

Электрохимическая энергетика. 2025. Т. 25, № 4. С. 194–199

Electrochemical Energetics, 2025, vol. 25, no. 4, pp. 194–199

<https://energetica.sgu.ru>

<https://doi.org/10.18500/1608-4039-2025-25-4-194-199>, EDN: JZFDJH

Научная статья

УДК 544.6:621.355

СТРУЙНАЯ 3D-ПЕЧАТЬ КЕРАМИЧЕСКОГО ИНТЕРКОННЕКТОРА НА ОСНОВЕ $Zr_{0.9}Y_{0.1}O_{1.95}$ ДЛЯ МИКРОТРУБЧАТЫХ ТВЕРДООКСИДНЫХ ТОПЛИВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

А. Д. Фроленкова¹, А. И. Титков¹, Е. А. Перова^{1,2}, И. В. Толстобров³

¹Институт химии твердого тела и механохимии Сибирского отделения РАН

Россия, 630090, г. Новосибирск, ул. Кутателадзе, д. 18

²Новосибирский государственный университет

Россия, 630090, г. Новосибирск, ул. Пирогова, д. 2

³Вятский государственный университет

Россия, 610000, г. Киров, ул. Московская, д. 36

Фроленкова Анна Дмитриевна, младший научный сотрудник, frolenkova@solid.nsc.ru, <https://orcid.org/0009-0005-5233-0006>

Титков Александр Игоревич, кандидат химических наук, старший научный сотрудник, a.titkov@solid.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-0835-9985>

Перова Екатерина Александровна, ¹лаборант, ²магистрант, e.perova1@g.nsu.ru, <https://orcid.org/0009-0005-9061-6363>

Толстобров Иван Владимирович, младший научный сотрудник, usr08669@vyatsu.ru, <https://orcid.org/0000-0002-0133-6150>

Аннотация. Представлен новый дизайн интерконнектора для трубчатых твердооксидных топливных элементов, в котором функции электрического соединения и механического/газового распределения разделены. Электрическое соединение элементов реализовано отдельной металлической проволокой, прокладываемой по окружности каркаса. Разработан состав пасты и параметры струйной 3D-печати, а также режим спекания, позволившие получить плотные образцы с высокой микротвердостью. Данный подход позволяет использовать химически и термически совместимый с электролитом материал $Zr_{0.9}Y_{0.1}O_{1.95}$, исключая проблемы проводимости и коррозии, присущие традиционным интерконнекторам.

Ключевые слова: твердооксидный топливный элемент, интерконнектор, струйная 3D-печать, стабилизированный иттрием диоксид циркония

Благодарности. Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект № 21-79-30051-П (https://rscf.ru/prjcard_int?21-79-30051).

Для цитирования: Фроленкова А. Д., Титков А. И., Перова Е. А., Толстобров И. В. Струйная 3D-печать керамического интерконнектора на основе $Zr_{0.9}Y_{0.1}O_{1.95}$ для микротрубчатых твердооксидных топливных элементов // Электрохимическая энергетика. 2025. Т. 25, № 4. С. 194–199. <https://doi.org/10.18500/1608-4039-2025-25-4-194-199>, EDN: JZFDJH

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY 4.0)

Article

Inkjet 3D printing of a YSZ-based ceramic interconnect for microtubular solid oxide fuel cells

А. Д. Фроленкова¹, А. И. Титков¹, Е. А. Перова^{1,2}, И. В. Толстобров³

¹Institute of Solid State Chemistry and Mechanochemistry the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences

18 Kutateladze St., Novosibirsk 630090, Russia

²Novosibirsk State University

2 Pirogova St., Novosibirsk 630090, Russia

³Vyatka State University

36 Moskovskaya St., Kirov 610000, Russia

Anna D. Frolenkova, frolenkova@solid.nsc.ru, <https://orcid.org/0009-0005-5233-0006>

Alexander I. Titkov, a.titkov@solid.nsc.ru, <https://orcid.org/0000-0003-0835-9985>

