

IEK-3 Report 2011

Klimarelevante Energieforschung

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK)
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

IEK-3 Report 2011

Klimarelevante Energieforschung

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 148

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-808-2

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <<http://dnb.d-nb.de>> abrufbar.

Herausgeber
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH
 Zentralbibliothek, Verlag
 D-52425 Jülich
 Telefon (0246 1) 61-5368 · Telefax (0246 1) 61-6103
 E-Mail: zb-publikation@fz-juelich.de
 Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2012

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 148

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-808-2

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Vorwort	2
1 Beiträge für die 18. Welt-Wasserstoffenergie Konferenz 2010	5
1.1 Wissenschaftliche Koordination der Konferenz	6
1.2 Koordination von Begleitveranstaltungen	10
1.3 Eigene Beiträge	12
1.4 Herausgabe von Büchern und Schriften	14
2 Aus- und Weiterbildung	17
2.1 Ausbildung an Hochschulen	18
2.2 Beiträge für die Information, Weiterbildung und Qualifizierung	22
2.3 Zusammenarbeit mit anderen Stellen	25
3 Wissenschaftlich-technische Berichte	29
3.1 Direktmethanol-Brennstoffzellen	30
3.2 Hochtemperatur-Polymerlektrolyt-Brennstoffzellen	63
3.3 Festoxid- Brennstoffzellen	81
3.4 Brenngaserzeugung und Systeme	103
3.5 Verfahrens- und Systemanalyse	121
3.6 Analytik	141
3.7 Qualitätsmanagement	157
4 Ausgewählte FuE-Projekte	161
4.1 Kostengünstige, langzeitstabile DMFC-Systeme der kW-Klasse	162
4.2 Bordstromversorgung mit Brennstoffzellen für Lastkraftwagen	176
4.3 Brennstoffzellen-APU für Flugzeuge	188
5 Ausblick auf neue FuE-Vorhaben	205
5.1 Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiativen in der Hermholtz- Gemeinschaft	206
5.2 Wasserstoff-Systemlösungen	210
5.3 Batterien für die zukünftigen Energiesektoren	214
6 Zahlen, Daten und Fakten	217
6.1 Institut für Energie- und Klimaforschung – Brennstoffzellen (IEK-3)	218
6.2 Abteilungskompetenz im Überblick	220
6.3 Publikationen, Technologietransfer und Ressourcen	224
6.4 Gremienarbeit	226
6.5 Beiträge zu Messen und Ausstellungen	228
6.6 Anfahrtsbeschreibung	231
6.7 Abkürzungsverzeichnis	234

Vorwort

Der Berichtszeitraum 2009 und 2010, für den dieser Report steht, ist durch einen weitreichenden und tiefgreifenden Aufbruch zu neuen Forschungsfeldern und –strukturen gekennzeichnet. Den Schlusspunkt in diesem Prozess setzte die im Oktober 2010 offiziell und feierlich vollzogene Verschmelzung der Jülicher Forschungsbereiche für Energie und Klima zu einem neuen, schlagkräftigen Institut für Energie- und Klimaforschung. Die gemeinsame Orientierung und Abstimmung der sechs Energie- und zwei Klimainstitute sowie der Projektgruppe Systemforschung und technologische Entwicklung dienen dazu, auf spezifischen Arbeitsfeldern Themenschnittmengen für die fachliche Zusammenarbeit zu identifizieren und gemeinsame FuE-Ergebnisse zur Lösung der Herausforderungen der Zukunft zu generieren. Die Sinnhaftigkeit dieses Konzepts wurde bereits 2009 im Rahmen einer von beiden Bereichen gemeinsam betreuten Dissertation mit dem Thema „Wasserstoff-Emissionen und ihre Auswirkungen auf den arktischen Ozonverlust: Risikoanalyse einer globalen Wasserstoffwirtschaft“ unter Beweis gestellt und soll zukünftig durch weitere Zusammenarbeiten ausgebaut werden. Diese synergetische Aufstellung des Jülicher Energie- und Klimabereichs ist weltweit einmalig und wird nur zum Teil durch die bereits zahlreichen Zentren für Energie- und Umweltforschung flankiert.

Damit im Zusammenhang steht natürlich auch die intensive Suche nach Lösungen zur Vermeidung des noch stetig fortschreitenden Klimawandels. Als mögliche Antwort wird die großskalige Einführung von erneuerbaren Energiequellen in den Strommarkt und von Elektromobilität in den Verkehr gesehen. Dies erfordert allerdings noch erheblichen Forschungs- und Entwicklungsaufwand zur Bereitstellung fehlender Energiespeichertechnologien der nächsten und übernächsten Generation. Diesen Herausforderungen stellen sich die mit der notwendigen Kompetenz ausgestatteten Helmholtz-Zentren und erhalten im Rahmen der Energiespeicher und Wasserstoff-Initiativen (EWI) Zusatzmittel durch die Helmholtz-Gemeinschaft (HGF) für hinreichende FuE-Maßnahmen, die der Industrie die Bereitstellung der zur Zeit fehlenden Schlüsseltechnologien für eine nachhaltige Energieversorgung ermöglicht. Die sachgerechte Projektkonzeption und Antragstellung für die beiden Initiativen wurden im Berichtszeitraum von den fachkundigen Wissenschaftlern des Instituts erarbeitet, durch den HGF-Senatsausschuss geprüft und zur Förderung empfohlen. Die FuE-Arbeiten an H₂-Systemlösungen wurden im Januar 2010 und die zu Lithiumionen-basierten Batterien im Januar 2011 aufgenommen und erstrecken sich über 5 bzw. 4 Jahre.

Die Landesregierung von Nordrhein-Westfalen zeigt, angetrieben durch den Willen zum Umbau der industriellen Infrastruktur des Landes, bereits seit Jahrzehnten ein intensives Engagement bei der Einführung neuer, zukunftsfähiger Technologien. Dabei spielen Brennstoffzellen und Wasserstoff eine Schlüsselrolle und werden von der EnergieAgentur NRW beim Transfer aus der Forschung und Entwicklung in die Vermarktung und Anwendung substantiell unterstützt. Dies schließt auch Maßnahmen der Netzwerkbildung, der Demonstration des Standes aus Forschung und Technik sowie des Informationsaustauschs auf Konferenzen, Workshops und Arbeitskreistreffen ein. Nach dem 4. Deutschen Wasserstoff Congress 2008 wurde mir durch das Wirtschaftsministerium des Landes NRW die Verantwortung zur Leitung und wissenschaftlichen Koordination der 18. World Hydrogen Energy Conference 2010 übertragen. Dieser Herausforderung habe ich mich gemeinsam mit Wissenschaftlern des IEK-3, die mich bei der Detailarbeit unterstützten, gerne gestellt. Die Arbeit für die Konferenz 2010 in Essen mit insgesamt knapp 2.500 Teilnehmern und 17 wissenschaftlichen Beiträgen von

Institutsmitarbeitern hat die Sichtbarkeit des IEK-3 und seiner Wissenschaftler zum Thema Brennstoffzellen und Wasserstoff noch erheblich vergrößert. Allen beteiligten Mitarbeitern möchte ich für ihr Engagement und ihre Beiträge, ohne die der besondere Erfolg der 18. WHEC 2010 nicht möglich gewesen wäre, danken.

Die FuE-Arbeiten der 2008 eingerichteten Abteilung für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen haben sich auf der Grundlagenseite mit der modellgestützten Simulation und bei der Auflösung von Vorgängen in der phosphorsäuredotierten MEA sowie auf der Seite der Stack-Entwicklung mit Modulen der kW-Klasse sehr positiv entwickelt. Bei den Arbeiten an Reformern zur katalytischen Umwandlung von Mitteldestillaten in ein wasserstoffreiches Gas sowie an SOFC-Stacks und DMFC-Energiesystemen steht die Erreichung langer Lebensdauer bei gleichzeitig geringer Alterung im Vordergrund laufender Arbeiten. Die Ermittlung der für die genannten drei Technologien erreichten Grenzwert der Lebensdauer ist noch Gegenstand laufender Untersuchungen und zeigen bereits jetzt mit 3.000 Stunden für einen autothermen Reformer, etwa 27.000 Stunden für einen SOFC-Stack und knapp 3.000 Stunden für ein DMFC-Energiemodul vielversprechende Ergebnisse. Diese Werte sind ein deutliches Zeichen dafür, dass die für die einzelnen Technologien avisierten Anwendungsfälle in absehbarer Zeit betriebsgerecht bedient werden können.

Nach zwei Jahren mit strukturellen und thematischen Neuerungen gilt es die zusätzlichen Themenfelder auch mit geeigneten Strukturen, sachgerechter Infrastruktur und qualifiziertem Personal zu unterfüttern. Dieser Prozess wird von Veränderungen des IEK-3 begleitet sein, die gleichermaßen Chancen und Herausforderungen für die Mitarbeiter bieten.



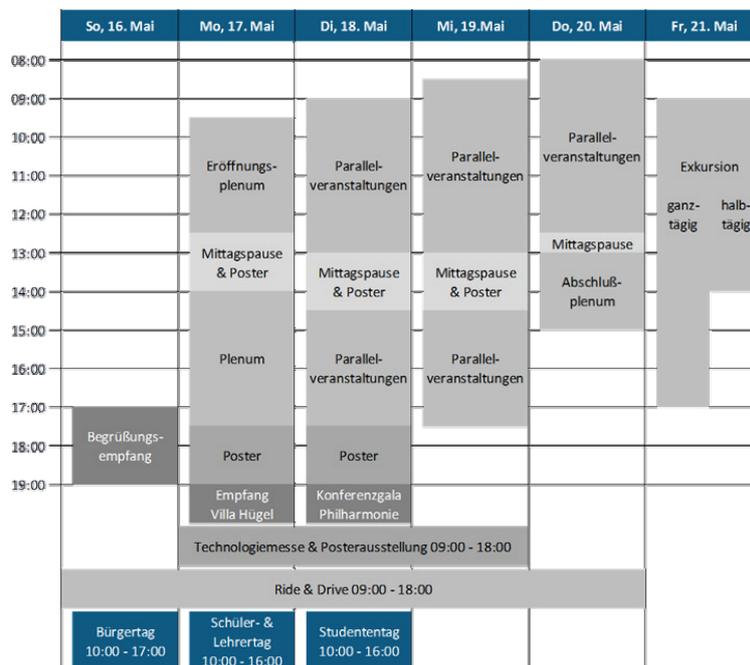
A handwritten signature in blue ink that reads "Detlef Polster". The signature is written in a cursive, flowing style.

Jülich, im November 2012

**1 Beiträge für die 18. Welt-Wasserstoffenergie Konferenz
2010**

Die Welt-Wasserstoffenergie Konferenz (WHEC) ist eine internationale Konferenz mit angeschlossener Technologiemesse und themenverwandten Begleitveranstaltungen. Die 18. WHEC 2010 fand vom 16. Bis 21. Mai 2010 in Essen unter der Schirmherrschaft des Internationalen Verbands für Wasserstoffenergie (IAHE) statt, wurde von der EnergieAgentur.NRW organisiert und in der Hauptsache vom Land Nordrhein-Westfalen sowie RWE als Hauptsponsor unterstützt. Die Zielsetzung der 18. WHEC 2010 bestand in der Bereitstellung einer Plattform zum umfassenden Informationsaustausch zwischen den Bereichen Wissenschaft, Wirtschaft und Politik, um zur Förderung von Wasserstoff als sauberem Energieträger und von Brennstoffzellen als saubere Energiewandler beizutragen. Darüber hinaus sollte die Konferenz dazu beitragen, neue Technologien bekannt zu machen, strategische Diskussionen anzustoßen und Pfade zur Einführung der Wasserstofftechnologie in die Energiewirtschaft zu entwickeln. Als Vorsitzender der Konferenz hatte Professor Stolten den Auftrag, die wissenschaftliche Ausgestaltung und Koordination der fachspezifischen Vortrags- und Begleitveranstaltungen durchzuführen. Dabei wurde er von einem schlagkräftigen, mit Experten aus der Region besetzten Arbeitskreis sowie zahlreichen Mitarbeitern aus dem IEK-3 unterstützt. Durch die Herausgabe von auf das Konferenzthema bezogenen Büchern und Schriften wurden die wissenschaftlich-technischen Inhalte und Ergebnisse der Veranstaltung in sachgerechter Form dokumentiert und für eine breit angelegte Verwendung zugänglich gemacht.

1.1 Wissenschaftliche Koordination der Konferenz



Tab. 1: Programmübersicht

Mit Blick auf die übergeordneten Ziele der 18. WHEC 2010 in Bezug auf die Förderung der Wasserstofftechnologie und die Lieferung von Antworten zu wissenschaftlichen sowie strategischen Fragestellungen im Bereich von Wasserstoff und Brennstoffzellen auf der Grundlage des Stands von Wissenschaft und Technik wurde der viertägige Vortragsteil der Konferenz in drei unterschiedliche Teilveranstaltungen – Einführungs- und Schlussplenum sowie Parallelveranstaltungen - aufgeteilt. Diese und auch weitere Veranstaltungsangebote sowie deren Terminierung können der Übersicht in Tab. 1 entnommen werden.

1.1.1 Plenarveranstaltung

Der erste Tag der Konferenz war durch den Auftritt und die Berichterstattung wichtiger Entscheidungsträger aus Politik, Industrie und Verbänden vor dem gesamten Plenum gekennzeichnet. Nach Grußworten durch die Professoren Stolten, IEK-3 und Veziroglu, IAHE sowie des Oberbürgermeisters der Stadt Essen Herrn Paß lieferten drei Politiker, Bundesminister für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung Dr. Ramsauer (siehe Abb. 1, oben links), Ministerpräsident von NRW Dr. Rüttgers (siehe Abb. 1, unten links) sowie Minister für Wissenschaft und Technologie der Volksrepublik China Professor Wan, aktuelle Bewertungen der Rolle der Wasserstofftechnologie für die Gesellschaften von Deutschland, NRW und China. Anschließend berichteten prominente Vertreter aus der Wirtschaft und von Verbänden über die Potenziale bei der Einführung von Wasserstoff in konkrete Anwendungsfälle.



Abb. 1: Herausragende Vertreter der Politik (links) und der Industrie (rechts)

Dr. Zetsche, Daimler (siehe Abb. 1, oben rechts) vertrat die auf Wasserstoff bauende Automobilindustrie, Professor Reitzle (siehe Abb. 1, unten rechts) Linde zeigte, wie der Aufbau einer H₂-Infrastruktur in Deutschland vorangebracht werden kann, Herr Solvay, Solvay, erläuterte die Möglichkeit von Wasserstoff als Chemierohstoff. Weitere ministerielle Vertreter aus Deutschland, der Europäischen Kommission, den Vereinigten Staaten von Amerika und Österreich machten konkrete Angaben über erfolgreiche Anstrengungen in der Vergangenheit, laufende Aktivitäten sowie zukünftige Vorhaben und deren Ziele.

1.1.2 Parallel- und Posterveranstaltungen

Die Herausforderung für die erfolgreiche Durchführung der 18. WHEC 2010 bestand darin, mit einem gleichzeitig anspruchsvollen und nachvollziehbaren Programm, das weite und komplexe Thema der Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologien für ein Fachpublikum sowie in separaten Veranstaltungen auch für Laien informativ und interessant zu gestalten. Im zweieinhalbtägigen, wissenschaftlichen Veranstaltungsteil mit zehn parallelen Veranstaltungen wurden von 326 Referenten aus 39 Ländern insgesamt 342 Vorträge gehalten. Daneben präsentierten 176 Referenten aus 30 Ländern insgesamt 183 Poster (siehe Abb. 2).



Abb. 2: Posterveranstaltung

Abkürzung	Hauptthemen	Anzahl Unterthemen
FC	Grundlagen der Brennstoffzelle	5
HI	Brennstoffinfrastruktur	3
HP	Wasserstoff-Erzeugungstechnologien	7
HS	Speichersysteme	3
IP	Politische Sicht, Initiativen und Zusammenarbeit	3
SA	Strategische Analysen	8
SI	Sicherheitsaspekte	2
SM	Vorhandene und entstehende Märkte	4
ST	Stationäre Anwendungen	2
TA	Transportanwendungen	6

Tab. 2: Themenübersicht

Die vorgegebene Themenstruktur sah zehn Hauptthemen (siehe Tab. 2) mit jeweils zwei bis acht Unterthemen vor. Daraus resultierten 43 Themenblöcke für die jeweils ein verantwortlicher Experte benannt wurde, der zur Einführung der Themenvorträge eine Übersicht von den

grundlegenden Prinzipien bis zum Stand von Wissenschaft und Technik lieferte. Diese Übersichtsbeiträge wurden von den Experten als wissenschaftliche Artikel mit einem Umfang von durchschnittlich 20 Seiten verfasst und als Buch von Professor Stolten bei WILEY-VCH herausgegeben (vgl. Kapitel 1.4). Der Beitrag des IEK-3 an beiden Veranstaltungen war mit sechs Übersichtsbeiträgen und sechs Fachvorträgen sowie drei Postern von herausragender Sichtbarkeit.

1.1.3 Abschlußveranstaltung

Die etwa zweistündige im Plenum durchgeführte Abschlußveranstaltung widmete sich mit den Beiträgen der Professoren Fletcher, Stolten und Veziroglu im Wesentlichen der Bewertung der Veranstaltungsbeiträge im Hinblick auf erzielte Fortschritte und abzuleitende Ausblicke auf zukünftige Entwicklungen und Trends. Die positive Resonanz auf ausnahmslos alle Veranstaltungsangebote ließ den Schluss zu, dass die 18. WHEC 2010 in Essen sehr erfolgreich war.

Schon am Einführungstag lieferten die Landes- und Bundesregierungen gemeinsam mit der Industrie ein starkes Bekenntnis zur Förderung und Lieferung neuer Technologien ab 2015. Es wurde im weiteren Verlauf der WHEC deutlich, dass die Mobilität die dominierende Triebkraft für die Einführung von Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologien darstellt. In Bezug auf die lokal emissionsfreie und hocheffiziente Mobilität mit Pkw wurde klar herausgestellt, dass Fahrzeuge im Kurzstreckenbetrieb mit Batterien versorgt werden können und die Substitution heutiger Pkw Wasserstoff-betankte Brennstoffzellen-Fahrzeuge erfordert. Bei der Diskussion um Kostenreduktion wurden als potentielle Einflussgrößen das Ansteigen des Produktionsvolumens sowie die Verbesserung von Materialien und Systemtechnik gesehen und herausgestellt. Im Detail soll die grundlegende Forschung weiter an der Findung unedler Metallkatalysatoren für die PEFC-Technologie arbeiten. Für die SOFC-Technologie ist die wesentliche Verbesserung der Lebensdauer über das heute erreichte Niveau von 30.000 Stunden hinaus von hoher Bedeutung. Dies ist nicht zuletzt wichtig zur weiteren Verbesserung der stationären Anwendungen mit Brennstoffzellen, die in Langzeit-Feldtests bereits zuverlässige Leistungsdaten abgeliefert haben. Im Rahmen des Deutschen CALLUX-Projekts werden bis 2012 etwa 800 Geräte als Brennstoffzellen-Heizgeräte im haustechnischen Einsatz sein.

Energiepfade basierend auf erneuerbarer Energie sollen zukünftig durch die Wasserstoffherzeugung dominiert werden. Dazu wurden thermochemische Prozesse, die Hochtemperaturwärme aus konzentrierter Solarstrahlung nutzen, fermentative und photobiologische Prozesse, Elektrolyse in Verbindung mit Wind- oder Solarstrom sowie die Photokatalyse gezählt. Darüber hinaus gilt es, fossile Erzeugungspfade im Hinblick auf Effizienz und Kosten zu verbessern sowie die Treibhausgasemissionen durch CO₂-Abtrennung und Lagerung zu mindern. Bei der Wasserstoffspeicherung gelangen Konstruktionsfragen in den Betrachtungsmittelpunkt. Dies betrifft im Wesentlichen Druckbehälter der vierten Generation und Speichersysteme auf Hydridbasis.

Zum Abschluß wurde durch den Vertreter der Kanadischen Wasserstoff- und Brennstoffzellen Gemeinschaft Terry Kimmel auf die 19. WHEC 2012 in Toronto hingewiesen und das anwesende Auditorium zum Besuch der Veranstaltung in zwei Jahren in Kanada eingeladen.

1.2 Koordination von Begleitveranstaltungen

Unter der Leitung von Dr. Emonts entwickelte eine etwa 16-köpfige Arbeitsgruppe Ideen für die Ausrichtung des jeweils eintägigen Bürger-, Schüler- und Lehrer- sowie Studententages. Bei der Ausgestaltung des Programms und der Auswahl der Beitragsangebote wurde großer Wert auf die Zielgruppen-spezifischen Erwartungen und Ansprüche gelegt. Darüber hinaus galt insbesondere, durch geeignete Wahl von Austragungsort und -termin den Erfolg der Begleitveranstaltung positiv zu beeinflussen ohne den Ablauf der Konferenz zu stören.

1.2.1 Bürgertag

Der Bürgertag fand am Sonntag, den 16. Mai 2010, am Ufer des Essener Baldeneysees statt. Dadurch hatten interessierte Besucher des Bürgertages gleichzeitig auch die Möglichkeit, die vier künstlichen Inseln des „Ruhr-Atolls“ auf dem Baldeneysee zu bewundern. Die vom Gelsenkirchener Konzeptkünstler Norbert Bauer entworfenen und realisierten Kunstobjekte standen unter dem Motto „Kunst ist Energie - Energie ist Bewegung“.

Der Bürgertag selbst bot mit seinen Selbst- und Mitfahrangeboten (siehe Abb. 3, links), themenspezifischen Exponaten sowie der Informations- und Stellenbörse den etwa 5.000 Besuchern die Möglichkeit, Wissenslücken über neue, zukünftige Energieversorgungstechnologien zu schließen, Erfahrungen mit praktischen Anwendungen dieser Technologien (siehe Abb. 3, rechts) zu sammeln und Kontakte für die eigene Karriere zu knüpfen. Die Mitwirkung des regionalen Radorundfunks sowie einschlägiger, mobiler Cateringunternehmen rundete den durch sonniges, warmes Wetter begünstigten Tag ab.



Abb. 3: Angebote des Bürgertages – Brennstoffzellenfahrzeug mit Selbstfahrgelegenheit und Ausstellungszelt mit Brennstoffzellen-versorgter Autorennbahn

1.2.2 Schüler- und Lehrertag

Die Angebote des Schülertages richteten sich an mindestens 15-jährige Schüler von Realschulen und Gymnasien sowie technisch orientierten Berufskollegs und deren Lehrer. Von allen Teilnehmern wurde ein Basiswissen in Physik und Chemie erwartet, um den Ausführungen der Referenten folgen zu können. Dem ambitionierten Veranstaltungsangebot (siehe Abb. 4) folgten am Montag, den 17. Mai 2010, insgesamt 390 Schüler und Lehrer im Wesentlichen aus Nordrhein-Westfalen. Um die Atmosphäre einer internationalen, wissenschaftlich-technischen Konferenz wie der WHEC auch für die anwesenden Schüler und Lehrer

spürbar zu machen, wurde der Schüler- und Lehrertag im direkten Umfeld der WHEC in Räumlichkeiten der Messe Essen durchgeführt.



Abb. 4: Schüler- und Lehrertag – Schüler (links) und Lehrer (rechts) bei der Besichtigung von Angeboten für Praxis und Unterricht

Das sechsstündige Programm bestand aus fünf unterschiedlichen Themenblöcken. Unter dem Motto „Faszination Wasserstofftechnologie“ wurden alle Schüler und Lehrer vom Moderator Witold Franke und einer 4-köpfigen Expertenrunde mit der Behandlung der Herausforderungen bei der zukünftigen Energiebereitstellung, der Vorstellung erster Wasserstoffanwendungen bis 2020 und entsprechender Visionen bis 2050 auf das Tages- und Konferenzthema eingestimmt. Danach wurden den Teilnehmern die Wasserstoff- bzw. Brennstoffzellenbezogenen Arbeitsergebnisse der fünf nationalen Sieger eines von der International Partnership for Hydrogen and Fuel Cells in the Economy (IPHE) global ausgeschriebenen Schülerwettbewerbs vorgestellt. Während der anschließenden Mittagspause boten Vertreter von Hochschulen und Forschungseinrichtungen die Möglichkeit zur fachbezogenen Studien- und Ausbildungsberatung. Die zweite Hälfte der Veranstaltung begann mit einem für Schüler und Lehrer getrennt durchgeführten Programm. Für die Schüler referierten Vertreter aus namhaften, deutschen Forschungseinrichtungen über „Brennstoffzellentechnologie in der Forschung und Entwicklung“. Interessierte Lehrer erhielten eine Einweisung über Angebote und Möglichkeiten von „Brennstoffzellen in Unterricht und Praxis“. Zum Abschluß nahmen Schüler und Lehrer an einer betreuten Führung durch die Messe und am „Ride & Drive“ Angebot mit zahlreichen Brennstoffzellen- und Wasserstofffahrzeugen teil.

1.2.3 Studententag

Für am Thema interessierte Studenten bot der Studententag die Möglichkeit zum Besuch der am Dienstag, den 18. Mai 2010 stattfindenden Parallel- und Posterveranstaltungen. Darüber hinaus konnten die insgesamt 93 teilnehmenden Studenten das Ausstellungsangebot wahrnehmen sowie die „Ride & Drive“ Fahrzeugflotte nutzen. Als zusätzlicher Beratungsbeitrag wurden den Studenten während der Veranstaltungspausen themenbezogene Angebote für Diplom- und Doktorarbeiten, freier Stellen in Industrie und Forschung sowie Alumni-Angebote der RWTH Aachen und des Forschungszentrum Jülich gemacht.

1.3 Eigene Beiträge

Das IEK-3 hatte sich bereits bei den WHEC-Veranstaltungen 2008 in Brisbane, Australien und 2006 in Lyon, Frankreich mit Beiträgen beteiligt. Die örtliche Nähe der 18. WHEC 2010 in Essen zum Standort des IEK-3 in Jülich und die technologieorientierte Ausgestaltung des Konferenzprogramms begünstigten eine IEK-3-Beteiligung mit zahlreichen wissenschaftlichen-technischen Beiträgen auf allen Ebenen von der Konferenz bis hin zur Messe.

1.3.1 Konferenzbeiträge

Veranstaltungsart	Veranstaltungsthema	Vortragsthema	Verantwortlicher Referent
Übersicht	Plenum Day	The Potential Role of Hydrogen as an Energy Carrier	Detlef Stolten
	FC.2 PEMHT-PEM	High-Temperature PEM Fuel Cell: Electrolytes, Cells, and Stacks	Christoph Wannek
	FC.3 Direct Fuel Cells	Current Status of and Recent Developments in Direct Liquid Fuel Cells	Jürgen Mergel
	HP.3c Alkaline Electrolysis	Alkaline Electrolysis - Introduction and Overview	Detlef Stolten
	SM.3 APUs	Auxiliary Power Units for Light-Duty Vehicles, Trucks, Ships, and Airplanes	Ralf Peters
	TA.4 SA & WtW Studies	Systems Analysis and Well-to-Wheel Studies	Thomas Grube
Parallel	HP.4a Reforming & Gasification	Development of Fuel Cell Systems for Aircraft Applications Based on Synthetic Fuels	Joachim Pasel
	SM.4 Portables	System Technology Aspects for Light Traction Applications of Direct Methanol Fuel Cells	Holger Janßen
	FC.2 PEMHT-PEM	Cell Resistances of ABPBI-Based HT-PEFC-MEAs: Time Dependence and Influence of Operating Conditions	Werner Lehnert
	FC.3 Direct Fuel Cells	Manufacturing Technologies for Direct Methanol Fuel Cells (DMFCs)	Andreas Glösen
	FC.5 Advanced Modelling	Hierarchical 3D Multiphysics Modelling in the Design and Optimisation of SOFC System Components	Murat Peksen
	SM.2 Space & Aeronautic	Desulfurization of Jet Fuel for Fuel Cell-Based APU Systems in Aircraft	Yong Wang
	FC.4 HT Fuel Cells	Evaluation of the Electrical Contact Area at the SOFC Cathode	Vincent Haanappel
	SA.4 Education & Awareness	Contributions to Education and Training made by Institutional Research	Bernd Emonts
Poster	FC.3 Direct Fuel Cells	Combined Local Current Distribution Measurements and High Resolution Neutron Radiography of Operating DMFCs	Alexander Schröder
	HP.3a H2 from Renewables	Analysis of the Impact of Hydrogen on Wind Power	Denis Krieg
	SM.4 Portables	Hybridization and Control of Direct Methanol Fuel Cell Systems for Material Handling Applications	Jörg Wilhelm

Tab. 3: Übersicht der Vorträge und Poster des IEK-3

Mit insgesamt 17 Beiträgen beteiligten sich die Wissenschaftler des IEK-3 am Einführungsplenum sowie den Parallel- und Posterveranstaltungen der WHEC. Der mit sechs Übersichtsvorträgen hohe Anteil belegt die herausragende Exzellenz und umfassende Kompetenz der

Wissenschaftler des Instituts. Einen groben Überblick der von IEK-3-Wissenschaftlern präsentierten Einzelbeiträge liefert Tab. 3. Bezogen auf die FuE-Schwerpunkte und Initiativen des IEK-3 behandeln fünf Beiträge die DMFC-, zwei Beiträge die HT-PEFC- und zwei Beiträge die SOFC-Technologie sowie drei Beiträge die Brenngaserzeugungs- und drei Beiträge die Wasserstofftechnologien. Zwei weitere Beiträge setzen sich mit Querschnittsthemen aus dem Bereich der Systemanalyse sowie Fortbildung und öffentliche Wahrnehmung auseinander.

1.3.2 Messebeiträge

Die Technologiemesse der WHEC wurde durch das Engagement zahlreicher, internationaler Wirtschaftsunternehmen (59 %), Forschungs- und Entwicklungseinrichtungen (13 %) sowie Ministerien und Verbände (28 %) getragen. Insgesamt haben sich 136 Aussteller aus 13 Ländern auf 5.600 m² Ausstellungsfläche mit ihren themenbezogenen Produkten, Technologieträgern sowie FuE-Ergebnissen und Dienstleistungen an dem Messeauftritt beteiligt. Mit sieben Ausstellungsfeldern von jeweils 80 m² Fläche präsentierte der Deutsche Pavillon den FuE-Status auf dem Gebiet der Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologien wichtiger deutscher Forschungsinstitute und der damit befassten, deutschen Industrie. Auf einem Thementisch zeigte das IEK-3 die neuesten Ergebnisse aus der Forschung und Entwicklung an Brennstoffzellen und Reformern der Kilowattklasse mit funktionstüchtigen SOFC- und HT-PEFC-Stacks sowie einem autothermen Reformer (siehe Abb. 5). Daneben bestand für interessierte Messebesucher die Möglichkeit, Detailinformationen über die FuE-Schwerpunkte des IEK-3 zu erfahren und unter Anleitung der Jülicher Standbetreuer/innen die Assemblierung eines HT-PEFC-Stack aus realitätsnahen Bauteilen vorzunehmen. Das aufgefahrene Exponateangebot wurde durch ein Brenngaserzeugungsmodul vervollständigt, das in einem Gestell von 80 x 80 x 200 cm³ alle Umwandlungsschritte beinhaltet, die es ermöglichen aus Kerosin, Wasser und Luft ein wasserstoffreiches Brenngas für eine HT-PEFC mit mehreren Kilowatt elektrischer Leistung bereitzustellen.



Abb. 5: Messestand des IEK-3

1.4 Herausgabe von Büchern und Schriften

Um die Ergebnisse der Konferenz im Sinne einer nachhaltigen Dokumentation für interessierte Wissenschaftler und Fachleute verfügbar zu machen, wurde vom Organisationskomitee ein Dokumentationskonzept entwickelt und mit großem Aufwand umgesetzt. Dieses Konzept bestand aus drei Elementen und sah vor, die aufwendigen Übersichtsbeiträge der Themenverantwortlichen als Buch bei WILEY-VCH bereits zum Zeitpunkt der WHEC herauszugeben und jedem Teilnehmer mit den Konferenzunterlagen auszuhändigen. Ein Sonderteil „Wasserstoff“ im Energie-Fachmagazin „Brennstoff, Wärme, Kraft“ wurde ebenfalls schon im Vorfeld der WHEC mit dem VDI-Verlage herausgebracht und sollte als Informationshilfe auf die Veranstaltung aufmerksam machen und in die Veranstaltungsthematik einführen. Mit dem siebenteiligen Tagungsband aller Beiträge der Parallelveranstaltungen sollte ein inhaltlicher Überblick der vorgetragenen Konferenzthemen ermöglicht werden.

1.4.1 Buch der Übersichtsbeiträge

Die erste Auflage des im WILEY-VCH-Verlag von Detlef Stolten herausgegebenen 877-seitigen Buches erschien im Mai 2010 (siehe Abb. 6) und richtet sich an Wissenschaftler und Ingenieure, die bereits mit dem Thema Wasserstoff und Brennstoffzellen vertraut sind, jedoch ihr diesbezügliches Wissen substantiell erweitern möchten oder auch an berufliche Einsteiger mit naturwissenschaftlichem Vorwissen. Experten für Wasserstoffenergie aus Wirtschaft, Wissenschaft und der Politik stellen die sich stetig ausweitenden Technologien vor, die eine saubere, sichere und wirtschaftlich machbare Alternative zu nicht erneuerbaren Energien darstellen.

Ganz konkret beinhaltet dieser Band die ungekürzten Übersichtsbeiträge von 41 der insgesamt 43 Themenverantwortlichen der Konferenz. Die Beiträge behandeln die Einzelthemen von den Grundlagen, über Historie und Stand von Wissenschaft und Technik bis hin zu Empfehlungen für zukünftige Forschung und Entwicklung. Für einen auf die Konferenz bezogenen Themenrahmen liefert das Buch ein umfassendes Nachschlagewerk, das Neulingen zur Einführung und Fortgeschrittenen mit Lehrauftrag als Grundlage für die Ausgestaltung neuer Lehrveranstaltungen dienen wird.

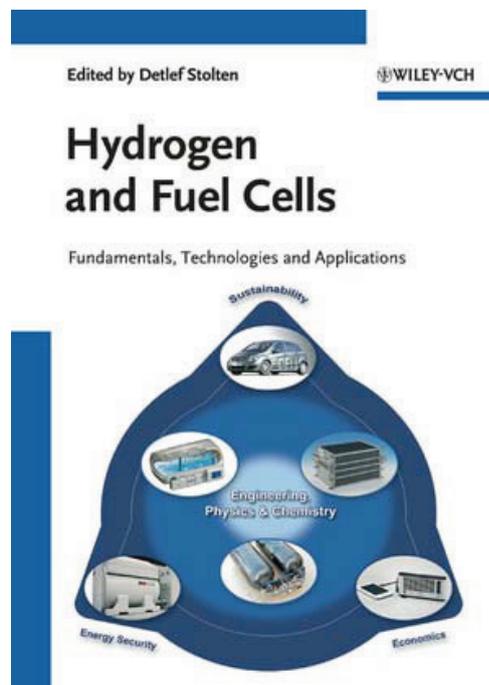


Abb. 6: Wiley-VCH Buch „Hydrogen and Fuel Cells“

1.4.2 Sonderheft „Wasserstoff im Energie-Fachmagazin „Brennstoff, Wärme, Kraft“

Als Ankündigung auf die 18. WHEC 2010 wurde der April-Ausgabe des Energie-Fachmagazins BWK ein Sonderteil „Wasserstoff“ mit neun themenbezogenen Artikeln beigelegt. Zum Kapitel „Zukünftige Energiespeicher im Automobil“ lieferten die Autoren Thomas Grube und Detlef Stolten einen zweiseitigen Beitrag mit dem Titel „Vorteile für den Wasserstoffeinsatz“. Darin werden die technischen Aspekte der An-Bord-Stromerzeugung dargestellt und Optionen für Brennstoffzellen und Batterien abgeleitet. Als Fazit wird festgehalten, dass die Vorteile der emissionsfreien Mobilität bei gleichzeitiger Erhaltung der heute akzeptierten Gebrauchswerte und Komfortstandards nur mit wasserstoffbetriebenen Brennstoffzellen-Fahrzeugen möglich sein werden. Bei Fahrzeugen im Einsatzbereich kleiner Reichweiten kann für reine Batterie-fahrzeuge ein Anwendungspotential festgestellt werden.

1.4.3 Tagungsband der Plenar-, Session- und Posster-Beiträge

Im Nachgang der 18. WHEC 2010 wurden von den meisten Referenten der einzelnen Veranstaltungsteile drei- bis sechsseitige Artikel entgegen genommen und zu Tagungsbänden bestehend aus sieben Einzelbänden kompiliert. Herausgeber der Tagungsbände in den Schriften des Forschungszentrums Jülich sind Detlef Stolten, Bernd Emonts und Thomas Grube. Tab. 4 gibt einen Überblick über die Inhalte und den Umfang der einzelnen Bände.

Volume	Inhalt	Seitenzahl	ISBN
78	Speeches and Plenary Talks	141	978-3-89336-658-3
78-1	Fuel Cell Basics Fuel Infrastructure	460	978-3-89336-651-4
78-2	Hydrogen Production Technologies - Part 1	400	978-3-89336-652-1
78-3	Hydrogen Production Technologies - Part 2	640	978-3-89336-653-8
78-4	Storage Systems Policy Perspectives, Initiatives and Cooperations	500	978-3-89336-654-5
78-5	Strategic Analysis Safety Issues Existing and Emerging Markets	530	978-3-89336-655-2
78-6	Stationary Applications Transportation Applications	330	978-3-89336-656-9

Tab. 4: Inhalte und Umfang der Tagungsbände

Die 19. WHEC 2012 wird vom 3. – 7. Juni 2012 in Toronto, Kanada stattfinden und durch Vertreter der Canadian Hydrogen and Fuel Cell Association sowie der Natural Resources Canada organisiert.

2 Aus- und Weiterbildung

Neben dem Forschungs- und Entwicklungsschwerpunkt der wissenschaftlichen Institute des Forschungszentrums Jülich haben die mit der Wissensvermehrung beschäftigten Einrichtungen den Auftrag zur Aus- und Weiterbildung. Dies drückt sich in Beiträgen zur Ausbildung von Studenten an Hochschulen sowie von Doktoranden für den wissenschaftlichen Nachwuchs und Fachkräften für Labore und die mathematisch-technische Softwareentwicklung im Rahmen fachspezifischer Stipendien aus. Darüber hinaus leisten die Mitarbeiter des IEK-3 zahlreiche auf die jeweiligen Zielgruppen angepasste Informations- und Weiterbildungsbeiträge.

2.1 Ausbildung an Hochschulen

Die Lehre an Hochschulen ist im IEK-3 ein fundamentaler, zusätzlicher Bestandteil der Tätigkeiten ausgewählter, wissenschaftlicher Mitarbeiter neben der Forschungs- und Entwicklungsarbeit. Im Rahmen des Jülicher Modells verfügt das IEK-3 über eine gemeinsame Berufung mit der RWTH Aachen, die durch Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten wahrgenommen wird. Zwei Berufungen mit der Fachhochschule Aachen Standort Jülich werden von Prof. Dipl.-Ing. Ludger Blum und Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters ausgeübt. Darüber hinaus besteht eine Lehrverpflichtung als Privatdozent mit der Universität Ulm, der PD Dr. rer. nat. Werner Lehnert nachkommt. Ein weiterer Lehrauftrag an der Fachhochschule Aachen Standort Jülich wird von Dipl.-Ing. (FH), Dipl.-Wirt.Ing. (FH) Thomas Grube erfüllt (siehe Abb. 7).



<http://www.rwth-aachen.de/>



<http://www.uni-ulm.de/>



FH AACHEN
UNIVERSITY OF APPLIED SCIENCES

<http://www.fh-aachen.de/>

Abb. 7: Hochschulen mit Lehrbeiträgen von IEK-3-Mitarbeitern

Das Spektrum der gelehrt Themen reicht von der Vermittlung naturwissenschaftlicher Grundlagen und theoretischer Modellierungs- und Simulationsmethoden über technisches Detailwissen bis hin zur Charakterisierung technischer Anwendungen. Der Gesamtumfang der semesterweise durchgeführten, doppelstündigen Lehrveranstaltungen beläuft sich auf sieben Vorlesungen und drei Übungen. Darüber hinaus wird in jedem Sommersemester ein halbtägiges Praktikum durchgeführt. Die Anzahl der pro Veranstaltung und Semester teilnehmenden Studierenden beläuft sich auf 10 bis 50. Zusätzlich leisten die Wissenschaftler des IEK-3 einen nennenswerten Beitrag zur Betreuung von Studien-, Diplom- und Doktorarbeiten. Bezogen auf den Berichtszeitraum 2009 und 2010 wurden 7 bzw. 8 Diplom-/Master- und 1 bzw. 5 Doktorarbeiten erfolgreich abgeschlossen.

2.1.1 Lehrveranstaltungen von Hochschullehrern mit Berufung

Der folgenden Tabelle können die wichtigsten Koordinaten der von Hochschullehrern des IEK-3 ausgerichteten Lehrveranstaltungen entnommen werden (siehe Tab. 5).

Name	Thema	Art/Umfang Semester		Hochschule
Prof. L. Blum	Brennstoffzellen – Die Zukunft der dezentralen Energieversorgung!?	V/2	WS	FH Aachen Standort Jülich
	Fuel Cells – The Future for Dispersed Power Supply!?	V/2	SS	
Prof. Dr. R. Peters	Basics and applications of chemical reaction theory – simulation of dynamic processes in energy systems with MATLAB/Simulink	V/2 Ü/2	WS	FH Aachen Standort Jülich
Prof. Dr. D. Stolten	Grundlagen und Technik der Brennstoffzellen	V/2 Ü/2	WS	RWTH Aachen

Tab. 5: Lehrveranstaltungen von Hochschullehrern mit Berufung

2.1.1.1 Brennstoffzellen – Die Zukunft der dezentralen Energieversorgung!?

Herr Prof. Ludger Blum vertritt an der FH Aachen, Standort Jülich, das Fachgebiet Brennstoffzellentechnik. Im Diplomstudiengang Energie- und Umwelttechnik sowie im Masterstudiengang Energy Systems wird im Wahlpflichtfach „Brennstoffzellen für stationäre Anwendungen“ Verständnis für Funktion, Aufbau, Verhalten, Vorteile und Nachteile der verschiedenen Brennstoffzellentypen vermittelt sowie die Fähigkeit zur verfahrenstechnischen Auslegung von Brennstoffzellensystemen. Die Lehrinhalte sind: Grundlagen der Brennstoffzelle, Brenngasbereitstellung, Wirkungsgrade, Funktion und Aufbau der verschiedenen Brennstoffzellentypen, Anforderungen an die Brennstoffzellenanlage, Verfahrenstechnik verschiedener Brennstoffzellenanlagen für unterschiedliche Anwendungen, Energiebilanzierung eines Brennstoffzellensystems und Stand der Anlagentechnik. Pro Semester nehmen durchschnittlich 12 Studenten das Veranstaltungsangebot wahr.

2.1.1.2 Basics and applications of chemical reaction theory – simulation of dynamic processes in energy systems with MATLAB/Simulink

Herr Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters vertritt an der FH Aachen, Standort Jülich, das Fachgebiet Energieverfahrenstechnik. Im Fach „Basics and Applications of Chemical Reaction Theory - Simulation of Dynamic Processes in Energy Systems with Matlab/Simulink“ werden die Grundlagen der chemischen Verfahrenstechnik und dynamische Simulationen von Reaktionsapparaten miteinander verknüpft. In Vorlesung und Übung werden als Beispiele die Brenngaserzeugung und die Brennstoffzellen-Systemtechnik für Brennstoffzellen-Antriebssysteme mit Methanol und für die Bordstromversorgung basierend auf Diesel herangezogen. Die Übung wird von Herrn Dipl.-Ing. (FH), Dipl.-Wirt.Ing. (FH) Thomas Grube betreut. Die

Veranstaltung ist für die 30 - 40 Studenten des Studiengangs Master of Science in Energy Systems verbindlich.

2.1.1.3 Grundlagen und Technik der Brennstoffzellen

Herr Prof.-Dr.-Ing. Detlef Stolten vertritt an der RWTH Aachen den Lehrstuhl für Brennstoffzellen. Die angebotenen Lehrveranstaltungen befassen sich mit der Umwandlung von regenerativen und fossilen Energieträgern zum Einsatz in Brennstoffzellen für den portablen, stationären und mobilen Bereich. Die verfahrens- und systemtechnischen Betrachtungen umfassen Hochtemperatur- und Niedertemperatur-Brennstoffzellen sowie die Erzeugung der brennstoffzellenspezifischen Brenngase. Diese Aspekte werden von physikalisch-chemischen Grundlagenbetrachtungen begleitet. Systemanalytische Studien der Energieverfahrenstechnik einschließlich Kostenabschätzungen dienen einer ganzheitlichen Betrachtung mit Blick auf eine zukünftige Markteinführung. Im Wintersemester 2009/2010 nahmen knapp 50 Studenten an den Vorlesungen und Übungen teil. Im Rahmen der bestehenden Kooperation mit dem Forschungszentrum Jülich bietet der Lehrstuhl Studierenden die Möglichkeit zur Mitarbeit durch die Anfertigung von Studien- und Diplomarbeiten sowie durch projektbezogene Tätigkeiten als wiss. Hilfskraft.

2.1.2 Lehrveranstaltungen von Lehrbeauftragten an Hochschulen

Der folgenden Tabelle können die wichtigsten Koordinaten der von Lehrbeauftragten des IEK-3 ausgerichteten Lehrveranstaltungen entnommen werden (siehe Tab. 6).

Name	Thema	Art/Umfang Semester		Hochschule
Th. Grube	Basics and Applications of Chemical Reaction Theory – Simulation of Dynamic Processes in Energy Systems with Matlab/Simulink (Beschreibung siehe 2.1.1.2)	Ü/2	WS	FH Aachen Standort Jülich
PD Dr. W. Lehnert	Brennstoffzellen – von den Grundlagen bis zur Anwendung	V/2	SS	Universität Ulm
	Elektrochemische Verfahrenstechnik	V/2	WS	

Tab. 6: Lehrveranstaltungen von Lehrbeauftragten an Hochschulen

2.1.2.1 Brennstoffzellen – von den Grundlagen bis zur Anwendung

Privatdozent Dr. Werner Lehnert hält an der Universität Ulm Vorlesungen. Die Vorlesung „Brennstoffzellen, von den Grundlagen bis zur Anwendung“ im Rahmen des interdisziplinären Studienschwerpunktes Energietechnik für Studenten der Natur- und Ingenieurwissenschaften, findet im Sommersemester statt. Nach einer Einführung in die verschiedenen Brennstoffzellentechnologien, werden elektrochemische, chemische und physikalische Grundlagen behandelt. Ein Schwerpunkt ist die Beschreibung moderner Untersuchungsmethoden, beispiels-

weise Synchrotron- und Neutronenradiographie bzw. -tomographie, zur störungsfreien in-situ Darstellung von flüssigem Wasser in Zellen und Stacks. Darüber hinaus werden Technologien zur Wasserstoffbereitstellung, komplette Brennstoffzellensysteme und deren Anwendung betrachtet. Die Vorlesung wird durchschnittlich von 30 Studenten besucht.

2.1.2.2 Elektrochemische Verfahrenstechnik

Mit der Vorlesung „Elektrochemische Verfahrenstechnik“ wendet sich PD Dr. Werner Lehnert an Chemiker im Hauptstudium an der Universität Ulm. Diese Vorlesung wird im Wintersemester von 6 – 10 Studenten besucht. Schwerpunkte der Vorlesung liegen auf den Gebieten der Stoff- und Wärmetransportprozesse innerhalb der elektrochemischen Verfahrenstechnik und der energetischen Bilanzierung von Reaktoren. Anschließend werden beispielhaft verschiedene elektrochemische Reaktoren und deren Einsatz im industriellen Umfeld behandelt.

2.2 Beiträge für die Information, Weiterbildung und Qualifizierung

Das Veranstaltungsspektrum mit Bezug auf die Aspekte Information und Weiterbildung interessierter Zielgruppen ist so vielfältig wie deren Bedarfe. Um den an ein Forschungsinstitut gestellten Anforderungen nach Bildungs- und Informationsangeboten gerecht zu werden, führt das IEK-3 eine Vielzahl unterschiedlicher Veranstaltungen durch, wirkt an externen Veranstaltungen auf verschiedenen Ebenen mit oder arbeitet mit anderen Stellen vorbereitend, koordinierend bzw. beratend zusammen.

2.2.1 Durchführung von Führungen, Seminaren und Praktika sowie von Informations- und Besichtigungsveranstaltungen

Die inhaltliche Ausrichtung von Veranstaltungen richtet sich nach den Erfordernissen und Wünschen der jeweiligen Zielgruppen. Dem zufolge reicht das Veranstaltungsspektrum von Informations- und Fortbildungsseminaren für Schüler, Studenten, Lehrer, Handwerker, Techniker, Ingenieure und Wissenschaftler bis hin zu Berufsfindungs- und Berufsorientierungspraktika für Schüler sowie Betriebs- und studienbegleitende Praktika für Studenten. Die Dauer der entsprechenden Veranstaltung kann bedarfsgerecht beginnend bei halbtägig auf mehrwöchig ausgedehnt werden. Die Tätigkeiten von Schülern oder Studenten während eines Praktikums können von der betreuten Begleitung des technisch-wissenschaftlichen Institutspersonals bis hin zur angeleiteten, selbständigen Bearbeitung ausgewählter praktischer Projekte reichen.

- Informations- und Besichtigungsveranstaltungen für Interessierte zum Thema „Jülicher FuE-Beiträge für die Brennstoffzellentechnik“. Im Jahresdurchschnitt werden 60 Führungen mit im Mittel 20 Personen pro Führung von zwei Doktoranden des IEK-3 betreut.
- Berufsorientierungs- und Schülerpraktika für Schülerinnen und Schüler (2009: 6 Schülerpraktikanten und 2010: 6 Schülerpraktikanten) aus Schulen der Region zum Thema „Fachberufe für die Brennstoffzellentechnik“. Die Betreuungsangebote decken ein breites, interdisziplinäres Themenspektrum ab und werden von den Schülerpraktikanten je nach Bedarf für eine oder zwei Wochen wahrgenommen.
- Seminar für leistungsmotivierte und leistungsstarke Schüler des Schulforums der RWE Deutschland im Rahmen des Projekts Begabtenförderung der Vereinigten Industrieverbände von Düren, Jülich, Euskirchen und Umgebung (VIV) zum Thema „Wasserstoff als zukünftiger Energieträger“ im Februar 2009
- Vorstellung des Themengebiets „Brennstoffzellen“ und Durchführung des Praktikumsversuches „H₂ als Energiespeicher“ im Rahmen der JuLab Energiewoche für Schülerinnen und Schüler der Region im März 2009
- Referat „Die Zusammenarbeit zwischen Wissenschaft und dem Sprachendienst im Forschungszentrum Jülich“ für Teilnehmer (Dolmetscher und Übersetzer) des Workshop „CAT Reloaded“ im Mai 2009
- Seminar für Schüler der Studierendenakademie ProMiNat zum Thema „Energie aus Brennstoffzellen“ im Rahmen des Jülicher Forschungspraktikums im Juni 2009.
- Vorstellung der FuE-Themen „Brennstoffzellen und Wasserstoff“ im Rahmen des Jülicher Tages der Neugier im September 2009
- Referat „Wasserstoff als Speichermedium für eine Energieversorgung auf regenerativer Basis“ für Teilnehmer am Studium Universale im April 2010

- Gemeinsam mit dem Jülicher Schülerlabor und der Zentralen Berufsausbildung wurde im August 2010 für zehn Schüler der Region ein Berufsfindungspraktikum durchgeführt. Eine Woche lang konnten interessierte Schülerpraktikanten in ihren Ferien verschiedene naturwissenschaftlich-technische Berufe rund um die Brennstoffzellen kennenlernen (siehe Abb. 8)



Abb. 8: Schülerpraktikanten bei Tätigkeiten rund um die Brennstoffzellen

2.2.2 Mitwirkung an externen Veranstaltungen

Mit Übersichtsvorträgen und ausgesuchten Fachbeiträgen zum Themengebiet „Brennstoffzellen und Wasserstoff“ beteiligten sich zahlreiche Wissenschaftler des IEK-3 an einer Vielzahl externer Veranstaltungen als eingeladene Fachreferenten und Experten.

Die in diesem Zusammenhang von IEK-3-Mitarbeitern erbrachten Leistungen mit größter Strahlkraft kamen der 18. Welt-Wasserstoffenergie Konferenz 2010 in Essen zugute (vgl.: 1.2). Mit zahlreichen Exponaten und ausgewählten Informationsmaterial beteiligte sich das IEK-3 neben anderen Akteuren am Bürgertag. In Zusammenarbeit mit dem Gymnasium Haus Overbach, dem ZBT und dem WBZU richtete das IEK-3 mit Präsentationen, einer Podiumsdiskussion sowie praktischen Tips für die Unterrichtsgestaltung den Schüler- und Lehrtag in Räumen der Messe Essen aus. Der Studententag bot interessierten Studenten die Möglichkeit, der Konferenz beizuwohnen und studienbegleitende Informationen einzuholen. Vor Vertretern aus NRW-Unternehmen wurde am Rande der WHEC zum Stand der „Bordstromversorgung mit Brennstoffzellen“ berichtet

- Workshop für Entwickler und Anwender von Brennstoffzellen zum Thema „Polymer Electrolyte Fuel Cell Introduction Cours (PEFC)“ im Rahmen der WBZU-Veranstaltungen in Ulm. Der Kurs wurde zwei Mal pro Jahr unter anderen mit Fachreferaten eines IEK-3-Wissenschaftlers zu den Detailthemen „Lifetime Aspects of PEFC“ und „Porous Media“ durchgeführt
- Beteiligung an der im Juni 2009 durchgeführten Vortragsreihe „Energie und Umwelt“ im Rahmen des Masterstudienganges der Fachhochschule Aachen, Campus Jülich mit dem Referat „Fuel Cells - Energy conversion processes for the different energy carriers“

- Fachtagung für Schulleiter und Fachlehrkräfte „Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie – eine Technologie der Zukunft“ mit 41 Teilnehmern aus Schulen der Emscher-Lippe-Region im Mai 2009
- Referat „Wasserstoff als Speichermedium für eine Energieversorgung auf regenerativer Basis“ für Teilnehmer der Tagung „Sonne und Wind im Vorrat“ der Bischöflichen Akademie des Bistums Aachen im November 2009
- Referat „Wasserstoff als Speichermedium für eine Energieversorgung auf regenerativer Basis“ für Schüler der Gesamtschule Bergheim im Juni 2010 vermittelt durch die Forschungsbörse der Wissenschaftsjahre
- Referat „Brennstoffzellen“ für Schülerteilnehmer an den SchulKinoWochen in Asbach bei Köln im November 2010 vermittelt durch die Forschungsbörse der Wissenschaftsjahre

2.3 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Der Aufbau, die Einrichtung und die Durchführung von Maßnahmen zur Aus- und Weiterbildung sowie zur Qualifizierung rund um das Thema „Brennstoffzellentechnik“ werden sowohl von der erzeugenden Industrie als auch von den relevanten Bildungseinrichtungen immer mehr in den Fokus des Interesses gerückt. Um diesem Anspruch gerecht zu werden, haben sich spezielle Initiativen gebildet, die mit ihrer fachspezifischen Kompetenz und bereits verfügbaren Angeboten für eine Zusammenarbeit zur Verfügung stehen.

- Mitarbeit in der Initiative Qualifizierung Brennstoffzelle (IQ-BZ) bei den Bemühungen um eine Umsetzung von Informations- und Qualifizierungsmaßnahmen für Brennstoffzellen- und Wasserstofftechnologien
- Angebot und Vertrieb der CD-ROM „Brennstoffzelle“ durch das Bundestechnologiezentrum für Elektro- und Informationstechnik e.V., Oldenburg und die Vogel Industrie Medien GmbH, Würzburg mit dem Ziel der Informationsweitergabe, Akzeptanzsteigerung und Weiterbildung
- Anpassung der bereitstehenden Lehrmodule an die Erfordernisse zu bedienender Kunden
- Unterstützung und Einbindung von Ausbildungs- und Kompetenzzentren (WBzU und RAG Bildung) bei der Planung und Durchführung gemeinsamer Schulungsveranstaltungen am Ort des jeweiligen Zentrums
- Unterstützung des jährlich von der EnergieAgentur.NRW durchgeführten Schülerwettbewerbs „Fuel Cell Box“ durch Begutachtung der theoretischen und praktischen Arbeitsergebnisse von 20 Schülerteams der finalen Wettbewerbsrunde (siehe Abb. 9)



Abb. 9: Überreichung der Urkunde an die siegreichen Schülerteams durch Frau Ministerin Thoben 2009 (links) und Herrn Staatssekretär Baganz 2010 (rechts)

Das Jülicher Schülerlabor hat sich zur Aufgabe gemacht, Schüler durch selbständiges Experimentieren auf anschauliche Weise auch in die Welt des Wasserstoffs und der Brennstoffzelle einzuführen. Dazu wurden fünf Versuche entwickelt und ausgearbeitet, mit denen die Schüler zur theoretischen und praktischen Lösung der folgenden Aufgaben animiert werden:

- Gewinnung von Wasserstoff aus Wasser
- Aufbau einer low-cost Brennstoffzelle

- Charakterisierung einer Brennstoffzelle
- Bestimmung des Wirkungsgrades eines Elektrolyseurs und einer Brennstoffzelle

Die betreute Durchführung der Experimente im dafür ausgestatteten Schülerlabor (siehe Abb. 10) erfordert von den Experimentatoren Kenntnisse aus dem Chemie- und Physikunterricht und wird von Schülerinnen und Schülern ab Jahrgangsstufe 10 mit einem Zeitaufwand von etwa 3 Doppelstunden angegangen.

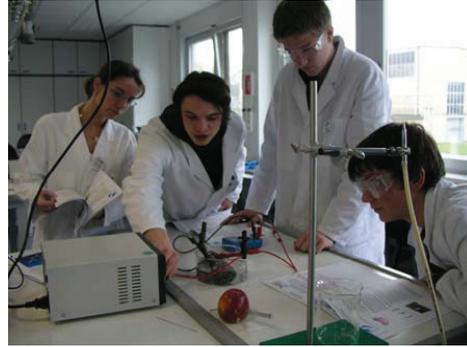
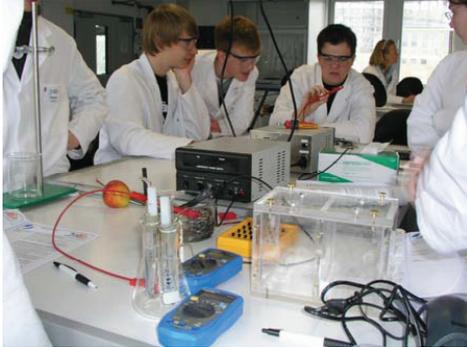


Abb. 10: Schüler experimentieren im Schülerlabor zum den Themen „Wasserstoff“ und „Brennstoffzelle“

3 Wissenschaftlich-technische Berichte

3.1 Direktmethanol-Brennstoffzellen

3.1.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

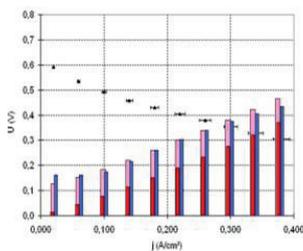
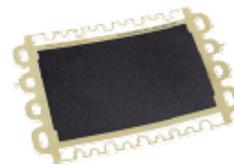
Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFCs) sind für kleine, mobile Anwendungen z. B. im Bereich des Material Handlings aufgrund der größeren Reichweite und der einfachen Betankung kurz- bis mittelfristig eine interessante Alternative zu den derzeit eingesetzten Bleibatterien. Das IEK-3 hat daher einen deutlichen Schwerpunkt auf die Erforschung und Entwicklung der DMFC-Technologie gesetzt.

Schwerpunkte der Arbeiten bilden die Erhöhung des Gesamtwirkungsgrades, der Leistungsdichte und der Haltbarkeit bei einer Reduzierung der Herstellkosten. Um diese Ziele zu erreichen ist die Identifikation von Degradationsmechanismen, die Reduzierung der Werkstoff- und Herstellkosten für Stackkomponenten und MEAs, die Erhöhung der Qualität und die Beherrschung einer hochintegrierten Herstellungstechnik notwendig. Die Herausforderung im Rahmen der Anwendung liegt in der optimalen Einbindung der Brennstoffzelle in Energie-(Hybrid)-Systeme und der Realisierung eines geschlossenen Wasserhaushalts im Systembetrieb. Wichtige flankierende Aktivitäten fallen in den Bereich der Analytik im Rahmen von Untersuchungen zu Struktur-Wirkungsbeziehungen von Funktionsschichten und der ortsaufgelösten elektro- und physikochemischen Charakterisierung von Brennstoffzellenkomponenten.

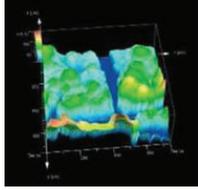
3.1.1.1 MEA-Entwicklung und Herstellung

Vorraussetzung für den Markteintritt von DMFCs im Bereich portabler und kleiner mobiler Anwendungen ist neben einer hohen Leistungsdichte und ausreichenden Langzeitstabilität auch ein mit bestehenden Techniken vergleichbares Kostenniveau. Die spezifische elektrische Leistung der MEA hat einen direkten Einfluss auf die Größe des Brennstoffzellenstacks und somit auf die Leistungsdichte und die Kosten des Gesamtsystems. Kostentreiber sind insbesondere die Edelmetallkatalysatoren für die Elektrokatalyse in den Elektroden.

So konzentrieren sich die Arbeiten im Bereich der Weiterentwicklung von MEA-Komponenten auf die Optimierung des Medien- transports und der elektrischen Eigenschaften in den einzelnen Funktionsschichten, um damit die Leistung und den Wirkungsgrad der MEAs zu verbessern und einen stabilen DMFC-Betrieb unter Last auch bei niedrigen Luftvolumenströmen (und ausgeglichenem Wärmehaushalt) zu realisieren.



Diese Arbeiten werden durch elektrochemische und strukturelle Untersuchungen unterstützt. Dabei müssen insbesondere in der elektrochemischen Charakterisierung einer MEA die Zusammenhänge zwischen den Eingangsgrößen, wie z.B. den Betriebsparametern, und den Beobachtungsgrößen, wie z.B. die Zellspannung, analysiert und das Systemverhalten beschrieben werden. Dabei muss die Charakterisierung das Zusammenspiel der in der MEA ablaufenden physikalisch-chemischen Prozesse, wie elektrochemische Reaktion, Methanolpermeation und Wasserverdampfung, berücksichtigen und die Zusammenhänge mit den Betriebsparametern mathematisch beschreiben können.



Die Entwicklung, der Aufbau und die Anwendung spezieller Messmethoden zur Strukturanalyse von Komponenten der MEA sowie zur Charakterisierung von Stacks und Einzelzellen wird besondere Aufmerksamkeit geschenkt. Hierbei steht die Aufklärung von Alterungseffekten der MEA an erster Stelle.

Im Bereich der Weiterentwicklung von Herstellverfahren für Komponenten der MEA konzentrieren sich die Arbeiten auf die kontinuierliche, maschinelle Herstellung von Gasdiffusionselektroden (GDEs) und katalysatorbeschichteten Membranen (CCMs). Schwerpunkt bildet hier die Entwicklung von geeigneten Katalysatorpasten für die Applikation der Katalysatorschicht auf unterschiedliche Substrate mittels unterschiedlicher Beschichtungstechniken im Technikumsmaßstab.



3.1.1.2 Stack- und Systementwicklung



Die DMFC-Stackentwicklung arbeitet an der Schnittstelle von MEA-Entwicklung, MEA-Charakterisierung und Systemtechnik. Dabei liegt ein wichtiges Arbeitsfeld in der Kommunikation und im Abgleich der Entwicklungsziele unter den unterschiedlichen Arbeitsgebieten. Die praktischen Arbeiten gliedern sich in die Arbeitsfelder: Auslegung, Konstruktion, Fertigung, Montage und Test mit dem Ziel langzeitstabile, leistungsfähige DMFC-Stacks zu entwickeln, die mit geringen Luftüberschüssen betrieben werden können.

In der Systementwicklung stehen die Auslegung und der Bau effizienter Brennstoffzellenenergiesysteme auf der Basis von DMFCs im Vordergrund. Dies erfordert detaillierte Kenntnisse von der Zelle bis zur gesamten Anlage, was eine Herausforderung an die Entwicklung darstellt. Schwerpunkte hierbei sind die Entwicklung neuer Anlagenkonzepte, deren Test und Bewertung, die Entwicklung von Systemkomponenten zusammen mit der Industrie sowie Test und Entwicklung von Steuer- und Regelungskonzepten.



3.1.1.3 Modellierung

Ziel der DMFC-Modellierung ist das grundlegende Verständnis der physikalisch-chemischen Prozesse auf verschiedenen Zeit- und Längenskalen einerseits, und der Einsatz dieser Erkenntnisse für die Weiterentwicklung der DMFC andererseits. Die numerischen und analytischen Modelle für Zellen und Stacks basieren auf grundlegenden fluiddynamischen und elektrochemischen Gesetzen. Ziel der Modellbildung ist es, das Verständnis der physikalischen Vorgänge im Zell- und Stackbetrieb zu vergrößern und Maßnahmen zur Optimierung zu testen.

3.1.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.1.2.1 MEA-Entwicklung

Membran-Elektroden-Einheiten (MEAs) bestehen aus mehreren Schichten, die ihre jeweilige Aufgabe optimal erfüllen müssen und darüber hinaus auch in Wechselwirkung miteinander funktionieren müssen. Ziel der Entwicklung ist zum einen eine hohe Leistungsdichte bei vergleichbar hoher Einzelzellspannung, zum anderen ein stabiles Spannungsniveau unter Last, insbesondere auch bei niedrigen Luftvolumenströmen, damit das DMFC-System bis zu 35 °C Umgebungstemperatur wasserautark betrieben werden kann.

Gasdiffusionsschichten

Bislang wurden Gasdiffusionsschichten auf Basis von Kohlenstoffgewebe verwendet, das sehr gute Diffusionseigenschaften hat, jedoch sehr flexibel ist und dadurch wenig zur mechanischen Stabilität der Membran-Elektroden-Einheit beiträgt. Durch Quellen der Membran im Brennstoffzellenbetrieb besteht daher die Gefahr, dass sich die MEA verformt und in die Kanäle der Bipolarplatten eindringt, die die Elektroden mit Luft oder Methanol versorgen (siehe Abb. 11). Durch einen dadurch verringerten Kanalquerschnitt und einen damit verbundenen höheren Druckverlust wird der betroffene Bereich nicht optimal mit Reaktanden versorgt. Um diesen Effekt abzumildern müssen sehr tiefe Kanäle verwendet werden, was zu erhöhtem Bauvolumen des Stacks und erhöhten Materialkosten führt.

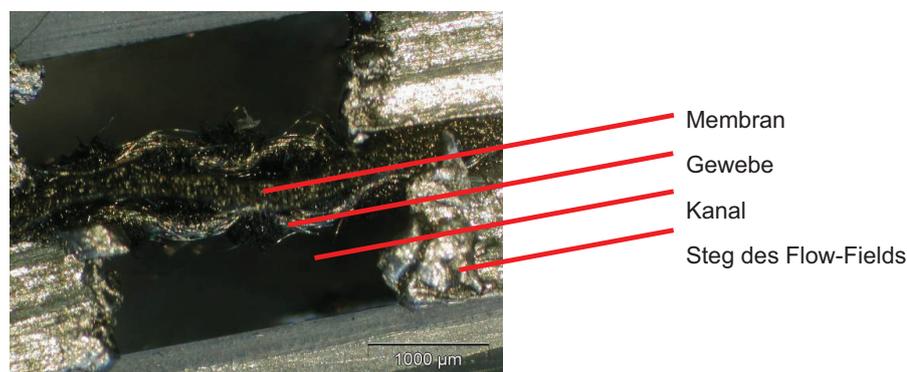


Abb. 11: Verformung einer MEA mit Gasdiffusionsschichten aus Gewebe: MEA ist im Kanalbereich deutlich dicker als im Bereich der Stege und bildet eine Welle aus

Daher wurde alternativ die Herstellung von Gasdiffusionselektroden auf der Basis von Kohlenstoffvlies-Substraten entwickelt. Wie im IEF-3 Report 2009 gezeigt wurde, kann unter Verwendung von Kohlenstoffvlies als Substrat eine vergleichbare Zellspannung wie bei den bislang verwendeten Gewebematerialien im gesamten Stromdichtebereich erzielt werden. Gleichzeitig wird die MEA dimensionsstabiler, so dass ein Quellen der MEA in den Kanalbereich mit daraus resultierender Kanalquerschnittsverengung und Unterversorgung des entsprechenden Bereichs reduziert werden kann.

Jedoch konnten diese MEAs, ähnlich wie die auf Kohlenstoffgewebe basierten MEAs, nicht stabil mit den für den wasserautarken Betrieb geforderten geringen Luftvolumenströmen (10 ml/(cm²min)) im realen System betrieben werden.

Von der Firma Freudenberg FCCT stehen Vliesmaterialien zur Verfügung, die sich dadurch unterscheiden, dass bei einigen das Vlies hydrophob ausgerüstet ist, andere sind mit einer Microlayer beschichtet und manche haben eine hydrophobe Ausrüstung und eine Microlayer. Insbesondere die Vliesmaterialien mit Microlayer sind sehr viel dichter als die ohne Microlayer, was sich in einer Luftdurchlässigkeit nach Gurley von ca. 10-50 µm/Pas (mit Microlayer) oder 500-1.000 µm/Pas (ohne Microlayer) äußert. Im Rahmen der Entwicklung von MEAs auf Basis von Vlies wurde untersucht, welche Kombination am Besten geeignet ist. Insbesondere bei der Anode sind hier die unterschiedlichen Anforderungen einer optimalen Versorgung der Anode mit Methanol (begünstigt durch eine hohe Durchlässigkeit des Vliesmaterials) und einer möglichst geringen Wasserdurchlässigkeit durch die MEA (begünstigt durch ein dichtes Vliesmaterial) in Einklang zu bringen.

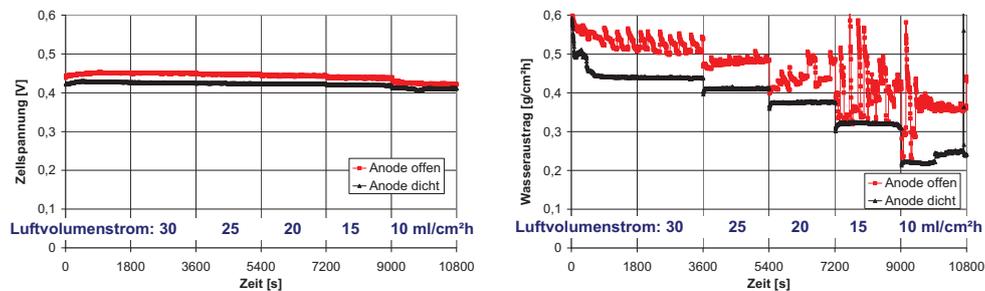


Abb. 12: Vergleich von Vlies-basierten MEAs mit dichtem (mit Microlayer) und offenporigem (ohne Microlayer) Anodensubstrat. Zellspannung (links) und Wasseraustrag (rechts) bei 0,14 A/cm². Messung bei 70°C, 0,75 M Methanollösung

In Abb. 12 sind die Zellspannungen und Wasserausträge auf der Kathodenseite für zwei unterschiedliche Anodensubstrate gegenübergestellt. Es ist zu erkennen, dass die Zellspannung bei allen Luftvolumenströmen höher ist, wenn auf der Anode ein offeneres Vliesmaterial (ohne Microlayer) eingesetzt wird. Der Wasseraustrag ist jedoch geringer, wenn ein dichteres Vlies (mit Microlayer) als Anodensubstrat verwendet wird.

In Short-Stack-Messungen in der für die Anwendung Material Handling erforderlichen Einzelzellfläche zeigten beide Anodensubstrate etwa das gleiche Verhalten wie in den Einzelzell-Messungen. Es konnten beide Varianten mit kathodischen Volumenströmen von 10 ml/(cm²min) stabil betrieben werden, jedoch ging aus den Messungen hervor, dass die MEAs mit dichten Anoden in Bezug auf Leistungsdichte und Wasseraustrag geringfügig besser funktionieren als die MEAs mit offenen Anoden, d.h. ohne Microlayer.

Einfluss der Katalysatorbelegung auf die Zelleistung

Der teuerste Bestandteil der MEAs ist das als Katalysator verwendete Edelmetall Platin in der Kathode und die Platin-Ruthenium-Legierung in der Anode. Daher ist es wichtig zu wissen, welche Katalysatormenge erforderlich ist, um die optimale Leistung der Brennstoffzelle zu erzielen. Hierzu wurden Elektroden mit unterschiedlicher Edelmetallbelegung hergestellt und

bei unterschiedlichen Stromdichten die Zellspannung in der MEA gemessen. Die Anoden wurden mit auf Kohlenstoff geträgertem Katalysator (72 % PtRu auf C) auf imprägniertem Kohlenstoffvlies ohne Microlayer aufgebracht. In Abb. 13. sind die Zellspannungen für MEAs mit unterschiedlicher anodischer Edelmetallbelegung bei einer Stromdichte von $0,1 \text{ A/cm}^2$ dargestellt. Bis zu $2,5 \text{ mg/cm}^2$ ist ein deutlicher Anstieg der Zellspannung mit der Edelmetallbelegung zu erkennen, aber auch darüber steigt die Zellspannung noch leicht an. Ein ähnlicher Verlauf wird auch bei höherer Stromdichte beobachtet.

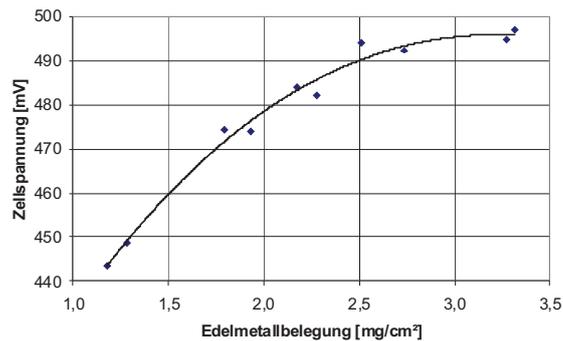


Abb. 13: Einfluss der Anodenbelegung auf die Zellspannung bei $0,1 \text{ A/cm}^2$. Kathodenbelegung: $2,1 \text{ mg/cm}^2$ Platin, Messung bei $70 \text{ }^\circ\text{C}$, 1 M Methanollösung, Luftvolumenstrom $37 \text{ ml}/(\text{cm}^2\text{min})$. Die Linie dient nur zur Visualisierung des Trends

Die Versuchsserie zeigt, dass eine Erhöhung der Edelmetallbelegung auf der Anode über die bislang üblichen $2,0 \text{ mg/cm}^2$ hinaus bis auf etwa $3,0 \text{ mg/cm}^2$ mit den derzeit verwendeten Materialien (72 % PtRu auf C) zu einer Erhöhung der Zellspannung und damit zu einer Erhöhung des Wirkungsgrades führt.

Einsatz von Hydrocarbon-Membranen zur Verbesserung des Methanolnutzungsgrades

Die am IEK-3 aufgebauten DMFC-Systeme (siehe Abschnitt 3.1.2.4) werden bei moderaten Stromdichten ($j < 150 \text{ mA/cm}^2$) betrieben, um hohe Zellwirkungsgrade zu erreichen und Alterungseffekte zu minimieren. Unter diesen Bedingungen werden derzeit nur 60 bis 70 % des eingesetzten Brennstoffs Methanol für die Stromerzeugung genutzt, der übrige Teil gelangt durch Diffusion und Mitführung mit dem Protonenstrom durch die derzeit eingesetzte perfluorierte Sulfonsäure-Membran (Nafion115) auf die Kathode und wird dort oxidiert.

Um den Brennstoffnutzungsgrad deutlich zu steigern, werden seit 2009 bzw. 2010 in zwei öffentlich geförderten Projekten MEAs auf Basis neuartiger sulfonierter Polyarylsulfone (Firma FuMA-Tech) sowie sulfonierter Polyaryletherethernitrile (National Research Council Canada) als fluorfreie, sogenannte Hydrocarbon-Membranen entwickelt. Durch sorgsame Einstellung des Gleichgewichtes aus chemischem Aufbau (intermolekulare Wechselwirkungen, Quellungsgrad) und Sulfonierungsgrad (mögliche Ladungsträgerkonzentration) können oxidativ und mechanisch stabile Membranen mit hoher Protonenleitfähigkeit bei niedrigem Methanol- und Wasserübertritt von Anode zur Kathode hergestellt werden.

Wie Abb. 14 links zeigt, sind hierbei binnen kurzer Zeit MEAs aufgebaut worden, die bei einer Stromdichte von 140 mA/cm^2 und bei den für den DMFC-Systembetrieb angestrebten gerin-

gen kathodischen Luftvolumenströmen (von 10 ml/(cm²min) oder darunter) einen kathodischen Wasseraustrag zeigen, der nur halb so groß ist wie der einer Nafion-basierten Referenz-MEA. Unterschiede im leicht zu messenden Wasseraustrag können als guter Indikator für Änderungen in der Methanolpermeation angesehen werden, da alle derzeit verwendeten Membranen nicht oder nur wenig selektiv gegenüber Wasser und Methanol sind. Allerdings ist in diesen neuen Hydrocarbon-basierten MEAs zum jetzigen Zeitpunkt die Zellspannung bei den in der Abb. 14 gezeigten Bedingungen noch ca. 30 % niedriger als bei herkömmlichen MEAs.

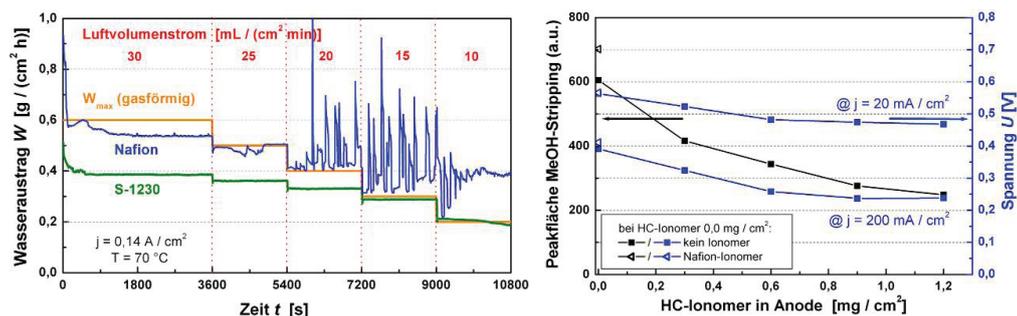


Abb. 14: Kathodischer Wasseraustrag aus MEAs mit einer Nafion 115- und einer Hydrocarbon-Membran (sulfoniertes Polyarylsulfon, Typ S-1230) bei einer Stromdichte von $j = 140 \text{ mA} / \text{cm}^2$ (0,5-molare wässrige Methanollösung/Luft, $T = 70 \text{ }^\circ\text{C}$, links); mittels Zyklovoltmetrie (Methanolstripping) bestimmte aktive Katalysatoroberflächen der Anode und DMFC-Zellspannung (1,0-molare wässrige Methanollösung/Luft, $T = 70 \text{ }^\circ\text{C}$) bei unterschiedlichen Gehalten an Hydrocarbon-(=HC-)Ionomer in der anodischen Katalysatorschicht (rechts)

Wenn bei der Katalysatorschichtherstellung Nafion als protonenleitende Phase auch in der Anode durch die Hydrocarbon-Materialien ersetzt wird, führt dies zu deutlichen Einbußen bei der Zelleistung. Bestimmungen der aktiven Katalysatoroberfläche legen nahe, dass sich die Hydrocarbon-Materialien bei der gegenwärtigen Herstellungsweise der Elektroden so am Katalysator abscheiden, dass sie den Antransport von Brennstoff an die Platin-Ruthenium-Partikel behindern (siehe Abb. 14, rechts).

Die derzeit noch niedrigere Leistung der neuartigen MEAs im Vergleich zum Stand der Technik kann zu einem entscheidenden Anteil darauf zurückgeführt werden, dass trotz hoher Membranleitfähigkeiten in diesen MEAs vergleichsweise hohe Zellwiderstände gemessen werden. Eine Ursache hierfür liegt darin, dass die MEAs derzeit noch über Heißverpressen zwischen Gasdiffusionselektroden und der Membran assembliert werden. Während dieses Heißpressen bei Einsatz von Nafion als Membranmaterial zu einem innigen Verbund von Elektrode und Elektrolyt an der Grenzfläche führt (u.a. durch Fließen von Teilen des Membranmaterials in die Risse der Katalysatorschichten, Abb. 15 links), gelingt dies mit den Hydrocarbon-Polymeren nicht, da sie zumeist keinen für ein Heißverpressen zugänglichen Glaspunkt unterhalb $250 \text{ }^\circ\text{C}$ haben (bei dem in Abb. 15 rechts in den Rissen der Katalysatorschicht erkennbaren Material handelt es sich um Einbettmasse aus der Probenpräparation für die Mikroskopie - die Grenzfläche zur Membran ist klar erkennbar). Aus diesem Grund konzentriert sich die Elektrodenherstellung mittelfristig auf die Entwicklung einer Membrandirektbeschichtung.

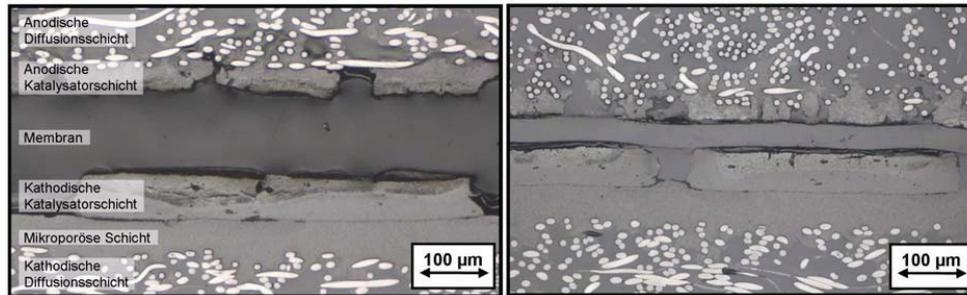


Abb. 15: Mikroskopaufnahmen von Querschnitten durch MEAs mit unterschiedlichen Membranen (links: Nafion 115, rechts sulfoniertes Polyaryletherethernitril) nach einem Heißverpressen der Membranen mit Gasdiffusionselektroden bei 130 °C

Neben einer Optimierung der Elektroden durch experimentelle Parametervariation wird verstärkt an der Anpassung elektrochemischer Betriebsparameter sowie am Einsatz und der Weiterentwicklung von speziellen Charakterisierungsmethoden gearbeitet. So werden zukünftig u.a. die MEA-Aktivierungsprozeduren angepasst, die Methanolpermeation von MEAs im Betrieb zumindest näherungsweise bestimmt, Impedanzmessungen zur Aufklärung der unterschiedlichen Widerstandsbeiträge in der Zelle durchgeführt und neuartige Zug-Scher-Versuche eingesetzt, um die Stärke des MEA-Verbundes zu quantifizieren.

Anstatt einer Optimierung der MEA-Leistung unter abstrakten Laborbedingungen ist es das Ziel, möglichst frühzeitig abzuleiten, wie sich der Einsatz dieser Hydrocarbon-Membranen auf die sich einstellenden Betriebszustände und Wirkungsgradbeiträge eines autotherm betriebenen DMFC-Systems der kW-Klasse auswirkt.

Elektrochemische MEA-Charakterisierung

Ziel der elektrochemischen MEA-Charakterisierung ist es, die MEA-Entwicklung bei der Suche nach neuen Materialien und neuen Herstellungsverfahren für die MEA-Herstellung zu unterstützen, um die Anforderungen der DMFC-Stack- und Systementwicklung besser erfüllen zu können. Wenn neue Verfahren oder neue Materialien für den Bau von MEAs verwendet werden sollen, dann erfolgen die Testmessungen zunächst mit kleinen Proben, die anschließend in Testständen elektrochemisch charakterisiert werden. Bei diesen Messungen besteht das Problem, dass aus den Teststandmessdaten nicht direkt auf das Verhalten der MEA in einem DMFC-System geschlossen werden kann, sondern die Daten noch mathematisch aufbereitet werden müssen. Die hierfür benötigten Verfahren wurden in der Vergangenheit entwickelt und erfolgreich erprobt. Eine wichtige Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Verfahren ist, dass die MEAs bei den Untersuchungen stabile Betriebszustände einnehmen.

In der Vergangenheit zeigte sich nun immer häufiger, dass sich bei den meisten der untersuchten MEAs in den Testständen die Betriebszustände nicht stabilisieren und die weitere Datenaufbereitung somit nicht möglich ist. Davon betroffen ist insbesondere der Wasserdurchtritt durch die MEA, der, wie in Abb. 16 gezeigt, bei kleinen Luftvolumenströmen enorme Schwankungen aufweist. Das Signalrauschen ist häufig so groß, dass eine Auswertung nicht möglich ist.

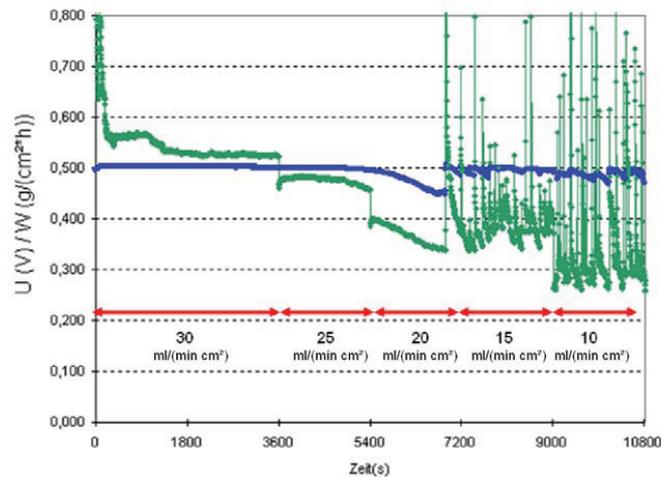


Abb. 16: Darstellung der Zellspannung (blau) und des Wasserdurchtrittes (grün) durch die MEA bei unterschiedlichen Luftvolumenströmen von 30 bis 10 ml/(min cm²) (rote Pfeile). Betriebsbedingungen: Zelltemperatur = 70°C, Stromdichte = 0,1 A/cm²

Da bisher die Ursache für dieses Verhalten nicht eindeutig identifiziert werden konnte, wurde in weiteren Analysen der Wasserdurchtritt durch MEAs untersucht.

Der Wasserhaushalt in der MEA ist eine komplizierte Funktion der Betriebsparameter und hängt zudem von den elektrochemischen Prozessen und der Methanolpermeation ab. Da die gleichzeitige Untersuchung von vielen Prozessen aufgrund der unbekanntenen Kopplungen zwischen den Prozessen mit großen Schwierigkeiten verbunden ist, wurde für die Analysen eine neue Methode entwickelt. Hierbei wird nur der Wasserdurchtritt durch eine Probe, bestehend aus einer Gasdiffusionsschicht (GDL) und einer Membran, in Abhängigkeit von der Temperatur T und dem Luftvolumenstrom in der Kathode (VSK) gemessen. Aus der Analyse der hierbei gewonnenen Daten sind Rückschlüsse auf den diffusiven Wassertransport durch eine MEA möglich, weil hierfür maßgeblich die GDL an der Anode und die Elektrolytmembran verantwortlich sind.

Die Analyse einer GDL mit einer Nafion-115-Membran in einer Testzelle liefert bei einer Variation der Zelltemperatur und des Luftvolumenstromes mathematisch gesehen ein Skalarfeld auf einem zweidimensionalen Raum, wie in Abb. 17 dargestellt. Ziel der Untersuchungen ist es, unter einer Auswahl von GDLs diejenige zu finden, die den geringsten Wasserdurchtritt aufweist. Die so gewählte GDL sollte dann auch in der MEA weniger Wasser von der Anode zur Kathode hindurchtreten lassen. Der für diese Suche notwendige Vergleich der Messergebnisse erweist sich über die Darstellung wie in Abb. 17 als sehr schwierig, da ein Vergleich für jeden Betriebsparameterpunkt vorgenommen werden kann und sich die dargestellte Fläche in bestimmten Grenzen für unterschiedliche Proben krümmen kann. Aus diesem Grund wurde ein Verfahren entwickelt, mit dem über mathematische Routinen aus den Messdaten sechs charakteristische Größen ermittelt werden, die dann für den Vergleich der Proben herangezogen werden können.

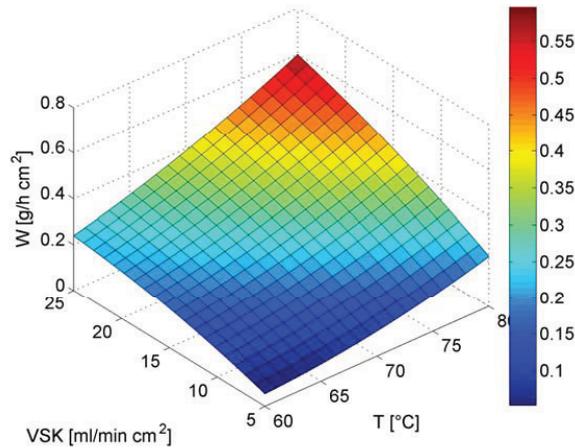


Abb. 17: Darstellung des Wasserdurchtrittes W durch eine GDL/Nafion-115-Membran-Probe als Funktion der Zelltemperatur T und des Luftvolumenstromes VSK

Im Berichtszeitraum wurde der für die Untersuchungen benötigte Teststand aufgebaut und die für die Bestimmung der charakteristischen Größen benötigten mathematischen Verfahren in die Auswertekonzepte integriert. Das in Abb. 17 dargestellte Feld wurde über den für diese Probe aus den Messdaten ermittelten charakteristischen Größen berechnet. Mit Hilfe dieser Größen kann beispielsweise leicht das Volumen unter der Fläche in Abb. 17 berechnet und daraus ein Mittelwert über dem untersuchten Betriebsparameterintervall bestimmt werden. Die Messwerte der Versuche lassen sich so auf eine einzige Kenngröße reduzieren und der Vergleich von vielen Proben wird wesentlich einfacher. In zukünftigen Messreihen sollen diese Verfahren für die systematische Analyse des Wasserdurchtrittes für GDLs angewendet werden.

