

# IEK-3 Report 2015

Systemforschung und -technik  
für eine nachhaltige Energieversorgung



Energie & Umwelt /  
Energy & Environment  
Band / Volume 280  
ISBN 978-3-95806-078-4





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

## **IEK-3 Report 2015**

Systemforschung und -technik  
für eine nachhaltige Energieversorgung

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

Band / Volume 280

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-078-4

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  
52425 Jülich  
Tel.: +49 2461 61-5368  
Fax: +49 2461 61-6103  
E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
[www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2015

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 280

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-078-4

Vollständig frei verfügbar über das Publikationsportal des Forschungszentrums Jülich (JuSER)  
unter [www.fz-juelich.de/zb/openaccess](http://www.fz-juelich.de/zb/openaccess).

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.

<b>Vorwort</b>	<b>2</b>
<b>1 Beiträge für internationale Konferenzen</b>	<b>5</b>
1.1 Vorbereitung, Durchführung und Resultat der 3. ICEPE 2013 .....	6
1.2 Wissenschaftliche Koordination der TRENDS 2015 .....	10
<b>2 Aus- und Weiterbildung</b>	<b>13</b>
2.1 Ausbildung an Hochschulen .....	14
2.2 Beiträge für die Information und Weiterbildung .....	19
<b>3 Wissenschaftlich-technische Berichte</b>	<b>25</b>
3.1 Festoxid-Brennstoffzellen .....	26
3.2 Brenngaserzeugung und Systeme .....	39
3.3 Hochtemperatur-Polymer-elektrolyt-Brennstoffzellen .....	50
3.4 Direktmethanol-Brennstoffzellen .....	64
3.5 Polymer-elektrolyt-membran-Elektrolyse .....	75
3.6 Verfahrens- und Systemanalyse .....	88
3.7 Physiko- und elektrochemische Grundlagen .....	96
3.8 Qualitätssicherung .....	106
<b>4 Besondere Ergebnisse</b>	<b>109</b>
4.1 Diffusion und Ionenleitung entlang keramischer Grenzflächen .....	110
4.2 Mobile Brenngaserzeugungssysteme mit Mitteldestillaten für HT-PEFCs .....	115
4.3 Wasserverteilung in der HT-PEFC .....	123
4.4 Effizienz Aspekte der Hochdruck-Wasserelektrolyse .....	126
4.5 Markteinführung der Pkw-Brennstoffzelle mit erneuerbarem Wasserstoff .....	132
<b>5 Ausblick auf neue FuE-Vorhaben</b>	<b>139</b>
5.1 Entwicklung eines reversibel arbeitenden Systems auf SOFC-Basis .....	140
5.2 Metallische Bipolarplatten für HT-PEFCs .....	145
5.3 Die Elektrolyse-Pilotanlage des Wasserstofftechnikums JuHY .....	150
5.4 Flexibilisierung durch integrierte Energieversorgungssysteme .....	156
<b>6 Zahlen, Daten und Fakten</b>	<b>161</b>
6.1 IEK-3: Das Institut für Elektrochemische Verfahrenstechnik .....	162
6.2 Abteilungskompetenz im Überblick .....	165
6.3 Publikationen, Technologietransfer und Ressourcen .....	169
6.4 Gremienarbeit .....	171
6.5 Beiträge zu Messen und Ausstellungen .....	174
6.6 Anfahrtsbeschreibung .....	176
6.7 Abkürzungsverzeichnis .....	179

# Vorwort

Liebe Leser,

im Folgenden möchte ich Ihnen einen kurzen Überblick über die Ausrichtung des Institutes in den Jahren 2013 und 2014 geben und über einige ausgesuchte Erfolge berichten, die Sie zum Weiterlesen animieren sollen.

In den Jahren 2013 und 2014 hat sich das Institut weiter auf Themen der Energiewende ausgerichtet. Die Wasserelektrolyse als wichtige Technologie zur Speicherung erneuerbarer Energie wurde verstärkt und die Systemanalyse des IEK-3 wurde weiter ausgebaut. Neben der sauren Wasserelektrolyse wurde auch die alkalische Wasserelektrolyse in das Arbeitsprogramm aufgenommen. Aus der Arbeit mit der keramischen Brennstoffzelle heraus wurde der bifunktionale Betrieb im Brennstoffzellen- und Elektrolysemodus weiter erforscht. Durch erfolgreiche Projektakquisitionen ist auch gelungen, die Systemanalyse so zu verstärken, dass das deutsche Energiesystem untersucht und abgebildet werden kann. In diesem Rahmen ist auch ein Konsortium mit 19 Instituten der RWTH Aachen und des Forschungszentrums Jülich zur Systemanalyse gegründet worden. Außerdem ist das IEK-3 in ein virtuelles Institut des Landes zur Erforschung von "Strom zu Gas und Wärme" eingebunden.

In der Reformierung von Kerosin und Diesel zu Synthesegas sind in den letzten Jahren neben dem eigentlichen Reformer auch die weiteren Reaktoren erarbeitet worden. Eine stabile Reformierung ist in den letzten Jahren gezeigt worden. Als wesentliche Barrieren zur Kommerzialisierung derartiger Aggregate blieben die Dynamik und die Teillastfähigkeit übrig. Daher wurde erfolgreich auf die Einspritzung des Kraftstoffes fokussiert, indem mit einem Industriekonsortium Einspritzdüsen entwickelt wurden. Dies ermöglichte eine Spreizung im Bereich von 15 bis 100 % der Nennlast. In ähnlicher Weise fokussierte sich unsere Entwicklung der keramischen Hochtemperatur-Brennstoffzelle auf die Thermozyklierbarkeit, die ebenfalls eine Kommerzialisierungsbarriere darstellt. Mittels Experimenten und Simulation der mechanischen Spannungen konnte ein 700 W Stack so verbessert werden, dass er 100 Thermozyklen standhält. Auch wenn diese Anzahl für einige Anlagen bereits ausreichen könnte, werden die Arbeiten zur thermomechanischen Stabilität mit hohem Engagement weitergeführt. Auf der Grundlagenseite gelang es, das Aufnahmeverhalten saurer Elektrolyte durch basisches Polybenzimidazol zu beschreiben. Diesem Verhalten kommt besondere praktische Bedeutung bei der Befüllung des Polybenzimidazoles mit Phosphorsäure für die Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle zu. Ein 5 kW Stack der Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle wurde, sowohl mit Wasserstoff, als auch mit synthetischem Reformat erfolgreich betrieben. Die technischen Kompetenzen des Institutes stellen insbesondere durch ihre Breite einen guten Pfeiler für die Systemanalyse dar. In diesem Arbeitsbereich wurde ein regenerativ basiertes Energieversorgungskonzept für Deutschland entwickelt und simulativ verifiziert. Dabei hat sich aus Gründen der Mengenbilanzen und Kosten zwingend eine Sektorkopplung herausgestellt, das die Sektoren Strom und Transport über geeignete Gasinfrastrukturen verbindet. Mehrere der Dissertationen, die die komplexen, teilweise dynamischen Modelle mit einem hohen zeitlichen Auflösungsgrad und hoher physikalisch technischer Detaillierung beschrieben haben, wurden mit Preisen ausgezeichnet.

Der in der elektrochemischen Forschung international anerkannte Alexander Kuznetsov Preis der Electrochemical Society für theoretische Elektrochemie wurde 2013 Professor Andrei Kulikovsky für seine analytischen Modelle zur Beschreibung elementarer Vorgänge in der Brennstoffzelle verliehen. Ich selbst habe den Sir William Grove Award der International Association of Hydrogen Energy verliehen bekommen.

Den Kollegen des IEK-3 möchte ich für ihre engagierte Arbeit, die vielen guten Ideen und deren kooperativen Einsatz besonders danken. Dies war nur durch persönliches Engagement, orientierte Zusammenarbeit und fruchtbaren wissenschaftlichen Austausch der Wissenschaftler untereinander sowie guter Kooperation im technischen und administrativen Bereich möglich. Dem BMBF danke ich für unsere Grundfinanzierung und den zahlreichen Drittmittelgebern für das Vertrauen, das in unser Institut gesetzt wurde.



Jülich, im Juni 2015

A handwritten signature in blue ink, appearing to read 'Detlef Stolten'.



# 1

# Tagungen

## Beiträge für internationale Konferenzen

- Vorbereitung, Durchführung und Resultat der 3. ICEPE 2013
- Wissenschaftliche Koordination der TRENDS 2015

## **1.1 Vorbereitung, Durchführung und Resultat der 3. ICEPE 2013**

Die ProcessNet – eine Initiative von DECHEMA e.V. und VDI-GVC – richtet unter Anderem Veranstaltungsreihen mit Bezug zu den Themen Verfahrenstechnik, Chemieingenieurwesen und Technische Chemie aus. Mit Blick auf die unüberhörbaren Energiewende-Diskussionen und eine entsprechende Positionierung der ProcessNet wurde der Schwerpunkt der dritten Internationalen Konferenz für Energieverfahrenstechnik 2013 auf Beiträge für einen Übergang zu Erneuerbaren Energiesystemen gelegt. In diesem Kontext richteten sich die Konferenzbeiträge an Wissenschaftler sowie Interessenten aus dem industriellen und politischen Sektor. Dabei zielte das Konzept auf die Vorstellung tragfähiger Technologien sowie fehlender Elemente eines zukünftigen Energieversorgungssystems, das in die Lage versetzt werden soll, die durch die G8 gesetzten Ziele zur CO<sub>2</sub>-Minderung von 80% bis 2050 mit einem bereits ab 2030 überwiegenden Anteil Erneuerbarer zu erreichen. Unter der organisatorischen Leitung von Professor Detlef Stolten – Vorsitzender – und Professor Viktor Scherer – Stellvertretender Vorsitzender – wurde die 3<sup>rd</sup> ICEPE 2013 in der Zeit vom 3. bis 6. Juni 2013 in Frankfurt am Main mit etwa 120 Teilnehmern aus 19 Ländern durchgeführt.

### **1.1.1 Wissenschaftliche Koordination**

Zur Einführung in die Konferenz wurde das Plenum am ersten Tag durch Konferenzleiter Professor Stolten sowie Staatssekretär Schütte begrüßt und danach mit fünf Beiträgen über die charakteristischen Treiber und großen Herausforderungen beim Transformationsprozess hin zu Erneuerbaren Energiesystemen informiert. Danach beleuchteten 10 Plenarbeiträge aus 7 Ländern technische Lösungsansätze und kohärente Strategien für die Transformation hin zu Systemen mit Erneuerbaren unterschiedliche Energiesektoren bis hin zu einem nachhaltigen System mit globalem Anspruch. Der Vormittag des zweiten Tages begann mit vier Plenarbeiträgen über Einsparungspotenziale und Technologien in der Industrie, wirtschaftliche Aspekte der Transformation, Einführung in die elektrischen Transportnetze und Pumpspeicher-Kraftwerke. Daran schlossen sich vier Parallelveranstaltungen zu den Themen Batterien, Biomasse, chemische Speicher und nachhaltige Gebäude an, die jeweils durch einen Übersichtbeitrag eingeführt wurden. Der Nachmittag des zweiten Tages startete wiederum mit zwei Plenarbeiträgen zu Erdgas-Pipelinesystemen und einer zukünftigen Wasserstoff-Infrastruktur. Mit zwei Mal vier parallelen Beiträgen beginnend mit Photovoltaik, elektrochemische H<sub>2</sub>-Erzeugung, Power-to-Gas sowie Schwellen- und Entwicklungsländern anschließend Solar- und Geothermie, geologische Gasspeicher und Biomasse zur Stromerzeugung endete der zweite Tag. Der dritte und letzte Tag wurde im Plenum mit Einführungen in die Komponenten von elektrischen Transportnetzen, in die Energiespeichertechnologien und in umfassende Transformationskonzepte begonnen. Anschließende Parallelvorträge zur Nutzung von Wasserkraft im maritimen Umfeld, die zukünftige Rolle fossiler Kraftwerke, intelligente Netze und nachhaltige Gebäude im europäischen Umfeld rundeten den Vormittag ab. Den Einstieg in den Nachmittag lieferten drei Plenarbeiträge mit Bezug auf die Stromerzeugung aus Onshore- und Offshore-Wind sowie Wasserkraft. Vier abschließende Parallelveranstaltungen widmeten sich der Elektromobilität, den Biokraftstoffen, der chemische Erzeugung und der bodennahen Speicherung von Wasserstoff.

	Di, 4. Juni	Mi, 5. Juni	Do, 6. Juni
09:00			
10:00	Registrierung	Plenum	Plenum
11:00	Plenum	Parallelveranstaltungen	Parallelveranstaltungen
12:00		Mittagspause & Poster	Mittagspause & Poster
13:00		Plenum	Parallelveranstaltungen
14:00	Plenum	Parallelveranstaltungen	
15:00			Abschlußplenum
16:00			
17:00			
18:00			
19:00	Empfang & Poster	Empfang & Konferenzgala	
20:00			

**Tab. 1: Programmübersicht der 3. ICEPE 2013**

Kernstück der Konferenz waren die insgesamt 50 wissenschaftlich-technischen Beiträge von 15 Minuten Dauer zu insgesamt 20 übergeordneten Themen. Jedes Thema wurde von 30-minütigen Übersichtsvortrag eingeführt. 12 zusätzliche Planarbeiträge dienten der Begleitung, lieferten zusätzliche Informationen und hatten entweder einen direkten Bezug zu einem Teil der Themen oder ergänzten das Themenfeld im Sinne der Konferenz. Eine Übersicht des Konferenzprogramms sowie der Themen geben die Tab. 1 und Tab. 2

Themenfeld	Strom-erzeugung	Gas-erzeugung	Biomasse & -kraftstoffe	Energie-speicher	Energie-verteilung	Endverbraucher-technologie	Andere
Thema	Onshore Windkraft	Chemische Gaserzeugung	Globale Aspekte und Ressourcen	Pumpspeicher-kraftwerke	Intelligente Netze	Nachhaltige Gebäude - OECD	Schwellen- und Entwicklungsländer
	Offshore Windkraft	Elektrochemische Gaserzeugung	Stromerzeugung aus Biomasse	Geologische Gasspeicher	Power-to-Gas Technologie	Nachhaltige Gebäude - BRICS	
	Photovoltaik	Photoelektrische Gaserzeugung	Biokraftstoffe	Technische Gasspeicher		Elektromobilität	
	Solarthermie						
	Meeresenergie-kraftwerke						
	Wasserkraft						
	Geothermie				Fortschrittliche Batterien		
Zukünftige Rolle fossiler Kraftwerke							

**Tab. 2: Übersicht der übergeordneten Konferenzthemen**

Ein weiterer Veranstaltungsteil bot den interessierten Konferenzteilnehmern parallel zu den Mittagspausen und am Abend des ersten Konferenztages den notwendigen Raum für eine umfassende Diskussion mit den jeweiligen Autoren von knapp 50 wissenschaftlichen Postern. Auf dem Empfang der Konferenzveranstalter die traditionellen Poster-Preise im angemessenen Rahmen an die drei besten Posterbeiträge verliehen.

### 1.1.2 Eigene Konferenzbeiträge

Die mit FuE-Themen im Zusammenhang mit Erneuerbaren Energiesystemen befassten Wissenschaftler des IEK-3 waren auf zahlreichen Veranstaltungsebenen der ICEPE 2013 vertreten. Insgesamt steuerten Vertreter des IEK-3 vier Vorträge und zwei Poster bei. Einen Überblick der Beiträge zu den verschiedenen Veranstaltungsteilen liefert Tab. 3.

Presentationsform	Titel	Sprecher
Plenarvortrag	Hydrogen as an enabler for renewable energies	Detlef Stolten
Parallelvortrag	Status on technologies for hydrogen production by water electrolysis	Jürgen Mergel
	Power to gas	Sebastian Schiebahn
Posterbeitrag	Geological storage for the transition from natural to hydrogen gas	Joachim Wackerl
	Physical modelling of fuel cells: at the electrochemistry / chemical engineering interface	Andrej Kulikovskiy
	Energy-efficient refurbishment - energy saving potential	Florian Scharf

**Tab. 3: Vorträge und Poster von Wissenschaftlern des IEK-3**

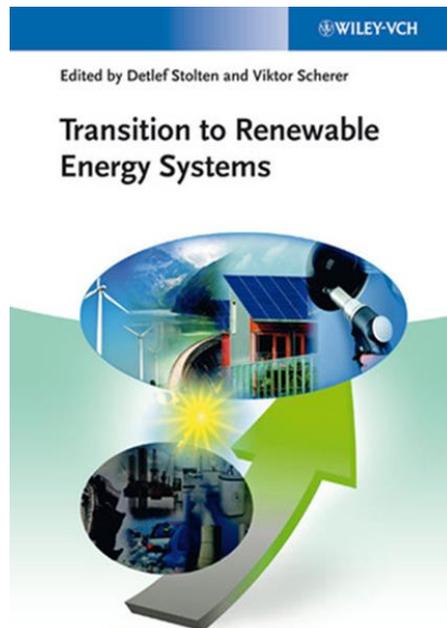
Mit Ergebnissen aus quantifizierten Pfadanalysen stellte Professor Stolten mit seinem Plenarvortrag die besondere Rolle von Wasserstoff beim umfassenden Einsatz erneuerbarer Energie heraus. Mit ihren Übersichtsvorträgen zum Stand der Technik von Elektrolyse, PtG-Prozessen und Kavernenspeichern konnten Herr Mergel, Herr Dr. Schiebahn und Herr Dr. Wackerl weitere Highlights auf der Konferenz setzen. Mit zwei Posterbeiträgen wurden die Beiträge des IEK-3 für die ICEPE 2013 abgerundet.

### 1.1.3 Herausgabe von Büchern und Schriften

Bereits mit den Konferenzunterlagen erhielten alle Teilnehmer die erste Auflage des WILEY-VCH-Buches „Transition to Renewable Energy Systems“ herausgegeben von den Konferenzleitern Professor Stolten und Professor Scherer (siehe Abb. 1). Das 969-seitige Buch enthält die vollständigen Texte des wesentlichen Teils der Plenar- und Übersichtsbeiträge der 3. ICEPE 2013 und soll erfahrenen Experten als Daten- und Publikationsfundus sowie unerfahrenen Interessenten als umfassendes Nachschlagewerk zum Einstieg in das Thema dienen. Die insgesamt 43 Artikel mit einem durchschnittlichen Umfang von 20 Seiten sind in die folgenden Themenbereiche untergliedert:

- Strategien für Erneuerbare
- Stromerzeugung
- Gaserzeugung
- Biomasse
- Speicherung
- Verteilung
- Anwendungen

Wissenschaftler des IEK-3 lieferten mit fünf Übersichtsartikeln einen erkennbaren Beitrag für das Fachbuch.



**Abb. 1: Buch der Plenar- und Übersichtsartikel**

## 1.2 Wissenschaftliche Koordination der TRENDS 2015

Die „Round Table Discussion“, TRENDS 2015 - Transition to Renewable Energy Devices and Systems zielt auf relevante Themen ab, die eine wichtige Rolle für die Umstellung von bestehenden, fossilbasierten hin zu erneuerbaren Kraftstoffketten einnehmen. Das Diskussionsforum findet am 3. und 4. Dezember 2015 in Aachen statt. Das Konzept dieses Diskussionsforums ist es, bahnbrechende Entwicklungen und noch fehlende Bindeglieder zu identifizieren, damit die G8-Ziele, eine Reduktion der CO<sub>2</sub>-Emissionen um 80 % bis 2050 und der Einsatz einer maßgeblichen Anteils an erneuerbarer Energie bis 2030, erreicht werden können. Das Diskussionsforum fokussiert auf Kraftstoffe für den Transportbereich und korrespondierende Technologien für den Antrieb und die zunehmende elektrische Bordstromversorgung. Die Wechselwirkung zwischen Kraftstoff und Anwendung wird hervorgehoben. Auf der Kraftstoffseite wird eine realistischer quantitative Beurteilung der Potentiale für alternative Kraftstoffe und deren Produktionspfade vorgenommen. Dabei spielen Kostenaspekte bei dieser Umstellung einen wichtigen Beitrag.

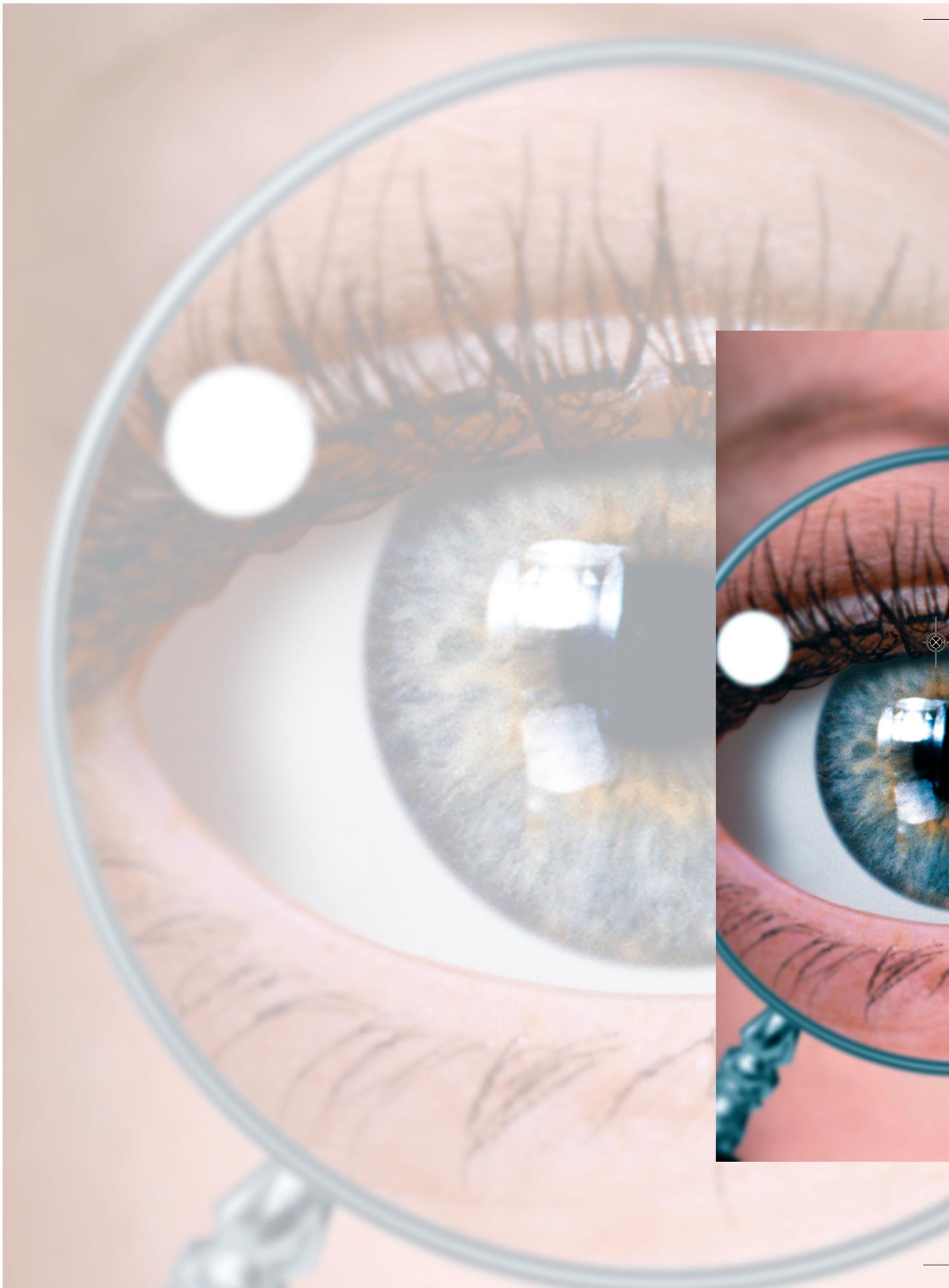
Am ersten Tag des Diskussionsforums werden u.a. globale Biomassepotentiale, alternative Kraftstoffstrategien und die Integration der Biomasse in konventionelle Raffinerieprozesse und deren Verteilungsketten analysiert. Am zweiten Tag werden die zugehörigen Prozesstechniken auf der Produktions- und auf der Anwendungsseite diskutiert. Tab. 4 zeigt eine Aufteilung der relevanten Themen im Überblick.

3. Dezember 2015	4. Dezember 2015
Globale Biomassepotentiale	Bordstromversorgung für Strassen- und Schienenfahrzeuge, Schiffe und Flugzeuge
Zukünftige Energiepfade für den Personentransport	Systemanalyse
Abwasserfreie Bioraffinerien	Thermisches Management elektrischer Antriebe
Ökonomische Analysen	Antriebssysteme für LkW
Zukünftige Trends für Strahltriebwerke	Bioöle
Internationale Kraftstoffstrategien	Biobasierte Oxygenate
Wasserstoff als zukünftiger Energieträger	Netze und Service für Batteriefahrzeuge, Hybride und Brennstoffzellenfahrzeuge
Hydrierung von Pflanzenölen für zukünftige Kraftstoffe	

**Tab. 4: Themenübersicht**

In den Impulsvorträgen ist vorgesehen, jedes Thema durch einen Übersichtsbeitrag, der Grundlagen, technologische Umsetzung, Stand von Wissenschaft und Technik sowie Referenzen vermittelt, einzuführen. Danach erfolgt eine ausführliche Expertendiskussion.



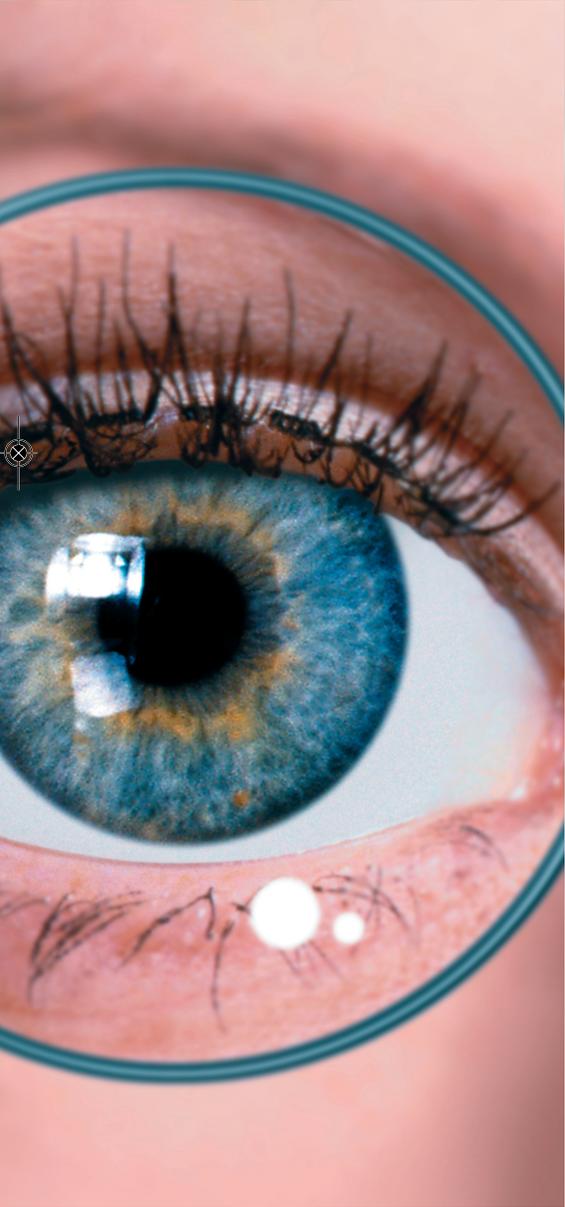


# 2

# Bildung

## Aus- und Weiterbildung

- Ausbildung an Hochschulen
- Beiträge für die Information und Weiterbildung



Neben der Wissensvermehrung auf den Gebieten zukunftsweisender Energieumwandlungstechnologien widmen sich zahlreiche wissenschaftliche Mitarbeiter des IEK-3 mit zielgruppenorientierter Aus- und Weiterbildung. Zum kontinuierlichen Aufbau des wissenschaftlichen Nachwuchses zählen Beiträge zur Ausbildung von Studenten an Universitäten und Fachhochschulen sowie zur fach- und projektorientierten Betreuung von Doktoranden. Darüber hinaus werden Fachkräfte für Labore und die mathematisch-technische Softwareentwicklung im Rahmen dualer Ausbildungsgänge am Institut betreut. Mit den Angeboten für Schüler ab der Jahrgangsstufe 10 liefern die involvierten Mitarbeiter energietechnisch orientierte Beiträge für den Schulbereich.

## 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 W3-Berufung mit der RWTH Aachen, die durch Prof. Dr.-Ing. Dettlef Stolten wahrgenommen wird. Dr. Martin Müller unterstützt Professor Stolten als Lehrbeauftragter bei der Durchführung von vorlesungsbegleitenden Übungen und mündlichen Diplomprüfungen. Darüber hinaus besitzt Prof. Dr. rer. nat. Werner Lehnert eine W2-Berufung an die RWTH Aachen, die er für die naturwissenschaftliche Fakultät wahrnimmt. Ein weiterer Lehrauftrag mit der Justus-Liebig-Universität Gießen wird von Privatdozent Dr. rer. nat. Carsten Korte erfüllt. Zwei weitere W2-Berufungen mit der Fachhochschule Aachen Standort Jülich werden von Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters und Prof. Dipl.-Ing. Ludger Blum ausgeübt. Seit dem Wintersemester 2012/2013 nimmt Dr.-Ing. Murat Peksen eine Lehrtätigkeit an der Fachhochschule Aachen Standort Jülich wahr und Dr.-Ing. Dipl.-Wirt. Ing. Thomas Grube unterstützt Professor Peters als Lehrbeauftragter bei der Durchführung von vorlesungsbegleitenden Übungen und schriftlichen Diplomprüfungen. Abb. 2 liefert die Kontaktdaten zu den vier Hochschulen, an denen Wissenschaftler des IEK-3 lehren und den wissenschaftlichen Nachwuchs ausbilden.



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



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



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



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

**FH AACHEN**  
UNIVERSITY OF APPLIED SCIENCES

**Abb. 2: Hochschulen mit Lehrbeiträgen von IEK-3-Wissenschaftlern**

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 fünf Vorlesungen, drei Übungen und ein Blockseminar. Darüber hinaus wird in jedem Sommersemester ein halbtägiges Praktikum durchgeführt. Die Anzahl der pro Veranstaltung und Semester teilnehmenden Studenten beläuft sich auf bis zu 80 Studierende. Zusätzlich leisten die Wissenschaftler des IEK-3 einen nennenswerten Beitrag zur Betreuung von Studien-, Diplom- und Doktorarbeiten. Bezogen auf den Berichtszeitraum 2013 und 2014 wurden 9 bzw. 10 Bachelor-, 13 bzw. 17 Diplom-/Master- und 6 bzw. 6 Doktorarbeiten erfolgreich abgeschlossen.

### 2.1.1 Lehrveranstaltungen von Hochschullehrern mit Berufung

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

Name	Thema	Art/Umfang Semester		Hochschule
<b>Prof. Dr. D. Stolten</b>	Grundlagen und Technik der Brennstoffzellen	V/2 Ü/2	WS	RWTH Aachen
<b>Prof. Dr. W. Lehnert</b>	Modellierung in der Elektrochemischen Verfahrenstechnik	V/2 Ü/2	WS	RTWH Aachen
<b>Prof. Dr. R. Peters</b>	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
<b>Prof. L. Blum</b>	Brennstoffzellen - Die Zukunft der dezentralen Energieversorgung!?	V/2	WS	FH Aachen Standort Jülich
	Fuel Cells – The Future for Dispersed Power Supply!?	V/2	WS	

**Tab. 5: Lehrveranstaltungen von Hochschullehrern mit Berufungen**

#### 2.1.1.1 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 2013/2014 nahmen

89 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.

#### 2.1.1.2 Modellierung in der Elektrochemischen Verfahrenstechnik

Herr Prof. Werner Lehnert vertritt an der RWTH Aachen das Forschungs- und Lehrgebiet „Modellierung in der Elektrochemischen Verfahrenstechnik“. Die angebotene Vorlesung befasst sich mit der mathematischen Beschreibung von elektrochemischen Wandler-systemen. Neben der grundsätzlichen Herangehensweise an Modellierungsaufgaben werden verschiedene Modellierungsansätze vorgestellt. Am Beispiel von Nieder- und Hochtemperatur-Brennstoffzellen werden 1D-, 2D- und 3D-Modelle verschiedener Komplexität entwickelt und deren Gültigkeit diskutiert. Schwerpunkt der Anwendungsbeispiele ist die mathematische Beschreibung der Wechselwirkungen von Stoff- und Wärmetransport mit den elektrochemischen Prozessen. Ein besonderes Augenmerk liegt auf der Beschreibung von Prozessen in den porösen Komponenten von Brennstoffzellen. Die Vorlesung wurde im Wintersemester 2013/2014 zum zweiten Mal angeboten und von acht Studenten besucht.

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

Herr Prof. Ralf Peters vertritt an der FH Aachen, Standort Jülich, das Fachgebiet Energieverfahrenstechnik. Im Fach „Basics and Applications of Chemical Reaction Theory“ werden die Grundlagen der chemischen Verfahrenstechnik und dynamische Simulationen von Reaktionsapparaten miteinander verknüpft. In Vorlesung und Übung werden Brennstoffzellensysteme für den Fahrzeugantrieb mit Wasserstoff und in Kombination mit einer Brenngaserzeugung für die Bordstromversorgung basierend auf Diesel als Beispiele herangezogen. Die Veranstaltung ist für die 30 – 40 Studenten des Studiengangs Master of Science in Energy Systems verbindlich.

#### 2.1.1.4 Brennstoffzellen – Die Zukunft der dezentralen Energieversorgung!?

Herr Prof. Ludger Blum vertritt an der FH Aachen, Standort Jülich, das Fachgebiet Brennstoffzellentechnik. Im Bachelor-Studiengang „Energie- und Umwelttechnik“ sowie im Master-Studiengang „Energy Systems“ werden im Wahlpflichtfach „Brennstoffzellen für die dezentrale Energieversorgung“ Verständnis für Funktion, Aufbau, Verhalten, Vorteile und Nachteile der verschiedenen Brennstoffzellentypen sowie die Fähigkeit zur verfahrenstechnischen Auslegung von Brennstoffzellensystemen vermittelt. 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. Im Master-Studiengang nehmen durchschnittlich 20 – 30 Studenten das Veranstaltungsangebot wahr, im Bachelor-Studiengang durchschnittlich 10.

## 2.1.2 Lehrveranstaltungen von Lehrbeauftragten an Hochschulen

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

Name	Thema	Art/Umfang Semester		Hochschule
<b>PD Dr. C. Korte</b>	Physikalisch-Chemische Methoden zur Präparation und Charakterisierung von dünnen Schichten	S/2 Block	SS	Justus-Liebig-Universität Gießen
<b>Dr. Martin Müller</b>	Grundlagen und Technik der Brennstoffzellen	Ü/2	WS	RWTH Aachen
<b>Dr. M. Peksen</b>	Multiphysikalische Modellierung funktionaler Materialien und Komponenten	V/2	WS	FH Aachen Standort Jülich
<b>Th. Grube</b>	Basics and Applications of Chemical Reaction Theory – Simulation of Dynamic Processes in Energy Systems with Matlab/Simulink	Ü/2	WS	FH Aachen Standort Jülich

**Tab. 6: Lehrveranstaltungen von Lehrbeauftragten an Hochschulen**

### 2.1.2.1 Physikalisch-Chemische Methoden zur Präparation und Charakterisierung von dünnen Schichten

Privatdozent Dr. Carsten Korte hält an der Justus-Liebig-Universität Gießen im Fachbereich Biologie/Chemie eine Seminarveranstaltung. Das Seminar gibt eine grundlegende Einführung in die Präparation und Analyse dünner oxidkeramischer Schichten und deren Nutzung in technischen Anwendungen und richtet sich an alle interessierten Student/inn/en der Masterstudiengänge Chemie, Physik und Materialwissenschaft sowie an die Doktoranden der genannten Fachgebiete. Die wichtigsten Vakuumbedampfungsverfahren wie thermische Verdampfung, Sputtermethoden, chemische Gasphasenabscheidung (CVD), Molekularstrahlepitaxie (MBE) und Laserablation (PLD) werden behandelt. Ein besonderer Schwerpunkt liegt dabei auf der gepulsten Laserdeposition (PLD). Weitere Themen aus dem Bereich Präparation sind die, die Schichtmorphologie bestimmenden Wachstumsmodi für kleine und große Schichtdicken und deren Abhängigkeit von Oberflächenenergie und Oberflächendiffusion. Aus dem Bereich der analytischen Methoden werden die Röntgenbeugung (XRD, Polfiguren, Reflektometrie), die Elektronenmikroskopie (SEM, TEM) und die damit verbundenen Elektronenbeugungsverfahren (EBSD, SAED) vorgestellt. In einer abschließenden Übung werden Beispiele aus der Literatur bearbeitet und gemeinsam diskutiert. An dem in Blockform angebotenen Seminar nahmen im Sommersemester 2013 14 Studenten teil.

### 2.1.2.2 Multiphysikalische Modellierung funktionaler Materialien und Komponenten

Rechnergestützte Modellierung ist für die Vorhersage und Simulation des multiphysikalischen Verhaltens von komplexen technischen Systemen zu einem wichtigen Werkzeug geworden. Daher ist das Ziel der Vorlesung von Dr. Peksen, die Studenten mit theoretischen und praktischen Kenntnissen der multiphysikalischen Modellierung vertraut zu machen. Dabei werden die erforderlichen Fähigkeiten zur Analyse technischer Probleme mit numerischen Simulationsprodukten vermittelt. Die Vorlesung umfasst die Methodik der Modellierung gekoppelter physikalischer Wechselwirkungen sowie die Simulation und Analyse von Werkstoffen und Bauteilen. Die Grundlagen der rechnergestützten Modellierung werden erläutert. Die Thermofluid-Festkörper-Kopplung wird mit fortgeschrittenen Techniken aufgeklärt. Das lineare und nicht-lineare Verhalten von Werkstoffen und Bauteilen unter thermofluidischer, statischer und dynamischer Belastung wird erklärt. Vertiefende Modellierungsthemen werden behandelt. Die Vorlesung wird im Wintersemester für die Studierenden des Studiengangs Master of Science in Energy Systems als Wahlpflichtfach angeboten. Es wird erwartet, dass die Studenten eine schriftliche Prüfung und ein zusätzliches rechnergestütztes Projekt ablegen. Im Wintersemester 2013/2014 besuchten vier Studierende die angebotene Lehrveranstaltung.

## **2.2 Beiträge für die Information und Weiterbildung**

Wie schon in den vergangenen Jahren 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. Der Ausbau bei gleichzeitiger Schärfung dieser Aktivitäten ist Ziel bestehender und angestrebter Partnerschaften auf dem Gebiet der Information und Weiterbildung interessierter Zielgruppen.

### **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 halbtätig auf mehrwöchig ausgedehnt werden. Die Tätigkeiten von Schülern oder Studenten während eines Praktikums können von der betreuten Begleitung durch technisch-wissenschaftliches Institutspersonals bis hin zur angeleiteten, selbständigen Bearbeitung ausgewählter praktischer Projekte reichen.

- Informations- und Besichtigungsveranstaltungen für Interessierte zum Thema „Jülicher FuE-Beiträge für die Brennstoffzellen- und Wasserstofftechnik“. 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 (2013: 3 Schülerpraktikanten und 2014: 6 Schülerpraktikanten) aus Schulen der Region zum Thema „Fachberufe für die Brennstoffzellen- und Wasserstofftechnik“. Die Betreuungsangebote decken ein breites, interdisziplinäres Themenspektrum ab und werden von den Schülerpraktikanten je nach Bedarf für eine oder zwei Wochen wahrgenommen.
- Eintägiges Praktikum im Rahmen der Boy's Days 2013 für 2 Schüler aus der Region.
- Eintägiges Experimentieren rund um die Brennstoffzelle im Rahmen der JuLab Forscherwoche „Energie – Forschen für die Zukunft“, die für 11 Schülern im Alter zwischen 15 und 17 Jahren in der Zeit vom 29.07. bis 2.08.2013 sowie für 16 Schüler in der Zeit vom 7.07. bis 11.07.2014 stattfand.
- Eintägige angeleitete Projektarbeit zu einem Brennstoffzellen-bezogenen FuE-Thema im Rahmen des JuLab Berufsfindungspraktikums „Rund um die Welt der Brennstoffzelle“, das für jeweils 10 Schüler im Alter zwischen 15 und 18 Jahren in der Zeit vom 22.07. bis 26.07.2013 sowie vom 21.07. bis 25.07.2014 stattfand.

### **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 Fortbildungs-, Workshop- und Schulungsveranstaltungen als eingeladene Fachreferenten und Experten.

- Fachkurse für Entwickler und Anwender mit Fachbezug zu Brennstoffzellen und Wasserstofftechnik im Rahmen der WBZU-Veranstaltungen in Ulm: Die Kurse wurden 2013 im April und 2014 im März durchgeführt. Ein Wissenschaftler des IEK-3 lieferte jeweils zwei Fachreferate zu den Detailthemen „Lifetime Aspects of PEFC“ und „Hydrogen Supply“.
- Sommerschule „Erneuerbare Energien“ der Universität Bonn: Mit Studenten aus USA, Kanda, Polen und Libanon führten zwei Wissenschaftler des IEK-3 im Juli 2013 Laborexperimente an Niedertemperatur-Brennstoffzellen durch. Im Juli 2014 beteiligten sich an einem vergleichbaren Experiment Studenten aus Australien, USA, Singapur, Libanon und Kanada.
- International Summer School „Advanced Studies of Polymer Electrolyte Fuel Cells“: Die sechste Veranstaltung dieser Art fand im August 2013 in Yokohama/Japan statt. Ein Wissenschaftler des IEK-3 trug mit zwei Referaten „Basic of electrochemistry and modeling of PEFC“ zur fachgerechten Schulung der Teilnehmer bei. Im September 2014 fand die siebte Veranstaltung in Graz/Österreich statt, an der ein IEK-3-Wissenschaftler zwei Referate ausgerichtet auf „Modeling of Fuel Cells“ vortrug.
- Joint European Summer School JESS zum Thema „Brennstoffzellen, Batterien und H<sub>2</sub>-Technologie“: Auf der Veranstaltung in Athen/Griechenland berichtete im September 2013 ein Wissenschaftler des IEK-3 in vier Referaten über Historie, Thermodynamik, Prinzip, Materialien, Eigenschaften, Herausforderungen und Zukunft der Alkalischen und PEM-Wasserelektrolyse. Im September 2014 fand die Veranstaltung in Rethymno/Griechenland statt. Die neun Referate eines IEK-3-Wissenschaftlers mit Bezug zur Niedertemperatur-Wasserelektrolyse behandelten die Themen „Elektrolyt-, Kathoden- und Anodenmaterialien, Zell- und Stack-Design, Fertigung, Materialauslegung, Systemtechnik, Degradation und neue Trends“.

### **2.2.3 Zusammenarbeit mit anderen Stellen**

Der Aufbau, die Einrichtung und die Durchführung von Maßnahmen zur Aus- und Weiterbildung sowie zur Qualifizierung rund um das Themen „Brennstoffzellen- und Wasserstofftechnik“ entwickeln sich in dem Maße weiter, wie Anwendungen mit Brennstoffzellen und H<sub>2</sub>-Infrastrukturen den Weg in den Markt finden. Diese Entwicklung vollzieht sich aufgrund des steigenden Interesses bei der erzeugenden Industrie und bei relevanten Bildungseinrichtungen an Brennstoffzellen- und Wasserstoff-bezogener Fachkompetenz immer rasanter. 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 des jährlich von der EnergieAgentur.NRW durchgeführten Schülerwettbewerbs „Fuel Cell Box“ durch Begutachtung der theoretischen und praktischen Arbeitsergebnisse von 20 Schülerteams der finalen Wettbewerbsrunde. In Abb. 3 sind die siegreichen Schülerteams der Finalrunde 2013 und 2014 nach der Ehrung gemeinsam mit den Organisatoren zu sehen.



**Abb. 3:** Überreichung der Urkunde an die siegreichen Schülerteams 2013 durch Staatssekretär Knitsch vom NRW MKULNV (links) und 2014 durch Herrn Mees vom NRW MKULNV (rechts)

- Unterstützung des jährlich im Forschungszentrum Jülich durchgeführten Regionalwettbewerbs „Jugend forscht“ durch Begutachtung und Bewertung der theoretischen und praktischen Arbeitsergebnisse in den Disziplinen Technik, Arbeitswelt sowie Geo- und Raumwissenschaften. 2014 war durch eine hohe Teambeteiligung gekennzeichnet. Dies führte in den drei Disziplinen bereits zu 8 Teamarbeiten von Schülern und 3 Teamarbeiten von Jugendlichen. In Abb. 5 sind die im Jahr 2014 teilnehmenden Teams gemeinsam mit ihren Betreuungslehrern und den Juroren zu sehen.

In der Kategorie „Schüler experimentieren – Geo- und Raumwissenschaft“ konnten Chiara Hackfort (links in Abb. 4) und Maria Mendéz Sturm (rechts in Abb. 4) vom Inda-Gymnasium Aachen mit ihrem Projekt „Not Covered at High Tide – Mobiler Hochwasserschutz“ den ersten Platz erzielen und gelangten damit eine Runde weiter in den NRW-Landeswettbewerb

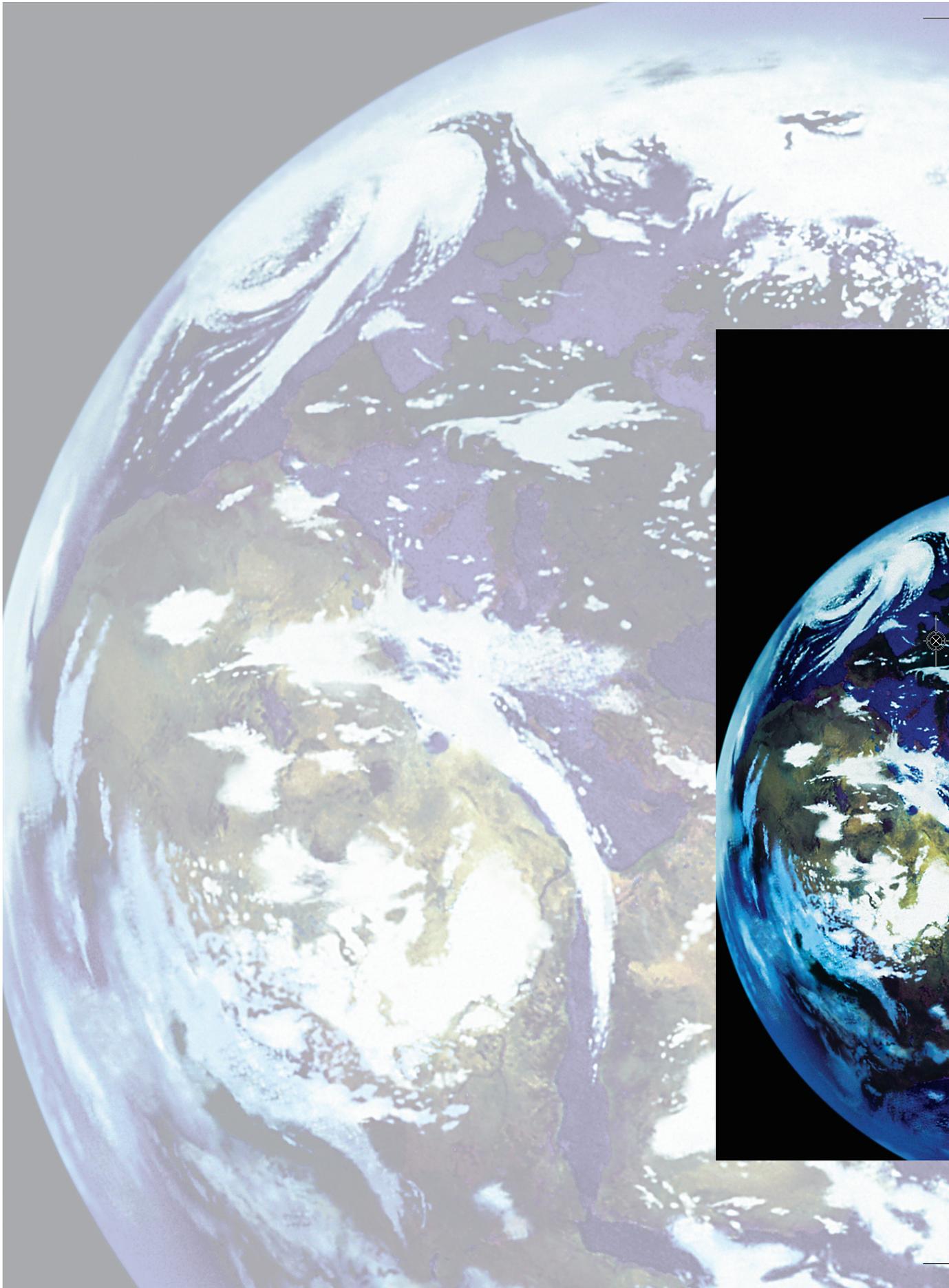


**Abb. 4:** 1. Platz in Geowissenschaften bei Schüler experimentieren



**Abb. 5: Gruppenbild der Teilnehmer am Regionalwettbewerb 2014 von Jugend forscht im Großen Hörsaal des Patenunternehmens Forschungszentrum Jülich**





# 3

## Berichte

### Wissenschaftlich-technische Berichte

- Festoxid-Brennstoffzellen
- Brenngaserzeugung und Systeme
- Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen
- Direktmethanol-Brennstoffzellen
- Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse
- Verfahrens- und Systemanalyse
- Physiko- und elektrochemische Grundlagen
- Qualitätssicherung

## 3.1 Festoxid-Brennstoffzellen

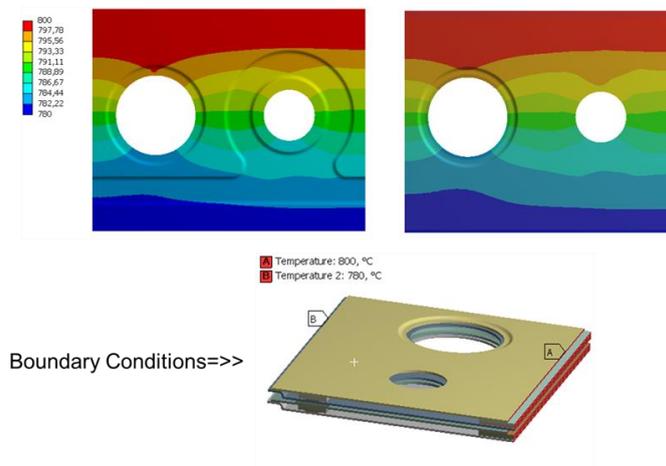
### 3.1.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Im Rahmen des Programmtemas „Brennstoffzellen“ werden Zellen, Komponenten, Stacks und Systeme für die Hochtemperatur-Brennstoffzelle mit Festelektrolyt (SOFC) entwickelt. Dieses Thema ist strategisch auf die hocheffiziente Bereitstellung von elektrischer Energie für die mobile und stationäre Anwendung, sowohl dezentral als auch zentral, im Maßstab einiger Kilowatt bis mehrerer hundert Kilowatt ausgerichtet. Die Schwerpunkte der durchgeführten Arbeiten sind die Erhöhung der Leistungsdichte, lange Lebenszeiten, die Identifikation der Degradationsmechanismen im Stack und deren Vermeidung, fortgeschrittenes Design, sowie hochintegrierte Anlagentechnik. Die Entwicklungsarbeiten resultieren u.a. in verbesserten Werkstoffen für Zellen ebenso wie in thermomechanisch verbesserten Stacks und hochintegrierten Anlagenkomponenten und einer ersten 20 kW-Anlage. Wichtige flankierende Aktivitäten stellen die Modellierung mechanischer und thermischer Komponentenbelastungen sowie die Entwicklung und Charakterisierung von Komponenten für Brennstoffzellensysteme und deren Bewertung im Rahmen verfahrenstechnischer Analysen dar.

### 3.1.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

#### 3.1.2.1 Tests mit Kassettenstacks

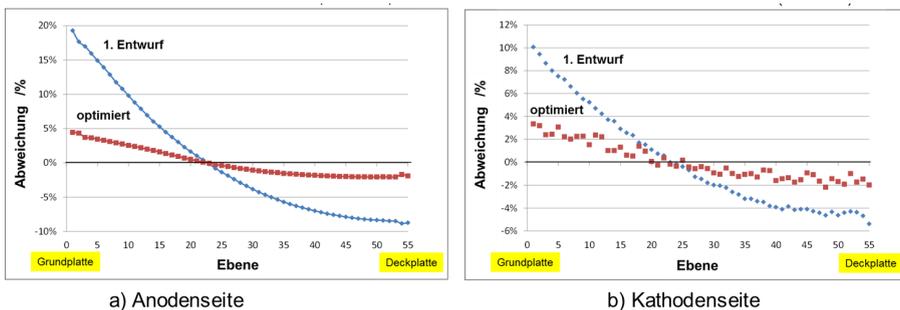
Als neuere Forschungslinie werden sogenannte Kassetten- oder Leichtbaustacks, die für den Einsatz in Fahrzeug-APUs (Auxiliary Power Units) vorgesehen sind, entwickelt. Diese Anwendung stellt besondere Anforderungen an die thermische Zyklierbarkeit der Stacks.



**Abb. 6:** Randbedingungen und resultierende Temperaturverteilung für die beiden Designs (Links: CS<sup>IV</sup> mit Sicke, rechts CS<sup>II</sup>)

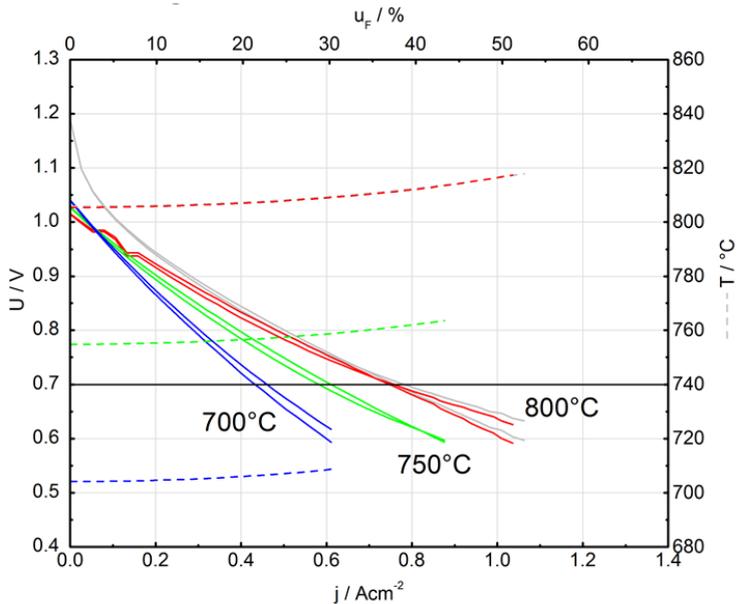
Nachdem Untersuchungen am aktuellen Leichtbau Design (CS<sup>II</sup>) nach 100 tiefen Thermozyklen (750 °C → 50 °C → 750 °C) mit einer Heizrate von 10 K/min beim abschließenden Lecktest nach Ausbau aus dem Prüfstand sowohl intern als auch nach extern deutliche Leckagen gezeigt haben, wurde im EU-Projekt „MMLCR“ ein Redesign zur Optimierung der Fügetechnik gestartet. Zunächst wurden mögliche Verbesserungen der mechanischen Robustheit mittels FEM analysiert. Eine in einem Vorprojekt bereits realisierte Änderung (CS<sup>IV</sup>) war die Einbringung einer umlaufenden Sicke zur Versteifung der Blechkontur, wodurch die thermisch induzierten Spannungen in der Fügenaht reduziert werden sollten. Um dieses zu überprüfen, wurde mittels FEM eine Vergleichsanalyse durchgeführt. Abb. 6 zeigt die betrachteten Ausschnitte mit der berechneten Temperaturverteilung. Diese basiert auf der Berechnung eines kompletten Stacks im stationären Betriebsfall.

Es wurden drei verschiedene Analysen durchgeführt, um den Effekt der Sicke zu untersuchen. Die erste bestand in einer gekoppelten thermomechanischen Analyse des Betriebszustands, die zweite in einer thermomechanischen Analyse, die eine künstlich erzeugte zusätzliche Scherspannung berücksichtigt und die dritte betrachtet den Spannungszustand bei Raumtemperatur nach Abkühlung von der Referenztemperatur, die in allen Fällen 800°C beträgt. Bei keiner der Analysen ergab sich ein signifikanter Unterschied zwischen dem Design ohne und dem mit Sicke. Da die Sicke bei der Fertigung und bei der Montage erheblichen Mehraufwand verursacht und zusätzlich das Risiko eines Kurzschlusses zwischen den Blechbauteilen signifikant erhöht, wurde beschlossen, beim neuen Design auf die Sicke zu verzichten.



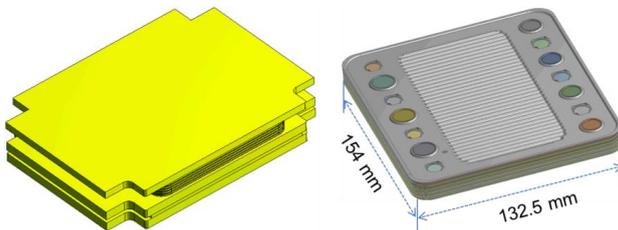
**Abb. 7: Strömungsverteilung im Stack mit 55 Ebenen auf Anoden- und Kathodenseite**

Basierend auf den Erfahrungen mit anderen Stackdesigns wurde die Konstruktion für die Glaslotfügung weiter optimiert. Für die strömungstechnische Auslegung wurde als Ziel ein 3 kW Stack bestehend aus 55 Ebenen definiert. Auf dieser Basis erfolgte die Berechnung der Manifoldabmessungen, die für eine ausreichend gute Gleichverteilung des Brenngases und der Luft auf die einzelnen Ebenen erforderlich ist (siehe Abb. 7). Basierend auf diesen Ergebnissen wurde das Design fertiggestellt und es wurden erste Bauteile gefertigt. Ein erster Short Stack mit 2 Ebenen konnte mit vergleichbaren Leistungsdaten zu anderen Leichtbau-Stacks (siehe Abb. 8) erfolgreich betrieben werden.



**Abb. 8: Stack CSV02-01 – Kennlinien bei verschiedenen Temperaturen**

Um die Verhältnisse beim schnellen Aufheizen der Leichtbaustacks genauer zu analysieren, wurde mit Hilfe eines 3D-CFD-Modells die Temperaturverteilung innerhalb eines Mehrebenen-Stacks berechnet. Die Randbedingungen bezüglich Gasmengen und Eintrittstemperaturen wurden Aufheizversuchen entnommen. Der Stackaufbau ist in Abb. 9 zu sehen.



**Abb. 9: Brennstoffzellenstack: Geometrie und Innenansicht**

Die resultierende Temperaturverteilung wurde für verschiedene Zeitschritte analysiert und die Austrittstemperaturen stimmen gut mit gemessenen Werten überein. Die Ergebnisse zeigen, dass die höchsten Temperaturen und Temperaturgradienten im Eintrittsbereich zwischen Manifold und Zelle auftreten (siehe Abb. 10). Zum Ende der Aufheizzeit entstehen durch die größeren Massenströme der heißen Gase auch größere Temperaturgradienten am Austritt der Zelle. Diese Ergebnisse verbessern das Verständnis für die Schadensbilder nach Versuchsende und ermöglichen gezielte Designverbesserungen.

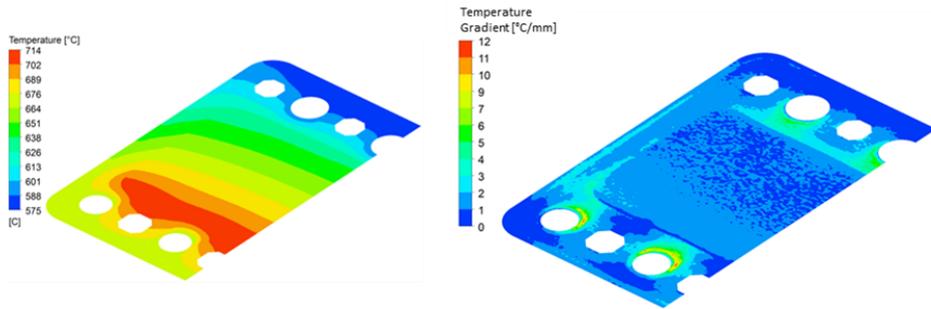


Abb. 10: Temperaturverteilung und Temperaturgradienten in einer Zellebene nach 8015 s

### 3.1.2.2 Stacktechnologie der kW-Klasse mit verbesserter Performance

#### Zykliefähigkeit

Die Stackentwicklung konzentrierte sich auf die Verifizierung eines Stackdesigns, das für den Einsatz unter realen Bedingungen geeignet ist und mit verschiedenen Brennstoffen einen hohen Wirkungsgrad erreicht. Stacks mit größeren Zellen, die äußere Abmessungen von 20 x 20 cm<sup>2</sup> und eine effektive Elektrodenfläche von 360 cm<sup>2</sup> aufweisen, werden seit dem Jahr 2000 getestet. In der letzten Phase konnte die thermomechanische Robustheit soweit verbessert werden, dass 5 kW Stacks in der 20 kW Anlage betrieben werden konnten.

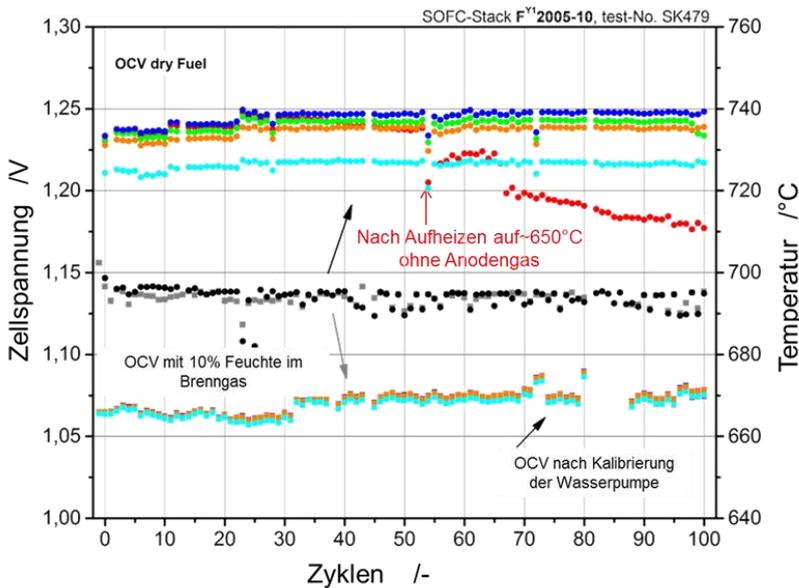
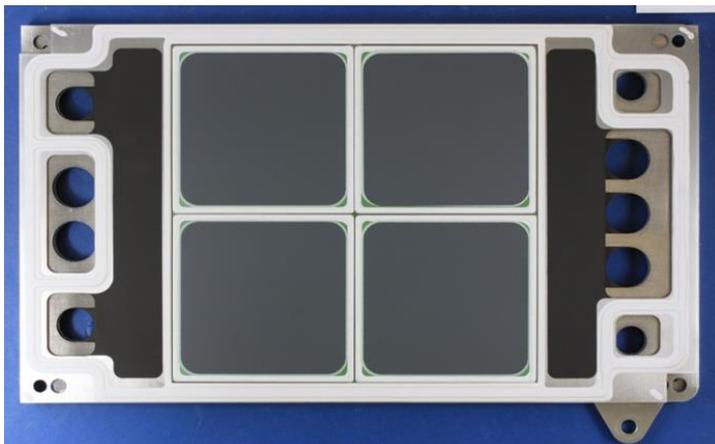


Abb. 11: F<sup>Y1</sup>05-10: Verlauf der OCV als Funktion der thermischen Zyklen

Basierend auf den FEM-Analysen der letzten Berichtsphase wurde das Stackdesign weiter modifiziert und die Zykliefähigkeit mit einem 1 kW Stack ( $F^{Y1}2005-10$ ) getestet. Der Stack wurde zunächst 617 h mit  $H_2$  ( $u_F$  80%) betrieben. Um die thermomechanische Belastung durch größere Temperaturgradienten zu erhöhen, wurde der Stack anschließend ca. 900 h mit  $CH_4$  ( $u_F$  30/50/70%) bei einer Stromdichte von  $0,5 \text{ A/cm}^2$  und  $700 \text{ }^\circ\text{C}$  gefahren. Nach Ausbau war der Stack dicht. Im weiteren Versuchsablauf wurde der Stack zwischen  $200$  (teilweise  $100$ ) und  $700 \text{ }^\circ\text{C}$  mit Ofen-Heizrampen zwischen  $2$  und  $6 \text{ K/min}$  zyklert. Nach dem 5., dem 10. und dem 21. Zyklus wurde der Stack ausgebaut und auf Dichtheit getestet. Es konnte keine Veränderung gegenüber den sehr guten Anfangswerten festgestellt werden. Nach Zyklus 56 wurde der Stack wegen eines Prüfstandsfehlers ohne Brenngas aufgeheizt. Danach zeigte Zelle 1 eine etwas niedrigere Leerlaufspannung. Ab Zyklus 67 nimmt diese kontinuierlich weiter ab (allerdings immer noch auf einem sehr guten Niveau). Die OCV-Werte der übrigen Zellen bleiben stabil, ebenso der Taupunkt des austretenden Brenngases. Nach 100 Thermozyklen wurde der Versuch beendet. Der Verlauf der OCV-Werte ist in Abb. 11 dargestellt. Alle liegen auch am Ende auf einem guten bis sehr guten Niveau. Eine abschließende Dichtheitsmessung zeigte allerdings eine Undichtigkeit im Bereich des Brenngasaustritts, die durch die Messungen im eingebauten Zustand nicht detektiert werden konnte. Trotz dieser Undichtigkeit stellt dieses Ergebnis eine deutliche Verbesserung gegenüber den Vorläuferdesigns dar und es werden bereits die Anforderungen erfüllt, die in BHKW-Anwendungen an die Zyklenzahl gestellt werden.

#### *Stack-Design und Modellierung*

In der nächsten Phase sollen Stacks einer Leistung von mindestens  $15 \text{ kW}$  realisiert werden, was den Aufbau größerer Anlagen mit wenigen Stacks ermöglichen soll. Gleichzeitig wird angestrebt, auch Zellen externer Hersteller verwenden zu können. Gespräche mit Zellherstellern haben dabei ergeben, dass Zellen der Abmessungen  $200 \times 200 \text{ mm}^2$  nicht zu beziehen sein werden. Deshalb wurde ein Design entwickelt, das es erlaubt mehrere kleinere Zellen (hier die Standardabmessungen  $100 \times 100 \text{ mm}^2$ ) zu verwenden. Dieses sogenannte „Fensterdesign“ ist in Abb. 12 gezeigt.



**Abb. 12:** Fensterdesign mit vier Zellen in einer Ebene

Hier werden vier Zellen in einer Ebene parallel geschaltet, was in einer Elektrodenfläche von 320 cm<sup>2</sup> resultiert. Erste Stacktests mit 5-Ebenen-Stacks zeigten Leistungsdaten, die mit Short Stacks mit einer Zelle in der Ebene vergleichbar sind. Um auf dieser Basis Stacks mit 15 kW Leistung realisieren zu können, müssen 120 Ebenen aufeinander gestapelt werden. Für die strömungstechnische Auslegung wurde von H<sub>2</sub>-Betrieb im Gleichstrom ausgegangen. Eine Optimierung der Manifoldgeometrie ergab auf der Luftseite eine Streuung der Durchflusswerte pro Ebene von +4/-2% über die 120 Ebenen und auf der Brenngasseite von ±1%. Auf dieser Basis wird das überarbeitete Design fertiggestellt.

Die thermomechanische Belastung der Stacks wird durch Design, Betriebsbedingungen und Betriebsumgebung bestimmt. In der Entwicklungsphase werden die Stacks zunächst in einer beheizten Umgebung, d.h. in einem Ofen, betrieben. Im späteren realen Einsatz in einem System befinden sie sich in einer thermischen Isolierung, d.h. im Idealfall in einer adiabaten Umgebung. Mit Hilfe des 3D-Modells eines F20-Stacks mit sechs aktiven Zellebenen wurde eine Vergleichsrechnung durchgeführt, bei der zunächst die Temperaturverteilung in der Stackebene für Ofenbetrieb und für Betrieb in einer adiabaten Isolierung berechnet wurde. Basierend auf diesen Temperaturverteilungen wurden die Spannungen im Stahl und in der Glaslotfügung berechnet. Hierbei wurde der Strahlungsaustausch zwischen Ofenheizung und Stackoberfläche berücksichtigt sowie das thermoplastische Verhalten und das Kriechen des Stahls. Die Eintrittstemperaturen der Gase waren 500 °C für das Brenngas und 630 °C für die Luft bei einer Ofentemperatur von 700 °C. Der Stack wird im Gegenstrom mit 10% vorreformiertem Methan bei 500 mA/cm<sup>2</sup> betrieben. Die Abwärme der Reaktion wird als Wärmequelle im aktiven Zellbereich berücksichtigt.

