相互適應性、氣體流場的均勻性與壓力差、熱循環特性、以及長時效能衰減速率。測試所需控制的操作條件一般包含工作溫度、供應的氫氣燃料及空氣流量等，該工作溫度的範圍依電池單元之材料而異，通常與較高的操作溫度，能獲得較好的功率輸出。維持較高操作溫度相對的其性能衰減率可能較大，耐久性與發電功率間如何達到較佳的平衡條件，則需要相當之運轉數據以供參考。

二、實驗方法步驟

開放式電池單元測試之標準操作程序：1.電池單元資料建檔，針對一些基本的特性作量測，建立各電池片之基本資料，使得每次測試的結果能夠達到經驗回饋之目的；2.測試系統準備與檢查，確保實驗過程人員與設備的安全；3.電池單元測試，包含 OCV、效能曲線與電化學阻抗；4.安全停機程序，確保電池片能安全下架。

本所自行設計的電池堆主要由電池單元、金屬連接板、密封材料及電流收集材料所組合完成。連接板等金屬組件採用適於高溫工作環境下仍具有良好電性與穩定性之 Crofer 22H 材料，且為提高電池堆穩定性，於陰極側為防止鉻於高溫環境中擴散與揮發而影響電池片性能，故金屬表面以濺鍍方式鍍上一層 LSM 作為保護層。在密封上使用玻璃陶瓷膠(GC9)，進行電池單元與金屬連接板之間的高溫密封。GC9 為所內參照國際間玻璃陶瓷的配方，依比例混合不同種類之玻璃陶瓷粉末研磨混合製備而成，其除了具備良好的密封效果外，更具有與 croferr 22H 金屬板材相近之熱膨脹係數。

在電池堆流道的設計上，陰極採用平行流道進行空氣供應的引導，而陽極使用多層金屬鎳網收集電流以減少介面間傳遞的損失，同時有助於燃料之均勻分散。組裝完成之單片裝電池堆的主要組件(由下而上)，為下端板(陰極連接板)、框架、電池片、電流收集層及上端板(陽極連接板)。測試時，將組裝完成之電池堆置入電池堆測試平台，進行阻抗量測後，施以荷重並接上電導線及熱電偶以為電力傳導與溫度監控之用。電池堆測試系統架構包含氣體供應系統及高溫爐等所組成之熱工系統、資料擷取與控制系統、氣體偵測系統、以及用來量測電池堆性能的電子負載機等。

電池堆分析含熱流與固力兩部分，分別使用 STAR-CD、ESI-CFD 與 MARC、ABAQUS 等套裝軟體。電池堆開始測試時就失效通常為熱應力的問題，造成電池片破裂或密封處之洩露，此結構熱應力分析極為重要，組件應力必須小於材料之容許應力。熱流分析可解析電池堆內之流體流場分佈、整體電池堆之溫度分佈、電池片電流與功率分佈等，其中溫度場可匯入結構分析軟體，求得電池堆內部之應力及應變場。

三、結果與討論

本(104)年度期中電池單元與電池堆測試及分析之成果與佐證資料說明如下：

- (一) 以 Elcogen 商業電池單元作為標準片，以實驗室通過 TAF 認證後新修訂之標準作業程序進行 5,000 小時長時效測試。該電池單元於前 3,000 小時以 SOP 標準流量 (800 sccm H₂ 與 2,000 sccm Air) 進行測試，Degradation rate 每千小時為 1.16%；後 2,000 小時進行流量減少測試 (500 sccm H₂ 與 1,500 sccm Air)，Degradation rate 每千小時為 2.64%(圖 1)。結果顯示該商業電池單元於長時間 5,000 小時測試下，不但維持相當穩定之功率輸出且擁有良好之耐久性能，此結果將能提供所內自製電池單元於長時間測試之比較基準與參考依據。

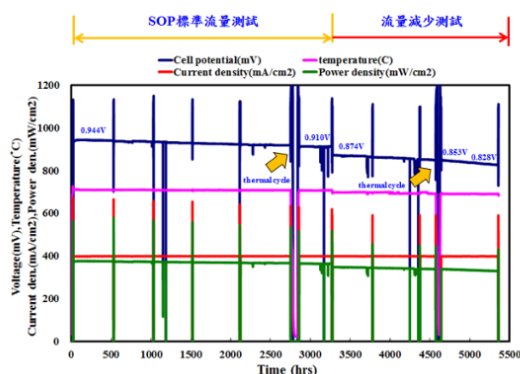


圖 1. Elcogen 5,000 小時長時效測試

- (二) 以 Elcogen 商業電池單元進行 60 次 thermal cycling 測試，前 30 次為 250~700°C，後 30 次為 50~700°C，最初測試電壓為 0.918 V，功率為 29.744 W，歷經 60 次循環後最終電壓為 0.857 V，功率降至 27.767 W。顯示該電池單元能有效承受多次之升降溫，而電池效能無明顯之衰退現象(圖 2)。此 thermal cycling 測試方法亦能提供所內研發之電池單元測試方法之一。

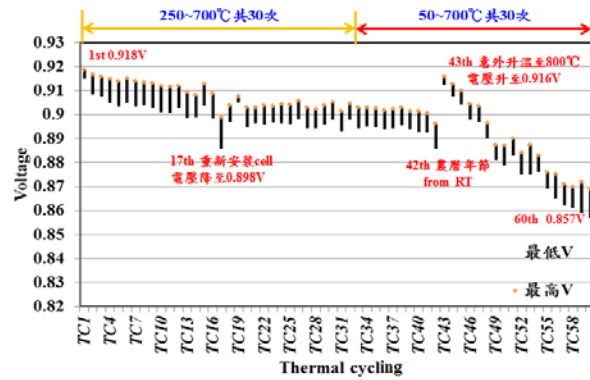


圖 2. Elcogen 60 次 thermal cycling 測試

(三) 完成電池單元之 Performance map 建置工作，該圖以 Elcogen 為測試片，用以評估電池單元於不同燃料量下之效能表現，其於固定溫度 700°C 與空氣流量 2,000 sccm Air 下，電壓範圍為 0.9~0.8 V，燃料使用率為 30~90%，功率範圍為 20~45 W，電效率則為 30~50% (圖 3)。該圖能清楚表達電池單元於不同燃料量條件下，欲達到各效能所需的電流負載為何，亦能了解於燃料量改變下，電池效能之變化情形，該結果將做為電池堆組裝與系統操作之參考依據。

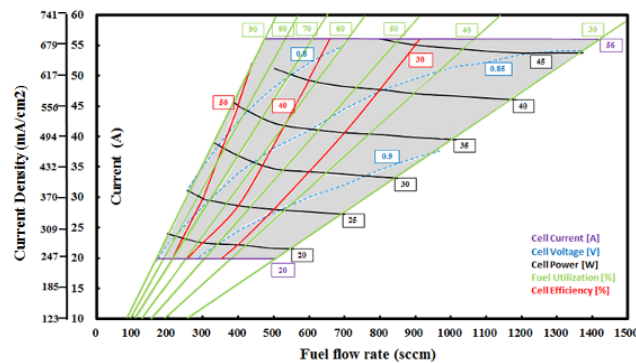


圖 3. 電池單元之 Performance map

(四) 進行平板型觸媒式燃燒器之開發與測試如(圖 4)所示，其於室溫通入 H_2 與 Air 至燃燒器進行燃燒測試，氫氣流量 2.2 lpm、空氣流量 8.8 lpm 經過 9 個小時 TC-1 溫度才只有 300°C，改變氫氣流量至 4.0 lpm、空氣流量 12 lpm 經個相同時間溫度已達 600°C，可供電池堆進行運轉測試，如(圖 5)所示。另一實驗則進行不同燃料轉換之燃燒行為分析，在溫度升至 300°C 後以 CH_4 取代 H_2 進入燃燒器，燃燒器之觸媒與甲烷和空氣順利進行反應，且溫度持續上升，結果顯示 CH_4 轉換效果良好，後續將以實際電池堆進行整合與相關測試。



圖 4. 平板型觸媒式燃燒器

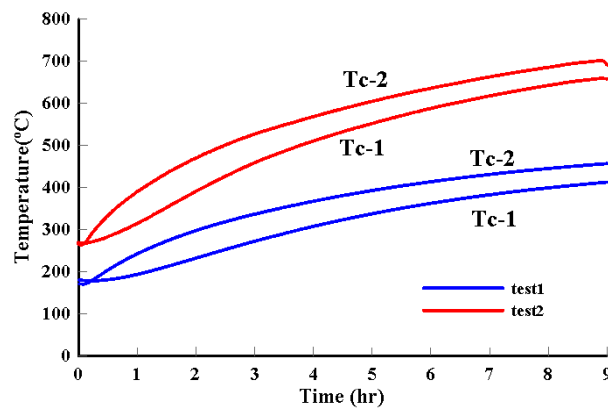


圖 5. 平板型觸媒式燃燒器

(五) 以 MSC 電池單元進行兩種不同還原程序之 thermal cycling 試驗，已測試升降溫速率 $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、 $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 與 $4^{\circ}\text{C}/\text{min}$ (如圖)。比較程溫還原(常溫)與高溫還原(750°C)，其不同升降溫速率條件下，平均效能皆僅降低 4~6 mV，顯示所內 MSC 電池單元能有效承受多次與快速之升降溫，並無明顯之衰退現象。

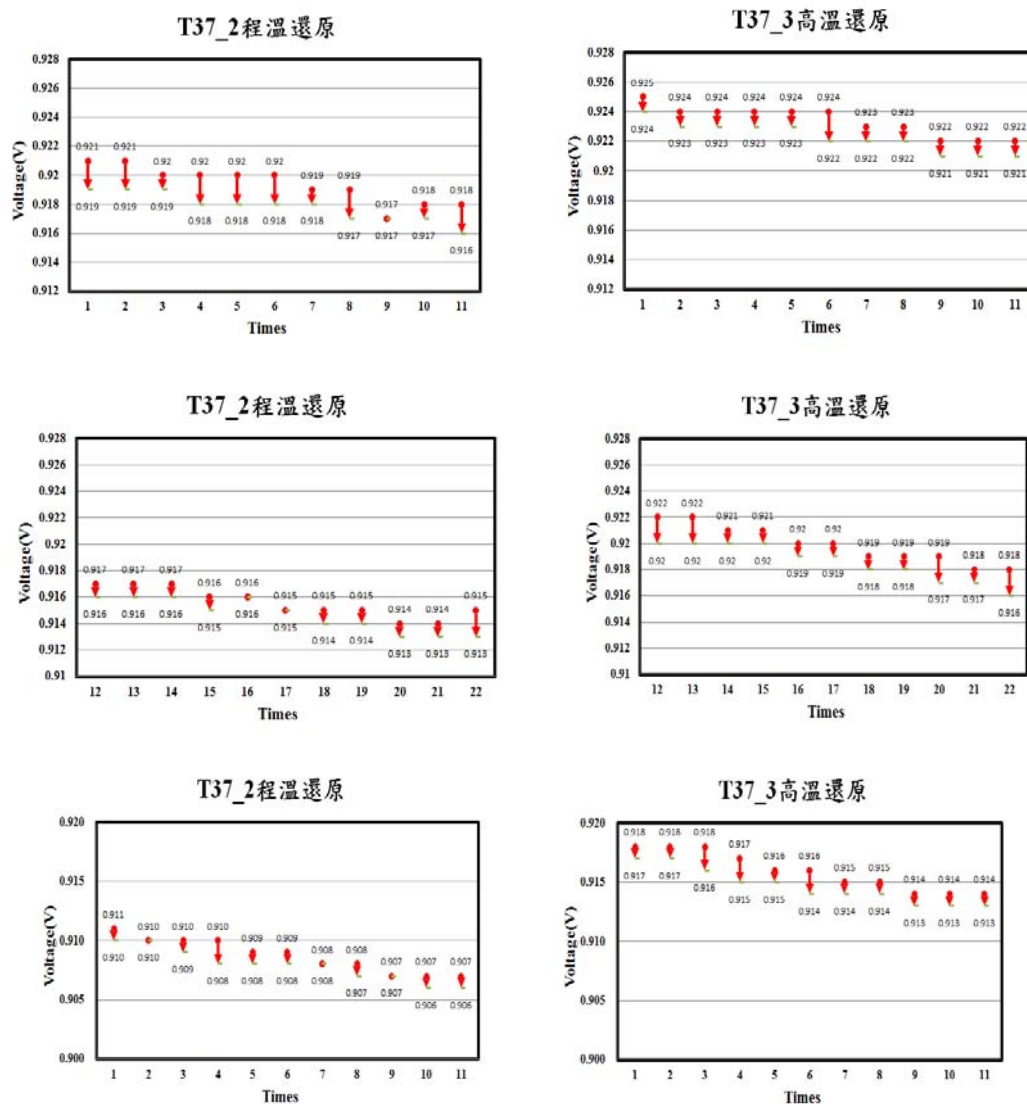


圖 6. 不同還原程序之 thermal cycling 試驗(上 1°C/min，中 3°C/min，下 4°C/min)

(六) ASC 電池單元進行陽極 3Y8Y 改質試驗，已由 5×5 cm 拓展成 10×10 cm 進行測試，其於 300 mA/cm² 下測試約 500 小時，Degradation rate 每千小時估計 5.37% 如 (圖 7)。降溫前 IVP 效能量測，於 800°C 最大功率密度可達 329.953 mW/cm²，如 (圖 8)所示。

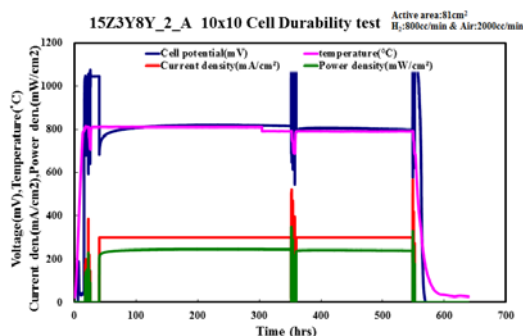


圖 7. ASC 電池單元 3Y8Y 陽極改質試驗 500 小時測試

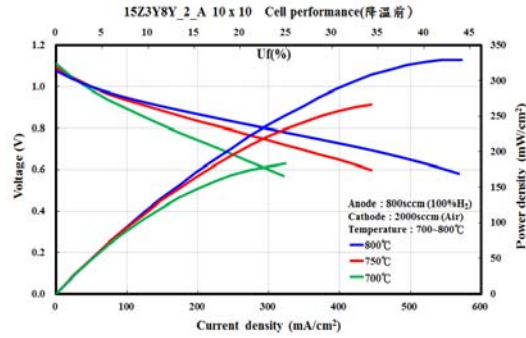


圖 8. ASC 電池單元 3Y8Y 陽極改質試驗降溫前效能量測

(七) 針對單片裝電池堆完成 performance map 測試。使用商用陽極支撐型電池片、金屬連接板、電流收集層和玻璃陶瓷膠密封材料所組成之單片裝電池堆進行測試，分析項目包含 OCV、工作電壓、輸出功率、燃料使用率、電效率、及歐姆與極化阻抗等。測試條件區間為 200~1,400 sccm 的氫氣與 20~56 A 的電流負載，繪製性能曲線圖 (圖 9)，其涵蓋 30~80% 的燃料使用率、20~45 W 的功率、0.9~0.8 V 的操作電壓、以及 30~50% 的電效率，該圖可與單元電池進行比對並提供給系統作為電池堆操作之參考。

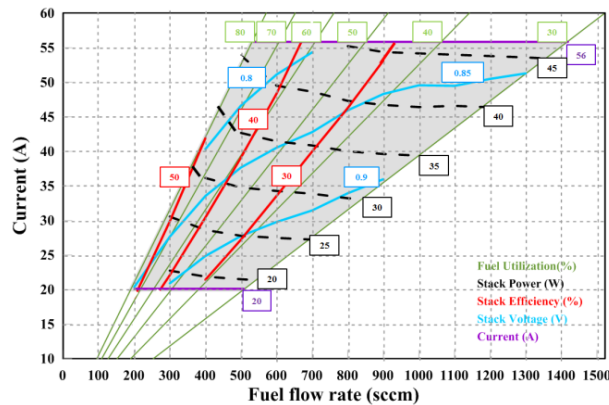


圖 9. 單片裝電池堆性能曲線圖

(八) 進行生質合成氣結合 SOFC 三片裝電池堆測試，當電池堆溫度達 750°C 且 OCV 穩定之後，以定電流方式(32A)進行電池活化。活化完成後，進行 I-V-P 測試，記錄個別電池單元之效能。首先仍以氫氣進行測試，確認電池堆之組裝良好並驗證一致性。(圖 10)為三片裝 SOFC 電池堆在 750°C 下，分別以氫氣及合成氣做為燃料之 I-V-P 曲線圖，該圖顯示當拉載電流為 40A 時，其發電功率分別為 102.5 W 及 94.24 W。(圖 11)為三片裝電池堆在溫度 750°C 條件下，進行 32 A 電流負載之耐久性測試。由圖中可發現於此操作條件下，電池堆的性能穩定並沒有出現明顯的衰減情形，總共測試時間約 250 小時，其中以生質合成氣為燃料之時效測試約 103 小時，測試過程中功率輸出穩定維持在 76~77 W 之間。

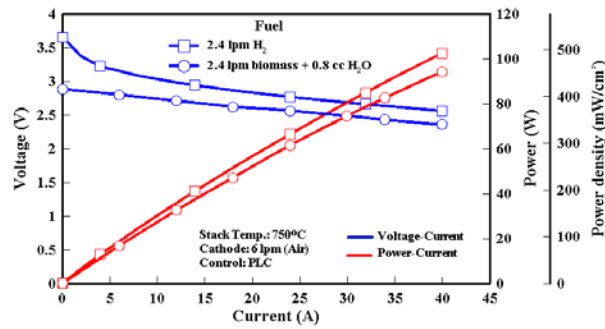


圖 10. 三片裝 SOFC 電池堆在氫氣與合成氣環境(@750°C)之 I-V-P 曲線圖

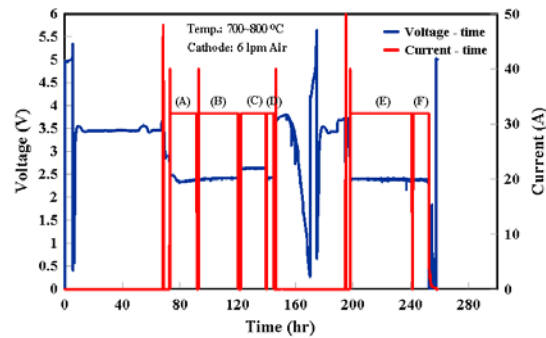


圖 11. 三片電池堆在 750°C 定電流之時效測試

(九) 因應 3~5 kW 電池堆設計所需，進行單片裝原型縮小電池堆測試之可行性測試，分別進行 2 組參數實驗：1.陽極鎳網的線徑大小，發現當使用 0.7 mm 與 0.3 mm 組合的集電層，0.8 V 電壓輸出功率約 25~30 W，而採用 1.3 mm 與 0.3 mm 組合功率可達 40~52 W；2.鎳網長度橫跨 Frame(架橋)電壓 0.8 V 時可輸出功率為 42 W，若鎳網長度只在電池片上(無架橋)則功率輸出可達 52 W，如(圖 12)所示。(圖 13)則進行 3 片裝原型縮小電池堆測試，測試條件：為氫氣:2.4 LPM、Air:6.0 LPM，在 700°C 及電壓 2.4 V 條件下，電力輸出約 164 W，然在 650°C 及電壓 2.4 V 條件下，電力輸出約 114 W。