3.1.2.2 MEA-Herstellung

Seit 2008 verfügt das IEK-3 über eine neue Beschichtungsanlage (Linecoater). Bis 2008 wurden Gasdiffusionsschichten und Gasdiffusionselektroden für die Direkt-Methanol-Brennstoffzelle auf der Vorgängeranlage Deskcoater hergestellt. Der Deskcoater wurde als kompakte Anlage, auf der eine Vielzahl unterschiedlicher Prozessschritte durchgeführt werden können, konzipiert. Diese waren jedoch durch den starren Einbau in einer bestimmten Reihenfolge für den Forschungsbetrieb nicht hinreichend flexibel. So konnte bei jedem Maschinendurchlauf nur ein Bearbeitungsschritt ausgeführt werden. Danach musste das Material zurückgefahren werden, um den nächsten Bearbeitungsschritt ausführen zu können. Dazu musste das Material jedes Mal durch die gesamte Maschine gefahren werden, was in einigen Fällen zu Qualitätseinbußen der applizierten Schichten führte. Als Alternative wurde 2008 ein flexibler Linecoater installiert, mit dem durch Zusammenklicken der entsprechenden Module ein Beschichtungsprozess in einem Durchlauf durchgeführt werden kann.

Nach der Inbetriebnahme der neuen Beschichtungsanlage Linecoater (Click and Coat) war es das erste Ziel, die auf der Vorgängeranlage Deskcoater entwickelten Beschichtungsverfahren auf die neue Beschichtungsanlage mit den gleichen Materialien zu übertragen. In Abb. 18

sind Uj-Kurven von MEAs, deren Elektroden mit dem Deskcoater und von MEAs, deren Elektroden mit dem Linecoater hergestellt worden sind, dargestellt.

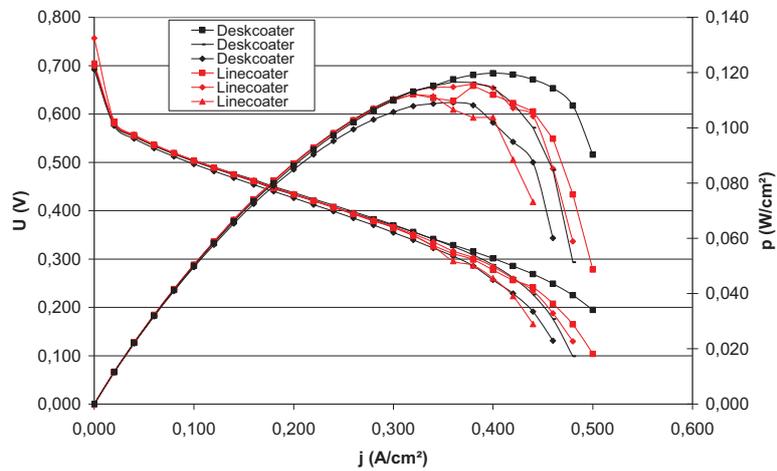


Abb. 18: Strom-Spannungskennlinien von MEAs mit Deskcoater-Elektroden (schwarz) und Linecoater-Elektroden (rot)

Die Ergebnisse der elektrochemischen Charakterisierung zeigen, dass die MEAs, deren Elektroden mit dem Linecoater hergestellt worden sind, im Betrieb mit hohen Luftvolumenströmen an der Kathode im Rahmen der zurzeit möglichen Reproduzierbarkeit eine annähernd gleiche Strom-Spannungs-Kennlinie aufweisen wie die MEAs, deren Elektroden mit dem Deskcoater produziert worden sind. Die Herstellung der Gasdiffusionselektroden konnte somit von der Vorgängeranlage Deskcoater auf die neue Beschichtungsanlage Linecoater übertragen werden.

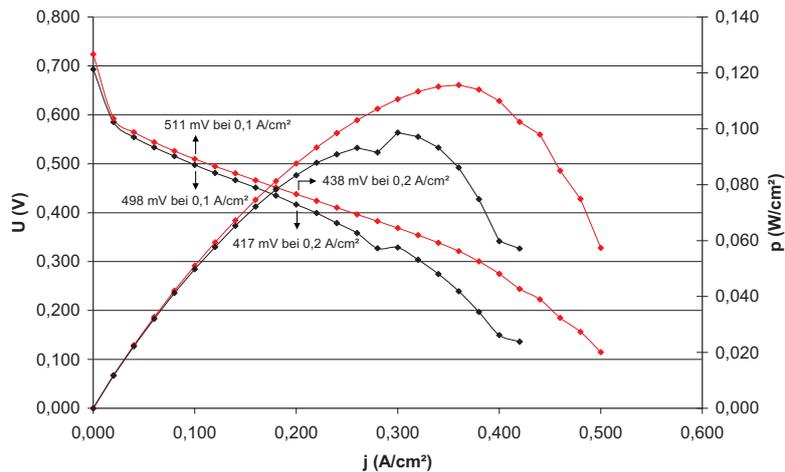


Abb. 19: Strom-Spannungskennlinien von produktionsgleichen MEAs

Bei den zahlreich untersuchten MEAs, die sowohl auf Gewebe als auch auf Vlies hergestellt worden sind, wurde beobachtet, dass es immer wieder zu deutlichen Unterschieden in den Kennlinien kommt. In Abb. 19 sind Uj-Kennlinien von zwei produktionsgleichen MEAs, die unter identischen Bedingungen elektrochemisch charakterisiert worden sind, dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, dass Schwankungen von bis zu 13 mV bei 0,1 A/cm² und Schwankungen von bis zu 21 mV bei 0,2 A/cm² auftreten. Da die Untersuchungsergebnisse den Verdacht nahe legen, dass die auftretenden Probleme mit Inhomogenitäten in den Elektroden zusammenhängen, wurde der Herstellungsprozess der Elektroden untersucht.

Als mögliche Ursache für die Unterschiede in den Kennlinien wurden Schwankungen in der Katalysatorbelegung angenommen, die durch den verwendeten Rakelprozess entstehen können. Der Rakelprozess ermöglicht eine einfache und kostengünstige Produktion von Elektroden, hat aber den Nachteil, dass Unebenheiten im Substrat ausgeglichen werden und so Belegungsschwankungen entstehen können.

Abb. 20 verdeutlicht, welchen Einfluss die Unebenheiten im Substrat auf die Katalysatorbelegung haben. Um den Einfluss der Homogenität des Substrates auf die Katalysatorbelegung zu bestimmen, wurden die Substratdicke und das Flächengewicht untersucht. Für die Berechnung der Katalysatorbelegung wird zunächst das Flächengewicht des zu beschichtenden Substrates bestimmt und nach dem Beschichtungsprozess das Flächengewicht des beschichteten Substrates ermittelt (siehe Abb. 21).

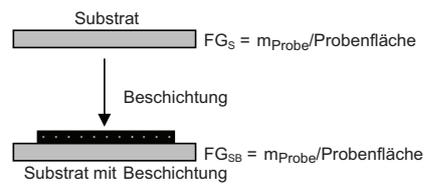
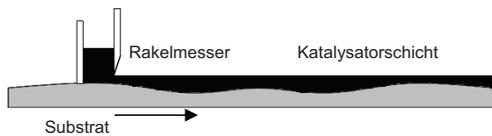


Abb. 20: Einfluss der Unebenheiten im Substrat auf die Katalysatorbelegung

Abb. 21: Bestimmung des Flächengewichtes

Die Katalysatorbelegung wird durch die Differenz der beiden Größen und durch die Multiplikation mit dem Edelmetallanteil ermittelt. Die Differenzbildung bewirkt, dass sich die Ungenauigkeiten des Substratflächengewichtes auf die Katalysatorbelegung übertragen.

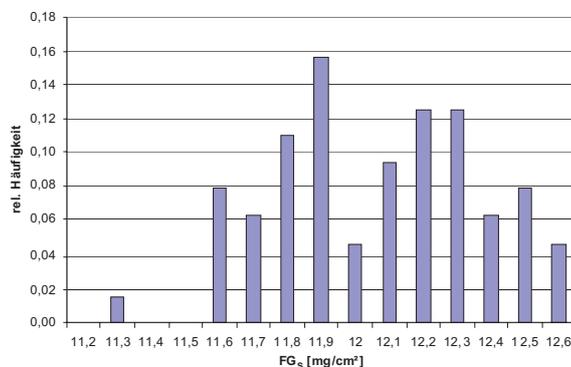


Abb. 22: Relative Häufigkeitsverteilung des Flächengewichtes

Aus den Messwerten wurde eine Häufigkeitsverteilung berechnet (siehe Abb. 22). Die statistische Analyse zeigt, dass eine Normalverteilung angenommen werden kann und als Erwartungswert für das Flächengewicht ergibt sich ein Wert von $11,8 \text{ mg/cm}^2 \pm 0,3 \text{ mg/cm}^2$. Die Berechnung der Auswirkungen dieser Schwankungen ergibt eine erwartete Verteilung für die Katalysatorbelegung von $2,0 \text{ mg/cm}^2 \pm 0,3 \text{ mg/cm}^2$.

Um die Frage zu beantworten, ob diese Ergebnisse die beobachteten Schwankungen in den Uj-Kennlinien erklären können, wurde in einer weiteren Messreihe die Abhängigkeit der Zellspannung von der Katalysatorbelegung untersucht. Hierbei wurde bei konstanter Kathodenbelegung die Belegung an der Anode variiert, da die größten Flächengewichtsschwankungen vom Anodensubstrat ausgehen, während sie beim Kathodensubstrat deutlich kleiner sind. Mit Hilfe dieser Ergebnisse konnte dann in einer statistischen Analyse der Erwartungswert der Zellspannung und dessen Standardabweichung bei $0,1 \text{ A/cm}^2$ berechnet werden.

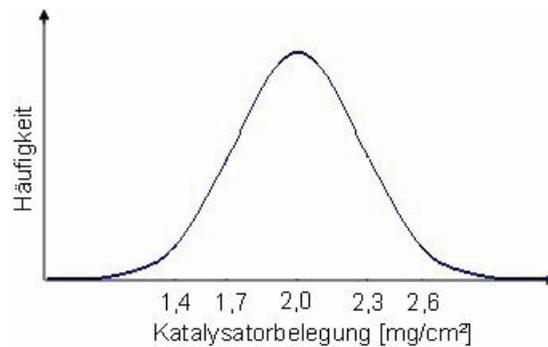


Abb. 23: Erwartete Verteilung der Katalysatorbelegung von $2,0 \text{ mg/cm}^2 \pm 0,3 \text{ mg/cm}^2$ aufgrund der Schwankungen im Flächengewicht des zu beschichtenden Substrates

Aufgrund der Verteilung in der Katalysatorbelegung (Abb. 23) kann demnach eine Zellspannungsverteilung von $490 \pm 10 \text{ mV}$ (Abb. 24) angenommen werden.

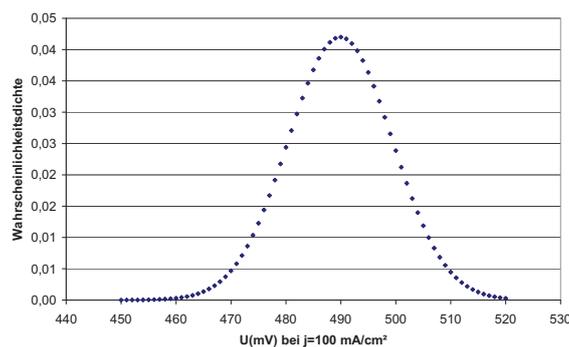


Abb. 24: Erwartete Spannungsverteilung von $U=(490 \pm 10) \text{ mV}$ aufgrund der Schwankungen in der Katalysator-belegung von $2,5 \pm 0,3 \text{ mg/cm}^2$

Die Ergebnisse zeigen somit, dass die gemessenen Spannungsunterschiede in den Uj-Kennlinien von 486 bis 504 mV bei $j=0,1 \text{ A/cm}^2$ innerhalb des Streubereiches liegen, der aufgrund

der Schwankungen in der Katalysatorbelegung angenommen werden kann. Somit kann die Flächengewichtsschwankung in dem verwendeten Substrat als mögliche Ursache für die Schwankungen in den Uj-Kennlinien angenommen werden.

Bei den hier vorgestellten Ergebnissen wurden unterschiedliche Methoden der induktiven Statistik eingesetzt, um mögliche Ursachen der gemessenen Reproduzierbarkeitsschwierigkeiten zu ermitteln. Je besser diese Methoden an den eigentlichen Produktionsprozess angepasst werden können, desto präziser können die Ursachen für Schwankungen ermittelt werden. Eine wichtige Anforderung hierfür ist die Kenntnis bestimmter statistischer Größen aus dem Produktionsablauf, den Kovarianzmatrizen. Die Bestimmung der Elemente dieser Matrizen erfordert ein tiefes Verständnis der Produktionsabläufe.

In aktuellen Versuchen wird an der Vertiefung dieses Verständnisses für den Rakelprozess gearbeitet. Alternativ werden aber auch andere Produktionsmethoden für die MEA-Herstellung untersucht, um die Streuung zu reduzieren und den Anforderungen von DMFC-Stack-Entwicklern zukünftig besser gerecht werden zu können.

3.1.2.3 Stackentwicklung

Die Stackentwicklung gliedert sich in zwei Entwicklungslinien. Einerseits werden Stacks auf Basis graphitischer Komponenten und andererseits auf Basis metallischer Komponenten entwickelt. In beiden Entwicklungslinien werden Auslegungs- und Konstruktionsarbeiten durchgeführt, Fertigungstechniken entwickelt und an die jeweiligen Anforderungen angepasst und abschließend elektrochemische Messungen durchgeführt.

Das Ziel in der Entwicklung graphitischer Stacks orientiert sich an den Anforderungen, die sich aus einem stabilen und wirtschaftlichen Systembetrieb in der leichten Traktion ergeben:

Haltbarkeit	> 3.000 h
Spezifische Leistung im Stack	> 75 mW/cm ²
Luftbedarf	< 10 ml/(cm ² min) @ 0,14 A/cm ²
Wirkungsgrad im System	≥ 30 %

Die Konstruktion und die Fertigungstechnik der Stackkomponenten wurden dahingehend verbessert, dass ein praxistauglicher Stack entsteht, der als Basis für die Markteinführung von DMFC-Systemen in der leichten Traktion dienen kann. Um die Haltbarkeit von Stacks zu verbessern, ist es notwendig mögliche Schädigungsmechanismen zu verstehen. Daher wurden die Auswirkungen einer kationischen Kontamination der Betriebsstoffe auf die Zelleistung quantitativ untersucht. Durch gezielte systematische Kontamination des Anodenmediums wurde deren Auswirkung auf die Leistungsfähigkeit von Brennstoffzellen untersucht. Mit Hilfe dieser Methode konnten die Auswirkungen von Eisen, Nickel und Chrom, den typischen Bestandteilen von Edelstählen, auf die Zelleistung quantitativ erfasst werden. In Abb. 25 ist die Leistungsabnahme in Abhängigkeit von der Belegung der Sulfonsäuregruppen der Membran dargestellt. Es wird deutlich, dass sich die Einlagerung von Ionen in die Membran je nach Art unterschiedlich stark auf die Degradation auswirkt. Die rot gestrichelte Linie ist eine grobe Annäherung an die gemessenen Abhängigkeiten, die eine Bewertung weiterer kationischer Kontaminationen ermöglicht.

Mit Hilfe dieser Untersuchungen konnten in Abhängigkeit von der gewünschten Betriebsdauer maximal zulässige Verunreinigungen der anodischen Betriebsstoffe ermittelt werden. Diese

Grenzwerte sind insbesondere für den Einsatz von metallischen Bipolarplatten und Systemkomponenten von Bedeutung. In anderen Untersuchungen konnte aber auch gezeigt werden, dass aus expandiertem Naturgraphit, dem Bipolarplattenwerkstoff beim graphitischen Stackaufbau, Kationen herausgewaschen werden. Diese Kationen reichern sich im Polymerelektrolyten und den Katalysatorschichten an und mindern dadurch ebenfalls die Leistungsfähigkeit der MEAs.

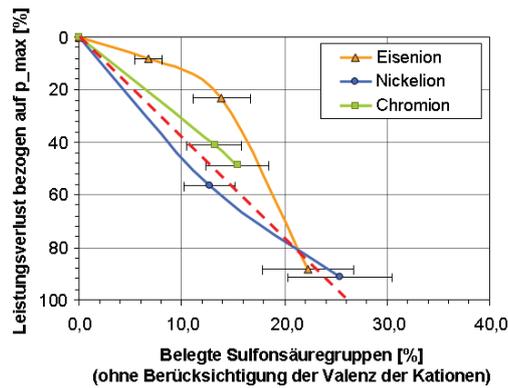


Abb. 25: Auswirkung der Ionenkontamination der Membran auf die Zelleistung

Um die Beladung des expandierten Graphits mit kationischen Verunreinigungen, insbesondere mit Eisen, zu reduzieren wurde die existierende Reinigungsprozedur um einen zusätzlichen Reinigungsschritt mit Oxalsäure erweitert. Durch die Oxalsäurebehandlung wird Eisenoxid aus dem Werkstoff auswaschen. Der Mechanismus der Reinigung lässt sich durch die folgende Reaktionsgleichung beschreiben:



Zur Überprüfung der Eignung wurden Voruntersuchungen an mit Eisen verunreinigtem Sigrflex durchgeführt. Dieses Material wurde in einer Wasser-/Oxalsäurelösung bei einer Temperatur von rund 70 °C gereinigt. Nach ca. 35 min hatte sich die rotbraune Verfärbung vollständig gelöst (siehe Abb. 26). Mit diesem Test und anderen Analysen konnte die Wirksamkeit der Reinigungsprozedur nachgewiesen werden.



Abb. 26: Reinigung des Sigrflexmaterials mit Oxalsäure/Wasser-Mischung

Um die Stackmontage zu vereinfachen und zusätzliche Qualitätskontrollen zu ermöglichen, wurde die Vorassemblierung von Bipolareinheiten in mehreren Schritten untersucht. Fragestellungen waren:

- Wie lassen sich Subkomponenten anbinden?
- Wie können die Platten gefügt werden?
- Ist eine Automatisierung möglich?

Die Bipolarplatte besteht aus dem Kathoden- und Anodenflowfield, der Bipolarplatte und einem Docht. Zunächst wurde eine Recherche möglicher Fügemethoden durchgeführt. Anschließend wurden vielversprechende Methoden getestet, bewertet und auf Automatisierbarkeit geprüft. Unter der Vielzahl der untersuchten Verfahren stellt der Einsatz von Klebstoffen eine vielversprechende Möglichkeit der Verbindung von Graphitplatten dar. In den durchgeführten Untersuchungen konnte zur Assemblierung der Bipolarplatteneinheit ein niederviskoser Polymerelektrolytklebstoff als besonders geeignet identifiziert werden. Der Auftrag von Klebepunkten ist in Abb. 27 dargestellt. Um die Komponenten gegen ein Verschieben im Betrieb zu sichern wurde die Klebefestigkeit bei Scherbeanspruchung ermittelt. Mit $0,31 \text{ N/mm}^2$ wurde in einem Zugscherversuch die ausreichende Klebefestigkeit nachgewiesen. Der gemessene Kontaktwiderstand von $11 \text{ m}\Omega\text{cm}^2$ zwischen zwei unverklebten Graphitplatten wird durch den Polymerelektrolytklebstoff nicht messbar vergrößert. Somit treten keine elektrischen Verluste durch den Polymerelektrolytklebstoff auf. Ebenfalls wurde diese Klebstoffverbindung unter den Betriebsbedingungen der DMFC getestet. Diese wurden zunächst durch eine im Ultraschallbad auf $70 \text{ }^\circ\text{C}$ erwärmte einmolare Methanollösung simuliert. Die Klebstoffverbindung hält dem Test im Ultraschallbad stand und gewährleistet, dass die Stege der Kathoden- und Anodenflowfields auch während des DMFC-Betriebs gegen eine Verschiebung gesichert sind.

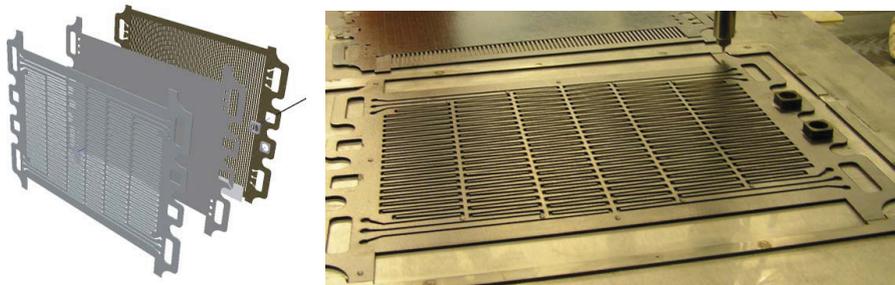


Abb. 27: Aufbringen von Klebestellen auf den anodischen Strömungsverteiler

Die Automatisierbarkeit der Bipolarplatten-Assemblierung wurde ebenfalls nachgewiesen. Hierzu werden ein Sechs-Achs-Knickarmroboter, eine Auftragseinheit, die an den Roboter angekoppelt wird, und eine Heißpresse eingesetzt. Mit der Auftragseinheit ist es möglich, den Polymerelektrolytklebstoff sowohl aufzusprühen, als auch in Einzeltropfen aufzutragen. Tropfen wurden aufgetragen, damit kein Klebstoff in die Kanäle gelangt. Die Bipolarplatte wurde mit dem Klebstoff besprüht, da auf den Stegen des Kathodenflowfields, das mit der Bipolarplatte verklebt werden soll, keine ausreichende Fläche zum Ablegen der Tropfen gegeben ist. Die Aushärtung des Polymerelektrolytklebstoffs erfolgt in der Heißpresse bei $137 \text{ }^\circ\text{C}$ und unter einer Kraft von 50 kN . Ein Short-Stack wurde mit den so verklebten Bipolarplatteneinheiten

aufgebaut und in Betrieb genommen. Die gemessenen Werte der Stromspannungskennlinie entsprechen den Werten von Short-Stacks mit nicht verklebten Bipolarplatteneinheiten. Das entwickelte Konzept ist daher für den Einsatz in der DMFC geeignet. Zusammengefasst ergeben sich durch die Vorassemblierung die aufgelisteten Vorteile:

- Reduzierung der Bauteilanzahl bei der Stackmontage
- Aufgliederung des Fertigungsprozesses
- Zusätzliche Qualitätskontrolle vor der Stackmontage

Außerdem wurde ein Stack automatisiert mit dem vorhandenen Sechсарm-Roboter gestapelt (siehe Abb. 28). Durch die automatisierte Assemblierung wurden Fehlermöglichkeiten reduziert, die Assemblierungsdauer vermindert und die Maßhaltigkeit der Stacks weiter verbessert.

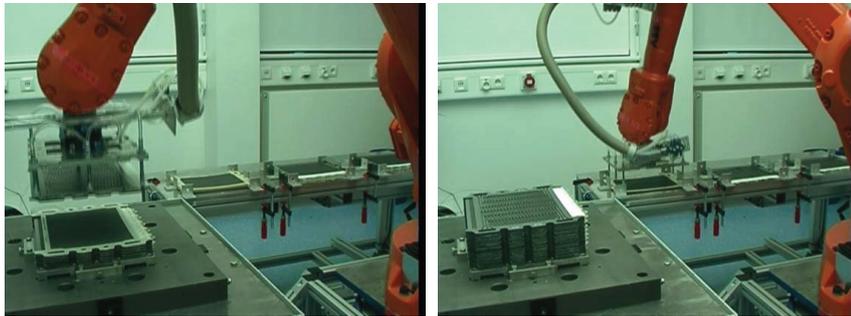


Abb. 28: Automatisierte Assemblierung von Stacks

Auch beim Aufbau mehrerer Stacks (siehe Abb. 29) kamen die beschriebenen vorassemblierten Bipolarplatten zum Einsatz. Zur Sicherung der Qualität wurde ein Programm erarbeitet mit dem alle Bipolarplatten vor der Montage mit einer automatisierten, berührungslosen Messtechnik auf ihre Maßhaltigkeit kontrolliert werden.



Abb. 29: Foto eines 90-Zellers mit 315 cm² aktiver Fläche pro Zelle

Nach dem Aufbau der Stacks erfolgten die Inbetriebnahme und die Bestimmung der Leistungsfähigkeit unter definierten Randbedingungen in einem Stackteststand. Kathodisch erfolgte die Versorgung mit Umgebungsluft, die untertemperiert von einem Gebläse in den Stack gespeist wurde (30 ml/(cm²*min)). Anodisch wurde der Stack mit einem auf 70 °C temperierten Wasser/Methanolgemisch versorgt. Dabei wurde nicht die Methanolkonzentration vorgegeben sondern eine Methanolpermeation von rund 0,1 A/cm². Unter den beschriebenen

Randbedingungen konnte in einem Stack mit 88 Zellen eine Leistung von drei Kilowatt erreicht werden (siehe Abb. 30). In diesem Stack wurde ein optimiertes Dochtsystem eingesetzt, was einen stabilen Betrieb bei kleinen Luftüberschüssen und geringen Druckverlusten von weniger als zwei Millibar auf der Kathodenseite ermöglicht.

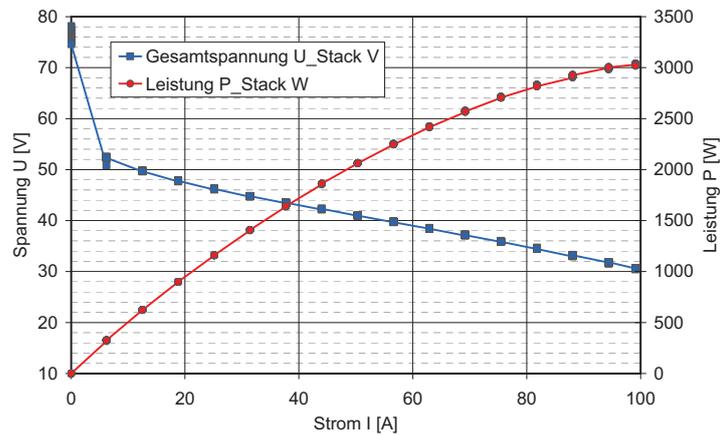


Abb. 30: Spannung und Leistung des Stacks (MM-44)

Neben der Strom-Spannungs-Kennlinie ist die Häufigkeitsverteilung der Zellspannungen bei einer bestimmten Belastung ein wichtiges Kriterium zur Beurteilung der Stackqualität. Durch die Weiterentwicklung des Dochtsystems bei der Fertigung eines zweiten mechanisch baugleichen Stacks (Stack 1 → Stack 2) konnte die Streuung der Zellspannungen verringert werden. Während bei einer Belastung mit $0,1 \text{ A/cm}^2$ in Stack 1 die größte und kleinste Zellspannung 46 mV auseinander lagen, liegen beim zweiten Stack die größte und die kleinste Zellspannung nur noch 20 mV auseinander (siehe Abb. 31).

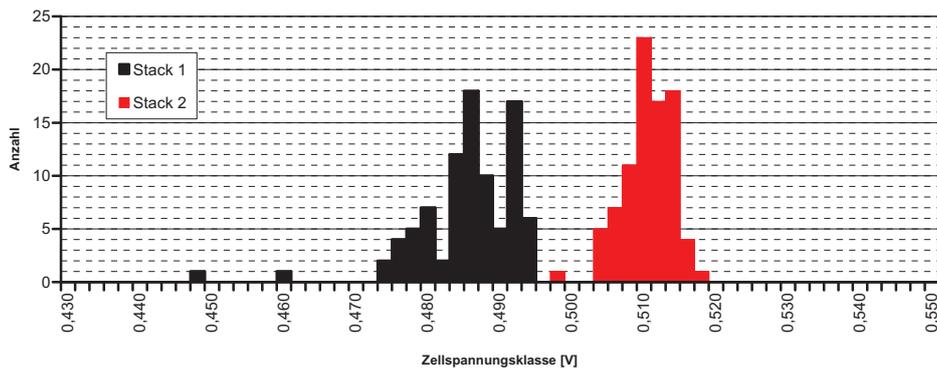


Abb. 31: Zellspannungsverteilung bei $0,1 \text{ A/cm}^2$ bei zwei Stacks

Wie einleitend erwähnt, werden neben den graphitischen Stacks auch metallische Stacks für die DMFC entwickelt. Die Ziele im Hinblick auf Haltbarkeit, Leistungsdichte und Wirkungsgrad sind ähnlich, allerdings stellen sich andere Anforderungen an die Herstelltechnik.

Neben der bereits in vorangegangenen Berichten beschriebenen segmentierten Beschichtungstechnik wurde insbesondere die Dichtungstechnik weiter entwickelt, da es bei der Verwendung von metallischen und starren graphitischen Bipolarplatten notwendig ist, ein separates Dichtungselement in die Platten einzubringen. Um dies mit hoher Genauigkeit zu ermöglichen, wurde der vorhandene Roboter um einen zusätzlichen Dispenser erweitert (siehe Abb. 32). Mit diesem ist es nun möglich, Dichtungen aus Silikon oder anderen Materialien auf Bipolarplatten aufzutragen.



Abb. 32: Dispergieranlage für Sechs-Achs-Knickarmroboter

Für die zukünftigen Arbeiten ist geplant, die bereits in einem Short-Stack-Test nachgewiesene Haltbarkeit von 5.000 Stunden nun auch mit Stacks im Kilowattmaßstab zu erreichen. Außerdem ist es notwendig die Leistungsdichte der Stacks zu erhöhen. Dazu muss einerseits die Leistungsfähigkeit der MEA erhöht werden, andererseits muss der Stackaufbau kompaktiert werden, das metallische Konzept kann dazu einen wichtigen Beitrag leisten. Außerdem muss der Stackwirkungsgrad auf Werte von mehr als 35 % verbessert werden. Der Schlüssel dazu liegt in einer Verbesserung der Brennstoffnutzung.

3.1.2.4 Systementwicklung und -verifikation

Die Systemtechnik DMFC befasst sich mit Konzeptentwicklung, Auslegung, Design, Bau und Test von Brennstoffzellensystemen bezogen auf die jeweilige Anwendung. Die Arbeiten sind anwendungsorientiert strukturiert. Im Rahmen eines vom BMWi geförderten Projekts wurde zusammen mit Industriepartnern in den letzten zwei Jahren ein Energiesystem zur Versorgung von Lagerhilfsgeräten weiterentwickelt und erprobt. Neben der Erstellung von Betriebsstrategien für Prozessabläufe, Regelungen und Sicherheitsüberwachungen lag ein Schwerpunkt in der Komponentenentwicklung für das DMFC-Hybridssystem. Wesentliches Ziel hierbei war es, einen robusten langzeitstabilen Betrieb unter realistischen Bedingungen nachzuweisen. In den Jahren 2009 und 2010 wurden zwei Systeme der Baureihe DMFC V3.3 erstellt.

Verfahrensentwicklung / Hybridisierung

Abb. 33 zeigt das Fließbild zu DMFC V3.3. Das Gesamtsystem ist als aktiver serieller Hybrid ausgeführt. Die Grundlast zur Versorgung der Elektromotoren (Fahr- und Hubmotor) des

Fahrzeugs wird durch die Brennstoffzelle A1 gedeckt. Zur Überbrückung der Brennstoffzellen-Aufwärmphase, in der der Stack keine elektrische Leistung beisteuern kann, und zur Glättung der hohen Lastdynamik (Anfahr- und Bremspeaks) dient eine Batterie A2 als Energiespeicher. Der DC/DC-Wandler A3 entkoppelt Stack und Batterie.

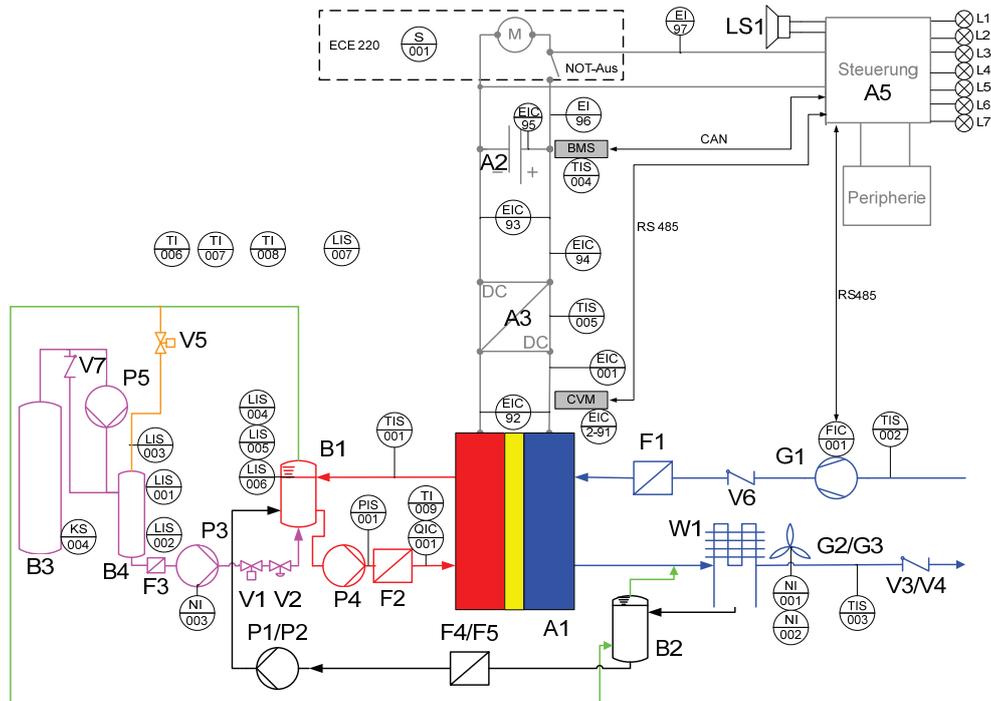


Abb. 33: Verfahrensfließbild DMFC V3.3 mit für den Systembetrieb erforderlichen Aktoren und Sensoren

Das System wird mit dem Schlüsselschalter S-001 des Fahrzeugs gestartet. Bei Betätigung des Fahrzeug-Not-Aus wird auch das Energiesystem abgeschaltet. Damit ist eine vollständige Kompatibilität mit einem konventionellen Energiesystem (Bleibatterien) gegeben. Folgende Besonderheiten des Systems sind hervorzuheben:

- Verwendung einer zugelassenen und sehr gut verfügbaren Methanolpatrone B3 von ACC beku / SFC. Methanollpufferbehälter B4 als Reservetank für ca. 20 Betriebsminuten
- Hochleistungs-Li-Ionen-Batterie als Hybridenergiespeicher A2. Voruntersuchungen zeigten, dass diese Technologie als einzige für die Anwendung geeignet ist (bzgl. Energie- und Leistungsdichte sowie Lebensdauer)
- Adaptierte Leistungselektronik A3 und Steuerung A5
- Klappensystem (V3/V4) zur Absperrung des Kathodensystems im Stillstand; Maßnahme gegen Stackalterung
- Einleitung des Anodenabgases (grüne Linie) in das Kondensat (B2, Wäsche) und anschließend in das Kathodenabgas (Kondensation in W1); Maßnahmen zur Minderung der organischen Emissionen (u.a. Methanol)

Das erste System (DMFC V3.3-1) wurde mit einigen Komponenten-Vorabversionen (Steuerung, DC/DC-Wandler, Datenerfassung, Teil der Sensorik) aufgebaut. Ein Langzeitbetrieb in Teststandumgebung unter realistischer elektrischer Belastung war dennoch möglich (siehe Kapitel 4.1).

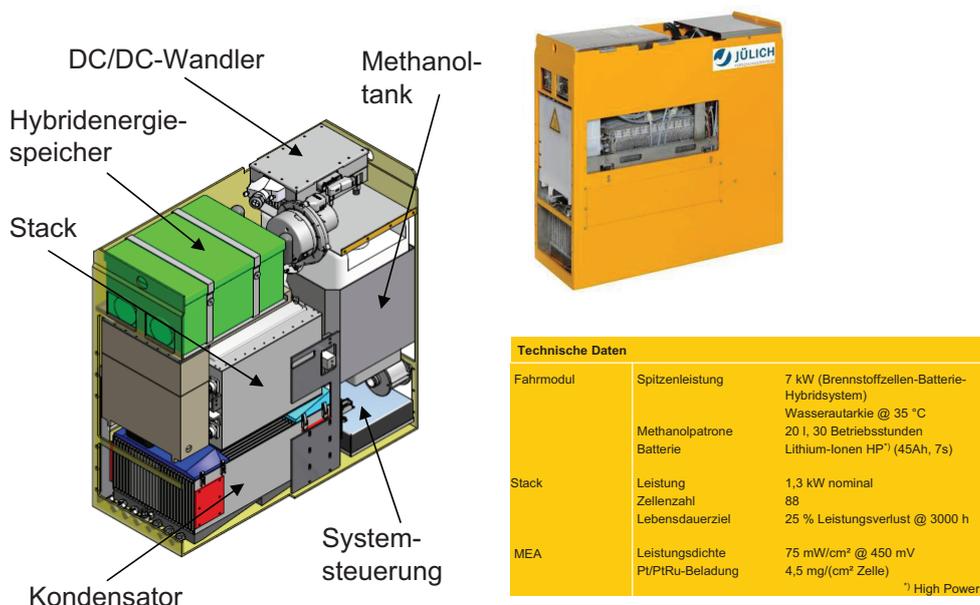


Abb. 34: Planung, Realisierung, technische Daten für DMFC V3.3-2

Das in Abb. 34 dargestellte System DMFC V3.3-2 beinhaltet alle Originalteile und wurde am 14.7.2010 im Fahrzeugeinsatz erfolgreich demonstriert. Aktuell (Stand 17.02.2011: 2850 Betriebsstunden) läuft es unter realistischem Fahrzyklus im Systemteststand.

Regelung- und Steuerung

In der Steuerungssoftware sind die Prozeduren zum Betrieb und zur Überwachung des Energiesystems (siehe Abb. 35, links) hinterlegt. Bei anliegender Versorgungsspannung (Batterieschalter ein) findet zunächst ein Boot-Vorgang der Steuerung statt, der die Systemsteuerung in den Modus "Stand-by" versetzt. Das Betätigen des Schlüsselschalters lässt das Programm in den Modus "Anfahren" springen, in dem Prozeduren zum Systemcheck (Behälterfüllstände abfragen, auf Mindestmethanolkonzentration prüfen, Sensoren- und Aktorentest, Plausibilitätsprüfungen etc.) und zur Vorbereitung des Normalbetriebes (Nennkonzentration einstellen, Aktorengrundeinstellung, System aufwärmen u.a.) ablaufen. Wenn alle Kriterien aus dem Anfahrmodus erfüllt sind, springt das Programm automatisch in den Modus "Normalbetrieb". Hier wird der reguläre Lastbetrieb des Energiesystems geregelt bzw. gesteuert.

Abb. 35, rechts oben zeigt die Regelungsstruktur von DMFC V3.3 als Kaskadenregler. Das Regelungskonzept besteht im Wesentlichen aus dem Regler 1, der die Batteriespannung regelt und einen Sollwert für die Stackspannung berechnet sowie dem Regler 2, der die Stackspannung regelt und einen Sollwert für den Strom am Ausgang des DC/DC-Wandlers berechnet.

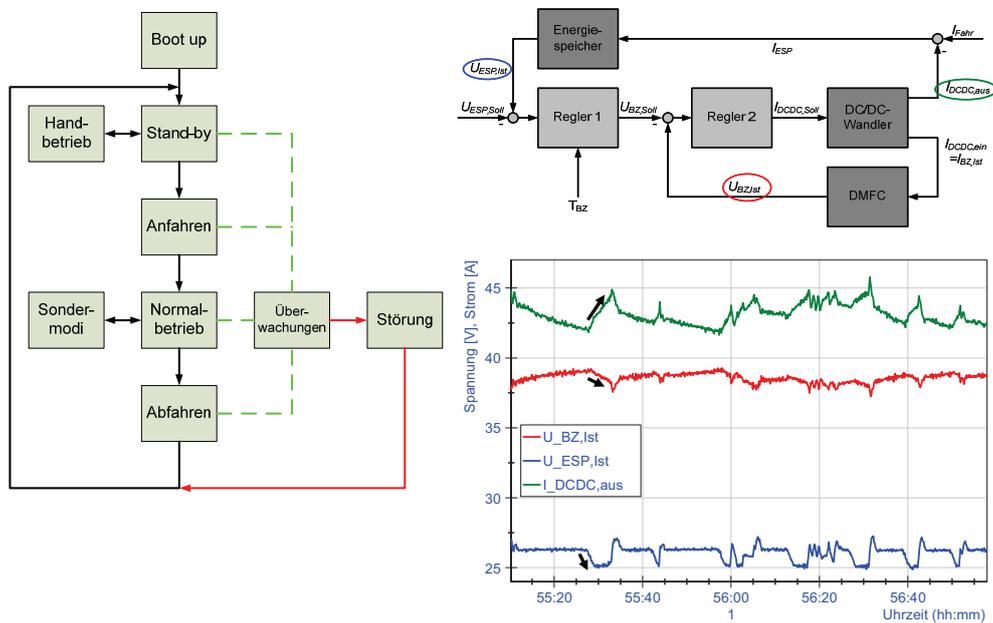


Abb. 35: Programmablauf (links), Reglerstruktur (rechts)

Die Wirkungsweise der Regler wird durch das darunter abgebildete Diagramm verdeutlicht, in dem für einen etwa halbstündigen Ausschnitt die Verläufe von Batteriespannung (U_{ESP_Ist}), Stackspannung (U_{BZ_Ist}) und DC/DC-Wandler-Ausgangsstrom (I_{DCDC_aus}) dargestellt sind. Wenn die Batteriespannung unter den Sollwert (= 26,3 V) fällt, muss die Batterie stärker geladen werden. Dies wird durch eine Erhöhung der Stackleistung (Absenken Stackspannung, Erhöhung Stackstrom bzw. Erhöhung der Stellgröße DC/DC-Wandler-Ausgangsstrom) erreicht.

Aus dem Normalbetrieb werden verschiedene Sondermodi automatisch aktiviert:

- **"zyklische Lastabschaltung"**: regelmäßiges (aktuell alle 30 Minuten) Abschalten der Stackbelastung und der Luftzufuhr für etwa 30 Sekunden, Prozedur zum Erhalt der Leistungsfähigkeit des Stacks
- **"Freiblasen"**: Kathodengebläse bei bestimmter Abweichung einzelner Zellspannungen vom Mittelwert für eine bestimmte Zeit auf maximale Drehzahl setzen, Vorbeugung Störabschaltung durch Wasserblockage im Kathodenflowfield
- **"Tanken"**: Ein erforderlicher Patronenwechsel wird durch Füllstandssensoren am Pufferbehälter registriert. Der Ansaugvorgang (Befüllung des Pufferbehälters und der Leitungen nach Patronenwechsel) wird durch Kontaktschalter an der Tankklappe ausgelöst

Sowohl innerhalb der einzelnen Betriebsmodi als auch übergeordnet finden diverse Überwachungen statt, die die Sicherheit des Systems und die Langlebigkeit des Stacks gewährleisten sollen. Das Auslösen einer Störung führt unmittelbar zum Abschalten des Systems und zum Rücksprung in den Stand-by-Modus.

Aus dem Stand-by-Modus heraus kann bei entsprechender Zugriffserlaubnis des Nutzers der Modus "Handbetrieb" aktiviert werden. Alle Aktoren können manuell zu- und abgeschaltet oder mit beliebiger Teillast betrieben werden. Dieser Modus wird insbesondere bei der Systeminbetriebnahme benötigt. Innerhalb des Stand-by-Modus gibt es sogenannte Schlaf- und Wachphasen. Sobald sich das System im Stand-by-Modus befindet startet die Schlafphase, in der lediglich ein Timer läuft. Wenn sich das System nach Ablauf des Timers noch immer im Stand-by-Modus befindet, wird die Wachphase aktiviert. Hier laufen dann Prozeduren zum Erhalt der Stackleistungsfähigkeit ab (Überprüfung und gegebenenfalls Korrektur von Nennfüllstand und -konzentration im Anodensystem).

3.1.2.5 Modellierung

Eines der Hauptprobleme der Direktmethanol-Brennstoffzelle ist die relativ schnelle Alterung der anodenseitigen Katalysatorschicht (AKS). In der AKS von DMFCs wird Methanol an einem Pt/Ru-Katalysator in Protonen und Elektronen aufgespalten (Methanoloxidationsreaktion, MOR). Dabei unterbindet Ru die Vergiftung der Katalysatoroberfläche durch die Nebenprodukte der Reaktion. Am IEK-3 durchgeführte Experimente lassen darauf schließen, dass die Auflösung von Ru der dominante Mechanismus bei der Alterung der Anodenkatalysatorschicht ist. Eine Post-Mortem-Analyse zeigt einen Verlust von 15 % Ruthenium in der Anode. Der größte Teil des korrodierten Rutheniums findet sich auf der Kathode wieder, die vor dem Betrieb aus reinem Platinkatalysator bestand (s. IEF-3 Report 2009).

Da die Rutheniumkorrosion und –ablagerung aber auf der Oberfläche der Katalysatorteilchen abläuft, ist der Effekt erheblich größer und führt zu hohen Überspannungsverlusten an beiden Elektroden. Der elektrochemische Mechanismus der Ru-Auflösung ist bislang noch unzureichend verstanden.

Im Jahr 2010 wurde ein allgemeines Modell für die Leistung der Katalysatorschicht entwickelt [1, 2]. Das Modell beinhaltet die aus der Butler–Volmer-Gleichung der elektrochemischen Reaktion hergeleitete Erhaltung des Ionenstroms, das ohmsche Gesetz für den Ionenstrom und die Massenbilanzgleichung für den Transport der zugeführten Moleküle (Methanol). Schätzwerte zeigen, dass Methanol mit hoher Geschwindigkeit durch die AKS transportiert wird, während der Protonentransport in der Regel schlecht ist. In Abb. 36 wird der Betriebsbereich der AKS unter diesen Bedingungen gezeigt.

Die Analyse der Modellgleichungen zeigt, dass die Dicke l_* der Reaktionsschicht

$$l_* = \frac{s_l b}{j_0}$$

beträgt. Hierbei ist s_l die AKS-Protonenleitfähigkeit, $b = RT / (a F)$ die Tafel-Neigung und j_0 die Stromdichte in der Zelle. In der Regel ist l_* viel dünner als die AKS, was bei der Auflösung von Ru zu einem interessanten Szenario führt. Qualitativ betrachtet ist die Auflösung von Ru ein untergeordneter elektrochemischer Prozess, der ähnlich im Verlauf ist wie die Überspannung der MOR. Die Kurve der Ru-Auflösungsgeschwindigkeit ähnelt daher der Kurve der MOR;

[1] Kulikovskiy, A.A.: Analytical Modelling of Fuel Cells. Elsevier, Amsterdam, 2010

[2] Kulikovskiy, A.A.: The regimes of catalyst layer operation in a fuel cell. *Electrochim. Acta* 55 (2010), 6391-6401

beide erreichen ihr Maximum an der Membrangrenzfläche. Der Katalysator im Umwandlungsbereich (schattierter Bereich in Abb. 36) wird zuerst zerstört, während der Rest der AKS weiter funktionsfähig bleibt. Die Kurven in Abb. 36 würden sich offensichtlich nach rechts bewegen und ihr Maximum an der gestrichelten Linie erreichen (Abb. 36). Geschieht dies, so ist ein neuer Bereich der Reaktionsschicht der Ru-Auflösung ausgesetzt. Dieser Mechanismus führt zur Ausbildung einer fortschreitenden Welle, die sich in Richtung der Grenzfläche zwischen Anodenkatalysatorschicht und Diffusionsschicht fortsetzt. Dieser Mechanismus wird derzeit analysiert.

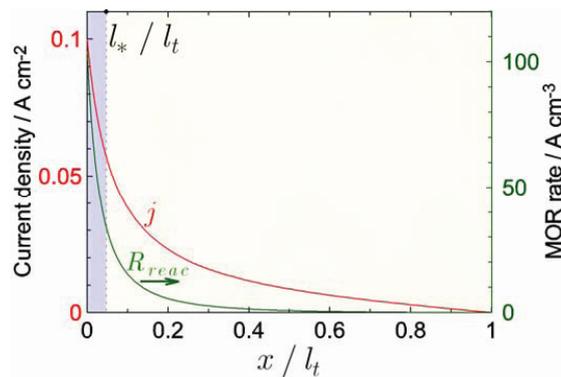


Abb. 36: Kurven der Protonenstromdichte j und der Geschwindigkeit der Methanoloxidationsreaktion in der Anodenkatalysatorschicht [1, 2]. Die Membran liegt bei $x = 0$ und die Trägerschicht bei $x/l_t = 1$, wobei l_t die Dicke der AKS ist. Offensichtlich findet die Umwandlung vor allem in einem kleinen Umwandlungsbereich mit einer Dicke von l_* nahe der Membran statt (violett schattierter Bereich)

Modellierung von Stacks

Die Modellierung von DMFC-Stacks steckt noch in den Kinderschuhen. Im Jahr 2010 lag der Fokus darauf, ein besseres Verständnis der wichtigsten Phänomene des Wärme- und Stromtransports in kleinen und großen Stacks zu entwickeln. Experimente im IEK-3 haben gezeigt, dass die kleinen Stacks eine deutlich längere Lebensdauer haben als die großen; das Modell soll eine Erklärung für diesen Unterschied liefern.

Das Modell des Wärmehaushalts in Stacks berücksichtigt sowohl die bei elektrochemischen Reaktionen entstehende Wärme und die Wärmezufuhr durch die unmittelbare katalytische Verbrennung von Methanol, das durch die Membran dringt, als auch den Wärmeverlust, die durch die Verdampfung von flüssigem Wasser entsteht [3]. Das elektrochemische Modell basiert auf analytischen Ausdrücken für die Halbzellen-Überspannung in DMFCs [4].

Das Modell wurde für einen kleinen Teil des Stacks formuliert, und zwar für ein Stück Bipolarplatte mit Luft- und Wasserstoffkanälen. Die Bipolarplatte ist so dünn, dass eine 3-D-Laplace-

[3] Kulikovskiy, A.A.: Optimal temperature for DMFC stack operation. *Electrochimica Acta* 53 (2008), 6391–6396

[4] Kulikovskiy, A.A.: On the nature of mixed potential in a DMFC. *J. Electrochem. Soc.*, 152 (2005), A1121–A1127

Gleichung für den Wärmetransport in der Platte durch eine 2-D-Poisson-Gleichung ersetzt werden kann [5]. Jede Zelle in dem Stack wird in N_{elem} Elemente "geschnitten" und der Code wird auf $N_{elem}N_{cell}$ Prozessoren repliziert. Bei jedem Näherungsschritt tauschen diese Elemente Daten mit ihren Nachbarn im Stack aus. Bei einem Stack mit 32 Zellen à 8 Elementen erfordert dieser Code $8 \times 32 = 256$ Prozessoren. Der Code weist eine ausgezeichnete parallele Skalierbarkeit auf.

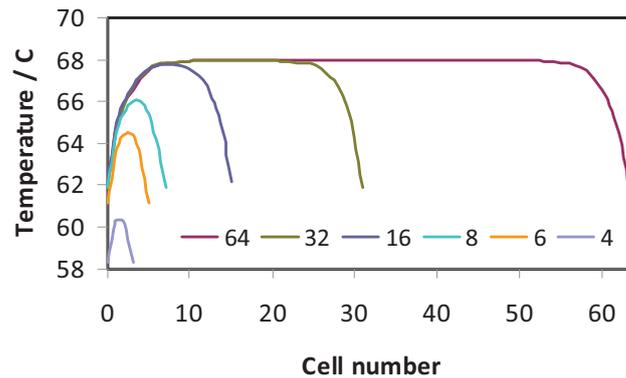


Abb. 37: Berechnete axiale Temperaturprofile von Stacks mit 4, 6, 8, 16, 32 und 64 Zellen

Abb. 37 zeigt das berechnete Temperaturprofil an der Achse von Stacks mit 4, 6, 8, 16, 32 und 64 Zellen. Jeder Temperaturwert wird über die Oberfläche der jeweiligen Zelle gemittelt. Die Abbildung zeigt, dass die axiale Variation von T in dem kleinen Stack mit 4 Zellen deutlich niedriger ist als in den großen Stacks. Eine weitere interessante Eigenschaft ist die Länge der "thermischen Grenzschicht", die auf beiden Seiten des großen Stacks beinahe 10 Zellen umfasst. In einem Stack mit 64 Zellen haben die "innenliegenden" Zellen (11-53) dieselbe Temperatur, die gegenüber der Abkühlung durch die Endplatten unempfindlich sind.

Die weitere Arbeit wird sich auf die Untersuchung der ungleichmäßigen Temperaturverteilung in den Stacks konzentrieren, die durch die "Widerstandspunkte" in den Stacks hervorgerufen wird, sowie auf die Untersuchung der zeitlichen Veränderungen dieser Ungleichmäßigkeiten. Letzteres Problem erfordert nicht nur dieses Modell, sondern auch eine Erweiterung zur Berücksichtigung der nichtstationären Terme in den zugehörigen Gleichungen.

[5] Kulikovskiy, A.A.: Efficient parallel algorithm for fuel cell stack simulation. SIAM J. Appl. Math. 70 (2009) 531–542

3.1.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
J. Mergel	5996 j.mergel@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Direktmethanol-Brennstoffzellen
R. Elze	1902 r.elze@fz-juelich.de	Entwicklung von Membran-Elektroden-Einheiten für DMFCs mit hohem Brennstoffnutzungsgrad
Dr. A. Glüsen	5171 a.gluesen@fz-juelich.de	Leistungsoptimierung von MEAs für die DMFC und Entwicklung ihrer maschinellen Herstellung
M. Hehemann	5431 m.hehemann@fz-juelich.de	Emissionsmessungen an DMFC Systemen. Komponentenentwicklung, Aufbau und Betrieb von Testständen
S. Hürter	1902 s.huerter@fz-juelich.de	Entwicklung von Membran-Elektroden-Einheiten für DMFCs mit hohem Brennstoffnutzungsgrad
Dr. H. Janßen	5082 h.janssen@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „Systementwicklung DMFC“, Komponentenentwicklung, Anlagenauslegung, Bau und Test von DMFC Systemen
D. Kalkreuth	2378 d.kalkreuth@fz-juelich.de	Allgemeines Qualitätsmanagement, Qualitätssicherung im Bereich „Standardisierte elektrochemische Untersuchungsverfahren“
N. Kimiaie	6484 n.kimiaie@fz-juelich.de	Technische und organisatorische Projektkoordination DMFC-Systementwicklung, Entwicklung automatisierter Fertigungs- und Montageverfahren für Brennstoffzellkomponenten und Stacks
I. Konradi	4832 i.konradi@fz-juelich.de	Entwicklung von kontinuierlichen, maschinellen Herstellverfahren für Komponenten der MEA
Prof. A. A. Kulikovskiy	5396 a.kulikovskiy@fz-juelich.de	Entwicklung analytischer und numerischer Modelle von PEFCs und DMFCs, Interpretation experimenteller Daten, Entwurf neuartiger Zell- und Stackdesigns
A. Löhmer	8731 a.loehmer@fz-juelich.de	Aufklärung von physikalisch/chemischen Alterungsmechanismen in Direktmethanol-Brennstoffzellen
J. McIntyre	8731 j.mcintyre@fz-juelich.de	Entwicklung numerischer Modelle von DMFC-Stacks

Dr. M. Müller	1859 mar.mueller@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „Stack- und Systementwicklung DMFC“, technische und wirtschaftliche Optimierung von DMFC-Stacks, Auswahl und Test von Materialien für Stackbauteile, Anlagenauslegung, vereifizierung
H. Schmitz	4113 hei.schmitz@fz-juelich.de	Leistungsoptimierung von Diffusions- und Katalysatorschichten für die DMFC
Dr. M. Stähler	2775 m.staehler@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „MEA-Herstellung“, Standardisierte Herstellung und Charakterisierung von Membran-Elektroden-Einheiten der DMFC
Dr. Chr. Wannek	4013 c.wannek@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „Neue Materialien und Verfahren“, Entwicklung von Membran-Elektroden-Einheiten für die DMFC
M. Wannert	5590 m.wannert@fz-juelich.de	Entwicklung mathematischer Verfahren für die Magnetotomographie, Rekonstruktion von Stromdichteverteilungen anhand 2- und 3-D Modellen und Einzelzellen
Dr. J. Wilhelm	1573 j.wilhelm@fz-juelich.de	Hybridisierung und Regelung von DMFC-Systemen, Modellierung und Simulation von DMFC Systemen
W. Zwaygardt	2109 w.zwaygardt@fz-juelich.de	Auslegung und Konstruktion von DMFC-Anlagenkomponenten, Aufbau und Betrieb von Testständen

3.1.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

Wichtige Veröffentlichungen

Mergel, J.; Glösen, A.; Wannek, C.

Current Status of and Recent Developments in Direct Liquid Fuel Cells

Hydrogen and Fuel Cells, Fundamentals, Technologies and Applications, / ed.: D. Stolten, Wiley-VCH, 2010, Weinheim. - 978-3-527-32711-9. - S. 41 - 60

Direct liquid fuel cells, such as the direct methanol fuel cell (DMFC) or the direct ethanol fuel cell (DEFC), convert liquid fuel directly into electric current. In comparison to fuel cell systems that operate with pure hydrogen or hydrogen-rich gases from reforming processes, the fuel in the DMFC is supplied directly via liquid methanol. Apart from the very high energy density of methanol, the DMFC is characterized by easy handling and trouble-free refueling. As the reforming step is by-passed in direct fuel cells, compensation in the form of higher overvoltages (i.e. electrochemical losses) is acceptable. Despite the resulting moderate power densities, direct fuel cells are more attractive for a variety of applications in the low to medium power range than PEM fuel cells powered by hydrogen. Examples of their use include replacement of batteries in portable applications and for light traction, as there is no need for the relatively expensive and time-consuming charging of batteries or for a spare battery

for multiple-shift operation. Furthermore, the high energy density of the liquid energy carrier permits much longer operating times than batteries or fuel cell systems based on hydrogen.

This paper outlines the level of development of different direct liquid fuel cells based on current research findings and trends.

Wannek, C.; Nehr, S.; Vahlenkamp, M.; Mergel, J.; Stolten, D.

Pseudo-half-cell measurements on symmetrical catalyst-coated membranes and their relevance for optimizing DMFC anodes

Journal of Applied Electrochemistry 40 (2010) 29-38

The preparation of catalyst-coated membranes (CCMs) with two anodic catalyst layers (60 % PtRu/C as catalyst) using a decal technique and their characterization by pseudo-half-cell measurements using both sides of the CCMs by simply turning the test cell around, allows the characterization of quasi-identical CCMs with a much smaller experimental uncertainty than observed for the classical direct methanol fuel cell (DMFC) testing of membrane electrode assemblies under similar working conditions (5 mV vs. 12 mV at a current density of 140 mA cm⁻²). With this new sensitive tool, we study the influence of the dispersing technology and the Nafion content on the performance of DMFC anodes. While the ionomer content shows a broad optimum between 20 and 40 %, the dispersing technology does not have a strong impact on the fuel cell performance under the experimental conditions of this study, but influences strongly the stability of the catalyst slurries and the homogeneity of the electrode coatings.

Wannek, C.; Glösen, A.; Stolten, D.

Materials, manufacturing technology and costs of fuel cell membranes

Desalination 250 (2010) 1038-1041

We give an overview about the status and current trends for fuel cell membranes. The paper highlights aspects of material design but also provides details concerning membrane manufacturing technology and the costs estimated or projected for polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) developed for different types of applications. In addition to the description of membranes for the most common type of fuel cells, which is operated with pure hydrogen as fuel at temperatures around 80 °C and relies on perfluorosulfonic acid type membranes such as Nafion®, special focus is given to two auspicious subcategories of proton-exchange membrane fuel cells: high temperature PEFCs with phosphoric acid-doped polybenzimidazole type membranes and direct methanol fuel cells (DMFCs) with perfluorosulfonic acid or hydrocarbon type membranes. Where applicable, this is being illustrated with relevant details from the fuel cell research at Forschungszentrum Jülich's IEF-3.

Kulikovsky, A.A.

Analytical Modelling of Fuel Cells

Elsevier, Amsterdam, 2010, ISBN: 978-0-444-53560-3

Generally speaking, there are two levels of FC research: (i) study of the fundamental physical and electrochemical processes (reaction kinetics, ionic transport, capillary phenomena etc.) and (ii) engineering design of cells, stacks and FC systems. The coupling between these two levels is provided by the *physical modelling of fuel cells*. This new discipline aims at understanding the basic transport and kinetic phenomena in a real cell and stack environment. Physical modelling uses first-level data to pave

the way for better cell, stack and system designs. This discipline is the subject of this book.

A numerical result represents just one point in the multidimensional space of parameters determining FC operation. What happens in the system if we change one parameter? To answer this question another calculation has to be done. Since the number of parameters is large and each variant is a time-consuming procedure, a parametric study with the numerical models is exhausting.

Analytical solutions resulting from a good model simply show the parametric dependencies. These solutions may significantly advance our understanding of FC operation; sometimes they predict novel effects. The goal of analytical modelling is to derive simple relations describing different aspects of FC operation in special cases. The book considers these special cases. In this book we demonstrate the basic analytical solutions describing coupled kinetic, transport and electric phenomena in catalyst layers, cells and stacks. However, the aim of this book is not a simple collection of results, but rather a step-by-step demonstration of how they are derived.

Kulikovsky, A.A

The regimes of catalyst layer operation in a fuel cell

Electrochimica Acta, **55** (2010) 6391- 6401

In this work, we report the exact solutions to a generalized Perry-Newman-Cairns model for the catalyst layer (CL) operation. The model includes the ionic current conservation equation with the Butler-Volmer rate of the electrochemical conversion, the Ohm's law for ionic current and the mass balance equation for the feed molecules (oxygen, hydrogen or methanol). The exact solutions for this system are obtained for the cases of poor reagent, or poor ionic transport in the CL. In the case of poor feed transport, the electrochemical conversion runs in a small conversion domain at the CL/GDL interface. In the case of poor ionic transport, the thin conversion domain resides at the membrane/CL interface. For DMFC studies most interesting is the case of poor ionic transport, which takes place in DMFC anode. The key finding of this work is the equation for the conversion domain thickness, where δ^* is the CL proton conductivity, b is the Tafel slope of the half-cell reaction and j_0 is the cell current density. This equation helps to formulate the model of Ru dissolution on the anode side of DMFC; this work is in progress.

Janßen, H.; Blum, L.; Hehemann, M.; Mergel, J.; Stolten, D.

System Technology Aspects for Light Traction Applications of Direct Methanol Fuel Cells

18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC 2010 Proceedings, Parallel Sessions Book 5, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 78-5, ISBN: 978-3-89336-655-2, S. 497-502

Due to extended driving range and quick refuelling time the Direct Methanol Fuel Cell (DMFC) is advantageous for special niche applications compared to the traditional battery propulsion technology. The system setup is adapted to the boundary conditions of the particular unit. Usually there are guidelines for maximum space, weight and of course costs. Additionally technical rules are given concerning gaseous and noise emissions. Safety requirements for the electric drive system and the fuel must be fulfilled.

In this contribution the results of a system analysis on the basis of a first prototype system for the energy supply of a horizontal order picker will be discussed. The key topics are as follows:

Does it make sense to pressurise the system to simplify the water management? The discussion will also include energetic aspects.

In liquid operated DMFC systems the heat and water household is directly coupled. The actual system setup uses the water crossover through the proton conducting membrane to remove the waste heat from the stack by evaporating water. To get a water autonomous system a particular part of the evaporated water must be recycled. What are the requirements for such a unit and how can it be sized and constructed?

To minimize the system volume a big effort was made. Especially the integration of the anodic sub system into the stack is promising. Different concepts and detail constructions were realised over the last years.

Wilhelm, J.; Blum, L.; Janßen, H.; Mergel, J.; Stolten, D.

Control Strategy for a Direct Methanol Fuel Cell Hybrid System

3rd European and International Conference eHydrogenia, Bukarest (Rumänien), 2009

Direct methanol fuel cells (DMFCs) directly convert liquid methanol into electric energy. DMFC systems are characterized by easy handling and unproblematic refuelling. Since they permit longer operating times due to the high energy density of methanol, these systems are attractive for various applications as replacements for batteries. The results of a market analysis show that the best potential for DMFC systems in the kW class is found in the material handling sector. Therefore, a DMFC system was designed for a horizontal order picker. This paper describes the process engineering and the hybridization concept of this DMFC hybrid system. The main focus will be on the control strategy for the power flow between the DMFC stack und the energy storage facility.

Wilhelm, J.; Blum, L.; Janßen, H.; Mergel, J.; Stolten, D.

Hybridization and control of direct methanol fuel cell systems for material handling applications

18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC 2010 Proceedings, Parallel Sessions Book 5, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 78-5, ISBN: 978-3-89336-655-2, S. 523-528

Direct methanol fuel cells (DMFCs) directly convert liquid methanol into electric energy. In addition to the very high energy density of methanol, they are characterized by easy handling and unproblematic refuelling. Since they permit longer operating time, they are attractive for various applications as replacements for batteries. The results of a market analysis show that the best potential for DMFC systems in the kW class lies in the material handling sector. Therefore, a DMFC system was designed for a horizontal order picker and will be described here in terms of hybridization and control strategy. The system sizing with respect to DMFC stack dimensions, which are kept as small as possible, will be described. Because of the highly fluctuating load profile suitable energy storage for the hybrid system must be identified. The requirements for energy storage systems and the pros and cons of different types will be discussed. For the hybridization there are several possible concepts which will be compared regarding the requirements of the considered application. Result is an active series hybrid, where the DMFC and the energy storage are connected with a buck converter. To control the power flow between the DMFC and the energy storage there is a need for a control strategy, which will be described here. With this control strategy, consisting of a cascade controller and map controller, a control signal for the buck converter according to the actual states of the DMFC and the energy storage will be calculated.

Wilhelm, J.; Janßen, H.; Mergel, J.; Stolten, D.

Energy storage characterization for a direct methanol fuel cell hybrid system

Journal of Power Sources (2010), article in press, doi: 10.1016/j.jpowsour.2010.09.088

This paper describes the energy storage characterization for a direct methanol fuel cell (DMFC) hybrid system for light traction applications. In a first step, the DMFC stack and the energy storage were dimensioned. To dimension the energy storage, the required energy density and power density were calculated. These are influenced by the operating states of the vehicle as well as the highly fluctuating load profile. For this kind of application a high energy density as well as a high power density is needed. Therefore, super capacitors are not the energy storage of choice. As an alternative, suitable batteries were analyzed in terms of their behavior in the DMFC hybrid system. Therefore, a characterization procedure was developed consisting of five different tests. These tests were developed adapted to the requirements of the application. They help to characterize the battery in terms of energy content, high power capability during charge and discharge, thermal behavior and lifetime. The tests showed that all batteries have to be operated on a partial state of charge (pSOC) and a thermal management is very important. Especially lead-acid battery show an decrease in lifetime under a pSOC operation. Therefore, a lithium battery was identified as the suitable energy storage for the considered application.

Wilhelm, J.; Janßen, H.; Mergel, J.; Stolten, D.

Energy management for a fuel cell/battery hybrid system

Emobility – Electrical Power Train (IEEEExplore), 8. - 9. November 2010, doi: 10.1109/EMOBILITY.2010.5668030

Direct methanol fuel cells (DMFCs) convert liquid methanol directly into electric energy. Due to the high energy density of methanol, they permit a longer operating time. Therefore, DMFC systems are attractive in various applications as replacements for batteries. A market analysis showed that the best application potential is to be found in the material handling sector. A DMFC system was designed for a horizontal order picker, which is in this application class. To fulfill the requirements of a highly fluctuating load profile, the DMFC has to be hybridized. The hybridization concept for the DMFC energy system is described, as well as the dimensioning of the DMFC stack and the battery. The main focus will be placed on the energy management for this fuel cell/battery hybrid system. The energy management strategy is used to control the power flow between the DMFC stack and the battery according to their actual states. Additionally, this strategy has three different aims. The first is to maintain the state of charge of the battery at a constant level. The other two concern avoiding and identifying aging of the DMFC stack. Several control strategies will be analyzed with simulations and experiments.

Dissertationen:

Wilhelm, J.

Hybridisierung und Regelung eines mobilen Direktmethanol-Brennstoffzellen Systems

Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 73, ISBN 978-3-89336-642-2, RWTH Aachen 2010

Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFCs) zeichnen sich dadurch aus, dass sie die chemische Energie des flüssig zugeführten Brennstoffs Methanol direkt in elektrische Energie umwandeln. Methanol hat eine hohe Energiedichte und lässt sich vergleichsweise einfach speichern. Aufgrund dieser Vorteile eignen sich Direktmethanol-

Brennstoffzellen-Systeme z. B. als Batterieersatz für den Bereich leichte Traktion in der kW-Klasse. Da das Nachtanken im Vergleich zum Laden einer Batterie viel schneller realisierbar ist, folgt hieraus ein nahezu unterbrechungsfreier Betrieb. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es daher ein Direktmethanol-Brennstoffzellen-System für den Bereich leichte Traktion zu entwickeln. Die systemtechnische Entwicklung und Charakterisierung eines mobilen Direktmethanol-Brennstoffzellen-Systems erfolgt zuerst allgemein und anschließend angewandt auf das Beispiel Horizontalkommissionierer aus der Klasse der Flurförderfahrzeuge. Hierfür soll sowohl ein Hybridisierungs- als auch ein Regelungskonzept entwickelt werden. Die gewählte Vorgehensweise gliedert sich in die Charakterisierung der Anwendung, die theoretische Konzeptentwicklung und eine abschließende Systemanalyse mithilfe von Untersuchungen am Teststand und Simulationen. Aus der Charakterisierung folgt der charakteristische Fahrzyklus der Anwendung. Die Eckdaten, wie maximale Peakleistungen beim Beschleunigen und Bremsen sowie die Durchschnittsleistung bilden die Grundlage für die Konzeptentwicklung. Die theoretische Entwicklung eines Hybridisierungskonzeptes erfolgt zweistufig auf Basis eines reinen Brennstoffzellenfahrzeuges. Eine Systemanalyse aller möglichen Konzepte bezüglich der Kriterien Brennstoffzellenleistung, Gesamtsystemwirkungsgrad und dynamische Brennstoffzellenbelastung führt schließlich zum favorisierten Konzept einer indirekten Kopplung. Das dafür entwickelte Regelungskonzept eines Kaskadenreglers mit Kennfeldregelung hält den Energiespeicher auf einem konstanten Ladezustand und sieht für die Brennstoffzelle einen Alterungsschutz sowie eine Alterungserkennung vor. Für die Dimensionierung von Brennstoffzelle und Energiespeicher spielen der Fahrzyklus, die Betriebszustände des Fahrzeugs und die Einzelwirkungsgrade der Komponenten eine entscheidende Rolle. Eine Parametervariation führt zu einer minimal benötigten Brennstoffzellenleistung von 1,3 kW und einer minimalen Energiedichte von 66 Wh/l bzw. einer minimalen Leistungsdichte von 355 W/l für den Energiespeicher. Die hohe benötigte Energiedichte und die Tatsache, dass der Energiespeicher immer auf einem Teilladezustand betrieben werden muss, was vor allem Bleibatterien schneller altern lässt, führt als Ergebnis zu einer Lithiumbatterie als Energiespeicher.

Trappmann, C.

Metallische Bipolarplatten für Direkt-Methanol-Brennstoffzellen

Aachen, Techn. Hochsch., Diss., 2010

Die Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (DMFC) wandelt die chemische Energie des flüssigen Energieträgers Methanol effizient in elektrische Energie um. Eine Schlüsselkomponente der DMFC ist die Bipolarplatte, die die Prozessmedien der elektrochemisch aktiven Fläche der Brennstoffzelle zu- und abführt, den Anoden- vom Kathodenraum trennt und den in der Zelle erzeugten elektrischen Strom ableitet. Traditionell werden Bipolarplatten aus grafitischen Materialien gefertigt, da Grafit elektrisch leitend und stabil unter den chemischen Bedingungen der DMFC ist. Aufgrund der hohen Sprödigkeit des Grafits haben die Konstruktionen vergleichsweise große Wandstärken, woraus eine geringe Bauraumausnutzung und ein hohes Gewicht resultiert. Metallische Werkstoffe erlauben dagegen durch ihre mechanischen Eigenschaften deutlich kompaktere Bipolarplatten. Problematisch ist jedoch die begrenzte Korrosionsbeständigkeit der meisten metallischen Werkstoffe. Die wenigen korrosionsbeständigen metallischen Werkstoffe sind entweder zu teuer oder bilden eine Passivierungsschicht aus, welche den Kontaktwiderstand und damit die elektrischen Verluste erhöht.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war die Entwicklung einer volumen- und gewichtsreduzierten Bipolarplatte aus korrosionsbeständigem Blechmaterial und einer preisgünstigen Beschichtung die den Kontaktwiderstand reduziert.

Zunächst wurde in Grundlagenuntersuchungen der Einfluss von Metall-Ionen aus nicht inerten Werkstoffen auf die DMFC bewertet. Dabei konnte zum einen gezeigt

werden, dass metallische Kontaminationen der Anodenflüssigkeit im ppb-Bereich die DMFC signifikant schädigen und zum anderen, dass Eisen- und Nickel-Ionen stärker schädigen als Chrom-Ionen.

Folgend wurde eine Nickelbasislegierung als korrosionsstabiler Werkstoff für die DMFC-Bipolarplatte identifiziert und damit eine metallische Bipolarplatte für DMFCs entwickelt. Diese per Hydroumformung hergestellte Bipolarplatte spart gegenüber grafitischen Bipolarplatten 30 % Bauraum und 50 % Gewicht ein. Durch die Entwicklung einer einzigartigen partiellen Beschichtung mit laserauftrags-geschweißten Goldpunkten konnte der Kontaktwiderstand der entwickelten metallischen Bipolarplatte um den Faktor fünf reduziert und die maximale elektrische Leistung um 30 % gesteigert werden. Da der Goldeinsatz dabei lediglich 1 % einer vollflächigen Beschichtung beträgt, ist diese partielle Beschichtung besonders materialsparend.

Abschließend wurde die Funktionalität dieser neuartigen metallischen Bipolarplatte in Langzeittests nachgewiesen. So erfüllt die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte metallische Bipolarplatte alle Voraussetzungen für den Einsatz in portablen Anwendungen der DMFC, womit schließlich ein entscheidender Schritt zur Erlangung der Marktreife der DMFC vollzogen werden konnte.

Wichtige Patente

Patentanmeldungen:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Prof. A.A. Kulikovsky	1.2394	Verfahren zur Erkennung und Lokalisierung von Defekten in einer Brennstoffzelle innerhalb eines Brennstoffzellenstapels
Dr. M. Müller	1.2398	Wärmeaustauscher
Prof. A.A. Kulikovsky	1.2426	Katalysatorschicht für den Einsatz in einer Brennstoffzelle sowie Verfahren zu dessen Herstellung

Erteilte Patente:

Principal inventor	PT	Description
Dr. J. Divisek	1.1770	Alkalische Direkt-Methanol Brennstoffzelle
J. Mergel	1.854	Brennstoffzellenstapel mit Kreislaufführung
H. Schmitz	1.858	Verfahren zu Katalysatorabscheidung
H. Schmitz	1.865	Verfahren zur Abscheidung eines Katalysators
Th. Bewer	1.873	Brennstoffzelle mit gleichmäßiger Verteilung von Betriebsmitteln
J. Mergel	1.1936	Vorrichtung zur Abgasreinigung für eine Direkt-Alkohol-Brennstoffzelle, Brennstoffzelle, bzw. einen daraus aufgebauten Brennstoffzellenstapel
D. Stolten	1.1962	Katalysatorschicht, Verfahren zur Herstellung derselben und Verwendung einer solchen in einer Brennstoffzelle
H. Schmitz	1.1982	Mikrostrukturierte Diffusionsschicht in Gasdiffusionselektroden
Dr. J. Bringmann	1.2948	Verfahren zur Abrennung von Katalysatorpartikeln
J. Mergel	1.2062	Niedertemperatur-Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben
J. Mergel	1.2067	Kathode für eine Direkt-Methanol-Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben
J. Mergel	1.2202	Niedertemperatur-Brennstoffzellenstapel sowie Verfahren zum Betreiben desselben
Dr. M. Müller	1.2326	Abgasreinigung für eine Brennstoffzelle bzw. Einen Brennstoffzellenstapel
Prof. A.A. Kulikovsky	1.2394	Verfahren zur Erkennung und Lokalisierung von Defekten in einer Brennstoffzelle innerhalb eines Brennstoffzellenstapels
Prof. A.A. Kulikovsky	1.2426	Katalysatorschicht für den Einsatz in einer Brennstoffzelle sowie Verfahren zu dessen Herstellung
Dr. M. Müller	1.2502	Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung von Membran-Elektroden-Einheiten für Brennstoffzellen

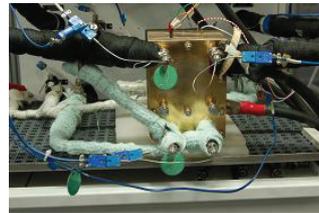
3.2 Hochtemperatur-Polymerlektrolyt-Brennstoffzellen

3.2.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Nutzfahrzeuge, Baumaschinen, Schiffe und Flugzeuge werden weiterhin auch längerfristig mit Diesel beziehungsweise Kerosin angetrieben. Wesentliche Energieeinsparungen lassen sich bei zunehmender Elektrifizierung durch effizientere Stromerzeugung an Bord realisieren. Diese sogenannten Bordstromversorgungen (englisch: Auxiliary Power Unit, APU) müssen aus Sicht der Endanwender in praktikabler Weise mit dem bereits an Bord befindlichen Kraftstoff betrieben werden, was die Reformierung dieser so genannten Mitteldestillate erfordert. Hierbei bietet die Hochtemperatur-Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC) in Kombination mit einer entsprechenden Reformertechnologie an Bord die Möglichkeit, Strom effizient zu erzeugen, insbesondere auch in Stillstandszeiten des Antriebsaggregates.

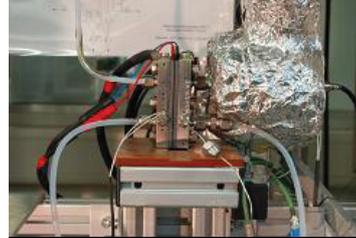
Die HT-PEFC, basierend auf phosphorsäuredotierten Polybenzimidazol-Membranen, hat eine typische Arbeitstemperatur von 160 °C. Aufgrund des hohen Temperaturniveaus hat sie eine hohe CO-Toleranz, was sie für den Betrieb in Kombination mit Reformern prädestiniert. Im Gegensatz zu Nafion basierten Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen ist Wasser für die ionische Leitfähigkeit der Membran nicht notwendig; eine Befeuchtung der Gase ist somit nicht erforderlich. Ein weiterer Vorteil der HT-PEFC-Technologie ergibt sich aus dem hohen Temperaturunterschied zwischen dem Stack und der Umgebungstemperatur; die Kühlung kann deutlich kompakter gestaltet werden als bei klassischen PEMFC-Systemen.

Bei allen Vorteilen muß jedoch verhindert werden, daß die Säure aus der Membran ausgetragen wird; Betriebsbedingungen bei denen flüssiges Wasser in den Zellen entstehen kann, sollten vermieden werden. Darüber hinaus zeigt sich unterhalb einer Temperatur von 60 °C, daß der Membranwiderstand deutlich ansteigt. Ein Betrieb im niedrigen Temperaturbereich ist somit zu vermeiden, was aufgrund der Betriebsstrategien und der spezifischen Einsatzbereiche berücksichtigt wird.



Seit 2005 werden im IEF-3 Forschungsarbeiten im Bereich der HT-PEFC durchgeführt. Dies sind auf der einen Seite Arbeiten im Bereich der Elektrodenentwicklung und auf der anderen Seite Arbeiten im Bereich der Stackentwicklung. Aufgrund der positiven Erfahrungen mit dieser Technologie und der Abschätzung der möglichen Einsatzpotentiale wurde beschlossen, das Thema als neuen Schwerpunkt innerhalb der Brennstoffzellenforschung zu etablieren. Folgerichtig wurde im Jahr 2008 die neue Abteilung „Hochtemperatur-Polymerlektrolyt-Brennstoffzelle“ gegründet. Die derzeitigen Schwerpunkte der Abteilung umfassen drei Themen. Diese sind Elektrodenentwicklung, Stackentwicklung im 5 kW Leistungsbereich und Modellierung und Simulation.

Aufgrund der langjährigen Erfahrungen des Instituts in der SOFC und DMFC Forschung und Entwicklung sind Synergieeffekte vorhanden, die die HT-PEFC Entwicklung beschleunigen. Wesentliche, im Bereich der DMFC etablierten Methoden, der Elektroden-, Zell-, und Stack-technologie, konnten adaptiert werden. Bei den verfahrenstechnischen Simulationen zur Auslegung von Zellen und Stacks konnte auf die Erfahrungen aus dem SOFC-Bereich zurückgegriffen werden. Somit war es in den letzten Jahren möglich das neue Themenfeld effektiv als einen neuen Schwerpunkt aufzubauen.



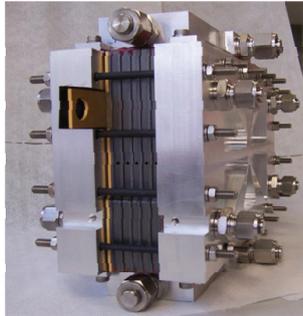
Gestützt wird die Aktivität durch nennenswerte Investition im Labor. Die vorhandenen Einzelzellteststände wurden teilweise modifiziert. Darüber hinaus wurden zwei neue Teststände, speziell ausgelegt für die HT-PEFC Technologie beschafft und in Betrieb genommen. Mit diesen beiden Testständen wird nun der Stack-Leistungsbereich bis 5 kW_{el} abgedeckt.

3.2.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.2.2.1 HT-PEFC Stackentwicklung

Das Ziel der Stackentwicklung ist es HT-PEFC-Stacks der Leistungsklasse von 5 kW auszuliegen, zu bauen und zu testen. Im Blickpunkt der Entwicklung stehen dabei insbesondere die Anwendungen im Bereich der Bordstromversorgung für den sich die HT-PEFC in Kombination mit einem Reformer besonders eignet. Speziell dann, wenn der Kraftstoff verwendet werden kann, der sich im Fahrzeug befindet. Da auch in Zukunft sowohl Diesel als auch Kerosin zum Einsatz kommen werden, erfolgt die Auslegung der Stacks für das Reformatgas, mit typischerweise 33 % Wasserstoff und 1 % Kohlenmonoxid im feuchten Reformat. Aufgrund der Betriebstemperatur zwischen 140 °C und 180 °C sind die Stacks in der Lage, den hohen CO-Gehalt im Brenngas zu verkraften. Die Stacks sind für den Betrieb mit Umgebungsdruck ausgelegt und benötigen, aufgrund des Einsatzes der phosphorsäuredotierten PBI Membranen keine externe Befeuchtung, was zu einem vereinfachten Systemlayout führt. In den Stacks werden sowohl eigenen MEAs als auch MEAs von Kooperationspartnern verbaut.

Nach erfolgreichem Abschluss der Konzeptentwicklung für einen HT-PEFC-Stack der 5 kW Klasse wurden zunächst mehrere Shortstacks aufgebaut und elektrochemisch charakterisiert. Dabei wurden Langzeitstabilität, Leistung und Wirkungsgrad sowie Stromdichte- und Temperaturverteilung im Stack analysiert. Die Basisdaten des entwickelten Shortstacks sind in Abb. 38 aufgeführt. Der Stack wird bei Umgebungsdruck betrieben. Der Zellstapel wurde sowohl im Wasserstoffbetrieb als auch im Reformatbetrieb getestet. Das Verhalten des Stapels im Reformatbetrieb ist in Hinblick auf den geplanten Einsatz als Bordstromaggregat interessant. Dabei wird der Zellstapel mit einem wasserstoffreichen Gas aus einem angekoppelten Brenngaserzeugungssystem versorgt. Weitere Bestandteile dieses Gasgemischs sind Stickstoff, Kohlendioxid und Kohlenmonoxid.



Wirkungsgrad	$\eta_{BZ} = 40 - 55 \%$
Betriebstemperatur	$T = 140 - 180 \text{ }^\circ\text{C}$
MEA	BASF Celtec [®] -P1000
Aktive Zellfläche	200 cm ²
Brennstoff	Wasserstoff oder Reformat
Kühlung	Öl

Abb. 38: HT-PEFC Shortstack

Langzeitstabilität

Im Hinblick auf die Lebensdauer sind zwei Aspekte von Relevanz. Zum einen das Alterungsverhalten der Membran-Elektroden-Einheit (MEA), zum anderen die Haltbarkeit der übrigen Stack-Komponenten. Dabei kommt vor allem der Auswahl des Dichtungskonzepts eine große Bedeutung zu.

Die Alterungskurven zweier Shortstacks sind in Abb. 39 aufgetragen. StackII2009-5 wurde mit synthetischem Reformat der andere mit Wasserstoff auf der Anode betrieben. Die durchschnittliche Alterungsrate während der jeweils knapp 1.000 Stunden dauernden Versuche lag bei 70 $\mu\text{V/h}$ für den Betrieb mit synthetischem Reformat bzw. 60 $\mu\text{V/h}$ für den Betrieb mit Wasserstoff.

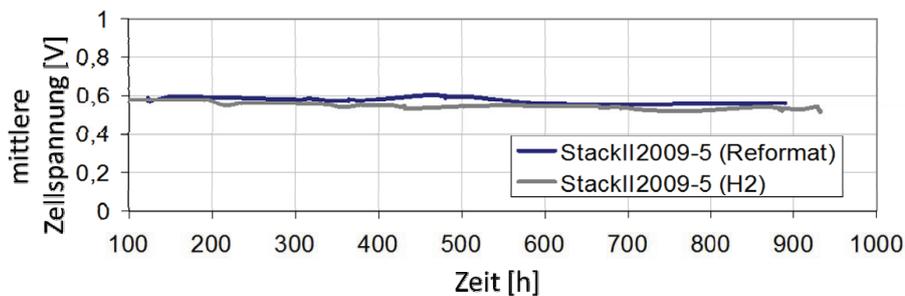


Abb. 39: Lebensdauer BASF Celtec[®]-P1000 MEA im Stackbetrieb

Die ersten Betriebserfahrungen zeigten, dass der Stack mit steigender Laufzeit eine Ölundichtigkeit nach außen aufwies. Deshalb wurde das Dichtungskonzept weiterentwickelt. Zuerst wurde ein Konzept mit O-Ringen zugunsten der Abdichtung mit einer Sigraflex Flächendichtung aufgegeben. In einem zweiten Schritt wurden die Graphitplatten zusätzlich am Rand verklebt. Mit dieser Konfiguration wurde ein Shortstack 2.500 Stunden ohne Ölverlust im Dauertest betrieben.

Leistung und Wirkungsgrad

Leistung und Wirkungsgrad wurden durch Aufnahme von Strom-Spannungs-Kennlinien bestimmt (Abb. 40). Die Shortstacks wurden dabei sowohl mit reinem Wasserstoff auf der Anodenseite als auch mit Reformat betrieben. Auf der Kathodenseite wurde bei allen Versuchen Luft zugeführt. Der Betrieb mit Reformat führt aufgrund der Vergiftung des Katalysators mit Kohlenmonoxid und der geringeren Wasserstoffkonzentration zu einer schlechteren Strom-Spannungs-Charakteristik. Der Vergleich der mit reinem Wasserstoff und Reformat aufgenommenen Polarisationskurven zeigt auch, dass die Abhängigkeit der Zellspannung von der Temperatur im Reformatbetrieb größer ist.

Details der Konstruktion und Ergebnisse der Betriebstests der in den Jahren 2008 bis 2010 demonstrierten Stacks wurden im Rahmen einer Schriftenreihe veröffentlicht [6].

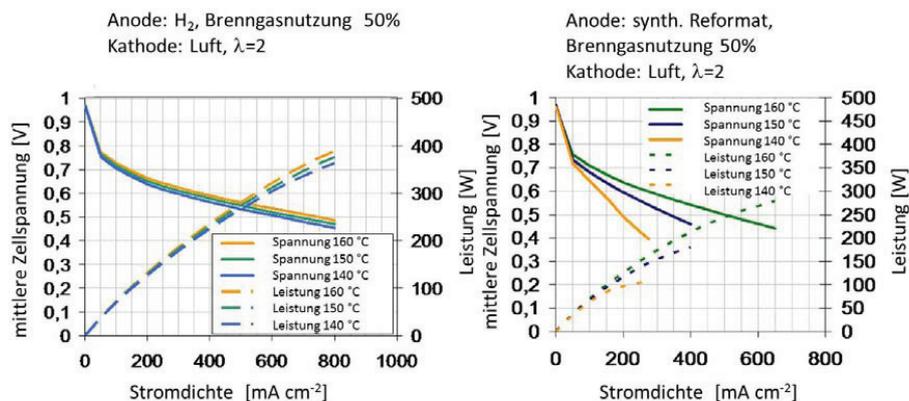


Abb. 40: Polarisationskurven Wasserstoff (links) und Reformat (rechts)

Stromdichte- und Temperaturverteilung

Zur Bewertung des Short-Stack-Konzepts und zum Aufzeigen des Optimierungspotentials wurden Stromdichte- und Temperaturverteilung über der Zellfläche gemessen. Lokale Problemstellen, erkennbar durch stark variierende lokale Stromdichten oder Temperaturerhöhung, können zu einer beschleunigten Alterung des Brennstoffzellenstapels führen. Zur Messung von Stromdichte- und Temperaturverteilung wurde ein für den entworfenen Stack maßgefertigtes Produkt der Firma S++ eingesetzt. Zentrales Bauteil ist eine segmentierte Messplatte. In 390 über die Zellfläche verteilten Segmenten wird der lokale Strom gemessen, an 65 Stellen die Temperatur. Der Vorteil des eingesetzten Messsystems gegenüber anderen Methoden besteht darin, dass für die Messung keine konzeptionellen Änderungen am Stack vorgenommen werden müssen. Die Messplatte wurde zwischen den Zellen drei und vier eines fünfzelligen Shortstacks installiert. Um die Stackinnentemperatur zu überwachen und die Temperatursensoren der Messplatte zu kalibrieren, wurden zusätzlich vor der ersten und

[6] Bendzulla A. Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Vol. 69, ISBN 978-3-89336-634-7, 2010

hinter der letzten Zelle des Stacks Graphitplatten mit Kanälen zum Einbringen von Thermoelementen eingebaut.

Abb. 41 zeigt die gemessene Stromdichte- und Temperaturverteilung an einem Betriebspunkt beim Betrieb mit Wasserstoff und Luft. Die lokale Stromdichte fällt vom Kathodeneingang (oben rechts) zum Kathodenausgang (unten links) ab. Dieser Abfall ist auf die Abreicherung des Sauerstoffs in der Kathodenluft zurückzuführen. Die Zelltemperatur steigt vom Bereich des Eintritts des Kühlmediums (oben) zum Ausgang des Kühlmediums (unten) an. Der Temperaturanstieg findet dabei in der oberen Hälfte der Zellfläche statt. Im unteren Bereich stellt sich eine gleichförmigere Temperaturverteilung ein.

