



(10) **DE 10 2023 117 366 A1** 2025.01.02

(12) **Offenlegungsschrift**

(21) Aktenzeichen: **10 2023 117 366.9**

(22) Anmeldetag: **30.06.2023**

(43) Offenlegungstag: **02.01.2025**

(51) Int Cl.: **H01M 8/2404** (2016.01)

H01M 8/04992 (2016.01)

G06F 18/24 (2023.01)

H01M 8/12 (2016.01)

H01M 8/248 (2016.01)

H01M 8/247 (2016.01)

H01M 8/04537 (2016.01)

(71) Anmelder:
SIVONIC GmbH, 39179 Barleben, DE

(74) Vertreter:
**BRANDT & NERN PATENTANWÄLTE, 12489
Berlin, DE**

(72) Erfinder:
**Benecke, Robert, 39112 Magdeburg, DE; Benecke,
Hannes, 39114 Magdeburg, DE**

(56) Ermittelter Stand der Technik:

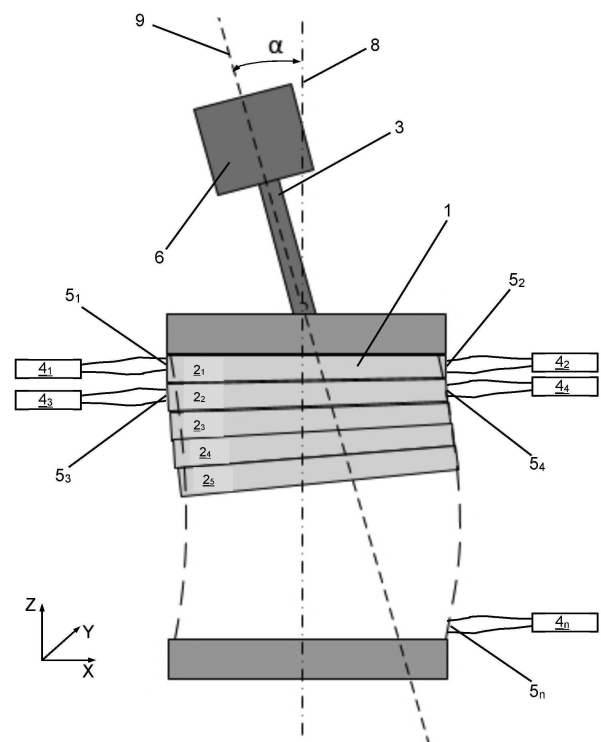
DE	10 2006 056 986	A1
DE	10 2021 134 334	A1

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Qualitätssicherung bei der Herstellung von Stacks aus Festoxid-Zellen**

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Lösung zur Qualitätssicherung bei der Herstellung von Stacks (1) aus Festoxid-Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots, 2_n$), welche in einem dafür ausgebildeten Ofen (7) in einem Fügeprozess unter Temperatur- und Krafteinwirkung mithilfe eines dabei zwischen sie eingebrachten Lots miteinander zu dem Stack (1) verbunden werden. Hierbei wird ein jeweiliger Stack (1) während des gesamten Fügeprozesses hinsichtlich an seiner Geometrie auftretender unerwünschter Verformungen gemonitort, indem in einem sich während des Fügeprozesses ständig wiederholenden Messzyklus an einer Mehrzahl von auf den Stack-Außenseiten verteilt, an mehreren SOxC ($2_1, 2_2, \dots, 2_n$) des Stacks (1) jeweils paarweise und voneinander beabstandet angeordneten Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots, 5_n$) mithilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie EIS jeweils die Impedanz gemessen wird. Aus den an den Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots, 5_n$) in den einzelnen Messzyklen gemessenen Impedanzen werden jeweils mittels einer von einer Steuer- und Verarbeitungseinrichtung SVE des Ofens (7) verarbeiteten Programmanwendung die Zellengeometrie der mit Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots, 5_n$) versehenen SOxC ($2_1, 2_2, \dots, 2_n$) beschreibende geometrische Größen berechnet, welche zur Steuerung des Fügeprozesses oder/und zur Ableitung von Qualitätsaussagen zum erzeugten Stack (1) verwendet werden.



Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine Lösung zur Sicherung der Qualität bei der Herstellung von Stacks aus Festoxid-Zellen SOxC. Sie bezieht sich genauer gesagt auf Stacks aus Hochtemperatur-SOxC. Derartige Stacks werden in einem speziellen Fügeprozess unter Temperatur- und Krafteinwirkung auf mehrere übereinander gestapelte Festoxid-Zellen unter Verwendung eines zwischen die Zellen eingebrachten, bei dem Fügeprozess aufgeschmolzenen Lots, typischerweise eines Glaslots, hergestellt. Mit Hilfe der Erfindung können die Auswirkungen der während des Fügeprozesses erfolgenden Krafteinwirkung und damit verbundener, an den Zellen auftretender Verformungserscheinungen im Hinblick auf die Lebensdauer der Zellen, respektive des aus ihnen zusammengefügt Stacks, berücksichtigt werden. Gegenstände der Erfindung sind ein Verfahren und ein zur Durchführung dieses Verfahrens in geeigneter Weise ausgebildetes System.

[0002] Wie bereits ausgeführt, ist im Zusammenhang mit dem sich bei der Fertigung von Stacks aus Hochtemperatur-SOxC vollziehenden Fügeprozess eine Krafteinwirkung auf die den Stapel ausbilden den Zellen unerlässlich. Die für den Fügeprozess erforderliche Krafteinwirkung erfolgt mit Hilfe mindestens einer Schubstange, über welche die Kraft auf einen mittleren Bereich der obersten oder/und untersten Zelle des Stacks appliziert wird. Untersuchungen haben gezeigt, dass durch eine solche Krafteinwirkung nicht nur eine sichere Verbindung der Zellen mittels des eingebrachten Lots erreicht wird, sondern dass diese in unerwünschter Weise auch zu einer Verformung der Zellen führen kann. Derartige, an den Zellen des Stacks und damit auch in Bezug auf die Stack-Geometrie auftretende Verformungen wiederum können beim späteren Einsatz der erzeugten Stacks zu Degradationserscheinungen, das heißt zu einem vorzeitigen Altern der Zellen, führen. Dies wirkt sich schließlich nachteilig auf die Lebensdauer der Stacks aus. Im ungünstigsten Fall können solche unerwünschten Verformungen der Zell- und Stack-Geometrie auch zu einer derartigen Qualitätsminderung führen, dass ein Stack überhaupt nicht funktioniert oder aber wegen schlechter Leistungsparameter als Ausschuss einzustufen und somit nicht verwendbar ist.

[0003] Es liegt auf der Hand, dass aufgrund der Unabdingbarkeit einer Krafteinwirkung beim Fügen der Stacks Verformungen an den Zellen und am Stack nicht vollständig vermieden werden können. Allerdings sollte es das Bestreben der Hersteller sein, derartige Verformungen möglichst gering zu halten, jedenfalls aber ihnen im Hinblick auf das Qualitätsmanagement entsprechend Rechnung zu tragen.