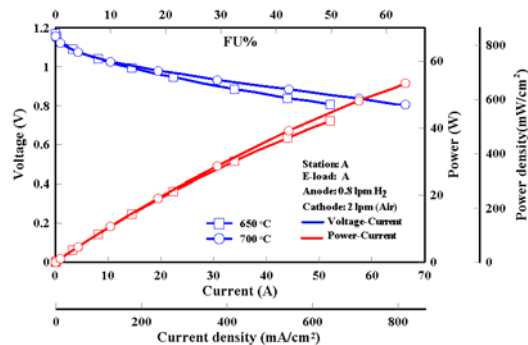


圖 12. 單片裝 SOFC 電池堆在 700°C 與 650°C 之 I-V-P 曲線圖

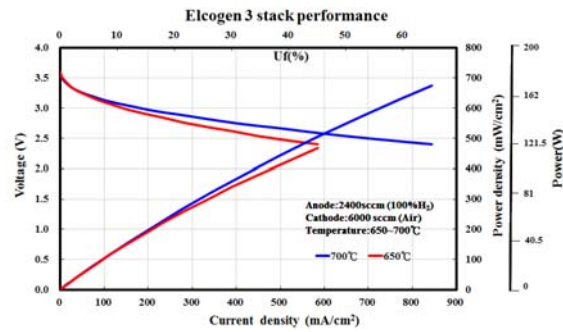


圖 13. 三片裝 SOFC 電池堆在 700°C 與 650°C 之 I-V-P 曲線圖

(十) 模擬單片裝新型電池堆，元件中 3 mm 徑向裂紋於電池片出口端，探討電池堆在組裝完後等溫降至室溫的條件下，裂紋是否成長。從 0 度至 90 度以 15 度角為間格計算在各個角度下之應力強度因子如(圖 14)所示，(圖 15)為裂紋之網格劃分，裂紋為徑向且貫穿電池片。結果顯示不同角度之裂紋在整個降溫過程中皆是閉合狀態如(圖 16)。模擬徑向裂紋於電池堆內進行降溫及升溫，應力強度因子與溫度關係如(圖 17)，降溫過程之曲線與(圖 16)相似，升溫過程因為壓應力逐漸釋放，至 800°C 時回到初始值。



圖 14. 36 片電池堆模型示意圖

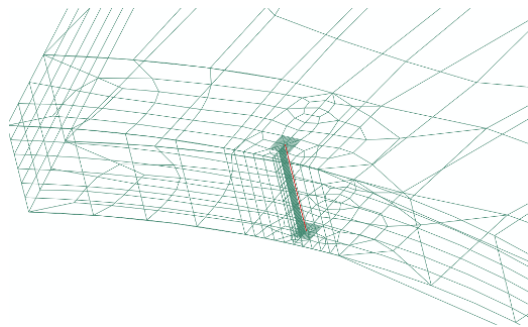


圖 15. 徑向裂紋網格劃分

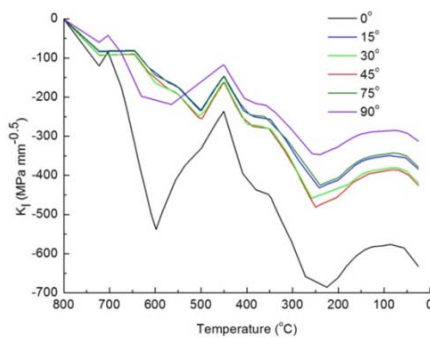


圖 16. 應力強度因子降溫曲線

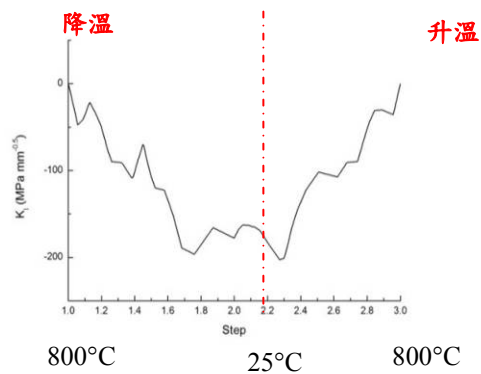


圖 17. 應力強度因子與溫度關係圖

(十一) 配合發電系統與電池堆測試，完成 36 片原型縮小版啞電池堆設計開發，以協助 3~5 kW 發電系統與高溫測試爐進行啞電池堆測試升溫程序、重組反應及燃燒器等操作條件實驗測試。(圖 18)為 36 片原型縮小版啞電池堆示意圖，其尺寸約為 112 mm×148 mm×155 mm。

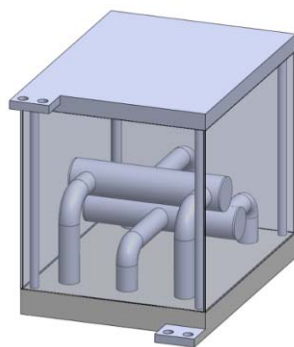


圖 18. 36 片原型縮小版啞電池堆示意圖

(十二) 針對 4 堆電池堆用之氣流分配板進行設計修改，(圖 19)為氣流分配板示意圖，其尺寸約為 350 mm×300 mm×20 mm。(圖 20)為氣流分配板之數值分析網格圖，計算網格數約 68 萬，用以進行 4 堆 36 片電池堆用之氣流分配板數值模擬分析，參考分析結果進行設計修改調整，以確保氣流分配板能均勻供給 4 堆電池堆燃料與空氣。

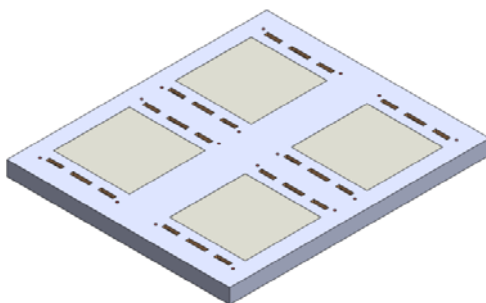


圖 19. 氣流分配板示意圖

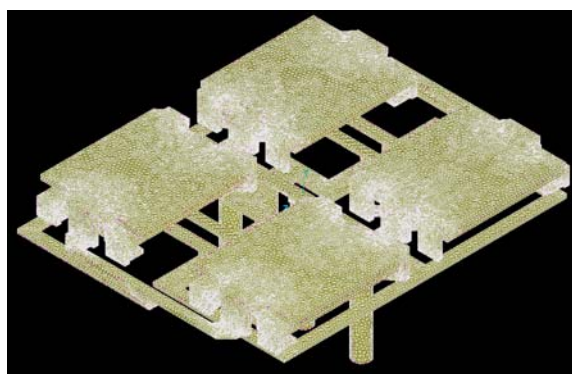


圖 20. 氣流分配板之數值分析網格圖

四、結語

單元電池進行 5,000 小時長時效測試與 60 次熱循環測試。於長時效測試方面，前 3,000 小時以依照本所 SOP 標準測試程序進行測試，其衰退率每千小時 1.16%；其後 2,000 小時以流量減少進行測試，目的以比較氣體流量之差異對電池單元效能之影響，測試結果衰退率每千小時為 2.64%。結果顯示該電池單元於長時效測試不管依照 SOP 標準流量抑或流量減少，皆能擁有良好之耐久性能。在 60 次熱循環測試方面，經過各 30 次中低溫與低溫之升降溫測試，其效能尚無明顯之衰退情形，結果表明該電池單元能承受多次之升降溫而不造成性能之嚴重衰退，另完成電池單元之 Performance map 建置工作，用以評估電池單元於不同燃料量下之效能表現。

電池堆測試方面，進行原型縮小電池堆測試，完成單片裝與 3-cell 裝等 Elcogen 電池片之電池堆測試，其效能均能維持一致，驗證相關製程之 SOP 程序之正確性與測試結果之再現性，用以提供未來 3~5 kW 系統所需之電池堆。於 Bio-SOFC 測試方面，其為國內首次實際執行生質物氣化結合 SOFC 應用之測試，已改善之前所遇到瓶頸問題，讓三片電池堆穩定在 103 小時測試中，功率維持在 76~77 W。另外，電池堆也完成 performance map 測試，可與單元電池測試結果進行比對並提供給系統作為電池堆操作之參考。

於分析方面，模擬 3~5 kW 電池堆之氣流分配，結果顯示氣流分配板能均勻供給 4 堆電池堆所需之燃料與空氣，並設計原型縮小啞電池堆協助 3~5 kW 發電系統進行啞電池堆測試升溫程序等相關實驗。破壞分析確認於降溫過程裂縫處於壓應力之狀態，不致有成長之問題。其他應用方面，開發觸媒式燃燒器，應用不同燃料條件可有效提升升溫速率。

五、未來工作重點

- (一) 持續進行電池單元測試，以新穎材料所開發之電池片進行測試及探討快速升溫 ($>5^{\circ}\text{C}/\text{min}$) 對電池片之影響，作為電池堆及發電系統操作之參考依據。
- (二) 進行原型縮小型之 5 片至 36 片電池堆組裝測試，以供 3~5 kW 系統測試使用。
- (三) 以高效率發電系統模組，進行電池堆發電程序(SOFC)與儲能(SOEC)相關程序之驗證。

廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發

一、前言

本計畫研究目的係製作 SOFC-MEA (ASC-Type)，尺寸為 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ ，衰減率 $< 1\%/kh$ ，電池單元功率密度 $300 \sim 600 \text{ mW/cm}^2$ ($600 \sim 800^\circ\text{C}$)。去年度(103 年) INER-SOFC-MEA-10 (廣溫陶瓷基板支撐型固態氧化物燃料電池元件(MEA)及材料技術研發分項計畫)之研發改善主要進行電池單元穩定小型量產與性能提升研究、具高孔隙率之陽極基板以及低溫電解質研發與製造，以期增加本所自製單元電池之功率密度與耐久性測試，達到適當品質改善，並從事小型量產以供 cell/stack 之測試與組裝使用。顧及量產與研發並進行技術轉移，以有效建構台灣 SOFC 產業以獲取早期利基市場。本計畫於 104 年底已獲得 33 項中、美、歐、日等國之專利證書，可確保 SOFC 產業立足台灣基礎，不受制國際間商業利益之專利威脅，同時已於 103 年度 1 月 16 日將相關之 13 項重點專利技術授權國內業者進行電池單元產品製作技術開發，103 年已經完成專利技術授權與技術輔導，協助國內業者完成電池單元試製，電池產品輸出功率符合技術授權合約所訂之基本商品規格。本年計畫目標之一為協助業者完成商業化電池產品量產與品質穩定性管制。另外提升本所產品製造技術與電池商品效能提升更是本計畫未來成功的關鍵；先進中低溫 SOFC-MEA 相關材料與元件之研發與製造亦本計畫未來在國際 SOFC 市場競爭力之要素。

本年度(104 年)持續進行專利技術授權事項與本所自製電池單元技術製程改善與電性效能精進，104 年度上半年計畫階段性成果為：(1)電池單元(YSZ 電解質，尺寸為 $10 \times 10 \text{ cm}^2$)已經過耐久性測試，電性效能衰退率小於 $1.0\%/khr$ ；總體電池之電性效能穩定性良好 ($10 \times 10 \text{ cm}^2$ ，平均功率介於 $28 \sim 33 \text{ W/pc}$)。(2)進行陣列式陽極生胚薄帶基板開發，可提供陽極側良好的燃料氣體傳導效果，使固態氧化物燃料電池具有高導電率及低燃料氣體阻抗的性質，且能有效提昇固態氧化物燃料電池單元電池性能，初步測試結果顯示氣體擴散阻抗大幅降低 40 % 以上，電池發電效能顯著提昇 25% 以上，本項技術已獲中華民國專利證書，後續研究仍持續進行。(3)執行電池製作專利技術授權案，輔導業者進行小型量產商用規格電池片，生產之 YSZ 系列 SOFC-MEA 電性效能超越授權合約規格，完成電池產品製作 200 片以上，並協助進行電性效能測試達 20 片以上 ($10 \times 10 \text{ cm}^2$ ，平均功率介於 $25 \sim 30 \text{ W/pc}$)；同時亦於本所進行初步電池堆測試。(4)本計畫本年度提出 2 項國外專利申請案(「具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法」，美國、日本專利申請中)。(5)103 年度 1 月 16 日執行 13 項專利技術授權合約(合約總金額 1300 萬元)予國內業界，將相關研發成果技轉廠商，將專利技術技轉業者進行產品研發，朝向技術產業化之計畫目標前進。業者已於 104 年度上半年完成專利技術三期總共 700 萬元新台幣授權金的繳納，初步建置小型研製能量，並進行量產設備評估。(6)於 104 年 1 月 16 日與日本九州大學簽訂「固態氧化物燃料電池技術合作」合作意向書，促進國際學術交流與合作獲得肯定。

二、實驗方法步驟

(一) SOFC-MEA 相關材料製備

1. 陰極材料

以本計畫之專利粉末合成裝置利用甘胺酸-硝酸鹽燃燒法(GNC)小型量產，研製具高觸媒反應性與高氧離子傳導性之 $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.1}\text{Fe}_{0.9}\text{O}_{3-\delta}$ (BSCF) 陰極材料。實驗步驟係先以固定的計量係數比之硝酸鹽前驅物溶於去離子水中而形成硝酸鹽水溶液，再將甘胺酸水溶液加入硝酸鹽水溶液，其金屬離子對甘胺酸的莫耳比維持在 1:1，之後將混合溶液加熱至形成深褐色膠狀，最後產生自發性的燃燒反應。將反應生成的產物以 600~1,100°C 煅燒 3 小時，以去除殘餘的有機物並形成結晶相。BSCF 除了傳統上作為 SOFC 之陰極之外，由於其具有高氧離子傳導性，亦可應用於離子傳輸膜元件製作，拓展 SOFC 技術之應用領域。

2. 電解質材料

藉由甘胺酸-硝酸鹽燃燒法(GNC)之技術研製 $\text{Er}_{0.4}\text{Bi}_{1.6}\text{O}_3$ (ESB)、 $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Ga}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{O}_3$ (LSGM) 等電解質相關材料。實驗步驟係先以固定的計量係數比之硝酸鹽前驅物溶於去離子水中而形成硝酸鹽水溶液，再將甘胺酸水溶液加入硝酸鹽水溶液，控制甘胺酸與硝酸鹽類之莫耳比為 0.5~1.6，之後將混合溶液經加熱形成膠狀，最後產生自發性的燃燒反應。將反應生成的產物依燒結特性以 600~1,550°C 煅燒 3 小時，以去除殘餘的有機物並形成結晶相。

(二) SOFC-MEA 元件製備

1. 高/中溫型固態氧化物燃料電池 (HT/IT-SOFC)

本研究計畫 HT/IT-SOFC 係 YSZ 系列電池產品，首先研製陽極支撐基板，以刮刀成型(tape casting)技術製備陽極生胚，再經由層壓與燒結程序後即可獲得。再以旋轉塗佈(spin coating)技術，將 YSZ 電解質漿料塗佈於陽極支撐基板上，經煅燒程序後，即可得 SOFC 半電池。最後以網印(screen printing)技術將陰極功能層與陰極層塗佈於半電池上，經煅燒程序後，即可得 SOFC 全電池；透過先前所合成各式新穎陰極材料應用於電池元件製作，可達成電池效能精進。本計畫上半年度進行陽極基板研製技術改良，包含改變陽極基板陶金的比例 (50/50 與 40/60)，達成電性效能提升，商用規格尺寸之 YSZ 系列電池單元功率密度穩定輸出 30 W 以上；另外為了提升陽極通氣特性，增加電池堆操作性質，製作具陣列式陽極生胚之電池產品，氣體擴散阻抗大幅降低 40% 以上，電池單元發電效能顯著提昇 25% 以上，後續研究仍持續進行。同時引進高強度之氧化鋁材料於陽極陶金結構中，減少基板厚度增加陽極孔隙率，因此得到發電效能提升。開發之 HT/IT-SOFC-MEA 構造為 $\text{NiO-YSZ}(\text{anode})||\text{YSZ}(\text{electrolyte})||\text{YSZ-LSM}(\text{cathode function layer})||\text{LSM}(\text{cathode})$ 。本項產品命名為 INER-SOFC-MEA-10 (10×10 cm²)，104 年度上半年已進行小型量產 20 片電池產品，同時協助業者完成 200 片以上 YSZ 系列電池單元製作。

2. 低溫型固態氧化物燃料電池(LT-SOFC)

本研究計畫 LT-SOFC 之主要係 SDC 系列電池產品，單電池的製備步驟簡述如

下，以單軸壓成型/刮刀成型(tape casting)技術，利用商用粉末製備陽極胚體(NiO+SDC)，再經 1,200°C 熱處理 3 小時即可獲得預燒後之陽極基板。以甘胺酸-硝酸鹽燃燒法(GNC)之技術研製奈米 SDC 粉末，經過均勻分散後所得之電解質懸浮液利用旋轉鍍膜法(Spin coating)塗佈電解質薄膜於預燒基板之上、最後以網印技術，將 SSC-SDC 陰極膏塗佈於半電池上，經煅燒程序後，即可得 SOFC 全電池。開發之 LT-SOFC-MEA 構造為 NiO-SDC (anode)||SDC (electrolyte)|| SDC-SSC (cathode function layer)||SSC (cathode)。為提升 SDC 系列電池單元產品之操作穩定性，進行 ESB 合成並完成粉體基本特性鑑定；進行 LSGM 粉體合成與基本特性鑑定，初步完成 LSGM 電解質支撐基板製作。

(三) 電性效能測試與電池基板強度測試

多樣式之 SOFC 置入於電池片/電池堆/系統等測試設備中進行電性性能測試。針對 10×10 cm 商業規格尺寸之單元電池進行驗證測試，測試條件為：陽極通入 800 cc/min H₂ 作為燃料，陰極通入 2,000 cc/min 空氣進行功率測試，測試溫度為 600~800°C；針對 5×5 cm² 尺寸之單元電池，測試條件為：陽極通入 335 cc/min H₂ 作為燃料，陰極通入 670 cc/min 空氣進行功率測試，測試溫度為 400~800°C。另開發陣列式陽極生胚薄帶基板，提供陽極側良好的燃料氣體傳導效果，使固態氧化物燃料電池具有高導電率及低燃料氣體阻抗的性質，且能有效提昇固態氧化物燃料電池單元電池性能。

三、結果與討論

(一) SOFC-MEA 相關材料特性

本研究計畫以甘胺酸-硝酸鹽燃燒法(GNC)研製 SOFC-MEA 相關之陰極與電解質材料(圖 1)，包含 BSCF 陰極材料與 ESB、LSGM 等電解質材料。(圖 2)顯示研製之材料在不同煅燒溫度下之 XRD 圖譜。結果顯示，電解質材料 LSGM 之粉體在煅燒溫度高於 1,450°C 下，才可獲得純相之結晶結構；陰極材料 BSCF 之粉體則在煅燒溫度高於 900°C 以上，才可獲得純相之結晶結構；電解質功能層材料 ESB 之粉體則高於 500°C 之煅燒處理，即可得到完整單一的結晶相結構。(圖 3)顯示研製之 ESB 粉體材料經不同溫度煅燒處理後之 SEM 圖，利用本計畫專利粉體合成裝置可以在安全的環境下針對奈米尺度之新穎材料粉體進行小量生產，初始合成之粉體尺度約在 100 nm 左右，在 SOFC 的應用上，可經由高速研磨分散技術製作電解質懸浮漿液，有利於緻密電解質層的製作。後續將針對前述各項材料進行合成參數的最佳化，如金屬離子對甘胺酸的莫耳比例變化、粉體元素劑量比調控以及與現有電解質材料應用搭配性等進行探討。