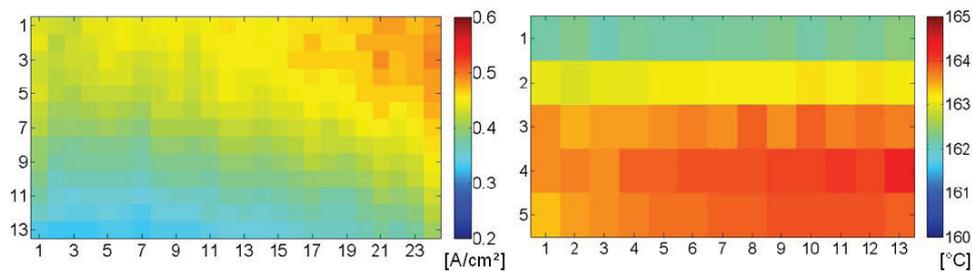


Abb. 41: Stromdichteverteilung (links) und Temperaturverteilung (rechts) von StackII-2010-4 bei Betrieb mit Wasserstoff und Luft

Der gleichmäßige Verlauf beider Diagramme belegt die Qualität des Stackkonzepts. Es sind keine lokalen Problemstellen, erkennbar an Diskontinuitäten in Stromdichte- und Temperaturverteilung, sichtbar. Aktueller Forschungsgegenstand ist die Optimierung der Strömungsführung im Reformatbetrieb mit Hilfe der Stromdichte- und Temperaturverteilungsmessung.

3.2.2.2 Elektroden- und MEA-Entwicklung

In HT-PEFCs wird mit Phosphorsäure dotiertes ABPBI (Poly(2,5-benzimidazol) als Elektrolyt in den Membran-Elektroden-Einheiten (MEAs) eingesetzt. Der Elektrolyt zeichnet sich dabei durch eine hohe protonische Leitfähigkeit bei Arbeitstemperaturen um 160 °C aus. Um die Leistung sowie die Lebensdauer von HT-PEFCs zu erhöhen ist es notwendig MEAs herzustellen, in denen sich die Verteilung der Phosphorsäure innerhalb der Membran, den Katalysatorschichten und den Gasdiffusionsschichten genau einstellen lässt. Bis zum jetzigen Zeitpunkt existierten ausschließlich ex-situ Messungen beziehungsweise Mittelungsverfahren zur Bestimmung der Phosphorsäureverteilung innerhalb der MEAs. Aufgrund dessen wurden hoch Orts- und zeitaufgelöste in-situ Messungen mit Synchrotronstrahlung durchgeführt mit der Absicht die lokale Verteilung von Phosphorsäure innerhalb der MEA sichtbar zu machen ohne den Brennstoffzellenbetrieb zu unterbrechen.

In Abb. 42 sind normierte Radiogramme (normiert in Bezug auf ein Referenzbild zu Beginn der Messungen) des MEA-Querschnitts einer HT-PEFC bei unterschiedlichen Stromdichten aufgezeigt. In der Mitte der Abbildung ist die Membran zu erkennen, angrenzend daran befinden sich zur linken und zur rechten Seite jeweils die Anoden- und Kathodenkatalysatorschichten, die auf Gewebe-Gasdiffusionsschichten (GDLs) aufgerakelt sind. Abb. 42 a) und e) zeigen die Zelle im stromlosen Zustand (OCV), während die Abbildungen b), c) und d) den Zell-

betrieb bei unterschiedlichen Stromdichten darstellen. Es wird eine Zunahme der Membrandicke in Abhängigkeit von der Stromdichte beobachtet. Die trockene, undotierte ABPBI-Membran weist eine Dicke von $30 \pm 2 \mu\text{m}$ auf (hier nicht abgebildet). Nach der Assemblierung der Membran mit den mit Phosphorsäure dotierten Elektroden quillt die Membran auf ca. $55 \pm 3 \mu\text{m}$ (Abb. 42 a) aufgrund der Aufnahme von Phosphorsäure aus den Elektroden. Ein Umschalten von OCV auf 140 mA cm^{-2} führt zu einer weiteren Quellung der Membran auf $65 \pm 3 \mu\text{m}$ nach einer Betriebsdauer von ca. 15 min (Abb. 42 b sowie Einschub). Ein weiteres Erhöhen des Stromes führt zu keiner signifikanten weiteren Quellung der Membran, was möglicherweise darauf zurückzuführen ist, dass sehr kleine Ausdehnungen aufgrund der räumlichen Auflösung nicht mehr sichtbar gemacht werden können.

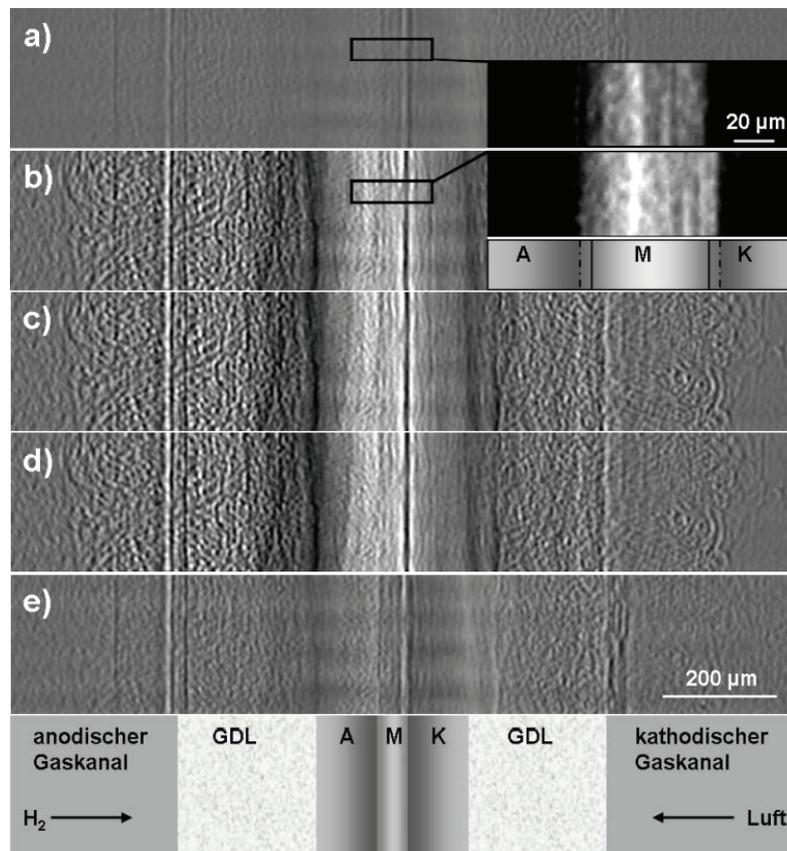


Abb. 42: Normierte Radiogramme des MEA-Querschnitts bei unterschiedlichen Stromdichten j :
a) 0 mA cm^{-2} (OCV vorher), b) 140 mA cm^{-2} , c) 300 mA cm^{-2} , d) 550 mA cm^{-2} und
e) 0 mA cm^{-2} (OCV nachher). Einschub: Nicht normierte, vergrößerte Radiogramme
der Membran und Teilen der Katalysatorschichten bei OCV und 140 mA cm^{-2}
(GDL: Gasdiffusionsschicht, A: Anode, M: Membran, K: Kathode) [7]

[7] Maier, W.; Arlt, T.; Wannek, Ch.; Manke, I.; Riesemeier, H.; Krüger, Ph.; Scholta, J.; Lehnert, W.; Banhart, J.; Stolten, D.: In-situ synchrotron X-ray radiography on high temperature polymer electrolyte fuel cells, *Electrochemistry Communications* 12 (2010), 1436-1438

Die Zunahme der Membrandicke könnte auf mehrere Ursachen zurückgeführt werden: I) die Verdünnung/Hydratisierung von Phosphorsäure in der Membran durch Produktwasser, II) der Transport von weiterer Phosphorsäure aus den Poren der Elektrodenschichten in die Membran und III) eine Kombination aus den beiden ersten Möglichkeiten. Um sicherzustellen welche dieser Ursachen nun für die Quellung verantwortlich ist, ist es notwendig die Transmission (bzw. Grauwerte) innerhalb der MEA zu betrachten.

Abb. 43 zeigt die Transmission innerhalb der MEA bei unterschiedlichen Betriebszuständen. Die Grauwerte wurden aus normierten Radiogrammen entnommen und spiegeln Transmissionsänderungen wider. Dabei werden die aktuellen Radiogramme durch ein Referenzradiogramm dividiert. Ein Grauwert > 1 steht für eine Zunahme der Transmission im aktuellen Radiogramm im Vergleich zum Referenzbild, während ein Grauwert < 1 eine Abnahme der Transmission im aktuellen Radiogramm bedeutet. Ist der Grauwert gleich 1 so bedeutet dies, dass sich die Transmission zwischen aktuellem und Referenzradiogramm nicht geändert hat.

Die Ergebnisse aus Abb. 43 zeigen, dass ein Umschalten von OCV auf 140, 300 oder 500 mA cm^{-2} einen Anstieg der Transmission in der Membran (M) bewirkt. Diese Transmissionszunahme kann durch die Bildung von Produktwasser erklärt werden. Das Produktwasser führt zu einer Verdünnung/Hydratisierung der Phosphorsäure und somit zu einem Anschwellen der Membran. Der Abschwächungskoeffizient von Wasser (0.157 cm^{-1} bei 30 keV) ist dabei ca. eine Größenordnung kleiner als der von Phosphorsäure (1.020 cm^{-1} bei 30 keV). Somit kann eine Transmissionserhöhung nur auf eine Wasserzunahme innerhalb der Membran und zu einem Aufbau von Hydratisierungsprodukten der Phosphorsäure zurückgeführt werden.

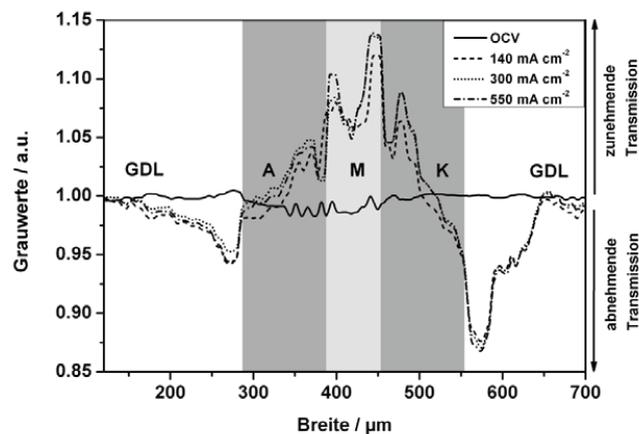


Abb. 43: Grauwerte innerhalb der MEA bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen: OCV (durchgezogene Linie), 140 mA cm^{-2} (gestrichelte Linie), 300 mA cm^{-2} (gepunktete Linie) und 550 mA cm^{-2} (strichpunktierte Linie). Die Membrandicke bei unterschiedlichen Betriebszuständen wurde aus den nicht normierten Radiogrammen abgelesen und ist hier durch die grau schraffierte Fläche dargestellt [7]

Ein weiterer Effekt kann innerhalb der Kathodenkatalysatorschicht (K) beobachtet werden. An der Membran-/Elektrodenrenzfläche kann ebenfalls eine Erhöhung der Transmission beobachtet werden. Die Phosphorsäure, die sich auch in den Poren der Katalysatorschicht in der

Nähe der Membran befindet, wird auch hier durch entstandenes Produktwasser verdünnt/hydratisiert. Aufgrund der Tatsache, dass ca. 20 % des Produktwassers auf die Anodenseite (A) diffundieren sind diese Verdünnungs-/Hydratisierungs-Prozesse dort ebenfalls sichtbar. An der Elektroden-/GDL-Grenzfläche ist eine Abnahme der Transmission zu beobachten. Diese Abnahme kann auf ein Füllen von zuvor leeren Poren in den Katalysatorschichten zurückgeführt werden. Während der Einfahrprozedur diffundiert ein wesentlicher Teil der sich zuvor in den Katalysatorschichten befindlichen Phosphorsäure in die Membran. Die Poren der Katalysatorschicht, die sich an der Grenzfläche zur GDL hin befinden, verbleiben dadurch zum Teil ungefüllt. Werden diese Poren nun mit Phosphorsäure gefüllt, führt dies zu einer Abnahme der Transmission.

Die präsentierten Ergebnisse zeigen, dass Synchrotron-Radiographie eine effiziente Methode zur Bestimmung der lokalen Zusammensetzung von MEAs in HT-PEFCs während des Betriebes darstellt. Sie ermöglicht einen Einblick in die Prozesse während unterschiedlicher Betriebszustände und führt somit zu einem besseren Verständnis des Brennstoffzellenbetriebes. Dadurch wird es möglich das MEA-Design zu optimieren, die Zelleistung zu steigern und Degradationsmechanismen besser zu verstehen.

In Zukunft sollen weitere Synchrotron-Messungen durchgeführt werden um quantitative Analysen des Wasserhaushaltes in der MEA bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen sowie während der Einfahrprozedur durchzuführen und den Einfluss auf die Leistung und Lebensdauer von HT-PEFCs zu untersuchen.

3.2.2.3 Modellierung / Simulation

Die Entwicklung von Brennstoffzellen und Brennstoffzellenstapeln stützt sich im IEK-3 sowohl auf solide ingenieurwissenschaftliche Ansätze als auch auf naturwissenschaftliche Grundlagen. Beide Aspekte sind gleichermaßen wichtig, da sich Strömungsverteilung der Medien und elektrochemische Prozesse gegenseitig stark beeinflussen. Die numerische Strömungssimulation (engl. computational fluid dynamics, CFD) in Kombination mit elektrochemischen Modellen stellt dabei ein sehr gut geeignetes Werkzeug zur Beschreibung der Prozesse auf Zellebene und Modulebene dar. Im Folgenden sollen 2 ausgewählte Beispiele aufzeigen, welche Erkenntnisse sich aus der Modellierung erhalten lassen.

Modellierung einer Testzelle

Das grundlegende Verhalten von neuen Materialien (z. B: neue Katalysator-Schichten), bzw. das Verhalten bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen wird in sogenannten Testzellen experimentell geprüft. Diese Zellen haben eine aktive Fläche von ca. 16 cm². Durch ihren unkomplizierten Aufbau (Abb. 44) stehen sie schnell für die unterschiedlichsten Tests zur Verfügung.

Trotz des relativ einfachen Aufbaus sind die Vorgänge im Inneren der Testzelle recht komplex. Besonders das Zusammenspiel von elektrochemischen Reaktionen, Strömung und Gesamtwärmehaushalt lässt sich nur mit bedingter räumlicher Auflösung messtechnisch erfassen. Andererseits lässt sich die Testzelle hinreichend gut experimentell charakterisieren, um als Validierungsobjekt für komplexere Modelle zu dienen. Aus diesem Grund wurde ein CFD-Modell erstellt, welches im ersten Schritt die vorhandene Testzelle abbildet.

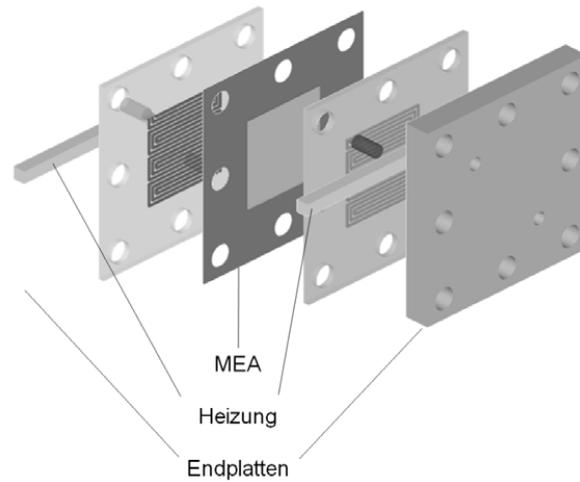


Abb. 44: Schematischer Aufbau einer Testzelle

Als ausgewähltes Beispiel ist in Abb. 45 die Temperaturverteilung der Testzelle im Betrieb gezeigt. Man kann sehr deutlich den dominanten Einfluss der beiden Heizstäbe erkennen. Der maximale Temperaturunterschied zwischen verschiedenen Punkten der Oberfläche beträgt ca. 7 K, welches auch mit Hilfe einer Infrarotkamera bestätigen wurde.

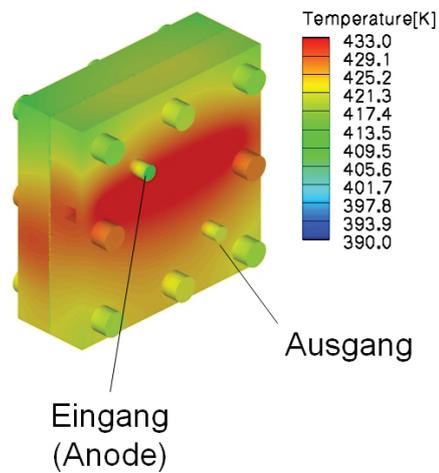
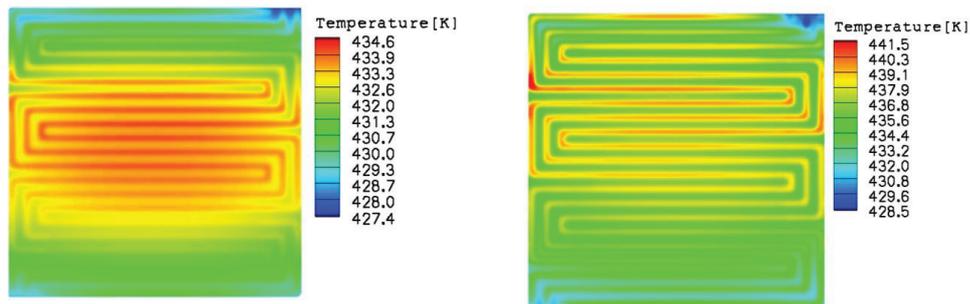


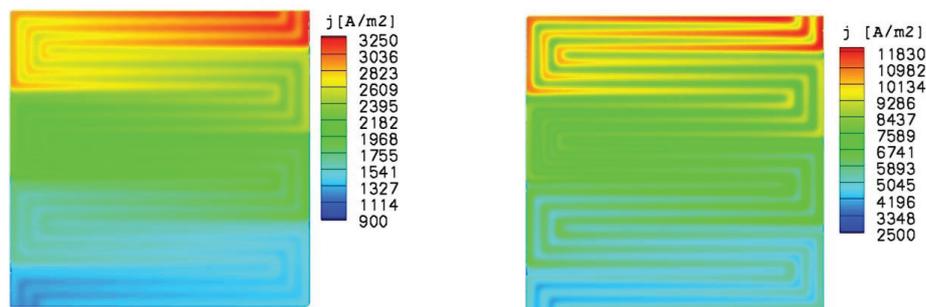
Abb. 45: Temperatur der Testzelle im Betrieb (Simulation) - H₂/Luft bei Stöchiom. 2.0/2.0 und $j = 200 \text{ mA/cm}^2$

Eine wichtige Fragestellung ist der Zusammenhang zwischen Stromdichteverteilung und Temperaturverteilung, da die elektrochemische Reaktion nicht nur Wärme liefert, sondern die Kinetik der Reaktion selbst von der Temperatur abhängt. In Abb. 46 sind Temperatur- und Stromdichteverteilung an der aktiven Fläche der MEA dargestellt. Es ist deutlich erkennbar, dass Temperaturverteilung und Stromdichteverteilung scheinbar nur sehr wenig gekoppelt sind. Die auftretenden Temperaturgradienten sind zu klein, um eine wesentliche Auswirkung

auf den Betrieb der Brennstoffzelle mit reinem Wasserstoff zu haben. Wird die Zelle jedoch mit Reformat betrieben, ist eine sehr viel stärkere Kopplung zu erwarten. Die unterschiedlichen Skalen in Abb. 46 weisen auch darauf hin, dass die auftretenden Unterschiede in der Temperatur recht klein sind. Dagegen zeigt die Verteilung der Stromdichte einen scheinbar vom Betriebspunkt unabhängigen Verlauf.



a) Temperaturverteilung an der MEA bei $j = 200 \text{ mA/cm}^2$ b) Temperaturverteilung an der MEA bei $j = 700 \text{ mA/cm}^2$

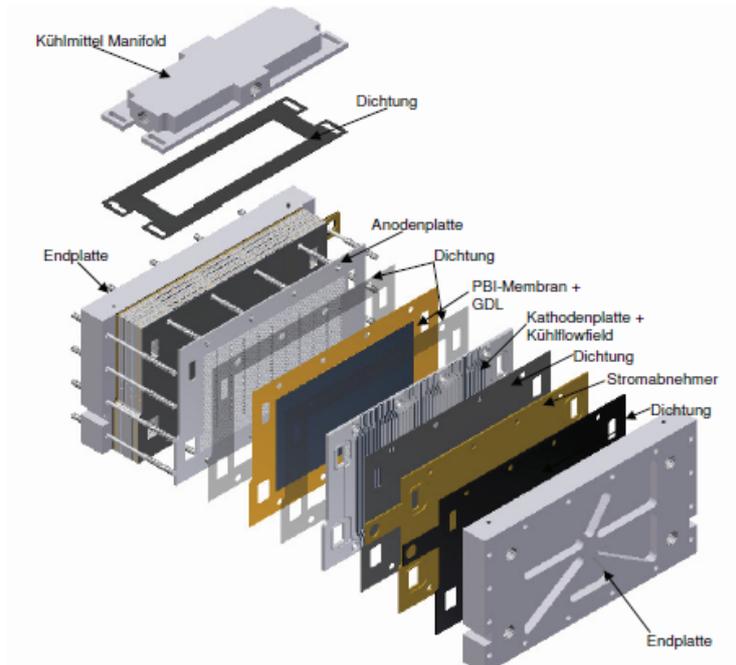


c) Stromdichteverteilung an der MEA bei $j = 200 \text{ mA/cm}^2$ d) Stromdichteverteilung an der MEA bei $j = 700 \text{ mA/cm}^2$

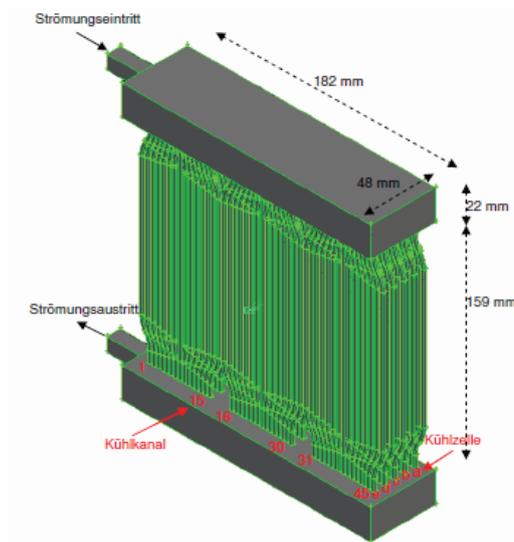
Abb. 46: Temperatur- und Stromdichteverteilung (Simulation) - Betrieb H_2/Luft bei Stöchiom. 2.0/2.0

Modellierung von Brennstoffzellenmodulen

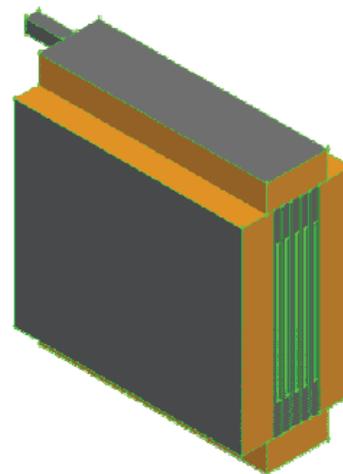
Wie im vorangegangenen Abschnitt erwähnt, werden einzelne Testzellen extern beheizt, um die Betriebstemperatur von ca. $160 \text{ }^\circ\text{C}$ aufrecht zu erhalten. Größere Brennstoffzellenmodule weisen ein komplexeres Anforderungsprofil an das Wärmemanagement auf. Zum Aufheizen und beim Betrieb mit niedriger elektrischer Leistung müssen diese Module von extern beheizt werden, während im mittleren und oberen Leistungsbereich überschüssige Wärme aus dem Modul abgeführt werden muss. Dabei sollte stets eine möglichst konstante Betriebstemperatur gewährleistet sein. Deshalb ist das sogenannte Kühlsystem (welches Wärme sowohl zu- als auch abführt) eine wichtige Komponente für größere Module.



a) Explosionszeichnung eines HT-PEFC Brennstoffzellenmoduls



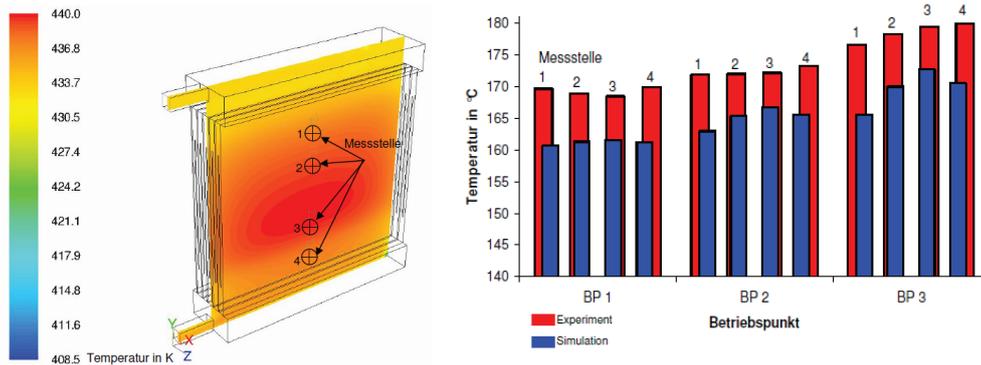
b) CFD Modell für ein 5-Zellen-Modul (nicht isoliert)



c) CFD Modell für ein 5-Zellen-Modul (mit Isolierung)

Abb. 47: Schematischer Aufbau und CFD Modell eines HT-PEFC Brennstoffzellenmoduls

Im Rahmen einer Diplomarbeit [8] wurde deshalb das Kühlsystem eines bereits vorhandenes Moduls als CFD-Modell abgebildet und eine mögliche Strategie zur Verbesserung aufgezeigt. Als erster Schritt muss aufgrund der sehr komplexen Geometrie der Module eine geeignete Modellreduktion durchgeführt werden. Dabei werden die Strömungskanäle als effektives poröses Medium abgebildet, welches die numerische Strömungssimulation wesentlich vereinfacht und die Simulation solcher Module erst ermöglicht. In Abb. 47 ist der Aufbau eines solchen Moduls und das resultierende CFD-Modell dargestellt.



a) Position der Temperaturmessfühler

b) Gegenüberstellung der Temperaturen aus Experiment und Simulation

Abb. 48: Temperaturverteilung des Moduls bei unterschiedlichen Betriebspunkten (BP 1: $j = 100 \text{ mA/cm}^2$; BP 2: $j = 300 \text{ mA/cm}^2$; BP 3: $j = 500 \text{ mA/cm}^2$)

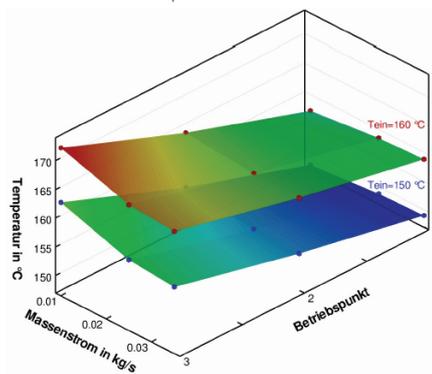


Abb. 49: Mittlere Temperaturen an der aktiven Fläche innerhalb des HT-PEFC Moduls in Abhängigkeit vom Massenstrom und der Eintrittstemperatur des Kühlmittels (BP 1: $j = 100 \text{ mA/cm}^2$; BP 2: $j = 300 \text{ mA/cm}^2$; BP 3: $j = 500 \text{ mA/cm}^2$)

[8] Supra, J.: Aktive Kühlung von Brennstoffzellen in Flugzeugsystemen - CFD Simulationen für den Typ HT-PEFC, RWTH Aachen University, 2010

Zur Validierung des Modells wurden experimentelle Temperatur-Messungen mit Simulationsergebnissen verglichen. Die Gegenüberstellung (s. Abb. 48) zeigt eine hinreichende Genauigkeit im Rahmen des gewählten Modells.

Als Hauptaussage wurde erhalten, dass die gewählte Konfiguration des Kühlsystems eine sehr homogene Temperaturverteilung gewährleistet. In Abhängigkeit des Betriebspunktes ist jedoch eine aktive Steuerung der Eintrittstemperatur des Kühlmediums notwendig, um bei hohen Stromdichten die maximal erlaubte Temperatur nicht zu überschreiten. Wählt man aus pragmatischen Gründen eine konstante Temperatur des Kühlmediums, so ergibt sich ein gewisses Betriebsfenster, innerhalb dessen ein solches Modul ohne Schaden betrieben werden kann (s. Abb. 49).

3.2.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
PD Dr. W. Lehnert	3915 w.lehnert@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen
J. Bohner	5172 j.bohner@fz-juelich.de	HT-PEFC Stackentwicklung
J. Brinkmann	2177 j.brinkmann@fz-juelich.de	Modellierung auf Zellkomponentenebene
D. Froning	6676 d.froning@fz-juelich.de	Modellierung von Brennstoffzellen, Informatik, Software Engineering
B. Kohnen	5406 b.kohnen@fz-juelich.de	Betreuung von HT-PEFC Testständen und Untersuchungen von HT-PEFCs
Prof. Dr. A. Kulikovskiy	5396 a.kulikovskiy@fz-juelich.de	Entwicklung analytischer und numerischer Modelle von HT-PEFCs, DMFCs und SOFCs
M. Kvesic	5396 m.kvesic@fz-juelich.de	Stackmodellierung
F. Liu	9036 f.liu@fz-juelich.de	Elektrodencharakterisierung
L. Lücke	8965 l.lueke@fz-juelich.de	Betriebsverhalten von HT-PEFC Stacks
W. Maier	9073 w.maier@fz-juelich.de	Elektrodencharakterisierung
A. Majerus	3018 a.majerus@fz-juelich.de	Membran- und Elektrolytcharakterisierung
Dr. M. Nullmeier	9074 m.nullmeier@fz-juelich.de	HT-PEFC Grundlagenelektrochemie
M. Prawitz	2574 m.prawitz@fz-juelich.de	PEFC, Untersuchung und Charakterisierung von HT-PEFCs
Dr. U. Reimer	3537 u.reimer@fz-juelich.de	Leiter Gruppe HT-PEFC Modellierung und Simulation

B. Schumacher	5406 b.schumacher@fz-juelich.de	Entwicklung von Teststandkonzepten für HT-PEFC und Untersuchungen von HT-PEFCs
J. Supra	6029 j.supra@fz-juelich.de	Entwicklung von HT-PEFC Stacks, Benchmarking von Stackmaterialien
R. Zeis	1923 r.zeis@fz-juelich.de	Leiterin Gruppe HT-PEFC Grundlagen-elektrochemie

3.2.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

Wichtige Veröffentlichungen

Wannek, Ch.; Konradi, I.; Mergel, J.; Lehnert, W.

Redistribution of Phosphoric Acid in Membrane Electrode Assemblies for High Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells

Int. J. Hydrogen Energy **23** (2009) 9479

We demonstrate that the performance of a high-temperature polymer electrolyte fuel cell with a phosphoric acid-based electrolyte is almost independent of the way of introducing the acid into the membrane electrode assembly (MEA). The same power densities were obtained with different MEAs in which the poly(2,5-benzimidazole) membrane was either pre-doped or not and in which either one or two catalyst layers were impregnated with H₃PO₄. Chemical analysis after shut down revealed that in all these MEAs the phosphoric acid distribution between the membrane and the electrodes was nearly the same. An MEA with acid impregnation via the electrodes was started up rapidly from room temperature, delivered a power density of 120 mWcm⁻² at 600 mV (H₂/air, 160 °C, ambient pressure) after only 11 min and was operated for 1000 h (degradation rate: 0.06 mV/h). Based on the analysis of the H₃PO₄ content in the MEA components, reflections on the kinetics of the redistribution of phosphoric acid within the MEA are provided.

Wannek, Ch.; Lehnert, W.; Mergel, J.

Membrane electrode assemblies for high-temperature polymer electrolyte fuel cells based on poly(2,5-benzimidazole) membranes with phosphoric acid impregnation via the catalyst layers

J. Power Sources **192** (2009) 258-266

A novel strategy for introducing phosphoric acid as the electrolyte into high-temperature polymer electrolyte fuel cells by using acid impregnated catalyst layers instead of pre-doped membranes is presented in this paper. This experimental approach is used for the development of membrane electrode assemblies based on poly(2,5-benzimidazole) (ABPBI) as the membrane polymer. The acid uptake of free-standing ABPBI used for this work amounts to ABPBI×3.1 H₃PO₄ which has a specific conductivity of ~80mScm⁻¹ at 140 °C. Rather thick catalyst layers (20 % Pt/C, 1mg Pt cm⁻², 40 % PTFE as binder, d = 100–150 μm) are prepared on gas diffusion layers with a dense hydrophobic microlayer. After impregnation of the catalyst layers with phosphoric acid and assembling them with a mechanically robust undoped ABPBI membrane a fast redistribution of the electrolyte occurs during cell start-up. Power densities of about 250 mWcm⁻² are achieved at 160 °C and ambient pressure with

hydrogen and air as reactants. Details of membrane properties, preparation and optimization of gas diffusion electrodes and fuel cell characterization are discussed. We consider our novel approach to be especially suitable for an easy and reproducible fabrication of MEAs with large active areas.

Kulikovsky, A.A.

Efficient Parallel Algorithm for Fuel Cell Stack Simulation

SIAM J. Appl. Math., **70** (2009) 531—542

A planar fuel cell stack is a layered structure consisting of repeated modules — membrane-electrode assemblies (MEAs) separated by bipolar plates (BPs). Generally, the distributions of voltage and temperature over the BP volume are described by three-dimensional Laplace equations. However, the thickness of a BP is much smaller than its in-plane size. This enables us to reduce a three-dimensional Laplace equation to a two-dimensional Poisson equation and to develop an efficient parallel algorithm for stack simulation. In the simplest variant, each individual module “MEA + BP” is solved on a separate processor. Typically, the number of cells in a stack is 10 to 100; this algorithm is thus most suitable for small- and medium-scale parallel machines. A much faster method is to cut every module into a number of “stripes” and to solve each stripe on a separate processor. Numerical tests with this method show that with eight stripes per module the solution of the electric problem is obtained roughly ten times faster than expected. Evidently, the striping algorithm provides much faster convergence of the iterative Poisson solver. The effect is presumably due to fast damping of high-frequency modes of potential in the iteration process. This algorithm may open up possibilities for fast simulation of real 100-cell stacks using massively parallel machines.

Thiedmann, R.; Hartnig, Ch.; Manke, I.; Schmidt, V.; Lehnert, W.

Local Structural Characteristics of Pore Space in GDLs of PEM Fuel Cells Based on Geometric 3D Graphs

J. Electrochem. Soc. **156** (2009) B1339 – B 1347

Physical properties affecting transport processes inside the gas diffusion layer (GDL) in polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cells mainly depend on the microstructure of its pore space. The presented characterization of the complex structure of the pore space is based on geometric three-dimensional (3D) graphs, which are marked to display transport-related properties such as pore diameters. This representation of the open volume allows for an investigation of local structural characteristics by considering local tortuosity characteristics, pore sizes, and connectivity characteristics, respectively. The notion of local shortest path length through the pore space of the GDL is introduced and the probability distribution of this random variable is computed. Its mean value is related to the (physical) tortuosity, which is given by the ratio of the mean effective path length through the GDL and its thickness. The developed methods are applied to simulated and to real (experimentally measured) 3D data. The used stochastic 3D model for the GDL is an extended version of the multilayer model proposed by Thiedmann et al. (*J. Electrochem. Soc.*, 155, B391 (2008)), including a more flexible modeling of binder. The numerical results show the sensitivity of the proposed local characteristics to varying binder modeling.

Wippermann, K.; Wannek, Ch.; Oetjen, H.-F.; Mergel, J.; Lehnert, W.

Cell Resistances of ABPBI-based HT-PEFC-MEAs: Time Dependence and Influence of Operating

J. Power Sources **195** (2010) 2806–2809

Time-dependent measurements of cell impedance of a HT-PEFC based on ABPBI were performed at constant frequencies close to the high-frequency (h.f.) intercept of the corresponding Nyquist plots with the real axis. The h.f. impedances approximate the ohmic resistance of the cell and they decrease, when current (140mAcm^{-2}) is switched on. Steady-state values are attained after 10 min. Vice versa, when current is switched off (OCV), the h.f. impedances instantaneously increase but reach steady-state values only after about 1 h. These values rise with increasing gas flow rates. The results are discussed in terms of hydration/dehydration processes, changing the equilibrium between orthophosphoric and pyrophosphoric acid and thus the conductivity of the electrolyte as well as the mobility of molecules and charge carriers. Impedance spectra were recorded after each time-dependent measurement under OCV conditions. The fit of these impedance data based on an equivalent circuit revealed ohmic resistances corrected by h.f. inductances and low frequency impedances associated with the cathode oxygen exchange reaction. The charge transfer resistances deduced from the low frequency impedances strongly depend on both air and hydrogen flow rates.

Kulikovsky, A.A.

The regimes of catalyst layer operation in a fuel cell

Electrochimica Acta, **55** (2010) 6391–6401.

A generalized Perry–Newman–Cairns model for performance of a generic catalyst layer (CL) with the Butler–Volmer conversion function is considered. The CL polarization curve, the rate of electrochemical conversion $S(x)$ and the thickness of the conversion domain l^* are derived for the cases of ideal transport of ions or feed molecules. In both cases, the CL may work in the low- or high-current regime. In the low-current regime with poor ionic transport, l^* is given by the Newman's current-independent reaction penetration depth. In the high-current regime, l^* is inversely proportional to the cell current, regardless of the origin of transport loss. The position and width of the transition region between the low- and high-current branches of the polarization curve are calculated. Based on these results, the features of catalyst layer performance in PEMFC, HT-PEMFC, DMFC and SOFC are discussed.

Wang, Y.; Cho, S.; Thiedmann, R.; Schmidt, V.; Lehnert, W.; Feng, X.

Stochastic Modeling and Direct Simulation of the Gas Diffusion Media for Polymer Electrolyte Fuel Cells

Int. J. Heat and Mass Transfer, **53** (2010) 1128–1138

This paper combines the stochastic-model-based reconstruction of the gas diffusion layer (GDL) of polymer electrolyte fuel cells (PEFCs) and direct simulation to investigate the pore-level transport within GDLs. The carbon-paper-based GDL is modeled as a stack of thin sections with each section described by planar two-dimensional random line tessellations which are further dilated to three dimensions. The reconstruction is based on given GDL data provided by scanning electron microscopy (SEM) images. With the constructed GDL, we further introduce the direct simulation of the coupled transport processes inside the GDL. The simulation considers the gas flow and species transport in the void space, electronic current

conduction in the solid, and heat transfer in both phases. Results indicate a remarkable distinction in tortuosities of gas diffusion passage and solid matrix across the GDL with the former ~1.2 and the latter ~13.8. This difference arises from the synthetic microstructure of GDL, i.e. the lateral alignment nature of the thin carbon fiber, allowing the solid-phase transport to occur mostly in lateral direction. Extensive discussion on the tortuosity is also presented. The numerical tool can be applied to investigate the impact of the GDL microstructure on pore-level transport and scrutinize the macroscopic approach vastly adopted in current fuel cell modeling.

Maier, W.; Arlt, T.; Wannek, Ch.; Manke, I.; Riesemeier, H.; Krüger, Ph.; Scholta, J.; Lehnert, W.; Banhart, J.; Stolten, D.

In-situ synchrotron X-ray radiography on high temperature polymer electrolyte fuel cells

Electrochemistry Communications **12** (2010) 1436

In contrast to classical low temperature polymer electrolyte fuel cells (LT-PEFCs), the membrane conductivity in high temperature polymer electrolyte fuel cells (HT-PEFCs) (operating temperature ~160 °C) is based on proton transport within phosphorus-oxygen acids at different levels of hydration, orthophosphoric acid (H_3PO_4) being the simplest example. We present for the first time in-situ synchrotron X-ray radiography measurements applied to a HT-PEFC to gain insight into the local composition of the membrane electrode assembly (MEA) under dynamic operating conditions. Transmission changes during the radiographic measurements exhibit a clear influence of the formation of product water on the membrane composition.

Steinberger-Wilckens, R.; Lehnert, W.

Innovations in Fuel Cell Technology

RSC Publishing, Cambridge, 2010, ISBN: 978-1-84973-033-4

This book reviews the state-of-the-art in fuel cells (low and high temperature) across all the types applied in the field today and assesses current trends in development. The main technology problems are discussed and current gaps to market success identified. The innovations covered in the book deliver new answers to pertinent problems and/or offer new opportunities, be it in operating conditions, application area, extension of lifetime, new fuels, exciting new diagnosis and analysis methods. The volume gives an insight not only to the key developments within the next few years, but also shows perspectives in the mid-term. Readers receive an overview of cutting edge, challenging research and development that can be used in future developments, both of personal careers, as well as in company technology planning.

Kulikovsky, A.A.

Analytical Modelling of Fuel Cells

Elsevier 2010, ISBN: 978 0-444-53560-3

This book summarizes advances in the new and rapidly evolving field of analytical modeling of fuel cells, cell components and stacks. Analytical solutions to fundamental problems ranging from catalyst layer performance to thermal stability of stack operation are given. In fuel cell research, the gap between fundamental electrochemical processes and the engineering of fuel cell systems is bridged by the physical modeling of fuel cells. This relatively new discipline aims to understand the basic transport and kinetic phenomena in a real cell and stack environment, paving the way for improved design and performance. The author presents a unique approach to fuel cell modeling in this essential reference for energy technologists.

Key features of the book:

Covers recent advances and analytical solutions to a range of problems faced by energy technologists, from catalyst layer performance to thermal stability

Provides detailed graphs, charts and other tools to maximize R&D output while minimizing costs and time spent on dead-end research.

Presents Kulikovsky's signature approach (and the data to support it) – which uses "simplified" models based on idealized systems, basic geometries, and minimal assumptions – enabling qualitative understanding of the causes and effects of phenomena.

Benzulla, A.

Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse.

Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 69, ISSN 1866-1793, ISBN 978-3-89336-634-7, 2010

Numerous areas of application, such as aviation or heavy goods transport, have no medium-term alternative to the middle distillates currently in use, namely diesel and kerosene. For both economic and environmental reasons, optimizing the efficiency of the systems in use is therefore a key objective. In achieving this objective, fuel cells are a promising option. Due to the lacking hydrogen infrastructure, fuel cells are equipped with an on-board supply system. The hightemperature polymer electrolyte fuel cell (HT-PEFC) is particularly suitable for such applications due to its high CO tolerance, simple water and heat management, and moderate material loads. The aim of the present project is to develop a stack design for a 5-kW HTPEFC system. First, the state of the art of potential materials and process designs will be discussed for each component. Then, using this as a basis, three potential stack designs with typical attributes will be developed and assessed in terms of practicality with the aid of a specially derived evaluation method. Two stack designs classified as promising will be discussed in detail, constructed and then characterized using short stack tests.

Wichtige Patente

Patentanmeldungen:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Dr. H. Dohle	1.2375	Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellensystem (HT-PEFC) sowie ein Verfahren zum Betreiben desselben

Erteilte Patente:

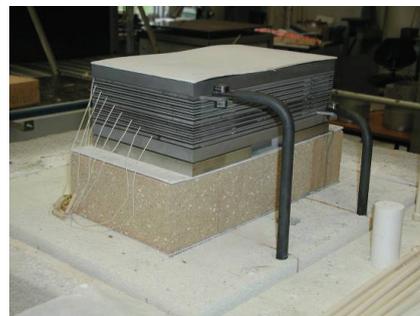
Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
J. Mergel	1.2334	Kühlkörper für Brennstoffzellen

3.3 Festoxid- Brennstoffzellen

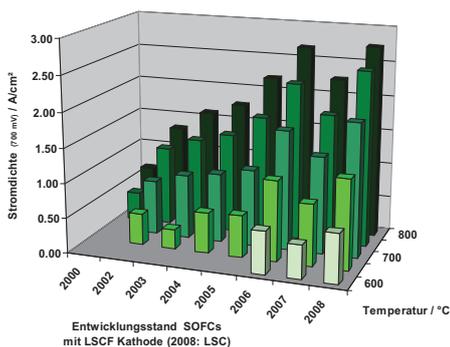
3.3.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Hochtemperatur-Brennstoffzellen (engl. Solid Oxide Fuel Cells; SOFCs) sind Stromerzeuger die nicht nur mit reinem Wasserstoff sondern auch mit einer Vielzahl anderer Brennstoffe, wie Erdgas, Biogas oder Dieselreformat, betrieben werden können. Deshalb ist es möglich, diesen Typ von Brennstoffzellen für verschiedene stationäre und mobile Anwendungen zu nutzen, z. B. im Bereich der dezentralen Energieversorgung für Ein- und Mehrfamilienhäuser oder für industrielle Verbraucher, und im Bereich der mobilen Anwendungen für die Bordstromversorgung in Fahrzeugen, Schiffen und Flugzeugen.

Im Bereich der Forschung und Entwicklung werden in der Arbeitsgruppe Elektrochemie Hochtemperaturbrennstoffzellen neben Zellstapeln (engl. Stacks) besonders auch Einzelzellen getestet, um Auswirkungen der unterschiedlichsten Betriebsbedingungen zu untersuchen. Die Versuchsanlagen sind so ausgerüstet, dass viele Brenngaszusammensetzungen eingestellt werden können, von reinem Wasserstoff bis zu Biogasen mit Verunreinigungen wie Wasserstoffcyanid oder Schwefelwasserstoff.



Daneben werden spezielle Testanlagen entwickelt und gebaut, mit denen die Wechselwirkung zwischen verschiedenen Stackkomponenten untersucht werden können. Ein Beispiel dafür ist die Wechselwirkung zwischen dem metallischen Interkonnektor und dem Glas- oder Metalllot in verschiedenen Brennstoffzellenatmosphären, wobei gleichzeitig auch die elektrisch isolierende Funktion des Glaslotes mittels Widerstandsmessungen überprüft wird. Einen ähnlichen Aufbau gibt es auch für die Wechselwirkung zwischen Kontakt- bzw. Schutzschichten und Kathodenmaterial, wobei die Leitfähigkeit kontinuierlich gemessen werden kann. Auch gibt es zurzeit Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen Interkonnektormaterialien (mit oder ohne Schutzschicht) und Zellen, wobei gezielt der Einfluss von metallischen Komponenten auf die Zelleistung überprüft werden kann.



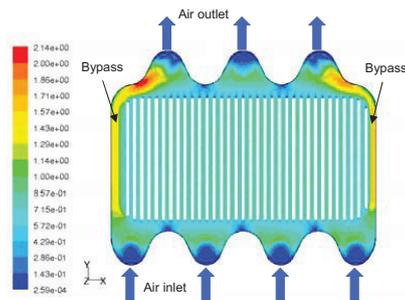
Die verschiedenen Anwendungsbereiche stellen unterschiedliche Anforderungen an die Lebensdauer der Brennstoffzelle. Für stationäre Anwendungen wird eine minimale Lebensdauer von 5 Jahren verlangt. In dieser Zeit darf die Brennstoffzelle nicht mehr als 10 % ihrer Anfangsleistung verlieren. Dazu werden sowohl an Einzelzellen als auch an Stacks Dauerversuche durchgeführt, wobei die Leistung als Funktion der elektrischen Last über die Zeit gemessen wird. Neben der Höhe des Stromes sind dabei auch die

Betriebstemperatur und die Brenngaszusammensetzung wichtige Parameter, deren Einfluss untersucht wird. Ein weiteres Thema der Entwicklung und Optimierung ist die Vergleichbarkeit der Messergebnisse von verschiedenen Typen von Zellen und die Analyse der Einflüsse von Werkstoffen und/oder Herstellungsverfahren.

Im Bereich der mobilen Anwendungen sind die Anforderungen an die Stacks durch den dynamischen Betrieb viel härter als bei stationären Anwendungen. Es treten sehr häufig Laständerungen auf, bei denen sich die Stromstärke stark verändern kann. In realen Systemen sinkt die Temperatur des Stacks im Ruhezustand ab und beim Neustart muss der Stack möglichst schnell wieder auf Betriebstemperatur gebracht werden. Dies stellt große Anforderungen an die verwendeten Werkstoffe und deren thermo-mechanische Stabilität. Auch diese Vorgänge werden an Stacks untersucht, um technisch relevante Systeme zu charakterisieren. Denn auch hier darf der Stack nach z. B. 100 Zyklen nicht mehr als 10 % seiner Leistung verlieren.



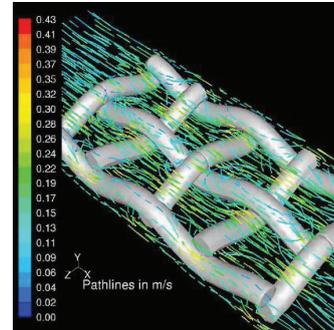
Neben den experimentellen Untersuchungen wird der Betrieb der SOFC durch Modellierung analysiert. Die Prozesse in der SOFC (Ladungs-, Wärme- und Stofftransport) werden anhand mathematischer (partieller Differential-) Gleichungen beschrieben. Die Modelle können sehr detailliert (3-D) Strukturen und Prozesse beschreiben oder stark vereinfacht (1-D) aufgebaut sein.



Die letzt genannten Modelle sind weniger umfangreich und dadurch schneller zu lösen, so dass sie auch in übergeordneten Systemsimulationen eingesetzt werden können. Durch die numerische Lösung aller Modellgleichungen (Simulationsrechnungen) werden Strom-, Temperatur- und Konzentrationsverteilungen ermittelt. Das Betriebsverhalten einer SOFC kann somit vorherbestimmt werden, was für die Auslegung und das Design Optimierungsansätze liefert und damit die Entwicklung beschleunigt.

Die Modellierungsarbeiten werden in speziellen Bereichen durch experimentelle Arbeiten unterstützt, entweder um die Eingangsparameter für die Rechnungen zu bestimmen oder um die Rechenergebnisse zu verifizieren. So werden z.B. gezielt über Diffusions- und Permeationsmessungen die Stofftransportparameter in porösen Körpern (Anodensubstrat, Kathodenschicht) bestimmt, die dann in Simulationsrechnungen einfließen. Auch wird in speziellen Messaufbauten über Druckverlust- und Druckverteilungsmessungen die Strömungsverteilung in die Gasverteilungskanälen innerhalb der Zelle bestimmt. Der Messaufbau ermöglicht dabei eine einfache und schnelle Variation der Zufuhrkanäle, wodurch die Geometrie für eine homogene Stoffverteilung optimiert werden kann.

Konstruktion, Modellierung und Test von Anlagenkomponenten: Die Hauptarbeitsgebiete sind: Auslegung, Modellierung und Test von Anlagenkomponenten: Wesentliche Anlagenkomponenten eines SOFC-Systems, wie Rekuperativ-Wärmetauscher, Vorreformer oder Nachverbrenner sind nicht kommerziell verfügbar. Deshalb werden Testeinrichtungen aufgebaut, in denen Fremdprodukte sowie Eigenentwicklungen charakterisiert und auf ihre Eignung hin untersucht werden. Zur Unterstützung der Entwicklungsarbeiten wird mit CFD und FEM das Verhalten der Komponenten analysiert und es werden Vorschläge zur Optimierung von Design und Betrieb erarbeitet.



Test und Optimierung der Steuer- und Regelkonzepte der SOFC- Systeme: Brennstoffzellen erfordern eine komplexe Anlagen- und Prozesstechnik. Um die Anlagen zuverlässig betreiben, die unterschiedlichen Betriebszustände sicher beherrschen und Schäden an der Anlage und der Brennstoffzelle verhindern zu können, sind spezielle Steuer- und Regelkonzepte erforderlich. Diese werden basierend auf der Erfahrung mit dem Test von Zellen und Stacks erarbeitet und in den vorhandenen Anlagen getestet und weiterentwickelt.



Entwicklung und Bau von Anlagen: Um die Machbarkeit der Technologie zu demonstrieren und das Zusammenspiel aller Komponenten zu erproben, wird eine SOFC-Demonstrationsanlage entwickelt und gebaut, die im Erdgasbetrieb eine elektrische Leistung von 20 kW abgeben soll.

Berechnung und Bewertung von Anlagenkonzepten: Basierend auf den experimentellen Erfahrungen werden mit unterschiedlichen Tools stationäre und dynamische Simulationsrechnungen durchgeführt, mit denen verschiedene Anlagenkonzepte bewertet und einzelne Anlagekomponenten aus gelegt werden können.

3.3.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.3.2.1 Zell- und Stackentwicklung

Leistungsoptimierung der Zellen

Mittlerweile sind die Leistungen der SOFC-Zellen, die im IEK-1 entwickelt und hergestellt und im IEK-3 elektrochemisch charakterisiert werden, durch die gezielte Modifizierung von Werkstoffen und (Mikro-)Strukturen sehr gut. Die Zellen mit $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3$ (LSM) Kathoden, die für den Betrieb von Stacks bei Temperaturen von 700 bis 800 °C standardmäßig eingesetzt werden, zeigen in den Qualitätssicherungsmessungen über die Jahre eine sehr gute Reproduzierbarkeit der Leistung (Abb. 50 links).

Zur Absenkung der Betriebstemperatur wurden Zellen mit $(\text{La,Sr})(\text{Co,Fe})\text{O}_3$ (LSCF) Kathoden im IEK-1 weiter entwickelt. Diese Zellen brauchen allerdings zwischen dem mit Yttriumoxid stabilisierten Zirkoniumdioxid Elektrolyt (YSZ) und der Kathode eine Diffusionsbarriere zur Vermeidung der Strontiumzirkonat Bildung an der Grenzfläche. Diese Diffusionsbarriere wird aus Gadolinium dotiertes Ceroxid (CGO) hergestellt. Dabei zeigte sich dass durch das Einsetzen spezieller Verfahren wie physikalischer Gasphasenabscheidung (PVD) für die Diffusionsbarriere und das Weglassen des Eisens in der Kathodenzusammensetzung (LSC) bei Temperaturen von 600 °C sehr hohe Leistungsdichten erreicht werden können (siehe Abb. 50 rechts). Im nächsten Schritt wird die Langzeitbeständigkeit dieser Zellen untersucht werden.

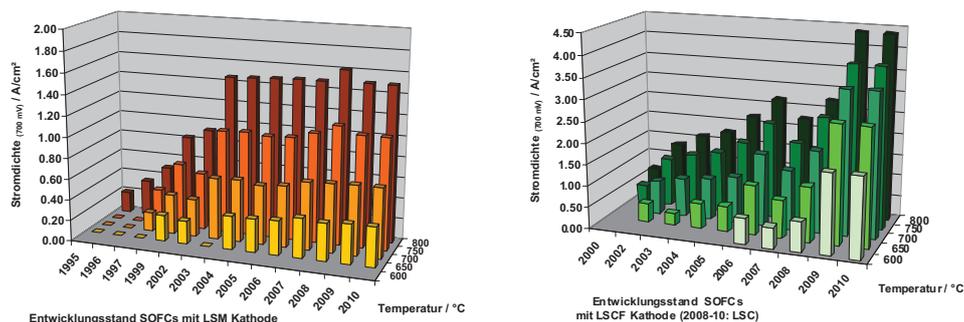


Abb. 50: Leistungsdichten der Zellen mit LSM (links) und LSC(F) Kathoden (rechts) über die Jahre

Chromvergiftung der Kathode

Im Rahmen umfangreicher Forschungen in Zusammenarbeit der Institute IEK-1 und IEK-3 an Einzelzellen und Zellen in realen Stacks ist es gelungen der Klärung des Einflusses flüchtiger Chromverbindungen auf die Kathode der SOFC näher zu kommen [9]. Die flüchtigen Chromverbindungen entstehen durch das Abdampfen aus den chromhaltigen Oxidschichten auf den chromhaltigen Stählen, die als Interkonnektor in den Stacks eingesetzt werden. Die Chromverbindungen werden entweder an der Dreiphasengrenze Elektrolyt/Kathode reduziert oder zeigen eine Wechselwirkung mit dem Kathodenwerkstoff.

Anhand elektrochemischer Tests mit Zellen mit $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3$ (LSM) Kathoden und durch nasschemische und rasterelektronenmikroskopische Nachuntersuchungen ist es gelungen den Einfluss dieser flüchtigen Chromspezies nahezu zu entschlüsseln. Die Chromquelle wurde mit dem Hochtemperaturstahl Crofer22APU realisiert und durch schrittweises Hinzufügen der Chromverdampfungsschutzschicht Mn_3O_4 und der perowskitischen Kathodenkontaktschicht LCC10 variiert. Der zeitliche Degradationsverlauf von Zellen mit einer Chromquelle im Aufbau und Betrieb unter Laststrom teilt sich in drei Phasen auf: Ein Einfahrbereich, ein linearer Bereich schwacher Degradation und ein linearer Bereich starker Degradation. Die Verminderung der Chromfreisetzungsrates durch die verschiedenen Beschichtungen streckte den Degradationsverlauf zeitlich (siehe Abb. 51).

[9] Neumann, A. Chrom-bezogene Degradation von Festoxid-Brennstoffzellen, Dissertation Ruhr-Universität Bochum 2010. Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 98

Aus den Ergebnissen der Zelltests wurden drei Wechselwirkungen von Chromspezies mit LSM identifiziert:

- Gasförmige Chromspezies bilden unter Wechselwirkung mit Manganoxidphasen im Stromsammel Chrom-Mangan-Spinelle. Diese Wechselwirkung verursacht den Großteil des Chromgehalts aber keine messbare Leistungsdegradation.
- Gasförmige Chromspezies adsorbieren an der Oberfläche des LSM und hindern Sauerstoff an der Adsorption und Diffusion in der elektrochemisch aktiven Zone. Dies erhöht die Aktivierungsverluste der Kathode, führt aber zu keiner dauerhaften Chromablagerung.
- Gasförmige Chromspezies werden in der elektrochemisch aktiven Zone reduziert und bilden Cr_2O_3 . Langfristig führt die Reduktion von Chromspezies zur Akkumulation in der Kathode. Dadurch werden Poren ausgefüllt. Durch die Wechselwirkung des Cr_2O_3 mit LSM bildet sich ein Chrom-Mangan-Spinell. Der kontinuierliche Ausbau von Mangan aus dem LSM Perowskiten führt zur Stöchiometrieänderung des Perowskiten bis die Stabilitätsgrenze erreicht ist. Ab diesem Zeitpunkt tritt eine stufenweise Zersetzung ein. Die Zersetzung beeinflusst sowohl die Mikrostruktur der Kathode als auch die Leitfähigkeit der LSM Matrix und markiert das Einsetzen starker Degradation.

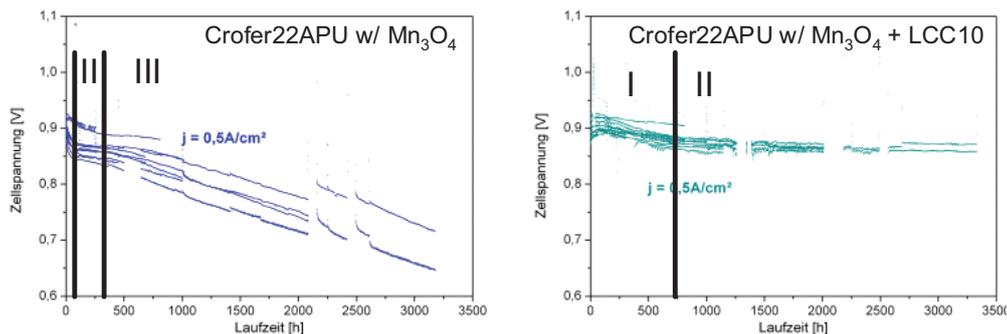


Abb. 51: Degradation von SOFC-Einzelzellen bei Anwesenheit einer Chromquelle auf der Kathodenseite. Links: Crofer22APU mit Schutzschicht Mn_3O_4 . Rechts: Crofer22APU mit Schutzschicht Mn_3O_4 und Kontaktschicht LCC10. Bereiche starker I, schwacher II und erneut starker III Spannungsdegradation in Abhängigkeit von der Zeit und von der Beschichtung

Lebensdaueroptimierung der Stacks

Die Schwerpunkte bei der Stackentwicklung liegen hauptsächlich in den Bereichen Lebensdauer/Degradation, Gasdichtigkeit (siehe Abschnitt 'Stackfügung') und Kontaktierung. Ein wesentlicher Fortschritt im Punkt Degradation/Lebensdauer konnte anhand von zwei so genannten 3. Generation (G3) Short-Stacks, die im Rahmen des EU-Projektes Real-SOFC schon in August 2007 in Betrieb genommen wurden, gezeigt werden. Ein Stack wurde nach 2 Jahren Betrieb (17.500 Stunden) in September 2009 abgeschaltet. Im Verlauf der Zellspannungen mit der Zeit (Abb. 52). konnte über die letzten 3.000 – 4.000 Stunden den progressiven Verlauf der Degradation beobachtet werden, was zu der Abschalten veranlasst hat. In der gleichen Zeitperiode (August bis Oktober 2009) zeigen die Spannungsverläufe für die zwei Zellen in den Stack F1002-97 eine markante Änderung der Steigung; die Spannungsabnahme bleibt

allerdings quasi linear. Dieser Stack erreichte in der 1. Kalenderwoche von 2011 den Meilenstein von 30.000 Betriebsstunden (siehe Abb. 52).

Abb. 53 zeigt die Degradationsrate für die Zellen in den beiden Stacks F1002-95 und -97 als Funktion der Laufzeit. Über die ersten 5.000 Betriebsstunden fallen die Degradationsraten stetig bis zu einem Niveau von 6 mV/kh bis 8 mV/kh. Die Degradationsraten für den Stack F1002-97 bleiben über die folgenden 10.000 Betriebsstunden konstant auf diesem Niveau. Aber für den Stack F1002-95 fangen die Degradationsraten ab 10.000 Betriebsstunden an zu steigen und erreichen anscheinend nach nicht mehr ein konstantes Niveau. Dieses heißt dass der Degradationsverlauf progressiv wird, was mit der Abweichung der Linearität, beobachtet in Abb. 52 korrespondiert. Nach 15.000 Betriebsstunden steigt anscheinend nach auch die Degradationsrate für die Zellen im Stack. In diesem Fall aber erreichen die Degradationsraten nach ungefähr 20.000 Betriebstunden wieder ein neues konstantes Niveau bei 10 mV/kh (siehe Abb. 53).

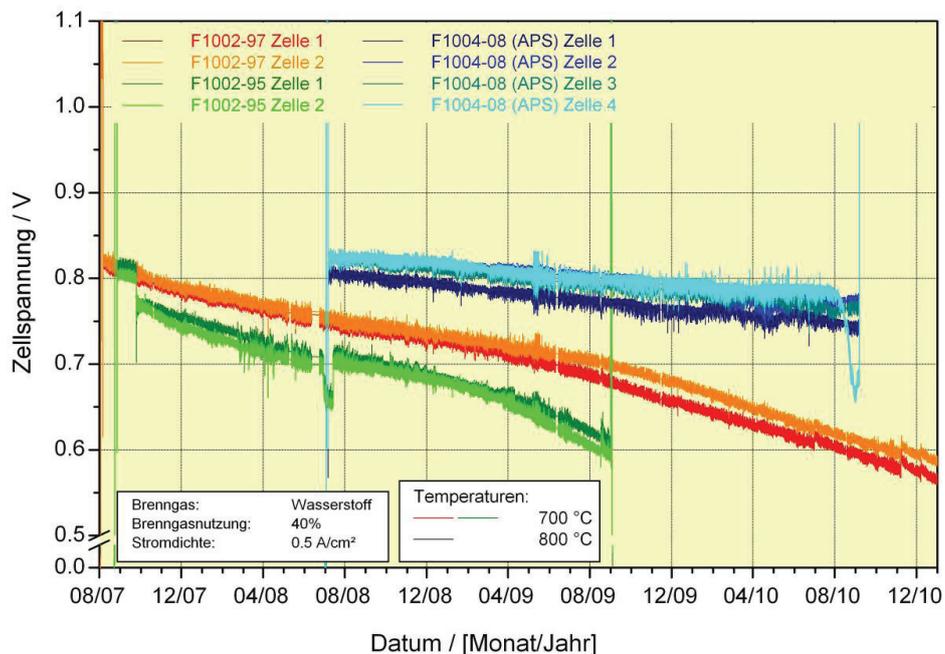


Abb. 52: Zeitverlauf der Zellspannungen in drei Stacks über den Zeitraum von August 2007 bis Januar 2011

In einem weiteren Stack F1004-08 bei welchem die Interkonnektorplatten über ein spezielles Verfahren mit einer Schutzschicht versehen wurden, konnte die Degradationsrate auf ca. 4 mV/kh verringert werden, auch wenn dieser Stack bei die höhere Temperatur von 800 °C betrieben wurde. Wegen des Einbruchs der Zellspannung auf einer der vier Ebenen musste allerdings dieser Versuch nach 19.000 Betriebsstunden beendet werden (siehe Abb. 52).

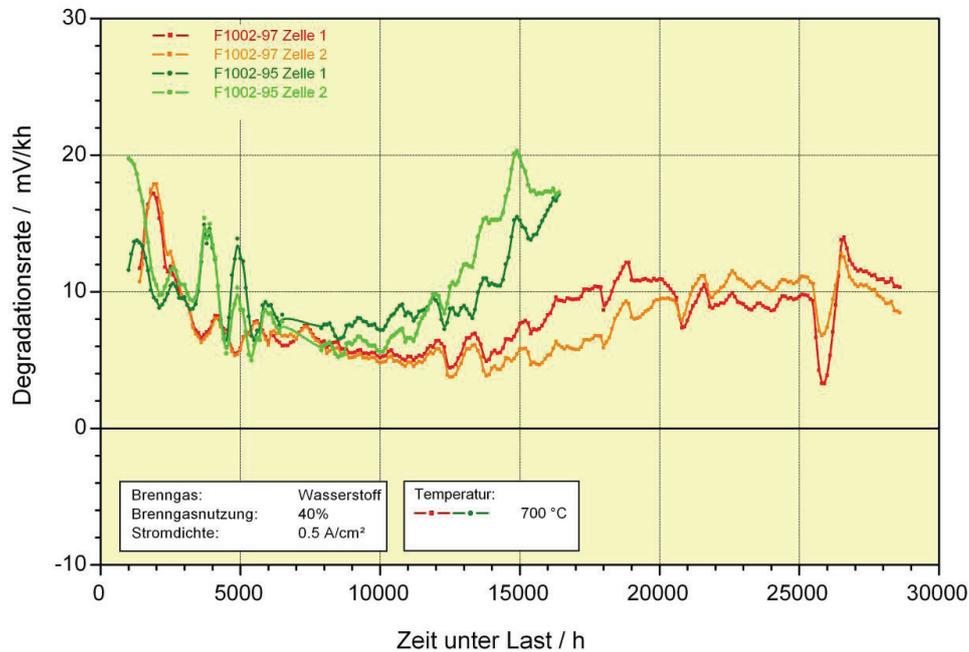


Abb. 53: Degradationsrate über die Laufzeit für die Zellen in den Stacks F1002-95 und -97 dargestellt in Abb. 52

3.3.2.2 Systementwicklung und -verifikation

Komponentenentwicklung für das 20 kW System

Die bei hohen Temperaturen zwischen 500 und 950 °C betriebenen Komponenten einer SOFC Anlage müssen nicht nur diesen Betriebsbedingungen standhalten, sondern sollen auch möglichst effizient, d.h. mit wenig Materialeinsatz, ihre Aufgaben erfüllen. Für diesen Optimierungsprozess werden die einzelnen Komponenten mit CFD modelliert.

Das in 3D entwickelte Kontinuumsmodell des im Integrierten Modul des 20 kW-Systems verwendeten Vorreformers wurde mit Messergebnissen validiert. Abb. 54 veranschaulicht als Beispiel die Temperaturverteilung im Reformer und die durch die Reformierung entstandene Brenngaszusammensetzung im Vergleich zu den Messdaten. Die CFD Ergebnisse zeigen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Untersuchungen. Lediglich im Fall C zeigt die CFD-Simulation einen zu hohen Umsatz von Methan, was darauf hindeutet, dass die Kinetik der Methan-Dampf-Reaktion für niedrige Reaktionstemperaturen im Versuch deutlich gehemmt ist. Die durchgeführten Simulationen führten zu einem besseren Verständnis der sich im Reformer ereignenden Prozesse. Das Modell wurde für die Optimierung des Designs eingesetzt. Mit ihm wurden beispielweise die Parameter mit dem größten Einfluss auf das Reformergewicht und -bauvolumen herausgearbeitet.

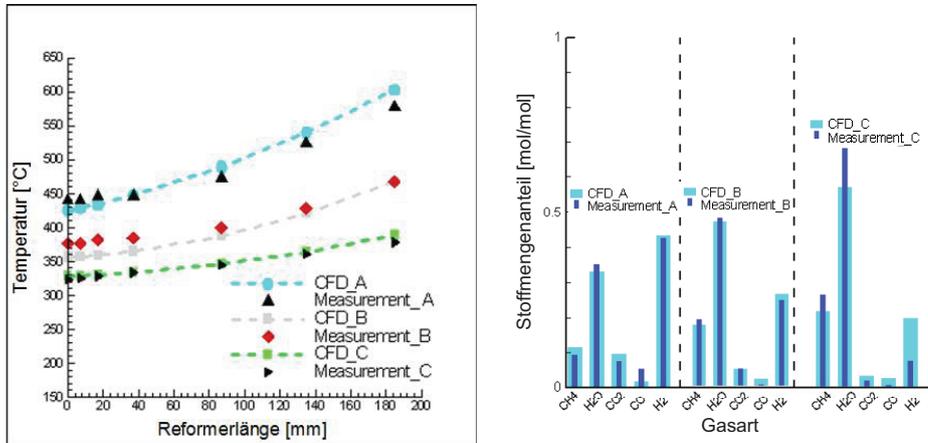


Abb. 54: CFD Analyse und experimentelle Validierung des Vorreformers: (a) Reformertemperaturverteilung, (b) Brenngaszusammensetzung

Der im Integrierten Modul verwendete rekuperative Luftvorwärmer (LuVo) wurde in dem 2009 aufgebauten Wärmeübertrager-Teststand charakterisiert (Versuchsparameter siehe Abb. 55; Versuchsergebnisse siehe unten: Wärmetauschartests). Aufgrund der durch die Integration in den Modul notwendigen unsymmetrischen Anströmung ergab sich ein Temperaturunterschied in den beiden Abströmkanälen. Dies wurde mittels CFD-Berechnungen für 100, 75 und 50 % Nenndurchsatz bestätigt (siehe Abb. 56). Basierend auf dieser Temperaturverteilung wurden FEM-Berechnungen durchgeführt, die aus thermomechanischer Sicht die kritischen Stellen identifizieren konnten, was in einem Redesign Berücksichtigung finden wird (siehe Abb. 57).

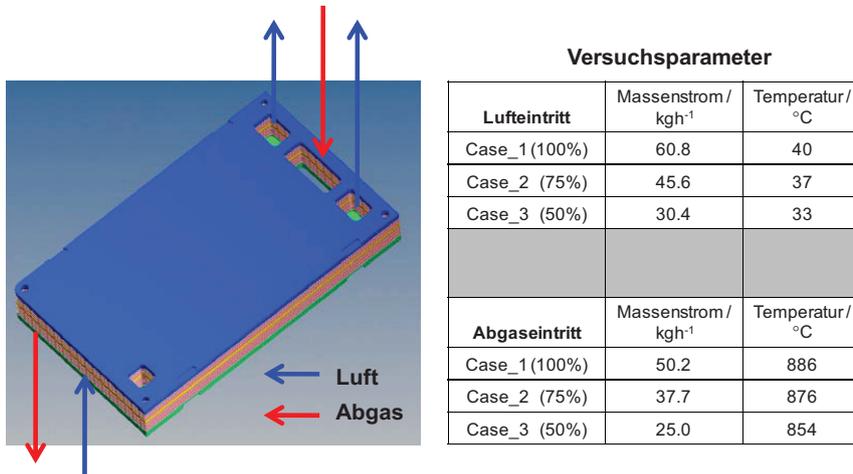


Abb. 55: LuVo des Integrierten Moduls: Design und Versuchsparameter

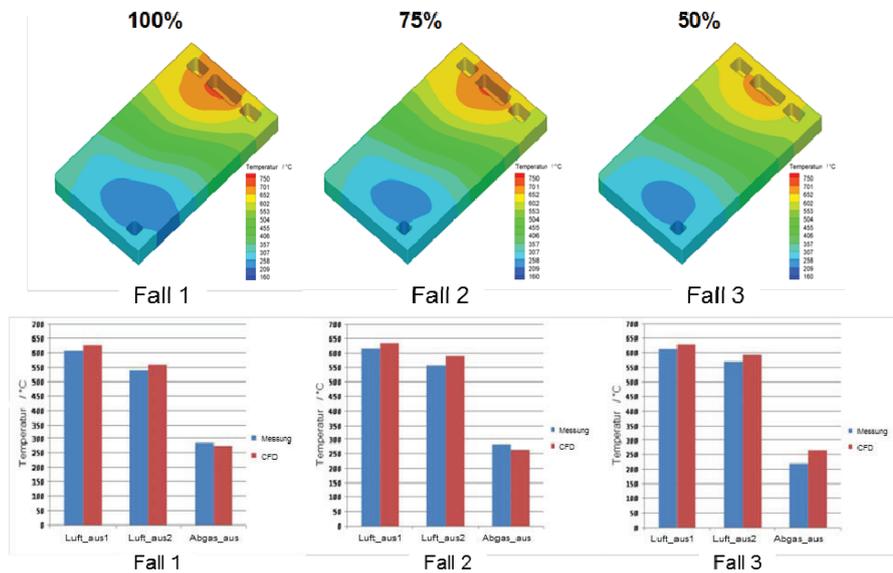


Abb. 56: LuVo des Integrierten Moduls: Berechnete Temperaturverteilung im Vergleich zur gemessenen für 50, 75 und 100% Nenndurchsatz

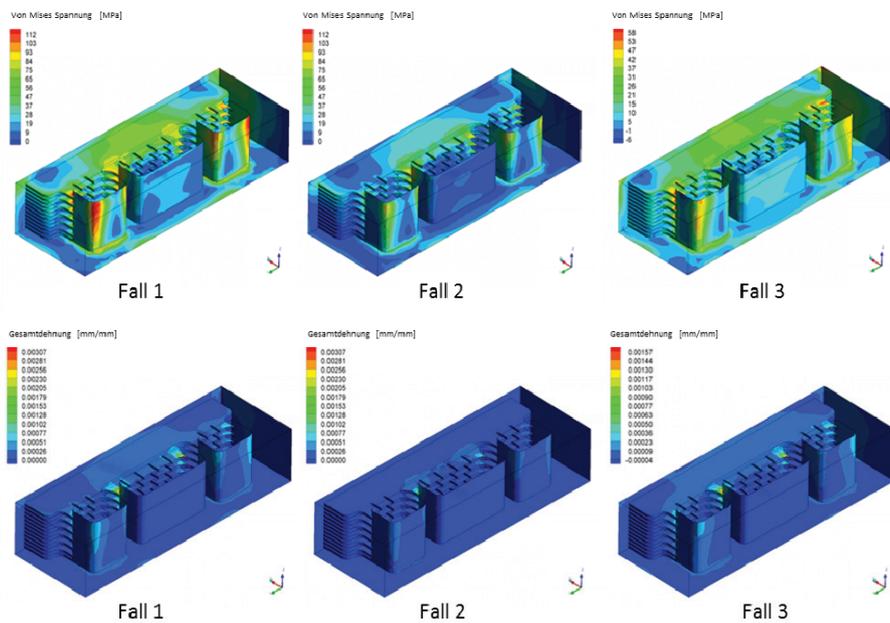


Abb. 57: LuVo des Integrierten Moduls: Berechnete Vergleichsspannungen und gesamte Verformungen am kritischen Manifold-Bereich mit Temperaturprofilen resultierend aus 50, 75 und 100% Nenndurchsatz

Für die dritte Komponente des Integrierten Moduls, den Nachbrenner, wurde ebenfalls ein 3D CFD Model erstellt und das Rechengitter optimiert. Mit der Optimierung des Nachbrenners wurde begonnen. Das Nachbrennermodell wurde für eine Geometrievariante einschließlich der chemischen Reaktionen berechnet. Hier zeigt die Vermischung der gasförmigen Reaktionspartner einen großen Einfluss auf den Verbrennungsprozess. Dieser Punkt wird noch weiter untersucht.

Ein wesentliches Ziel der CFD Modellierung ist die Analyse des Betriebsverhaltens des kompletten integrierten Moduls, bestehend aus LuVo, Reformer, Nachbrenner und Stack, zur Optimierung des Anlagenaufbaus und der Anlagensteuerung. Hierzu sind Kenntnisse über die gegenseitige Beeinflussung der Komponenten vor allem in Bezug auf ihr thermisches Verhalten von großer Bedeutung. Ein erstes Teilmodell aus Reformer und LUVO wurde aufgebaut und vernetzt (siehe Abb. 58). Ein Makro zur Einbindung der Reformierungskinetik nach dem Hinschelwood-Ansatz wurde erstellt und die von Drescher experimentell ermittelten Gleichungen wurden implementiert. Erste Berechnungen zum integrierten Modul wurden durchgeführt.

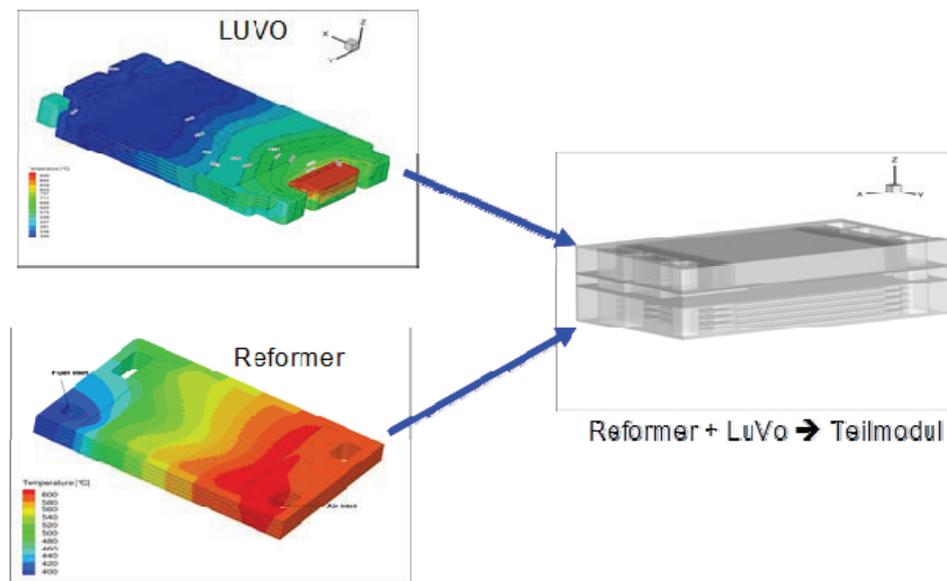


Abb. 58: CFD Analyse des Zusammenwirkens von Reformer und LUVO

Wärmetauscherversuche

Der im Rahmen des EU-Projektes LargeSOFC entwickelte und aufgebaute Teststand für Hochtemperatur-Wärmeübertrager wurde für den Test des Luftvorwärmers des Integrierten Moduls angepasst (siehe Abb. 59).

Es wurden ein Dauerversuch von 1.000 Stunden und stationäre Versuche für die Lastfälle 100 %, 75 %, 50 % und 25 % durchgeführt. Die Analyse zeigte, dass das Übertragungsverhalten nahezu unabhängig von den Massenströmen ist (bei konstantem Verhältnis des heißen zum kalten Massenstrom) bzw. dass bei Teillast tendenziell die Temperatur des aufgeheizten

Mediums („Kalt aus“) leicht ansteigt, was dem Betrieb in einer Brennstoffzellenanlage entgegenkommt (siehe Abb. 60).



Abb. 59: Aufbau für Luftvorwärmer teststand

Wärmetauschertest

→ LuVo aus dem Integrierten Modul

- Plattenwärmetauscher
- Gegenstrom
- Crofer22APU, gelötet
- WT- Fläche: 0.363 m²

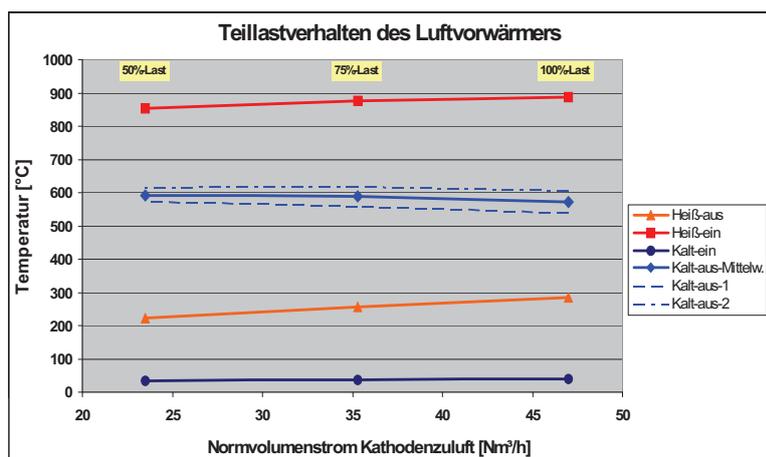
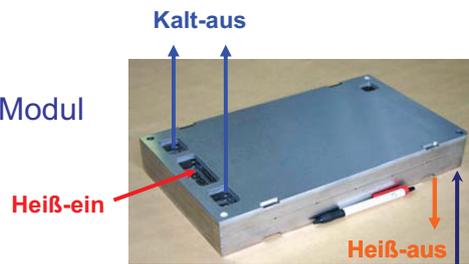


Abb. 60: Teillastverhalten des Luftvorwärmers der 20 kW Anlage

Test von Stack und Reformer mit Grubengas

Bei Evonik New Energies (ehemals Saarenergie) in Saarbrücken wurde ein Teststand für den Betrieb eines Reformers in Kopplung mit einer SOFC für Grubengas als Brennstoff aufgebaut. Nach einer längeren Betriebsphase war ein erster Reformer undicht geworden. Es wurde ein neuer Reformer mit optimierter Lötung gefertigt und in den Teststand eingebaut (siehe Abb. 61). Seine Funktionstüchtigkeit wurde in weiteren Versuchen bestätigt und die gewonnenen Messdaten wurden zur Validierung des Reformersmodells verwendet.

Im Anschluss an diese Tests wurde ein 1 kW SOFC Stack in den Versuchsstand eingebaut. Dies ist der erste Stack des Forschungszentrums, der außerhalb eines Ofens ohne Beheizung betrieben wurde. Nach ca. 24 Stunden Aufheizung über vorgewärmte Luft war am Stack eine Durchschnittstemperatur von ca. 630 °C und am Vorreformer von ca. 430 °C erreicht. Nach Zugabe des Grubengases, das ca. 28 % Methan enthielt, kam es zu einer starken Temperaturabsenkung im Stack, da bei den vorhandenen Temperaturen die Reformierung hauptsächlich im Stack und kaum im Vorreformer stattfand, was zu einer Begrenzung der Stacktemperatur führte. Der Stack hat sich nach der Aufheizung als ausreichend dicht erwiesen. Aufgrund der niedrigen Stacktemperatur von 680°C konnte nur eine Leistung von 420 W erreicht werden. Die Versuche mussten wegen Störungen im Teststand nach 130 Stunden Betrieb abgebrochen werden.

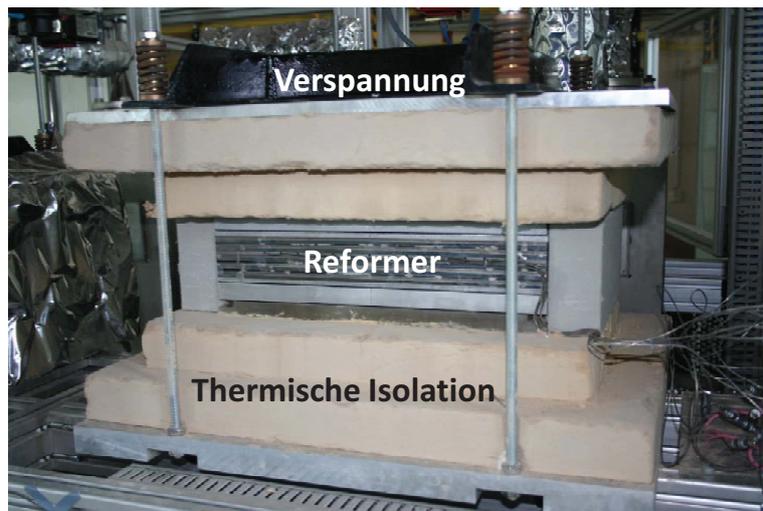


Abb. 61: Neuer Reformer im Grubengas-Teststand

Stackfügung

Die Arbeiten zur Verbesserung der Dichtigkeit von Glaslot-gefühten Stacks wurden weitergeführt. Ein Heizversuch („Heizdummy“) mit mittlerer Beheizung bis 500 °C wurde mittels CFD und FEM simuliert und mit den Ergebnissen der Nachuntersuchung der bislang durchgeführten 13 Heizdummy-Versuche verglichen. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung des Schadensbilds mit den Spannungsberechnungen, allerdings versagen die Bauteile bei sehr unterschiedlichen Spannungsniveaus. Versagen tritt teilweise bereits bei 100 MPa Schubspannung (keine Zugspannungen) ein (siehe Abb. 62), während einzelne Heizversuche bis 185 MPa

Schubspannung und 18 MPa Zugspannungen dicht bleiben. Vor allem bei Glas 48 zeigt sich eine große Streuung, was aller Wahrscheinlichkeit nach auf die mittels weiterer Versuche festgestellte große Empfindlichkeit der Glaslotanbindung auf der Oberfläche des Metalls zurückzuführen ist. Da die Heizdummies bislang nur bis 500 °C getestet werden können, wurde beschlossen, vorläufig keine weiteren Versuche dieser Art durchzuführen, da die Gläser unter diesen Bedingungen unterhalb der Glasübergangstemperatur belastet werden, was nicht dem Betriebszustand entspricht.

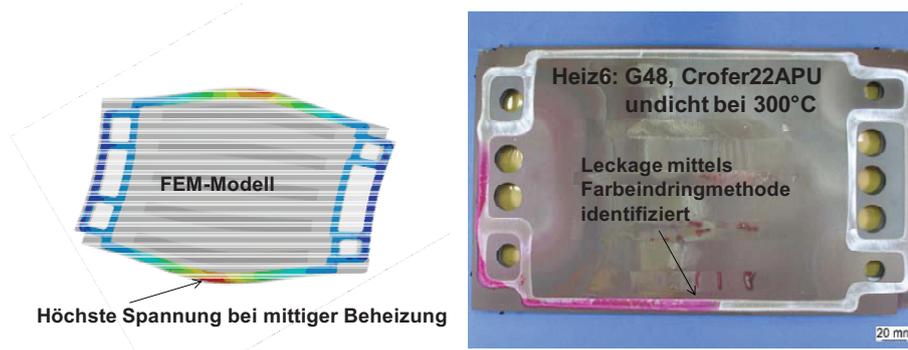


Abb. 62: Leckage am Heizdummy im Vergleich zum Spannungsniveau aus FEM-Berechnungen

Der Versuch mit einem 10-Ebenen-Stack (F"2010-13), der einmal thermisch zyklert wurde und nach dem Wiederhochheizen mit Methan (einschl. interner Reformierung) betrieben wurde, brachte folgende Erkenntnisse:

- Die Leistungsdichte und die Gleichmäßigkeit der Kennlinien bei 800 °C ist sehr gut (auch im Methanbetrieb)
- Eingeführte konstruktive Änderungen waren erfolgreich
- Keine „Ausreißer“ bei den Ebenen, auch bei 65 % Brenngasnutzung mit Methan

allerdings

- Ebene 9 zeigt einen massiven Kurzschluss, der nach dem Ausbau noch vorhanden ist
- Die anschließende Nachuntersuchung ergab, dass ein Metallpartikel Ebene und Rahmen miteinander verschweißt hat (QS-Problem bei der Montage)
- Der Stack war nach dem ersten Abkühlen ausreichend dicht; nach Wiedereinbau und erneutem Thermozyklus wurde er auf Strinseiten (Manifoldbereiche) undicht
- Die Temperaturunterschiede im Bereich des Manifolds waren in der 2. Betriebsphase (nach dem Wiedereinbau) im Methanbetrieb mit geringer Brenngasnutzung (39%) im Vergleich zur Ofenumgebung von 800 °C sehr hoch (siehe Abb. 63)
- Thermomechanische Spannungen im Bereich des Manifold zerstörten die Fügung

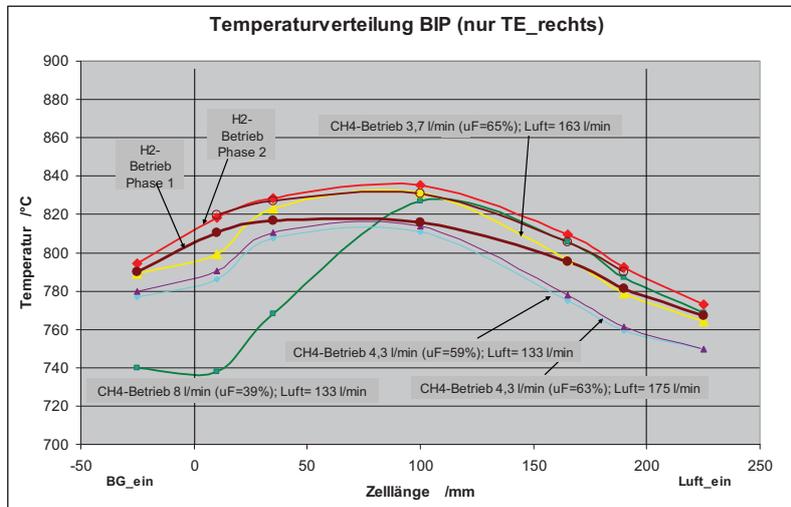


Abb. 63: Stack F''2010-13: Temperaturverteilung im Stack von Brenngas_{ein} nach Brenngas_{aus} (= Luft_{ein}) für verschiedene Brenngase und Brenngasnutzung u_F

Neues Stackdesign/Stackmodellierung

Das neu zu entwickelnde Stackdesign (Y1-20) wurde thermofluidisch mit Wärmequellen berechnet, die die Wärmeproduktion des Stacks simulieren sollen. Die Berechnungen wurden für einen 6-Ebenen-Stack sowie für einen 36-Ebenen-Stack durchgeführt. Bei den gekoppelten thermofluidischen und thermomechanischen Berechnungen wurden die durch elastische und plastische Dehnung sowie die durch Kriechen bedingten Verformungen berücksichtigt. Das Temperaturprofil (siehe Abb. 64) wurde aus der gekoppelten CFD Berechnung übernommen und bei der mechanischen Berechnung berücksichtigt.