Ekaterina A. Perova, e.perova1@g.nsu.ru, <https://orcid.org/0009-0005-9061-6363>

Ivan V. Tolstobrov, usr08669@vyatsu.ru, <https://orcid.org/0000-0002-0133-6150>

Abstract. A new design of the interconnect for tubular solid oxide fuel cells was presented. The functions of electrical connection and mechanical/gas distribution were separated in this interconnect. The electrical connection of the elements was provided by a separate metal wire laid around the frame. The paste composition and parameters for inkjet 3D printing, as well as the sintering regime, were optimized, enabling the production of dense samples with high microhardness. This approach allows for the use of $Zr_{0.9}Y_{0.1}O_{1.95}$ (YSZ) material, which is chemically and thermally compatible with the electrolyte, eliminating the conductivity and corrosion problems taking place in traditional interconnects.

Keywords: solid oxide fuel cell, interconnect, inkjet 3D printing, yttria-stabilized zirconia

Acknowledgments. The research was carried out with the financial support of the Russian Science Foundation, project No. 21-79-30051-P (https://rscf.ru/prjcard_int?21-79-30051).

For citation: Frolenkova A. D., Titkov A. I., Perova E. A., Tolstobrov I. V. Inkjet 3D printing of a YSZ-based ceramic interconnect for microtubular solid oxide fuel cells. *Electrochemical Energetics*, 2025, vol. 25, no. 4, pp. 194–199 (in Russian). <https://doi.org/10.18500/1608-4039-2025-25-4-194-199>, EDN: JZFDJH

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution 4.0 International License (CC-BY 4.0)

ВВЕДЕНИЕ

Твердооксидные топливные элементы (ТОТЭ) обладают высокой эффективностью и гибкостью в выборе топлива, а интерконнекторы играют ключевую роль в обеспечении надежного электрического соединения и механической стабильности [1]. Трубчатая конфигурация ТОТЭ имеет преимущества перед планарной, включая высокую механическую стойкость и устойчивость к термоциклированию [2], однако создание эффективной системы соединения отдельных элементов остается сложной задачей.

Традиционные металлические интерконнекторы подвержены деградации из-за окисления и испарения хрома [3], а керамические (например, на основе $LaCrO_3$) сложны и дороги в изготовлении. В данной работе предлагается новый подход к созданию интерконнекторов из материалов, не обладающих электронной проводимостью. Таким образом, интерконнектор выполняет функцию несущей основы, в которой фиксируются и герметизируются единичные ТОТЭ, а электрическая коммутация осуществляется за счёт металлической проволоки или на несённых на поверхность интерконнектора шин из проводящих материалов. Это позво-

ляет независимо оптимизировать материалы для каждой функции и решить проблему несоответствия термического расширения между интерконнектором и несущей основной ТОТЭ, возникающую при использовании сталей и сплавов.

Недавние достижения в области 3D-печати позволяют изготавливать сложные компоненты ТОТЭ, устранив ограничения традиционных процессов [3]. Однако контроль параметров печати и состава паст критически важен для предотвращения дефектов и обеспечения микроструктурной воспроизводимости [3, 5]. В работе используется коммерческий порошок YSZ, известный своими механическими свойствами и термической стабильностью [1], для 3D-печати интерконнекторов. Поскольку параметры спекания, особенно температура, определяют микроструктуру и механические свойства [6], задача исследования – оценить влияние температуры спекания на микротвердость каркасов из YSZ. Изучение трех образцов, отожженных при разных температурах, проводилось для определения оптимального режима, обеспечивающего необходимую механическую прочность.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Для синтеза композитных материалов использовали оксид циркония, стабилизированный оксидом иттрия 10 мол.% YSZ10 (SOFCEMAN, Китай, $\geq 99.5\%$), бутилгликоль 99% (SigmaAldrich), полимер поливинилбутираль (PVB) (SigmaAldrich), пластификатор дибутилфталат (DBF) 99% (SigmaAldrich), дисперсант BYK (BYKChemie).

Для приготовления пасты для 3D-печати PVB, DBF и BYK растворяли в бутилгликоле и помещали в бисерную мельницу, затем добавляли порошок YSZ10 и диспергировали при скорости вращении ротора мельницы 4500 об/мин в течение двух часов. Вязкость пасты измеряли с помощью вискозиметра Brookfield DV3T-RV (Brookfield Engineering Labs Inc., Миддлборо, Массачусетс, США) с геометрией конус/пластина при температуре 25°C.