針對前述 GNC 合成之奈米粉體同時也進行了刮刀成型技術試驗，調配而得 BSCF 與 LSGM 陶瓷漿料製作出生胚薄帶，經過高溫燒結(1,100°C for BSCF/1,450°C for LSGM)後可得緻密無穿孔的燒結陶瓷基板，後續可分別應用於離子傳輸元件與電解質支撐固態氧化物燃料電池之製作。

(二) SOFC-MEA 研製技術改善與電性效能精進

103 年度針對電池效能精進相關研究工作完成縮短陽極煅燒時間、提升基板

的平整度、加入適當氧化鋁粉料強化劑等製程改良式項。改善後的電池片不只在煅燒時間及平整度上都有大幅的改善，在電池效能表現上也有所提升。104 年度持續進行電池單元效能改善：(1)(圖 4)顯示商品化電池單元之外觀與計畫持續進行之小型量產實績，將陽極基板陶金的比例由 50/50 改為 40/60，初步測試結果電性效能穩定輸出，單片電池發電功率維持在 30 W 以上如(圖 5)所示。(2)於外側之一或複數個陽極薄帶生胚上製作陣列(Array)式孔洞結構，以使完成之單元電池發電效能顯著提昇 25%以上，氣體擴散阻抗大幅降低 40%以上。(圖 6)顯示出具備陽極生胚陣列式孔洞之電池單元製作概念，(圖 7)則是展現在電性效能上的初步改善成果，電池單元依照本所電性測試標準升溫還原程序後，於 800°C 轉氫還原完後，電池發電功率較陽極生胚未造孔者效能提升 25%以上(250 mWcm^{-2} to 325 mWcm^{-2})；本項技術概念已經完成專利申請，並已獲得中華民國專利證書(I509869)，相關技術內涵可提供本所技術授權之業者進行製程改良測試中。(3)(圖 8/[表 1])為改良電解質製作流程技術之探討，進行 YSZ 系列電池產品之電解質漿液製作參數對薄膜品質影響探討。塗佈次數的多寡與電解質層的厚度成正相關，但是在電解質緻密性的透氣率表現上差異並不大，所以後續將在不降低電解質緻密度的前提下進行實驗驗證，期能減少塗佈次數，既可以降低電解質的阻抗，也可以降低生產成本。(4)導入高強度之氧化鋁材料於陽極陶金結構中，如此可在不減弱基板強度的情形之下減少基板厚度與增加陽極孔隙率，因此得到發電效能提升。(圖 9)為具高強度氧化鋁材料之陽極陶金結構對於電性效能的改善成果，本所前所研製之電池單元厚度維持在 550 μm ，利用高強度氧化鋁於陽極鎖製作之電池單元厚度減少至 465~480 μm ，仍可維持原有之基板強度。依照本所電性測試標準升溫還原程序操作後的測試結果整理於[表 2]，相較於(NiO-3YSZ)陽極基板，複合陽極基板(NiO-3YSZ|NiO-8YSZ)於電解質側為傳統(NiO-8YSZ)之陽極材料，以支撐基板/陽極分工之概念，可以製作出高強度支撐基板與薄型化之陽極層，整體電性效能提升至 $455 \text{ mWcm}^{-2}@ 800^\circ\text{C}$ ，後續可導入較高之陽極孔隙率配方達到效能提升成效；本項技術概念已經完成初步專利申請規劃，技術概念也已提供本所技術授權之業者同步進行製程改良測試中。

四、結語與未來工作重點

104 年度工作之重點成果整理如下：

- (一) 以甘胺酸-硝酸鹽燃燒法(GNC)成功研製 SOFC-MEA 相關之陰極與電解質材料，包含 BSCF 陰極材料與 ESB、LSGM 等電解質相關材料。本研究已驗證 GNC 合成技術可研製多樣化之 SOFC 相關粉體材料，此項「硝酸鹽燃燒法製備奈米或次微米級的精密陶瓷粉體程序」合成技術具備快速可量產之優勢，所合成之奈米等級新穎材料粉體於 SOFC 的應用廣泛。
- (二) 本所自製之商業規模尺寸之單元電池(具 YSZ 電解質之陽極支撐型電池，尺寸為 $10 \times 10 \text{ cm}^2$)經過電性效能驗證測試結果，其總體電性衰退率小於 1.0%/kh。上半年度進行商品化單元電池研製技術改善與電性效能精進，電池元件總體電性效能穩定性良好($10 \times 10 \text{ cm}^2$ ，平均功率介於 28~33 W/pc)且產品良率佳，持續進行小型

電池片生產，單元電池品質與規格符合計畫年度目標。YSZ 系列電池單元製作技術改良達成效能精進，整體電性效能提升至 $455 \text{ mWcm}^{-2} @ 800^{\circ}\text{C}$ 。

- (三) 本計畫執行『固態氧化物燃料電池陶瓷基板支撐型單元電池製作技術』(內含 13 項專利技術授權，合約總金額 1300 萬元)之專利技術授權案，本項專利技術授權案支第三期授權金 200 萬元於 104 年 2 月 26 日入帳後，授權金總值 700 萬元已完成繳款。本年至今已完成 32 次雙邊討論共 87 小時技服時數，協助九豪公司進行電池單元之電性效能測試($10 \times 10 \text{ cm}^2$ ，平均功率介於 $25 \sim 30 \text{ W/pc}$)，將本所相關研發成果技轉廠商進行產品研發，截至目前為止已輔導廠商進行 200 片以上電性效能良好之電池商品量產，後續將協助業者進行電池堆應用，朝向技術產業化之計畫目標前進。

五、未來工作重點

- (一) 持續精進 YSZ 系列電池單元之製作技術，提升商品化電池電小型量產品管與穩定度。
- (二) 執行專利技術授權案，積極協助業者朝向量產基板與製作具競爭力之之電池/電池堆產品。
- (三) 利用本計畫擁有之專利粉體開發技術進行 SOFC 相關奈米粉末之合成技術開發。

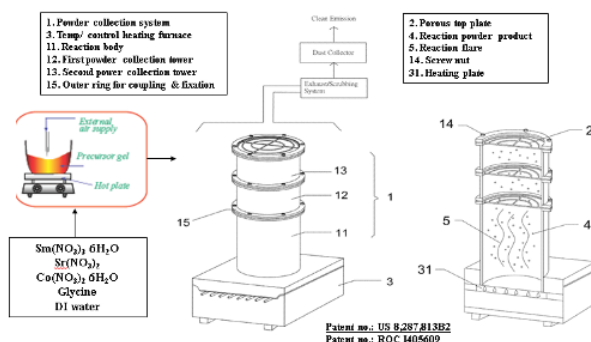


圖 1. 本計畫自有之奈米粉體小型量產專利技術圖示

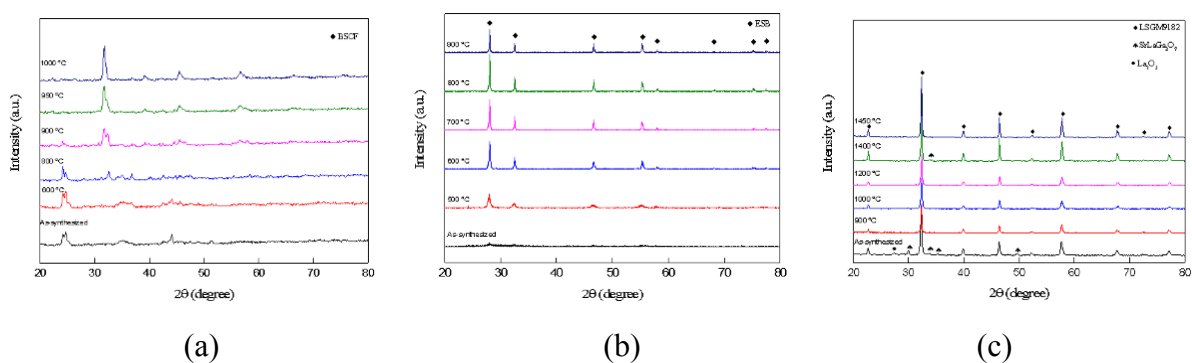


圖 2. 研製之粉體材料在不同煅燒溫度下之 XRD 圖譜：(a) BSCF；(b) ESB；(c) LSGM

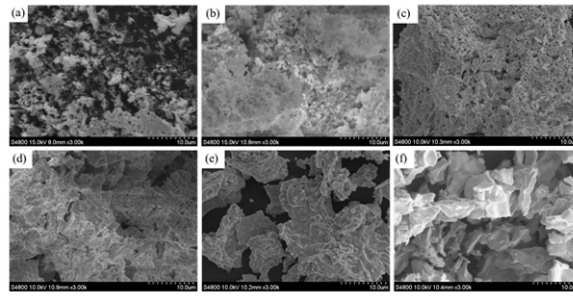


圖 3. 研製之 ESB 粉體材料經煅燒處理後之 SEM 圖：(a) As-prepared；(b) 500°C；(c) 600°C；(d) 700°C；(e) 800 °C；(f) 900°C

15Z64-1 (YSZ series6/4) ω
 $\text{NiO-YSZ} \parallel \text{YSZ} \parallel \text{YSZ-LSM} \parallel \text{LSM}$
 size: $\sim 10 \times 10 \text{ cm}^2$
 Cathode area: $9 \times 9 \text{ cm}^2$
 Thickness: $\sim 500 \mu\text{m}$
 Resistance:
 Cathode: $180 \sim 2800 \Omega$
 Electrolyte: OL
 Anode: OL

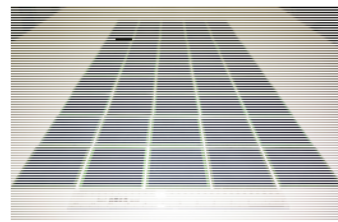
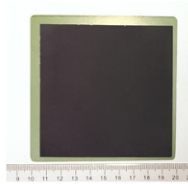


圖 4. 商品化電池單元之外觀與計畫持續進行之小型量產實績

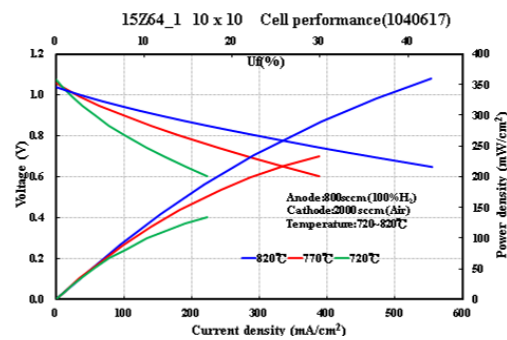


圖 5. 陽極基板陶金的比例 40/60 之電池單元電性效能測試結果

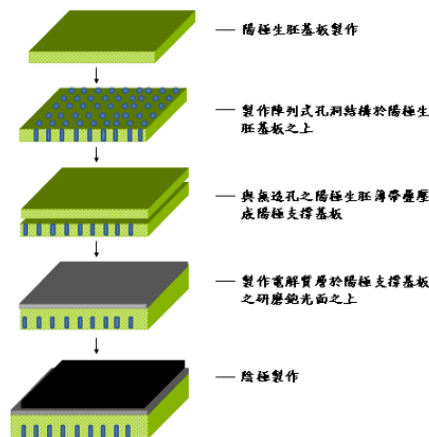


圖 6. 具備陽極生胚陣列式孔洞之電池單元製作概念

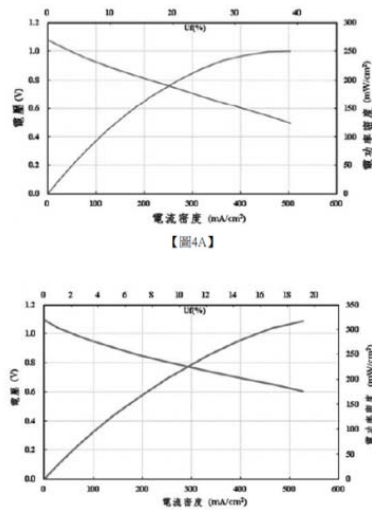


圖 7. 具備陽極生胚陣列式孔洞之電池單元電性效能上的初步改善成果

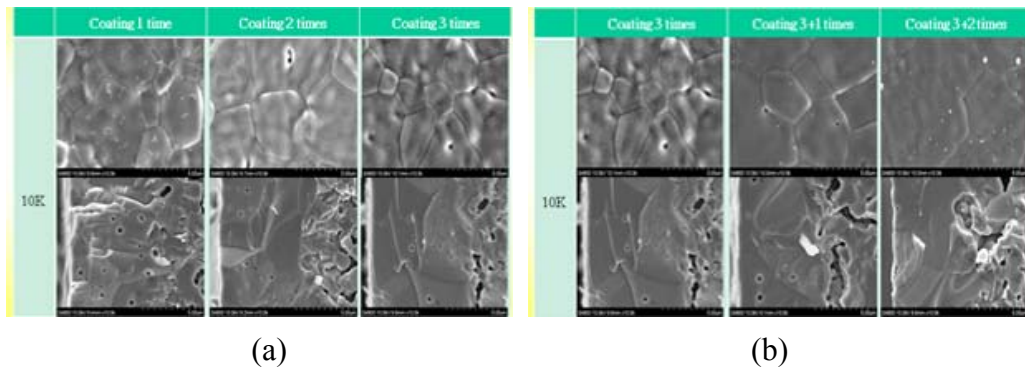
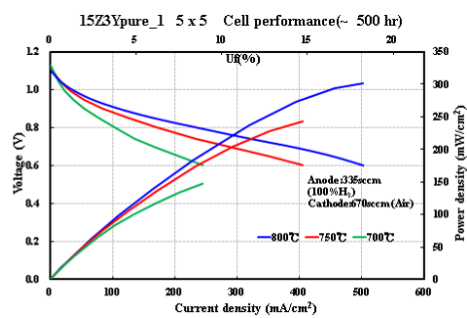


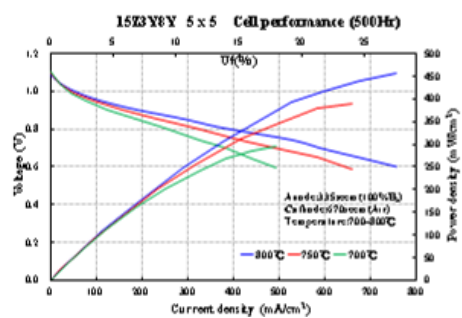
圖 8. 電解質層不同塗佈次數下之顯微結構圖

表 1. 電解質層不同塗佈次數下之電解質透氣率測試結果

	Coating 1 time	Coating 2 times	Coating 3 times		Coating 3 time	Coating 3+1 times	Coating 3+2 times
厚度 (μm)	8.15	8.9	9.03	厚度 (μm)	9.03	9.45	11.34
透氣率 (darcy)	1.29E-05	1.17E-05	1.49E-05	透氣率 (darcy)	1.49E-05	1.57E-05	1.28E-05



(a)



(b)

圖 9. 具備 (a) NiO-3YSZ ; (b) (NiO-3YSZ|NiO-8YSZ)之陽極基板電池單元測試結果

表 2. 具備 (a) NiO-3YSZ ; (b) (NiO-3YSZ|NiO-8YSZ)之陽極基板電池單元測試結果對照表

Anode substrate	Cell Thickness (μm)	轉氣後 (mWcm ⁻²) @ 800 °C	活化後 (mWcm ⁻²) @ 800 °C	500hr後 (mWcm ⁻²) @ 800 °C
(NiO-3YSZ)	465	91	192	302
(NiO-3YSZ) + (NiO-8YSZ)	480	94	271	455

附註：學術活動及研究成果(包含主撰及共撰或共同發明人)

一、期刊論文

1. T.N. Lin, et al., "Synthesis of $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ powder and its application as composite cathode for intermediate temperature solid oxide fuel cell", 2014/12, *Advances in Solid Oxide Fuel Cells IX: Ceramic Engineering and Science Proceedings*, Vol. 35, Issu. 3, pp. 55-64. (SCI, EI)
2. W.X. Kao, et al., "Oscillation phenomenon of the cell performance for an anode-supported solid oxide fuel cell with a low-porosity / high-thickness anode structure", 2015/02, *Key Engineering Materials*, Vols 656-657, pp. 124-128. (SEI, EI)
3. W.X. Kao, et al., "Fabrication and characterization of the anode-supported solid oxide fuel cell with Ni current collector layer", 2015/04, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol.123 No.1436 p.217-221. (SCI, EI)
4. T.N. Lin, et al., "Fabrication of $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ cathode material and its application for Sr- and Mg-doped LaGaO_3 electrolyte supported solid oxide fuel cell", 2015/07, *ECS Transactions*, Vol. 68 (1) pp. 895-901. (SCI, EI)
5. I.M. Hung, et al., "Material Characteristics and Electrochemical Performance of $\text{Y}_x\text{Ba}_{2-x}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ Cathode for Solid Oxide Fuel Cell", 2015/07, *ECS Transactions*, Vol. 68 (1) pp. 919-926. (SCI, EI)
6. T.N. Lin, et al., "Fabrication of the anode-supported solid oxide fuel cell with composite cathodes and the performance evaluation upon long-term operation", 2015/05, *Advances in Solid Oxide Fuel Cells IX: Ceramic Engineering and Science Proceedings*, accepted in press. (SCI, EI)
7. T.N. Lin, et al., "Investigation on the electrochemical property of solid oxide fuel cell with sputtered yttria-stablized zirconia electrolyte", 2015/11, submitted to *Thin Solid Films*. (SCI, EI)

二、國際會議

1. T.N. Lin, et al., "Fabrication of the anode-supported solid oxide fuel cell with composite cathodes and the performance evaluation upon long-term operation", 2015/01, Oral presentation in the 12th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cell (SOFC): Materials, Science and Technology, Daytona Beach, FL, USA.

2. T.N. Lin, *et al.*, “Fabrication of $\text{SmBa}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ cathode material and its application for LSGM ECS”, 2015/07, ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC–XIV, Glasgow Scotland.
3. I.M. Hung, *et al.*, “Material Characteristics and Electrochemical Performance of $\text{Y}_x\text{Ba}_{2-x}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ cathode for Solid Oxide Fuel Cell”, 2015/07, ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC–XIV, Glasgow Scotland.
4. M.C. Lee, *et al.*, “Reduction of carbon dioxide via solid oxide fuel cell to eliminate the greenhouse effect”, 2015/11, Invited Talk, 5th International Symposiums on Advanced Ceramics and Technology for Sustainable Energy Applications toward a Low Carbon Society (ACTSEA 2015), Tainan, Taiwan. (計畫成員獲邀擔任邀請演講)
5. Y.T. Huang, *et al.*, “Effect of $\text{Bi}_{0.5}\text{Sr}_{0.1}\text{La}_{0.4}\text{MnO}_{3-z}-\text{Bi}_{0.67}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.18}\text{O}_{1.5-z}$ composite cathode for intermediate-temperature solid oxide fuel cells”, 2015/11, 5th International Symposiums on Advanced Ceramics and Technology for Sustainable Energy Applications toward a Low Carbon Society (ACTSEA 2015), Tainan, Taiwan.
6. T.N. Lin, *et al.*, “Investigation on the electrochemical property of solid oxide fuel cell with sputtered yttria-stabilized zirconia electrolyte”, 2015/11, TACT2015 International Thin Films Conference, Tainan, Taiwan. (計畫成員獲邀擔任會議議程主持工作)

三、國內會議

1. H.Y. Kuo, *et al.*, “Performance improvement via composite cathodes selection and fabrication of the anode-supported solid oxide fuel cell with a commercial specification”, 2014/12, 2014 TwICHE Annual Meeting, poster paper, Taoyuan Taiwan.
2. J.Y. Kuo, *et al.*, “Preparation and Characterization of $\text{Er}_{0.4}\text{Bi}_{1.6}\text{O}_{3-\delta}$ Ceramic Powder by Glycine Nitrate Combustion Process for IT-SOFC”, 2015/05, 2015年陶業年會 Oral presentation, Taipei Taiwan. (計畫成員獲邀擔任會議議程主持工作)
3. J.A. Wang, *et al.*, “Preparation and Characterization of $\text{Y}_x\text{Ba}_{2-x}\text{Co}_2\text{O}_{5+\delta}$ ($x = 1.1, 1.2$) Cathode materials for IT-SOFC”, 2015/05, 2015年陶業年會 Oral presentation, Taipei Taiwan.
4. C.Y. Yeh, *et al.*, “Performance and Durability Evaluation of the Solid Oxide Fuel Cell with Composite Cathode”, 2015/10, 2015 The 10th National Conference on Hydrogen Energy and Fuel Cell, The 2nd Taiwan Energy Association Annual Meeting—HEFC2015, NCU, Taoyuan Taiwan.