[0004] Aufgabe der Erfindung ist es daher, eine Lösung zur Qualitätssicherung bei der Herstellung von in einem Fügeprozess unter Temperatur- und Krafteinwirkung erzeugter Stacks aus Festoxid-Zellen bereitzustellen, mit deren Hilfe trotz während des Fügeprozesses gegebenenfalls auftretender Verformungen an den Zellen und der Stack-Geometrie, den Qualitätsanforderungen der Abnehmer solchermaßen gefertigter Stacks in geeigneter Weise Rechnung getragen werden kann. Hierzu sind ein Verfahren und ein zur Durchführung dieses Verfahrens geeignetes System anzugeben.

[0005] Die Aufgabe wird durch ein Verfahren mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst. Ein die Aufgabe lösendes, zur Durchführung des Verfahrens geeignetes System, wird durch den ersten Sachanspruch charakterisiert.

[0006] Auch gemäß dem zur Lösung der Aufgabe vorgeschlagenen Verfahren erfolgt die Herstellung von Stacks aus Festoxid-Zellen SOxC, wie aus dem Stand der Technik bereits bekannt, in einem dafür ausgebildeten Ofen in einem Fügeprozess unter Temperatur- und Krafteinwirkung mit Hilfe eines zwischen die Zellen eingebrachten Lots, vorzugsweise eines Glaslots. Die Krafteinwirkung erfolgt mittels mindestens einer Druck auf einen mittleren, respektive zentralen Bereich der obersten oder/und untersten SOxC des Stacks ausübenden Schubstange. Die SOxC eines Stacks sind dabei typischerweise quaderförmig, mit einer sich in der Stapelrichtung des Stacks erstreckenden, verhältnismäßig geringen Höhe und einer, bezogen auf die Stapelrichtung quadratischen oder rechteckigen Querschnittsfläche mit gegenüber der Höhe um ein Vielfaches größeren Kantenlängen (Umfangslängen).

[0007] Gemäß dem Verfahren wird der Stack während des gesamten Fügeprozesses fortwährend hinsichtlich an seiner Geometrie auftretender unerwünschter Verformungen gemonitort. Dies geschieht, indem in einem sich während des Fügeprozesses ständig wiederholenden Messzyklus an einer Mehrzahl von auf den Stack-Außenseiten verteilt angeordneten Messpunkten mithilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie EIS jeweils die Impedanz gemessen wird. Dabei sind die vorgenannten Messpunkte derart an den Außenseiten des Stacks verteilt, dass sie an mehreren SOxC des Stacks und hierbei, bezogen auf eine mit ihnen versehene SOxC, jeweils paarweise und voneinander beabstandet angeordnet sind.

[0008] Es wird insoweit an einer mit Messpunkten zu versehenen SOxC des Stacks eine geradzahlige Anzahl von Messpunkten angeordnet, wobei die Messpunkte eines Messpunkte-Paares vorzugsweise (aber nicht zwingend) an einander gegenüberliegenden Außenseiten (an auf dem Umfang des

Stacks einander gegenüber gelegenen Seiten der jeweiligen Zelle) ausgebildet werden. Insbesondere bei länglichen Zellen kann ein Paar von Messpunkten jedoch gegebenenfalls auch an den Enden (jeder Messpunkt an einem Ende) einer Außenlängsseite - und somit voneinander beabstandet - angeordnet werden. Durch die sich fortwährend wiederholende Impedanzmessung wird für jeden der Messpunkte des Stacks, ausgehend von einem beim ersten Messvorgang für die Impedanz gemessenen Startwert, ein zeitlicher Verlauf der sich während des Fügeprozesses zwangsläufig ändernden Impedanz erfasst.

[0009] Die an den Messpunkten in den einzelnen Messzyklen jeweils gemessenen Impedanzen werden, entsprechend einem physikalisch-mathematischen Modell, jeweils von einer Steuer- und Verarbeitungseinrichtung des Ofens (im Weiteren sprachlich vereinfachend SVE) programmtechnisch weiterverarbeitet. Bei der programmtechnischen Verarbeitung der Messwerte werden durch die SVE geometrische Größen berechnet, welche die Zellengeometrie der mit einem Messpunkt versehenen SOxC des Stacks und somit letztlich auch die Stack-Geometrie insgesamt beschreiben. Die berechneten geometrischen Größen werden jeweils unmittelbar zur Steuerung des Fügeprozesses für eine Minimierung unerwünschter Verformungen der Zellen und damit des Stacks verwendet oder/und dazu, basierend auf ihrem Verlauf während des Fügeprozesses, Qualitätsaussagen zu einem jeweils erzeugten Stack abzuleiten.

[0010] Das vorgeschlagene Verfahren geht davon aus, dass - wie sich in Versuchen gezeigt hat - zwischen den an SOxC (Zellen des Stacks) während des Fügeprozesses zwangsläufig auftretenden Veränderungen ihrer Geometrie und der sich ebenfalls verändernden Impedanz der den Stack ausbildenden Zellen Zusammenhänge bestehen, die sich durch ein physikalisch-mathematisches Modell beschreiben lassen. Im günstigsten Fall sollten entsprechende Veränderungen der Impedanz in Bezug auf die einzelnen an den Zellen des Stacks festgelegten Messpunkte annähernd den gleichen, im Wesentlichen durch Schrumpfungsprozesse bedingten zeitlichen Verlauf zeigen.

[0011] Sofern dies nicht gegeben ist, lässt sich dies auf Änderungen die SOxC beschreibender geometrischer Größen zurückführen, welche im Verhältnis zueinander betrachtet unerwünschte Verformungen der mit Messpunkten versehenen Zellen (SOxC des Stacks) und somit auch der Stack-Geometrie insgesamt erkennbar werden lassen. Hierbei handelt es sich eben nicht um typischerweise ohnehin während des Fügeprozesses auftretende geometrische Veränderungen, wie beispielsweise Schrumpfungen, sondern um geometrische Veränderungen, durch

welche der Stack gewissermaßen außer Form gerät, also sich beispielsweise eine Schiefelage des Stacks in der Stapelrichtung entwickelt. Die insoweit über den Verlauf der sich ändernden Geometrie der Zellen und des Stacks gewonnenen Erkenntnisse, respektive berechneten Werte, lassen sich, je nach Implementierung des Verfahrens und Ausstattung des Systems, mit der SVE und dem der Temperierung des Stacks beim Fügeprozess dienenden sowie eine Schubstange zur Krafteinwirkung auf den Stack aufweisenden Ofen, in unterschiedlicher Weise verwenden.