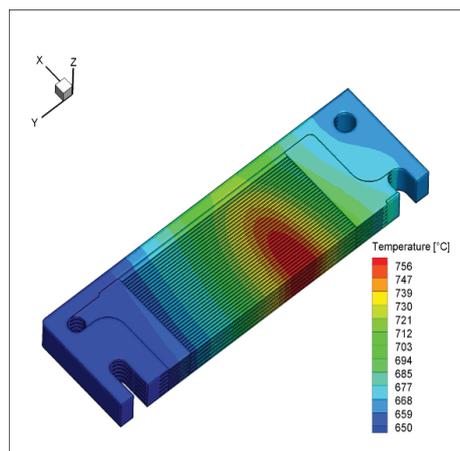


Abb. 64: Mit CFD berechnete Temperaturverteilung des Y1 Designs im stationären Betrieb

Eine CFD Aufhebungsberechnung zur Simulation des Fügeprozesses im Ofen wurde transient in 3D durchgeführt. Die Wärmeabgabe des Ofens über Strahlung wurde mit einer Rampenfunktion modelliert. Ebenfalls wurde die natürliche Konvektion der stehenden Luft im Ofen im Modell berücksichtigt. Die Simulationsergebnisse werden anschließend mit Messergebnissen verglichen.

Analyse verschiedener SOFC-Systemverschaltungen

Im Rahmen eines EU-Projektes sollen verschiedene Anlagenschaltungen auf ihre Vor- und Nachteile hin analysiert werden. Es wurden sechs Schaltungen (Fließbilder) festgelegt, von denen am IEK-3 vier verschiedene Systemkonfigurationen mit vier verschiedenen Gasen analysiert wurden. Hierzu wurden 130 Systemberechnungen durchgeführt. Als kritische Kriterien wurden identifiziert:

- Kohlenstoffbildung im Reformer
- Pinch-Point an Wärmeübertrager und beheiztem Reformer (minimal 50 K)
- Austrittstemperatur Nachbrenner (maximal 1000°C)
- Sauerstoffnutzung (maximal 50%)

Insgesamt 70 Systemparameterkombinationen erfüllen alle Anforderungen. Im Folgenden sind einige exemplarische Ergebnisse dargestellt.

Basierend auf dem Fließbild Konzept 1.2 (siehe Abb. 65) sind die Ergebnisse für den Erdgasbetrieb (GUS Gas H) in Abb. 66 dargestellt.

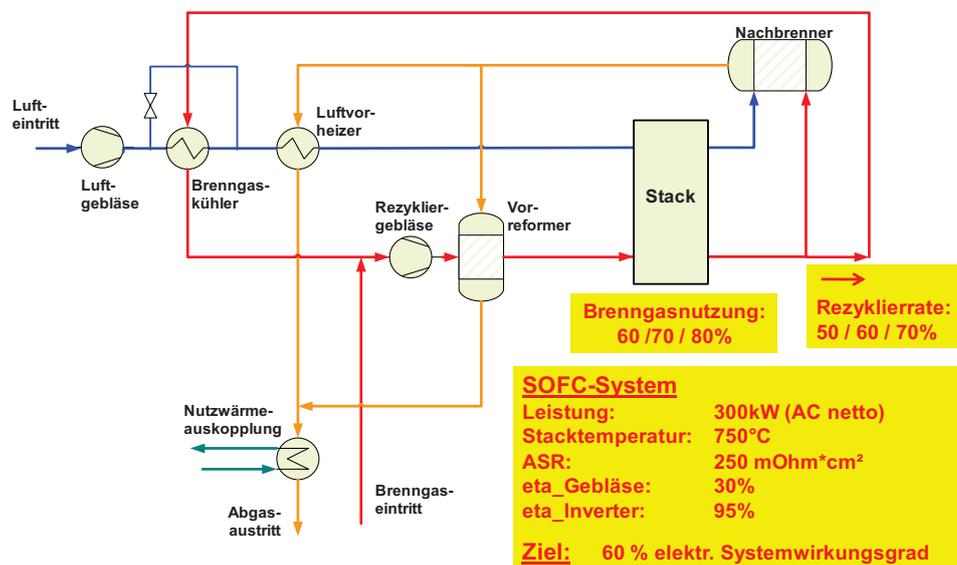


Abb. 65: Fließbild Konzept 1.2

Die Berechnungen wurden für drei Rezyklierraten (50, 60 und 70 %) sowie drei Brenngasnutzungen (60, 70 und 80 %) durchgeführt. Es ist zu erkennen, dass mit steigender Brenngasnutzung und steigender Rezyklierrate der Systemwirkungsgrad abnimmt (siehe Abb. 66). Dies rührt daher, dass die erhöhte Brenngasnutzung ab einem bestimmten Punkt vom Mehr-

bedarf an Kompressorleistung überkompensiert wird, die durch den erhöhten Kühlluftbedarf verursacht wird, da aufgrund der geringeren Brenngasmenge durch die interne Reformierung weniger Wärme abgeführt wird. Die rot gestrichelte Linie in Abb. 66 zeigt die Grenze zur Kohlenstoffabscheidung. Ein guter Arbeitsbereich mit elektrischen Systemwirkungsgraden von bis zu 60 % liegt bei Brenngasnutzungen im Stack von 60 bis 70 % und bei Rezyklierraten von 65 bis 70 %.

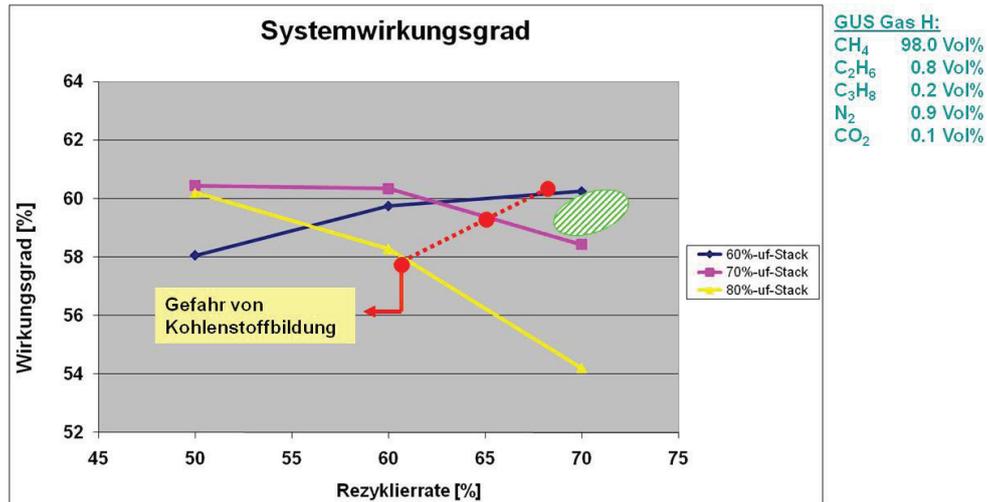


Abb. 66: Fließbild Konzept 1.2: Systemwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Rezyklierrate für GUS Gas H

Das Berechnungsergebnis für Biogas 2 (40 % Methan) ist in Abb. 67 gezeigt.

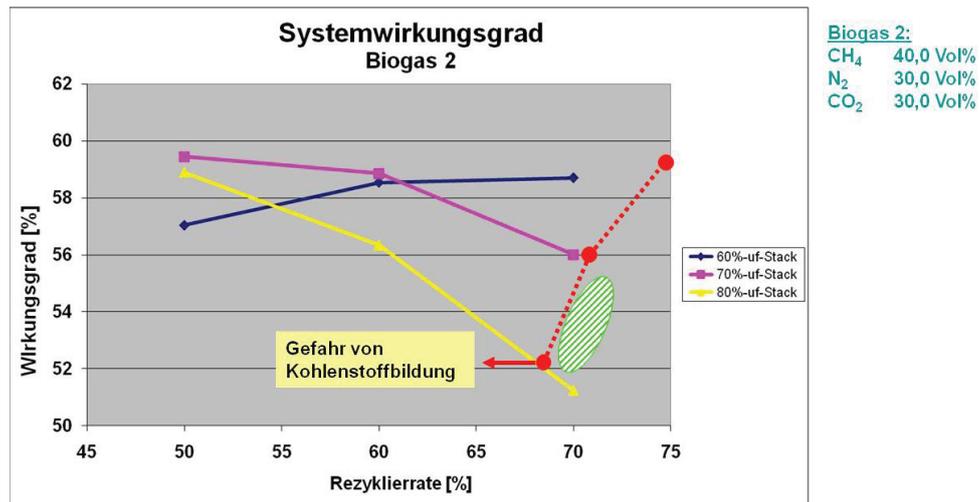


Abb. 67: Fließbild Konzept 1.2: Systemwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Rezyklierrate für Biogas 2

Es ist grundsätzlich ein ähnlicher Verlauf wie bei den Berechnungen mit Erdgas zu erkennen. Ein guter Arbeitsbereich mit elektrischen Systemwirkungsgraden von bis zu 53 % liegt bei Brenngasnutzungen von 70 bis 80 % und bei Rezyklierraten von 70 bis 75 %. Die hohen Rezyklierraten sind zur Vermeidung der Kohlenstoffabscheidung erforderlich.

Die elektrischen und thermischen Systemwirkungsgrade für alle Berechnungen sind in Abb. 68 zusammengestellt. Mit Ausnahme von System 0.1 besitzen alle Systeme eine Anodengasrezyklierung.

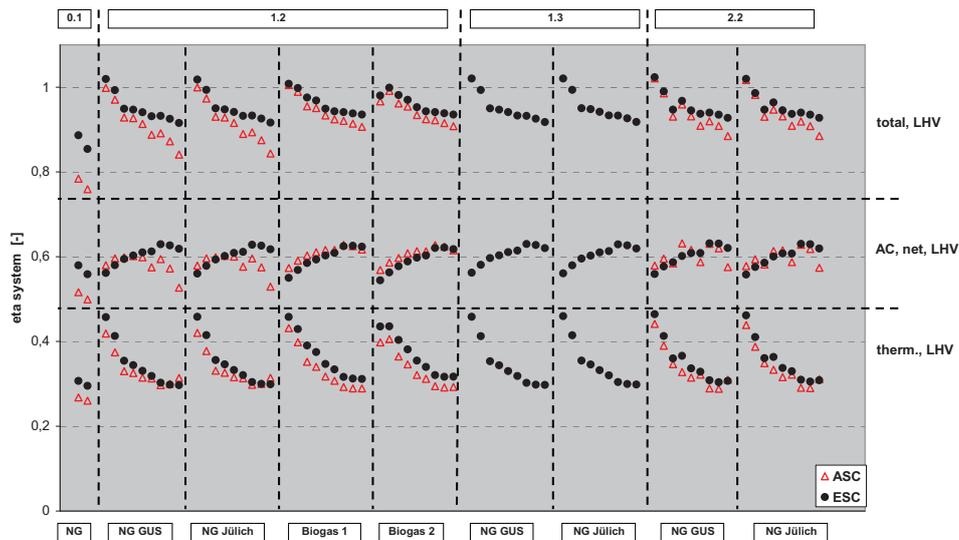


Abb. 68: Systemwirkungsgrade der berechneten Systeme (Konzepte 0.1, 1.2, 1.3, 2.2) bei Nennbetrieb

Die Wirkungsgrade liegen generell auf einem hohen Niveau und sind nur im geringen Maße von der Systemverschaltung, der Gasart oder dem Zelltyp abhängig. Allerdings kommt es bei Rezyklierraten von 50 und 60 % häufig zu Rußbildung im Reformier, was bedeutet, dass die Rezyklierrate höher als 60 % sein sollte. Generell sind elektrische Nettowirkungsgrade zwischen 50 und 63 % erreichbar.

3.3.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Fr. S. Berns	6697 s.berns@fz-juelich	Software Entwicklung, Modellierung
Prof. L. Blum	6709 l.blum@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Verfahrenstechnik Brennstoffzellen (VBZ)
Dr. K. Cerny	5170 k.cerny@fz-juelich.de	Software Entwicklung, Modellierung

P.H. David	4652 p.h.david@fz-juelich.de	Elektrotechnik, Messdatenerfassung und Anlagensteuerung
R. Deja	5291 r.deja@fz-juelich.de	Anlagensimulation, Entwicklung und Test von SOFC-Anlagenkomponenten
Dr. V.A.C. Haanappel	4656 v.haanappel@fz-juelich.de	Chemische Technologie, (Hochtemperatur-)Korrosion
Dr. L.G.J. de Haart	6699 l.g.j.de.haart@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung SOFC Elektrochemie und Simulation
I. Hoven	4053 i.hoven@fz-juelich.de	Elektrotechnik, Messdatenerfassung und Anlagensteuerung
Fr. A. Kind	3850 a.kind@fz-juelich.de	Software Entwicklung, Modellierung
Fr. J. Kuhl	6697 j.kuhl@fz-juelich.de	Software Entwicklung, Modellierung
Fr. U. Packbier	5170 u.packbier@fz-juelich.de	Tests von SOFC-Zellenstapel und Ergebnis-Auswertung
Dr. M. Peksen	8732 m.peksen@fz-juelich.de	Test und Simulation von Anlagenkomponenten
Ro. Peters	4664 ro.peters@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe Systemtechnik SOFC, Komponentenentwicklung, Anlagenauslegung, Anlagenbau und -Test
Dr. I.C. Vinke	6688 i.c.vinke@fz-juelich.de	Elektrochemie, 'solid state ionics', Hochtemperatur-Elektrochemie

3.3.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

Veröffentlichungen:

Blum, L.; Peksen, M.; Peters, Ro.; Vinke, I.C.; Malzbender, J.; Groß, S.M.; Pabst, U.

Investigation of SOFC sealing behavior under stack relevant conditions at Forschungszentrum Jülich

Journal of Power Sources (2010), doi:10.1016/j.jpowsour.2010.09.041

Hermetic sealing is a key requirement for the operation of solid oxide fuel cell (SOFC) stacks in a system environment. The sealant material has to withstand stresses due to mechanical loading, mismatch in thermal expansion coefficient and thermal gradients that arise during operation. Based on leakage tests performed at Forschungszentrum Jülich it was obvious that stacks, having been operated successfully in a furnace, are not necessarily usable in a system, e.g. because of deviating pressure differences and temperature gradients. Thorough investigations including stack and stack dummy tests, and finite element modelling (FEM) were

performed to get a comprehensive understanding of the various parameters, influencing the leak tightness of the sealing material. It was found that even small temperature differences especially in the area of gas and air manifolds can create excessively high tensile stresses. Based on initial FEM analyses, a better understanding of the problem has been obtained and a tool was developed that can assist in the design of more robust stacks. These investigations and modelling activities will be continued with a main focus on thermal cycling, which is the next step in the list of requirements.

Blum, L.; Riensche, E.

Solid Oxide FCs: System

In: Juergen Garche, Chris Dyer, Patrick Moseley, Zempachi Ogumi, David Rand and Bruno Scrosati, editors. Encyclopedia of Electrochemical Power Sources, Vol 3. Amsterdam: Elsevier; 2009. pp. 99-119. ISBN 9780444520937

In this paper some basic arrangements for SOFC systems are described, starting with atmospheric systems using a catalytic burner or a thermal burner and anode gas recycling. For illustrating the potential for electrical efficiency of SOFC systems, the combinations with a gas turbine and in addition with a steam turbine are also described. To be able to evaluate the potential of the different systems firstly the essential efficiencies relevant to fuel cell systems are defined and the basics for doing energy balance calculations are illustrated. Equations are given to describe e.g. the effect of fuel recycling on system fuel utilisation or the effect of internal reforming on the necessary air flow for cooling the stack.

It becomes obvious, that there is a strong dependency of the electrical efficiency on cell voltage and on fuel utilisation. If cells are available allowing operation with a high fuel utilisation at cell voltages of 800 mV a net electrical efficiency above 55 % can be achieved. The combination in a pressurized system with a gas turbine enables efficiencies of up to 70 % and combining this system with an additional steam turbine allows efficiencies of up to 75 %. But as an investigation of the size of these steam turbines shows, such combined systems only make sense above a gas input of 10 MW.

Blum, L.; Riensche, E.; Stolten, D.; Menzer, R.; Grube, Th.

Technologiebewertung stationärer Erdgas-basierter Brennstoffzellen,

Das EduaR&D-Projekt: Energie-Daten und Analyse R&D, Forschungszentrum Jülich GmbH, Projektträger Jülich (Hg.), Umwelt- und Ressourcenökonomik, Band 27, LIT-Verlag Berlin, Münster, 2009, ISBN 978-3-8258-1956-9

In dieser Studie wurde auf das im Institut für Energieforschung des Forschungszentrums Jülich seit dem Jahre 1990 erarbeitete umfangreiche Brennstoffzellen-Know-how zurückgegriffen. Für jedes der vier betrachteten BZ-Systeme – PEFC (Polymer Electrolyte Fuel Cell) – MCFC (Molten Carbonate Fuel Cell) – Tubulare SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) und – Planare SOFC wurden im Rahmen des EduaR&D-Projektes aktualisierte umfassende Simulationsrechnungen entsprechend dem heutigen Entwicklungsstand der BZ-Systeme durchgeführt. Auf Basis des dabei gewonnenen tiefgehenden Verständnisses, insbesondere der Verzahnung von Elektrochemie und Verfahrenstechnik im „elektrochemisch aktiven“, dem äußeren Beobachter verborgenen Zentrum der Anlagen erfolgte dann eine Analyse der zeitlichen Entwicklungspfade, die bis heute beschränkt wurden und die noch zu bewältigen sind. Dabei wurde eine wichtige Frage deutlich, die sich jeder BZ-Entwickler immer wieder stellen muss, nämlich die Bestimmung des richtigen Zeitpunktes, an dem das Anlagensystem gerade so weit entwickelt ist, dass

- die Senkung der Herstellungskosten durch Massenproduktion und
 - die Ausnutzung von Lernkurveneffekten
- das Erreichen des Investkostenziels ermöglichen.

Blum, L.

Overview of the SOFC development Status

cfi – ceramic forum international, DKG 86 (2009) No. 11-12, E17 - E22, ISSN 01739913

Solid Oxide Fuel Cells (SOFC) show great promise for future employment in electric power production because of their high efficiency and low environmental impact. Moreover, they can be used with a great variety of fuels (hydrogen, carbon monoxide, natural gas, and biogas) and can play an important role in carbon sequestration. However, before they go on the market, some questions have to be answered including long term stability of suitable high temperature materials, low cost designs and manufacturing methods, and efficient plant concepts. This article presents an overview on the essential designs as well as on the most important developers in the field of SOFC technology. Based on the data published in recent years on international conferences a comparison is performed on the status of cell, stack and system development.

Haanappel, V.A.C.; Jordan, N.; Mai, A.; Mertens, J.; Serra, J.M.; Tietz, F.; Uhlenbruck, S.; Vinke, I.C.; Smith, M.J.; de Haart, L.G.J.

Advances in Research, Development, and Testing of Single Cells at Forschungszentrum Jülich

Journal of Fuel Cell Science and Technology, 6 (2009) 021302 / doi:10.1115/1.3080547

This paper presents an overview of the main advances in solid oxide fuel cells (SOFCs) research and development (R&D), measurement standardization, and quality assurance in SOFC testing at the Forschungszentrum Jülich. These activities have resulted in both a significant improvement of the electrochemical performance and a better understanding of the electrochemical behavior of SOFCs. Research and development of SOFCs was mainly focused on two types of anode-supported cells, namely, those employing either $\text{La}_{0.65}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSM) or $\text{La}_{0.58}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ (LSCF) cathode materials. In both cases the optimization of processing and microstructural parameters resulted in satisfactory power output and long-term stability at reduced operation temperatures. Standardization and quality assurance in SOFC testing was also addressed with the goal of producing consistent and reliable tests and measurement results. At present, under optimized experimental conditions, SOFCs with LSM or LSCF cathodes can deliver a power output of about 1.0 W/cm^2 and 1.9 W/cm^2 at $800 \text{ }^\circ\text{C}$ (700 mV), respectively.

de Haart, L.G.J.; Mougin, J.; Posdziech, O.; Kiviaho, J.; Menzler, N.H.

Stack Degradation in Dependence of Operation Parameters; the Real-SOFC Sensitivity Analysis

Fuel Cells, 9 (2009) 6, 794 – 804 / doi: 10.1002/fuce.200800146

The EU Integrated Project Real-SOFC aims at improving the understanding of degradation in SOFC stacks, and extending the durability of planar SOFC stacks to degradation rates suitable for stationary application. As part of the Real-SOFC project, three series of SOFC stacks, each with two or four planar anode-supported cells, were operated for durations of 3,000 h up to 10,000 h under varying fuel and electrical load conditions. The durability tests on these short stacks were conducted

galvanostatically at 800 and 700 °C in dependence of current-density (0.3, 0.5 or 0.7 Acm⁻²), of fuel composition (hydrogen: H₂ + 3–10% H₂O or methane: CH₄/H₂O (S/C = 2)) and of fuel utilisation (8, 40, 60 or 75 %). A pronounced difference in degradation behaviour was observed between the stacks operated at different current densities. The degradation behaviour was, however, not influenced by the choice of fuel (hydrogen or methane) and was hardly influenced by the fuel utilisation. Lowest degradation rates of about 20 mΩcm²kh⁻¹ were determined for the tests of a short stack with cells with LSM cathodes operated at 800 °C and a current-density of 0.3 Acm⁻² and of a short stack with cells with LSCF cathodes operated at 700 °C and a current-density of 0.5 Acm⁻². Post-test characterisation of the cathode with respect to chromium poisoning was performed on cells from several stacks. No clear relationship between the degradation rate of the stacks and amount of Cr incorporated in the cathode could be established. The major difference was a change in microstructure of the cathode in the region near the electrolyte interface; in the stacks operated at lower current densities, the structurally changed zone was clearly thinner than in those stacks operated at higher currents.

Menzler, N.H.; Haanappel, V.A.C.

Influence of anode thickness on the power output of solid oxide fuel cells with (La,Sr)(Co,Fe)-type cathode

Journal of Power Sources, 195 (2010) , 5340 – 5343 / doi:10.1016/j.jpowsour.2010.03.030

The influence of the thickness of the anode (functional layer) on the power output of anode-supported solid oxide fuel cells with a lanthanum–strontium–cobalt–ferrite cathode was investigated. The anode was applied by vacuum slip casting and the thickness varied between 1 and 22 μm. All other material and microstructural parameters were kept constant. Single cells with dimensions of 50 mm × 50 mm and with an active cathode area of 40 mm × 40 mm were manufactured and tested in an alumina housing with air as oxidant and hydrogen with 3 % water vapour as the fuel gas.

Results have shown that SOFCs with anodes between 1 and 13 μm have slightly better performance than those with thicker anodes (≈1.7 A cm⁻² versus 1.5 A cm⁻² at 800 °C and 0.7 V). The current densities were discussed with respect to cell area specific resistance, helium leak rate of the half-cell, and microstructure.

Peksen, M.; Peters, Ro.; Blum, L.; Stolten, D.

Numerical Modelling and Experimental Validation of a Planar Type Pre-reformer in SOFC Technology

International Journal of Hydrogen Energy 15 (2009) 6425 – 6436.

A computational model of the Jülich type pre-reformer and its experimental validation used in solid oxide fuel cells (SOFCs) is introduced. A continuum modelling approach has been attended and its feasibility verified. The fluid flow, heat transfer and chemical reacting species transport within the pre-reformer are numerically solved using 3D computational fluid dynamics (CFD) based on the finite volume method. The model considers the typical sub-components of the pre-reformer including the solid frame, air channels, catalyst and the wire mesh structures. Experimental measurements are used to supply appropriate boundary conditions for the simulations. The predicted results of the simulations are experimentally validated using thermocouples and gas chromatography. The results show good agreement, implying that the proposed model is an invaluable tool that can be used to reduce costly experiments in the design and process optimisation of the pre-reformer.

Peksen, M.; Peters, Ro.; Blum, L.; Stolten, D.

Design and Optimisation of SOFC System Components using a Trio Approach: Measurements, Design of Experiments, and 3D Computational Fluid Dynamics

Electrochemistry Society, Vienna, 2009, S.C. Singhal, H. Yokokawa, 1195 – 1200, ISBN 9781566777391

In this present paper, a comprehensive trio approach has been proposed to aid in the optimisation of the pre-reforming process, and to develop a new pre-reformer design. Measurements, design of experiments (DOE), and computational fluid dynamics (CFD) have been employed to determine the effects of several design and material parameters on the pre-reformer performance in detail. The optimisation procedure considers geometrical modifications, material alternatives and the feasibility of the end product simultaneously, in order to achieve efficient reforming rates by reduced component weight.

Steinberger-Wilckens, R.; Blum, L.; Buchkremer, H.-P.; de Haart, L.G.J.; Pap, M.; Steinbrech, R.W.; Uhlenbruck, S.; Tietz, F.

Recent Results in Solid Oxide Fuel Cell Development at Forschungszentrum Juelich

ECS Transactions, 25 (2009) 2, 213 – 220; ISBN 9781566777391

The SOFC group at FZJ has assembled and tested more than 350 SOFC stacks rated between 100 W and 15 kW during the last 15 years. The research topics covered stretch from materials over stack design, manufacturing of cells, stacks and components, mechanical and electrochemical characterisation, up to system design and demonstration. Use of improved steels, cathodes and materials processing has resulted in reduced degradation rates around 6 mV (0.75 %) per 1000 hours at 700°C and 500 mA/cm² over tested stack lifetimes of over 15,000 hours. However, the target of development is directed at even further lowered degradation for commercial operation in stationary applications. A recent stack displays a degradation of approx. 3 mV (0.4 %) per 1000 hours running at 800 °C and 500 m/cm². This paper gives an overview of some of long-term testing results.

Wichtige Patente

Patentanmeldungen:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Ro. Peters	1.2503	Festoxid-Brennstoffzellen System sowie Verfahren zum Betreiben eines solchen

Erteilte Patente:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Ro. Peters	1.2053	Modular aufgebautes Hochtemperatur-Brennstoffzellensystem
D. Froning	1.2071	Verfahren zur Modellierung von Stoff- und/oder Wärmetransportvorgängen in einer Vorrichtung, sowie Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

3.4 Brenngaserzeugung und Systeme

3.4.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Die Verfügbarkeit von Wasserstoff bildet die Grundlage für den Einsatz von Brennstoffzellen in mobilen und stationären Anwendungen. Zur Zeit existiert allerdings noch keine Infrastruktur für den zukünftigen Energieträger Wasserstoff. Deshalb besteht die Notwendigkeit Wasserstoff aus gut verfügbaren Energieträgern zu gewinnen. Für stationäre Anwendungen bieten sich Erdgas und Heizöl an, im mobilen Bereich sind Benzin, Kerosin und Diesel zu nennen. Die genannten Energieträger werden derzeit zumeist aus dem fossilen Primärenergieträger Rohöl hergestellt. Langfristig lässt sich ein Teil der heute benötigten flüssigen Energieträger aus Biomasse herstellen.

Im IEK-3 sind die Arbeiten auf dem Gebiet der Brenngaserzeugung auf die Reformierung von Mitteldestillaten wie Kerosin, Diesel, leichtem Heizöl und dieselähnlichen Biokraftstoffen fokussiert. Für Anwendungen zur Strom- bzw. Bordstromversorgung für portable bzw. mobile Anwendungen (APU: Auxiliary Power Unit) kann nur der Kraftstoff in einem Brennstoffzellen-APU-System eingesetzt werden, der auch zum Antrieb des Fahrzeugs verwendet wird. Für luftfahrttechnische Anwendungen sind Kerosin und Flugbenzin für Kleinflugzeuge die alleinigen Kraftstoffe, welche aber erhebliche Mengen an schwefelhaltigen Komponenten enthalten dürfen. Im Bereich der Kraftstoffaufbereitung wird deshalb die Entschwefelung von flüssigen Kraftstoffen und deren Verdampfung theoretisch und experimentell untersucht.

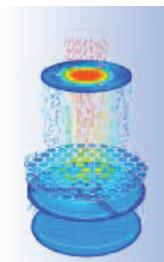


Für die Bordstromversorgung im Leistungsbereich von 5-10 kW_{el} liegt der Schwerpunkt der Aktivitäten auf der autothermen Reformierung von Kerosin, Diesel und dieselähnlichen Kraftstoffen. Wichtige Bestandteile der F&E-Arbeiten sind die prozesstechnische Analyse, die Komponentenentwicklung und der Systemaufbau. Die Reformerentwicklung wird schwerpunktmäßig für die Hochtemperatur-PEFC (160 °C - 200 °C) aber auch für die Hochtemperatur-Brennstoffzelle SOFC durchgeführt.



Das bei der Reformierung entstehende Brenngas enthält einen hohen Kohlenmonoxidgehalt von bis zu 10 vol.-%. In einem dem Reformer nachgeschalteten Reaktor wird Kohlenmonoxid mit Wasserdampf in zusätzlichen Wasserstoff und in Kohlendioxid umgewandelt. Das Produktgas mit einem Kohlenmonoxidgehalt von 1 vol.-% kann

man nach einer Abkühlung auf 160 °C direkt in eine HT-PEFC leiten.



Alle Arbeitsbereiche werden durch ein entsprechendes Modelling unterstützt. Wichtige Werkzeuge sind CFD-Simulation auf dem Jülicher Supercomputer JUROPA und Systemsimulationen mit dem Programm Simulink zur Optimierung des dynamischen Verhaltens bei Lastwechseln und für die Anfahrstrategie.

3.4.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.4.2.1 Infrastruktur für wissenschaftlich-technische Experimente

Im Hinblick auf in der Vergangenheit eingeschränkte Testmöglichkeiten von Fuel Processing-Komponenten (Reformer, katalytischer Brenner, Wasser-Gas-Shift Reaktor) und -Systemen im Diesellabor wurden die Laborinfrastruktur und die Speichermöglichkeit für verschiedene Kraftstoffe erweitert. Damit ist die Möglichkeit geschaffen, gleichzeitig acht verschiedene flüssige Kohlenwasserstoffe für den Testbetrieb zu verwenden und im Fasslager weitere Kraftstoffqualitäten vorzuhalten. Im Schwerpunkt der Untersuchungen sind derzeit die Qualitäten Premium Diesel, ein schwefelarmes Kerosin und aromatenfreie und schwefelarme GtL-Kraftstoffe.

Im Tanklager befinden sich ein 25 m³ Tank, zwei 2 m³-Tanks und fünf 1,3 m³-Tanks (siehe Abb. 69). Darüber hinaus können 96 Fässer à 200 l Inhalt in einem Fasslager eingelagert werden. Im Tanklager können eingelagert werden: Iso- und n-Paraffine, Petroleum, Testbenzin, Solvent Naphtha, Xylol, Toluol, Ottokraftstoff, Kerosin, Dieselmotorenkraftstoff, Heizöl extra leicht (EL) und sogenannte Gas-To-Liquid (GTL)- und Bio-To-Liquid (BTL)-Kraftstoffe.



Abb. 69: 25 m³ Tank (im Hintergrund) und die beiden 2 m³ Tanks auf der WHG-Fläche.
WHG: Wasser-Haushalts-Gesetz

Das Tanklager ist über acht Kraftstoffleitungen mit Testboxen verbunden. Des Weiteren werden aus den Gaslagern Stickstoff, Luft, Wasserstoff, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid, Methan und Argon den Versuchsboxen zugeführt. Außerdem ist eine VE-Wasser- und Kühlwasserversorgung installiert. Durch die Neuaufstellung der Laborkapazitäten und die Errichtung des Tanklagers ist es dem IEK-3 möglich, in vier verschiedenen Testboxen unterschiedliche Versuche zur Brenngaserzeugung und für die Systemkopplung mit der HT-PEFC durchzuführen. Damit ist es möglich, parallel eine Komponentenentwicklung, die Durchführung von Langzeitversuchen und die Systemerprobung mit und ohne Brennstoffzelle voranzutreiben. Die Boxen



Abb. 70: Testmodule DeS I, DeS II zur Entschwefelung und, Module A – E zum Test von Reformern, Shiftreaktoren, Brennern und HT-PEFC Stacks

1 - 4 besitzen eine Grundfläche von 12 – 29 m². Sie können Module mit einem Brenngas-
zeugungssystem bzw. einem katalytischen Brenner (Box 1), Komponentenmodule für Refor-

mer oder Wasser-Gas-Shift Reaktor (Boxen 2 -3) und Systeme inklusive HT-PEFC Stacks (Box 4) aufnehmen. Alle Boxen besitzen Kupplungssysteme zum Anschluss der Module an die Medienversorgung und -entsorgung. Entsorgt werden müssen die Abgase von Katalytbrennern, die Produktgase der Reformer in Einzeltestständen und die Abgase der Brennstoffzellenstacks. Dabei wird unterschieden zwischen brennbaren Restgasen aus der Reformierung und Brennerabgasen, die im Idealfall nur Stickstoff, Kohlendioxid, Wasserdampf und geringe Menge an Restsauerstoff enthalten. Des Weiteren fällt noch bei der Abkühlung dieser Gase Kondensat an, das gesondert abgeführt wird. Alle Boxen sind mit einer Abgassensorik für Wasserstoff, Kohlenmonoxid und Kerosin und mit einer Lüftungsanlage ausgestattet. Bei einer Abschaltung durch Gasalarm ist nur die verursachende Box betroffen. Die maximale Belastung des Abgassystems entspricht einer H_2 -Leistung von ca. 30 kW_{th} (unterer Heizwert Wasserstoff) pro Box.

Seit einigen Jahren werden alle Teststände in einer FMEA analysiert und einer CE-Zertifizierung unterzogen. Aus diesen Analysen leiten sich notwendige Sicherheitsmaßnahmen im Laborbereich beim Test von Reformen und Brennstoffzellen ab. Abb. 70 zeigt die in den letzten Jahren angeschafften Testmodule für die Entschwefelung und die seitens des IEK-3 aufgebauten Testmodule A - E. Dies sind im Einzelnen:

- DeS I: Modul zur thermischen Abtrennung von Kraftstoffen aus Mitteldestillaten im 5 kWe-Maßstab (Abb. 70 obere Reihe, links)
- DeS II: Modul zur hydrierenden Entschwefelung von Mitteldestillaten mit vorgesättigtem Wasserstoff im 5 kWe-Maßstab (Abb. 70 obere Reihe, Mitte)
- Brassboard: Modul für drei HT-PEFC Stacks (Sartorius-Stedim Biotech) mit $3 \times 2,3 \text{ kWe}$ im Wasserstoffbetrieb (Abb. 70 obere Reihe, rechts)
- Modul A: Modul zum Test der Kopplung von Reformern (ATR) und Shiftreaktoren (WGS) im 18 kW_{th} -Maßstab, entsprechend $7,5 \text{ kWe}$ (Abb. 70 mittlere Reihe, links)
- Modul B: Modul zum Test von BGS-Systemen mit ATR, WGS und CAB im 28 kW_{th} -Maßstab, entsprechend 10 kWe (Abb. 70 mittlere Reihe, Mitte)
- Modul C: Modul zum Test von ATR im 28 kW_{th} -Maßstab, entsprechend 10 kWe (Abb. 70 mittlere Reihe, rechts)
- Modul D: Modul zum Test von Katalytbrennern (CAB) im 28 kW_{th} -Maßstab, entsprechend 10 kWe (Abb. 70 untere Reihe, links)
- Modul E: Modul zum Test von HT-PEFC im 5 kWe-Maßstab (Abb. 70 mittlere Reihe, rechts)

3.4.2.2 Entschwefelung

Am IEK-3 wird seit 2005 an der Entschwefelung flüssiger Kraftstoffe gearbeitet. Der Fokus liegt dabei auf der Entschwefelung von Kerosin und Heizöl EL mit maximalen Gehalten an schwefelhaltigen Kohlenwasserstoffen von 3.000 ppm und 2.000 ppm . Kerosinquitäten, die in Europa und in U.S.A. in der Infrastruktur vorhanden sind, enthalten Schwefel in Massenanteilen kleiner als 500 ppmw . Nach einer theoretischen Analyse und Auswahl der Verfahren, die für die dezentrale Entschwefelung in Brennstoffzellensystem grundsätzlich geeignet sind, wurden die einzelnen Verfahren zunächst im Labormaßstab untersucht. Mit Hilfe der experimentellen Ergebnisse haben sich zwei Verfahrenswege als besonders erfolgreich herausgestellt. Die hydrierende Entschwefelung mit vorgesättigtem Wasserstoff in der flüssigen Phase

ist der einzige Prozess, der kurzfristig das Potential zur technischen Umsetzung hat. Mittel- bis langfristig können aber auch Kombinationen aus Membranen und Adsorbentien eine wichtige Rolle bei der Entschwefelung spielen. Hierzu ist aber weiterer Forschungsbedarf nötig.

Derzeit werden verschiedene Verfahren in Betracht gezogen. Dies sind:

- eine zweistufige Entschwefelung mit Pervaporation und Adsorption;
- eine dreistufige Entschwefelung mit zwei Pervaporationsstufen und einer Adsorptionsstufe;
- eine mehrstufige Adsorption und
- eine hydrierende Entschwefelung mit vorgesättigtem Wasserstoff.

Die Kombinationen aus Pervaporation und Adsorption sind in der zweistufigen Ausführung für Kerosinquitäten mit Schwefelgehalten zwischen ca. 500 – 700 ppmw Schwefel geeignet und in der dreistufigen Ausführung für ein Kerosin mit 3.000 ppmw nach Spezifikation.

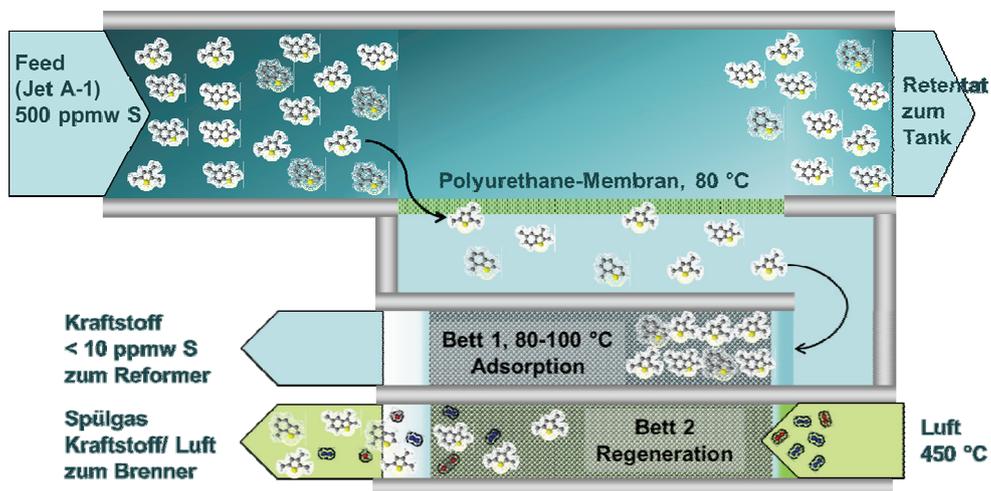


Abb. 71: Schematische Darstellung eines mehrstufigen Verfahrens zur Entschwefelung mit Membranen und mittels eines Adsorbens zur Feinentschwefelung

Abb. 71 zeigt in einer Schemaskizze, wie die schwefelhaltigen Komponenten im Kraftstoff in einem zweistufigen Verfahren abgetrennt werden können. In einem handelsüblichen JET-A1, dem Raffinerieprodukt aus Kerosin und Additiven, findet man deutlich reduzierte Konzentrationen an Thiophenen (150 ppmw) und an ein- bzw. zweifach methylierten Benzothiophenen (jeweils 100 ppmw). Trimethylbenzothiophene sind mit ca. 200 ppmw S ein Hauptbestandteil. In Abb. 71 findet man als Modellsubstanzen ein Trimethylthiophen, ein Methylbenzothiophen und ein Trimethylbenzothiophen. Wie sich aus den experimentellen Ergebnissen in Abb. 72 erkennen lässt, wird Trimethylthiophen bevorzugt im Permeat der Membran angereichert. Der dargestellte Anreicherungsfaktor setzt die Konzentration einer schwefelhaltigen Komponente im Permeat ins Verhältnis zur Konzentration in der Ausgangsmischung (Feed). Alkylierte Benzothiophene verbleiben hingegen im Ausgangsstrom – am Austritt der Membran als Retentat bezeichnet. Mit einer solchen Membran kann der Schwefelanteil auf ca. die Hälfte,

250 ppmw S, reduziert werden. Im Anschluss findet eine Adsorption der schwefelhaltigen Komponenten an einem geeigneten Adsorbens statt. Ein bereits mit schwefelhaltigen Kraftstoffkomponenten beladenes Adsorbentbett muss mit Luft bei Temperaturen zwischen 400 °C und 500 °C regeneriert werden. Da die Adsorption und die Regeneration für Thiophene leichter als für Benzothiophene und diese wiederum leichter als für Dibenzothiophene zu realisieren ist, wirkt sich das Trennverhalten der Pervaporationsmembran positiv aus.

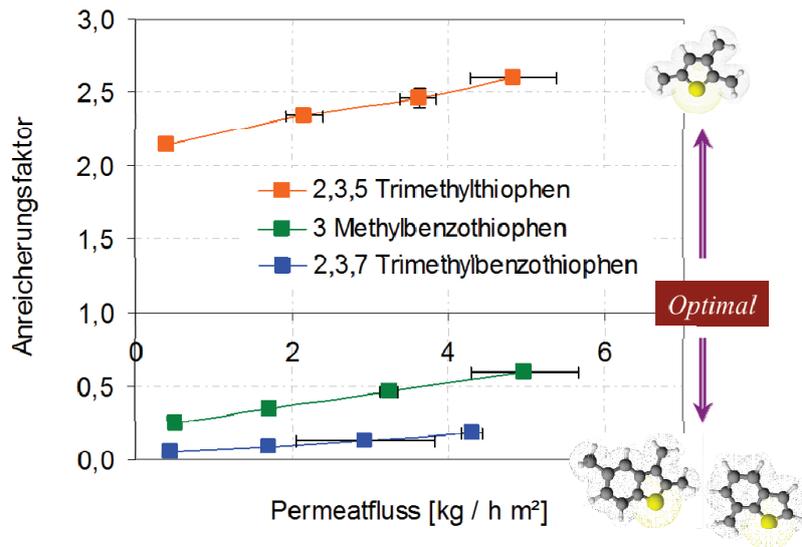


Abb. 72: Experimentelle Ergebnisse zur Selektivität einer Polymermembran bei einer Feedtemperatur von 70 °C. Die Selektivität wird durch den Anreicherungsfaktor β charakterisiert, $\beta = m_{S,Permeat} / m_{S,Feed}$

Um die Eignung eines Verfahrens zu beurteilen, werden die Kriterien Lebensdauer, Massenstrom, Baugröße, Wirkungsgradverlust, benötigte thermische und benötigte elektrische Energie herangezogen.

Abb. 73 zeigt für die vier verschiedenen Verfahren ein Netzdiagramm zur Beurteilung ihrer Anwendungstauglichkeit beim Einsatz eines Kerosins mit 3.000 ppmw Schwefel auf. Dabei wird jedes Kriterium durch den besten erreichten Wert der vier Verfahren dividiert. Das Diagramm macht dabei keine Aussagen über die absolute Eignung der Verfahren. Die Zielwerte für die Kriterien sind zum jetzigen Zeitpunkt nicht eindeutig festgelegt, jedoch sind vielfach Tendenzen klar. So müssen der Einsatz von elektrischer und thermischer Energie sowie der Wirkungsgradverlust möglichst klein sein. Der Zielwert für die Lebensdauer hängt maßgeblich von der Anwendung ab und liegt zwischen 5.000 - 40.000 h.

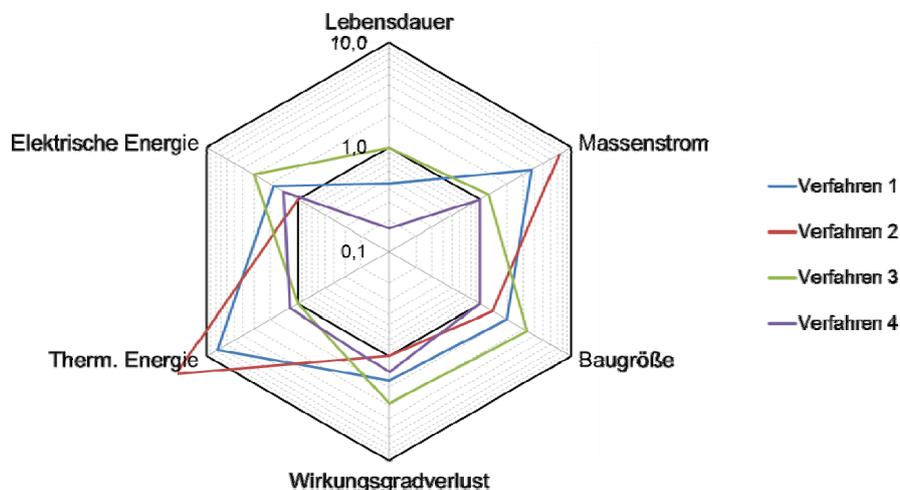


Abb. 73: Vergleich der Beurteilungskriterien Lebensdauer, Massenströme, Baugröße, Wirkungsgradverlust, eingesetzte elektrische und thermische Energie für einen Ausgangsmassenanteil von 3.000 ppmw Schwefel im Kerosin. Verfahren 1: zweistufige Entschwefelung mit Pervaporation und Adsorption; Verfahren 3: dreistufige Entschwefelung mit zwei Pervaporationsstufen und einer Adsorptionsstufe; Verfahren 3: mehrstufige Adsorption; Verfahren 4: hydrierende Entschwefelung mit vorgesättigtem Wasserstoff

Den geringsten Wirkungsgradverlust weist Verfahren 2 mit 0,7 % auf; Verfahren 4 liegt mit 1 % noch in einem tolerierbaren Bereich. Die höchste erreichte Lebensdauer wird mit 1.160 h für die mehrstufige Adsorption (Verfahren 3) angegeben, bei vielen Verfahren liegen noch keine ausreichenden Erfahrungen vor. Hohe einzusetzende Massenströme sind bei den beiden Membranverfahren zu verzeichnen, welches wiederum einen hohen Einsatz thermischer Energie zum Aufheizen der Stoffströme und einen hohen Bauaufwand für die Wärmetauscher nach sich zieht. Die Verfahren 1 und 2 sind für Kraftstoffqualitäten mit 3.000 ppmw S nur bedingt geeignet. Die mehrstufige Adsorption bedingt einen relativ hohen Aufwand an Pumpenenergie und einen relativen hohen Wirkungsgradverlust (3 %). Auf Basis der Kriterien, die in Abb. 73 gezeigt sind, ist für hohe Schwefelanteile die hydrierende Entschwefelung in der flüssigen Phase zu bevorzugen. Bei Kraftstoffen mit Schwefelanteilen von 500 ppmw S kann die Evaluierung zu anderen Ergebnissen kommen.

3.4.2.3 Komponentenentwicklung

Im IEK-3 wurden in den vergangenen Jahren Reformer für Mitteldestillate und für synthetische Kraftstoffe aus Biomasse entwickelt, die in Abb. 74 zu sehen sind. Dieser Reformer ist in der Lage, unter anderem aus konventionellen Dieselmotorkraftstoffen eine Wasserstoffmenge zu produzieren, die für Brennstoffzellenleistungen zwischen 5 kW_e und 10 kW_e ausreicht. Bevorzugtes Verfahren ist dabei die sogenannte autotherme Reformierung. Alle Apparate verfügen über eine Kaltstartvorrichtung, eine interne Dampferzeugung und eine Vorrichtung zur Auskopplung der bei der Reformierung anfallenden Prozesswärme. Autotherme Reformer produzieren

neben Wasserstoff auch höhere Anteile an Kohlenmonoxid mit 7 – 10 vol.-% In einem sogenannten Wassergas-Shiftreaktor (WGS) wird Kohlenmonoxid mit Wasser in Kohlendioxid und Wasserstoff umgewandelt. Es wird eine Abreicherung der Konzentration an Kohlenmonoxid auf 1 % erreicht. Der Wasserstoffgehalt steigt um ca. 6 – 9 %. Der Wirkungsgrad der Brenngaserzeugung liegt zwischen 80 % für fossile und 86 % für synthetische Kraftstoffe auf Basis eines Fischer-Tropsch-Prozesses. Die Brennstoffzelle nutzt den Wasserstoff im Produktgas der Brenngaserzeugung – meist als Reformat bezeichnet – zu 80 – 85 %. Restlicher Wasserstoff, Kohlenmonoxid und Methan, welches in geringen Mengen bei der Reformierung entsteht, werden in einem Katalytbrenner emissionsarm verbrannt. Die anfallende Reaktionswärme wird zusammen mit der Wärme, die bei der Abkühlung des Reformats auf 400 °C – der Eintrittstemperatur in den Shiftreaktor – frei wird, zur Dampferzeugung für den Reformer genutzt. Alle Reaktortypen wurden 2010 auf eine thermische Leistung des Reformers von 28 kW_{th} – entspricht einer Brennstoffzellen-Leistungsklasse von ca. 10 kW_e – hochskaliert.



Abb. 74: Überblick über die Komponentenentwicklung am IEK-3 in den Jahren 2007-2012

Um die beschriebenen Anforderungen an die Strömungs- und Temperaturverhältnisse im Inneren der Mischkammer des Reformers besser verstehen und vorhersagen zu können, werden in Jülich **C**omputational **F**luid **D**ynamics-Modellierungen durchgeführt. Sie haben zum Ziel, in Abhängigkeit von gegebenen Reaktionsbedingungen wie z.B. den Temperaturen und Strömungsgeschwindigkeiten der Medien Luft, Wasserdampf und Dieselkraftstoff und dem Sprühbild der Düse möglichst genaue Angaben zu liefern, welche Temperaturen sich in der Mischkammer einstellen werden und in welchen lokalen Zonen der Kraftstoff verdampft wird. Das CFD basierte Vorgehen bei der Reaktorauslegung wurde auch auf die katalytische Verbrennung und die Shiftreaktion übertragen. Abb. 75 zeigt eine CFD Simulation zur Bestimmung der charakteristischen Strömungszeiten. Dargestellt sind die Strömungslinien und die Strömungszeiten für den Dampfeintritt bei 50 % Last. Als charakteristische Strömungszeiten ergeben sich hierbei für die Tropfenverdampfung $t_v < 0,007 - 0,01$ s, für die Wirbelströmung in der vorderen Mischkammer $t_w < 0,02$ s und für die gerade Durchströmung $t_D < 0,04$ s. Die durchgeführten Strömungsberechnungen der kontinuierlichen Phase lassen sich anhand von Glasreaktorexperimenten, wie in Abb. 76 gezeigt, validieren. Hierbei werden die Glasreaktoren mit Wasser als Ersatzfluid und Methylblau als Fartracer durchströmt. Als Analysewerk-

zeug steht wiederum die Mikro- und Makroskop Hochgeschwindigkeitskamera zur Verfügung. Die Massenströme werden dabei mit Hilfe der Ähnlichkeitstheorie ausgelegt.

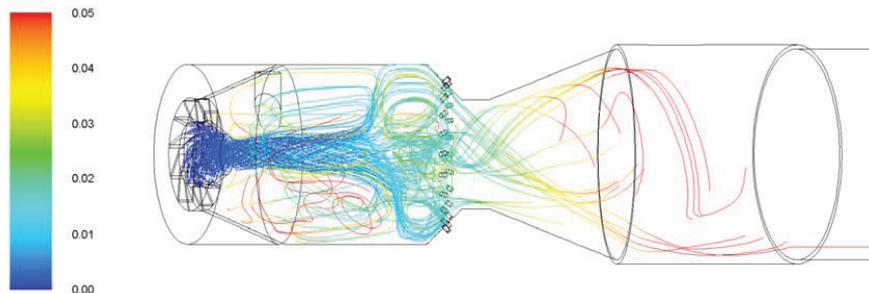


Abb. 75: Strömungslinien der Dampfströmung im ATR AH2 bei 50 % Last, Verweilzeit in [s]

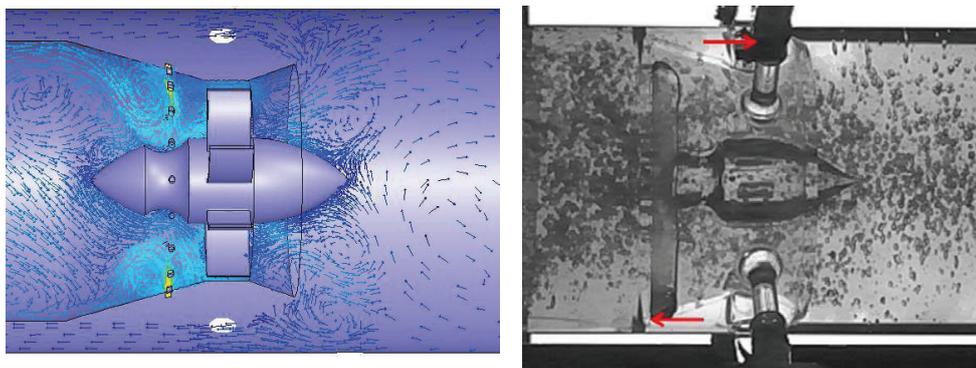


Abb. 76: CFD Modellierung und Strömungsvisualisierungsexperimente zur Modellvalidierung in einer Reformergeometrie

Der dargestellte Glasreaktor bildet die Mischkammer eines Reformers in der 50 kW_e Klasse ab. Die durchgeführten Strömungsvisualisierungsexperimente zeigen eine qualitative und quantitative Übereinstimmung der berechneten und experimentell ermittelten Strömungen. Die simulierten Strömungsprofile können somit als ausreichend genau angenommen werden. Zur fortlaufenden Validierung der CFD Simulationen sind weitere Visualisierungsversuche und Hochgeschwindigkeitsanalysen vorgesehen.

Zur Charakterisierung der Reformer, in Abb. 77 am Beispiel des ATR 9.1 dargestellt, wird ein statistischer Versuchsplan bestehend aus 11 Einzelexperimenten abgearbeitet, bei dem das molare O₂/C-Verhältnis meistens zwischen 0,43 und 0,47, das molare H₂O/C-Verhältnis zwischen 1,7 und 1,9 und der Massenstrom an Kerosin zwischen 1.215 g/h und 2.025 g/h variiert wird. Dabei wird der Einfluss dieser Reaktionsparameter auf charakteristische Versuchsgrößen wie die sich einstellenden Temperaturen im Katalysator, die Konzentrationen der Reaktionsprodukte im Reformat oder den Wirkungsgrad der Reformierung untersucht. Die Temperatur des Wasserdampfes bei Eintritt in den Reaktor betrug bei den Experimenten 460 °C. In Abb. 77 ist der Einfluss des molaren O₂/C- und des molaren H₂O/C-Verhältnisses

auf die CO-Konzentration im Reformat des ATR 9.1 bei einem Kerosinmassenstrom von 2.025 g/h (100 % Last des Reformers) für zwei unterschiedliche Kerosinquitäten zu sehen.

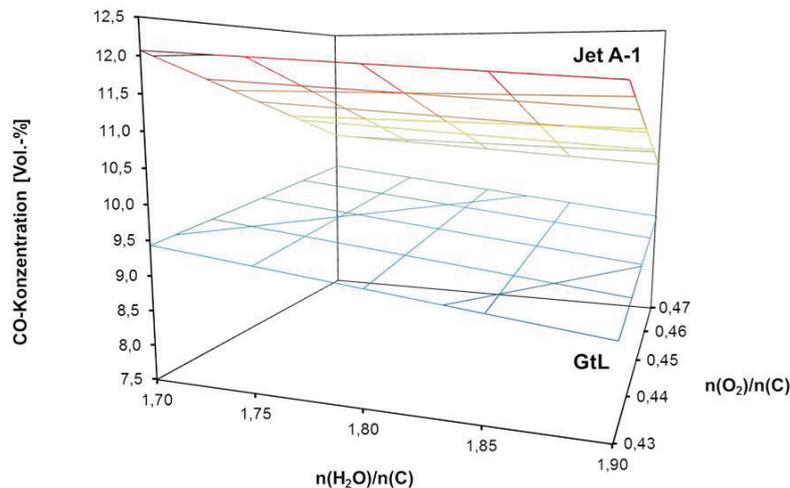


Abb. 77: Vergleich der CO-Konzentrationen im Produktgas des Reformers ATR 9.1 in Abhängigkeit vom Sauerstoff zu Kohlenstoff-Verhältnis und vom Wasserdampf zu Kohlenstoff-Verhältnis bei Vollast für schwefelarme Kerosinkraftstoffe auf fossiler (Jet A-1) und synthetischer Basis (GtL: gas-to-liquid)

Schwefelarmes Kerosin auf Basis fossiler Quellen kann über einen „Hydrocracker“-Prozess in der Raffinerie hergestellt werden. Es wird in Abb. 77 mit Jet A-1 bezeichnet. Es enthält ca. 15 – 20 vol.-% Aromaten und das H/C-Verhältnis des Kraftstoffs wird sehr gut wiedergegeben. Der synthetische Kraftstoff GtL wird über einen Fischer-Tropsch Prozess aus dem Synthesegas einer Erdgasreformierung hergestellt. Die Summenformel lautet $\text{C}_{10}\text{H}_{22}$. GtL-Kerosin enthält weder Aromaten noch schwefelhaltige Komponenten. Das Reformat aus Jet A-1 enthält gegenüber GtL-Kerosin deutlich mehr Kohlenmonoxid, das sind ca. 10 – 12 vol.-% CO gegenüber 9 – 10 vol.-% CO. Im Auslegungspunkt, $\text{O}_2/\text{C} = 0,47$ und $\text{H}_2\text{O}/\text{C} = 1,9$ beträgt der Unterschied jedoch nur $\Delta\text{CO} = 1 \%$.

3.4.2.4 Systementwicklung

Die Entwicklung von Systemen unter Nutzung der Reformierung von Mitteldestillaten beinhaltet experimentelle und theoretische Arbeiten. Die Systementwicklung für kohlenwasserstoffbasierte Brennstoffzellensysteme ist von der experimentellen Seite auf die HT-PEFC fokussiert. Ein wichtiges Werkzeug für die Systementwicklung ist die Modellierung aller Basiskomponenten von Brennstoffzellensystemen mit Reformierung. Betrachtet werden die Brennstoffzellentypen SOFC, PEFC und HT-PEFC. Schwerpunkte sind die Modellierung aller Teilkomponenten, vor allem für Komponenten mit integriertem Wärmeaustausch und Phasenwechsel, die statische und die dynamische Systemsimulation. Untersucht werden der Anfahrvorgang und das Lastwechselverhalten. Im Rahmen der Verfahrensanalysen wurden Wasserbilanzen als eine Funktion der äußeren Bedingungen wie relative Luftfeuchte und Umgebungstemperatur

berechnet. Weitere Informationen können dem Abschlussbericht zum Verbundvorhaben „ELBASYS“ entnommen werden (siehe Unterpunkt wichtige Veröffentlichungen).

Abb. 78 gibt einen Überblick über die Brenngaserzeugungs-Systeme die im Zeitraum 2007 – 2011 aufgebaut wurden und die sich zur Zeit im Testbetrieb befinden. Im nächsten Abschnitt werden vor allem Ergebnisse diskutiert, die in einem Brassboard-System mit dem Reformier ATR 8V2 in Verschaltung mit einem Shiftreaktor WGS 3 erzielt werden konnten.

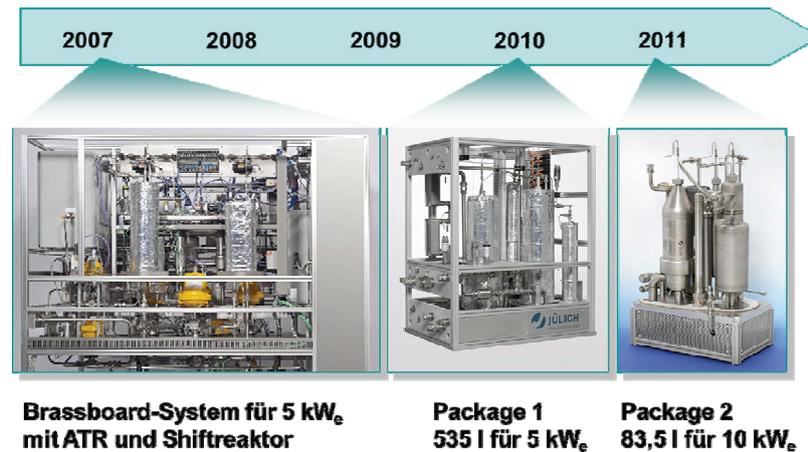


Abb. 78: Überblick zur Systementwicklung Brenngaserzeugung aus Diesel und Kerosin für die HT-PEFC am IEK-3 in den Jahren 2007-2011

Es wurden im Vorfeld der Untersuchungen mit dem Wasser-Gas-Shift Reaktor WGS 3 Experimente durchgeführt, um die interne Wasserdampfbereitstellung im Fuel-Processing System zu charakterisieren. Die interne Wasserdampfbereitstellung ist eine der wichtigsten Problemstellungen im Fuel-Processing System, für deren Lösung eine genaue Abstimmung der Teilkomponenten im System miteinander bezüglich ihrer Stoff- und Enthalpieströme notwendig ist. Der Reformier wird mit kaltem Kraftstoff, kalter Luft aber mit überhitztem Wasserdampf betrieben. Dafür muss Wasser mit Hilfe der Reaktionswärme verdampft und überhitzt werden. Die Wärmerückgewinnung findet in den integrierten Wärmeaustauschern des katalytischen Brenners und des Reformiers statt. Ein Teil des für die Reformierung benötigten Wassers wird dem Katalytbrenner zugeführt und dort verdampft. Danach wird der verdampfte Wasserstrom mit dem restlichen kalten Wasserstrom zusammengeführt. Der sich daraus ergebende Nassdampf wird danach in den integrierten Wärmetauscher des Reformiers geführt, um dort vollständig verdampft und auf die Reformier-Eintrittstemperatur überhitzt zu werden. Abb. 79 zeigt das Konzept für die Wasserdampfbereitstellung im Fuel-Processing System (links) im Vergleich mit der Verschaltung im Brassboard-System (Modul A; rechts in Abb. 79). Wesentlicher Unterschied ist, dass im Modul A die Verdampfungsfunktion des Katalytbrenners (CAB) von einem elektrischen Verdampfer übernommen wird. Zusätzlich bietet das Modul die Möglichkeit, einen Teil der Reformierluft zusammen mit dem Wasser über den Verdampfer in den Reformier einzubringen. Eine elektrische Heizpatrone nach dem Reformier-Wärmetauscher ermöglicht eine exakte Temperaturvorgabe des Wasserdampfs am Eintritt in die Reformier-Mischkammer.

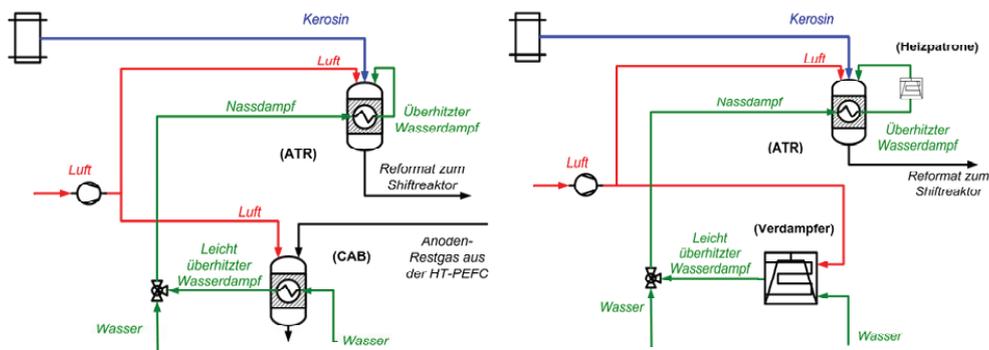


Abb. 79: Vergleich der Teilsysteme für die Wasserdampfbereitstellung im Fuel-Processing System (links) und im Modul A (rechts)

Im Normalbetrieb des Fuel-Processing Systems muss die Wasseraufteilung zwischen dem Katalytbrenner und dem kalten Wasserstrom so angepasst werden, dass die Austrittstemperatur des Reformers der Eintrittstemperatur des Shiftreaktors entspricht, so dass keine zusätzlichen Wärmeaustauscher erforderlich sind. Die Zieltemperatur an dieser Stelle liegt bei ca. 400 °C. Gleichzeitig muss der Nassdampf komplett verdampft und auf ca. 460 °C überhitzt werden. Dann kann der überhitzte Wasserdampf direkt der Mischkammer zugeführt werden. Das Ziel der Systemversuche ist es, die Wärmerückgewinnung im Reformer zu charakterisieren, um die optimalen Betriebsparameter zu bestimmen.

Die Charakterisierung wurde mit Hilfe eines vollfaktoriellen Versuchsplans mit 2³ Faktoren durchgeführt. Der Reformer ATR wurde mit einer konstanten Kraftstoffmenge von 1080 g/h GTL-Kerosin und einem molaren H₂O/C-Verhältnis von 1,9 sowie einem molaren O₂/C-Verhältnis von 0,47 betrieben. Die Temperatur des Wasserdampfs nach der Heizpatrone wurde mit 460 °C vorgegeben. Im Rahmen der statistischen Versuchsplanung wurden die folgenden drei Einflussgrößen variiert:

- Wasseraufteilung Verdampfer/Gesamt: 50% (-) bis 70% (+)
- Austrittstemperatur Verdampfer: 200 °C (-) bis 300 °C (+)
- Luftaufteilung im Reformer Luftring/Gesamt: 70% (-) bis 100% (+)

Bei allen 8 Versuchen lief die Reformierung sehr stabil mit nahezu konstanten Temperaturen und Produktgaszusammensetzungen ab. Daher wird hier über die Effekte der Einflussgrößen auf die Zielgrößen Temperatur des Reformats zum Shiftreaktor, Wasserdampftemperatur in den Reformer diskutiert. Abb. 80 zeigt eine Gesamtübersicht der Auswertungsergebnisse mit einer Regressionsfunktion. Für eine bessere Darstellung wurde der dritte Parameter (Aufteilung Luft) oben und unten mit jeweils minimalem Wert und maximalem Wert konstant gehalten. Die dargestellten Ergebnisse stellen nur die Luftaufteilung von 70 % zum Luftring/ gesamtter Luft dar.

Die Ergebnisse zeigen, dass mit zunehmendem Wasserstrom über den Verdampfer und mit erhöhter Verdampfer-Temperatur die Werte für beide Zielgrößen - Wasserdampftemperatur und Temperatur zum Shiftreaktor - anstiegen. Dies kann mit einem erhöhten Wärmeeintrag in den Reformer-Wärmetauscher erklärt werden. Auch in dem Fall, wenn 30 % der für die Reformierung benötigten Luft im Verdampfer aufgeheizt und durch den Reformer-Wärmetauscher

der Mischkammer zugeführt wurden, stiegen beide Zieltemperaturen. Eine wichtige Beobachtung ist, dass die beiden Zieltemperaturen voneinander wenig abweichen. Die Zielwerte lagen bei 400 °C für die Shift-Temperatur und 460 °C für die Wasserdampf-Temperatur. Die Geometrie des integrierten Wärmetauschers erlaubt offenbar einen solchen Temperaturunterschied von 60 K nicht. Bei der Parameter-Kombination - Aufteilung Wasser: 70 %, Verdampfer-Temperatur: 200 °C und Luftaufteilung: 70 % - ergab sich zum Beispiel eine Wasserdampf-Temperatur von 407 °C und eine Shift-Temperatur von 403 °C.

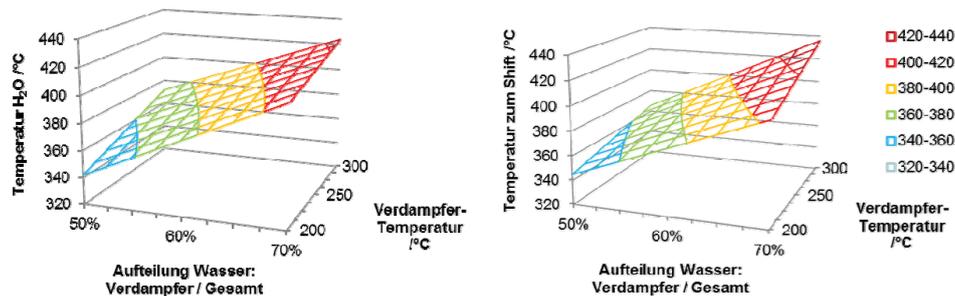


Abb. 80: Auswertung mit Regressionsebenen für die Dampf- und die Reformtemperatur am Austritt des internen Wärmeaustauschers des ATR 8V2 als Funktion der Verdampfertemperatur (Austritt CAB) und der Aufteilung des Wassers auf CAB und ATR. Luftaufteilung im Reformier Luftring/Gesamt: 70%

Mit Hilfe weiterer Versuche konnte gezeigt werden, dass ein Systembetrieb ohne eine zusätzliche Komponente wie die Heizpatrone möglich ist. Mit der Parameterkombination - Aufteilung Wasser: 70 %, Verdampfer-Temperatur: 200 °C und Luftaufteilung: 70 %, Heizpatronen-Temperatur: 400 °C - ergab sich eine Wasserdampf-Temperatur von 399 °C und die Temperatur am Austritt des Reformers lag ebenfalls bei 399 °C. Die Gemisch-Temperatur im unteren Bereich der Mischkammer lag bei 320 °C und die Reformierung lief stabil. Bei dieser Temperatur ist eine vollständige Verdampfung des GTL-Kerosins gewährleistet.

Um die Kopplung zwischen Reformier und Shiftreaktor zu testen, wurden ein Reformier vom Typ ATR 8V2 und ein Shiftreaktor vom Typ WGS 3 miteinander verschaltet. Dabei wurden folgende Parameter variiert: die Eintrittstemperatur in die Hochtemperatur-Shiftstufe wurde zwischen 364 °C und 400 °C eingestellt und die Wassermenge, die zwischen Hochtemperatur- und Niedertemperatur-Shiftstufe hinzugegeben wurde, variierte zwischen 540 g/h und 940 g/h. Mit der Wasserzugabe wird eine Abkühlung des Produktgases der Hochtemperatur-Shiftstufe durch die Wasserverdampfung erreicht. Mit der Variation der zugegebenen Wassermenge verändert sich auch die Eintrittstemperatur in die Niedertemperatur-Shiftstufe. Am Austritt der Niedertemperatur-Shiftstufe wird die CO Konzentration durch ein Massenspektrometer gemessen. Mittels der Stoffbilanzen erhält man schließlich die CO Konzentration im feuchten Produktgas der Shiftstufen.

In Abb. 81 und Abb. 82 sind die feuchten CO Konzentrationen im Produktgas des Shiftreaktors beim Betrieb mit GtL-Kerosin und mit entschwefeltem Kerosin dargestellt. In den beiden Abbildungen werden die Messwerte bzw. die bilanzierten Werte als Regressionsebenen

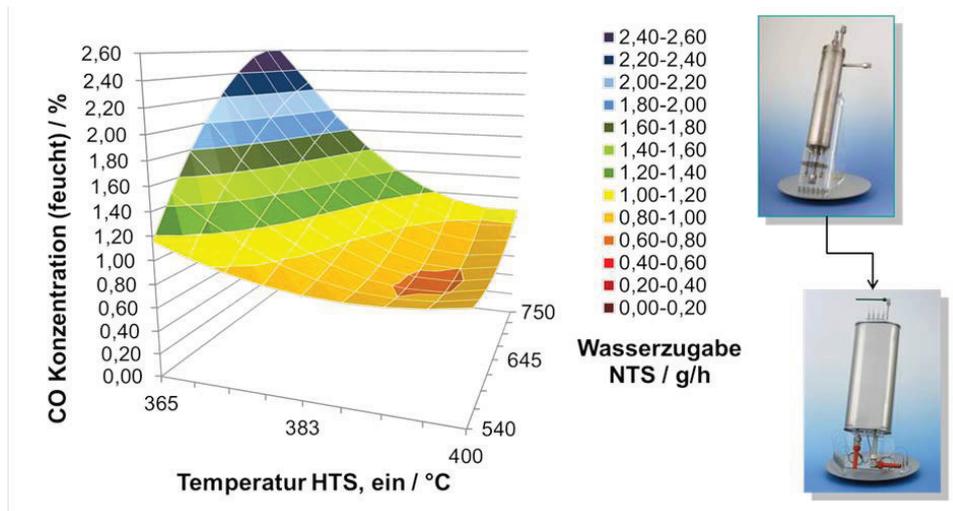


Abb. 81: CO-Konzentration (feucht) im Produktgas des Shiftreaktors als Funktion der Eintrittstemperatur in die Hochtemperatur-Shiftstufe und der zugegebenen Wassermenge zwischen Hoch- und Niedertemperatur-Shiftstufe. Regressions-ebene auf Basis eines 3²-Versuchsplans für Gtl- Kerosin

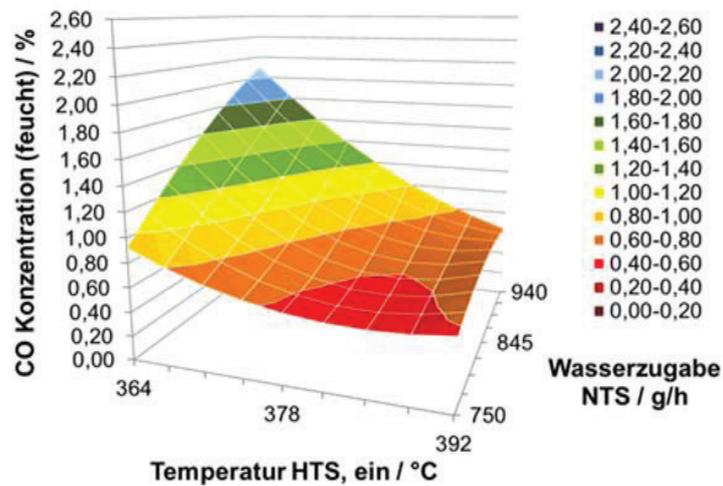


Abb. 82: CO-Konzentration (feucht) im Produktgas des Shiftreaktors als Funktion der Eintrittstemperatur in die Hochtemperatur-Shiftstufe und der zugegebenen Wassermenge zwischen Hoch- und Niedertemperatur-Shiftstufe. Regressionsebene auf Basis eines 3²-Versuchsplans für entschwefeltes Kerosin

liegt bei auf Basis eines 3² Versuchsplans dargestellt. Die geforderte Austrittskonzentration ca. 1 vol.-% CO. Es lässt sich aus den Abbildungen erkennen, dass ein Großteil der

Parametervariationen diese Bedingung erfüllt. Bei niedrigen Eintrittstemperaturen in die Hochtemperatur-Shiftstufe und einer hohen Menge an zugegebenen Wasser war die Eintrittstemperatur in die Niedertemperatur-Shiftstufe sehr niedrig und die katalytische Aktivität in der Niedertemperatur-Shiftstufe reichte nicht aus, um die geforderte Austrittskonzentration zu erreichen. Ideal im Sinne des Systembetriebs ist eine Eintrittstemperatur von 400 °C in die Hochtemperatur-Shiftstufe und eine niedrige Menge an zugegebenem Wasser. Aus dem direkten Vergleich der beiden Kraftstoffe lässt sich erkennen, dass die erreichbaren Austrittskonzentrationen im Falle des entschwefelten Kerosins niedriger sind. Dies ist umso bemerkenswerter wenn berücksichtigt wird, dass entschwefeltes Kerosin gegenüber GtL-Kerosin eine um 1 % höhere CO Konzentrationen am Eintritt in die Hochtemperatur-Shiftstufe, d.h. am Austritt des Reformers aufweist (siehe Abb. 77). Die Produktgaszusammensetzung des Reformats führt zu einer Veränderung der thermodynamischen Gleichgewichtslage und erlaubt die Abreicherung des Kohlenmonoxids auf niedrigere Konzentrationen im Shiftreaktor.

3.4.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Prof. Dr. R. Peters	4260 ra.peters@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Brenngaserzeugung und Systeme
Dr. J. Pasel	5140 j.pasel@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe Chemie der Brenngaserzeugung
Dr. R. C. Samsun	4616 r.c.samsun@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe Systemtechnik der Bordstromversorgung
Dr. S. Göll	4394 s.goell@fz-juelich.de	Verfahrensanalytische Systemberechnungen- und analysen
F. Scharf	5322 f.scharf@fz-juelich.de	CFD-Modellierung, Reformierung von Diesel
Y. Wang	2779 yo.wang@fz-juelich.de	Entschwefelung von Kerosin und Heizöl
C. Wiethege	6365 c.wiethege@fz-juelich.de	Dynamische Modellierung, Systemtechnik der Bordstromversorgung
A. Tschauder	4547 a.tschauder@fz-juelich.de	Reaktorentwicklung, Reformierung, Systemauslegung

3.4.4 Wichtige Veröffentlichungen, Dissertationen und Patente

Wichtige Veröffentlichungen

Wang, Y.; Latz, J.; Dahl, R.; Pasel, J.; Peters, R.

Liquid Phase Desulfurization of Jet Fuel by a Combined Pervaporation and Adsorption Process

Fuel Processing Technology, 90 (2009) 458-464

Da die konventionelle hydrierende Entschwefelung, die in Raffinerien eingesetzt wird, nicht geeignet ist für mobile Brennstoffzellenanwendungen (z.B. Auxiliary Power Units, APUs), war es das Ziel der vorliegenden Arbeit, einen alternativen Prozess zu finden und seine technische Relevanz zu prüfen. Deswegen wurden zahlreiche Verfahren überprüft, um heraus zu finden, ob sie für eine Anwendung in einer Brennstoffzellenbasierten APU geeignet sind. Die Ergebnisse zeigten, dass ein zweistufiger Prozess aus Pervaporation und nachfolgender Adsorption vielversprechend ist. Es wurden sechs unterschiedliche Membranmaterialien und zehn verschiedene Adsorbentien untersucht, um die Proben mit dem größten Potential zu identifizieren. In Laborexperimenten wurden die Betriebsbedingungen optimiert und es wurden Daten für eine Pilotanlage gesammelt. Unterschiedliche Kerosinqualitäten mit Konzentrationen an Schwefel von bis zu 1.675 ppm wurden bis auf 15 – 22 ppm entschwefelt. Damit wurde das Ziel der Arbeiten erreicht, einen geeigneten Prozess zu identifizieren, der die Entschwefelung von Kerosin in Brennstoffzellen-APUs ermöglicht.

R. C. Samsun, C. Döll, R. Peters, J. Pasel and D. Stolten

Start-up Behavior of Fuel Processing Systems

ECS Transactions, 17 (1) 599-610 (2009)

Diese Veröffentlichung analysiert Startverhalten von Brennstoffzellensystemen zur Bordstromversorgung. Es werden die Brennstoffzellentypen SOFC, PEFC und HT-PEFC in Betracht gezogen. Für die dynamischen Analysen wird als Kraftstoff Jet A-1 - vereinfacht als $C_{12}H_{24}$ angenommen - betrachtet. Die Berechnung der Startseiten beschränkt sich zunächst auf das Brenngaserzeugungssystem. Hervorzuheben ist dabei die Berechnung der Produktgaszusammensetzung des Reformers und für Niedertemperatur-Brennstoffzellensysteme die des Shiftreaktors. Erst wenn der Reaktor nahezu seine Betriebstemperatur erreicht hat, kann Kohlenmonoxid auf das erforderliche Maß reduziert werden. Im Falle einer PEFC muss noch Reaktor bzw. eine Kaskade von Reaktoren zur präferentiellen Oxidation vorgesehen werden. Wird ein Startbrenner zur Aufheizung des gesamten Brenngaserzeugungssystems verwendet, so beträgt die Startzeit zwischen 4 und 5 Minuten. Durch weitere Maßnahmen lässt sich diese Zeit für ein optimiertes HT-PEFC System auf ca. 90 s reduzieren.

Peters, R.; Latz, J.; Pasel, J.; Samsun, R.C.; Stolten, D.

Verbundvorhaben ELBASYS (Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf)-Teilprojekt: Brennstoffzellenabgase zur Tankinertisierung –Schlussbericht

Forschungszentrum Jülich GmbH, Schriften des Forschungszentrum Jülich, Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 46, ISBN 978-3-89336-587-6, Jülich, 2009

Für die zukünftige Marktposition der europäischen Flugzeugindustrie ist die Weiterentwicklung der technologischen Kompetenz hin zu kostengünstig hergestellten Flugzeugen mit geringerem Gewicht und entsprechend geringerem Treibstoffverbrauch

von großer Bedeutung. Um diese Ziele umzusetzen, wird verstärkt auf die Anwendung von Faserverbundwerkstoffen gesetzt. Das Verbundvorhaben „ELBASYS“ beinhaltet die wesentlichen Aspekte für die Einbindung elektrischer Basissysteme in einem CFK-Rumpf. Die Arbeiten des Forschungszentrums Jülich (Jülich) sind in Teilprojekt „Integration eines Brennstoffzellen-Systems“ angesiedelt. Jülich hat sich mit der Entschwefelung von Kerosin, mit der Auslegung und Konstruktion eines katalytischen Brenners zur Erzeugung von inerten Abgasströmen zur Tankinertisierung und mit Verfahrensanalysen für verschiedene Brennstoffzellensysteme beschäftigt. Für die kurzfristige technische Umsetzung einer Entschwefelung im 5 kWe-Maßstab steht auf Grund der vorliegenden Ergebnisse die hydrierende Entschwefelung mit der Wasserstoff-Vorsättigertechnologie zur Verfügung. Darüber hinaus konnte ein alternatives Verfahren für zukünftige Forschungsarbeiten identifiziert werden. Der entwickelte Katalytbrenner wird in Zukunft für die emissionsarme Verbrennung der Abgasströme im Normalbetrieb unter stationären und dynamischen Bedingungen eingesetzt. Die systemanalytischen Arbeiten zu PEFC- und HT-PEFC-Systemen haben gezeigt, dass das HT-PEFC-System mit Kerosinreformierung den Anforderungen eines multifunktionalen Einsatzes der Brennstoffzellentechnologie besser genügen kann als das entsprechende PEFC-System.

Peters, R.

Auxiliary Power Units for Light-Duty Vehicles, Trucks, Ships and Airplanes

In Hydrogen and Fuel Cells, Ed. Stolten, D., Wiley-VCH, Weinheim, 2010, S. 681-714

Brennstoffzellen-APUs bieten die Möglichkeit einer emissionsarmen und effizienten Stromerzeugung. In der luftfahrttechnischen Anwendung z. B. können im Vergleich zur konventionellen Technologie einer Gasturbine signifikante Mengen an Kerosin und damit an CO₂ eingespart werden. Für den Einsatz von Brennstoffzellen-APUs sind die Randbedingungen von Bedeutung, die sich aus der Kombination der betrachteten Anwendung, deren benötigter elektrischer Leistung und des zu verwendenden Kraftstoffs ergeben. In der Schifffahrt muss die größte Leistungsspanne zwischen 5 kW_e und 5 MW_e abgedeckt werden. Die meisten Anwendungen ergeben sich jedoch im Bereich zwischen 5 und 50 kW_e. Brennstoffzellen-APUs haben vor allem dann gute Chancen zu einem marktfähigen Produkt zu werden, wenn sie auf Kraftstoffe mit existenten Infrastrukturen wie Benzin, Diesel oder Kerosin zurückgreifen. Dabei muss der benötigte Wasserstoff mittels geeigneter Reformierungsverfahren aus diesen Kraftstoffen gewonnen werden. Zur Darstellung einer Brennstoffzellen-APU ist eine Fülle an Kombinationsmöglichkeiten für die unterschiedlichen Brennstoffzellentypen mit den unterschiedlichen Reformierungsverfahren möglich. Der Beitrag bietet einen Überblick über die Bedingungen für den Einsatz von Brennstoffzellen zur Bordstromversorgung in unterschiedlichen Transportanwendungen wie Passagierfahrzeuge, Lastkraftwagen, Schiffe und Flugzeuge. Es werden die verschiedenen Schritte der Erzeugung eines wasserstoffreichen Brenngases aus unterschiedlichen Kraftstoffen diskutiert. Abschließend erfolgt eine Bewertung des Entwicklungsstandes von unterschiedlichen Brennstoffzellensystemen.

Peters, R., Westernberger, A.

Large Auxiliary Power Units for Vessels and Airplanes

In Innovations in Fuel Cell Technologies, Ed. Steinberger-Wilckens, R.; Lehnert, W., Royal Society of Chemistry, Cambridge, 2010, 76-152

Der Buchbeitrag beschäftigt sich insbesondere mit Brennstoffzellen als Bordstromversorgung in der Leistungsklasse 150-500 kW_e. Solche Brennstoffzellensysteme sind vor allem für die Anwendung in Schiffen und Flugzeugen von hohem Interesse. Fokussiert auf diese beiden Einsatzbereiche werden deren Betriebsbedingungen, die zur Verfügung stehenden Brennstoffzellentypen und die unterschiedlichen Kraftstoff-

optionen diskutiert. Maritime Anwendungen bieten ein breites Feld mit unterschiedlichen Brennstoffzellentypen und verschiedenen Kraftstoffen, von denen aber bisher nur wenige Systeme realisiert werden konnten. In der Luftfahrttechnischen Anwendung werden zwei Ansätze verfolgt:

- zum einen wird Wasserstoff in flüssiger Form gespeichert. Diese Möglichkeit bietet sich vor allem für Kurzstreckeneinsätze an;
- zum anderen kann kommerzielles Jet A-1 oder kerosinähnlicher Biokraftstoff zur Reformierung eingesetzt werden. Dieser Lösungsansatz ist mittel- bis langfristig für Langstreckenflüge zu bevorzugen.

Als Brennstoffzellentyp bietet sich für beide Lösungen die HT-PEFC an. In diesem Buchbeitrag wird vor allem der multifunktionale Ansatz für die Anwendung von Brennstoffzellen in Flugzeugen beleuchtet. Hierbei werden neben der Erzeugung von elektrischem Strom die Nebenprodukte Wasser, Wärme und Abgas betrachtet. Wasser kann an Bord des Flugzeugs aufbereitet und weiter genutzt werden. Das Kathodenabgas der Brennstoffzelle kann nach einer entsprechenden Entfeuchtung und Trocknung zur Tankinertierung verwendet werden. Ebenso lässt sich Abwärme der Brennstoffzelle zur Enteisung der Tragflächen während bestimmter Flugphasen verwenden. Aus den Analysen für definierte Kraftstoff/ Brennstoffzellentypkombinationen lassen sich Aussagen über den Nutzen solcher Systeme für unterschiedliche Flugstrecken treffen.

Wichtige Patente

Patentanmeldungen:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Prof. D. Stolten	1.2392	Verfahren zur Reduzierung des Schwefelgehaltes eines schwefelhaltigen, flüssigen Kraftstoffs für die Verwendung in einem Stromerzeugungsaggregat sowie Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

Erteilte Patente:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Prof. D. Stolten	1.2281	Vorrichtung zur Herstellung eines Kraftstoff-Oxidationsgemischs

3.5 Verfahren- und Systemanalyse

3.5.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Die Auswahl künftiger Energiesysteme und die Entwicklung marktgerechter Technologien erfordern systematische, technisch fundierte Untersuchungen von Prozessketten im Hinblick auf Energieeffizienz, Rohstoffbedarf, Kosten und Emissionen. Dazu werden Systeme für anwendungsnahe Betriebsanforderungen ausgelegt und in bedarfsgerechter Tiefe bis hin zur dynamischen Simulation modelliert. Zurzeit befasst sich die Abteilung mit den Themen Elektromobilität (Brennstoffzellen- und Batteriefahrzeuge), Wasserstoffinfrastruktur und membranbasierte Prozesse zur Kohlendioxidabscheidung in Kraftwerken. Letzteres wurde Ende des Jahres 2010 in die Abteilung integriert. Die Abteilung war zudem intensiv an der Vor- und Nachbereitung der WHEC-2010 und der ICEPE-2011 beteiligt.

Die Nutzung fossiler Brennstoffe in der Energiewirtschaft verursachte im Jahr 2008 40,8 % der deutschen CO₂-Emissionen [10] – entsprechend 352 Mio. t. Kohlendioxidabscheidung und Speicherung sind dringend geboten, um auf dem Weg zu einer weitgehend regenerativen Energieversorgung den Treibhauseffekt unter Aufrechterhaltung der Versorgungssicherheit abzumildern [11]. Die Industrieländer sind gefordert die Machbarkeit zu demonstrieren. Nachdem am IEK-3 in den letzten Jahren vorwiegend die energetischen Potentiale verschiedener Prozessführungen für Kohlekraftwerke analysiert wurden, soll künftig auch der Anlagenaufwand beziffert werden und in die Minimierung der CO₂-Vermeidungskosten einfließen. Wichtige Prozessparameter sind die CO₂-Reinheit und der CO₂-Abtrenngrad. Das Ziel einer hohen Reinheit ergibt sich aus der Forderung nach niedriger Kompressionsenergie, niedrigem Transport- und Speichervolumen und Verhinderung der Korrosion in Pipelines. Daher ist bei unterschiedlichen Reinheiten der nachfolgende Energie- und Kostenaufwand in einen Prozessvergleich mit einzubeziehen. Der Abtrenngrad ist eine einfache Rechengröße zur Charakterisierung von Abtrennverfahren. Ausschlaggebend für die Prozessbewertung ist die daraus abgeleitete CO₂-Vermeidung bei gedanklich konstanter Netto-Stromerzeugung. Anzustreben ist ein hoher Vermeidungsgrad

$$1 - \frac{\text{CO}_2 \text{ Emission mit CCS (bei gleicher Brennstoffwärmezufuhr)}}{\text{CO}_2 \text{ Emission ohne CCS}} * \frac{\eta_{\text{net,ohne CCS}}}{\eta_{\text{net,mit CCS}}}$$

und niedrige Vermeidungskosten, wobei die Kosten der CO₂-Speicherung und der umweltschonenden Entsorgung anderer Reststoffe mit einzubeziehen sind. Niedrige Vermeidungskosten sind eine der Voraussetzungen für die industrielle und die gesellschaftliche Akzeptanz sowie für eine rasche Verbreitung von CCS. Sie sind neben Risikobewertungen ein wesentliches Entscheidungskriterium für die Wahl der Technologie durch den Betreiber und werden direkt mit den Kosten der CO₂-Emissionszertifikate verglichen.