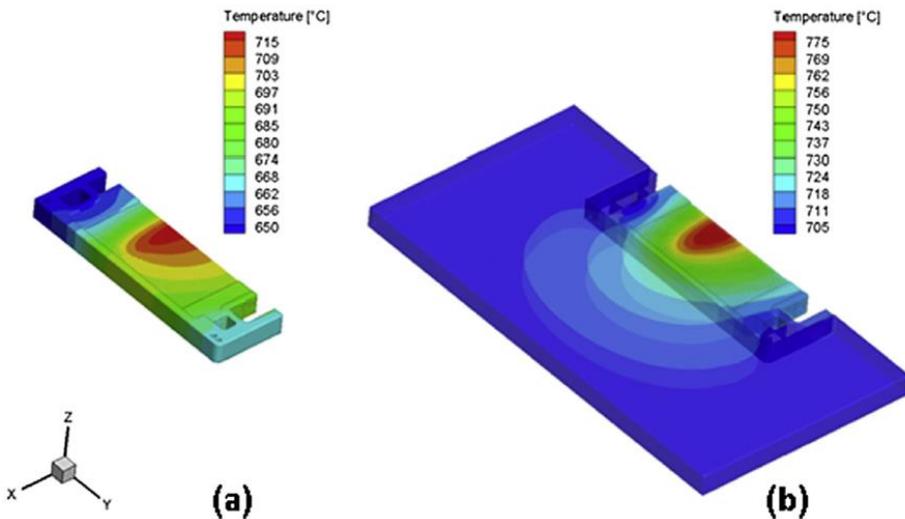
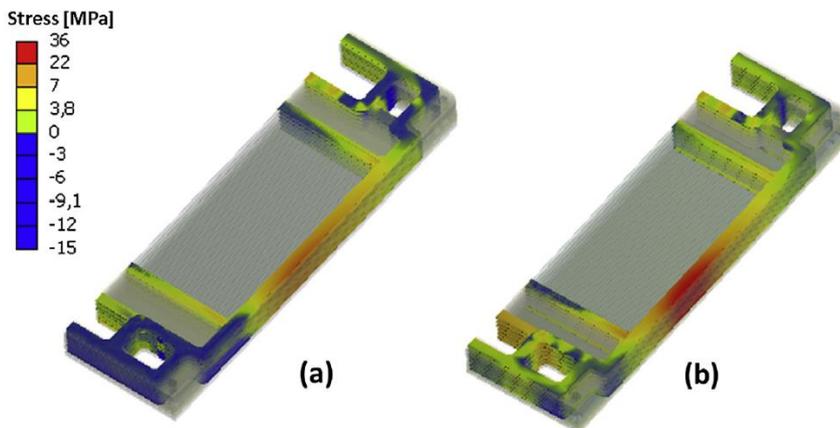


Abb. 13: Temperaturverteilung im Stack bei Betrieb in einer Systemumgebung (a) und im Ofen (b)

Ein Vergleich der Temperaturverteilung ist in Abb. 13 zu sehen. Beim Betrieb im Ofen ist die Temperatur in den Manifolds durch die Ofentemperatur von 700 °C dominiert und liegt auf beiden Seiten bei 705 bis 720 °C. Die Maximaltemperatur tritt nahe der Mitte der Zelle im elektrochemisch aktiven Bereich auf und liegt bei 775 °C. In diesem Bereich fällt die Temperatur zum Rand hin auf 740 °C ab, was bedeutet, dass der innere Bereich des Stacks ca. 35 K heißer ist als die Stackoberfläche. Beim Betrieb mit adiabater Oberfläche wird die Manifoldtemperatur auf der Lufteintrittsseite durch die Lufttemperatur dominiert und beträgt 650 °C. Auf der Brenngaseintrittsseite wirkt sich der Kühleffekt der internen Reformierung aus, der aber durch die beim Durchströmen aufgeheizte Luft abgemildert wird, sodass das Manifold hier bei ca. 670 °C liegt. Das Temperaturmaximum im Zellbereich liegt an ähnlicher Stelle wie beim Betrieb im Ofen, beträgt aber nur 715 °C. In diesem Bereich fällt die Temperatur zum Rand hin auf 690 °C ab, was bedeutet, dass der innere Bereich des Stacks ca. 25 K heißer ist als die Stackoberfläche. Basierend auf dieser Temperaturverteilung ergibt sich eine elastoplastische Verformung der Metallbauteile, wobei sich die elastische Verformung bei den hohen Temperaturen durch Kriechen in eine bleibende Verformung umwandelt, was bei längeren Zeiten zu einer Erhöhung der Zugspannungen im starren Glaslot führt. Nach einer Stunde unter der oben beschriebenen Belastung ergibt sich die in Abb. 14 dargestellte Verteilung der Hauptspannungen in der Glaslotfügung. Es ist deutlich zu erkennen, dass die maximale Zugspannung in der seitlichen Fügung auftritt, dort wo aufgrund der maximalen Temperatur die thermische Dehnung am größten ist. Weitere Bereiche hoher Zugspannung sind im Randbereich der Zellfügung und an verschiedenen Stellen des Manifolds zu erkennen. Das Niveau der maximalen Zugspannungen ist beim Betrieb im Ofen ca. 20% höher als beim Betrieb in Systemumgebung.

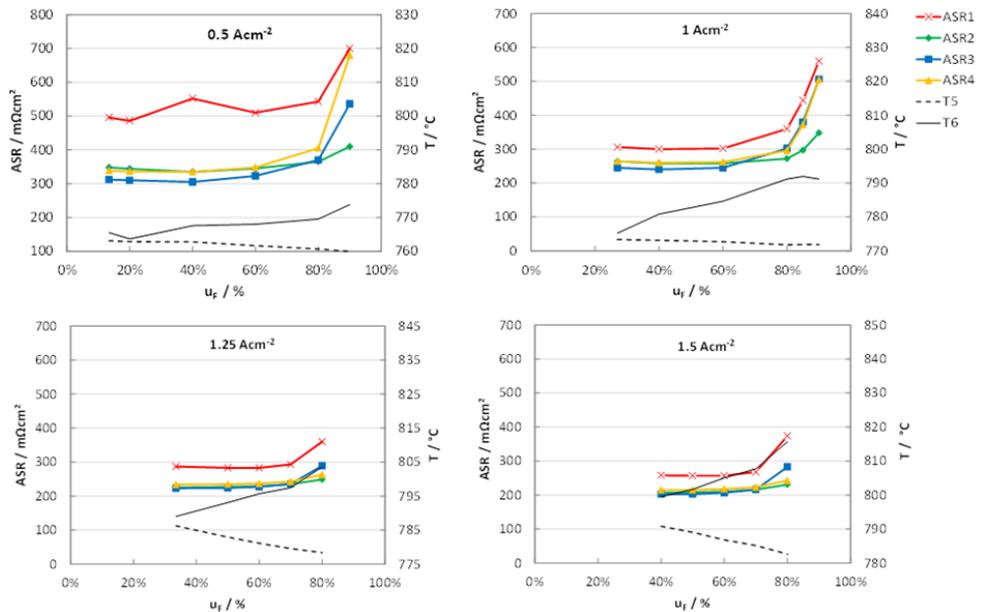


**Abb. 14: Maximale Hauptspannungen in der Glaslotfügung bei Betrieb in einer Systemumgebung (a) und im Ofen (b)**

### Stack-Tests

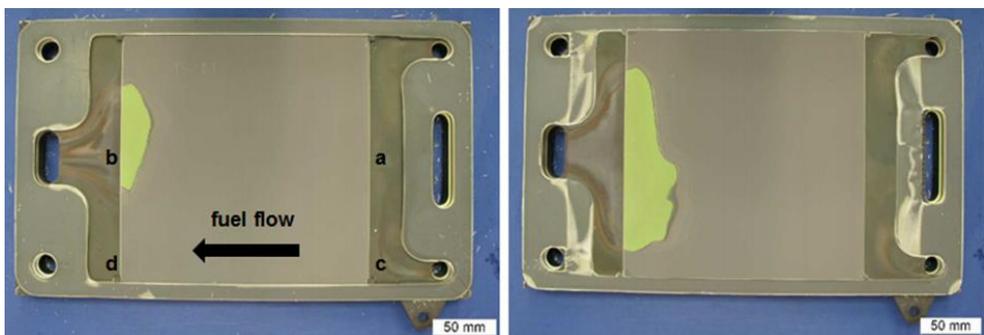
Für den Einsatz unter realen Bedingungen ist der Betrieb mit hoher Brenngasnutzung essentiell, da nur so hohe Systemwirkungsgrade erreicht werden können. Hierfür wurden zwei Stacks unterschiedlichen Designs (F1004-39 und F<sup>Y1</sup>2005-12) im Ofen mit Brenngasnutzungen bis 90% mit befeuchtetem Wasserstoff (20% Feuchte) und mit Erdgas

(10% vorreformiert) betrieben. Beide Stacks zeigten ein vergleichbares Verhalten und konnten im Temperaturbereich von 750 bis 800 °C problemlos bis zu einer Brenngasnutzung von 85% betrieben werden. Allerdings zeigte sich ab einer Brenngasnutzung von 80% eine deutliche Zunahme der Polarisationsverluste (siehe Abb. 15).



**Abb. 15: ASR der Zellen in Stack F1004-39 bei verschiedenen Brenngasnutzungen und Stromdichten**

Mit 90% Brenngasnutzung zeigte sich neben einer weiter erhöhten Polarisation an vergleichbaren Stellen eine partielle Reoxidation der Anode (siehe Abb. 16).



**Abb. 16: Reoxidation von Zelle 1 (links) und Zelle 2 (rechts) nahe dem Brenngasauslass in Stack F<sup>Y1</sup>2005-12**

Erste Berechnungen basierend auf einem 1D-Stackmodell zeigen, dass bereits aufgrund geringer Temperaturunterschiede von 20 °C zwischen dem Stackinneren und den Randbereichen im Inneren durch den niedrigeren Zellwiderstand (ASR = Area Specific

Resistance) eine um 10% höhere Brenngasnutzung vorliegt, was zur partiellen Reoxidation führen kann. Ohne Designänderungen sollte damit die Brenngasnutzung von 85% nicht überschritten werden.

### 3.1.2.3 Systemtechnik

#### 20 kW System

Wie im letzten Bericht beschrieben, konnte 2012 eine 20 kW Versuchsanlage, bestehend aus vier 5 kW Stacks, erfolgreich in Betrieb genommen werden. Mit 21,3 kW bei einem elektrischen Systemwirkungsgrad von 42% konnten die Ziele erreicht werden. Allerdings wurden die Stacks durch verschiedenen Störungen in der Peripherie (Steuerung, elektronische Last, Sensoren, Dichtung in der Peripherie) thermomechanisch stark belastet, weshalb nach 550 Betriebsstunden die Anlage nur noch mit der halben Anzahl an Stacks betrieben werden konnte. Nach insgesamt 5.000 Stunden war ein Stack soweit gealtert, dass er ausgetauscht werden musste (siehe Abb. 17). Die Anlage wurde wieder in Betrieb genommen, diesmal aber mit den beiden Stacks elektrisch in Reihe statt parallel geschaltet, um der unterschiedlichen Betriebszeit Rechnung zu tragen. Hiermit konnte auch nachgewiesen werden, dass die Anlage für seriellen Betrieb der Stacks geeignet ist, was für die Auslegung des Wechselrichters durch die höhere Eingangsspannung sehr positiv ist.

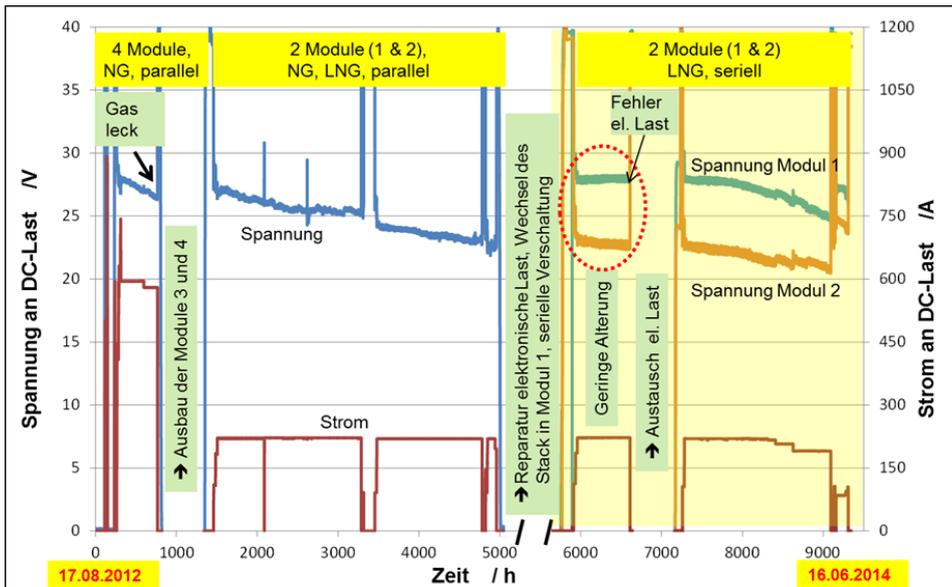
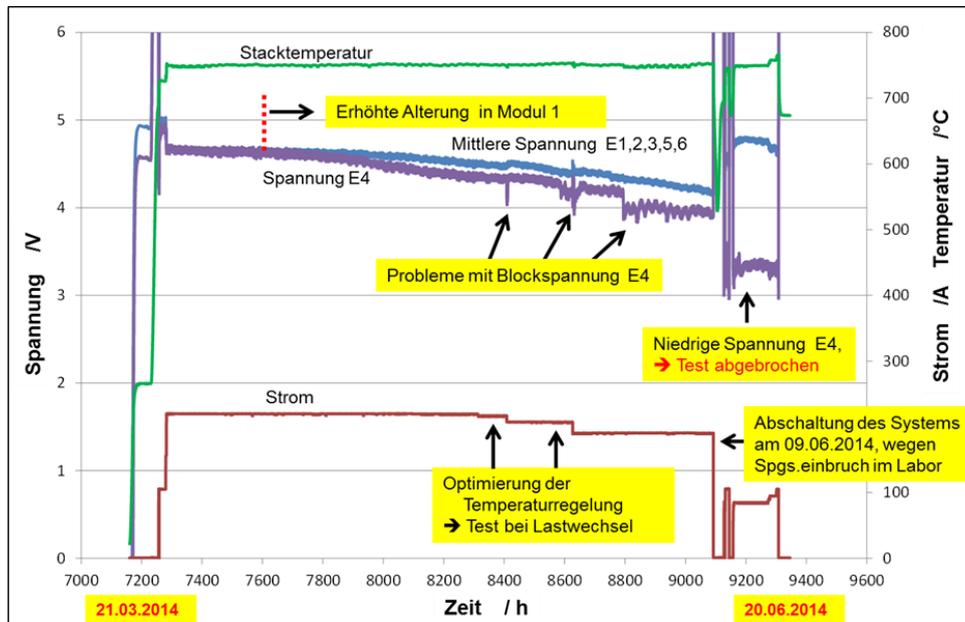


Abb. 17: 20 kW System: zeitlicher Verlauf von Spannung und Strom

Nach weiteren 700 Stunden kontinuierlichen Betriebs mit geringer Degradation (siehe in Abb. 17 den Zeitraum zwischen 6.000 und 6.700 Stunden) musste die Anlage wegen Ausfall der elektronischen Last wieder abgeschaltet werden. Nach Einbau einer neuen Last und erneutem Anfahren der Anlage zeigte sich nach einigen hundert Stunden vor allem bei Modul 1 eine deutlich erhöhte Alterung. Nach ca. 1.000 Betriebsstunden wurde die Last

schrittweise erniedrigt, um die Temperaturregelung zu überprüfen und die Regelparameter zu optimieren. In dieser Phase zeigte die Blockspannung E4 (Summe der Zellspannungen 19 bis 24 in Modul 1) ein instabiles Verhalten (siehe Abb. 18). Nach einer Störabschaltung wegen eines Spannungseinbruchs der Laborstromversorgung zeigte E4 einen drastischen Spannungseinbruch. Dies führte zum Abbruch des Versuchs nach insgesamt 6.800 Stunden unter Last und 7.500 Stunden auf Betriebstemperatur.



**Abb. 18: 20 kW System: zeitlicher Verlauf von Blockspannungen und Strom von Modul 1 in der letzten Betriebsphase**

### Systemauslegung – Konzepte zur Anodenrekyclingung

Um den Einfluss des Brenngasmanagements auf den elektrischen Anlagenwirkungsgrad und auf die Dampfversorgung für den Reformierungsprozess zu untersuchen, wurden insgesamt 220 Systemvarianten analysiert. Alle berechneten Systeme zeigten einen hohen Wirkungsgrad (alle bezogen auf den Heizwert von Erdgas):

Elektrischer Wirkungsgrad: 50 bis 66%

Thermischer Wirkungsgrad: 26 bis 49%

Gesamtwirkungsgrad: 76 bis 106%

Abhängig von den Betriebsparametern zeigen Systeme mit Anodenabgasrekyclingung einen um bis zu 16%-Punkte höheren elektrischen Wirkungsgrad als solche ohne Anodenabgasrekyclingung. Elektrischer und thermischer Wirkungsgrad werden im Wesentlichen durch die Brenngasnutzung  $u_F$  und das Anodenabgasrezirkulationsverhältnis  $RR$  beeinflusst.

Bei Systemen, die mit Erdgas betrieben werden, zeigte sich, dass der elektrische Wirkungsgrad mit höherem  $u_F$  und RR auch absinken kann. Dies wird durch die höheren Luftmengen und die daraus resultierende höhere Kompressorleistung verursacht. Auf der anderen Seite werden hohe  $u_F$  und RR benötigt, um Kohlenstoffbildung im Reformier zu vermeiden. Daraus ergibt sich abhängig vom Eigenverbrauch der Anlage die optimale Parameterkombination von RR = 70% und  $u_F$  zwischen 60 und 80%.

Dahingegen haben die Systemkonfiguration, das Brenngas und der Zelltyp (Anodensubstrat oder Elektrolytsubstrat) einen untergeordneten Einfluss auf den Systemwirkungsgrad. Dies bedeutet, dass andere Kriterien herangezogen werden müssen, um die erfolgversprechendste Systemkonfiguration zu definieren, wie die Anzahl an Anlagenkomponenten, die Komplexität des Systems, und ähnliches.

#### *Systemauslegung – Teillastverhalten von mit Brenngas oder Dampf betriebenen Ejektoren zur Anodenrekycling in SOFC Systemen*

Zur Analyse vor allem des Teillastverhaltens von SOFC Systemen wurden Berechnungen durchgeführt, bei denen Brenngas bzw. Dampf als Treibgas für Ejektoren in der Anodenabgasrezirkulation verwendet wurden. Die mögliche Teillast eines Systems mit Brenngas-betriebenen Ejektor wird durch die Kohlenstoffbildungsgrenze bestimmt. Da die Brennstoffnutzung die Kohlenstoffbildung indirekt über die Menge an elektrochemisch produziertem Dampf beeinflusst, wurde die mögliche Teillast abhängig von der Brennstoffnutzung analysiert. Mit einer Brenngasnutzung von 70% und einer geeigneten Ejektorgeometrie ist eine Teillast von 77,8% erreichbar. Um das Teillastverhalten zu verbessern, wurde ein Konzept mit dampfbetriebenen Ejektor entwickelt. Hiermit ergaben die Berechnungen eine mögliche Teillast von 37,8% bei gleichzeitig höherem elektrischem Wirkungsgrad. Die Ergebnisse der mit MATLAB/Simulink® und Cycle-Tempo durchgeführten Berechnungen sind für beide Versionen in Abb. 19 dargestellt. Die wesentlichen Ergebnisse der Simulationsrechnungen sind:

- Brenngasnutzungen oberhalb der Auslegungsbrenngasnutzung reduzieren die Teillastfähigkeit aufgrund einer Reduktion des primären Treibdruckes am Ejektor
- Je höher die Auslegungs-Brenngasnutzung ist, umso niedriger ist die erreichbare Teillast, da durch die erhöhte Dampfproduktion in der Brennstoffzelle das O/C-Verhältnis im Ejektor steigt
- Die größte Herausforderung für den brenngasbetriebenen Ejektor ist die Vermeidung der Kohlenstoffbildung. Deshalb ist die mögliche Teillast auf 78% begrenzt.
- Die größte Herausforderung für den dampfbetriebenen Ejektor ist die Regelung der Kondensationstemperatur und damit die positive Massenstromdifferenz zwischen dem aus dem rezirkulierten Anodenabgas auskondensierten Wasser und dem Wassermassenstrom zum Antrieb des Ejektors auf der Primärseite. Ohne zusätzliches Wasser ist eine Teillast von 38% möglich.
- Der elektrische Systemwirkungsgrad ist mit einem dampfbetriebenen Ejektor um 3,2%-Punkte höher als bei einem System mit Brenngas-betriebenen Ejektor, da die Wasserpumpe weniger Energie verbraucht als der Brenngaskompressor.
- Der Brenngaskompressor verbraucht ca. 2% der elektrischen Energie, die der Stack erzeugt.

Der Vorteil eines Systems mit brenngasbetriebem Ejektor ist die geringere Anzahl an Komponenten, während sein Nachteil die schlechte Teillastfähigkeit ist. Das System mit dampfbetriebem Ejektor erlaubt eine Halbierung der Untergrenze der Teillast und eine Erhöhung des Systemwirkungsgrads, benötigt aber mindestens fünf zusätzliche Anlagenkomponenten: Kondensator, Pumpe, Verdampfer, und zwei zusätzliche Wärmeübertrager. Hierdurch werden die Systemkosten eines Systems mit Dampf-betriebem Ejektor höher.

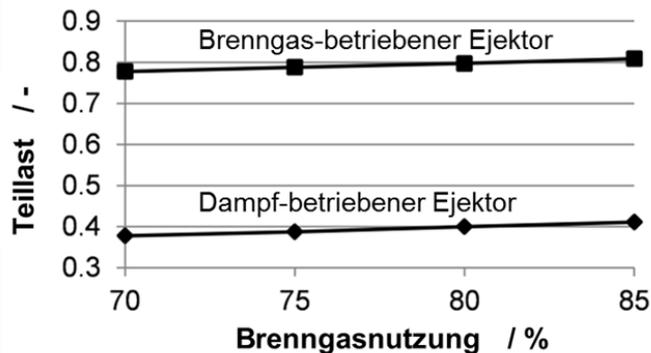


Abb. 19: Mögliche Teillast als Funktion der Brenngasnutzung für Brenngas- und Dampf-betriebene Ejektoren für SOFC Systeme mit Anodenabgasrezirkulation

### 3.1.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Prof. L. Blum	6709 <a href="mailto:l.blum@fz-juelich.de">l.blum@fz-juelich.de</a>	Leiter der Abteilung Festoxid-Brennstoffzellen
A. Al-Masri	3774 <a href="mailto:a.al-masri@fz-juelich.de">a.al-masri@fz-juelich.de</a>	Simulation von SOFC-Stacks, CFD und FEM
R. Deja	5291 <a href="mailto:r.deja@fz-juelich.de">r.deja@fz-juelich.de</a>	Anlagensimulation, Entwicklung und Test von SOFC-Anlagenkomponenten
M. Engelbracht	4652 <a href="mailto:m.engelbracht@fz-juelich.de">m.engelbracht@fz-juelich.de</a>	Anlagensimulation, Entwicklung und Test von SOFC-Anlagenkonzepten
Dr. Q. Fang	1573 <a href="mailto:q.fang@fz-juelich.de">q.fang@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe Messtechnik SOFC, Elektrochemie, Test und Analyse
I. Hoven	4053 <a href="mailto:i.hoven@fz-juelich.de">i.hoven@fz-juelich.de</a>	Elektrotechnik, Messdatenerfassung und Anlagensteuerung
Fr. A. Kind	3850 <a href="mailto:a.kind@fz-juelich.de">a.kind@fz-juelich.de</a>	Software Entwicklung, Modellierung
Dr. V.N. Nguyen	8393 <a href="mailto:v.n.nguyen@fz-juelich.de">v.n.nguyen@fz-juelich.de</a>	Chemische Verfahrenstechnik; Entwicklung und Test von Anlagenkomponenten
Fr. U. Packbier	5170 <a href="mailto:u.packbier@fz-juelich.de">u.packbier@fz-juelich.de</a>	Test von SOFC-Stacks und Versuchsauswertung

Dr. M. Peksen	8732 <a href="mailto:m.peksen@fz-juelich.de">m.peksen@fz-juelich.de</a>	Simulation von Stacks und HT-Anlagenkomponenten, CFD und FEM
Ro. Peters	4664 <a href="mailto:ro.peters@fz-juelich.de">ro.peters@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe Systemtechnik SOFC, Komponentenentwicklung, Anlagenauslegung, Anlagenbau und –test

### 3.1.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

#### Wichtige Veröffentlichungen

Nguyen, V.N.; Blum, L.; Peters, Ro.;

**Operational behavior and reforming kinetics over Ni/YSZ of a planar type pre-reformer for SOFC systems**

*International Journal of Hydrogen Energy* 39 (13) (2014) 7131-7141

Blum, L.; Packbier, U.; Vinke, I.C.; de Haart, L.G.J.

**Long-term Testing of SOFC Stacks at Forschungszentrum Jülich**

*Fuel Cells*, 13 (4) 2013, pp. 646–653, DOI: 10.1002/fuce.201200151

Fang, Q.; Blum, L.; Batfalsky, P.; Menzler, N.H.; Packbier, U.; Stolten, D.

**Durability test and Degradation behavior of a 2.5 kw stack with internal reforming of LNG**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (36) 2013, pp. 16344-16353, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.09.140

Nguyen, V.N.; Fang, Q.; Packbier, U.; Blum, L.

**Long-term tests of a Jülich planar short stack with reversible solid oxide cells in both fuel cell and electrolysis modes**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (11) 2013, pp. 4281 - 4290, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.01.192

Peksen, M.; Al-Masri, A.; Blum, L.; Stolten, D.

**3D Transient Thermomechanical Behaviour of a Full Scale SOFC Short Stack**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (10) 2013, pp. 4099-4107, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.01.072

Peters, R.; Blum, L.; Deja, R.; Hoven, I.; Tiedemann, W.; Küpper, S.; Stolten, D.

**Operation Experience with a 20 kW SOFC System**

*Fuel cells*, 14 (3) 2014, pp. 489-499, DOI: 10.1002/fuce.201300184

#### Wichtige Patente

Erteilte Patente:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
L. Blum	1.2175	Gasverteilerplatt für eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle
J. Nazarko	1.2341	Vorrichtung und Verfahren zur Reduzierung von CO <sub>2</sub> -Emissionen aus den Abgasen von Feuerungsanlagen
W. A. Meulenber	1.2366	Membran-Kraftwrek und Verfahren zum Betreiben eines solchen
R. Deja	1.2503	Festoxid-Brennstoffzellenn-System sowie Verfahren zum Betreiben eines solchen

## **3.2 Brenngaserzeugung und Systeme**

### **3.2.1 Ziele und Tätigkeitsfelder**

Die Verfügbarkeit von Wasserstoff bildet die Grundlage für den Einsatz von Brennstoffzellen in mobilen und stationären Anwendungen. Für Pkw, Busse und Fahrzeugflotten im Zulieferverkehr besteht die Möglichkeit Elektromotoren in Kombination mit wasserstoffbetriebenen Brennstoffzellen einzusetzen. Die Infrastruktur für den zukünftigen Energieträger Wasserstoff muss aber noch aufgebaut werden. Wasserstoff ist zukünftig aus regenerativem und solarem Strom via Elektrolyse bereitzustellen. Mit einem Drucktank bei 700 bar kann eine Reichweite von ca. 350 – 400 km erreicht werden. Für Lkw-, Schiffs- und Flugzeuganwendungen reichen solche Reichweiten nicht aus. Auf Grund der schlechten Speichereigenschaften von flüssigem und gasförmigem Wasserstoff im Vergleich zu heutigen Kraftstoffen wie Benzin, Kerosin und Diesel sind flüssige Kraftstoffe für den oben genannten Anwendungsbereich zu bevorzugen. Dabei ist das gesamte Tanksystem mit seinen massen- und volumenspezifischen Leistungsdichten für die Analysen zu betrachten. 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. Ein anderer Weg ist die Kraftstoff-Synthese aus Kohlendioxid, z.B. aus Industrieabgasen und regenerativ erzeugtem Wasserstoff.

Brennstoffzellen stehen für Antriebe in maritimen Anwendungen und im Luftverkehr nicht in den erforderlichen Leistungsklassen größer als 1 MW<sub>e</sub> zur Verfügung. Im Lkw-Sektor eingesetzte Dieselmotoren sind im Fahrbetrieb sehr effizient und weisen eine hohe massen- und volumenspezifische Leistungsdichte auf. Im Leerlauf wird eine Leistung von 3 – 5 kW<sub>e</sub> aber nur zum Betrieb der Klimaanlage oder einer elektrischen Heizung und für die Stromversorgung elektrischer Geräte benötigt. Dieselmotoren weisen unter diesen Lastbedingungen nur Wirkungsgrade zwischen 10 – 15 % auf, etwas günstiger sind spezielle Stromaggregate - kleine Verbrennungsmotoren mit 20 – 30 %. In der Luftfahrt werden für die Bordstromversorgung auf dem Rollfeld und zum Teil am Gate Hilfsturbinen bei Wirkungsgraden von ca. 20 % betrieben. Auf diese Anwendungen zielt die derzeitige Forschungs- und Entwicklungsarbeit der Abteilung Brenngaserzeugung und Systeme ab.

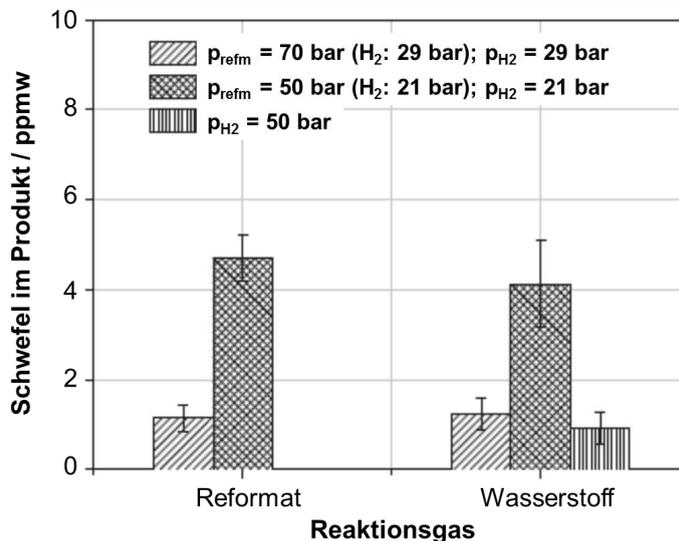
Im IEK-3 sind die Arbeiten auf dem Gebiet der Brenngaserzeugung auf die Reformierung von Mitteldestillaten, die Entschwefelung von Kerosin, und die Systementwicklung für die Bordstromversorgung in Kombination mit der HT-PEFC fokussiert. Die Reformerentwicklung wird aber auch für die Hochtemperatur-Brennstoffzelle SOFC durchgeführt. Alle Arbeitsbereiche werden durch ein entsprechendes Modelling unterstützt. Wichtige Werkzeuge sind CFD-Simulationen auf dem Jülicher Supercomputer JUROPA und Systemsimulationen mit dem Programm Simulink zur Optimierung des dynamischen Verhaltens bei Lastwechseln und für die Anfahrstrategie.

### **3.2.2 Wichtige Arbeitsergebnisse**

#### **3.2.2.1 Entschwefelung**

Zur Entschwefelung von Kerosin und schwefelhaltigen Dieselmotorkraftstoffen wurde die Hydrierung in der flüssigen Phase mit vorgesättigtem Wasserstoff angewandt, der im

Produktgas eines Reformierungsverfahrens enthalten ist. Die Betriebsbedingungen des Verfahrens liegen bei Drücken zwischen 30 – 70 bar und Temperaturen von 330 °C bis 390 °C. Die Raumgeschwindigkeiten in der Flüssigphase liegen bei Werten zwischen 0,3 – 1,2 h<sup>-1</sup>. Es konnte Kerosin mit einem Gesamtschwefelgehalt von 813 ppmw und Diesel mit 950 ppmw über 600 Betriebsstunden i mit einem wasserstoffhaltigen Reformat auf Werte unter 10 ppmw ohne Katalysatordegradation entschwefelt werden, siehe Abb. 20. Bei Nutzung von reinem Wasserstoff ergaben sich Schwefelgehalte von ca. 1 ppmw, für den Reformatbetrieb bei 21 bar Wasserpartialdruck 5 ppmw. Sehr wichtig ist die Abtrennung des entstehenden Schwefelwasserstoffs vom Kerosin. Ohne Nachbehandlung lag der Schwefelgehalt im Produktstrom der Hydrierung (50 bar, 390°C, H<sub>2</sub>-Betrieb, 0,6 h<sup>-1</sup>) bei 43,7 ppmw. Durch eine Luftspülung bei 80 °C für 10 h konnte ein Schwefelgehalt von 1,7 ppmw erzielt werden. Bei reiner Stickstoffspülung war ein geringfügig höherer Wert von 1,8 ppmw erreichbar, wobei die Spülmenge um den Faktor 278 größer war als die gereinigte Kraftstoffmenge.



**Abb. 20:** Entschwefelung von Kerosin mit einem Schwefelgehalt von 813 ppmw mit dem Verfahren der hydrierenden Entschwefelung in der Flüssigphase bei Drücken von 50 – 70 bar und 390 °C. Die Raumgeschwindigkeit beträgt 0,27 h<sup>-1</sup>. Wasserstoff wird im Kraftstoff vorgesättigt. Als Quelle dienen reiner Wasserstoff oder Reformat.

### 3.2.2.2 Katalytischer Brenner

Für die emissionsarme Verbrennung des Brennstoffzellen-Anodenabgases ist eine Reihe von Katalytbrennern entwickelt worden, die neben der Verbrennung die Bereitstellung von Wasserdampf für die autotherme Reformierung garantieren müssen. Die thermischen Leistungen der Brenner betragen 4,2 kW<sub>th</sub> für CAB 2, 6,5 kW<sub>th</sub> für CAB 3 und 2,6 kW<sub>th</sub> für CAB 4. Neben dem Normalbetrieb wurde ein Betrieb des CAB 4 mit Dieselreformat experimentell untersucht. Die thermische Leistung beträgt in dieser Betriebsphase 5,7 kW<sub>th</sub>.

Die Raumgeschwindigkeiten in der Gasphase lagen bei 20,000 – 30,000 h<sup>-1</sup> für den Systembetrieb mit Brennstoffzellenabgas und bei 30,000 – 40,000 h<sup>-1</sup> im Dieselbetrieb. Die maximal erreichbaren Adiabaten Temperaturen betragen bei Luftzahlen von 1 – 1,5 im Systembetrieb 620 – 680 °C und im Dieselbetrieb 800 – 850 °C bei einer Luftzahl von 3. Die gravimetrischen und volumetrischen Leistungsdichten der Brenner liegen bezogen auf die thermischen Leistungen der betrachteten, zugehörigen Systeme zwischen 1,8 – 4,7 kW<sub>th</sub>/kg und 2,1 – 6,3 kW<sub>th</sub>/l. Vor allem die Neukonstruktion des CAB 4 für eine Lkw-APU und die damit verbundene Reduktion der Blechstärken auf 1 mm ermöglichte eine Steigerung der Leistungsdichte um den Faktor 3. Für die Verteilung und Verdampfung des eingespritzten Wassers auf der heißen Oberfläche der oberen Brennerkammerwand ist eine Halbkugel ideal. Die Konstruktion wurde durch CFD-Simulationen unterstützt, wobei Vorgaben für den Düsenabstand zur Halbkugel und die Ausgestaltung der Ablenkleche auf der Brennkammerseite an Hand der CFD-Berechnungen optimiert wurden. Die entwickelten Brennertypen waren stets in der Lage, den überhitzten Wasserdampf pulsationsfrei bereitzustellen. Getestet wurden

- ein typisches Dieselreformat hinter einem Wasser-Gas-Shift Reaktor mit 2700 ppm CO, 2900 ppm CH<sub>4</sub>, 16,2 % (mol) CO<sub>2</sub>, 21,2 % H<sub>2</sub>O und 31,5 % H<sub>2</sub>,
- das Anodenabgas eines PEFC-Systems mit 30 ppm CO, 3700 ppm CH<sub>4</sub>, 21,5 % (mol) CO<sub>2</sub>, 28,3 % H<sub>2</sub>O und 8,2 % H<sub>2</sub>,
- das Anodenabgas eines HT-PEFC-Systems mit 1,4 % (mol) CO, 1700 ppm CH<sub>4</sub>, 20,3 % (mol) CO<sub>2</sub>, 31,9 % H<sub>2</sub>O und 7,7 % H<sub>2</sub> und
- im entwässerten Zustand bei 45 °C: 1,8 % (mol) CO, 2200 ppm CH<sub>4</sub>, 26,9 % (mol) CO<sub>2</sub>, 9,6 % H<sub>2</sub>O und 10,2 % H<sub>2</sub>.

Betrachtet werden zunächst Experimente mit einem Katalytbrenner vom Typ CAB 2.2. mit einer Nominalleistung von 4,2 kW<sub>th</sub> mit einem Brenngas 4. Die Luftzahl des Brenners betrug 1,1. Es konnten 70 % des Bedarfs an Wasserdampf für den ATR gedeckt werden. Die Zündung der Reaktion im Brenner fand bei 100 °C statt. Der Zündvorgang war nach 60 s abgeschlossen und es dauerte auf Grund der hohen thermischen Masse bis zu 20 min bis stationäre Verhältnisse vorlagen. Die Brenner Temperatur lag bei ca. 800 °C. Der überhitzte Dampf erreichte Temperaturen von über 350 °C, das Abgas lag bei knapp 400 °C vor. Die Wärmebilanz führte zu einer Reaktionswärme von 4160 W, die sich in 2160 W für die Dampferzeugung, 1900 W im Abgas und 100 W als Wärmeverlust aufschlüsselt.

Die thermische Effizienz der Wasserdampferzeugung im Brenner lag bei einer Verdampfungstemperatur zwischen 350 – 400 °C bei ca. 45 %. Ein unterstöchiometrischer Betrieb führte zu einem Abfall der Dampftemperatur. In Vorversuchen wurde geklärt, dass unter solchen Bedingungen Methan nicht emittiert, sondern in einer partiellen Oxidation in Wasserstoff und Kohlenmonoxid umgewandelt wird. Der Dieselbetrieb mit einer Luftzahl von 4,8 führte zu einer Betriebstemperatur im Verbrennungskatalysator von 650 °C. Eine Dampferzeugung ist unter diesen Bedingungen möglich, die Dampftemperatur ist bei Werten zwischen 170 – 220 °C nicht stabil.

### 3.2.2.3 Autotherme Reformierung

Im Hinblick auf die Systemtauglichkeit der autothermen Reformierung von Mitteldestillaten zur Nutzung des erzeugten Synthesegases in Brennstoffzellen ist es extrem wichtig, dass

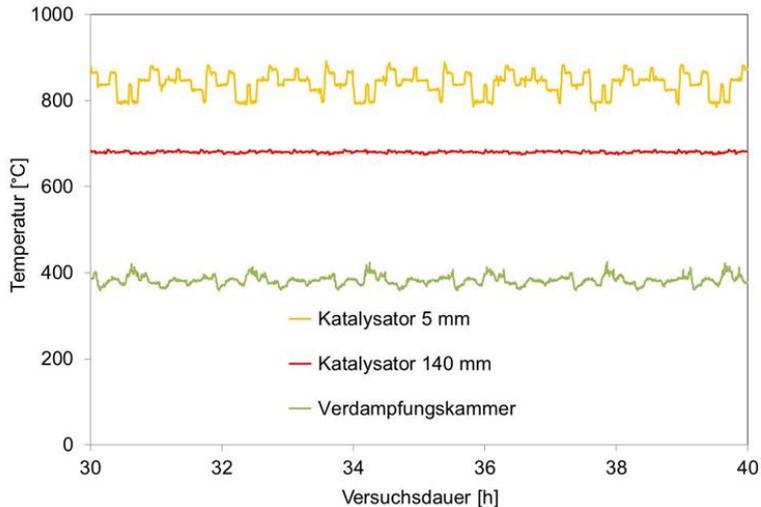
der Kraftstoffumsatz nahezu vollständig ist. Der Kraftstoffumsatz nimmt idealerweise Werte größer als 99,99 % an. Die Qualität des Reformierungsprozesses wird dabei besser durch die Angabe der detektierten Restkohlenwasserstoffmengen als durch den summarischen Umsatzwert beschrieben. Die Höhe der tolerierbaren Restkohlenwasserstoffmengen hängt von den Katalysatoreigenschaften der nachgeschalteten Reaktoren – Wasser-Gas-Shift Reaktor (WGS) und Präferentielle Oxidation (PROX) im Falle der PEFC – und vom Brennstoffzellentyp – PEFC oder HT-PEFC ab. Genaue Angaben sind nicht allgemein bekannt und müssen schrittweise experimentell ermittelt werden. Hinzu kommt, dass die Reformierung über einen Zeitraum von 20000 – 40000 Betriebsstunden als Zielwert mit möglichst gleichbleibendem Umsatz realisiert werden muss.

Restkohlenwasserstoffe können in der Gasphase mit einer Kopplung aus Gaschromatographie und Massenspektroskopie (GC/ MS) nachgewiesen werden. Durch spezielle Filterauswertemethoden ist es möglich, die Existenz einzelner Substanzen im Bereich von 250 ppbV (Benzol  $C_6H_6$ ) – 1000 ppbV (Ethan & Ethen,  $C_2H_6$  &  $C_2H_4$ ) nachzuweisen. Belastbare Konzentrationsangaben sind unter Berücksichtigung einer Fehlerbandbreite je nach Substanz zwischen 1 – 2 ppmV anzusiedeln. Das bei der Reformierung überschüssige Wasser wird vor der Gasanalyse auskondensiert und enthält darin gelöst organische Substanzen. Bestimmt wird summarisch die Menge an organisch gebundenem Kohlenstoff in mg C/l – eine Methode aus der Wasseranalytik (TOC). Der Schwellwert liegt bei 0,5 mg C/l, Minimalwerte aus vorangegangenen Messreihen lagen bei 1 – 2 mg C/l. Eine Bewertung der Analysegenauigkeiten unter Beachtung von charakteristischen Konzentrationsverhältnissen wurde mit Monte-Carlo-Simulationen vorgenommen. In Anhängigkeit von der TOC-Analyse – 20 / 1,5 mg C/l – ergeben sich aus den Verteilungsfunktionen mittlere Umsätze zwischen 99,994 % – 99,997 %. Das IEK-3 wird zukünftig diesen Grenzbereich je nach Bedarf zu noch kleineren Werten verschieben.

Experimente mit einem Reformer vom Typ ATR 9.2 konnten zeigen, dass ein synthetischer Kraftstoff – GTL- Kerosin, MDS der Firma Shell mit einem Siedeende (90 %) bei 185 °C – über 5000 Betriebsstunden mit einem Kraftstoffumsatz von größer als 99,995 % reformiert werden konnte. Bei allen Messungen wurden – wenn nicht anders angegeben – Mischungsverhältnisse von  $H_2O/C = 1,9$  und  $O_2/C = 0,47$  eingestellt. Die Raumgeschwindigkeit betrug ca.  $30.000\ h^{-1}$ . In der Gasphase konnten keine Restkohlenwasserstoffe nachgewiesen werden. In der wässrigen flüssigen Phase wurden 20 mg C/l – hier als Wert der nichtflüchtigen organischen Substanzen (NPOC) - gemessen. Die GC/MS- Messung konnte davon ca. 10 ppmw Essigsäure, 3 – 4 ppmw Aceton und ca. 1 ppmw Butanon identifizieren. Im dynamischen Betrieb mit Lastwechseln zwischen 60 – 100 % mit unterschiedlich langen Abstufungen in 10 % Schritten konnten keine Änderungen gegenüber dem stationären Betrieb bezüglich der Wasserstoff- und Kohlenmonoxid-Konzentrationen beobachtet werden. Die Temperaturänderungen im Lastwechselbetrieb müssen in Abhängigkeit von der Position der Thermoelemente betrachtet werden (vgl. Abb. 21). In der unteren Mischkammer variierten sie zwischen 370 °C und 410 °C. Nach 5 mm im Katalysatoreintrittsbereich waren die Unterschiede mit Werten zwischen 790 °C und 880 °C deutlich größer. Im Gegensatz hierzu veränderten sich die Temperaturen am Katalysatorausgang mit Werten zwischen 680 – 685 °C kaum. Dies deutet daraufhin, dass sich die chemischen Reaktionszonen im Katalysator durch den Lastwechsel verschieben.

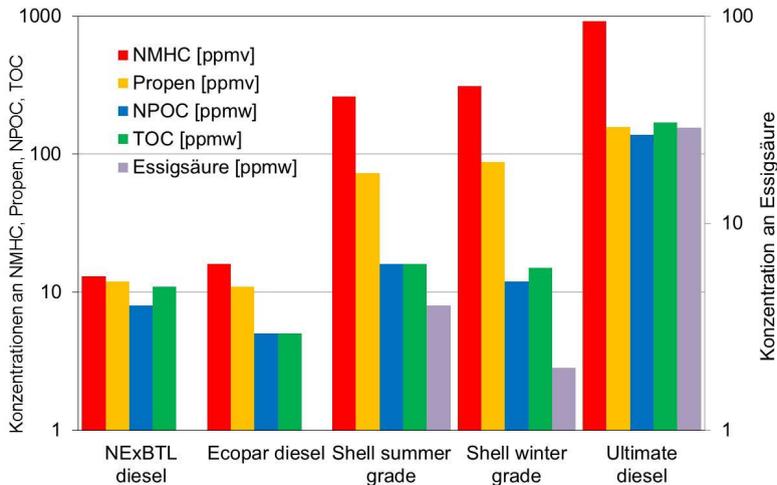
Beim Wechsel des Kraftstoffs von GTL-Kerosin auf BTL-Diesel der Firma Neste Oil mit einem Siedeende bei 320 °C zeigten sich in den ersten 1000 Betriebsstunden (5000 –

6000 h) höhere Konzentrationen an Ethan, Ethen, Propen, Butenen, Pentenen, Hexenen und Benzol. Es muss ergänzt werden, dass die Wahl der Betriebsparameter gegenüber dem GTL-Kerosin-Betrieb beibehalten wurde. Zum Beispiel hätte durch die Erhöhung der Luftzahl oder die Vorwärmung der ATR-Luft mehr Wärme in die Mischkammer und letztendlich in den Katalysator eingebracht werden können. Dadurch wäre der Bildung dieser Nebenprodukte entgegen gewirkt worden. Die Konzentrationen betragen in der Gasphase in Summe bis zu maximal 280 ppmV *Non-Methan-Hydrocarbons* (NMHC). Gleichzeitig stiegen die TOC-Werte auf maximal 90 ppmw.



**Abb. 21:** Temperaturen im Monolith und in der Verdampfungskammer während eines Lastwechselexperimentes mit dem ATR 9.2 bei einem molaren O<sub>2</sub>/C-Verhältnis von 0.47 und einem molaren H<sub>2</sub>O/C-Verhältnis von 1.9 unter Verwendung von GTL-Kerosin

Eine gesonderte Betrachtung des Kraftstoffeinflusses erfolgte an einem autothermen Reformer vom Typ ATR 8 (vgl. Abb. 22). Getestet wurden NExBTL-Diesel (*Neste Oil*), Ecopar Diesel (*ECOPAR*), GTL Diesel *summer grade* (*SHELL*), GTL Diesel *winter grade* (*SHELL*) und Ultimate Diesel (*ARAL*). Dabei ließen sich niedrige NMHC-Konzentrationen von 13 ppmv und 16 ppmv für NExBTL- und Ecopar Diesel messen. Wesentlich höhere Restmengen ließen sich bei den *SHELL*-Kraftstoffen GTL Diesel *summer grade* und *winter grade* mit 261 ppmv und 310 ppmv NMHC identifizieren. Die beiden *SHELL*-Kraftstoffe sind ebenso wie die beiden ersten aromatenfrei, weisen aber mit der Qualität *summer grade* ein höheres Siedeende von 350 °C auf. Die Qualität *winter grade* weist mit 307 °C (90 % Rückgewinnung) gegenüber *ECOPAR* mit 338 °C ein niedrigeres Siedeende, aber eine höhere Kettenlänge von C<sub>16</sub>H<sub>34</sub> gegenüber C<sub>15</sub>H<sub>32</sub> (*ECOPAR*) auf. Beim Einsatz des Kraftstoffs *ARAL* Diesel Ultimate stiegen die NMHC-Werte auf 915 ppmv an. Ursache können der Aromatengehalt von 15 % (Masse), der höhere Siedebereich mit Temperaturen von 360 °C (90%) und die durchschnittlich längere Kettenlänge, C<sub>19</sub>H<sub>38</sub> sein. Es bestätigt sich der Trend, dass mit steigendem Aromatengehalt und mit höheren Siedetemperaturen die Güte der Reformierung abnimmt.

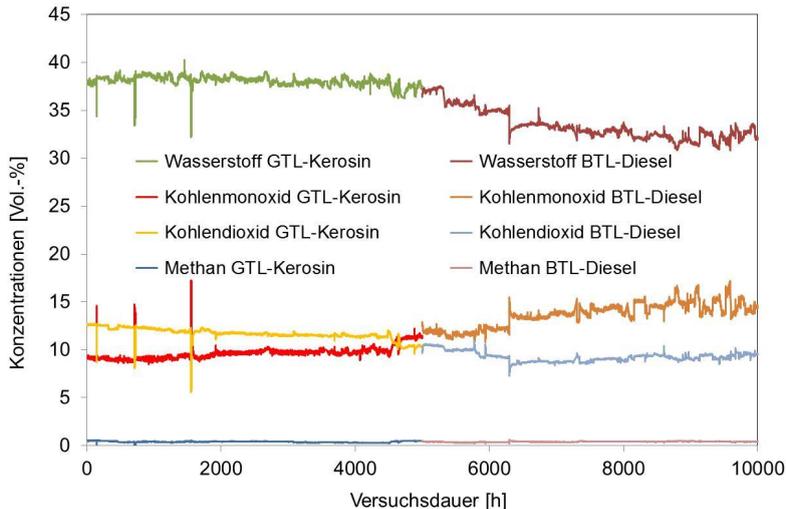


**Abb. 22: Konzentrationen an Nebenprodukten in der Gasphase und in der Flüssigphase während des Betriebes des ATR 8 mit fünf unterschiedlichen Kraftstoffen bei einem molaren  $O_2/C$ -Verhältnis von 0.47 und einem molaren  $H_2O/C$ -Verhältnis von 1.9, 100 % Reformierlast**

Der Umsatz betrug z.B. bei einer Restkohlenwasserstoffmenge von jeweils 400 ppmv Ethen und Propen und 200 ppmv Benzol noch ca. 98,5 %. Über geeignete Gegenmaßnahmen wie die Vorheizung der Luft können ein höherer Enthalpieeintrag in die Mischkammer und damit eine höhere Reaktionstemperatur erzielt werden. Die gravimetrische Leistungsdichte der entwickelten Reformertypen liegt zwischen 2,2 – 3,2 kW<sub>e</sub>/ kg, die volumetrische Leistungsdichte zwischen 2,8 – 3,6 kW<sub>e</sub>/ l.

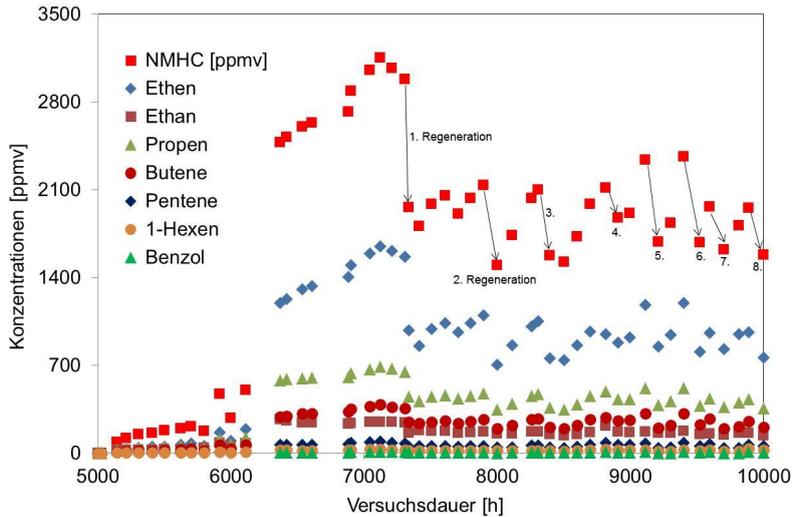
Abb. 23 zeigt die Konzentrationen an  $H_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  und  $CH_4$  als Funktion der Versuchsdauer während eines Langzeitexperimentes mit dem ATR 9.2. Als Kraftstoffe wurden GTL-Kerosin und NExBTL-Diesel eingesetzt. Die molaren  $O_2/C$ - und  $H_2O/C$ -Verhältnisse betragen 0,47 bzw. 1,9 bei einer Raumgeschwindigkeit von 30.000 h<sup>-1</sup>. Die gesamte Versuchsdauer betrug 10.000 Stunden. Die Abbildung verdeutlicht, dass die  $H_2$ -Konzentrationen während der ersten 5.000 Versuchsstunden bei Verwendung von GTL-Kerosin sehr stabil waren. Sie variierten leicht zwischen 37 Vol.-% und 38 Vol.-%. Gleichzeitig änderten sich die  $CO$ -Konzentrationen ebenfalls nur geringfügig zwischen 9 Vol.-% und 10 Vol.-%. Ähnliches gilt für die Konzentrationen an  $CO_2$  während der ersten 5.000 Versuchsstunden mit GTL-Kerosin. Es wurden Werte zwischen 11 Vol.-% und 12 Vol.-% gemessen. Die  $CH_4$ -Konzentrationen veränderten sich in diesem Zeitraum nicht messbar und wiesen Werte von ca. 0,5 Vol.-% auf. Aus den in dieser Abbildung gezeigten Konzentrationsverläufen kann geschlossen werden, dass die chemischen und physikalischen Eigenschaften von GTL-Kerosin (niedrige Verdampfungstemperaturen, keine Aromaten und kein Schwefel) günstig für die autotherme Reformierung sind. Im Zeitraum der zweiten 5.000 Versuchsstunden bei Einsatz von BTL-Diesel änderten sich die Verläufe der einzelnen Konzentrationen jedoch zum Teil deutlich. Während der ersten 2.300 Versuchsstunden mit BTL-Diesel sanken die  $H_2$ -Konzentrationen von 37,0 Vol.-% auf 32,5 Vol.-%. Gleichzeitig stiegen die Werte für die

CO-Konzentration von 12,0 Vol.-% auf 15,0 Vol.-%. Die CO<sub>2</sub>-Konzentrationen änderten sich im gleichen Zeitraum von 11,0 Vol.-% auf 9,0 Vol.-%. Die CH<sub>4</sub>-Konzentrationen blieben annähernd konstant und zeigten Werte zwischen 0,4 Vol.-% und 0,5 Vol.-%. Diese Veränderungen können mit einer verringerten Aktivität des Katalysators im ATR 9.2 für die Wasser-Gas-Shift Reaktion erklärt werden. Während der letzten 2.700 Versuchsstunden unter Verwendung von BTL-Diesel blieben die Konzentrationen der erwünschten Hauptprodukte der autothermen Reformierung annähernd konstant. Mehrere Regenerationsschritte für den Katalysator wurden in diesem Zeitraum durchgeführt, die zum Ziel hatten, die Aktivität des Katalysators zumindest teilweise wiederherzustellen.



**Abb. 23: Konzentrationen an H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub> und CH<sub>4</sub> als Funktion der Versuchsdauer während des Langzeitexperimentes mit dem ATR 9.2, Kraftstoff: GTL-Kerosin und NExBTL-Diesel,  $n(\text{O}_2)/n(\text{C}) = 0,47$ ,  $n(\text{H}_2\text{O})/n(\text{C}) = 1,90$ , GHSV = 30.000 h<sup>-1</sup>**

Das Langzeitexperiment mit dem Reformer vom Typ ATR 9.2 zeigte außerdem weitere wichtige Erkenntnisse im Hinblick auf die Bildung der Nebenprodukte auf (vgl. Abb. 24). Bei einer Betriebsdauer von 6368 Stunden kam es zu einer Notabschaltung über einen Druckabfall in der Wasserversorgung. Bei diesem Vorgang wurde der Katalysator vermutlich nachhaltig geschädigt. In der Folge stiegen die Restkohlenwasserstoffe (NMHC) in der Summe ausgehend von 280 ppmV bei 6000 h auf maximal 3154 ppmv bei 7120 h an. Durch Regenerationsmaßnahmen konnten die Restkohlenwasserstoffe wieder auf NMHC-Konzentrationen von ca. 1500 ppmv zurückgeführt werden. Dazu wurde vorgewärmte Luft für 24 Stunden bei Temperaturen zwischen 250 – 280 °C und niedrigen Raumgeschwindigkeiten von 12.000 h<sup>-1</sup> über den Katalysator geleitet. Nach der Regeneration nahmen die Restkohlenwasserstoff in der Gasphase und im kondensierten Wasser (TOC) ab, stiegen aber in der Folge bis zur nächsten Regenerationsphase wieder an. In der Gasphase ergab sich in der Betriebszeit 7000 – 10.000 h eine Staffelung der Konzentrationen der Alkene mit 700 – 1650 ppmv C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, 350 – 700 ppmv C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, 200 – 400 ppmv C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>, 40 – 95 ppmv C<sub>5</sub>H<sub>10</sub> und 17 – 40 ppmv C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>. Analog traten 140 – 270 ppmv C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> und 20 – 40 ppmv C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> auf. Benzol trat nur in geringen Konzentrationen von max. 13 ppmv auf. Es ist zu beachten, dass der eingesetzte Kraftstoff NExBTL aromatenfrei ist.



**Abb. 24:** Konzentrationen an Nebenprodukten in der Gasphase als Funktion der Versuchsdauer während eines Langzeitexperimentes mit dem ATR 9.2 bei einem molaren O<sub>2</sub>/C-Verhältnis von 0.47 und einem molaren H<sub>2</sub>O/C-Verhältnis von 1.9 unter Verwendung von NExBTL-Diesel

Bei aromatenhaltigen Kraftstoffen wie ARAL Diesel Ultimate und dem Standarddiesel SD 10 sind die gemessenen Benzolkonzentrationen deutlich höher, sobald Restkohlenwasserstoffe im Produktgas zu identifizieren sind. Bei 7042 Betriebsstunden trat zudem eine organische flüssige Phase oberhalb der wässrigen Phase in Erscheinung. Der Umsatz betrug zu diesem Zeitpunkt nur 95,8 %. Mittels einer gaschromatographischen Analyse, die in Kooperation mit dem Institut für Bio- und Geowissenschaften (IBG-2) durchgeführt wurde, konnte die Flüssigkeit analysiert werden. Der flüssige organische Rückstand wies dabei eine nahezu identische Zusammensetzung im Vergleich zu den Hauptkomponenten des Kraftstoffs NExBTL-Diesel auf. Ein Vergleich mit einem Alkanstandard n-C<sub>10</sub> – n-C<sub>22</sub> identifizierte die n-Alkane C<sub>15</sub>H<sub>32</sub>, C<sub>16</sub>H<sub>34</sub>, C<sub>17</sub>H<sub>36</sub>, C<sub>18</sub>H<sub>40</sub> und deren Isomere als Hauptbestandteile in NExBTL-Diesel. In geringerem Maße traten C<sub>10</sub>H<sub>22</sub>, C<sub>11</sub>H<sub>24</sub>, C<sub>14</sub>H<sub>30</sub> in Erscheinung. Interessanterweise waren C<sub>11</sub>H<sub>24</sub> und C<sub>12</sub>H<sub>26</sub> nicht vorhanden. Ein kleiner Peak neben Dekan deutet auf Nonan (C<sub>9</sub>H<sub>20</sub>) hin. In der organischen flüssigen Phase waren neben den dieseltypischen Komponenten des NExBTLs in geringem Maße die Substanzen 4-Deken (C<sub>10</sub>H<sub>20</sub>), 3-Undeken (C<sub>11</sub>H<sub>22</sub>), 3-Dodeken (C<sub>12</sub>H<sub>24</sub>), 6-Trideken (C<sub>13</sub>H<sub>26</sub>) und 7-Tetradeken (C<sub>14</sub>H<sub>28</sub>) zu finden. Durch die durchgeführten Regenerationsmaßnahmen konnte die Bildung einer organischen flüssigen Phase wieder unterdrückt werden, der Umsatz erreichte nach 10,000 Betriebsstunden wieder Werte von 98,2 %. Bei 9600 Stunden ließ sich in der wässrigen Phase eine Vielzahl von polaren Komponenten wie Furane, Aldehyde, Ketone, Säuren und Alkohole nachweisen. Bei der Kapillar-Elektrophorese konnten Ameisen- und Essigsäure identifiziert werden. Der TOC-Wert bei 10.000 Stunden betrug ca. 234 ppmw. Wird dieser in Relation zu den 1580 ppmv in der Gasphase gesetzt, so lässt sich aus den Bilanzströmen errechnen, dass von den eingehenden 191 mol/h Kohlenstoff in Form von Diesel ein gasförmiger Restkohlenstoffstrom von 2,57 mol C/ h im Wesentlichen in Form von Ethen und Propen und von 0,061 mol C/h in Form von Oxygenaten gelöst in Wasser anfiel.

In Bezug auf den Reaktionsablauf gibt es Hinweise in der Literatur (Parmar et al., Fuel 89 (2010) 1212–1220), dass Alkane schrittweise unter  $\text{CH}_2^*$ -Abgabe bis zum  $\text{CH}_3^*$ -Adsorbat abgebaut werden. Sauerstoff,  $\text{O}^*$  oxidiert das  $\text{CH}_2^*$ -Adsorbat zu  $\text{CH}_2\text{O}^*$  und unter Wasserstoffabgabe entsteht über  $\text{CHO}^*$  Kohlenmonoxid. Adsorbierter Sauerstoff entsteht nach diesem vorgeschlagenen Reaktionsmechanismus über eine chemische Sorption von Wasserdampf. Als Nebenreaktion entstehen durch  $\text{H}^*$ -Abgabe und Desorption Alkene sowie durch  $\text{H}^*$ -Addition und Desorption Alkane. Die eigenen Messungen weisen darauf hin, dass die Alken-Bildung als Nebenreaktion mit kürzeren Kettenlängen stärker auftritt. Die Interpretation lässt eine verstärkte Alken-Bildung mit abnehmender Kettenlänge oder eine geringere Desorption von Adsorbaten längerer Kohlenwasserstoffketten zu.

Auffällig ist die stark unterschiedliche C-Kettenlänge bei den Restkohlenwasserstoffen in der Gasphase und in der flüssigen organischen Phase. In der Gasphase dominieren kurzkettige Alkene – Ethen bis Buten – und in der flüssigen organischen Phase ist der Ausgangskraftstoff nahezu chemisch unverändert. Die Oxygenate in der wässrigen Phase spielen bei der Verteilung der absoluten Restkohlenstoffmengen nur eine untergeordnete Rolle. Bei 7042 Stunden trat zum Beispiel kurzzeitig eine flüssige organische Phase auf. Der Anteil des Restkohlenstoffs in der Gasphase betrug 77,1 %, 21,4 % sind auf den Kohlenstoff in der flüssigen organischen Phase zurückzuführen und nur 1,4 % sind in der flüssigen wässrigen Phase zu finden. Als Fazit lässt sich festhalten: tritt ein langkettiges Alkan-Molekül in den Reaktionsmechanismus ein, so wird der Abbau der Kohlenstoffkette fast immer vollständig betrieben und erreicht immer  $\text{C}_2$ - oder  $\text{C}_3$ -Moleküle. Alkane, die nicht in die Reaktionsfolge eintreten, verlassen nahezu unverändert den Reformier. Insofern wäre an dieser Stelle der englische Begriff „*diesel slip*“ gut gewählt.

Aus den aktuellen und den vorangegangenen Messungen ist eine Einteilung des Umsatzverhaltens ableitbar:

- Bei extrem niedrigen Umsätzen, z.B. während eines Katalysator-Screenings, treten derart hohe Mengen an nicht umgesetztem Kraftstoff auf, dass die Flüssigkeitsabscheider volllaufen und ein wissenschaftlicher Messbetrieb nicht mehr möglich ist. An dieser Stelle kann von einer Dominanz des „*Diesel-Slips*“ ausgegangen werden.
- Bei niedrigen Umsätzen, z.B. < 96 % kann es zu einem „*Diesel-Slip*“ kommen, bei dem Kraftstoff nahezu unverändert durch den Reaktor gelangt. Parallel treten in der Gasphase hohe Alkenkonzentrationen vor allem an Ethen und Propen auf.
- Bei relativ guten bis hohen Umsätzen treten zwischen 100 – 3000 ppmv NHMC – in der Mehrzahl Ethen und Propen in Erscheinung. Die Restkohlenstoffmengen in der Gasphase sind deutlich höher als die C-Mengen im Wasser bei TOC-Werten zwischen 60 – 500 ppmw.
- Bei sehr hohen Umsätzen ist in der Gasphase kein Kohlenwasserstoff zu identifizieren, während in der wässrigen Phase je nach Reformertyp zwischen 1 – 20 ppmw zu finden sind. Treten Ethen und Propen in Erscheinung, ist deren Anstieg mit zunehmender Messdauer deutlich höher als sich die Umsatzverschlechterung in den TOC-Werten bemerkbar macht. Dabei entspricht eine identifizierbare Restkohlenwasserstoffmenge von 1 ppmv Ethen und 1 ppmv Propen in Bezug auf den Restkohlenstoff einem TOC-Wert von 12 mg/l. In diesem Umsatzbereich dominieren die Oxygenate in der wässrigen Phase.

### 3.2.2.4 Systementwicklung

Die Ergebnisse der Systementwicklung sind in einem gesondertem Kapitel 4.2 zusammengefasst.

### 3.2.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Prof. Dr. R. Peters	4260 <a href="mailto:ra.peters@fz-juelich.de">ra.peters@fz-juelich.de</a>	Leiter der Abteilung Brenngaserzeugung und Systeme
Dr. J. Pasel	5140 <a href="mailto:j.pasel@fz-juelich.de">j.pasel@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe Chemie der Brenngaserzeugung
Dr. R. C. Samsun	4616 <a href="mailto:r.c.samsun@fz-juelich.de">r.c.samsun@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe Systemtechnik der Bordstromversorgung

### 3.2.4 Wichtige Veröffentlichungen, Dissertationen und Patente

#### *Wichtige Veröffentlichungen*

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

#### **Fuel Processing of Diesel and Kerosene for APU Applications**

*Energy & fuels*, 27 (8) 2013, pp. 4836-4394, DOI: 10.1021/ef301976f

Peters, R.; Samsun, R.C.

#### **Evaluation of Multifunctional Fuel Cell Systems in Aviation Using a Multistep Process Analysis Methodology**

*Applied energy*, 111 2013, pp. 46 - 63, DOI: 10.1016/j.apenergy.2013.04.058

Meißner, J.; Pasel, J.; Samsun, R.C.; Scharf, F.; Wiethage, C.; Peters, R.

#### **Catalytic burner with internal steam generation for a fuel-cell-based Auxiliary Power Unit for middle distillates**

*International journal of hydrogen energy*, 39 (8) 2014, pp. 4131-4142, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.05.167

Samsun, R.C.; Pasel, J.; Janßen, H.; Lehnert, W.; Peters, R.; Stolten, D.

#### **Design and Test of a 5 kW<sub>e</sub> High-Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cell System Operated with Diesel and Kerosene**

*Applied energy*, 114 2014, pp. 238-249, DOI: 10.1016/j.apenergy.2013.09.054

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

#### **Hydrodesulfurization process with pre-saturation using reformat for application in a 5 kW fuel cell system**

*Fuel processing technology*, 127 2014, pp. 59-65, DOI: 10.1016/j.fuproc.2014.05.032

#### *Dissertationen*

Wiethage, C

#### **Mobile Brenngaserzeugungssysteme mit Mitteldestillaten für Hochtemperatur-PEFC**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 190, ISBN 978-3-89336-905-8, RWTH Aachen 2013*

*Wichtige Patente*

Erteilte Patente:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
D. Stolten	1.2168	Mischkammer für einen Reformer sowie Verfahren zum Betreiben derselben
Z. Pors	1.2169	Mischkammer für einen Reformer sowie Verfahren zum Betreiben derselben
Z. Pors	1.2272	Verfahren zum Verdampfen eines flüssigen Kraftstoffs sowie eine Mischkammer zur Durchführung dieses Verfahrens

### 3.3 Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen

#### 3.3.1 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 - 180 °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 eine Befeuchtung der Gase nicht erforderlich, um die protonische Leitfähigkeit der Membran sicherzustellen. 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. Ein Betrieb im niedrigen Temperaturbereich ist somit zu vermeiden, was durch die Betriebsstrategien und die spezifischen Einsatzbereiche berücksichtigt werden muss.

Seit 2005 werden im IEK-3 Forschungs- und Entwicklungsarbeiten im Bereich der HT-PEFC durchgeführt. Die Arbeiten decken grundlagenelektrochemische Bereiche, Elektrodenentwicklung und Stackentwicklung ab. Die hierzu notwendige Laborinfrastruktur wurde erweitert und ist in Abb. 25 dargestellt. Neben der Erweiterung der Laborfläche wurde die Geräteausstattung ergänzt.