Печать образцов проводили на лабораторном 3D-принтере, изготовленном по индивидуальному заказу. Принтер сочетает в себе возможность использования различных систем дозирования низковязких и высоковязких композиций для 3D-печати различных материалов [7]. Все эксперименты по печати проводили с использованием пневматического дозирующего клапана с соплом диаметром 0.1 мм (NordsonCorporation, Германия – США). Температура подложки для печати была 150°C. Процесс спекания керамики проводили в камерной высокотемпературной электропечи ПВК-1,6-5-220 В (НПП «Теплоприбор», Россия).

Параллельно для отработки температурного режима спекания и исследование влияния температуры спекания на микроструктуру и микротвердость интерконнекторов были изготовлены контрольные образцы-аналоги методом литья на подложку. Для этого оптимизированную пасту заливали в тефлоновые формы, выдерживали в сушильном шкафу при температуре 120°C для стабилизации, после чего производили удаление органической составляю-

щей и спекание в тех же условиях, что и напечатанные образцы.

Исследование образцов методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) проводили с использованием сканирующего электронного микроскопа TM1000 (HitachiLtd., Япония). Для измерения пористости образцов проводили анализ большой выборки микрофотографий СЭМ в программе ImageJ. Микротвердость измерялась методом Виккерса с применением нагрузки 1 кгс.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

1. Реализация конструкции интерконнектора

На рис. 1 представлена CAD-модель разработанного интерконнектора.

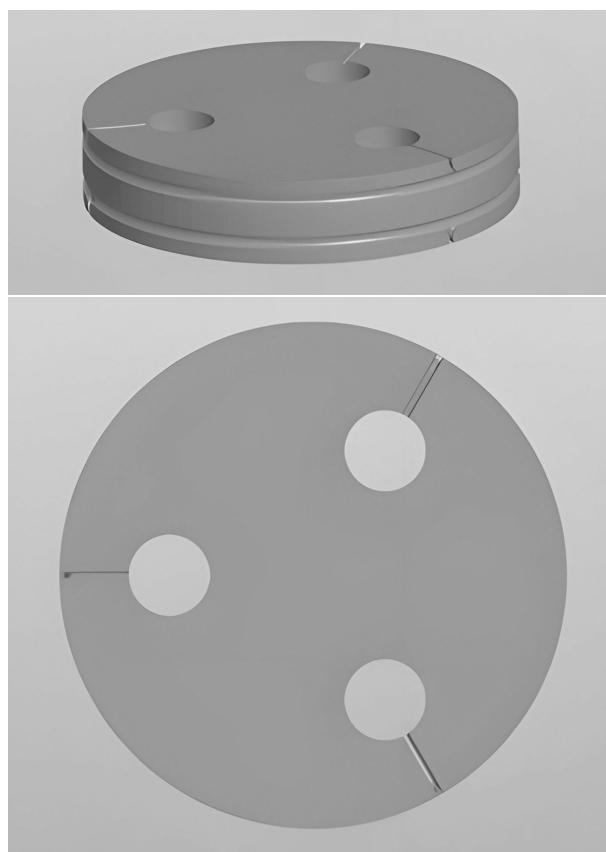


Рис. 1. CAD-модель интерконнектора

Fig. 1. CAD model of the interconnect

Основой предложенной конструкции является монолитный керамический каркас,

в котором интегрированы газовые каналы. Данное решение позволяет эффективно распределить реагенты между соседними трубчатыми ТОТЭ в батарее. Для реализации электрического соединения элементов по периметру интерконнектора выполнена специальная канавка, в которую укладывается металлическая проволока. Таким образом, керамическая основа из YSZ отвечает за механическую прочность и герметизацию газовых потоков, а проводящая функция делегирована металлической проволоке, что позволяет избежать проблем окисления и испарения, характерных для цельных металлических интерконнекторов.