四、專利

1. M.C. Lee, *et al.*, “Measurement process for determination of the optimum contact pressure among components of a SOFC stack in the package process and its measurement apparatus”, EU patent No. 2365570 (2014.12.03).
2. T.N. Lin, *et al.*, “A novel process for fabrication of a sputter deposited fully dense electrolyte layer embedded in a high performance membrane electrolyte assembly of solid oxide fuel cell”, US Patent No. 8920612 (2014.12.30)
3. T.N. Lin, *et al.*, “A fabrication process for production of SOFC-MEA with a pore array

anode structure for improving output power density”, ROC patent No. I509869 (2015.11.21).

4. J.C. Chang, et al., “A current collection apparatus and method of processing for a solid oxide fuel cell”, EU Patent Granted (2015.07.02).

五、 國際合作與獲獎紀錄

1. 簽訂本所與日本九州大學「固態氧化物燃料電池技術合作」合作意願書 (2015.01.20)。
2. 2015台北國際發明暨技術交易展競賽金牌獎：「高性能固態氧化物燃料電池膜電極組合元件緻密之濺鍍電解質層之創新製作程序」。
3. 2015第12屆國家新創獎-學研新創獎：「高整合固態氧化物燃料電池膜電極組合元件之創新複合增效製作程序與配方」。

金屬支撐型固態氧化物燃料電池元件研製

一、前言

延續 103 年度工作規劃重點，104 年度之工作重點有以下幾項：(1)自製超合金透氣基板之製程改善與特性精進。(2)具有量產潛力之多孔透氣基板製程開發與性能精進。(3)金屬支撐型固態氧化物燃料電池片(Metal-supported Solid Oxide Fuel Cell, MS-SOFC)電池片性能改進。(4)MS-SOFC 電池片之特殊性能檢驗。(5)以大氣電漿噴塗技術(Atmospheric Plasma Spraying, APS)進行金屬連接板保護膜製備之製程開發與性能精進。(6)配合計畫需求，生產 1 kW 級電池堆測試所需之 MS-SOFC 電池片，並交給電池堆小組安排測試。就 MS-SOFC 電池片而言，金屬基板的結構影響電池片性能甚巨，因此本計畫針對金屬透氣基板之材質、結構與製程進行改進，觀察 MS-SOFC 電池片的性能改善情況，此部分工作項目主要以基板材質改進以及基板表面形貌精進兩部分進行。此外，為增進 SOFC 電池片在高溫操作時的穩定性，本計畫以嫻熟的 APS 技術進行緻密的氧化物膜層製備，藉由保護膜層的披覆降低金屬連接板氧化速率與鉻蒸氣揮發現象，並且透過製程參數之改善，降低 APS 製程設備要求。

工作重點(1)，在 MS-SOFC 電池片操作期間，因為工作環境之溫度高達 600°C 以上，在此條件下的金屬基板強度大幅下降，為求增加金屬基板在高溫下的機械強度，本計畫今年度亦自行開發氧化物散佈強化型(Oxide Dispersed Strength, ODS)超合金材料做為多孔基板之材質，藉由具高溫穩定性之奈米氧化物顆粒散佈在金屬母材中，增加差排移動阻力，達到強化機械性能之目的。此外，基板表面之平整度與粗糙度情況將影響電漿噴塗膜層之品質，影響電解質膜層氣密性質甚鉅，因此，降低多孔超合金基板表面粗糙度是重點工作之一。本計畫利用高溫熱壓處理程序以及鍍金屬表面層之披覆兩道手續，可同時完成基板表面形貌改善與改質之效果。

工作重點(2)，除持續針對模壓式基板進行多種性能分析與製程改善以外，根據本計畫先前的研究結果指出，金屬基板的透氣表現會大幅度地影響 MS-SOFC 電池片發電表現，增加基板透氣率可以提升電池片的發電功率，今年度本計畫使用商用金屬連接板 Ccrofer22H 做為 MSC 電池片之基板，並結合精密雷射鑽孔技術在基板上製作直通式氣體流道，降低氣體反應物與生成物進出陽極端之阻力，提升 MSC 電池片之工作效率。

工作重點(3)，MS-SOFC 電池片之長時穩定性表現受到多種因素影響，除前述之金屬基板強度大幅下降與鉻中毒等現象會降低電池片發電效率外，電極材料之高溫長時穩定性對於電池片之衰退現象也具有顯著影響，本計畫根據電漿噴塗與 MS-SOFC 電池片之製程與性能考量，規劃 4 種不同材質之陰極進行長時穩定性之比較，做為未來電池片改善之依據。除此以外，電解質本身氣密性對於電池片的高溫長時操作穩定性亦具有重大影響，根據相關文獻報導，本計畫也利用粉末造粒成型技術在 LSGM 粉末中添加微量之燒結助劑，預期能促使 LSGM 粉末在電漿噴塗過程中具有較佳的熔融效果，減少電池片在操作過程中，因為電解質洩漏導致局部高熱現象，提升 MS-SOFC 電池片之高溫長時操作壽命。

工作重點(4)，MS-SOFC 電池片因為所使用的金屬基板具有優異的熱傳導性能，因此具有耐熱衝擊之能力，而且因為金屬基板之使用，所以 MS-SOFC 電池片相較於陶瓷基電池片亦具有良好的耐機械衝擊能力，被看好可應用於移動式載具中，例如大型車輛或輪船之輔助電源(Auxiliary Power Unit)，在該情況下之 SOFC 電池系統需要具有耐高低溫升降之能力，因此本計畫亦進行以 $5 \times 5 \text{ cm}^2$ 電漿噴塗 MS-SOFC 電池片進行熱循環性能測試，了解自製電池片之相關性能。

工作重點(5)，本計畫於去年度開始進行電漿噴塗 LSM 金屬連接板保護膜製備之技術開發工作，相關研發成果顯示電漿噴塗技術非常適合用於製作金屬連接板保護膜，此項工作之今年度工作重點在於降低大氣電漿噴塗時所使用之溫度，降低大規模生產時生產設備之技術門檻。根據相關文獻報導指出，具尖晶石(spinel)結構之 Mn、Co 氧化物在高溫下具有良好的導電能力，且具有阻障氧離子往基板內部與鉻離子往基板外部擴散之能力，可有效增加金屬連接板的使用壽命，因此，本計畫自行合成具尖晶石結構之 Ce-doped $(\text{Mn,Co})_3\text{O}_4$ 粉末並搭配噴霧造粒技術完成可電漿噴塗粉末之製作，於 Crofer22APU 連接板上以 APS 技術進行緻密保護膜製備，完成之樣品在 800°C 、大氣環境下進行 ASR 量測。此外，為了解電漿噴塗 LSM 保護膜於實際之 SOFC 電池操作環境下的使用效能，另行規劃以短電池堆之方式，分別在電池片陽極端板、陰極端板與支撐框架表面進行大面積之 LSM 保護膜之製備，並藉由電池堆小組之協助完成該組短電池堆之堆疊、封裝與實測，確認電漿噴塗 LSM 保護膜之實測性能。

此外，針對工作重點(6)，配合計畫需求進行 1 kW 的 MS-SOFC 發電系統測試所需要之 MS-SOFC 電池片之製備，規劃生產 36 片高效能 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 電池片，做為 MS-SOFC 電池片以及電池發電系統的各項性能測試使用。

二、實驗方法步驟

(一) ODS 粉末製備與基板成型

1. 螯合：本計畫利用 sol-gel 法進行 ODS 粉末製備，所使用的溶液先驅物之製備程序如(圖 1)所示，將 Ni、Fe、Y 的硝酸鹽藥品依重量比 77:10:5 的比例溶入去離子水中，並加入 1.5 倍的檸檬酸做為螯合劑，形成金屬離子濃度達到 1.0 M 以及檸檬酸濃度達到 1.5 M 的水溶液，並藉由加熱處理促進檸檬酸的耦合效果，得到所需要的鉗合物溶液(complex solution)。
2. 熱處理：將經過螯合程序之鉗合物溶液加熱至 130°C 並持溫 2 小時，得到膠狀生成物，再將此膠狀物加熱至 400°C 將反應先驅物裂解並得到 NiO 、 Fe_3O_4 與 Y_2O_3 之混合氧化物粉末。
3. 還原：將上述粉末置於 35% 氫氣環境中進行高溫還原(600°C)程序，得到由 Ni-Fe 金屬混合 Y_2O_3 之粉末。
4. 造粒與合金化：將 8 wt% 之 Mo 粉末利用噴霧造粒之方式與 Ni-Fe- Y_2O_3 粉末均勻混合，混合完成之粉末利用模壓方式完成金屬基板成型，後續輔以 $1,250^\circ\text{C}$ 持溫兩小時的合金化處理得到具 Y_2O_3 粉末散佈之 Ni-Fe-Mo- Y_2O_3 粉末。

(二) 多孔金屬基板表面縮孔與改質

1. 熱壓燒處理步驟：多孔基板進行大氣電漿噴塗程序前，必須經過高溫熱壓燒處

理，針對 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 電池片之熱壓燒條件為升溫至 800°C ，在真空壓力為 $2.0 \times 10^{-2} \text{ torr}$ 環境下，施加 5 公噸壓力，並且持壓 1 小時，再緩慢降溫完成熱壓燒處理步驟。

2. 基板表面覆膜處理：利用刮刀成形技術，完成鎳金屬薄帶的製備。

(1) 漿料調配：以約 $20 \sim 45 \text{ }\mu\text{m}$ 之鎳粉作為原始材料，使用三度空間混合機進行鎳粉與 PVB、塑化劑、曼哈頓魚油、甲苯等材料完成漿料製備，混合所需時間為 12 小時。

(2) 成型：金屬漿料進行刮刀成形前須進行真空除泡步驟，將金屬漿料置入真空腔體中並進行抽氣動作，待腔體內壓力低於 -700 mg/cm^2 後持壓 1~3 分鐘，回復氣體壓力至常壓並重複真空除泡動作 2 次。經過成形後之鎳金屬生胚經過裁切後須進行最高溫度 800°C 持溫 4 小時的成型燒結。

該薄帶於 800°C 燒結處理後，厚度由 $140 \text{ }\mu\text{m}$ 降低為 $110 \text{ }\mu\text{m}$ 。在欲貼合之多孔金屬基板表面塗布自製鎳膠後，將金屬薄帶與多孔基板進行貼合動作，完成貼合之基板進行熱壓爐中進行前述熱壓燒處理，完成基板表面覆膜與貼合。

(三) 金屬基板製備(模壓製程)

1. 噴霧造粒：以 d_{50} 約 $12.8 \text{ }\mu\text{m}$ 之鎳粉、 $d_{50}=3 \text{ }\mu\text{m}$ 之鉬粉(Mo)以及作為造孔劑的碳粉作為原始材料，混合以 PVA 或 HPMC 與水製備而成的黏結劑，在常溫下攪拌 12 小時，完成金屬粉末漿料的製備，鎳粉、鉬粉、碳粉與黏結劑的使用份量分別為 185 公克、15 公克、10~15 公克(5~7.5wt%)與 2 公克(0.75wt%)。在 250°C 入口溫度、 125°C 出口溫度、16,000 rpm 的轉盤轉速下，完成鎳鉬金屬的噴霧造粒程序。

2. 乾壓：乾壓模具之結構示意圖如(圖 2)所示，將鎳鉬粉團置入乾壓模具後，在單軸加壓設備中進行機械加壓，成型壓力(20~50 噸)、加壓速度(1~20 噸/分)、持壓時間(0~5 分鐘)，完成 $6 \times 6 \text{ cm}^2$ 的平板型生胚，乾壓成型示意圖如(圖 3)所示。

3. 燒結熱處理：最後燒結溫度為 $1,000 \sim 1,250^\circ\text{C}$ 。

(四) 金屬基板製備(穿孔式製程)

1. 取 1.0 mm 厚 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 之 Crofer22H 板進行鑽孔程序，在 $8 \times 8 \text{ cm}^2$ 的範圍內，利用雷射進行直徑為 1.0 mm 之穿透孔洞之製備，孔洞總數目為 2,500 孔。
2. 取 0.12 mm 厚 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 之 Crofer22H 板同樣進行鑽孔程序，在 $8 \times 8 \text{ cm}^2$ 的範圍內，利用雷射進行直徑為 $110 \text{ }\mu\text{m}$ 之穿透孔洞之製備，孔洞總數目為 120,000 孔。
3. 利用合金焊料將前述兩 Crofer22H 板進行疊合焊接，所完成之基板再經(二)1. 中所述之熱壓處理後，進行 SOFC 膜電極組的製備，目前所製備的電池結構為 YSZ-NiO/GDC-NiO/LDC/LSGM/LDC/BSCF-C。

(五) LSGM 粉末燒結助劑添加程序

利用噴霧造粒技術將 1.0 wt%之燒結助劑加入球形化 LSGM 粉末中，再將所取的之粉末進行粉末尺寸分級後即可應用於 LSGM 電解質膜層製備原料粉末中。

(六) APS 噴塗製備 MSC 功能膜程序

MEA 結構如下(圖 4)所示，Ni-Mo 為使用之基板，LSCM 與 LDC/Ni 可視為

陽極層，SDC 為擴散阻障層亦可視為電解質層，LSGM 為電解質層，MS-SOFC 電池片的電漿噴塗程序如下所列：

1. Micro YSZ-NiO 層，噴塗功率 40~45 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 6 道次，基板預熱溫度 800°C。
2. LDC-NiO 複合層，噴塗功率 40~45 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 6 道次，基板預熱溫度 800°C。
3. SDC 隔離層，噴塗功率 >50 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 2 道次，基板預熱溫度 800°C。
4. LSGM 電解質層，噴塗功率 >50 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 14 道次，基板預熱溫度 800°C。
5. SDC 緩衝層，噴塗功率 >50 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 1 道次，基板預熱溫度 800°C。
6. 陰極層，噴塗功率 25~29 kW，噴塗距離 10~12 公分，噴塗 8 道次，基板預熱溫度 695°C，所使用之陰極材料計有 LSCF-GDC、BSCF 加碳、SSC-SDC 以及 LSCo 等四種。

(七) 金屬連接板保護膜製備

1. 基板處理步驟

本計畫所使用的金屬連接板共計有 Crofer[®] 22 H (以下簡稱 22H)、Crofer[®] 22 APU (以下簡稱 APU) 以及 SS441 等 3 種基板，XRD 晶相結果確認本案所使用之金屬連接板屬於肥粒鐵系(Ferritic phase)的金屬連接板。所使用的金屬連接板表面在進行 APS 噴塗程序前，皆施以表面噴砂處理，所使用的磨砂材質為氧化鋁，在 1×1 cm² 的基板表面進行 1 分鐘的表面噴砂，增加基板表面粗糙度提升膜層附著力。此三種金屬基板在進行 APS 噴塗程序前，有部分樣品會經過一道預氧化(pre-oxidation)處理步驟，預氧化條件為：大氣環境下以每分鐘 3°C 之升溫速率升溫至 800°C，並且在 800°C 的條件下持溫 12 小時，最後以爐冷的方式完成預氧化處理步驟。

2. CMC 粉末合成

(a) 螯合：本計畫利用 sol-gel 法進行 CMC 粉末製備，所使用的溶液先驅物之製備程序如(圖 5)所示，將 Ce、Mn、Co 的硝酸鹽藥品依莫爾比 1:29.5:29.5 的比例溶入去離子水中，並加入 1.5 倍的檸檬酸做為螯合劑，形成金屬離子濃度達到 1.0 M 以及檸檬酸濃度達到 1.5 M 的水溶液，並藉由加熱處理促進檸檬酸的耦合效果，得到所需要的鉗合物溶液(complex solution)。

(b) 熱處理：將經過螯合程序之鉗合物溶液加熱至 130°C 並持溫 2 小時，得到膠狀生成物，再將此膠狀物加熱至 300°C 將反應先驅物裂解得到氧化物粉末，該粉末經過 600°C 持溫 2 小時熱處理後即可得到具尖晶石結構之 CMC 粉末。

(c) 噴霧造粒：CMC 粉末經過式當研磨處理後被配製成水基漿料，利用噴霧造粒技術將 CMC 粉末團聚成近圓形粉末，作為後續電漿噴塗製程之原料粉末。

3. 噴塗參數

使用 Crofer22APU 金屬連接板作為基板，並降低基板預熱溫度至 500、300 與 100°C

進行大氣電漿噴塗作業，其餘所使用之噴塗參數，例如，噴塗功率、電漿氣體與噴塗到次等皆維持不變，進行預熱溫度對 LSM 保護膜性能影響之研究。

(八) 電池片測試

測試 $5 \times 5 \text{ cm}^2$ MS-SOFC 電池片之使用氣體條件為：陽極氣體(100% H_2)，總流率為 335 cc/min；陰極氣體(100%空氣)，670 cc/min，測試溫度範圍：750~650°C，藉由 AC Impedance 量測取得 MSC 電池片之阻抗表現，施加電壓振幅為 $\pm 20 \text{ mV}$ 。

(九) MS-SOFC 電池堆組裝與測試

採用標準製程 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 的鎳鉬多孔透氣板完成 36 片電池堆的組裝，先在氧氣環境下進行電池堆的測試，再將測試完成的 36 片電池堆置入 SOFC 發電系統內進行測試。

三、結果與討論

(一) ODS 粉末合成與基板製備結果

以 sol-gel 法合成製備之 ODS 粉末之結晶繞射結果如(圖 6)所示，由該圖可知，經過 600°C 熱處理的粉末由 NiO 、 Fe_2O_3 與 Ni 組成，金屬鎳的存在顯示部分硝酸鎳在熱處理過程中受到顆粒外部氧化層的保護，因此在顆粒內部形成金屬鎳。經過高溫(1,000°C/4 h)還原處理後， NiO 與 Fe_2O_3 皆已還原為金屬態，而且形成鎳鐵合金相，此外， Y_2O_3 氧化物繞射峰之存在顯示，ODS 粉末已被成功地合成。由粉末表面形貌觀察如(圖 7)可知，ODS 粉末表面散佈有許多的細小顆粒，這些細小顆粒尺寸落在 80 至 200 nm 範圍間，輔以經過高溫燒結處理之 ODS 基板之橫截面觀察結果如(圖 8)可確認，由 Y_2O_3 所組成的氧化物顆粒已經確實地散布於由鎳、鐵、鉬所組成的金屬母材(matrix)中，而且 EDS 成分分析結果顯示，ODS 基板的化學組成與原始設計比例接近。由 Ni 、 Fe 、 Mo 和 Y_2O_3 所組成的 ODS 粉末已經可以被製備成多孔金屬基板如(圖 9a)，該基板之透氣率約為 0.5 Darcy，符合模壓成型基板的透氣要求，根據前述結果可知， Y_2O_3 顆粒大小約為 100 nm 左右，為求得到更好的氧化物散佈強化效果，本計畫已經降低粉末合成過程中所添加的 Y 元素含量，希望降低 Y 元素的團聚與粗大化現象，以求得到奈米尺度的氧化物分散效果，目前成果如(圖 9b)所示，新合成粉末之氧化物顆粒尺寸已明顯下降至 50 nm 左右，達成預期效果。