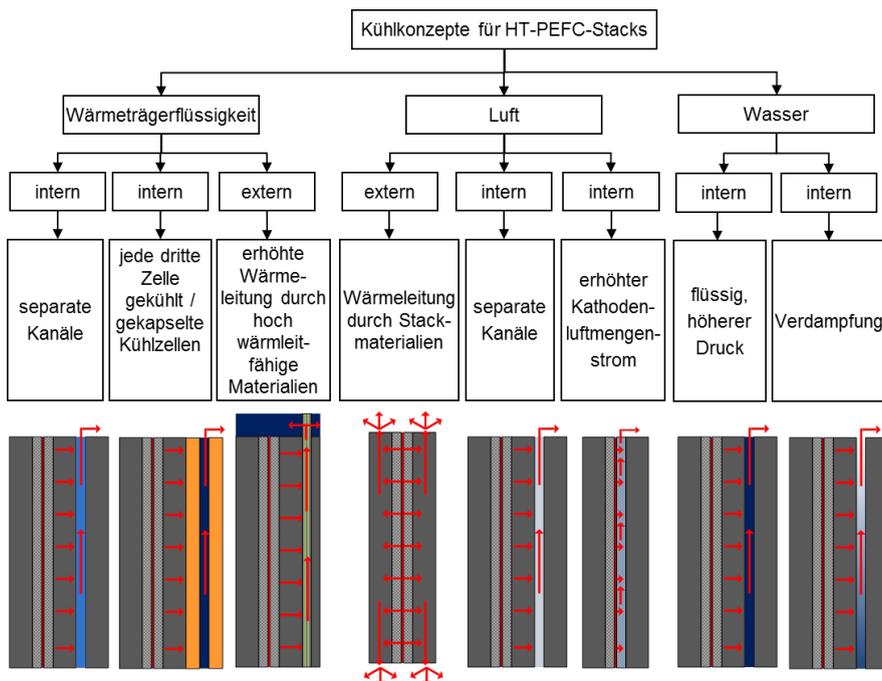
Abb. 25: Die im Jahr 2014 fertiggestellte Bühne mit den HT-PEFC Testständen

Im Bereich der Stackentwicklung wurden unterschiedliche Kühlkonzepte beziehungsweise Temperierkonzepte untersucht. Parallel zu den experimentellen Arbeiten im Bereich der Stackentwicklung wurden Modellierungs- und Simulationsarbeiten durchgeführt. Zur Beschreibung von HT-PEFC Zellen wurden Modelle auf Basis der Open Source Simulationstools OpenFOAM entwickelt. Detaillierte Simulationen des Stofftransportes in porösen Gasdiffusionslagen wurden mit dem im IEK-3 entwickelten Lattice-Boltzmann Softwaretool JULABOS durchgeführt. Insgesamt zeigte sich, dass die enge Kopplung von Experiment und Modellierung/Simulation einen wesentlichen Erkenntnisfortschritt in der HT-PEFC Forschung und Entwicklung brachte.

### 3.3.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

#### 3.3.2.1 HT-PEFC Kühlkonzepte

Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen- (HT-PEFC) Stacks der kW-Klasse benötigen ein spezielles Wärmemanagementsystem, welches den Stack zum einen im Anfahrbetrieb auf die erforderliche Betriebstemperatur (140 °C bis 180 °C) erwärmt und zum anderen die überschüssige Reaktionswärme aus dem Stack auskoppelt. Idealerweise lässt sich das Wärmemanagement des Stacks mit dem des Gesamtsystems koppeln.



**Abb. 26: Übersicht der Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks**

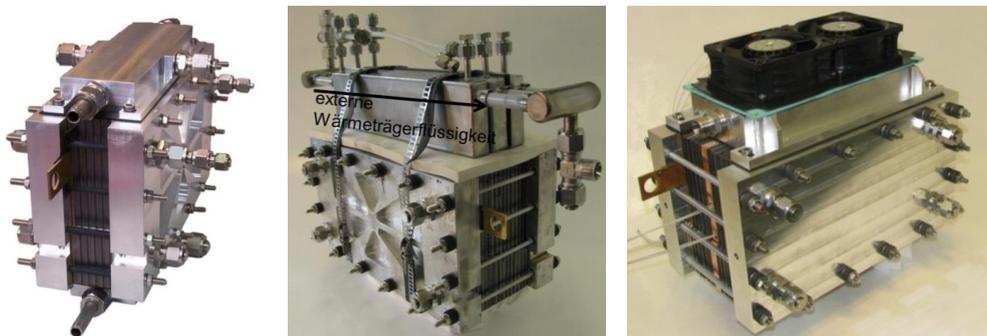
In Abb. 26 sind mögliche Konzepte zum Kühlen von HT-PEFC-Stacks in einer Übersicht dargestellt. Nicht alle diese Konzepte sind in dieser Variante auch zum Aufheizen des Stacks geeignet. Dafür sind weitere Methoden (z. B. elektrische Heizung) erforderlich. Die Aufteilung

der Kühlkonzepte erfolgt zunächst nach der Art des Wärmeträgermediums und dann danach, ob das Wärmeträgermedium den Stack durchströmt (intern) oder nicht (extern). Mögliche Medien für die Kühlaufgabe sind:

- Wärmeträgerflüssigkeit, die im gesamten Betriebsbereich des Stacks flüssig bleibt, z. B. Polyglykol oder ein Wärmeträgeröl,
- Umgebungsluft und
- Wasser, wobei grundsätzlich zwischen Flüssigkühlung im Druckbetrieb und Kühlung mit Phasenwechsel zu unterscheiden ist.

Abgesehen von einer Ausnahme haben die Wärmeträgermedien keinen direkten Kontakt mit der Membran-Elektroden-Einheit (MEA). D. h. der Wärmetransport erfolgt im Stack von der Quelle (MEA) zunächst über Wärmeleitung der angrenzenden Bipolarplatten (Graphit-Komposite oder Metalle). Bei den „internen Konzepten“ sind in den oder angrenzend an die Bipolarplatten zusätzliche Kanäle für die Durchströmung des Wärmeträgermediums vorhanden. Diese Konzepte sind mit spezifischen Varianten (z. B. Kapselung des Kühlraumes) für alle Wärmeträgermedien realisierbar. Die angesprochene Ausnahme betrifft das Medium Luft, welches bei einer Variante der internen Kühlung zugleich Kathodenluft ist, deren Massenstrom aber nicht für die Stromerzeugung sondern für die Wärmeauskopplung bemessen ist. Nur hier hat das Wärmeträgermedium einen direkten MEA-Kontakt.

Bei den „externen Konzepten“ wird die überschüssige Reaktionswärme über wärmeleitfähige Materialien (vorhandene Stackbauteile wie Bipolarplatten oder zusätzlich eingebaute hochwärmeleitfähige Elemente wie Heatpipes) aus dem Stack herausgeführt. Außerhalb des Stacks wird die Wärme dann entweder direkt an die Umgebungsluft oder ein anderes Wärmeträgermedium übertragen.



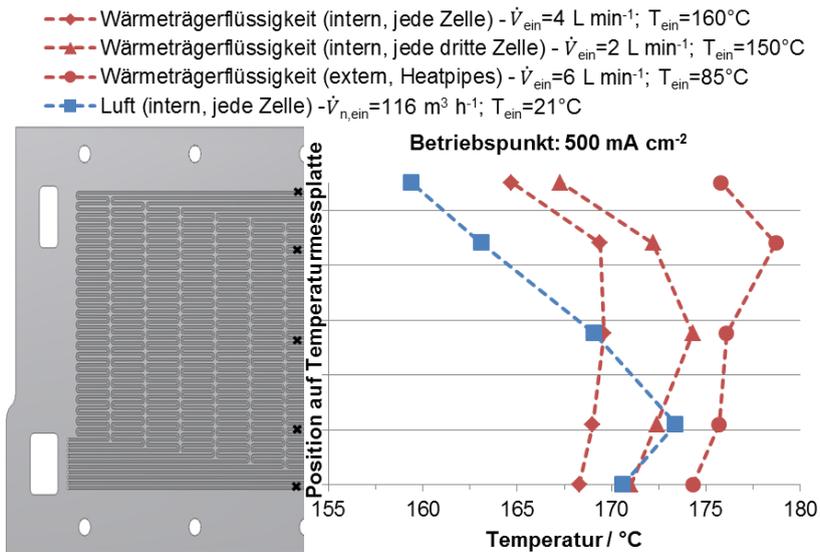
**Abb. 27: HT-PEFC-Stacks zur experimentellen Analyse von Kühlkonzepten. Links: Flüssigkeitskühlung nach jeder Zelle, Mitte: Heatpipe-Kühlung mit externer Wärmeübertragung an eine Wärmeträgerflüssigkeit, Rechts: Luftkühlung**

Nach einer intensiven Analyse der möglichen Kühlkonzepte mit teilweise experimentellen Vorversuchen oder CFD-Simulationen mit Fluent<sup>®</sup> wurden für drei verschiedene Konzepte Stacks aufgebaut und getestet. In Abb. 27 sind die drei Teststacks dargestellt. Für einen Vergleich des Betriebs- und Kühlverhaltens sind die Stacks aus ähnlichen Komponenten aufgebaut. In der nachfolgenden Tab. 7 sind die wesentlichen Parameter dargestellt.

Komponente	Spezifikation
MEA	Celtec P-1000 <sup>®</sup> , Fa. BASF, aktive Zellfläche: 200 cm <sup>2</sup>
Bipolarplatte	Graphit-Komposit-Material Typ BBP 4, Fa. Eisenhuth 10-fach-Mäander-Gasflowfield auf Anoden- und Kathodenseite
Wärmeträgermedium	<u>Flüssigkeitskühlung:</u> Polyglykol Typ Fragothem <sup>®</sup> S-15-A, Fa. Fragol <u>Heatpipe-Kühlung:</u> Edelstahlmantel, 3 mm Durchmesser, Betriebsmedium Heatpipe: Wasser, externe Wärmeübertragung an Fragothem <sup>®</sup> <u>Luftkühlung:</u> Umgebungsluft

**Tab. 7: Parameter bei experimentellem Vergleich unterschiedlicher Kühlkonzepte für HT-PEFC-Stacks**

Wesentliche Aufgabe des Kühlsystems ist es, die Reaktionswärme so aus dem Stack auszukoppeln, dass lokal eine ausreichend homogene Temperaturverteilung vorliegt. Für die Temperatur während des Stackbetriebs wurde ein Grenzbereich von 160 °C bis 180 °C festgelegt. Dieser Grenzbereich gilt sowohl als Mittelwert von Zelle zu Zelle als auch für den gesamten Bereich der aktiven Zellfläche.



**Abb. 28: Einfluss des Wärmeträgermediums und des Kühlsystems auf die Temperaturverteilung in der MEA-Ebene bei einer Stromdichte von 500 mA cm<sup>-2</sup>**

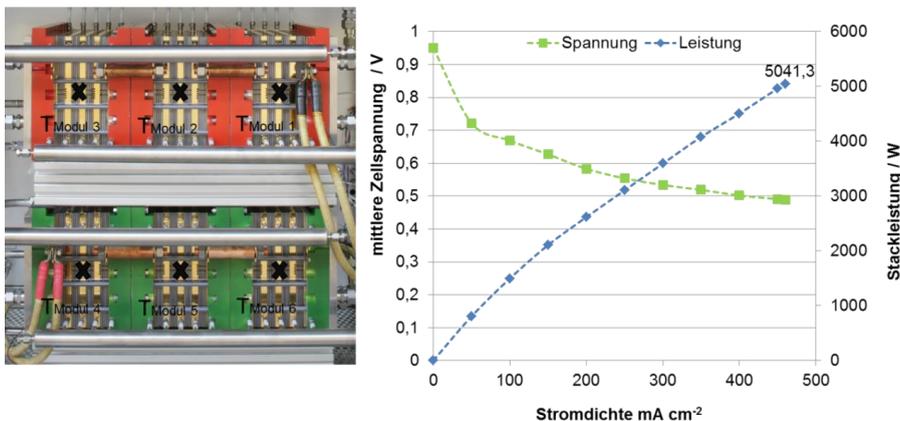
Die Temperaturverteilung an fünf ausgewählten Punkten entlang der Hauptströmungsrichtung in der MEA-Ebene für die drei verschiedenen Kühlkonzepte ist in Abb. 28 dargestellt. Für den Fall der Flüssigkeitskühlung sind zwei Varianten aufgebaut worden: Kühlung nach jeder Zelle sowie Kühlung nach jeweils drei Zellen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass alle Kühlkonzepte grundsätzlich geeignet sind. Der begrenzte Temperaturbereich wurde nicht über- oder unterschritten. Am Verlauf

der Temperatur lassen sich spezifische Unterschiede der Konzepte ablesen. So liegt die größte Temperaturspreizung von etwa 14 K bei der Luftkühlung vor. Gründe dafür sind die deutlich geringere Wärmekapazität (etwa Faktor 2) und der kleinere Wärmeübergangskoeffizient (etwa Faktor 10) von Luft im Vergleich zum flüssigen Polyglykol. Der typische Temperaturanstieg in Hauptströmungsrichtung aller Medien (Gleichstromführung von oben nach unten) ist erkennbar und für die Luftströmung besonders stark ausgeprägt. Der Temperaturgradient ist für die Heatpipe-unterstützte Kühlung am geringsten. Allerdings ist das Temperaturniveau auch nahe am oberen Limit. Begrenzender Faktor war hier der konvektive Wärmeübergang von den Heatpipes an die Wärmeträgerflüssigkeit im Außenbereich des Stacks.

### 3.3.2.2 Temperaturverteilung in einem 5 kW-HT-PEFC-Stack

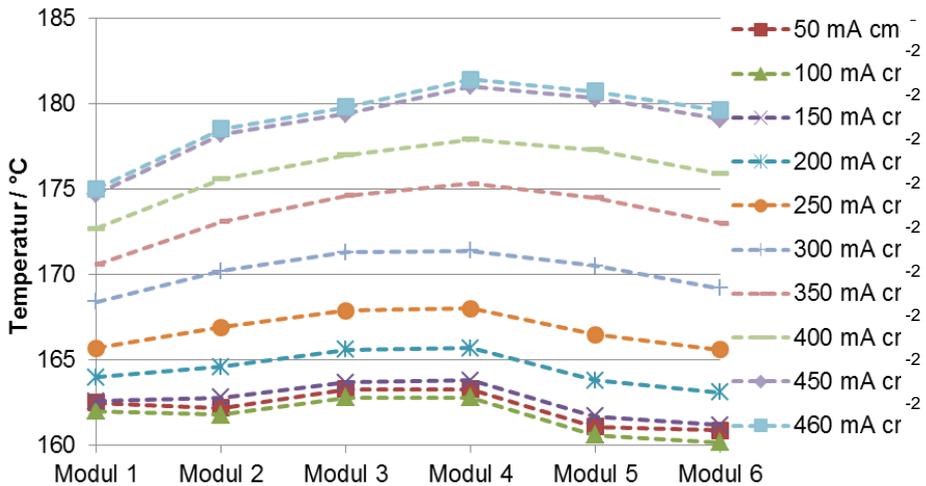
Im Rahmen des Projektes EFFESYS-BRINKS wurde ein HT-PEFC-Stack für die Integration in eine Flugzeug-APU entwickelt, aufgebaut und getestet. Die interne Wärmeträgerflüssigkeitskühlung jeder dritten Zelle mit gekapselten Kühlzellen wurde anhand von Voruntersuchungen im Rahmen der Dissertation von Jen Supra<sup>i</sup> als potentiell am besten geeignet identifiziert. Das Kühlsystem soll einen HT-PEFC-Stack im Reformatbetrieb mit einer Leistung von 5 kW<sub>el</sub> temperieren. Um die geforderte Leistung zu generieren, ist eine aktive Zellfläche von 320 cm<sup>2</sup> vorgesehen. Eine Hochskalierung von experimentell ermittelten Leistungsdaten des Stackkonzeptes hat gezeigt, dass voraussichtlich 70 Zellen benötigt werden. Der Stack soll in Modulbauweise bestehend aus fünf Modulen mit je 12 Zellen und einem Modul mit 10 Zellen ausgeführt werden. Die Modulbauweise hat den Vorteil, dass bei einem möglichen Zellversagen nicht der gesamte Stack deassembliert werden muss, sondern nur das betreffende Modul.



**Abb. 29: Platzierung der Thermoelemente (links) und erreichte Stackleistung (rechts) gemessen im Reformatbetrieb,  $T_{KM, ein}=160\text{ °C}$ ,  $\dot{V}_{KM, ein}=18\text{ l/min}$ , 70 Zellen,  $\lambda_{Rel/Luft}=2/2$**

Die Analyse des thermischen Verhaltens erfolgt sowohl auf Stack- als auch auf Modulebene, um zu überprüfen, ob sich das Modulverhalten auch im gesamten Stackaufbau widerspiegelt. Aus diesem Grund wird zunächst die Temperatur in jedem Modul etwa im volumetrischen Zentrum gemessen. Abb. 29 zeigt die Messstellen und die Leistungskennwerte des Gesamtaufbaues.

Anhand der Strom/Spannungs-Kennlinie ist zu erkennen, dass eine Gesamtleistung von über  $5 \text{ kW}_{\text{el}}$  bei einer Stromdichte von  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  und einem Betrieb mit synthetischem Reformate erzielt wurde. Aufgrund der Teststandrestriktionen konnte nur ein Gesamtvolumenstrom der Wärmeträgerflüssigkeit von maximal  $18 \text{ l/min}$  zur Kühlung verwendet werden. Dies entspricht etwa nur der Hälfte des Auslegungswertes. Damit ist das Betriebsfenster des Stacks aus thermischer Sicht begrenzt. Die ermittelten Temperaturen sind in Abb. 30 dargestellt.

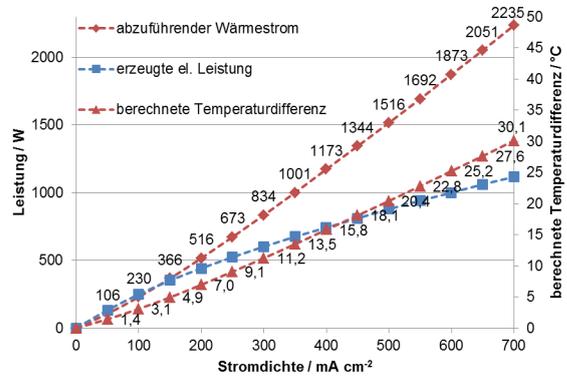
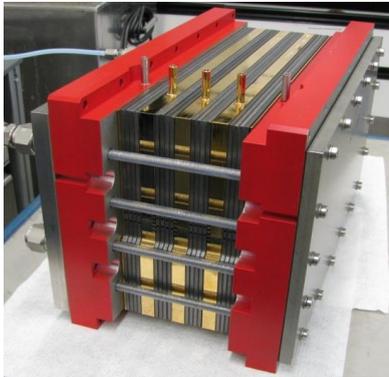


**Abb. 30: Gemessene Temperaturen in den Zentren der einzelnen Stackmodule in Abhängigkeit von der Stromdichte**

Es ist zu erkennen, dass die Temperaturdifferenz zwischen den einzelnen Modulen des Gesamtstacks hinreichend klein ist und im Maximum  $6,4 \text{ K}$  bei einer Stromdichte von  $460 \text{ mA cm}^{-2}$  beträgt. Bei niedrigen Stromdichten sinkt die Temperaturdifferenz ebenfalls. Das Temperaturniveau bei  $50 \text{ mA cm}^{-2}$  liegt geringfügig oberhalb des Temperaturniveaus bei  $100 \text{ mA cm}^{-2}$ , da die Haltezeit bis zum Einstellen einer stationären Temperatur zu gering war.

Neben der Temperaturdifferenz zwischen den einzelnen Stackmodulen soll auch die Temperaturdifferenz zwischen den Zellen bestimmt werden. Dazu wurden ein analytisches Modell auf der Basis von Energiebilanzen und ein reales Stackmodul (s. Abb. 31, links) mit 12 Zellen und Kühlung nach jeweils drei Zellen aufgebaut. Für einen nach jeder dritten Zelle gekühlten Stack mit  $320 \text{ cm}^2$  aktiver MEA-Fläche ergibt sich aus den Berechnungen die in Abb. 31, rechts gezeigte maximale Temperaturdifferenz sowie der abzuführende Wärmestrom. Aus dem Diagramm geht hervor, dass ein HT-PEFC-Stackmodul im Reformatbetrieb bis zu einer Stromdichte von  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  ausreichend gekühlt wird, wenn jede dritte Zelle temperiert wird. Bei dieser Stromdichte beträgt die maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle  $18,1 \text{ K}$ . Wie in einer Vorauslegung gezeigt wurde, beträgt das Temperaturniveau im Stack für diesen Betriebspunkt  $160 \text{ °C}$  bei einer Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit von  $140 \text{ °C}$ . Damit würde die maximale Temperatur im Stack bei einer Temperaturdifferenz von  $18,1 \text{ K}$  die Betriebstemperaturgrenze von  $180 \text{ °C}$  nicht überschreiten. Bei höheren Stromdichten würden bei konstanter Wärmeträgerflüssigkeitseintrittstemperatur lokal Temperaturen über  $180 \text{ °C}$  im Stack auftreten. Ein Betrieb bei Stromdichten über  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  ließe sich durch ein Absenken der

Eintrittstemperatur der Wärmeträgerflüssigkeit realisieren. Im Reformatbetrieb liegt der Stackwirkungsgrad der Stromerzeugung bei Stromdichten über  $450 \text{ mA cm}^{-2}$  deutlich unter 50 %, so dass ein stationärer Betrieb nur unter Umständen energetisch sinnvoll wird.



**Abb. 31:** Links: Stackmodul mit 12 Zellen,  $A_{\text{aktiv}}=320 \text{ cm}^2$ . Rechts: Mit Hilfe der Energiebilanz berechneter abzuführender Wärmestrom eines Moduls und berechnete maximale Temperaturdifferenz von Zelle zu Zelle: Reformatbetrieb, vollständige thermische Isolation

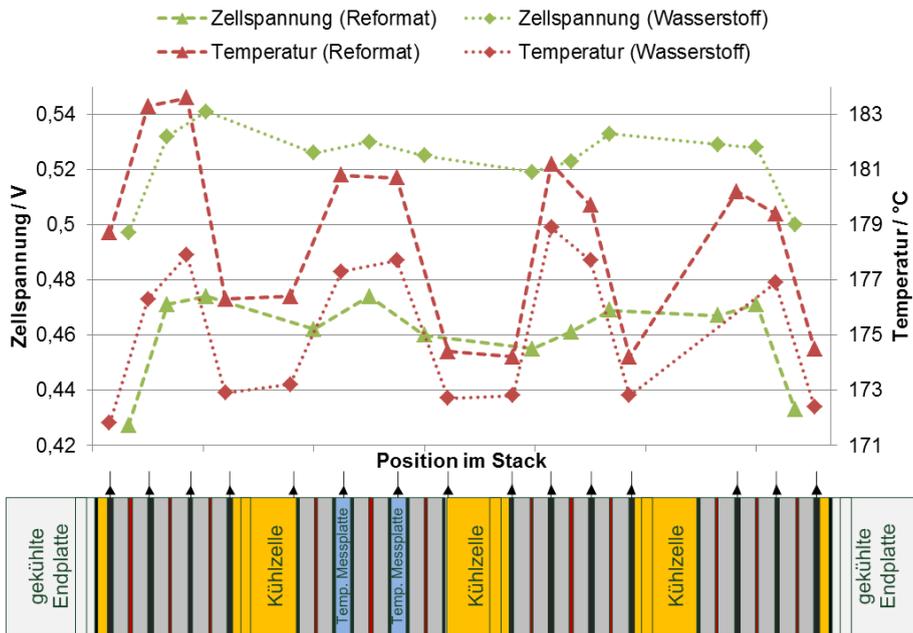
Die experimentelle Validierung erfolgt mit Wasserstoff bzw. synthetischem Reformat und Luft bei einem stöchiometrischen Verhältnis von jeweils 2. Die variablen Parameter der Wärmeträgerflüssigkeitszufuhr sind auf eine Eintrittstemperatur von  $160 \text{ °C}$  und einen Volumenstrom von  $6 \text{ l/min}$  festgelegt. Eine Übersicht der experimentellen Betriebsbedingungen ist in Tab. 8 zu finden.

Komponente/Parameter	Spezifikation
Anodengas	H <sub>2</sub> bzw. synthetisches Reformat (42% H <sub>2</sub> , 57% N <sub>2</sub> , 1% CO)
Kathodengas	Luft
Stöchiometrie	$\lambda_{\text{H}_2/\text{Luft}}=2/2$ , $\lambda_{\text{Ref}/\text{Luft}}=2/2$
$T_{\text{Gas,ein}}$	$160 \text{ °C}$
$T_{\text{Kühlmittel,ein}}$	$160 \text{ °C}$
Volumenstrom des Kühlmittels	$6 \text{ L min}^{-1}$
$A_{\text{aktiv}}$	$320 \text{ cm}^2$ je Zelle
MEA	BASF Celtec® P1000
Modul	12 Zellen
Kühlung	3 Kühlzellen + gekühlte Endplatten
Wärmeträgerflüssigkeit	Fragoltherm S-15-A

**Tab. 8:** Übersicht der experimentellen Betriebsbedingungen

In Abb. 32 sind die lokalen Werte für die Zellspannung und die mittlere Zelltemperatur entlang der Stackachse dargestellt. Die Temperatur- und Zellspannungsprofile verlaufen weitestgehend parallel, der Temperatureinfluss der Zellspannung ist deutlich erkennbar. Bei gleicher Stromdichte liegt das Zellspannungsniveau für den Wasserstoffbetrieb mit

durchschnittlich 0,52 V um 0,06 V über dem Zellspannungsniveau des Reformatbetriebs (0,46 V). Anhand der Energiebilanz ergibt sich, dass der abzuführende Wärmestrom des Reformatbetriebs um 129,6 W höher ist als beim Wasserstoffbetrieb. Daher liegt das Temperaturniveau des Wasserstoffbetriebs unterhalb dessen des Reformatbetriebs, da die Eintrittsbedingungen der Wärmeträgerflüssigkeit gleich sind. Eine ausreichende Kühlung ist also bis zu einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$  ( $\dot{Q}_{ab,Ref}=1516 \text{ W}$ ) gewährleistet. Im Wasserstoffbetrieb wird aufgrund des höheren Spannungsniveaus häufig ein Betriebspunkt bei höheren Stromdichten gewählt. Eine Abschätzung mit Hilfe der Energiebilanz zeigt, dass eine ausreichende Kühlung im Wasserstoffbetrieb nur bis zu Stromdichten unterhalb von  $550 \text{ mA cm}^{-2}$  ( $\dot{Q}_{ab,H_2}=1549 \text{ W}$ ) gewährleistet ist. Das hier vorgestellte Kühlkonzept ist also spezifisch für den Reformatbetrieb ausgelegt.

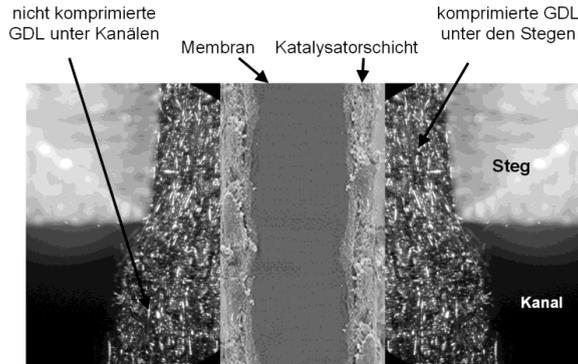


**Abb. 32:** Lokale Temperatur- und Spannungsverteilung von Zelle zu Zelle. Vergleich von Reformat- und Wasserstoffbetrieb bei einer Stromdichte von  $500 \text{ mA cm}^{-2}$ .  $T_{KM,ein} = 160 \text{ °C}$ ,  $V_{KM} = 6 \text{ l/min}$

### 3.3.2.3 Numerische Strömungssimulation in porösen Strukturen

Auf der mesoskopischen Größenskala wird die Lattice-Boltzmann-Methode verwendet, um Transportprozesse in Gas-Diffusionsschichten (Gas diffusion layer, GDL) zu simulieren. Die zu Grunde liegenden geometrischen Strukturen stammen aus zwei Quellen. Am Helmholtz-Zentrum Berlin wurde die Mikrostruktur von GDLs im BESSY-Synchrotron ermittelt und für Transportsimulationen im IEK-3 zur Verfügung gestellt. Darüber hinaus wurden vom Institut für Stochastik der Universität Ulm stochastische Modelle der Mikrostruktur von GDLs verschiedener Hersteller entwickelt. Diese führen zu künstlichen Strukturen, die mit der Realstruktur stochastisch äquivalent sind. Diese Strukturen stehen ebenfalls für Transportsimulationen zur Verfügung.

Die Verteilung der Gase über der aktiven Fläche einer Brennstoffzelle wird durch geeignete Strömungsverteiler (sogenannte flow fields) realisiert. Abb. 33 zeigt, wie die GDL durch die Strömungsverteiler unter den Stegen zusammen gedrückt wird, und wie unter den Kanälen Teile der Mikrostruktur in den Kanal hinein ragen können.



**Abb. 33: GDL im Kanal/Steg-Bereich eines Flowfields**

Durch die Kanal-Steg-Struktur entsteht ein Ungleichgewicht in der Gasversorgung an der Elektrode: eine überdurchschnittliche Versorgung unter dem Kanal und eine unterdurchschnittliche Versorgung unter dem Steg. Durch die GDL kann die Fläche unter dem Steg genutzt werden, indem durch die poröse Struktur eine Querströmung ermöglicht wird, die das Gas möglichst homogen an der Elektrode verteilt.

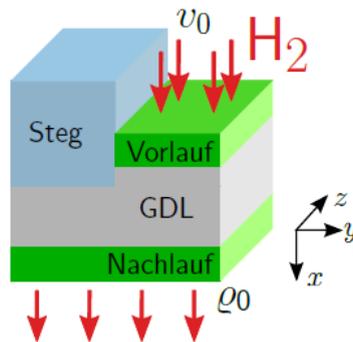


**Abb. 34: Links: Spannvorrichtung zur kontrollierten Kompression von porösen Strukturen. Rechts: Ausschnitt eines Tomogramms einer GDL mit 29% Kompression**

Die Gasströmung wird vom Kompressionsgrad der GDL beeinflusst, der mit dem Anpressdruck der Bipolarplatte auf die GDL korreliert. Die Kompression kann im Labormaßstab mit Hilfe einer Stellvorrichtung exakt eingestellt werden (Abb. 34, links). Eine reale GDL wurde am Helmholtz-Zentrum Berlin im BESSY-Synchrotron untersucht und Geometrien für ein Kanal-Steg-Szenario mit unterschiedlichen Kompressionsgraden

visualisiert. In Abb. 34 (rechts) ist ein Teil einer 3D Realstruktur zu sehen, bei der in der Mitte ein Kanal verläuft.

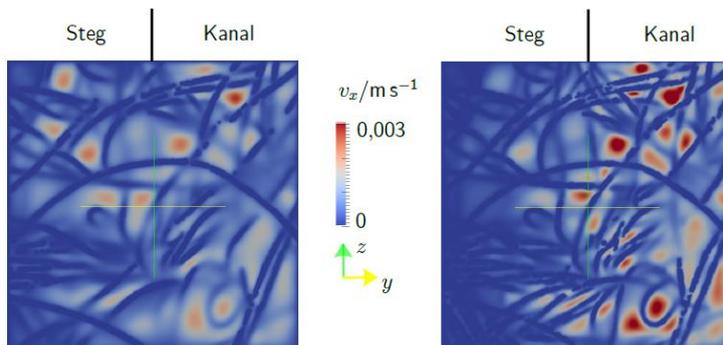
Mit zunehmender Kompression werden mehr Fasern in den Kanalbereich gedrückt und die Dicke des Materials wird geringer, sodass insbesondere unter dem Steg Bereiche mit gehäuften Faseransammlungen entstehen. Der Kompressionsgrad entspricht dem Volumenanteil, der von der Gesamtgeometrie durch die Komprimierung eingeübt wurde. Der Einfluss dieser Kompression auf die Gasströmung in einem Kanal-Steg-Szenario wurde mit Hilfe von Transportsimulationen in der Mikrostruktur untersucht. Dazu wurde das Szenario der Strukturuntersuchungen im BESSY-Synchrotron nachgestellt. Die Transportvorgänge während des Brennstoffzellenbetriebes im relevanten Bereich unter der Stegkante wurden mit Hilfe der Lattice-Boltzmann-Methode simuliert. Eine schematische Darstellung der Simulationsgeometrie ist in Abb. 35 gezeigt.



**Abb. 35: Schematische Darstellung der Simulations-Geometrie**

Wasserstoff gelangt über den Kanal in die GDL und wird durch die poröse Struktur verteilt, so dass er über die gesamte Fläche an der Elektrodenseite austritt. Der Betriebspunkt der Brennstoffzelle wird über die Geschwindigkeit – und damit der Masse des umgesetzten Brennstoffes – eingestellt, der von der Kanalseite her in die GDL eindringt. Für die Simulation standen Realdaten von vier Kompressionsstufen von 0 bis 29 % zur Verfügung.

In Abb. 36 ist die x-Komponente der lokalen Geschwindigkeit  $v_x$  (welche proportional zum Massenfluss ist) an der Grenzfläche zur Elektrode dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, wie die Struktur der GDL dazu führt, dass sich über die gesamte Fläche verteilt lokale Maxima und Minima für  $v_x$  ausbilden. Des Weiteren wird ein Ungleichgewicht in y-Richtung deutlich. Dieses ist stärker für die größere Komprimierung auf der rechten Seite: Unter dem Steg ist eine unterdurchschnittliche Versorgung zu erkennen, unter dem Kanal ist sie überdurchschnittlich.



**Abb. 36: Geschwindigkeitsprofil y-z-Ebene an der Elektrodenseite einer Kanal-Steg-Geometrie: Komprimierung= 0% (links), Komprimierung= 29% (rechts)**

Als qualitatives Ergebnis der Transportsimulationen bei vier Kompressionsstufen kann festgehalten werden, dass die Gasversorgung der Elektrode nicht linear mit der Komprimierung einhergeht. Die Transportsimulationen wurden auf Hardware des Jülich Supercomputing Centre (JSC) durchgeführt (JUROPA).

### 3.3.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Prof. Dr. W. Lehnert	3915 <a href="mailto:w.lehnert@fz-juelich.de">w.lehnert@fz-juelich.de</a>	Leiter der Abteilung Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen
J. Brinkmann	2177 <a href="mailto:j.brinkmann@fz-juelich.de">j.brinkmann@fz-juelich.de</a>	Lattice Boltzmann Modellierung auf Zellkomponentenebene
Q. Cao	1923 <a href="mailto:q.cao@fz-juelich.de">q.cao@fz-juelich.de</a>	Modellierung von Brennstoffzellen mit OpenFOAM
D. Froning	6676 <a href="mailto:d.froning@fz-juelich.de">d.froning@fz-juelich.de</a>	Modellierung von Brennstoffzellen, Informatik, Software Engineering
Dr. H. Janßen	5082 <a href="mailto:h.janssen@fz-juelich.de">h.janssen@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe HT-PEFC Stackentwicklung
Prof. Dr. A. Kulikovskiy	5396 <a href="mailto:a.kulikovskiy@fz-juelich.de">a.kulikovskiy@fz-juelich.de</a>	Entwicklung analytischer und numerischer Modelle von HT-PEFCs, DMFCs und SOFCs
Fr. F. Liu	9036 <a href="mailto:f.liu@fz-juelich.de">f.liu@fz-juelich.de</a>	Elektrodenentwicklung und -Charakterisierung
Fr. S. Lee	1923 <a href="mailto:s.lee@fz-juelich.de">s.lee@fz-juelich.de</a>	Modellierung von Brennstoffzellen mit OpenFOAM
Fr. Dr. W. Lücke	9073 <a href="mailto:w.lueke@fz-juelich.de">w.lueke@fz-juelich.de</a>	Elektroden- und MEA Charakterisierung
Fr. A. Majerus	3018 <a href="mailto:a.majerus@fz-juelich.de">a.majerus@fz-juelich.de</a>	Membran- und Elektrolytcharakterisierung

Fr. Dr. M. Nullmeier	9074 <a href="mailto:m.nullmeier@fz-juelich.de">m.nullmeier@fz-juelich.de</a>	HT-PEFC Grundlagenelektrochemie
Dr. U. Reimer	3537 <a href="mailto:u.reimer@fz-juelich.de">u.reimer@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe HT-PEFC Modellierung und Simulation
Fr. B. Schumacher	5406 <a href="mailto:b.schumacher@fz-juelich.de">b.schumacher@fz-juelich.de</a>	Entwicklung von Teststandkonzepten für HT-PEFC und Untersuchungen von HT- PEFCs
J. Supra	6029 <a href="mailto:j.supra@fz-juelich.de">j.supra@fz-juelich.de</a>	Entwicklung von HT-PEFC Stacks, Benchmarking von Stackmaterialien
V. Weißbecker	9576 <a href="mailto:v.weissbecker@fz-juelich.de">v.weissbecker@fz-juelich.de</a>	Korrosionsuntersuchungen an metallischen Bipolarplatten

### 3.3.4 Wichtige Veröffentlichungen, Dissertationen und Patente

*Veröffentlichungen:*

Conti, F.; Willbold, S.; Mammi, S.; Korte, C.; Lehnert, W.; Stolten, D.

**Carbon NMR investigation of the polybenzimidazole-dimethylacetamide interactions in membranes for fuel cells**

*New journal of chemistry*, 37 (1) 2013, pp. 152-156, DOI: 10.1039/C2NJ40728K

Froning, D.; Brinkmann, J.; Reimer, U.; Schmidt, V.; Lehnert, W.; Stolten, D.

**3D analysis, modeling and simulation of transport processes in compressed fibrous microstructures, using the Lattice Boltzmann method**

*Electrochimica acta*, 110 (1) 2013, pp. 325-334, DOI: 10.1016/j.electacta.2013.04.071

Janßen, H.; Supra, J.; Lüke, L.; Lehnert, W.; Stolten, D.

**Development of HT-PEFC Stacks in the kW range**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (11) 2013, pp. 4705-4713, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.01.127

Kulikovsky, A.; Eikerling, M.

**Analytical solutions for impedance of the cathode catalyst layer in PEM fuel cell: Layer parameters from impedance spectrum without fitting**

*Journal of electroanalytical chemistry*, 691 2013, pp. 13-17, DOI: 10.1016/j.jelechem.2012.12.002

Liu, F.; Kvesic, M.; Wippermann, K.; Reimer, U.; Lehnert, W.

**Effect of Spiral Flow Field Design on Performance and Durability of HT-PEFCs**

*Journal of the Electrochemical Society*, 160 (8) 2013, pp. F892-F897, DOI: 10.1149/2.116308jes

Supra, J.; Janßen, H.; Lehnert, W.; Stolten, D.

**Design and Experimental Investigation of a Heat Pipe supported External Cooling System for HT-PEFC stacks**

*Journal of fuel cell science and technology*, 10 (5) 2013, pp. 051002-1 - 051002-7, DOI: 10.1115/1.4025052

Weißbecker, V.; Reimer, U.; Wippermann, K.; Lehnert, W.

**A Comprehensive Corrosion Study on Metallic Materials for HT-PEFC Application**

*224th ECS Meeting*, 58 (1) 2013, pp. 693-704, DOI: 10.1149/05801.0693ecst

Arlt, T.; Maier, W.; Tötze, C.; Wannek, C.; Markötter, H.; Wieder, F.; Banhart, J.; Lehnert, W.; Manke, I.

**Synchrotron X-ray radioscopic in situ study of high-temperature polymer electrolyte fuel Cells - Effect of operation conditions on structure of membrane**

*Journal of power sources*, 246 2014, pp. 290-298, DOI: 10.1016/j.powsour.2013.07.094

*Dissertationen*

Kvesic, M.

**Modellierung und Simulation von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 158, ISBN 978-3-89336-835-8, RWTH Aachen 2013*

Lüke, L.

**Analyse des Betriebsverhaltens von Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 192, ISBN 978-3-89336-909-6, RWTH Aachen 2013*

Maier, W.

**Phosphorsäureverteilung in Membran-Elektroden-Einheiten dynamisch betriebener Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 157, ISBN 978-3-89336-830-3, RWTH Aachen 2013*

Brinkmann, J.P.

**Lattice-Boltzmann-Simulation in faserbasierten Mikrostrukturen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 232, ISBN 978-3-89336-995-9, RWTH Aachen 2014*

Liu, F.

**Interaction of Phosphoric Acid with Cell Components in High Temperature Polymer Electrolyte Fuel Cells**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 219, ISBN 978-3-89336-972-0, RWTH Aachen 2014*

Majerus, A.

**Eigenschaften des Phosphorsäure-Polybenzimidazol-Systems in Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 210, ISBN 978-3-89336-947-8, RWTH Aachen 2014*

Supra, J.

**Kühlkonzepte für Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen-Stacks**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 209, ISBN 978-3-89336-946-1, RWTH Aachen 2014*

*Wichtige Patente*

Patentanmeldungen:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
J. Bohner	1.2569	Spannmittel für einen Brennstoffzellenstapel sowie Verfahren zum Verspannen eines Brennstoffzellenstapels
A. Kullikovskiy	1.2601	Verfahren zur Charakterisierung der Katalysatorstruktur in einer Brennstoffzelle,

O. Holderer	1.2630	sowie dazu geeignetes Brennstoffzellendesign Materialprüfung von Membranen für Polymerelektrolytbrennstoffzellen
V. Weißbecker	1.2673	Bipolarplatte für elektrochemische Zellen sowie Verfahren zur Herstellung derselben

Erteilte Patente:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
H. Dohle	1.2375	Hochtemperatur-Polymerelektrolyt Brennstoffzellensystem (HT-PEFC) sowie ein Verfahren zum Betreiben desselben
A. Kulikovskiy	1.2601	Verfahren zur Charakterisierung der Katalysatorstruktur in einer Brennstoffzelle, sowie dazu geeignetes Brennstoffzellendesign

### 3.4 Direktmethanol-Brennstoffzellen

Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFC) wandeln den flüssigen Brennstoff Methanol direkt in elektrischen Strom um. Im Vergleich zu Brennstoffzellensystemen, die mit reinem Wasserstoff oder wasserstoffreichen Gasen aus Reforming-Prozessen betrieben werden, erfolgt die Brennstoffzufuhr direkt über flüssiges Methanol. Der einfache Systemaufbau erlaubt einen uneingeschränkten Teillastbetrieb und kann dadurch gerade im Leistungsbereich bis fünf kW gegenüber den deutlich komplexeren Systemen mit Reformierung überzeugen. Neben der sehr hohen Energiedichte des Methanols besticht die DMFC durch die einfache Handhabung und das problemlose Nachfüllen des flüssigen Brennstoffs.

Der Einsatz von Direktmethanol-Brennstoffzellen (DMFC) für kleine, mobile Anwendungen z.B. im Bereich „Material Handling“ als Ersatz für Bleibatterien kann kurz- bis mittelfristig interessant werden, außerdem richten sich die F&E-Arbeiten zur DMFC auf die Entwicklung von Systemen in der kW-Klasse für Notstromversorgung, die besondere Anforderungen an die Haltbarkeit der Stacks stellt. Eine weitere für die DMFC interessante Anwendung ist der Robotik-Bereich. Die Systeme die dort eingesetzt werden zeichnen sich durch einen kompakten Aufbau und eine hohe Leistungsdichte aus.

#### 3.4.1 Ziele und Tätigkeiten

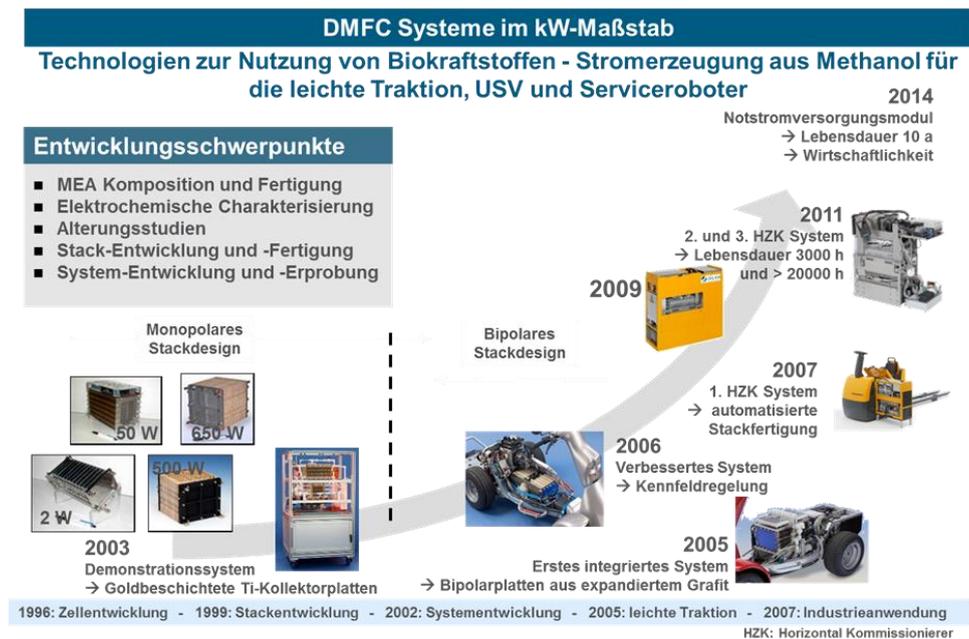
Die Themen im DMFC-Bereich (vgl. Abb. 37) erstrecken sich von der Entwicklung der Membranelektrodeneinheit (MEA), über deren Einsatz in DMFC-Stacks bis hin zur Entwicklung von DMFC-Systemen für die o.g. Anwendungen. Dabei stehen alle Arbeiten immer unter besonderer Berücksichtigung von fertigungstechnischen Aspekten.



Abb. 37: Forschungs- und Entwicklungsfelder im Bereich der DMFC

Die Arbeiten reichen von der Untersuchung der elektrochemischen Reaktionen an optimierten Elektrodenstrukturen, der Charakterisierung von neuen Membranen, der Optimierung von Zellkomponenten wie der Membran-Elektroden-Einheit (MEA) oder Verteilerstruktur und deren Herstellungsmethoden, der Charakterisierung von MEAs bis zur Stack- und Systementwicklung. Unterstützt werden die Arbeiten durch physikalisch-chemische Grundlagenuntersuchungen.

Seit über 10 Jahren werden am IEK-3 DMFC-Systeme für unterschiedliche Anwendungen entwickelt (vgl. Abb. 38). In diesem Abschnitt werden die besonders interessanten Arbeitsergebnisse aus dieser erfolgreichen Entwicklungsarbeit im Report-Zeitraum dargestellt.



**Abb. 38: Historie der Entwicklungen der Direktmethanol Brennstoffzellen im IEK-3**

Das IEK-3 hat erfolgreich den Batterietrog eines Horizontalkommissionierers (ECE 220, Fa. Jungheinrich) durch ein DMFC-Hybridsystem der kW-Klasse ersetzt. Dabei wurde das Gewicht um den Faktor zwei reduziert und die Reichweite um den Faktor drei erhöht. Eine die Entwicklung begleitende Wirtschaftlichkeitsstudie belegt, dass ein solches für einen Horizontalkommissionierer geeignetes System in einem Dreischichtbetrieb wirtschaftlich betrieben werden kann.

Das hybride DMFC-System besteht aus einem aktiv in Serie geschalteten 1,0 kW DMFC-System und ein 45 Ah Lithium-Ionen Hochleistungsbatteriepack. Dieses Hybridsystem kann eine Spitzenlast von 7 kW bereitstellen. Vorteil dieses Energieversorgungsmoduls gegenüber der konventionell eingesetzten Bleibatterie, ist die höhere Reichweite (Einsatz 24 h mit einem 20 L Methanolkanister statt 8 h mit einer Batterieladung) und die höhere Verfügbarkeit (Kanisterwechsel in wenigen Minuten statt mehrstündigem Aufladen des Akkumulators). Für einen wirtschaftlichen Einsatz des DMFC-Systems V 3.3-2 muss der

DMFC-Stack allerdings mindestens eine Lebensdauer von 10.000 h aufweisen. Die F&E-Aufgaben der letzten Jahre am IEK-3 konzentrierten sich daher unter anderem auf Maßnahmen zur Verbesserung der Langzeitstabilität in DMFC-Systemen. Zur Validierung der F&E-Ergebnisse wurden zwei Prototypen aufgebaut und dynamischen Langzeituntersuchungen unter Verwendung von realen Lastprofilen bis zum End of Life (EoL) unterzogen (vgl. Abb. 39).

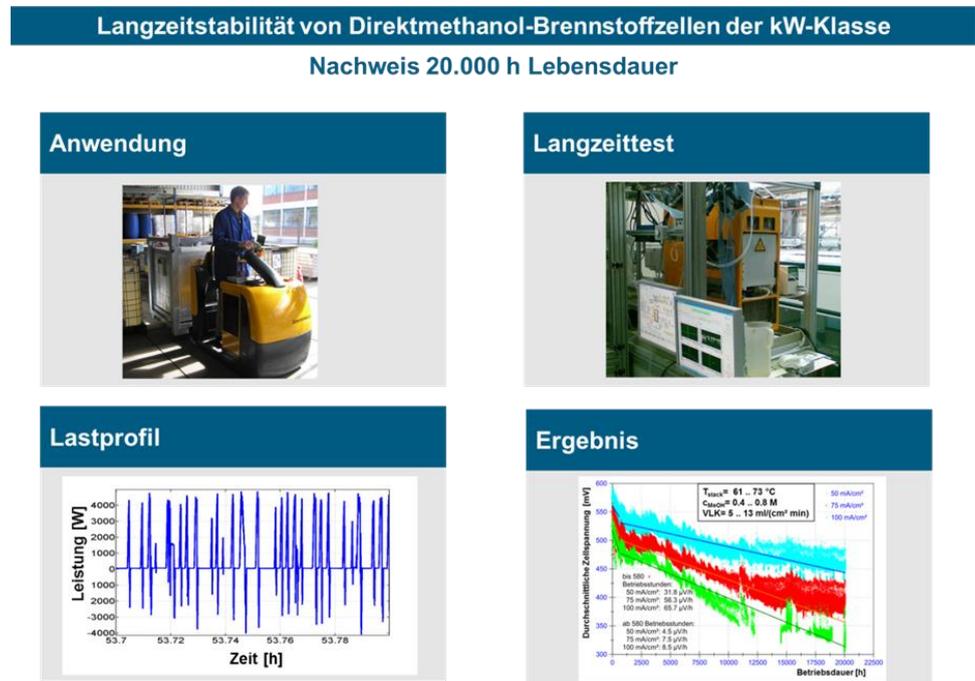


Abb. 39: Langzeittest unter realem Lastprofil

Die Versuchszeit betrug 25.200 Stunden, wobei 20.000 Betriebsstunden im Hybridsystem nachgewiesen werden konnten. 20.000 Betriebsstunden entsprechen auch dem Lebenszyklus eines Fahrzeugs im Material Handling Bereich. Durch die Entwicklung und die Validierung des DMFC-Systems wurde gezeigt, dass dieses für den Einsatz in einem Horizontalkommissionierer geeignet ist und die technoökonomischen Anforderungen an das System für eine Kommerzialisierung nicht nur erfüllt, sondern auch übertroffen werden. Mit einer nachgewiesenen Lebensdauer des DMFC-Systems von 20.000 Betriebsstunden während eines Langzeitversuchs mit einem anwendungsbezogenen, hoch dynamischen Lastprofil ist ein Meilenstein für die Kommerzialisierung von DMFC-Systemen in der leichten Traktion erreicht.

### 3.4.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

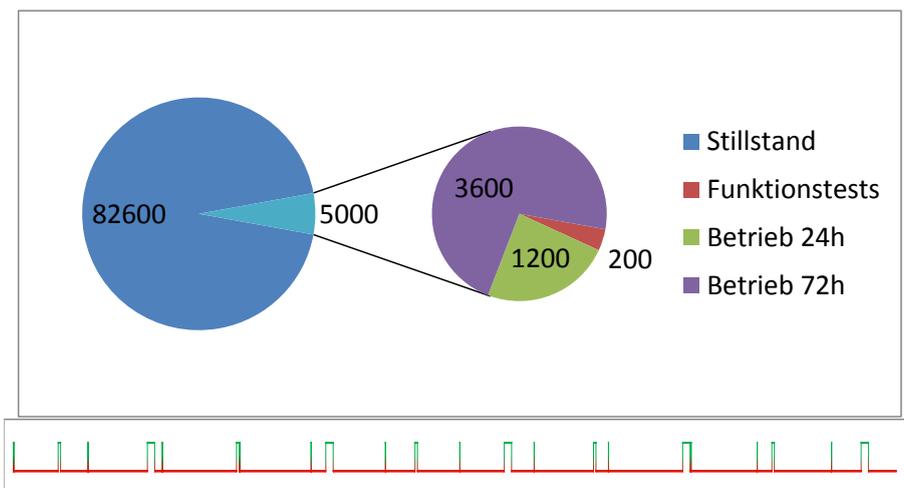
Im Rahmen des Helmholtz Validierungsfonds, einem von der Helmholtz Gemeinschaft initiiertem Fonds zur Unterstützung von Techniken, deren Status nahe der Kommerzialisierung ist, wurde das DMFC-System für den Einsatz in Telekommunikationseinrichtungen

und bei anderen wichtigen Verbrauchern, die auch im Falle eines Stromausfalls unbedingt verfügbar sein müssen als unterbrechungsfreie Stromversorgung (USV) weiterentwickelt. Dabei musste sichergestellt werden, dass es bei Netzausfällen zuverlässig anspringt und ohne Nachtanken 72 Stunden oder länger betrieben werden kann.

Im Validierungsvorhaben DMFC-USV zur sicheren und unterbrechungsfreien Stromversorgung bzw. Notstromversorgung stellen sich hinsichtlich des Einsatzprofils, im Gegensatz zur leichten Traktion, neue Herausforderungen. Die Dauerleistung dieser Systeme liegt bei rund 2 kW und die erforderliche Lebensdauer liegt bei rund 10 Jahren. In diesem Zeitraum befindet sich das System einen großen Teil der Zeit im Standby und es muss sichergestellt werden, dass es während dieser Zeit nicht zur Degradation der elektrochemisch aktiven Bereiche kommt. Daher werden Möglichkeiten untersucht, wie eine Degradation gerade in den Standby-Phasen vermieden werden kann.

#### 3.4.2.1 Langzeitstabilität der Membran-Elektroden-Einheiten

Die Lebensdauer eines DMFC-Systems für die unterbrechungsfreie Stromversorgung (USV) bzw. die Notstromversorgung soll mindestens 10 Jahre betragen. Entsprechend müssen auch die MEAs auf diese Lebensdauer ausgelegt sein. Typisch für den Betrieb einer USV ist der Wechsel zwischen Betriebs- und Stillstandsphasen. Es wird angenommen, dass während der Lebensdauer von 10 Jahren (86.400 Stunden) 5000 Betriebsstunden absolviert werden (s. Abb. 40). Während der restlichen Zeit steht das System still. Als kontinuierliche Betriebszeit werden 72 Stunden angenommen.



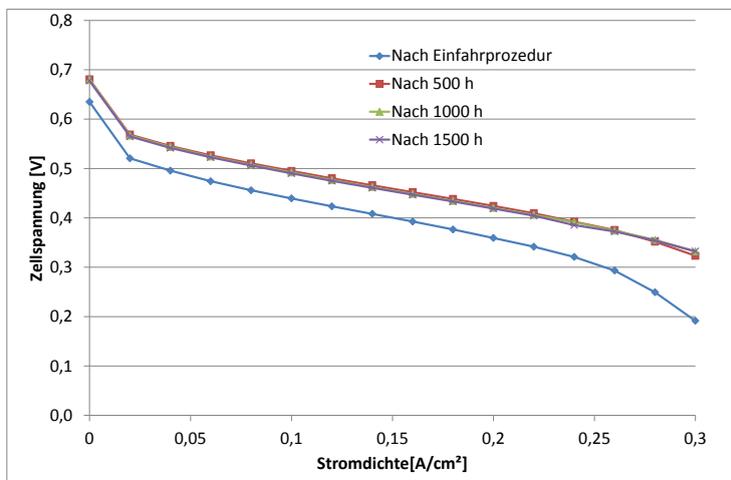
**Abb. 40: Verteilung der Lebensdauer auf die verschiedenen Betriebszustände (oben) und schematische Darstellung der Betriebs- und Stillstandsphasen innerhalb eines Jahres (unten)**

Da auch kürzere Betriebsdauern sowie regelmäßige Funktionstests vorkommen werden, wird angenommen, dass während der Lebensdauer etwa 220 An- und Abfahrvorgänge vorkommen. Ziel der Langzeituntersuchungen ist daher, die Stabilität der MEAs über die

gesamte Lebensdauer mit den erforderlichen Betriebs- und Stillstandsdauern, sowie den An- und Abfahrvorgängen nachzuweisen. Während aus dem bereits abgeschlossenen Projekt zur Entwicklung eines DMFC-Systems für einen Horizontalkommissionierer bereits umfangreiche Erkenntnisse über die Alterung von MEAs im Dauerbetrieb bestehen, waren für das USV-System insbesondere die Alterung im Stillstand und das häufige An- und Abfahren eine Herausforderung. Hier mussten Betriebsstrategien entwickelt werden, die eine übermäßige Verringerung der Zellspannungen verhindern. Dazu wurden Versuche an kleinen Testzellen, sowie an Short-Stacks, die aus 5 Zellen der für den USV-Stack vorgesehenen Größe bestehen, durchgeführt.

### 3.4.2.2 Dauerbetrieb

Das System ist auf 5000 Betriebsstunden während der Lebensdauer ausgelegt. Eine Alterung von  $10 \mu\text{V/h}$  ist daher maximal tolerierbar. Als realitätsnaher Betriebspunkt wird für alle Alterungsmessungen der Betrieb bei  $0,1 \text{ A/cm}^2$  und  $70^\circ\text{C}$  mit  $0,75 \text{ M}$  Methanollösung gewählt. Es wurden MEAs von 4 verschiedenen Herstellern untersucht. Die MEAs wurden mit einer etablierten Prozedur eingefahren und Kennlinien aufgenommen. Danach wurden die MEAs im Dauerbetrieb mit  $0,1 \text{ A/cm}^2$  belastet und alle 500 Stunden nach der Wiederholung der Einfahrprozedur Kennlinien aufgenommen. Da die Leistung sich in den ersten 500 Stunden noch verbesserte wurde die Kennlinie nach 500 Stunden als Ausgangszustand gewählt. Danach wurde die Abnahme der Zellspannung über 1000 Stunden beobachtet. Bei den verwendeten MEA wurde innerhalb weiterer tausend Stunden eine Abnahme der Zellspannung zwischen 0 und  $10 \text{ mV}$  beobachtet. Die Alterungsrate liegt also in allen Fällen bei maximal  $10 \mu\text{V/h}$ . In Abb. 41 ist dies an einem Beispiel dargestellt.



**Abb. 41: Alterung einer MEA im Dauerbetrieb. Nach einer Leistungsverbesserung in den ersten 500 Stunden nimmt die Zellspannung langsam ab.**

### 3.4.2.3 Stillstand

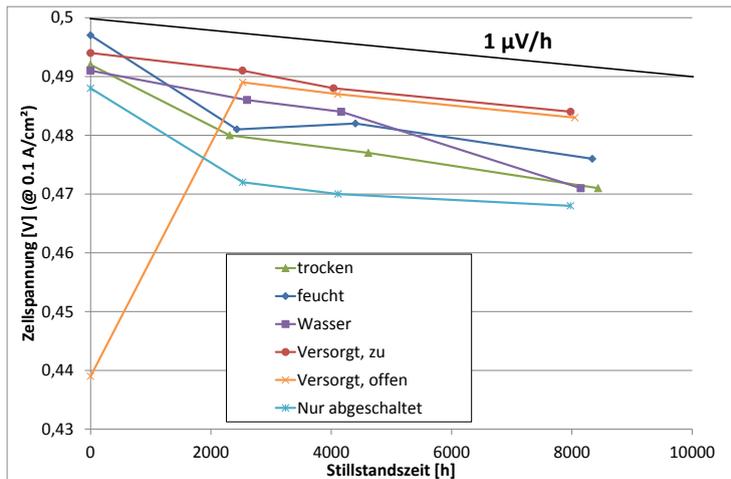
Da das System während der Lebensdauer über 80.000 Stunden im Stand-by sein wird, sind hier nur extrem geringe Alterungsraten tolerierbar. Als Grenze wurde  $1 \mu\text{V/h}$  festgelegt. Um diese geringe Alterung nachweisen zu können, sind bereits Versuchsdauern von mindestens 5000 h erforderlich, damit dann eine Verringerung der Zellspannung von  $<5 \text{ mV}$  nachgewiesen werden kann. Noch kleinere Änderungen sind nicht reproduzierbar nachzuweisen.

Um die MEAs im Stillstand möglichst zu schonen, wurden verschiedene Stillstandsstrategien getestet. Aus bisherigen Untersuchungen über die Alterungsmechanismen ist bekannt, dass bei zu hohen Potentialen an der Anode im Katalysator enthaltenes Ruthenium oxidiert wird und zur Kathode diffundiert, wo es den Pt-Katalysator vergiftet. Zum einen wurden die Zellen mit Stickstoff getrocknet um die Diffusion der löslichen Spezies zu verhindern. In anderen Varianten wurde versucht, den Anstieg des Anodenpotentials zu verhindern. Dies geschah zum einen durch eine dauerhafte Versorgung der Anode mit Methanollösung. Zum anderen wurden Anode und Kathode geschlossen um das Eindringen von Sauerstoff zu verhindern. Dabei wurden einmal die Betriebsmedien in der Zelle belassen, ein anderes Mal wurde die Zelle auf beiden Seiten mit Wasser gefüllt, um die Betriebsmedien zu verdrängen. Zum Vergleich wurde bei einer Zelle nur die Anodenseite verschlossen, die Kathode jedoch offen gelassen. In Tab. 9 sind die untersuchten Stillstandsstrategien dargestellt.

Bezeichnung	Anode	Kathode
Feucht	verschlossen	verschlossen
Trocken	mit $\text{N}_2$ getrocknet, offen	mit $\text{N}_2$ getrocknet, offen
Wasser	mit Wasser gespült,	mit Wasser gespült,
Versorgt, zu	methanollösung umgewälzt	verschlossen
Versorgt, offen	methanollösung umgewälzt	offen
Nur abgeschaltet	verschlossen	offen

Tab. 9: Stillstandsstrategien

Es zeigt sich, dass die Alterungsrate stark von der gewählten Stillstandsstrategie abhängt. Insbesondere die Alterungsrate in den ersten 2000 Stunden kann die maximal tolerierbare Alterungsrate von  $1 \mu\text{V/h}$  erheblich übersteigen (s. Abb. 42). Diese geringe Alterungsrate kann insbesondere erreicht werden, wenn die Anode kontinuierlich mit Methanol versorgt wird. Es hat sich gezeigt, dass der Methanolverbrauch dabei vernachlässigbar ist. Die geringe Startspannung einer MEA ist wahrscheinlich auf nicht vollständiges Einfahren zu Versuchsbeginn zurückzuführen. Es ist davon auszugehen, dass die Startspannung wie bei den anderen MEAs bei  $0,49 \text{ V}$  liegt. Ein ähnlicher Effekt kann erreicht werden, indem Anoden- und Kathodenraum beim Herunterfahren mit Wasser gefüllt werden.

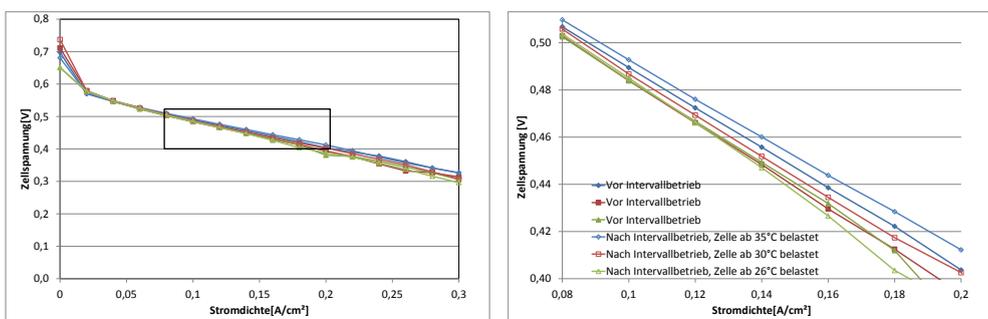


**Abb. 42: Alterung bei unterschiedlichen Stillstandstrategien**

Hierzu müsste jedoch beim realen System Wasser vorgehalten werden, was unpraktisch ist. Einfache Verfahren, bei denen die Zellen einfach verschlossen werden oder unverschlossen im Stillstand belassen werden, führen insbesondere zu Beginn zu einer stärkeren Alterung und sollten daher vermieden werden

### 3.4.2.4 Intervallbetrieb

Um den Einfluss des häufigen An- und Ausschaltens des Systems auf die Lebensdauer der MEAs zu untersuchen, wurde die Alterung im Intervallbetrieb dargestellt. Dabei wurden die MEAs alle 12 Stunden für 3 Stunden in Betrieb genommen und dann wieder abgeschaltet. Innerhalb von 10 Wochen wurden so 140 An- und Abfahrvorgänge durchgeführt. Außerdem werden 420 Betriebsstunden und 1260 Stunden im Stillstand absolviert.



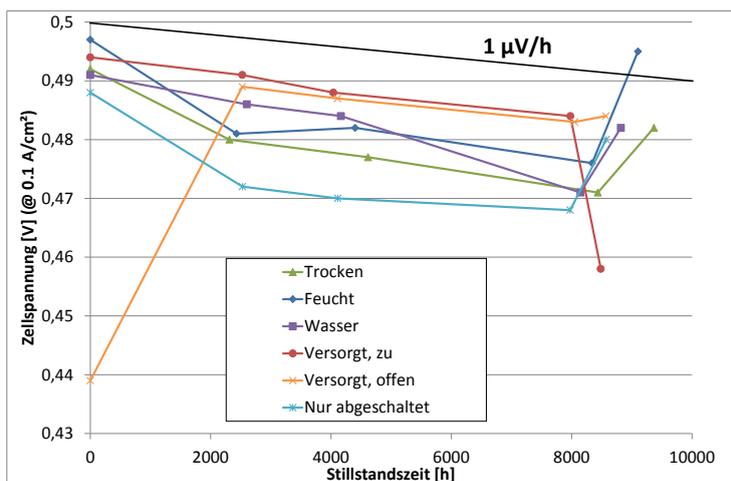
**Abb. 43: Alterung bei unterschiedlichen Stillstandstrategien (links: gesamte Kennlinie, rechts: Ausschnitt)**

Da es beim Anfahren des Systems darauf ankommt, möglichst schnell Strom zu erzeugen und durch das Belasten des Systems auch das Aufheizen beschleunigt wird wurde weiterhin getestet, ob die Temperatur, ab der das System belastet wird, einen Einfluß auf die Alterung hat. Daher wurden 3 MEAs je ab 25 °C, 30 °C und 35 °C elektrisch Schrittweise mit einem

Zunehmenden Strom belastet. Die Nennleistung war bei jeweils 10 °C höheren Temperaturen erreicht. Aufgrund der Messungen zur Alterung im Stillstand und im Dauerbetrieb war zu erwarten, dass die Zellspannung während des Dauerbetriebs um 12 mV bei 0,1 A/cm<sup>2</sup> abnimmt. Es wurde jedoch beobachtet, dass die Zellspannung bei einer Belastung der MEAs ab 30 °C oder 35 °C nicht abnimmt, bei einer Belastung ab 25 °C nur um 4 mV (siehe Abb. 43). Statt der befürchteten zusätzlichen Alterung durch häufiges An- und Ausschalten findet also eine Verringerung der Alterung statt. Dies insbesondere, wenn die MEA nicht bei zu niedrigen Temperaturen belastet wird. Die MEAs sind also für den Betrieb in einem USV-System geeignet und eine Belastung ist ab einer Temperatur von 30 °C ohne Schädigung möglich.

### 3.4.2.5 Reaktivierung

Im vorigen Abschnitt wurde beobachtet, dass häufiges An- und Abschalten zu einer geringeren Alterung der MEAs führt, als Dauerbetrieb oder dauernder Stillstand. Daher wurde versucht, den dort beschriebenen Intervallbetrieb zur Reaktivierung der nach langem Stillstand gealterten MEAs zu nutzen. Dabei wurden die Zellen ab 35 °C belastet. Wie in Abb. 44 zu sehen ist, steigt die Zellspannung nach der Reaktivierung insbesondere bei den Zellen an, die vorher die stärkste Alterung aufwiesen. Die eine Zelle, bei der die Zellspannung abnahm, war durch einen Teststandfehler ohne Methanol betrieben und dadurch irreversibel geschädigt worden.



**Abb. 44:** Alterung bei unterschiedlichen Stillstandstrategien, letzter Datenpunkt jeweils nach 1 Woche Intervallbetrieb zur Reaktivierung

Als Ergebnis der Untersuchungen zur Stillstandsalterung stehen also 2 Betriebsoptionen zur Verfügung, mit denen eine tolerierbare Alterung für eine Standzeit von 10 Jahren erreicht werden kann: Entweder werden die MEAs durch ständige Versorgung mit Methanollösung besonders schonend in den Stillstand versetzt, oder die MEAs werden, wenn sie zu stark gealtert sind, durch einen Intervallbetrieb reaktiviert.

### 3.4.2.6 Alterung an Short-Stacks

Ausgewählte Messungen wurden auch an Short-Stacks durchgeführt, um die Übertragbarkeit der Messungen an Einzelzellen auf das Alterungsverhalten eines kompletten Stacks im System zu gewährleisten. Es zeigte sich, dass hier ebenso, wie an den Einzelzellen die Alterung minimiert werden kann, wenn die Stacks im Stillstand kontinuierlich mit Methnaol versorgt werden (s. Abb. 45).