2. Приготовление пасты

Для приготовления пасты использовали 17 г порошка YSZ, 11 г бутилгликоля 1 г PVB, 1.5 г DBF и 1 г BYK. Приведем основные характеристики аттестованной пасты:

процентильные значения распределения частиц по размерам, мкм	0.08(D50) 0.115(D90)
вязкость, мПа·с (при скорости сдвига 10 c^{-1})	7086
содержание твердой фазы, вес.%	70

3. Оптимизация параметров печати

Было исследовано влияние параметров струйной печати на качество формируемых слоев. При растровом шаге 1 мм и частоте 20 Гц наблюдалось большое межслоевое

расстояние, что указывало на недостаточное перекрытие капель (рис. 2, слева). При растровом шаге 0.6 мм и частоте 18 Гц происходило разбрзгивание пасты (рис. 2, посередине). Оптимальным режимом, обеспечившим формирование непрерывных и однородных слоев, оказался растровый шаг 0.7 мм с частотой печати 20 Гц (рис. 2, справа).

Успешная печать данной конструкции демонстрирует возможность создания сложных керамических каркасов с системой внутренних каналов методом струйной 3D-печати. Полученные результаты подтверждают перспективность предложенного подхода с разделением функций, где YSZ-каркас обеспечивает механическую стабильность и газораспределение.

4. Влияние температуры спекания на микроструктуру и свойства

Результаты исследования зависимости свойств YSZ от температуры спекания представлены в таблице. С повышением температуры от 1300°C до 1500°C наблюдается значительное увеличение плотности и микротвердости образцов. При температуре спекания 1500°C достигается минимальная пористость ($\sim 7\%$) и максимальная микротвердость ($1189 \pm 113\text{ HV}$), что свидетельствует о формировании плотной микроструктуры, необходимой для обеспечения газонепрони-



Рис. 2. Вид напечатанного слоя интерконнектора на полиимидной подложке в процессе оптимизации параметров струйной 3D-печати (цвет онлайн)

Fig. 2. The printed interconnect layer on the polyamide substrate during the optimization of inkjet 3D printing parameters (color online)

цаемости интерконнектора в условиях работы ТОТЭ.

Характеристики материала YSZ, спеченного при разных температурах

Characteristics of material, sintered at various temperatures

Образец / Температура	Пористость, %	Микротвердость, ед. Виккерса (HV)
YSZ / 1300°C	20	230 ± 12
YSZ / 1400°C	15	533 ± 45
YSZ / 1500°C	7	1189 ± 113

ВЫВОДЫ

1. Разработан керамический интерконнектор для микротрубчатых ТОТЭ на основе коммерческого порошка YSZ. Предложена концепция с разделением функций, где каркас из YSZ обеспечивает механическую ста-

бильность и газораспределение, а электрическое соединение реализуется отдельной металлической проволокой.

2. Разработан состав пасты и параметры струйной печати: содержание порошка 70%, растрочный шаг 0.7 мм, частота печати 20 Гц для сопла диаметром 100 мкм, что позволяет получать образцы без дефектов.

3. Установлено, что спекание при температуре 1500°C обеспечивает получение плотных образцов с пористостью ~7% и высокой микротвердостью в 1189 ± 113 HV, что необходимо для создания газоплотного интерконнектора.

4. Показана принципиальная возможность использования струйной 3D-печати для создания сложных керамических компонентов ТОТЭ с заданной геометрией, что открывает путь к проектированию и изготовлению высокоэффективных энергетических устройств.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Masciandaro S., Torrell M., Leone P., Tarancón A. Three-dimensional printed yttria-stabilized zirconia self-supported electrolytes for solid oxide fuel cell applications // Journal of the European Ceramic Society. 2019. Vol. 39. № 1. P. 9–16. <https://doi.org/10.48550/arXiv.1712.04036>

2. Собянин В. А. Высокотемпературные твердооксидные топливные элементы и конверсия метана // Российский химический журнал. 2003. № 6. С. 74–83.

3. Конышева Е. Ю. Перовскитоподобные материалы на основе переходных и редкоземельных металлов: закономерности химической и термической стабильности : дис. ... канд. хим. наук. СПб., 2018. 305 с.