(二) 多孔金屬基板表面縮孔與改質結果

已可成功利用刮刀成形法製備燒結後約 110 μm 厚之鎳金屬薄帶，製備得到之鎳薄帶搭配如(圖 10)所示之熱壓爐及熱壓程序，已可成功完成將鎳金屬薄帶披覆於多孔金屬基板表面之目的，透過此兩部分之處理，可有效減少電漿噴塗製備電池過程中，因為基板表面孔洞或高低落差太大，而產生會造成電解質層漏氣的 pin hole 或微縫之現象。(圖 11)所示為多孔鎳鉬超合金基板表面經過覆膜與熱壓熱處理後之表面與橫截面形貌，由圖中可知，多孔基板表面孔洞尺寸皆已小於 30 μm ，表面高低落差亦大幅減少，而且經過透氣量測後，基板之透氣率仍可維持 1.2 Darcy 之高透氣表現，明年度將持續完成 MS-SOFC 電池片之製備，並進行相關發電特性之量測。

(三) 模壓基板結果

10×10 cm² 之 MSC 單電池(使用模壓基板)在溫度 700°C 下進行長時間穩定性測試結果如(圖 12)所示，目前已歷時 2,582 h(包含 2 次 thermal cycle、3 次 recovery)，之後在 400 mA/cm² 定電流下約歷時 1,249 h 工作電壓由 859 mV 降至目前的 783 mV 衰退率約 7.08%/1,000 h，相較於 5×5 cm² 電池片之最佳衰退率達 7.6%/1,000 h 持續進行改善。以模壓方式所開發之金屬多孔基板之孔隙率測定以及孔隙率與製程參數之相關性結果如(圖 13~15)所示，開孔隙率與閉孔隙率之測定係以阿基米德法進行，所使用的公式如公式 1~3，其測定程序係根據 ASTM B328-96 之規範完成。

$$Porosity(\%) = \left(1 - \frac{Bulk\ density}{True\ density}\right) \times 100 \dots\dots\dots (公式 1)$$

$$Open\ pore(\%) = \left[\left(\frac{W_2 - W_1}{D_{wax}} \right) / \left(\frac{W_2 - W_3}{D_w} \right) \right] \times 100 \dots\dots\dots (公式 2)$$

$$Closed\ pore(\%) = Porosity - Open\ pore \dots\dots\dots (公式 3)$$

W_1 = mass of specimen in air, g,
 W_2 = mass of water-proof specimen in air, g,
 W_3 = mass of water-proof specimen in water, g,
 D_w = density of water at immersion temperature, g cm⁻³,
 D_{wax} = density of wax, g cm⁻³.

由(圖 13)可知，在固定燒結溫度(1,250°C)條件下，不添加成孔劑的多孔金屬基板孔隙率為 25.7%；隨著增加成孔劑添加量(2.5%~7.5%)，金屬基板孔隙率隨之變大，介於 25.7%~40.3%；於固定成孔劑添加量(7.5%)下，隨著增加燒結溫度(1,000°C~1,250°C)，金屬基板孔隙率隨之變小，介於 49.2%~40.3%。由(圖 14)可知，於固定燒結溫度(1,250°C)下，不添加成孔劑的多孔金屬基板開孔隙率為 1.73%；隨著增加成孔劑添加量(2.5%~7.5%)，金屬基板開孔隙率隨之變大，介於 1.73%~14.3%；於固定成孔劑添加量(7.5%)下，隨著增加燒結溫度(1,000°C~1,250°C)，金屬基板開孔隙率隨之變小，介於 14.3%~29.8%。金屬基板閉孔隙率則呈現一不規則變化，介於 16.7%~26.5%。

(四) 穿孔製程金屬基板成果

(圖 15)為利用穿孔製程製備得到之多孔基板進行大氣電漿噴塗 SOFC 膜電極組後之電池片成品，電池片經過電漿噴塗後，經過貼合之兩層 Crofer22H 板之間沒有脫離的現象，而且電池片維持良好的平整度，顯示基板可承受高溫熱噴塗之應力，而且因為基板之熱膨脹係數與膜電極組之間的熱膨脹係數相對接近，所以電池片具有優良的表面平整性。(圖 16)為具有前述處理步驟所述結構之電池片測試後得到之 IVP 性能，在 700°C 測試溫度下，電池片之 OCV 可達 1.1 V，顯示電解質氣密性優良。在 700 及 750°C 溫度下，發電功率分別可達 363 與 465

mW/cm^2 ，發電功率相較於本計畫先前開發之鎳鉬基板稍低，研判應是在高電流條件下，有濃度極化限制所致，整體而言初步結果顯示此類型基板仍具有實際應用潛力，尤其是在本計畫未來擬開發之無電池框架系統中，可減少氣體經由多孔基板邊緣導致之洩漏。因此，未來仍將持續進行此類基板之開發與改良。

(五) 金屬連接板保護膜成果

1. LSM 保護膜長時穩定性結果

利用 APS 技術製備 LSM 保護膜於 Crofer22H 基板之橫截面觀察結果如(圖 17~21)所示，(圖 17)樣品為未經預氧化樣品經過 600 小時電性量測後結果，(圖 18、19)分別為基板經過預氧化處理樣品之初始與經過 600 小時熱處理後結果，由(圖 17)可知，經過高溫長時量測後，APS-LSM 膜層與基板的附著性良好，沒有膜層脫離的現象產生，除了封閉的孔洞外，沒有穿透式的裂紋存在，在膜層與基板界面處的深色帶狀區域，為高溫處理後產生的氧化層，該氧化層的厚度約 $2\text{ }\mu\text{m}$ 。(圖 20)為(圖 17)之氧化層成分分析結果，結果顯示，該氧化層可概分為雙層結構，外部為 Mn、Cr、O 所組成的氧化物，內部為 Cr、O 為主的氧化物，此結果與文獻報導相同，顯示基板中的 Mn 元素往外擴散速度較 Cr 元素擴散速度快，在外層形成由 Mn、Cr、O 組成的氧化層。(圖 18)是基板經過預氧化處理的 22H 試片，在鍍膜完成後的橫截面觀察結果，在鍍膜與基板的界面處有一條連續的深色帶狀氧化層，該氧化層的出現乃肇因於基板的預氧化處理，所以，該氧化層的厚度與未經預氧化處理的試片不同，其厚度明顯較薄。(圖 19)為(圖 18)試片經過 600 小時的高溫量測後的截面觀察結果，經過高溫長時熱處理後，LSM 膜層仍然維持緻密微結構，也沒有裂紋或膜層分離現象產生，但是過長時間熱處理後，氧化層的厚度明顯增加，厚度達到約 $2\text{ }\mu\text{m}$ 。界面層的成份分布結果如(圖 21)所示，該氧化層主要由 Mn、Cr、O 等三元素所組成，氧化層外部 Mn 元素比例高，越接近基板的氧化層其 Mn 元素比例降低，同時 Cr 元素比例增加，分布情形與未經預氧化試片相同，即外層為 Mn-rich 的 Mn、Cr 氧化物，內層為 Cr-rich 的氧化物。其高溫長時電性結果如(圖 22)所示，在超過 1 年的總測試時間下(包含 4 次熱循環)，具 LSM 保護膜之三種金屬連接板其高溫 ASR 值皆遠低於國際標準值 $100\text{ m}\Omega\text{cm}^2$ ，而且平均 ASR 上升率也都低於本計畫之門檻值 $2.5\text{ }\mu\Omega\text{cm}^2/\text{h}$ ，顯示電漿噴塗技術能達到金屬連接板保護膜之電性品質要求，依照目前結果可使用壽命超過 40,000 小時，達到可商業化應用門檻。

2. CMC 保護膜長時穩定性結果

自行合成之 $\text{Ce}_{0.05}\text{Mn}_{1.475}\text{Co}_{1.475}\text{O}_4$ 粉末(CMC)，可藉由電漿噴塗程序於 Crofer 22H、APU 與 SS441 基板表面形成保護膜，其鍍膜表面形貌如(圖 23)所示。CMC/APU 鍍膜樣品經過 $800^\circ\text{C}/4\text{ h}$ 之熱處理後，鍍膜仍可維持緻密的表面形貌，而且化學元素組成接近原始粉末組成如(圖 24)所示。該樣品之高溫長時電性結果如(圖 25)所示，經過 3,750 小時之量測結果顯示，CMC 保護膜相較於 LSM 保護膜有明顯的電性改善效果，在 Crofer22H、22APU 和 SS441 基板上分別有 70.3%、88.3%以及 22.7%的平均 ASR 上升率降低效果。

3. 降低 LSM 噴塗溫度結果

降低 Ccrofer22APU 基板預熱溫度樣品之高溫長時電性量測結果如(圖 26)所示，結果顯示，在相對低溫下(100、300、500°C)製備的 LSM 保護膜樣品，歷經 3,750 h 高溫量測後，其平均 ASR 上升率皆低於以 800°C 為製備溫度的 LSM 樣品，而且目前所有樣品之 ASR 值皆低於 $5 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ ，符合計畫目標。

4. LSM 保護膜於短電池堆應用結果

(圖 27)為已披覆 LSM 保護膜之陽極端板與電池片框架照片，該組電池堆經過堆疊組裝後，已經完成 IVP 電池性能與高溫長時穩定性之測量。該組短電池堆相關實驗結果如(圖 28)所示，在 700 與 750°C 量測條件下，電池發電功率分別可達 507 與 575 mW/cm^2 ，具有優異的發電功率。在經過長達 2,000 小時穩定性測試後，電池電壓由 733 mV 微幅降低至 723 mV，其衰退率僅達 0.77%/1,000 h，該組電池堆優異的長時穩定性表現證明，除了本計畫開發之 MS-SOFC 電池片具有優異電性表現以外，以高品質大氣電漿噴塗技術製備得到之 LSM 保護膜亦可有效地降低金屬連接板之表面氧化速率與鉻蒸氣往外擴散的速率。

(六) MS-SOFC 電池片性能測試結果

針對電池穩定性提升研究，本計畫進行了下列四組不同陰極 (LSCF/GDC；BSCF/C；SDC/SSC；LSCo)之測試，測試結果如(圖 29)所示，結果顯示以 LSCo 當陰極的電池在 $400 \text{ mA}/\text{cm}^2$ ，700°C 下長時間穩定性表現最佳，為確定其穩定再現性，另行安排第 2 片 LSCo 電池片進行穩定性驗證，測試結果如(圖 30)所示，兩組樣品經過約 250 小時測試後，衰退率各為 1.1 與 1.7%/1,000 h，顯示 LSCo 確實具有穩定的電性表現。此外，於可電漿噴塗 LSGM 粉末中摻雜 1.0 wt% 燒結助劑之電解質電性測試結果如(圖 31、32)所示，該組 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 電池片具有高功率輸出，分別在 800°C @0.78 V 下有 51.6 W、750°C @0.728 V 有 48.5 W 及 700°C @0.7 V 有 41 W，在 5×5 和 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 電池在 open cell 環境下之長時間穩定性均有優異的表現，衰退率僅約 1.64%/1,000 h，其穩定性表現在沒有電池框架焊接保護下，為近來最佳表現，後續將進一步釐清其性能與材料間關係。進行熱循環測試樣品之電池結構為：Micro YSZ/NiO-LDC/NiO-SDC-LSGM-SDC-50%SDC+50%SSC/25%SDC+75%SSC，測試溫度區間為 250°C 至 700°C，測試步驟為：(1)在 Dilute gas(20%氫氣)氣氛下進行升降溫，升降溫速率為 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ ，(2)升溫至 700°C 時氣氛再轉換成 $\text{H}_2=335 \text{ ml}/\text{min} + \text{Air}=670 \text{ ml}/\text{min}$ ，(3)定電流 $400 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 下工作 8hr，觀察電壓變化，目前經歷 28 次 thermal cycle test，升降溫速率分別有 1、3、4、5°C/min，電池片在定電流 $400 \text{ mA}/\text{cm}^2$ 下累積電壓降僅 16 mV，顯現 MSC 電池片確實具備耐熱循環特性，實驗數據如(圖 33)所示。

(七) 36 片 MS-SOFC 電池片製備

於 104 年 11 月底，本計畫已順利完成 36 片高效率之 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ MS-SOFC 電池片之製備，將於完成框架覆膜與焊接作業後，轉交計畫內電池堆小組進行堆疊與封裝，進行額定功率達 1 kW 之 MS-SOFC 電池發電系統組裝與測試。

四、結語與未來工作重點

電漿噴塗團隊在 104 年度之期中工作成果如下，針對(1)自製 ODS 粉末與其多孔透氣基板、(2)模壓式多孔透氣板基板性能量測及其 MSC 電池片製備、(3)以 APS 進行金屬連接板保護膜製程開發以及(4)自製 MS-SOFC 電池片長時穩定性改善與熱循環性能測定，皆已達到年度計畫目標。未來將持續針對基板性能改進、電池片品質穩定、連接板保護膜特性研究、技轉工作推動以及配合計畫需求產製 kW 級發電系統所需之 MS-SOFC 電池片進行相關研究工作。