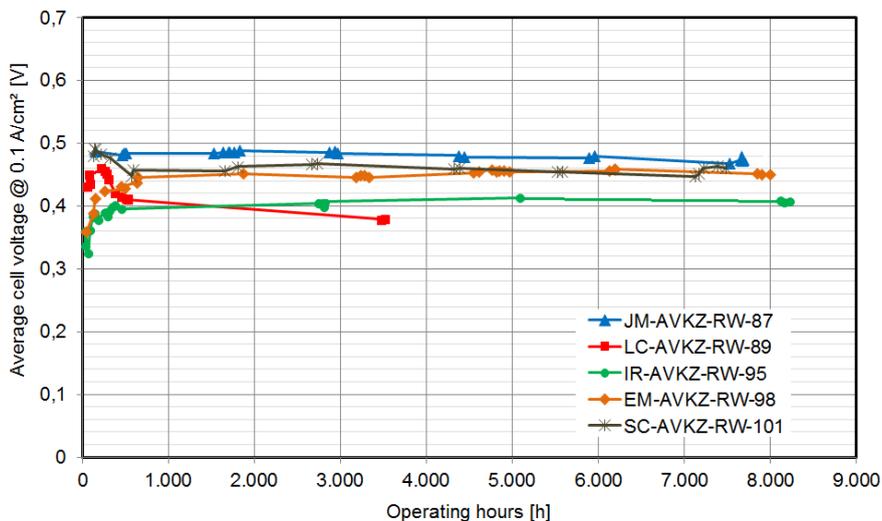


Abb. 45: Alterung an Short Stacks, bei denen die Anode im Stillstand mit Methanol versorgt wird

### 3.4.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Dr. M. Müller	1859 <a href="mailto:mar.mueller@fz-juelich.de">mar.mueller@fz-juelich.de</a>	Abteilungsleitung
N. Commerscheidt	5400 <a href="mailto:n.commerscheidt@fz-juelich.de">n.commerscheidt@fz-juelich.de</a>	MEA-Entwicklung
Dr. A. Glösen	5171 <a href="mailto:a.gloesen@fz-juelich.de">a.gloesen@fz-juelich.de</a>	MEA-Entwicklung

Fr. D. B. Günther	2378 <a href="mailto:d.guenther@fz-juelich.de">d.guenther@fz-juelich.de</a>	MEA-Herstelltechnik, Qualitätsmanagement
M. Hehemann	5431 <a href="mailto:m.hehemann@fz-juelich.de">m.hehemann@fz-juelich.de</a>	Stack- und Systementwicklung
Fr. N. Kimiaie	6484 <a href="mailto:n.kimiaie@fz-juelich.de">n.kimiaie@fz-juelich.de</a>	Gruppenleiterin Stack- und Systementwicklung
Fr. R. Lambertz	5109 <a href="mailto:r.lambertz@fz-juelich.de">r.lambertz@fz-juelich.de</a>	Stack- und Systementwicklung
A. Schulze Lohoff	1947 <a href="mailto:a.schulze.lohoff@fz-juelich.de">a.schulze.lohoff@fz-juelich.de</a>	Stack- und Systementwicklung
R. Wegner	4832 <a href="mailto:r.wegner@fz-juelich.de">r.wegner@fz-juelich.de</a>	Stack- und Systementwicklung
W. Zwaygardt	2103 <a href="mailto:w.zwaygardt@fz-juelich.de">w.zwaygardt@fz-juelich.de</a>	Stack- und Systementwicklung

### 3.4.4 Wichtige Veröffentlichungen, Dissertationen und Patente

#### *Wichtige Veröffentlichungen*

Glösen, A.; Müller, M.; Stolten, D.

#### **Slot-Die Coating: A New Preparation Method for Direct Methanol Fuel Cells Catalyst Layers**

*Journal of fuel cell science and technology*, 10 (4) 2013, pp. 044503 -, DOI: 10.1115/1.4024607

Hürter, S.; Wannek, C.; Müller, M.; Stolten, D.

#### **1-Hexanol Based Catalyst Inks for Catalyst Layer Preparation for a DMFC**

*Journal of fuel cell science and technology*, 10 (6) 2013, pp. 061008-1 - 061008-6, DOI: 10.1115/1.4025519

McIntyre, J.; Kulikovskiy, A.; Müller, M.; Stolten, D.

#### **Large-scale DMFC stack model: The effect of a condensation front on stack performance**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (8) 2013, pp. 3373 - 3379, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2012.12.028

Stähler, M.; Friedrich, I.

#### **Statistical Investigations of basis weight and thickness distribution of continuously produced fuel cell electrodes**

*Journal of power sources*, 242 2013, pp. 425-437, DOI: 10.1016/j.jpowsour.2013.05.073

Kimiaie, N.; Janßen, H.; Hehemann, M.; Trappmann, C.; Echsler, H.; Müller, M.

#### **Influence of Contamination with Inorganic Impurities on the Durability of a 1 kW DMFC System**

*Fuel cells*, 14 (1) 2014, pp. 64-75, DOI: 10.1002/fuce.201300047

Müller, M.; Kimiaie, N.; Glösen, A.; Stolten, D.

#### **The Long Way of Achieving a Durability of 20,000 h in a DMFC System**

*Advances in science and technology*, 93 2014, pp. 56-60, DOI: 10.4028/www.scientific.net/AST.93.56

*Dissertationen*

Hürter, S.

**Einfluss neuer Membranmaterialien auf Herstellung und Betrieb von Direktmethanol-Brennstoffzellen**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 240, ISBN 978-3-95806-013-5, RWTH Aachen 2014*

*Wichtige Patente*

Patentanmeldung:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
J. McIntyre	1.2616	Niedertemperatur- Brennstoffzellen und Verfahren zum Betreiben derselben
A. Kulikovskiy	1.2644	Direkt-Alkohol-Brennstoffzelle mit effektiver CO <sub>2</sub> -Entfernung sowie Verfahren zum Betreiben einer solchen Direkt-Alkohol-Brennstoffzelle

Patenterteilung:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
H. Janßen	1.2196	Verfahren zum Betreiben eines Direkt-Methanol-Brennstoffzellenstapels
K. Wippermann	1.2318	Verfahren zur elektrochemischen Aktivierung von Brennstoffzellen
M. Stähler	1.2326	Abgasreinigung für eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstapel

## 3.5 Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse

### 3.5.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Für die Zukunft der Energieumwandlung und -speicherung wird erwartet, dass sie auf der Herstellung und Lagerung von Wasserstoff durch die Wasserelektrolyse basieren wird<sup>1</sup>. In diesem Szenario wird der Wasserelektrolyse eine Schlüsselrolle bei der Schaffung einer Energiematrix auf Basis erneuerbarer, aber intermittierende Stromquellen (z. B. Windkraftanlagen und Photovoltaik) zugewiesen. Wasserstoff hat den Vorteil in der Lage zu sein verschiedenste Nutzungspfade zu bedienen wie Verkehr, Chemikalien, grüne Herstellung von Düngemitteln, Regeneration der Elektrizität durch Brennstoffzellen und auch zunächst Schließen eventueller Energielücken mithilfe der Methanisierung durch Kopplung mit der CO<sub>2</sub>-Abtrennung. Darüber hinaus kann die Herstellung, Lagerung und Verteilung von Wasserstoff sowohl zentral als auch dezentral erfolgen und bietet derzeit die einzige Möglichkeit der Energiespeicherung von mehreren Gigawattstunden<sup>1</sup>.

Zum jetzigen Zeitpunkt sind nur alkalische und Polymer-Elektrolyt-Membran (PEM) Wasserelektrolyseure kommerziell verfügbar<sup>1,2</sup>. Um die zukünftige Nachfrage nach Wasserelektrolyseuren decken zu können müssen jedoch die Investitions- und Betriebskosten drastisch verringert werden. Darüber hinaus ist es von grundlegender Bedeutung Elektrolyseure zu entwickeln, die in der Lage sind bei hohen Stromdichten, variabler Teillast und Überlast sowie bei Start-/Stop-Zyklen betrieben zu werden. Diese Anforderungen erfüllen vor allem PEM Wasserelektrolyseure bei der Kopplung mit intermittierenden Stromquellen. In jedem Fall sind jedoch noch die hohen Kosten für PEM Wasserelektrolyse Komponenten (basierend auf Materialien wie Platin, Iridium und Titan) hinderlich für seine groß angelegte kommerzielle Anwendung<sup>2</sup>. Obwohl kontinuierlich an der PEM Wasserelektrolyse weiter geforscht wird müssen die Belastung durch die teuren Werkstoffe verringert oder diese Materialien sogar vollständig durch kostengünstigere Varianten ausgetauscht werden<sup>2</sup>.

Die Arbeiten der Abteilungen „Elektrochemie Elektrolyse – EEL“ und „Verfahrenstechnik Elektrolyse – VEL“ konzentrieren sich auf die Entwicklung großtechnischer Elektrolyseure mit Polymerelektrolytmembran (PEM) zusammen mit auf diesem Gebiet führenden Industrieunternehmen. Dabei stehen Themen wie Kostenreduktion, Erhöhung der Lebensdauer und Leistungsdichte im Vordergrund. Konkret geht es zum einen um die Entwicklung neuer Membrantypen für die PEM-Elektrolyse, um die bisher verwendeten 175 bis 200 µm dicken extrudierten Nafion-Membranen zu ersetzen, die in den geplanten Großsystemen keine ausreichende mechanische und chemische Stabilität unter Drücken von mehr als 50 bar aufweisen. Zum anderen geht es vorrangig um die Reduktion und im Idealfall komplette Substitution der üblicherweise verwendeten Platingruppenmetalle Iridium, Ruthenium und Platin, die heute mit einer Beladung von bis zu 6 mg/cm<sup>2</sup> für die katalytische Reaktionen eingesetzt werden. Um den Einsatz der PEM-Elektrolyse im GW-Maßstab für die Speicherung großer Energiemengen aus regenerativ erzeugtem Strom wirtschaftlich zu ermöglichen, muss der Einsatz der Platingruppenmetalle um mindestens 90 % reduziert

---

<sup>1</sup> J. Mergel, M. Carmo and D. Fritz. Transition to Renewable Energy: Status on Technologies for Hydrogen Production by Water Electrolysis, D. Stolten, V. Scherer, Editors, p. 423-450, Wiley-VCH, Weinheim (2013).

<sup>2</sup> M. Carmo, D. Fritz, J. Mergel and D. Stolten, International Journal of Hydrogen Energy, 38, 4901-4934 (2013).

werden bei gleichzeitiger Steigerung der Überlastfähigkeit der Membran-Elektroden-Einheiten auf mehr als 6 W/cm<sup>2</sup> und einer Dauerstabilität von 40.000 Stunden. In einem weiteren Arbeitspaket werden neue kostengünstige Materialien und Beschichtungstechniken für metallische Separatorplatten und Stromverteiler entwickelt, um den Anteil der Kosten von heute 48 % an den Stack-Kosten ebenfalls nachdrücklich zu reduzieren.

### 3.5.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

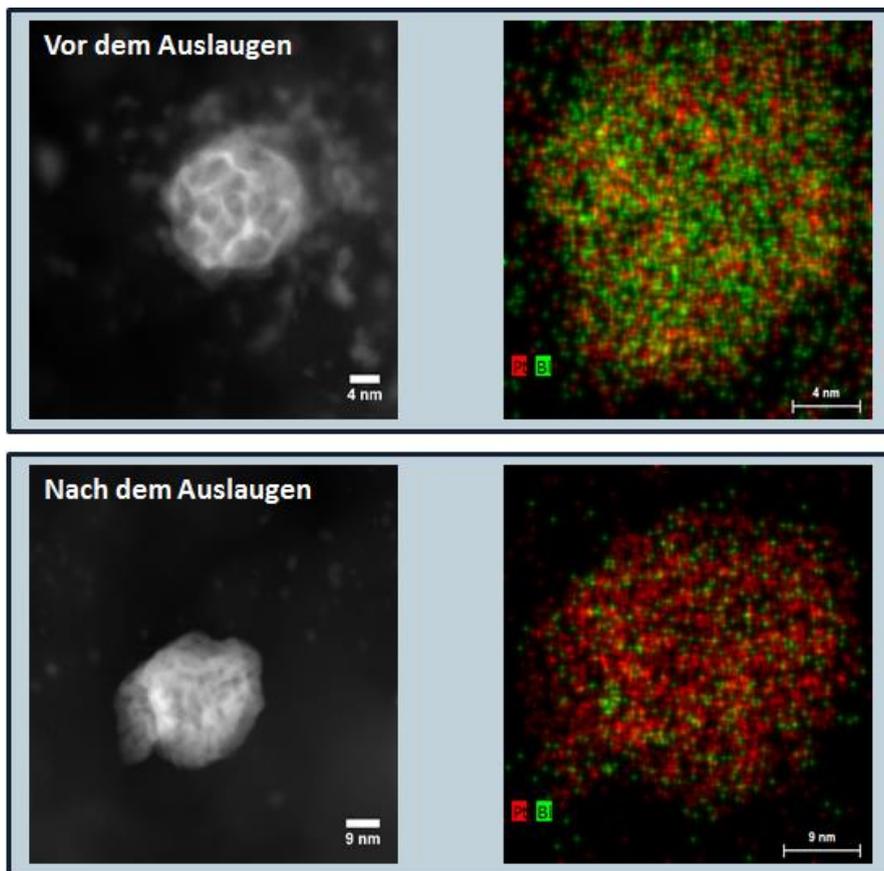
#### 3.5.2.1 Katalysatorscreening für die PEM-Wasserelektrolyse

Auf Kohle getragener Platin Pt/C-Katalysatoren sind seit langem als das aktive Material für die Wasserstoffentwicklungsreaktion in der PEM Wasserelektrolyse bekannt. Ein Ansatz, um die Platinbeladung innerhalb der Elektroden zu reduzieren wird durch die Legierung von Platin mit kostengünstigen Übergangsmetallen M (wie beispielsweise M = Ni, Co, Cu und Bi), oder Übergangsmetalloxiden (wie SnO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, WO<sub>2</sub>) verfolgt. Idealerweise wird die Legierung in einer Kern-Hülle-Konfiguration synthetisiert. Dabei bestehen das Kernelement aus einem kostengünstigen Übergangsmetall und die Schale aus einem edleren und aktiven Element (im vorliegenden Fall Pt). Im Allgemeinen gelten Katalysatoren mit einer großen aktiven Oberfläche für die Elektrokatalyse als vorteilhaft. Dabei gelten vor allem Mehrkomponentenlegierungen als besonders vielversprechend für die Erhöhung der aktiven Oberfläche und damit verbunden der Erhöhung der elektrochemischen Aktivität. Während Platin in Verbindung mit Übergangsmetallen eine vielversprechende Leistung für die Wasserstoffentwicklungsreaktion zeigt, ist die Langzeitstabilität der Pt-M Elektroden in der sauren PEM Umgebung noch nicht nachgewiesen worden. Für die vorliegende Studie kam das folgende Verfahren für die Herstellung und Charakterisierung von Pt-M Katalysatoren zum Einsatz: Pt<sub>x</sub>M<sub>y</sub>-Legierungen (mit M = Bi, Co, Cu, Ni, Fe, 20 Gew.-% Metall auf Ruß) wurden durch reaktives Tempern in H<sub>2</sub>-Atmosphäre hergestellt. Die hergestellten Katalysatoren wurden physiko-chemisch unter Verwendung von Transmissionselektronenspektroskopie (TEM), Röntgendiffraktometrie (XRD), Röntgenphotoelektronenspektroskopie (XPS) und induktive gekoppeltes Plasma mit Massenspektrometrie (ICP-MS) charakterisiert. Ferner wurden die Katalysatoren mit Hilfe der Cyclovoltammetrie und der „linear sweep“ Voltammetrie sowie durch die Aufnahme von Polarisationskurven, unter Verwendung von 25 cm<sup>2</sup> Einzelzellen, elektrochemisch analysiert.

Die Analyse mittels Transmissionselektronenspektroskopie (TEM) in Abb. 46 zeigte einen dramatischen Anstieg der elektrochemisch aktiven Oberfläche (ECSA) von 5,3 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> (vor dem Auslaugen) auf 74,5 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> (nach dem Auslaugen). Dies kann durch die Auflösung der Legierung in Kombination mit der Morphologie der Trägerkatalysatoren erklärt werden. Das Auslaugen beziehungsweise das Auflösen von Legierungen der Pt-M-Katalysatoren wurde bereits für die PEM-Brennstoffzelle als wirksame Methode eingesetzt um die Oberfläche von Katalysatoren zu vergrößern und dadurch die Aktivität derselben zu erhöhen<sup>3</sup>. Dies wurde durch bevorzugte Auflösung, Entfernung oder spinodale Entmischung der Bimetall-Legierungen erreicht, wobei das weniger edlere Metall aufgelöst wurde, während die edleren Metallatome als eine poröse Skelettstruktur zurück blieben.

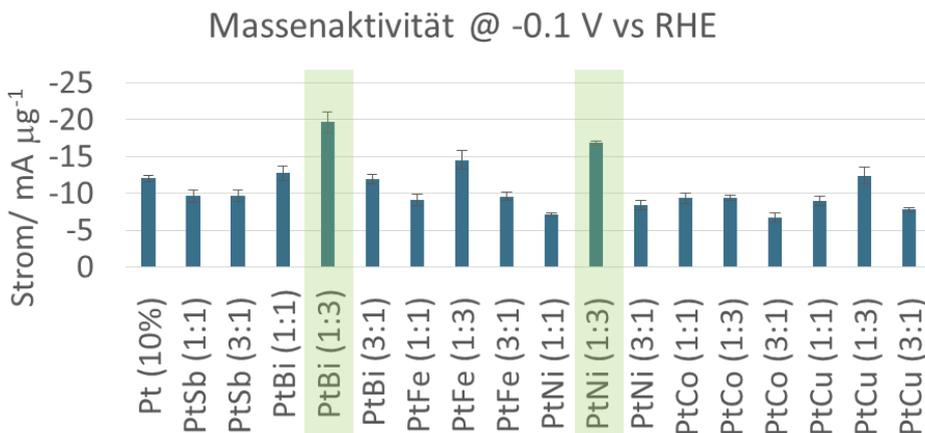
---

<sup>3</sup> Peter Strasser et al, Lattice-strain control of the activity in dealloyed core-shell fuel cell catalysts, Nature Chemistry, 2, 454–460 (2010) doi:10.1038/nchem.623.



**Abb. 46:** Transmissionselektronenmikroskopie-Aufnahmen von  $\text{Pt}_1\text{Bi}_3/\text{C}$  vor dem Auslaugen (obere Abbildung) und nach dem Auslaugen in  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (untere Abbildung). Aufgrund der Auslaugung von Bi kommt es zu einer Aufkonzentrierung von Pt-Nanopartikeln und damit verbunden zu einer Zunahme der elektrochemisch aktiven Oberfläche (ECSA).

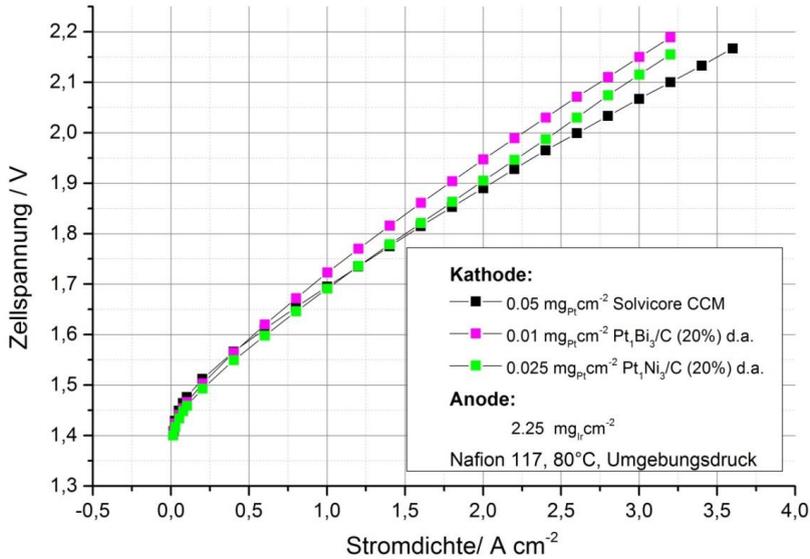
Abb. 47 zeigt die Massenaktivitäten von verschiedenen Pt-M-Katalysatoren die unter Verwendung der rotierenden Scheibenelektrode (RDE) in 0,5 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  elektrochemisch charakterisiert wurden. Von den 17 synthetisierten Katalysatoren stellten sich PtBi (3:1) und PtNi (1:3) als die vielversprechendsten Katalysatoren für die Wasserstoffentwicklungsreaktion im sauren Medium heraus. Die erhaltenen Daten bestätigen auch die aus den TEM-Untersuchungen erhaltenen Informationen. Die mittels der RDE ermittelten hohen Massenaktivitäten dieser beiden Katalysatorzusammensetzungen können durch die jeweils hohen elektrochemisch aktiven Oberflächen erläutert werden. Elektronische und Spannungseffekte können ebenfalls eine wichtige Rolle spielen in der Aktivitätssteigerung für die Wasserstoffentwicklungsreaktion. Durch die Legierung von Pt mit anderen Metallen kann die elektronische Bindungsenergie von Pt gesenkt werden wodurch die elektrochemische Reaktion bereits bei niedrigeren Überspannungen gefördert wird.



**Abb. 47:** Massenaktivitäten der synthetisierten Pt-M-Katalysatoren untersucht an der rotierenden Scheibenelektrode (RDE) in 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

### 3.5.2.2 Katalystor beschichtete Membranen (CCMs) mit reduzierter Pt-Beladung - Einzelltests

Um verfügbare kommerzielle Materialien sowie alternative Katalysatoren für die PEM-Elektrolyse zu vergleichen ist es wichtig einen Benchmark festzulegen. Dazu dienten in diesem Fall ein herkömmlicher IrO<sub>2</sub>-Katalysator für die Anoden, ein Pt/C-Katalysator für die Kathode sowie Nafion 117 als Membran. Diese Materialien wurden zu CCMs verarbeitet und bei 80 °C in Einzelzellen elektrochemisch charakterisiert. Dabei wurde bei einer Stromdichte von 2 A/cm<sup>2</sup> eine Zellspannung von 1,9 V erreicht. Bisher wurde für die Herstellung dieser CCMs standardmäßig eine Ir-Beladung von 2 – 3 mg<sub>Ir</sub>/cm<sup>2</sup> und eine Pt-Beladungen 0,8 – 1,5 mg<sub>Pt</sub>/cm<sup>2</sup> eingesetzt. Abb. 48 zeigt Einzelltests unter Verwendung der hergestellten PtBi (3:1) und PtNi (1:3) Katalysatoren, wobei die Kathodenbeladungen drastisch reduziert werden konnten (von 0,8 mg<sub>Pt</sub>/cm<sup>2</sup> auf 0,025 mg<sub>Pt</sub>/cm<sup>2</sup>) ohne die Zelleistung zu beeinflussen. Derzeit wird daran gearbeitet, die Langlebigkeit der CCMs mit reduzierter Pt-Beladung zu verbessern, um den Einsatz dieser Pt-M-Katalysatoren im Dauerbetrieb in PEM-Elektrolyseuren zu ermöglichen.



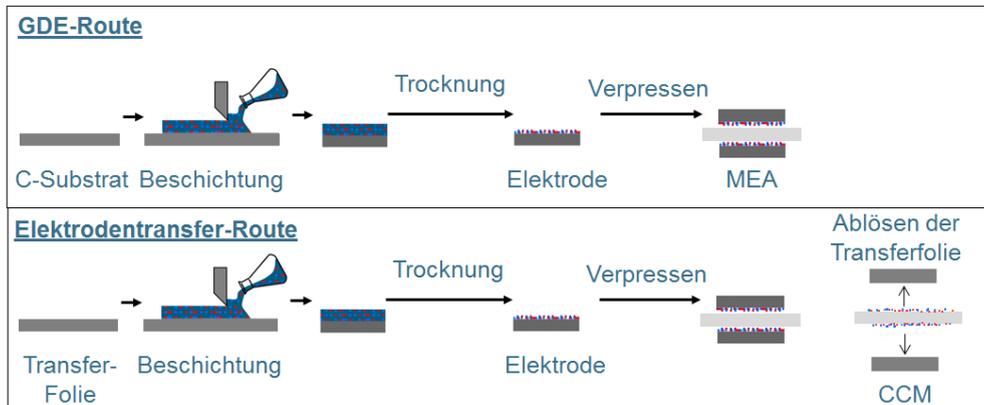
**Abb. 48:** Einfluss der Pt-M-Beladung der Kathode auf die Performance der PEM-Wasserelektrolyse. Die Zelle wurde bei 80 °C und atmosphärischem Druck betrieben.

### 3.5.2.3 MEA-Fertigungstechnik

Um die Homogenität von großflächigen Elektroden, die im IEK-3 über ein Rolle-zu Rolle Verfahren hergestellt werden, zu überprüfen, wurden in früheren Arbeiten Kohlesubstrate für die Herstellung von Membran-Elektroden-Einheiten (MEE) in Bezug auf ihre Dickenverteilung untersucht. Es wurde dafür eine Methode aufgebaut, mit der die Dickenverteilung und die Flächengewichtsverteilung Quadratmeter großer Substratproben ermittelt werden können. Die Untersuchungen zeigten, dass die für die Gasdiffusions-Elektrode-(GDE)-Route verwendeten, kommerziellen Kohlenstoffsubstrate Dickenschwankungen von bis zu 10 % aufwiesen. Diese Schwankungen übertragen sich bei der verwendeten Rakelbeschichtung auf die Schwankungen der Katalysatorbeladung in den produzierten Elektroden und sind daher für die Produktion nur wenig geeignet. Andere Substratmaterialien werden für den Herstellungsprozess benötigt.

Da zudem die Kohlenstoffsubstrate für die Herstellung von Anoden für die Polymerelektrolyt-Wasserelektrolyse nicht verwendet werden können, da die Kohle im Betrieb oxidiert werden und sich abbauen würde, wurde begonnen, den Herstellungsprozess für Elektroden über die Rolle-zu-Rolle Anlage von der GDE-Route auf die Elektrodentransfer-Route umzurüsten. Abb. 49 zeigt die Unterschiede zwischen der GDE-Route und der Elektrodentransfer-Route, bei der sich die Elektrode von der Transferfolie nach der Trocknung wieder leicht ablösen lassen muss. Die Herausforderungen bei der Verwendung der Elektrodentransfer-Route in einem Rolle-zu-Rolle Prozess besteht darin, dass die Elektrode auf dem Substrat stark genug haften muss und sich beim Krümmen über die Rollen nicht ablösen darf. Zugleich darf die Haftung aber nicht zu schwach sein, damit sie sich beim Transferprozess auch wieder von der Folie ablösen kann. Um homogene Elektroden mit der Rakelbeschichtung in

Kombination mit der Transfermethode herstellen zu können, werden Folien mit einer geringen Dickenschwankung und einer geringen Oberflächenenergie benötigt.



**Abb. 49:** Vergleich der GDE-Route mit der Elektrodentransfer-Route, bei der die Elektrode erst auf ein Substrat aufgetragen und getrocknet werden muss und anschließend auf die Membran transferiert wird. Die Transferfolie muss dabei wieder abgelöst werden können. Auf die so hergestellte mit Katalysator beschichtete Membran CCM (engl.: *Catalyst Coated Membrane*) können dann Diffusionsschichten aufgelegt werden, um eine MEA wie nach der GDE-Route zu erhalten.

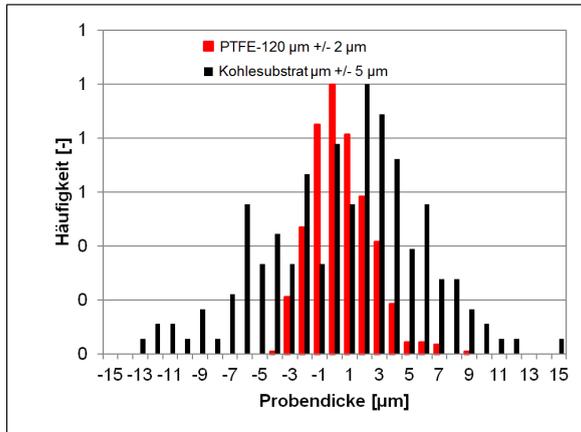
Hierfür wurde zunächst in Versuchsreihen von kommerziellen Folien Quadratmeter große Stücke in Bezug auf die Dickenverteilung untersucht. Da für die Bestimmung der Belegung nach der Beschichtung die Differenzmethode verwendet wird, werden zudem Folien mit einer geringen Flächengewichtsschwankung benötigt. Aus diesem Grund wurde auch die Flächengewichtverteilung der untersuchten Folien ermittelt. Nachfolgende Tabelle fasst die Untersuchungsergebnisse zusammen.

	FG (mg/cm <sup>2</sup> )	dFG (mg/cm <sup>2</sup> )	d (cm)	dd (cm)
Kohlesubstrat	11,70	0,24	0,0187	0,0005
Kapton	17,90	0,08	0,0125	0,0002
PET	17,70	0,18	0,0123	0,0003
PTFE 70	14,63	0,12	0,0074	0,0002
PTFE 120	24,60	0,30	0,0115	0,0002
PTFE 200	43,71	0,32	0,0205	0,0003
Al 100µm	27,10	0,24	0,0102	0,0001

**Tab. 10:** Mittelwerte und Standardabweichung der Flächengewichtswerte (FG) und der Dicken (d) der untersuchten Substrate. Von jedem Material wurde ein zwei Meter langes und 50 cm breites Substrat untersucht.

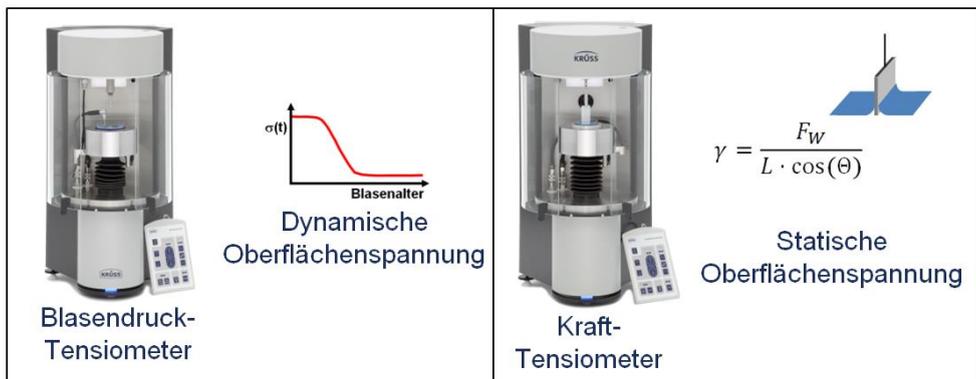
Die Messwerte in Tab. 10 zeigen die im Vergleich zu dem bisher verwendeten Kohlesubstrat deutlich schmalere Dickenverteilung der untersuchten Folie „PTFE 70“ und „PTFE 120“. Nur die untersuchte Aluminiumfolie hat noch geringere Dickenschwankungen. Abb. 50 macht die

Unterschiede in den zentrierten Dicken-Häufigkeitsverteilungen einer der Folien im Vergleich zu dem Kohlesubstrat deutlich.



**Abb. 50: Zentrierte Häufigkeitsverteilung der gemessenen Dicken von Substrat „PTFE 120“ und dem bisher verwendeten Kohlesubstrat.**

Die PTFE-Folien erfüllen im Gegensatz zu der Aluminiumfolie neben einer geringen Dickenschwankung zudem die Anforderung einer geringen Oberflächenenergie. Laborversuche zeigen, dass die Elektroden sich leicht von kleinen beschichteten Folien auf die Membran übertragen lassen. Allerdings sind die Haftkräfte noch zu gering, um den Laborprozess auf die Rolle-zu Rolle-Anlage vollständig übertragen zu können. Damit die Katalysatordispersion auf die PTFE-Folie großflächig homogen beschichtet werden kann, müssen die statische und die dynamische Oberflächenspannung in der Dispersion an die Oberflächenenergie der Folie angepasst werden.



**Abb. 51: Blasendrucktensiometer (links): Bestimmung der dynamischen Oberflächenspannung; Krafttensiometer (rechts): Bestimmung der statischen Oberflächenspannung**

Zu diesem Zweck wurde das Dispersionslabor mit neuer Messtechnik ausgerüstet, mit deren Hilfe diese Anpassung der Oberflächenspannung an das verwendete Substrat zukünftig

erfolgen soll. In einer aktuellen Dissertation werden zurzeit die Zusammenhänge zwischen den Oberflächeneigenschaften der Folie, der Oberflächenspannung der Dispersion und den Haftungseigenschaften der Dispersion, bzw. der Elektrode auf dem Substrat untersucht.

### 3.5.2.4 Stack- und Systementwicklung

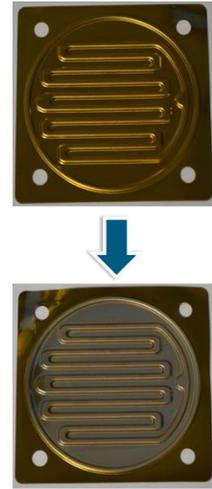
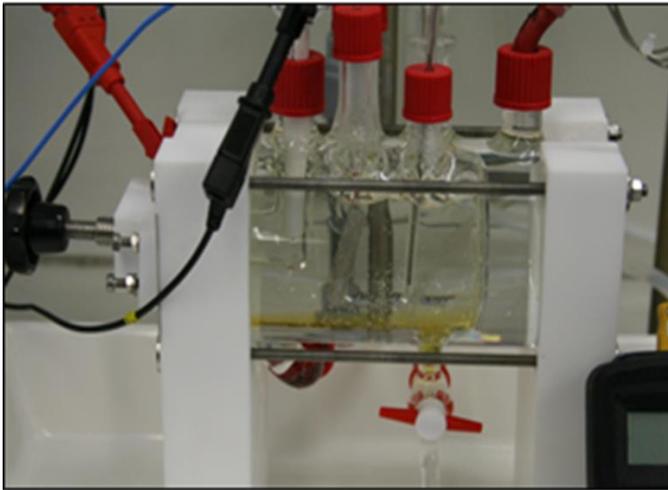
Um die Technologie der PEM-Elektrolyse realistisch und nachhaltig in den Massenmärkten der Speicherung von erneuerbaren Energien nach dem Jahr 2020 einsetzen zu können, sind gegenüber dem Stand der Technik weitere Technologieentwicklungen erforderlich, um die unzulängliche Stabilität und die hohen Kosten der aktuell eingesetzten Technologie zu verbessern bzw. zu reduzieren.

Im Bereich der Stackentwicklung stellt die Entwicklung kostengünstiger Materialien und Herstellverfahren ein Entwicklungsfeld dar. In Tab. 11 sind die Entwicklungsziele für die Separatorplatte aufgeführt. Die Separatorplatten von PEM-Elektrolyseuren, die derzeit aus beschichtetem Titan hergestellt werden, machen bis zu 25 % der Gesamtkosten des Systems aus. In einem ersten Ansatz soll deshalb versucht werden, zuerst die Leistung zu optimieren und dann die kostenintensiven Materialien wie Titan durch kostengünstige und korrosionsstabile Materialien zu ersetzen. Durch den Einsatz von metallischen Bipolarplatten mit einer entsprechenden Beschichtung sollen die Kosten von Flowfield und Separatorplatten deutlich gesenkt und damit der Anteil an den Gesamtkosten drastisch reduziert werden.

Lebensdauer 40.000 h
Druckfeste Konstruktion für Drücke > 50 bar
Integriertes Kühlsystem mit innerem Kühlflowfield falls erforderlich
Optimale Verteilungsstruktur für die Medien
Gestaltfestigkeit bei dynamischen Druckwechsel / Temperaturveränderungen
Ersatz von Titan durch kostengünstige Materialien
Optimale Flächenpressung für Kontaktierung / Minimierung Innenwiderstand
Hohe Stromtragfähigkeit
Integration von Stützstrukturen für Dichtsysteme
Integration in das Gesamtsystem inkl. Endplatten und Verspanntechnologie

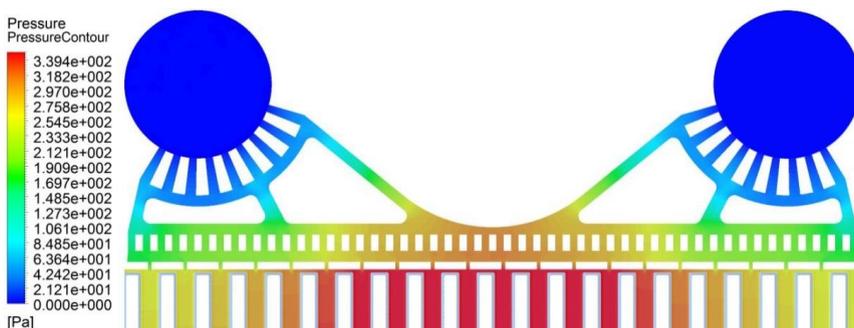
**Tab. 11: Entwicklungsziele Separatorplatte**

Zur Evaluierung geeigneter Substrat- und Beschichtungsmaterialien für die Herstellung von Separatorplatten steht eine nach IEK-3-internem Entwurf konstruierte Korrosionsmesszelle zur Verfügung, die eine Material-Charakterisierung und Degradationsversuche (Dauerversuche) mithilfe elektrochemischer Messmethoden ermöglicht. Dazu werden die zu untersuchenden Materialien einem fixen Potential innerhalb einer Elektrolytlösung ausgesetzt und dabei die Änderung der Oberflächenbeschaffenheit der Materialproben bei konstant gehaltenem Potential über Zeit untersucht (vgl. Abb. 52).



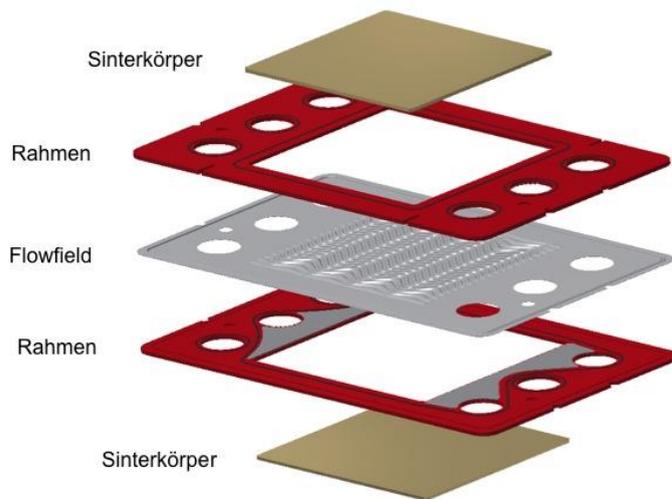
**Abb. 52:** links: Korrosionsmesszelle; rechts: Darstellung von Probenaufnahmen im Vorher-/Nachher-Vergleich einer Edelstahlprobe mit TiN-Beschichtung in 0,005 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Lösung bei 50 °C und einem Potential von 2,00 V (vs. RHE).

Um die Leistung und den Wirkungsgrad der PEM-Elektrolyse zu steigern spielt die Designentwicklung von Separatorplatten eine große Rolle. Bei der Entwicklung der Separatorplatte liegt der Fokus darauf, zuverlässig eine gleichmäßige Durchströmung aller Zellen im Stack zu erreichen. Unter der Randbedingung eines niedrigen elektrischen Widerstands und moderater Druckverluste bei der Durchströmung soll das Flowfielddesign dieser Anforderung gerecht werden. Mit Hilfe von CFD-Analysen (vgl. Abb. 53) werden unterschiedliche Strömungsaspekte in Elektrolyseuren untersucht und optimiert. Ziel dieser Optimierung ist eine Minimierung des Druckverlustes und eine gleichmäßige Geschwindigkeitsverteilung über alle Kanäle, damit die Katalysatorschichten gleichmäßig mit Wasser versorgt werden und eine ausreichende Kühlung sichergestellt wird. Gleichzeitig führt die Minimierung des Strömungsverlustes zu einem verringerten Energiebedarf zur Versorgung der Peripheriekomponenten (Pumpen usw.) im gesamten System.



**Abb. 53:** CFD-Druckverteilungsuntersuchung für den Auslassmanifold des Rahmens

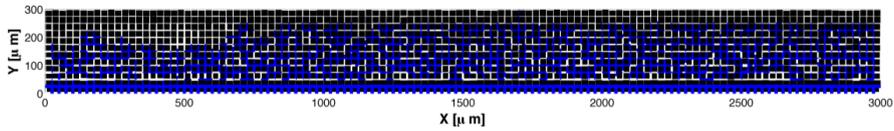
Die Ergebnisse aus den CFD-Analysen flossen in die Konstruktion eines Dichtrahmens für ein wellenförmiges Flowfield ein, bei dem die Kanäle, die das Manifold mit dem Flowfield verbinden, so verändert werden, dass eine gleichmäßig verteilte Strömung durch die Zelle entsteht. Abb. 54 zeigt die Konstruktion von zwei Halbzellen im Elektrolysestack. Dieses Konzept ist unter Berücksichtigung der Gasentwicklung und des zuverlässigen Gasaustrags über der gesamten Zellfläche entwickelt worden. Während das Reaktionswasser durch eine Zelle fließt, erhöht sich der Gasphasenanteil im Verhältnis zur Flüssigphase und damit auch die Strömungsgeschwindigkeit. Um mögliche Probleme bei der Gasabführung im Auslassbereich zu vermeiden, werden bei diesem Konzept jeweils eine Einlassöffnung zum Verteilen des Reaktionswassers und zwei Auslassöffnungen zum Sammeln der Reaktionsgase eingesetzt.



**Abb. 54: Explosionszeichnung des Zusammenbaus von Separatorplatte, Dichtrahmen und Stromverteiler.**

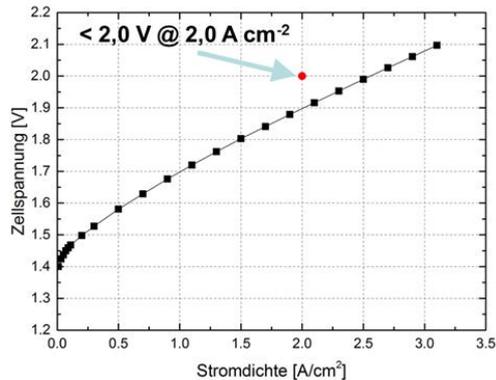
In PEM-Elektrolyseuren haben die Stromverteiler mehrere Funktionen: Sie verleihen der empfindlichen Membran Stabilität und schützen diese vor Durchbruch, verteilen die Elektronen und transportieren die flüssigen Reaktanden und die Produktgase; dabei müssen sie der hochkorrosiven Umgebung widerstehen und ihre Struktur auch unter hohen Drücken beibehalten. Normalerweise kommen als anodische Stromverteiler poröse Titansinter-scheiben zum Einsatz. In Bezug auf eine homogene Strom- und Medienverteilung auf Zellebene, insbesondere im Hochstrombereich, werden unterschiedliche Materialien mit Hilfe von Widerstandsmessungen, Porositätsanalysen, Gas- und Wasserpermeabilitätsmessungen untersucht. Neben der Erfassung physikalischer Parameter des Stromverteilers werden Computersimulationen durchgeführt, um zu einem besseren Verständnis des Stofftransports zu gelangen. Abbildung Abb. 55 zeigt die Ergebnisse einer Simulation. Es wurde die Wasserverteilung in einem porösen Stromverteiler unter dem Einfluss einer injizierten Wasserfront betrachtet. Die ursprüngliche Porenverteilung wurde modifiziert, so dass ein Gefälle des Porendurchmessers von der Separatorplatte (unten) zur Katalysatorschicht (oben) entstand. Das Ergebnis aus Abb. 55 entstammt einer Parameterstudie zur Porengrößenverteilung mit dem Ziel eines Porengrößengradienten

senkrecht zur Ebene, der dazu führen soll, dass das an den Katalysatoren ankommende Wasser gleichmäßig verteilt wird.



**Abb. 55:** Zweidimensionale Simulation der Wasserdurchdringung in einem Stromverteiler aus gesintertem porösem Titan, mit dem Entwicklungsziel einer angepassten Porengrößenverteilung, die zu einer gleichmäßigen Wasserzufuhr zu der Katalysatorschicht führt.

Alle Ergebnisse fließen schließlich in die Entwicklung eines Stackdesigns mit den entsprechenden Separatorplatten und Stromverteilern für die PEM-Elektrolyse ein. Am IEK-3 werden für unterschiedlich großen aktive Flächen Einzelzellen bzw. Shortstacks inklusive der dazu benötigten Endplatten konzipiert und aufgebaut. Der Aufbau eines 7-zelligen Shortstacks (s. Abb. 56) erfolgte im 100 cm<sup>2</sup> Zelldesign. (Aufbau: Bipolarplatte; MEA; Endplatten). Das Stackdesign lässt einen Differenz- sowie Gleichdruckbetrieb bis 50 bar zu. Der Stack ist im konstanten und dynamischen Betrieb getestet worden. Zur Charakterisierung des Stacks wurden Polarisationskurven aufgenommen. Es konnte eine Leistung von 5,0 kW erreicht werden und bei 2 A/cm<sup>2</sup> liegt die Spannung bei 1,9 V.



**Abb. 56:** links: PEM-Elektrolyse Short-Stack im 100 cm<sup>2</sup>-Design; rechts: Polarisationskurve

Zusammengefasst lässt sich feststellen, dass mit Hilfe der durchgeführten Simulationen und Konstruktionen eine zuverlässig arbeitende Zelle mit einer aktiven Fläche von 100 cm<sup>2</sup> entwickelt werden konnte, die auch in Stacks ihre Funktion bewiesen hat. Der Druckverlust aufgrund der Wasserströmung stimmt mit den Simulationsergebnissen überein und auch hinsichtlich der Korrosionsstabilität der Materialien wurden die Anforderungen erfüllt. Aufgrund dieser Ergebnisse wird im nächsten Schritt dieses Stack-Konzept auf 300 cm<sup>2</sup> aktive Zellfläche hochskaliert.

Im Rahmen der Systementwicklung werden das Zusammenspiel der notwendigen Systemkomponenten und die Entwicklung von optimierten Regelungs- und Steuerungsstrategien,

die zum Betrieb eines PEM-Elektrolyse-Stacks notwendig sind, untersucht. Ein Auszug der dort durchgeführten Studien gibt das Kapitel 4.4 wider.

### 3.5.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Dr. W. Lüke	9073 <a href="mailto:w.lueke@fz-juelich.de">w.lueke@fz-juelich.de</a>	Leiterin der Abteilung Elektrochemie Elektrolyse
Dr. M. Müller	1859 <a href="mailto:mar.mueller@fz-juelich.de">mar.mueller@fz-juelich.de</a>	Leiter der Abteilung Verfahrenstechnik Elektrolyse
Dr. M. Carmo	5590 <a href="mailto:m.carmo@fz-juelich.de">m.carmo@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe MEA-Entwicklung
Dr. M. Stähler	2775 <a href="mailto:m.staehler@fz-juelich.de">m.staehler@fz-juelich.de</a>	Leiter der Gruppe MEA-Fertigung
N. Kimiaie	6484 <a href="mailto:n.kimiaie@fz-juelich.de">n.kimiaie@fz-juelich.de</a>	Leitung der Gruppe Stack- und Systementwicklung
D. Günther	2378 <a href="mailto:d.guenther@fz-juelich.de">d.guenther@fz-juelich.de</a>	Dokumentation und Charakterisierung von ionentauscheren
M. Hehemann	5431 <a href="mailto:m.hehemann@fz-juelich.de">m.hehemann@fz-juelich.de</a>	Sicherheitstechnische Betreuung der Teststände
T. Höfner	9804 <a href="mailto:t.hoefner@fz-juelich.de">t.hoefner@fz-juelich.de</a>	Entwicklung von Membran- Elektroden-Einheiten für alkalische PEM-Elektrolyse
M. Höh	9842 <a href="mailto:m.hoeh@fz-juelich.de">m.hoeh@fz-juelich.de</a>	Simulation und Entwicklung poröser Schichten
M. Langemann	9759 <a href="mailto:m.langemann@fz-juelich.de">m.langemann@fz-juelich.de</a>	Entwicklung und Evaluierung von geeigneten Substraten und Beschichtungen für metallische Bipolarplatten in PEM-Elektrolyseuren
P. Paciok	9801 <a href="mailto:p.paciok@fz-juelich.de">p.paciok@fz-juelich.de</a>	Reduktion bzw. Substitution der Platingruppenmetalle in Wasserstoff- Elektroden für die PEM-Elektrolyse
C. Rakousky	9803 <a href="mailto:c.rakousky@fz-juelich.de">c.rakousky@fz-juelich.de</a>	Entwicklung kostengünstiger und nachhaltiger Katalysator-Materialien für die Sauerstoff-Elektrode der PEM- Elektrolyse
M. Schalenbach	9802 <a href="mailto:m.schalenbach@fz-juelich.de">m.schalenbach@fz-juelich.de</a>	Entwicklung und Evaluierung von Membranen mit hoher Leitfähigkeit und mechanischer und chemischer Beständigkeit für die PEM-Elektrolyse
F. Scheepers	2177 <a href="mailto:f.scheepers@fz-juelich.de">f.scheepers@fz-juelich.de</a>	Analyse von Trocknungsverlaufes von Katalysatordispersionen

A. Schulz	8965 <a href="mailto:a.schulz@fz-juelich.de">a.schulz@fz-juelich.de</a>	Analyse des Transferprozessen von Katalysatorschichten
G. Tjarks	4013 <a href="mailto:g.tjarks@fz-juelich.de">g.tjarks@fz-juelich.de</a>	Simulation und Entwicklung von PEM-Elektrolysesystemen
R. Wegner	4832 <a href="mailto:r.wegner@fz-juelich.de">r.wegner@fz-juelich.de</a>	Mechanischer Aufbau von Stacks und Systemen

### 3.5.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

#### Wichtige Veröffentlichungen

Carmo, M.; Fritz, D.; Mergel, J.; Stolten, D.

#### **A comprehensive review on PEM water electrolysis**

*International journal of hydrogen energy*, 38 (12) 2013, pp. 4901-4934, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.01.151

Schalenbach, M.; Fritz, D.; Carmo, M.; Mergel, J.; Stolten, D.

#### **Pressurized PEM water electrolysis: Efficiency and gas cross**14921-14933

*International journal of hydrogen energy*, 38 (35) 2013, pp. 14921-14933, DOI: 10.1016/j.ijhydene.2013.09.013

#### Wichtige Patente

Patentanmeldung:

Federführender Erfinder	PT	Bezeichnung
M. Schalenbach	1.2639	Elektrochemische Elektrolysezelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben
M. Schalenbach	1.2642	Elektrochemische Elektrolysezelle für die Wasserelektrolyse sowie Verfahren zum Betreiben derselben
M. Schalenbach	1.2661	Elektrochemische Separation von chemischen Elementen aus einem Elektrolyten sowie Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens
M. Stähler	1.2678	Elektrochemische Zelle sowie Verfahren zur Herstellung derselben
M. Schalenbach	1.2681	Brennstoffzelle sowie Verfahren zum Betreiben derselben
M. Schalenbach	1.2686	Verfahren sowie Vorrichtung zur Trennung von chemischen Elementen (Trägerfluid)
M. Schalenbach	1.2687	Verfahren sowie Vorrichtung zur Trennung von chemischen Elementen

## 3.6 Verfahren- und Systemanalyse

### 3.6.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

In diesem Bereich werden energietechnische Verfahrens- und Systemanalysen für Planungs- und Beratungsaufgaben durchgeführt. Datenrecherchen und Systemsimulationen dienen der Ermittlung von Energie- und Stoffbilanzen, Leistungsdaten, Emissionen und Kosten und damit dem quantitativen Vergleich von Energiesystemen. Die Schwerpunkte im Berichtszeitraum waren:

- Kraftstoffverbrauch von Pkw mit elektrischen und herkömmlichen Antriebskonzepten,
- Analyse der Nutzungsoptionen von CO<sub>2</sub> in der chemischen Industrie,
- Gestalt und Kosten eines Wasserstoffpipelinesetzes zur Versorgung des Straßenverkehrs,
- Weiterentwicklung einer Energiestrategie zur Erfüllung der Treibhausgasreduzierungsziele der Bundesregierung.

Dem zuletzt genannten Thema ist ein eigener Abschnitt (4.5) gewidmet.

### 3.6.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

#### 3.6.2.1 Verbrauchsreduktionspotential für Pkw mit unterschiedlichen Antriebsarten

Mit dem Ziel, Treibhausgase und lokal wirksame Schadstoffe zu reduzieren, sind weltweit Pkw-Antriebe mit zunehmender Stromnutzung in der Entwicklung. Elektro-Pkw mit Brennstoffzellen (FCV) ermöglichen lokal emissionsfreies Fahren unter weitgehender Beibehaltung üblicher Leistungsdaten. Batterieelektrische Pkw (BEV) weisen, bei ebenfalls lokaler Emissionsfreiheit aber deutlich reduzierter Reichweite, den geringsten Energiebedarf auf. Solche Fahrzeuge werden mit Netzstrom geladen, für den regionsspezifisch unterschiedliche Umweltwirkungen gelten. Antriebssysteme mit Verbrennungsmotor (ICV) werden weiter optimiert. In Hybrid-Pkw mit Verbrennungsmotor (HEV) erlauben elektrische Antriebskomponenten über eine optimierte Betriebsweise des Verbrennungsmotors sowie über die Bremsenergierückgewinnung eine Reduzierung des Verbrauchs.

Die Bewertung von Antriebssystemen erfordert die Analyse der Kraftstoff- beziehungsweise Strombereitstellung (*Well-to-tank*, WTT) einerseits, sowie der Energienutzung im Fahrzeug (*Tank-to-wheel*, TTW) andererseits. Die hier vorgestellten Ergebnisse betreffen die TTW-Analyse und wurden mithilfe einer am IEK-3 entwickelten Simulationsumgebung ermittelt<sup>4</sup>. Es wurden dazu folgende Pkw-Konzepte untersucht:

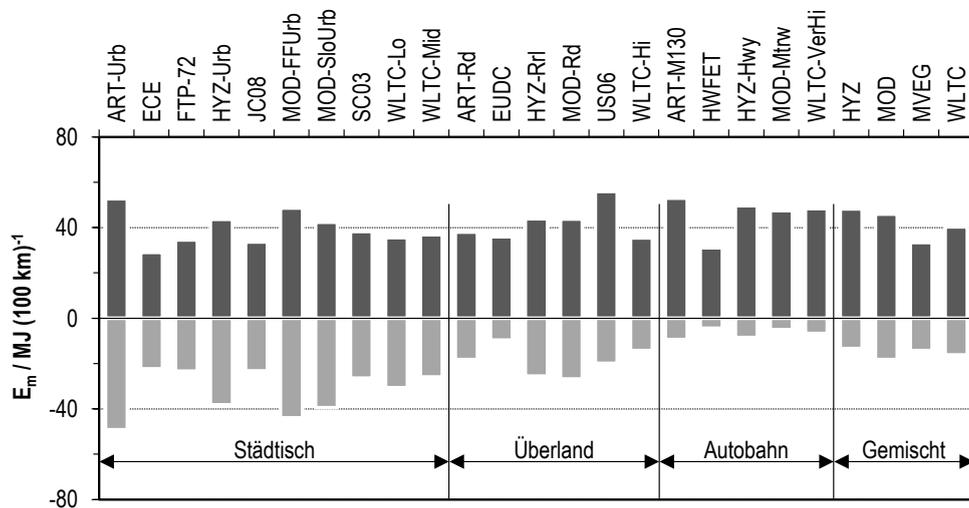
- Pkw mit Verbrennungsmotor (Internal combustion engine vehicle, ICV)
- Parallelhybrid-Pkw mit Verbrennungsmotor und Batterie (Parallel hybrid, PAH)
- Elektro-Pkw mit Batterie (Battery electric vehicle, BEV)
- Elektro-Pkw mit Brennstoffzellen und Batterie (Fuel cell vehicle, FCV).

---

<sup>4</sup> Grube, T.: Potential der Stromnutzung in Pkw-Antrieben zur Reduzierung des Kraftstoffbedarfs. Technische Universität Berlin, Fakultät V - Verkehrs- und Maschinensysteme, Dissertation. 2014

Besonderes Merkmal der hier durchgeführten Analyse sind einheitliche Vorgaben hinsichtlich solcher Fahrzeugparameter, die für den Leistungsbedarf am Rad, sowie für weitere mechanische, thermische und elektrische Lastprofile relevant sind. Die Dimensionierung des Antriebsstrangs erfolgt automatisiert unter Nutzung einheitlicher Vorgaben für die zu erfüllenden Leistungsparameter Beschleunigungsfähigkeit, Höchstgeschwindigkeit und Reichweite. Zur Abbildung des lastabhängigen Betriebsverhaltens der Antriebskomponenten wurden physikalische Modelle, Betriebskennfelder und im Falle der Batterien Ersatzschaltbilder verwendet. Die Analyse wurde anhand der Szenarien „Standard“ und „Zukunft“ durchgeführt, um auch absehbare Entwicklungsfortschritte zu berücksichtigen. Weiterhin umfasst die Untersuchung Analysen für Pkw des A-Segments (Kleinstwagen) und C-Segments (Mittelklasse).

Exemplarisch für die Relevanz der Lastprofile zeigt Abb. 57 den mechanischen Energiebedarf für Pkw des C-Segments im Szenario „Zukunft“. Positive Werte gelten für die zum Vortrieb des Fahrzeugs aufzuwendende Energie und negative Werte für die Bremsenergie und damit für die zur Bremsenergieerückgewinnung maximal verfügbare Energie.



**Abb. 57: Mechanischer Energieumsatz des Referenz-Pkw in den verwendeten Fahrzyklen<sup>4</sup>. ART.: ARTEMIS; FreeUrb: Free flow urban; Highw: Highway; HYZ: HYZEM; MOD: MODEM; Mtrway130: Motorway (maximal 130 km/h); Rur: Rural; SlowUrb: Slow urban; Urb: Urban**

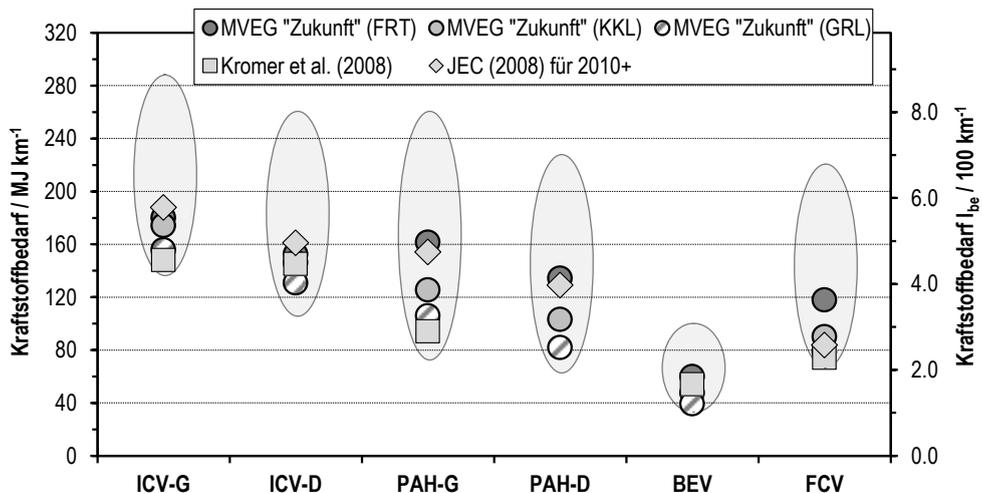
Die zeitabhängigen thermischen Lastprofile resultieren aus dem Wärmebedarf, der mithilfe eines thermischen Kabinenmodells bestimmt wird (siehe IEK-3 Report 2013<sup>5</sup>), während elektrische Lastprofile die Nutzung elektrischer Einrichtungen des Fahrzeugs betreffen. Im Ergebnis der Untersuchung lässt sich auf Basis der Simulationsdurchläufe die Bandbreite der Kraftstoffverbräuche in Abhängigkeit des gewählten Szenarios und des Pkw-Segments

<sup>4</sup> Ibid.

<sup>5</sup> Emonts, B. (Ed.) *IEK-3 Report 2013. Langlebige elektrochemische Verfahrenstechnik*. Forschungszentrum Jülich GmbH Zentralbibliothek, Verlag: Jülich, 2013. ISBN 978-3-89336-868-6

für alle hier verwendeten Fahrzyklen und Lastprofile angeben. Beispielhaft sind die Wertebereiche für das Szenario „Zukunft“ und das C-Segment in Abb. 58 dargestellt.

Es wird deutlich, dass das größte Reduktionspotential für die emissionsfreien BEV und FCV besteht, gefolgt vom Parallelhybrid mit Dieselmotor. Ebenfalls dargestellt sind Simulationsergebnisse für den EU Referenzfahrzyklus MVEG und entsprechende Werte aus der Literatur. Der Vergleich zeigt übereinstimmende Trends in der Rangfolge der Antriebsysteme. Einzelne Werte weichen dabei jedoch relativ deutlich voneinander ab, was mit unterschiedlichen Fahrzeugparametern, Komponentenwirkungsgraden und Betriebsstrategien zusammenhängt. Für eine detaillierte Analyse der Ursachen für diese Abweichungen sind die verfügbaren Informationen bezüglich der Literaturangaben nicht ausreichend.



**Abb. 58:** Ergebnisse simulationsgestützter Kraftstoffverbrauchsanalysen für unterschiedliche Pkw-Konzepte<sup>4</sup>. Wertebereiche der Verbrauchsberechnungen laut<sup>4</sup> sind als Ellipsen für Pkw des C-Segments im Szenario „Zukunft“ dargestellt. Einzelwerte für die Fahrzyklen MVEG sind für die Bordnetzlastfälle „keine Klimatisierung“ (KKL), „Frosttag“ (FRT) und „nur Grundlast“ (GRL) angegeben (Definitionen siehe<sup>4</sup>)

### 3.6.2.2 Bewertung von Kohlendioxid als Rohstoff in der chemischen Industrie

Die Nutzung von Kohlendioxid als Rohstoff in der chemischen Industrie stellt eine Alternative zur in Deutschland gesellschaftlich umstrittenen und gesetzlich limitierten, geologischen Speicherung dar. Wissenschaftliche Publikationen über CO<sub>2</sub>-Nutzungsreaktionen beschäftigen sich in der Regel ausschließlich mit der Durchführbarkeit der Synthese, ohne das CO<sub>2</sub>-Reduktionspotential sowie die wirtschaftliche Umsetzbarkeit gegenüber entsprechenden konventionellen Herstellungsverfahren zu betrachten. Vor diesem Hintergrund wurden in einem Bewertungsverfahren, das mehrere Schritte umfasst, CO<sub>2</sub>-Nutzungsreaktionen aus der Literatur identifiziert, analysiert und bewertet. Der Fokus lag dabei auf der chemischen Umsetzung von CO<sub>2</sub> zu organischen Produkten, durch die

<sup>4</sup> Ibid.

konventionell hergestellte Verbindungen substituiert werden können. Im ersten Schritt wurden 23 CO<sub>2</sub>-basierte Synthesen zu Bulkchemikalien (Ausbringungsmenge innerhalb der EU von mehr als 60 Mio. t/a) und 100 CO<sub>2</sub>-basierte Synthesen zu Feinchemikalien (Ausbringungsmenge innerhalb der EU von ungefähr 1-2 Mio. t/a) aus der Literatur erfasst und anhand von eigens dafür definierten Kriterien bewertet. Die Bewertungskriterien sollten dabei sowohl das mengenmäßige Potential zur Reduktion von CO<sub>2</sub>, als auch das mögliche wirtschaftliche Interesse an diesen Reaktionen berücksichtigen. Da einige Auswahlkriterien nur speziell für Bulkchemikalien oder Feinchemikalien aussagekräftige Resultate für deren Bewertung liefern, wurden die in Tab. 12 ausgewiesenen Bewertungskriterien für Bulk- und Feinchemikalien eingeführt:

Bulkchemikalien	Feinchemikalien
<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Spezifisch eingesetzte Masse von CO<sub>2</sub> als Rohstoff</li> <li>▪ CO<sub>2</sub>-Reduktionspotential</li> <li>▪ Relative Wertschöpfung</li> <li>▪ Unabhängigkeit von fossilen Rohstoffen</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Spezifisch eingesetzte Masse von CO<sub>2</sub> als Rohstoff</li> <li>▪ Produktionsmengen der Stoffgruppen</li> <li>▪ Relative Wertschöpfung</li> <li>▪ Wissenschaftliche Relevanz</li> <li>▪ Technische Verfügbarkeit</li> </ul>

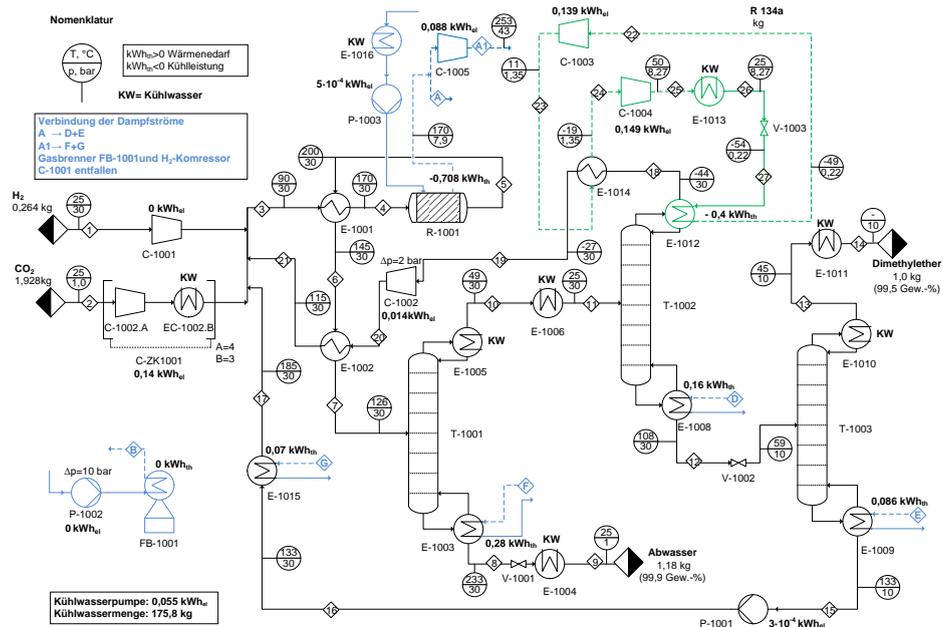
**Tab. 12: Bewertungskriterien zur Auswahl der zu analysierenden Bulk- und Feinchemikalien**

Unter den betrachteten 23 Bulkchemikalien erfüllten Ameisensäure, Oxalsäure und Formaldehyd am ehesten die genannten Bewertungskriterien, direkt gefolgt von Methanol, Harnstoff und Dimethylether. Unter den 100 analysierten Feinchemikalien setzten sich bei der Vorauswahl Methylcarbammat, 3-Oxopentandicarbonsäure, 2-Imidazolidion und Ethylcarbammat gegenüber den restlichen Feinchemikalien durch.

Neben der Bewertung der betrachteten Reaktionen konnte in diesem ersten Schritt noch ermittelt werden, dass ein CO<sub>2</sub>-Vermeidungspotential in Höhe von 1,3 % der Treibhausgasemissionen innerhalb der Europäischen Union (EU) erreicht werden kann, bei vollständiger Substitution der konventionellen Prozesse innerhalb der EU durch die CO<sub>2</sub>-basierten Verfahren. Das CO<sub>2</sub>-Vermeidungspotential der 100 betrachteten Feinchemikalien liegt mit deutlich weniger als 0,029 % der THG-Emissionen der EU weit unterhalb des Vermeidungspotentials der Bulkchemikalien, welche somit kaum einen Beitrag zur Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen leisten können. Dennoch zeigte sich bei den analysierten Feinchemikalien, dass deren Stärke gegenüber den Bulkchemikalien in einer deutlich höheren erreichbaren Wertschöpfung liegt.

In zweiten Schritt erfolgte für die Bulkchemikalien Ameisensäure, Oxalsäure, Formaldehyd, Methanol, Harnstoff und Dimethylether, die die Auswahlkriterien am ehesten erfüllt haben, ein direkter Vergleich des potentiellen CO<sub>2</sub>-basierten mit dem konventionellen Verfahren. Mittels Literaturdaten, Prozessentwürfen und –simulationen in Aspen Plus konnte gezeigt werden, dass die Hydrierung von CO<sub>2</sub> zu Methanol mit 1,43 kg<sub>CO2</sub>/kg<sub>MeOH</sub> und zu Dimethylether mit 2,17 kg<sub>CO2</sub>/kg<sub>DME</sub> das höchste CO<sub>2</sub>-Reduktion gegenüber dem jeweiligen

konventionellen Verfahren erreicht. Voraussetzung ist jedoch, dass der für die Reaktionen benötigte Wasserstoff aus Elektrolyse stammt, die mit Strom aus erneuerbaren Energien betrieben wird. Die CO<sub>2</sub>-basierten Herstellungsverfahren von Methanol und Dimethylether können somit bei vollständiger Substitution der konventionellen Prozesse innerhalb der Europäischen Union (EU) zu einer Reduktion von 0,059 % der Treibhausgas-Emissionen der EU beitragen. In Abb. 59 ist beispielhaft der im Rahmen der durchgeführten Analyse entworfene Prozess inklusive einiger Simulationsergebnisse aus Aspen Plus für die Hydrierung von CO<sub>2</sub> zu Dimethylether dargestellt.