[10] Umweltbundesamt (Hrsg.): Entwicklung der Kohlendioxid-Emissionen in Deutschland. <http://www.umweltbundesamt-daten-zur-umwelt.de> (aktualisiert am 05.03.2011)

[11] Metz, B., Davidson, O., de Coninck, H., Loos, M., Meyer, L., IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage, 2005, www.ipcc.ch

3.5.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.5.2.1 Brennstoffzellen und Batterien für mobile Anwendungen

Die Verringerung globaler und lokaler Umwelteinwirkungen, die Reduzierung der Abhängigkeit von importierten Energierohstoffen und wirtschaftspolitische Aspekte sind wesentliche Ziele einer notwendigen Neuausrichtung des Verkehrssektors. In diesem Zusammenhang werden aktuell ein veränderter Primärenergiemix in Verbindung mit zum Teil neuen Kraftstoffen einschließlich Strom und die Nutzung neuartiger, deutlich effizienterer Antriebe diskutiert. Eine herausragende Rolle können langfristig rein-elektrische Antriebe mit Brennstoffzellen für Pkw und Busse sowie mit Batterien für Kurzstrecken-Pkw spielen. Wird Wasserstoff in hocheffizienten Brennstoffzellen genutzt, bietet sich die Möglichkeit, unter Netzstabilitätsgesichtspunkten nicht-nutzbare Aufkommen an erneuerbarem Strom, vor allem aus Windkraft, in Form von Wasserstoff zwischen zu speichern. Flüssige Kraftstoffe mit hoher Energiedichte werden langfristig erforderlich bleiben, vornehmlich für den Fern- und Schwerlastverkehr sowie für die Luft- und Seefahrt. Für die Bordstromversorgung entsprechender Fahrzeuge können zukünftig aber Systeme mit Brennstoffzellen im Leistungsbereich von etwa fünf Kilowatt bis über einem Megawatt zum Einsatz kommen, bei denen über den Weg der Reformierung des vorhandenen Kraftstoffs ein geeignetes Brenngas bereitgestellt wird. Eine erneuerbare Basis für flüssige Kraftstoffe stellt Biomasse dar, die unter anderem über biochemische oder thermochemische Wege in geeignete Kraftstoffe umgewandelt werden kann.

Fahrzeugkonzepte, deren Antriebsstruktur und Speicherdimensionierung einen rein elektrischen Betrieb ermöglichen, sind:

- *Plug-in* Hybride mit Verbrennungsmotor oder Brennstoffzellensystem (*Plug-in hybrid electric vehicle*, PHEV) mit Reichweiten im Batteriebetrieb von bis zu 50 km
- Elektrofahrzeuge mit Brennstoffzelle und Batterie (*Fuel cell hybrid electric vehicle*, FCHV) mit Reichweiten von mehr als 400 km und
- Elektrofahrzeuge mit Batterie (*Battery electric vehicle*, BEV) mit Reichweiten bis maximal 200 km

Über die Vergleichbarkeit entsprechender Fahrzeugkonzepte mit heutigen Fahrzeugen entscheiden bei vergleichbarer Nutzlast und Nutzvolumen neben den Kosten vor allem die Leistungsfähigkeit des Antriebs mit Bezug auf Höchstgeschwindigkeit und Beschleunigungsfähigkeit sowie die Reichweite zwischen Betankungs- beziehungsweise Batterieladevorgängen. Aufgrund des Drehmomentverlaufs der Antriebsmaschine gelten Elektroantriebe als sehr gut fahrbar und machen bei moderaten Höchstgeschwindigkeiten ein Schaltgetriebe verzichtbar. Für FCHV im Wasserstoffbetrieb kommen heute ausschließlich PEFC mit Betriebstemperaturen zwischen 80 °C und 95 °C zum Einsatz. Für BEV kommt die Li-Ionentechnologie zum Einsatz. Sie wird den Forderungen nach hoher spezifischer Energie und Energiedichte aber auch nach hoher Lebensdauer und geringer Selbstentladerate am ehesten gerecht.

Für einen Vergleich von BEV mit 200 km Reichweite und FCHV mit 400 km Reichweite sind detaillierte Simulationsrechnungen auf Basis des Europäischen Fahrzyklus (MVEG) durchgeführt worden. Annahmen für das Fahrzeug wurden wie folgt festgelegt: die Querspanntfläche beträgt 2 m², der Luftwiderstandsbeiwert 0,32 und die Fahrzeugmasse ohne Antrieb und Speicher 900 kg. Es wird angenommen, dass sich durch Maßnahmen zur Chassis-Verstärkung die Fahrzeugmasse um das 1,2-fache zusätzlicher Komponentenmassen erhöht. Die Dimensionierung der Antriebskomponenten erfolgte auf Basis von Fahrleistungsanforderungen:

150 km/h Höchstgeschwindigkeit und 12 s für die Beschleunigung von 0 auf 100 km/h. Da Energiebedarf im Fahrzyklus und notwendiger Energievorrat korreliert sind, erfolgt die Energiebedarfsbestimmung iterativ. Es ergeben sich für das BEV bei Annahme einer spezifischen Energie des Batteriemoduls von 120 Wh_e/kg eine Batteriemasse von 235 kg und ein Energiebedarf von 14,2 kWh_e/100 km [12]. Das FCHV weist einen Energiebedarf von 27,5 MJ/100km auf.

Kostenprognosen für Batterien und Brennstoffzellensysteme sind heute schwierig zu treffen. Für Batterien gilt, dass zukünftig relevante Materialien und Herstellverfahren derzeit noch nicht absehbar sind. Unter der Annahme von Massenproduktion werden heute 250 bis 300 EUR/ kWh_e als Zielwerte für den Zeitraum 2015 bis 2020 angegeben. Für die weiter oben ermittelte Batteriekapazität von 28,3 kWh_e können dann bei Annahme des Mittelwerts von 275 EUR/kWh_e die Kosten des Batteriemoduls bei Berücksichtigung der Kapazitätsreserve von 20 % mit rund 9.700 EUR abgeschätzt werden. Für Brennstoffzellensysteme inklusive Speicher für 400 km Reichweite können die Kosten mit 7.400 EUR abgeschätzt werden. Dabei werden 70 EUR/kWh_e sowie 10 EUR/kWh_{H2} für 700 bar Druckgasspeicher auf Basis von Literaturangaben angenommen.

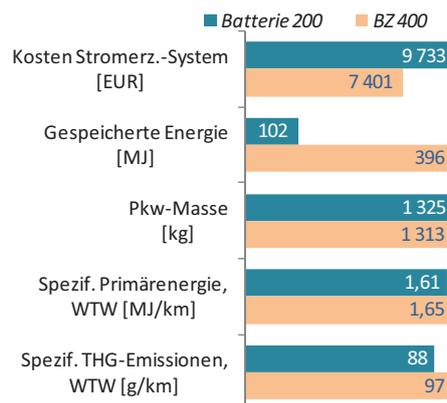


Abb. 83: Vergleich von Elektrofahrzeugen mit Batterien und Brennstoffzellen. Annahmen siehe Text; Strombereitstellung entsprechend dem deutschen Strommix (2008) nach [13], Wasserstoffbereitstellung mittels Erdgasreformierung und anschließendem Transport in Druckflaschen per Lkw (eigene Berechnungen)

Zusammenfassend sind in Abb. 83 vergleichende Angaben zu Fahrzeugen mit Brennstoffzellen und Batterien dargestellt. Die Kosten des Stromerzeugungssystems mit Brennstoffzellen können demnach bei mindestens doppelter Reichweite deutlich geringer ausfallen, wenn die entsprechenden Kostenziele erreicht werden. Bezüglich der *Well-to-wheel* (WTW) Bilanzierung von Primärenergieaufwand und Emission von Treibhausgasen (THG) bestehen geringe Nachteile für das FCHV bei der Nutzung von Erdgas zur Erzeugung von Wasserstoff. Durch

[12] Grube, Th., Stolten, D. (2010) Bewertung von Fahrzeugkonzepten mit Brennstoffzellen und Batterien. Beitrag zur VDI-Tagung „Innovative Fahrzeugantriebe“, Dresden, 10. und 11.11.2010
 [13] AG Energiebilanzen (2010) Energiebilanz der Bundesrepublik Deutschland 2008. www.ag-energiebilanzen.de, zuletzt besucht am 22.09.2010

Veränderung der Primärenergiebasis bei der Bereitstellung von Strom und Wasserstoff in Richtung THG-arter Primärenergien lassen sich diese Werte weiter reduzieren.

3.5.2.2 Wasserstoffinfrastruktur mit Schwerpunkt Pipelines

Eine unbedingte Voraussetzung für das Entstehen eines Massenmarktes für Brennstoffzellenfahrzeuge ist eine flächendeckende, effiziente, kostengünstige und sichere Infrastruktur zur Versorgung der Fahrzeuge mit Wasserstoff, die wie in Abb. 84 gezeigt verschiedene Pfade aufweisen kann. Ein Rohrleitungssystem bildet bei hohem Marktanteil für die meisten Gebiete die effizienteste Art des Transports. Die von der Bundesregierung in Auftrag gegebene Studie „GermanHy: Woher kommt der Wasserstoff in Deutschland bis 2050“ beziffert die Investitionskosten für Wasserstoffherstellung, Transport und Verteilung mit insgesamt 125 Mrd €, wobei 50 – 80 % auf die Herstellung entfallen sollen. Dem liegt ein Marktanteil von 70 % und ein jährlicher Wasserstoffbedarf von 5 Mio. Tonnen zugrunde.

Eine Forschungsarbeit am IEK-3 befasst sich nun detailliert mit Konzeption, Dimensionierung und Verlauf eines Rohrleitungssystems für Deutschland und prüft die technische Umsetzbarkeit bis hin zu Komponenten- und Materialfragen. Auf Basis dieser technischen Klärung sollen Energieeffizienz und Kosten eines solchen Systems bestimmt werden. In diesem Zusammenhang wird ein Vernetzungs-Werkzeug entwickelt, das ausgehend von beliebigen Quellenszenarien (Lage und Kapazität) sämtliche Landkreise anschließt und sich dabei an verschiedenen vorhandenen Netzen orientieren kann. Es ist absehbar, dass die Gesamtlänge eines solchen Fernleitungsnetzes bei etwa 12.000 km liegt. Distributionsnetze zum Anschluss aller größeren Tankstellen kommen hinzu. Auch diese werden quantifiziert.

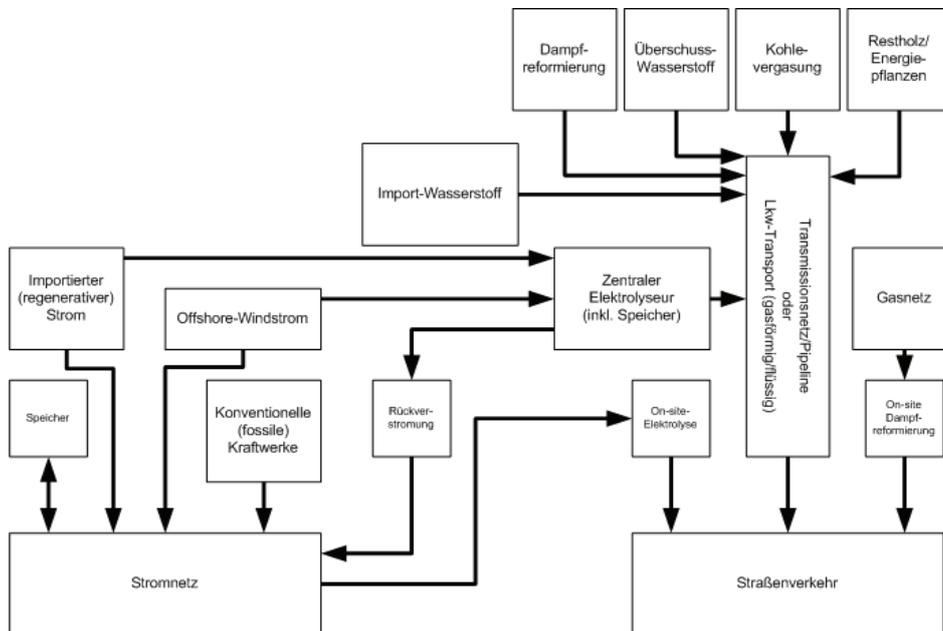


Abb. 84: Vereinfachter Aufbau eines Wasserstoffinfrastruktursystems

3.5.2.3 Post-Combustion Capture mit Membranen

Post-Combustion Prozesse werden stromab der konventionellen Rauchgasreinigung (DeNO_x, Entstaubung, Entschwefelung) angeordnet. An dieser Position hat das Rauchgas etwa atmosphärischen Druck, eine Temperatur von 50 - 70 °C und einen CO₂-Gehalt von 13 - 15 mol-%. Der niedrige Partialdruck (~140 mbar) stellt für die Abscheidung mittels Membranen eine Herausforderung dar, da zur Erzeugung ausreichender Triebkräfte bei Post-Combustion nur der Weg über niedrige Permeatdrücke sinnvoll erscheint, was aber besondere Anforderungen an die Permeatkompressoren stellt.

Permeat vakuum [mbar]	CO₂- Abtrenngrad [%]	CO₂/N₂ Selektivität	CO₂ Reinheit [mol%]	Δη [%-Punkte]
30	50	200	95	-3,4
100	50	3750	95	-2,8
100	70	keine Lösung	95	-
	90	keine Lösung	95	-

Tab. 7: Trennleistung einer einstufigen Membran (HZG, CO₂-Permeanz = 3 Nm³/m² h bar)

Als Ziel wurde im Projekt MEM-BRAIN vereinbart, einheitlich für alle Konzepte einen CO₂-Abtrenngrad von 90% und CO₂-Reinheit von 95 mol-% vorzusehen. Tab. 7 zeigt die Simulationsergebnisse für eine einstufige Membran, wobei das Feedgas aus 14 mol-% CO₂ und 86 mol-% N₂ besteht. Trotz eines sehr niedrigen Permeatdrucks erfordert bereits ein niedrig angesetzter Abtrenngrad von nur 50 % eine bisher nicht erreichte CO₂/N₂-Selektivität von 200. Für einen technisch machbaren Permeatdruck von 100 mbar und den gleichen niedrigen CO₂-Abtrenngrad müsste die Membran eine aus heutiger Sicht unerreichbare Selektivität von 3750 aufweisen. Die State-of-the-art Polymermembran POLYACTIVE des Helmholtz-Zentrum Geesthacht (HZG) weist aber nur eine CO₂/N₂-Selektivität von 50 auf. Aufgrund dieser Ergebnisse ist es notwendig, mehrstufige Membrankonzepte zu entwickeln.

Es wurden 10 unterschiedliche mehrstufige Konzepte untersucht. Dabei zeigte sich u.a., dass eine Kompression des Abgases (Feedgas der ersten Stufe) zur Erhöhung der Triebkraft bei nachfolgender Entspannung des Retentats energetisch nicht zu rechtfertigen ist. Ein Beispiel für eine effiziente Kaskade mit Rezirkulation des Retentats aus der zweiten Stufe in das Rauchgas vor der ersten Stufe ist in Abb. 85 dargestellt. Da das Permeat der ersten Stufe bereits eine hohe CO₂-Konzentration aufweist, ist der Energieaufwand für eine Kompression vor der zweiten Stufe vertretbar, da die dadurch erhöhte Triebkraft eine große Einsparung bei der Membranfläche erlaubt. Abb. 86 zeigt ein wesentliches Charakteristikum des Systems: bei 90 % CO₂-Abtrenngrad wird die Kaskade sowohl energetisch als auch aufwandsbezogen ungünstig (Δη= -11,4 %-Punkte, Membranfläche 13,2 m²/kW). Eine Reduktion des Abtrennziels würde daher erhebliche Verbesserungen ermöglichen. Die Membrankaskade soll insbesondere wegen der möglichen Nachrüstung bestehender Kraftwerke weiter untersucht werden.

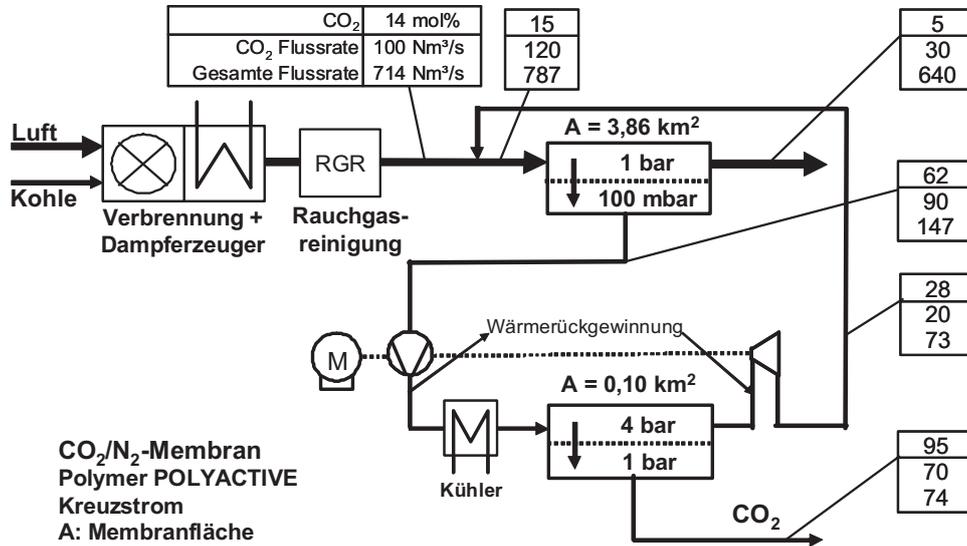


Abb. 85: Kaskadiertes Membransystem (Werte für 70% CO₂-Abtrenngrad, Verdichtung in 4 Stufen mit Zwischen- und Nachkühlung auf 50°C, Q_{ab}= 53 MW_{th} [Vakuumpumpe 34, Verdichter 19], davon 6,5 MW_{th} in 2-stufiger Expansion zurückgewonnen. Isentrope Wirkungsgrade 85%. Keine weiteren Druckverluste berücksichtigt.)

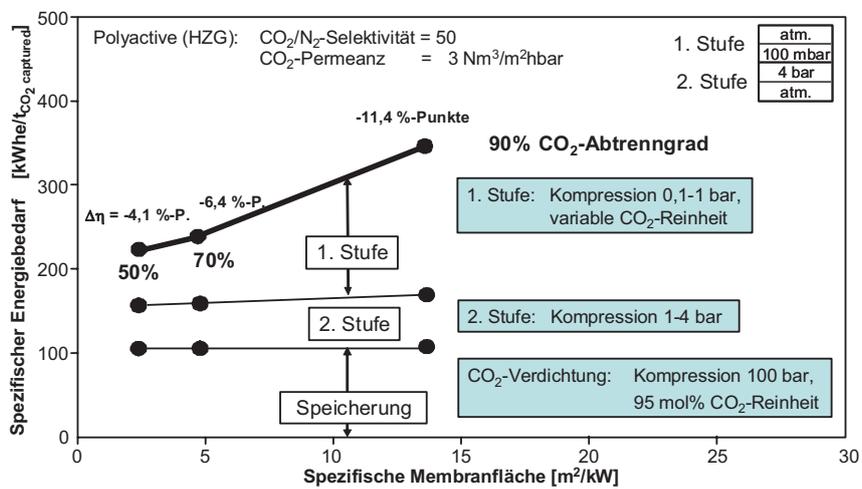


Abb. 86: Das Energie-Profil der Membrankaskade

3.5.2.4 Pre-Combustion Capture mit Membranen

Gas- und Dampf-Kombiprozesse mit integrierter Kohlevergasung (Integrated Gasification Combined Cycle, IGCC) bieten alternative Nutzungswege von festen Brennstoffen im Vergleich zu konventionellen Dampfkraftwerken. Sie eröffnen aufgrund der erhöhten Temperatur der Wärmezufuhr im primären Arbeitsmedium – über 1200 °C im Vergleich zu 600 °C – die Möglichkeit höherer Kraftwerkswirkungsgrade (vgl. Carnot-Prozess), wobei diese Erhöhung aber durch den Energiebedarf für die Vergasung geschmälert wird.

In Bezug auf CO₂-Abtrennung eröffnet das IGCC die Möglichkeit, das CO₂ bereits vor der eigentlichen Verbrennung abzutrennen. Das Synthesegas, welches bei der Vergasung unter erhöhten Temperaturen (T > 1200°C) und Drücken (p = 30-40 bar) entsteht, enthält hauptsächlich Wasserstoff (~33 vol%) und Kohlenmonoxid (~60 vol%), was eine Abtrennung technisch und energetisch stark begünstigt. Jedoch muss vor der Abtrennung das Kohlenmonoxid unter Zufuhr von Wasserdampf in Kohlendioxid und Wasserstoff (Wassergas-Shift-Reaktion) umgewandelt werden. Da es sich dabei um eine Gleichgewichtsreaktion handelt, ist ein großer Überschuss an Wasserdampf erforderlich (H₂O/CO ~ 2-2,5), um eine hohe CO-Konvertierung (> 98%) zu ermöglichen. Anschließend wird das CO₂ z.B. mittels physikalischer Wäsche absorbiert und nach der folgenden Desorption bei 1-2 bar zum Zweck der Speicherung verdichtet. Der Wasserstoff wird in einer Gasturbine mit hohem Luftüberschuss verbrannt und entspannt. Die im Abgas enthaltene Restwärme wird im Abhitzeessel an einen Dampfkreislauf übertragen.

Die damit verbundenen Wirkungsgradverluste im Vergleich zum IGCC ohne CO₂-Abtrennung (~11%-Punkte [14]) werden hauptsächlich durch den Wasserdampfbedarf für die Shift-Reaktion (~5,5%-Punkte), die Pumpleistung und Lösungsmittelaufbereitung der physikalischen Wäsche (~1,5%-Punkte) und die CO₂-Kompression auf 120 bar (~2,5%-Punkte) verursacht.

Eine Alternative zur CO₂-Abtrennung mittels physikalischer Wäsche bietet der Einsatz von wasserstoffselektiven Membranen. Dabei bleibt das CO₂ im Retentat und auf hohem Druck, wodurch der Energiebedarf für die Kompression auf den Speicherdruck erheblich verringert wird. Es wird jedoch Energie benötigt, um den abgetrennten Wasserstoff soweit zu komprimieren, dass er in die Gasturbinenbrennkammer eingedüst werden kann. Um das Potential der Membran besser zu nutzen, wurde das IGSWEEP-JÜL-Konzept entwickelt, welches einen Teil des Rauchgases rezykliert und als Spülgas für die Permeatseite der Membran verwendet (s.a. IEF-3 Report 2009, S. 179f). Die große Menge des Spülgases verursacht eine hohe Partialdruckdifferenz über die gesamte Membranfläche, wodurch auch bei begrenzter Membranfläche noch ein hoher H₂-Abtrenngrad erreicht werden kann. Da aber der Gesamtdruck auf der Permeatseite auf Prozessdruckniveau ist, kann auf eine Rekompensation vor der Gasturbinenbrennkammer verzichtet werden. Der Aufwand für die CO₂-Kompression bleibt unberührt, d.h. gering.

Laufende Konzeptentwicklungen konzentrieren sich auf die Kombination des Shift-Reaktors und der Wasserstoffmembran zum Wassergas-Shift-Membranreaktor (WGS-MR), wie in Abb. 87 gezeigt. Dieser bietet den Vorteil des kontinuierlichen Wasserstoffabzuges aus dem Synthesegas parallel zur Shift-Reaktion. Dadurch wird das Gleichgewicht der Shift-Reaktion

[14] Prins M., Van der Ploeg, R., Van der Berg, R., Patil, C., Van Dorst, E., Geuzebroek, F., Paul, D., Technology advances in IGCC with CCS. Präsentiert auf der CCT2009, Dresden, Deutschland, 18-21 Mai 2009

immer wieder verschoben, so dass neuer Wasserstoff nachreagiert. Theoretisch könnte so bei einer unendlich langen, perfekt selektiven Membran auch bei einem H_2O/CO -Verhältnis von 1 eine CO -Umsetzung von 100 % erreicht werden. In der Praxis wird das H_2O/CO -Verhältnis zur Vermeidung von Rußbildung zwar nicht unter 1,3 gesenkt, aber auch dies entspricht noch einer enormen Reduktion des benötigten Dampfes.

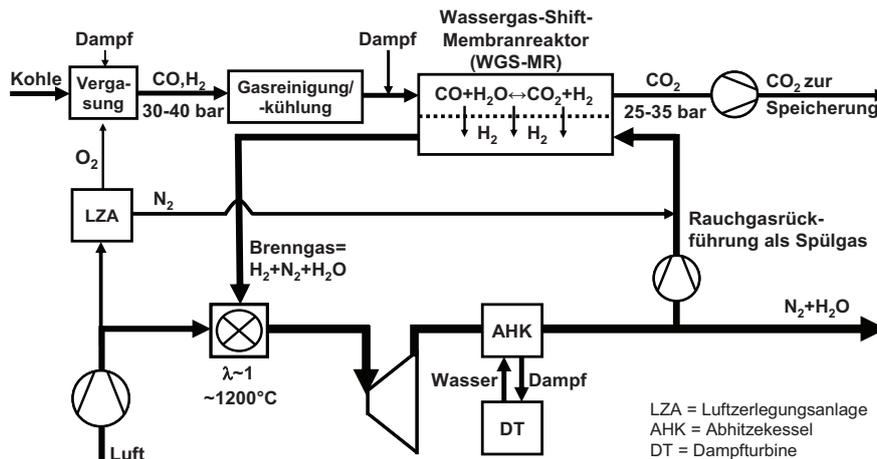


Abb. 87: IGCC mit CO_2 -Abtrennung mittels rauchgasgespültem WGS-MR

3.5.2.5 Oxyfuel-Prozess mit Membranen

Das Grundkonzept eines Oxyfuel-Prozesses basiert auf der Entfernung des Luftstickstoffs aus der Verbrennungsluft mit dem Ziel, ein Rauchgas zu erhalten, das nach den üblichen Reinigungsschritten und einer Kondensation des Wasserdampfes weitgehend (idealerweise ausschließlich) aus CO_2 besteht. Zur Begrenzung der Verbrennungstemperatur wird ein Teil des abgekühlten Rauchgases rezirkuliert. Aufgrund des notwendigen Oxidator-Überschusses, des Falschlufteinbruchs sowie der Verunreinigungen aus der Kohle besteht das gereinigte und bei Umgebungsdruck weitgehend entfeuchtete Rauchgas bis zu 90 vol% aus CO_2 . Vorteil der Oxyfuel-Verfahren ist die potentiell 100%-ige Rückhaltung des CO_2 .

Die Bereitstellung des Sauerstoffes in einer üblichen Reinheit (99,5 vol%) mittels kryogener Luftzerlegung hat heute einen spezifischen Energiebedarf von ca. $0,33 \text{ kWh}_{el}/\text{kg}_{O_2}$ (Vattenfall Pilotanlage Schwarze Pumpe). Dies entspricht bei einem üblichen Oxidator-Überschuss von 15 % einem Aufwand von $0,28 \text{ kWh}_{el}/\text{kg}_{CO_2}$ und einem Wirkungsgradverlust von 9,8 %-Punkten gegenüber dem Referenzkraftwerk NRW. Die spätere Verdichtung des CO_2 auf 100 bar und dessen kryogene Nachreinigung führt nach Linde zu einem weiteren Wirkungsgradverlust von mindestens 4 %-Punkten [15]. Bei der energetisch optimierten kryogenen Luftzerlegung sinkt der diesbezügliche Wirkungsgradverlust auf ca. 6 %-Punkte. Gleichzeitig reduziert sich

[15] Ritter, R.; Kutzschbach, A.; Stoffregen, T.: Energetische Bewertung einer CO_2 -Kompressions- und Reinigungsanlage für den Oxyfuel-Prozess am Beispiel einer Demonstrationsanlage. In: Beckmann, M; Hurtado, A. (Hrsg.): Kraftwerkstechnik. Sichere und nachhaltige Energieversorgung. Band 1. TK-Verlag Karl Thome-Kozmiensky, 2009. ISBN 978-3-935317-42-9

aber die Reinheit des Sauerstoffs auf 95 vol% [16], was zu erhöhten Aufwendungen bei der CO₂-Nachreinigung führt.

Alternativ dazu lässt sich zum Beispiel mit Perowskitmembranen reiner Sauerstoff bereitstellen. Diese gehören zur Gruppe der „dichten“ keramischen Membranen (Ionenleitung), die im Temperaturbereich von 700 bis 1.000 °C eine perfekt selektive Permeation von Sauerstoff ermöglichen. Damit entfällt im Vergleich zur energetisch optimierten kryogenen Bereitstellung die Verunreinigung des Rauchgases mit Stickstoff und Argon. Die Eigenschaften der derzeit bekannten membranbasierten Oxyfuel-Kohlekraftwerkskonzepte sind in Tab. 8 zusammengefasst. Der Schwerpunkt der thermodynamischen Simulationen am IEK-3 liegt bei den Konzepten ohne Verwendung eines Spülgases, da die derzeit verfügbaren Membranen gegenüber dem Rauchgas als Spülgas nicht beständig sind.

Betriebsparameter	Membranseite	OXYCOAL-AC	OXY-CLEAN	OXY-VAC-JÜL
Triebkraftbereiestellung	Feed	Kompr. u. Turbine	Kompr. u. Turbine	-----
	Permeat	Spülgas	- / Vakuumsauger	Vakuumsauger
Gesamtdruck	Feed	10-20 bar	10-20 bar	1 bar
	Permeat	1 bar	1 bar / < 1 bar	< 0,2 bar
Gaszusammensetz. bzw. -verunreinig.	Feed	Luft	Luft	Luft
	Permeat	Rauchgas + O ₂	O ₂	O ₂
Rauchgaskreislauf (Temperatur)		heiß	kalt	kalt
Rauchgaskreislauf (Menge)		groß	gering	gering

Tab. 8: Systematisierung der membranbasierten Oxyfuel-Konzepte

Die Verfahrensanalyse des OXY-CLEAN und OXY-VAC-JÜL-Konzeptes ergab, dass die Netto-Wirkungsgrade der Kraftwerke bei Sauerstoffabtrenngraden von 0,5-0,7 Maxima aufweisen (siehe Abb. 88). Zudem ist beim OXY-CLEAN Prozess die Nutzung der Abluftabwärme begrenzt. Bei geringeren Sauerstoffabtrenngraden überwiegen Verluste durch Abwärme des steigenden Abluftstromes, bei höheren Sauerstoffabtrenngraden überwiegt der elektrische Aufwand zur Sauerstoffbereitstellung. Abb. 88 zeigt das Ergebnis von Auslegungsrechnungen, bei denen das O₂-Partialdruckverhältnis (Retentat/Permeat) konstant gehalten wurde. Der Sauerstofffluss liegt in der Größenordnung von 1 ml/min cm² (gemessene Sauerstoffpermeation durch eine 0,5 mm dicke Membran, OXYMEM-Projekt).

Der energetische Aufwand für die Sauerstoffabtrennung bei einem Abtrenngrad von 0,6 beträgt 0,1 kWh_{el}/kg_{O₂} für OXY-CLEAN und 0,13 kWh_{el}/kg_{O₂} für OXY-VAC-JÜL und ist somit erheblich geringer als der Aufwand für die kryogene Sauerstoffbereitstellung.

[16] Burchhardt, U.; Lysk, S.; Kosel, D.; Griebe, S.; Kass, H.; Preusche, R.: Betriebserfahrungen aus dem Testbetrieb der Oxyfuel-Forschungsanlage von Vattenfall. In: Beckmann, M; Hurtado, A.(Hrsg.): Kraftwerkstechnik. Sichere und nachhaltige Energieversorgung. Band 2. TK-Verlag Karl Thome-Kozmiensky, 2010. – ISBN 978-3-935317-57-3

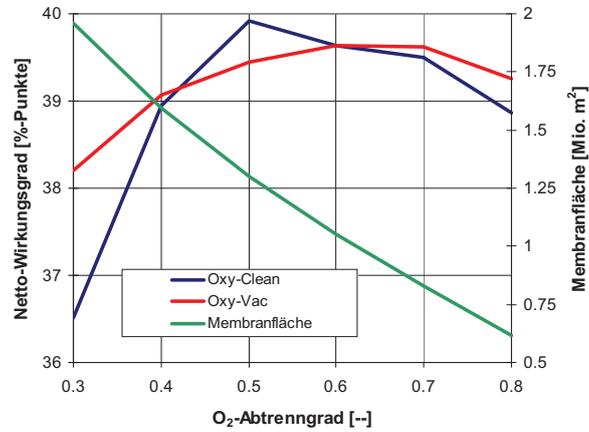


Abb. 88: Netto-Wirkungsgrade sowie Membranfläche der membranbasierten Oxyfuel-Konzepte

Durch Prozessintegration lässt sich der Wirkungsgradverlust verringern (Abb. 89). Bei einer wirtschaftlichen Komponentenauslegung (unterer Bildteil) liegt der Wirkungsgradverlust gegenüber dem Referenzkraftwerk NRW (ohne CO₂-Verdichtung) bei ca. 2,3 %-Punkten.

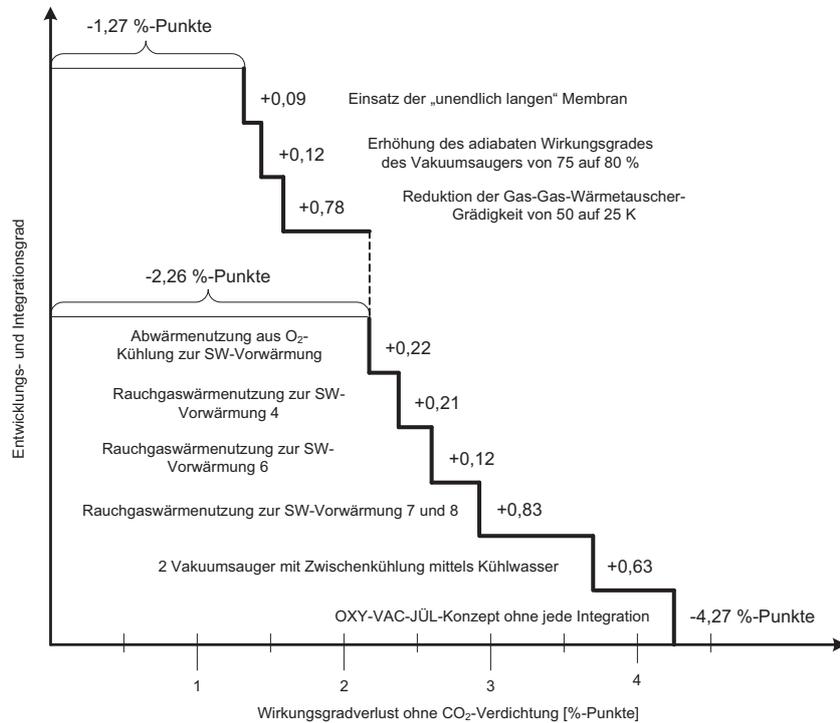


Abb. 89: Verringerung des Wirkungsgradverlustes des OXY-VAC-JÜL-Konzepts gegenüber dem Referenzkraftwerk NRW (Sauerstoffabtrenngrad 0,6; ohne CO₂-Verdichtung)

3.5.2.6 Post-Combustion Capture mit MEA Wäsche

Aus der Perspektive der Elektrizitätserzeugung hat die nachgeschaltete Abtrennung von CO₂ mittels einer Absorption mit Monoethanolamin (MEA) eine Reihe von Vorteilen:

- umfangreiche Erfahrungen aus anderen Industrieanwendungen
- mittelfristige Verfügbarkeit im notwendigen Maßstab
- Nutzung der bewährten Technologie eines Dampfkraftwerkes
- Nachrüstbarkeit der bestehenden Kraftwerke.

Die Analyse dieses Benchmark-Prozesses ist für die vergleichende Bewertung der Konzepte membranbasierter Capture-Prozesse erforderlich.

Der Prozess basiert auf der reversiblen Änderung des chemischen Gleichgewichtes mit der Temperatur. Bei niedriger Temperatur im Absorber (40 – 60 °C) [17] wird CO₂ durch die wässrige MEA-Lösung absorbiert und dann bei höherer Temperatur im Desorber (100 – 120 °C) [18] wieder freigesetzt und getrennt erfasst. Dabei verdunstet auch ein Teil des Wassers, das anschließend kondensiert und wieder zugeführt wird. Die CO₂-Beladungsdifferenz der MEA-Lösung beschreibt die zur Verfügung stehende zyklische Arbeitskapazität (Abb. 90).

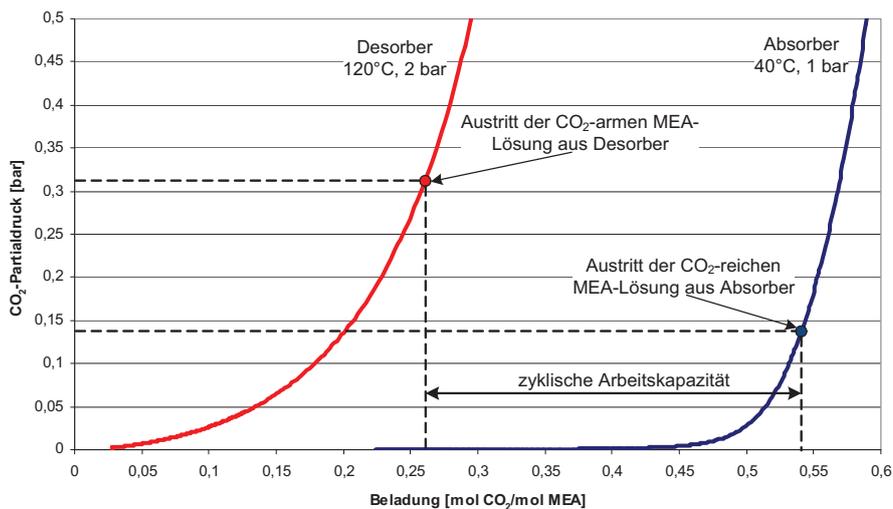


Abb. 90: Gleichgewichtsisothermen und Prozesszustände bei der MEA-Wäsche (30%-ige MEA-Lösung, Simulation in Aspen Plus®, geändertes Elektrolyt-NRTL-Modell, Kolonnenalgorithmus RATEFRAC®)

[17] Wobei 40 °C am Austritt der Lösung nur bei hohem apparativen Aufwand erreicht wird: etwa durch mehrfache Zwischenkühlung der Kolonnenböden oder durch Rauchgaskühlung.

[18] Die untere Grenze ist durch die Notwendigkeit einer ausreichenden Austreibung und die obere Grenze durch die temperaturabhängige Zersetzung der Amine bestimmt.

Die Wärme zur Temperaturerhöhung der MEA-Lösung (soweit nicht rekuperativ erfolgt) und zum Austreiben von CO₂ wird durch Niederdruckdampf aus dem Kraftwerksprozess bereitgestellt. Dadurch verringert sich die elektrische Bruttoleistung des Kraftwerkes. Hinzu kommt der elektrische Verbrauch der CO₂-Abscheide- und Verdichtungsanlage, der zusätzliche Druckverlust des Rauchgases und der erhöhte Kühlwasserbedarf. Die Summe dieser Effekte würde den Nettowirkungsgrad des mit einer MEA-Wäsche nachgerüsteten Referenz-Kraftwerkes NRW bei einem CO₂ Abscheidegrad von 90 % um bis zu 13 %-Punkte verringern. Durch Anpassungen der Turbogruppe können diese Verluste um bis zu 1,5 %-Punkte reduziert werden.

Am IEK-3 werden thermodynamische Simulationen des Wasch-, Kraftwerks- und CO₂-Verdichtungsprozesses mit PRO II, Aspen und Epsilon durchgeführt. Dabei ist eine Vielzahl von Parametern aufeinander abzustimmen. Beispielsweise ist der energetisch optimale Betriebspunkt der MEA-Anlage alleine (in Abb. 91: blau-gestrichelt, Desorberdruck 2 bar, Beladung 0,25 mol CO₂ / mol MEA) nicht deckungsgleich mit dem für das Kraftwerk insgesamt optimalen Betrieb der Waschanlage (grün-durchgezogen, Desorberdruck 1,6 bar, Beladung 0,28 mol CO₂ / mol MEA). Der Grund dafür ist der Zusammenhang zwischen dem Regenerationsenergiebedarf und dem elektrischen Äquivalenzfaktor des entnommenen Dampfes. Links vom Minimum der Kraftwerkskurve überwiegen Verluste durch die Bereitstellung des Strippdampfes, rechts – Verluste durch den zunehmenden Massenstrom des aufzuheizenden Lösungsmittels.

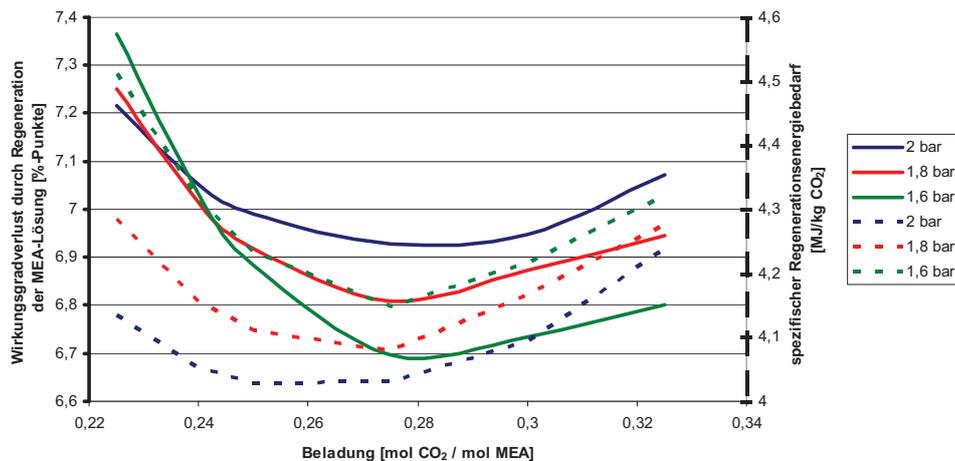


Abb. 91: Spezifischer Regenerationsenergiebedarf und Wirkungsgradverlust durch die Regeneration (Reboilergrädigkeit: 5 K, Druckverlust des entnommenen Dampfes: 10 % des Sättigungsdampfdruckes)

Die Quantifizierung der umweltseitigen Auswirkungen ist ebenfalls ein Bestandteil der Verfahrensanalyse. Bei derzeitiger Rauchgasreinigung ist mit einem MEA-Abfall von bis zu 3 g/kWh_{el} zu rechnen. Nach der derzeitigen Rechtslage wäre dieser als gefährlich bzw. besonders überwachungsbedürftig einzustufen. Durch eine verbesserte Entschwefelung auf 10 ppm sinkt dieser Wert auf unter 2 g/kWh_{el}.

3.5.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Dr. Michael Weber	8626 mi.weber@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Verfahrens- und Systemanalyse
Thomas Grube	5398 th.grube@fz-juelich.de	Antriebssimulation, Verfahrens- und Systemanalyse
Dennis Krieg	3077 d.krieg@fz-juelich.de	Rohrleitungsinfrastrukturen für Wasserstoff
Jewgeni Nazarko	3742 j.nazarko@fz-juelich.de	Anlagensimulation, Kraftwerkstechnik Aminwäschen, Oxyfuel-Prozesse
Dr. Ernst Riensche	6689 e.riensche@fz-juelich.de	Anlagensimulation, Kraftwerkstechnik, CO ₂ -Abtrennung
Sebastian Schiebahn	8731 s.schiebahn@fz-juelich.de	Anlagensimulation, Kraftwerkstechnik Pre-Combustion, Membranprozesse
Dr. Dr. Li Zhao	4064 l.zhao@fz-juelich.de	Membranprozesse, Anlagensimulation, CO ₂ -Speicherung, Post-Combustion

3.5.4 Wichtige Veröffentlichungen

Wichtige Veröffentlichungen

Grube, Th.; Stolten, D.

Bewertung von Fahrzeugkonzepten mit Brennstoffzellen und Batterien

In proceedings, VDI-Tagung "Innovative Fahrzeugantriebe", Dresden, 10.–11.11.2010

Mobilität in Deutschland ist heute fast vollständig von importiertem Mineralöl abhängig und hat einen bedeutenden Anteil an der Emission von Treibhausgasen und anderen, lokal wirksamen Schadstoffen. Die Reduzierung der Importabhängigkeit und die notwendige Verringerung der Umweltwirkungen und hier besonders der globalen Erwärmung erfordern eine strategische Neuorientierung im Verkehrssektor. Ein veränderter Kraftstoffmix für Kraftfahrzeuge unter starker Einbeziehung regional verfügbarer, erneuerbarer beziehungsweise treibhausgasarmer Primärenergien wird mittel- bis langfristig realisierbar sein. Der Einsatz von hoch-effizienten Brennstoffzellensystemen in Elektroantrieben verbunden mit der Nutzung von Wasserstoff könnte dann deutliche Vorteile auch gegenüber weiterentwickelten Verbrennungsmotorantrieben aufweisen. Aufgrund verbesserter Batterietechnologien und teilweise vorhandener Infrastruktur zur Batterieladung, sind nun auch Elektrofahrzeuge mit Batterien geeignet, den spezifischen Energiebedarf und die Schadstoffemissionen von Pkw deutlich zu reduzieren.

Der Beitrag bewertet Perspektiven und Herausforderungen von Fahrzeugkonzepten mit rein-elektrischer Betriebsweise. Im Mittelpunkt der Analysen stehen dynamische Simulationen von Pkw unter Nutzung unterschiedlicher Fahrprofile und fahrzeugspezifischer Kenndaten. Unter Einbeziehung von Daten zur Bereitstellung von Kraftstoffen – einschließlich Strom – werden Energiebedarf und Treibhausgasemissionen der

vollständigen Energieumwandlungsketten von Elektrofahrzeugen mit Batterien und Brennstoffzellen vorgestellt.

Pastowski, A.; Grube, Th.

Scope and perspectives of industrial hydrogen production and infrastructure for fuel cell vehicles in North Rhine-Westphalia

Energy Policy 38 (2010) 5382–5387

A promising candidate that may follow conventional vehicles with internal combustion engines combines hydrogen from regenerative sources of energy, fuel cells and an electric drive train. For early fleets introduced the refuelling infrastructure needs to be in place at least to the extent of the vehicles operational reach. The question arises which strategies may help to keep initial hydrogen and infrastructure cost low? Industrial production, distribution and use of hydrogen is well-established and the volumes handled are substantial. Even though today's industrial hydrogen is not in tune with the long-term sustainable vision, hydrogen production and infrastructure already in place might serve as a nucleus for putting that vision into practice. This contribution takes stock of industrial production and use of hydrogen in North Rhine-Westphalia based on a recently finalized project. It demonstrates to which extent industrial hydrogen could be used for a growing number of vehicles and at which time additional capacity might need to be installed.

Grube, Th.; Höhle, B.; Stiller, C.; Weindorf, W.

Systems Analysis and Well-to-Wheel Studies

Erschienen in: Stolten, D. (Ed.): Hydrogen and Fuel Cells - Fundamentals, Technologies and Applications. Chapter 40. 2010. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA.

Energy systems analyses provide powerful assessment frameworks for research and development projects involving new energy technologies. These analyses rely on the description of state-of-the-art technologies and incorporate scenarios on future developments in the energy sector in order to identify the benefits and weaknesses of the technologies under consideration. This chapter presents selected assessment highlights relating to hydrogen and fuel cell technologies for transportation. With respect to fuel cell system cost, noble metal requirements are of utmost significance. The corresponding balances for fuel cell vehicles will be introduced. Moreover, the relevance of dynamic powertrain simulation for the evaluation of energy process chains in transportation will be discussed. In a further part, the methodology and results of well-to-wheel analyses of energy use and greenhouse gas emissions will be discussed, followed by an assessment of relevant hydrogen-focused well-to-wheel studies of different world regions as well as a comparison and interpretation of key findings.

Stolten, D.; Grube, Th. (Hrsg.)

18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC 2010 Proceedings, Parallel Sessions Book 1 – 6

Schriften des Forschungszentrums Jülich, Energy & Environment Volume 78-1 bis 78-6, ISBN: 978-3-89336-657-6, Jülich, 2010

Over the past few years, the three major reasons why novel energy technologies will be required in the very next years have become common sense: to mitigate climate change, to secure energy supply, and to foster economic competitiveness. Hydrogen and fuel cells have great potential to meet all three of these societal requirements. Being at the cutting edge of energy R&D, the government of North Rhine-Westphalia

has been supporting hydrogen and fuel cell technologies substantially for many years through the Fuel Cell and Hydrogen Network NRW, by funding research projects, and not the least by hosting the 18th World Hydrogen Energy Conference 2010 in Essen. Although the 18th WHEC was overshadowed by the consequences of the subprime crisis and the subsequent economic downturn, the number of participants was a record high. More than 1,350 people attended the scientific conference that offered 342 oral presentations in 49 sessions and 183 posters. The technological dimension materialized in an extensive trade fair with 136 exhibitors and a notable share of one third of the presentations being given by industry representatives. Such figures prove that hydrogen and fuel cell technologies are timely and that industry, governments and academia recognize the potential they have of providing viable solutions to the Grand Challenges mentioned above.

In order to ensure that the conference has a long-lasting impact, it was decided to fully document the event in publicly available books. The introductory talks to the sessions are available as full papers in the book entitled *Hydrogen and Fuel Cells – Fundamentals, Technology and Applications*, edited by D. Stolten and published by Wiley-VCH. These proceedings cover the speeches and technical presentations made on plenary day and the oral presentations and posters in the parallel sessions. They have been published as a set of seven books by the Juelich Research Center. We gratefully acknowledge the wide-ranging support we had when editing this volume. First of all, we would like to express our gratitude to the authors of the papers in the proceedings who made it possible to promptly publish the talks given in the parallel sessions. Moreover, we are grateful for copy-editing support from the PhD students at the Institute for Fuel Cells in Juelich: Christiane Döll, Ralf Elze, Stefan Hürter, Dennis Krieg, Mirko Kvesić, Fang Liu, Andreas Löhmer, Wiebke Maier, John McIntyre, Florian Scharf, Sebastian Schiebahn, Yong Wang and Christiane Wiethege.

Stolten, D.; Emonts, B. (eds.)

18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC 2010 Proceedings, Speeches and Plenary Talks

Schriften des Forschungszentrums Jülich, Energy & Environment Vol. 78, ISBN: 978-3-89336-658-3, Jülich, 2012

A comprehensive and renowned conference offers the opportunity to extend the scope beyond mere technical issues. It allows for having strategic presentations and discussing aspects of market introduction, industrial and Governmental target setting as well as approaches to and actions for implementation. The 18th World Hydrogen Conference 2010, WHEC2010, succeeded in exploiting this opportunity and satisfied the expectations. Strong political support in Germany and in the State of North Rhine Westphalia in particular made it possible to have high profile decision makers at the conference presenting their strategies first hand.

Hence, a full day was dedicated to plenary speeches and overview talks. The WHEC2010 came handy at a time when fuel cells are developed to suit the requirements for vehicles, except for cost and durability. At a time when the competition with batteries and whether or how a hydrogen infrastructure can be established and afforded were hot topics in the public debate, which needed answers on a well informed basis. Considering fuel cells and hydrogen at a time at one conference and supplementing it with the current knowledge on batteries and hybridization clarity on the future role of these technologies was gained. Very likely fuel cells and batteries will coexist in a future of electrified vehicular transport. Their different technical characteristics will open the doors to different market segments. Implementing hydrogen infrastructure, being a requirement for fuel cells in transport, is considered doable and affordable.

This book presents the speeches and overview papers from the plenary session of the WHEC 2010 on May 17, 2010.

Six further books of this issue contain the papers of the oral and poster presentations, except for the introductory talks of the sessions. The latter are published separately

by Wiley in a book named Hydrogen and Fuel Cells . In total the 18th WHEC is documented on over 3800 pages in a structured way in order to reach the broad spectrum of potential readers.

The editors gratefully acknowledge the strong and sustained support of the State of North Rhine Westphalia and the EnergieAgentur.NRW.

Krieg, D.; Grube, Th.; Stolten, D.

Analysis of the Impact of Hydrogen on Wind Power

Erschienen in: Stolten, D.; Grube, Th. (Hrsg.), 18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC 2010 Proceedings, Parallel Sessions Book 2, Schriften des Forschungszentrums Jülich, Energy & Environment Volume 78-2, Jülich, 2010

There are two ways of using electricity generated by wind energy converters. The first is direct sale on the electricity market and the second is indirect use in the form of hydrogen converted by an electrolysis system. This hydrogen may then be used in two ways. On the one hand, it can be stored in order to re-convert it into electricity if needed and, on the other hand, it can be used as fuel in the transportation market. In addition to the well-known influence parameters, e.g. investment cost, maintenance etc.; there are two parameters that have a decisive influence on whether hydrogen should be used and if so, how much should be used. The first factor is the time-variable electricity tariff and the other is the price of hydrogen as fuel. Both aspects depend on the market and the political circumstances, which ultimately influence the market in the form of prohibitions and monetary incentives. This paper will show possible technical progress which might help to make electrolysis more attractive as well as analyzing the parameters affecting the demand side of hydrogen generated by wind power. The goal is to formulate a method which allows us to consider the decisive influence parameters in order to finally conclude the circumstances under which electricity produced by wind power can reasonably be used to generate hydrogen by electrolysis.

Nazarko, J.; Riensche, R.; Blum, L.; Stolten, D.

Optimierung der Oxyfuel-Kraftwerkskonzepte mit der Sauerstoffbereitstellung durch Hochtemperaturmembranen

Erschienen in: Michel Beckmann, Antonio Hurtado (Hrsg.): Kraftwerkstechnik. Sichere und nachhaltige Energieversorgung. Band 2, S. 147-168. TK Verlag Karl Thome-Kozmiensky, Neuruppin, 2010. – ISBN 978-3935317-57-3

Die OXY-CLEAN- und OXY-VAC-JÜL-Konzepte bieten mehrere Vorteile bei der Umsetzung des membranbasierten Oxyfuel-Konzeptes an. Beim Einsatz der realen Wärmetauscher-Grädigkeiten (50 K) und -Druckverluste (20 bzw. 50 mbar) sowie der realen Wirkungsgrade der Turbokomponenten (Verdichter: 80 %, Turbine: 85 %, Vakuumsauger: 75 %) können bei optimierten Sauerstoffabtrenngrad je nach Konzept Netto-Wirkungsgrade von 39,5 bis 40,0 % inkl. CO₂-Verdichtung erreichen. Der Vergleich mit jeweiligen Referenz-Verfahren ergibt einen spezifischen Energieaufwand für die Sauerstoffbereitstellung von 0,098 bis 0,106 kWh_{el}/kg O₂, so dass die Sauerstoffbereitstellung für Oxyfuel-Kraftwerksprozesse mittels Membranen einen deutlichen energetischen Vorteil gegenüber der kryogenen Sauerstofferzeugung hat. Die Verbesserungen bei Komponenten zur Bereitstellung der Membranbetriebs-temperatur und des Partialdruckverhältnisses sowie die Optimierung des Partialdruckverhältnisses an der Membran führen zu weiterer Reduktion des Wirkungsgradverlustes auf 5,27 %-Punkte inkl. CO₂-Verdichtung.

Rienschke, E.; Nazarko, J.; Schiebahn, S.; Weber, M.; Zhao, L.; Stolten, D.

Capture Option for Coal Power Plants.

Erscheint in: Stolten, D.; Scherer, V. (Hrsg.), "Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants", ISBN-13: 978-3-527-33002-7 - Wiley-VCH, Weinheim, Mai 2011

This article provides an overview on the great variety of options for carbon dioxide capture from coal-fired power plants. It focuses on the question of energy efficiency of carbon capture. The capture routes are post-combustion, oxyfuel-combustion and pre-combustion – the latter with selective CO₂ separation and with selective H₂ separation. The basics of gas separation methods like CO₂ absorption with liquids, reaction of O₂ and CO₂ with solids and membrane separation of CO₂, O₂ and H₂ in steam power plants and IGCCs are outlined. Finally, selected capture processes are briefly described and efficiency potentials are discussed.

Blum, L.; Rienschke, E.; Nazarko, J.; Menzer, R.; Stolten, D.

Overview on 1st and 2nd generation coal-fired membrane power plants (with and without turbo machinery in the membrane environment).

4th Int. Conf. on Clean Coal Technologies (CCT2009), Dresden, 18-21 May 2009, Proceedings (CD-ROM).

A systematic classification of the capture concepts with conventional separation as well as membrane separation is discussed in a 2-dimensional matrix: The 4 capture principles (post-combustion, oxyfuel, pre-combustion-capture of CO₂ and pre-combustion-capture of H₂), characterized by the 4 separation tasks CO₂/N₂, O₂/N₂, CO₂/H₂ and H₂/CO₂, have to be applied to the 3 different coal power plant (PP) routes: SPP (steam PP), IGCC/standard and IGCC/CO-shift/H₂-turbine.

In case of membrane separation a further dimension of PP concepts is created by the fact, that different measures exist for realization of positive driving forces for permeation. For example the O₂/N₂ separating membranes in oxyfuel SPPs can be operated with feed gas compression, permeate vacuum, application of a sweep gas at the permeate side or combinations of these 3 measures. An overview is given on the actually developed membrane PP concepts (post-combustion and oxyfuel in SPPs, pre-combustion in IGCC). In all cases energy consuming turbo machinery is required for membrane operation or for CO₂ or H₂ recompression in case of pre-combustion (1st generation of membrane coal PPs). Calculated efficiency losses are not significantly below 10 %-points.

An outlook is given to a new IGCC concept, where a suitable sweep gas (N₂ with low O₂ content) of sufficient high flow rate is produced (related to the permeated H₂). Now the swept H₂/CO₂ membrane operates without turbo machinery (2nd generation of membrane coal PPs). Lower efficiency losses (between 5 and 10%-points) seem to be possible now.

Schiebahn, S.; Zhao, L.; Grünwald, M

Pre-Combustion Carbon Capture with Physical Absorption

Erscheint in: Stolten, D.; Scherer, V. (Hrsg.), "Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants", ISBN-13: 978-3-527-33002-7 - Wiley-VCH, Weinheim, Mai 2011

Pre-combustion capture with physical absorption in integrated gasification combined cycles (IGCC) offers a feasible opportunity for separating carbon dioxide with a relatively low efficiency penalty. This article provides an introduction to the IGCC process and the integration of physical scrubbing to separate CO₂. General

considerations for process and material selection for physical absorption are explained. Commercially available physical and mixed chemical/physical solvents are described and characterised with respect to the relevant application. Additionally, current research activities regarding ionic liquids as alternative physical solvents are presented.

Zhao, L.; Blum, L.

Gas Separation Membranes Used in Post-combustion Capture

Erschienen in e-book "Recent Developments in Capture and Sequestration of CO₂", Editor: R. Hilda Chavez, to be published by Bentham Science Publishers.

Using CO₂/N₂ gas separation membranes for post-combustion capture, the most important problem is how to create the driving force efficiently because the feed flue gas has only ambient pressure and a relatively low CO₂ content. Multi-stage systems are necessary using feasible membranes in order to fulfill the separation target, required by the following pipeline transport, and limited by the storage capacity. The whole work was divided into two steps: a.) energy consumption analysis and b.) capture cost analysis.

This book chapter describes mass and energy balances for single-stage and multi-stage membrane systems used in coal-fired power plant. Using recirculation of flue gas and variation of the feed gas compressor and vacuum pump on the permeate side, two concepts were developed and optimized to achieve minimum energy consumption. In order to evaluate different membrane capture concepts, a comparison with chemical absorption process was carried out, considering different degrees of CO₂ separation. Furthermore, a cost model was developed to make a further analysis of the optimized concept in view of the tradeoff balance between material and energy consumption. The correlation between the membrane parameters (selectivity, permeability) and capture cost was investigated.

Zhao, L.; Riensche, E.; Blum, L.; Stolten D.

How Gas Separation Membrane Competes with Chemical Absorption in Post-combustion Capture

Energy Procedia, 4 (2011), 629 - 636

This paper describes an investigation for multi-stage systems used in coal-fired power plant. The whole work was divided into two steps: energetic and economic analyses. In the first step: on the basis of a serial concept, through varying the position of compressors and vacuum pumps, recycling the retentate of the 2nd membrane to the feed side of the 1st membrane, a cascade variant was developed and analysed. In the second step: an economic model was developed to calculate the capture cost of the cascade system. The total cost is composed of investment cost, operation and maintenance (O&M) cost and electricity cost. A correlation between the membrane parameters: selectivity & permeability and capture performance: energy consumption & capture cost was built up. Using Polyactive® membrane developed by HZG with CO₂ permeance of 3 Nm³/m²hbar and CO₂/N₂ selectivity of 50, under the separation target of 70% degree of CO₂ separation and 95 mol-% CO₂ purity, adopting the cascade membrane system in the 600 MW NRW-reference power plant, the specific energy consumption including CO₂ compression (110 bar, 30°C) is 256 kWh/tseparated CO₂ with 6.4%-pts efficiency loss. The capture cost is 31 euro/tseparated CO₂, which could be a promising solution as a retrofit for the existing power plants.

Goos, E.; Riedel, U.; Zhao, L.; Blum, L.

Phase Diagrams of CO₂ Gas Mixtures and Their Application in Compression Processes

Energy Procedia, 4 (2011) 3778 - 3785

Phase diagrams of carbon dioxide, nitrogen and their mixtures with different amounts of nitrogen (e.g. 5 mol-%, 10 mol-% N₂) were calculated with high accuracy with the NIST Reference Fluid Thermodynamic and Transport Properties database program REFPROP® for up to 200 bar, as well as density-pressure diagrams.

Beside the use of carbon dioxide as a solvent for supercritical fluid extraction, increasing interest in physical chemical properties of CO₂ exists as Carbon dioxide Capture and Storage (CCS) starts to play an important role to limit anthropogenic emissions of CO₂ into the atmosphere. Therefore CO₂ processing and pipeline technologies became of considerable commercial importance, especially in the context of future underground storage of CO₂.

As example the CO₂ compression process with gas separation membrane in post-combustion capture was simulated with PRO/II® software. Through adopting several different equations of states, phase diagrams of different CO₂ - N₂ gas mixtures were calculated and compared with the aforementioned accurate thermodynamic and transport properties calculation results. This type of validation is very useful for process engineering analysis.

Further investigations related to the compression process were carried out for the different CO₂ gas mixtures, which are generated from the gas separation membrane capture process. Specific energy of the compression process was analysed for each gas mixture. The energy consumption and the state of the compressed compounds are strongly influenced by the N₂ composition in the mixture.

The impurities in multi-component CO₂ mixtures vary strongly depending on the different capture technologies. The calculation of reliable phase diagrams of CO₂ mixtures provides guidelines for optimization of compression, pipeline transport, and storage processes.

Zhao, L.; Riensche, E.; Blum, L.; Stolten D.

Multi-stage Gas Separation Membrane Processes Used in Post-combustion Capture: Energetic and Economic analyses”

Journal of Membrane Science 359 (2010) 160-172.

Using CO₂/N₂ gas separation membranes for post-combustion capture, the most important problem is how to create the driving force efficiently because the feed flue gas has only ambient pressure and a relatively low CO₂ content. In order to fulfill the separation target – 95 mol-% CO₂ purity and appropriate degree of CO₂ separation – multi-stage systems are necessary using feasible membranes. This paper describes a detailed parametric study for multi-stage membrane systems used in a coal-fired power plant.

According to the above-mentioned boundary conditions, the investigation process was divided into two steps: a) energy consumption and b) capture cost analyses. In the first step, by varying the position of the compressors and vacuum pumps and recycling the flue gas to the feed side, cascade variants were developed and analyzed in detail. The cascade system was integrated in the 600 MW North Rhine-Westphalia reference power plant and compared with the chemical absorption process. In the second step, an economic model was developed to make a further analysis of the cascade system. A correlation was established between the membrane parameters (selectivity, permeability) and system performance (energy consumption, capture cost).

Wichtige Patente

Patentanmeldungen:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
Dr. R. Riensche	1.2381	IGCC-Kraftwerk mit Rauchgasrückführung und Spülgas
Dr. R. Riensche	1.2382	Feuerungsanlage und Verfahren zum Betreiben einer solchen
Dr. R. Riensche	1.2405	IGCC-Kraftwerk mit Rauchgasrückführung
J. Nazarko	1.2431	Vorrichtung und Verfahren zur Entfernung von Kohlendioxid (CO ₂) aus dem Rauchgas einer Feuerungsanlage nach der Energieumwandlung
Dr. E. Riensche	1.2437	Kraftwerk sowie Verfahren zum Betreiben desselben
Dr. E. Riensche	1.2463	CO ₂ -Abtrennung aus Rauchgasen durch chemische Wäsche sowie Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens
Dr. E. Riensche	1.2501	IGCC-Kraftwerk mit einem Wassergas-Shift-Membranreaktor (WGS-MR) sowie Verfahren zum Betreiben eines solchen IGCC-Kraftwerks mit Spülgas

Erteilte Patente:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
E. Riensche	1.2405	IGCC-Kraftwerk mit Rauchgasrückführung

3.6 Analytik

3.6.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Im Bereich des Physikochemischen Brennstoffzellenlabors werden analytische Methoden zur in-situ- und/oder orts aufgelösten Analyse von Strukturen und Effekten entwickelt und genutzt. Dabei werden grundlegende Struktur/Wirkungsbeziehungen komplexer Vorgänge in Brennstoffzellen und Reaktoren ermittelt und zu deren Verbesserung herangezogen. Darüber hinaus werden physikalische Eigenschaften von Zellkomponenten ermittelt, die zur Kontrolle und Bestimmung mechanischer und thermodynamischer Tauglichkeitsvoraussetzungen für den Einsatz in Brennstoffzellen dienen. Die im Brennstoffzellenlabor zur Anwendung gebrachten Methoden zielen auf die Bereiche:

- Bildgebende Analysemethoden
- Orts aufgelöste Analysemethoden
- Physikalische und elektrochemische Analysemethoden

3.6.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.6.2.1 Bildgebende Analysemethoden

Im Berichtszeitraum wurden in enger Zusammenarbeit mit den Fachabteilungen für die Entwicklung der Direktmethanolbrennstoffzelle (DMFC) und der Hochtemperatur-Polymerelektrolytbrennstoffzelle (HT-PEFC) die Mikro- bzw. Nanostrukturen von Brennstoffzellenkomponenten untersucht. Ausgangspunkt war hierbei die Visualisierung und Dokumentation der Mikrostrukturen nach den unterschiedlichen, aufeinanderfolgenden Fertigungsschritten von den Ausgangsmaterialien bis zur kompletten Membran-Elektroden-Einheit (MEA).

In einem folgenden Schritt wurden dann Komponenten nach den elektrochemischen Tests mit unterschiedlichen Belastungsprofilen oder Betriebsdauern untersucht. Die Ergebnisse sind wenn möglich mit den jeweiligen Ausgangskomponenten hinsichtlich etwaiger Änderungen der Mikro- oder Nanostruktur sowie der Materialzusammensetzung verglichen worden. Zum Einsatz kamen ein Aufsicht-Lichtmikroskop (LiMi), ein Feldemissions-Rasterelektronenmikroskop (REM) mit angeschlossener energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) sowie ein konfokales Laserscanmikroskop (CLSM). Zur Probenvorbereitung insbesondere von Querschliffen kompletter MEAs wurden folgende Methoden eingesetzt

- Konventioneller Schleif- und Polierprozess mit in Kunstharz kalt eingebetteten Proben
- Ionenstrahlätzung
- Skalpellschnitt

Im Folgenden werden exemplarisch einige Ergebnisse dieser Strukturuntersuchungen vorgestellt.

Abb. 92 zeigt maschinell hergestellte Gasdiffusionselektroden im Ausgangszustand für den Einsatz in der DMFC anhand von hochauflösenden REM-Aufnahmen in Aufsicht auf die Oberfläche. Im linken Bild ist eine Kathode und im rechten eine Anode dargestellt. Der Edelmetallgehalt des Ausgangskatalysatorpulvers beträgt ca. 70 Gew.-% Pt für die Kathode und ca. 75 Gew.-% Pt + Ru für die Anode.

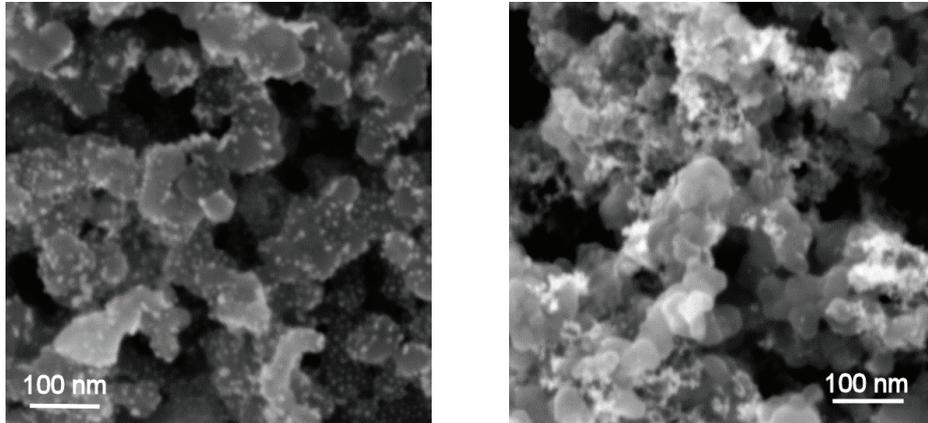


Abb. 92: REM-Aufnahme der Oberfläche zweier Katalysatorschichten im Ausgangszustand für den Einsatz in der DMFC im Sekundärelektronenmodus, (links) Kathode, (rechts) Anode

Während bei der Kathode die Platinpartikel ideal fein dispers auf dem Trägermaterial verteilt sind, treten bei der Anode zum Teil sehr große Agglomerationen der Edelmetallpartikel auf. Besonders deutlich können diese Agglomerationen im Rückstreuelektronenmodus (Abb. 93) visualisiert werden. Solche Agglomerationen verringern die frei zugängliche Oberfläche des Edelmetallkatalysators, was eine Verschlechterung der elektrochemischen Leistungsfähigkeit der Komponente zur Folge hat.

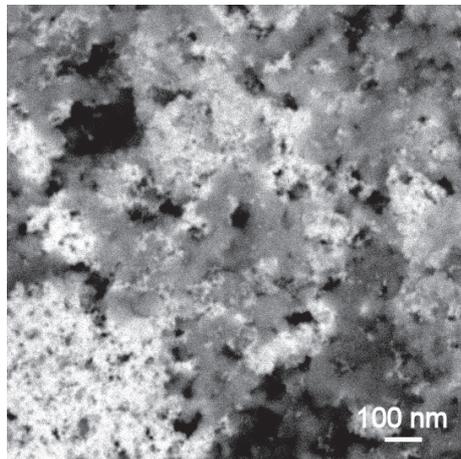


Abb. 93: REM-Aufnahme der Oberfläche im Ausgangszustand einer anodischen Katalysatorschicht für den Einsatz in der DMFC im Rückstreuelektronenmodus

Vor dem Verpressen der maschinell hergestellten Gasdiffusionselektroden mit der Nafionmembran zu einer MEA für den Einsatz in der DMFC, werden die GDEs in einem weiteren Fertigungsschritt mit einer Nafionsuspension zur besseren Anbindung übersprüht. Dieses

Übersprühen mit Nafion hat sich in elektrochemischen Leistungstests als vorteilhaft erwiesen. Nach dem Trocknen wird häufig eine Veränderung der Topographie der GDE festgestellt. Abb. 94 zeigt ein mittels konfokaler Laserscanmikroskopie erstelltes Topographiebild einer GDE vor dem Übersprühen aus einer dreidimensional intensitätsgewichteten Bildserie sowie das Rauigkeitsprofil entlang einer Linie.

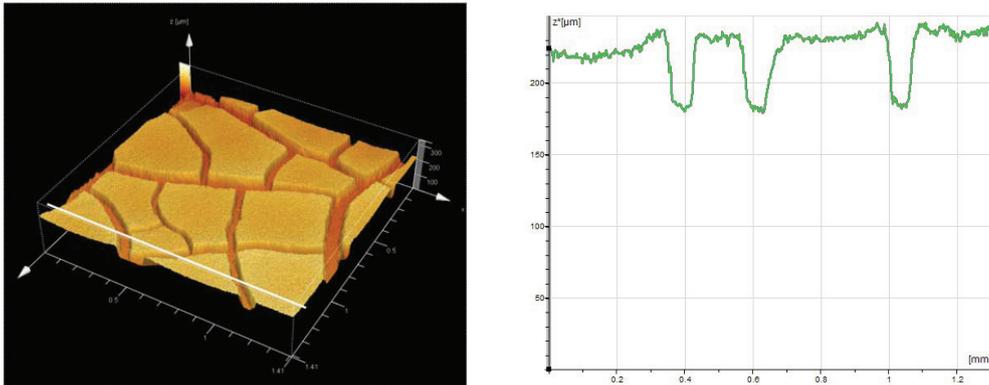


Abb. 94: Topographie einer Gasdiffusionselektrode vor dem Übersprühen mit Nafion für den Einsatz in der DMFC, (links) 3-D intensitätsgewichtete Bildserie, (rechts) Rauigkeitsprofil

Das Bild zeigt eine weitestgehend ebene Topographie entlang der Schollen, nur unterbrochen durch die fertigungsbedingten Risse. Im Gegensatz dazu ist in Abb. 95 nach dem Übersprühen mit Nafion eine Aufwölbung der Schollen im Randbereich zu beobachten. Im vorliegenden Fall beträgt die Überhöhung im Randbereich ca. 60 µm. Dies kann nach dem Verpressen zu Unstetigkeitsstellen an der Grenzfläche Membran-GDE führen, was den Leistungsvorteil durch das Übersprühen teilweise wieder zunichte machen kann.

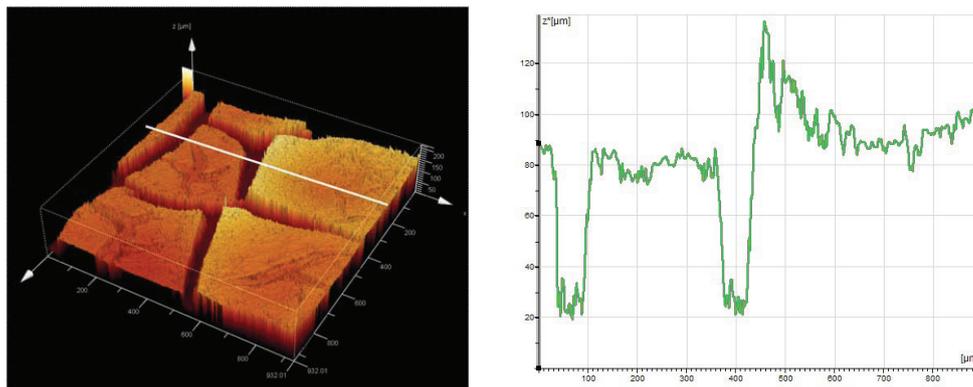


Abb. 95: Topographie einer Gasdiffusionselektrode nach dem Übersprühen mit Nafion für den Einsatz in der DMFC, (links) 3-D intensitätsgewichtete Bildserie, (rechts) Rauigkeitsprofil

Abb. 96 zeigt anhand von REM-Aufnahmen im Sekundärelektronenmodus einen Vergleich der Morphologien der kathodischen Katalysatorschicht für den Einsatz in der DMFC vor und nach einem elektrochemischen Langzeittest. Im Bild links handelt es sich um eine Aufsicht auf die Katalysatorschicht der GDE im Ausgangszustand. Im Bild rechts im Querschnitt dargestellt ist die Katalysatorschicht einer kompletten MEA des Stacks V 3.3 nach 3.000 h Betrieb in einem DMFC-System. Das Belastungsprofil während des Systemtests war durch eine hohe Anzahl von An- und Abfahrprozessen gekennzeichnet. Während des Betriebs wurde ein stetiger Leistungsabfall des Stacks gemessen.

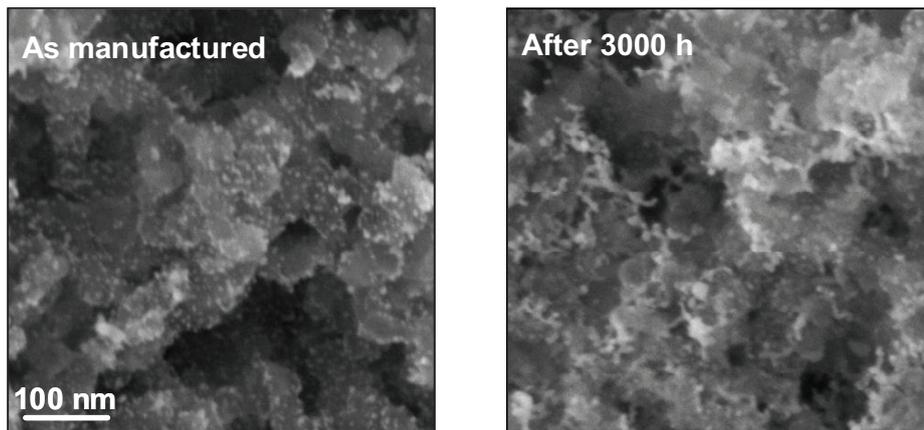


Abb. 96: REM-Aufnahmen anodischer Katalysatorschichten für den Einsatz in der DMFC im Sekundärelektronenmodus, (links) Ausgangszustand, (rechts) Aufsicht der GDE nach 3000 h dynamischen Betriebs im System (Querschnitt der MEA)

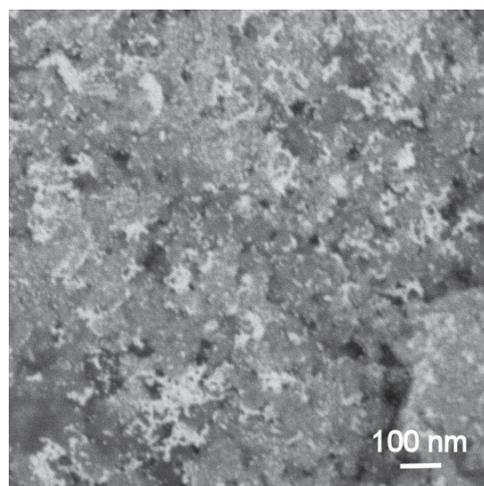


Abb. 97: REM-Aufnahme der kathodischen Katalysatorschicht für den Einsatz in der DMFC im Rückstreuelektronenmodus nach 3.000 h dynamischen Betriebs im System (Querschnitt der MEA)

Auch hier zeigt sich im Ausgangszustand wieder die gewünschte fein disperse Verteilung der Edelmetallpartikel (siehe auch Abb. 92, links). Nach erfolgter dynamischer Belastung ist jetzt auch auf der Kathode eine signifikante Agglomeration der Katalysatorpartikel zu erkennen. Dies wird in Abb. 97 ist noch verdeutlicht. Hier ist die Kathode in der REM-Aufnahme im Materialkontrast dargestellt. Es ist daher zu vermuten, dass ein Teil des Leistungsabfalls auf die Verringerung der zugänglichen Edelmetalloberfläche durch Agglomeration auf der Kathodenseite der MEA zurückzuführen ist.

Auf der Anodenseite der MEAs aus dem Stack V 3.3 wurden nach dem 3.000 h Betriebstest keine signifikanten Änderungen hinsichtlich Morphologie sowie Dispersion der Edelmetallpartikel festgestellt. Eine bereits im Ausgangszustand vorhandene starke Agglomeration der Katalysatorpartikel bleibt auch während des Belastungstests erhalten. Sie scheint auch nicht weiter fortzuschreiten.

Weiterhin wurde mittels EDX ein Übertritt von Ru von der Anode zur Kathode der MEAs in den Zellen des Stacks V 3.3 nach dem Test mit 3.000 h Betriebszeit festgestellt. Der Gehalt an Ru auf der Kathodenseite betrug ca. 1 – 2 Gew.-%. Aus früheren Untersuchungen ist bekannt, dass sich ein solcher Ru-Übertritt negativ auf die Leistung der MEAs auswirkt. Ob der Übertritt von Ru die Agglomeration der Platinpartikel befördert ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht eindeutig belegbar. Die starke Agglomeration der hoch Ru-haltigen Katalysatorpartikel bei Anoden sowohl im Ausgangszustand als auch nach elektrochemischer Belastung scheint dies jedoch nicht auszuschließen.

3.6.2.2 Ortsaufgelöste Analysemethoden

Arbeiten im Rahmen des ‚RuN-PEM‘-Projekts

Das ‚RuN-PEM‘-Projekt (‘Röntgen- und Neutronenbasierte Untersuchungsmethoden für PEM-Brennstoffzellen’) wurde in den Jahren 2007-2010 als Netzwerk vom BMBF gefördert (Förderkennzeichen: 03SF0324D). Das Arbeitsthema des IEK-3 war die Untersuchung der Medien- und Stromverteilung über die aktive Fläche einer Direktmethanol-Brennstoffzelle mit Stromverteilungsmessungen, Neutronenradiographie und Synchrotronradiographie. In diesem Rahmen wurde die Promotionsarbeit von Herrn A. Schröder in enger Kooperation mit dem Institut für Stromrichtertechnik und Elektrische Antriebe (ISEA, RWTH Aachen), dem Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB) und anderen Projektpartnern durchgeführt. Das Hauptziel dieser Arbeit war die Identifizierung günstiger Kennfelder, Materialparameter und Zelldesigns für eine möglichst homogene Medienverteilung in der DMFC. Weitere Details zur Motivation, zu den Projektpartnern und den Arbeitsthemen finden sich im IEK-3 Report aus dem Jahre 2009. Im Folgenden werden die wichtigsten Forschungsergebnisse aus dem ‚RuN-PEM‘-Projekt in den Jahren 2009 und 2010 vorgestellt.

Am Versuchsstand CONRAD der Projektpartner vom HZB wurden zunächst neutronenradiographische Messungen mit vertikal geteilten Diffusionsschichten durchgeführt, um den Einfluss der Hydrophobierung des Kohlegewebes zu untersuchen. Dabei konnte ein Einfluss der Anodenhydrophobierung nicht nachgewiesen werden, während bei geteilter Kathodendiffusionsschicht ein deutlicher Zusammenhang zwischen Hydrophobierung einerseits und der Wasser- und Stromverteilung andererseits sichtbar wird. Wie Abb. 98 zeigt, weist die unbehandelte Seite einen stark erhöhten Wassergehalt und verminderte Segmentströme auf,

während sich auf der hydrophobierten Seite kaum Wasser in den Kathodenkanälen fand und die lokalen Stromdichten deutlich höher lagen.

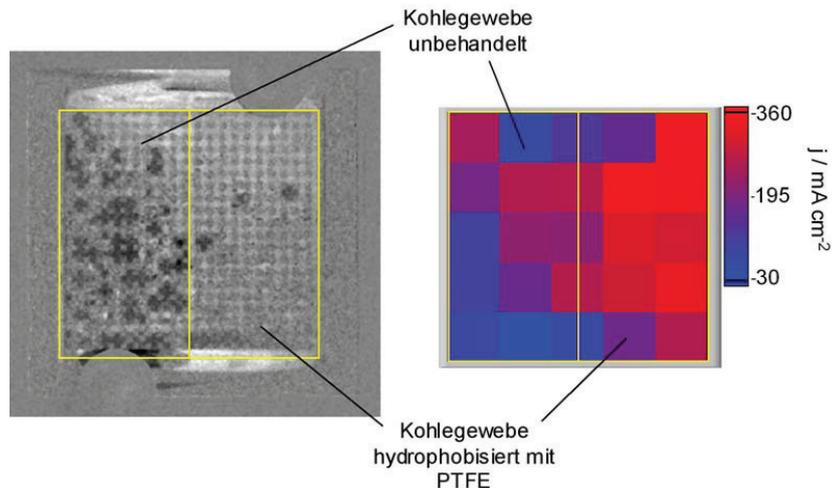


Abb. 98: Wasser- und Stromverteilung bei 300 mA/cm^2 , $70 \text{ }^\circ\text{C}$, $\lambda_{\text{Luft}} = \lambda_{\text{MeOH}} = 4$; Teilung der Kathodendiffusionschicht; links: normiertes Neutronenradiogramm (Wasser erscheint dunkel, CO_2 hell) rechts: zugehörige Stromverteilung

Anschließend wurde untersucht, wie sich die Oberflächeneigenschaften der Kathodenkanäle in den Strömungsverteilern auf den Wasseraustrag und die Zelleistung auswirken. Dazu wurden die Strömungsverteilermaterialien Graphit und Sigraflex (expandierter Graphit) durch ein Sprühverfahren hydrophiliert bzw. hydrophobiert und am HZB (Dr. G. Zehl) durch Tropfenkonturanalyse charakterisiert. Die Beschichtung mit Klingerflon ergibt die kleinsten Kontaktwinkel und hydrophilsten Oberflächen ($0\text{-}30^\circ$). Die Kontaktwinkel der unbehandelten Oberflächen ($90\text{-}120^\circ$) liegen näher an den Werten der hydrophobierten Materialien ($110\text{-}130^\circ$).

Vergleichende galvanostatische Messungen an unbehandelten, hydrophilierten und hydrophobierten Kathodenströmungsverteilern aus Graphit bei verschiedenen Stromdichte- und Luftstöchiometrie-Werten ergaben, dass hydrophile Kathodenströmungsverteilerplatten in mehrfacher Hinsicht vorteilhaft sind: (i) der Wasseraustrag verläuft gleichmäßiger, (ii) die Druckdifferenz zwischen Kathodeneingang und -ausgang ist geringer, (iii) die Leistungsfluktuationen integral und lokal sind um mehr als eine Größenordnung kleiner, was für eine Reduzierung der Alterungsrate günstig sein könnte, (iv) die mittlere Leistung liegt bei fast allen Betriebsbedingungen höher. Die genannten Vorteile sind insbesondere ausgeprägt bei kleinen Luftstöchiometrien. Im Systembetrieb ist es also möglich, mit entsprechend hydrophilierten Kathodenströmungsverteilern, die Leistung speziell bei geringen Luftstöchiometrien weiter zu verbessern. Die Vorteile hydrophiler Kathodenströmungsverteiler werden deutlich, wenn Stromverteilungsmessungen an unbehandelten und hydrophilierten Kathodenströmungsverteiler verglichen werden. Abb. 99 zeigt die Stromdichten zweier Segmente aus dem oberen und unteren Zellbereich sowie die integrale Leistungsdichte bei einer Stromdichte von 150 mA/cm^2 .

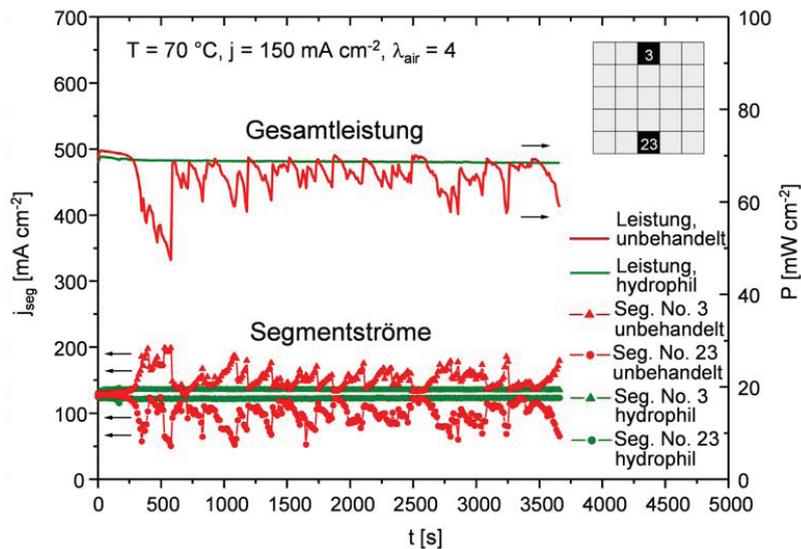


Abb. 99: Zeitlicher Verlauf der Stromdichten der Segmente 3 und 23 und der Leistungsdichte bei $\lambda_{\text{Luft}} = \lambda_{\text{MeOH}} = 4$, 70 °C , 150 mA/cm^2 . Vergleich der Ergebnisse mit unbehandelten und hydrophilierten Kathodenströmungsverteilern (Füßchenstruktur $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$)

Bei Verwendung des unbehandelten Strömungsverteilers (rote Kurven) ergeben sich starke zeitliche Schwankungen sowohl der Leistungsdichte als auch der Segmentstromdichten. Die Zeitverläufe der Segmentstromdichten verhalten sich annähernd symmetrisch, da der Gesamtstrom konstant ist und deshalb die lokalen Stromdichten im oberen Zellbereich steigen müssen, wenn im unteren Bereich, beispielsweise durch Flutungseffekte, der lokale Strom sinkt. Die zeitlichen Schwankungen korrelieren mit der Leistungskurve: Sobald die Segmentströme zusammenlaufen, steigt auch die Gesamtleistung und umgekehrt. Im zeitlichen Mittel liegt die Leistung mit unbehandelten Kathodenströmungsverteilern unter derjenigen mit hydrophilen Kathodenströmungsverteilern (siehe grüne Kurve). Die Leistungskurve mit hydrophilen Strömungsverteilern wie auch die Stromdichten beider Segmente zeigen nahezu keine zeitlichen Schwankungen. Insgesamt scheint der Wasseraustrag in den Kathodenkanälen bei Hydrophilierung sehr viel gleichmäßiger zu erfolgen als bei unbehandelten Strömungsverteilern, was die Gesamtleistung positiv beeinflusst.

Die unterschiedliche Wasseraustragung bei hydrophilen und hydrophoben Kathodenkanälen wurde durch neutronenradiographische Messungen mit einer speziell für seitliche Aufnahmen konzipierten Doppelkanalzelle bestätigt. Die Wasserverteilung im Querschnitt der Zelle konnte visualisiert werden, wie in Abb. 100 dargestellt ist. Von den Projektpartnern des HZB wurden aus den Aufnahmen Wasserdickenprofile über den Zellquerschnitt ermittelt. Bei Verwendung hydrophiler Kathodenströmungsverteiler ragen die auf der Oberfläche der GDL befindlichen Wassertropfen um höchstens ein Drittel der Kanaltiefe in den Kathodenkanal hinein (s. Abb. 100 links), während bei Messungen mit hydrophobierten Kathodenströmungsverteilern die Wassertropfen die Kanäle teilweise vollständig ausfüllen und damit den Sauerstofftransport blockieren (s. Abb. 100 rechts).