4. Kawale S. S., Kelsall G. H. Inkjet 3D-printing of functional layers of solid oxide electrochemical reactors : A review // Reaction Chemistry & Engineering. 2022. Vol. 7. № 1. P. 10–28. <https://doi.org/10.1039/D1RE00454A>

5. Farandos N. M., Kleiminger L., Li T., Hankin A., Kelsall G. H. Three-dimensional Inkjet Printed Solid Oxide Electrochemical Reactors. I. Yttria-

stabilized Zirconia Electrolyte // Electrochimica Acta. 2016. Vol. 213. P. 831–839. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2016.07.103>

6. Родионова С. Д., Деменева Н. В., Орлов В. И., Когтенкова О. А., Бредихин С. И. Исследование механических характеристик новой отечественной ферритной нержавеющей стали Х24, рассматриваемой в качестве материала для изготовления токовых коллекторов батарей ТОТЭ и ТОЭлЭ // 11-я Всероссийская конференция «Топливные элементы и энергоустановки на их основе» (24–27 июня 2024 г.) : сборник трудов / науч. ред. С. И. Бредихин. Черноголовка : ИФТТ РАН, 2024. С. 110–111. <https://doi.org/10.24412/cl-37211-FC-2024.38>

7. Asmedianova A., Malbakhova I., Logutenko O., Vorobyev A., Borisenko T., Bagishev A., Titkov A. A novel approach to tailoring the microstructure and electrophysical properties of Ni/GDC-based anodes by combining 3D-inkjet printing and layer-by-layer laser treatment // Ceramics International. 2024. Vol. 50. № 11. P. 19487–19496. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.01.264>

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

1. Masciandaro S., Torrell M., Leone P., Tarancón A. Three-dimensional printed yttria-stabilized zirconia self-supported electrolytes for solid oxide fuel

cell applications. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, vol. 39, no. 1, pp. 9–16. <https://doi.org/10.48550/arXiv.1712.04036>

2. Sobyanin V. A. High-Temperature Solid Oxide Fuel Cells and Methane Conversion. *Russian Journal of Chemistry*, 2003, no. 6, pp. 74–83 (in Russian).
3. Konyshova E. Yu. *Perovskite-like Materials Based on Transition and Rare Earth Metals: Patterns of Chemical and Thermal Stability*. Diss. Dr. Sci. (Chem.). Saint Petersburg, 2018. 305 p. (in Russian).
4. Kawale S. S., Kelsall G. H. Inkjet 3D-printing of functional layers of solid oxide electrochemical reactors: A review. *Reaction Chemistry & Engineering*. 2022, vol. 7, no. 1, pp. 10–28. <https://doi.org/10.1039/D1RE00454A>
5. Farandos N. M., Kleiminger L., Li T., Hankin A., Kelsall G. H. Three-dimensional Inkjet Printed Solid Oxide Electrochemical Reactors. I. Yttria-stabilized Zirconia Electrolyte. *Electrochimica Acta*, 2016, vol. 213, pp. 831–839. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2016.07.103>
6. Rodionova S. D., Demeneva N. V., Orlov V. I., Kogtenkova O. A., Bredikhin S. I. Mechanical characteristics of new Russian ferritic stainless steels X24 considered for SOFC and SOEC applications. In: Bredikhin S. I., sci. ed. *The Eleventh All-Russian Conference “Fuel Cells and Power Plants Based on Them”* (June 24–27, 2024). Chernogolovka, ISSP RAS Publ., 2024, pp. 110–111 (in Russian). <https://doi.org/10.24412/cl-37211-FC-2024.38>
7. Asmedianova A., Malbakhova I., Logutenko O., Vorobyev A., Borisenko T., Bagishev A., Titkov A. A novel approach to tailoring the microstructure and electrophysical properties of Ni/GDC-based anodes by combining 3D-inkjet printing and layer-by-layer laser treatment. *Ceramics International*, 2024, vol. 50, no. 11, pp. 19487–19496. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.01.264>

Поступила в редакцию 15.10.2025; одобрена после рецензирования 04.10.2025;
принята к публикации 17.11.2025; опубликована 25.12.2025

The article was submitted 15.10.2025; approved after reviewing 04.10.2025;
accepted for publication 17.11.2025; published 25.12.2025