**Abb. 59: Prozessentwurf mit Simulationsergebnissen aus Aspen Plus für die CO<sub>2</sub>-basierte Dimethylether-Synthese bei einem Reaktionsdruck von 50 bar, einer Reaktionstemperatur von 200 °C und molaren H<sub>2</sub>:CO<sub>2</sub>-Verhältnissen von 3 am Reaktoreintritt.**

Im dritten und letzten Bewertungsschritt konnte für die CO<sub>2</sub>-basierten Prozesse zur Herstellung von Methanol und Dimethylether gezeigt werden, dass die Herstellkosten des CO<sub>2</sub>-basierten Prozesses im Vergleich zum entsprechenden konventionellen Prozess um das 3,3-fache beziehungsweise um 2,3-fache höher sind. Daraus resultieren CO<sub>2</sub>-Vermeidungskosten in Höhe von 540 €/t<sub>CO2</sub> bei der CO<sub>2</sub>-basierten Herstellung von Methanol und 440 €/t<sub>CO2</sub> bei Dimethylether, die 90 beziehungsweise 73-mal höher sind als bei der geologischen Speicherung von CO<sub>2</sub> in Aquiferen. Sinken hingegen die angesetzten Kosten des benötigten Wasserstoffes von den hier angenommenen 5,22 auf 1,22 beziehungsweise 1,76 €/kg<sub>H2</sub> entstehen keine Vermeidungskosten bei der Nutzung von CO<sub>2</sub> als Rohstoff für die Synthese von Methanol und Dimethylether. Damit wird in Zukunft neben höheren CO<sub>2</sub>-Zertifikatspreisen hauptsächlich die Preisentwicklung des durch Elektrolyse hergestellten Wasserstoffes ausschlaggebend für die wirtschaftliche Umsetzung der beiden CO<sub>2</sub>-basierten Prozesse sein.

Insgesamt konnte unter anderem gezeigt werden, dass für die zukünftige chemische Nutzung von Kohlendioxid als CO<sub>2</sub>-Reduktionsoption, aufgrund der hohen Produktionsmengen, hauptsächlich die Herstellung von Bulkchemikalien geeignet ist. Dabei müssen jedoch die Reaktionen für eine erfolgreiche und wirtschaftliche Umsetzung mit hochreaktiven Co-Reaktanden durchgeführt werden, deren Herstellungsprozesse möglichst preiswert und gleichzeitig mit geringen CO<sub>2</sub>-Emissionen belastet sind. Die Synthesen von Feinchemikalien können zwar keinen großen Beitrag zur Reduktion von CO<sub>2</sub>-Emissionen leisten, weisen jedoch großes Potential für eine wirtschaftliche Umsetzung auf.

### 3.6.3 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
T. Grube	5398 <a href="mailto:th.grube@fz-juelich.de">th.grube@fz-juelich.de</a>	Fahrzeugsimulation, Analyse der Energieträgerbereitstellung & Prozessketten
B. Kumar	9743 <a href="mailto:b.kumar@fz-juelich.de">b.kumar@fz-juelich.de</a>	Alkalische Elektrolyseure als Windstromspeicher: Einbindung & Betriebsweise
S. Luhr	6689 <a href="mailto:s.luhr@fz-juelich.de">s.luhr@fz-juelich.de</a>	Membranmodule für die CO <sub>2</sub> -Abtrennung mittels Polymermembranen
A. Otto	4113 <a href="mailto:a.otto@fz-juelich.de">a.otto@fz-juelich.de</a>	CO <sub>2</sub> -Nutzung in der chemischen Industrie, THG-Reduktion in der Industrie, Power-to-Chemicals
M. Robinius	3077 <a href="mailto:m.robinus@fz-juelich.de">m.robinus@fz-juelich.de</a>	Alternative Strommarktdesigns; Modellierung von Energiesystemen
S. Schiebahn	8731 <a href="mailto:s.schiebahn@fz-juelich.de">s.schiebahn@fz-juelich.de</a>	Power-to-Gas Konzepte; Strategien zur Treibhausgasminderung
A. Schwane	1948 <a href="mailto:a.schwane@fz-juelich.de">a.schwane@fz-juelich.de</a>	Umsetzungsstrategie für eine H <sub>2</sub> -Versorgungsinfrastruktur
Fr. V. Tietze	4113 <a href="mailto:v.tietze@fz-juelich.de">v.tietze@fz-juelich.de</a>	Techno-ökonomische Modellierung der H <sub>2</sub> -Versorgungsinfrastruktur
Fr. L. Zhao	4064 <a href="mailto:l.zhao@fz-juelich.de">l.zhao@fz-juelich.de</a>	Membranbasierte Gastrennprozesse in der Energietechnik

### 3.6.4 Wichtige Veröffentlichungen, Dissertationen und Patente

#### *Wichtige Veröffentlichungen*

Schiebahn, S.; Grube, T.; Robinius, V.; Tietze, V.; Kumar, B.; Stolten, D.

**Power to gas: Technological overview, systems analysis and economic assessment for a case study in Germany**

*International Journal of Hydrogen Energy* 40 (2015), pp. 4285-4294

Tietze, V.; Luhr, S.

**Near-Surface Bulk Storage of Hydrogen. In: Transition to Renewable Energy Systems**

*Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2013, pp. 659-690. ISBN 978-3-527-33239-7*

Robinius, M.; Stolten, D.

**Power-to-Gas: Quantifizierung lokaler Stromüberschüsse in Deutschland anhand unterschiedlicher Windenergie-Ausbaustufen**

*Proceedings: 9. Internationale Energiewirtschaftstagung 2015, Wien, 2015*

Grube, T.; Höhle, B.

**Kosten der Wasserstoffbereitstellung in Versorgungssystemen auf Basis erneuerbarer Energien**

*Töpler, J.; Lehmann, J. (Hrg.), Wasserstoff und Brennstoffzelle, Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2013, pp. 225-239*

Topham, S., Bazzanella, A.; Schiebahn, S.; Luhr, S.; Zhao, L.; Otto, A., Stolten, D.

**Carbon Dioxide. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry**

*Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2014. ISBN 978-3-527-3067-32*

Zhao, L.; Franz, J.; Schiebahn, S.; Riensche, E.; Scherer, V.; Stolten, D.

**Investigating the influence of sweep gas on CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> membranes for post-combustion capture**

*International journal of greenhouse gas control, 13 2013, pp. 180-190, DOI: 10.1016/j.ijggc.2012.12.008*

*Dissertationen*

Grube, T.

**Potentiale des Strommanagements zur Reduzierung des spezifischen Energiebedarfs von Pkw**

*TU Berlin, 2014, Band 216, 255 pp, Dissertation / PhD Thesis  
ISBN 978-89336-961-4*

Schiebahn, S.

**Effizienzoptimierte CO<sub>2</sub>-Abtrennung in IGCC-Kraftwerken mittels Wassergas-Shift-Membranreaktoren**

*Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Energie & Umwelt, Band 213,  
ISBN 978-3-89336-958-4, RWTH Aachen 2014*

*Wichtige Patente*

Patentanmeldung:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
S. Schiebahn	1.2584	Verfahren zum Betreiben zweier Teilprozesse mit unterschiedlichen Wasserdampfanforderungen in einem Gesamtprozess
S. Schiebahn	1.2585	Verfahren zum Betreiben eines Wasserdampf benötigten Teilprozesses in einem Gesamtprozess

Patenterteilung:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
J. Nazarko	1.2341	Vorrichtung und Verfahren zur Reduzierung von CO <sub>2</sub> -Emissionen aus den Abgasen von Feuerungsanlagen
R. Menzer	1.2381	IGCC-Kraftwerk mit Rauchgasrückführung und Spülgas
E. Riensche	1.2405	IGCC-Kraftwerk mit Rauchgasrückführung und Spülgas
J. Nazarko	1.2431	Vorrichtung und Verfahren zur Entfernung von Kohlendioxid (CO <sub>2</sub> ) aus dem Rauchgas einer Feuerungsanlage nach der Energieumwandlung
J. Nazarko	1.2437	Kraftwerk sowie Verfahren zum Betreiben desselben

## 3.7 Physiko- und elektrochemische Grundlagen

### 3.7.1 Ziele und Tätigkeitsfelder

Im Bereich des Physikochemischen Brennstoffzellenlabors werden die grundlegenden Struktur/Wirkungsbeziehungen komplexer Vorgänge in elektrochemischen Energiewandlern untersucht, um Wege zu deren Verbesserung aufzuzeigen. Im Mittelpunkt stehen die physikalisch-chemischen Eigenschaften und das elektrochemische Verhalten von Komponenten und Modellzellen. Zum Einsatz kommen verschiedene *in-situ*- und *ex-situ* Methoden:

- Bildgebende Analysemethoden (REM/EDX, CLSM, Lichtmikroskopie), Katalysatorcharakterisierung mittels ortsaufgelöster MS
- Spektroskopische Methoden (Raman, IR)
- Thermochemische und mechanische Analysemethoden (TGA, DSC, Elastizitäts-/Dehnungsmessungen, BET, Porosimetrie, Kontaktwinkelmessungen)
- Elektrochemische Analysemethoden (EIS, CV, Leitfähigkeit)

Die vorhandenen Methoden werden den Fragestellungen angepasst bzw. neue Methoden werden entsprechend etabliert. Neben der Kontrolle mechanischer und thermochemischer Eignungsvoraussetzungen für den Einsatz in Brennstoffzellen ist das Ziel die Aufklärung grundlegender mikroskopischer Mechanismen im Zusammenhang mit der Redoxkinetik der Elektroden oder dem Ionentransport in den Elektrolytmembranen

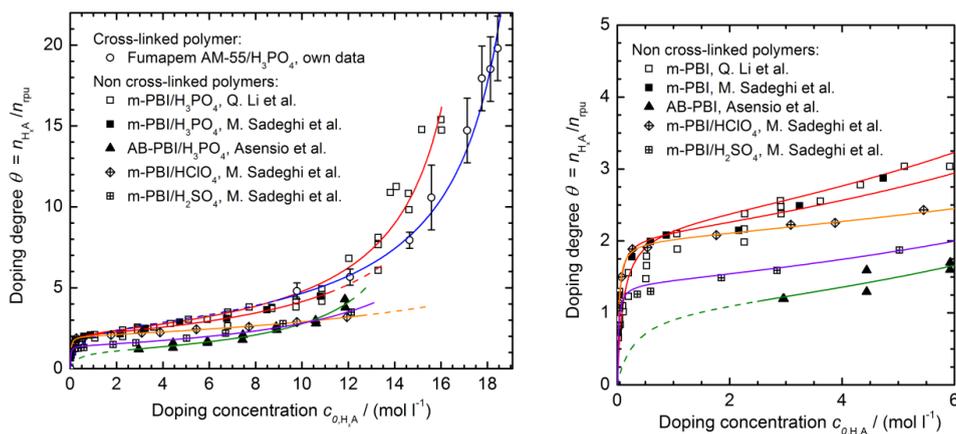
### 3.7.2 Wichtige Arbeitsergebnisse

#### 3.7.2.1 Adsorptionsisotherme von Fumapem AM-55/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> und ramanspektroskopische Untersuchungen

##### *Messung und Modell für Adsorptionsisothermen*

Durch kombinierte pH- und Karl-Fischer-Titration konnten für das PBI-Derivat Fumapem AM-55 Adsorptionsisothermen für die Aufnahme von Phosphorsäure bestimmt werden. Die gemessene Adsorptionsisotherme für das System Fumapem AM-55/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> ist in Abb. 60 zusammen mit Adsorptionsisothermen aus Literaturdaten für die Systeme *m*-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, AB-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, *m*-PBI/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> und *m*-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dargestellt. Alle Adsorptionsisothermen, Literaturdaten sowie eigene Daten lassen sich mit einem modifizierten BET-Modell anpassen. Ein derartiges Modell für die Wechselwirkung eines protischen (aziden) Elektrolyten mit einem ionogenen (basischen) Polymer beruht auf der Annahme zweier unterscheidbarer intermolekularer Bindungen zwischen den Elektrolytmolekülen und den Polymerketten:

- Protonierung der basischen Gruppen der Polymerketten durch einen aziden Elektrolyten, starke ionische Wechselwirkungen zwischen den positive Ladungen auf den Polymerketten und den Elektrolytanionen.
- Aufnahme weiterer Elektrolytmoleküle durch Ausbildung von H-Brücken zur N/O-Atomen in der Polymerkette oder anderen bereits gebundenen Elektrolytmolekülen.



**Abb. 60:** Links: Adsorptionsisothermen der Systeme Fumapem AM-55/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (10 °C), m-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, m-PBI/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, m-PBI/HClO<sub>4</sub> und AB-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (jeweils 25 °C). Die durchgezogenen Kurven sind mit einem modifizierten BET-Modell angepasst. Die Isothermen der Systeme m-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, m-PBI/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, m-PBI/HClO<sub>4</sub> und AB-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> sind aus experimentellen Studien entnommen<sup>5</sup>. Links: Ausschnitt bei kleinen Dotierungsgraden.

Jede protonierbare Gruppe der Polymerkette stellt einen „Adsorptionsplatz“ [ ]<sub>i</sub> dar, der Multilagenadsorption zulässt. Für ein Polymer mit z protonierbaren Gruppen pro Wiederholungseinheit, einer Gleichgewichtskonstante K für die Adsorption der ersten Lage und K' für die Multilagenadsorption ergibt sich folgender Ausdruck für den Dotierungsgrad  $\theta$ :

$$H_xA + [ ]_1 = [H_xA]_1 \text{ mit } K \quad \text{und} \quad H_xA + [ ]_{i-1} = [H_xA]_i \text{ mit } K'$$

$$\theta(c_0) = \frac{z\alpha K'c_0}{(1 - K'c_0)[1 + (\alpha - 1)K'c_0]} \quad \text{mit} \quad \alpha = \frac{K}{K'}$$

Die mit diesem Modell erhaltenen Fitparameter K, K' und z sind in Tab. 13 zusammengefasst. Für die Systeme m-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, AB-PBI/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> und m-PBI/HClO<sub>4</sub> korreliert der Fitparameter z sehr gut mit der für diese Polymere bekannten Anzahl protonierbarer Imidazolgruppen. H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> kann wie HClO<sub>4</sub> gegenüber den Imidazolgruppen als einprotonige Säure angenommen werden. Im Falle von Fumapem AM-55/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> und m-PBI/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> weicht der Fitparameter z um bis zu 40% von den erwarteten Werten ab. Im Falle Fumapem AM-55/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> wird dies sehr wahrscheinlich durch fehlende Messwerte für kleine Dotierungskonzentrationen c<sub>0</sub> verursacht. Im Falle m-PBI/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> deuten die Abweichungen auf eine unvollständige Übertragung des zweiten Protons der Schwefelsäure auf das Polymer hin. Bei den hier aufgeführten Polymeren vom PBI-Typ findet man für die multilagenartige Aufnahme eines stark aziden protischen Elektrolyten eine Gleichgewichtskonstante K' in der Größenordnung von 10<sup>-2</sup> l mol<sup>-1</sup>. Das Verhältnis der Gleichgewichtskonstanten für die Aufnahme der ersten

<sup>5</sup> Asensio, J.A., Borro, S. und Gómez-Romero, P., J. of the Electrochem. Soc. 151 (2), A304 (2004), Li, Q., He, R., Berg, R.W., Hjuler, H.A. und Bjerrum, N.J., Solid State Ionics 168, 177 (2004), He, R., Li, Q., Jensen, J.O. und Bjerrum, N.J., J. of Polymer Sci A 45, 2989 (2007), Sadeghi, M., Moadel, H., Khatti, S. und Ghalei, B., J. of Macromol. Sci. B 49, 1128 (2010)

Adsorptionslage  $K$  (Protonierung) und der multilagenartigen Aufnahme  $K'$  weiterer Elektrolytmoleküle liegt immer im Bereich zwischen  $10^2$  und  $10^3$ .

Material	$M_{\text{pu}} /$ ( $\text{g mol}^{-1}$ )	$T / \text{K}$	Fit parameter				Remarks
			$z$	$\alpha$	$K / (\text{l mol}^{-1})$	$K' / (\text{l mol}^{-1})$	
$m\text{-PB}/\text{H}_3\text{PO}_4$	308.34	25	$2.2 \pm 0.1$	$184 \pm 102$	$9.9 \pm 5.6$	$0.0539 \pm 0.0005$	non-cross-linked, Li and He et al.
$m\text{-PBI}/\text{H}_3\text{PO}_4$	308.34	25	$2.06 \pm 0.04$	$648 \pm 88$	$33 \pm 5$	$0.050 \pm 0.001$	non-cross-linked, Saghedi et al.
$m\text{-PBI}/\text{HClO}_4$	308.34	25	$2.00 \pm 0.01$	$1353 \pm 66$	$42 \pm 3$	$0.0312 \pm 0.0006$	non-cross-linked, Saghedi et al.
$m\text{-PBI}/\text{H}_2\text{SO}_4$	308.34	25	$1.40 \pm 0.04$	$1041 \pm 249$	$52 \pm 14$	$0.050 \pm 0.001$	non-cross-linked, Saghedi et al.
$\text{AB-PBI}/\text{H}_3\text{PO}_4$	116.12	25	$1.1 \pm 0.1$	$(55 \pm 115)$	$(3.4 \pm 7)$	$0.062 \pm 0.002$	non-cross-linked, Asensio et al.
Fumapem AM-55/ $\text{H}_3\text{PO}_4$	$\sim 400$	110	$2.5 \pm 0.2$	$(59 \pm 224)$	$(2.8 \pm 11)$	$0.0478 \pm 0.0005$	cross-linked, own investigations

**Tab. 13:** Fitparameter für die Systeme Fumapem AM-55/ $\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $m\text{-PBI}/\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $m\text{-PBI}/\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $m\text{-PBI}/\text{HClO}_4$  und  $\text{AB-PBI}/\text{H}_3\text{PO}_4$  (siehe Abb. 60). Nicht konvergierende Werte sind in Klammern angegeben (sehr hoher Fehler).

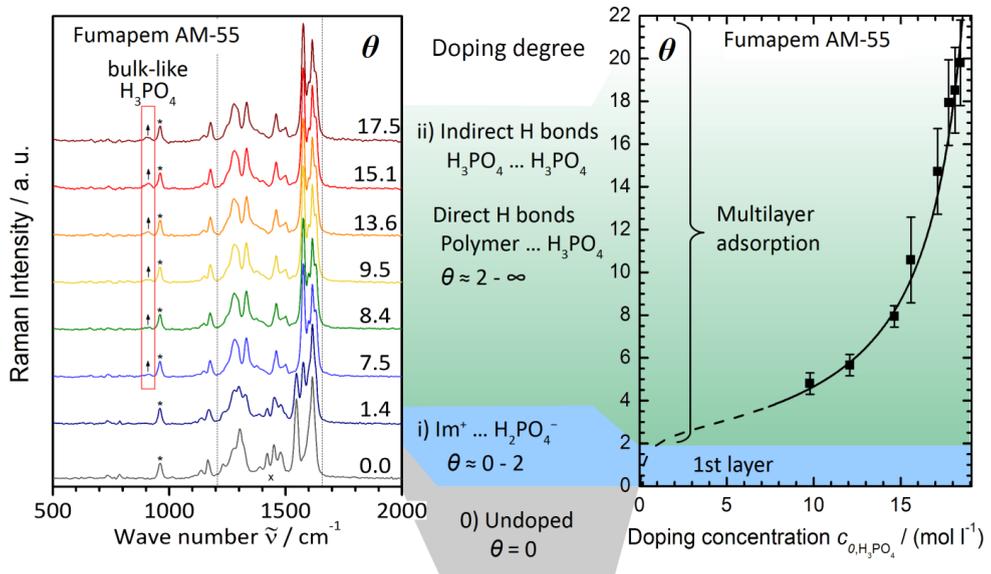
#### Untersuchungen mittels Ramanspektroskopie

Die Ramanspektren von Fumapem AM-55 mit verschiedenen  $\text{H}_3\text{PO}_4$ -Dotierungsgraden  $\theta$  und der dazugehörigen Absorptionsisotherme sind in Abb. 61 dargestellt. Die Ergebnisse aus den ramanspektroskopischen Untersuchungen lassen sich gut mit dem Verlauf der Absorptionsisothermen korrelieren. Die symmetrischen Streckschwingungen des Imidazolrings zwischen  $1550$  und  $1576 \text{ cm}^{-1}$  sind abhängig vom Protonierungsgrad. Bis zu einem Dotierungsgrad  $\theta$  von 2, entsprechend der Zahl protonierbarer Gruppen pro Wiederholungseinheit, finden hier starke Intensitätsänderungen statt. Dies entspricht dem ersten steilen Anstieg des Dotierungsgrades  $\theta$  der Adsorptionsisothermen für kleine Dotierungskonzentrationen  $c_0$ , beschrieben durch die erste Gleichgewichtskonstante  $K$ . Die gemeinsamen Streckschwingungen der OH-Gruppen der  $\text{H}_3\text{PO}_4$ -Moleküle und der  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$ -Anionen bei  $910 \text{ cm}^{-1}$  werden mit zunehmendem Dotierungsgrad  $\theta$ , d.h. dem Vorliegen von „bulkartiger“  $\text{H}_3\text{PO}_4$ , immer intensiver. Dies entspricht dem zweiten Anstieg der Absorptionsisothermen für große Dotierungskonzentrationen  $c_0$ , beschrieben durch die zweite Gleichgewichtskonstante  $K'$ .

Die Protonierung des ionogenen Polymers durch den protischen Elektrolyten ist offenbar notwendig für die darauffolgende weitere Aufnahme und das Erreichen von hohen Dotierungsgraden. Ein vergleichbares Verhalten findet man in der Literatur für die Aufnahme protonenleitender ionischer Flüssigkeiten (PIL) durch Nafion® oder sulfonierte Polyimide (SPI). Nafion® und SPI sind Polymere mit Sulfonsäuregruppen und absorbieren PILs nur sehr wenig. Nach einer Überführung der sauren Polymere mit einer organischen Base (z.B. Alkylamine) in Alkylammoniumsulfonate, können hohe Aufnahmegrade erreicht werden<sup>6</sup>. Die Kompa-

<sup>6</sup> S.Y. Lee, A. Ogawa, M. Kanno, H. Nakamoto, T. Yasuda und M. Watanabe, J. Am. Chem. Soc. 132(28), 2183 (2010) bzw. V. Di Noto, E. Negro, J.Y. Sanchez und C. Iojoiu, J. Am. Chem. Soc. 132, 2183 (2010).

tibilität mit der PIL wird stark verbessert. Die Bildung eines "Polymersalzes" mit (kationisch) geladenen Polymerketten und Gegenanionen erzeugt wahrscheinlich einen hohen osmotischen Druck gegenüber der Lösung mit dem zu absorbierenden Elektrolyten.



**Abb. 61:** Links: FT-Ramanspektren (25 °C) von Fumapem AM-55 mit verschiedenen  $\text{H}_3\text{PO}_4$ -Dotierungsgraden  $\theta$ .  $\uparrow$ : Ramanbande bei  $\sim 910 \text{ cm}^{-1}$  von "bulkartiger"  $\text{H}_3\text{PO}_4$ . x: Ramanbanden der Gerüstschwingungen des Polymers. Rechts: Adsorptionisotherme des Systems Fumapem AM-55/  $\text{H}_3\text{PO}_4$  (110 °C, siehe auch Abb. 60). Farbige Bereiche: undotiert (grau,  $\theta = 0$ ), Adsorption der ersten Lage (blau,  $\theta \leq 2$ ), multischichtartige Adsorption (grün,  $\theta > \sim 2$ )

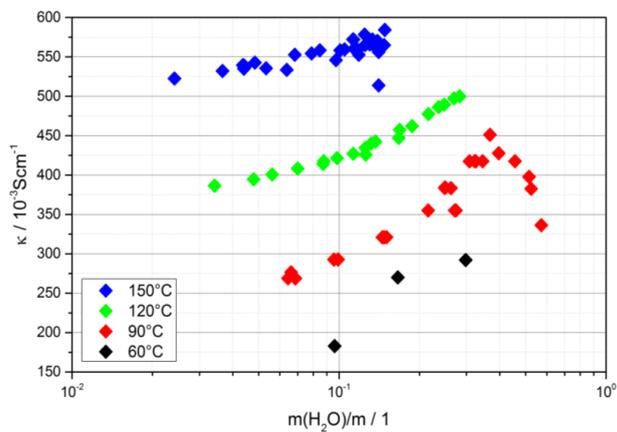
### 3.7.2.2 Ionische Leitung in Phosphorsäure oberhalb 100°C bei variierendem Wasserdampfpartialdruck

Phosphorsäure ist derzeit der Standardelektrolyt für Hochtemperaturpolymerbrennstoffzellen (HT-PEFCs). Dies hat seine Ursache in der hohen Protonenleitfähigkeit, insbesondere auch im wasserarmen Milieu, in der thermischen Stabilität, aber auch in der guten Verträglichkeit mit Polymermaterialien vom PBI-Typ. Obwohl Phosphorsäure schon seit Mitte des 19. Jahrhunderts Gegenstand vieler experimenteller Studien gewesen ist, ist das genaue Verhalten der (konzentrierten, wasserarmen) Phosphorsäure im Temperaturbereich zwischen 120°C und 250°C auch bis heute nicht in der Tiefe geklärt.

Der Hauptgrund hierfür ist das einsetzende Polykondensationsverhalten der Phosphorsäure. Die Lage der thermodynamischen Gleichgewichte wird allein von der Temperatur und dem Wasserdampfdruck bestimmt. Die Kinetik der Reaktionen ist aber oft nur langsam. Die Gleichgewichtseinstellungen können somit lange Zeiträume, d.h. mehrere Tage oder gar Wochen, benötigen. Langsame (und konzentrationsabhängige) Reaktionskinetiken können dafür sorgen, dass bei der HT-PEFC je nach vorangehendem Lastprofil, für identische Arbeitsbedingungen unterschiedliche elektrische Kennwerte ermittelt werden. In dieser Studie wurde daher die Geschwindigkeit untersucht, mit der sich Gleichgewichtszustände in Phosphorsäure bei verschiedenen, HT-PEFC-relevanten atmosphärischen Bedingungen für

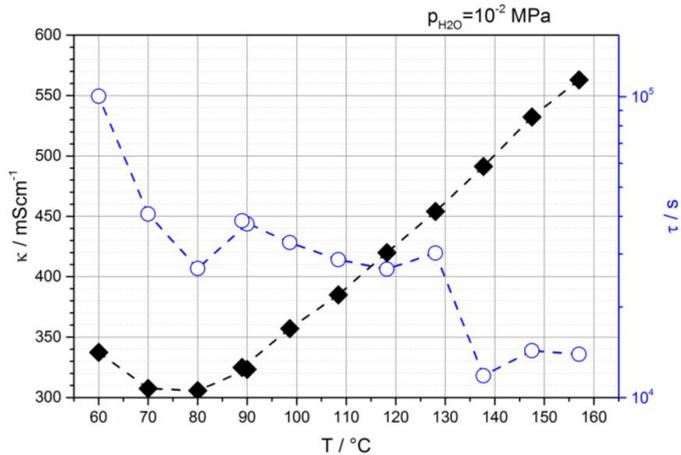
Feuchte und Temperatur, einstellen. Dazu wurde die elektrische Leitfähigkeit von Phosphorsäure in einer Quarzglaszelle zeit- und frequenz aufgelöst überwacht, während diese in einer Klimakammer konstanten Bedingungen ausgesetzt wurde.

Ein Ergebnis der Untersuchungen ist, dass eine eindeutige Zuordnung zwischen atmosphärischen Bedingungen und dem Eigenschaften der flüssigen Phase oberhalb 120°C (und <200°C) nur bedingt möglich sind, da sich höchstwahrscheinlich abhängig vom Ausgangszustand unterschiedliche Mischungsverhältnisse von Ortho-, Di-, Triphosphorsäure, etc. metastabil einstellen. Die Bildung dieser höherkondensierter Spezies findet entsprechend der thermodynamischen Gleichgewichte und der Reaktionskinetik erst oberhalb 120°C in einem für Leitfähigkeitsmessungen relevanten Maßstab merklich statt (Abb. 62). Für die Messtemperatur von 150 °C, im Bereich um 10..15 Massen% Wasser, tritt eine starke Streuung der Leitfähigkeitswerte ein, welche sich nicht durch Messunsicherheiten erklären lässt, sondern nur über unterschiedliche Anfangsbedingungen vor dem Äquilibrationsschritt. Dies ist ein Indiz für unterschiedliche metastabile Mono-/Di-/Triphosphorsäuregemische, welche erst über längere Zeiträume das für diese Temperatur und Zusammensetzung entsprechende thermodynamische Gleichgewicht erreichen (welches in diesen Versuchen nicht erreicht wurde).



**Abb. 62: Spezifische elektrische Leitfähigkeit  $\kappa$  von konzentrierter Phosphorsäure als Funktion des Restwassergehalts  $m(\text{H}_2\text{O})/m_{\text{Gesamt}}$  und der Temperatur**

Ein anderes Ergebnis ist die starke Abhängigkeit der Zeit zur Gleichgewichtseinstellung für eine bestimmte atmosphärische Bedingung. Da das durchgeführte Experiment nur eine oberflächenlimitierte Durchführung zulässt (kleines Oberflächen- zu Volumen-Verhältnis), erfolgt die Gleichgewichtseinstellung gemäß einer einfachen Exponentialfunktion und kann daher als Halbwertszeit dargestellt werden. Zur Bestimmung der Halbwertszeit wäre die Bestimmung der Wasserkonzentration wünschenswert. Diese ist jedoch nicht direkt zugänglich. Daher wurde der Umstand genutzt, dass eine Wasserkonzentrationsänderung eine Wärmeänderung der Lösung aufgrund von Mischungsenthalpie bewirkt. Für kleine Konzentrationsänderungen ist diese proportional und kann daher zur Bestimmung genutzt werden. Dabei zeigen sich, wie in Abb. 63 dargestellt, deutliche Sprünge, welche durch das Auftreten/Verschwinden verschiedener Phosphatcondensate erklärt werden kann.



**Abb. 63: Zusammenhang zwischen Gleichgewichtseinstellung (Halbwertszeit  $\tau$ ) und Temperatur  $\vartheta$  von Phosphorsäure für einen definierten Wasserpartialdruck  $p_{\text{H}_2\text{O}}$ .**

### 3.7.2.3 Ionische Flüssigkeiten als alternative Elektrolyte für die HT-PEFC

Für Hochtemperatur-Polymerbrennstoffzellen (HT-PEFC) werden derzeit als Elektrolyt protonenleitende Membranen aus phosphorsäuredotiertem Polybenzimidazol (PBI) eingesetzt. Die Anwesenheit von Phosphorsäure bzw. von  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$ -Anionen verlangsamt die platinkatalysierte Sauerstoffreduktionsreaktion (ORR) an der Kathode erheblich. Bei einer Betriebstemperatur zwischen 160 und 200 °C ist die Austauschstromdichte immer noch eine Größenordnung kleiner als bei herkömmlichen, zwischen 25 und 90 °C betriebenen Nafion-basierten Brennstoffzellen (PEFC). Aus verschiedenen experimentellen Studien geht hervor, dass Phosphorsäure bzw.  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$  die für Sauerstoffreduktion elektrochemisch aktiven Zentren auf der Platinoberfläche blockiert. Als eine Alternative zur Phosphorsäure kommen protonenleitende ionische Flüssigkeiten (PIL) in Frage, da sie nicht auf Wasser als Amphoter angewiesen sind über den schnelle Protonentransferprozesse ablaufen. Sie können daher auch bei den Betriebstemperaturen von 120 bis 200 °C eingesetzt werden, die für die Anwendung in einer HT-PEFC vorgesehen sind. Zudem zeigen ionische Flüssigkeiten typischerweise eine gute thermische Stabilität, geringe Flüchtigkeit und eine geringe Entflammbarkeit.

In dem von diesem Report abgedeckten Zeitraum wurde eine neue Klasse PILs auf Basis von Aminoalkylsulfonsäuren identifiziert. Diese Verbindungen mit einer protonierten Aminoalkylsulfonsäuren als Kation stellen eine Klasse stark azider PILs dar, die als alternative Elektrolyte in HT-PEFCs eingesetzt werden könnten. Als ein erster Kandidat wurde 2-Sulfoethylammoniumtrifluormethansulfonat (2-SeaTfO siehe Abb. 64) synthetisiert und charakterisiert:

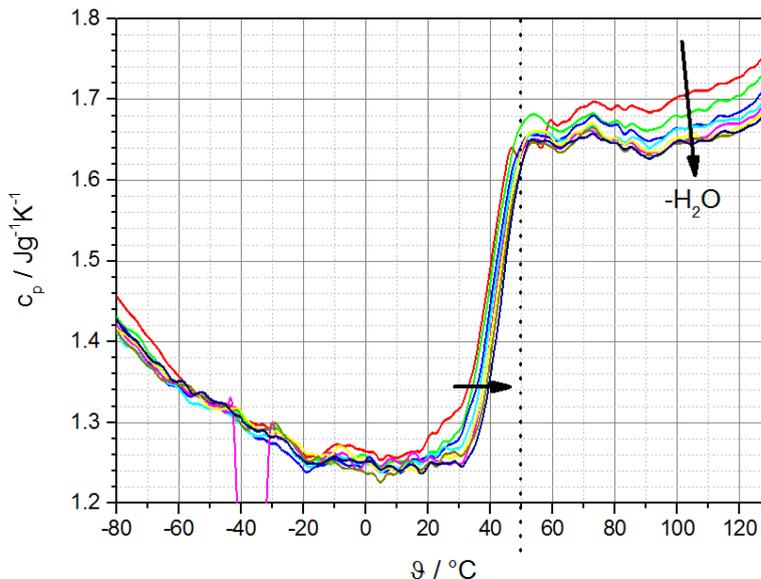


**Abb. 64: Reaktionsschema der Synthese von 2-SeaTfO**

Da bei dem Betrieb einer HT-PEFC an der Kathode Wasser gebildet wird, wurde eine Mischung aus 95 Gew% 2-SeaTfO und 5 Gew% Wasser präpariert und deren Eigenschaften mit denen von 95 Gew% Phosphorsäure verglichen. Die wichtigsten Ergebnisse der physikalisch-chemischen und elektrochemischen Charakterisierung dieser neuen ionischen Flüssigkeit lauten wie folgt: (i) 2-SeaTfO ist im praxisrelevanten Potentialbereich elektrochemisch stabil und thermisch stabil bis zu einer Temperatur von 140°C, (ii) bei Temperaturen  $\geq 90^\circ\text{C}$  werden mit 2-SeaTfO höhere Stromdichten der Sauerstoffreduktion erzielt als mit Phosphorsäure, (iii) die spezifische Leitfähigkeit von 2-SeaTfO liegt bei 130°C etwa eine Größenordnung unter derjenigen von Phosphorsäure.

### 3.7.2.4 Bestimmung der thermischen Stabilität und kalorimetrischen Eigenschaften von ionischen Flüssigkeiten

Ionische Flüssigkeiten (IL) sind Salze, die aufgrund einer niedrigen Gitterenergie einen Schmelzpunkt unterhalb  $100^\circ\text{C}$  haben. Einige protonenleitende ionische Flüssigkeiten (PIL) stellen aussichtsreiche Kandidaten als Ersatzelektrolyte für die HT-PEFC dar (2-SeaTfO). Eine Besonderheit dieser ILs ist, dass sie Protonenleitfähigkeit auch ohne die Anwesenheit von Wasser aufzeigen können. Jedoch ist der Schmelzpunkt solcher Salze nicht trivial zu bestimmen und sehr vom Restgehalt von gelöstem Wasser abhängig. Ein Beispiel ist in Abb. 65 gegeben, in welcher der Einfluss des Wassers auf die Wärmekapazität der Schmelze, aber auch auf den Schmelzpunkt, erkennbar am Wärmekapazitätssprung, deutlich wird. Diese Arbeiten werden zukünftig verstärkt und erweitert.



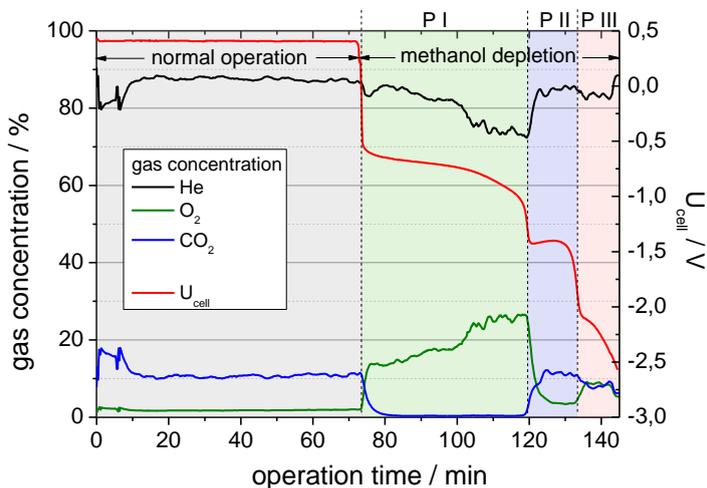
**Abb. 65:** Zusammenhang zwischen Temperatur  $\theta$  und Wärmekapazität  $c_p$  während der Trocknung einer ionischen Flüssigkeit für den HT-PEFC-Einsatz (2-SeaTfO).

### 3.7.2.5 Untersuchung kritischer Betriebszustände in der Direktmethanolbrennstoffzelle

Im Rahmen der vom BMWi geförderten Kanadisch-Deutschen Brennstoffzellenkooperation (Förderkennzeichen: 0327853A) mit dem Projekttitel: „Verbesserung der Leistung und Alte-

rungsstabilität von Direktmethanolbrennstoffzellen der kW-Klasse“ wurde eine Dissertation von A. Löhmer mit dem Titel „Untersuchung kritischer Betriebszustände in der Direktmethanol-Brennstoffzelle“ durchgeführt. Ein Schwerpunkt dieser Arbeit lag in der Untersuchung einer Methanolunterversorgung der Anode, die zu einer irreversiblen, massiven Korrosion und Degradation des Anodenkatalysators führt. Bei der vollständigen Methanolverarmung konnten mit Hilfe einer Kombination aus elektrochemischen und massenspektrometrischen Untersuchungen drei zeitlich nacheinander ablaufende Degradationsphasen identifiziert werden, die durch Ruthenium- und Kohlenstoffkorrosion charakterisiert sind (Abb. 66).

Um ein besseres Verständnis der Alterungsprozesse zu erlangen, wurden Impedanzspektren aufgenommen. Diese wurden auf Basis eines Modells, das auf der Unterscheidung von kleineren Primärporen (Poren *in* den Katalysatoragglomeraten) und größeren Sekundärporen (Poren *zwischen* den Katalysatoragglomeraten) beruht, angefitzt und analysiert. Die Impedanzanalyse in Kombination mit Porositätsmessungen ergab folgende Resultate: (i) die Widerstände der Methanoloxidation, der Protonenleitfähigkeit und des Massentransports in der Anodenkatalysatorschicht steigen nach der Methanolverarmung an und bestätigen den irreversiblen Leistungsverlust von bis zu 70% (ii) die Degradation der Primärporen verläuft besonders stark nach der dritten Phase der Methanolverarmung, was einen Degradationsprozess nahelegt, der in den Sekundärporen beginnt und in den Primärporen endet.



**Abb. 66:** Die drei Phasen der vollständigen Methanolverarmung (PI – PIII) nach Ersatz von Methanol durch Wasser in einer Direktmethanolbrennstoffzelle; Zeitlicher Verlauf der Zellspannung und der Zusammensetzung des Anodenabgases bei konstantem Stromfluss (150 mA/cm<sup>2</sup>)

### 3.7.3 Mitarbeiter und Tätigkeitfelder

Name	Tel. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
PD. Dr. C. Korte	9035 <a href="mailto:c.korte@fz-juelich.de">c.korte@fz-juelich.de</a>	Leitung der Abteilung Physikochemisches Brennstoffzellenlabor

T. Bergholz	1891 <a href="mailto:t.bergholz@fz-juelich.de">t.bergholz@fz-juelich.de</a>	Systembewertung: Li-Akkumulatoren in verschiedenen Anwendungsfeldern, Alterungsprozesse
J. Keppner	1891 <a href="mailto:j.keppner@fz-juelich.de">j.keppner@fz-juelich.de</a>	Grundlagenuntersuchungen zu Ionenleitung und Diffusion entlang Phasengrenzen in SOFC-Materialien
Fr. K. Klafki	1895 <a href="mailto:k.klafki@fz-juelich.de">k.klafki@fz-juelich.de</a>	Konventionelle Probenpräparation
Dr. S. Kuhri	1891 <a href="mailto:s.kuhri@fz-juelich.de">s.kuhri@fz-juelich.de</a>	Spektroskopische Untersuchungen: Raman/IR, bildgebende Analysemethoden: REM / EDX, CLSM
Fr. T. Mandt	1891 <a href="mailto:t.mandt@fz-juelich.de">t.mandt@fz-juelich.de</a>	Degradationsprozesse in der SOFC, Korngrenzdiffusion von Sr in CGO-Barrierschichten
Dr. J. Wackerl	6228 <a href="mailto:j.wackerl@fz-juelich.de">j.wackerl@fz-juelich.de</a>	Physikalische Eigenschaften: DSC, TGA, mechanische Eigenschaften, Leitfähigkeit
K. Wedlich	9763 <a href="mailto:k.wedlich@fz-juelich.de">k.wedlich@fz-juelich.de</a>	Elektrische Charakterisierung von Li-Akkumulatoren, Alterungsprozesse
Dr. K. Wippermann	2572 <a href="mailto:k.wippermann@fz-juelich.de">k.wippermann@fz-juelich.de</a>	Alterungsmechanismen in der DMFC, elektrochemische Untersuchungen, ortsaufgelöste Messungen

### 3.7.4 Wichtige Veröffentlichungen und Patente

#### *Wichtige Veröffentlichungen*

Schröder, A.; Wippermann, K.; Arlt, T.; Sanders, T.; Baumhöfer, T.; Markötter, T.; Mergel, J.; Lehnert, W.; Stolten, D.; Manke, I.; Banhart, J.

#### **Water Evolution in Direct Methanol Fuel Cell Cathodes Studied by Synchrotron X-Ray Radiography**

*Fuel Cells* 13-3 (2013) 371–379

Wippermann, K.; Löhmer, A.; Everwand, A.; Müller, M.; Korte, C.; Stolten, D.

#### **Study of Complete Methanol Depletion in Direct Methanol Fuel Cells**

*Journal of the Electrochemical Society* 161-4 (2014) F525-F534

Korte, C.; Conti, F.; Wackerl, J.; Dams, P.; Majerus, A.; Lehnert, W.

#### **Uptake of protic electrolytes by polybenzimidazole-type polymers: absorption isotherms and electrolyte/polymer interactions**

*Journal of Applied Electrochemistry*, online seit Mai 2015

Korte, C.; Keppner, J.; Peters, A.; Schichtel, N.; Aydin, H.; Janek, J.

#### **Coherency strain and its effect on ionic conductivity and diffusion in solid electrolytes – an improved model for nanocrystalline thin films and a review of experimental data**

*Physical Chemistry Chemical Physics*, 16 (2014) 24575-24591

Bergholz, T.; Nunez, T.; Wackerl, J.; Korte, C.; Stolten, D.

#### **Magnetography: A novel Characterization Tool for Li-Ion-Batteries**

2013 MRS Spring Meeting & Exhibit, 2013 2013, pp. 1544, DOI: 10.1557/opl.2013.724

Mandt, T.; Korte, C.; Breuer, U.; Weber, A.; Ziegner, M.; Uhlenbruck, S.; Menzler, N.; Stolten, D.

**Sr-Diffusion in Ce<sub>0.8</sub>Gd<sub>0.2</sub>O<sub>2</sub>-d Layers for SOFC Application**

2013 MRS Spring Meeting & Exhibit, 1542 2013, pp. mrss13-1542-g11-05, DOI: 10.1557/opl.2013.629

*Wichtige Patente*

Patentanmeldung:

<b>Federführender Erfinder</b>	<b>PT</b>	<b>Bezeichnung</b>
J. Wackerl	1.2583	Vorrichtung und Verfahren zur Qualitativen Bestimmung des Betriebszustandes eines Prüfobjekts
K. Wippermann	1.2658	Elektrolytssystem für eine Brennstoffzelle
T. Bergholz	1.2660	Elektrolytssystem für den Einsatz in elektrochemischen Bauteilen

### 3.8 Qualitätssicherung

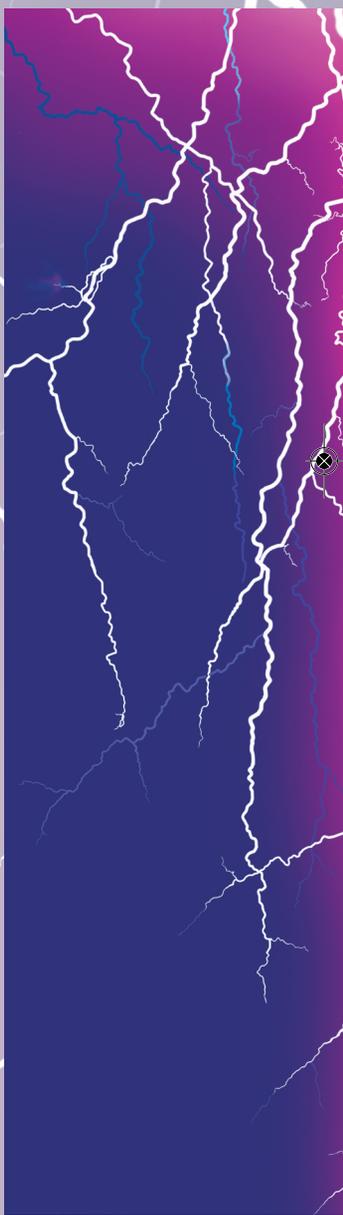
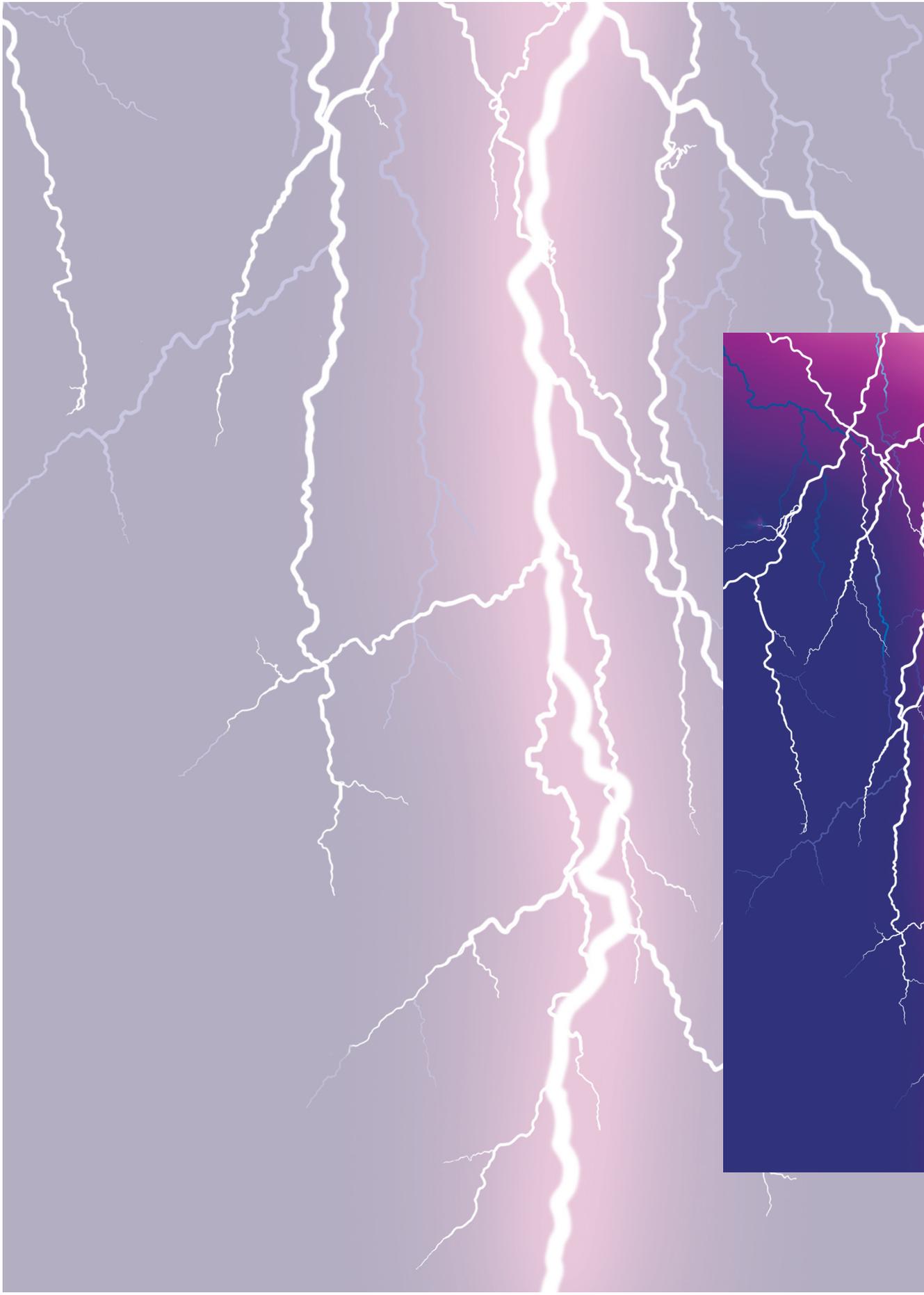
Viele Aspekte machen die Qualität der Arbeit aus: Diese betreffen unter anderem den sicheren Betrieb von Testanlagen, die Dokumentation von Arbeitsergebnissen, die Organisation der Zusammenarbeit, die Reproduzierbarkeit von Experimenten, die Prüfung von eingehenden Materialien und noch vieles mehr. Zu den zentralen Anforderungen an ein Qualitätsmanagementsystem gehören Maßnahmen zur Lenkung von Dokumenten und Qualitätsaufzeichnungen. Die DIN EN ISO 9001 fordert dies und in der Verfahrensanweisung VA-RHLQ-01 des Forschungszentrums Jülich werden detailliertere Vorgaben zur „Festlegung der internen Zuständigkeiten für die Erstellung, Änderung, Prüfung, Freigabe, Verteilung und Archivierung von Dokumenten und Aufzeichnungen gemacht. Um diese Anforderungen zu erfüllen, wurde zunächst für den Bereich Direktmethanol-Brennstoffzelle, das von der zentralen Abteilung für Qualitätsmanagement des Forschungszentrums zur Verfügung gestellte Informationsmanagementsystem „ConSense“ eingeführt. Ziel war es, ausgehend von einem schon vorhandenen, gut ausgebauten QM-System Erfahrungen mit der Software „ConSense“ zu sammeln, um zu entscheiden, ob der Aufbau weiterer QM-Teilbereiche mit diesem System vereinfacht möglich ist.

Mit „ConSense“ werden alle Anforderungen der DIN EN ISO 9001 zum Dokumentenmanagement erfüllt. Es wurden für den Bereich der DMFC die benötigten Standardarbeitsanweisungen (Standard-Operation-Procedures, SOPs) auf Grundlage der Vorlagen erstellt bzw. vorhandene angepasst und in das System eingepflegt. Die Verwendung des QM-Software stellt nun sicher, dass Dokumente ausschließlich von autorisierten Personen erstellt, geprüft und freigegeben werden. Darüber hinaus organisiert das System den Informationsfluss, so dass allen Prozessteilnehmern die aktuellste Version zur Verfügung steht. Alte Versionen werden zentral archiviert und vorgenommene Änderungen dokumentiert. Des Weiteren kann auf Dokumente zugegriffen werden, die für das gesamte Forschungszentrum Jülich gültig sind. Die Software wurde sukzessiv in der Abteilung eingeführt und erzeugt ein hohes Maß an Transparenz. Die Software wird für die Dokumentationsverwaltung qualitätssichernder und sicherheitsrelevanter Dokumente nun in anderen Teilbereichen ebenfalls eingeführt und verwendet. Dazu zählt insbesondere der Bereich „Elektrolyse“. Ein Schwerpunkt wird dabei sein, alle Prozesse, die für die Produktherstellung und Qualitätssicherung relevant sind, nun mit und in „ConSense“ darzustellen. Dies führt zu eindeutigen und transparenten Schnittstellen, die zum einen auf bekannte Erfahrungen zurückgreifen, zum anderen die neuen Herausforderungen abbilden. Ziel ist es, den Aufbau qualitätssichernder Massnahmen im Bereich der Verfahrenstechnik Elektrolyse noch umfangreicher und enger an die Standards für Qualitätssicherung anzupassen.

#### 3.8.1 Mitarbeiter und Tätigkeitsfelder

Name	Telefon-Nr. (02461-61-) e-mail Adresse	Tätigkeitsfeld
Fr. G.Günther	2378 <a href="mailto:d.guether@fz-juelich.de">d.guether@fz-juelich.de</a>	Dokumentation Arbeitsabläufe, Qualitätsmanagement







# 4

## Highlights

### Besondere Ergebnisse

- Diffusion und Ionenleitung entlang keramischer Grenzflächen
- Mobile Brenngaserzeugungssysteme mit Mitteldestillaten für HT-PEFCs
- Wasserverteilung in der HT-PEFC
- Effizienzaspekte der Hochdruck-Wasserelektrolyse
- Markteinführung der Pkw-Brennstoffzelle mit erneuerbarem Wasserstoff



## 4.1 Diffusion und Ionenleitung entlang keramischer Grenzflächen

Ionenleitung und Diffusion entlang von inneren Grenzflächen keramischer Festelektrolyte ist bis heute wenig verstanden. Im Vergleich zum Volumentransport liegen sehr viel weniger experimentelle Studien vor. Transportprozesse entlang von Korn- und Phasengrenzen spielen eine große Rolle bei langsam ablaufenden Degradationsprozessen in SOFCs, High-k-Dielektrika und keramische Schutzschichten. Der Einfluss von Transportprozessen entlang von Grenzflächen nimmt aufgrund der vergleichsweise niedrigen Aktivierungsenergie bei niedrigen Betriebstemperaturen zu. Das z.Z. bekannteste Modell zur Beschreibung beschleunigter Transportprozesse in Grenzflächen basiert auf der Ausbildung von Raumladungszonen. Der Einfluss möglicher elastischer Spannungen in der Grenzfläche, von Fehlpassungsversetzungen und verringerten Packungsdichten wird nicht berücksichtigt. In den technisch wichtigen keramischen Materialien, die als Festelektrolyte oder gemischte Leiter in Brennstoffzellen, Sensoren und Batterien eingesetzt werden, sind Raumladungsmodelle aufgrund der durch Dotierung vorliegenden hohen Ladungsträgerkonzentrationen nicht mehr anwendbar.

In dem von diesem Report abgedeckten Zeitraum ist zum einen die  $O^{2-}$ -Leitfähigkeit von  $Er_2O_3/YSZ$ ,  $Dy_2O_3/YSZ$  und  $Sc_2O_3/YSZ$ -Multischichtsystemem parallel zu den Phasengrenzen als Funktion der Lagendicke  $d$  gemessen worden. Zum anderen sind röntgenographische Spannungs- und Texturmessungen an  $Y_2O_3/YSZ$ ,  $Er_2O_3/YSZ$ ,  $Dy_2O_3/YSZ$  und  $Sc_2O_3/YSZ$ -Multischichtsystemem durchgeführt worden. Alle Multischichten sind mittels gepulster Laserdeposition (PLD) auf (0001)  $Al_2O_3$ -Substraten in Kooperation mit dem PBI-9/FZJ und dem Physikalisch-Chemischen Institut (PCI) der JLU Gießen präpariert worden.

### 4.1.1 Röntgenographische Spannungsmessung

Die röntgenographischen Spannungsmessungen haben die verfügbare Datenbasis für grenzflächendominierte Systeme mit verschiedenen Gitterfehlpassungen/Grenzflächenspannungen erweitert. Die Ergebnisse lassen sich mit einem einfachen Modell beschreiben, das exponentiell abfallende Dehnungs-/Kompressionsfelder annimmt, die von den durch die Gitterfehlpassung verspannten Grenzflächen ausgehen.

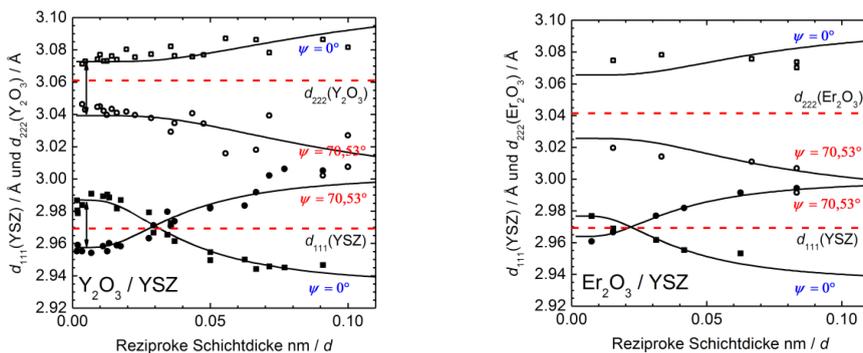


Abb. 67: Netzebenenabstände  $d_{111}$  bzw.  $d_{222}$  von YSZ und  $SE_2O_3$  in YSZ/ $SE_2O_3$ -Multischichten ( $SE = Y, Er$ ) als Funktion der reziproken Schichtdicke  $1/d$  für Gitterebenen  $\blacksquare, \square$  parallel ( $0^\circ$ ) und  $\bullet, \circ$  im Winkel von  $70,53^\circ$  zur Phasengrenze (präpariert im PGI-9/FZJ). Durchgezogene Kurven: Fit nach Gl. (1).

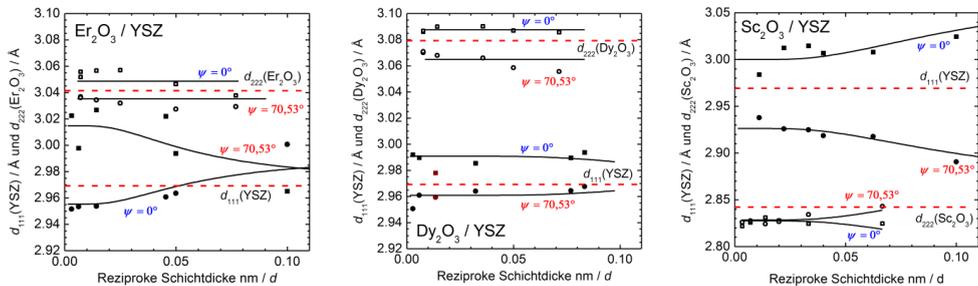
Für die röntgenographisch ermittelten (mittleren) Netzebenenabstände senkrecht  $d_{hkl,\perp}$  und parallel  $d_{hkl,\parallel}$  zur Substratebene erhält man entsprechend dem Modellannahmen als Funktion der Dicke  $d$  der Einzelschichten:

$$d_{hkl,\perp} \approx d_{hkl} \left( 1 - \frac{2\nu}{1-\nu} \varepsilon_0 \frac{1}{\cosh d / 2\delta_0} \right) \quad \text{und} \quad d_{hkl,\parallel} \approx d_{hkl} \left( 1 + \varepsilon_0 \frac{1}{\cosh d / 2\delta_0} \right) \quad (1)$$

$$\delta_0 = \frac{1}{4} \sqrt{\frac{2(1-\nu)}{3(1+\nu)}} \cdot l$$

$\nu$  : Poissonverhältnis  
 $l$  : mittlerer Durchmesser der Schichtkristallite  
 $d_{hkl}$  : Netzebenenabstand im unverspannten Zustand  
 $\varepsilon_0$  : fehlpassungsbedingte Gitterdehnung/-kompression

In Multischichten/Schichtsystemen mit säulenförmigen nanoskaligen Kristalliten sind fehlpassungsbedingte Verspannungen in grenzflächennahen Bereichen lokalisiert. Durch Anpassung von Gl. (1) an die Messdaten erhält man für die mittlere Ausdehnung  $\delta_0$  der Spannungsfelder in den untersuchten Multischichten einen Wert um 10 nm (Abb. 67 und Abb. 68).



**Abb. 68:** Netzebenenabstände  $d_{111}$  bzw.  $d_{222}$  von YSZ und  $\text{SE}_2\text{O}_3$  in YSZ/ $\text{SE}_2\text{O}_3$ -Multischichten (SE = Sc, Er, Dy) als Funktion der reziproken Schichtdicke  $1/d$  für Gitterebenen  $\blacksquare, \square$  parallel ( $0^\circ$ ) und  $\bullet, \circ$  im Winkel von  $70,53^\circ$  zur Phasengrenze (präpariert im PCI/JLU). Durchgezogene Kurven: Fit nach Gl. (1).

#### 4.1.2 Ionische Leitfähigkeit und Textur

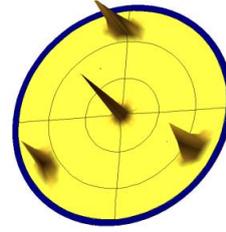
Die gemessene  $\text{O}^{2-}$ -Leitfähigkeit parallel zu den YSZ-Schichten zeigt eine sehr starke Abhängigkeit von den Präparationsbedingungen. Als weitere wichtige Einflussparameter haben sich die Textur (Korngrenzen) und die Kristallitgröße der Schichten herausgestellt. Deren Einfluss ist in der gleichen Größenordnung wie der Einfluss der zunächst im Mittelpunkt stehenden lokalen Grenzflächenspannungen.

Die röntgenographischen Texturuntersuchungen (Polfiguren) haben gezeigt, dass die bei hoher Substrattemperatur im PGI-9/FZJ hergestellten YSZ/ $\text{Y}_2\text{O}_3$ - und YSZ/ $\text{Er}_2\text{O}_3$ -Multischichten nur eine einzige Kristallitorientierung aufweisen (Abb. 69):

$$i) \quad (111) \text{ YSZ} \parallel (111) \text{ SE}_2\text{O}_3 \parallel (0001) \text{ Al}_2\text{O}_3 \quad [1 \bar{2} 1] \text{ YSZ} \parallel [1 \bar{2} 1] \text{ SE}_2\text{O}_3 \parallel [\bar{1} 10] \text{ Al}_2\text{O}_3 \quad (2)$$



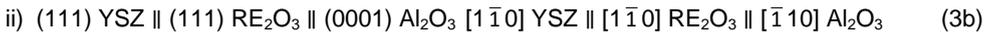
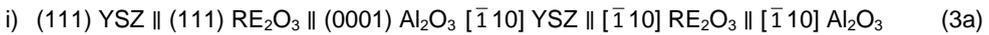
a) YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
 $d_{\text{YSZ}} = 135 \text{ nm}$   
 $n = 5$



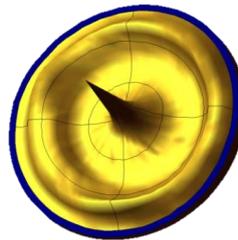
b) YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
 $d_{\text{YSZ}} = 12 \text{ nm}$   
 $n = 50$

Abb. 69: Texturanalyse von YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Multischichten auf (0001) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Substraten, hergestellt bei hoher Substrattemperatur, niedrigen O<sub>2</sub>-Druck und großer Wachstumsgeschwindigkeit (PGI-9/FZJ). (111) YSZ Polfigur a) einer Multischicht mit 135 nm und b) mit 12 nm dicken YSZ-Schichten (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Schicht zwischen erster Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Schicht und Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Substrat).

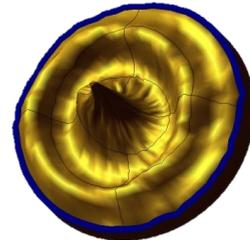
Im Gegensatz dazu zeigen die bei niedriger Substrattemperatur im PCI/JLU hergestellten YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-, YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten zwei azimuthal verdrehte Kristallorientierungen bzw. Übergänge zu Fasertexturen (Abb. 70):



a) YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
 $d_{\text{YSZ}} = 90 \text{ nm}$   
 $n = 1$



b) YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
 $d_{\text{YSZ}} = 320 \text{ nm}$   
 $n = 1$



c) YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
 $d_{\text{YSZ}} = 12 \text{ nm}$   
 $n = 32$

Abb. 70: Texturanalyse von SE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YSZ-Multischichten auf (0001) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Substraten, hergestellt bei niedriger Substrattemperatur, hohem O<sub>2</sub>-Druck und kleiner Wachstumsgeschwindigkeit (PCI/JLU). (200) YSZ Polfigur a) einer Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YSZ-Multischicht mit 90 nm, (111) YSZ Polfigur b) einer Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YSZ-Multischicht mit 125 nm und b) mit 12 nm dicken YSZ-Schichten.

Die hochtexturierten YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten mit nur einer Orientierung der Schichtkristallite weisen stark anisotrope ionische Leitfähigkeiten parallel zu den YSZ-Schichten auf (Abb. 71). Die O<sup>2-</sup>-Leitfähigkeit parallel bzw. senkrecht zur Substratrichtung [100] Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

unterscheidet sich um bis zu einer Größenordnung. In den bei niedriger Substrattemperatur hergestellten YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-, YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten mit zwei azimuthal verdrehten Orientierungen bzw. mit Übergängen zu Fasertexturen sind durch die geometrische Mittelung keine anisotropen Effekte mehr feststellbar (Abb. 72).

In Fall der YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten mit dilativ verspannten YSZ-Schichten findet man eine Leitfähigkeitserhöhung als Funktion der reziproken Schichtdicke 1/d (der Grenzflächendichte). Im Falle der YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten mit kompressiv verspannten YSZ-Schichten findet man eine Leitfähigkeitserniedrigung.

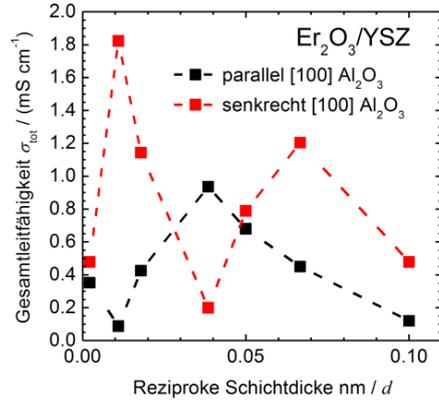


Abb. 71: O<sup>2-</sup>-Leitfähigkeit  $\sigma_{\text{tot}}$  der YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten als Funktion der reziproken Schichtdicke 1/d (Schichten präpariert im PGI-9/JLU, XRD-Spannungsanalysen in Abb. 67, Texturanalysen in Abb. 69)

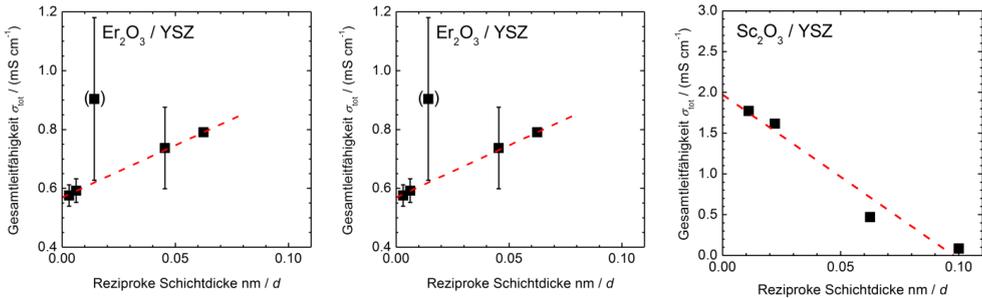


Abb. 72: O<sup>2-</sup>-Leitfähigkeit  $\sigma_{\text{tot}}$  der YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten als Funktion der reziproken Schichtdicke 1/d (Schichten präpariert im PCI/JLU, XRD-Spannungsanalysen in Abb. 68, Texturanalysen in Abb. 70).

Dieses Verhalten ist im Einklang mit dem bereits erwähnten einfachen Modell der exponentiell von den Grenzflächen abfallenden Spannungsfelder und der aus der Theorie des Aktivierten Komplexes folgende Druckabhängigkeit der freien Aktivierungsenthalpie:

$$\frac{\sigma_{\text{tot}}(d)}{\sigma_{\text{vol}}} = \frac{2}{d} \int_0^{d/2} \exp\left(\alpha c_0 \frac{\cosh z / 2\delta_0}{\cosh d / 2\delta_0}\right) dz \quad (4)$$

Durch Anpassung des Modells an die schichtdickenabhängigen Leitfähigkeitsverläufe findet man ähnliche Werte für die mittlere Ausdehnung  $\delta_0$  der elastischen Spannungsfelder wie aus den röntgenographischen Untersuchungen.

In Fall der bei niedriger Substrattemperatur hergestellten YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten findet man für die schichtdickenabhängigen Leitfähigkeitsverlauf keinen eindeutigen Trend.

Entsprechend der vorliegenden dilativen Verspannung der YSZ-Schichten sollte es hier, analog den YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten, zu einer Leitfähigkeitszunahme als Funktion der reziproken Schichtdicken kommen. In den röntgenographischen Spannungsuntersuchungen (Abb. 68) lassen sich in den YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten – im Gegensatz zu den YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und YSZ/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten – aber keine eindeutigen Variationen der Gitterparameter durch Spannungsfelder nachweisen. Neben einer Fasertextur zeigen die den YSZ/Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten im Vergleich zu den YSZ/Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Multischichten auch eine stärkere Fehlorientierung (Verkipfung) der (111) Ebenen gegenüber dem Substrat (Abb. 70).

Diese Verkipfungen könnten zu einem verstärkten Abbau der Gitterfehlpassung und damit der Grenzflächenverspannung führen. Die in diesen Multischichtproben kaum ausgeprägten Grenzflächenspannungen haben dann nur wenig Einfluss auf den ionischen Grenzflächen-transport.