[0012] Entsprechend einer geringeren Anforderungen an die Fertigungseinrichtung, respektive an das System stellenden Implementierung des Verfahrens werden die jeweils nach einem Messvorgang berechneten, die Zellengeometrie und somit auch die Stack-Geometrie beschreibenden geometrischen Größen sowie die sich für diese beim Ablauf des Fügeprozesses ergebenden zeitlichen Verläufe dazu verwendet, unter Einsatz des Verfahrens gefertigte Stacks in unterschiedliche Qualitätsklassen einzuordnen. Hierbei werden dann Stacks, für welche im Verlauf des Fügeprozesses sehr starke ungleichmäßige Verformungen festgestellt wurden, einer minderen Qualitätsklasse zugeordnet. Die mindere Qualität kann sich dabei zum Beispiel nachteilig auf die Lebensdauer eines Stacks auswirken. Zudem ist bei solchen Stacks im praktischen Einsatz, aufgrund wegen der minderen Qualität steigender Betriebskosten, von einer schlechteren Effizienz auszugehen. Sofern die Stacks daher unter Angabe einer entsprechenden Qualitätsklasse in den Verkauf gehen, kann für diese wegen der eventuell geringeren Lebensdauer und der typischerweise schlechteren Effizienz nur ein geringerer Kaufpreis erhoben werden. Im Gegensatz dazu werden Stacks, die sich während des Fügeprozesses sehr gleichmäßig, nämlich nahezu ausschließlich bedingt durch die unvermeidlichen Schrumpfungsprozesse, verformen, einer höherwertigen Qualitätsklasse zugeordnet, an welche typischerweise eine zu erwartende hohe Lebensdauer, eine höhere Effizienz und - im Falle eines Verkaufs - ein höherer Verkaufspreis gekoppelt sein können.

[0013] Im Zusammenhang mit dieser Implementierungsform, respektive Ausgestaltung des Verfahrens sei darauf hingewiesen, dass für eine zuverlässige Klassifizierung der Stacks tatsächlich der während des Fügeprozesses zu verzeichnende Verlauf der die Zellengeometrie beschreibenden geometrischen Größen und nicht etwa nur deren Ist-Zustand am Ende des Fügeprozesses herangezogen werden sollte. Dies begründet sich dadurch, dass im Laufe des Fügungsprozesses auftretende, gegebenenfalls auch starke vorübergehende Verformungen einer Zelle unter Umständen in anderen Phasen des Prozesses auch wieder kompensiert werden, aber den-

noch die Lebensdauer der Zelle und damit des Stacks beeinträchtigende Schäden hinterlassen können.

[0014] Entsprechend einer bevorzugten Gestaltung des Verfahrens werden die zum zeitlichen Verlauf der geometrischen Verhältnisse an dem Stack während des Fügeprozesses mittels der EIS gewonnenen Erkenntnisse dazu verwendet, unmittelbar auf den Fügeprozess einzuwirken und hierdurch das Maß unerwünschter Verformungen möglichst gering zu halten. Bei dieser Verfahrensgestaltung ist es vorgesehen, die nach jedem der über den gesamten Fügeprozess zyklisch aufeinanderfolgenden Messvorgänge berechneten, die Geometrie der mit den Messpunkten versehenen Zellen und damit auch des Stacks beschreibenden geometrischen Größen als Ist-Größen in eine Regelfunktion zur Einstellung der Ausrichtung der Schubstange einzubeziehen. Hierbei wird jeweils der von der Schubstange gegenüber einer gedachten, in der Stapelrichtung lotrecht durch den Stack geführten Geraden eingenommene Winkel entsprechend den festgestellten unerwünschten Verformungen geringfügig korrigiert.

[0015] Während des Fügeprozesses wird also jeweils unmittelbar auf festgestellte unerwünschte Verformungen reagiert und diesen durch eine ständige Korrektur des Winkels der Schubstange gegenüber der Lotrechten in der Stapelrichtung des Stacks fortwährend entgegengewirkt. Auf diese Weise wird erreicht, dass sich gemäß dieser Implementierung des Verfahrens gefertigte Stacks über den gesamten Fügeprozess hinweg sehr gleichmäßig und weitestgehend nur in einer durch die auftretenden Schrumpfungen bedingten Weise verformen.

[0016] Dennoch kommt es aber nahezu unvermeidlich auch bei dieser Verfahrensgestaltung zumindest kurzzeitig zu unerwünschten Änderungen der Zellen-Geometrie, welche auch dann Einfluss auf die Lebensdauer einer jeweiligen Zelle haben können, wenn ihnen im Grunde sofort durch eine Korrektur der Ausrichtung der Schubstange entgegengewirkt wird. Daher können entsprechend einer ebenfalls möglichen Implementierung des Verfahrens auch beide zuvor erläuterten Verfahrensgestaltungen kumulativ umgesetzt werden. Das heißt, einerseits erfolgt eine ständige Korrektur der Ausrichtung der Schubstange während des Fügeprozesses, andererseits werden die entstehenden Stacks unter Berücksichtigung dennoch während Fügeprozesses auftretender unerwünschter Verformungen ihrer Zellen, respektive der Stack-Geometrie, nach dem Abschluss des Fügeprozesses unter Berücksichtigung solcher etwaiger Verformungen hinsichtlich ihrer Qualität klassifiziert.

[0017] Wie eingangs angegeben, werden zur Durchführung des Verfahrens mehrere Messpunkte

auf den Außenflächen des Stacks und seiner ihn ausbildenden SOxC verteilt und hierbei paarweise an betreffenden Zellen angeordnet. Zum Erhalt möglichst genauer Aussagen zur Stack-Verformung sollten die entsprechenden Messpunkte selbstverständlich annähernd gleichmäßig auf den Außenflächen des Stacks verteilt angeordnet werden. Soweit dies gewährleistet ist, ist es lediglich eine Frage des in der von der Steuereinrichtung verarbeiteten Programmierung hinterlegten physikalisch-mathematischen Modells, mit Hilfe der an diesen Messpunkten jeweils gemessenen Impedanzen und der sich daraus für diese Messpunkte ergebenden zeitlichen Verläufe für die Impedanz die für eine fundierte Aussage über den zeitlichen Verlauf der Stack-Geometrie erforderlichen geometrischen Größen richtig zu berechnen.

[0018] Das insoweit für die Berechnung zugrunde zu legende Modell kann dabei durch geeignete Versuche gewonnen werden. Für die praktische Umsetzung des Verfahrens hat es sich hierbei als besonders vorteilhaft erwiesen, an mehreren SOxC, das heißt gegebenenfalls, respektive vorzugsweise an allen SOxC, des Stacks jeweils mindestens zwei zueinander jeweils gleich beabstandete, vorzugsweise einander gegenüberliegende Messpunkte anzuordnen, welche jeweils mit einem Kanal einer zu der Impedanzspektroskopie EIS verwendeten Impedanzmesseinrichtung verbunden werden. Als besonders sinnvoll hat es sich dabei erwiesen, an einer jeweiligen mit Messpunkten versehenen, regelmäßig quaderförmigen SOxC des Stacks jeweils mindestens vier Messpunkte anzuordnen, und zwar so, dass mindestens zwei Messpunkte an einander gegenüberliegenden Umfangsseiten der SOxC und mindestens zwei weitere Messpunkte an den beiden anderen, sich dazu jeweils orthogonal erstreckenden sowie ebenfalls einander gegenüberliegenden Umfangsseiten der jeweiligen SOxC angeordnet werden. Betrachtet man bei einem gedachten, in den Stack gelegten Koordinatensystem die Stapelrichtung des Stacks als Z-Achse, so erhält man auf diese Weise für die einzelnen, mit Messpunkten versehenen SOxC jeweils Aussagen zu den an ihnen während des Fügeprozesses entlang der X-Achse sowie entlang der Y-Achse in Bezug auf die Z-Richtung auftretenden Verformungen.