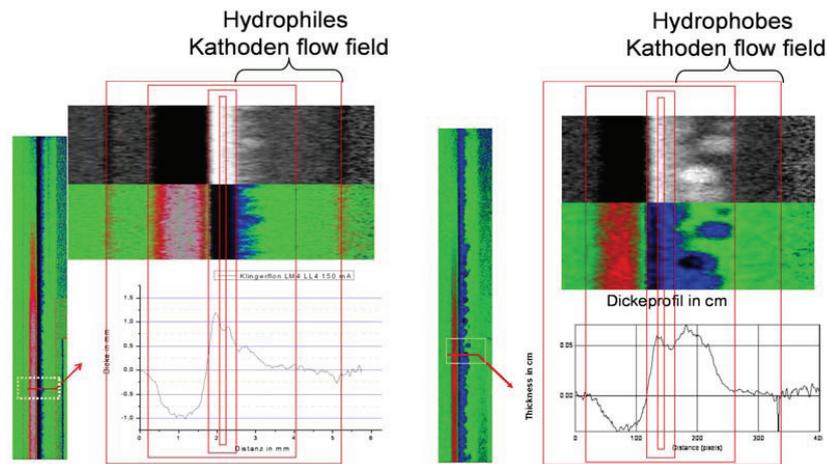


Abb. 100: Seitliche Neutronenradiogramme in Falschfarbendarstellung an Zellen mit hydrophilierten (links) und hydrophobierten Kathodenströmungsverteilern (rechts). Unter den Ausschnittvergrößerungen sind jeweils die berechneten Wasserdicken als Profil über den Zellquerschnitt dargestellt. Messbedingungen: $j = 150 \text{ mA/cm}^2$, $\lambda_{\text{Luft}} = 4$, $\lambda_{\text{MeOH}} = 4$, $T = 70^\circ\text{C}$

Neben der Neutronenradiographie wurde am Elektronenspeicherring BESSY II auch Synchrotronradiographie an Direktmethanolbrennstoffzellen durchgeführt. Synchrotronradiographie bietet im Vergleich zur Neutronenradiographie eine deutlich höhere zeitliche Auflösung ($<1\text{-}5 \text{ s}$ gegenüber $10\text{-}15 \text{ s}$) und damit verbunden auch detailliertere Einblicke in dynamische Prozesse wie die Bildung von Wassertropfen. Aufgrund der höheren örtlichen Auflösung von bis zu $3 \mu\text{m}$ gegenüber $60 \mu\text{m}$ bei der Neutronenradiographie konnte nicht nur die Wasser- und Gasverteilung in den Strömungsverteilerkanälen sichtbar gemacht werden, sondern auch in der MEA beziehungsweise in den Gewebsschichten. Synchrotronradiographische Messungen in seitlicher Richtung erlauben die zeitliche Entwicklung der Wasserbildung in der Kathode sowie der Wassertropfen in den Kathodenkanälen nach dem Einschalten eines Stromes zu verfolgen.

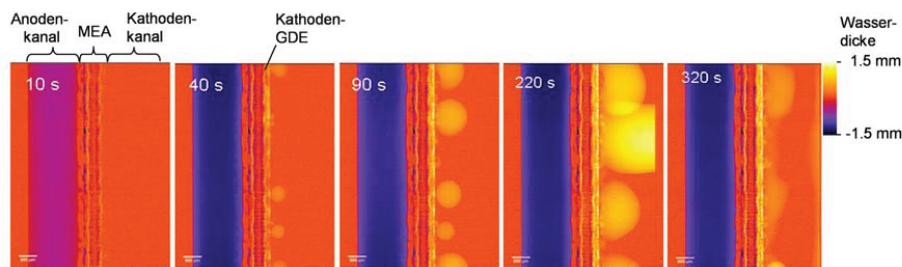


Abb. 101: Synchrotronradiogramme einer Zelle mit unbehandelten Kathodenströmungsverteilern in Falschfarbendarstellung mit seitlicher Ansicht der Wasserentwicklung in und auf der Kathoden-GDE und im Kathodenkanal, Messbedingungen: $T = 70^\circ\text{C}$, $j = 150 \text{ mA/cm}^2$, $\lambda_{\text{Luft}} = \lambda_{\text{MeOH}} = 4$

Wie Abb. 101 zeigt, kommt es in Zellen mit unbehandelten Kathodenströmungsverteilern bereits nach etwa einer halben Minute zur Bildung kleiner, örtlich stationärer Wassertropfen auf der Oberfläche der Kathoden-GDE. Die Zahl der Wassertropfen verändert sich kaum, während ihre Größe im Zeitverlauf zunimmt. Nach 220 s benetzen die Wassertropfen schließlich die Kanalwände und füllen den Kathodenkanal größtenteils aus. Im weiteren zeitlichen Verlauf des Experiments bilden sich zwar weiterhin voluminöse Wassertropfen, die aber nur noch etwa die Hälfte des Kanalquerschnitts blockieren. Die Benetzung der Kanalwände im Verlaufe des Tropfenwachstums erklärt Leistungsschwankungen speziell zu Beginn einer Strombelastung.

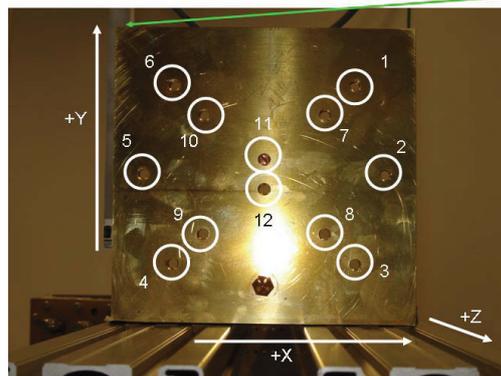
Neben den Oberflächeneigenschaften wurde auch das Design der Kathodenströmungsverteiler variiert. Untersuchungen an Stackzellen mit einer aktiven Fläche von 315 cm² ergaben, dass Füßchenstrukturen gegenüber Kanalstrukturen eine zeitlich stabilere und insgesamt höhere Leistung insbesondere bei niedrigen Luftstöchiometrien und erhöhten Stromdichten bietet. Füßchenströmungsverteiler mit der Füßchendimension von 1,5 x 1,5 x 1,5 mm³ beziehungsweise 1,5 mm Kanalbreite und -tiefe zeigen von allen untersuchten Designs den besten Kompromiss aus Leistung, zeitlicher Stabilität und Druckverlust in den Kanälen.

Fortschritte in der Magnetotomographie

Die Magnetotomographie wird dazu entwickelt, nicht-invasiv die Stromverteilung innerhalb einer Zelle oder sogar innerhalb eines Stacks durch Magnetfeldmessung an verschiedenen Position um die Zelle herum zu ermitteln. Dies soll lokale Stromdichtemessungen ermöglichen, die nicht durch Messgeräte direkt im Stromkreis verfälscht werden. Das externe Magnetfeld der Zelle wird hierzu an möglichst viele Positionen mit einem feste Abstand zum Zellenrand bzw. zur -oberfläche gemessen. Jeder stromdurchflossene Punkt in der Zelle trägt hierbei zum Gesamt(magnet)feld in einem Messpunkt bei – je nach Stromstärke und Abstand unterschiedlich stark.

Definitionen für Messobjekt ‚Kurzschlussplatte‘ (für neue Messungen, ab 07/2010)

Koordinaten bezogen auf
obere linke Kante, mittig!



Pos [-]	X [mm]	Y [mm]
1	160	-40
2	180	-100
3	160	-160
4	40	-160
5	20	-100
6	40	-40
7	140	-60
8	140	-140
9	60	-140
10	60	-60
11	100	-90
12	100	-110

Stromeinleitung:
100 -175

Abmessungen Objekt (X / Y / Z) in mm:
200 / 200 / 11

Abb. 102: Testobjekt zur Verbesserung der Messmimik ‚Magnetotomographie‘ und zur Validierung des Rekonstruktionsalgorithmus

Aus der Magnetfeldverteilung im Raum um die Zelle lässt sich eine Rekonstruktion vornehmen. Dazu ist es jedoch nötig, sowohl eine hohe Genauigkeit als auch eine ausreichende Auflösung der Messdaten zu haben. Dies war in der Vergangenheit jedoch unzureichend für die gewünschte Rekonstruktionsqualität. Daher wurden die verschiedenen Baugruppen und der Messablauf genauer untersucht und Änderungen und Optimierungen vorgenommen. Alle diese Modifikationen führten nun dazu, dass die effektive Auflösung von einigen 100 nT auf 7 nT gesteigert werden konnte bei einem Gesamtbereich zu $\pm 600 \mu\text{T}$. Zudem konnte die Genauigkeit auf $< 20 \text{ nT}$ von ehemals $> 1 \mu\text{T}$ verbessert werden. Dies ist nahe an den physikalischen Limitationen und nur noch durch eine Neukonstruktion der Anlage zu verbessern. Zudem konnte für bestimmte Messarten die Messzeit erheblich verkürzt werden. Dies ist insofern wichtig, da typische Messzeiten für Messungen mit großen Messflächen und hinreichend kleinem Rasterabstand in der Größenordnung von mehreren 10 Minuten liegen, sich in dieser Zeit jedoch der Betriebszustand des Untersuchungsobjekts – der Brennstoffzelle – ändern kann. Um die Anlage zu optimieren, wurde wie in Abb. 102 dargestellt ein Testobjekt angefertigt, welches das magnetische Verhalten einer statischen Brennstoffzelle nachbildet.

Dieses Testobjekt besteht aus zwei elektrisch isolierten Platten, welche an definierten Stellen mittels elektrisch leitenden Madenschrauben kurzgeschlossen werden können. Da hierbei die entstehenden Stromflüsse vorhersagbar und kontrollierbar sind, kann auch eine Überprüfung des Rekonstruktionsalgorithmus anhand der Messdaten vorgenommen werden.

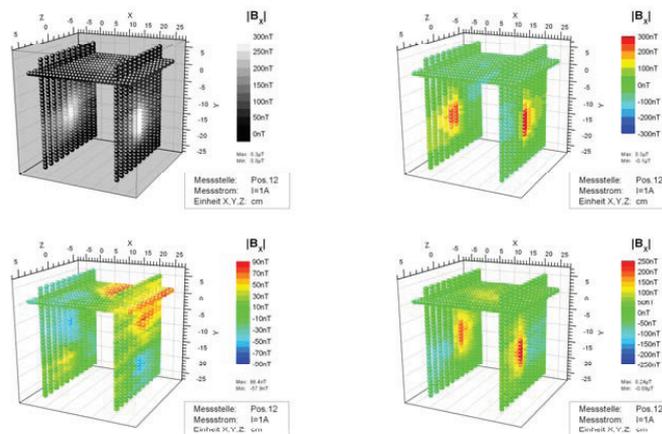


Abb. 103: Gesamtmagnetfeldstärke und Einzelkomponenten für eine zentrale ‚Defektstelle‘ des Testobjekts

Zudem können Stromdichten erzeugt werden, welche wesentlich höher sind, als in realen Brennstoffzellen. In Abb. 103 ist dies exemplarisch für eine Defektstrom von 1 A, welcher einer Stromdichte von $3,5 \text{ A/cm}^2$ entspricht, dargestellt. Hiermit wird die Überprüfung des Messaufbaus aufgrund ebenfalls höherer lokaler Magnetfelder erleichtert. Zudem können Extrapolationen für die jeweiligen Kurzschlusspositionen vorgenommen, um Aussagen über die theoretisch auflösbare Stromdichteänderung zu erhalten. Es können Stromdichteänderun-

gen in 10 cm Entfernung zum Sensor zu 15 mA/cm^2 noch aufgelöst werden. Dies entspricht knapp 1 mA/cm^2 bei einem minimalen Messabstand zu 5 mm. Diese Empfindlichkeit sollte auch den Einsatz der Magnetotomographie für die Untersuchung von Batterien ermöglichen.

3.6.2.3 Physikalische Analysemethoden

Auf dem Gebiet der physikalischen Methoden stehen vier Hauptmethoden zur Verfügung: die (Thermo-)Gravimetrie (TGA/DTA), Kalorimetrie (DSC), Porosimetrie (ASP) und die Thermo-Mechanische Analyse (TMA). Diese werden hauptsächlich für die Bestimmung von Materialkennwerten für die DMFC und HTPEM als auch für die Brenngaserzeugung genutzt. Zu den bestehenden Messgeräten wurde eine zusätzliche Präzisionswaage angeschafft, welche ergänzende, aber essentielle Daten zur DSC liefert. Hiermit können die Ein- und Auswaagen der DSC-Proben bei einer Maximalmasse zu 6 g auf bis zu $0,1 \mu\text{g}$ genau ermittelt werden. Dies ist insofern nötig, da je nach Messart die Probenmassen im Bereich von 1 mg liegen können, die Masse jedoch hinreichend genau bekannt sein muss.

Gravimetrie (TGA)

Daneben eignet sich diese neu angeschaffte Waage auch zur präzisen Wasserbestimmung an schwach wasseradsorbierenden Materialien wie Ruß.

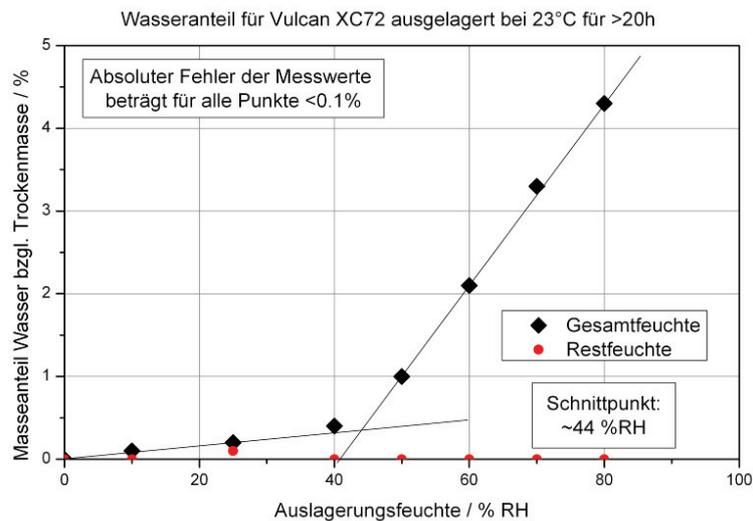


Abb. 104: Gleichgewichtswasseraufnahme von Vulcan XC72 bei 23°C

Wie in Abb. 104 dargestellt konnte dies am Beispiel des Rußes Vulcan XC72 eindrucksvoll gezeigt werden. Dieser Ruß wird oft als Katalysatorträger verwendet. Interessant ist hierbei der zweigeteilte Verlauf der Wasseraufnahme. Der Ruß zeigt eine reduzierte Aufnahmefähigkeit bzw. höhere Hydrophobizität bei niedrigen Feuchten als bei höheren Feuchten. Die genaue Ursache ist noch ungeklärt, jedoch scheint es Hinweise darauf zu geben, dass die (chemische) Oberflächenterminierung des Kohlenstoffs einen Einfluss auf dieses Verhalten hat.

Aufgrund der hohen Wägegenauigkeit konnte die Wasserbeladung des Rußes auch bei niedrigen relativen Feuchten zuverlässig ermittelt werden, trotz Einwaage von nur etwa 10 mg.

Thermogravimetrie (TGA/DTA)

Die Thermogravimetrie mit gleichzeitiger differentieller Thermoanalyse (TGA/DTA) wurde hauptsächlich zur Bestimmung von Trocknungsparametern und Analyse des Zersetzungsverhaltens von Polymer- und Katalysatormaterialien angewandt. Daten zu den Polymermaterialien sind relevant für die Verarbeitung der Membranen zur Einzelzell- oder Stackfertigung. Weiter können Aussagen über die mögliche Einsatztemperaturen getroffen werden. Katalysatorpulver zeigen z.B. bereits ab 200 °C einen nennenswerten Masseverlust aufgrund der Oxidation des Kohlenstoffträgers. Je nach Aktivität ist dies stärker bzw. schwächer ausgeprägt. In Abb. 105 ist die thermische Zersetzung eines Katalysatormaterials dargestellt, welches zu > 95 Massenprozent aus Platin besteht. Es ist deutlich erkennbar, dass bereits ab 200 °C eine deutliche Massenverlustrate vorhanden ist und dieses daher für den Langzeitbetrieb in einer HT-PEFC ungeeignet ist.

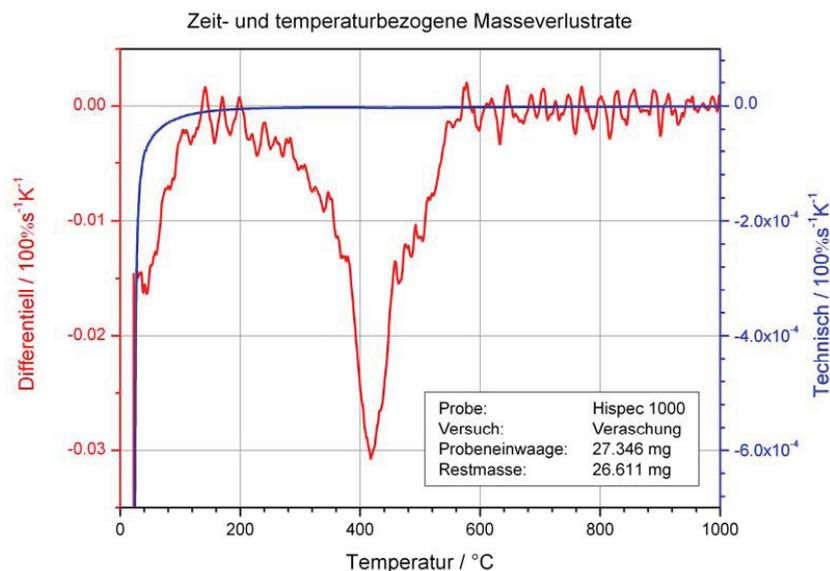


Abb. 105: Masseverlust eines DMFC-Katalysatormaterials bei der thermischen Zersetzung

Kalorimetrie (DSC)

Die differentiell abtastende Kalometrie (DSC) liefert Daten über Vorgänge in Materialien, welche Wärme auf- bzw. abgeben (eine positive oder negative Reaktionsenthalpie haben). Im Gegensatz zur TGA/DTA entfällt die Masseinformation, jedoch ist die Empfindlichkeit wesentlich höher. Dies erlaubt die Identifikation von Glastemperaturen für Polymere oder Adsorptionsvorgänge an Katalysatormaterialien. Daneben kann eine Schmelzpunktniedrigung des in einem Material gebundenen Wassers Hinweise auf die innere Struktur des Materials geben. Dies wurde beispielsweise an dem DMFC-Membranmaterial Nafion® für verschiedene Befeuchtungsgrade untersucht, wie in Abb. 106 dargestellt. Dabei bestätigten sich Hinweise

aus der Literatur, dass sich die Schmelzenthalpie des gebundenen Wassers erst bei sehr stark befeuchteten Membranen bemerkbar werden.

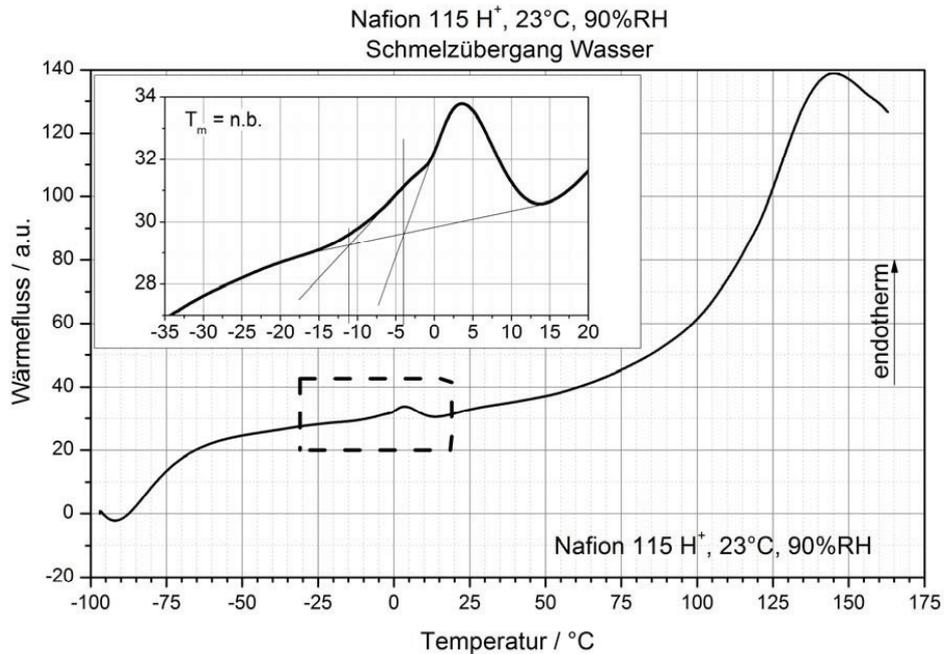


Abb. 106: Schmelzen von Wasser in hydrierter Nafion®-Membran

Automatische Standardporosimetrie (ASP)

Um die Zuverlässigkeit der Methode zu demonstrieren und gleichzeitig den Einfluss unterschiedlicher Probenpräparation herauszufinden, wurden umfangreiche Messreihen an einem Kohlefaser-Gewebematerial und als Referenz an einem mesoporösen Silicia (SBA-15) durchgeführt.

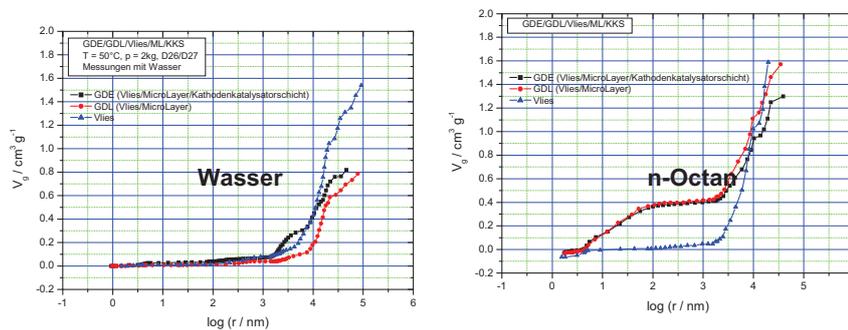


Abb. 107: Vergleich der genutzten Porenradien für die beiden Testmedien Wasser (nur hydrophiler Anteil) und n-Octan (hydrophober Anteil)

Erste Messungen hinsichtlich der Unterscheidung von hydrophilen und hydrophoben Poren wurden durchgeführt. Abb. 107 veranschaulicht, dass sich hierbei deutliche Effekte bezüglich des Befüllens der unterschiedlichen Porenradien zeigen. Auch dies ist in guter Übereinstimmung mit Daten aus der Literatur und Beobachtungen aus dem Testbetrieb von Zellen.

Zusätzlich wurden diese Proben mittels Quecksilberporosemetrie untersucht. Die Fasermaterialproben zeigten erwartungsgemäß keine gute Übereinstimmung, da sich bei diesen weichen Materialien unter Meßbedingungen (starke Druckanwendung), die ursprüngliche Porenstruktur verändert. Die unter diesen Bedingungen nicht druckempfindlichen mesoporösen Silicaproben zeigen dementsprechend eine gute Übereinstimmung.

3.6.2.4 Thermomechanische Analyse (TMA)

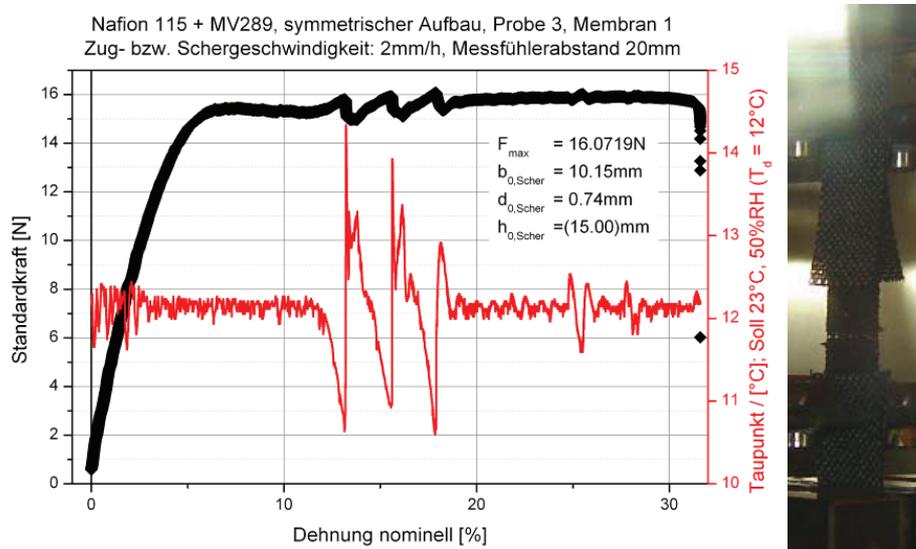


Abb. 108: Zug-Scherversuch einer Quasi-MEA

Wie in Abb. 108 gezeigt, wurde neben den klassischen Zug-/Dehnversuchen an Polymermaterialien eine speziell angepasste Messmethode zur Scherfestigkeitsbestimmung von Membran-Elektroden-Einheiten (MEAs) entwickelt. Hierbei werden über eine geeignete symmetrische Anordnung die beiden steifsten Komponenten (Gewebe und Membran) gegeneinander geschert. Wie in Abb. 108 dargestellt können aus dem Verlauf der Kraft-/Scherkurve und der Analyse der abgescherten Bereiche Aussagen über den Zustand des Materialverbunds und mögliche Schadensmechanismen gemacht werden. Anhand der Messungen kann beispielsweise ermittelt werden, ob die Haftung zwischen Elektrode und Membran optimierungsbedürftig oder bereits ausreichend ist. Die Ergebnisse für DMFC-MEAs legen den Schluss nahe, dass die Haftung bereits hinreichend gut ist.

3.6.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Dr. C. Korte	9035 c.korte@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Physiko- chemisches Brennstoffzellenlabor
Dr. H. Echsler	8710 h.echsler@fz-juelich.de	Bildgebende Analysemethoden
K. Klafki	4832 k.klafki@fz-juelich.de	Konventionelle Probenpräparation
A. Schröder	1579 a.schroeder@fz-juelich.de	Untersuchung der Medien- und Stromverteilung in der DMFC mit elektro-chemischen, neutronen- radiographischen und röntgenba- sierten Methoden
W. Sträter	3077 w.straeter@fz-juelich.de	Standardporosimetrie
Dr. J. Wackerl	6228 j.wackerl@fz-juelich.de	Physikalische Analysemethoden
M. Wannert	5590 m.wannert@fz-juelich.de	Entwicklung mathematischer Ver- fahren für die Magnetotomographie, Rekonstruktion von Stromdichtever- teilungen anhand 2- und 3-D Model- len und Einzelzellen
Dr. K. Wippermann	2572 k.wippermann@fz-juelich.de	Aufklärung physikalischer und che- mischer Alterungsmechanismen, ortsaufgelöste Messungen

3.6.4 Wichtige Veröffentlichungen

Wichtige Veröffentlichungen

Schröder, A.; Wippermann, K.; Mergel, J.; Lehnert, W.; Stolten, D.; Sanders, T.; Baumhöfer, T.; Sauer, D. U.; Manke, I.; Kardjilov, N.; Hilger, A.; Schlösser, J.; Banhart, J.; Hartnig, C.

Combined local current distribution measurements and high resolution neutron radiography of operating Direct Methanol Fuel Cells

Electrochemistry Communications **11** (2009) 1606–1609

The current and fluid distribution in Direct Methanol Fuel Cells (DMFCs) was investigated in situ by means of combined high resolution neutron radiography and locally resolved current distribution measurements. The used neutron radiography set-up allows high spatial resolutions down to 70 μm at the full test cell area. A local formation of water droplets in the cathode flow field channels could be observed. Strongly inhomogeneous current distributions during cathodic flooding processes result in a performance loss of up to 30 % of the initial value. Single CO_2 bubbles can

be observed at low current densities. The water and current distribution during bifunctional operation of a DMFC was measured for the first time.

Wippermann, K.; Wannek, C.; Oetjen, H. F.; Mergel, J.; Lehnert, W.

Cell resistances of poly(2,5-benzimidazole)-based high temperature polymer membrane fuel cell membrane electrode assemblies: Time dependence and influence of operating parameters

Journal of Power Sources **195** (2010) 2806–2809

Time-dependent measurements of cell impedance of a HT-PEFC based on ABPBI were performed at constant frequencies close to the high-frequency (h.f.) intercept of the corresponding Nyquist plots with the real axis. The h.f. impedances approximate the ohmic resistance of the cell and they decrease, when current (140 mAcm^{-2}) is switched on. Steady-state values are attained after 10 min. *Vice versa*, when current is switched off (OCV), the h.f. impedances instantaneously increase but reach steady-state values only after about 1 h. These values rise with increasing gas flow rates. The results are discussed in terms of hydration/dehydration processes, changing the equilibrium between orthophosphoric and pyrophosphoric acid and thus the conductivity of the electrolyte as well as the mobility of molecules and charge carriers. Impedance spectra were recorded after each time-dependent measurement under OCV conditions. The fit of these impedance data based on an equivalent circuit revealed ohmic resistances corrected by h.f. inductances and low frequency impedances associated with the cathode oxygen exchange reaction. The charge transfer resistances deduced from the low frequency impedances strongly depend on both air and hydrogen flow rates.

Schröder, A., Wippermann, K., Zehl, G.; Stolten, D.

The influence of cathode flow field surface properties on the local and time dependent performance of direct methanol fuel cells

Electrochemistry Communications **12** (2010) 1318–1321

The influence of cathode flow field wettability on the local and time-dependent performance of DMFCs was investigated by galvanostatic measurements of local current distribution, cell voltage and pressure drop along the cathode channels. The cathode flow fields made of graphite were either untreated, hydrophobic or hydrophilic. Drop shape analysis yielded contact angles in the descending order hydrophobic (126.8°), untreated (115.9°) and hydrophilic (26.2°). Especially at low air stoichiometry ($\lambda_{\text{air}}=2$), hydrophilic cathode flow fields are advantageous with regard to higher power densities, suppression of local current fluctuations and substantial reduction of pressure drop along the cathode channels.

3.7 Qualitätsmanagement

3.7.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Um ein hohes Maß an Entwicklungs-, Herstellungs- und Charakterisierungsqualität zu gewährleisten, werden qualitätssichernde Maßnahmen als integrativer Bestandteil der Arbeitsabläufe verstanden und immer häufiger eingesetzt.

Die Einführung qualitätssichernder Maßnahmen zum Aufbau eines Qualitätsmanagementsystems (QMS), welches mittelfristig zertifizierbar ist, ist erklärtes Ziel des Instituts.

3.7.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

3.7.2.1 Qualitätssicherung im Bereich der standardisierten, elektrochemischen Untersuchungsverfahren

Im IEF-3 Report 2009 wurde ein prozessorientiertes Konzept zu Qualitätssicherung (QSS) für die Fertigungstechnik vorgestellt. Eine Umsetzung des Gesamtkonzeptes konnte aus Finanzierungsgründen bisher nicht erfolgen. Aus diesem Grund wurde entschieden, die weitere Erarbeitung der detaillierten Maßnahmen zur Qualitätssicherung zunächst auf einen übersichtlichen Teilbereich zu beschränken. Als geeigneter Arbeitsbereich wurde die elektrochemische Charakterisierung von DMFC-Einzellezellen identifiziert, da hier bereits eine Vielzahl von standardisierten und automatisierten Prozessen vorhanden ist. Diese Prozesse umfassen die Probenabgabe, den Probeneinbau, das Messverfahren, die Auswertung und die Wartung und Kalibrierung der verwendeten Geräte.

Die Umsetzung der Elemente Identifizierung, Dokumentenlenkung, Reproduzierbarkeit und Archivierung sind zentrale Forderungen der DIN EN ISO 9000:2000ff und der Rahmenrichtlinie des Forschungszentrums Jülich. Sie bilden den Rahmen für ein prozessorientiertes QMS und werden zurzeit ergänzend zu den vorhandenen Prozessen aufgebaut, erprobt und auf weitere Prozesse übertragen.

Zur Umsetzung der oben aufgeführten Forderungen wurden folgende Maßnahmen getroffen:

- Es wurden Konventionen festgelegt und eingeführt, nach denen Geräte (Prüfmittel, Versuchsaufbauten), Dokumente (Vorgabe- und Aufzeichnungsdokumente), Versionen (Dokumente, Dateien) rückverfolgbar bezeichnet werden.
- Es wurde ein für alle QM-Dokumente gültiges Dokumentenlayout erstellt und festgelegt.
- Die in der Verfahrensweisung VA-RHLQ-01 des FZJ geforderten Maßnahmen zur Dokumentenlenkung wurden für Vorgabedokumente umgesetzt. Dabei wurde der Schwerpunkt auf die Reduzierung von Freiheitsgraden und damit zur Fehlervermeidung gesetzt. Unterstützend wurden automatisierte Abläufe zur Dokumentenerstellung aufgebaut. Die Umsetzung für Aufzeichnungsdokumente steht noch aus.
- Es wurden Maßnahmen eingeführt, die sicherstellen, dass neue Standardarbeitsanweisungen nur in Zusammenhang mit einer entsprechenden Schulung der betroffenen Mitarbeiter eingeführt werden können.
- Es wurde ein System zur Aufzeichnung aller Dokumente und Geräte eingeführt.

Ergänzend dazu wird derzeit ein Gerätemanagementsystem aufgebaut, welches die für den Standardbetrieb der Teststände benötigten Geräte registriert, identifiziert und überwacht. Zur Überwachung wurden Kalibrier- und Prüfanweisungen erstellt, eine Auswerteroutine und die Generierung eines Kalibrierscheins entwickelt. Der Status der messtechnischen Kontrolle ist an den Geräten durch eine Kennzeichnung dokumentiert.

Die Umsetzung der FZJ-Vorgaben wird weiter betrieben. Vorrangig ist die Regelung der Archivierung von Dokumenten zu erstellen. Des Weiteren werden Arbeitsabläufe bei der MEA-Fertigung analysiert und ergänzende QM-Maßnahmen aufgebaut. Der Aufbau eines Labors zur Wareneingangskontrolle für Standardmaterialien wird angestrebt.

3.7.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
D. Kalkreuth	2378 d.kalkreuth@fz-juelich.de	Allgemeines Qualitätsmanagement, Qualitätssicherung im Bereich „Standardisierte elektrochemische Untersuchungsverfahren“
Dr. Vincent Haanappel	4656 v.haanappel@fz-juelich.de	Allgemeines Qualitätsmanagement, Qualitätssicherung im Bereich SOFC

4 Ausgewählte FuE-Projekte

4.1 Kostengünstige, langzeitstabile DMFC-Systeme der kW-Klasse

4.1.1 Projektausrichtung und -partner

Ziel des Vorhabens, das durch das BMWi (Förderkennzeichen 0327769B) gefördert wurde, war die Entwicklung und Erprobung von Brennstoffzellen-Hybrid-Energiesystemen auf der Basis von Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFC) für Horizontal-Kommissionierer, die für bestimmte Anwendungen das Potenzial eines vergleichbaren Kostenniveaus gegenüber konventionellen Batteriesystemen haben und somit zur Markteinführung von Brennstoffzellen-Applikationen genutzt werden können. Ein Vorteil solcher Energiesysteme ist der Entfall der vergleichsweise aufwendigen und zeitintensiven Aufladung der Bleibatterien bzw. der Wegfall von benötigten Zweitbatterien im Mehrschichtbetrieb. Dazu sind DMFC-Energiesysteme notwendig, die baulich und energetisch den vorhandenen Pb-Akkumulator ersetzen können. Für einen wirtschaftlichen Einsatz ist insbesondere noch Forschung und Entwicklung in Hinsicht auf Dauerhaltbarkeit und Leistungsdichte des Stacks sowie die Gesamtentwicklung / Hybridisierung des DMFC-Energiesystems durchzuführen.

Das IEK-3 hat im Rahmen des Projekts neben der MEA-, Stack- und Systementwicklung insbesondere die Untersuchungen zur Langzeitstabilität der Stacks unter realen Betriebsbedingungen übernommen. Ferner führte das Forschungszentrum Jülich die Gesamtentwicklung / Hybridisierung und den Aufbau von Prototypen aus. Die Arbeiten zur Hybridisierung beinhalten neben der Modellierung und Simulation von unterschiedlichen Energiespeichern die Aufnahme von Langzeitprofilen und Fahrzyklen des Horizontal-Kommissionierers unter realen Einsatzbedingungen und die Untersuchung von ausgewählten Energiespeichern (Batterien, SuperCaps) und deren Verschaltung in einem Hybridsystem.

Das Projekt wurde in Zusammenarbeit mit den Industriepartnern Ritter Elektronik GmbH, Jungheinrich AG, ebm-papst Landshut GmbH und AKG Verwaltungsgesellschaft durchgeführt. Ziel dieses Projektes war, einen wichtigen Beitrag zu den Themen *Erhöhung der Lebensdauer* und *Leistungsdichte* sowie weitere *Optimierung der Systeme* insbesondere hinsichtlich der *Vereinfachung und Integration* im Vorlauf der Markteinführung zu entwickeln, was auch die Automatisierung von Produktionsprozessen beinhaltet und somit Lösungswege zur *Kostenreduktion* aufweisen kann.

4.1.2 Langzeittest über 3.000 h eines DMFC-Energiesystems

Zum Ende des Projekts wurden zwei Systeme DMFC V3.3-1 und DMFC V3.3-2 (siehe Kapitel 3.1.2.4) aufgebaut und jeweils einem Langzeittest über 3.000 Stunden mit angenäherten bzw. realistischen Lastprofilen aus Fahrzyklen unterzogen.

Um den Langzeittest zu automatisieren, wurde er in einem speziellen Teststand durchgeführt, der das elektrische Lastprofil (nicht die mechanischen Belastungen) vorgibt. Neben der Ermittlung der Stackalterung unter realen Lastbedingungen sollen insbesondere Erfahrungen mit der Systemperipherie, dem Hybridisierungskonzept und der Regelung des Energiesystems gewonnen werden. Wesentliche Zielgrößen der Datenauswertung sind Wirkungs- sowie Nutzungsgrade vom Gesamtsystem und Systemkomponenten in Abhängigkeit von der Betriebszeit.

4.1.2.1 Lastprofil

In Abb. 109 ist die im aktuellen Fokus stehende Anwendung des DMFC-Systems gezeigt. In Lagerhallen mit Regalwandeinteilung werden Produktpaletten nach Auftrag mit Hilfe von Horizontal-Kommissionierern individuell mit verschiedensten Gütern bestückt. Die Fahrzeuge bewegen sich entlang der Regalreihen und halten an bestimmten Positionen immer wieder an. Die elektrische Leistung am Fahrmotor zeigt die Charakteristika des Anfahrens (Peakleistung bis etwa 7 kW), des Bremsens (Energierückspeisung bis über 5 kW) und der Wartezeit zum Beladen der Palette.

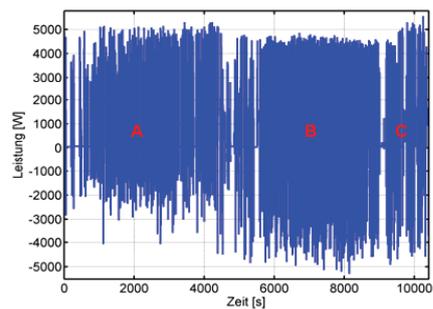
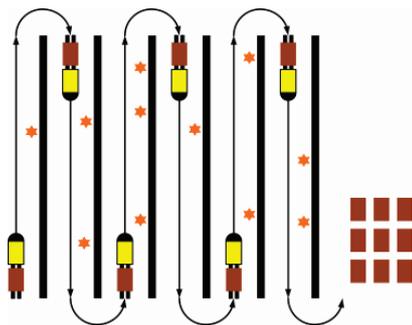
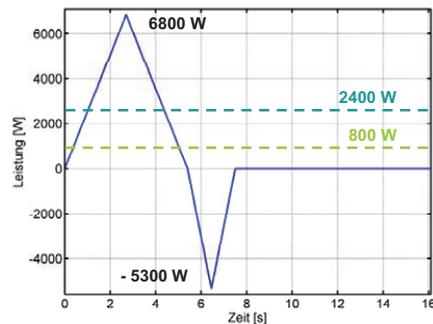


Abb. 109: Fahrzeugeinsatz (links), Lastprofile für den Dauertest (rechts): angenäherter (oben) und realistischer (unten) Kommissionierbetrieb

Die Durchschnittsleistung eines solchen fahrzeugtypischen Zyklus' beträgt etwa 800 W. Die Motorleistung bei Konstantfahrt ist dreimal so hoch. Der Langzeittest am Energiesystem wurde bei zwei verschiedenen Lastzyklen durchgeführt. Zum einen wurde der oben beschriebene charakteristische Verlauf durch Dreiecke angenähert und zyklisch wiederholt. Zum anderen wurden Messdaten im realen Einsatz analysiert und zu einem realitätsnahen Zyklus mit drei unterschiedlichen Abschnitten zusammengestellt (s. Abb. 109, rechts unten). Abschnitt A mit einer Durchschnittsleistung von 360 W und einer Dauer von 1,36 h repräsentiert einen Betrieb mit verhältnismäßig vielen Pausen. Abschnitt B (786 W, 1,29 h) stellt den Standardblock mit fahrzeugtypischem Betrieb und Abschnitt C (982 W, 0,24 h) eine Phase mit relativ vielen Konstantfahrten dar. Diese drei Phasen werden hintereinander gereiht zyklisch wiederholt. Die Lastprofile sind in der Teststandsteuerung hinterlegt.

4.1.2.2 Teststandaufbau

Der Teststand für den Langzeittest des DMFC-Energiesystems besteht aus zwei Teilen. Der erste Teil ist in Abb. 110 links als Schema dargestellt. Das Testobjekt (gelb dargestellt) wird in einem Rahmengestell mit Auffangwanne (grün dargestellt), die im Störfall Flüssigkeiten auf-fängt, untergebracht. In die Kammer rechts oben wird das Abgas des DMFC-Energiesystems eingeleitet und zentral abgesaugt. Außerdem befindet sich dort ein Vorlagebehälter für Methanol, aus dem das System Methanol entnehmen kann. Dieser Vorlagebehälter ist mit einem Gefahrstoffschränk, der 190 Liter Methanolfässer bevorratet, verbunden. Neben Sensorik zur Überwachung des Systems ist hier eine externe Versorgung des Systems mit vollentsalztem Wasser (blau dargestellt) untergebracht. Dieser Teil des Teststands ist mit dem zweiten Teil, dem Hybridisierungsteststand elektrisch gekoppelt (vgl. Abb. 110, rechts). Dieser Hybridisie-rungsteststand besteht im Wesentlichen aus einem Schaltschrank mit einer elektronischen Stromsenke zur Nachbildung der Anfahrvorgänge und Konstantfahrten sowie elektronischen Stromquellen zur Nachbildung der Bremsvorgänge. Durch Ankopplung an das DMFC-Ener-giesystem kann dieses nun mit verschiedenen Fahrzyklen (vgl. Abb. 109) beaufschlagt werden.

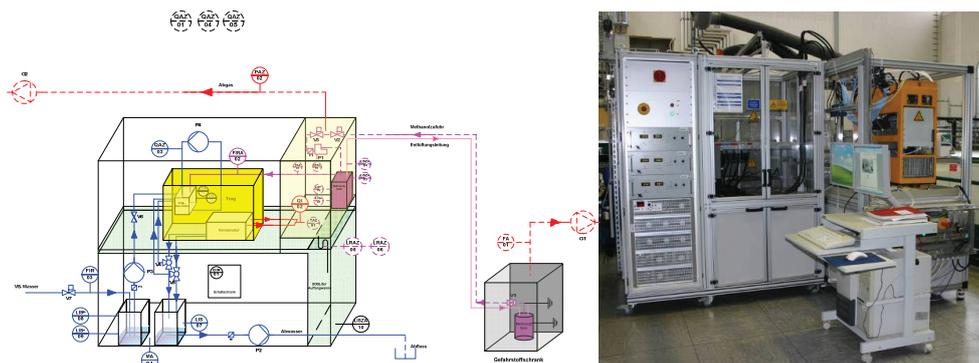


Abb. 110: Teststand für den Dauerbetrieb von DMFC-Hybridssystemen, links: Schema, rechts: Kopplung mit Hybridisierungsteststand

4.1.2.3 Ergebnisse DMFC V3.3-1

Der Langzeittest gliedert sich in verschiedene Versuchsphasen. Eine Übersicht zeigt Tab. 9: Die ersten vier Phasen mit 0 W, 300 W, 600 W und 800 W Konstantbelastung dienen der Optimierung der zahlreichen Steuerungsparameter. Anschließend wurde das System mit den Fahrzyklen aus Abb. 109 belastet. Ein Großteil der insgesamt erzielten 2.225 Betriebsstunden entfiel dabei auf den realistischen Kommissionierbetrieb. Vergleicht man die Gesamtbetriebsstunden mit dem Versuchszeitraum vom 26.10.2009 bis zum 08.03.2010, so ergibt das eine Verfügbarkeit des Systems von 69,4 %.

Versuchsphase	Zeitraum	Betriebsstunden
Konstantbelastung 0 W	26.10.2009 – 02.11.2009	128 h
Konstantbelastung 300 W	02.11.2009 – 04.11.2009	37 h
Konstantbelastung 600 W	04.11.2009 – 11.11.2009	84 h
Konstantbelastung 800 W	11.11.2009 – 20.11.2009	189 h
angenäherter Kommissionierbetrieb	20.11.2009 – 01.12.2009	180 h
realistischer Kommissionierbetrieb	01.12.2009 – 08.03.2010	1.607 h
Summe:		2.225 h

Tab. 9: Übersicht Lastzyklen und Betriebszeiträume

Die knapp 30 % Stillstandszeiten während der gesamten Versuchsdauer hatten ihre Ursache in geplanten Stillsetzungen und verschiedenen Störungen, die zu einer Störabschaltung durch die Steuerung führten (vgl. Kapitel 3.1.2.4). Die aus den protokollierten Störmeldungen ermittelte Störungsstatistik zeigt Abb. 111. Der Großteil der Störungen ließ sich der Kategorie „zulässige Einzelzellspannung unterschritten“ zuordnen. Hierzu zählt z. B. ein Unterschreiten der absoluten Untergrenze von 200 mV durch eine einzelne Zelle. Die Messung erfolgt hierzu über eine Einzelzellspannungsüberwachung und dient dazu, den DMFC-Stack vor zu hohen Belastungen zu schützen.

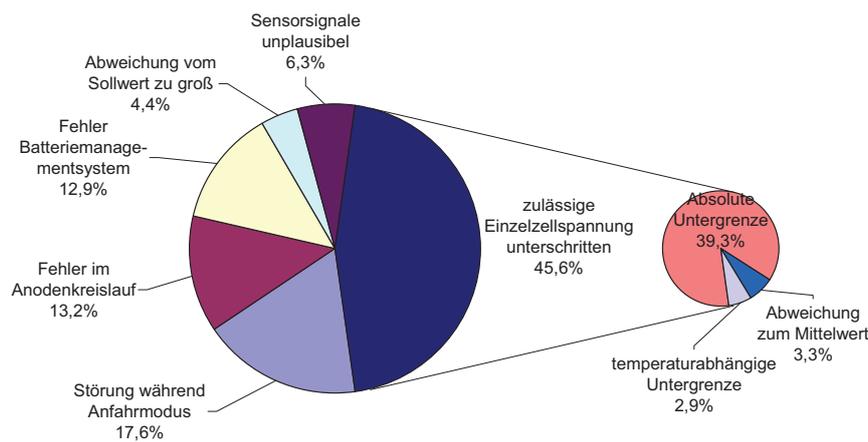


Abb. 111: Störungsstatistik DMFC V3.3-1 (Anzahl Störmeldungen: 272)

Neben den Störungsmeldungen erfassen die Steuerungen im System und im Teststand viele verschiedene Messgrößen (Ströme, Spannungen, Methanolkonzentration, Druck, Temperaturen, Luftmassenstrom, Methanoldmengenstrom), die mit unterschiedlichen Abtastraten (2 s und 0,1 s) in verschiedenen Messdateien abgelegt werden. Die dabei anfallenden 150 MB Daten pro Tag führten über den Versuchszeitraum zu einem Gesamtvolumen von 18,5 GB, deren Auswertung im Folgenden dargestellt wird.

Beim Einschalten des Energiesystems ist es unmittelbar betriebsbereit. Die Energieversorgung des Fahrzeugs wird zunächst von der Hybridbatterie übernommen, deren Kapazität so bemessen ist, dass die Aufwärmphase des Stacks, während der keine elektrische Leistung abgegeben werden kann, überbrückt wird. Abb. 112, links zeigt das Systemverhalten nach dem Einschalten in kaltem Zustand. Zunächst wird die Batterie durch den Lastzyklus entladen (Sinken der Batteriespannung), während der Stack noch seine Leerlaufspannung besitzt. Die Stacktemperatur beginnt zu steigen, weil die Systemsteuerung im Anfahrmodus die kontrollierte Zugabe von Methanol in den Anodenkreislauf veranlasst, was aufgrund der Methanoldiffusion durch die MEA und Oxidation auf der Kathodenseite zu einer Wärmefreisetzung führt. Bei Erreichen einer Stacktemperatur von 40 °C ist eine temperaturbegrenzte Stackbelastung nach folgender Maßgabe erlaubt:

$$U_{Stack,min} = Zellenzahl \cdot (0,8 V - Parameter \cdot T_{Stack})$$

Diese Spannungsbegrenzung bleibt für den gesamten Systembetrieb erhalten. In diesem Beispiel hat der Aufwärmvorgang etwa 40 Minuten gedauert. Die Zeit lässt sich aber leicht durch die Betriebsparameter Luft- und Methanoldmengenstrom beeinflussen. Einige Minuten später ist die Batteriespannung auch wieder auf einem stationären Level, da der Stack inzwischen über ausreichend Leistungsreserven verfügt.

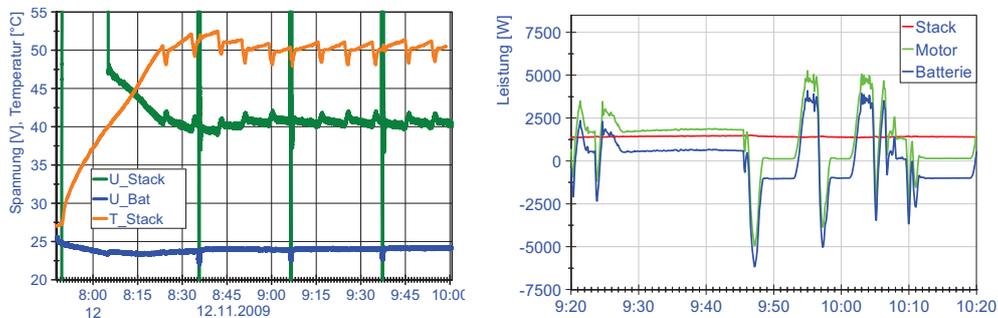


Abb. 112: Zeitliche Verläufe Stackaufwärmphase (links), Regelbetrieb (rechts)

Abb. 112, rechts zeigt die Leistungsverläufe für Stack, Motor und Batterie im realistischen Kommissionierbetrieb während des System-Normalbetriebes. Es ist deutlich erkennbar, dass die dynamischen Laständerungen am Motor nahezu vollständig von der Batterie bedient werden, während die Reglerparameter der Gesamtsystemregelung extrem träge eingestellt wurden, was zu einer weitestgehend konstanten Stackleistung führt. In diesem Beispiel aus dem Abschnitt C des Zyklus' wird der Stack bei seiner Nennleistung von 1,3 kW betrieben.

Während der Inbetriebnahme konnte eine maximale Stackleistung von rund 2,7 kW gemessen werden. Zum einfachen Vergleich mit MEA-Daten wurden die Messwerte in spezifische Werte umgerechnet, siehe Abb. 113. Dazu wurde die Stackspannung in eine mittlere Zellspannung umgerechnet. Die Fehlerbalken geben den Wert der höchsten Spannung und den Wert der niedrigsten Spannung im Stack an. Gleiches gilt für die Leistungskennlinie, die auf die rechte Achse bezogen ist.

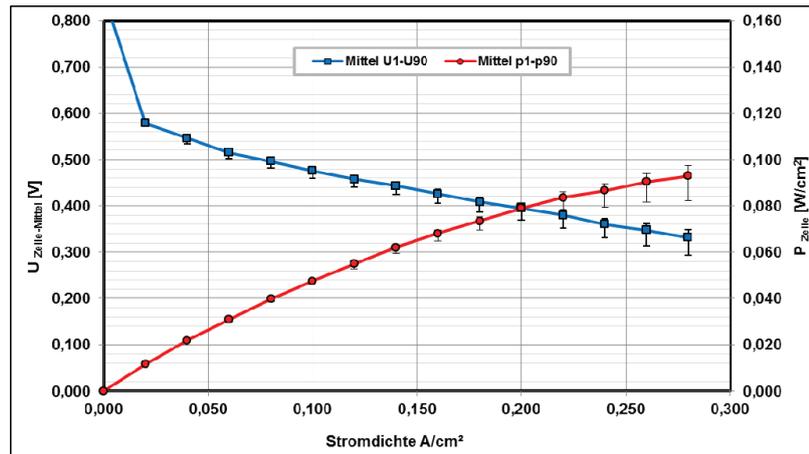


Abb. 113: Strom-Spannungs-Kennlinie beim Einfahren des Stacks

Die Bestimmung der zeitlichen Änderung der Stackleistungsfähigkeit erfolgt üblicherweise anhand von periodisch durchgeführten Strom/Spannungs-Kennlinienmessungen. Hierbei werden bei möglichst konstanten Betriebsbedingungen (Temperatur, Methanolkonzentration, Luftmengenstrom (oder Luftüberschuss) konstante Ströme für drei Minuten gehalten und die zugehörige Stackspannung aufgezeichnet. Nach bestimmten Betriebszeiten werden die Messungen wiederholt.

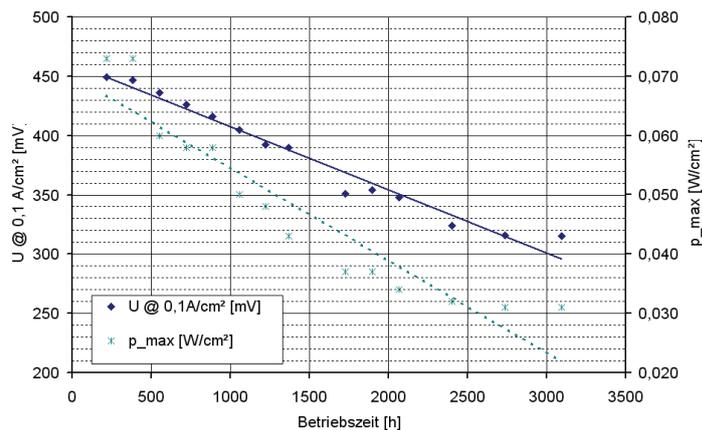


Abb. 114: Zeitliche Verläufe der mittleren Zellspannung im Stack bei 0,1 A/cm² und den definierten Randbedingungen

Der zeitliche Verlauf der mittleren Zellspannung bei konstanter Stromdichte repräsentiert die Stackalterung. In diesem Fall wurden als Referenzbedingungen eine Stromdichte von $0,1 \text{ A/cm}^2$, eine Methanolkonzentration von einem Mol pro Liter, eine anodische Eintrittstemperatur von ca. $60 \text{ }^\circ\text{C}$ und eine spezifische Luftzufuhr von $28 \text{ ml}/(\text{cm}^2\text{min})$ festgelegt. In Abb. 114 ist der zeitliche Verlauf der mittleren Zellspannung des Stacks in Abhängigkeit von der Betriebszeit dargestellt. Die Betriebszeit errechnet sich aus der Differenz von Messzeitpunkt und Inbetriebnahme des Systems. Einfahrzeiten des Stacks in einem anderen Teststand und mögliche Systemausfälle wurden in dieser Darstellung nicht berücksichtigt. Die Degradation ergibt sich zu rund $50 \text{ } \mu\text{V/h}$. Dieser Wert ist um den Faktor drei höher als bei in Testständen vermessenen Short-Stacks mit baugleichen MEAs.

Ein weiterer Aspekt zur Beurteilung des Stacks ist die Häufigkeitsverteilung der Zellspannungen bei einer bestimmten Belastung nach unterschiedlichen Betriebszeiten. So lagen die Zellspannungen während der ersten noch im Teststand gemessenen Kennlinie bei einer Stromdichte von $0,1 \text{ A/cm}^2$ in einem recht engen Band von 460 bis 484 mV. Nach einer Betriebsdauer von rund 77 Stunden ist eine leichte Verbesserung bei einigen Zellen zu beobachten, allerdings sieht man auch eine Verschiebung der schwächeren Zelle zu niedrigeren Spannungen. Bei der letzten Messung im Teststand nach 173 Stunden liegen die Zellspannungen in einem Bereich von 410 bis 482 mV. Dieser Trend setzte sich auch im Systembetrieb fort (siehe Abb. 115). Während nach dem Einbau in das System (213 h) die Zellen in einem Spannungsbereich von 100 mV lagen, vergrößerte sich dieser Bereich auf 175 mV nach 1893 h.

Für dieses Auffächern der Zellspannungen kann es unterschiedliche Ursachen geben. Möglicherweise handelt es sich um unzureichende Fertigungsgenauigkeiten bei der MEA bzw. Bipolarplatten-Herstellung oder um Veränderungen beispielsweise durch den Eintrag von Fremdionen.

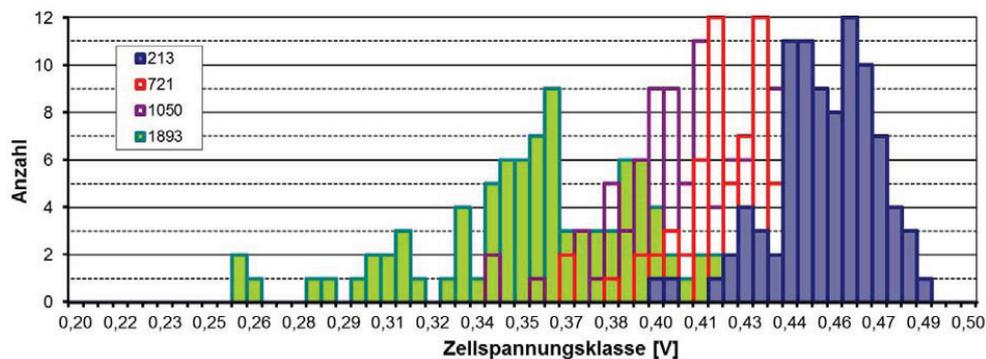


Abb. 115: Zellspannungsverteilung im Stack in Abhängigkeit von der Betriebszeit

Ein alternatives Verfahren zur Ermittlung der Stackalterung besteht darin, die oben dargestellten Werte aus den Messdaten des zyklisch belasteten Systems herauszufiltern. Wesentliche Unterschiede zum ersten Verfahren sind die dynamische Stackbelastung und die größere Streuung der Betriebsparameter. In Abb. 116 ist das Ergebnis der Datenfilterung dargestellt. Auf der x-Achse ist die Kalenderzeit dargestellt, Systemstillstand durch Störungen oder geplante Unterbrechungen sind enthalten. Die Streuung der Spannungswerte ist mit etwa 30 mV zwar relativ groß, die Steigung der Ausgleichsgeraden bei $0,1 \text{ A/cm}^2$ ergibt aber mit $52 \text{ } \mu\text{V/h}$

einen Wert, der vergleichbar mit dem Ergebnis aus den Strom/Spannungs-Kennlinienmessungen ist.

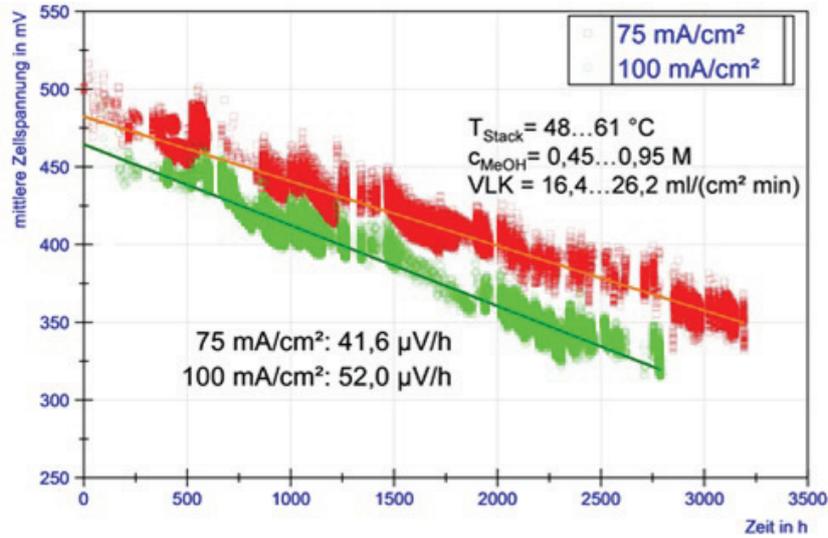


Abb. 116: Darstellung der Stackalterung für DMFC V3.3-1 als Spannungsverlust bei konstanter Stromdichte (Filterung der Messdaten)

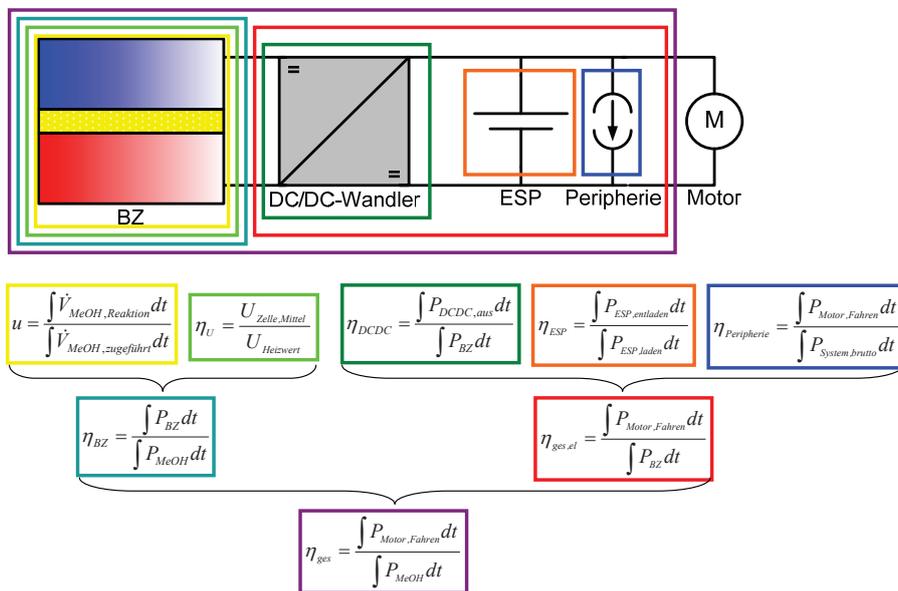


Abb. 117: Berechnung der einzelnen Wirkungs- und Nutzungsgrade

Eine wesentliche Zielrichtung für die Datenauswertung des Langzeittests ist die Ermittlung von Einzel- und Gesamtwirkungsgraden. Die Berechnung verschiedener Wirkungs- und Nutzungsgrade, die für die Analyse des Systemverhaltens wichtig sind, zeigt Abb. 117. Das

sind zum einen die Einzelwirkungsgrade des DMFC-Stacks wie Brennstoffnutzungsgrad u und Spannungswirkungsgrad η_U . Diese ergeben zusammen den Stackwirkungsgrad η_{BZ} . Auf Systemebene werden der DC/DC-Wandler-Wirkungsgrad η_{DCDC} , der Energiespeicherwirkungsgrad η_{ESP} und der Peripheriewirkungsgrad $\eta_{Peripherie}$, die zusammen den elektrischen Gesamtsystemwirkungsgrad $\eta_{ges,el}$ bilden, betrachtet. Der resultierende Gesamtsystemwirkungsgrad η_{ges} beschreibt die Gesamtverluste des Systems.

Um eine Aussage zur Änderung der Einzelwirkungsgrade im Verlauf des Langzeittests zu treffen, wurden aus der Versuchsphase mit dem realistischen Kommissionierbetrieb (vgl. Abb. 109) fünf Tage ausgewählt. Die berechneten Tagesmittelwerte der beschriebenen Wirkungs- und Nutzungsgrade zeigt Tab. 10. Hierbei ist zu erkennen, dass sich einige Wirkungsgrade deutlich über den gesamten Versuchszeitraum sowohl verbessern als auch verschlechtern, wohingegen einige Wirkungsgrade nahezu konstant bleiben. Die Gründe hierfür sind im Folgenden kurz zusammengefasst:

- u : Ursache für die Verbesserung des Brennstoffnutzungsgrades ist eine Optimierung der Parameter für die Steuerung der Methanolzudosierung.
- η_U : Eine Alterung des DMFC-Stacks führt zu einer Verschiebung des Arbeitspunktes zu kleineren Spannungen, was sich in einer Verringerung des Spannungswirkungsgrades niederschlägt.
- η_{BZ} : Die Verringerung des Stackwirkungsgrades hat seine Ursache in der Alterung des DMFC-Stacks (vgl. η_U).
- η_{DCDC} : Verschiebt sich der Stackarbeitspunkt auf Grund von Alterung zu kleineren Spannungen, verringert sich die Spannungsdifferenz zwischen Ein- und Ausgang des DC/DC-Wandlers. Dies hat eine Verbesserung des DC/DC-Wandler Wirkungsgrades zur Folge.
- η_{ESP} : Der Energiespeicherwirkungsgrad kann als nahezu konstant angesehen werden.
- $\eta_{Peripherie}$: Die Verringerung des Peripheriewirkungsgrades hat seine Ursache in der Anpassung von Betriebsparametern (z. B. Ansteuerung der Kühlerlüfter), die zu einem erhöhten Peripherieverbrauch führen.
- $\eta_{ges,el}$: Der elektrische Gesamtsystemwirkungsgrad kann als nahezu konstant angesehen werden.
- η_{ges} : In der Verringerung des Gesamtsystemwirkungsgrades spiegelt sich die Verringerung des Stackwirkungsgrades auf Grund der Alterung wieder.

Tag	u	η_U	η_{BZ}	η_{DCDC}	η_{ESP}	$\eta_{Peripherie}$	$\eta_{ges,el}$	η_{ges}
01.12.09	66,8 %	41,4 %	27,2 %	90,2 %	92,7 %	86,9 %	85,7 %	23,3 %
15.12.09	70,1 %	38,2 %	27,0 %	91,1 %	93,1 %	86,4 %	86,3 %	23,4 %
15.01.10	68,3 %	36,3 %	24,7 %	91,8 %	94,6 %	82,5 %	84,1 %	20,7 %
25.01.10	71,5 %	33,9 %	24,3 %	92,7 %	93,8 %	81,3 %	83,4 %	20,3 %
05.02.10	73,2 %	33,1 %	24,2 %	93,5 %	94,7 %	81,5 %	84,8 %	20,5 %

Tab. 10: Tagesmittelwerte der Wirkungs- und Nutzungsgrade für den realistischen Kommissionierbetrieb

4.1.2.4 Kompromisse für DMFC V3.3-1

Das DMFC-System ist auf einen dreifachen Luftüberschuss (auf den gesamten Methanoleinsatz bezogen) im Nennbetriebspunkt (Stackleistung 1,3 kW) ausgelegt. Hierbei stellt sich eine Stacktemperatur von etwa 70 °C ein. Die Inbetriebnahme offenbarte, dass sich bei diesem Luftmassenstrom (22 kg/h entsprechend 10 ml/cm²/min) keine stabile Stackbelastung realisieren lässt. Einzelne Zellspannungen fielen unter einen Mindestwert, bei dem eine Notabschaltung erfolgte. Für den Langzeittest musste der Luftmengenstrom um etwa das 2,5-fache des Auslegungswertes erhöht werden. Als Folge stellten sich Stacktemperaturen zwischen 50 °C und 60 °C ein. Damit konnte kein wasserautarker Betrieb hergestellt werden, weil die treibende Temperaturdifferenz im Kondensator und die Verweilzeit der Stackabluft gegenüber dem Auslegungsfall deutlich verringert wurden. Im Auslegungspunkt wurde ein Wasserdefizit von 20 % festgestellt. Der Wasserausgleich erfolgte durch Nachspeisung von VE-Wasser aus dem Hausnetz.

Der Projektpartner Ritter Elektronik hat im Rahmen des gemeinsamen Projektes den DC/DC-Wandler und die Steuerung für die Anwendung entwickelt. Die für die Trogintegration "maßgeschneiderten" Komponenten waren zum Beginn des Langzeittests noch nicht verfügbar, so dass Vorabversionen mit reduzierter Funktionalität eingesetzt wurden.

4.1.2.5 Lessons learned

Die Kondensatoren des Projektpartners AKG werden typischerweise durch Kleben gefügt. Es hat sich gezeigt, dass dadurch Undichtigkeiten und der Eintrag von Kleberbestandteilen ins DMFC-System nicht zu vermeiden sind. Das IEK-3 hat gemeinsam mit der Zentralabteilung Technologie (ZAT) des Forschungszentrums Jülich die Konstruktion überarbeitet und den Kondensatorblock mittels Laserschweißtechnik hergestellt (Abb. 118, links). Alternativ und auf lange Sicht kostengünstiger lassen sich die Kondensationskanäle aus Edelstahl auch durch Flachrohre darstellen, wie Abb. 118, rechts zeigt.



Abb. 118: Kondensator in Schweißausführung (links), Konzept für die Ausführung der Kondensationskanäle als Flachrohre (rechts)

Im zweiten aufgebauten System wurden leichte Veränderungen am Stack durchgeführt, da sich bei der Demontage des ersten Stacks gezeigt hatte, dass es konstruktionsbedingt zu Problemen mit dem Wasserabtransport aus den kathodischen Strömungsverteilern kommt. Durch den geringen Zellabstand von rund drei Millimetern kann es dazu kommen, dass sich zwischen zwei Zellen ein geschlossener Wasserfilm bildet, der die Luftzufuhr zu der betreffe-

nen Zelle behindert (siehe Abb. 119). Durch Einbringen von Kammstrukturen werden die Dichte besser fixiert und das Abrinnen von Wasser entlang der Kammstruktur ermöglicht. Das Prinzip kann auf der rechten Seite der Abb. 119 entnommen werden. Damit es nicht zu Kurzschlüssen kommt wurde ein nicht leitendes Faserverbundmaterial verwendet.

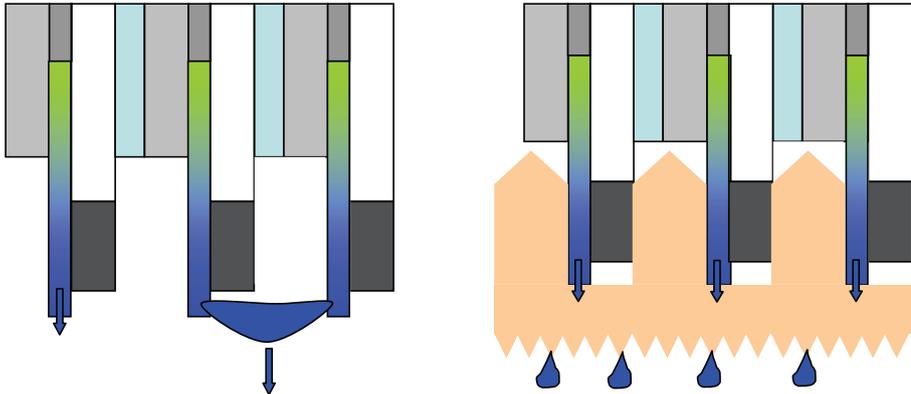


Abb. 119: Tropfenbildung am Kathodenauslass und Strömungsblockade (links), Integration von Kammstrukturen zur verbesserten Wasserabfuhr aus den Kathodenkanälen (rechts)

Die Kammstrukturen wurden nach der Assemblierung in den Stack eingebracht. Abb. 120 zeigt den Kathodenauslass des betriebenen Stacks. Deutlich zu erkennen sind Wassertropfen, die von den Kammstrukturen herabrinne. Ein Verschließen der Kanäle durch einen Wasserfilm konnte nicht mehr beobachtet werden und auch der Betrieb bei geringen Luftüberschüssen ist nun möglich.



Abb. 120: Integration der Kammstrukturen in den Kathodenauslass des Stacks

Die Inbetriebnahme des zweiten Stacks erfolgte wie beim ersten Stack im beheizten Teststand. Hier wurden wieder die für das Einfahren typischen Randbedingungen gewählt:

- Spezifischer Volumenstrom Kathode: 31 ml/(cm²min)
- Methanolkonzentration: 0,8 mol/l
- Temperatur: 68 °C

Danach wurden Strom-Spannungs-Kennlinien aufgenommen, um die Leistungsfähigkeit zu ermitteln. Hier konnte gezeigt werden, dass der Stack die geforderte Leistung noch übertrifft und die Zellspannungen nicht in dem Maße streuen wie beim ersten Stack (siehe Abb. 121).

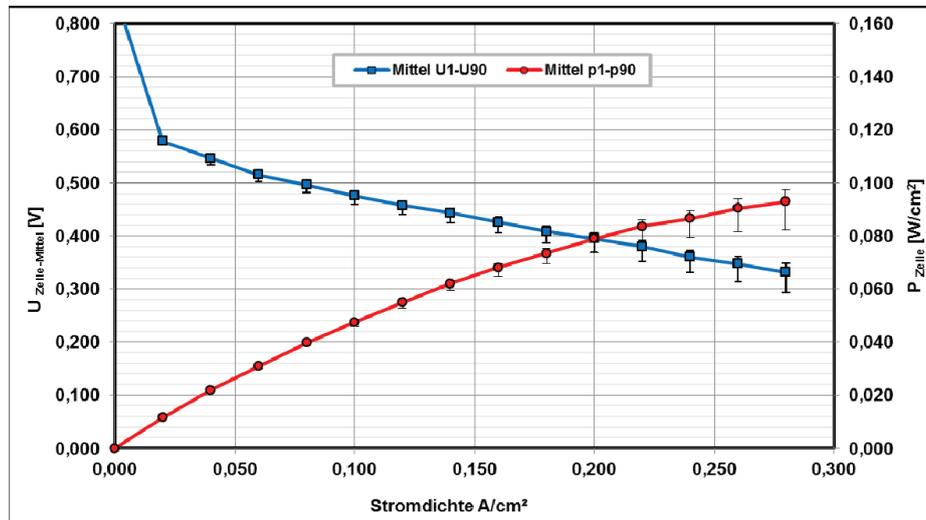


Abb. 121: Stromdichte-Spannungs-Kennlinie des Stacks bei Inbetriebnahme. Spezifischer Volumenstrom Kathode 31 ml/(cm²min), Methanolkonzentration 0,8 mol/l, Temperatur 68 °C

Die reduzierte Streuung der Zellspannungen und der Betrieb bei niedrigen Luftüberschüssen (Gamma 3) lassen sich in erster Linie auf die Veränderungen im Kathodenauslass zurück führen, während das höhere Zellspannungsniveau auf eine veränderte MEA zurückzuführen ist.

4.1.2.6 Erste Ergebnisse DMFC V3.3-2

Zur Zeit der Berichterstellung läuft der Langzeittest des Nachfolgesystems DMFC V3.3-2. Wesentliche Verbesserungen bei Aufbau und Betrieb sind:

- Kondensator in Schweißausführung, sehr geringe Kondensatverunreinigungen
- Stackbetrieb bei 3-fachem Luftüberschuss, wasserautarker Systembetrieb auch bei hohen Umgebungstemperaturen (bis 35 °C)
- Fahrbetrieb im Horizontalkommissionierer nachgewiesen, alle Komponenten in Batterietrog integriert

Die folgende Abb. 122 zeigt die Stackalterung im Vergleich mit den Werten aus dem System DMFC V3.3-1. Abweichend zur Darstellung in Abb. 116 sind hier die Betriebsstunden aufgetragen, da die Systeme deutlich unterschiedliche Stillstandszeiten haben.

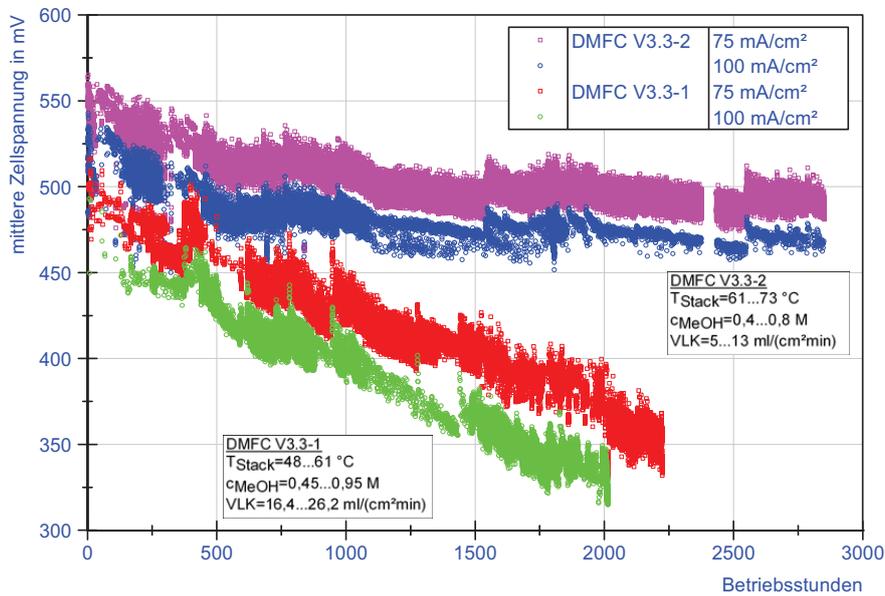


Abb. 122: Alterung DMFC V3.3-1 vs. DMFC V3.3-2

Auffällig ist, dass der Stack des Nachfolgesystems bei einer deutlich höheren mittleren Zellspannung gestartet ist (520 mV zu 47 mV bei 0,1 A/cm²) und dass die Degradation sehr viel geringer ausfällt.

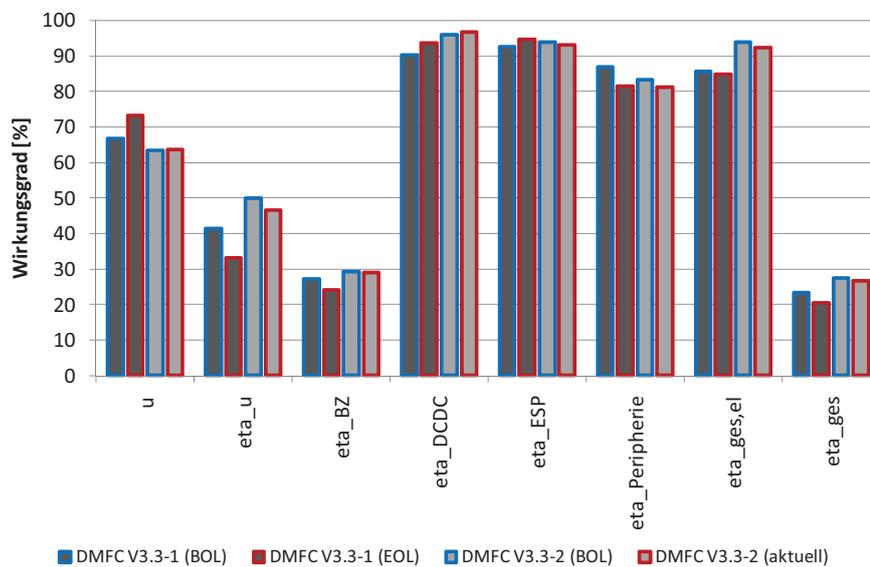


Abb. 123: Wirkungsgrade DMFC V3.3-1 vs. DMFC V3.3-2

Für das zweite DMFC-Energiesystem (DMFC V3.3-2) wurden analog zum ersten System (DMFC V3.3-1) die beschriebenen Wirkungs- und Nutzungsgrade als Tagesmittelwerte für den realistischen Kommissionierbetrieb berechnet. In Abb. 123 sind die einzelnen Wirkungs- und Nutzungsgrade für beide Systeme im Vergleich dargestellt, hierbei jeweils die Werte für den Start des Langzeitversuchs (BOL = Begin Of Life) und für das Ende des Langzeitversuchs (EOL = End Of Life). Da aktuell (17.02.2011, 2850 Betriebsstunden) der Langzeittest für das zweite System noch läuft sind hier die aktuellen Werte anstelle der EOL-Werte dargestellt. Die wesentlichen Unterschiede lassen sich beim Stackwirkungsgrad und dem Gesamtsystemwirkungsgrad erkennen. Beide sind sowohl am Anfang als auch zum aktuellen Zeitpunkt des Versuchs beim zweiten System besser als beim ersten System. Hauptursache hierfür ist ein um bis zu 10 %-Punkte besserer Spannungswirkungsgrad beim zweiten System. Änderungen beim Brennstoffnutzungsgrad lassen sich mit geänderten Steuerungsparametern erklären.

4.1.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
J. Mergel	5996 j.mergel@fz-juelich.de	Leiter der Abteilung Direktmethanol-Brennstoffzellen
M. Hehemann	5431 m.hehemann@fz-juelich.de	Emissionsmessungen an DMFC Systemen. Komponentenentwicklung, Aufbau und Betrieb von Testständen
Dr. H. Janßen	5082 h.janssen@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „Systementwicklung DMFC“, Komponentenentwicklung, Anlagenauslegung, Bau und Test von DMFC Systemen
Dr. M. Müller	1859 mar.mueller@fz-juelich.de	Leiter der Gruppe „Stack- und Systementwicklung DMFC“, technische und wirtschaftliche Optimierung von DMFC-Stacks, Auswahl und Test von Materialien für Stackbauteile, Anlagenauslegung, Verifizierung
Dr. J. Wilhelm	1573 j.wilhelm@fz-juelich.de	Hybridisierung und Regelung von DMFC-Systemen, Modellierung und Simulation von DMFC Systemen
W. Zwaygardt	2109 w.zwaygardt@fz-juelich.de	Auslegung und Konstruktion von DMFC-Anlagenkomponenten, Aufbau und Betrieb von Testständen

4.2 Bordstromversorgung mit Brennstoffzellen für Lastkraftwagen

4.2.1 Motivation für Brennstoffzellensysteme in Lastkraftwagen

Der Bedarf an elektrischer Energie in Transportmitteln des Straßen-, Schifffahrts- und Luftfahrtbereichs nimmt in den nächsten Jahren weiter zu. Gründe sind hierfür zum einen der stetig steigende Umfang an Komfort-, Sicherheits-, und Steuerungsfunktionen in Fahrzeugen. Zum anderen werden Nebenverbraucher, die traditionell mit mechanischer Leistung durch die Antriebsmaschine versorgt werden, heute zunehmend elektrifiziert. Ein Vorteil liegt in der Möglichkeit, durch mechanische Entkopplung der Nebenverbraucher vom Antrieb deren Leistungsversorgung dem zeitabhängigen Bedarf besser anpassen zu können.

Die steigende Nachfrage nach elektrischer Leistung verlangt in der Konsequenz auch nach einer leistungsfähigeren Stromversorgung. In Personenkraftfahrzeugen kann dies bisher noch durch eine traditionelle Lichtmaschine realisiert werden. Leistungsfähigere Systeme stellen innovativere Kurbelwellen-Generatoren dar. In Flugzeugen befinden sich bereits heute separate Stromerzeugungsaggregate, die letztendlich auf einer Turbine basieren, die Kerosin verbrennt. Diese Systeme werden nur am Boden verwendet und weisen installierte elektrische Leistungen von 150 – 400 kW_e auf. Als Bezeichnung für diese Stromerzeugungsaggregate wird der englischsprachige Begriff der Auxiliary Power Unit, kurz APU, gewählt. Die APU stellt unabhängig vom Antrieb elektrische Leistung bereit und kann zum einen die Antriebsmaschine entlasten. Zum anderen ist auch in Stillstandsphasen eine leistungsfähige Stromversorgung möglich. Letzteres ist besonders vorteilhaft, da der Betrieb der Antriebsmaschine zum ausschließlichen Zweck der Stromerzeugung bei in der Regel sehr kleiner Teillast auch mit einem entsprechend geringen Wirkungsgrad verbunden ist. Dementsprechend führt der Einsatz von Systemen mit besonders niedrigen Schadstoff- und Lärmemissionen zu einer deutlichen Verbesserung der Umwelteigenschaften von Fahrzeugen. Zum Beispiel könnte so die Immissionssituation an Flughäfen oder Häfen wesentlich verbessert werden. Es existieren bereits heute in einigen skandinavischen Ländern emissionsorientierte (v.a. NO_x und SO_x) Gebührensysteme für Schiffe für die Zeit des Be- und Entladens [19] und entsprechende Regelungen an europäischen Flughäfen [20].

Welche Stückzahlen können erreicht werden? Contestabile [21] gibt als Anhaltspunkt ca. 400.000 APU-Einheiten für sogenannte „Sleeper trucks“ in den U.S.A. und 100.000 für den LkW-Markt in Europa an. Interessant für das am IEK-3 durchgeführte ADELHEID-Projekt ist die Abschätzung des jährlichen Absatzes von 60.000 Einheiten an LkW für den Kältetransport in den USA nach Lutsey et al. [22]. Die Anzahl von 1.500.000 Einheiten an PkW der Oberklasse in USA täuscht aber über die Tatsache hinweg, dass die meisten Pkw-Hersteller

-
- [19] Davies, M.E., Plant, G., Cosslett, C., Harrop, O., Petts, J.W.: Study on the economic, legal, environmental and practical implications of a European Union System to reduce ship emissions of SO₂ and NO_x, BMT Murray Fenton Edon Liddiard Vince Ltd., Final Report, Contract B4-3040/98/000839/MAR/B1, August 2000
- [20] Flughafen Hamburg GmbH, Flughafenbenutzungsordnung (Airport utilization regulations) of February 10, 2006
- [21] Contestabile, M.: Analysis of the market for diesel PEM fuel cell auxiliary power units onboard long-haul trucks and of its implications for the large-scale adoption of PEM FC. Energy Policy, doi: 10.1016/J.enpol.2009.03.044 (2009)
- [22] Lutsey, N., Brodrick, C.J., Sperling, D., Dwyer, H.A.: Markets for fuel-cell auxiliary power units in vehicles - Preliminary assessment, in Transport Research Record, 1842 (2003), 118-126

die APU-Entwicklung auf Basis fossiler Kraftstoffe aufgrund der hohen Anforderungen in diesem Bereich eingestellt haben. Da die hochgesteckten Ziele im US-DOE-Programm nicht erreicht werden konnten, wurden mehrfach Korrekturen im Förderprogramm vorgenommen [23, 24].

Weitere detaillierte Informationen zu den Möglichkeiten und Herausforderung bei der Entwicklung von Brennstoffzellen-APUs sind in [25] zusammengefasst. Für das ADELHEID-Projekt kann mit einem ersten Blick auf den europäischen Markt die Transportkälte für LkW als potentielle Anwendung im Leistungsbereich 5 – 15 kW_e angesehen werden (siehe Abb. 124). Baufahrzeuge oder andere spezielle APU-Anwendungen sind sicherlich mit in Betracht zu ziehen. Die sogenannten „Sleeper trucks“ sind ein typischer aber durchaus sehr interessanter US-amerikanischer Markt. Von internationaler Bedeutung sind maritime und luftfahrttechnische Anwendungen. Die Bordstromversorgung für Flugzeuge wird im nächsten Abschnitt detailliert diskutiert.

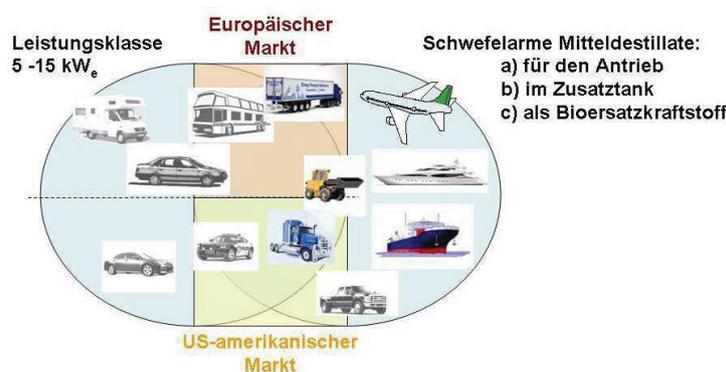


Abb. 124: Eingrenzung von möglichen Anwendungsfeldern der APU-Entwicklung in den Projekten des IEK-3

4.2.2 Bedarf an elektrischer Energie in LkW-Anwendungen

Eine Bordstromversorgung wird in fast allen mobilen Anwendungen benötigt. Einen Überblick über die verschiedenen APU-Anwendungen findet man in [25]. Zu den wichtigsten Anwendungsbeispielen zählen Flugzeuge, Schiffe, PkW und vor allem LkW – in den USA in zahlreichen Studien als Anwendung für die sogenannten „Line Haul Sleeper Trucks“ diskutiert [26, 27, 28]. In den USA beziehen sich Brennstoffzellensysteme zur Bordstromversorgung zumeist auf die Hochtemperaturbrennstoffzelle SOFC. Die Zieldaten des US-Departments DoE sind daher an die Technik der SOFC angepasst worden. Zielwerte für verschiedene APU-Anwen-

[23] Department of Energy, United States of America, On-board fuel processing go/no-go decision, PDF file downloaded at www1.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/news_fuel_processor.html (2004)

[24] <http://www.eia.doe.gov/cneaf/electricity/epa/epaxfiles1.pdf> (November 20, 2009)

[25] Peters, R.: Auxiliary Power Units for Light-Duty Vehicles, Trucks, Ships and Airplanes, in Hydrogen and Fuel Cells (ed. D. Stolten), Wiley-VCH, Weinheim (2010), pp. 681-714

[26] Lutsey, N., Brodrick, C.J., Lipman, T.: Energy, 32 (2007) 12, 2428-2438

[27] Jain, S., Chen, H.Y., Schwank, J.: Journal of Power Sources 160 (2006) 1, 474-484

[28] Baratto, F. and Diwekar, U.W.: Journal of Power Sources, 139 (2005) 1, 188-196

dungen sind in Tab. 11 zusammengestellt. Zum Vergleich sind auch die Zieldaten für PkW und für die Kraft-Wärme-Kopplung (KWK) angegeben. Dies ergibt durchaus Sinn: die Pkw Anwendungen haben den mitunter anspruchsvollsten Zielwert für die Kompaktierung. Die KWK ist mit aufgenommen worden, da hierfür in den meisten Fällen ebenso eine SOFC zu bevorzugen ist. Die Kostenziele sind für PkW-Anwendungen am anspruchsvollsten, bezüglich der Lebensdauer ist dies die KWK-Anwendung.