## 4.2 Mobile Brenngaserzeugungssysteme mit Mitteldestillaten für HT-PEFCs

### 4.2.1 Entwicklung eines Gesamtsystems

Für die Bordstromversorgung wird die HT-PEFC-Technik in Kombination mit einer autothermen Reformierung bevorzugt. Es wurde ein integriertes HT-PEFC aufgebaut, welches neben zwei 2,5 kW<sub>e</sub> HT-PEFC-Stacks eine Brenngaserzeugungseinheit bestehend aus einem autothermen Reformier, einem Wasser-Gas-Shift Reaktor und einem Katalytbrenner beinhaltet. Es wurden Versuche mit GTL-Kerosin (C<sub>10</sub>H<sub>22</sub>), BTL diesel (C<sub>17</sub>H<sub>36</sub>) und Premium Diesel (C<sub>19</sub>H<sub>38</sub>) durchgeführt. Im Hinblick auf einen guten Wirkungsgrad wurden die Zielwerte für die Wasserstoffnutzung auf 83 % und für die mittlere flächenspezifische Stromstärke auf 500 mA/cm<sup>2</sup> festgelegt. Es wurde ein Massenstrom an 1670 g/h GTL-Kerosin benötigt, um 5 kW<sub>e</sub> zu erzeugen. Dies entspricht einem Wirkungsgrad von 24 %. Höhere Wirkungsgrade von 29,4% sind bei einer 50%igen Teillast erreichbar. Die anvisierte Leistung von 5 kW<sub>e</sub> wurde für alle drei Kraftstoffe erreicht:

- GTL-Kerosin: 4,95 kW<sub>e</sub> bei 450 mA/cm<sup>2</sup> und 492 mV mittlerer Zellspannung und 77,1 % Wasserstoffnutzung.
- BTL-Diesel: 5 kW<sub>e</sub> bei 450 mA/cm<sup>2</sup> und 496 mV mittlerer Zellspannung und 74% Wasserstoffnutzung.
- Premium Diesel: 5,07 kW<sub>e</sub> bei 500 mA/cm<sup>2</sup> und 55,5% Wasserstoffnutzung.

Es wurden auch Nutzungsgrade von 85,6% im GTL-Kerosin-Betrieb erreicht. Eine kontinuierliche Alterung war nicht erkennbar. Nach 250 Betriebsstunden fiel die mittlere Zellspannung auf einem Betriebspunkt mittlerer Stromstärke von 200 mA/cm<sup>2</sup> von anfänglich 610 mV (0-72 h) auf 577 mV. In allen Betriebspunkten konnten die Auslegungsbedingungen des Wärmetauscherkonzepts erfüllt werden, es war keine äußere Wärmezufuhr notwendig.

Die Kernkomponenten Reformier und HT-PEFC-Stack erwiesen sich während der Testreihen als robust und stabil. Bei der Untersuchungen mit Premium Diesel (ARAL Ultimate Diesel) zeigten sich jedoch Degradationserscheinungen am Wasser-Gas-Shift Reaktor. Zu Beginn konnte der CO-Gehalt von 10,2% (Vol.) im Produktgas des ATR auf 0,8% (Vol.) reduziert werden. Auf Grund der exothermen Reaktionswärme beträgt der Temperaturanstieg in der Hochtemperatur- und in der Niedertemperatur-Shift-Stufe in Summe 78 K, 40 K (HTS) und 38 K (LTS). Aufgrund einer Fehlfunktion in der Peripherie des Teststands trat eine Degradation auf, die sich zum einen durch eine verminderten Temperaturanstieg von 53 K und eine erhöhte CO-Konzentration von 4% (Vol.) bemerkbar machte. Am dieser Stelle sei drauf hingewiesen, dass die Qualität des ATR-Produktgases konstant sehr gut war; Benzol trat mit Werten von ca. 1 ppmv in Erscheinung – oberhalb der Nachweisgrenze.

Zum Betrieb einer Brennstoffzellen-APU muss die Anfahrstrategie erarbeitet werden. Auf Grund des derzeitigen Designs der HT-PEFC-Stacks beträgt die Startzeit ca. 37,5 min. Die Brenngaserzeugung ist schon nach 16,5 min betriebsbereit. Eine Optimierung der Brennstoffzelle führt in Verbindung mit einer Modifikation des Startbrenners im Bereich von 10 – 12 min. Die Emissionen des getesteten Startbrenners liegen zwischen 60 mg/m<sup>3</sup> (3 kW Teillast) und 229 g/m<sup>3</sup> (20 kW, Vollast für 10 s). Der Brenner benötigt 2 min bis er seine Designtemperatur von 800 °C erreicht.

Informationen über die Entwicklung und Charakterisierung eines integrierten HT-PEFC Systems mit der autothermen Reformierung von Diesel und Kerosin in der 5 kW<sub>e</sub>-Leistungsklasse wurden ausführlich in Applied Energy<sup>7</sup> veröffentlicht. Die Betriebserfahrung mit diesem System wurde weiterhin in ECS Transactions<sup>8</sup> diskutiert. Die Anfahrstrategie dieses Systems mit Hilfe eines kommerziellen Startbrenners wurde in<sup>9</sup> entwickelt.

#### 4.2.2 Entwicklung von Brenngaserzeugungssystemen

Bei der Systementwicklung wurden in den letzten Jahren im Rahmen des ADELHEID-Projektes erhebliche Fortschritte beim Packaging erzielt. In Package 1, in welches auch der Reaktortyp AH1 integriert wurde, sind die Komponenten weiträumig angeordnet. Es können auch Reaktoren eingebaut werden, die nicht speziell auf das Package abgestimmt wurden. Die Leistungsklasse des Packages ist aber auf 12 – 18 kW<sub>th</sub> limitiert. Die Packageversionen P2 und P3 wurden für das EFFESYS-Projekt entwickelt, konstruiert und aufgebaut. Die Leistungsklasse beträgt für alle Komponenten durchgängig 28 kW<sub>th</sub>. Die Anordnung der Komponenten im Package ist eng, um eine hohe Leistungsdichte zu erzielen. Ein Austausch von Komponenten im Package ist zwar möglich, ist aber mit erheblichem Aufwand verbunden. In Package AH2 wurde im nächsten Schritt Komponenten miteinander verschweißt, so dass diese drucktechnisch als eine Komponente gelten. Ein Austausch ist nicht möglich. Schweißtechnische Verbindungen wurden zum Beispiel zwischen dem Reformier und dem Shiftreaktor realisiert.

Der Reaktor vom Typ AH1 wurde vom Presswerk Struthütten gefertigt und in das bestehende Package 1/ AH1 für Betriebstests integriert. Das Package AH1 enthält neben dem Reformier vom Typ AH1 einen Shiftreaktor (WGS 3) und einen Katalytbrenner (CAB 2.3). Nach abgeschlossener Integration in das Testmodul B wurde mit der experimentellen Erprobung begonnen.

In den ersten Versuchen wurde das System mit BTL-Diesel (NExBTL-Diesel) der Fa. Neste Oil betrieben. Abb. 73 zeigt Ergebnisse aus einem Versuch, bei dem das Package AH 1 für ca. 22 h in Betrieb war. Der Reformier wurde mit einem molaren H<sub>2</sub>O/C-Verhältnis von 1,9 und einem molaren O<sub>2</sub>/C-Verhältnis von 0,47 betrieben. Die Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Shiftreaktor wurden in Abb. 73 dargestellt. Diese Analyse wurde mittels eines Massenspektrometers durchgeführt. Am Anfang des Versuchs (50-140 min) wurde das System mit einem Dieseldurchfluss von 1013 g/h betrieben. In diesem Versuchsteil wurde zur Kühlung zwischen den Shiftstufen 600 g/h Wasser zugegeben. Die CO Konzentration nach dem Shiftreaktor konnte dabei auf 1,0 Vol.-% reduziert werden. Diese Betriebsphase konnte jedoch nicht fortgeführt werden, weil die Wasserpumpe nicht stabil lief. Aus diesem Grund wurde die Wassermenge auf 1000 g/h erhöht, um einen stabilen Betrieb der Pumpe über die Nacht zu gewährleisten. Als direkter Konsequenz dieser Maßnahme sank die Eintrittstemperatur in die NTS Stufe von ca.

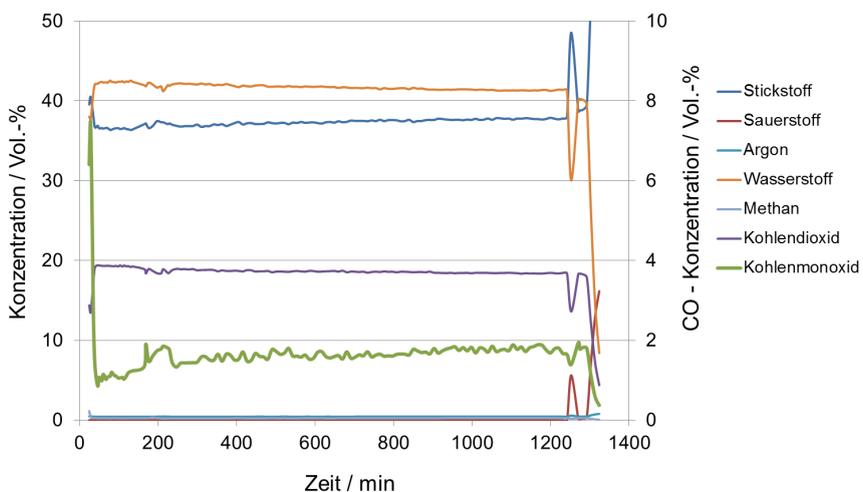
---

<sup>7</sup> Samsun, R. C., Pasel, J., Janßen, H., Lehnert, W., Peters, R. and Stolten, D., "Design and test of a 5 kW<sub>e</sub> high-temperature polymer electrolyte fuel cell system operated with diesel and kerosene," Applied Energy, vol. 114, pp. 238-249, 2014.

<sup>8</sup> Samsun, R. C., Pasel, J., Meißner, J., Janßen, H., Lehnert, W. and Peters, R., "Operational Experience from a 5 kW<sub>e</sub> HT-PEFC System with Reforming of Diesel and Kerosene," ECS Transactions, vol. 58, pp. 165-174, 2013.

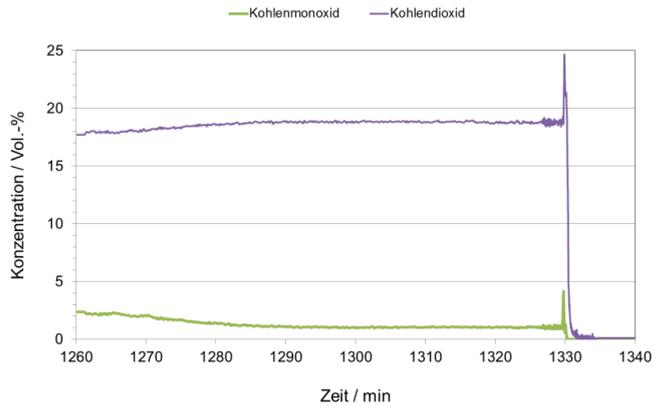
<sup>9</sup> Wiethage, C., Samsun, R. C., Peters, R. and Stolten, D., "Start-Up of HT-PEFC Systems Operating with Diesel and Kerosene for APU Applications," Fuel Cells, vol. 14, pp. 266-276, 2014.

300 °C auf ca. 230 °C. Dieses niedrige Temperaturniveau führte zu einer Erhöhung der CO Konzentration im Produktgas aufgrund einer schlechteren Reaktionskinetik. Als Gegenmaßnahme wurde der Massenstrom an Diesel auf 1350 g/h erhöht. Dieser Wert entspricht dem Auslegungspunkt des Packages AH 1. Die Wassermenge für die NTS-Stufe wurde dabei konstant gehalten. Als Ergebnis stieg die Eintrittstemperatur in die NTS-Stufe nur auf 264 °C. Diese Temperatur ist weiterhin niedriger als die Auslegungstemperatur von 300 °C. Der Betrieb des Shiftreaktors an seinem Auslegungspunkt (GHSV: 30,000 h<sup>-1</sup>) bei dieser Temperatur führte zu einer CO-Konzentration von ca. 1,8 Vol.-% am Austritt des Reaktors. Nach einem stabilen Betrieb des Systems über die Nacht (ca. 18 h) wurde die Menge an Quenchwasser in 50 g/h-Schritten auf 700 g/h reduziert. In dieser Phase konnten sinkende CO- und steigende CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>-Konzentrationen (siehe Abb. 73, ab 1260 min) beobachtet werden. Bei einer Wassermenge von 700 g/h stieg die Eintrittstemperatur in die NTS-Stufe auf den Auslegungswert von 300 °C.



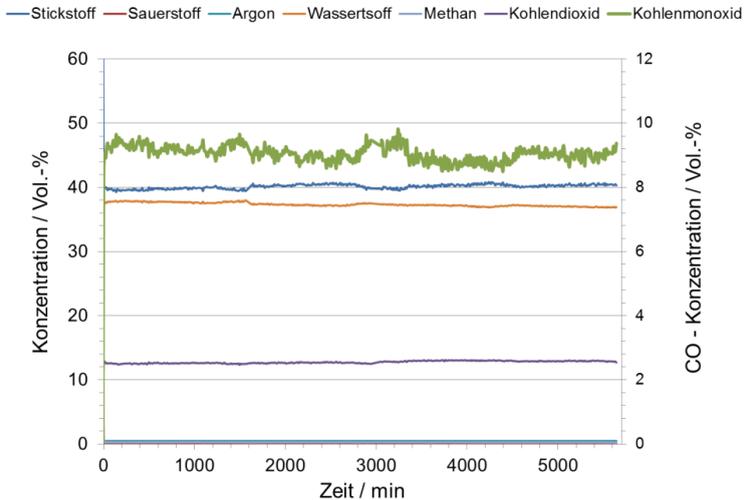
**Abb. 73: Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Shiftreaktor beim Betrieb von Package AH 1 mit BTL-Diesel. Analyse mittels Massenspektrometrie**

In dieser Periode wurden die Konzentrationen von CO und CO<sub>2</sub> nach dem Shiftreaktor mittels FTIR-Spektroskopie mit einer Frequenz von 1 s analysiert. Damit konnte der Einfluss der Wassermenge bzw. die Eintrittstemperatur in die NTS-Stufe auf den CO-Umsatz im Shiftreaktor dynamisch untersucht werden. Abb. 74 zeigt wie die CO-Konzentration in der Periode zwischen 1260 min und 1290 min kontinuierlich gesunken ist und nach dem Erreichen einer Wassermenge von 700 g/h bis Ende des Versuchs bei 1,0 Vol.-% im trockenen Produktgas konstant geblieben war. Damit konnte nachgewiesen werden, dass das Package AH 1 beim Einsatz von BTL-Diesel am Auslegungspunkt des Packages den Zielwert von 1,0 Vol.-% im feuchten Produktgas erreichen und sogar unterschreiten konnte. Dabei waren die Konzentrationen der höheren Kohlenwasserstoffe nach dem Reformier und nach dem Shiftreaktor in der Gasphase an der Detektionsgrenze des Analysegerätes.



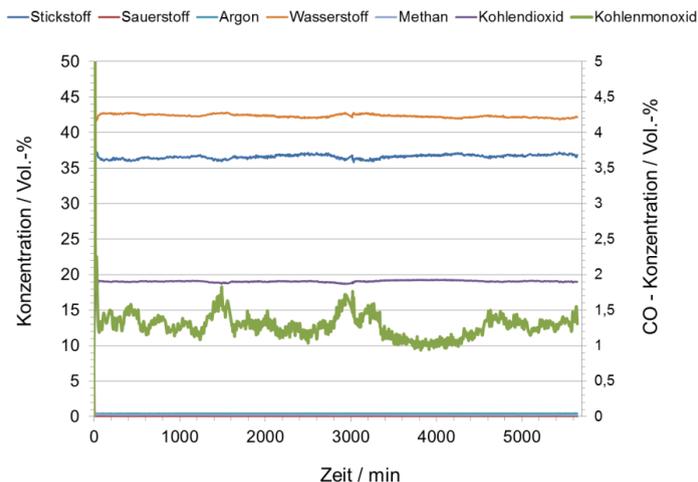
**Abb. 74: Konzentrationen von CO und CO<sub>2</sub> im trockenen Produktgas nach dem Shiftreaktor beim Betrieb von Package AH 1 mit BTL-Diesel. Analyse mittels FTIR**

Neben der Analyse des Systems im stationären Zustand wurden die Nebenprodukte nach dem Shiftreaktor auch beim Anfahren und Abfahren des Systems mittels FTIR-Spektroskopie untersucht. Beim Anfahren wurde eine maximale Benzol-Konzentration von 909 ppm beobachtet, wobei die maximalen Konzentrationen von Ethen (45 ppm), Ethan (238 ppm) und Propen (60 ppm) geringer waren. Beim Abfahren des Systems waren die maximalen Konzentrationen von Ethan (2974 ppm) und Benzol (1168 ppm) relativ hoch, wobei die maximalen Konzentrationen von Ethen (11 ppm) und Propen (18 ppm) deutlich geringer waren. Der Einfluss dieser Nebenprodukte auf die Langzeitstabilität der Systemkomponente wird derzeit näher untersucht.



**Abb. 75: Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Reformier beim Betrieb von Package AH 1 mit BTL-Diesel für eine Versuchsdauer von 100 h. Analyse mittels Massenspektrometrie**

In weiteren Versuchen wurde die Langzeitstabilität des Reformers ATR AH1 im Systembetrieb mit unterschiedlichen Diesel- und Kerosin-Kraftstoffen untersucht. In allen Versuchen wurde der Reformer mit einem Kraftstoffdurchfluss von 1350 g/h mit molaren  $O_2/C$ - und  $H_2O/C$ -Verhältnissen von 0,47 bzw. 1,9 betrieben. Abb. 75 zeigt den zeitlichen Verlauf der Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Reformer ATR AH1 während eines Versuchs mit BTL-Diesel (NExBTL Diesel) für eine Dauer von 100 h. Es ist dabei zu beachten, dass alle Konzentrationen nahezu konstant blieben. Trends zu einer möglichen Desaktivierung im Reformer sind nicht zu beobachten. Der Reformer produzierte in diesem Zeitraum sehr niedrige Nebenprodukte, deren Konzentrationen an der Detektionsgrenze des Analysegeräts lagen. Des Weiteren zeigt Abb. 76 die Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Shiftreaktor. Die CO-Konzentrationen lagen zwischen 1,0 Vol.-% und 1,5 Vol.-% in diesem Versuch. Es wurden zwar kurzzeitig höhere CO-Konzentrationen von bis zu 1,9 Vol.-% im Produktgas gemessen, jedoch konnte die CO-Konzentration mit Hilfe von Gegenmaßnahmen im System zurück in den Bereich zwischen 1,0 Vol.-% und 1,5 Vol.-% reduziert werden. Die Gegenmaßnahmen waren die Anpassung der Heizpatronenleistung sowie der Wasserquenchemenge. Der Anstieg der CO-Konzentration am Ende des Versuchs auf ca. 1,5 Vol.-% kann durch Probleme bei der Wasserförderung zur Kühlung des Reformats vor dem Niedertemperatur-Shiftreaktor erklärt werden.



**Abb. 76: Konzentrationen der Hauptprodukte im trockenen Produktgas nach dem Shiftreaktor beim Betrieb von Package AH 1 mit BTL-Diesel für eine Versuchsdauer von 100 h. Analyse mittels Massenspektrometrie**

Im weiteren Versuchsverlauf wurde das System mit weiteren Diesel- und Kerosinquitäten getestet. Tab. 14 zeigt die Konzentrationen der Hauptprodukte der Reformierung gemittelt für den Betrieb mit NExBTL-Diesel (120 h), Ecopar-Diesel (120 h), HC-Kerosin (136 h) und Ultimate-Diesel (13 h). Die Konzentrationen im trockenen Produktgas wurden mit Hilfe einer Massenspektrometrie gemessen. Bei allen getesteten Kraftstoffen zeigte der Reformer ATR AH 1 einen sehr stabilen Betrieb ohne einen Hinweis auf Alterung.

Kraftstoff	Versuchsdauer	x(H <sub>2</sub> )	x(CO)	x(CO <sub>2</sub> )	x(CH <sub>4</sub> )	x(Ar)	x(N <sub>2</sub> )
	h	Vol.-%					
NExBTL-Diesel	120	37,0	9,0	12,9	0,2	0,5	40
Ecopar-Diesel	120	37,0	9,4	12,6	0,2	0,5	40
HC-Kerosin	136	35,7	10,0	12,4	0,2	0,5	41
Ultimate-Diesel	13	34,9	11,1	11,6	0,3	0,5	42

**Tab. 14: Untersuchung der Langzeitstabilität des Reformers ATR AH 1 im Systembetrieb mit unterschiedlichen Diesel- und Kerosinqualitäten. Konzentrationen der Hauptprodukte der Reformierung im trockenen Reformat gemessen mittels Massenspektrometrie**

Die Nebenprodukte der Reformierung wurden mittels FTIR-Spektroskopie ermittelt. Tab. 15 zeigt die Konzentrationen von Ethen, Ethan, Propen und Benzol im Reformat gemittelt über die Versuchsdauer für den Betrieb mit unterschiedlichen Kraftstoffen. Während der Versuche mit den Kraftstoffen NExBTL-Diesel, Ecopar-Diesel und HC-Kerosin lagen die Konzentrationen der Nebenprodukte auf einem sehr niedrigen Niveau an der Detektionsgrenze des Analysegeräts. Beim Betrieb mit dem Kraftstoff Ultimate-Diesel stiegen die Konzentrationen an Nebenprodukten leicht zu weiterhin unkritischen Werten.

Kraftstoff	Versuchsdauer	x(C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> )	x(C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> )	x(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )	x(C <sub>6</sub> H <sub>6</sub> )
	h	ppmv			
NExBTL-Diesel	120	7	4	3	13
Ecopar-Diesel	120	6	4	3	14
HC-Kerosin	136	6	0	0	8
Ultimate-Diesel	13	6	29	2	35

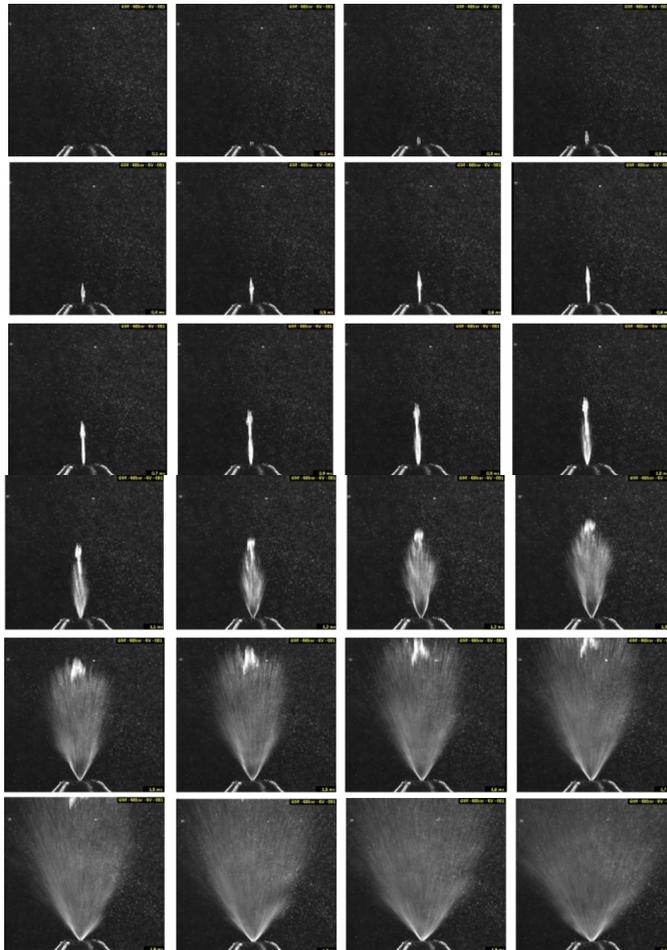
**Tab. 15: Untersuchung der Langzeitstabilität des Reformers ATR AH 1 im Systembetrieb mit unterschiedlichen Diesel- und Kerosinqualitäten. Konzentrationen der Nebenprodukte der Reformierung im trockenen Reformat gemessen mittels FTIR.**

Wie bereits im vorderen Bereich des Abschnittes erwähnt, wurden während des Anfahrens und des Herunterfahrens deutlich höhere Konzentrationen an Nebenprodukten gemessen. Am Ende der Versuchsreihe wurden dynamische Versuche durchgeführt, um Strategien zu entwickeln wie das System mit tieferen Konzentrationen in und außer Betrieb genommen werden kann. Dabei wurde festgestellt, dass ein Start des Systems mit den beim Normalbetrieb des Systems ausgewählten molaren O<sub>2</sub>/C- und H<sub>2</sub>O-Verhältnissen in Verbindung mit einer Vorheizung von Reformierungsluft zu niedrigeren Konzentrationen an Nebenprodukten führt.

Am Ende des Systembetriebs konnten nahezu keine Nebenprodukte gemessen werden, wenn beim Herunterfahren die Wassermenge zum Reformer zuerst erhöht und bei konstant bleibender Luftmenge die Kraftstoffversorgung gestoppt wird. Damit konnten vielversprechende Betriebsstrategien identifiziert werden, die in künftigen Arbeiten weiter optimiert werden müssen.

### 4.2.3 Sprühbilduntersuchungen an der Düse des ATR AH2

Abb. 77 zeigt Ergebnisse von Sprühbilduntersuchungen, die mit der gewählten Anordnung der Kraftstoffeinspritzvorrichtung bestehend aus der Pumpe der Fa. Thomas Magnete, einem



**Abb. 77:** Bildabfolge eines Videos aufgenommen mit der Hochgeschwindigkeitskamera bei einer Bildrate von 13300 fps während des Pulsbetriebs der Kraftstoff-Einspritzvorrichtung. Es sind kombiniert: die Pumpe der Fa. Thomas Magnete, ein Reservoir, ein Druckregler, das schnellöffnende/ schließende Magnetventil der Fa. GSR Ventiltechnik und die Dralldruckdüse. Der Druck im Speicher beträgt 50 bar, die Wiederholrate liegt bei  $16 \frac{2}{3}$  Hz entsprechend 60 ms pro Takt. Das Ventil sollte zu 50% geöffnet sein. Die Einspritzzeiten entsprechen für eine minimale Last von 15%, ca. 15% von 67 ms, einem Zeitintervall von 10 ms. Die Dralldruckdüse ist untenliegend. Es wird der Aufbau des Sprühbilds gezeigt.

Reservoir, einem Druckregler, dem schnellöffnenden/ schließenden Magnetventil der Fa. GSR Ventiltechnik und der Dralldruckdüse vor dem Einbau der Anordnung in den ATR AH2 erzielt wurden.

Als eigentliches Ergebnis wurde wiederum ein Videofilm zu jeder Einstellung erzielt. Videoraten liegen bei 4.000 fps – 133.000 fps. (fps: frames per second). Ein Video in Echtzeit wird im avi-Dateiformat üblicherweise mit 15 fps abgespielt. PAL-Formate oder das U.S.-amerikanische Format NTSC verwenden 30 fps. Der zeitliche Effekt führt damit zu einer Aufweitung um Faktoren zwischen 13,67 – 267. Die Bildfolge in Abb. 77 wies bei 13.300 fps einen Zeitabstand von jeweils 75  $\mu$ s. Der Aufbau des Sprühbilds dauerte 1,5 - 2 ms. Wichtig ist, dass das Auftreten eines Flüssigkeitsstrahls nach weniger als 1 ms nahezu verschwunden ist. Damit konnte die Entwicklung der Pumpe und des Magnetventils in Kombination mit der technischen Anordnung erfolgreich umgesetzt werden. Für die Qualität des Sprühbilds ist ein konstanter Betriebsdruck von 40 – 50 bar ideal. Die effektiv minimale Last lag bei 10%. Die theoretisch mögliche Last von 5% ließ sich nicht ansprechen. 10% Last waren nur bedingt zu nutzen, da der Sprüh nicht gut abgesetzt wurde. Wie Abb. 77 zeigt traten beim Aufbau des Sprühbildes in der Mitte kleinere Ansammlungen Wasser auf. Über deren Auswirkungen kann der Bericht noch keine endgültige Aussage treffen.

### 4.3 Wasserverteilung in der HT-PEFC

Der Betrieb der HT-PEFC erfolgt bei 160 °C und Normaldruck. Das entstehende Produktwasser verlässt die Zelle deshalb im gasförmigen Aggregatzustand. Ein großer Teil des Produktwassers wird direkt über den Gaskanal der Kathode ausgetragen. Das Wasser entsteht jedoch wahrscheinlich im flüssigen Aggregatzustand in der Elektrode, welche als Elektrolyt Phosphorsäure (genauer: eine Phosphorsäure-Wasser-Mischung) enthält. Ein Teil des Produktwassers gelangt durch Diffusion innerhalb des Elektrolyten zur Anode um dort ausgetragen zu werden. Dieses Prinzip ist in Abb. 78 dargestellt.

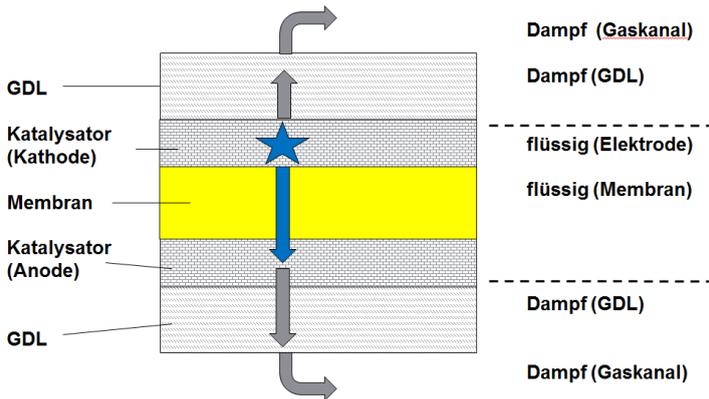


Abb. 78: Wasserverteilung in der HT-PEFC

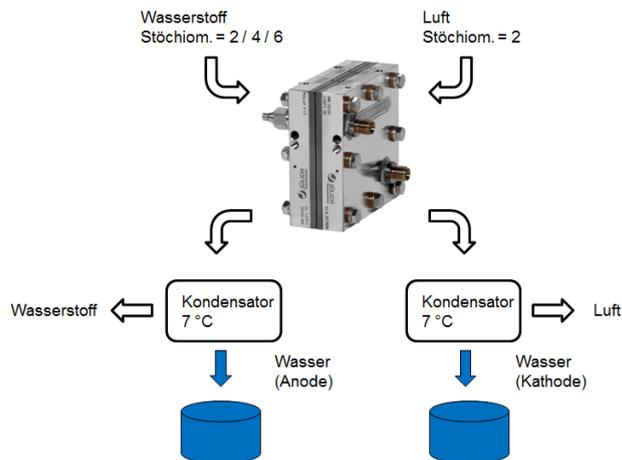
Die Verteilung des Produktwassers auf Kathode und Anode ist dabei von den Materialeigenschaften der Elektrode, der GDL, der Membran als auch von der Balance zwischen Wasserproduktion und Wasserverdampfung und damit den lokalen Strömungs-

Stöchiometrie Anode	Verhältnis des Volumenstroms (Kathode/ Anode)
2.0	4.3
4.0	1.4
6.0	0.9
<i>hypothetischer Reformatbetrieb<sup>10</sup> (zum Vergleich des Volumenstromes)</i>	
1.2	1.1
2.0	2.3

Tab. 16: Strömungsverhältnisse am Zellausgang (ohne Wasser, Stöchiometrie der Kathode = 2)

<sup>10</sup> Lücke, L., Janßen, H., Kvesić, M., Lehnert, W., Stolten, D., Int. J. of Hydrogen Energy 37 (2012), 9171

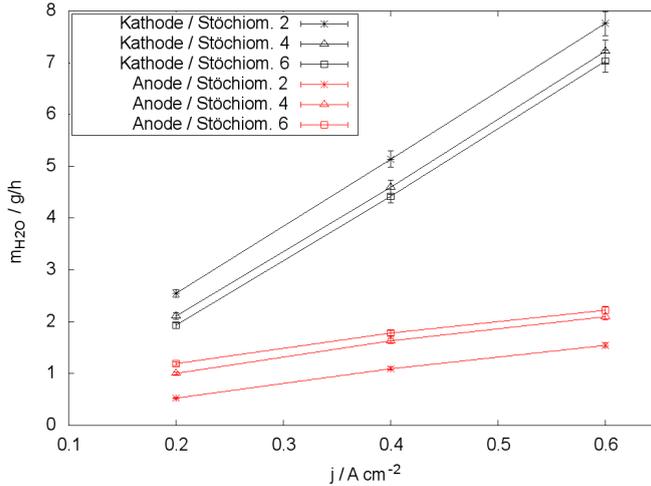
verhältnissen abhängig. In einem ersten Schritt wurde deshalb die Verteilung des Wassers anhand einer Standard-Einzelzelle charakterisiert. Es handelt sich dabei um eine Zelle mit 3-fach Mäander und einer aktiven Zellafläche von  $45 \text{ cm}^2$ . Als MEA kam eine CELTEC P1000 von der Firma BASF zum Einsatz. Die Zelle wurde in Parallel-Konfiguration betrieben mit reinem Wasserstoff auf der Anode und trockener Luft auf der Kathode. Die Stöchiometrie der Kathode wurde auf den Wert 2 fest eingestellt. Die Stöchiometrie der Anode wurde gemäß Tab. 16 variiert. Dieser Tabelle kann man entnehmen, dass sich das Verhältnis der Volumenströme im Betrieb mit reinem Wasserstoff stark vom Betrieb mit Reformat unterscheidet. Am Zellausgang wurde das Produktwasser auf Anoden- und Kathodenseite mittels eines Kondensators aufgefangen, wie in Abb. 79 schematisch dargestellt ist.



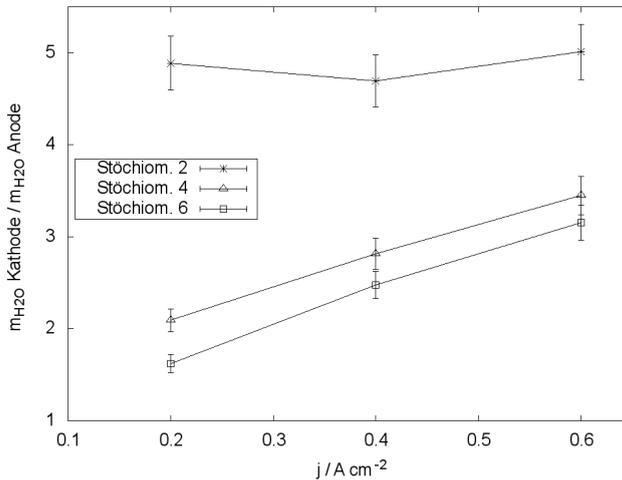
**Abb. 79: Experimenteller Aufbau zur Ermittlung der Wasserverteilung**

Für jeden Betriebspunkt wurde das Wasser ca. 70 Stunden in den beiden Auffangbehältern gesammelt. Der daraus resultierende Massenstrom des Produktwassers ist in Abb. 80 dargestellt. Gemäß des Faradayschen Gesetzes gibt es einen linearen Zusammenhang zwischen Stromdichte und Wasserproduktion. Die Steigung der Geraden ist jedoch deutlich größer auf der Kathodenseite. Diese Tatsache stimmt sehr gut mit den in Abb. 78 skizzierten Transportwegen überein, da das Wasser auf dem Weg zur Anode eine „Diffusionsbarriere“ überwinden muss.

Bildet man nun das Verhältnis der Massenströme von Kathode und Anode, so ist ein unterschiedliches Verhalten als Funktion der Volumenströme zu erkennen (Abb. 81). Bei hohem Volumenstrom auf der Kathode (Anode Stöchiometrie 2) wird unabhängig von der Stromdichte jeweils das 5-fache an Wasser über die Kathode ausgetragen. Ist das Verhältnis der Volumenströme eher ausgeglichen (Anode Stöchiometrie 4 und 6), so beträgt der Wasserausrag der Kathode nur noch das 2- bis 3-fache der Anode. Weiterhin steigt der Wasseranteil der Kathode mit zunehmender Stromdichte an.



**Abb. 80: Massenstrom des Produktwassers als Funktion der Stromdichte**



**Abb. 81: Verhältnis des Produktwasser-Massenstromes**

Zusammenfassend kann man sagen, dass der Diffusionsstrom von Wasser durch die Membran sich als Funktion der Volumenströme ändert. Deshalb ist zu erwarten, dass sich die Protonenleitfähigkeit der Membran ebenfalls ändert. Weiterhin können im Wasser gelöste Gase auf diesem Wege von der Kathode zur Anode transportiert werden, welches den sogenannten „Crossover-Effekt“ beeinflussen würde. Die genannten Effekte sind ebenfalls abhängig von der Strömungsführung und der Geometrie des Strömungsfeldes.

## 4.4 Effizienzaspekte der Hochdruck-Wasserelektrolyse

Eine großtechnische Energiespeicherung kann mit der Herstellung und Speicherung von Wasserstoff erreicht werden. Wasserelektrolysesysteme bieten dabei die Möglichkeit hochreinen Wasserstoff effizient und emissionsfrei zu produzieren. Neben der alkalischen Elektrolyse hat sich in den letzten Jahren die Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse (PEM-Elektrolyse) als technische Anwendung der Wasserelektrolyse entwickelt. Die Elektrolysesysteme und ihre Einbindung in die Energieinfrastruktur werden am IEK-3 untersucht und weiterentwickelt. Dabei stellt die Systemeffizienz einen zentralen Entwicklungsparameter dar. Im Folgenden sollen die Aktivitäten des IEK-3 auf dem Gebiet der Effizienzerhöhung von Wasserelektrolysesystemen vorgestellt werden. Dabei wird insbesondere auf den Druckbetrieb des Elektrolyseurs eingegangen.

### 4.4.1 Einleitung und Übersicht

Für die wirtschaftliche Integration von Elektrolysesystemen zur Wasserstoffproduktion sind maßgeblich die Wasserstoffgestehungskosten relevant. Diese ergeben sich aus den Investitionskosten, der Anlagenauslastung und den Energiekosten zur elektrischen Versorgung der Systeme. Über den Wirkungsgrad des Gesamtsystems werden die Energiekosten direkt auf die Wasserstoffgestehungskosten übertragen. Damit stellt die Erhöhung des Wirkungsgrads eine effektive Maßnahme dar, um die Wasserstoffgestehungskosten zu senken.

Das Wasserelektrolysesystem besteht neben dem Zellstapel aus verschiedenen Systemkomponenten zur Versorgung und Kühlung der Zellen und aus Systemkomponenten zur Gasnachbehandlung. Bei der Betrachtung der Systemeffizienz müssen diese Komponenten berücksichtigt werden. Abb. 82 zeigt schematisch den Systemaufbau. Zunächst wird der Wirkungsgrad des Zellstapels, auch Stack genannt, als zentrales Bauteil besprochen und anschließend auf die Systemkomponenten eingegangen.

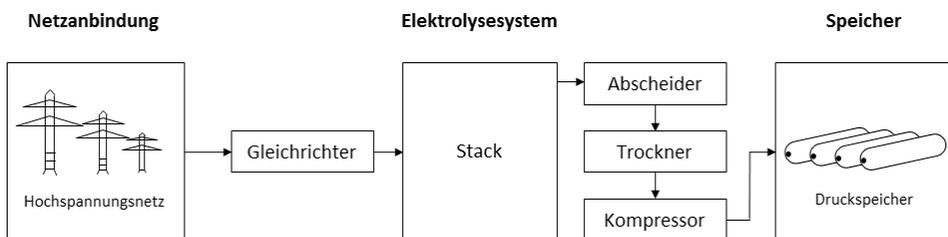


Abb. 82: Aufbau und Integration von Wasserelektrolysesystemen

### 4.4.2 Stackwirkungsgrad

Zur Erhöhung der Leistungsdichte werden Einzelzellen zu Stacks verbunden, welche als zentrales Bauteil des Elektrolyseurs dienen. Der Stackwirkungsgrad entspricht dabei nahezu dem Zellwirkungsgrad. Der Zellwirkungsgrad setzt sich aus dem Spannungs- und dem Faraday'schen Wirkungsgrad zusammen. Dabei wird der Spannungswirkungsgrad durch Wärmeproduktion während der Elektrolyse reduziert. Der Faraday'sche Wirkungsgrad ergibt

sich aus Verlusten von produzierten Wasserstoffs in der Zelle, welche hauptsächlich durch die Querpermeation der entwickelten Gase durch die Membran bestimmt werden. Im Folgenden werde die beiden Wirkungsgrade erläutert und der Einfluss auf den Gesamtwirkungsgrad der Zelle aufgezeigt.

#### 4.4.2.1 Spannungswirkungsgrad

Zur elektrochemischen Spaltung von Wasser zu Wasserstoff und Sauerstoff muss eine elektrische Leistung aufgebracht werden. Diese wird bestimmt durch den Zusammenhang zwischen der Spannung und dem Strom, der sogenannten Strom-Spannungskennlinie. Diese wird maßgeblich durch den Aufbau, die verwendeten Bauteile und die gewählte Zelltemperatur bestimmt. Im Idealfall ist zur Spaltung von Wasser lediglich die Nernstspannung erforderlich, welche sich aus der freien Gibbs Energie für die Wasserzersetzung ergibt. Im realen Fall treten Verluste auf, die mit steigender Stromdichte zunehmen. Dazu zählen die kinetische Aktivierungsverluste durch die elektrochemischen Reaktionen, die ohmschen Verluste und die Massentransportverluste.

##### *Aktivierungsverluste*

Für die Aktivierungsverluste ist vor allem die Beschaffenheit der Elektroden von großer Bedeutung. Bei der Wasserelektrolyse mit einer sauren Polymerelektrolytmembran wird an der Anode Wasser oxidiert. Die dabei entstehenden Protonen werden an der Kathode reduziert. Diese Reaktionen werden durch die Verwendung von Katalysatoren beschleunigt, welche mit einem Polymerträger auf die Membran aufgebracht werden. Sie ergeben damit die Elektroden.

Die Qualität der Elektrode wird daher maßgeblich durch den Katalysator bestimmt. Zur Reduzierung der Überspannungen werden Katalysatoren mit einer hohen Aktivität für die Elektrolysereaktion benötigt. Zudem sollte der Katalysator eine große Oberfläche aufweisen, um eine möglichst hohe Nutzung des verwendeten Katalysatormaterials zu gewährleisten. Die Elektrode muss mit dem verwendeten Katalysator so ausgeführt werden, dass die Degradation im Betrieb des Elektrolyseurs möglichst gering gehalten wird. Durch verschiedene Mechanismen treten im Betrieb Degradationserscheinungen auf, welche den Wirkungsgrad über die Betriebszeit reduzieren. Für die PEM-Elektrolyse werden aktuell Platinanopartikel als Katalysator für die Kathode verwendet, während Iridiumoxidnanopartikel für die Anode verwendet werden.

##### *Ohmsche Verluste*

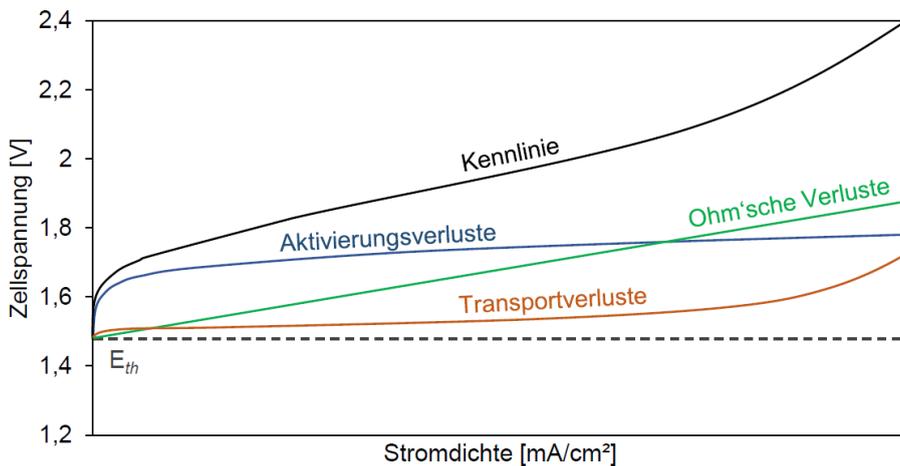
In der Zelle treten ohmsche Verluste bei der Leitung von Protonen und Elektronen auf. Der ohmsche Widerstand einer Zelle wird maßgeblich durch die Protonenleitfähigkeit der Membran bestimmt. Der Zellwiderstand ist damit ungefähr proportional zur Membrandicke. Neben der Membran müssen auch die Elektroden eine hohe Leitfähigkeit für Protonen aufweisen. Dies wird mittels eines Polymerelektrolytbinders erreicht, welche mit dem Katalysatormaterial auf die Membran aufgebracht wird. Dieser Binder dient gleichzeitig als mechanische Anbindung des Katalysators. Die Elektronenleitfähigkeit der Elektrode wird über das Katalysatormaterial realisiert. Um eine möglichst hohe Leitfähigkeit der Elektrode für Protonen und Elektronen zu erreichen, muss das Verhältnis von Polymerbinder zu Katalysatormaterial optimal gewählt werden. Ebenso müssen alle Bauteile, welche die

Medienversorgung hinter den Elektroden übernehmen durch eine hohe Elektronenleitfähigkeit gekennzeichnet sein. Dies gilt auch für die Kontaktstellen zum Erreichen von geringen Kontaktwiderständen.

### Massentransportverluste

Die Versorgung der Zelle mit Wasser und das Abführen der produzierten Gase werden über poröse Sichten und eine Kanalstruktur auf der Anoden- und Kathodenseite realisiert. Zudem dienen diese Bauteile als mechanische Stütze der Membran im Druckbetrieb des Elektrolyseurs. Bei steigenden Stromdichten muss eine ausreichende Versorgung der Zelle gewährleistet sein. Kann dies nicht gewährleistet werden, treten Verluste auf, die als Massentransportverluste bezeichnet werden. Die Massentransportverluste limitieren die mögliche Stromdichte für große Strombereiche.

Abb. 83 zeigt die Verlustmechanismen der Zelle und die daraus resultierende Strom-Spannungskurve. Aktuelle Forschungsaktivitäten des IEK-3 untersuchen Möglichkeiten, diese Verluste zu reduzieren, um somit den Spannungswirkungsgrad zu erhöhen. Ebenso werden die Degradationsmechanismen an verschiedenen Bauteilen untersucht, um durch eine geeignete Auslegung der Zelle hohe Lebensdauern bei hohen Wirkungsgraden zu erreichen.



**Abb. 83: UI-Charakteristik und Verlustmechanismen der PEM-Elektrolyse**

#### 4.4.2.2 Faraday'scher Wirkungsgrad

Im Betrieb des Elektrolyseurs tritt Querpermeation der entwickelten Gase durch die Membran auf. Diese wird hauptsächlich durch Diffusion verursacht, welche durch den Konzentrationsgradienten der Gase über die Membran entsteht. Neben der Gaskonzentration, welche durch die gewählten Drücke vorgegeben werden, ist die Querpermeation von der Permeabilität der Membran (Stoffeigenschaft) und deren Dicke abhängig. Durch das Fick'sche Diffusionsgesetz ergibt sich ein reziprok proportionaler Verlauf des Gasdurchtritts mit der Membrandicke.

Wasserstoff, welcher in den anodischen Raum permeiert, kann nachfolgend nicht genutzt werden und muss somit als Verlust angesehen werden. Neben dem Sicherheitsproblem bei der Mischung von Wasserstoff mit Sauerstoff ergibt sich zudem eine Reduzierung des Wirkungsgrades. Weiterhin tritt Sauerstoff in den kathodischen Raum ein. Hier wird der Sauerstoff mit dem vorherrschenden Wasserstoff durch den Platinkatalysator katalytisch verbrannt. Der dabei umgesetzte Wasserstoff ist somit ebenfalls verloren, womit auch die Sauerstoffpermeation den Wirkungsgrad senkt.

Für die spätere technische Nutzung wird der Wasserstoff unter Druck gespeichert. Da innerhalb des Elektrolyseurs eine nahezu adiabatische Verdichtung realisiert werden kann, ist der Energieaufwand zur Kompression innerhalb des Elektrolyseurs geringer als bei der mechanischen Nachkompression. Durch die Gaspermeation ist dieser Mechanismus allerdings limitiert, denn durch die Druckerhöhung steigen ebenfalls die Konzentrationsgradienten. Eine Erhöhung der Konzentrationsgradienten führt damit zu erhöhter Gaspermeation und damit zu einem geringeren Faraday'schen Wirkungsgrad. Um diesem Verlust zu begegnen, ist in der Vergangenheit das Gleichdruckprinzip entwickelt worden, bei dem auch die Sauerstoffseite auf das Druckniveau der Wasserstoffseite gebracht wird. Es konnte gezeigt werden, dass die Gasreinheit damit tatsächlich erhöht werden kann. Allerdings steigt damit die Sauerstoffpermeation, sodass der Wirkungsgrad weiter reduziert wird. In der Praxis muss somit ein optimales Druckniveau gefunden werden.

#### 4.4.2.3 Zellwirkungsgrad

Bei der Konfiguration der Zellen müssen die oben erläuterten Mechanismen berücksichtigt werden. Dabei stellt insbesondere die Dicke der Membran einen entscheidenden Auslegungsparameter dar. Über die Membrandicke wird das Verhältnis von Zellwiderstand zu Gaspermeation eingestellt. Während der Zellwiderstand proportional mit der Membrandicke zunimmt, nimmt der Gasdurchtritt reziprok proportional mit der Membrandicke ab.

Die Stromdichte beeinflusst die Gaspermeation durch die Membran nur geringfügig. Wird bei höheren Stromdichten jedoch mehr Wasserstoff produziert, fällt ein nahezu konstanter Verlust durch die Permeation relativ weniger ins Gewicht: Der Prozentsatz des Wasserstoffverlustes durch Permeation durch die Membran nimmt demnach mit steigender Stromdichte ab. Die Dicke der Membran ist somit nach folgenden Eigenschaften einzustellen:

- Dem Ohmschen Widerstand für die Protonenleitfähigkeit,
- der Wasserstoff- und Sauerstoffpermeabilität,
- der Temperatur, welche die ersten beiden Eigenschaften einstellt,
- dem Druck an der Kathoden- und Anodenseite,
- der aufgeprägten Stromdichte.

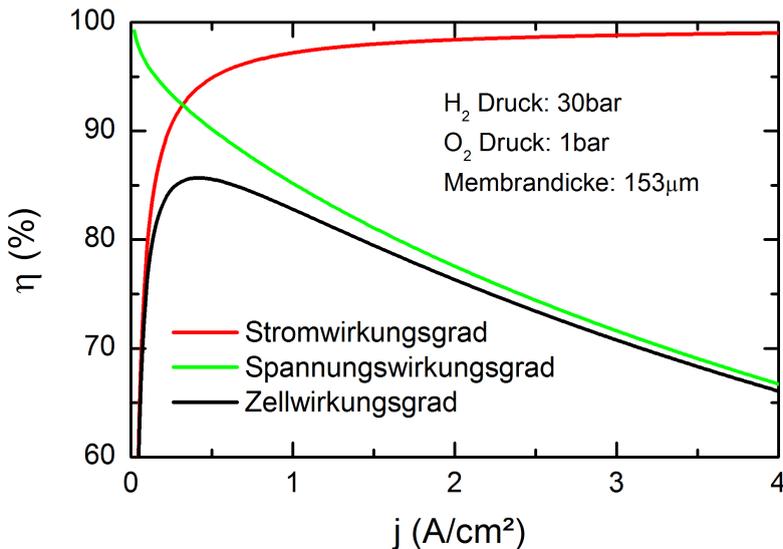
Eine derartige Membrandickenoptimierung wurde im Rahmen einer Veröffentlichung abgehandelt<sup>11</sup>. Dabei werden die Eigenschaften der Protonenleitfähigkeit sowie der Wasserstoff- und Sauerstoffpermeabilität separat außerhalb der Elektrolysezelle bestimmt,

---

<sup>11</sup> Schalenbach, M., Carmo, M., Fritz, D. L., Mergel, J. & Stolten, D. Pressurized PEM water electrolysis: Efficiency and gas crossover. Int. J. Hydrogen Energy 38, 14921–14933 (2013).

welche als Eingangsparameter für das Model genommen wurde. Diese Berechnungen sind unabhängig von den elektrochemischen Eigenschaften der Elektroden.

Neben des Effizienzverlustes führt die Permeation von Wasserstoff durch die Membran zu einem Sicherheitsrisiko: Oberhalb eines Gasgemisches von 4 % H<sub>2</sub> in O<sub>2</sub> entsteht ein explosionsfähiges Gemisch, was in der Verfahrensführung verhindert werden sollte. Mit zunehmender Stromdichte sinkt der Wasserstoffgehalt des Gasgemisches, da die Permeationsrate von Wasserstoff durch die Membran nahezu konstant ist jedoch sich die Produktionsrate des Sauerstoffs erhöht. Dabei wird das anodische Gasgemisch zu Seiten des Sauerstoffs geschoben.



**Abb. 84: Modellierter Effizienz eines PEM-Elektrolyseurs im Differenzdruckbetrieb.**

Der Verlauf der Spannungseffizienz, der Faradayschen Effizienz und der Zelleffizienz ist in Abb. 84 als Funktion der Stromdichte gezeigt. Wie oben diskutiert, steigt die Wärmeproduktion durch die Überspannungen mit der Stromdichte, welche den Spannungswirkungsgrad erniedrigt. Andererseits erhöht sich mit steigender Stromdichte die Faraday'sche Effizienz. Für die Zelleffizienz ergibt sich ein Optimum, welches abhängig von den Betriebsbedingungen des Elektrolyseurs ist.

#### 4.4.3 Systemwirkungsgrad

Zum Betrieb eines Elektrolyseestacks sind weitere Systemkomponenten notwendig, die durch ihre Leistungsaufnahme den Gesamtwirkungsgrad des Systems reduzieren. Die einzelnen Systemkomponenten sind in Abb. 82 gezeigt. Zur elektrischen Versorgung des Stacks wird in der Regel eine Gleichrichtereinheit benötigt. Diese Einheit weist einen lastabhängigen Wirkungsgrad auf. Durch die etablierten Technologien, wie beispielsweise die Chloralkalie-Elektrolyse, können hier bereits Wirkungsgrade oberhalb von 98 % erreicht werden. In der Gesamtkette ist dieser Verlust allerdings dennoch zu berücksichtigen, da er bereits vor der eigentlichen Elektrolyse auftritt und somit direkt die verfügbare Leistung reduziert.

Die durch Überspannung auftretende Verlustwärme muss abgeführt werden, um eine Schädigung der Bauteile, insbesondere der Membran, zu vermeiden. Dazu werden anoden- und kathodenseitig Kühlkreisläufe verwendet. Über die Kühlkreisläufe wird die Anodenseite zudem mit Wasser für die Reaktion versorgt. Die Kühlkreisläufe werden mit Pumpen betrieben, welche ebenfalls den Wirkungsgrad des Gesamtsystems reduzieren.

Die Produktgase werden nach dem Elektrolyseur vom Wasser getrennt, dennoch sind diese mit Wasserdampf gesättigt. Für die Speicherung muss der Produktwasserstoff somit getrocknet werden. Es zeigt sich, dass durch eine Gaskühlung bereits große Anteile an Wasser durch Kondensation entfernt werden können. Damit reduziert sich der Energieaufwand für eine anschließende Feintrocknung deutlich. Üblicherweise wird die Feintrocknung mit einer Adsorptionsanlage mit Temperaturwechsel durchgeführt.

Einen deutlichen Einfluss auf den Gesamtwirkungsgrad hat die anschließende mechanische Verdichtung. Thermodynamisch ergibt sich der Energieaufwand für die Gaskompression aus dem Verdichtungsverhältnis. Dies führt dazu, dass besonders zum Erreichen kleiner Druckniveaus ein relativ hoher Energieaufwand notwendig ist. Daher ist es sinnvoll, kleine Druckniveaus bereits im Elektrolysebetrieb zu erreichen, da hier eine höhere Effizienz bei der Verdichtung erreicht werden kann. Mit steigendem Druckniveau nimmt jedoch der Faraday'sche Wirkungsgrad, sodass sich ebenfalls ein Optimum ergibt. Eine zusätzliche Reduzierung des Energieaufwands kann durch eine mehrstufige Verdichtung mit jeweiliger Zwischenkühlung erreicht werden.

Eine optimale Auslegung hängt somit stark von den notwendigen Randbedingungen für die Druckspeicherung ab. Mit Verwendung von Modellen kann das IEK-3 eine optimierte Auslegung des Elektrolyseurs in Abhängigkeit der Betriebsparameter entwickeln, dies gilt insbesondere für das Druckniveau des Elektrolyseurs.

## 4.5 Markteinführung der Pkw-Brennstoffzelle mit erneuerbarem Wasserstoff

Aufgrund der steigenden installierten Leistung erneuerbarer Energien (EE) ist in zukünftigen Energiesystemen von einem zunehmenden Umfang sowohl positiver (Unterdeckung) als auch negativer (Überschussenergie) Residuallasten auszugehen. Power-to-Gas Konzepte nutzen Stromüberschüsse, um per Wasserelektrolyse Wasserstoff und Sauerstoff herzustellen. Diese Stromüberschüsse werden durch den hohen Anteil der EE im zukünftigen Energiemix hervorgerufen. Für den so erzeugten Wasserstoff stellt Abb. 85 drei ausgewählte Nutzungspfade dar<sup>12, 13</sup>:

- Einspeisung des Wasserstoffs in begrenzter Menge direkt ins Erdgasnetz.
- Methanisierung des Wasserstoffs und Einspeisung des Methans ins Erdgasnetz.
- Direkte Nutzung des Wasserstoffs im Verkehr oder in der Industrie, begleitet durch den Aufbau einer geeigneten Wasserstoffinfrastruktur

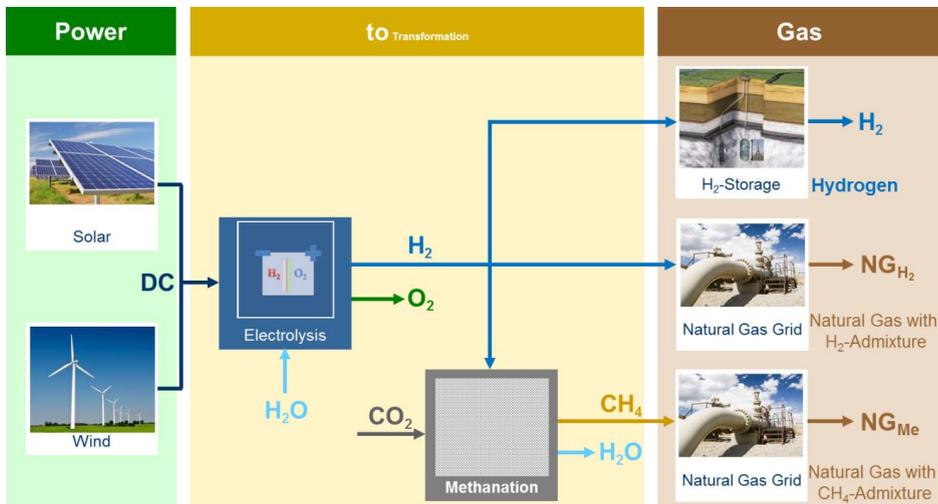


Abb. 85: Das Power-to-Gas Konzept<sup>12</sup> – H<sub>2</sub>: reiner Elektrolysewasserstoff; NG<sub>H<sub>2</sub></sub>: H<sub>2</sub>-Beimischung zum Erdgas; NG<sub>Me</sub>: Methanbeimischung zum Erdgas.

Das IEK-3 hat gezeigt, dass die direkte Nutzung des Wasserstoffs im Verkehrssektor unter Verwendung eines Wasserstoffpipelinesetzes die wirtschaftlichste Variante (Vor-Steuer-Analyse), im Vergleich zu den anderen zwei Pfaden darstellt<sup>12</sup>. Dies hat zwei Gründe (vgl. Abb. 86):

- Die niedrigen Referenzkosten von Erdgas mit ca. 4 ct/kWh ermöglichen keine wirtschaftliche Integration von Wasserstoff (Herstellungskosten: 15 ct/kWh) bzw. Methan (Herstellungskosten: 23 ct/kWh).

<sup>12</sup> Schiebahn, S. et al., Power to Gas. in: Stolten, D.; Scherer, V. (Eds.), Transition to Renewable Energy Systems, Wiley-VCH, 2013, pp. 813-849. ISBN 978-3-527-33239-7

<sup>13</sup> Robinius, M.; Stolten, D.: Power-to-Gas: Quantifizierung lokaler Stromüberschüsse in Deutschland anhand unterschiedlicher Windenergie-Ausbaustufen. 9. Internationale Energiewirtschaftstagung Wien, 2015.

- Die vergleichsweise hohen anlegbaren Kosten von Wasserstoff an der Tankstelle mit 16 bzw. 22 ct/kWh (Kosten von Benzin mit 8 ct/kWh und halbiertem Kraftstoffverbrauch von Brennstoffzellen-Pkw) ermöglichen eine wirtschaftlich sinnvolle Integration von Wasserstoff im Verkehrssektor.

Kann zu Beginn der Markteinführung Wasserstoff noch mithilfe von Trailern von den Produktionsanlagen zu den Tankstellen transportiert werden, wird ab größeren Mengen ein Transport über eine Pipeline sinnvoll.

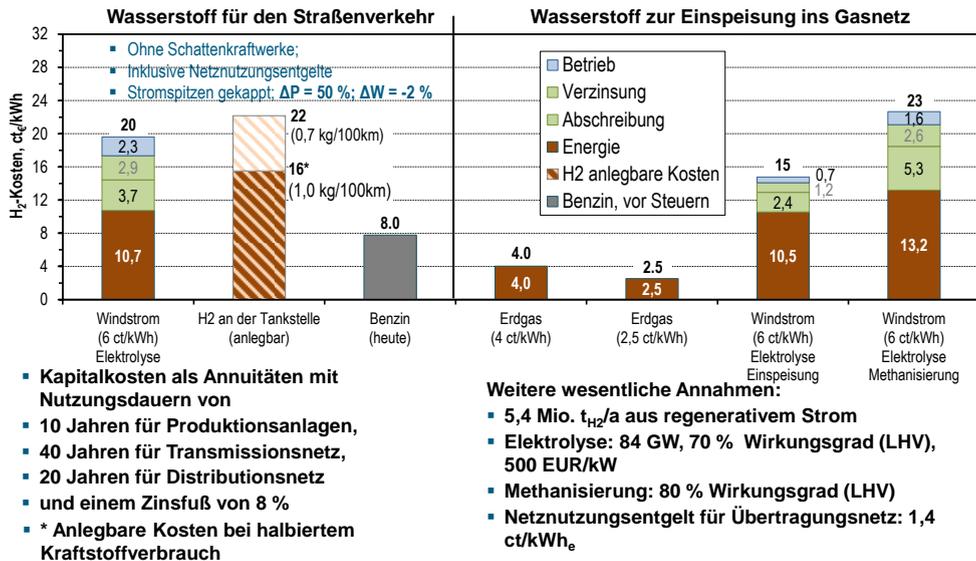


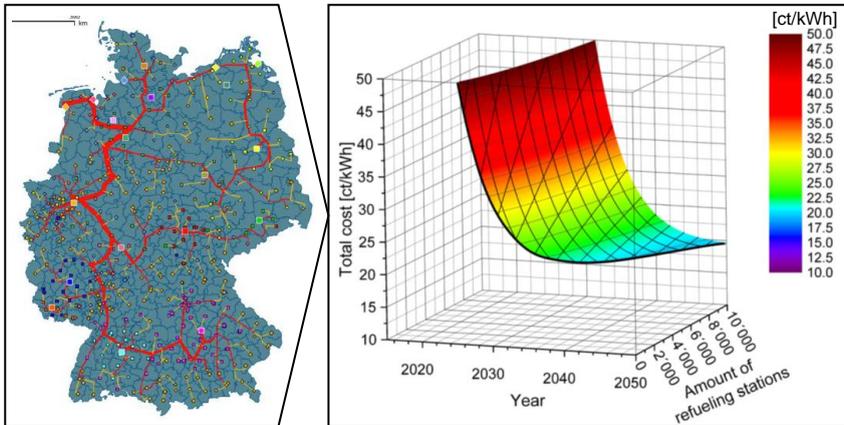
Abb. 86: Kostenanalyse der Power-to-Gas Pfade laut Abb. 85. Feed-in von Wasserstoff in das bestehende Erdgasnetz (ganz rechts), Methanisierung des Wasserstoffs und Einspeisung in das Erdgasnetz (2. v. r.) und Nutzung des Wasserstoffs im Verkehrssektor mit Wasserstoffpipelinennetz (ganz links)<sup>12</sup>.

Das am IEK-3 entworfene Wasserstoffpipelinennetz ist in der Lage, 75 % der Pkw in Deutschland mit einem Gesamtbedarf von 5,4 Mio. t Wasserstoff zu versorgen (vgl. Abb. 87-links)<sup>14</sup>. Es besteht aus einem 12.000 km langen Transmissionsnetz und einem 31.000 bis 47.000 km langen Distributionsnetz. Baut man dieses Wasserstoffpipelinennetz (Transmission und Distribution) komplett aus und installiert bedarfsgesteuert die Komponenten Elektrolyseur und Speicher, ist der Break-Even-Point (Vor-Steuern) bereits zwischen 2,2 Mio. und 1,6 Mio. t erreicht [8]. Der höhere Wert gilt für einen mittleren Wasserstoffverbrauch des FCV von 0,7 kg/100 km, der niedrigere für einen Verbrauch von 1,0 kg/100 km. Werden neben den Elektrolyseuren auch das Distributionsnetz und die Tankstellen bedarfsgerecht aufgebaut, ergibt sich ein Oberflächendiagramm, welches für jeden Ausbaustand die entsprechenden Vor-Steuer-Kosten angibt (vgl. Abb. 87-rechts). Der kostenoptimale Ausbau

<sup>12</sup> ibid.

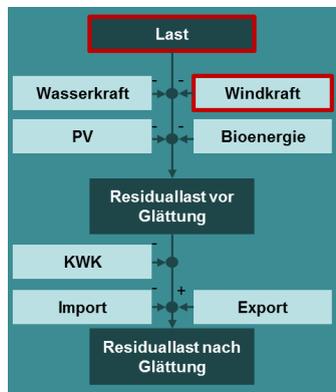
<sup>14</sup> Krieg, D.: Konzept und Kosten eines Pipelinesystems zur Versorgung des deutschen Straßenverkehrs mit Wasserstoff. 228 S. Forschungszentrum Jülich, Zentralbibliothek: Jülich, 2012. ISBN 9783893368006

entspricht der fett-schwarzen Kurve im Bildvordergrund.



**Abb. 87: Wasserstoffpipelinennetz zur Versorgung des Straßenverkehrs mit Wasserstoff (links) sowie kostenoptimaler Aufbau (rechts)<sup>14 15</sup>.**

In vorangegangenen Infrastrukturanalyse (z.B.<sup>14</sup>) lagen die wichtigsten Produktionsstandorte für Wasserstoff in Nordrhein-Westfalen (Kohlevergasung) und im Norden Deutschlands (Anlandungspunkte der Offshore-Windkraft). Für ein zukünftiges Szenario, dass sich deutlich stärker auf erneuerbaren Strom stützt, werden die Bezugsquellen dementsprechend angepasst. Dazu wird zurzeit am IEK-3 ein Modell entwickelt, welches die Residuallast aus erneuerbaren Energien auf Gemeindeebene bestimmt (vgl. Abb. 88). Beispielsweise gehen in die Berechnung der Residuallast die Netzlast<sup>16</sup> sowie die Strombereitstellung aus Onshore- und Offshore-Windenergie ein<sup>13</sup>.

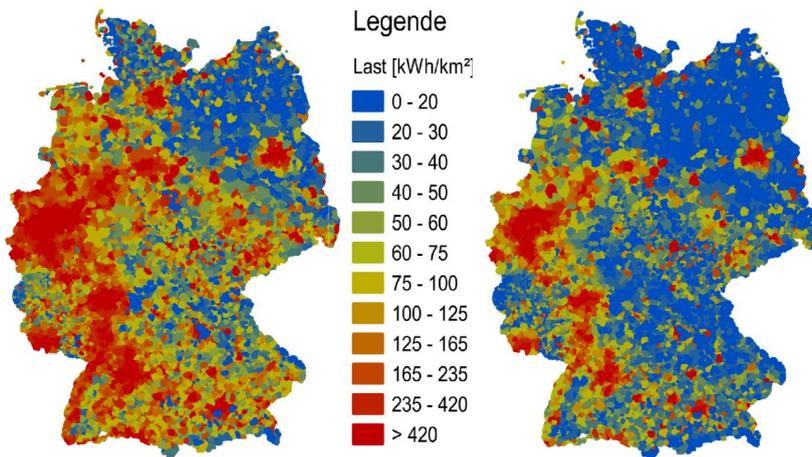


**Abb. 88: Berechnung der Residuallast**

<sup>15</sup> Stolten, D., et al.: The Potential Role of Hydrogen Technology for Future Mobility How Can this Improve Our Life? In: International Federation of Automotive Engineering Societies: (2014).

<sup>16</sup> Robinus, M., et al.: Lastmodellierung und -visualisierung mittels Geoinformationssystemen. [http://portal.tugraz.at/portal/page/portal/Files/i4340/eninnov2014/files/lf/LF\\_Robinus\\_Lastmodellierung.pdf](http://portal.tugraz.at/portal/page/portal/Files/i4340/eninnov2014/files/lf/LF_Robinus_Lastmodellierung.pdf). Aktualisierungsdatum: 07.01.2015.