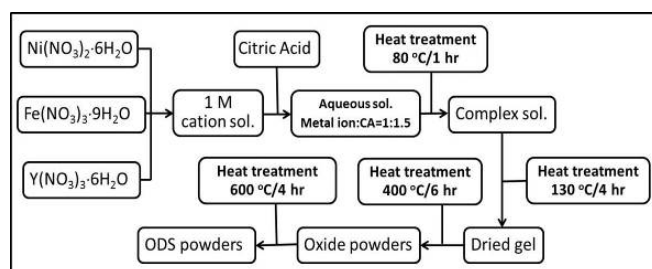


圖 1. ODS 粉末合成流程圖

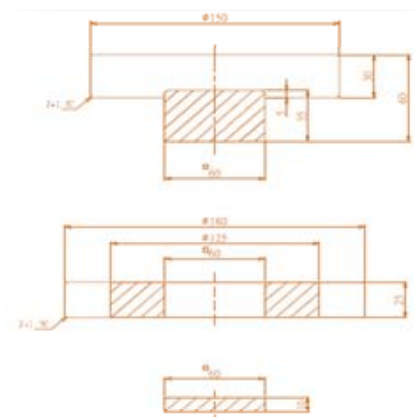


圖 2. 模壓基板之模具設計圖

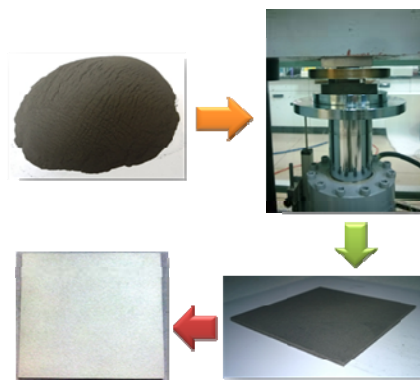


圖 3. 模壓基板製備流程示意圖

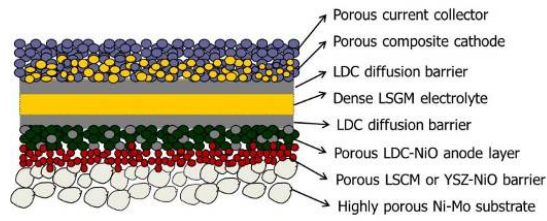


圖 4. 36 片 MS-SOFC 電池堆所使用的 MEA 結構示意圖

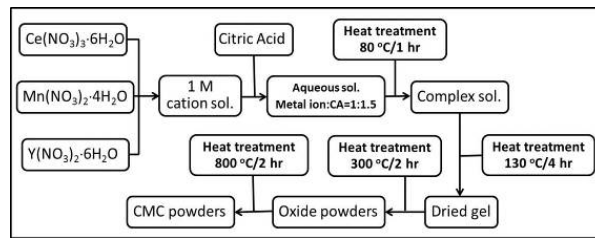


圖 5. CMC 粉末合成流程圖

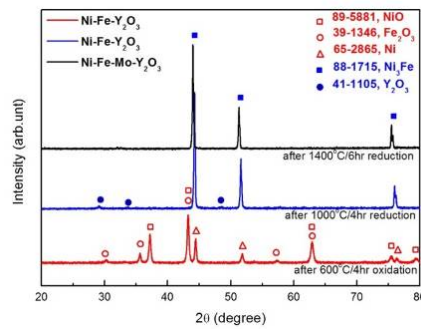


圖 6. ODS 粉末結晶繞射結果

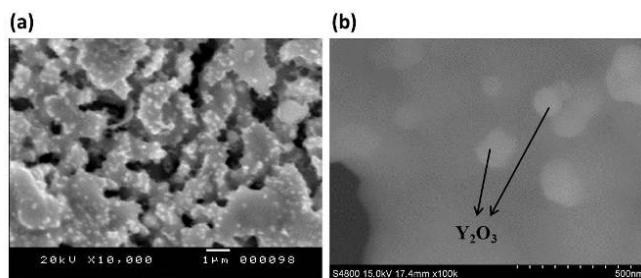


圖 7. 經過還原處理的 ODS 粉末之表面形貌觀察結果

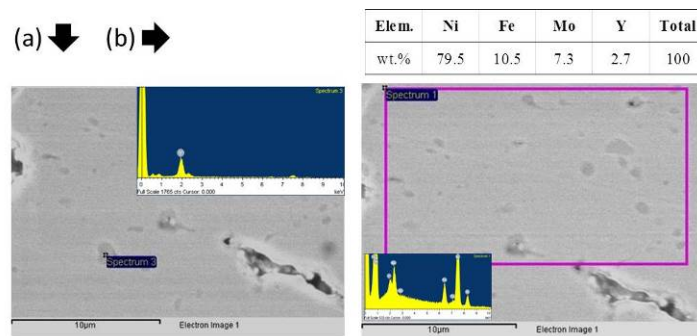


圖 8. 經燒結處理後之基板橫截面觀察結果

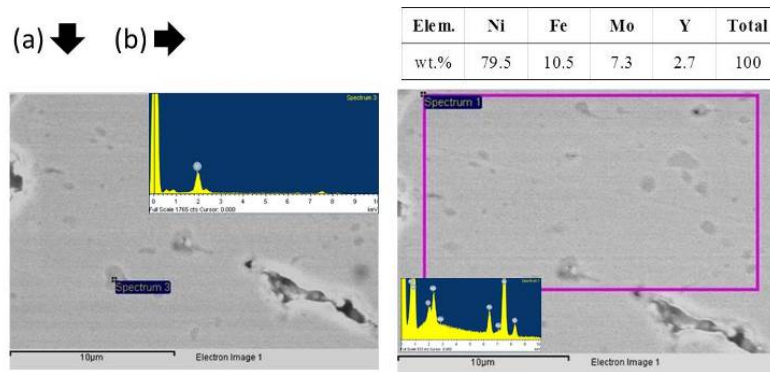


圖 9. (a)經高溫燒結之 $5 \times 5 \text{ cm}^2$ 多孔 ODS 基板，(b)降低 Y 含量之 ODS 粉末表面觀察結果



圖 10. 真空熱壓爐

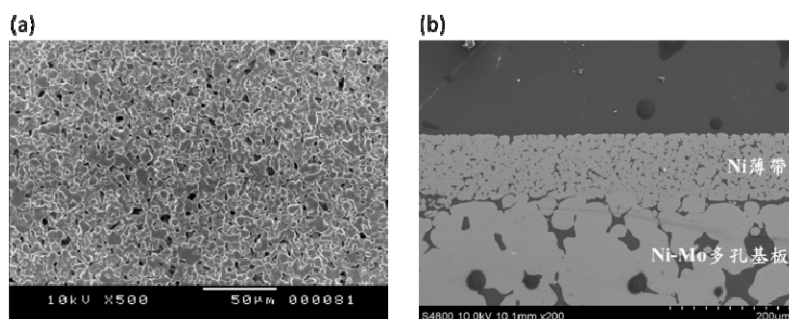


圖 11. 經過表面覆膜與熱壓處理後之多孔鎳鉬合金基板之(a)表面與(b)橫截面結構圖

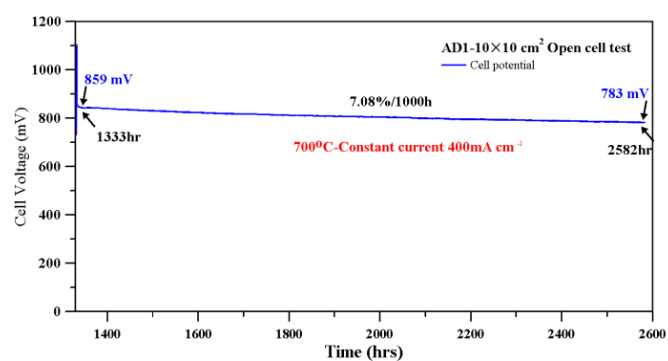


圖 12. $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 電池片長時穩定性測試結果

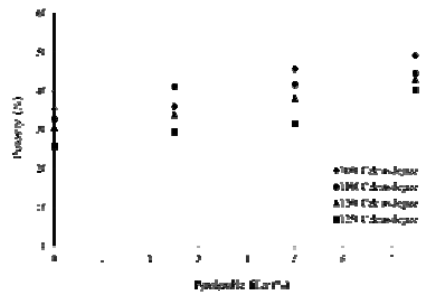


圖 13. 未經預氧化之 LSM/Crofer22H 樣品經過 600 小時電性量測後橫截面

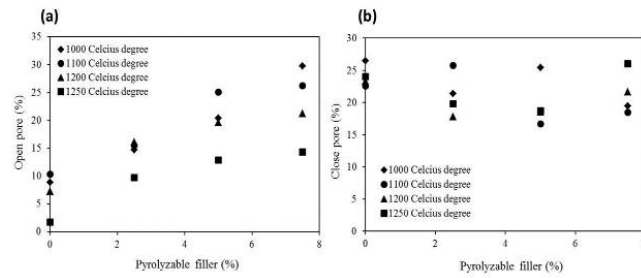


圖 14. 模壓基板之開孔隙率與閉孔隙率對燒結溫度與成孔劑添加量之關係

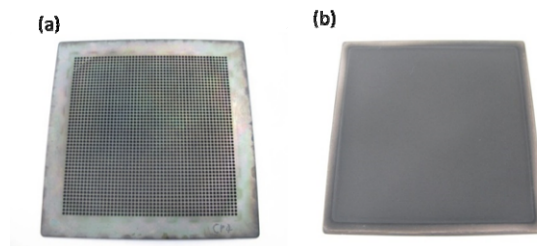


圖 15. 穿孔式基板製備得到之 MS-SOFC 電池片實品，(a)陽極進氣端照片，(b)陰極端照片

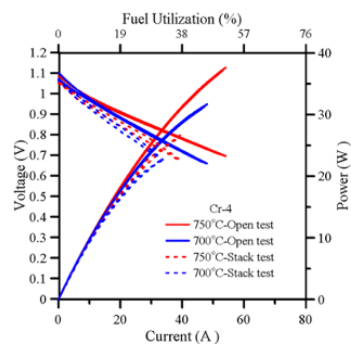


圖 16. 穿孔式 MS-SOFC 電池片之 IVP 測試結果

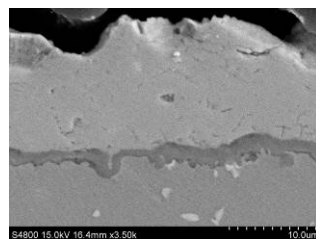


圖 17. 未經預氧化之 LSM/Crofer22H 樣品經過 600 小時電性量測後橫截面

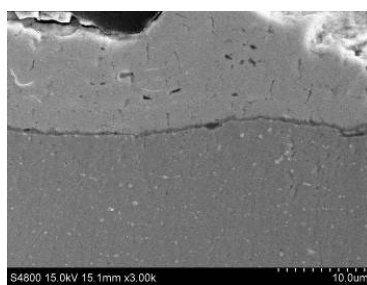


圖 18. 經預氧化之 LSM/Crofer22H 樣品在熱處理前之橫截面

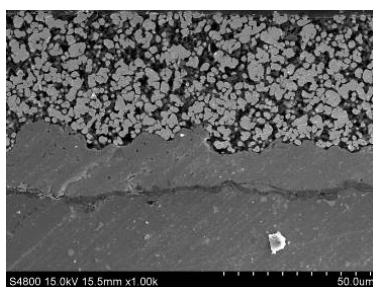


圖 19. 經預氧化之 LSM/Crofer22H 樣品經過 600 小時熱處理後之橫截面

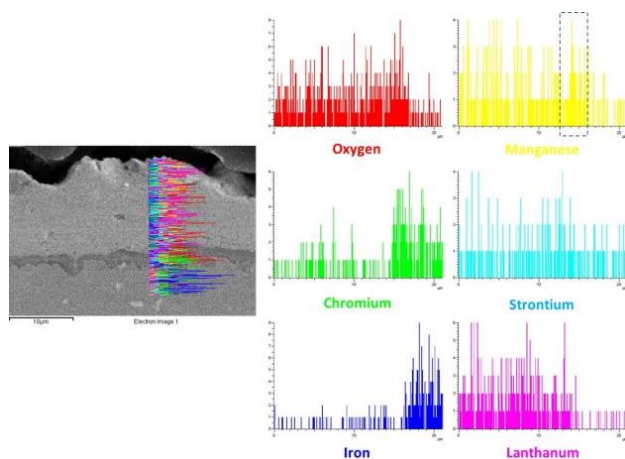


圖 20. 圖 17 之成分分析結果

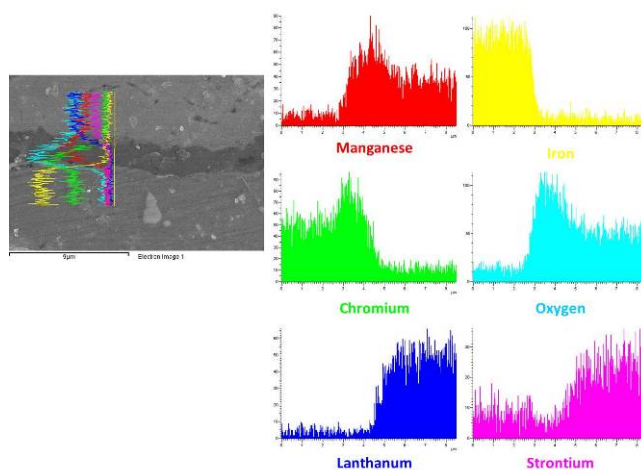


圖 21. 圖 19 之成分分析結果

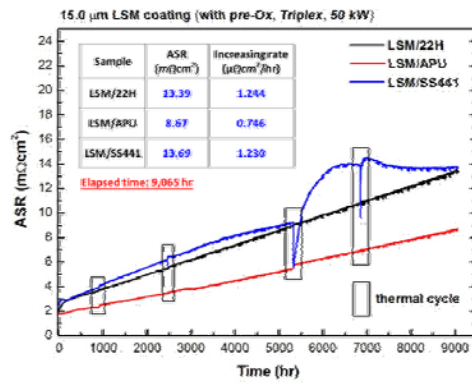


圖 22. APS-LSM 保護膜之高溫長時電性結果

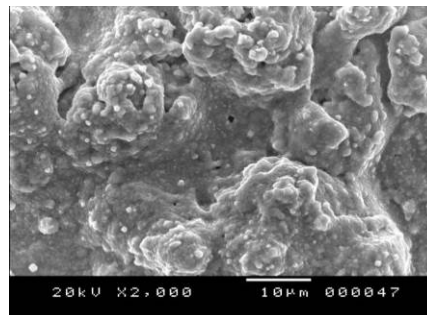
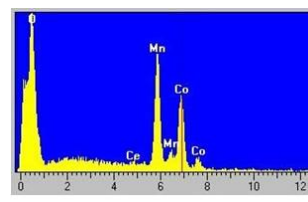


圖 23. CMC 保護膜於 Crofer22APU 基板之表面形貌



Element	Spect. type	atomic (%)
Mn	EDS	49.61
Co	EDS	48.76
Ce	EDS	1.63
Total		100

圖 24. 使用 LSCo 陰極之 MSC 電池片之穩定性驗證結果

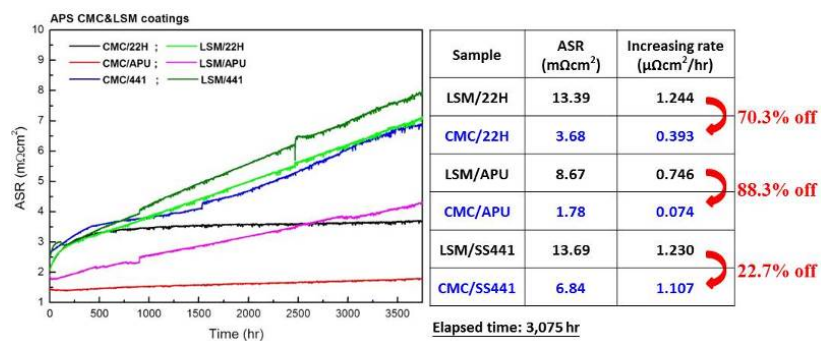


圖 25. CMC 樣品之長時電性量測結果



圖 27. 電漿噴塗 LSM 保護膜披覆於陽極端板與電池框架之實體照片

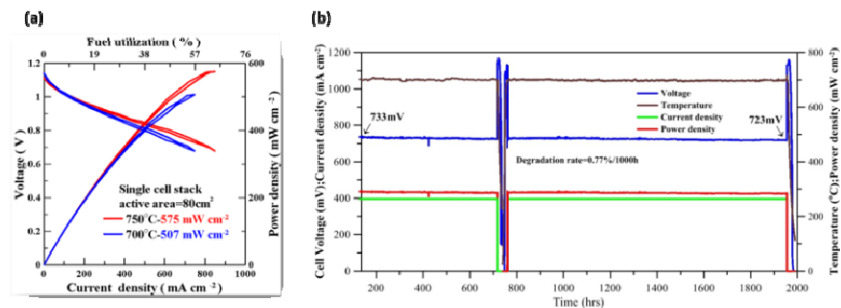


圖 28. 具有 LSM 保護膜之 MS-SOFC 短電池堆之電性量測結果，
(a)IVP 結果，(b)長時電性結果

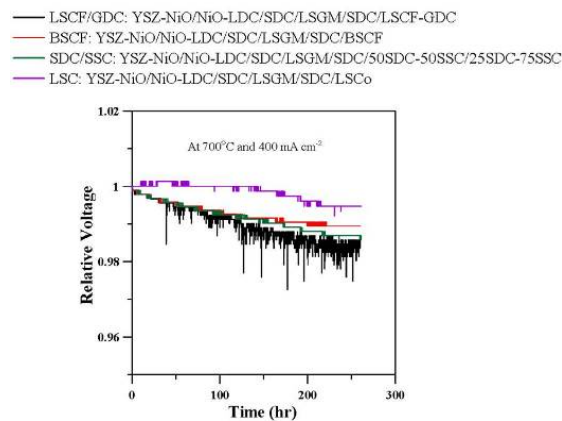


圖 29. 使用不同陰極之 MSC 電池片之穩定性測試結果

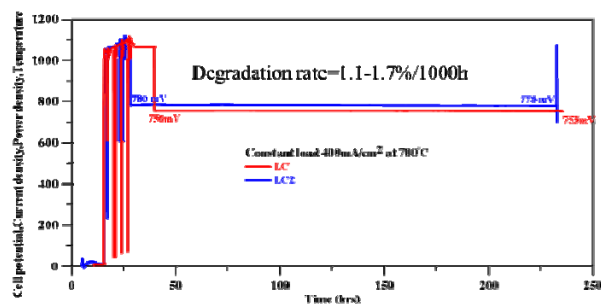


圖 30. 使用 LSCo 陰極之 MSC 電池片之穩定性驗證結果

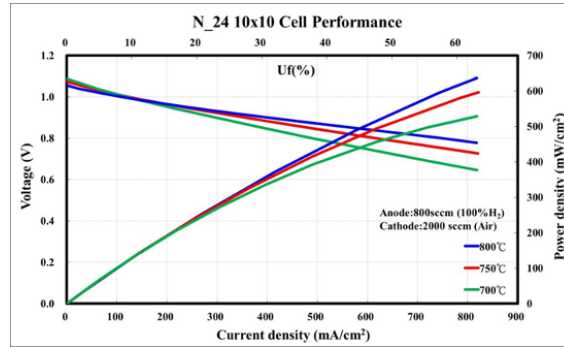


圖 31. LSGM 電解質摻雜 1.0%燒結助劑之 MS-SOFC 電池片電性測試結果

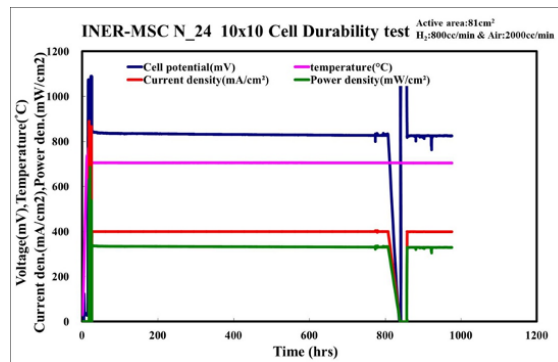


圖 32. LSGM 電解質摻雜 1.0%燒結助劑之 MS-SOFC 電池片長時穩定性測試結果

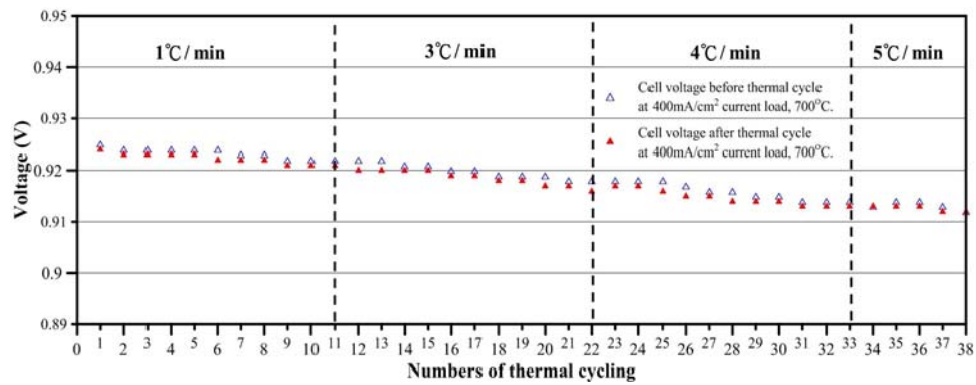


圖 33. MS-SOFC 電池片熱循環測試結果

固態氧化物燃料電池熱電共生系統用燃料重組奈米觸媒研發

一、前言

隨著全球經濟的快速發展，能源之需求與日遽增，然而可用之化石燃料存量卻日益減少，在可預見的未來，我們將會面臨能源成本日益增加與能源短缺等問題。不僅如此，在全世界對環境品質所頒訂之法規要求愈趨嚴謹之下，其中如溫室氣體(主要為二氧化碳)的排放也受到世界各國重視，因此尋求高效能、新潔淨能源的迫切需求已逐漸顯現，其中固態氧化物燃料電池(Solid Oxide Fuel Cell, SOFC)是未來最有希望的潔淨能源之一，主要因為它具有高發電效率與低二氧化碳釋放率。

重組產氫依含氫物料來源可分為有天然氣、石油、煤炭及電解水等方式，但目前其中仍以天然氣產氫佔大宗。由於天然氣蘊藏量豐富，約為目前已知全球化石燃料等能源之有機碳總儲量的兩倍，極可能成為二十一世紀最重要能源資源之一。因此目前各國無不爭先研發天然氣產氫之能源，以求未來能在掌握能源中占有一席之地。天然氣主要成份是甲烷(CH_4)，其含量約佔 85~95%，甲烷係含氫比例最高之碳氫化合物，可產生氫氣的比例也最高。核能研究所在 2003 年開始固態氧化物燃料電池(SOFC)系統之研發計畫，是以天然氣產氫重組反應後之富氫氣體可提供為 SOFC 系統所需之燃料，其中開發天然氣重組觸媒為 SOFC 系統的關鍵技術之一。現今奈米粒子製造技術，可用於製造各種具特殊功能的材料，是相當具有前景的。這種技術當然亦可用來產製奈米觸媒。透過適當的控制製備條件，可控制觸媒的粒徑分佈及粒子間的孔隙度等。由於奈米粒子的表面原子之比例很高，因而可充分發揮其化學反應性。近年來奈米觸媒逐漸被應用在化學反應上。其反應性較傳統觸媒大為增強，且選擇性也可能變佳，穩定性方面也有不錯的表現。

經由本所於先前的 SOFC 之重組觸媒開發歷程中發現，其 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 載體製成的鎳基顆粒重組產氫觸媒，經重組產氫反應後會發生觸媒粉化和積碳現象，後端產出的富氫氣體也會造成一流量不穩的脈衝，甚至觸媒粉塵和積碳藉由氣體管路污染到後面的 SOFC 系統，造成阻塞系統當機，此觸媒重組器對其他設備造成的影響極大，因此本年度接續開發載體改質後重組觸媒，研究結果發現，此觸媒使用 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 觸媒載體在重組反應時比使用 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 觸媒載體更能夠保持穩定，不受所需的工作溫度影響。此外，使用二氧化鈾(CeO_2)促進劑輔助奈米鉑催化劑塗在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的觸媒載體上，即 $\text{Pt/CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ，能顯著消除積碳問題且 H_2 產量約 60%，甲烷轉化率>75%以上，目前長效測試，仍然能夠保持良好的狀態，耐久性測試持續進行中。此載體改質後觸媒具有床層壓降低、催化活性高、傳質效率高的優勢，適合氣體高空間流速的反應過程並解決了現有顆粒觸媒存在的床層壓降大，導熱性能差，顆粒觸媒受熱應力衝擊易破碎等問題。

二、實驗方法步驟

(一) 實驗設備

本實驗是採水蒸氣重組反應，系將甲烷、氮氣與水等三者混合後，再與觸媒進行高溫重組產氫反應，實驗過程以固定 $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ 比進行，所以各種反應物都要以計量器定量，依比例精確控制進料量，使反應穩定持續進行。並且重組產氫反應在 800°C 的高溫氣相中進行，實驗裝置必須提供熱能且氣密之環境。反應產出之氣體有氫氣、一氧化碳、二氧化碳、氮氣及微量未轉化之甲烷供 SOFC 系統發電使用，(圖 1)為核研所開發之觸媒性能測試系統示意圖(已獲得美國發明專利 US 8,703,060 B2 及中華民國發明 第 I 441379 號)。該測試系統亦可進行量產觸媒之品質檢測，測試條件如(圖 2)所示，最後是以甲烷之轉化率大於 70%為判定觸媒之良率。