Zielwert	PkW APU [29]	DOE [30], BZ-Antrieb (H ₂), 2015	DOE [31], APU 2015/2020	DOE [31], KWK 2015/2020
Leistung	10 kW	80 kW	1-10 kW	1-10 kW
Effizienz	< 35%	50 %	35 %/40 %	42,5 %/45 %
KWK Energieeffizienz				87,5 %/90 %
Kosten für 50.000/ 100.000 Stück	€ 40 kW ⁻¹	\$ 30 kW ⁻¹	\$ 600 kW ⁻¹	€ 450 kW ⁻¹
Haltbarkeit	5000 h	5000	15.000/20.000 h	40.000/60.000 h
Alterung bei Zyklisierung pro 1000 h Betriebszeit			1,3 %/1 %	0,5 %/0,3 %
Leistungsdichte	333 W l ⁻¹	650 W l ⁻¹	35-40 W l ⁻¹	
Massenspezifische Leistung	250 kW kg ⁻¹	650 kW kg ⁻¹	40-45 kW kg ⁻¹	
Systemverfügbarkeit			98 %/99 %	98 %/99 %
Kaltstart	< 1 s	5 s @ 20 °C 30 s @ -20 °C	10/5 min	30/20 min
Lastwechsel (10% to 90% Teillast)	< 1s	1 s	3/2 min	3/2 min
Teillastbereich	1:50	-40 C		

Tab. 11: Zielwerte für verschiedene APU-Anwendungen und für stationäre Systeme (basierend auf Erdgas als Energieträger. CHP/ KWK: "combined heat and power generation")/ Kraft-Wärme-Kopplung

Wie sieht der tägliche Bedarf einer APU aus? Vielfach existieren nur unzureichende Analysen über den tatsächlichen Bedarf, insbesondere über Leistungsspitzen und den allgemeinen Tagesbedarf. Abb. 125 zeigt die Ergebnisse aus einer Studie von Sriramulu et al. [32]. Diese Daten können bei der Systemauslegung genutzt werden, um mittels einer Hybridisierung mit einer Batterie das Brennstoffzellen-System zu verkleinern. Für die Lkw-Anwendung ist zu

[29] Docter, A., Konrad, G., Lamm, A.: VDI-Berichte No. 1565 (2000), 399-411

[30] Department of Energy: Multi-year research, development and demonstration plan, Hydrogen, fuel cells & infrastructure technologies program, Revision 2007, <http://www.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/mypp> (November 23, 2009)

[31] <http://www1.eere.energy.gov/hydrogenandfuelcells/fuelcells/systems.html> (November 22, 2009)

[32] Sriramulu, S., Isherwood, K., Lasher, S., Broderick, C.J., Lutsey, N.: Evaluation of the potential for fuel cell auxiliary power units (APUs), Proc. Fuel Cell Seminar, November 1-5, 2004, San Antonio, Texas, USA

erkennen, dass ca. 2,5 kW_e für 1,5 Stunden täglich für die Kabinenheizung aufgewendet werden müssen. Tagsüber fallen ca. 2 kW_e für 1,5 Stunden für die Kabinenklimatisierung an. Je nach Studie werden täglich 5 – 10 kWh_e benötigt. Weitere Verbrauchswerte wurden von Lutsey et al. [33] ermittelt. In der Literatur sind Angaben für den LkW zwischen 8 und 140 l Diesel täglich und CO₂-Emissionen zwischen 19 und 360 kg CO₂/Tag zu finden, die durch den Leerlauf der Antriebsmaschine verursacht werden. Die Quellen [27], [32] und [34], geben Dieselverbräuche von 18 l/Tag beziehungsweise 19 l/Tag mit entsprechenden Werten für die CO₂-Emissionen von 45 und 49 kg CO₂/Tag an.

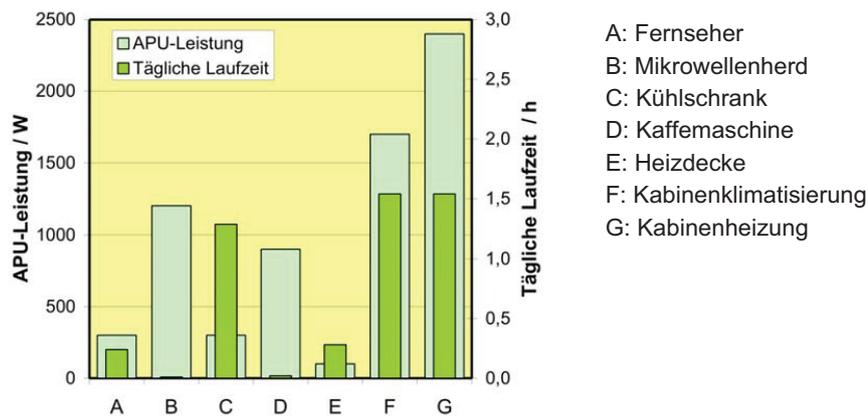


Abb. 125: Verbraucherspezifische APU-Leistung und tägliche Laufzeit für LkW nach [32]

4.2.3 Kraftstoffe für Brennstoffzellensysteme in LkW

Welche Kraftstoffe sollen für APUs eingesetzt werden? Abb. 126 zeigt einen Überblick mit verschiedenen Optionen wie LPG, Alkoholen, Benzin, Kerosin, Diesel, Heizöl und stellvertretend für maritime Kraftstoffe Marine Gas Oil (MGO). An Hand der zahlreichen Anwendungen ist deutlich eine Fokussierung auf Diesel abzuleiten. Insbesondere der hohe Schwefelgehalt, der hohe Rückstandsanteil bei der Verdampfung, hohe Konzentrationen an Aromaten – vor allem an mehrkernigen – stellen eine große Herausforderung an die Reformierung von Heizöl und maritimen Kraftstoffen dar. Kerosin enthält einen hohen Anteil an schwefelhaltigen Komponenten. Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Entschwefelung werden intensiv in anderen Projekten verfolgt [35, 36].

[33] Lutsey, N., Brodrick, C.J., Sperling, D., Oglesby, C: Journal of the Transportation Research Board, 1880 (2004), 29-38

[34] Preliminary Assessment of Planar Solid Oxide Fuel Cells for Transportation Power Applications. Parsons Infrastructure and Technology Group. December 2000. Prepared for Argonne National Laboratory.

[35] Peters, R., Latz, J., Pasel, J., Stolten, D. (2008) Desulfurization of Jet A-1 and Heating Oil: General Aspects and Experimental Results, in *ECS Transactions*, **12** (1), 543-554

[36] Latz, J., Peters, R., Pasel, J., Datsevich, L., Jess, A. (2009) Hydrodesulfurization of jet fuel by pre-saturated one-liquid-flow technology for mobile fuel cell applications. *Chemical Engineering Science*, **64**, 288-293

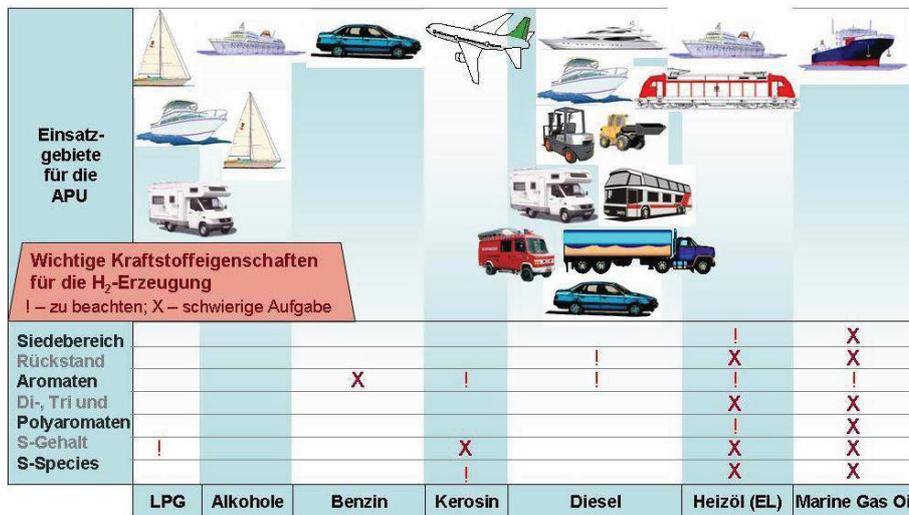


Abb. 126: Kraftstoffe und Einsatzgebiete der Bordstromversorgung

Eine Möglichkeit Brennstoffzellen für die Bordstromversorgung in Anwendungen einzusetzen, in welchen kein geeigneter Kraftstoff zur Verfügung steht, ist die Installation eines eigenständigen Kraftstoffversorgungssystems für die APU.

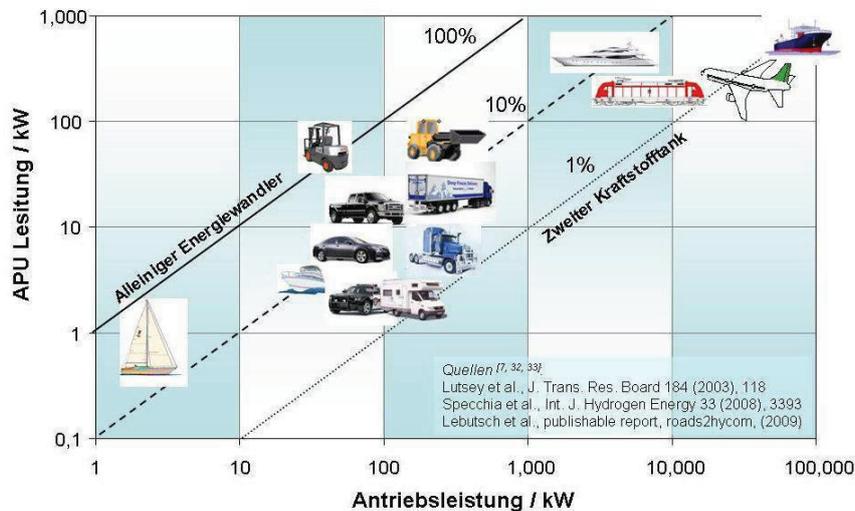


Abb. 127: APU- und Antriebsleistung für verschiedene mobile Anwendungen

Abb. 127 zeigt das Verhältnis aus APU- und Antriebsleistung für verschiedene Anwendungen. Ist die benötigte APU-Leistung in der gleichen Größenordnung wie der Antrieb, so ist ein effizienter Energiewandler zu bevorzugen. Bei einem Verhältnis von ca. 1:10 ist eher der an Bord für den Antrieb verwendete Kraftstoff auch für die APU zu verwenden. Bei einem Anteil entsprechend 1:100 kann ein zweiter Kraftstofftank in Betracht gezogen werden. Dieser Weg

wird vor allem im Bereich der maritimen Anwendung für MCFC mit LNG (liquid natural gas) als Energieträger besprochen [37].

4.2.4 Systemarchitekturen für Brennstoffzellensysteme im Lkw

Welche Brennstoffzellentypen stehen nun für eine Systementwicklung zur Verfügung? Im Leistungsbereich $500 \text{ W}_e - 5 \text{ kW}_e$ sind z.B. DMFC für Segelyachten [38], PEFC und DMFC für die leichte Traktion und für portable Anwendungen [39] anzuführen. PEFC für Fahrzeugantriebe verwenden im Leistungsbereich $50 - 100 \text{ kW}_e$ meist Wasserstoff als Energieträger und sind für den Reformatbetrieb nicht geeignet. SOFC im Leistungsbereich 5 kW_e werden von Delphi in den USA [40, 41, 42, 43] entwickelt. In Europa wurde zum Beispiel die Entwicklung seitens Webasto [44] zunächst an die Enerday GmbH übertragen und 2010 eingestellt [45]. Aus dem Bereich der stationären Brennstoffzellenentwicklung wird zur Zeit die MCFC für maritime Brennstoffzellen eingesetzt [37, 46].

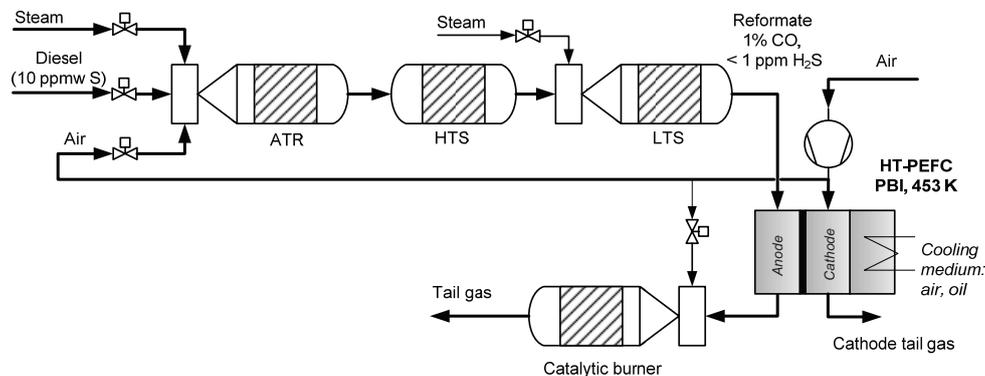


Abb. 128: Fließbild für ein HT-PEFC System in Kombination mit einer autothermen Reformierung von Diesel

- [37] Bordstromversorgung für Schiffe – das HotModule lernt schwimmen, BWK 61 (2009) 11, 20-21
- [38] SFC bringt Brennstoffzelle für Segelyachten auf dem Markt, http://www.innovations-report.de/html/berichte/energie_elektrotechnik/bericht-38537.html (January 16, 2010)
- [39] Garche, J.: Portable Applications and Light Traction, in Hydrogen and Fuel Cells, (ed. D. Stolten) Wiley-VCH, Weinheim (2010), pp. 715-732
- [40] Shaffer, S.: Development Update on Delphi's Solid Oxide Fuel Cell System, 2005 SECA Review Meeting, April 20, 2005, Pacific Grove, CA, USA
- [41] Blake, G.D.: Solid Oxide Fuel Cell Development for Auxiliary Power in Heavy Duty Vehicle Applications. DoE Peer Review 2008, http://www.hydrogen.energy.gov/pdfs/review08/fc_44_blake.pdf (November 16, 2009)
- [42] Mulot, J., Niethammer, M., Mukerjee, S., Haltiner, K., Shaffer, S.: in Proceedings of Fundamentals & Development of Fuel Cell Conference, December 10-12, 2008, Nancy, France
- [43] Kerr, R.: presented at the 2009 SECA Annual Meeting, June 14-16, 2009, Pittsburgh, PA, USA
- [44] Stelter, M., Reinert, A., Mai, B.E., Kuznecov, M.: Engineering aspects and hardware verification of a volume producible solid oxide fuel cell stack design for diesel auxiliary power units. J. Power Sources 154 (2006), 448 – 455
- [45] http://www.b4bmv.de/Mittelstand/Regionale-Wirtschaftsnachrichten/Mecklenburgische-Seenplatte/arid.50585_puid.14_pageid.657.html (September 01, 2010)
- [46] Klinder, K.: Das Leuchtturmprojekt e4ships, Rostock-Warnemünde (2009), www.now-gmbh.de/uploads/.../e4ships_090701_PK-Praesentation.pdf (January 18, 2010)

Die Leistungsklasse der MCFC liegt zwischen 250 – 320 kW_e. Für luftfahrttechnische Anwendungen und für kleine Leistungen ist dieser Zelltyp nicht geeignet. Am IEK-3 werden sowohl die HT-PEFC für die hauseigene Systementwicklung und in Förderprojekten eingesetzt, als auch die SOFC als Komponente für Systementwickler im Rahmen von Förderprojekten verwendet.

Abb. 128 zeigt ein vereinfachtes Verfahrensfliessbild für HT-PEFC Systeme in Kombination mit einer autothermen Reformierung von Diesel. Der autotherme Reformer produziert ein Produktgas (Reformat) mit ca. 8-10 vol.-% Kohlenmonoxid. In einem zweistufigen Shiftverfahren unter Wasserzugabe wird der Gehalt an Kohlenmonoxid auf ca. ein Prozent abgebaut. Das Gas wird der Brennstoffzelle bei Temperaturen zwischen 160 und 180 °C zugeführt. Das Restgas wird in einem katalytischen Brenner verbrannt.

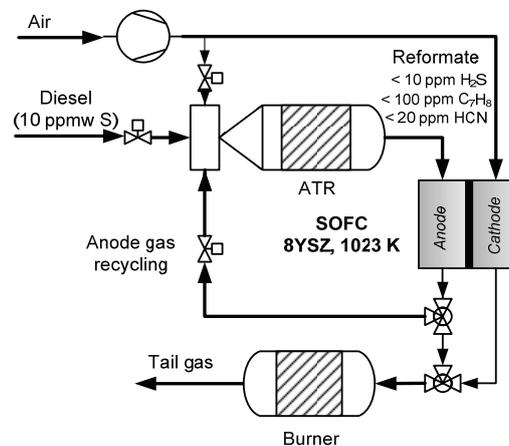


Abb. 129: Fließbild für ein SOFC System in Kombination mit einer Reformierung von Diesel. Die Reformierung von Diesel geschieht mittels einer partiellen Oxidation. Durch die Zugabe von Wasserdampf aus einer Anodengasrecycling entsteht ein quasi autothermes Verfahren

Abb. 129 zeigt ein vereinfachtes Verfahrensfliessbild für ein SOFC System in Kombination mit einer Reformierung von Diesel. Aus dem Vergleich der beiden Abbildungen lässt sich erkennen, dass das SOFC System wesentlich einfacher aufgebaut ist. Die Reformierung geschieht im Prinzip nur mit Luft und Diesel, der so genannten partiellen Oxidation. Wird diese katalytisch durchgeführt, spricht man von einem CPOX-Verfahren. Dieses neigt verstärkt zur Bildung von kohlenstoffhaltigen Ablagerungen. Um dem entgegenzuwirken wird in einem Kreislauf Anodenabgas recycelt. Im Anodenabgas ist auch Wasserdampf enthalten, so dass letztendlich eine autotherme Reformierung stattfindet.

Im folgenden Abschnitt wird die SOFC Entwicklung für die LkW Anwendung näher betrachtet. Die Entwicklung von HT-PEFC-Systemen wird detaillierter für die luftfahrttechnischen Anwendungen vorgestellt.

4.2.5 SOFC Entwicklung für die LkW APU Anwendung

4.2.5.1 Optimierung des Wirkungsgrades

Gemeinsam mit den Industriepartnern Eberspächer, ElringKlinger, Behr, Ceramtec, Thyssen Krupp und anderen verfolgte BMW seit 2004 die Realisierung einer Leichtbau SOFC für diesen Einsatz als Bordstromversorgung in einem Pkw. Trotz Erfolgen in der Entwicklung robuster und leistungsfähiger Stacks kam man bei BMW zu der Erkenntnis, dass die extrem harten Anforderungen an die APU bezüglich Aufheizzeiten und Dynamik für den Einsatz in einem Pkw auf absehbare Zeit mit einer SOFC nicht zu erfüllen sein werden. Die Leitung des System-Entwicklungsprojektes (ENSA) ging dann an die Fa. Eberspächer über mit starker Unterstützung durch ElringKlinger, die die Leitung des Stack-Entwicklungsprojektes (ZeuS) übernahmen. Beide Firmen entwickeln die SOFC APU nun nicht mehr für den Einsatz im Pkw sondern für Lkw und Nutzfahrzeuge, für die geringere dynamische Anforderungen gelten. Aufgrund der verschärften Bedingungen vor allem in den USA bezüglich des Betriebs des Fahrzeugmotors im Leerlauf (Standzeiten auf dem Parkplatz) wird weltweit nach effizienten umweltfreundlichen Lösungen für die Erzeugung des notwendigen Bordstroms gesucht. Das neue Konsortium bestehend aus Eberspächer, ElringKlinger und Behr (unterstützt durch das Forschungszentrum Jülich, das DLR Stuttgart, die Universität Karlsruhe und das Oel-Waerme Institut Aachen) beabsichtigt innerhalb der nächsten Jahre eine erste Demoanlage in einem Lkw zu betreiben.

Neben geringer Geräuschemission und fehlender Vibrationen ist der Wirkungsgrad ein wichtiger Aspekt bei der Entscheidung für ein APU-System.

Beim Betrieb mit Diesel ist der eigentlichen Brennstoffzellenanlage ein Reformer vorgeschaltet, der im Falle des verwendeten Reformierungsverfahrens (Partielle Oxidation mit etwas Wasserdampf aus der Rezirkulation) einen Wirkungsgrad von ca. 75 % aufweist. Hieraus ergibt sich das im Folgenden dargestellte Wirkungsgrad-Potential.

Der elektrische Nettowirkungsgrad eines Brennstoffzellensystems kann als Produkt aus verschiedenen Einzelwirkungsgraden bestimmt werden:

$$\eta_{el} = \eta_{Reformer} \times \eta_z \times u_F \times \eta_p \times \eta_{Inv}$$

Neben dem Reformerwirkungsgrad $\eta_{Reformer}$ ist der Zellwirkungsgrad η_z eine wichtige Größe, die die Leistungsfähigkeit der Zelle als Verhältnis zwischen Zellspannung und Heizwertspannung beschreibt. Die Brennstoffnutzung u_F berücksichtigt den Anteil an Brenngas, das in elektrischen Strom umgewandelt wird. Der elektrische Eigenverbrauch der Anlage wird über η_p und die Umwandlungsverluste auf andere Spannungsniveaus oder in Wechselspannung über η_{Inv} berücksichtigt.

An Abb. 130 wird ausgehend von einem Energieinput von 9 kW in das System in Form von Diesel dargestellt, welche Verluste die einzelnen Wirkungsgradbeiträge verursachen. Ein erster deutlicher Abfall wird durch den Reformer verursacht, so dass von den 9 kW Heizwert des Diesels noch 6,8 kW im Produktgas enthalten sind. Davon werden 5,4 kW elektrochemisch in der Brennstoffzelle genutzt, was bei einer Zellspannung von 700 mV zu einer elektrischen Leistung von 2,9 kW führt. Inverterverluste und Eigenverbrauch führen dann zu einer Nettoleistung von 2,2 kW, was einem elektrischen Nettowirkungsgrad von ca. 25 % entspricht.

Dies zeigt deutlich, dass vor allem bei der Zelle Entwicklungspotential ausgeschöpft werden muss.

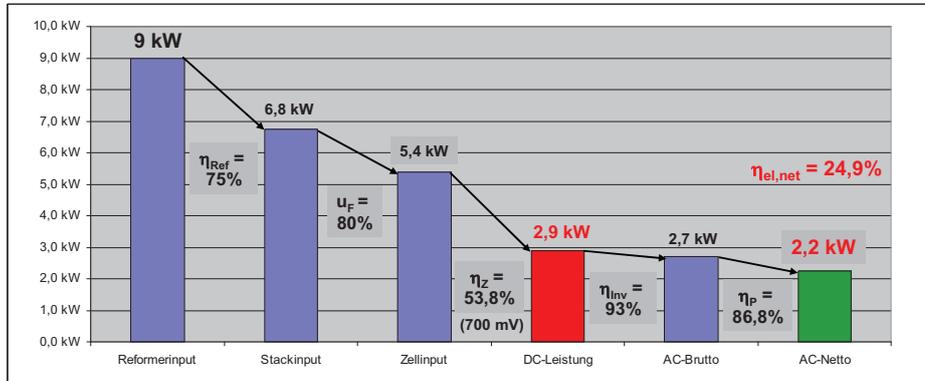


Abb. 130: Leistungsverluste in einem aktuellen APU System basierend auf Diesel

Wohin die Optimierung verschiedener Komponenten führen kann, zeigt Abb. 131. Neben einer Erhöhung der Brenngasnutzung und geringfügiger Verbesserung des Inverter-Wirkungsgrads bringt vor allem die Erhöhung der Zellspannung auf 800 mV eine deutliche Verbesserung. Dies ist auch entscheidend für die Verbesserung des Eigenverbrauchswirkungsgrads, da geringere Verluste in der Zelle weniger Abwärme bedeuten, was wiederum weniger Luft zur Kühlung erfordert. Hierdurch sinkt der Druckverlust in der Anlage, was beides zu einem geringeren Verbrauch des Luftverdichters führt. In dieser Kombination kann dann die optimierte Anlage einen Wirkungsgrad von 35 % erreichen.

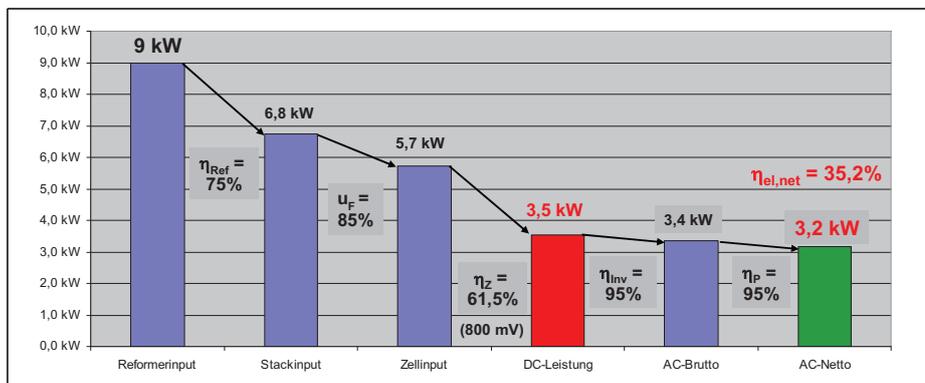


Abb. 131: Leistungsverluste in einem optimierten APU System basierend auf Diesel

4.2.5.2 Betriebstests an APU-SOFC-Stacks

Im Bereich der APU-Anwendung sind die Anforderungen an die Stacks durch den dynamischen Betrieb viel härter als bei stationären Anwendungen. Hierzu wurde ein neues Stack-Design entwickelt. Das so genannte CS-Design für Leichtgewicht APU-SOFC-Stacks basiert auf dünne Metallbleche, die mit herkömmlichen Umformungstechniken bearbeitet werden können.

Zwei Blechteile bilden eine Kassette in dem die planare anodensubstrat Zelle integriert wird. Die Kassetten mit den Zellen bilden die Wiederholeinheiten für die Stapelung im Stack. Die Einheiten werden mit einem Glaskeramiktlot zusammengefügt. Dieses Lot versorgt die Trennung der Gasräume, als auch die elektrische Isolierung zwischen den Ebenen. Ein Wellenprofil im unteren Teil der Kassette sorgt für eine homogene Verteilung der Betriebsgase über die Zellebene. Die Wellen übernehmen gleichzeitig die Funktion des Interkonnektors, d.h. verbinden die Kathode einer Zelle elektrisch mit der Anode der nächsten Zelle.

Der dynamische Betrieb eines APU-SOFC-Systems stellt besonders beim schnellen Hochfahren auf Betriebstemperatur und beim Abschalten harte Bedingungen an den Stacks. Die schnellen Temperaturänderungen im Stack können große Temperaturgradienten und dementsprechende thermische Spannungen verursachen, die zum Versagen einzelnen Komponenten und Grenzflächen führen können. Außerdem treten beim Hoch- und Abfahren Gaswechsel auf die Brenngasseite des Stacks auf, die besonders bei den höheren Temperaturen noch zur Schädigung der Anodensubstratzellen führen können durch die Oxidation des Nickels in den Substraten. Zur Untersuchung der Beständigkeit der Stacks gegen diese Temperatur-, bzw. Gaswechsel wurden an Stacks Thermo- und Redox-Zyklen durchgeführt.

Am Stack CS05-22 wurden so genannte Redoxzyklen durchgeführt, die eine Spülung vom System mit Luft auf der Brenngasseite beim Start simulieren. Eine vom System vorgegebene Menge Luft (0.184 ml/min bezogen auf einen Stack mit 5 Ebenen) wurde während 10 Minuten auf die Brenngasseite vom Stack geführt. Aus sicherheitstechnischen Gründen wurde im Labor vorab und nachher den Brenngasraum jeweils 2 Minuten mit Argon gespült bevor wieder Wasserstoff zugeführt wurde. Zuerst wurde an den Stack eine Reihe von Redoxzyklen bei einer Betriebstemperatur von 600 °C durchgeführt. Die Redoxzyklen wurden in unregelmäßige Intervalle unterbrochen für Kennlinienmessungen bei 750 °C. Nach erfolgreicher Durchführung von 150 Redoxzyklen bei 600 °C wurde die Temperatur für weitere Redoxzyklen auf 700 °C erhöht. Nach 23 Redoxzyklen bei 700 °C wurde ein erstes leichtes Abfallen der Zellspannung einer Ebene beobachtet. Es wurden noch weitere 58 Zyklen durchgeführt. Das Experiment wurde beendet wegen eines starken Abfallens der offenen Zellspannungen (OCV) an zwei von den fünf Ebenen im Stack.

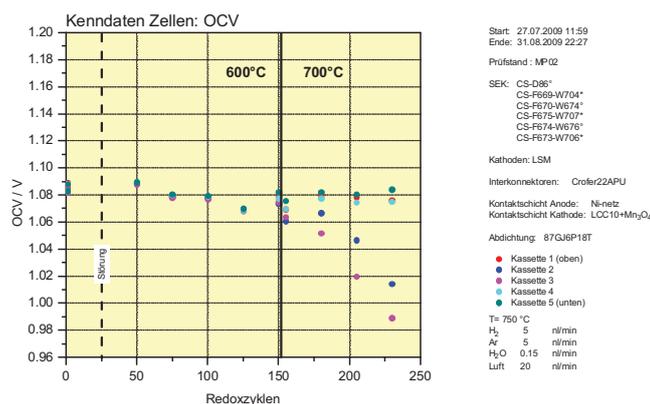


Abb. 132: OCV am Anfang der Kennlinienmessung als Funktion der Anzahl der Redoxzyklen

Die Kennlinien die zwischen den verschiedenen Redoxzyklen aufgenommen wurden, wurden analysiert nach OCV am Anfang der Kennlinie (Abb. 132), ASR (die Steigung der Kennlinie bei steigendem Strom zwischen 0.75 V und 0.85 V) (Abb. 133) und Leistungsdichte bei 0.7 V (Abb. 134). Die Beobachtung bezüglich der Abnahme der OCV der Kassette 3 wird in Abb. 132 bestätigt. Weiter zeigt dieser Abbildung, dass auch die OCV der Kassette 2 deutlich abnimmt. Diese Abnahme der OCV ist ein eindeutiges Indiz für ein sich stetig vergrößerndes Leck. Die entstehenden Leckagen scheinen keinen Einfluss zu haben auf den ASR. In der Leistungsdichte der Zellen ist nur bei der letzten Kennlinienmessung eine Abnahme der Leistung für die Kassette 3 und in geringerer Masse auch der Kassette 2 zu sehen. Eine Störung, die eine automatische Abschaltung des Prüfstandes und damit ein Thermozyklus verursachte, hat einen deutlicheren Einfluss auf den ASR und die Leistungsdichte. Die ASR-Werte sind nach der Störung deutlich höher und fallen im Laufe der Zeit wieder auf den Anfangswert zurück. Ähnliches ist auch in Abb. 134 sichtbar. Die Leistungsdichte fällt nach der Störung ab um sich danach langsam zu erholen.

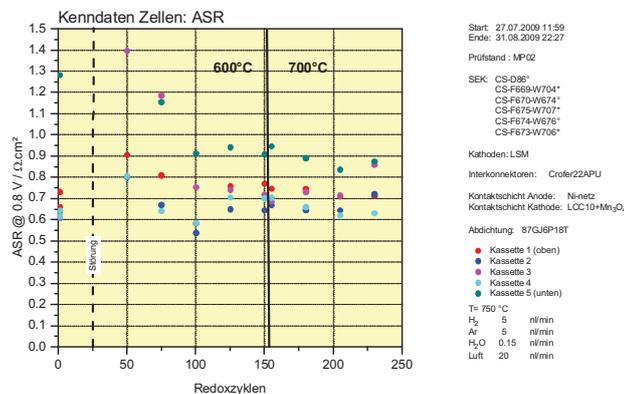


Abb. 133: ASR bei 0,8 V als Funktion der Anzahl der Redoxzyklen

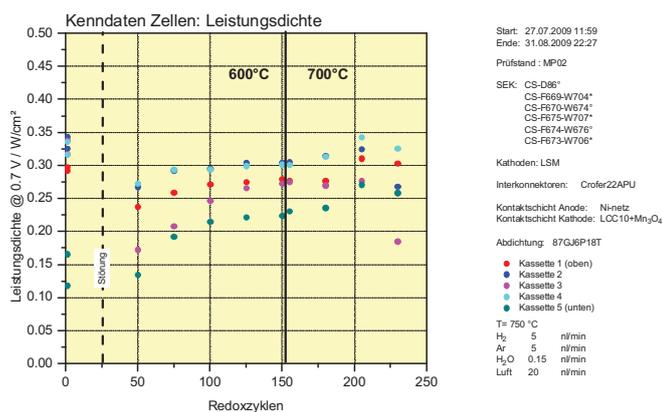


Abb. 134: Leistungsdichte der Zellen bei 0,7 V als Funktion der Anzahl der Redoxzyklen

Auch bei ähnlichen Versuchen an anderen Stacks wurden genauso wie am Stack CS05-22 keine Änderungen der OCV- und ASR-Werte während Redoxzyklen beobachtet, die bei 600 °C durchgeführt wurden. Redoxzyklen durchgeführt bei 700 °C führten öfters zum Versagen einer oder mehrerer Ebenen im Stack. Hieraus lassen sich wichtige Randbedingungen ableiten für die Betriebsstrategie beim Hochfahren des Systems.

Einen anderen Stack wurde Thermo-Zyklen unterworfen. Der Stack CS1105-04 wurde gemäß einer von der Spezifikation für den Systemstart abgeleiteten Prozedur 100mal thermisch zwischen Betriebstemperatur (750 °C) und Raumtemperatur (< 50 °C) zyklert. Die Aufheizrate betrug jeweils 10 K/min. Nach dem Aufheizen wurde bei der Betriebstemperatur von 750 °C der Stack dann jeweils 2 Stunden unter Konstantstrom betrieben und es wurden Kennliniemessungen durchgeführt. Anschließend wurde der Stack erlaubt in seiner thermischen Isolierung abzukühlen auf Raumtemperatur. Die Kennlinien die bei jedem Zyklus aufgenommen wurden, wurden auch hier analysiert nach OCV am Anfang der Kennlinie, ASR (die Steigung der Kennlinie bei steigendem Strom zwischen 0.75 V und 0.85 V) und Leistungsdichte bei 0.7 V. Diese Kenndaten sind in Abb. 135 als Funktion der Zyklenzahl dargestellt. Die große Streuung in den ASR-Werten wird verursacht durch ein Artefakt in den Kennlinien, das eine genaue Bestimmung verhindert. Trotzdem ist hier eine leicht steigende Tendenz erkennbar. Dementsprechend nimmt auch die Leistung des Stacks mit zunehmender Zyklenzahl ab und auch die OCV-Werte zeigen eine leicht abnehmende Tendenz. Allerdings wurde mit dem Abschließen von den 100 Thermo-Zyklen das primäre Versuchsziel erfolgreich erreicht.

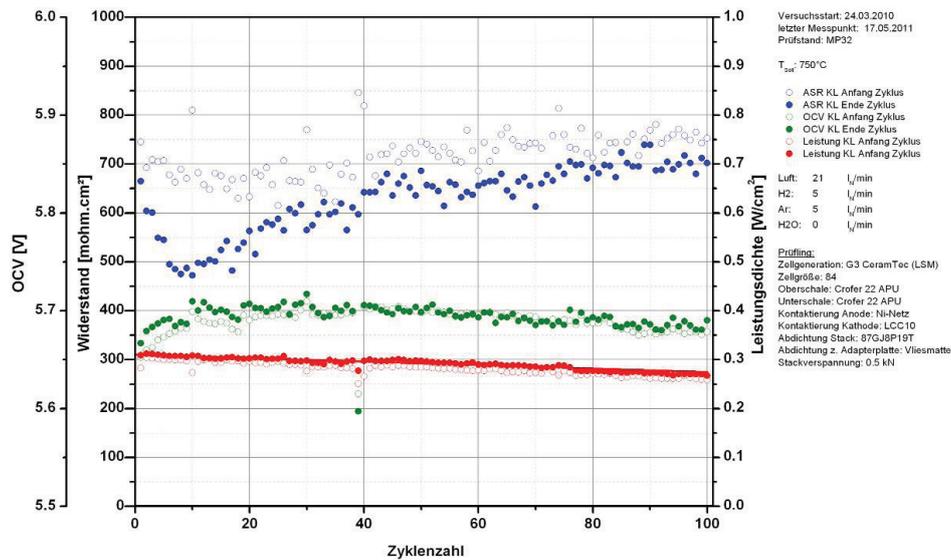


Abb. 135: Kenndaten (OCV, ASR und Leistungsdichte) als Funktion der Anzahl der Thermo-Zyklen für den Stack CS¹¹05-04

4.3 Brennstoffzellen-APU für Flugzeuge

4.3.1 Motivation für Brennstoffzellensysteme im Flugzeug

Die Nutzung von Brennstoffzellensystemen als Bordstromversorgung (Auxiliary Power Unit, APU) von Flugzeugen wurde bereits 2001 von Seidel et al. [47] in die Diskussion gebracht. Konventionelle APUs auf Basis einer Gasturbine können nur einen Wirkungsgrad von maximal 20 % erreichen, wenn sie betrieben werden, während das Flugzeug am Boden steht. Im Fall des Betriebs am Boden weisen Brennstoffzellensysteme mit einem Potenzial von bis zu 40 % Wirkungsgrad deutliche Vorteile auf. Mit Wirkungsgraden von 40 % ist die Bordstromversorgung während des Flugs mittels konventioneller APUs bereits sehr effizient [48].

Von Boeing wurden daher für Brennstoffzellensysteme hohe Wirkungsgrade von 75 % als Zielwert vorgegeben, um mit den konventionellen APUs auch während des Flugs konkurrieren zu können [49]. Dazu wurden Hybridsysteme bestehend aus einer SOFC und Gasturbinen ausgelegt und verfahrensanalytisch berechnet [49, 50, 51]. Die Auslegung solcher Systeme verlangt den SOFC-Betrieb bei höheren Betriebsdrücken und Temperaturen und die Nutzung von Mikrogasturbinen. In einer Reihe von Studien werden dabei Wirkungsgrade zwischen 32 % und 65 % errechnet [50, 51, 52, 53]. Da die Technik für die Realisierung solcher Systeme nicht bereit steht, wurden weitergehende Arbeiten nicht durchgeführt bzw. nicht veröffentlicht.

Die Airbus Deutschland GmbH verfolgt mit Ihren Projektpartnern, zu denen auch das Forschungszentrum Jülich gehört, das Konzept der multifunktionalen Brennstoffzelle. Konventionelle Systeme an Bord von Flugzeugen haben häufig nur eine einzige Funktion. Die elektrische Energiebereitstellung erfolgt mittels Generatoren an den Triebwerken, der konventionellen APU, und mit Batterien. Zur Tankinertisierung wird ein sogenanntes Fuel Tank Inerting System (FTIS) eingesetzt. Das benötigte Wasser wird in zusätzlichen Tanks an Bord des Flugzeuges gespeichert. Diese einzelnen Systeme erhöhen das Gewicht des Flugzeuges und machen die Flugzeugarchitektur komplizierter. Der Einsatz von Brennstoffzellensystemen als multifunktionale Einheit im Flugzeug bietet die Möglichkeit, die Funktionen Energieumwandlung, Wasser- und Inertgaserzeugung mit Hilfe eines einzigen Systems zu gewährleisten.

-
- [47] Seidel, J.A., Sehra, A.K., Colantonio, R.O. (2001) NASA Aeropropulsion Research: Looking Forward, Proceedings of the 15th ISABE Bangalore, India, 2-7 June, 2001, NASA/TM-2001-211087, National Technical Information Service, Springfield, USA
 - [48] Peters, R. und Westemberger, A. (2010) *Large Auxiliary Power Units for Vessels and Airplanes*, in Innovations in Fuel Cell Technologies, Eds. Steinberger-Wilckens, R. and Lehnert, W., RSC publishing, Cambridge, United Kingdom, pp. 76 – 148.
 - [49] Daggett, D., Freeh, J., Balan, C., Birmingham, D. (2003) Proceedings of the Fuel Cell Seminar (CD), 3-7 September 2003, Miami, FL, Courtesy Associates, Washington.
 - [50] Srinivasan, H., Yamanis, J., Welch, R., Tilyani, S., Hardin, L. (2006) Solid oxide fuel cell APU feasibility study for a long range commercial Aircraft using UTC ITAPS Approach, Volume I: Aircraft propulsion and subsystem integration evaluation, NASA/CR- 2006- 214458/VOL1, National Technical Information Service, Springfield, U.S.A.
 - [51] Gummalla, M., Pandey, A., Braun, R., Carriere, T., Yamanis, J., Vanderspurt, T., Hardin, L., Welch, R. (2006) Fuel Cell Airframe Integration Study for Short-Range Aircraft, Volume 1: Aircraft Propulsion and Subsystems Integration Evaluation, NASA/CR- 2006-214457/VOL1, National Technical Information Service, Springfield, U.S.A.
 - [52] Mak, A., Meier, J. (2007) *Fuel Cell Auxiliary Power Study, Volume I: Raser Task Order 5*, NASA/CR-2007-214461/VOL1, National Technical Information Service, Springfield, USA
 - [53] Dollmeyer, J., Bundschuh, N., Carl, U.B., Aerospace Science and Technology (2006), 10, 686-694

Wegfallen können Wassertanks, die konventionelle APU und das FTIS. Generatoren und Batterien können kleiner dimensioniert werden. Diese Maßnahmen verringern den Kraftstoffverbrauch, erhöhen die Gesamteffizienz eines Flugzeuges und ermöglichen einen emissionsarmen Betrieb von Flugzeugen im Flug und besonders am Boden. Aus wirtschaftlicher Sicht können am Flughafen kostenintensive Ausrüstungen wie zum Beispiel die zum Wiederbefüllen der Wassertanks eingespart werden. Außerdem werden durch den Wegfall der erwähnten Systeme die Anschaffungs-, Wartungs- und Betriebskosten von Flugzeugen sinken. Die Luftfahrtindustrie hat außerdem das Ziel, in zukünftigen Flugzeuggenerationen alternative Kraftstoffe in Brennstoffzellensystemen zu verwenden. Dabei kommt z.B. ein alternativer, synthetischer Kraftstoff in Frage, der nach dem so genannten Bio-To-Liquid (BTL)-Verfahren hergestellt worden ist. Dadurch erhöht sich die Relevanz der Brennstoffzellentechnik bezüglich der Schonung und Bewahrung der Umwelt weiter.

4.3.2 Bedarf an elektrischer Energie im Flugzeug

Abb. 136 zeigt detailliert den Bedarf an elektrischer Energie im Flugzeug nach zwei Studien der NASA [50, 51]. Beide betrachten den Betrieb der APU zunächst am Boden. Das Profil in NASA/CR-2006-214457 [51] geht von einer maximalen APU-Leistung von 260 kW_e aus, NASA/CR-2006-214458 [50] von 450 kW_e. In [51] werden 4 Flüge pro Tag und eine Flugdauer von 150 min („Tax Out“ – „Tax In“) angesetzt. In [50] gehen Srinivasan et al. zunächst von einer Flugdauer von ca. 1.000 min aus, welches einem Langstreckenflug entspricht. Für die weiteren Analysen werden aber zwei Kurzstreckenprofile mit 500 NM (Nautische Meilen) – entsprechend ca. 926,6 km und 1.000 NM (1.853 km) herangezogen. Die Strecken werden viermal bzw. sechsmal täglich geflogen. Die jeweilige Flugdauer beträgt 90 bzw. 150 min. In

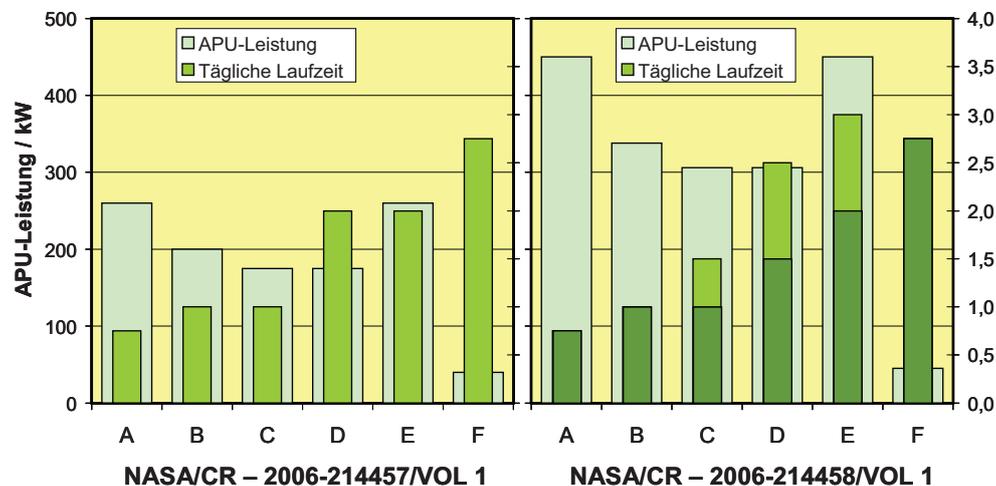


Abb. 136: APU-Leistung und tägliche Laufzeit für die Profile aus zwei NASA-Studien [51] (links), [50] (rechts). A: „Cabin Pull Down“; B: Aufrechterhaltung der Kabinenkühlung; C: Passagier-Ausstieg; D: Service; E: Passagiereinstieg; F: Wartung

Abb. 136 ist zu erkennen, dass für die 500 NM-Kurzstrecke im NASA/CR-2006-214458-Profil täglich zwei Stunden à 450 kW_e für Passagiereinstieg (E) benötigt werden. An Hand der Daten lassen sich tägliche Energiebedarfe von 1.550 kWh [51], 2.464 kWh [1.000 NM, 50]

und 3.373 kWh [500 NM, 50] ableiten. Die Berechnung der Kerosinverbräuche für die konventionelle APU ergibt bei einem angenommenen Wirkungsgrad von 20 % 865 l/Tag [51], 1.375 l/Tag [1000 NM, 50] und 1.882 l/Tag [500 NM, 50]. Die emittierten CO₂-Mengen betragen 2 t/Tag, 3,1 t/Tag und 4,3 t/Tag. Bei einem angenommenen Wirkungsgrad für ein SOFC-Brennstoffzellensystem von 40 % halbieren sich die Kerosinverbräuche und ebenso die CO₂-Emissionen [50, 51].

Eine vollständige Substitution der Bordstromerzeugung durch Brennstoffzellensysteme erfordert nach [50] eine elektrische Leistung zwischen 450 – 550 kW. Hinzu könnten bis zu 425 kW zusätzliche Leistung beim Betrieb einer elektrischen „Anti-Icing“-Vorrichtung kommen. In [51] betragen diese Leistungen max. 260 kW für den Flugbetrieb und weitere 100 kW für die „Anti-Icing“-Option. Nach [50] sind die Effekte der effizienteren Bordstromerzeugung mit Hilfe von Brennstoffzellensystemen am Boden für die Kurzstreckenflüge deutlicher gegenüber einem Langstreckenflug mit 14.270 km. Während des Fluges werden ähnliche Wirkungsgrade von konventionellen Systemen mit Turbine und Generator gegenüber der SOFC erzielt. Es ergibt daher zunächst keinen Sinn, die konventionelle Stromerzeugung vollständig durch Brennstoffzellentechnologie zu ersetzen. Die zusätzlich installierte APU-Leistung über Brennstoffzellen kann aber additive elektrische Verbraucher wie „Anti-Icing“-Systeme versorgen. Damit bestimmen andere Produkte wie das im Brennstoffzellensystem gebildete Wasser oder seine Abgase (Tankinertisierung) die Leistungsgröße für die Brennstoffzellen-APU. Es ergibt sich zudem ein deutlicher Vorteil durch die sehr niedrigen limitierten Emissionen für die Brennstoffzellen-APU [50, 51].

Tab. 12 gibt einen Überblick über die erreichbaren Wassermengen. Demnach wird ein Wasserstoffsystem mit 240 kW_e (60 % von 400 kW_e) benötigt, um ca. 100 l pro Stunde Wasser zu

Fall	2 x 100 kW _e	4 x 100 kW _e
Betriebszeit	1,5 h	8,5 h
Energie (100 %)	600 kWh	6.800 kWh
Masse H ₂	18,2 kg	226,0 kg
Volumen (1 atm.; 21 K, 90%)	0,3 m ³	3,58 m ³
Wasser Produktion @ 60 % Last des Stacks (⇒ η = 50 %)	7,3 kg H ₂ für 52,4 kg H ₂ O (1 h)	116,4 kg H ₂ für 837,8 kg H ₂ O (8 h)
Stromproduktion @ 60 % Last (η = 47,5 %)	7,7 kg H ₂ (1 h)	122,5 kg H ₂ (8 h)
60 % Last at η = 40,0 %	25,2 kg JET A-1 (1 h)	401,9 kg JET A-1 (8 h)

Tab. 12: Fallstudien für multifunktionale Systeme mit Wasserstoff als Energieträger nach [48]

produzieren. Ein System mit autothermer Reformierung muss für die gleiche Menge mit 400 kW_e betrieben werden. Für ein System mit 260 kW_e nach [51] kann für die HT-PEFC eine nutzbare Wärme von 325 kW_{th} im Kerosin- und von 260 kW_{th} im H₂-Betrieb abgeschätzt

werden [54]. Es kann daher durchaus sinnvoll sein, für „Anti-Icing“-Maßnahmen diese Wärme- ströme im existierenden „Anti-Icing“-System zu verwenden. In Hinblick auf die Tankinertisie- rung reicht für einen Airbus vom Typ A320 die Abgasmenge eines Brennstoffzellensystems mit einer elektrischen Leistung von 20 kW aus. Diese Leistungsklasse entspricht der, die für den Ersatz der „RAM Air Turbine“ (RAT, Staudruckturbine) benötigt wird. Getestet wurden hierfür PEFCs mit einer H₂/O₂-Versorgung. Da erwartet wird, dass die elektrischen Systeme im Flugzeug in Zukunft effizienter werden, können APU-Systeme mit niedrigeren Leistungen von 100 – 150 kW_e ausgerüstet werden [55]. Eine wesentliche Funktion der heutigen APU- Turbine ist die Bereitstellung von Zapfluft für den Startbetrieb der Turbine. Boeing plant den sogenannten „Dreamliner 767“ ohne die Nutzung von Zapfluft. Die Turbinen werden elektrisch über Starter-Generator-Einheiten in Betrieb gesetzt.

4.3.3 Systemarchitekturen für Brennstoffzellensysteme im Flugzeug

Die Airbus Deutschland GmbH und das Forschungszentrum Jülich GmbH favorisieren zurzeit die Hochtemperatur-PEFC als Brennstoffzellentyp mit den Energieträgern Wasserstoff und BTL-Kerosin [48, 54]. Wasserstoff soll dabei in flüssiger Form an Bord des Flugzeugs gespei- chert werden. Im Folgenden werden weitere Prozessvariationen mit PEFC, HT-PEFC und SOFC betrachtet.

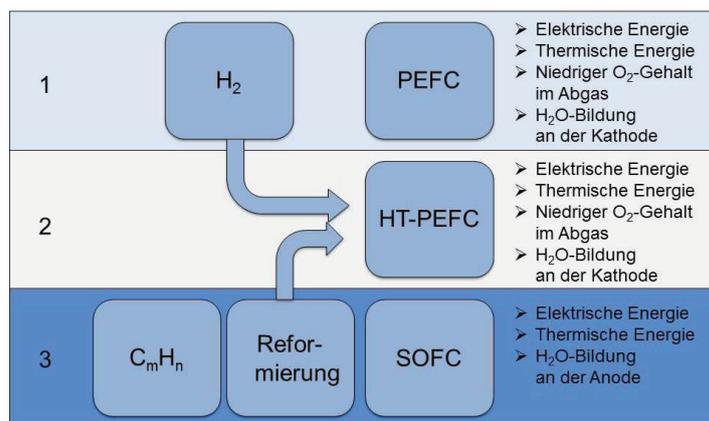


Abb. 137: Optionen für den Einsatz von Brennstoffzellen im Flugzeug [48]

Abb. 137 zeigt die beiden favorisierten Prozessketten in einem Übersichtsdiagramm. In der Kette 1 dient Wasserstoff als Kraftstoff für die PEFC. Das ist die Variante, die auch bei Fahrzeugen bevorzugt wird mit dem Unterschied, dass Airbus die Speicherung von flüssigem Wasserstoff anstrebt, während bei Automobilsystemen die gasförmige Speicherung favorisiert wird. Die dritte Kette kombiniert die Reformierung von Kerosin mit der SOFC. Im Mittelpunkt

[54] Peters, R., Latz, J., Pasel, J., Samsun, R.C., Stolten, D.: Final report on the ELBASYS (Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf) collaborative project, subproject: Brennstoffzellenabgase zur Tankinertisierung (Fuel cell off-gases for tank inerting), Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Vol. 46 (2010), Forschungszentrum Jülich

[55] Heinrich, H.J.: presented at Symposium der Wasserstoffgesellschaft Hamburg, October 18 2007, <http://www.h2hamburg.de/index.php?page=download> (November 18, 2009)

des Diagramms steht die HT-PEFC. Aus technischer Sicht sind weitere Optionen möglich, die aber im multifunktionalen System Nachteile in Bezug auf die Wasserproduktion und die Nutzung der Abgase zur Tankinertisierung aufweisen.

Die von Peters et al. [54] berechneten Wirkungsgrade umfassen für alle betrachteten Brennstoffzellentypen – PEFC, SOFC und HT-PEFC – einen Bereich zwischen 20 % und 55 %. Den größten Einfluss haben die Zellspannung und der Wasserstoffnutzungsgrad auf den Wirkungsgrad. Der Druckeinfluss wurde ohne zusätzliche Abhängigkeiten betrachtet. Dann wirkt sich die Druckerhöhung auf Grund der steigenden Kompressionsleistung für die Kathodenluft negativ auf den Wirkungsgrad aus. Bei der HT-PEFC steigt aber bei konstanter Stromdichte die Einzelzellspannung mit zunehmendem Druck deutlich an. Hierdurch lassen sich bei höheren Betriebsdrücken bis 3 bar kompaktere Stacks bei gleichem Wirkungsgrad bauen. Unter gleichen äußeren Voraussetzungen ($p_{\text{sys}} = 1,1 \text{ bar}$, $U_{\text{Zelle}} = 750 \text{ mV}$) sind folgende Wirkungsgrade erreichbar:

- 38,5 % für die Kombination aus autothermer Reformierung von Kerosin und HT-PEFC mit einer Wasserstoffnutzung von $\eta_{\text{H}_2, \text{Nutz}} = 90 \%$
- 42,3 % für die Kombination aus Dampfpreformierung von Kerosin und HT-PEFC und einer durch die Wärmebilanz begrenzten Wasserstoffnutzung von $\eta_{\text{H}_2, \text{Nutz}} = 75 \%$; (1. Hauptsatz der Thermodynamik)
- 36,1 % für die Kombination aus autothermer Reformierung von Kerosin, präferentielle Oxidation (PROX) zur CO-Feinreinigung und PEFC und einer durch die Wärmeübertragung begrenzten Wasserstoffnutzung von $\eta_{\text{H}_2, \text{Nutz}} = 84 \%$; (Pinch-Point, 2. Hauptsatz der Thermodynamik)
- 50,2 % für die HT-PEFC mit Wasserstoff als Energieträger mit einer für Vergleichszwecke begrenzten Wasserstoffnutzung von 90 %
- 50,5 % für die PEFC mit Wasserstoff als Energieträger mit einer für Vergleichszwecke begrenzten Wasserstoffnutzung von 90 %

4.3.4 Kraftstoffe für Brennstoffzellensysteme im Flugzeug

Der Flugturbinenkraftstoff Jet A-1 darf laut Spezifikation bis zu 3.000 ppmw Schwefel enthalten. Reformierungskatalysatoren können jedoch nur ca. 10 ppmw S tolerieren. Zurzeit wird Jet A-1 in der Raffinerie nicht bis auf 10 ppmw S entschwefelt. Eine Entschwefelung an zentralen Stationen am Flughafen oder in kleinen dezentralen Anlagen am Gate oder an Bord benötigt andere Technologien als die hydrierende Entschwefelung, die in der Raffinerie zur Entschwefelung von Benzin und Diesel angewandt wird. Es ist eine Entschwefelung in der Flüssigphase notwendig. Ein möglicher Prozess ist der Hydrofining-Prozess mit vorgesättigtem Wasserstoff [56]. Experimentelle Untersuchungen konnten zeigen, dass bei einem Druck von 24 bar und bei 390 °C Jet A-1 von 700 ppmw auf 8,3 ppmw S entschwefelt werden kann. Das entstehende H_2S muss über einen Hydrozyklon entfernt und im Flugzeug in den Turbinen verbrannt werden. Schwefel verlässt das System somit als SO_2 .

[56] Latz, J., Peters, R., Pasel, J., Datsevich, L., Jess, A. (2009) Hydrodesulfurization of jet fuel by pre-saturated one-liquid-flow technology for mobile fuel cell applications. *Chemical Engineering Science*, 64, 288-293

Kraftstoffe	Energiedichten		Quelle/ Kette	Primärenergieverbrauch	CO ₂ -Emission
	MJ l ⁻¹	MJ kg ⁻¹		MJ MJ ⁻¹ _{Fuel}	gCO _{2eq.} MJ ⁻¹ _{Fuel}
Kerosin ¹	34,9	43,2	Rohöl	0,13	10,7
Hydriertes Pflanzenöl, NExBTL ⁴	34,4	44,0	Palmöl/ "hydrotreatment"	1,26	49,6 ¹
Fischer-Tropsch Mitteldestillat	34,3	44,0	Holz/ FT Synthesegas (2. Generation Biomasse)	1,19	4,8 ²
"Hydrocracked" Mitteldestillat	n.a.	n.a.	Rückstandsöle/ "hydrocracking"	n.a.	n.a.
Wasserstoff (LH ₂) ³	7	120	Erdgas/ Elektrolyse	1,28	132,8 ⁴
Wasserstoff (LH ₂)	7	120	Holzsanbau/ Vergasung	1,50	7,5 (6,6-21,2)

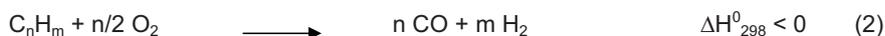
1) Methan-Emissionen aus Prozessabfällen, 2) Holzabfälle, 3) Flüssiger Wasserstoff gespeichert bei 0,5 MPa; 26K, 4) Transport durch eine Pipeline für Erdgas (4.000 km), n.a.) nicht angegeben

Tab. 13: Energiedichten, Primärenergieverbrauch und CO₂-Emissionen für verschiedene Energieträger nach einer „well-to-tank“ Analyse [57, 58, 59, 60, 61, 62]. Quellen: Primärenergieverbrauch und CO₂-Emissionen nach [57] außer (1) nach [61]; Energiedichten nach [57] außer (1) nach [61], (2, 3) nach [62]; (4) nach [59]

Tab. 13 zeigt die wichtigsten Stoffeigenschaften der Kraftstoffe, die derzeit im Luftfahrtbereich eingesetzt werden. Alternativ zum Jet A-1 sind Biokraftstoffe der 1. und 2. Generation und Flüssigwasserstoff zu finden. Daten für weitere Kraftstoffe sind in [48] dokumentiert.

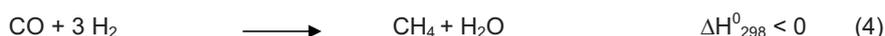
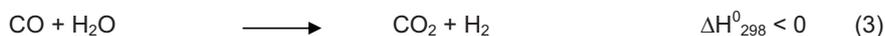
4.3.5 Experimentelle Erprobung von Komponenten der Brenngaserzeugung für Brennstoffzellensysteme im Flugzeug

Die folgenden Gleichungen beschreiben die chemischen Prozesse, die bei der katalytisch gestützten autothermen Reformierung (ATR) ablaufen.



-
- [57] Concawe: Well-to-Tank report Version 3.0 (2008)
- [58] Meinert, M.: Wasserstoff Speichertechnologien für Fahrzeuge (Hydrogen storage technologies for vehicles), presented at Seminar Wasserstoff und Brennstoffzellen im Automobil, Haus der Technik Essen, March 11, 2008, Essen
- [59] Aatola, H., Larmi, M., Sarjovaara, T., Mikkonen, S.: Hydrotreated Vegetable Oil (HVO) as a Renewable Diesel Fuel: Trade-off between NO_x, Particulate Emission, and Fuel Consumption of a Heavy Duty Engine. 2008 SAE International
- [60] Chevron Corporation: Alternative Jet Fuels, Addendum 1 to Aviation Fuels Technical Review (FTR-3/A1) (2006)
- [61] Wilson, C.: Environmental assessments/initiatives (life cycle assessment, air quality measurement; international initiatives). Presentation, Workshop on Aviation Alternative Fuels 2009
- [62] European Commission: Quantification of emissions from ships associated with ship movements between ports in the European Community. Final report, July 2002

Die notwendige Wärmemenge für die endotherme Dampfreformierung in Gleichung (1) wird bereitgestellt durch die exotherme partielle Oxidation der Kohlenwasserstoffe gemäß Gleichung (2). Simultan dazu finden die Wasser-Gas-Shift Reaktion (3) und die Methanisierung (4) statt.



Die sich aus diesen Reaktionsgleichungen ableitenden Reaktionsparameter sind das molare O_2/C -Verhältnis, das molare $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnis und der Massenstrom an Kerosin.

Für die im Folgenden dargestellten Experimente wurde der alternative Kraftstoff „Shell MDS Kerosene“ verwendet. Shell MDS Kerosene ist ein synthetischer Kraftstoff und wurde nach dem Gas-To-Liquid Prozess in Malaysia aus Erdgas hergestellt. Der GTL-Prozess beruht im Wesentlichen auf einer Fischer-Tropsch-Synthese. Die Fa. Shell setzt dieses Verfahren in Kooperation mit der Fa. Choren auch zur Herstellung von Bio-To-Liquid-Kraftstoffen ein. Beim BTL-Verfahren der Fa. Choren wird Holz in einem zweistufigen Verfahren vergast und nach einer entsprechenden Synthesegasreinigung dem Fischer-Tropsch-Prozess zugeführt. BTL-Kraftstoff konnte für die Versuchsdurchführung von der Fa. Choren nicht in den benötigten Mengen bezogen werden. GTL-Kraftstoff bietet sich jedoch auf Grund des vergleichbaren Herstellungsprozesses als idealer Ersatzkraftstoff an. Es kann davon ausgegangen werden, dass sich die Kraftstoffe aus den GTL- bzw. BTL-Prozessen nicht signifikant voneinander unterscheiden. Die nachfolgend dargestellten Experimente wurden unter Verwendung des autothermen Reformers ATR 9.1 mit einer thermischen Leistung von ca. 20 kW durchgeführt.

Zur Charakterisierung des ATR 9.1 wurde ein statistischer Versuchsplan bestehend aus 11 Einzelexperimenten abgearbeitet, bei dem das molare O_2/C -Verhältnis zwischen 0,43 und 0,47, das molare $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnis zwischen 1,7 und 1,9 und der Massenstrom an Kerosin zwischen 1.215 g/h und 2.025 g/h variiert wurde. Dabei wurde der Einfluss dieser Reaktionsparameter auf charakteristische Versuchsgrößen wie die sich einstellenden Temperaturen im Katalysator, die Konzentrationen der Reaktionsprodukte im Reformat oder den Wirkungsgrad der Reformierung untersucht. Exemplarisch werden einige diese Abhängigkeiten im Folgenden dargestellt und beschrieben.

In Abb. 138 ist der Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisses auf die Temperatur im Katalysator des ATR 9.1 nach 5 mm bei einem Kerosinmassenstrom von 2.025 g/h (100 % Last des Reformers) zu sehen. In Experimenten mit früheren Reformergenerationen hatte sich gezeigt, dass wegen der sehr schnellen Kinetik der exothermen partiellen Oxidation der Kohlenwasserstoffe nach Gleichung (2) bereits nach wenigen Millimetern in axialer Richtung des Katalysators hohe Reaktionstemperaturen zu erwarten sind. Abb. 138 zeigt, dass auch bei der Erprobung des ATR 9.1 hohe Temperaturen von zum Teil mehr als 1.000 °C im oberen Teil des Katalysators beobachtet wurden. Die Reaktionstemperaturen waren umso höher, je größer das molare O_2/C -Verhältnis und je niedriger das molare $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnis waren. Die maximale Temperatur betrug 1.025 °C. Höhere Sauerstoffpartialdrücke begünstigten offenbar die exotherme partielle Oxidation der Kohlenwasserstoffe, wodurch die Katalysatortemperatur anstieg. Durch niedrigere molare $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisse verringerte sich der Anteil der endothermen Dampfreformierung am gesamten Reaktionsablauf, wodurch die Temperaturen im Katalysator ebenfalls anstiegen. Außerdem wurde im Fall von geringeren

molaren $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnissen der durch die Heizpatrone eingebrachte Enthalpiestrom in den Reformer herabgesetzt.

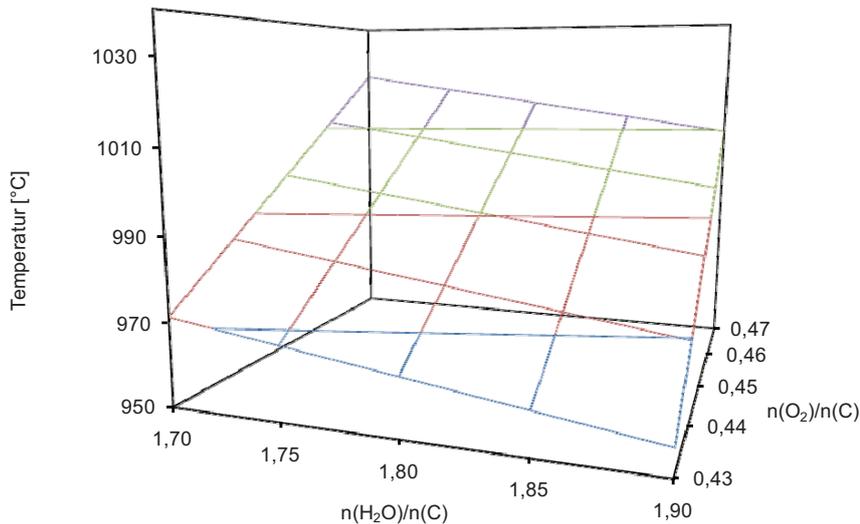


Abb. 138: Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisses auf die Temperatur im Katalysator des ATR 9.1 nach 5 mm bei einem Kerosinmassenstrom von 2025 g/h (100 % Last des Reformers)

Abb. 138 zeigt den Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisses auf die Konzentration an Wasserstoff im Reformat bei einem Kerosinmassenstrom von 2.025 g/h (100 % Last des Reformers). Es wird deutlich, dass die Wasserstoffkonzentration im Reformat des ATR 9.1 signifikant durch das molare O_2/C -Verhältnis beeinflusst wurde. Die Wasserstoffkonzentration betrug gemittelt ca. 37,5 vol.-% bei einem molaren O_2/C -Verhältnis von 0,47 und erhöhte sich auf gemittelt 39,0 vol.-% bei einem molaren O_2/C -Verhältnis von 0,43. Diese Tendenz erklärt sich durch die Verdünnung des Reformats mit Stickstoff bei hohem molarem O_2/C -Verhältnis. Der Einfluss des molaren $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisses in Abb. 139 ist nicht so ausgeprägt. Höhere molare $\text{H}_2\text{O}/\text{C}$ -Verhältnisse resultierten in höheren Wasserstoffkonzentrationen und umgekehrt. Dieser Trend entsteht dadurch, dass bei höheren Partialdrücken an Wasser die endotherme Dampfreformierung gemäß Gleichung (1) in stärkerem Ausmaß ablaufen konnte als bei niedrigeren Wasserpartialdrücken. Mehr Wassermoleküle reagierten mit den Kohlenwasserstoffmolekülen und trugen somit verstärkt zum Molenstrom an Wasserstoff bei. Dadurch stieg die Wasserstoffkonzentration. Auch die Wasser-Gas-Shift Reaktion nach Gleichung (3) wurde durch einen höheren Partialdruck an Wasser begünstigt. Auch dies wirkte sich positiv auf die Wasserstoffkonzentration im Reformat aus.

Die beschriebenen Experimente haben gezeigt, dass sich GTL-Kerosin mit dem ATR 9.1 sehr gut umsetzen lässt. In allen 11 Experimenten, die den statistischen Versuchsplan bildeten, betrug der Kohlenwasserstoffumsatz nahezu 100 %. Die Konzentrationen an organischem Kohlenstoff (TOC) in den wässrigen Kondensatproben der einzelnen Versuche lagen im Bereich zwischen 1 mg/l und 1,5 mg/l. Das ist weniger als in voll entsalztem Wasser gefunden wird (2 mg/l).

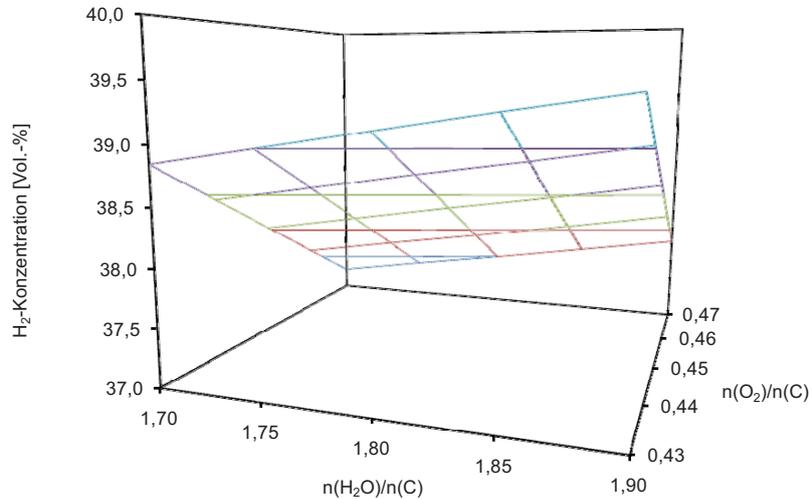


Abb. 139: Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren H_2O/C -Verhältnisses auf die Konzentration an Wasserstoff im Reformat des ATR 9.1 bei einem Kerosinmassenstrom von 2025 g/h (100 % Last des Reformers)

Als potenziell kritisch haben sich bei den 11 Experimenten die Temperaturen in der unteren Mischkammer des ATR 9.1 erwiesen. Dort betrug die Temperatur zwischen 300 °C und 325 °C (nicht gezeigt in den Abbildungen). Für den synthetischen GTL-Kraftstoff, dessen Siedebereich bei 200 °C endet, sind diese Temperaturen sicher ausreichend hoch. Werden dem synthetischen GTL-Kraftstoff im Fall einer Anwendung im Flugzeug jedoch noch höher siedende, aromatische Bestandteile zugemischt, um beispielsweise den Wert für die Dichte in der Kraftstoffspezifikation einhalten zu können, könnten diese Temperaturen jedoch zu niedrig sein.

CFD-Simulationen der Mischkammer des Reformers der nächsten Reformergeneration ATR 9.2 zielten daher darauf ab, eine homogene, leicht exotherme Vorreaktion des Kraftstoffes mit dem Sauerstoff in der Mischkammer des Reformers zu begünstigen, die sich wegen der daraus resultierenden Temperaturerhöhung günstig auf die angestrebte, vollständige Verdampfung des Kraftstoffes auswirkt. Die Vorreaktion wird bei Einsatz von synthetischen Kraftstoffen erleichtert, da diese aus vergleichsweise leicht siedenden Komponenten bestehen, die eher dazu tendieren, eine homogene Vorreaktion mit dem Sauerstoff in der Mischkammer einzugehen.

Auch für die experimentelle Erprobung des ATR 9.2, der über eine thermische Leistung von 28 kW verfügt, wurde ein statistischer Versuchsplan mit 11 Einzelexperimenten eingesetzt. Erneut wurde das molare O_2/C -Verhältnis zwischen 0,43 und 0,47, das molare H_2O/C -Verhältnis zwischen 1,7 und 1,9 und der Massenstrom an Kerosin zwischen 1.620 g/h und 2.700 g/h variiert. Dabei wurde wiederum der Einfluss dieser Reaktionsparameter auf charakteristische Versuchsgrößen wie die sich einstellenden Temperaturen im Reaktor, die Konzentrationen der Reaktionsprodukte im Reformat oder den Wirkungsgrad der Reformierung untersucht. Im Fall des ATR 9.2 wurde während der Versuche besonderes Augenmerk darauf gelegt, ob sich

eine homogene Vorreaktion einstellte und welchen Einfluss unterschiedliche Reaktionsparameter auf diese Reaktion hatten.

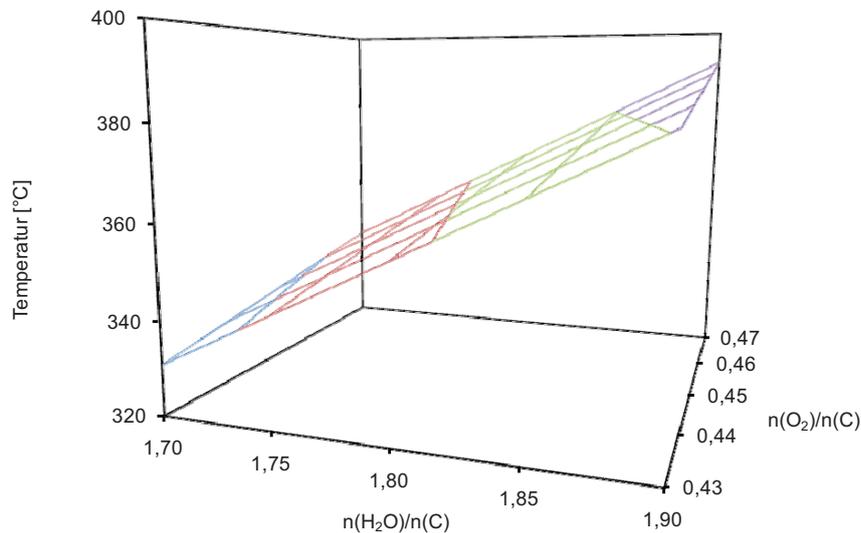


Abb. 140: Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren H_2O/C -Verhältnisses auf die Temperatur in der unteren Mischkammer des ATR 9.2 bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h (100 % Last)

Abb. 140 zeigt den Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren H_2O/C -Verhältnisses auf die Temperatur in der unteren Mischkammer des ATR 9.2 bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h. Es wird deutlich, dass sich in der Mischkammer des ATR 9.2 anders als beim ATR 9.1 bei höherem Wasserpartialdruck eine leichte Vorreaktion des Sauerstoffs mit den Kohlenwasserstoffen im GTL-Kerosin einstellte. Die Temperatur stieg signifikant von ca. 330 °C auf ca. 380 °C an. Erklärt werden kann diese Beobachtung dadurch, dass bei höherem Wasserpartialdruck im Eduktgas auch ein höherer Enthalpiestrom in den Reaktor eingetragen wird. Die verringerte hydrodynamische Verweilzeit der Reaktanten bei höherem H_2O/C -Verhältnis machte sich nicht negativ auf die Vorreaktion bemerkbar. Der Einfluss des O_2/C -Verhältnisses auf die Temperatur in der Mischkammer war sehr gering. Auch hier spielten unterschiedliche Verweilzeiten keine Rolle.

Abb. 141 ist der Einfluss des molaren O_2/C - und des molaren H_2O/C -Verhältnisses auf die Temperatur im Katalysator des ATR 9.2 nach 5 mm bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h zu sehen. Ähnlich wie beim ATR 9.1 waren die Temperaturen stark abhängig vom Sauerstoffpartialdruck. Höhere Konzentrationen an Sauerstoff begünstigten die katalytisch unterstützte partielle Oxidation der Kohlenwasserstoffe nach Gleichung (2) stark, während das molare H_2O/C -Verhältnis kaum einen Einfluss auf die Temperatur im Monolithen nach 5 mm hatte. Auffälliger Unterschied zu den Experimenten mit dem ATR 9.1 ist das Temperaturniveau. Variierte die Temperatur im ATR 9.1 je nach Versuchsbedingung zwischen 950 °C und 1025 °C, lag der Temperaturbereich beim ATR 9.2 bei gleichen Versuchsbedingungen zwischen 820 °C und 880 °C. Es ist zu erwarten, dass sich dieses deutlich niedrigere Tempe-

raterniveau positiv auf die Langzeitstabilität des Katalysators im ATR 9.2 auswirken wird. Das Sintern der Katalysatorpartikel wird dadurch unterdrückt.

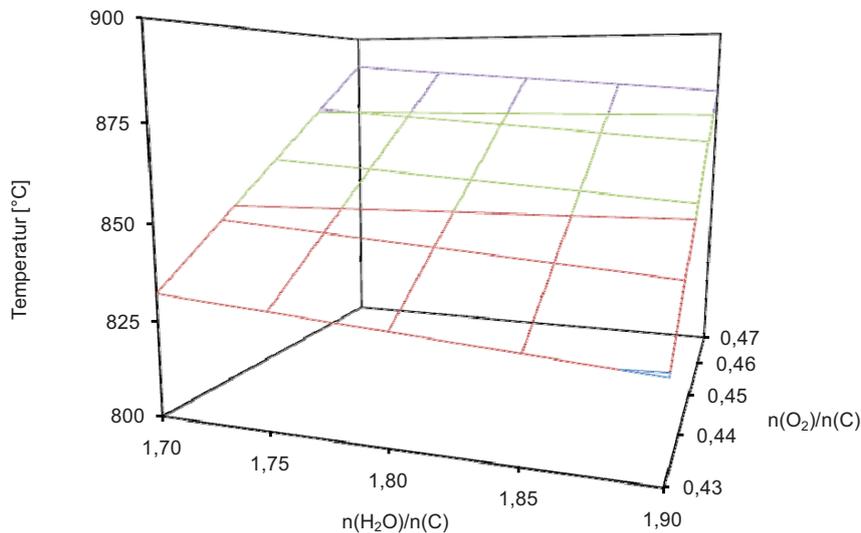


Abb. 141: Einfluss des molaren O₂/C- und des molaren H₂O/C-Verhältnisses auf die Temperatur im Katalysator des ATR 9.2 nach 5 mm bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h (100 % Last)

Da sich die Abhängigkeiten der Wasserstoffkonzentration von den Reaktionsparametern im Reformat des ATR 9.2 sehr ähnlich verhielten wie im Fall des ATR 9.1, werden sie an dieser Stelle nicht wiederholt. Stattdessen werden die Einflüsse des molaren O₂/C- und des molaren H₂O/C-Verhältnisses auf die Konzentration an Methan im Reformat des ATR 9.2 bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h (100 % Last) beschrieben und diskutiert. Sie sind in Abb. 142 zu sehen. Es ist ein starker Einfluss des Sauerstoffpartialdrucks auf die Methankonzentration im Reformat zu erkennen. Bei einem molaren O₂/C-Verhältnis von 0,47 betrug die Methankonzentration ca. 0,5 vol.-%. Sie stieg auf Werte von ca. ,3 – 1,4 vol.-% bei einem molaren O₂/C-Verhältnis von 0,43. Ursache für diese Abhängigkeit sind die Temperaturen im Katalysator des ATR 9.2, die wie in Abb. 141 beschrieben ebenfalls stark variierten je nach Sauerstoffpartialdruck im Eduktstrom (820 °C – 880 °C). Höhere Sauerstoffpartialdrücke führten zu höheren Temperaturen im Katalysator, wodurch das thermodynamische Gleichgewicht der Methanisierung nach Gleichung (4) verstärkt auf die Seite der Edukte verschoben wurde. Höhere Sauerstoffpartialdrücke bewirkten im ATR 9.2 demnach vergleichsweise niedrige Molenströme an Methan und gleichzeitig höhere Molenströme an Wasserstoff. Dadurch verbesserte sich auch der Wirkungsgrad des Reformierungsprozesses. Hohe Methankonzentrationen im Reformat sind auch deswegen von Nachteil, weil Methan im Katalytbrenner des Fuel-Processing-Systems verbrannt werden muss und nicht in die Atmosphäre abgegeben werden darf. Methan ist jedoch ein sehr stabiles Molekül. Seine umzusetzende Menge ist maßgeblich für die Auslegung des Katalysators des katalytischen Brenners und sollte Werte von mehr als 1,0 vol.-% nicht überschreiten. Deswegen sind niedrige Sauerstoffpartialdrücke

im Eduktstrom des ATR ungeeignet für ein Fuel-Processing-System. Der Einfluss des Partialdrucks an Wasser in Abb. 142 auf die Methankonzentration war vernachlässigbar.

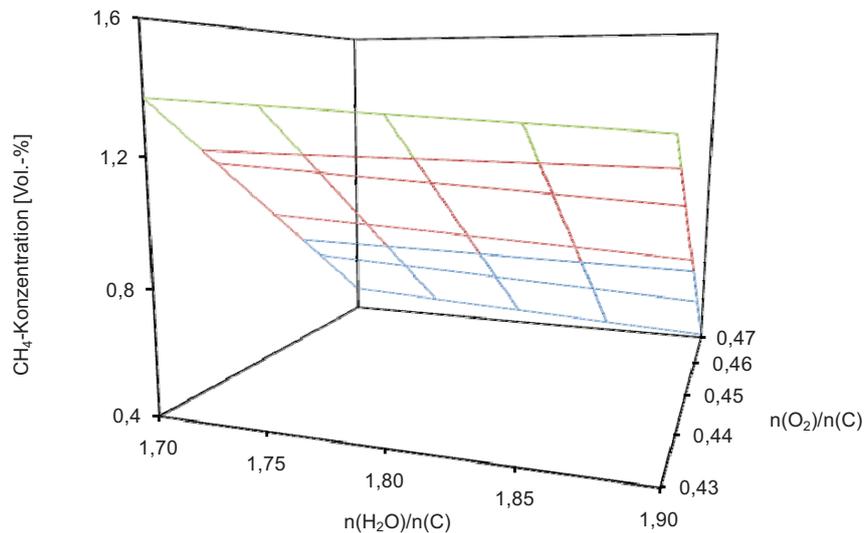


Abb. 142: Einfluss des molaren O₂/C- und des molaren H₂O/C-Verhältnisses auf die Konzentration an Methan im Reformat des ATR 9.2 bei einem Kerosinmassenstrom von 2.700 g/h (100 % load)

Zur weiteren experimentellen Erprobung des ATR 9.2 wurde ein Lastwechselfersuch bei einem molaren O₂/C-Verhältnis von 0,47 und einem molaren H₂O/C-Verhältnis von 1,9 durchgeführt. Dabei wurden ca. 40 aufeinander folgende Zyklen absolviert. In jedem Zyklus wurden 16 unterschiedliche Lastpunkte zwischen 60 % und 100 % eingestellt. Das entspricht Kerosinmassenströmen zwischen 1.620 g/h und 2.700 g/h. Die Verweildauer an den einzelnen Lastpunkten variierte zwischen 2 und 10 Minuten. Das gesamte Experiment dauerte etwa 70 h. Abb. 143 zeigt die sich bei diesem Experiment einstellenden Temperaturen in der unteren Mischkammer des ATR 9.2 sowie im monolithischen Katalysator nach 5 mm und 140 mm in axialer Richtung. Es ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nur das Zeitintervall zwischen 30 h und 40 h dargestellt. In Abhängigkeit von den einzelnen Lastpunkten variierte die Temperatur in der unteren Mischkammer zwischen 370 °C und 410 °C, während die Temperatur im Katalysator nach 5 mm zwischen 790 °C und 880 °C schwankte. Demnach stellte sich während des gesamten Lastwechselfexperimentes eine leichte Vorreaktion ein. Die Temperatur im Monolithen nach 140 mm in axialer Richtung war trotz der Lastwechsel sehr konstant und betrug zwischen 680 °C und 685 °C.

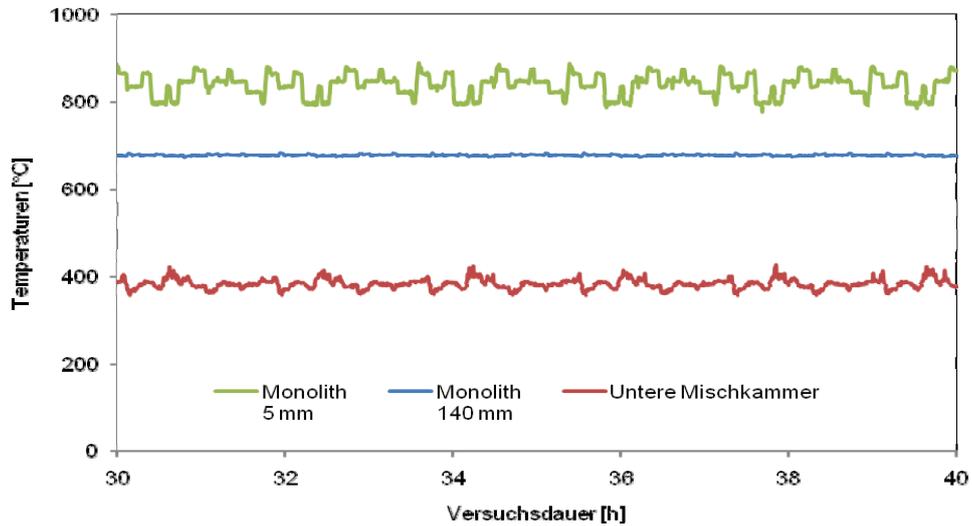


Abb. 143: Temperaturen im Monolithen und in der Mischkammer während eines Lastwechsel-experiments mit dem ATR 9.2 bei einem molaren O_2/C -Verhältnis von 0,47 und einem molaren H_2O/C -Verhältnis von 1,9

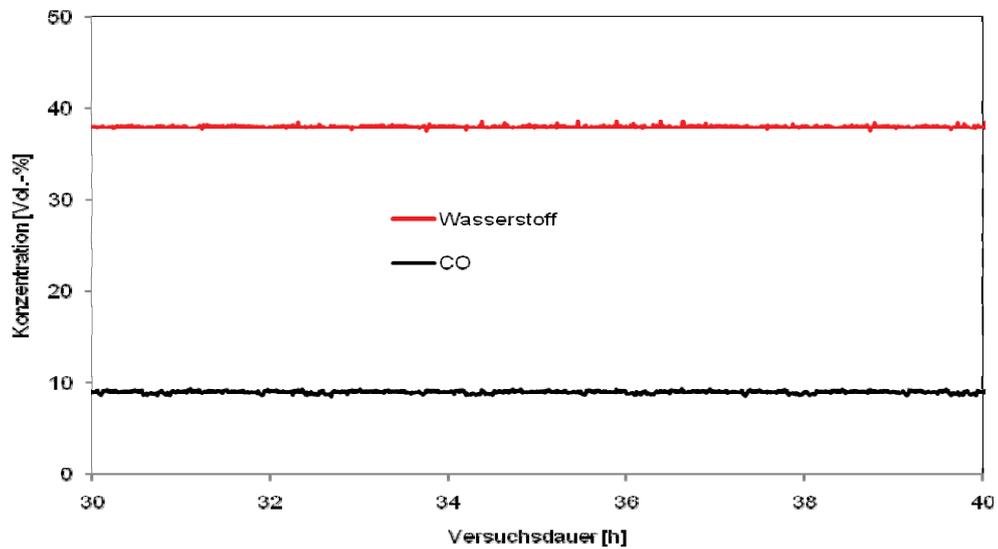


Abb. 144: Konzentrationen an Wasserstoff und Kohlenmonoxid während eines Lastwechsel-experiments mit dem ATR 9.2 bei einem molaren O_2/C -Verhältnis von 0,47 und einem molaren H_2O/C -Verhältnis von 1,9

Die im unteren Bereich des Katalysators ablaufende Dampfreformierung der Kohlenwasserstoffe nach Gleichung (1) dämpft offenbar die im oberen Bereich des Katalysators entstehenden Temperaturschwankungen.

In Abb. 144 sind die Konzentrationen an Kohlenmonoxid und Wasserstoff im gleichen Zeitintervall des Lastwechselexperimentes aufgetragen. Beide Konzentrationen wurden durch die Lastwechsel kaum beeinflusst. Sie betragen ca. 38,2 vol.-% im Fall des Wasserstoffs und 9,1 vol.-% beim Kohlenmonoxid. Eine Desaktivierung des Katalysators durch die immer wieder kehrenden Lastwechsel konnte auch über die gesamte Versuchsdauer von 70 h nicht beobachtet werden (nicht gezeigt).

Aus den Ergebnissen, die mit dem ATR 9.2 gewonnen wurden, lassen sich die folgenden Schlussfolgerungen ziehen:

- GTL-Kerosin kann auch mit dem ATR 9.2 sehr gut umgesetzt werden. In allen 11 Experimenten, die den statistischen Versuchsplan bildeten, betrug der Kohlenwasserstoffumsatz nahezu 100 %. Die Konzentrationen an organischem Kohlenstoff (TOC) in den wässrigen Kondensatproben der einzelnen Versuche lagen im Bereich zwischen 10 mg/l und 20 mg/l. Das ist geringfügig mehr als in voll entsalztem Wasser gefunden wird (2 mg/l). Bei Volllast betrug die thermische Leistung des ATR 9.2 27,9 kW bei einem Wirkungsgrad für die autotherme Reformierung von 86,1 %
- Das Temperaturniveau im Katalysator des ATR 9.2 lag niedriger als in älteren Reformergenerationen. Bei Volllast betrug die Temperatur nach 5 mm in axialer Richtung zwischen 820 °C und 880 °C. Dies wird sich positiv auf die Langzeitstabilität des Katalysators im ATR 9.2 auswirken
- In der Mischkammer des ATR 9.2 bildete sich unter bestimmten Reaktionsbedingungen eine leicht exotherme Vorreaktion zwischen dem Sauerstoff und den Kohlenwasserstoffen aus, deren zusätzliche Enthalpie die Verdampfung auch von höher siedenden Komponenten im Kraftstoff erleichtert. Bei Volllast muss für das molare H_2O/C -Verhältnis ein Wert von 1,9 eingestellt werden. Ansonsten stellt sich keine Vorreaktion ein
- Niedrige O_2/C -Verhältnisse von 0,43 sind von Nachteil, weil sie die Bildung von Methan im Reformat fördern. Je mehr Methan gebildet wird, desto niedriger ist der Wirkungsgrad der Reformierung und desto größer muss der Katalysator im katalytischen Brenner dimensioniert werden
- Optimale Betriebsbedingungen für den ATR 9.2 sind ein molares O_2/C -Verhältnis von 0,47 und ein molares H_2O/C -Verhältnis von 1,9. Das Lastwechselexperiment hat gezeigt, dass der ATR 9.2 unter diesen Bedingungen problemlos zwischen 60 % und 100 % Last betrieben werden kann

Im Folgenden werden Ergebnisse dargestellt und beschrieben, die bei einer Koppelung des ATR 8 mit dem Wasser-Gas-Shift Reaktor der dritten Generation (WGS 3) unter Verwendung des alternativen GTL-Kerosins erzielt wurden. Beide Reaktoren haben eine thermische Leistung von ca. 12 kW. Der autotherme Reformier ATR 8 hatte in diesem Experiment die Funktion, das Eduktgasgemisch für die Erprobung des Wasser-Gas-Shift Reaktors zur Verfügung zu stellen. Als Reaktionsparameter wurden Werte gewählt, die sich in voran gegangenen Experimenten, u.a. mit den Reaktoren ATR 9.1 und ATR 9.2, als am besten geeignet erwiesen hatten, i.e. ein molares O_2/C -Verhältnis von 0,47, ein molares H_2O/C -Verhältnis von 1,9 bei 80 % Last des Reformers. Der ATR 8 wurde in diesem Experiment so betrieben, dass

sein Produktgas eine Temperatur von 400 °C aufwies. Diese Temperatur ist ideal als Eintrittstemperatur in den Hoch-Temperatur-Teil (HTS) des Wasser-Gas-Shift Reaktors. Frühere Experimente haben gezeigt, dass bei dieser Temperatur die WGS-Reaktion bei einer Raumgeschwindigkeit von 90.000 h^{-1} mit ausreichend schneller Kinetik das thermodynamische Gleichgewicht erreicht. Tab. 14 listet die Konzentrationen der wesentlichen Komponenten auf, die das Reformat des ATR 8 vor Eintritt in die HTS-Stufe des WGS 3 enthielt.