[0019] Im Zusammenhang mit der Durchführung von Tests zur Festlegung des jeweils für das Verfahren zu verwendenden physikalisch-mathematischen Modells hat es sich als vorteilhaft erwiesen, das Spektrum der für die EIS verwendeten Frequenzen in geeigneter Weise zu begrenzen. Es hat sich nämlich gezeigt, dass die zwischen der Veränderung der geometrischen Größen des Stacks und den gemessenen Impedanzen bestehende Korrelation in bestimmten Frequenzbereichen des Messspektrums der EIS besonders deutlich zutage treten. Zur Errei-

chung einer hohen Effizienz, insbesondere im Zusammenhang mit der auf eine ständige Korrektur der Ausrichtung der Schubstange gerichteten Regelung, ist es dabei möglich, die Dauer der einzelnen Messvorgänge gewissermaßen durch die Beschränkung des Frequenzbereichs auf ein bestimmtes Frequenzfenster zu verkürzen und dafür über den gesamten Fügeprozess hinweg eine größere Zahl von Messvorgängen und Berechnungen sich an der Stack-Geometrie vollziehender Änderungen durchzuführen. Der insoweit jeweils vorteilhafterweise zu wählende Frequenzbereich ist unter anderem abhängig vom jeweiligen Typ der Zellen des Stacks und auf der Basis entsprechender der Implementierung des Verfahrens und der Konfiguration, das heißt es kann auf der Basis der Einrichtung des Systems vorausgehender Test festgelegt werden.

[0020] Ein die Aufgabe lösendes, zur Durchführung des Verfahrens geeignetes System, also ein System für einen unter Temperatur- und Krafteinwirkung erfolgenden Fügeprozess zur Herstellung eines Stacks aus Festoxid-Zellen SOxC, umfasst einen Ofen zur Temperierung des Stacks, mindesten eine Druck auf einen mittleren Bereich der obersten oder/und untersten SOxC des sich während des Fügeprozesses in dem Ofen befindenden Stacks ausübende Schubstange und eine Steuer- und Verarbeitungseinrichtung SEV. Das System ist darüber hinaus mit einer mehrkanaligen Impedanzmeseinrichtung zur Impedanzspektroskopie EIS ausgestattet. Während des Fügeprozesses sind mehrere Messkanäle dieser Impedanzmeseinrichtung mit dem Stack verbunden. Die Verbindung dieser mehreren Messkanäle mit dem Stack ist derart, dass jeweils einer der Messkanäle mit jeweils einem von mehreren auf den Stack-Außenseiten verteilt an mehreren SOxC des Stacks jeweils paarweise und voneinander beabstandet angeordneten Messpunkten verbunden ist.

[0021] Die SEV ist dazu ausgebildet, während des Fügeprozesses

- die Impedanzmeseinrichtung dazu anzu- steuern, in einem sich während dieses Füge- prozesses ständig wiederholenden Messzyklus jeweils an allen an dem Stack angeordneten Messpunkten die Impedanz zu messen,
- aus den Messwerten der Impedanzmesein- richtung jeweils damit korrelierende, die Zellen- geometrie der mit Messpunkten versehenen SOxC und damit die Stack-Geometrie beschrei- bende geometrische Größen zu berechnen,
- mittels der berechneten geometrischen Grö- ßen den Fügeprozess im Hinblick auf eine Mini- mierung unerwünschter Verformungen von SOxC und damit des Stacks insgesamt zu steuern oder/und aus den zeitlichen Verläufen

dieser geometrischen Größen Qualitätsaussa- gen zu dem erzeugten Stack abzuleiten.

[0022] Entsprechend einer ersten konkreten Ausge- staltung des vorstehend hinsichtlich seines grund- sätzlichen Aufbaus charakterisierten Systems ist dessen SEV ferner dazu ausgebildet, in einem gefer- tigten Stack, in Abhängigkeit von den aufgrund ihrer wiederholten Berechnung für die geometrischen Größen ermittelten zeitlichen Verläufen, nach der Beendigung des Fügeprozesses in einem automati- sierten Prozess eine Qualitätsklasse zuzuweisen. Die Zuweisung der jeweiligen Qualitätsklasse durch die SEV geschieht dabei aufgrund eines in der SEV hinterlegten Schemas. Ebenso wie zum Verfahren hinsichtlich des Zusammenhangs zwischen den gemessenen Impedanzen und den geometrischen Größen einer SOxC ausgeführt, wird hierbei das vor- genannte Schema für die Klassifizierung auf der Basis der Ergebnisse entsprechender Versuche fest- gelegt. Derartige Versuche können beispielsweise künstliche Alterungsprozesse einschließen, mit deren Hilfe Zusammenhänge zwischen an den SOxC des Stacks und somit an der Stack-Geometrie während des Fügeprozesses aufgetretenen Verfor- mungen und der (im Zuge einer an einzelnen Stacks zu Testzwecken herbeigeführten künstlichen Alte- rung) ermittelten zu erwartenden Lebensdauer eines jeweiligen Stacks erkennbar machen.

[0023] Entsprechend einer besonders bevorzugten Ausbildung des Systems ist dessen SEV alternativ zur zuletzt beschriebenen Ausbildungsform oder zusätzlich dazu ausgebildet, die Schubstange, durch Ansteuerung eines Aktors, nach jedem mittels der Impedanzmeseinrichtung nach dem Prinzip der Impedanzspektroskopie EIS durchgeführten Mess- zyklus bezüglich des Winkels ihrer Längsachse zu einer Lotrechten in der Stapelrichtung des Stacks neu auszurichten. Die Ausbildung der SEV ist dabei derart, dass sie zur Einstellung des vorgenannten Winkels, also zur Ausrichtung der Schubstange, eine Regelfunktion ausführt, in welche die aus den Messwerten eines jeweiligen Messzyklus berechne- ten geometrischen Größen von der SEV als Ist- Werte einbezogen werden.

[0024] Anhand von Zeichnungen sollen nachfolgend in der Art eines Ausführungsbeispiels nochmals einige Aspekte der Erfindung erläutert werden. Die Zeichnungen zeigen im Einzelnen:

Fig. 1: die schematische Darstellung einer mög- lichen Ausbildungsform des erfindungsgemä- ßen Systems,

Fig. 2: ein Beispiel für mögliche, während des Fügeprozesses an einem Stack auftretende Verformungen in einer schematischen Darstel- lung,

Fig. 3: eine Draufsicht auf eine SOxC des Stacks mit daran angeordneten Messpunkten,

Fig. 4: ein Beispiel für an unterschiedlichen Messpunkten einer SOxC gemessene Impedanzen.