Abb. 89 zeigt beispielhaft die ermittelte größte und niedrigste Last für das Jahr 2010, welches mit 513 TWh den höchsten Stromverbrauch der Jahre 2010 bis 2013 aufweist. Die Analyse der Lastverteilungen hat ergeben, dass positive Residualenergien (Stromnachfrage für steuerbare Kraftwerke) in den Lastzentren wie beispielsweise im Ruhrgebiet deutlich überwiegen und negative Residualenergien, also Stromüberschüsse, vor allem im Norden Deutschlands konzentriert sind. Dabei ist neben der Besiedlungsdichte auch das technische und wirtschaftliche Potential zur Installation von Anlagen zur Nutzung erneuerbarer Energien maßgeblich.

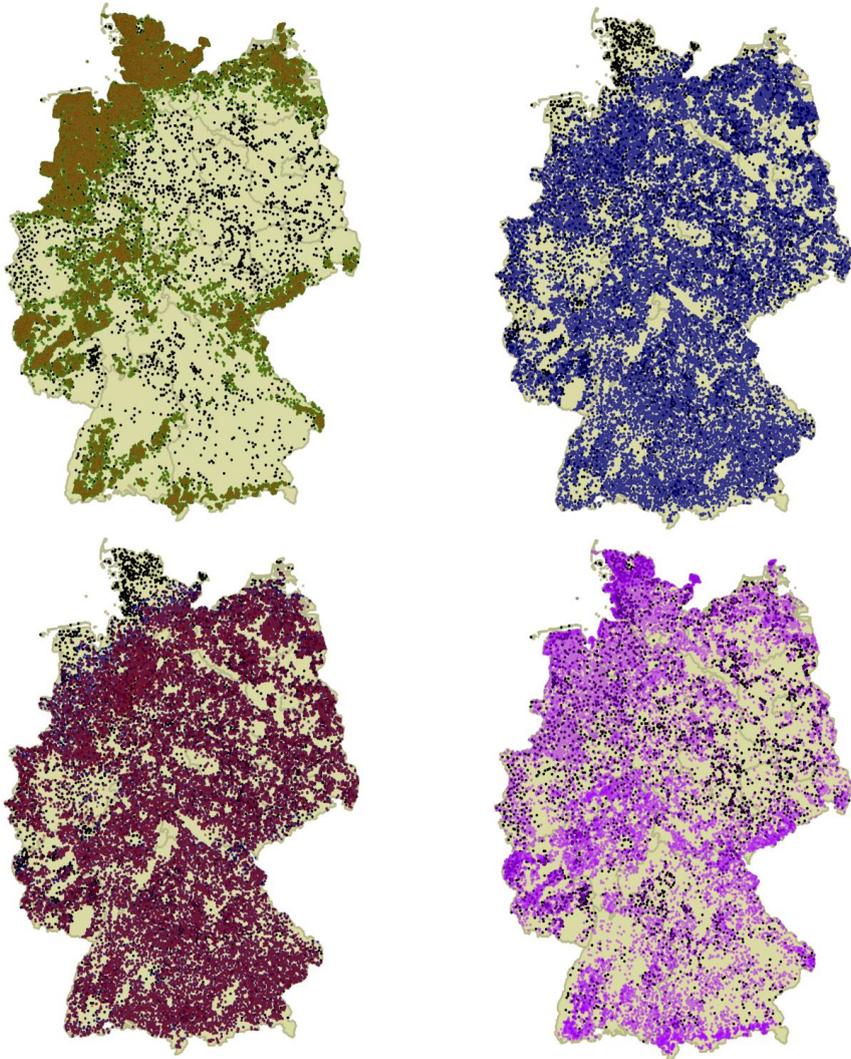


**Abb. 89:** Last pro Quadratkilometer in 11.268 Gemeinden in Deutschland zum Zeitpunkt der größten Last am 01.12.2010 18:00 Uhr mit 84 GW (links) und kleinsten Last am 06.06.2010 18:00 Uhr mit 36 GW<sup>13</sup>.

Abb. 90 zeigt dazu die Verteilung der Standorte der Onshore-Windenergieanlagen nach unterschiedlichen Investitionsentscheidungsparametern: (i) kostenoptimal, (ii) gewinnoptimal, (iii) maximale Vergütung und (iv) Standortqualität im Jahr 2006. Der kostenoptimale Ausbau (i) entspricht grundsätzlich dem gewinnoptimalen (ii) bzw. energieoptimierten Ausbaus, vgl. Abb. 90, oben links. Dies bedeutet, dass der Effekt der Standortqualität zwar einen Einfluss auf die Vergütungshöhe pro kWh hat, dieser aber durch die höheren Volllaststunden aufgehoben wird. Die maximale EEG Vergütung nach EEG 2012 (iii) (Abb. 90, oben rechts) bzw. EEG 2014 (Abb. 90, unten links) weist andere als die tatsächlichen Standorte aus. Wird ein Ausbau nach der EEG-Vergütung modelliert, werden im Vergleich zum tatsächlichen Ausbau, Windenergieanlagen an deutlich schlechteren Standorten platziert. Schließlich wird die tatsächliche Verteilung der Standortqualitäten im Jahr 2006 (iv) [17, S. 19] als Grundlage für eine zufällige Platzierung der Windenergieanlagen genutzt (Abb. 90, unten rechts). Dabei konnte eine Verteilung der Windenergieanlagen bestimmt werden, die hinreichend genau die Verhältnisse für das Jahr 2014 wiedergibt. Somit zeigt sich, dass der Ausbau der Windenergie an Land bisher eher von den Ausbauzielen der Bundesländer flankiert wird und weniger von kosten- bzw. gewinnoptimalen Beweggründen. Dabei ist jedoch zu

<sup>17</sup> Agora Energiewende: Vergütung von Windenergieanlagen an Land über das Referenzertragsmodell. [http://www.agoraenergiewende.de/fileadmin/downloads/publikationen/Studien/Referenzertragsmodell\\_Wind/Studie\\_Referenzertragsmodell\\_Wind\\_WEB.pdf](http://www.agoraenergiewende.de/fileadmin/downloads/publikationen/Studien/Referenzertragsmodell_Wind/Studie_Referenzertragsmodell_Wind_WEB.pdf). Aktualisierungsdatum: 18.11.2014.

berücksichtigen, dass der kostenoptimale Ausbau der Windenergie in diesem Modell nicht zwingend den volkswirtschaftlich kostenoptimalen Ausbau repräsentiert. Vielmehr sind auch die Systemintegrationskosten der Windenergie, beispielsweise die Kosten der Netzintegration, zu berücksichtigen.



**Abb. 90:** Standorte der Windenergieanlagen nach den Optimierungskriterien: Kosten (Abbildung oben links – Farbe Grün), Gewinn (Abbildung oben links – Farbe Rot) und Vergütung (Abbildung oben rechts und unten links – Farbe Blau) sowie nach der gleichen Standortqualität wie im Jahr 2006 (Abbildung unten rechts – Farbe Lila); die realen Standorte von 24.762 Windenergieanlagen im Jahr 2014 (alle Abbildungen – schwarze Punkte)





# 5



## Ausblick

### Ausblick auf neue FuE-Vorhaben

- Entwicklung eines reversibel arbeitenden Systems auf SOFC-Basis
- Metallische Bipolarplatten für HT-PEFCs
- Die Elektrolyse-Pilotanlage des Wasserstofftechnikums JuHY
- Flexibilisierung durch integrierte Energieversorgungssysteme

## **5.1 Entwicklung eines reversibel arbeitenden Systems auf SOFC-Basis**

### **5.1.1 Ausgangslage und Zielsetzung**

Aufgrund der fluktuierenden Stromproduktion stellt die Nutzung von überschüssigem Wind- oder Solarstrom zur Wasserstoffproduktion eine große Herausforderung für Elektrolysesysteme dar. In diesem Zusammenhang wäre ein System, das in Überschusszeiten Wasserstoff und in Schwachlastzeiten Strom produziert, von großem Vorteil. Grundsätzlich bietet die Kombination aus Hochtemperatur-Brennstoffzelle (SOFC) und Hochtemperatur-Elektrolyse (SOE) diese Möglichkeit. Erste Tests mit kleinen SOFC Stacks haben gezeigt, dass es problemlos möglich ist, den gleichen Stack nur durch Anlegen einer äußeren Spannung mit umgedrehter Stromrichtung im Elektrolysemodus zu betreiben. Diese Versuche haben aber auch gezeigt, dass vor allem für höhere Stromdichten im Bereich von  $1 \text{ A/cm}^2$  eine Optimierung der eingesetzten Werkstoffe notwendig ist, um die geforderte geringe Degradation zu gewährleisten. Gleichzeitig muss eine Systemtechnik entwickelt werden, die es ermöglicht in der gleichen Anlage (rSOC = reversible Solid Oxide Cell) ohne Umbauten direkt von Brennstoffzellenbetrieb auf Elektrolysebetrieb umzuschalten. Dies soll innerhalb der nächsten drei Jahre im Rahmen der eigenen F&E-Arbeiten mit einer 5 kW rSOC-Anlage realisiert werden.

### **5.1.2 Schwerpunktsetzung am IEK-3**

Das IEK-3 beschäftigt sich zum einen mit dem Stackdesign und der elektrochemischen Charakterisierung der Stacks und zum anderen mit der Systemauslegung einschließlich der erforderlichen Komponenten sowie Realisierung und Test der 5 kW Anlage.

### **5.1.3 Methodik**

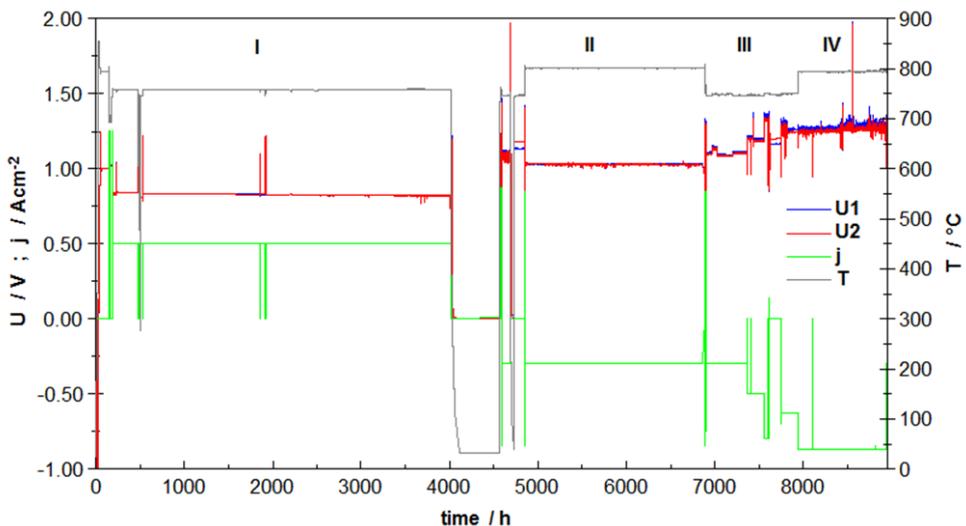
Zur Charakterisierung der Stacks im Elektrolysemodus wurden zunächst zwei Teststände für Short Stacks so umgebaut, dass sie zusätzlich den Betrieb im Elektrolysemodus erlauben sowie das automatische Umschalten von Brennstoffzellenbetrieb in Elektrolysebetrieb. Zwischenzeitlich wurden zwei neue Teststände aufgebaut, die den entsprechenden Test von größeren Stacks im kW Bereich erlauben. Neben den standardmäßigen Methoden der Kennlinienmessung bei verschiedenen Temperaturen und Langzeitmessungen bei unterschiedlichen Stromdichten und Temperaturen wird verstärkt die Impedanzmessung an Stacks eingesetzt, um das Langzeitverhalten der einzelnen Zell- bzw. Stackkomponenten zu analysieren. Gemeinsam mit den Experten der anderen an der Entwicklung beteiligten Institute wird eine intensive Nachuntersuchung der Stacks durchgeführt, die von chemischer Analytik über REM/EDX bis hin zu TEM-Untersuchungen reicht. Unterstützend wird das Verhalten der Stacks mit Hilfe von CFD und FEM Modellierungsarbeiten analysiert. Dies liefert wichtige Hinweise auf Schwachstellen und Verbesserungsmöglichkeiten in Design und Betrieb.

Die Systementwicklung baut auf den Erfahrungen mit der SOFC-Anlagentechnik auf und beginnt mit der Entwicklung von Simulationstools für die einzelnen Anlagenkomponenten, die dann zu einer kompletten Anlagesimulation zusammengeschaltet werden. Auf dieser Basis erfolgt die Entwicklung eines möglichst einfachen Anlagenkonzepts mit der dazugehörigen Betriebsstrategie, das den Betrieb als Brennstoffzelle und als Elektrolyseur ermöglicht, und

das (am besten) nur durch Umschalten der Stromrichtung. Anschließend erfolgt die Auslegung der kritischen Anlagenkomponenten (wie Dampferzeuger, Vorwärmer, Beheizung) unter Zuhilfenahme dynamischer Anlagensimulation, basierend auf Matlab/Simulink und Versuchen in speziellen Komponenten-Testeinrichtungen. Diese Ergebnisse fließen dann in die konkrete Anlagenauslegung und Konstruktion ein. Abschließend erfolgen dann Aufbau und Betrieb der Anlage. Mit Hilfe ausgefeilter Instrumentierung und Messtechnik dienen die Versuchsergebnisse zur weiteren Optimierung von Stack und Systemtechnik.

#### 5.1.4 Ergebnisse

Im Standard F10-Design wurde ein zwei-Ebenen Short Stack sowohl im Brennstoffzellen- als auch im Elektrolysemodus betrieben (siehe Abb. 91). Die Zellen basieren auf einer Brenngaselektrode aus einem 1 mm dicken Ni/8YSZ-Substrat, beschichtet mit einem 10  $\mu\text{m}$  dicken Elektrolyten aus 8YSZ und einer 40  $\mu\text{m}$  dicken Luftlektrode aus Lanthan-Strontium-Kobalt-Ferrit (LSCF), die auf eine Diffusionssperrschicht aus Gadolinium-dotiertem Ceroxid (GDC) aufgesintert ist. Zunächst wurde ein 4000 h Dauerbetrieb im Brennstoffzellenmodus bei 750 °C und 0,5 A/cm<sup>2</sup> durchgeführt, der eine Alterung von 0,6%/kh ergab. Anschließend wurde auf Dampfelektrolyse umgeschaltet und der Stack bei -0,3 A/cm<sup>2</sup> für 3450 h bei 810 °C betrieben. Hierbei ergab sich keine messbare Alterung.

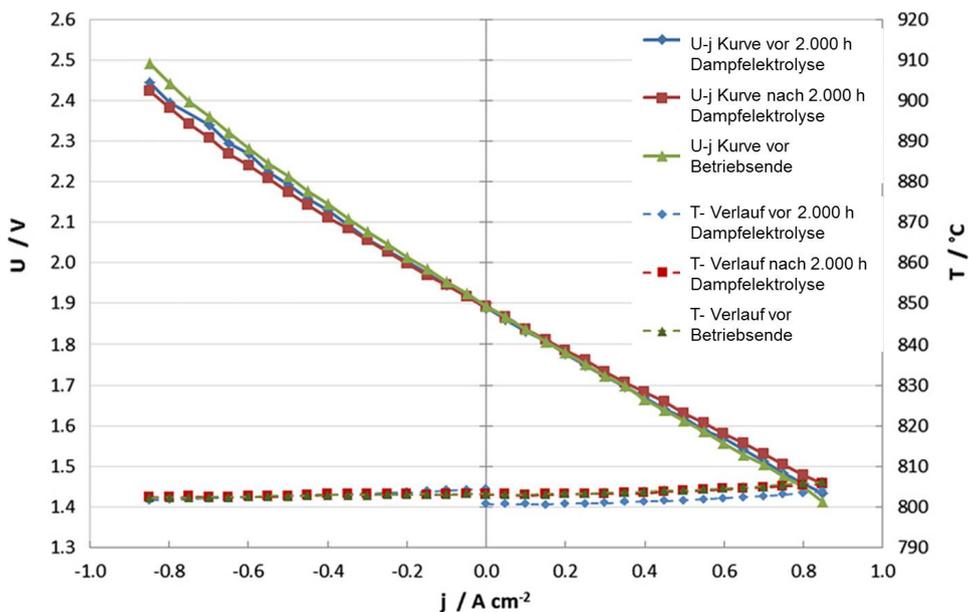


**Abb. 91: Spannung, Stromdichte und Temperatur als Funktion der Betriebszeit in SOFC und SOE Betriebsweise: Phase I – SOFC-Betrieb bei 0,5 A/cm<sup>2</sup> und 750 °C; Phase II – SOE-Betrieb mit H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 1:1 bei -0,3 A/cm<sup>2</sup> und 810 °C; Phase III – SOE-Betrieb mit H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O/CO<sub>2</sub> 2:1:1 bei -0,3 bis 0,8 A/cm<sup>2</sup> und 760 °C; Phase IV – SOE-Betrieb mit H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 1:1 bei -0,875 A/cm<sup>2</sup> und 810 °C**

In der nächsten Phase zwischen 6.900 und 7.600 h (Abb. 91, III) wurde der Stack mit Wasserstoff, Wasserdampf und CO<sub>2</sub> im Ko-Elektrolysemodus bei -0,3 und -0,5 A/cm<sup>2</sup> (und kurzzeitig bei -0,8 A/cm<sup>2</sup>) betrieben. Die Ofentemperatur lag hier bei 760 °C. Bei

unterschiedlichen und teilweise relativ kurzen Betriebszeiten bei den einzelnen Einstellungen lag die Alterung zwischen 1 und 6%/kh. Die Ursache für die höhere Alterung im Ko-Elektrolysemodus muss noch untersucht werden. Bei den verschiedenen Versuchen im Ko-Elektrolysemodus wurde mittels Gaschromatograph die Zusammensetzung des Synthesegases am Stackausgang gemessen. Es ergab sich eine sehr gute Übereinstimmung mit den berechneten Gleichgewichtszusammensetzungen. Es zeigte sich, dass die 'Reverse Shift-Reaktion' vollständig abläuft und dass bei den hohen Betriebstemperaturen der Methananteil im Produktgas vernachlässigbar ist. Abschließend wurde der Stack für 1.000 h wieder bei 810 °C im Dampfelektrolysemodus betrieben, aber diesmal bei  $-0,875 \text{ A/cm}^2$  (Abb. 91, IV). Die Alterung im Zeitintervall von 8.000 bis 9.000 h lag bei ca. 1,5%/kh.

In Abb. 92 ist die Strom-Spannungskurve des Stacks für Brennstoffzellen und für Elektrolysebetrieb bei einer Ofentemperatur von 800 °C und einer Gaszusammensetzung von  $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$  von 1:1 dargestellt. Zu sehen sind die Kurven vor und nach dem 2.000 h Betrieb im Dampfelektrolysemodus bei  $-0,3 \text{ A/cm}^2$  (Phase II in Abb. 91), bei dem sich keine Alterung feststellen lässt und die Abschlusskennlinie nach 9.000 h, die nur eine kleine Verschlechterung zeigt.



**Abb. 92: Strom-Spannungskurve des 2-Ebenen Short Stacks bei 800 °C Ofentemperatur und einer Gaszusammensetzung von  $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$  von 1:1**

Die grundsätzliche Machbarkeit des reversiblen Betriebs wurde ebenfalls mit einem 2-Ebenen Short Stack nachgewiesen. Mit diesem Stack wurden Zyklen von jeweils einer Stunde im Brennstoffzellen- und im Elektrolysemodus gefahren mit einer Minute Leerlauf dazwischen zum Umschalten. Es wurden bei  $0,3 \text{ A/cm}^2$  bei 700, 750 und 800 °C insgesamt 310 Zyklen gefahren, bei denen sich eine zum reinen Brennstoffzellenbetrieb vergleichbare Alterung ergab. Nach 1.100 Betriebsstunden fiel durch eine Störung im Teststand die Dampfversorgung aus, weshalb nach dem Wiederauffahren (Phasen 4 und 5 in Abb. 93) eine deutlich schlechtere Performance und eine erhöhte Alterung festgestellt wurde, was auf die

Schädigung durch kurzzeitigen Elektrolysebetrieb ohne ausreichende Dampfversorgung zurückzuführen war.

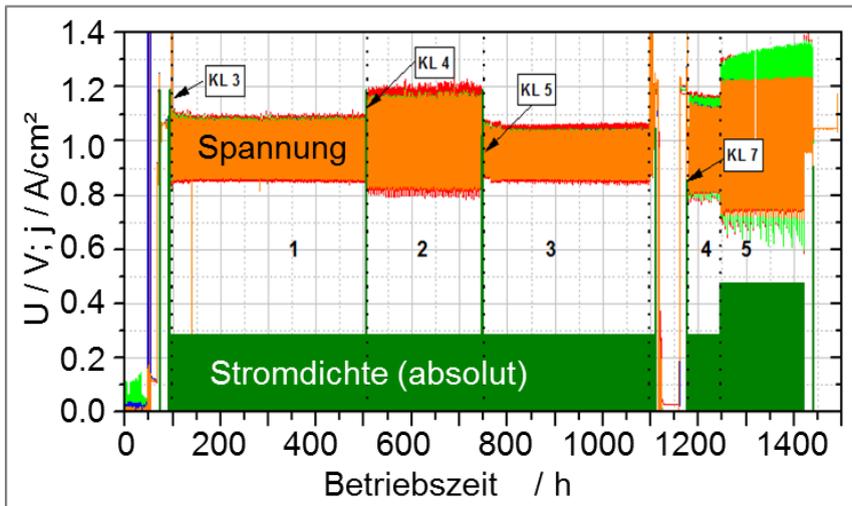


Abb. 93: Verlauf von Stromdichte und mittlere Zellspannung eines 2-Ebenen Short Stacks bei 750 °C (1), 700 °C (2) und 800 °C (3) Ofentemperatur und einer Gaszusammensetzung von H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O von 1:1 bei reversiblen Betrieb (1 h Brennstoffzelle – 1 Minute Leerlauf – 1 h Elektrolyse)

Da die Hochtemperatur-Elektrolyse das Potential von besonders hohem elektrischem Wirkungsgrad besitzt, wurden mögliche Systemkonfigurationen und Betriebsparameter mittels energetischer Systemanalyse untersucht. Um die Ergebnisse vergleichend bewerten zu können, wurden vier Wirkungsgrade definiert, die unterschiedliche Energieverbräuche berücksichtigen.

Bei  $\eta_1$  wird der Heizwert des erzeugten Wasserstoffs zur Leistungsaufnahme vom Elektrolysestack ( $P_{\text{Electrolyser}}$ ), von Luftgebläse und Brenngas-Rezirkulationsgebläse ( $P_{\text{Cp},i}$ ) und von den übrigen Stromverbrauchern im System ( $P_{\text{Add}}$ ) ins Verhältnis gesetzt. Nieder- und Hochtemperaturwärme zu Dampferzeugung und Überhitzung der Gase werden von anderen Prozessen zur Verfügung gestellt. Der erzeugte Wasserstoff steht mit Atmosphärendruck zur Verfügung.

$$\eta_1 = \frac{H_u^0}{P_{\text{Electrolyser}} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{Cp},i} + P_{\text{Add}}}$$

Für eine effektive Speicherung des Wasserstoffs muss dieser verdichtet werden. Für einen dreistufigen Verdichter mit Zwischenkühlung ist dies bei  $\eta_2$  berücksichtigt.

$$\eta_2 = \frac{H_u^0}{P_{\text{Electrolyser}} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{Cp},i} + P_{\text{Add}} + \sum_{i=3}^5 P_{\text{Cp},i}}$$

Da Abwärme auf ausreichend hohem Temperaturniveau (mindestens 800 – 900 °C) in den allermeisten Fällen nicht verfügbar sein wird, muss diese Energie zusätzlich als Verbrauch in Betracht gezogen werden. Dies ist bei  $\eta_3$  als  $P_{HT,i}$  für Brenngas- und Luftseite berücksichtigt.

$$\eta_3 = \frac{H_u^0}{P_{\text{Electrolyzer}} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{Cp},i} + P_{\text{Add}} + \sum_{i=3}^5 P_{\text{Cp},i} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{HT},i}}$$

Falls auch zumindest ein Teil der Nieder- und der Mitteltemperatur-Heizwärme vom System selbst zur Verfügung gestellt werden muss, wird dies als  $P_{MT}$  in  $\eta_4$  berücksichtigt. Eine möglichst optimale Wärmenutzung im System ist dabei mit einbezogen.

$$\eta_4 = \frac{H_u^0}{P_{\text{Electrolyzer}} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{Cp},i} + P_{\text{Add}} + \sum_{i=3}^5 P_{\text{Cp},i} + \sum_{i=1}^2 P_{\text{HT},i} + P_{\text{MT}}}$$

Ein wesentliches Unterscheidungsmerkmal stellt bei diesen Berechnungen die Zellspannung dar. Es wurden drei Fälle betrachtet:

- die Zellspannung ist kleiner als die thermoneutrale Spannung – der Stack muss von außen beheizt werden (Hochtemperaturwärme ist erforderlich).
- die Zellspannung ist gleich der thermoneutralen Spannung – der Stack muss weder beheizt noch gekühlt werden (keine Hochtemperaturwärme erforderlich).
- die Zellspannung ist größer als die thermoneutrale Spannung – der Stack muss gekühlt werden (erhöhter Massenstrom auf der Luftseite).

Folgende Ergebnisse wurden mit diesen Systemrechnungen erzielt:

- Der Wirkungsgrad  $\eta_1$  liegt zwischen 90% (Betrieb oberhalb der thermoneutralen Spannung) und 104% (Betrieb unterhalb der thermoneutralen Spannung).
- Der Wirkungsgrad  $\eta_2$  liegt zwischen 82% (Betrieb oberhalb der thermoneutralen Spannung) und 93% (Betrieb unterhalb der thermoneutralen Spannung). Hierbei wird die Verdichtung des produzierten Wasserstoffs auf 7 MPa berücksichtigt.
- Der Wirkungsgrad  $\eta_3$  liegt zwischen 74% (Betrieb oberhalb der thermoneutralen Spannung) und 80% (Betrieb unterhalb der thermoneutralen Spannung). Die Energie für die Dampferzeugung wird immer noch komplett von einem externen Prozess zur Verfügung gestellt. Die Hochtemperaturwärme wird über eine elektrische Heizung zugeführt.
- Der Wirkungsgrad  $\eta_4$  liegt in allen Fällen bei ca. 74%, sofern der Stack beim Betrieb unterhalb der thermoneutralen Spannung direkt elektrisch beheizt wird. Falls keine Nutzung der im System anfallenden Abwärme realisiert wird, sinkt der Wirkungsgrad in allen Fällen auf ca. 63% ab.

## 5.2 Metallische Bipolarplatten für HT-PEFCs

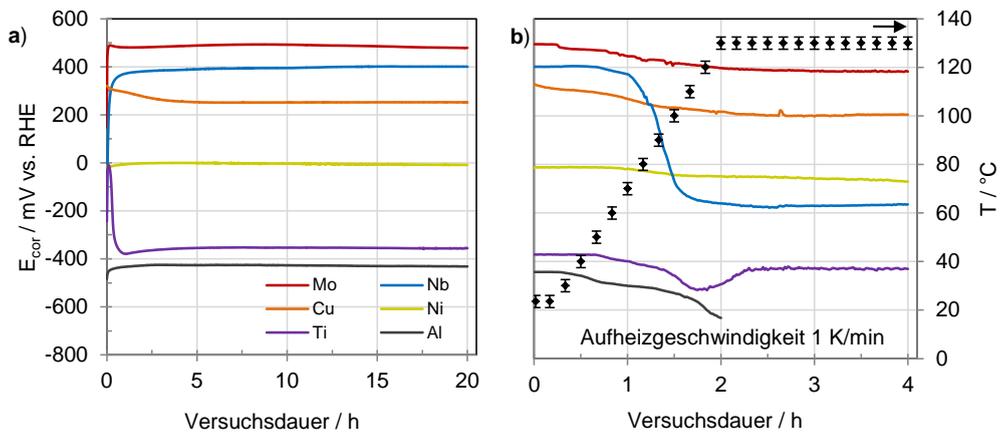
Derzeit werden für HT-PEFCs aufgrund der aggressiven Betriebsbedingungen graphitische Bipolarplatten verwendet. Der Vorteil der Langzeitstabilität dieser Materialien wird jedoch durch geringe volumetrische und gravimetrische Leistungsdichten und hohen Fertigungsaufwand erkauft. Eine Erhöhung dieser Leistungsdichten ist durch Verwendung von metallischen Bipolarplatten möglich. Aufgrund der Materialeigenschaften und der geringen Materialdicke der Bipolarplatten eröffnen sich Designmöglichkeiten für die Strömungsverteiler, die nicht auf graphitische Materialien übertragbar sind.

Ein wesentlicher Aspekt bei dem Übergang auf metallische Materialien ist die Auswahl der Materialien. Aufgrund der sehr aggressiven Bedingungen innerhalb der Stacks (phosphorsaure Umgebung, Temperatur ca. 160 °C) müssen Materialien bzw. Materialkombinationen auf ihre Eignung und Umformbarkeit untersucht werden. Ein zukünftiger Schwerpunkt der Arbeiten wird deshalb auf der Erforschung von Korrosionsphänomenen liegen. Darüber hinaus ist die Evaluierung von bekannten Beschichtungen und die Entwicklung von neuen Beschichtungen für metallische Bipolarplatten ein wesentliches Thema. Der Einfluß von Phosphorsäure auf Korrosionsphänomene in Modellsystemen wird im Folgenden dargestellt. Untersuchungen unter realen Betriebsbedingungen in Einzelzellen werden in weiteren Arbeiten durchgeführt werden.

### 5.2.1 Temperatureinfluss auf die Degradation von Passivierungsschichten

In diesem Abschnitt wird mit Hilfe des freien Korrosionspotentials  $E_{cor}$  die Temperaturabhängigkeit von Passivschichten auf Metalloberflächen untersucht.  $E_{cor}$  beschreibt das sich einstellende Mischpotential des Korrosionselements zwischen Oxidations- und Reduktionsreaktion für den Fall, dass kein äußeres Potential anliegt. Allgemein gilt, je höher  $E_{cor}$ , desto größer ist die elektrochemische Stabilität des metallischen Substrats in aggressiven Medien. Motivation der Versuche war dabei das Verständnis über den temperaturabhängigen Auf- und Abbau von Passivschichten in Phosphorsäure, die den Kontaktwiderstand an der Grenzfläche Bipolarplatte/Gasdiffusionsschicht und somit auch die Zelleistung in hohem Maße beeinflussen. Bei diesen Messbedingungen wird der Brennstoffzellenzustand bei offener Klemmspannung ohne Polarisationsstrom (*engl. open circuit voltage, OCV*) nachgestellt.

Die Durchführung erfolgte unter simulierten HT-PEFC-Bedingungen in einer Drei-Elektroden Messanordnung mit einem Volumen von 175 ml 85 Gew.-%-ige  $H_3PO_4$ . Durch das hohe Elektrolytvolumen wurde sichergestellt, dass eine Elektrolytsättigung mit Metall-Ionen, die zu einer Verminderung des Korrosionsprozesses führen würde, ausgeschlossen werden kann. Nach dem mechanischen und elektrochemischen Abtrag der an Luftsauerstoff gebildeten Oxidschicht, begann die Erfassung von  $E_{cor}$  bei Raumtemperatur. Nach 20 h nahm die Temperatur mit einer Heizrate von  $1\text{ °C min}^{-1}$  (innerhalb von 2 h) auf 130 °C zu und verblieb für weitere 2 h auf diesem Temperaturniveau. Zudem werden auch im weiteren Verlauf dieses Abschnitts Auslagerungsversuche bis zu 160 °C beschrieben, die in einem offenen Gefäß mit  $50 \pm 1$  g Phosphorsäure durchgeführt wurden. Bei diesen System stellt sich bereits nach wenigen Stunden eine  $H_3PO_4$ -Konzentration von >95 Gew.% ein, die auch der Elektrolytzusammensetzung in HT-PEFCs entspricht. Auch hier sollen durch die relativ große Elektrolytmenge untersättigte Bedingungen sichergestellt werden.



**Abb. 94:** Verlauf von  $E_{cor}$  in 85 Gew.-%iger  $H_3PO_4$  von technischen Metallen bei a) Raumtemperatur und b) einem Anstieg bis 130 °C

In Abb. 94, a ist der Verlauf von  $E_{cor}$  von den untersuchten Metallen Molybdän, Kupfer, Titan, Niob, Nickel und Aluminium über 20 h dargestellt. Dabei handelt es sich um industrielle Metalle mit einer Reinheit von >99,5 Gew.%. Es kann beobachtet werden, dass  $E_{cor}$  innerhalb weniger Minuten stark zunimmt und nach etwa 2 h einen nahezu gleichbleibenden Verlauf aufzeigt. Die sich einstellenden freien Korrosionspotentiale liegen in der Spannbreite von -425 mV (Al), -355 mV (Ti), ~0 mV (Ni), 255 (Cu), 395 mV (Nb) und 495 mV (Mo). Lediglich Ti und Cu weisen einen abweichenden Potentialverlauf auf.  $E_{cor}$  steigt bei Ti zu Beginn von etwa -250 mV auf -5 mV und sinkt anschließend auf einen Wert von -355 mV, der sich nach 2 h einstellt. Bei Cu nimmt  $E_{cor}$  innerhalb von 4,5 h linear von 320 mV auf 255 mV ab und bleibt danach konstant. Die deutliche Zunahme von  $E_{cor}$  zu Beginn der Messung lässt sich auf die Passivierung der Metalloberfläche in konz.  $H_3PO_4$  zurückführen. Dadurch wirkt die gebildete Passivschicht als kinetische Barriere und hemmt die Freisetzung von Metall-Ionen. Da das Elektrodenpotential durch die elektrochemischen Durchtrittsreaktionen an der Phasengrenzfläche charakterisiert wird, verschiebt sich das Elektrodenpotential mit zunehmender Stabilität in edlere Potentialbereiche. Daraus lässt sich ableiten, dass die gebildeten Passivschichten bei Mo und Nb die höchste Schutzwirkung, und bei Ti und Al die geringste Durchtrittsminderung von Metall-Ionen bewirken. Bei Ti kann zudem durch die Zu- und Abnahme von  $E_{cor}$  innerhalb der ersten Stunde beobachtet werden, dass die anfangs gebildete Passivschicht nicht langzeitstabil ist und innerhalb von ~1 h wieder abgebaut wird. Cu besitzt ein Standardpotential  $E^0$  von 350 mV. Die Konzentrationsabhängigkeit des Elektrodenpotentials lässt sich mit Hilfe der Nernst-Gleichung ermitteln. Da bei inerten Metallen die Aktivität der oxidierten Spezies  $a_{Cu^{z+}}$  im Elektrolyt sehr gering ist, gilt  $a_{Cu^{z+}} \ll a_{Cu}$ , wodurch der logarithmische Term der Nernst-Gleichung negativ und das Elektrodenpotential wiederum zu kleineren Werten verschoben wird. Damit lässt sich die Abweichung des gemessenen Elektrodenpotentials vom elektrochemischen Standardpotential erklären.

In Abb. 94, b ist der Verlauf von  $E_{cor}$  bei einem linearen Temperaturanstieg auf 130 °C und bei anschließend konstanter Temperatur dargestellt. Bei Mo, Cu und Al ist ab ca. 35 °C und

bei Nb, Ni und Ti ab etwa 60 °C eine beginnende Abnahme von  $E_{cor}$  zu erkennen. Bei Erreichen von 130 °C nach 2 h stellt sich erneut ein konstantes Korrosionspotential ein. Nach 4 h Messdauer weist Mo mit 390 mV das höchste und Ti mit -430 mV das niedrigste Korrosionspotential auf. Die größte Potentialdifferenz von 575 mV ist bei Nb, die geringste von 40 mV bei Ni zu beobachten. Das freie Korrosionspotential von Al fiel nach 2 h auf -615 mV ab und die Materialprobe löste sich vollständig auf. Da die temperaturabhängige Abnahme von  $E_{cor}$  einen Anstieg der Korrosionskinetik bzw. die Degradation der Passivschicht widerspiegelt, lässt sich schlussfolgern, dass Nb-Passivierung die geringste Temperaturstabilität aufweist, während Mo den effizientesten Passivierungseffekt zeigt. Ti zeigt auch hier einen Potentialverlauf gegen den Trend. Nach einer anfänglichen Abnahme durchläuft  $E_{cor}$  ein Potentialminimum von -515 mV bei 1,7 Stunden und steigt anschließend auf einen konstanten Wert von -430 mV an. Eine mögliche Erklärung für dieses dynamische Passivierungsverhalten ist eine vergleichsweise hohe Porosität von Ti-Oxiden. Die lineare Abnahme von  $E_{cor}$  bei Cu lässt sich mit der Temperaturabhängigkeit des Elektrodenpotentials mithilfe der Nernst-Gleichung erklären.

## 5.2.2 Einfluss der Korrosion auf die Oberflächenstruktur

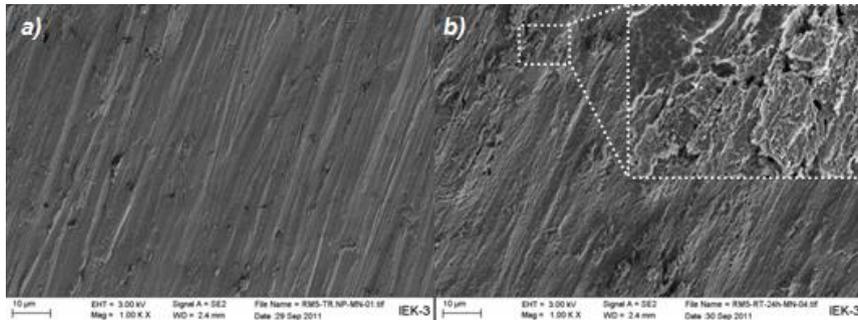
In diesem Abschnitt wird das Korrosionsverhalten bei höheren  $H_3PO_4$ -Konzentrationen mit den obigen Erkenntnissen bei 85 Gew.-%iger  $H_3PO_4$  verglichen. Dazu werden die Metalle Mo (höchster Wert für  $E_{cor}$ ), Nb (starker Temperatureinfluss auf  $E_{cor}$ ), Ti (niedrigstes  $E_{cor}$ ) und Ni (relativ stabiles  $E_{cor}$  bei ~0 V) bei Raumtemperatur, 80 °C und 160 °C für 24 h ausgelagert. In Tab. 17 ist die Masse  $m$  der Materialmuster nach der Auslagerung sowie das freie Korrosionspotential  $E_{cor}$  aus Abb. 94 gegenübergestellt. Um mögliche Phosphorsäurerückstände auf der Metalloberfläche auszuschließen, wurden die Materialproben vor der Massenbestimmung für 30 min bei 80 °C in 100 ml Milli-Q®-Wasser ausgewaschen. Ti löste sich in Phosphorsäure bereits bei 80 °C vollständig auf. Ni hatte nach 24 h bei 80 °C nur noch 32 % der Ausgangsmasse. Die Nb-Probe zeigte eine angemessene Korrosionsresistenz über 24 h bei 160 °C mit einem Massenverlust von ~20 Gew.%. Mo wies eine außerordentlich hohe Stabilität in Phosphorsäure bei erhöhten Temperaturen auf. Selbst nach 24 h bei 160 °C fand kein Massenverlust statt. Der Vergleich mit den Werten für  $E_{cor}$  bestätigt, dass die Korrosionsbeständigkeit maßgeblich durch die schützende Passivierungsschicht bzw. die Höhe von  $E_{cor}$  bestimmt wird.

	$m_{Rest,RT}/\%$	$m_{Rest,80^\circ C}/\%$	$m_{Rest,160^\circ C}/\%$	$E_{cor,80-130^\circ C}/mV$
Mo	100,0±0,1	100,0±0,1	99,9±0,1	445 – 380
Nb	100,1±0,1	99,1±0,1	80,9±0,1	300 – -170
Ni	99,0±0,1	32,4±0,1	0	-(20 – 60)
Ti	98,9±0,1	0	0	-(395 – 425)

**Tab. 17: Masse  $m$  von Mo, Nb, Ni und Ti nach den Auslagerungsversuchen in 30 ml konz.  $H_3PO_4$  sowie das freie Korrosionspotential  $E_{cor}$  im Temperaturbereich 80 – 130 °C.**

Zur Beurteilung von Degradationsvorgängen auf der Metalloberfläche durch den Säureangriff wurden REM-Aufnahmen herangezogen, die in Abb. 95 bis Abb. 97 für Ti, Ni und Nb

dargestellt werden. Aufgrund der hohen Korrosionsstabilität von Mo, konnten keine topographischen Veränderungen mittels REM festgestellt werden. Bei Ti, das das niedrigste freie Korrosionspotential bzw. die geringste Passivschichtstabilität aufzeigt, ist bereits nach 24 h Auslagerungszeit in 85 Gew.-%-iger  $H_3PO_4$  bei Raumtemperatur ein deutlicher Oberflächenangriff sowie eine zunehmende Porosität zu beobachten (Abb. 95). Bei 80 °C löste sich das Ti-Substrat bereits vollständig auf.



**Abb. 95:** REM-Aufnahmen von Ti a) vor der Auslagerung, b) nach 24 Stunden bei Raumtemperatur in 30 ml 85 Gew.-%-iger  $H_3PO_4$ .

Bei Ni, das mit zunehmender Temperatur einen negativen Verlauf von  $E_{cor}$  hat, findet in konz.  $H_3PO_4$  nach 24 h bei Raumtemperatur im Vergleich zu Ti ein geringeres Ausmaß der Oberflächenkorrosion statt, wobei dennoch eine feine und gleichmäßige Materialaufrauhung erkennbar ist. Bei einer Auslagerungstemperatur von 80 °C versagt der Passivierungsschutz vollständig und es findet eine hohe Ni-Oxidation statt, die in einer starken Oberflächenschädigung resultiert, dargestellt in Abb. 96, c und d. Nach 24 h findet eine Materialauflösung von ~70 Gew.% statt.

Nb unterliegt bei einem Temperaturanstieg über ~80 °C einer signifikanten Abnahme des Korrosionspotentials von etwa 300 mV auf -170 mV, das sich bei 130 °C einstellt. Auslagerungstests mit Nb zeigen in  $H_3PO_4$  bei Raumtemperatur keine Korrosionsschäden. Nach 24 h bei 80 °C sind die ersten Alterungserscheinungen der Passivschicht erkennbar, die sich durch lokale Korrosionsbereiche bemerkbar machen und zur erwähnten Abnahme von  $E_{cor}$  führen. Nach 24 h bei 160 °C nimmt die Auflösung der Passivschicht zu, das darunterliegende blanke Metall hält dem Säureangriff nicht stand und die Metallauflösung schreitet voran (siehe Abb. 97, b-d). Auffällig war bei Nb der Verlust der Duktilität nach den Auslagerungstests bei 160 °C. Diese Eigenschaft lässt sich bei Nb mit der Affinität zur Materialversprödung erklären. Durch die Diffusion von Protonen in das Innere der Metallstruktur und die anschließende Rekombination zu Wasserstoff, werden spannungsinduzierte Risse erzeugt und eine damit verbundene Metallversprödung herbeiführt. Diese physikalische Korrosionsart muss bei Nb im Hinblick auf die Anwendung als Bipolarplattenmaterial berücksichtigt werden.

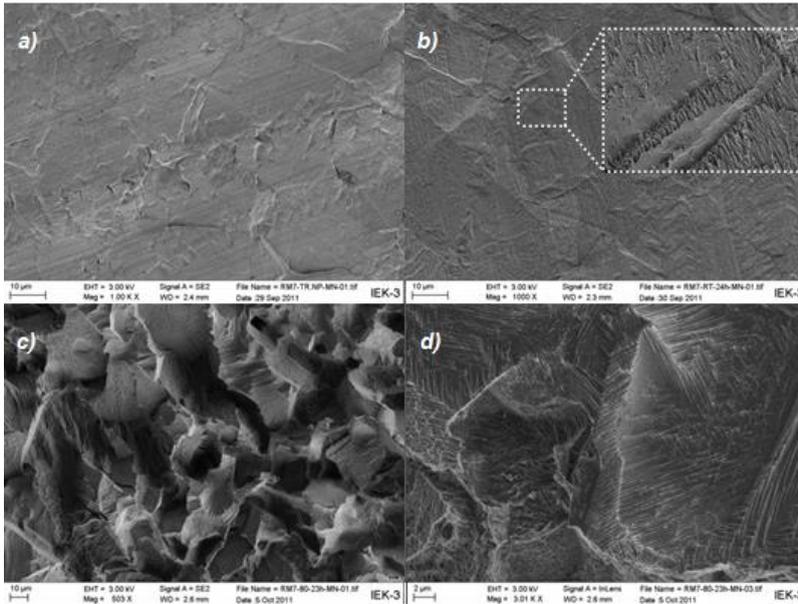


Abb. 96: REM-Aufnahmen von Ni a) vor der Auslagerung, b) nach 24 Stunden bei Raumtemperatur und c, d) jeweils nach 24 h bei 80 °C in 30 ml H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (> 85 Gew.%)

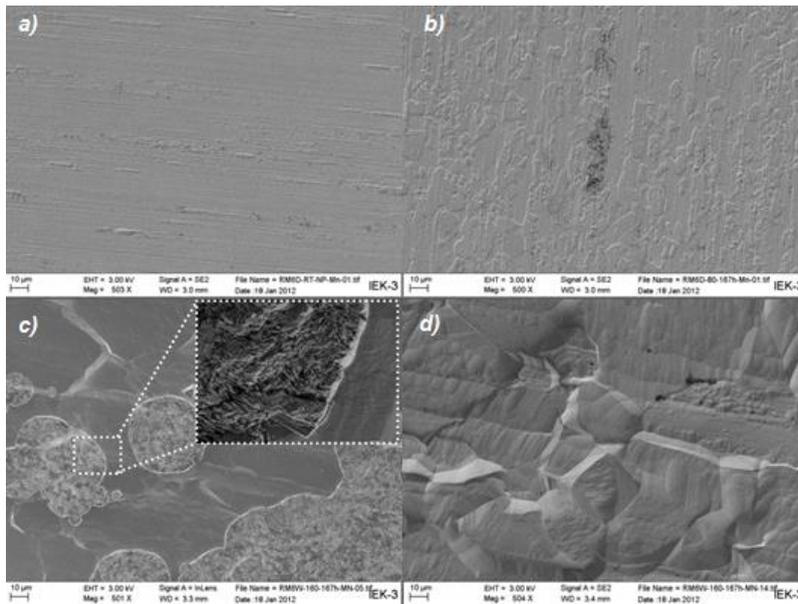
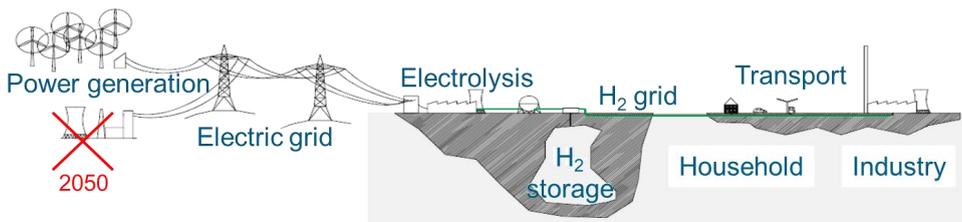


Abb. 97: REM-Aufnahmen von Nb a) vor der Auslagerung, b) nach 24 h bei 80 °C und c, d) jeweils nach 24 h bei 160 °C in 30 ml H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (> 95 Gew.%).

### 5.3 Die Elektrolyse-Pilotanlage des Wasserstofftechnikums JuHY

Auf Grund des Klimawandels und der Limitierung von CO<sub>2</sub>-Emissionen ist die Energietechnik derzeit einem starken Wandel hin zu regenerativen Energiequellen unterworfen. Die regenerativen Quellen weisen in ihrer Erzeugung nicht die zeitliche Unabhängigkeit der fossilen Energien auf. Um bei einem hohen Anteil erneuerbarer Energien im Stromnetz dennoch die Versorgungssicherheit zu gewährleisten ist es daher notwendig den Ausbau der Stromnetze voran zu treiben und große Speicher für elektrische Energie zu schaffen.

Diesem notwendigen Wandel hat die Bundesregierung mit dem 2010 vorgelegten Energiekonzept, das die Absicht erklärt eine zuverlässige und bezahlbare Energieversorgung auf Basis erneuerbaren Energien in Zukunft aufbauen zu wollen, Rechnung getragen. Für die Speicherung großer Energiemengen werden unterschiedliche Energiespeicher diskutiert, diese sind zum Beispiel Pumpspeicherwerke, Batterien und Druckluftspeicher. Auf Grund der hohen Energiedichte sind aber vor allem chemische Speichermedien, wie zum Beispiel Wasserstoff, der mittels Elektrolyse aus regenerativ erzeugtem Strom gewonnen wird, eine vielversprechende Option. Wie aus Abb. 98 ersichtlich ist, sind die möglichen Märkte für Wasserstoff, der mittels Elektrolyse aus regenerativ erzeugtem Strom gewonnen wird, der Verkehr, die direkte Rückverstromung, die Methanisierung und Einspeisung ins Erdgasnetz oder die stoffliche Nutzung in Industrieprozessen.



**Abb. 98: Wasserstoff als Speichermedium für ein zukünftiges Energiesystem auf Basis erneuerbarer Energien**

Die Gewinnung von Wasserstoff und Sauerstoff aus Wasser mittels Wasserelektrolyse ist seit über 100 Jahren weltweit etabliert. Aus Kostengründen werden weltweit jedoch nur 4 % des Wasserstoffs mittels Elektrolyse hergestellt, wohingegen die CO<sub>2</sub> behaftete Wasserstoffherzeugung aus Erdgas (77 %) und Kohle (18 %) aufgrund ihrer niedrigen Gestehungskosten den Markt dominieren<sup>18</sup>.

Aufbauend auf den Kompetenzen und Erfahrungen aus dem FuE-Vorhaben PHOEBUS Jülich zur alkalischen Elektrolyse mit Betriebsdrücken bis zu 200 bar sowie denen aus der Forschung an Brennstoffzellen mit Polymermembran wurde 2012 ein FuE-Schwerpunkt auf die Verifikation von PEM-Elektrolyseuren großer Leistung gelegt. Um noch leistungsstärkere Elektrolyseure als bisher testen zu können soll eine neue Testplattform aufgebaut werden. Bei dem geplanten Test-System liegt die Zielsetzung auf der Realisierung eines

<sup>18</sup> Wöhrle, D.: Wasserstoff als Energieträger – Eine Replik. Nachrichten aus Chemie, Technik und Laboratorium, 39 (1991), pp. 1256-1266.

bifunktionalen Aufbaus, der die Erzeugung von Wasserstoff mittels saurer und alkalischer Elektrolyse ermöglicht. Der Nutzen des Testfeldes liegt darin, dass auf Grund der Dimension, nun Tests an Systemen im energietechnisch relevanten Maßstab möglich werden. Außerdem erfolgt eine enge Anbindung an das Energy Lab 2.0 mit dem der Austausch von Daten erfolgen soll.

Das Energy Lab 2.0 ist eine virtuelle Plattform, um das Zusammenspiel der einzelnen realen Komponenten künftiger Energiesysteme zu erforschen. Die Vernetzung im Rahmen des Energy Lab 2.0 kann der Abb. 99 entnommen werden. Das Energy Lab 2.0 soll die Energiewende beschleunigen, indem es ermöglicht, neue Ansätze zur Stabilisierung der Energienetze realitätsnah zu erproben. Ein Anlagenverbund verknüpft elektrische, thermische und chemische Energieströme sowie neue Informations- und Kommunikationstechnologien. Partner im Projekt sind die Helmholtz-Zentren Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) und Forschungszentrum Jülich (FZJ).

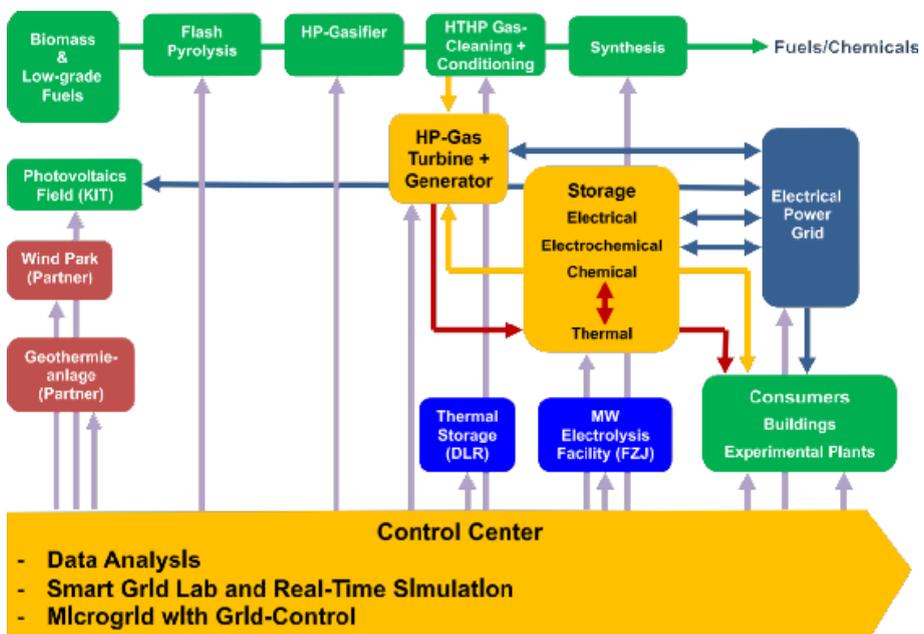


Abb. 99: EnergyLab (Quelle KIT)

### 5.3.1 Integration modularer Elektrolyseanlagen in die Energieinfrastruktur

Heute existieren im Bereich der Elektrolyse zwei kommerzielle Produkte:

- die alkalische Elektrolyse und
- die Protonen-Austausch-Membran-Elektrolyse (PEM, engl. proton exchange membrane).

Bei der alkalischen Elektrolyse wird Kaliumhydroxid (KOH) mit einer Konzentration von 20-40 Gew.-% als Elektrolyt eingesetzt. Zur Trennung von Anode und Kathode dienen

sogenannte Diaphragmen; wobei in den meisten Fällen Zirfon® (ein Diaphragma auf Zirkonoxid-Basis) Verwendung findet. Das Diaphragma ermöglicht den Transport von Hydroxidionen (OH<sup>-</sup>) während es gleichzeitig die Vermischung der auf Anode und Kathode entstehenden Gase verhindert. Als Elektroden kommen gewöhnlich Raney-Nickel-Katalysatoren zum Einsatz. Bei Raney-Nickel handelt es sich um eine Nickel-Aluminium-Legierung aus der die Gasdiffusionselektroden durch vakuumbasierte Beschichtungsverfahren auf Nickel-Lochbleche aufgebracht werden. Im Anschluss an die Elektrodenfertigung folgt ein Aktivierungsprozess, bei dem die Aluminiumbestandteile aus der Legierung herausgelöst werden, um somit eine möglichst große und damit aktive Elektrodenoberfläche zu erhalten.

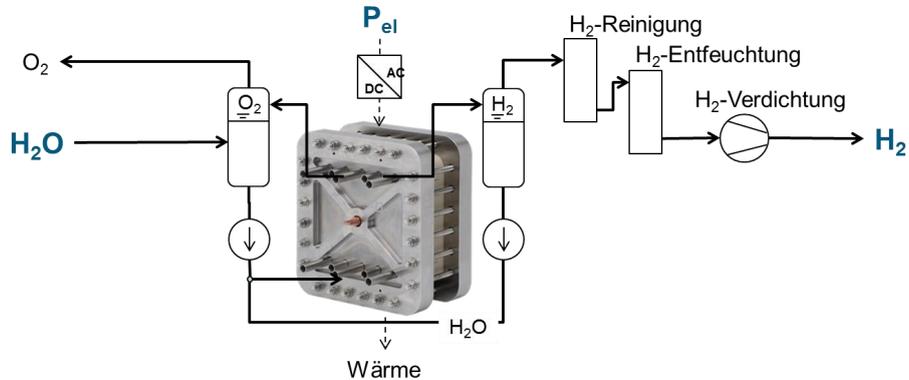
Die Protonen-Austausch-Membran-Elektrolysezelle wird mit destilliertem Wasser betrieben, das durch elektrolytische Zersetzung in Wasserstoff und Sauerstoff gewandelt wird. Statt eines Diaphragmas wird in diesem Fall eine protonendurchlässige (H<sup>+</sup>) Polymermembran zur Trennung von Anode und Kathode eingesetzt. Die Elektroden werden auf Basis der CCM-Technologie (engl. catalyst coated membrane) direkt mit der Membran verbunden. Dabei kommt standardmäßig als Kathodenkatalysator auf Kohlenstoff geträgertes Platin und als Anodenkatalysator Iridiumoxid zum Einsatz.

Alkalische Wasserelektrolyse	PEM-Elektrolyse
<p><b>Vorteile:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• etablierte Technologie</li> <li>• keine Edelmetallkatalysatoren</li> <li>• hohe Langzeitstabilität</li> <li>• große Leistungen bereits realisiert</li> </ul>	<p><b>Vorteile:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• hohe Leistungsdichte</li> <li>• hoher Wirkungsgrad</li> <li>• einfacher Systemaufbau</li> <li>• dynamischer Betrieb</li> <li>• extrem schnelle Systemantwort → Netzstabilisierungsaufgaben</li> <li>• kompaktes Design erlaubt Hochdruck-Betrieb</li> </ul>
<p><b>Herausforderungen:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Erhöhung der Stromdichte</li> <li>• Ausweitung des Teillastbereichs</li> <li>• Schnellere Dynamik des Gesamtsystems</li> <li>• Systemgröße und Komplexität („Footprint“)</li> <li>• Reduktion des Aufwands zur Gasreinigung</li> <li>• Gesamtmaterialeinsatz (Stacks momentan im diverse Tonnenmaßstab)</li> </ul>	<p><b>Herausforderungen:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• Identifikation der Kosten für 1 MW System</li> <li>• Ermittlung der möglichen Kostensenkung z.B. durch Reduktion und Substitution von Platingruppenmetallen und anderen kostenintensiven Komponenten</li> <li>• Demonstration der Langzeitstabilität</li> <li>• Scale-Up Stack und Peripherie</li> <li>• Optimierung des Verhältnisses von Materialeinsatz, Leistungsdichte, Betriebspunkt und Betriebsstrategie (Dauerstabilität, Wartung, etc.)</li> </ul>

**Tab. 18: Vor- und Nachteile der alkalischen- sowie der PEM-Elektrolyse im gegenseitigen Vergleich**

Beide auf dem Markt verfügbaren Elektrolysetechniken haben ihre spezifischen Vor- und Nachteile, die in Tab. 18 zusammengefasst sind. Für den Einsatz der Elektrolyse-Technik zur Speicherung regenerativ erzeugten Stroms hat sich jedoch noch keine favorisierte Technologie herauskristallisiert. Zurzeit werden sowohl in der Forschung als auch in der Industrie beide Technologien weiterentwickelt. Aufgrund dessen soll im unten aufgeführten

Testfeld die Möglichkeit bestehen, sowohl alkalische als auch PEM-Elektrolyseure gemäß der Systemkonfiguration aus Abb. 100 zu charakterisieren und weiterzuentwickeln, um die gewonnenen Daten dem Energy Lab 2.0 zur Validierung des virtuellen Kraftwerks zur Verfügung zu stellen.



**Abb. 100: Konfiguration eines Systems zur Charakterisierung von PEM-Elektrolyseuren**

### 5.3.1 Integriertes Versuchsfeld und multifunktionales Testfeld

Ziel ist der Aufbau einer Forschungsplattform, die eine realitätsnahe Erprobung unterschiedlicher Elektrolyseure, im > 100 kW-Maßstab, ermöglicht. Dabei soll die Möglichkeit geschaffen werden, Elektrolyseure in verschiedenen Konfigurationen vor dem Hintergrund der sinnvollen Integration modularer Elektrolyseanlagen in die Energieinfrastruktur, zu untersuchen. Das Wasserstofftechnikum mit der geplanten Testplattform von rund 0,5 MW Leistung schafft die Möglichkeit der „in operando“ Charakterisierung von Elektrolyseuren (sauer und alkalisch) im energiewirtschaftlich relevanten Maßstab. Arbeitsschwerpunkte stellen dabei die Analyse der folgenden Punkte dar:

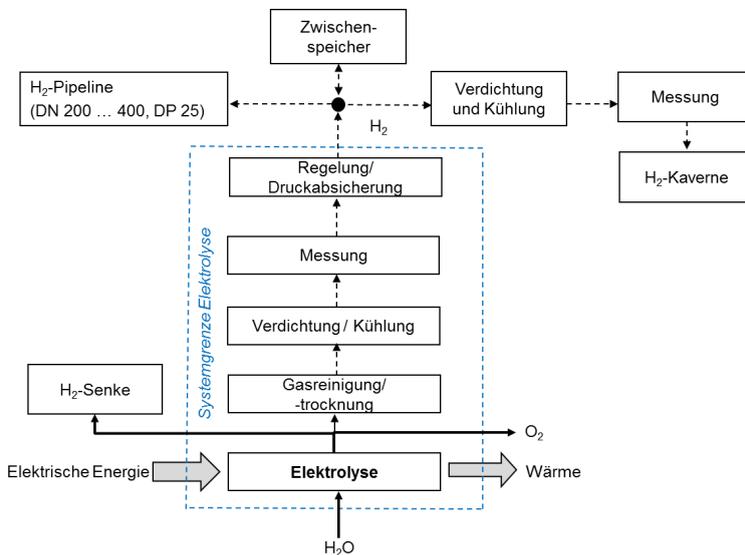
- Wechselwirkungen unter Anlagenkomponenten,
- Langzeitversuche im dynamischen Betrieb,
- Up-Scaling der Technik,
- Definition technisch interessanter Betriebsbedingungen,
- Validierung von Simulationsmodellen.

Die automatisierte Vorgabe relevanter Betriebsparameter und die ebenfalls automatisierte Erfassung der Messdaten sowie die Aufbereitung dieser Daten stellt eine Schnittstelle zu anderen Themenfeldern des Energy Labs 2.0 dar. Die Forschungsplattform selbst besteht aus unterschiedlichen Submodulen zur Energie- und Medienversorgung, die den Betrieb der zu untersuchenden Elektrolyseure ermöglichen. Das Versuchsfeld ist aufgebaut mit:

- Stromnetzkopplung
- Gleichspannungsversorgung
- Wasseraufbereitung
- Leitstand
- Multifunktionales Stack- und Systemtestfeld (alkalische und saure Elektrolyte).

Das eingehauste Testfeld ist das Kernstück der Versuchsplattform und dient der Aufstellung der unterschiedlichen Experimente und Analysegeräte. Es wird eine Elektroversorgung mit einer Leistung von rund 0,5 MW aufgebaut, die es ermöglicht unterschiedliche Stromerzeugungsprofile abzubilden. Ziel ist die Abbildung zukünftiger Stromnetze die durch die Einspeisung volatiler regenerativer Energie geprägt sind. Dadurch bietet sich die Möglichkeit die Elektrolyseure unter realitätsnahen Profilen zu betreiben und aussagekräftige Ergebnisse über Funktion und Wirtschaftlichkeit der jeweiligen Module zu erhalten.

Ein wichtiger Ausgangsstoff für die Elektrolyse und auch andere Wandlungsprozesse ist Wasser. Um einen langzeitstabilen Betrieb der Elektrolyseure zu erreichen ist es notwendig Wasser von hoher Reinheit einzusetzen. Diese Wasser soll für die Versuchsplattform zentral aufbereitet werden. Die zentrale Bereitstellung ist einerseits kostengünstig, andererseits bietet sie die Möglichkeit die Wasserqualität zentral zu analysieren und somit eine hohe Qualität sicher zu stellen und die Voraussetzungen für einen langzeitstabilen Betrieb zu schaffen.



**Abb. 101: Anbindung der Elektrolyse an die Wasserstoffinfrastruktur**

Einen entscheidenden Einfluss auf die Konzeptionierung der Elektrolyseure und deren Kopplung mit regenerativen Energien hat die Anbindung an bzw. die Integration in die Wasserstoff-Infrastruktur. Eine grafische Übersicht, über die für eine sinnvolle Einbindung notwendigen Komponenten kann Abb. 101 entnommen werden. Von den denkbaren Möglichkeiten die Elektrolyse an die Wasserstoff Infrastruktur anzubinden, ist langfristig die direkte Koppelung an eine Pipeline besonders interessant, da so der Wasserstoff einem breiten Feld von möglichen Nutzern zur Verfügung gestellt werden kann. Eine weitere interessante Möglichkeit stellt die direkte Anbindung an einen Wasserstoffspeicher dar.

Die Testplattform gibt die Möglichkeit wichtige Parameter für die unterschiedlichen Konfigurationen zu ermitteln und in bereits vorliegende Simulationen einfließen zu lassen. Das technisch einfachste Modul ist die Wasserstoffschenke. Diese dient dazu Wasserstoff,

insbesondere bei Störfällen, oder auch stark verunreinigten Wasserstoff sicher in unkritischen Wasserdampf umzuwandeln. Diese Fackel oder ein anderes System muss als sicherheitsrelevantes Bauteil immer zur Verfügung stehen.

Die Steuerung des Testfeldes erfolgt über einen zentralen Leitstand. Dort werden die Betriebsparameter der unterschiedlichen Module vorgegeben und die Messdaten werden zentral erfasst und derart aufbereitet, dass sie zur weiteren Nutzung im Rahmen des EnergyLabs weiter geleitet werden können. Es ist geplant, alle Elektrolysetechniken, auf diesem Testfeld in unterschiedlichen Leistungsklassen zu untersuchen. Für die geplanten Untersuchungen werden daher geeignete Szenarien für den Betrieb und die Systemgrenzen definiert.

## **5.4 Flexibilisierung durch integrierte Energieversorgungssysteme**

Mit Blick auf die Ziele der Bundesregierung zur Reduktion der Treibhausgase (THG) wird deutlich, dass die Energiewende in Deutschland ein sehr ehrgeiziges Projekt mit einem Planungshorizont von Jahren 35 Jahren ist. Das deutsche Energiesystem steht dabei sowohl technisch als auch strukturell vor bedeutenden Herausforderungen. Einerseits macht dies eine systematische Betrachtungsweise von Struktur, Komponenten und Wechselwirkungen der Energieversorgungssysteme notwendig. Andererseits müssen die Wechselwirkungen der Wirtschaftsbereiche mit dem Energiesektor sowie die Beziehungen mit unseren Nachbarländern in eine gesamtsystemische Betrachtung einbezogen werden. Kriterien, die zur Bewertung der Qualität eines zukünftigen Energiesystems herangezogen werden, sind unter anderem Stabilität, Wirtschaftlichkeit, Nachhaltigkeit und Akzeptanz.

Einen wesentlichen Impuls zur Transformation der Energiesysteme gibt der massive Ausbau nicht steuerbarer Stromerzeugung aus erneuerbaren Energien, die durch ein fluktuierendes Aufkommen und deutlich reduzierte jährliche Benutzungsdauern gekennzeichnet sind. Eine in dieser Weise veränderte Energieversorgung erfordert angepasste Energieinfrastrukturen, die einerseits auf verbesserten Systemen heutiger Prägung, vor allem jedoch auf dem Einsatz neuer, zukunftsweisender Technologien aufbaut. Dabei kommen nur Technologien in Betracht, deren Reifegradentwicklung einen ersten Einsatz bis spätestens 2030 sicherstellt. Nur so werden die zur Zielerreichung tragfähigen Technologielösungen identifiziert und deren Marktdurchdringung bis 2050 ermöglicht.

### **5.4.1 Potenzial elektrochemischer Systeme zur Flexibilisierung von Energiemärkten**

Wasserstoffbasierte Energieversorgungssysteme weisen mit Bezug auf die Energiespeicherung und den Energietransport deutliche Vorteile gegenüber konventionellen Systemen im Hinblick auf Effizienz, Vielseitigkeit und Verschleiß auf. Die Herstellung von Wasserstoff mithilfe der Elektrolyse, dessen großtechnische Speicherung, kontinuierlicher Transport, flächendeckende Verteilung und Nutzung in verschiedenen Einsatzbereichen haben daher eine herausragende Bedeutung für eine nachhaltige Energiebewirtschaftung. Über die Nutzungsmöglichkeit als Kraftstoff für Fahrzeugantriebe hinaus verfügt Wasserstoff über vielseitige weitere Einsatzmöglichkeiten (Abb. 102). Auf diese Weise kann erneuerbare Energie vom Stromsektor in die Bereiche Verkehr und Industrie übertragen werden, die für eine THG-Reduktion entsprechend den Zielen der Bundesregierung sonst nur schwer zugänglich sind. Mithilfe der Elektrolyse steht damit eine wesentliche Option zur flexibleren Gestaltung der Stromversorgung zur Verfügung. Lokale Stromüberschüsse, die nicht unmittelbar zur Bedarfsdeckung in Stromnetzen nutzbar sind, können auf diesem Wege einem geeigneten Speicher zugeführt und für weitere Nutzungen bereitgehalten werden. Eine solche sektorenübergreifende Energie- und Rohstoffbereitstellung erfordert insbesondere die Vernetzung von Strom- und Gasinfrastrukturen, einschließlich neuartiger großtechnischer Speicher. Art und Umfang der dafür einzusetzenden technologischen Optionen sind davon abhängig, in welcher Intensität sich erneuerbare Energien technisch, ökonomisch und ökologisch sinnvoll nutzen lassen. Dieser Aspekt kann durch den Import erneuerbarer Energien begleitet werden.