Komponente	Konzentration [vol.-%]
Wasserstoff	29,8
Kohlenmonoxid	7,2
Kohlendioxid	9,4
Stickstoff	30,7
Argon	0,5
Wasser	22,3
Methan	0,1

Tab. 14: Konzentrationen der Komponenten im Reformat des ATR 8

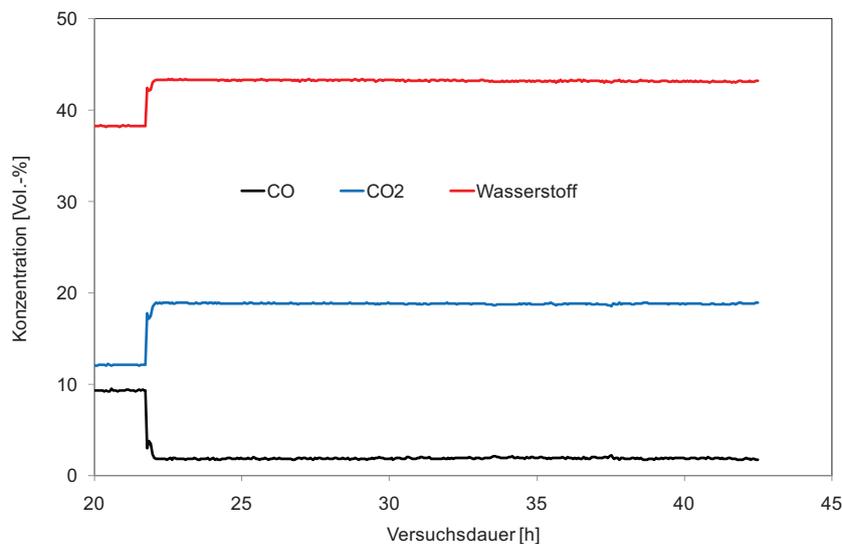


Abb. 145: Verlauf der CO-, CO₂- und H₂-Konzentration im trockenen Reformat während des Experimentes zum Test des WGS 3 in Kombination mit dem ATR 8

In Abb. 145 ist der Verlauf der CO-, CO₂- und H₂-Konzentration im trockenen Reformat dargestellt, der sich während des Tests des WGS 3 ergab. Es wird deutlich, dass die CO-Konzentration von anfänglich 9,3 vol.-% (das entspricht 7,2 vol.-% im feuchten Reformat, vgl. Tab. 14) auf ca. 1,8 vol.-% abfiel, nachdem das Reformat in den WGS 3 geleitet worden war. Gleichzeitig stiegen die Konzentrationen der beiden Produkte der WGS-Reaktion nach Gleich-

chung (3) CO_2 und H_2 von 12,1 vol.-% (9,4 vol.-% im feuchten Reformat) auf 18,8 vol.-% bzw. von 38,3 vol.-% (29,8 vol.-% im feuchten Reformat) auf 43,3 vol.-%. Die Konzentrationen der einzelnen Komponenten blieben während der Versuchsdauer von ca. 20 h konstant. Eine Desaktivierung der Katalysatoren in den beiden WGS-Stufen konnte nicht beobachtet werden.

Wird der mit dem Massenspektrometer gemessene Wert für CO von 1,8 vol.-% auf das feuchte Reformat bezogen, ergibt sich eine CO-Ausgangskonzentration von 1,4 vol.-%. Der CO-Umsatz, errechnet über die angegebenen, vom Massenspektrometer gemessenen Konzentrationen und die Volumenströme am Ein- und Austritt des WGS-3, betrug 78 %. Wird der CO-Umsatz jedoch über den Molenstrom an Wasser errechnet, der im Verlauf der Reaktion abreagierte, ergibt sich ein Umsatz an CO von 86 %. Die daraus errechnete Konzentration von CO im feuchten Reformat beträgt dann nur noch 0,9 vol.-%.

Dieses Ergebnis bedeutet, dass unter Verwendung des WGS 3 der Zielwert für die CO-Konzentration im feuchten Reformat von 1,0 vol.-% unterschritten wurde. Die in Kürze stattfindenden Tests unter Kombination des ATR 9.2 mit dem WGS 4 werden zeigen, ob dies unter Verwendung des GTL-Kerosins auch in der Leistungsklasse $28 \text{ kW}_{\text{th}}$ gelingen wird. Zusätzliche Informationen zu den Ergebnissen für die Kopplung ATR-WGS findet man im Abschnitt Brenngaserzeugung.

5 Ausblick auf neue FuE-Vorhaben

5.1 Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiativen in der Helmholtz-Gemeinschaft

Im Rahmen der zweiten Begutachtung des Forschungsbereichs Energie 2009 wurde von den beteiligten Zentren „Wasserstoff“ als übergreifendes Thema hervorgehoben und für die Finanzierung aus dem Prämienbudget vorgeschlagen. „Wasserstoff“ umfasst nach dem gemeinsamen Verständnis sowohl die Herstellung, die Speicherung, den Transport, Sicherheitsuntersuchungen als auch die energetische Verwendung von Wasserstoff. Damit sollten die Aktivitäten auf diesem Gebiet gestärkt und zusammenfassend dargestellt, durch neue Aktivitäten ergänzt und die Rolle der Helmholtz-Gemeinschaft bei diesem Thema definiert werden. Die Zentren haben in den einzelnen Programmanträgen Aktivitäten beantragt, die entweder neu gestartet oder aus laufenden Arbeiten gestärkt werden sollten. Beteiligt haben sich an diesem ersten Schritt die Zentren, die an den Programmen „Erneuerbare Energien“, „Rationelle Energieumwandlung und -nutzung“ sowie „Nukleare Sicherheitsforschung“ beteiligt sind.

Von den Gutachtern der Programme wurden die im Rahmen der beschriebenen Wasserstoffinitiative beantragten Aktivitäten positiv beurteilt und zur Finanzierung und Durchführung empfohlen. Im Zuge der weiteren Diskussion insbesondere in der Helmholtz-Senatskommission wurde angeregt, die Wasserstoffinitiative auf das übergeordnete Thema „Energiespeicher“ zu erweitern. Die bereits eingebrachten Wasserstoffaktivitäten sollten als eine Form der chemischen Energiespeicherung Teil der neuen umfassenderen „Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiative (EWI)“ sein. Die Finanzierung der Initiative während der zweiten Phase der programmorientierten Förderung wurde aus dem Prämienbudget bestritten. Um seine führende Rolle in Deutschland beim Thema Energiespeicher und Wasserstoff zu unterstreichen beteiligt der Forschungsbereich Energie der Helmholtz-Gemeinschaft zahlreiche, beitragsfähige Zentren an der Initiative. Darunter befinden sich:

- Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR)
- Forschungszentrum Jülich (FZJ)
- Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie (HZB)
- Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung (UFZ)
- Helmholtz-Zentrum Potsdam, Deutsches GeoForschungsZentrum (GFZ)
- Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
- Max-Planck-Institut für Plasmaphysik (IPP).

Da das Thema Energiespeicherung einen querschnittlichen und interdisziplinären Charakter hat und damit alle Speicheraktivitäten der Helmholtz-Gemeinschaft zusammenfassend dargestellt werden können, sind weiterhin die Helmholtz-Zentren:

- Forschungszentrum Geesthacht (HZG)

sowie das Mitglied der Leibniz-Gemeinschaft

- Forschungszentrum Dresden Rossendorf (FZD)

in EWI eingebunden und mit Themenvorschlägen vertreten. Das Forschungszentrum Dresden Rossendorf ist ab 01.01.2011 Mitglied der Helmholtz-Gemeinschaft.

Um den Anforderungen der nachhaltigen Mobilität sowie der auf Netzstabilität angewiesenen Stromversorgung Rechnung zu tragen, bedarf es leistungsfähiger und kostengünstiger elektrochemischer Energiespeichersysteme. Der Lithiumionen-Technologie kommt hier eine

Schlüsselrolle zu. Ein umfassendes Verständnis der elektrochemischen Prozesse ist die Voraussetzung für die Entwicklung der nächsten und übernächsten Generation an Lithiumionen-Batterien. Diese Entwicklung erfordert einen erheblichen Ausbau der Forschungsaktivitäten im Bereich Elektrochemie für Energiespeicher und insbesondere ein abgestimmtes Vorgehen innerhalb der Helmholtz-Gemeinschaft. Die sechs beteiligten Helmholtz-Zentren – KIT, FZJ, DLR, HZG, HZB und FZD - der Helmholtz-Initiative für mobile/stationäre Energiespeichersysteme bringen durch die laufenden und vergangenen Forschungsarbeiten auf anderen Feldern, wie Materialforschung, Prozessentwicklung und Brennstoffzellen, die grundlegenden und für einen schnellen Fortschritt notwendigen Kenntnisse für die Entwicklung der Lithiumionen-Batterietechnologie mit. Um sich auf Forschungsfeld der elektrochemischen Speicher als leistungsstarker Forschungsverbund zu etablieren, bündelt die Helmholtz-Gemeinschaft gezielt Kompetenzen aus den Forschungsbereichen Energie, Schlüsseltechnologie sowie Struktur der Materie und wird diese Aktivitäten konsequent zu einem neuen Programmthema ausbauen.

Initiative	Wasserstoff	Energiespeicher
Laufzeit	1.2010 – 12.2014	1.2011 – 12.2014
Beteiligte HGF-Zentren	FZJ, KIT, DLR	KIT, FZJ, DLR, HZG, HZB, FZD
Ausrichtung	H ₂ -Systemlösungen	Feststoffbatterien
Koordination	REUN-Programmsprecher	KIT
Gesamtzuwendung [k€]	4.940	12.000
FZJ-Anteil [k€]	2.072 (42 %)	2.230 (19 %)
IEK-3-Anteil [k€]	2.072	613
Kostenart	100 % frei	100 % Personal

Tab. 15: Detailübersicht der HGF Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiativen

Tab. 15 zeigt die wichtigsten Daten zu beiden Initiativen im Überblick. Es ist vorgesehen, die Forschungsthemen zu Batterien und Elektrolyseuren durch zusätzliche HGF-Fördermittel zu flankieren. So soll im Rahmen eines Portfoliothemas „Elektrochemische Speicher im System“ und einer Helmholtz-Energie-Allianz „Stationäre elektrochemische Feststoff-Speicher und Wandler“ die Zusammenarbeit zwischen Helmholtz-Zentren und Universitäten über viereinhalb bzw. drei Jahre vertieft werden.

5.1.1 Motivation

In fast allen Bereichen der Energietechnik lässt sich durch Speicherung von Energie der Energieverbrauch erheblich senken und viele sinnvolle Prozessoptimierungen werden durch den Einsatz von Speichern überhaupt erst möglich. Beispiele sind die Wärmerückgewinnung und Zwischenspeicherung bei industriellen Prozessen, die Entkopplung von Energieangebot und Energienachfrage bei erneuerbaren Energien wie Wind oder Sonne durch Stromspeicher,

die Speicherung von thermischer Energie zur Optimierung des Kraftwerkseinsatzes in Netzen oder auch zur Speicherung von Energie in Fahrzeugen in Batterien oder in Form synthetischer Brennstoffe. Energiespeicher sind demnach zentrale Komponenten für eine nachhaltige Energiewirtschaft, die für alle drei Handlungsstränge der Energiepolitik relevant sind:

- Verringerung des Endenergieverbrauches,
- Steigerung der Energieumwandlungs- und -bereitstellungseffizienz und
- Erhöhung des Anteils erneuerbarer Energie im Energiemix.

In der Vergangenheit wurde die Entwicklung von Energiespeichern kaum vorangetrieben. Nennenswerte Fortschritte gab es einzig für die Speicherung von Niedertemperaturwärme aus Solarkollektoren sowie die grundsätzliche Entwicklung von Sicherheitssystemen für den Umgang mit Wasserstoff in der Kerntechnik und der chemischen Industrie. In allen anderen Bereichen müssen neue technologische Ansätze entwickelt und neue Forschungskapazitäten aufgebaut werden. Hierzu sollen im Rahmen der EWI die vorhandenen und sich neu entwickelnden Aktivitäten gebündelt und abgestimmt werden. Die beteiligten Helmholtz-Zentren wollen auf den verschiedenen Gebieten der Energiespeicherung thematisch fokussiert, arbeitsteilig und kooperativ zusammenarbeiten und hierbei weitere Partner aus der Wissenschaft und der Industrie einbeziehen. Dabei sollen die großen Aufgaben in interdisziplinären Teams bearbeitet und die erforderliche Infrastruktur aufgebaut werden.

Grundsätzlich lassen sich Energiespeicher in vier Kategorien einteilen:

- Thermische Energiespeicher,
- Elektrische bzw. elektrochemische Energiespeicher,
- Chemische Energiespeicher,
- Mechanische Energiespeicher.

In allen Fällen - bis auf die mechanischen Speicher - müssen völlig neue Konzepte und Materialien untersucht werden. Die Arbeiten reichen von stark grundlagenorientierten Aspekten bis hin zur Anwendung und erfordern die Zusammenarbeit verschiedenster wissenschaftlicher Disziplinen.

5.1.2 Ausgangslage und vorhandene Kompetenzen

Obwohl das Thema Energiespeicherung und Wasserstoff bisher nur in wenigen Teilbereichen im Rahmen der Helmholtz-Programme direkt adressiert wurde, liegen bereits vielfältige Kompetenzen vor. Die chemische Speicherung wurde in vielfältiger Weise bereits in mehreren Helmholtz-Zentren bearbeitet, insbesondere im Zusammenhang mit Wasserstoff. Die Aktivitäten reichen hier von unterschiedlichsten Prozessen zur Wasserstoffherzeugung, Wasserstoffspeicherung über Wasserstoffnutzung bis zu Fragen der Wasserstoffsicherheit. Die Infrastruktur für diese Arbeiten wurde im Wesentlichen im Rahmen verschiedener Projekte aufgebaut. Elektrochemische Speicher (Batterien) wurden bisher nicht als prioritäres Thema bearbeitet, allerdings stehen aus dem Bereich der Brennstoffzellen und der Materialforschung erhebliche Kompetenzen zur Entwicklung von Batterien zur Verfügung. Im Rahmen des Konjunkturpakets II wurde in einer gemeinsamen Infrastrukturinitiative von Helmholtz-Zentren und Partnern umfangreiche Infrastruktur aufgebaut. Für den Batterieverbund Süd und den Batterieverbund Nord wurden vom BMBF insgesamt 30 Mio. € für Investitionen zur Verfügung gestellt

und umgesetzt. Thermische Energiespeicher werden seit einigen Jahren bearbeitet, wobei der Fokus auf neuen Konzepten für Hochtemperaturspeicher liegt. Auch hier wurde umfangreiche Infrastruktur mit großen Testständen aufgebaut.

Im Sinne des Leitbildes des Forschungsbereichs Energie wird in den HGF-Zentren an technischen Ansätzen zur Verbesserung bekannter und Entwicklung neuer Systeme zur Umwandlung und Speicherung von Energie unter Erfüllung der Anforderungen nach Umweltverträglichkeit, Sicherheit, Wirtschaftlichkeit und Ressourcenschonung interdisziplinär gearbeitet. Mit diesen Vorgaben erforscht und entwickelt das IEK-3 Energiewandler auf Grundlage der Kompetenzfelder Verfahrens- und Systemanalyse, physikochemische Analytik, Modellierung und Simulation, Elektrochemie, Fertigungstechnik sowie Verfahrens- und Systemtechnik.

Die regenerative H₂-Erzeugung im Maßstab knapp unter ein Kubikmeter pro Stunde bis mehrere tausend Kubikmeter pro Stunde stellt eine große Herausforderung im Hinblick auf die Erüchtigung entsprechender Elektrolyseure dar. Schon vor der PoF-I wurden im IEK-3 die Kernkomponenten für die fortschrittliche Wasserelektrolyse mit alkalischem Elektrolyt und die damit bestückten Prototypen für einen Betrieb bis zu 120 bar erforscht, entwickelt und verifiziert. Um diese Aktivitäten, die 2002 abgeschlossen wurden, wieder aufzunehmen und mit einer den derzeitigen Anforderungen angepassten Ausrichtung fortzusetzen, werden die bereitgestellten EWI-Mittel eingesetzt und darüber hinaus gehende, unbedingt erforderliche Mittel akquiriert.

5.2 Wasserstoff-Systemlösungen

Eingehende Betrachtungen der großtechnischen Energiespeicherung in Deutschland haben gezeigt, dass die flexible Erzeugung von Wasserstoff in kompakten Elektrolysemodulen, die anschließende Speicherung in Salzkavernen, der Transport über Entfernungen von mehreren hundert Kilometern, die Verteilung an Tankstellen und letztlich die Nutzung in Brennstoffzellen-Fahrzeugen sowohl die wirtschaftlich beste als auch ökologisch vorteilhafteste Lösung auf dem Weg zu einer substanziellen CO₂-Minderung darstellt. Neben den diesbezüglichen Verfahrens- und Systemanalysen hat das IEK-3 mit Blick auf das HGF-Thema „Wasserstoff-Systemlösungen“ die Erforschung und Entwicklung von Elektrolyseuren mit Polymerelektrolytmembran (PEM) sowie die technische Analyse einer zukünftigen Wasserstoffinfrastruktur zur Energiespeicherung und -verteilung als geeignete Arbeitsgebiete identifiziert. Diese werden dem Thema Wasserstoff-Systemlösungen der Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiative zugeordnet und im Folgenden beschrieben.

5.2.1 Elektrolyseure mit Polymerelektrolytmembran (PEM)

Der Umbau des Energieversorgungssystems hin zu erheblichen Anteilen erneuerbarer Energien ist nur mit dem konsequenten Ausbau substanzieller Energiespeicherkapazitäten möglich. Dabei kommt der Speicherung in Form von Wasserstoff, der mittels Elektrolyse aus regenerativ erzeugtem Strom produziert wird, eine hohe Bedeutung zu. Für den Einsatz der Elektrolysetechnik zur elektrochemischen Umwandlung regenerativ im Überschuss erzeugten Stroms in Wasserstoff und Sauerstoff wurden bereits diverse Aktivitäten von verschiedenen Unternehmen initiiert und vollendet. Dabei wurden Systeme unterschiedlicher Elektrolyseverfahren mit heute verfügbaren Material- und Katalysatortechnologien realisiert. Daneben wurde und wird versucht, durch gezielte Forschung und Entwicklung die alkalische Elektrolyse und die PEM-Elektrolyse für eine flexible Wasserstoffherzeugung mit schnellen und häufigen Lastwechseln für die Adaption an die regenerative Energieerzeugung zu ertüchtigen. Neben der Überwindung anspruchsvoller, technischer Herausforderungen gilt es, passgenaue Anlagen auch kostengünstig für einen Massenmarkt bereitzustellen. Auf diesem Weg befindet sich die PEM-Elektrolyse zwar noch hinter der alkalischen Variante, jedoch sprechen die Potenziale bei der Leistungsdichte, Kompaktheit und Überlastfähigkeit für die PEM-Technologie, der sich das IEK-3 mit sichtbarer Personalstärke auf Abteilungsniveau zukünftig widmen wird.

Um die PEM-Technologie in Massenmärkte für die Wasserelektrolyse nach dem Jahr 2020 einsetzen zu können, bedarf es grundlegender Technologieentwicklungen, die zusammen mit der Industrie und anderen Forschungsinstituten angegangen werden müssen. Dabei geht es zum einen um den Einsatz neuer Membrantypen, um die bisher verwendeten 175 bis 200 µm dicken, extrudierten Nafion-Membranen zu ersetzen. Damit soll dem Problem begegnet werden, dass Nafion-Membranen für den großflächigen Einsatz unter hohem Druck in den geplanten Großsystemen keine ausreichend hohe Stabilität aufweisen. Zum anderen geht es darum, die heute für die katalytischen Reaktionen verwendeten Mengen üblicherweise verwendeter Metalle der Platingruppe wie Iridium, Ruthenium und Platin zu reduzieren bzw. im Idealfall durch preiswertere Katalysatoren zu substituieren. Darüber hinaus sollen neue kostengünstige Materialien und Herstellverfahren für metallische Bipolarplatten und Stromkollektoren gefunden werden, um den Anteil der Kosten von Flow-field- und Separatorplatten an den Gesamtkosten - momentan etwa 48 % der Stack-Kosten und 25 % der Gesamtkosten - drastisch zu reduzieren.

Das IEK-3 beschäftigt sich seit etwa 20 Jahren mit der verwandten Technologie und entwickelt Brennstoffzellen mit Polymerelektrolyt. Gleichzeitig verfügt das IEK-3 über Kompetenzen aus früheren FuE-Aktivitäten, die die fortschrittliche alkalische Wasserelektrolyse mit bis zu 200 bar zum Ziel hatten (siehe Abb. 146). Mit einem integrierten Arbeitsansatz soll eine wissenschaftlich-technische Fachabteilung für die PEM-Elektrolyse aufgebaut werden, die die Entwicklung, den Bau und die Verifikation neuer universeller und wirtschaftlicher PEM-Elektrolyseure zur verbesserten Ausnutzung erneuerbarer Energiequellen zum Ziel hat.

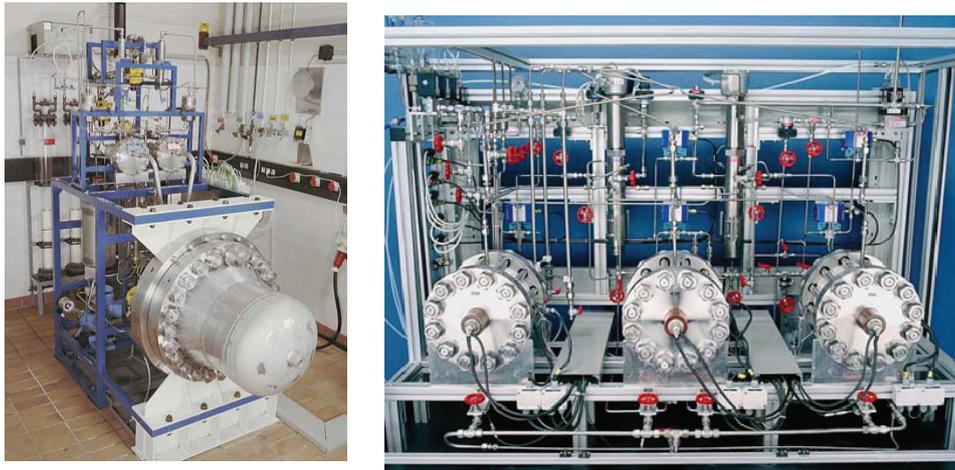


Abb. 146: 120 bar Hochdruckelektrolyseur (links), 200 bar Diaphragmen-Teststand (rechts)

Auf der finanziellen Grundlage der Energiespeicher- und Wasserstoff-Initiative „H₂-Systemlösungen“ und der am IEK-3 vorhandenen Fachkompetenz ausgerichtet auf elektrochemische Verfahrenstechnik wird ein breit angelegtes FuE-Vorhaben aufgebaut, das durch Zusatzmittel und Projektkooperationen flankiert werden soll. Als Basis und Orientierung für die diesbezüglichen FuE-Maßnahmen dient die umfassende Analyse und Bewertung der relevanten Elektrolyseverfahren unter Einbeziehung der in Betracht zu ziehenden Anwendungsfälle im Kontext einer weitgehend regenerativen Energieversorgung. Die Analyse- und Bewertungsergebnisse sollen im nächsten Schritt in die technischen Spezifikationen für einen anwendungsgerechten PEM-Elektrolyseur überführt werden. Daneben ist vorgesehen neue Materialien für Elektrolysezellen und –stacks in Zusammenarbeit mit der Industrie und anderen Forschungsinstituten zu entwickeln und zu charakterisieren. Gleichzeitige Strukturuntersuchungen sowie Modellierungs- und Simulationsmaßnahmen ermöglichen die Auflösung von Degradationserscheinungen und von Qualitätsmängeln. Darüber hinaus liefern sie Anhaltspunkte für konzeptionelle Detailänderungen, um die Leistungsfähigkeit zu verbessern. Durch Auslegung, Bau und Test von PEM-Elektrolyseprototypen sowie die Bereitstellung von Herstellungsprozessen für die betriebsrelevanten Schlüsselkomponenten sollen die Projektziele im Hinblick auf Leistungsfähigkeit, Wirkungsgrad, Lebensdauer, Robustheit und Kosten verifiziert und damit nachgewiesen werden.

5.2.2 Wasserstoffinfrastruktur zur Energiespeicherung und -verteilung

Der großtechnische Umgang mit Wasserstoff ist in bestimmten Sparten bereits seit vielen Jahrzehnten gängige Praxis. Bereits 1938 wurde die 240 km lange Wasserstoff-Rhein-Ruhr-Pipeline in Betrieb genommen, nach dem Zweiten Weltkrieg wurde sie zunächst von den Chemischen Werken Hüls betrieben, die sie an die British Oxygen Company (BOC) verkaufte – mittlerweile wird sie von Air Liquide genutzt. Weltweit werden etwa 1.100 km Wasserstoff-Pipelines betrieben. Weitere Erfahrungen liegen aus der Zeit vor, als das deutsche Gasnetz vor der Umstellung auf Erdgas mit Stadtgas betrieben wurde, das zum überwiegenden Teil aus Wasserstoff bestand. Der systematische Aufbau und die großtechnische Nutzung eines Wasserstoff-Verteilnetzes, welches im Prinzip unserem heutigen Erdgasnetz entspricht, stellt somit eine referenzierte Option für den Transport großer Wasserstoffmengen über lange Distanzen dar.

Damit Wasserstoff als Treibstoff für Pkw verwendet werden kann, muss eine flächendeckende Versorgungsinfrastruktur geschaffen werden. Diese unterscheidet sich stark von der Versorgung mit Benzin oder Diesel. Für große Mengen Wasserstoff eignet sich, ähnlich wie beim Erdgas, am besten der gasförmige Transport in Pipelines. Der Ansatz gasförmigen Wasserstoff in Pipelines zu transportieren, wurde jedoch im Detail bisher noch nicht untersucht. Es ist insbesondere unklar, welche Rohrmaterialien verwendet werden sollen, weil Wasserstoff einen negativen Einfluss auf deren Stabilität hat.

Szenario	Klimaschutz
Motivation	Ambitionierte Klimaschutzpolitik
Energiepreis für Rohöl	54 \$ pro Barrel in 2020 111 \$ pro Barrel in 2050
Treibhausgas-Minderungsziel	-40 % bis 2020 -80 % bis 2050
Mehrkosten für Brennstoffzellen-Fahrzeuge	Senkung der Antriebskosten des Brennstoffzellen-PKW/NFZ auf das Niveau moderner Diesel-PKW/NFZ
Erneuerbare Energien	Mindestens 20 % Anteil am Primärenergieverbrauch bis 2020

Tab. 16: Annahmen und Randbedingungen der Studie GermanHy 2009

Das Ziel der diesbezüglich geplanten Arbeit besteht darin, ein technisches Konzept für ein Pipelinesystem zu entwerfen, welches den deutschen Straßenverkehr mit Wasserstoff versorgt. Dabei werden die in Tab. 16 ausgewiesenen Annahmen der Studie GermanHy verwendet, die sich auf breiten Konsens abstützen kann. Am Beispiel Deutschland sollen der Aufbau und die Länge eines Pipelinesystems sowie dessen monetäre und ökologische Aspekte untersucht werden. Um die diesbezüglichen Ergebnisse in den gesamten Kontext einzubetten, sollen auch die Herstellung, die Speicher und die Tankstellen monetär bewertet werden. Bezüglich der Auswahl geeigneter Rohrleitungsmaterialien soll nach innovativen Lösungen gesucht werden, die Versprödungssicherheit zu gewährleisten. Darüber hinaus sollen die Arbeitsergebnisse konkrete Ansätze für weiteren Forschungs- und Entwicklungsbedarf definieren.

Grob kann bereits heute festgestellt werden, dass zusätzliche Erkenntnisse zu folgenden Themen für die Umsetzung einer Wasserstoffinfrastruktur unverzichtbar sind:

- Beurteilung über die Eignung von geologischen Speichern für Wasserstoff als Speichermedium
- Überführung eines Grobkonzeptes in ein detailliertes Gesamtsystem für eine wirtschaftliche Wasserstoffspeicherung und –verteilung
- Bewertung von Auslegungs- und Betriebsvariationen mit Blick auf die Netzgestaltung und -anschlüsse sowie Betriebseinrichtungen und –parameter

Auf der Grundlage des noch laufenden Promotionsvorhabens „Pipelinesysteme zur Wasserstoffversorgung“ und konzeptioneller Analysen für die Realisierung einer Energieversorgung mit vermindertem Treibhausgasausstoß werden diese und weitere FuE-Bedarfe genauer spezifiziert und zeitnah in neue FuE-Vorhaben überführt, die dann im IEK-3 unter Nutzung des integrierten Arbeitsansatzes durchgeführt werden.

5.3 Batterien für die zukünftigen Energiesektoren

Es besteht breiter Konsens darüber, dass sowohl der stationäre als auch der mobile Sektor leistungsfähige und kostengünstige elektrochemische Energiespeichersysteme benötigen. Der Lithiumionentechnologie kommt hier eine Schlüsselrolle zu. Ein umfassendes Verständnis der elektrochemischen Prozesse ist die Voraussetzung für die Entwicklung der nächsten und übernächsten Generation dieses Batterietyps. Aufbauend auf der breiten Materialkompetenz bei den Partnern wurden drei Schwerpunktthemen identifiziert, mit denen sich die beteiligten Zentren innerhalb der Helmholtz-Initiative beschäftigen werden. Diese Themen orientieren sich an den Richtungen der modernen Materialforschung für Batterien der 3. und 4. Generationen. Dabei wird als allgemeines Ziel verfolgt, in einem überschaubaren Zeitraum einen wesentlichen Schritt in Richtung der Entwicklung neuer Batteriematerialien mit höheren Leistungsdaten zu machen, um diese Materialien mittel- und langfristig in eine industrielle Anwendung für mobile und stationäre Speichern zu überführen. Die Entwicklungen sollen wissenschaftsbasiert auf einem grundlegenden Verständnis der elektrochemischen Vorgänge in diesen Materialien und der Wechselwirkungen zwischen Struktur und Eigenschaften vorangetrieben werden. Das Schwerpunktthema der Jülicher Arbeiten ist die Entwicklung von Feststoffbatterien, ausgestattet mit inhärenter Sicherheit gegenüber den konventionellen Systemen mit flüssigen Elektrolyten. Dazu sollen geeignete Feststoffelektrolyte entwickelt und als extrem dünne Schichten hergestellt werden, die eine hohe ionische Leitfähigkeit bei den Anwendungstemperaturen besitzen. Weiterhin müssen Kathodenschichten mit höheren Spannungen und Anodenmaterialien mit reduziertem Schwellverhalten für die Dünnschichtbatterie hergestellt werden. Auf der Herstellungsseite müssen die Prozesse in Richtung auf großflächige Abscheidung verbessert werden. Das Ziel der Arbeiten ist die Herstellung einer sicheren Festkörper-Dünnschichtbatterie mit hohen Leistungsdichten für mobile und stationäre Anwendungen.

Die Arbeiten des IEK-3 sind wie der Charakter der Helmholtz-Initiative für mobile/stationäre Energiespeichersysteme auf materialbezogene Fragestellungen fokussiert. Dies beinhaltet für die Feststoff-Dünnschichtbatterien die Behandlung spezieller Fragestellungen der Zellen- und Batteriecharakterisierung sowie der Systemanalyse.

5.3.1 Charakterisierung des elektrochemischen Verhaltens

Auf der Grundlage themenbezogener und aufeinander abgestimmter Promotionsvorhaben sollen aussagefähige Charakterisierungsmethoden entwickelt, aufgebaut und angewendet werden. Dies soll in enger Zusammenarbeit mit den Partnerinstituten der beteiligten Helmholtz-Zentren geschehen. Um die Vergleichbarkeit der Charakterisierungsergebnisse abzusichern, werden vorhandene Untersuchungsstandards verabredet und darüber hinaus erforderliche Standards abgestimmt. Dies soll auch das Niveau der Ergebnisqualität positiv beeinflussen.

Als erster Schritt sollen die experimentellen Grundlagen zur Charakterisierung von Batteriesystemen im IEK-3 etabliert werden. Zu Beginn ist zu ermitteln, welche elektrochemischen Methoden in der Batteriecharakterisierung standardmäßig benutzt werden, z.B. das Verhalten von Batterien beim Durchlaufen von Lade- bzw. Entladezyklen. Bereits im Institut vorhanden sind die Impedanzspektroskopie und die Zyklovoltametrie. Für die Beschaffung der notwendigen Geräte werden die erforderlichen Spezifikationen in Abstimmung mit potenziellen Lieferanten abgestimmt.

Im nächsten Schritt sollen die entwickelten Methoden zunächst an kommerziellen Li-Batterien angewendet werden. Danach ist geplant, auch Zellen, die aus der IEK-1-Fertigung hervorgehen, zu charakterisieren. Ein besonderes Augenmerk soll dabei auf die Zusammenhänge zwischen Lade- und Entladeströmen, dem mittleren Ladezustand und der Lebensdauer liegen. Ein weiterer wichtiger Punkt betrifft auch den Wärmehaushalt der Batteriezellen während der Lade- und Entladezyklen.

Die elektrochemischen Prozesse während des Batteriebetriebs sollen mit den neu eingerichteten und den vorhandenen Methoden soweit analysiert und verstanden werden, dass eine modellmäßige Beschreibung eines Batteriesystems möglich ist. Neben der elektrochemischen Charakterisierung schließt dies auch die materialchemische und mikroskopische Analyse der degradierten Zellen ein. Dabei soll die beobachtete Degradation der Zellen mit morphologischen und chemischen Veränderungen in den Elektroden und dem Elektrolyten korreliert werden. Hierfür sind im IEK-3 ein hochauflösendes Rasterelektronenmikroskop (REM) mit energiedispersiver Röntgenanalytik (EDX) und die entsprechende Probenvorbereitung vorhanden.

Auf der Grundlage der Messdaten eines untersuchten Batteriesystems sollen Modellvorstellungen zur Beschreibung des elektrischen Verhaltens und des Wärmehaushalts entwickelt werden. Diese Modellvorstellungen sind Voraussetzung für die Anpassung der gewählten Batterie an das Brennstoffzellensystem und den Bau eines hybridisierten Prototyps.

5.3.2 Technische Analyse und Modellierung von Dünnschichtbatterien

Prinzipiell eignen sich unterschiedliche Batterien als Energiespeicher zur Hybridisierung von Brennstoffzellensystemen. Anhand charakteristischer System- und Betriebsgrößen werden die in Betracht kommenden Batterien analysiert und verglichen. Mit den aus der Bewertung vorteilhaftesten Batterien werden Systeme definiert und Verfahrenskonzepte für einen effizienten Betrieb entwickelt. Dies liefert den Rahmen für die anschließende Systemmodellierung und –simulation, deren Ergebnisse mit Resultaten aus dem Testbetrieb des realen Systems verglichen werden.

6 Zahlen, Daten und Fakten

6.1 Institut für Energie- und Klimaforschung – Brennstoffzellen (IEK-3)

Das Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-3) ist auf die Erforschung und Entwicklung von Brennstoffzellen fokussiert. Dabei werden derzeit vier Schwerpunkte gesetzt, die keramische Hochtemperaturbrennstoffzelle SOFC, die Direktmethanol-Brennstoffzelle DMFC, die Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC) sowie die Reformierung und Entschwefelung von flüssigen Energieträgern, die zur Wasserstoffversorgung von Brennstoffzellen genutzt werden sollen.

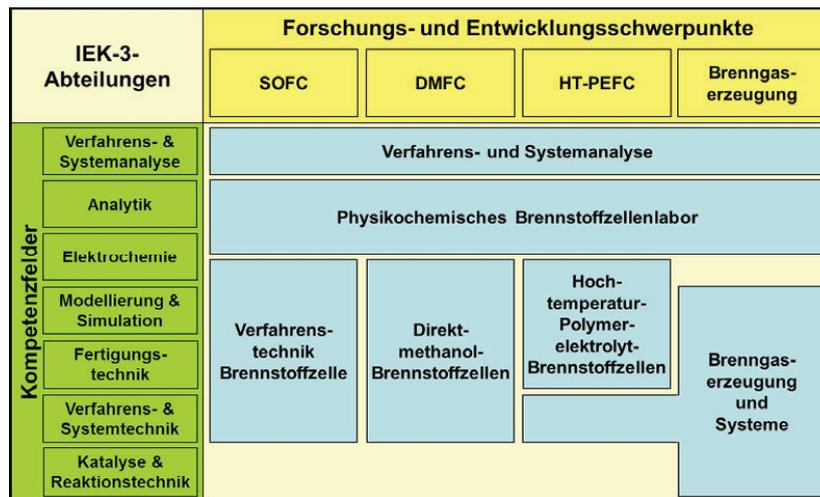


Abb. 147: Fachabteilungen im Kreuzungsbereich von Kompetenzfeldern und FuE-Schwerpunkten des IEK-3

Die starke Konzentration auf wenige Brennstoffzellen und eingeschränkte Leistungsbereiche ermöglicht es, diese FuE-Schwerpunkte jeweils von den grundlegenden Phänomenen bis zur Verfahrenstechnik des Gesamtsystems mit Teams überkritischer Größe zu bearbeiten. Die Synergien zwischen den Fachdisziplinen freizusetzen und die Umsetzung von der Theorie bis zum Technikumsmaßstab durchzuführen, ist Zielsetzung und Schwerpunkt des Institutes. Stationäre, portable und mobile Anwendungen bis hin zu kompletten Systemen mit Brennstoffzellen, aber auch deren Kostenaspekte werden in der Verfahrens- und Systemanalyse auf ihre Anwendbarkeit hin und auch im Vergleich zu Konkurrenzsystemen technisch, energetisch und wirtschaftlich bewertet. Darüber hinaus werden die anwendungsorientierten FuE-Arbeiten von grundlegender Forschung zur Auflösung von Strukturwirkungsbeziehungen mittels gezielt ausgewählter und weiterentwickelter Analysemethoden begleitet.

Die Forschungsarbeiten des IEK-3 sollen bei gesellschaftlicher, ökologischer und ökonomischer Relevanz im internationalen Vergleich Spitzenergebnisse erbringen. Diese Qualität der Arbeit soll durch grundlegende Forschung in enger Koordination mit technischen Entwicklungsarbeiten in relevanten, wissenschaftlich-technischen Kompetenzfeldern erzielt werden. Hierbei kommt internationalen Kooperationen mit Partnern aus Forschung und Industrie besondere Bedeutung zu. Das Institut ist auf die Umsetzung der Forschungsergebnisse in innovative Produkte, Verfahren und Prozesse in Zusammenarbeit mit der Industrie ausgerichtet und will einen Beitrag leisten zur Überbrückung der Kluft zwischen Wissenschaft und Technik.

Angebote zur Aus- und Weiterbildung stehen im Fokus der Zusammenarbeit mit Universitäten, Fachhochschulen, Lehrwerkstätten und Ausbildungszentren.



Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten (Institutsleiter IEK-3)
Institut für Energie- und Klimaforschung
IEK-3: Brennstoffzellen
Forschungszentrum Jülich GmbH - 52425 Jülich
Tel.: 02461-61-3076 ; e-mail: d.stolten@fz-juelich.de

Jülich stellt im Brennstoffzellenbereich die größte institutionelle Forschungsmannschaft in Europa mit etwa 160 Mitarbeitern. Davon ist etwa die Hälfte im Bereich der SOFC tätig, wovon wiederum etwa 1/3 auf die Aktivitäten des IEK-3 entfallen. In der SOFC sind zwei weitere Institute, das IEK-1 zuständig für die Werkstoffherstellung und das IEK-2 zuständig für die Werkstoffprüfung und Stahlforschung, sowie die Zentralabteilung Technologie (ZAT) für den Stackbau, tätig. Mit den weiteren etwa 75 der 100 Mitarbeiter des IEK-3 wird die Niedertemperatur-Brennstoffzelle gleichstark vorangetrieben wie die keramische Hochtemperatur-Brennstoffzelle. Für diese beiden Felder gibt es jeweils Koordinatoren für übergreifende Themen, die auch als erste Ansprechpartner gerne bereitstehen, für die SOFC auch über die beteiligten Institute hinweg.

Projektleiter
Niedertemperatur-Brennstoffzelle
und stellvertretender Institutsleiter IEK-3



Dr.-Ing. Bernd Emonts
Tel.: 02461-61-3525
e-mail: b.emonts@fz-juelich.de

Projektleiter
Hochtemperatur-Brennstoffzelle
PBZ



Dr. Robert Steinberger-Wilckens
Tel.: 02461-61-2052
e-mail: r.steinberger@fz-juelich.de

6.2 Abteilungskompetenz im Überblick

Direktmethanol-Brennstoffzelle

Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Die Direktmethanolbrennstoffzelle wird von der Membran-Elektroden-Einheit bis zum Stack in der Abteilung und in engster Kooperation mit der Verfahrenstechnik bis zum System hin bearbeitet. Neue Membran- und Katalysatormaterialien werden charakterisiert und innovative Membran-Elektroden-Einheiten werden daraus erarbeitet und hergestellt. Dabei ist die Struktur-Wirkungsbeziehung der Elektrodenschichten ein Arbeitsschwerpunkt. Stackmodellierung und Auslegung, sowie neue analytische Verfahren in der Stacktechnik zusammen mit automatisierten Herstellmethoden im Technikumsmaßstab sichern die Brückenfunktion zwischen Wissenschaft & Technik.

Die HT-PEFC wird von der Elektrode bis zum Stack in Kooperation mit in- und externen Partnern bearbeitet. Neue Elektrodenstrukturen und -präparationsmethoden werden erarbeitet, MEAs hergestellt und elektrochemisch charakterisiert. Darüber hinaus werden intensive Untersuchungen der Strukturwirkungsbeziehungen der Elektrodenschichten vorgenommen. Begleitet werden diese Arbeiten durch Modellierungen, um ein vertieftes Prozessverständnis zu erhalten. Zusätzlich finden Simulationsarbeiten auf Zell- und Stackebene statt, welche die Entwicklung von luft- und flüssigkeitsgekühlten Stacks mit hoher volumen- und gewichtsbezogener Leistungsdichte unterstützen.

Anlagen, Verfahren, Methoden

Einrichtungen

- Teststände zur elektrochemischen Untersuchung von DMFCs, PEFCs und Stacks
- Apparatur zur magnetotomographischen Untersuchung der Stromdichteverteilung von Einzelzellen und Stacks
- Apparaturen zur Charakterisierung von Membranen für die PEFC und DMFC
- Beschichtungsmaschine zur kontinuierlichen Herstellung von MEA-Komponenten
- Roboteranlage zur automatisierten Herstellung von Zellkomponenten (stanzen und pressen) und Stacks (assemblieren)

Einrichtungen

- Teststände zur elektrochemischen Charakterisierung von MEAs
- Teststände zur elektrochemischen Untersuchung von Stacks bis 5 kW_{el}
- Apparaturen zur Herstellung von Gasdiffusionselektroden

Modelle

- Simulationsmodelle zur Beschreibung von Stoff-, Ladungs- und Wärmetransportprozessen in Zellen und Stacks

Ansprechpartner



Dipl.-Ing. Jürgen Mergel
Tel.: 02461-61-5996
e-mail: j.mergel@fz-juelich.de



PD Dr. rer. nat. Werner Lehnert
Tel.: 02461-61-3915
e-mail: w.lehnert@fz-juelich.de

Elektrochemie und Simulation SOFC

Brenngaserzeugung und Systeme

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

In Jülich wird die SOFC von allen Werkstoffen bis hin zum Gesamtsystem erforscht und entwickelt. Diese Abteilung bearbeitet die Elektrochemie und Stacktests sowie das Modelling von der Zelle bis zum Stack. Zellen und Stacks werden sowohl unter labormäßigen Bedingungen getestet, um bestimmte Erkenntnisse zu erlangen, als auch unter praxisrelevanten Betriebsbedingungen bis hin zum Dauerstand betrieben. Eigene Modelle für Simulationsrechnungen unter Berücksichtigung der Stoff-, Ladungs- und Wärmetransportprozesse für Zellen und Stacks liegen vor und werden weiterentwickelt. Mit den Ergebnissen werden neue Konzepte entwickelt.

Wasserstoff für Brennstoffzellen hergestellt aus handelsüblichen Kraftstoffen ermöglicht den frühen Einsatz der Brennstoffzellentechnik. Das Institut ist spezialisiert auf die Reformierung von Mitteldestillaten – Diesel, Kerosin und Heizöl -. Dabei wird das gesamte System einschließlich Entschwefelung und CO-Reinigung bearbeitet. Der Fokus liegt auf Reaktoren, im Leistungsbereich von 3 – 50 kW, die in Hochtemperatur-PEFC- oder SOFC-Systeme integriert werden. Komplexe, realitätsnahe Modelle, auf deren Basis direkt die Reaktorauslegung und der Bau erfolgen, werden unterstützt von Glasmodellen an denen mittels Ähnlichkeitstheorie Strömungen visualisiert werden

Anlagen, Verfahren, Methoden

Einrichtungen

- Elektrochemische Untersuchung von SOFCs
- Elektrochemische Untersuchung von Hochtemperatur-Brennstoffzellenstacks
- Diffusions- und Permeationsmessungen

Modelle

- Rechenmodelle zur Simulation von Betriebszuständen in SOFCs (Membran, Zelle und Stack) auf Basis der Transportprozesse für Wärme, Stoffe und Ladung

Einrichtungen

- Untersuchung von Reaktoren: Reformierung, Wasser-Gas-Shift-Reaktion, präferenziellen Oxidation und Entschwefelung
- Screening und Untersuchung: Katalysatoraktivität und -selektivität
- Konzentrationsbestimmung (GC, GC/MS, NDIR) von Reaktionsgasen
- Apparaturen zur fraktionellen Destillation von Kraftstoffen

Modelle

- CFD-Simulation: Visualisierung der Eduktvermischung & Auslegung von Reaktoren

Ansprechpartner



Dr. L.G.J. (Bert) de Haart
Tel.: 02461-61-6699
e-mail: l.g.j.de.haart@fz-juelich.de



Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters
Tel. 0261-61-4260
e-mail: ra.peters@fz-juelich.de

Verfahrenstechnik Brennstoffzelle

Physikochemisches Brennstoffzellenlabor

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Auslegung und Bau effizienter Brennstoffzellenanlagen erfordern detaillierte Kenntnisse von der Zelle bis zur gesamten Anlage. Diese intensiven Wechselwirkungen zwischen Zelle und Gesamtanlage stellen eine Herausforderung an die Entwicklung dar, die hier besonders genutzt wird. In intensiver Zusammenarbeit mit der Zell- und Stacktechnik sind drei DMFC-Testanlagen (2 kW) und zwei SOFC Testanlagen (1 kW, 20 kW) erstellt worden. Schwerpunkte sind die Entwicklung neuer Anlagenkonzepte, deren Test und Bewertung, die Entwicklung von Komponenten gemeinsam mit der Industrie sowie Test und Entwicklung von Steuer- und Regelkonzepten.

Bei fortschreitender, technischer Entwicklung gewinnen wissenschaftliche Arbeiten zum Verständnis zukünftiger Energiesysteme zunehmend an Bedeutung. Daher befasst sich die Abteilung mit der grundlegenden Auflösung von Material- und Struktureigenschaften auf das Wirkungsverhalten bei deren Einsatz in energietechnischen Kernkomponenten. Dabei kommen bildgebende, physikalische und ortsaufgelöste Analysemethoden zum Einsatz. Diese sind darauf ausgerichtet, die chemischen und strukturellen Veränderungen, die mechanische und thermodynamische Eignung sowie die fluid-dynamische und elektrochemische Leistungsfähigkeit zu bestimmen.

Anlagen, Verfahren, Methoden

Einrichtungen und Modelle

Teststände für

- Hochtemperatur-Wärmeaustauscher bis 850 °C und 200 m³ Luft/h
- Reformer und Nachverbrenner für SOFC-Stacks einer Leistung von 5 kW
- Luftkompressor bis 100 m³/h und abgasbeheizte Dampferzeuger für SOFC-Anlagen
- Verfahrenstechnische Untersuchung von DMFC-Stacks und Systemkomponenten
- CFD-Modelle zur Ermittlung der Strömungsverteilung in Stacks
- Simulationsmodelle zur Auslegung von Brennstoffzellen-Anlagen

Einrichtungen und Methoden

- Bildgebende Analysemethoden:
Feldemissionsrasterelektronenmikroskop (FE-REM) mit EDX-Analyse, Lichtmikroskope und konfokales Laserscannmikroskop
- Ortsaufgelöste Analysemethoden:
Segmentierte Zellentechnologie (SCT), Magnetotomographie und Massenspektroskopie (SRMS)
- Physikalische Analysemethoden:
Thermogravimetrische Analyse (TG und TGA), dynamische Differenzkalorimetrie (DSC), Klimaschrank, Zugprüfmaschine mit Klimakammer, Standardporosimeter, Partikelgrößen-Meßgerät

Ansprechpartner



Prof. Ludger Blum
Tel.: 02461-61-6709
e-mail: l.blum@fz-juelich.de



PD Dr. Carsten Korte
Tel.: 02461-61-9035
e-mail: c.korte@fz-juelich.de

Verfahrens- und Systemanalyse

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Die Auswahl sinnvoller zukünftiger Energiesysteme und die Steuerung ihrer Entwicklung erfordern einen systemischen Ansatz, der hier für Brennstoffzellen betrieben wird. Basis der Untersuchungen sind Energiekettenbetrachtungen, Benchmarks zu anderen Anwendung- und Herstelltechnologien und wirtschaftliche Vergleiche. Durch die breite experimentelle Basis und das weiterreichende Modelling im Institut können in gesamte Systeme modellmäßig aufgebaut und mit konkurrierenden Techniken realitätsnah verglichen und Entwicklungspotenziale, wie auch Defizite aufgezeigt werden. Studien für die Industrie werden auch mit Informationsschutz durchgeführt.

Anlagen, Verfahren, Methoden

Methoden

- Konzeptstudien für die Brenngaserzeugungs- und Energiesysteme mit Brennstoffzellen
- ganzheitliche Bewertungsmethoden (Lebenszyklusanalyse) für Energiesysteme

Ansprechpartner



Dr.-Ing. Michael Weber
Tel.: 02461-61-8626
e-mail: m.weber@fz-juelich.de

6.3 Publikationen, Technologietransfer und Ressourcen

Die wissenschaftlich-technischen Arbeitsergebnisse des IEK-3 wurden sowohl in einschlägigen Journalen veröffentlicht als auch auf internationalen wie nationalen Konferenzen zum Arbeitsthema einer interessierten Fachwelt präsentiert. Wichtige Journale, die im Berichtszeitraum vier und mehr referierte Beiträge des IEK-3 veröffentlichten, waren das Journal of Fuel Cell Science and Technology (2009: 1, 2010: 5), das Journal of Power Sources (2009: 4; 2010: 1), die Electrochemistry communications (2009: 3, 2010: 2), das International Journal of Hydrogen Energy (2009: 2, 2010: 3) und Electrochimica Acta (2009: 2, 2010: 2). Die wichtigsten Konferenzen mit IEK-3-Beteiligungen waren 2009 das 11th International Symposium Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XI) in Wien, Österreich mit 4 Beiträgen und das European Fuel Cell Forum in Luzern, Schweiz mit 3 Beiträgen. 2010 beteiligte sich das IEK-3 mit 23 Beiträgen an der 18th World Hydrogen Energy Conference in Essen und mit 2 Beiträgen am 9th European SOFC Forum in Luzern, Schweiz. Auf zahlreichen weiteren Fachkonferenzen im In- und Ausland leistete das IEK-3 mit Einzelbeiträgen aus den wissenschaftlichen Fachabteilungen seinen spezifischen Beitrag. Darüber hinaus wurden im Berichtszeitraum 2009 und 2010 vier Doktorarbeiten in den FuE-Schwerpunkten DMFC, HT-PEFC und SOFC sowie eine Dissertation zu mathematischen Fragestellungen in der physikalischen Analyse fertiggestellt (siehe Tab. 17).

Jahr		2009	2010
Publikationen	Referierte Journale ¹⁾	24	19
	Bücher und Journale	10	13
	Aufsatz in einem Buch	17	33
	Dissertationen	0	5
Technologie- transfer	Laufende Drittmittelprojekte	35	39
	Patentanmeldungen	11	7
	Patenterteilungen	11	11
Ressourcen ²⁾	Personal (PoF ³⁾ /Drittmittel)	97 (71/26)	93 (66/27)
Erläuterungen	¹⁾ nach ISI-Zitationsindex ²⁾ Angaben in PJ/a ³⁾ PoF: Programmorientierte Förderung		

Tab. 17: Kerndaten des IEK-3 für 2009 und 2010

Zur Gewährleistung eines erfolgreichen Technologietransfers beteiligte sich das IEK-3 an zahlreichen FuE-Projekten (2009: 35; 2010: 39), die von der Europäischen Kommission, den Bundesministerien für Wirtschaft (BMWi) sowie für Bildung und Forschung (BMBF) und dem Wirtschaftsministerium des Landes Nordrhein-Westfalen finanziell gefördert oder von der Wirtschaft finanziert wurden. Dabei übernahm das IEK-3 in einigen Projekten auch die Leitung und Koordination. Ein weiterer Baustein zum geordneten Technologietransfer sind die zahl-

reichen Patentanmeldungen (2009: 11, 2010: 7) und Patenterteilungen (2009: 11, 2010: 11) im zweijährigen Berichtszeitraum.

Das IEK-3 verfügt über etwa 100 Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter, die auf der einen Seite aus Mitteln der Programmorientierten Förderung (PoF) der Helmholtz Gemeinschaft der Forschungseinrichtungen (HGF) und auf der anderen Seite aus Drittmitteln finanziert werden. Ein Teil des IEK-3-Personals ist auf der Basis eines Teilzeitvertrages beschäftigt, so dass sich die effektive Personalkapazität in 2009 auf 97 PJ/a und in 2010 auf 93 PJ/a beläuft (siehe Tab. 17).

6.4 Gremienarbeit

Die wissenschaftlich-technischen Arbeitsergebnisse des IEK-3 wurden sowohl in einschlägigen Journalen veröffentlicht als auch auf internationalen wie nationalen Konferenzen zum Arbeitsthema einer interessierten Fachwelt präsentiert. Wichtige Journale, die im Berichtszeitraum vier und mehr referierte Beiträge des IEK-3 veröffentlichten, waren das Journal of Fuel Cell Science and Technology (2009: 1, 2010: 5), das Journal of Power Sources (2009: 4; 2010: 1), die Electrochemistry communications (2009: 3, 2010: 2), das International Journal of Hydrogen Energy (2009: 2, 2010: 3) und Electrochimica Acta (2009: 2, 2010: 2). Die wichtigsten Konferenzen mit IEK-3-Beteiligungen waren 2009 das 11th International Symposium Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XI) in Wien, Österreich mit 4 Beiträgen und das European Fuel Cell Forum in Luzern, Schweiz mit 3 Beiträgen. 2010 beteiligte sich das IEK-3 mit 23 Beiträgen an der 18th World Hydrogen Energy Conference in Essen und mit 2 Beiträgen am 9th European SOFC Forum in Luzern, Schweiz. Auf zahlreichen weiteren Fachkonferenzen im In- und Ausland leistete das IEK-3 mit Einzelbeiträgen aus den wissenschaftlichen Fachabteilungen seinen spezifischen Beitrag. Darüber hinaus wurden im Berichtszeitraum 2009 und 2010 vier Doktorarbeiten in den FuE-Schwerpunkten DMFC, HT-PEFC und SOFC sowie eine Dissertation zu mathematischen Fragestellungen in der physikalischen Analyse fertiggestellt.

IEA Advanced Fuel Cells Implementing Agreement

seit 2000, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Stellvertretender Vorsitzender des Executive Committee & Leiter der Deutschen Delegation

seit 2004, Dipl.-Ing. J. Mergel

Mitglied des Annex 22 "Collaborative Research on Polymer Electrolyte Fuel Cells"

seit 2009, Dr.-Ing. R.C.Samsun

Mitglied des Executive Committee

seit 2009, Dr.-Ing. M. Müller

Operating Agent für Annex 27

Fachausschuß Energieverfahrenstechnik der GVC / VDI-Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen

seit 2003, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Mitglied des Fachausschusses „Energieverfahrenstechnik“

seit 2006, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Stellvertretender Vorsitzender des Fachausschusses „Energieverfahrenstechnik“

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Vorsitzender des Fachausschusses „Energieverfahrenstechnik“

Aufsichtsrat der Masterflex AG

seit 2004, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Stellvertretender Aufsichtsratsvorsitzender

Initiative Qualifizierung - Brennstoffzelle

seit 2005, Dr.-Ing. B. Emonts

Mitglied des Führungskreises

Fachausschuß BREZEL der VDI-Gesellschaft

seit 2005, Prof. L. Blum

Mitglied des Fachausschusses

Global Roundtable on Climate Change der Columbia University, New York

seit 2006, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Mitglied

DKE – Normungsarbeitskreis “Portable Brennstoffzellensysteme”

seit 2006, Dipl.-Ing. J. Mergel

Mitglied des Arbeitskreises

WILEY-VCH Zeitschrift “Fuel Cells“

seit 2006, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Mitglied des Advisory Board

Beirat der Nationalen Organisation Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie

seit 2007, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Mitglied und Vertreter der HGF für Forschung

Netzwerk Brennstoffzelle und Wasserstoff NRW

seit 2007, Dr.-Ing. H. Janßen und Dipl.-Ing. N. Kimiaie

Mitglieder der Arbeitskreise Gesamtsystem sowie Stackdesign und -assemblierung

N.ERGY im FCH Undertaking der EU

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Vertreter des Vollmitglieds Forschungszentrum Jülich

18. World Hydrogen Energy Conference 2010, Essen

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Konferenzleiter, Leiter des Executive Board, Stellvertretender Leiter des Organising Committee

seit 2008, Dr.-Ing. B. Emonts

Organisatorische Leitung „Students’ Day“, Mitglied des Organising Committee

seit 2008, Dipl.-Ing. Dipl. Wirt.-Ing. T. Grube

Mitglied des Organising Committee

Forschungsverbund Erneuerbare Energien (FVEE)

seit 2009, Dr.-Ing. B. Emonts

Vertreter des Mitglieds Forschungszentrum Jülich für Brennstoffzellen

Beirat des h2-netzwerk-ruhr

seit 2009, Dr.-Ing. B. Emonts

Mitglied

IEA Experts’ Group on Science for Energy (EGSE)

seit 2009, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Co-Chairman

Arbeitsgemeinschaft Elektrochemischer Forschungseinrichtungen (AGEF)

seit 2010, Dipl.-Ing. J. Mergel

Mitglied des Vorstandes

2nd International Conference on Energy Process Engineering 2011: Efficient Carbon Capture for Coal Power Plants, Frankfurt am Main

seit 2010, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

Konferenzleiter als Vorsitzender der Fachgruppe Energieverfahrenstechnik der Dechema/VDI, Leiter des Organising Committee

seit 2010, Dr.-Ing. M. Weber

Mitglied des Organising Committee

6.5 Beiträge zu Messen und Ausstellungen

Das IEK-3 hat sich zum Ziel gesetzt, seine Innovationskraft durch neue Technologiemonstratoren und wegbereitende Entwicklungsbeiträge aus den FuE-Schwerpunkten des Instituts zu belegen. Als alljährlicher Höhepunkt für ein Präsentationsforum verifizierter Highlights des Jahres stellt die Technologiemesse in Hannover dar. 2009 stellte sich das IEK-3 auf der Hannover Messe mit einer interaktiven Präsentationsinsel ausgesuchter FuE-Beiträge vor, die den interessierten Besuchern mit betreuten Computeranimationen, Vorortanalysen und Stack-Bausätzen in die Themen Systemverifikation, Stack-Assemblierung, MEA-Fertigung, Analytik, Modellierung und Simulation sowie Verfahrens- und Systemanalyse einführt und in Abb. 148, links mit dem Betreuungsteam dargestellt ist.



Abb. 148: Messeauftritt auf der Hannover Messe 2009

Als Repräsentant des Nordrhein-Westfälischen Wirtschaftsministeriums besuchte Staatssekretär Baganz – in Abb. 148, rechts als zweiter von links - den Jülicher Messestand und wurde von Professor Stolten in die FuE-Details eingeführt. Das Gesamtbild der querschnittsorientierten Arbeiten wurde durch die Ausstellung tischgerechter Kernkomponenten aus den FuE-Schwerpunkten – Membranelektrodeneinheiten (MEA), Bipolarplatten, Short-Stacks und Reaktorkonfigurationen - vervollständigt.

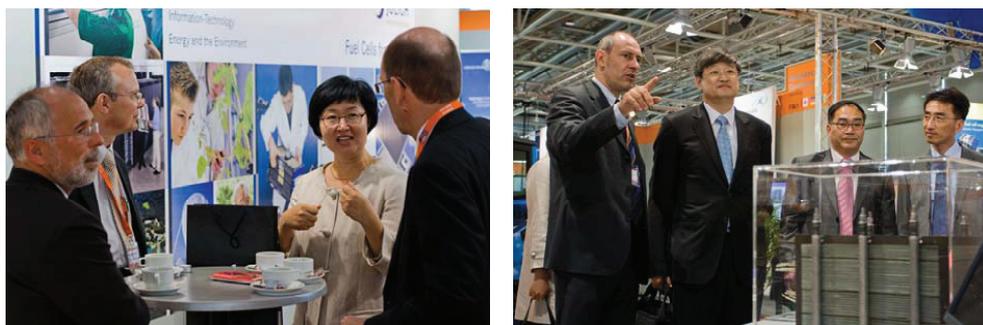


Abb. 149: Vertreter des Korea Institute of Energy Research (KIER) auf dem Jülicher Stand während der Hannover Messe 2009

Mit der Unterzeichnung eines Memorandum of Understanding (MoU) wurde während der Auftaktveranstaltung zur Hannover Messe 2009 der Rahmen für die Zusammenarbeit zwischen dem Korea Institute of Energy Research (KIER) und dem Forschungszentrum Jülich

auf den Themen DMFC und SOFC für die nächsten fünf Jahre gesteckt. Das MoU setzt eine langjährige Kooperation fort und beinhaltet gemeinsame Forschungsprojekte und Workshops sowie den Austausch von Informationen und Personal. Bei einer Besichtigung des Jülicher Messestandes konnten den koreanischen Vertretern, wie in Abb. 149 zu sehen, konkrete FuE-Ergebnisse aus der Jülicher Brennstoffzellenforschung vorgestellt und erläutert werden.

Im Verlauf des Jahres wirkte das IEK-3 an drei weiteren Messen und Ausstellungen im In- und Ausland mit. Die Einzelheiten können der folgenden Auflistung entnommen werden.

2009

Hannover Messe

20. - 24.04.2009, Hannover

Präsentationsinsel „Brennstoffzellen-Forschung und Technologieentwicklung“

Lucerne Fuel Cell Forum 2009

29.06. - 3.07.2009, Luzern, Schweiz

Präsentationsinsel „Brennstoffzellen-Forschung und Technologieentwicklung“

Tag der Neugier 2009

6.09.2009, Jülich

FuE-Beiträge zum Anfassen „Die Brennstoffzelle auf dem Weg aus der Forschung in die Anwendung“

11th International Symposium Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XI)

4. - 9.10.2009, Wien, Österreich

Zell- und Stackfertigung „Vom Keramikpulver zum funktionsfähigen Bauteil“, Komponenten eines integrierten Stack-Moduls

Ein Jahr später präsentierte das IEK-3 auf der Hannover Messe 2010 Beiträge aus den FuE-Schwerpunkten DMFC, HT-PEFC, SOFC, Brenngaserzeugung und dem Querschnittsthema physikochemische Analyse (siehe Abb. 150, links). Zur Erhöhung der Besucheraufmerksamkeit wurde das Oberteil der Präsentationsinsel mit einem Parcours und zwei Modellfahrzeugen ausgestattet. Dabei standen ein Batterie-elektrisches und ein Brennstoffzellen-elektrisches Modellgabelstapler zur Verfügung. Prämiertes Ziel für interessierte Besucher war es, mit dem gewählten Fahrzeugtyp schnellstmöglich das Ziel zu erreichen, wobei auf dem Weg eine Palette vom Boden eines Hochregallagers aufgenommen und in ein zweites Hochregallager auf 35 cm Höhe abgesetzt werden sollte. Für den Batterie-elektrischen Modellgabelstapler musste auf dem Weg zwischen Hochregallager und Ziel für 5 Sekunden eine fiktive Ladestation angesteuert werden. Die schnellsten Steuerleute wurden mit einem Andenken an die Veranstaltung prämiert.



Abb. 150: Messeauftritt des IEK-3: Hannover Messe 2010 (links) und 18. WHEC 2010 (rechts)

Mit der Beteiligung des IEK-3 an der Ausstellung im Rahmen des Deutschen Pavillons der 18th World Hydrogen Energy Conference 2010 in Essen wurde ein zweiter Schwerpunkt in 2010 gesetzt (siehe Abb. 150, links). Einen Überblick der 2010 besuchten Veranstaltungen und thematische Ausrichtung gibt die folgende Auflistung.

2010

Hannover Messe

19. - 23.04.2010, Hannover

Präsentationsinsel „Brennstoffzellen-Forschung und Technologieentwicklung“

18th World Hydrogen Energy Conference 2010

15. - 21.05.2010, Essen

Präsentationsinsel „Brennstoffzellen-Forschung und Technologieentwicklung“

9th European SOFC Forum

26.06. - 2.07.2010, Luzern/Schweiz

SOFC-Forschung und Technologieentwicklung

6.6 Anfahrtsbeschreibung

6.6.1 Mit dem PKW

Aus Richtung Köln kommend über die Autobahn A 4 (Köln - Aachen) bis Abfahrt Düren, dort rechts abbiegen in Richtung Jülich (B 56), nach etwa 10 km rechts in die L 253 abbiegen, der Beschilderung zum Forschungszentrum folgen.

Aus Richtung Aachen kommend über die Autobahn A 44 (Aachen - Düsseldorf) bis Abfahrt Jülich-West, am ersten Kreisverkehr links in Richtung Jülich, am zweiten Kreisverkehr rechts abbiegen in Richtung Düren (B 56); nach ca. 5 km links in die L 253 einbiegen, der Beschilderung "Forschungszentrum" folgen.

Vom Flughafen Düsseldorf die Autobahn A 52 (Richtung Düsseldorf/Mönchengladbach), dann die A 57 (Richtung Köln) bis Neuss-West, weiter auf der A 46 (Richtung Jüchen/Grevenbroich), dann A 44 (Richtung Aachen). Weiter wie "aus Richtung Düsseldorf kommend".

Aus Richtung Düsseldorf über die Autobahn A 44 (Düsseldorf - Aachen) kommend gibt es zwei Möglichkeiten:

1. (kürzere Strecke mit Stadtverkehr) bis Abfahrt Jülich-Ost, rechts abbiegen, auf der B55n ca. 500 m rechts abbiegen in Richtung Jülich, nach 200 m vor den Sendeanlagen links abbiegen, weiter bis zum Kreisverkehr "Merscher Höhe", dort links abbiegen, vorbei am Solar-Campus der Fachhochschule, immer geradeaus entlang der Brunnenstraße, Kreuzung Römerstraße überqueren, weiter auf der Wiesenstraße, hinter dem Kreisverkehr und dem Wohnwagenhändler links abbiegen bis zum Forschungszentrum (beschildert).

2. (längere Strecke, aber zügigere Verkehrsführung) bis Abfahrt Jülich-West, am ersten Kreisverkehr links in Richtung Jülich, am zweiten Kreisverkehr rechts abbiegen in Richtung Düren (B 56); nach ca. 5 km links in die L 253 einbiegen, der Beschilderung "Forschungszentrum" folgen.



Abb. 151: Anfahrtsplan Euregio Rheinland

Navigation: In Ihr Navigationssystem geben Sie bitte als Ziel "Wilhelm-Johnen-Straße" ein. Von dort sind es nur wenige hundert Meter zum Haupteingang; bitte beachten Sie die Beschilderung. Das Forschungszentrum selbst ist nicht Bestandteil des öffentlichen Straßennetzes und wird von Navigationssystemen daher nicht erkannt.

6.6.2 Mit dem Flugzeug

Flughafen Köln/Bonn: Vom Bahnhof am Flughafen entweder zum Hauptbahnhof Köln mit der S13, von dort mit dem Regional-Express zum Bahnhof Düren oder zum Bahnhof Köln-Ehrenfeld mit dem Regional-Express und von dort mit der S12 zum Bahnhof Düren. Von Düren weiter: siehe "Mit der Bahn"

Mit der Bahn **Flughafen Düsseldorf:** Vom Bahnhof am Flughafen zum Hauptbahnhof Köln und weiter zum Bahnhof Düren. Manche Züge fahren direkt durch, bei anderen muss man am Hauptbahnhof Köln umsteigen. Von Düren weiter: siehe "Mit der Bahn"

6.6.3 Mit der Bahn

Bundesbahn von Aachen oder Köln kommend bis Bahnhof Düren, von dort mit der Dürener Kreisbahn ("Rurtalbahn") bis Station "Forschungszentrum". Von dort rechts gehen, dann sind es etwa 20 Minuten zu Fuß zum Haupteingang des Forschungszentrums.



Abb. 152: Lageplan Forschungszentrum Jülich

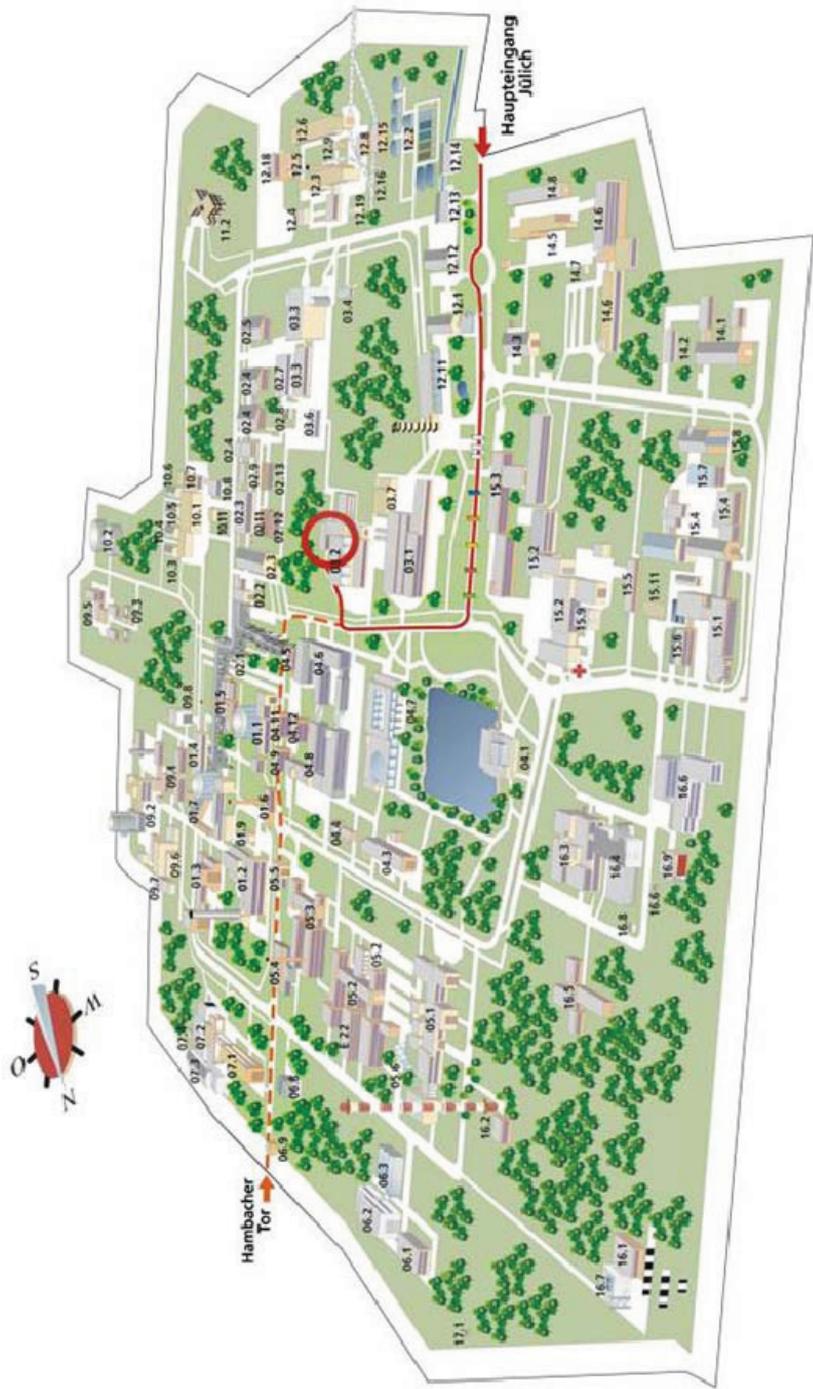


Abb. 153: Lageplan Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-3: Brennstoffzellen), Helmholtz-Ring H8, Geb. 03.2

6.7 Abkürzungsverzeichnis

ABPBI	Poly-2,5-benzimidazole
ACC beku	Herstellung und Vertrieb chemischer Spezialerzeugnisse GmbH
ACL	Katalysatorschicht auf der Anodenseite (engl.: Catalytic Layer on the Anode Side)
AGEF	Arbeitsgemeinschaft Elektrochemischer Forschungseinrichtungen e.V.
AKG	Autokühler GmbH & Co. KG
AP	Luftvorwärmer (engl.: Air Preheater)
APU	Bordstromversorgungseinheit (engl.: Auxiliary Power Unit)
ASP	Automatisierte Standardporosimetrie (engl.: Automated Standard Porosimetry)
ATR	Autotherme Reformierung
BESSY II	Elektronenspeicherring des Helmholtz-Zentrum Berlin
BEV	Batterieelektrisches Fahrzeug (engl.: Battery Electric Vehicles)
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
BMW	Bayrische Motorenwerke AG
BMWi	Bundesministerium für Wirtschaft
BOC	British Oxygen Company – ein Mitglied der Linde-Gruppe
BOL	Betriebsstart (engl.: Beginning of Life)
BP	Bipolarplatte
BREZEL	Expertenkomitee Brennstoffzelle des Vereins Deutscher Ingenieure (VDI)
BTL	Biomasse zu Flüssigkraftstoff (engl.: Bio-To-Liquid)
BWK	Zeitschrift Brennstoff Wärme Kraft
CAB	Katalytbrenner (engl.: Catalytic Burner)
CALLUX	Leuchtturmprojekt für den Feldtest von Brennstoffzellen-Heizgeräten
CCM	Katalysatorbeschichtete Membran (engl.: Catalyst Coated Membranes)
CCS	CO ₂ -Abtrennung und Speicherung (engl.: Carbon Dioxide Capture and Storage)
CE	Europäisches Zulassungszeichen (engl.: Certification Europe)
CFD	Rechnergestützte Fluidodynamik (engl.: Computational Fluid Dynamics)
CGO	Cerium-Gadoliniumoxid: Ce _{0,8} Gd _{0,2} O _{2-δ}
CHP	Kraft-Wärmekopplungseinheiten (engl.: Combined Heat and Power)
CL	Katalysatorschicht (engl.: Catalyst Layer)
CLSM	Konvokales Laserscanning-Mikroskop (engl.: Confocal Laser Scanning Microscope)
CO	Kohlenmonoxid (engl.: Carbon Monoxide)
DC/DC	Gleichspannungskonverter (engl.: Converter from Direct Current to Direct Current)
DEFC	Direktethanol-Brennstoffzelle (engl.: Direct Ethanol Fuel Cell)
DeS I	Modul zur thermischen Abtrennung von Kraftstoffen aus Mitteldestillaten
DeS II	Modul zur hydrierenden Entschwefelung von Mitteldestillaten
DIN EN ISO	ISO 9000: Standards mit Bezug zum Qualitätsmanagementsystem
DKE	Deutsche Kommission Elektrotechnik Elektronik Informationstechnik
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt

DMFC	Direktmethanol-Brennstoffzelle (engl.: Direct Methanol Fuel Cell)
DoE	Energieministerium (engl.: Department of Energy)
DOE	Experimenteller Auslegungsfall (engl.: Design of Experiments)
DSC	Differenzthermoanalysator (engl.: Differential Scanning Calorimeter)
EDX	Energiedisversive Röntgenspektroskopie (engl.: Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy)
EGSE	Expertengruppe für Energiewissenschaft (engl.: Experts Group on Science for Energy)
ELBASYS	Kooperationsprojekt "Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf", Unterprojekt „Brennstoffzellenabgas für die Tankinertisierung“
ENSA	Projekt „Entwicklung Nebenaggregate SOFC APU“
EOL	Lebensende (engl.: End of Life)
EU	Europäische Union
FC	Brennstoffzelle (engl.: Fuel Cell)
FCH	Brennstoffzelle und Wasserstoff (engl.: Fuel Cell and Hydrogen)
FCHVs	Brennstoffzellen-hybridelektrisches Fahrzeug (engl.: Fuel Cell Hybrid Electric Vehicles)
FCCT	Freudenberg Fuel Cell Component Technologies SE & Co.KG
FEM	Finite Elemente Modellierung (engl.: Finite Element Modelling)
FE-SEM	Feldemissionsscanning-Elektronenmikroskop (engl.: Field Emission Scanning Electron Microscope)
FMEA	Fehlermöglichkeits- und Einflußanalyse (engl.: Failure Mode Effect Analysis)
FTIS	Brennstofftank-Inertisierungssystem (engl.: Fuel Tank Inerting System)
FuMA-Tech	Gesellschaft für funktionelle Membranen und Anlagentechnologie mbH
FVEE	ForschungsVerbund Erneuerbare Energien
FZD	Forschungszentrum Dresden-Rossendorf
FZJ	Forschungszentrum Jülich
GDEs	Gasdiffusionselektroden
GDL	Gasdiffusionsanlage
GFZ	Helmholtz Zentrum Potsdam - Deutsches GeoForschungsZentrum
GHG	Treibhausgase (engl.: Greenhouse Gases)
GTL	Gas zu Flüssigkraftstoff (engl.: Gas-To-Liquid)
GUS	Gemeinschaft unabhängiger Staaten
GVC	Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen
HGF	Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren
HT-PEFC	Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle
HT-PEMFC	Hochtemperatur-Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle
HT-PEM	Hochtemperatur-Polymerelektrolytmembran
HTS	Hochtemperatur-Zone (engl.: High-Temperature Section)
HZB	Helmholtz-Zentrum Berlin
HZG	Helmholtz-Zentrum Geesthacht
IAHE	Internationale Gemeinschaft für Wasserstoffenergie (engl.: International Association for Hydrogen Energy)
ICEPE	Internationale Konferenz für Energieverfahrenstechnik (engl.: International Conference on Energy Process Engineering)

IGCC	Gas- und Dampfkraftwerk mit integrierter Kohlevergasung (engl.: Integrated Gasification Combined Cycle)
IEA	Internationale Energieagentur (engl.: International Energy Agency)
IEK-1	Institut für Werkstoffsynthese und Herstellungsverfahren
IEK-2	Institut für Werkstoffstruktur und -eigenschaften
IEK-3	Institut für Brennstoffzellen
IGSWEEP-JÜL	Jülicher Verfahrensansatz zur Anwendung in CO ₂ -freien Kraftwerken
IPHE	Internationale Partnerschaft für Wasserstoff und Brennstoffzellen in der Wirtschaft (engl.: International Partnership for Hydrogen and Fuel Cells in the Economy)
IPP	Max-Planck-Institut für Plasmaphysik
ISEA	Institut der Stromtrichtertechnik und Elektrische Antriebe der Rheinisch-Westfälischen Universität Aachen
IQ-BZ	Initiative Qualifizierung Brennstoffzelle
KIER	Koreanisches Institut für Energieforschung (engl.: Korea Institute of Energy Research)
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
LiMi	Lichtmikroskop (engl.: Light Microscope)
LSC	Lanthan-Strontium-Kobaltit
LSCF	Lanthanum-Strontium-Eisen-Kobaltit
LSM	Lanthanum Strontium Magnesiumoxid: La _{0,65} Sr _{0,3} MnO ₃
LT-PEFC	Niedertemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (engl.: Low-Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cell)
MATLAB	Programmiersprache für technische Berechnungen
MCFC	Karbonatschmelze-Brennstoffzelle (engl.: Molton Carbonate Fuel Cell)
MDS	Mitteldestillatsynthesen
MEA	Membran-Elektroden-Einheit (engl.: Membrane Electrode Assembly)
MeOH	Methanol: CH ₃ OH
MEM-BRAIN	Membrantechnologien für saubere Kohlekraftwerke (HGF Projekt „Membrantechnologie für saubere Kohlekraftwerke“)
MGO	Schiffsdiesel (engl.: Marine Gas Oil)
MOR	Methanoloxidationsreaktion
MVEG	Neuer europäischer Fahrzyklus der Gruppe für Kraftfahrzeugemissionen (engl.: Motor Vehicle Emissions Group)
NDIR	Nichtdispersiver Infrarotanalysator (engl.: Nondispersive Infrared Adsorption Analyser)
N.ERGHY	Gesellschaft der Europäischen Forschungseinrichtungen für Brennstoffzellen und Wasserstoff (engl.: New European Research Grouping on Fuel Cells and Hydrogen)
NIST	Nationales Institut für Standards und Technologie
NRW	Nordrhein-Westfalen
OCV	Zelle im stromlosen Zustand (engl.: Open Cell Voltage)
O&M	Betrieb und Wartung (engl.: Operating and Maintenance)
OWI	Oel-Waerme-Institut
OXY-CLEAN	Konzept zur CO ₂ -Abtrennung in Kraftwerksprozessen
OXY-VAC-JÜL	Konzept zur CO ₂ -Abtrennung in Kraftwerksprozessen
OXYMEM	Projekt zur CO ₂ -Abtrennung mit Membranen

PBI	Polybenzimidazol
PBZ	Projekt Brennstoffzellen
PEFC	Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (engl.: Polymer Electrolyte Fuel Cell)
PEM	Polymerelektrolytmembran
POF	Programmorientierte Förderung
PPs	Kraftwerke (engl.: Power Plants)
PRO/II	Prozessanalyse-Software
PSC	Prozessspezifische Kriterien (engl.: Process-Specific Criterion)
pSOC	Teilladungszustand (engl.: Partial State of Charge)
PTFE	Polytetrafluoroethylen
PVD	Physikalische Gasphasenabscheidung (engl.: Physical Vapor Deposition)
QA	Qualitätssicherung (engl.: Quality Assurance)
QAS	Qualitätssicherungssystem (engl.: Quality Assurance System)
QM	Qualitätsmanagement
QMS	Qualitätsmanagementsystem
RAG	Ruhrkohle Aktiengesellschaft
REUN	Rationelle Energieumwandlung und –nutzung
R&D	Forschung und Entwicklung (engl.: Research and Development)
RuN-PEM	Projekt „Röntgen- und neutronenbasierte Untersuchungsmethoden für PEM-Brennstoffzellen“
RWE	Energieversorgungs Aktiengesellschaft
RWTH	Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen
S++	Firma für Simulationsdienstleistungen
SCT	Segmentierte Zellentechnologie (engl.: segmented cell technology)
SFC	Smart Fuel Cells Energy Aktiengesellschaft
SEM	Rasterelektronenmikroskop (engl.: Scanning Electron Microscope)
SPP	Dampfkraftwerk (engl.: Steam Power Plant)
SRMS	ortsaufgelöste Massenspektroskopie (engl.: Magnetic Imaging and Mass Spectroscopy)
SOFC	Festoxid-Brennstoffzelle (engl.: Solid Oxide Fuel Cell)
TG	Thermogravimetrische Analyse
TGA	Thermogravimetrie-Analysator
TGA/DTA	Simultanes Thermoanalysengerät
TMA	Thermomechanische Analyse
TOC	Gesamtkohlenstoffkonzentration aller organischen Bestandteile (engl.: Total Concentration of Total Organic Carbon)
UFZ	Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung
VA-RHLQ-01	Datenbank für Dokumente mit Bezug auf Qualitätsmanagement
VBZ	Verfahrenstechnik Brennstoffzelle
VDI Verlag	Verlag - Verein Deutscher Ingenieure
WBZU	Weiterbildungszentrum Brennstoffzelle Ulm e.V.
WGS	Water-Gas Shift Reaktor
WGS-MR	Water-Gas Shift Membranreaktor
WHEC	Welt-Wasserstoffenergie Konferenz (engl.: World Hydrogen Energy Conference)
WILEY-VCH	WILEY-Verlag Chemie

WHG	Wasserhaushaltsgesetz
WTW	Well-to-Wheel
YSZ	Yttriumoxid stabilisiertes Zirkonoxid
ZAT	Zentralabteilung Allgemeine Technologie
ZBT	Zentrum für Brennstoffzellentechnik
Zeus	Projekt „SOFC Stackentwicklung“

Band / Volume 135

Untersuchung der Ladungsträgerkonzentration und -beweglichkeit in mikrokristallinen Siliziumlegierungen mit Hall-Effekt und Thermokraft

C. Sellmer (2012), 159 pp.

ISBN: 978-3-89336-778-8

Band / Volume 136

Development of thin film inorganic membranes for oxygen separation

H. J. Moon (2012), XII, 118 pp.

ISBN: 978-3-89336-781-8

Band / Volume 137

Influence of Material and Testing Parameters on the Lifetime of TBC Systems with MCrAlY and NiPtAl Bondcoats

P. Song (2012), V, 126 pp.

ISBN: 978-3-89336-783-2

Band / Volume 138

Strömungsmechanische Modellierung eines Brenngaserzeugungssystems

F. Scharf (2012), vi, 223 pp.

ISBN: 978-3-89336-784-9

Band / Volume 139

Clouds and aerosol in infrared radiative transfer calculations for the analysis of satellite observations

S. Grießbach (2012), viii, 169 pp.

ISBN: 978-3-89336-785-6

Band / Volume 140

Untersuchung zum Thin Film Low Pressure Plasma Spraying (LPPS-TF) Prozess

A. Hospach (2012), 165 pp.

ISBN: 978-3-89336-787-0

Band / Volume 141

Development of thermal spray processes with liquid feedstocks

A. Guignard (2012), 128 pp.

ISBN: 978-3-89336-788-7

Band / Volume 142

Herstellung uranbasierter Keramiken mittels interner Gelierung zur Konversion trivalenter Actinoiden

H. Daniels (2012), 154 pp.

ISBN: 978-3-89336-794-8

Band / Volume 143

Experimental and numerical studies on solute transport in unsaturated heterogeneous porous media under evaporation conditions

M. Bechtold (2012), xviii, 131 pp.

ISBN: 978-3-89336-795-5

Band / Volume 144

Konzept und Kosten eines Pipelinesystems zur Versorgung des deutschen Straßenverkehrs mit Wasserstoff

D. Krieg (2012), 228 pp.

ISBN: 978-3-89336-800-6

Band / Volume 145

Mechanistic studies on the OH-initiated atmospheric oxidation of selected aromatic hydrocarbons

S. Nehr (2012), viii, 129 pp.

ISBN: 978-3-89336-804-4

Band / Volume 146

Electron Spin Resonance Investigation of Semiconductor Materials for Application in Thin-Film Silicon Solar Cells

L. Xiao (2012), VIII, 147 pp.

ISBN: 978-3-89336-805-1

Band / Volume 147

Untersuchungen zum Sicherheits- und Transmutationsverhalten innovativer Brennstoffe für Leichtwasserreaktoren

O. Schitthelm (2012), V, 150 pp.

ISBN: 978-3-89336-806-8

Band / Volume 148

IEK-Report 2011. Klimarelevante Energieforschung

(2012), ca. 250 pp.

ISBN: 978-3-89336-808-2

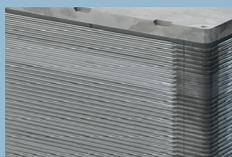
Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter
<http://wwwzb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>

Institut für Energie- und Klimaforschung – Brennstoffzellen (IEK-3)

Das IEK-3 ist einer von 9 Institutsbereichen des Instituts für Energie- und Klimaforschung in der Forschungszentrum Jülich GmbH. Die Forschungsarbeiten des IEK-3 sollen bei gesellschaftlicher, ökologischer und ökonomischer Relevanz im internationalen Vergleich Spitzenergebnisse erbringen. Diese Qualität der Arbeit soll durch grundlegende Forschung in enger Koordination mit technischen Entwicklungsarbeiten in relevanten, wissenschaftlich-technischen Kompetenzfeldern erzielt werden. Hierbei kommt internationalen Kooperationen mit Partnern aus Forschung und Industrie besondere Bedeutung zu.

Bei der Umsetzung der Forschungsergebnisse in innovative Produkte, Verfahren und Prozesse will das IEK-3 durch Zusammenarbeit mit der Industrie einen Beitrag zur Überbrückung der Kluft zwischen Wissenschaft und Technik leisten. Angebote zur Aus- und Weiterbildung stehen im Fokus der Zusammenarbeit mit Universitäten, Fachhochschulen, Lehrwerkstätten und Ausbildungszentren.

Das IEK-3 ist mit etwa 100 Mitarbeitern auf die Grundthematik der Elektrochemie und Verfahrenstechnik für Brennstoffzellen ausgerichtet. Im Sinne eines integrierten Arbeitsansatzes werden die vier Schwerpunktaktivitäten Direktmethanol-Brennstoffzellen, Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen, Festoxid-Brennstoffzellen und Brenngaserzeugungssysteme von systemanalytischen und theoretischen Betrachtungen, grundlegenden Modellierungen und Simulationen sowie experimentellen und theoretischen Systembewertungen begleitet. Die Erkenntnisse aus den genannten Bereichen fließen in die Auslegung funktionstüchtiger Systeme und deren Verifikation. Daneben wird der Entwicklung, dem Aufbau und der Anwendung spezieller Messmethoden zur Strukturanalyse von Membran-Elektroden-Einheiten zur Strömungssimulation und -visualisierung sowie zur Charakterisierung von Stacks besondere Aufmerksamkeit geschenkt.



Der abgebildete Festoxid-Brennstoffzellenstapel (SOFC) besteht aus 36 Zellen mit einer aktiven Zellfläche von jeweils 360 cm². Die Nennleistung bei einer mittleren Zellspannung von 800 mV beträgt etwa 5,5 kW. Betrieben wird der Stack mit Erdgas, das direkt auf der Anode zu Wasserstoff und CO reformiert wird.



Der abgebildete Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellenstapel (HT-PEFC) besteht aus insgesamt 30 Zellen. Bei einer aktiven Zellfläche von 320 cm² beträgt die maximale, elektrische Leistung etwa 2 kW. Als Besonderheiten sind der modulare Aufbau und das zweischalige Bipolarplatten-Design mit integrierter Temperierung zu nennen.



Der abgebildete Direktmethanol-Brennstoffzellenstapel (DMFC) ist Teil eines Hybrid-systems zum Batterieersatz in der leichten Traktion. Die elektrische Nennleistung beträgt 1,3 kW (Peak: 3 kW). Der Stapel besteht aus 90 Zellen mit je 315 cm² aktiver Fläche. Die Bipolarplatten bestehen aus expandiertem Graphit. Der kathodische Druckverlust liegt unter 2 mbar, so dass ein Gebläse zur Luftversorgung genutzt werden kann.