[0025] Die **Fig. 1** zeigt eine mögliche Ausbildungsform des erfindungsgemäßen Systems, einschließlich eines mittels diesem in einem Fügeprozess gefertigten Stacks 1 in einer grobschematischen Darstellung. Wesentliche Komponenten des Systems sind ein Ofen 7 zur Temperierung eines sich während des Fügeprozesses darin befindenden Stacks 1 aus zwischen einer oberen und einer unteren Endplatte angeordneten SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ sowie eine Schubstange 3 mit einem Aktor 6 zu deren Betätigung und Ausrichtung. Mittels der Schubstange 3 wird während des Fügeprozesses ein Druck auf einen mittleren Bereich der oberen Endplatte und damit der obersten SOxC 2_1 des in dem Ofen 7 temperierten Stacks 1 ausgeübt. Der Ofen 7 weist zur Realisierung eines definierten Heizregimes mehrere unter Ausbildung von Heizzonen angeordnete Heizelemente 10 und um den Stack herum angeordnete Kühlrohre 11 auf.

[0026] Zum System gehören ferner eine nach dem Prinzip der Impedanzspektroskopie EIS arbeitende Impedanzmesseinrichtung und eine Steuer- und Verarbeitungseinrichtung SEV, welche jedoch in der Zeichnung nicht im Detail dargestellt sind. Betreffend die Impedanzmesseinrichtung sind in der **Fig. 2** vielmehr lediglich symbolhaft deren einzelne, jeweils mit einem an dem Stack 1, respektive an einer SOxC angeordneten Messpunkt $5_1, 5_2, \dots 5_n$ verbundene Messkanäle $4_1, 4_2, \dots 4_n$ dargestellt. In einem mehrere Stunden oder gar mehrere Tage andauernden Fügeprozess wird der Stack 1 unter Temperatureinwirkung nach einem vorgegebenen Temperaturablaufschema und dabei andauernder Krafteinwirkung mittels der Schubstange 3 gefügt.

[0027] Während des gesamten Fügeprozesses wird dabei der Stack 1 im Hinblick auf die sich verändernde Geometrie seiner SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ gemonitort. Das Monitoring erfolgt jedoch nicht mittels optischer Sensoren oder dergleichen, sondern unter Einsatz der Impedanzspektroskopie EIS und der Weiterverarbeitung der mittels dieser gewonnenen Messwerte zu geometrischen, die Zellengeometrie der mit Messpunkten $5_1, 5_2, \dots 5_n$ versehenen SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ beschreibenden Größen. Hierzu ist anzumerken, dass etwaige auftretende unerwünschte Verformungen des Stacks 1 typischerweise so geringfügig sind, dass sie möglicherweise mittels eines optischen Systems kaum erkannt werden könnten. Zudem dürfte die Anordnung solcher Sensoren oder auch anderer Sensoren, wie Dehnungsmessstreifen und dergleichen, an dem Stack 1 mit einer Reihe von Schwierigkeiten verbunden sein. Dies gilt zumal in dem Ofen 7,

in welchem der Fügeprozess ausgeführt wird, sehr hohe Temperaturen herrschen. Entsprechende Sensoren müssten daher außerdem im hohen Maße temperaturbeständig sein. Schließlich ist auch noch darauf hinzuweisen, dass Vorgänge, die sich im Volumen der Zellen (SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$) vollziehende Vorgänge, mit an den Stack-Außenseiten angeordneten Sensoren der vorgenannten Art im Grunde nicht fassbar sind.

[0028] Die **Fig. 2** zeigt beispielhaft, ebenfalls in einer stark schematisierten Darstellung, mögliche an einem Stack 1 und dessen Zellen (SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$) während des Fügeprozesses auftretende geometrische Verformungen. Die sich gemäß dem entsprechenden Beispiel an dem Stack 1 zu irgendeinem Zeitpunkt einstellenden geometrischen Verhältnisse sind in der Zeichnung unter Weglassung des den Stack 1 umgebenden Ofens 7 dargestellt. Wie in der Zeichnung angedeutet, resultieren die an Zellen (SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks 1 und somit an der Stack-Geometrie insgesamt auftretenden Verformungen aus Fehlstellungen der Schubstange 3, also aus Abweichungen ihrer Längsachse 9 in einem Winkel α von der Lotrechten 8 der Stapelrichtung des Stacks 3.

[0029] In der Zeichnung sind allerdings diese Abweichungen, respektive der Winkel α , zur Verdeutlichung stark übertrieben dargestellt. In der Realität sind diese Abweichungen so gering, dass sie mit optischen Mitteln kaum wahrnehmbar sind, aber dennoch zu optisch zwar ebenfalls kaum wahrnehmbaren, jedoch die Qualität und gegebenenfalls die Lebensdauer des Stacks 1 beeinträchtigenden Verformungen der SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ des Stacks 1 führen können. Daher wird der Stack 1 während des gesamten Fügeprozesses auf das Auftreten solcher unerwünschter Verformungen gemonitort. Dies geschieht dadurch, dass in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus an einer Mehrzahl von an dem Stack 1 angeordneten und mit jeweils einem Kanal $4_1, 4_2, \dots 4_n$ einer nach dem Prinzip der EIS arbeitenden Impedanzmesseinrichtung verbundenen Messpunkten $5_1, 5_2, \dots 5_n$ jeweils die Impedanz gemessen und aus den Impedanzmesswerten geometrische, die Verformungen zum Ausdruck bringende Größen berechnet werden. Entsprechend der dabei festgestellten Verformungen wird mit Hilfe einer Regelfunktion und durch Betätigung des Aktors 6 fortwährend die Ausrichtung der Schubstange 3 korrigiert.

[0030] In dem gezeigten Beispiel ist an jeder SOxC $2_1, 2_2, \dots 2_n$ an zwei einander gegenüberliegenden Umfangsseiten (Außenseiten) ein Paar von Messpunkten $5_1, 5_2, \dots 5_n$ angeordnet von denen jeder mit einem Kanal ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) einer nach dem Prinzip der EIS arbeitenden, nicht gezeigten Impedanzmeseinrichtung verbunden ist. Die jeweils an diesen

erhaltenen Impedanz-Messwerte ermöglichen Aussagen über die an einer jeweiligen Zelle in der X-Richtung auftretenden Verformungen. Vorzugsweise kann - in der **Fig. 2** nicht gezeigt - außerdem an der sichtbaren, sich in der Zeichnungsebene erstreckenden Außenlängsseite und an der ihr gegenüberliegenden (nicht sichtbaren) Außenlängsseite ebenfalls je ein, mit einem Kanal der Impedanzmesseinrichtung verbundener Messpunkt angeordnet sein, wobei an diesen Messpunkten die an einer jeweiligen Zelle in der Y-Richtung auftretenden Verformungen ermittelt werden können.