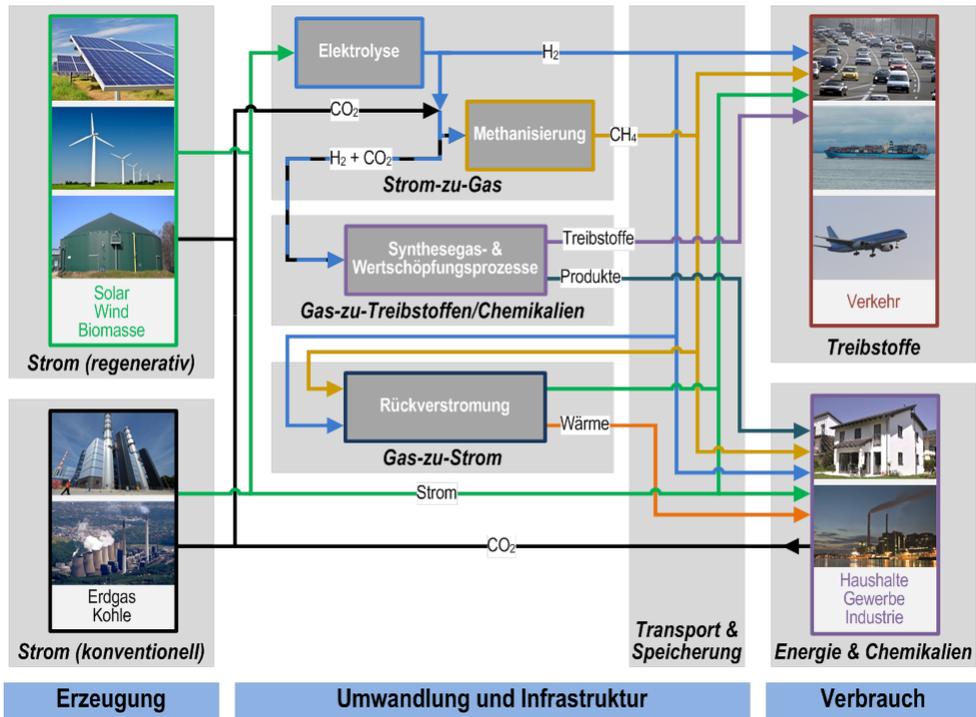


Abb. 102: Energie- und Rohstoffpfade mit Wasserstoff

#### 5.4.2 Beurteilung neuer Technologien im Kontext des Gesamtsystems

Die Erreichung eines anwendungs- und marktgerechten Reifegrades von elektrochemischen Systemen ist noch mit großen Herausforderungen bei der Erforschung und Entwicklung passgenauer Detaillösungen verbunden. Dies gilt auch für die Komponenten einer zukünftigen  $H_2$ -Versorgungsinfrastruktur. Eine wesentliche Aufgabenstellung, die zukünftig in der Verfahrens- und Systemanalyse (VSA) bearbeitet wird, besteht in der qualifizierten Beurteilung dieser neuen Technologien im Kontext des sich ändernden energiewirtschaftlichen Gesamtsystems. Diese Aktivitäten sind unter anderem in die HGF-Initiative „Energy System 2050“ und in das Projekt „Technikbasierte Energiesystemanalyse“ (TESA) an der RWTH Aachen University eingebunden. Die Komplexität des energiewirtschaftlichen Gesamtsystems erfordert eine Unterteilung des Bearbeitungsumfangs in Teilziele der geplanten Aktivität, die nachfolgend näher erläutert werden:

- Erarbeitung von Konzeptentwürfen für integrierte Energieversorgungssysteme
- Modellentwicklung und Bewertungsverfahren
- Erreichbare Treibhausgasminderung

### *Erarbeitung von Konzeptentwürfen für integrierte Energieversorgungssysteme*

Ausgehend von den Treibhausgasemissionen der Verursacherbereiche Stromerzeugung, Verkehr, Haushalte, Industrie, Handwerk und Gewerbe werden technologische Konzepte und Prozesse zur Treibhausgasminderung entworfen. Dabei sollen auch Wege aufgezeigt werden, die eine THG-Reduktion in Höhe der angestrebten 80 % gegenüber dem Referenzjahr 1990 ermöglicht. Eine anschließende grobe vergleichende Bewertung der Konzeptentwürfe führt zur Selektion vielversprechender Bereitstellungs- und Nutzungskonzepte für erneuerbare Energien und Wasserstoff. Bereits entwickelte Modellierungswerkzeuge zur zeitabhängigen und orts aufgelösten Bestimmung der Residuallasten werden so weiterentwickelt, dass unter Berücksichtigung großtechnischer Gasspeicher, der Strom- und Gasnetze sowie der sektorspezifischen Energie- und Rohstoffnutzungen ein Gesamtentwurf für ein nachhaltiges Energiesystem darstellbar wird. Ein wichtiges Element dabei ist die Untersuchung der strom- und gasnetzbezogenen Abnahmeprofile von Haushalten, Kleinverbrauchern und Industriekunden, die sich aufgrund einer zunehmenden Selbstversorgung mithilfe dezentraler EE-Anlagen und Speicher substantiell ändern könnten. Darüber hinaus ist auch die sektorspezifische, räumlich und zeitlich aufgelöste Quantifizierung des energetischen und stofflichen Wasserstoffbedarfs Bestandteil der Analyse. Unterscheidungsmerkmale der hier erarbeiteten Konzeptentwürfe sind beispielsweise die Ausprägung der Nutzung erneuerbarer Energien, die angelegten Nutzungsmöglichkeiten und die daraus resultierenden notwendigen Infrastrukturen.

### *Modellentwicklung und Bewertungsverfahren*

Eine Besonderheit der Bearbeitung des hier beschriebenen Forschungsthemas liegt in der Entwicklung und Anwendung von Modellen mit anforderungsgerechtem Detaillierungsgrad. Besonders komplexe sowie hochdynamische Systeme werden in Teilmodellen in hoher zeitlicher Auflösung beziehungsweise mit hohem physikalisch-technischen Detaillierungsgrad modelliert. Für die Bewertung der Konzept- und Szenarioentwürfe sind hingegen ganzheitliche Modelle mit reduziertem Detaillierungsgrad einzusetzen. Dementsprechend werden auch unterschiedliche Bewertungsverfahren, beispielsweise hinsichtlich der Wirtschaftlichkeit der Konzeptentwürfe in Abhängigkeit der Zielmärkte entwickelt. Einen Schwerpunkt in diesem Bereich bildet die Überführung einzelner Modellansätze zur Abbildung der Strom- und Gasversorgung in ein Gesamtmodell. Ziel ist es dabei, anhand definierter Zeitschritte auf dem Weg zu einer Vollversorgung relevanter Wasserstoffnutzer in Verkehr und Industrie, Maßnahmen für einen wirtschaftlich optimierten Aufbau einer integrierten Strom- und H<sub>2</sub>-Versorgungsinfrastruktur abzuleiten.

### *Erreichbare Treibhausgasminderung*

Mithilfe von Simulationsdurchläufen werden schließlich konzeptspezifische Daten bereitgestellt, die zur Ergebnisbewertung und Empfehlungsabgabe im Hinblick auf eine Konzeptumsetzung und -implementierung befähigen sollen. Dabei wird jeweils eine vollständige Umsetzung der Konzept- und Szenarioentwürfe unterstellt. Diese Daten sollen auch als Basis für weitergehende Analysen dienen. Über die zuvor genannten Arbeitsinhalte hinaus soll auch geprüft werden, welche Randbedingungen bei der Übertragung der für Deutschland gültigen Ergebnisse in das Europäische Ausland beziehungsweise in einen weltweiten Ansatz zu beachten sind. Dafür wird aktuell ein internationales Netzwerk geknüpft.

Weiterhin sind auch die Potentiale an erneuerbaren Energien zu analysieren und zu bewerten, die abseits der heute intensiv diskutierten Power-to-Gas Pfade liegen. Beispielsweise im Schwerlastverkehr und in der Industrie werden auch langfristig kohlenstoffhaltige Energieträger zum Einsatz kommen. Das Aufkommen an sinnvoll nutzbarer Biomasse muss daher in einem strategischen Ansatz denjenigen Nutzungen zugeführt werden, die einen bestmöglichen Einsatz unter wirtschaftlichen und ökologischen Kriterien erlauben. Ein wesentliches Ziel ist dabei die Erarbeitung einer umfassenden Kraftstoffstrategie, die eine mengenmäßige Zuordnung der begrenzt vorhandenen erneuerbaren Energien zu den Bedarfssegmenten des Transportsektors zum Ergebnis hat.

### *Erwartete Ergebnisse*

Die in diesem Abschnitt skizzierten Forschungsziele sollen durch ein umfassendes Datenmaterial hinsichtlich der System- und Prozessauslegungen, Infrastrukturkosten sowie zeitlich und räumlich aufgelöster Energieflüsse verifiziert werden. Darüber hinaus dürfen spezifische Handlungsempfehlungen erwartet werden. Mit dem Ziel der Entwicklung eines Gesamtenergiekonzepts zur Erfüllung der THG-Reduktionsziele und mit dem besonderen Fokus auf die Rolle von Wasserstoff als einem zentralen Element zukünftiger Energieversorgungssysteme, werden unter anderem die folgenden Ergebnisse erwartet:

- realistische zeitlich und räumlich aufgelöste Entwicklungen des Angebots an erneuerbaren Energien sowie der Nachfrage nach Strom und Wasserstoff
- verbesserte Bewertungsmöglichkeit für Einzeltechnologien auf der Basis eigens dafür erarbeiteter Teilmodelle mit hohem Detaillierungsgrad; dabei Ableitung technologie-spezifischer F&E-Themen, z.B. bezüglich neuer Materialien
- Identifikation zielführender Konzeptentwürfe auf Basis einer Gesamtsystemmodellierung mit dem Ziel der Konkretisierung infrastruktureller Anpassungen im Zeitverlauf
- Handlungsempfehlungen für Stakeholder in Politik und Wirtschaft, z.B. hinsichtlich der Gestaltung von Rahmenbedingungen für eine zügige Markteinführung von Wasserstoff als Kraftstoff beziehungsweise als Rohstoff für die Industrie oder von Marktbedingungen in Strommärkten mit hohen Anteilen an erneuerbarer Energie
- Chancen eines europa- beziehungsweise weltweiten Markterfolgs von Wasserstofftechnologien auf der Grundlage von Untersuchungen zum räumlich aufgelösten Potenzial der Nutzung THG-arter Stromproduktion.



# 6

## Daten

### Zahlen, Daten und Fakten

- IEK-3: Das Institut für Elektrochemische Verfahrenstechnik
- Kompetenzen und Ausstattungen im Überblick
- Publikationen, Technologietransfer und Ressourcen
- Gremienarbeit
- Beiträge zu Messen und Ausstellungen
- Anfahrtsbeschreibung
- Abkürzungsverzeichnis

## 6.1 IEK-3: Das Institut für Elektrochemische Verfahrenstechnik

Die Entwicklungen des IEK-3 im zurückliegenden Berichtszeitraum 2013 und 2014 standen weitgehend unter dem Einfluss des durch die Helmholtz-Gemeinschaft (HGF) koordinierten Migrationsprozesses von der zweiten Programm-orientierten Förderphase (PoF-II: 2010 bis 2014) zur dritten Phase (PoF-III: 2015 bis 2019), für die zukünftige Arbeitsinhalte und –ziele sowie die notwendigen institutionellen Fördermittel neu definiert wurden. Diese Novellierung des Arbeitsprogramms ist im Zusammenhang mit den großen Herausforderungen der Energiewende und den damit einhergehenden forschungspolitischen Vorgaben zu sehen und hat im IEK-3 zwei wesentliche Veränderungen ausgelöst, deren Umsetzung sicher noch bis in den nächsten Berichtszeitraum hineinreichen wird.

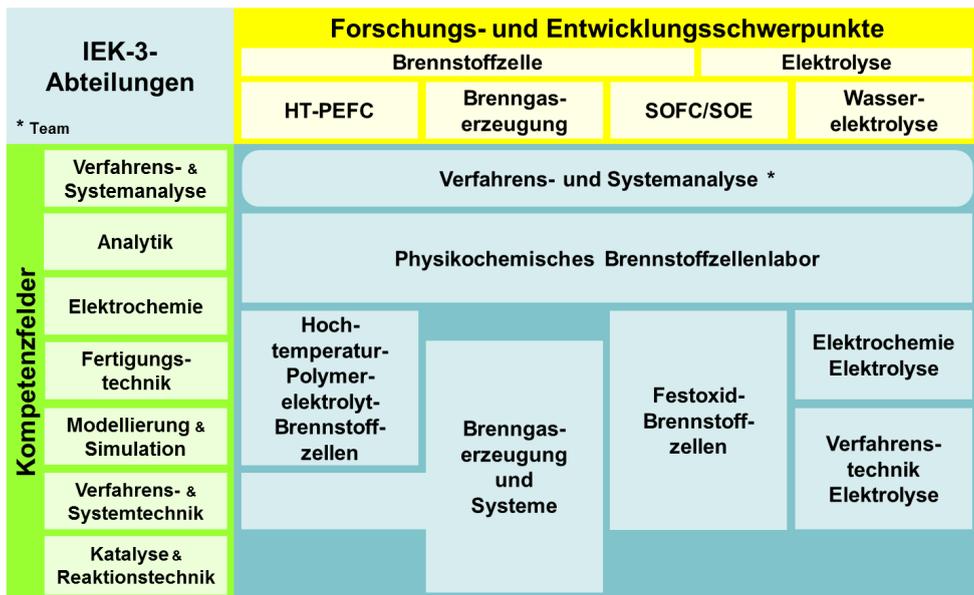


Abb. 103: Fachabteilungen im Kreuzungsbereich von Kompetenzfeldern und FuE-Schwerpunkten

Zum einen wurde die Elektrolyseforschung und –entwicklung ausgeweitet. Da dies weitgehend mit Ressourcen der DMFC-Aktivitäten umgesetzt wurde, beschränkt sich die DMFC-Forschung derzeit auf den Erhalt des wissenschaftlich-technischen Know-how. Gleichzeitig wurden aus den bestehenden Einheiten für DMFC- und PEM-Elektrolyse-Forschung zwei Abteilungen für Niedertemperaturelektrolyse gebildet, die sich mit elektrochemischen und mit verfahrenstechnischen Fragestellungen auseinandersetzen. Darüber hinaus wird zukünftig auch der Hochtemperaturelektrolyse (SOE) eine größere Aufmerksamkeit geschenkt. Eine zweite Entwicklung steht im Zusammenhang mit der Neuausrichtung der Verfahrens- und Systemanalyse (VSA) auf die technikbasierte Bewertung von Energiesystemen von einzelnen Anlagen bis zu energietechnischen Infrastrukturen eines Landes wie die VSA am Beispiel von Deutschland bereits zeigen konnte. Dabei steht die Nachhaltigkeit durch den Einsatz erneuerbarer Energien für alle Energiesektoren im Fokus der Betrachtungen.

Die PoF-induzierte Programmatik hat somit für das IEK-3 zu einer Verschlankeung auf vier FuE-Themen geführt. Die Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (HT-PEFC), die Brenngaserzeugung aus flüssigen Energieträgern, die zur Wasserstoffversorgung von Brennstoffzellen genutzt werden sollen, die keramische Hochtemperatur-Brennstoff- und Elektrolysezelle SOFC/SOE sowie die Niedertemperaturelektrolyse gehören nun zum FuE-Portfolio des IEK-3, das in Abb. 103 mit der entsprechenden Kompetenzzuordnung dargestellt ist. Bei enger Fokussierung auf konkrete Anwendungsfelder ist es dem IEK-3 möglich, diese FuE-Schwerpunkte jeweils von den grundlegenden Phänomenen bis zur Verfahrenstechnik des Gesamtsystems mit Teams überkritischer Größe zu bearbeiten. Dabei werden auch Synergien zwischen den Fachdisziplinen genutzt und die Umsetzung von der Theorie bis zum Technikumsmaßstab durchzuführen. Als strategische Orientierungsbasis dient dem IEK-3 die technikbasierte Verfahrens- und Energiesystemanalyse der VSA, die zukunftsweisende Prozesse und Energiesysteme analysiert, konzipiert, auslegt, bewertet und vergleicht. Die diesbezügliche Herangehensweise berücksichtigt technische, ökonomische sowie ökologische Aspekte und führt zu quantitativen Aussagen über die Leistungsfähigkeit und Nachhaltigkeit eines Energiesystems. Darüber hinaus werden die anwendungsorientierten FuE-Arbeiten von grundlegender Forschung zur Auflösung von Strukturwirkungsbeziehungen mittels gezielt ausgewählter und weiterentwickelter Analysemethoden begleitet. Schwerpunkt dieser Aktivitäten liegt im Bereich des Physikochemischen Brennstoffzellenlabors, das synergetisch mit den technologieorientierten Fachabteilungen des Instituts zusammenarbeitet.



Institut für Energie- und Klimaforschung  
IEK-3: Elektrochemische Verfahrenstechnik  
Forschungszentrum Jülich GmbH  
52425 Jülich



**Institutsleiter**  
Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten  
Tel.: 02461-61-3076  
e-mail: [d.stolten@fz-juelich.de](mailto:d.stolten@fz-juelich.de)

Jülich stellt im Brennstoffzellen- und Elektrolysebereich die größte institutionelle Forschungsmannschaft in Europa mit etwa 150 Mitarbeitern. Davon ist etwa die Hälfte im Bereich der SOFC/SOE tätig, wovon wiederum etwa 1/5 auf die entsprechenden Aktivitäten des IEK-3 entfallen. In der SOFC/SOE sind drei weitere Institute tätig. Das IEK-1 ist zuständig für die Werkstoffherstellung, das IEK-2 ist verantwortlich für die Werkstoffprüfung und Stahlforschung, das IEK-9 bearbeitet die Elektrochemischen Grundlagen und das Zentralinstitut für Engineering und Technologie (ZEA-1) kümmert sich um den Stackbau. Mit 88 der etwa 104 Mitarbeiter des IEK-3 werden die technologische Entwicklung bei den Niedertemperatur-Brennstoffzellen und Elektrolyseuren sowie die Energiesystemanalyse vorangetrieben. Für die Arbeitsfelder des IEK-3 gibt es einen Koordinator, der als Ansprechpartner für übergreifende Themen gerne bereitsteht.



**Ständiger Vertreter des  
Institutsleiters und  
Wissenschaftlicher  
Koordinator**

Dr.-Ing. Bernd Emonts

Tel.: 02461-61-3525

e-mail: [b.emonts@fz-juelich.de](mailto:b.emonts@fz-juelich.de)

## 6.2 Abteilungskompetenz im Überblick

### Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

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 die Strukturwirkungsbeziehungen von Elektrodenschichten untersucht. Umfassende Modellierungen vertiefen das Prozessverständnis. Simulationsarbeiten auf Komponenten-, Zell- und Stack-Ebene unterstützen die Entwicklung von luft- und flüssigkeitsgekühlten Stacks mit hoher volumen- und gewichtsbezogener Leistungsdichte.

### Brenngaserzeugung und Systeme

H<sub>2</sub>, hergestellt aus handelsüblichen Kraftstoffen, ermöglicht den frühen Einsatz der Brennstoffzellentechnik. Die Arbeiten sind auf die Reformierung im Leistungsbereich zwischen 3 und 50 kW<sub>el</sub> von Mitteldestillaten – Kerosin, Diesel, Heizöl – und dieselähnlichen Biokraftstoffen fokussiert. Als Brennstoffzellen werden bei der Entwicklung von Bordstromversorgungssystemen im mobilen Bereich eigene HT-PEFC-Stacks zwischen 5 und 10 kW<sub>el</sub> bevorzugt. Darüber hinaus kommen PEFC- und SOFC-Systeme mit Dieselreformierung in Kooperation mit Projektpartnern und im Rahmen der Systemanalysen in Betracht.

Anlagen, Verfahren, Methoden

#### Einrichtungen

- Teststände zur elektrochemischen Charakterisierung von MEAs
- Teststände zur elektrochemischen Untersuchung von Stacks bis 5 kW<sub>el</sub>
- Apparaturen zur Herstellung von Gasdiffusionselektroden

#### Modelle

- Simulationsmodelle zur Beschreibung von Stoff-, Ladungs- und Wärmetransportprozessen in Zellen und Stacks
- Charakterisierung poröser Strukturen
- Unterstützung durch High-Performance-Computing (HPC)

#### Einrichtungen

- Teststände zur Untersuchung von Reaktoren und Gesamtsystemen
- Teststände zum Screening und zur Untersuchung von Katalysatoren hinsichtlich Aktivität und Selektivität
- Analysegeräte zur Konzentrationsbestimmung (GC, GC/MS, NDIR, FTIR) von Reaktionsgasen
- Apparaturen zur fraktionellen Destillation von Kraftstoffen

#### Modelle

- CFD-Simulationsprogramme zur Auslegung von Reaktoren und Systemen

Ansprechpartner



Prof. Dr. Werner Lehnert  
Tel.: 02461-61-3915  
e-mail: [w.lehnert@fz-juelich.de](mailto:w.lehnert@fz-juelich.de)



Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters  
Tel. 0261-61-4260  
e-mail: [ra.peters@fz-juelich.de](mailto:ra.peters@fz-juelich.de)

## Festoxid-Brennstoffzellen

## Elektrochemie Elektrolyse

### Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Wissenschaftlich-technische Kernkompetenz ist die Entwicklung und Optimierung von Stacks und Systemen für Hochtemperatur-Brennstoffzellen für stationäre und mobile/portable Anwendungen. Hierzu werden Stacks sowie Anlagen und Anlagenkomponenten konzipiert, ausgelegt, konstruiert, aufgebaut und getestet. Zur Optimierung und Konzeptbewertung werden parallel zu den experimentellen Untersuchungen thermomechanische und verfahrenstechnische Modelle entwickelt. Schwerpunkte sind elektrochemische Charakterisierung von Stacks und Entwicklung neuer Anlagen-, Steuerungs- und Regelungskonzepte sowie von Komponenten gemeinsam mit der Industrie und deren Test und Bewertung.

Fortschrittliche PEM-Elektrolyseure ermöglichen die wirtschaftliche  $H_2$ -Erzeugung aus regenerativen Stromüberschüssen. Unterstützt von Projektpartnern aus Forschung und Industrie werden Membran-Elektroden-Einheiten (MEAs) entwickelt, die mit weniger Platingruppemetallen für die katalytischen Reaktionen bei vergleichbaren Leistungen auskommen oder die vollständige Substitution dieser Metalle erlauben. Neue Membrantypen sollen geplanten Großsystemen zu ausreichender Stabilität verhelfen. Weitere Arbeitsthemen sind die Identifikation kostengünstiger Materialien und die Entwicklung von reproduzierbaren Herstellverfahren für die MEA-Entwicklung und Produktion.

---

### Anlagen, Verfahren, Methoden

#### Teststände

- Charakterisierung: Hochtemperatur-Wärmeaustauscher bis  $850\text{ °C}$  @  $200\text{ m}^3$  Luft/h
- Charakterisierung: Reformier- und Nachverbrenner für Stacks bis 5 kW
- Charakterisierung: 20 kW-System
- Elektrochemische Charakterisierung: Stacks von 100 W bis 10 kW im Brennstoffzellen- und Elektrolysebetrieb

#### Modelle

- CFD/FEM-Modelle zur Ermittlung der Strömungs- und Spannungsverteilung in Stacks und Anlagenkomponenten
- Simulationsmodelle zur Auslegung von Brennstoffzellenanlagen

#### Einrichtungen

- Teststände zur Charakterisierung von Elektrokatalysatoren (Rotierende-Scheiben-Elektrode)
- Teststände zur Charakterisierung von Membranen (Gaspermeationsmessungen, Fluor-Release-Rate)
- Teststände zur elektrochemischen Charakterisierung von CCMs
- Teststand zur elektrochemischen Untersuchung von bis  $30\text{ kW}_{el}$
- Beschichtungsanlage (Rolle-zu-Rolle) zur kontinuierlichen Elektrodenherstellung

---

### Ansprechpartner



Prof. Ludger Blum  
Tel.: 02461-61-6709  
e-mail: [l.blum@fz-juelich.de](mailto:l.blum@fz-juelich.de)



Fr. Dr. Wiebke Lücke  
Tel. 0261-61-9073  
e-mail: [w.lueke@fz-juelich.de](mailto:w.lueke@fz-juelich.de)

## Verfahrenstechnik Elektrolyse

## Physikochemisches Brennstoffzellenlabor

### Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Ausgehend von neuen Konzeptideen werden Elektrolysestacks und -systeme entwickelt und modelliert. Zielsetzung ist die Verbesserung von Effizienz, Leistungsdichte und Haltbarkeit bei vermindertem Materialeinsatz. Die Validierung erfolgt über Komponententests bis hin zur Charakterisierung ganzer Stacks und Systeme. Mit Projektpartnern werden Beschichtungen, Stackkomponenten, Stacks und Systeme optimiert und charakterisiert. Im Zusammenspiel mit den im Technikumsmaßstab automatisierten Herstellungsmethoden stellen diese Arbeiten eine wichtige Brückenfunktion zwischen Wissenschaft und Technik dar.

Bei fortschreitender, technischer Entwicklung neuer zukunftsweisender Energiesysteme gewinnen wissenschaftliche Arbeiten zum Verständnis grundlegender Phänomene zunehmend an Bedeutung. Daher befasst sich die Abteilung mit der umfassenden Auflösung von Material-/Struktureigenschaften sowie physiko- und elektrochemischen Prozessen. 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 fluiddynamische und elektrochemische Leistungsfähigkeit zu bestimmen.

---

### Anlagen, Verfahren, Methoden

#### Einrichtungen

- Teststände zur elektrochemischen Untersuchung von Elektrolyseuren bis 100 kW<sub>el</sub> und Brennstoffzellen (DMFC)
- Visualisierungstests
- Korrosionsprüfstände, zur Evaluation von Beschichtungen
- Untersuchung von Ionenauschermaterialien mit gezielt verunreinigten Medien
- Laserbeschichtung zur lokalen Modifikation von Oberflächen
- Roboteranlage zur reproduzierbaren Herstellung von Stacks

#### Modelle

- Beschreibung des Stoff-, Ladungs- und Wärmetransports

#### Einrichtungen und Methoden

- Bildgebende Analysemethoden: Hochauflösendes Rasterelektronenmikroskop (H-REM) mit EDX-Analytik, Lichtmikroskope, konfokales Laserscanmikroskop
- Ortsaufgelöste Analysemethoden: Segmentierte Zellentechnologie (SCT), Magnetotomographie und Massenspektroskopie (SRMS)
- Physikalisch-chemische Analysemethoden: Thermogravimetrische Analyse (TG, TGA), dynamische Differenzkalorimetrie (DSC), Kontaktwinkelmessung (KF-Analytik), Impedanzspektroskopie/CV, RDE, Klimaschrank, Zugprüfmaschine mit Klimakammer, BET und Standardporosimeter, Partikelgrößen-Meßgerät

---

### Ansprechpartner



Dr.-Ing. Martin Müller  
Tel.: 02461-61-1859  
e-mail: [mar.mueller@fz-juelich.de](mailto:mar.mueller@fz-juelich.de)



PD Dr. Carsten Korte  
Tel.: 02461-61-9035  
e-mail: [c.korte@fz-juelich.de](mailto:c.korte@fz-juelich.de)

## Verfahrens- und Systemanalyse

Arbeitsgebiete, Leistungsangebote

Auswahl, Entwicklung und Implementierung zukünftiger Energiesysteme erfordern gesamtsystemische Ansätze, die hinsichtlich ihrer Nachhaltigkeit und Wirtschaftlichkeit analysiert und bewertet werden. Grundlage dafür sind technoökonomische Vergleiche konkurrierender Technologien der Energieumwandlung und -speicherung. Durch die breite experimentelle Basis und das weiterreichende Modeling im IEK-3 können Energiesysteme konzipiert, modellmäßig beschrieben und mit konkurrierenden Techniken realitätsnah verglichen sowie Entwicklungspotenziale und Defizite aufgezeigt werden. Studien für die Industrie werden auch mit Informationsschutz durchgeführt und Empfehlungen für die Politik auf neutraler Basis erarbeitet.

---

Anlagen, Verfahren, Methoden

### Methoden

- Prozessanalyse und -optimierung (Fluent, AspenPlus)
- Energiesystemmodellierung (Datenbanken, Matlab)
- Dynamische Simulation (Matlab/Simulink)
- Well-to-wheel Analysen (Tabellenkalkulation)
- Bewertung von Energieausbeuten (Datenbanken, GIS)
- Technologie-Benchmarking
- Ökonomische Bewertungen (SWOT, WACC, CAPM, Monte Carlo Simulation)

---

Ansprechpartner



Dr.-Ing. Thomas Grube  
Tel.: 02461-61-5398  
e-mail: [th.grube@fz-juelich.de](mailto:th.grube@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 drei und mehr referierte Beiträge des IEK-3 veröffentlichten, waren das Journal of Hydrogen Energy (2013: 13, 2014: 8), das Journal des 13<sup>th</sup> International Symposium on SOFCs (2013: 5), Electrochimica Acta (2014: 4), das Journal of Power Sources (2013: 3; 2014: 3), das Journal of the Electrochemical Society (2013: 2, 2014: 3), das Journal of Fuel Cell Science and Technology (2013: 3) und Fuel Cells (2014: 3).

Die wichtigsten Konferenzen mit IEK-3-Beteiligungen waren 2013 das 13<sup>th</sup> International Symposium on SOFCs in Okinawa, Japan mit 8 Beiträgen, das 4<sup>th</sup> European PEFC & H<sub>2</sub> Forum in Luzern, Schweiz mit 7 Beiträgen, die European Summer School on Fuel Cell, Battery and Hydrogen Technology in Athen, Griechenland mit 6 Beiträgen, die 3<sup>rd</sup> ICEPE: Transition to Renewable Energy Systems in Frankfurt mit 5 Beiträgen und das 224<sup>th</sup> ECS Meeting in San Francisco, USA mit 5 Beiträgen. 2014 beteiligte sich das IEK-3 mit 11 Beiträgen an der 20<sup>th</sup> WHEC in Gwangju, Korea und mit 4 Beiträgen am 11<sup>th</sup> European SOFC & SOE Forum in Luzern, Schweiz. Außerdem beteiligte sich das IEK-3 mit jeweils 3 Beiträgen am Jahrestreffen der ProcessNet-Fachgruppe Energieverfahrenstechnik in Karlsruhe sowie am 11<sup>th</sup> Symposium on Fuel Cell and Battery: Modelling and Experimental Validation in Wintherthur, 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 2013 und 2014 neun Doktorarbeiten in den FuE-Schwerpunkten HT-PEFC (7), DMFC (1), und BGS (1) sowie zwei Dissertation zur Bewertung von zukunftsweisenden Energiesystemen fertiggestellt. Die Anzahl der auf die beiden Jahresscheiben bezogenen Promotionsabschlüsse können der Tab. 19 entnommen werden.

Zur Gewährleistung eines substanziellen Wissens- und Technologieaustauschs beteiligte und beteiligt sich das IEK-3 an zahlreichen nationalen und internationalen FuE-Projekten (2013: 44; 2014: 40; siehe Tab. 19), die von der Europäischen Kommission (EC; 2013: 11; 2014: 11), den Bundesministerien für Wirtschaft (BMWi; 2013: 11; 2014: 7), für Bildung und Forschung (BMBF; 2013: 6; 2014: 10) sowie für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung (BMVBS; 2013: 1) und verschiedenen Ministerien der Länder Nordrhein-Westfalen und Bayern (2013: 4; 2014: 4) sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG; 2013: 2; 2014: 2) finanziell gefördert oder von der Wirtschaft (2013: 9; 2014: 6) finanziert wurden. Dabei übernahm das IEK-3 in einigen Projekten auch die Leitung und Koordination.

Aus der Zusatzförderung der Helmholtz-Gemeinschaft wurden während des zweijährigen Berichtszeitraums insgesamt vier grundlegende und systemorientierte FuE-Projekte zu Batterien, Elektrolyseuren sowie Membranen substanziell unterstützt und von den ausführenden Forschungseinrichtungen, zu denen auch das IEK-3 gehört, auf die Implementierung in die neue, 2015 gestartete PoF-Programmatik vorbereitet. Weitere Bausteine zum geordneten Technologietransfer sind die zahlreichen Patentanmeldungen (2013: 9, 2014: 12; siehe Tab. 19) und Patenterteilungen (2013: 11, 2014: 6; siehe Tab. 19) im Berichtszeitraum.

Jahr		2013	2014
<b>Publikationen</b>	Referierte Journale <sup>1)</sup>	37	37
	Bücher und Journale	20	3
	Aufsatz in einem Buch	9	6
	Dissertationen	4	7
<b>Technologie- transfer</b>	Laufende Drittmittelprojekte	44	40
	HGF-Initiativen & Portfolios	4	4
	Patentanmeldungen	9	12
	Patenterteilungen	11	6
<b>Ressourcen<sup>2)</sup></b>	Personal (PoF <sup>3)</sup> /Drittmittel)	110 (66/38)	104 (55/42)
<b>Erläuterungen</b>	<sup>1)</sup> nach ISI-Zitationsindex <sup>2)</sup> Angaben in PJ/a <sup>3)</sup> PoF: Programmorientierte Förderung		

**Tab. 19: Kerndaten des IEK-3 für 2013 und 2014**

Das IEK-3 verfügte im Berichtszeitraum über eine Mitarbeiterzahl zwischen 110 (2013) und 104 (2014), die auf der einen Seite aus Mitteln der Programmorientierten Förderung (PoF) der Helmholtz Gemeinschaft (HGF) und auf der anderen Seite aus Drittmitteln finanziert wurden. Ein Teil des IEK-3-Personals ist auf der Basis eines Teilzeitvertrages beschäftigt, so dass sich die effektive Personalkapazität in 2013 auf 104 PJ/a und in 2012 auf 97 PJ/a (vergleiche die jeweiligen Summen der Zahlen in Klammern in Tab. 19) belief.

## 6.4 Gremienarbeit

Die national wie international anerkannte Kompetenz des IEK-3 auf dem Gebiet der Brennstoffzellen- und Wasserstofftechnik schlägt sich auch in der Repräsentanz und Mitarbeit von IEK-3-Wissenschaftlern in nationalen und internationalen Gremien nieder. Ein Beitrag mit internationaler Sichtbarkeit ist die Leitung der 3<sup>rd</sup> International Conference on Energy Process Engineering 2013 durch Professor Stolten und die Koordination der Konferenz unter aktiver Mitwirkung von Wissenschaftlern des IEK-3. Darüber hinaus arbeiten zahlreiche Wissenschaftler des IEK-3 in leitenden Positionen verschiedener Gremien sowie als Mitglieder verschiedener Annexes des Advanced Fuel Cells (AFC) Implementing Agreement der International Energy Agency (IEA). Auf nationaler Ebene ist Professor Stolten Vorstands- und Beiratsmitglied des VDI-GVC Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen und wirkt für ProcessNet als Vorsitzender der Fachgruppe Energieverfahrenstechnik und als Mitglied des Lenkungskreises der Fachgemeinschaft SuPER mit. Weitere Gremienarbeiten der IEK-3-Mitarbeiter sind im Folgenden aufgelistet und erläutert.

### **IEA Advanced Fuel Cells Implementing Agreement**

seit 2000, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Leiter der Deutschen Delegation im Executive Committee*

seit 2002, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Stellvertretender Vorsitzender des Executive Committee*

seit 2009, Dr.-Ing. R.C.Samsun

*Mitglied des Executive Committee*

2009 - 2014, Dr.-Ing. M. Müller

*Operating Agent für Annex 27*

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Vorsitzender des Executive Committee*

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Operating Agent für Annex 36 „Systems Analysis“*

seit 2011, Dr.-Ing. R.C. Samsun

*Mitglieder des Annex 36 „Systems Analysis“*

seit 2013, Prof. L. Blum

*Mitglieder des Annex 32 „Solid Oxide Fuel Cells“*

seit 2014, Prof. Dr. S. Beale

*Operating Agent für Annex 37 „Modeling of Fuel Cell Systems“*

seit 2014, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten, Prof. L. Blum, Dr. W. Lücke, Dr. M. Müller

*Mitglieder des Annex 30 „Electrolysis“*

seit 2014, Prof. Dr. W. Lehnert

*Mitglieder des Annex 31 „Polymer Electrolyte Fuel Cells“*

seit 2014, Dr.-Ing. T. Grube

*Mitglieder des Annex 34 „Fuel Cells for Transportation“*

seit 2014, Dr.-Ing. M. Müller

*Mitglieder des Annex 35 „Fuel Cells for Portable Applications“*

seit 2014, Prof. L. Blum, D. Froning, Prof. Dr. A. Kulikovskiy, Prof. Dr. W. Lehnert, Dr. U. Reimer

*Mitglieder des Annex 37 „Modeling of Fuel Cell Systems“*

---

**Arbeitsgemeinschaft Elektrochemischer Forschungsinstitute (AGEF)**

seit 2000, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied*

---

**ProcessNet Fachgruppe Energieverfahrenstechnik**

seit 2003, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied der Fachgruppe*

seit 2006, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Stellvertretender Vorsitzender der Fachgruppe*

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Vorsitzender der Fachgruppe*

---

**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*

---

**WILEY-VCH Zeitschrift "Fuel Cells"**

seit 2006, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Beirats*

---

**Nationale Organisation Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie**

2007 - 2013, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Beirats und Vertreter der HGF für Forschung*

---

**N.ERGHY im FCH Undertaking der EU**

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Vertreter des Vollmitglieds Forschungszentrum Jülich*

seit 2008, Prof. Dr.-Ing. R. Peters

*Mitglied des Fachausschusses „AA Transport und Betankungsinfrastruktur“*

---

**ProcessNet Fachgemeinschaft SuPER**

Seit 2008, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Lenkungskreises*

---

**Forschungsverbund Erneuerbare Energien (FVEE)**

seit 2009, Dr.-Ing. B. Emonts

*Vertreter des Mitglieds Forschungszentrum Jülich für Brennstoffzellen*

---

**h2-netzwerk-ruhr**

seit 2009, Dr.-Ing. B. Emonts

*Mitglied des Beirats*

seit 2012, Dr.-Ing. B. Emonts

*Stellvertretender Vorsitzender des Beirats*

---

**IEA Experts' Group on Science for Energy (EGSE)**

seit 2009, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Co-Chairman*

---

**Arbeitsgemeinschaft Elektrochemischer Forschungseinrichtungen (AGEF)**

seit 2010, Dr. K. Wippermann

*Mitglied*

---

**Max Planck Institute for Dynamics of Complex Technical Systems Magdeburg**

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Wissenschaftlichen Beirats*

---

**Gesellschaft für Chemische Technik und Biotechnologie e.V. (DECHEMA)**

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied*

---

**VDI-GVC Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen**

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Vorstands und des Beirats*

---

**Deutscher Wasserstoff- und Brennstoffzellen-Verband (DWV)**

seit 2011, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Vertreter des Vollmitglieds Forschungszentrum Jülich*

---

**Netzwerk Brennstoffzelle und Wasserstoff NRW**

seit 2012, Dr.-Ing. B. Emonts und Dr.-Ing. T. Grube

*Vorsitzende der Plattform Wasserstoff und der Expertengruppe H<sub>2</sub>-System*

---

**Wuppertal Institut für Klima, Umwelt, Energie**

seit 2012, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Aufsichtsrats*

---

**International Association of Hydrogen Energy (IAHE)**

seit 2012, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Vizepräsident des Vorstands*

---

**Applied Energy Journal Elsevier**

seit 2012, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Redaktionsausschusses*

---

**3rd International Conference on Energy Process Engineering 2013: Transition to Renewable Energy Systems, Frankfurt am Main**

2012 -2013, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Konferenzleiter und Leiter des Organisationskomitees*

2012 - 2013, Dr.-Ing. B. Emonts

*Mitglied des Organisationskomitees*

---

**Hydrogen Power Storage & Solutions East Germany (HYPOS)**

seit 2013, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Vereinsvorstands*

---

**VDMA Arbeitsgruppe Brennstoffzellen - PG HT-BZ (SOFC)**

seit 2013, Prof. L. Blum

*Mitglied*

---

**Journal of Hydrogen Energy Elsevier**

seit 2014, Prof. Dr.-Ing. D. Stolten

*Mitglied des Redaktionsausschusses*

---

## 6.5 Beiträge zu Messen und Ausstellungen

Zur Demonstration seiner Innovationskraft und seiner FuE-Ergebnisse bieten Fachmessen und –ausstellungen ein exzellentes Umfeld mit vielseitigen Möglichkeiten der Kontaktaufnahme zu interessierten Besuchern sowie dem Informationsaustausch mit Partnern und fachnahen Experten. Im Berichtsjahr 2013 wirkte das IEK-3 an drei Messen und Ausstellungen in Hannover, Luzern und Hamburg mit. Die Einzelheiten können der folgenden Auflistung entnommen werden:

### 2013

---

#### Hannover Messe 2013

8. - 12.04.2013, Hannover

*Brennstoffzellen-Forschung und Technologieentwicklung*

---

#### 4<sup>th</sup> European PEFC & H<sub>2</sub> Forum

2. - 5.07.2013, Luzern, Schweiz

*Polymerelektrolytmembranen für Brennstoffzellen und Elektrolyseure*

---

#### f-cell

30.09. - 2.10.2013, Hamburg

*Elektrolyseure und batteriegestützte Brennstoffzellensysteme*

---

Alljährlicher Höhepunkt ist der Gemeinschaftsstand Wasserstoff und Brennstoffzellen anlässlich der Technologiemesse in Hannover dar (siehe Abb. 104, links). 2013 präsentierte das IEK-3 die neuesten Technologieentwicklungen zu Themenbereichen „Wasserstoff als ein zukünftiger Energievektor“ und „Technologien zur Nutzung von Biokraftstoffen“.



Abb. 104: Hannover Messe 2013 - Jülicher Messestand (links) und Interview mit Professor Ralf Peters (rechts)

Mit Reaktoren zum Aufbau eines Brenngaserzeugungssystems sowie HT-PEFC-Stacks mit verschiedenen Kühlkonzepten wurde der Entwicklungsstand bei der Bordstromversorgung für Anwendungen im Transportbereich gezeigt. Daneben wurde am Beispiel eines Serviceroboters die vielfältige Einsetzbarkeit der DMFC als Batterieersatz demonstriert. Aufbau und Funktion einer betriebsfähigen PEM-Elektrolysezelle zur Wasserstoffherzeugung konnte durch einen diesbezüglichen Demonstrator aus Plexiglas eindrucksvoll gezeigt werden. Das

Potenzial zur Rückverstromung von H<sub>2</sub> wurde durch ein Modell des SOFC-Teststands dokumentiert. Im Rahmen des sogenannten Public Forum stellte sich Professor Peters den Fragen der Moderatorin – in Abb. 104, rechts – zum Thema „Brennstoffzellensysteme für die Nutzung von Biokraftstoffen“.

Einen Überblick der 2014 besuchten Veranstaltungen und thematischen Ausrichtung gibt die folgende Auflistung.

## 2014

---

### Hannover Messe 2014

7. - 11.04.2014, Hannover

*Effiziente Stromerzeugung und H<sub>2</sub> für die Energiespeicherung und Mobilität*

---

### 20<sup>th</sup> World Hydrogen Energy Conference 2014

15. – 20.06.2014, Gwangju, Südkorea

*Forschung für die effiziente Erzeugung und Nutzung von Wasserstoff*

---

### 11<sup>th</sup> European SOFC Forum

1. - 4.07.2014, Luzern/Schweiz

*SOFC-Forschung und Technologieentwicklung*

---

### ProcessNet-Jahrestagung

30.09. – 2.10.2014, Aachen

*Jülicher Forschung für eine nachhaltige Energiebereitstellung*

---

### f-cell 2014

6. – 8.10.2014, Stuttgart

*Batteriegestützte Brennstoffzellensysteme und Elektrolyseure für die großtechnische Energiespeicherung*

---

Unter dem Motto „Werkstoffforschung und Elektrochemische Verfahrenstechnik für die Energiewende“ präsentierte sich das IEK-3 zusammen mit IEK-1 und ZEA-1 auf der Hannover Messe 2014. Das Spektrum der Exponate reichte von Zellkomponenten, Zellen und Stacks zur PEM-Elektrolyse, SOFC und HT-PEFC über ein Brenngaserzeugungsmodul bis hin zu einem funktionsfähigen DMFC-System für die unterbrechungsfreie Stromversorgung (siehe Abb. 105, links). Ein Höhepunkt des Messeauftritts war der Informationsbesuch von Ministerin Svenja Schulze auf dem Jülicher Messestand (siehe Abb. 105, rechts).



Abb. 105: Hannover Messe 2014 - Jülicher Messestand (links) und Informationsbesuch von Ministerin für Innovation, Wissenschaft und Forschung Svenja Schulze (rechts)

## 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. 106: 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. 107: Lageplan Forschungszentrum Jülich

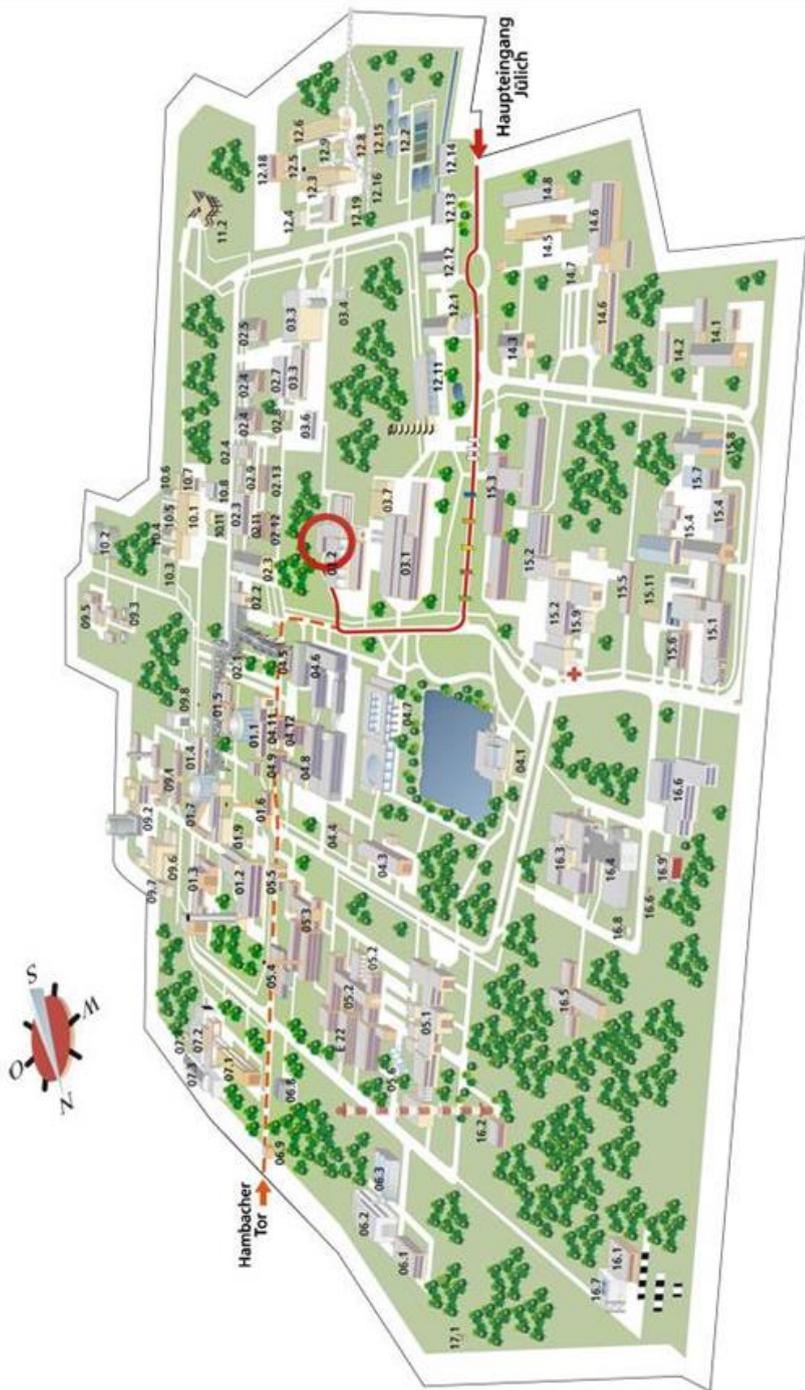


Abb. 108: Lageplan Institut für Energie- und Klimaforschung, IEK-3: Elektrochemische Verfahrenstechnik, Helmholtz-Ring H8, Geb. 03.2

## 6.7 Abkürzungsverzeichnis

ADELHEID	NRW-Projekt „Aus dem Labor heraus in die Lüft“
AFC	Advanced Fuel Cells Implementing Agreement der International Energy Agency
AGEF	Arbeitsgemeinschaft Elektrochemischer Forschungseinrichtungen e.V.
APU	Bordstromversorgungseinheit (engl.: Auxiliary Power Unit)
ASR	Flächen spezifischer Widerstand (engl.: Area Specific Resistance)
ARTEMIS	Europäischer Fahrzyklus zur Messung von Fahrzeug-Schadstoffemissionen (engl.: Assessment and Reliability of Transport Emission Models and Inventory Systems)
ATR	Autotherme Reformierung
BBP	Benzyl-Butyl-Phthlat (engl.: Benzyl butyl phthalate)
BESSY	Berliner Elektronenspeicherring-Gesellschaft für Synchrotronstrahlung
BET	Analyseverfahren zur Größenbestimmung von Oberflächen (Brunauer-Emmett-Teller)
BEV	Batterieelektrisches Fahrzeug (engl.: Battery Electric Vehicle)
BGS	Abteilung Brenngaserzeugung und Systeme
BHKW	Blockheizkraftwerk
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
BMWi	Bundesministerium für Wirtschaft
BMVBS	Bundesministerium für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung
BREZEL	Expertenkomitee Brennstoffzelle des Vereins Deutscher Ingenieure (VDI)
BTL	Biomasse zu Flüssigkraftstoff (engl.: Bio-To-Liquid)
BZ	Brennstoffzellen
CAB	Katalytbrenner (engl.: Catalytic Burner)
CAPM	Modell zur Beschreibung des Verhältnisses zwischen Risiko und Erlös am Markt (engl.: Capital Asset Pricing Model)
CCM	Katalysatorbeschichtete Membran (engl.: Catalyst Coated Membrane)
CFD	Rechnergestützte Fluiddynamik (engl.: Computational Fluid Dynamics)
CGO	Cerium-Gadoliniumoxid: $Ce_{0,8}Gd_{0,2}O_{2,8}$
CLSM	Konvokales Laserscanning-Mikroskop (engl.: Confocal Laser Scanning Microscope)
CO	Kohlenmonoxid (engl.: Carbon Monoxide)
CONCAWE	Europäische Organisation für Umwelt, Gesundheit und Sicherheit bei Raffination und Distribution (engl.: Conservation of Clean Air and Water in Europe)
CS	Cassetten-Substrat-Konzept
CV	Cyclovoltametrie
CVD	Chemische Gasphasenabscheidung (engl.: Chemical Vapor Deposition)
DECHEMA e.V.	Gesellschaft für Chemische Technik und Biotechnologie e.V.
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
DIN EN ISO	branchenunabhängige Zertifizierungsnorm für Qualitätsmanagementsysteme
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DME	Dimethylether
DMFC	Direktmethanol-Brennstoffzelle (engl.: Direct Methanol Fuel Cell)
DSC	Differenzthermoanalysator (engl.: Differential Scanning Calorimeter)
DWV	Deutscher Wasserstoff- und Brennstoffzellen-Verband

EBSD	Elektronenbeugungsverfahren
ECE	Kommissionierer der Firma Jungheinrich: Hub 1,25 m; Last 2 - 2,5 t
ECE	Städtischer Fahrzyklus, EU (engl.: Economic Commission for Europe)
ECS	Elektrochemische Gesellschaft (engl.: ElectroChemical Society)
ECSA	Elektrochemisch verfügbare Oberfläche (engl.: electrochemically Available Surface Area)
EDX	Energiedispersive Röntgenspektroskopie (engl.: Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy)
EE	Erneuerbare Energie
EEG	Erneuerbare Energien Gesetz
EEL	Abteilung Elektrochemie Elektrolyse
EFFESYS-BRINKS	Projekt zur Stackentwicklung für eine Flugzeug-APU
EGSE	Expertengruppe für Energiewirtschaft (engl.: Experts Group on Science for Energy)
EIS	Elektrochemische Impedanzspektroskopie
Energy Lab	HGF-Forschungsvorhaben zur Untersuchung großskaliger Energiesysteme für die Netzstabilisierung
EOL	Lebensende (engl.: End of Life)
EU	Europäische Union
EUDC	Überlandfahrzyklus, EU (engl.: Extra Urban Driving Cycle)
FCH	Brennstoffzelle und Wasserstoff (engl: Fuel Cell and Hydrogen)
FCV	Elektro-Pkw mit Brennstoffzellen (engl: Fuel Cell Electric Vehicle)
FEM	Finite Elemente Modelling (engl.: Finite Element Modelling)
FG	Flächengewichtswert
FRT	Frosttag
FTIR	Fourier-Transformationsinfrarot-Spektroskopie (engl.: Fourier transform infrared spectroscopy)
FTP	Fahrzyklus, USA (engl.: Federal Test Procedure)
FVEE	Forschungsverbund Erneuerbare Energien
FZJ	Forschungszentrum Jülich GmbH
GC/MS	Gaschromatograph gekoppeltes Massenspektrometer
GDE	Gasdiffusionselektrode
GDL	Gasdiffusionsanlage
GHSV	Stundenbezogene Raumgeschwindigkeit von Gasen (engl.: Gas hourly space velocity)
GIS	Geographisches Informationssystem (engl.: Geographic information system)
GRL	Grundlast
GTL	Gas zu Flüssigkraftstoff (engl.: Gas-To-Liquid)
GVC	Gesellschaft Verfahrenstechnik und Chemieingenieurwesen
HEV	Hybrid-Pkw mit Verbrennungsmotor (engl.: Hybrid Electric Vehicle)
HGF	Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren
HPC	Hochleistungsrechner (engl.: High-Performance-Computing)
H-REM	Hochauflösendes Rasterelektronenmikroskop
HT	Hochtemperatur
HT-PEFC	Hochtemperatur-Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle
HTS	Hochtemperatur-Zone (engl.: High-Temperature Section)
HWFET	Highway Fuel Economy Test

HYPOS	Projektkooperation zur Demonstration wasserstoffbasierter Energie- und Speicherlösungen (engl.: Hydrogen Power Storage & Solutions East Germany)
HYZEM	Fahrzyklus (engl.: Hybrid Technology Approaching Efficient Zero Emission Mobility)
IAHE	Internationale Organisation für Wasserstoffenergie (engl.: International Association of Hydrogen Energy)
IGB-2	Institut für Bio- und Geowissenschaften - Pflanzenwissenschaften
ICEPE	Internationale Konferenz für Energieverfahrenstechnik (engl.: International Conference on Energy Process Engineering)
ICP-MS	Induktive gekoppeltes Plasma mit Massenspektrometrie (engl.: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)
ICV	Antriebssysteme mit Verbrennungsmotor (engl.: Internal Combustion Engine Vehicle)
IEA	Internationale Energieagentur (engl.: International Energy Agency)
IGCC	Kombiprozess mit integrierter Vergasung (engl.: Integrated Gasification Combined Cycle)
IQ-BZ	Initiative Qualifizierung Brennstoffzelle
IEK-1	Institut für Energie- und Klimaforschung - Werkstoffsynthese und Herstellungsverfahren
IEK-2	Institut für Energie- und Klimaforschung - Werkstoffstruktur und -eigenschaften
IEK-3	Institut für Energie- und Klimaforschung - Elektrochemische Verfahrenstechnik
IEK-9	Institut für Energie- und Klimaforschung - Grundlagen der Elektrochemie
IL	Ionische Flüssigkeit
JC08	Japanischer Fahrzyklus
JSC	Jülich Supercomputing Centre
JuHY	Jülicher Wasserstofftechnikum
JuLab	Jülicher Schülerlabor
JULABOS	Jülicher Lattice-Boltzmann Softwaretool
JUROPA	Jülicher Supercomputer
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
KKL	Keine Klimatisierung
LSCF	Lanthanum-Strontium-Eisen-Kobalit
LNG	Flüssigerdgas (engl.: Liquefied Natural Gas)
LTS	Niedertemperatur Shift (engl.: Low-Temperature Shift)
MATLAB	Programmiersprache für technische Berechnungen
MBE	Molekularstrahlepitaxie
MEA	Membran-Elektroden-Einheit (engl: Membrane Electrode Assembly)
MEE	Membran-Elektroden-Einheiten
MeOH	Methanol: CH <sub>3</sub> OH
MODEM	Fahrzyklus (engl.: Modelling of Emissions and Fuel Consumption in Urban Areas)
MS	Massenspektroskopie
MVEG	Fahrzyklus EU (engl.: Motor Vehicle Emissions Group)
Nafion®	Eingetragenes Warenzeichen für ein sulfoniertes Tetrafluorethylen-Polymer

NDIR	Nichtdispersive Infrarotanalysator (engl.: Nondispersive Infrared Adsorption Analyser)
N.ERGHY	Organisation der europäischen Einrichtungen für Brennstoffzellen- und Wasserstoffforschung
NESTE Oil	Finnische Raffinations- und Vertriebsgesellschaft
NExBTL	Palmölbasierter Kraftstoff
NMHC	Kohlenwasserstoffe außer Methan (engl.: Non-Methane-Hydrocarbons)
NMR	Kernspinresonanzspektroskopie (engl.: Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy)
NPOC	Nichtflüchtiger organischer Kohlenstoff (engl.: Non-Purgeable Organic Carbon)
NRW	Nordrhein-Westfalen
NTS	Niedertemperatur-Shiftstufe
OCV	Zelle im stromlosen Zustand (engl.: Open Cell Voltage)
OpenFOAM	freies Simulationssoftwarepaket für kontinuumsmechanische Probleme (engl.: Open Source Field Operation and Manipulation)
ORR	Sauerstoffreduktionsreaktion (engl.: Oxygen Reduction Reaction)
PAH	Parallelhybrid-Pkw mit Verbrennungsmotor und Batterie
PBI	Polybenzimidazol
PCI	Physikalisch-Chemischen Institut der Universität Giessen
PEFC	Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (engl.: Polymer Electrolyte Fuel Cell)
PEM	Polymerelektrolytmembran
PEM-EL	Polymerelektrolytmembran-Elektrolyse
PEMFC	Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen
PHOEBUS	Jülicher Forschungs- und Entwicklungsprojekt zur Photovoltaik, Elektrolyse, Brennstoffzelle und Systemtechnik
PIL	Protonenleitender ionischer Flüssigkeiten (engl.: Proton Conductive Ionic Liquids)
PLD	Gepulste Laserablation bzw. -Deposition (engl.: Pulsed Laser Ablation/Deposition)
POF	Programmorientierte Förderung
ProcessNet	Initiative von DECHEMA und VDI-GVC
PROX	Präferentielle Oxidation
PTFE	Polytetrafluoroethylen
PtG	Strom-zu-Gas (engl.: Power-to-Gas)
QM	Qualitätsmanagement
REM	Rasterelektronenmikroskopie
RHE	Reversible Wasserstoffelektrode (engl.: reversible hydrogen electrode)
RDE	rotierenden Scheibenelektrode (engl.: Rotating Disc Electrode)
RR	Anodenabgasrezirkulationsverhältnis
rSOC	Reversible Festoxidzelle (engl.: Reversible Solid Oxide Cell)
RWTH	Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen
SAED	Ausgewählte Feinbereichsbeugung (engl.: Selected Area Electron Diffraction)
SC03	Fahrzyklus, Teil der Supplemental Federal Test Procedure (SFTP), berücksichtigt Fahrzeugklimatisierung
SCT	Segmentierte Zellentechnologie (engl.: Segmented Cell Technology)
SD	Standarddiesel

SeaTfo	2-Sulfoethylammoniumtrifluormethansulfonat
SEM	Rasterelektronenmikroskop (engl.: Scanning Electron Microscope)
SOE	Hochtemperatur-Elektrolyse (engl.: Solid Oxide Electrolysis)
SOFC	Festoxid-Brennstoffzelle (engl.: Solid Oxide Fuel Cell)
SOP	Standardbetriebsprozeduren (engl.: Standard-Operation-Procedures)
SPI	Sulfonierte Polyimide
SRMS	ortsaufgelöste Massenspektrometrie (engl.: Magnetic Imaging and Mass Spectroscopy)
SuPER	ProcessNet Fachgemeinschaft für nachhaltige Produktion, Energie und Ressourcen (engl.: Sustainable Production, Energy and Ressources)
SWOT	Analysemethode im Hinblick auf Stärken, Schwächen, Möglichkeiten und Risiken (engl.: Strengths, Weaknesses, Opportunities and Threats)
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
TESA	Kooperationsvorhaben für Technikbasierte Energiesystemanalyse
TG	Thermogravimetrische Analyse
TGA	Thermogravimetrie-Analysator
THG	Treibhausgas
TOC	Gesamtkohlenstoffkonzentration aller organischer Bestandteile (engl.: Total Concentration of Total Organic Carbon)
TRENDS	Veranstaltung einer Expertenrunde zum Übergang zu erneuerbaren Energieeinrichtungen und -systeme (engl.: Transition to Renewable Energy Devices and Systems)
TTW	Analyse der Energienutzung im Fahrzeug (engl.: Tank-to-Wheel)
US06	Fahrzyklus, Teil der Supplemental Federal Test Procedure (SFTP), berücksichtigt aggressives Fahrverhalten
USV	Unterbrechungsfreie Stromversorgungen
VDI	Verein Deutscher Ingenieure e.V.
VEL	Abteilung Verfahrenstechnik Elektrolyse
VA-RHLQ	Jülicher Verfahrensanweisung für die Erstellung, Änderung, Prüfung, Freigabe, Verteilung und Archivierung von Dokumenten
VSA	Team Verfahrens- und Systemanalyse
WACC	Bewertungsmethode für gewichtete, durchschnittliche Kapitalkosten (engl.: Weighted Average Cost Of Capital)
WBZU	Weiterbildungszentrum Brennstoffzelle Ulm e.V.
WEA	Windenergieanlage
WGS	Water-Gas Shift Reaktor
WHEC	Welt-Wasserstoffenergie Konferenz (engl.: World Hydrogen Energy Conference)
WILEY-VCH	WILEY-Verlag Chemie
WLTC	Fahrzyklus (engl.: Worldwide Harmonized Light-duty Driving Test Cycle)
WTT	Analyse der Energienutzung vom Bohrloch bis zur Fahrzeugbetankung (engl.: Well-to-Tank)
XPS	Röntgenphotoelektronenspektroskopie (engl.: X-ray Photoelectron Spectroscopy)
XRD	Röntgenbeugung (engl.: X-ray Diffraction)
YSZ	Yttriumoxid stabilisiertes Zirkonoxid
ZEA-1	Zentralinstitut für Engineering, Elektronik und Analytik – Engineering und Technologie



Band / Volume 267

**Secondary Uranium Phases of Spent Nuclear Fuel  
– CoXnite,  $USiO_4$ , and Studtite,  $UO_4 \cdot 4H_2O$  – Synthesis, Characterization,  
and Investigations Regarding Phase Stability**

S. Labs (2015), 153, xlii pp

ISBN: 978-3-95806-063-0

Band / Volume 268

**Chemische, verfahrenstechnische und ökonomische Bewertung von  
Kohlendioxid als Rohstoff in der chemischen Industrie**

A. Otto (2015), viii, 272 pp

ISBN: 978-3-95806-064-7

Band / Volume 269

**Energetische und wirtschaftliche Optimierung  
eines membranbasierten Oxyfuel-Dampfkraftwerkes**

Y. Nazarko (2015), IV, 337 pp

ISBN: 978-3-95806-065-4

Band / Volume 270

**Investigation of light propagation in thin-film silicon solar cells  
by dual-probe scanning near-field optical microscopy**

S. Lehnen (2015), 120 pp

ISBN: 978-3-95806-066-1

Band / Volume 271

**Characterization of soil water content variability at the catchment scale  
using sensor network and stochastic modelling**

W. Qu (2015), XVI, 123 pp

ISBN: 978-3-95806-067-8

Band / Volume 272

**Light Absorption and Radiative Recombination in Thin-Film Solar Cells**

T. C. M. Müller (2015), ii, 146 pp

ISBN: 978-3-95806-068-5

Band / Volume 273

**Innenbeschichtung poröser Körper mittels Atomlagenabscheidung  
zur Redoxstabilisierung anodengestützter Festoxidbrennstoffzellen**

T. Keuter (2015), XII, 133 pp

ISBN: 978-3-95806-069-2

Band / Volume 274

**Thermochemical Modeling of Laves Phase Containing Ferritic Steels**

A. Jacob (2015), 200 pp

ISBN: 978-3-95806-070-8

Band / Volume 275

**Lithiumbatterien für stationäre und mobile Anwendungen:  
Benchmarking und experimentelle Umsetzung**

T. Bergholz (2015), vi, 387 pp

ISBN: 978-3-95806-071-5

Band / Volume 276

**Pyrochlore as nuclear waste form: actinide uptake and chemical stability**

S. C. Finkeldei (2015), IX, 155 pp

ISBN: 978-3-95806-072-2

Band / Volume 277

**Herstellung von Elektrodenstrukturen für Lithium-Ionen-  
Dünnschichtbatterien**

A. Bünting (2015), v, 151 pp

ISBN: 978-3-95806-073-9

Band / Volume 278

**Keramiken des Monazit-Typs zur Immobilisierung  
von minoren Actinoiden und Plutonium**

J. M. Heuser (2015), viii, 212 pp

ISBN: 978-3-95806-076-0

Band / Volume 279

**IEK-3 Report 2015**

**Systems Research and Engineering for a Sustainable Energy Supply**  
(2015), 182 pp

ISBN: 978-3-95806-077-7

Band / Volume 280

**IEK-3 Report 2015**

**Systemforschung und –technik für eine nachhaltige Energieversorgung**  
(2015), 184 pp

ISBN: 978-3-95806-078-4

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>

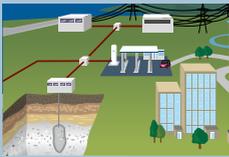


## Institut für Energie- und Klimaforschung – Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

Das IEK-3 ist einer von derzeit zehn Institutsbereichen des Instituts für Energie- und Klimaforschung. Die Forschungsarbeiten des IEK-3 sind auf die Bereitstellung technischer Lösungen für eine zukünftig nachhaltige Energieversorgung durch den Einsatz elektrochemischer Energieumwandlungsverfahren ausgerichtet. Dabei liegen die Schwerpunkte auf der Elektrochemie und der Verfahrenstechnik für oxidkeramische und Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen mit oder ohne Reformierung sowie für die Wasserelektrolyse. Diese Umwandlungstechniken werden mit einem interdisziplinären Wissenschaftlerteam von den wissenschaftlichen Grundlagen bis zur systemtechnischen Anwendung bearbeitet. Im IEK-3 stehen Labore für bildgebende, physikochemische und elektrochemische Untersuchungen zur Verfügung, die durch Einrichtungen zur Präparation und Probenvorbereitung ergänzt werden. Darüber hinaus erlauben universelle sowie spezielle Testeinrichtung die eingehende Betriebsuntersuchung und Charakterisierung der unterschiedlichen Wandler vom Quadratcentimeter bis in den  $m^2$ -Maßstab. Zur Vorbereitung eines Technologietransfers hat das IEK-3 ein Technikum geschaffen, das die parallele Entwicklung einer industrienahen, reproduzierbaren Fertigung funktionaler Schichtsysteme wie z.B. Elektroden, Gasdiffusionslagen und Membranelektroden-Einheiten sowie die präzise Assemblierung vierteiliger Stacks erlaubt. Durch die Ergebnisse der Verfahrens- und Systemanalyse ist es möglich, erfolgversprechende FuE-Themen für die Zukunft zu identifizieren und zu bewerten, die eigene Technologieentwicklung mit konventionellen Techniken zu vergleichen, Energiepfade und Energieversorgungsnetze auszulegen sowie Empfehlungen für die daran interessierten, gesellschaftlichen Bereiche auszuarbeiten und diese zu beraten. In erheblichem Umfang macht das IEK-3 Aus- und Weiterbildungsangebote in Zusammenarbeit mit Universitäten, Fachhochschulen und anderen Ausbildungseinrichtungen.



Erneuerbare Energiequellen wie Wind, Wasser und Sonne werden in Zukunft den Energiebedarf in dezentralen Einheiten weitgehend sicherstellen. Die damit verbundene, fluktuierende Energiebereitstellung erfordert den Aufbau großtechnischer Elektrolyseure, Speicher und Reservekraftwerke.



Die Elektrolyse dient als primärer Umwandlungsprozess von regenerativ erzeugtem Überschussstrom in Wasserstoff für die Druckgasspeicherung in großvolumigen Salzkavernen. Ein Pipelinennetz zum Transport und zur Verteilung großer  $H_2$ -Mengen stellt die wirtschaftliche und sichere  $H_2$ -Bereitstellung hin zu Tankstellen und anderen Nutzungsstätten wie Raffinerien und Reservekraftwerken sicher.



Zusätzlich zur direkten  $H_2$ -Nutzung in Pkw, Bussen und Transportern mit Brennstoffzellenantrieb stellt die indirekte Nutzung als Biokraftstoff eine vielversprechende Option zur  $CO_2$ -Vermeidung im Bereich von Flug-, Lkw-, Bahn- und Schiffsverkehrsanwendungen dar. Bei der großtechnischen Kraftstoffherstellung wird in einer entsprechenden Raffinerie biomassebasierter Kohlenstoff zusammen mit  $H_2$  zu flüssigem Biokraftstoff verarbeitet und über eine Trailer-basierte Verteilung an die jeweiligen Dispenser einer Bio- oder Flughafentankstelle verteilt.