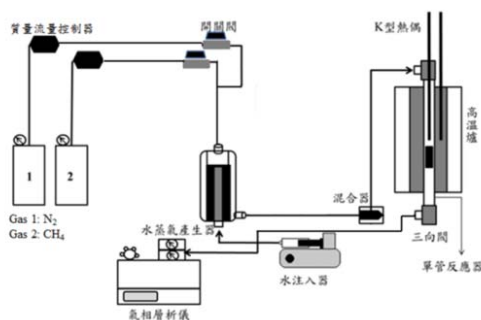


圖 1. INER 開發之觸媒性能測試系統示意圖

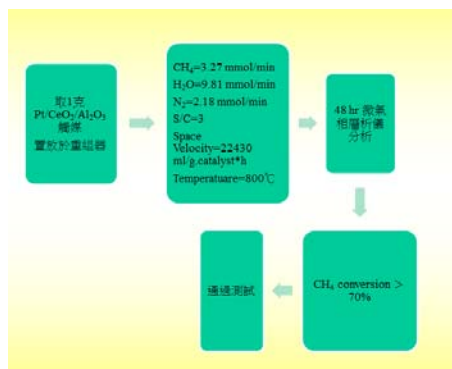


圖 2. 觸媒樣品批次取樣檢測 SOP

(二) 多孔道甲烷重組觸媒載體製程：

A. 載體製程：

- (1) 取氫氧化鋁($\text{Al}(\text{OH})_3$)置於烘箱，設定溫度 120°C 下烘乾，再置入高溫爐中以 400°C 煅燒 5 小時，得到氧化鋁粉末。
- (2) 將氧化鋁粉末造粒後進行煅燒。
煅燒溫度條件為：室溫→ $400^\circ\text{C}/2^\circ\text{C}$ → 400°C /持溫 2 小時→ $600^\circ\text{C}/1^\circ\text{C}$ → 600°C /持溫 2 小時→ $1,200^\circ\text{C}/1^\circ\text{C}$ → $1,200^\circ\text{C}$ /持溫 5 小時

B.觸媒披覆製程如下：

- (1) 配製硝酸鈰溶液。
- (2) 將 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 觸媒載體與硝酸鈰溶液含浸放置。
- (3) 將含浸之 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 觸媒擔體顆粒及硝酸鈰溶液以真空迴旋濃縮機抽去剩餘之水份。
- (4) 將水份去除後所得到之 $\text{CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 放置於烘箱中乾燥。
- (5) 將上述乾燥之 $\text{CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 置於高溫爐中煅燒。
- (6) 配製白金溶液。
- (7) 將煅燒後之 $\text{CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 顆粒與白金溶液含浸放置。
- (8) 含浸之 $\text{CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 顆粒及白金溶液以真空迴旋濃縮機抽去剩餘之水份及烘乾。
- (9) 烘乾之顆粒置於高溫爐中，設定溫度 600°C 煅燒，完成 $\text{Pt/CeO}_2/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 觸媒。

本研究開發新型載體觸媒的主要程序如(圖 3)所示：

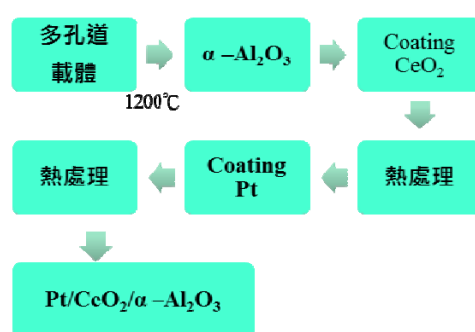


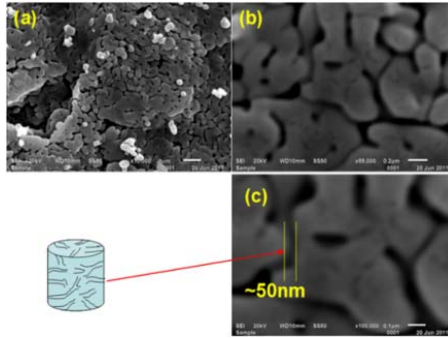
圖 3. 新型載體觸媒的主要程序

(三) 觸媒結晶結構與成分分析

為考慮高溫之觸媒重組反應，可能因載體之影響，造成觸媒失去活性，故本實驗係以氫氧化鋁和奈米碳管複合的方法，可提高觸媒載體的高溫熱穩定性和機械強度，改進複合載體的成型程序，製備出多孔道和機械強度互相匹配，克服先前所遭遇之粉化碎裂問題，並以此多孔道 α -氧化鋁作為載體而製備成觸媒，如(圖 4)顯示此載體具有 50 奈米之微孔道，符合固態氧化物燃料電池發電系統用之燃料重組觸媒要求的新型觸媒載體如(圖 5)。

此載體是以氫氧化鋁為前驅物先將載體煅燒至 600°C 再升溫至 $1,200^\circ\text{C}$ ，將 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 轉化成 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 晶相，藉此提高載體之高溫熱穩定性和機械強度。

高溫處理前後其晶相組成可經由 X 光繞射分析儀(X-ray diffraction, XRD)判定如(圖 6)所示，比較可知本實驗之 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 之 XRD 所呈現之特徵峰明顯較 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 明確，顯示 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 載體結晶結構明顯變好。此外，將混合 3wt% 奈米碳管或活性碳之 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 載體進行高溫煅燒程序，形成具有奈米孔道微結構之高溫穩定 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 載體。



高溫程溫煅燒後之 α - Al_2O_3 觸媒載體 SEM 分析

(a) $\times 10,000$ (b) $\times 55,000$ (c) $\times 100,000$ 倍

圖 4. 多孔道分布之載體

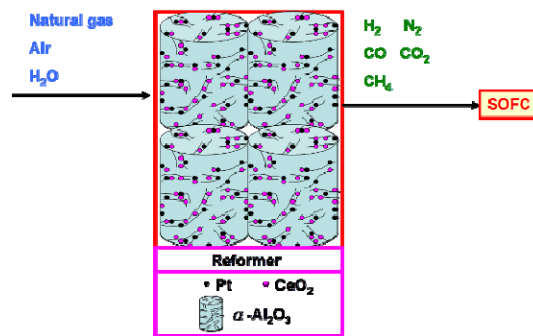


圖 5. 多孔道分布之觸媒示意圖

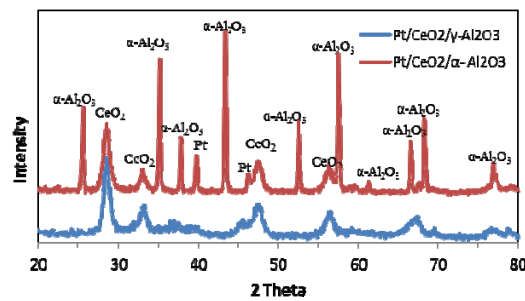


圖 6. 不同觸媒載體 XRD 分析

經由載體煅燒之熱處理改質效應可藉由測試之穩定性來觀察，如(圖 7)，經由 600°C 煅燒之載體，反應 2 小時有一明顯降低轉化率的趨勢；煅燒 $1,200^\circ\text{C}$ 則是呈現平穩的趨勢，顯見載體經過 $1,200^\circ\text{C}$ 的高溫淬練後，能提高載體之穩定性。

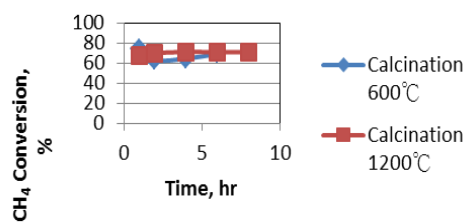


圖 7. 載體煅燒之熱處理改質效應

三、結果與討論

相較於傳統天然氣轉化觸媒，本所新研發之轉化觸媒具高穩定、高效能和抗積碳等競爭優勢。傳統甲烷重組轉化反應，甲烷易受高溫裂解產生碳分子，本觸媒藉以高硬度的 α -氧化鋁為載體，於載體上塗佈一層氧化鈣作為輔媒，觸媒反應機構如(圖 8)說明，當白金觸媒表面產生沉積碳原子，可藉由具釋氧和儲氧特性的氧化鈣，脫附儲存的氧分子，使碳原子反應形成 CO_2 氣體排出，因此本觸媒具有不易粉化和抗積碳之特點。

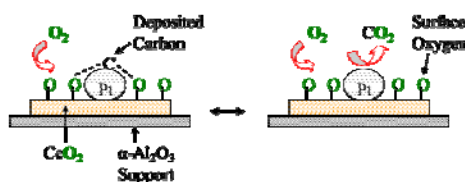


圖 8. INER 開發之甲烷重組產氫觸媒反應機構

考量高溫觸媒重組反應，須製備具高溫穩定性的載體。由文獻得知，如(圖 9)所示，每種型態氧化鋁穩定存在的溫度範圍，由氫氧化鋁(前驅物)的結構決定，常見的氫氧化鋁可分為 gibbsite、bayerite、boehmite 及 diaspora，經升溫過渡態氧化鋁後，於 550°C 以上將形成 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ， $1,200^\circ\text{C}$ 以上將形成 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 。

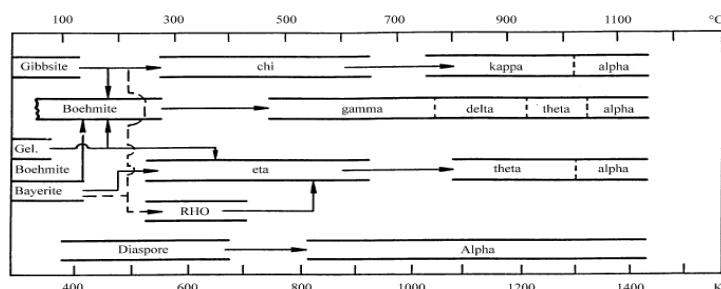


圖 9. 各種型態氧化鋁穩定存在的溫度範圍

為使觸媒載體達到可承受 SOFC 之高溫反應條件，將國內產製觸媒載體加熱升溫至 $1,200^\circ\text{C}$ ，分析載體隨著溫度上升的重量與外觀變化，推測載體由氫氧化鋁經高溫加熱逐漸轉化為氧化鋁，如(圖 10)所示，加上起初載體因添加 CNT 而呈現黑色，隨著 CNT 與黏著劑的去除，載體由黑色逐漸轉為白色的氧化鋁，如(圖 11)所示。運用熱重分析儀，量測載體之重量變化，如(圖 12)所示，載體加熱至 550°C ，轉為為 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ，持續加熱變為 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ，並不會使重量改變，僅為分子結構重新排列。

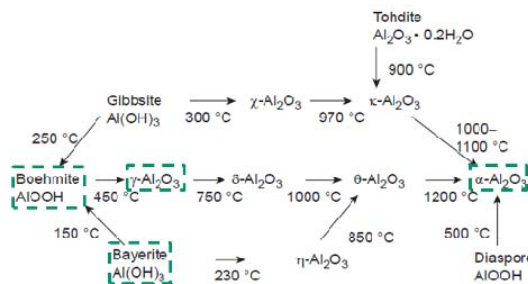


圖 10. 氫氧化鋁/氧化鋁物質加熱變化趨勢



圖 11. 加熱煅燒國內產製載體之外觀變化

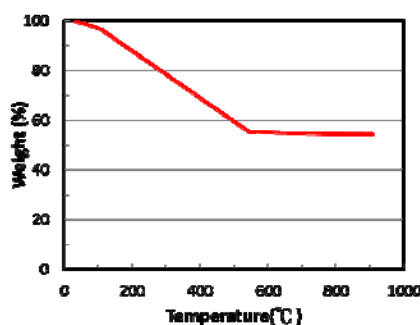


圖 12. 載體之熱重分析結果

運用電動立式機台(JSV-500D)，國內廠商產製載體與觸媒分別依升溫速率 4、2、1°C/min 煅燒至 1,200°C 進行相轉化成 α -Al₂O₃，進行載體及觸媒之耐壓強度測試，整理於[表 1]，於較緩慢的升溫速率 2、1°C/min 煅燒觸媒與載體，可使其耐壓強度提高，且與商用觸媒之耐壓強度(22 kgf/cm²)相比，未處理國內廠商產製載體之耐壓強度較弱，經加熱處理至 α -Al₂O₃ 載體耐壓強度可提升至 53 kgf/cm²。

表 1. 國內廠商產製載體與觸媒之耐壓強度測試結果

	觸媒	觸媒尺寸 D*L(mm ²)	耐壓強度 (Kgf/cm ²)
商用	nextcat.	2.7*5	22
國內產製	Al ₂ O ₃ /CNT	5*6	10
	Al ₂ O ₃		10
	α - Al ₂ O ₃ /CNT (4°C/min)		26
	α - Al ₂ O ₃ (4°C/min)		23
	α - Al ₂ O ₃ /CNT (2°C/min)		38
	α - Al ₂ O ₃ (2°C/min)		32
	α - Al ₂ O ₃ /CNT (1°C/min)		28
	α - Al ₂ O ₃ (1°C/min)		37
	2%Pt/CeO ₂ / α - Al ₂ O ₃ /CNT (4°C/min)		20
	2%Pt/CeO ₂ / α - Al ₂ O ₃ (4°C/min)		21
	2%Pt/CeO ₂ / α - Al ₂ O ₃ /CNT (2°C/min)		32
	2%Pt/CeO ₂ / α - Al ₂ O ₃ (2°C/min)		53

於未經煅燒處理時，將有無添加 CNT 之國內廠商產製載體，進行 BET 表面分析測試，如(圖 13)所示，發現未因添加 CNT，使載體產生孔隙度與比表面積之變化。彙整環狀載體、環狀載體觸媒、顆粒狀載體、顆粒狀載體觸媒之 BET 表面測試結果，如[表 2]所示，載體經煅燒至 1,200°C，轉化成 α -Al₂O₃，因其全部的 Al 原子均與周圍 6 個氧原子配位鍵結，形成 Hexagonal-rhombohedral corundum structure，結構如(圖 14)所示，較其他型態之 Al₂O₃，孔隙度與比表面積皆為最低。

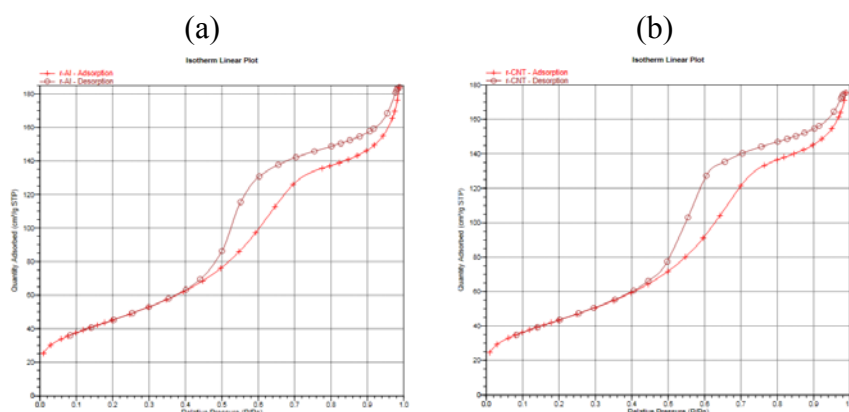


圖 13. 國內廠商產製載體(a)無添加 CNT、(b)添加 CNT 之 BET 表面分析結果

表 2. 環狀載體、環狀載體觸媒、顆粒狀載體、顆粒狀載體觸媒與國內廠商產製載體之 BET 表面測試結果

	BET Surface Area (m ² /g)	Pore Volume (cm ³ /g)	Pore Size (Å)	備註
環狀載體 (添加 CNT)	5.4	0.011	132.6	煅燒至 1,200°C
環狀載體觸媒 (添加 CNT)	14.3	0.064	192.2	煅燒至 1,200°C
顆粒狀載體 (添加 CNT)	190.9	0.666	59.7	未煅燒
顆粒狀載體觸媒 (添加 CNT)	10.7	0.027	48.7	煅燒至 1,200°C
國內廠商產製載體 (未添加 CNT)	166.0	0.285	27.8	未煅燒
國內廠商產製載體 (添加 CNT)	158.9	0.271	27.9	未煅燒

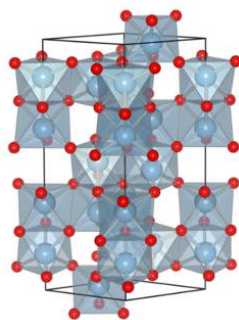


圖 14. Hexagonal-rhombohedral corundum structure

以含 CNT 之 Al_2O_3 載體分別以 1、2、4 和 $8^\circ\text{C}/\text{min}$ 升溫煅燒，仍然以升溫 $8^\circ\text{C}/\text{min}$ 之載體反應具有較高的甲烷轉化率(80%)和產氫濃度(63%)。升溫 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ 載體顯示穩定甲烷轉化率，可推測此載體晶相分布較為一致，如(圖 15~16)說明。

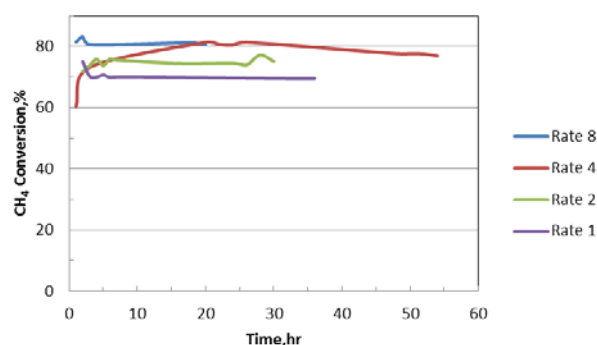


圖 15. 依載體不同升溫煅燒速率得到甲烷轉化率

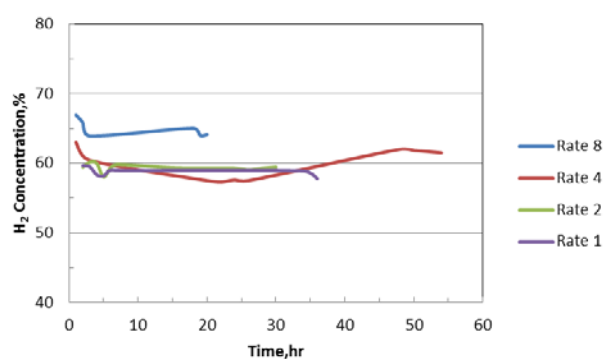


圖 16. 依載體不同升溫煅燒速率得到產氫濃度

由國內廠商產製載體，本所自行合成之觸媒甲烷轉化率測試，發現此載體觸媒具有高甲烷轉化率，可達 70% 以上，優於商用觸媒之甲烷轉化率 60%，如(圖 17)所示，催化反應進行約 10 h，自製觸媒性能較商用觸媒略差，後續持續反應，商用觸媒性能漸趨衰退。

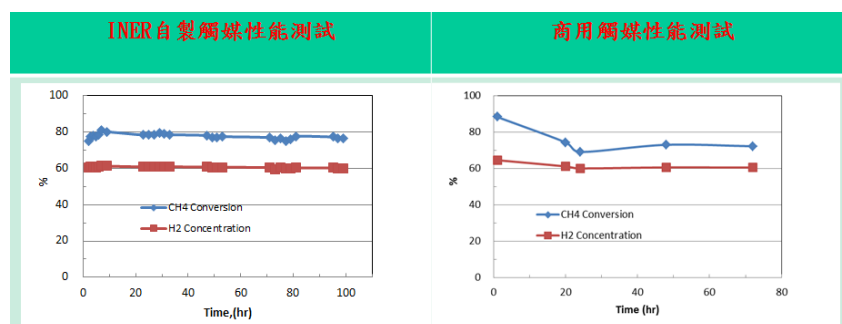


圖 17. 核能所自行合成之觸媒與商用觸媒之甲烷轉化率

註： $\text{CH}_4=80 \text{ ml/min}$ ， $\text{H}_2\text{O}=0.177 \text{ g/min}$ ， $\text{N}_2=53.6 \text{ ml/min}$ ， $\text{H}_2\text{O}/\text{C}=3$ ，
 $\text{Space Velocity}=22,430 \text{ ml/g catalyst}\cdot\text{h}$ ， $\text{Temperature}=800^\circ\text{C}$