[0031] Andeutungsweise ist letzteres in der (im Verhältnis zur **Fig. 2** nicht maßstäblichen) **Fig. 3** in einer Draufsicht auf eine SOxC 2₁ des (ansonsten ebenso wie Ofen und Schubstange nicht gezeigten) Stacks 1 dargestellt, wobei hier die Messpunkte und die sie mit der Impedanzmesseinrichtung zur Erfassung von Verformungen in der Y-Richtung verbindenden (Mess-)Kanäle nur durch ein Symbol angedeutet und nicht mit einem Bezugszeichen versehen sind.

[0032] Die **Fig. 4** zeigt beispielhaft die an unterschiedlichen Messpunkten zu einem bestimmten Zeitpunkt während des Fügeprozesses in Bezug auf die X-Richtung gemessenen unterschiedlichen Impedanzen Z. In dem in der **Fig. 4** gezeigten Diagramm steht also das Z, anders als das X, nicht für die entsprechende Richtung im Raum, sondern bezeichnet vielmehr die Impedanz.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Qualitätssicherung bei der Herstellung von Stacks (1) aus Festoxid-Zellen SOxC 2₁, 2₂, ... 2_n, welche in einem dafür ausgebildeten Ofen (7) in einem Fügeprozess unter Temperatur- und Krafteinwirkung mithilfe eines dabei zwischen sie eingebrachten Lots miteinander zu dem Stack (1) verbunden werden, wobei die Krafteinwirkung vermittelt mindestens einer, Druck auf einen mittleren Bereich der obersten oder/und untersten SOxC des Stacks (1) ausübenden Schubstange (3) erfolgt, **dadurch gekennzeichnet**, dass ein jeweiliger Stack (1) während des gesamten Fügeprozesses hinsichtlich an seiner Geometrie auftretender unerwünschter Verformungen gemonitort wird, indem in einem sich während des Fügeprozesses ständig wiederholenden Messzyklus an einer Mehrzahl von auf den Stack-Außenseiten verteilt, an mehreren SOxC des Stacks jeweils paarweise und voneinander beabstandet angeordneten Messpunkten mithilfe einer mehrkanaligen Impedanzspektroskopie EIS jeweils die Impedanz gemessen und somit für jeden der Messpunkte, ausgehend von einem im ersten Messzyklus am jeweiligen Messpunkt für die Impedanz gemessenen Startwert, ein zeitlicher Verlauf der sich während des Fügeprozesses ändernden Impedanz erfasst wird und aus den an den Messpunkten

in den einzelnen Messzyklen gemessenen Impedanzen jeweils mittels einer von einer Steuer- und Verarbeitungseinrichtung SVE des Ofens verarbeiteten Programmanwendung die Zellengeometrie der mit Messpunkten versehenen SOxC beschreibende geometrische Größen berechnet werden und dass diese berechneten geometrischen Größen jeweils unmittelbar zur Steuerung des Fügeprozesses für eine Minimierung unerwünschter Verformungen von SOxC und damit des Stacks verwendet oder/und aus dem, durch die wiederholte Berechnung während des Fügeprozesses, für diese geometrischen Größen ermittelten zeitlichen Verläufen Qualitätsaussagen zu dem erzeugten Stack abgeleitet werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass an allen SOxC des Stacks jeweils mindestens ein Paar von Messpunkten angeordnet und jeder dieser Messpunkte exklusiv mit einem Kanal einer zur Impedanzspektroskopie EIS verwendeten Impedanzmesseinrichtung verbunden wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass an einer jeweiligen mit Messpunkten versehenen quaderförmigen SOxC des Stacks jeweils mindestens vier Messpunkte angeordnet und mit jeweils einem Kanal der Impedanzmesseinrichtung verbunden werden, wobei mindestens ein Paar von Messpunkten an einander gegenüberliegenden Umfangsseiten der SOxC und mindestens ein weiteres Paar an den beiden anderen, sich dazu jeweils orthogonal erstreckenden sowie ebenfalls einander gegenüberliegenden Umfangsseiten der jeweiligen SOxC angeordnet wird.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass dem Stack, in Abhängigkeit von den zeitlichen Verläufen der während des Fügens des Stacks jeweils berechneten, die Zellengeometrie der mit Messpunkten versehenen SOxC beschreibenden geometrischen Größen, entsprechend einem dafür in der von der SEV verarbeiteten Programmanwendung hinterlegten Schema in einem automatisierten Prozess eine Qualitätsklasse zugewiesen wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, dass die nach einem jeweiligen Messzyklus aus den Messwerten für die Impedanz jeweils berechneten geometrischen Größen als Ist-Werte einbezogen werden in eine von der SEV ausgeführte Regelfunktion, nach welcher die Ausrichtung der mindestens einen Schubstange (3), hinsichtlich des Winkels zwischen ihrer Längsachse und einem in der Stapelrichtung des Stacks gefällten Lot, durch Ansteuerung eines Aktors geregelt wird.

6. System für einen unter Temperatur- und Kraft- einwirkung erfolgenden Fügeprozess zur Herstellung eines Stacks (1) aus Festoxid-Zellen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$), mit einem Ofen (7), mit mindestens einer, Druck auf einen mittleren Bereich der obersten oder/und untersten SOxC des sich während des Fügeprozesses in dem Ofen (7) befindenden Stacks (1) ausübenden Schubstange (3) und mit einer Steuer- und Verarbeitungseinrichtung SEV, **dadurch gekennzeichnet**, dass das System mit einer mehrere Messkanäle ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) zur Impedanzspektroskopie EIS aufweisenden Impedanzmesseinrichtung ausgestattet ist, wobei während des Fügeprozesses mehrere der Messkanäle ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) der Impedanzmesseinrichtung mit dem Stack (1) verbunden sind, nämlich jeweils einer der Messkanäle ($4_1, 4_2, \dots 4_n$) mit jeweils einem von mehreren auf den Stack-Außenseiten verteilt an mehreren SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) des Stacks (1) jeweils paarweise und voneinander beabstandet angeordneten Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots 5_n$), und dass die SEV dazu ausgebildet ist, während des Fügeprozesses

- die Impedanzmesseinrichtung dazu anzusteuern, in einem sich ständig wiederholenden Messzyklus jeweils an allen an dem Stack (1) angeordneten Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) die Impedanz zu messen,
- aus den Messwerten der Impedanzmesseinrichtung, jeweils damit korrelierende, die Zellengeometrie der mit Messpunkten ($5_1, 5_2, \dots 5_n$) versehenen SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) beschreibende geometrische Größen zu berechnen,
- mittels der berechneten geometrischen Größen den Fügeprozess im Hinblick auf eine Minimierung unerwünschter Verformungen von SOxC ($2_1, 2_2, \dots 2_n$) und damit des Stacks (1) zu steuern oder/und aus den zeitlichen Verläufen dieser geometrischen Größen Qualitätsaussagen zu dem erzeugten Stack (1) abzuleiten.

7. System nach Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass die SEV dazu ausgebildet ist, einem gefertigten Stack (1), in Abhängigkeit von den, aufgrund ihrer wiederholten Berechnung für die geometrischen Größen ermittelten zeitlichen Verläufen, nach der Beendigung des Fügeprozesses, entsprechend einem in der SEV dafür hinterlegten Schema, in einem automatisierten Prozess eine Qualitätsklasse zuzuweisen.

8. System nach Anspruch 6 oder 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass die SEV dazu ausgebildet ist, die mindestens eine Schubstange (3) durch Ansteuerung eines Aktors (6) nach jedem Messzyklus, hinsichtlich des Winkels (α) ihrer Längsachse (9) zu einer Lotrechten (8) in der Stapelrichtung des Stacks, entsprechend einer Regelfunktion auszurichten, in welche die aus den Messwerten des

Messzyklus berechneten geometrischen Größen von der SEV als Ist-Werte einbezogen werden.

Es folgen 4 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

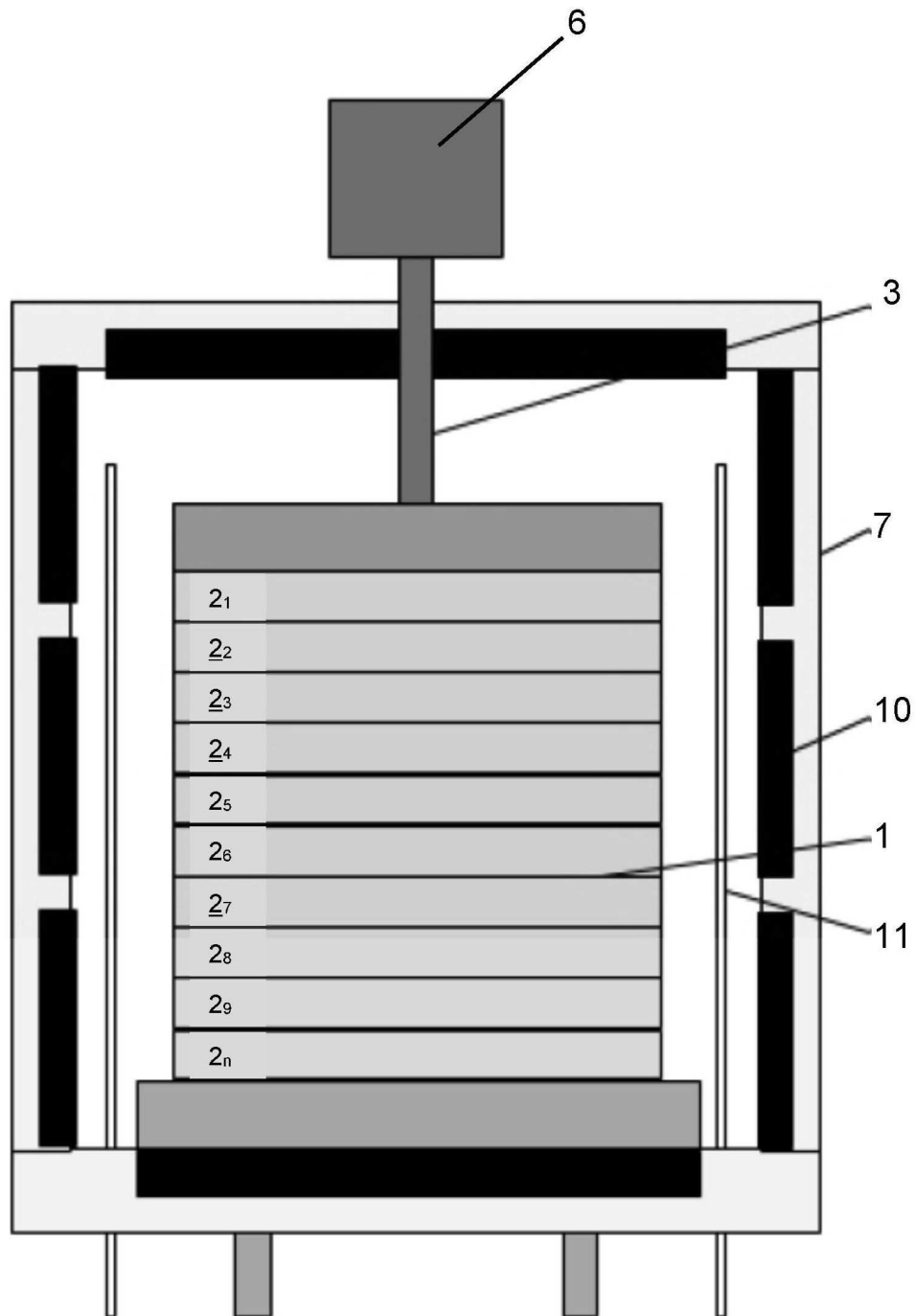


Fig. 1

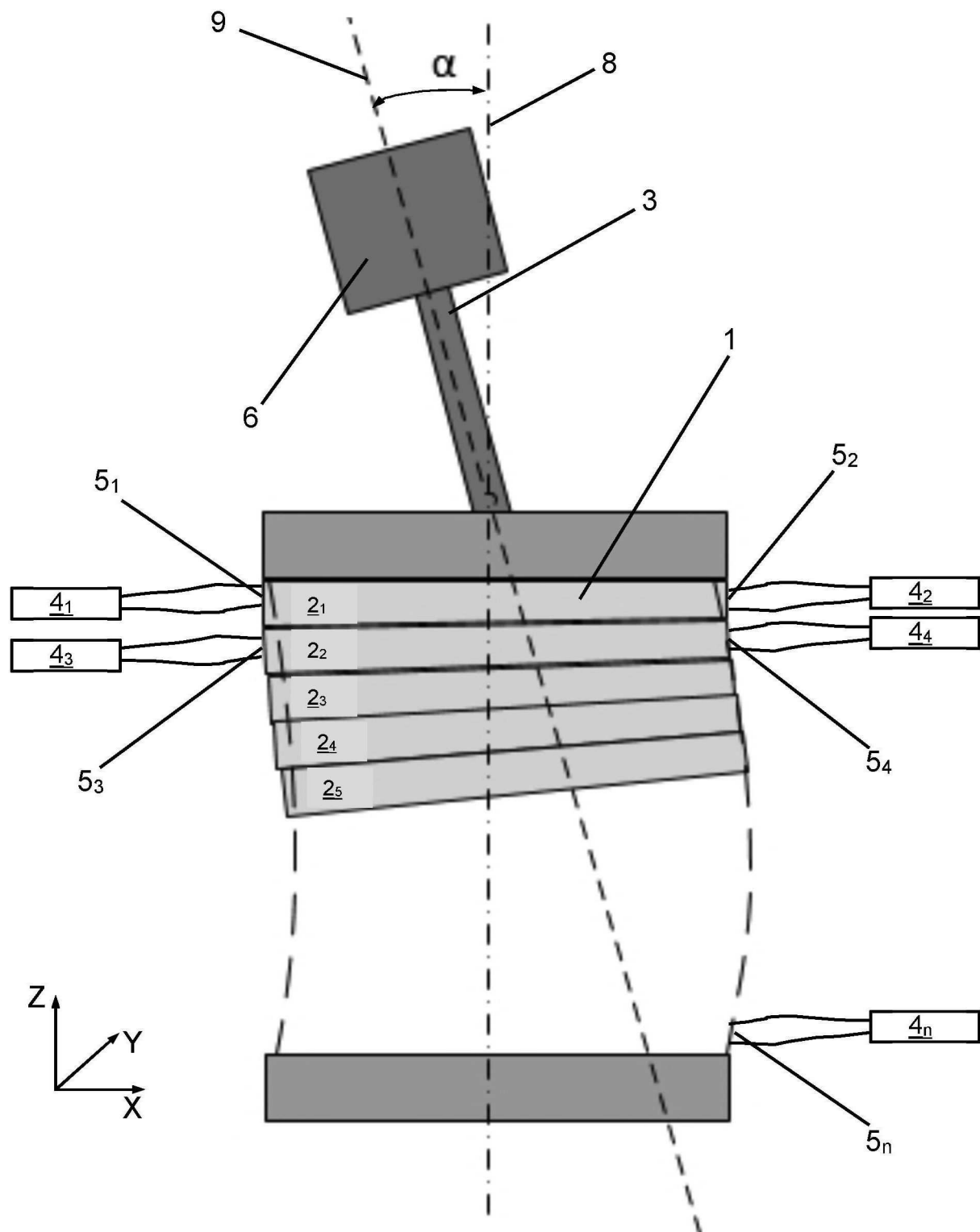


Fig. 2

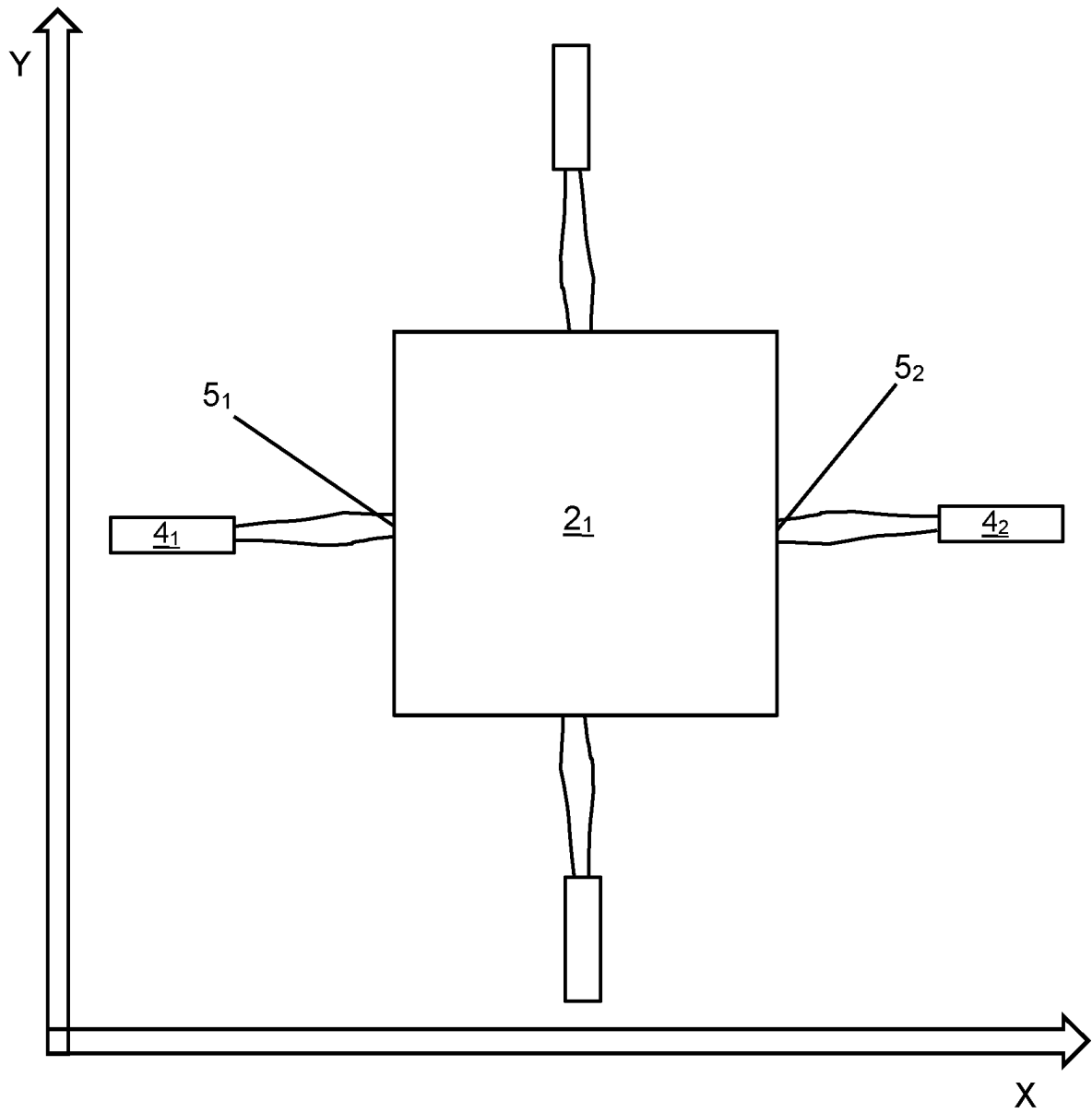


Fig. 3

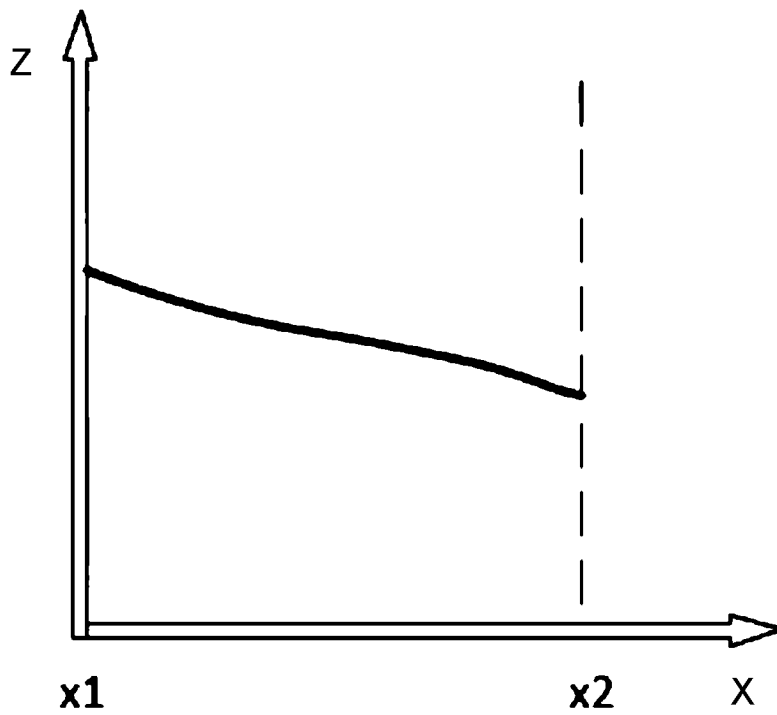


Fig. 4