四、結語與未來工作重點

甲烷直接內部重組技術目前尚未在高溫燃料電池上取得大規模應用，除了受系統組件因素限制外，甲烷重組觸媒易積碳導致穩定性下降甚至失去催化活性是重要原因之一。同時甲烷水蒸氣重組反應的吸熱作用導致陽極氣體通道入口處大幅度降溫，陽極內部之溫度梯度較大，增加了操作中溫度控制的難度。因此，開發新型的觸媒及找尋最佳的實驗操作條件，使其能夠有效控制甲烷水蒸氣重組反應過程，以實現熱平衡，減少觸媒表面積碳，提高電池效率與壽命，是高溫燃料電池甲烷水蒸氣催化反應的重點研究方向。本研究結果顯示此觸媒效能優於商用觸媒，並具有不易粉化和抗積碳之特點，進行改質後載體之觸媒的測試得到 H_2 產量約 60%，甲烷轉化率>70%以上，目前長效測試，仍然能夠保持良好的狀態，耐久性測試持續進行中。此載體改質後觸媒具有床層壓降低、催化活性高、傳質效率高的優勢，適合氣體高空間流速的反應過程並解決了現有顆粒觸媒存在的床層壓降大，導熱性能差，顆粒觸媒受熱應力衝擊易破碎等問題。但是未來如要量產此觸媒將會遭遇成本價格問題，目前本研究後續將會以減少貴金屬的使用量或選擇其他之金屬替代，以降低觸媒成本和提高效能為目標，以期在觸媒領域占有一席之地。

附註：發表專利

- (a) 許寧逸、簡俊清、趙裕，[觸媒檢測裝置]，台灣發明，100122099，發明第 I441379 號。
- (b) 許寧逸、簡俊清、趙裕，[Apparatus for testing catalyst]，美國發明，13/175,914 US8,703,060B2。
- (c) 許寧逸、鄭俊才、邱顯都、林素賢、曾華源、黃婉敏、張原銘、李瑞益，[具高溫穩定性之奈米孔道天然氣重組觸媒擔體改質方法]，台灣發明，101138837，發明第 I446961 號。
- (d) 許寧逸、簡俊清，[固態氧化物燃料電池發電系統用之燃料重組觸媒製作方法]，台灣發明，100132490，發明第 I441382 號。
- (e) 許寧逸、簡俊清，[Method of fabricating fuel reforming catalyst for SOFC power generating system]，美國發明，13/239,560，US8,575,060B2。
- (f) 許寧逸、方傑、曾華源、蔡振鐸、溫冬珍，[核電廠管路鈍化注鹼裝置]，台灣發明，100116921，發明第 I416541 號。
- (g) 許寧逸、方傑、曾華源、蔡振鐸、溫冬珍，[Pipe-passivating alkali-injecting device for a nuclear plant]，美國發明，13/150,303，US8,678,031B2。
- (h) 黃孟涵、許寧逸、周宜欣、邱顯都、林素賢、曾華源、李瑞益，[燃料重組蜂巢觸媒反應裝置] 美國發明專利申請中。
- (i) 周宜欣、黃孟涵、許寧逸、李瑞益、林金福，[環狀載體觸媒製作方法] 美國發明專利申請中。

綱要計畫績效佐證資料總表

系統編號：MD10401-0345

計畫中文名稱：能源國家型科技計畫-高效率固態氧化物燃料電池技術開發暨產業化平台建構(2/5)

各機關計畫編號：A-EE-03

計畫性質：

備註：A代表綱要計畫層外加資料；B：代表細部計畫層外加資料；C代表GRB個別研究計畫所填資料

【學術成就表】

中文題名	第一作者	發表年度	文獻類別	備註
以電化學法沉積鐵於多孔鎳作為大氣電漿噴塗基板	吳明修	2015	國內研討會	
製備具鉕穩定氧化鋯-鎳鉕複合陰極之固態氧化物燃料電池與其耐久性評估	葉俊彥	2015	國內研討會	
應用於固態氧化物燃料電池之鉕鉕鈷氧陰極材料特性與電化學性質研究	洪逸明	2015	國際研討會	
鈦鉕鉕鈷陰極材料之製備及其於鎳鉕鎂電解質支撐固態氧化物燃料電池之應用	林泰男	2015	國際研討會	
鎳鉕多孔合金基板作為金屬支撐型固態氧化物燃料電池與其電性之研究	楊昇府	2015	國際研討會	
鉕摻雜鈷酸鈣奈米纖維陰極之製備與特性分析	張鈞量	2015	國外重要期刊	
電漿噴塗LSM保護膜之製備與特性	張鈞量	2015	國外重要期刊	
先進連結塗層應用於固態氧化物燃料電池連接板之開發	葉安洲	2015	國外重要期刊	
電漿噴塗金屬支撐固態氧化物燃料電池之可恢復電性	黃振興	2015	國外重要期刊	
SOFC電池堆操作條件之最佳化	盧昶璋	2015	國外重要期刊	
應用田口方法於SOFC操作參數最佳化	林靖凱	2015	國外重要期刊	
固態氧化物燃料電池高溫玻璃封裝劑之特性與效能	劉建國	2015	國外重要期刊	
固態氧化物燃料電池 $\text{YxBa}_{2-x}\text{Co}_{2\text{O}5+\delta}$ ($x = 1.1, 1.2$)陰極材料之合成及性質研究	王政安	2015	國內研討會	
以甘胺酸-硝酸鹽法合成鉕安定氧化鉕粉體及其特性分析	郭任淵	2015	國內研討會	
雲母/ $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能	劉建國	2015	國內研討會	
不銹鋼表面鍍覆鉕鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究	曾惠萍	2015	國內研討會	
大氣電漿噴塗製備具不同陰極材料之金屬支撐型固態氧化物燃料電池電性比較	蔡俊煌	2015	國內研討會	
金屬支撐型固態氧化物燃料電池之性能和穩定性測試	蔡俊煌	2015	國內研討會	
操作參數最佳化對固態氧化物燃料電池性能研究	盧昶璋	2015	國內研討會	
Ag-Pd-Ga活性填料應用於SOFC之Ni-YSZ陽極與連接板接合特性研究	趙芝龍	2015	國外重要期刊	
肥粒鐵系不銹鋼鍍覆摻鉕鎳鉕酸鎳經800°C長時效之電性及微結構演變	劉建國	2015	國際研討會	

製備具複合陰極層之固態氧化物燃料電池及其長時電性效能評估	林泰男	2015	國際研討會	
開發光電半導體晶圓切削料提取碳化矽之研究	楊昇府	2015	國際研討會	
固態氧化物燃料電池系統用燃料重組奈米觸媒研發	周宜欣	2015	國內研討會	
透過陰極複合材料之選擇改善電池性能並製作符合商業規格之陽極支撐型固態氧化物燃料電池	郭弘毅	2015	國內研討會	
連接板以脈衝直流磁控濺鍍法披覆(Mn, Co)3O4膜層之微結構及電性研究	楊朋	2015	國內研討會	
應用田口方法於SOFC操作參數最佳化	林靖凱	2015	國內研討會	
結合數值計算與參數設計分析於PEMFC研究	吳聖儒	2015	國內研討會	
低孔隙度或具大厚度陽極結構之陽極支撐型固態氧化物燃料電池之電性震盪現象	高維欣	2015	國外重要期刊	
金屬支撐型固態氧化物燃料電池之電池性能及穩定度表現	蔡俊煌	2015	國外重要期刊	
具陽極鎳電流收集層之陽極支撐型固態氧化物燃料電池之製備及特性分析	高維欣	2015	國外重要期刊	
感應耦合電漿合成法製備中溫固態氧化物燃料電池用之鈣鈦礦粉末	張鈞量	2015	國外重要期刊	
應用感應耦合電漿以煉鉛爐渣為原料純化提取微細氧化鋁陶瓷粉末	楊昇府	2015	國外重要期刊	
鈦鉬鈦鈷氧化物粉末之合成與應用在中溫型固態氧化物燃料電池元件中複合陰極層之研究	林泰男	2015	國外重要期刊	
固態氧化物燃料電池其還原程序對電化學效能與微結構特性之影響	程世偉	2015	國外重要期刊	
鈦擔持於活性碳材的氧官能基對於氫溢出量之影響	鍾翠芸	2015	國外重要期刊	
製備具鉍穩定氧化鉛-鎳鉍複合陰極之固態氧化物燃料電池與其特性評估	郭弘毅	2015	國內研討會	
燃料使用率對SOFC 效能之影響	程世偉	2015	國內研討會	
陽極回收噴嘴幾何參數分析	鍾汶修	2015	國內研討會	
千瓦級固態氧化物電池系統驗證與分析	羅世坤	2015	國內研討會	
固態氧化物燃料電池系統熱電比與性能分析	羅世坤	2015	國內研討會	

【研究團隊表】

團隊名稱	團隊所屬機構	團隊性質	成立時間	備註
SOFC- MEA測試團隊實驗室	核研所	機構內跨領域合作	2015	
重組觸媒合成、分析與測試專業實驗室	核能研究所	機構內跨領域合作	2015	
電漿噴塗鍍膜專業實驗室	核能研究所	機構內跨領域合作	2015	
建立SOFC材料與元件研製實驗室	核能研究所	機構內跨領域合作	2015	
SOFC發電系統設計及驗證實驗室	核能研究所	機構內跨領域合作	2015	
SOFC電池堆設計及組裝技術開發實驗室	核能研究所	機構內跨領域合作	2015	

【培育人才表】

姓名	學歷	機構名稱	指導教授	備註
徐旭巒		國立中央大學機械系	林志光	
葉蕙嘉		元智大學	洪逸明	

【研究報告表】

2016/3/29

	淵;郭弘毅;陳佑明;廖明威			
--	---------------	--	--	--

【製作教材表】

教材名稱	教材類別	發表年度	出版單位	備註
Radiometer VoltaLab 40 電化學量測系統操作手冊(第2版)	文件式	2015	核研所	

【智財資料表】

專利名稱	專利類別	授予國家	有效日期	備註
具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法	發明專利	中華民國	2015/11/21	
保護固態氧化物燃料電池金屬連接板之膜層生成方法	發明專利	中華民國	2015/11/11	
緻密型固態氧化物燃料電池發電系統	發明專利	中華民國	2015/11/01	
固態氧化物燃料電池熱工元件整合裝置	發明專利	中華民國	2015/10/01	
一種用於固態氧化物燃料電池之雙層陽極-金屬基板結構及其製作方法	發明專利	美國	2015/09/22	
平板型固態氧化物燃料電池連接板封裝結構改良	發明專利	歐洲	2015/09/02	
應用於高溫燃料電池之多孔性介質燃燒器	發明專利	歐洲	2015/08/19	
固態氧化物燃料電池堆模組結構	發明專利	美國	2015/08/18	
固態氧化物燃料電池之處理方法及其裝置	發明專利	中華民國	2015/08/11	
固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之製作方法	發明專利	美國	2015/07/28	
金屬支撐型之固態氧化物燃料電池之結構	發明專利	中華民國	2015/06/01	
固態氧化物燃料電池熱工元件整合裝置	發明專利	歐洲	2015/05/27	
應用於燃料電池發電系統之燃燒重組器	發明專利	歐洲	2015/04/29	
多功能固態氧化物燃料電池檢測裝置	發明專利	美國	2015/04/09	
固態氧化物燃料電池之多孔金屬基板結構及其之製作方法	發明專利	歐洲	2015/04/09	
固態氧化物燃料電池及其製作方法	發明專利	美國	2015/04/09	
一種利用動態與靜置交替之儲氫裝置及其方法	發明專利	中華民國	2015/03/16	
模組式燃料電池之結構與封裝設計裝置	發明專利	美國	2015/01/23	
固態氧化物燃料電池堆在封裝製程中元件間最佳接觸壓力量測方法及其量測裝置	發明專利	歐洲	2015/01/19	
高性能固態氧化物燃料電池膜電極組合元件（單元電池）中全緻密之濺鍍電解質層之製作程序	發明專利	美國	2015/01/19	
應用於燃料電池發電系統之燃燒重組器	發明專利	美國	2015/01/05	
以低電壓電泳電鍍法製作使用奈米碳材承載觸媒之薄膜燃料電池電極	發明專利	中華民國	2015/01/05	
合成甲醇及二甲醚之Cu-Zn-Al觸媒製備方法	發明專利	中華民國	2015/01/05	
在奈米二氧化矽上製作奈米鉑觸媒之方法	發明專利	中華民國	2015/01/01	
平板型固態氧化物燃料電池堆單元及平板型固態氧化物燃料電池堆模組	發明專利	美國		
平板型固態氧化物燃料電池堆單元及平板型固態氧化物燃料電池堆模組	發明專利	歐洲		
燃料重組蜂巢觸媒反應裝置	發明專利	美國		
具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法	發明專利	其他		
具有陽極陣列式孔洞結構之燃料電池膜電極組的製備方法	發明專利	美國		

用於固態氧化物燃料電池之高透氣多孔基板及其製作方法	發明專利	美國		
環狀載體觸媒製作方法	發明專利	中華民國		
甲烷重組產氫觸媒載體之製備方法	發明專利	中華民國		
一種用於固態氧化物燃料電池之雙層陽極-金屬基板結構及其製作方法	發明專利	美國		
高穩定高效率固態氧化物燃料電池陽極結構及其製造方法	發明專利	美國		
保護固態氧化物燃料電池金屬連接板之膜層生成方法	發明專利	美國		
固態氧化物燃料電池之處理方法及其裝置	發明專利	美國		
固態氧化物電解電池測試裝置	發明專利	中華民國		
高效率燃料電池發電模組	發明專利	中華民國		
具雙鈣鈦礦結構之鋁鎂鋁氧化物材料及其製造方法	發明專利	中華民國		
透氣金屬基板、金屬支撐固態氧化物燃料電池及其製作方法	發明專利	中華民國		

【技術報告表】

報告名稱	作者姓名	出版年	出版單位	備註
Radiometer VoltaLab 40 電化學量測系統操作手冊(第2版)	曾惠萍;雍敦元;楊朋;劉建國;李瑞益	2015	核研所	
ProboStat於固態氧化物燃料電池測試上之應用	廖明威;林泰男;高維欣;郭弘毅;葉俊彥;陳佑明;郭任淵	2015	核研所	
SOFC系統點火槍小型化設計與製作	羅世坤;鍾增光;黃正男;譚學怡;林京翰;施勇全;劉庭瑋;洪文堂;賴振坡	2015	核研所	
kW級固態氧化物燃料電池無電熱發電系統之標準程序操作手冊	劉庭瑋;羅世坤;洪文堂;黃正男;譚學怡;林京翰;丁桓展;施勇全	2015	核研所	

【技術活動表】

技術論文名稱	研討會名稱	性質	舉辦日期	備註
The Application of Warm-Hot Gas Desulfurization Technology into SOFC Field by Iron-Based Sorbents	第16屆全國氫能會議暨第8屆兩岸三地氫能研討會	國際研討會	2015/11/28	
Development of High-temperature Glass-ceramic Sealant for Solid Oxide Fuel Cell Applications	第16屆全國氫能會議暨第8屆兩岸三地氫能研討會	國際研討會	2015/11/28	
以電化學法沉積鐵於多孔鎳作為大氣電漿噴塗基板	2015 第十屆全國氫能與燃料電池學術研討會	國內研討會	2015/10/02	
製備具鉍穩定氧化鋯-鎳錫複合陰極之固態氧化物燃料電池與其耐久性評估	2015 第十屆全國氫能與燃料電池學術研討會	國內研討會	2015/10/02	
Material Characteristics and Electrochemical Performance of YxBa _{2-x} Co ₂ O _{5+δ} Cathode for Solid Oxide Fuel Cell	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	國際研討會	2015/07/26	
Fabrication of SmBa _{0.5} Sr _{0.5} Co ₂ O _{5+δ} cathode material and its application for Sr- and Mg-doped LaGaO ₃ electrolyte-supported solid oxide fuel cell	ECS Conference on Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	國際研討會	2015/07/26	
Ni-Mo Porous Alloy Fabricated as	ECS Conference on			

Supporting Component for Metal-Supported Solid Oxide Fuel Cell and Cell Performance	Electrochemical Energy Conversion & Storage with SOFC-XIV	國際研討會	2015/07/26	
固態氧化物燃料電池 $YxBa_{2-x}Co_2O_{5+\delta}$ ($x = 1.1, 1.2$) 陰極材料之合成及性質研究	2015 中華民國陶業研究學會年會	國內研討會	2015/05/22	
以甘胺酸-硝酸鹽法合成鉕安定氧化鈹粉體及其特性分析	2015 中華民國陶業研究學會年會	國內研討會	2015/05/22	
大氣電漿噴塗製備具不同陰極材料之金屬支撐型固態氧化物燃料電池電性比較	2015 中華民國陶業研究學會年會	國內研討會	2015/05/22	
雲母/ $BaO-Al_2O_3-B_2O_3-SiO_2$ 基玻璃混摻密封劑之電性、機性與封裝效能	2015 中華民國陶業研究學會年會暨科技部專題研究計畫成果發表會	國內研討會	2015/05/22	
不銹鋼表面鍍覆錳鈷氧化物保護膜微結構及電化學特性分析研究	2015 中華民國陶業研究學會年會暨科技部專題研究計畫成果發表會	國內研討會	2015/05/22	
Electrical and Microstructural Evolutions of $La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$ Coated Ferritic Stainless Steels after Long-term Aging at $800^\circ C$	第39屆國際先進陶瓷與複合材料會議及展覽會暨第12屆國際固態氧化物燃料電池材料、科學與技術研討會	國際研討會	2015/01/25	
Fabrication of the anode-supported solid oxide fuel cell with composite cathodes and the performance evaluation upon long-term operation	第39屆國際先進陶瓷與複合材料會議及展覽會暨第12屆國際固態氧化物燃料電池材料、科學與技術研討會	國際研討會	2015/01/25	

【技術移轉表】

技術名稱	類別	授權單位	被授權廠商或機構	備註
kW級固態氧化物燃料電池發電系統第二期		核能研究所	中油綠能所	

【廠商投資表】

廠商名稱	投資類別	投資金額(千元)	產品名稱	備註
中油公司	研發投資	5000		
九豪公司	生產投資	10000		

【增加就業表】

廠商名稱	廠商統一編號	增加員工人數	增加之年度	備註
九豪公司	86412635	5	2015	
中國石油公司	3707901	5	2015	

【技術服務表】

技術服務名稱	服務對象名稱	服務對象類別	服務收入(千元)	備註
生質物氣化結合SOFC發電試驗	中國鋼鐵股份有限公司	國內廠商	800	

【促成產學合作表】

--	--	--	--	--

合作廠商名稱	合作計畫或合約名稱	廠商配合款(千元)	合作參與人數	備註
清華大學	先進金屬連接板材的材料組織工程及成形性研究	535	2	
中央大學	環境氣氛對SOFC接合件高溫耐久機械性質之影響	625	2	
元智大學	應用於中溫固態氧化物燃料電池之新穎陰極材料開發	535	2	